



HAL
open science

Agglomération de particules par voie humide en lit fluidisé

Maria-Teresa Jimenez-Munguia

► **To cite this version:**

Maria-Teresa Jimenez-Munguia. Agglomération de particules par voie humide en lit fluidisé. Sciences de l'ingénieur [physics]. ENSIA (AgroParisTech), 2007. Français. NNT : 2007AGPT0091 . pastel-00005196

HAL Id: pastel-00005196

<https://pastel.hal.science/pastel-00005196>

Submitted on 17 Jun 2009

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

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

No. Ordre : 166

**Ecole Nationale Supérieure
des Industries Agricoles et Alimentaires**

Ecole doctorale Agriculture, Alimentation, Biologie, Environnements et Santé

THESE DE DOCTORAT

Spécialité Génie des Procédés

***Agglomération de particules par voie humide
en lit fluidisé***

présentée par

Maria Teresa JIMENEZ MUNGUIA

Thèse dirigée par Elisabeth DUMOULIN
Soutenue le 11 janvier 2007

Jury :

Mr John DODDS, Professeur à l'Ecole des Mines d'Albi

Mr Zeki BERK, Professeur Emeritus, Technion (Israel)

Mr Jean-Dominique DAUDIN, Directeur de recherche à l'INRA

Mme Elisabeth DUMOULIN, Professeur à l'ENSIA

Mme Christelle TURCHIULI, Maître de conférences à l'IUT d'Orsay

Mr Stephan PALZER, Dr. Ingénieur, NESTLE (Allemagne)

Rapporteur

Rapporteur

Examineur

Examineur

Examineur

Examineur

À Sofia

Remerciements

Je remercie Messieurs Zeki Berk, professeur Emeritus en Israel, et John Dodds, professeur à l'Ecole de Mines d'Albi, d'avoir accepté d'être rapporteurs de cette thèse.

Je remercie Messieurs Jean-Dominique Daudin, directeur de recherche INRA à Theix, et Stephan Palzer, docteur ingénieur Nestlé en Allemagne, d'avoir accepté d'examiner mon travail.

Je remercie le CONACYT (Consejo Nacional de Ciencias y Tecnología) du Mexique, pour le financement de mes études doctorales, dans le cadre d'un programme de coopération scientifique et technique franco-mexicain Sfere-Conacyt.

Je remercie le professeur Gilles Trystram pour m'avoir acceptée en thèse au département GIA de l'ENSIA.

Je remercie mes directrices de thèse Mesdames Elisabeth Dumoulin et Christelle Turchiuli pour leurs conseils et leur générosité ; pour leur exemple professionnel et les nombreuses discussions qui ont enrichi mes trois années en recherche. Merci aussi pour leur précieux temps consacré au travail mais aussi pour l'aspect humain.

Je remercie les enseignants et chercheurs du GIA qui m'ont gentiment accueillie. Monsieur Bertrand Broyard pour son aide, son temps et sa patience pour la partie modélisation. Monsieur Bertrand Heyd pour son temps et son appui pour l'utilisation de MATLAB. Messieurs Alain Sommier et Christophe Chipeaux pour leur disponibilité lors de l'instrumentation du pilote et la mise en place de l'acquisition des données pour les essais. Monsieur Robert Sawka pour sa disponibilité et son assistance technique ainsi que Camille Michon, Samir Kadir et Pablo Granda qui nous ont permis de faire des analyses au Laboratoire de Biophysique, à l'Ensia.

Je remercie également les personnels de l'Ensia, et plus particulièrement l'équipe du GIA, pour sa gentillesse et ses encouragements, Monique Belgome, Michèle Braz Dos Santos, Adriama Vatosoa et Colette Maillard, Valérie Lalanne, Odile Mathieu et Sabine Lacour, Richard Lewandowski, Aurélien Neveu et Saïd Moussa, pour leur gentillesse et encouragements.

Je remercie Eduardo Castillo, professeur invité à l'Ensia, pour les discussions scientifiques, les idées et son intérêt pour mon sujet de thèse, pour son soutien et son amitié.

Avec des souvenirs très agréables, je remercie mes amis thésards Nawel, Imen, Camille, Bety, Ladan, Estelle, Anay, Chaleeda, Mouin, Grégoire, Thibaud, Richard, Mohammad, Alessandro, Samir, Housseem et Ali, qui m'ont toujours encouragée. Merci spécialement aux filles pour leur soutien moral et leur amitié. Je remercie aussi les nouveaux arrivés en thèse, Souad, Emilie, Reza, Ali et Marjorie ; et aux stagiaires Fatia et Guillaume, pour leur gentillesse. Particulièrement, merci aux étudiants qui ont travaillé avec moi, Julien Gaudin et Elodie Delongvert.

Je remercie spécialement les familles Fourgreau, Yahia et Legendre pour leur générosité, soutien et inestimable aide. Merci également à la famille Carrue et Monique Belgome, pour leur disponibilité et aimable accueil en France.

Pour leur présence à courte ou longue distance, je remercie l'appui incomparable des mes amis Lorena, Myriam, Karina, Claudia et Oliver, Bety et Michael, Alex et Irene, famille Bernal, Manolo et Pablo.

Avec admiration, respect et tout mon amour je remercie l'appui infini de mes parents, merci pour m'avoir encouragée dès le début de cette expérience. Merci aussi pour le soutien inconditionnel à mon frère, mes sœurs et leurs familles, mes cousins Claudia et Jochen, et José. Merci pour avoir été toujours présents à longue ou moyenne distance.

Finalement, je remercie ma fille Sofi, merci infiniment pour ta patience, tes sages conseils, et la joie que tu apportes à ma vie.

Résumé

L'agglomération de particules solides modifie leurs propriétés physiques (taille, forme, densité, porosité) et celles de la poudre constituée d'agglomérats (coulabilité, instantanéité), importantes pour les produits alimentaires. La pulvérisation de liquide (solvant, solution de liant) à la surface des particules fluidisées (air chaud) permet la création de ponts liquides, consolidés par séchage par l'air chaud. Dans cette étude, le jet de gouttes pulvérisées est caractérisé (angle et forme ; taille des gouttes) pour différentes conditions de pulvérisation. La région de mouillage « basse température » où l'agglomération se produit, est identifiée par la mesure des températures d'air dans un lit fluidisé de billes de verre pulvérisées par de l'eau. La taille et la forme de cette région dépendent des conditions opératoires (température d'entrée d'air, charge en particules, débit liquide pulvérisé, pression de pulvérisation). Des essais d'agglomération ont été réalisés avec des billes de verre non solubles (sphériques, ~160 µm) en pulvérisant des solutions de gomme d'acacia (20-30% w/w) ; puis des particules de maltodextrine solubles (~180 µm) en pulvérisant de l'eau ou des solutions de maltodextrine/ou de gomme (20% w/w). Une agglomération contrôlée est obtenue pour un volume de la zone de mouillage compris entre 18 et 30% du lit fluidisé. Les particules non solubles nécessitent une pré-couche alors que les particules solubles s'agglomèrent dès le mouillage. Dans les deux cas, la taille atteint un maximum, plus élevé pour les particules solubles ou pour un débit de liquide élevé. L'analyse des propriétés des poudres agglomérées montre une résistance mécanique et une taille plus faibles pour les agglomérats formés à partir des gouttes pulvérisées les plus petites. Les agglomérats les plus gros sont irréguliers, plus résistants. A partir de bilans de population, un modèle décrivant la croissance de taille dans la zone de mouillage est proposé et validé.

Mots clés : fluidisation, particules, poudre, agglomération

Abstract

Particles agglomeration allows to modify their initial physical properties (size, shape, density, porosity) and to improve powder end-use properties like flowability, mechanical resistance and dispersibility, very important for pharmaceuticals and food products. Fluidized bed agglomeration is obtained by spraying a liquid (solvent, binder solution) on fluidized particles to allow liquid bridges formation when wet particles collide. These bridges consolidate due to drying by the hot fluidizing air. In this study, the sprayed liquid jet was characterized (shape, angle, liquid drop size and size distribution) for different spraying conditions and a wetting region, of low temperature, was identified in the bed performing air temperature measurements in a fluidized bed of glass beads top spraying water. The size and shape of this region, where the sprayed liquid wets the fluidized particles and where agglomeration predominantly occurs, were found to depend on operating conditions (inlet air temperature, particle load, liquid feed rate, spraying pressure). Agglomeration trials performed with spherical, non-soluble glass beads (~160 µm) spraying acacia gum solutions (20–30% w/w) and with irregular, soluble maltodextrin particles (~180 µm) spraying water or maltodextrin and acacia gum solutions (20% w/w) demonstrated that controlled agglomeration was achieved for a wetting zone occupying between 18 and 30% of the fluidized bed. Non-soluble particles required a preliminary coating period before starting to agglomerate whilst soluble particles became sticky and agglomerated as soon as their surface was wetted by the sprayed liquid. For both types of particles, the growing period was stopped when a maximal size of agglomerates was reached. It was higher for soluble particles and increased when increasing the sprayed liquid flow rate. Analysis of powder properties demonstrate that small drops of the sprayed liquid lead to small and weak agglomerates. Bigger agglomerates had a more irregular shape but a better mechanical resistance. A model using population balance equations to describe the particle size increase and the evolution of the size distribution during agglomeration in the wetting zone, was proposed and validated.

Keywords : fluidisation, particles, powder, agglomeration

Resumen

La aglomeración de partículas permite la modificación de sus propiedades físicas iniciales (tamaño, forma, densidad, porosidad) y la mejora de aquellas del polvo, constituido por los aglomerados, como las propiedades de transporte y uso (instantaneización) muy importantes en los productos alimentarios. La aglomeración en lecho fluidizado se obtiene espreando un líquido (solvente, solución de ligadura) a las partículas fluidizadas, permitiendo la formación de puentes líquidos cuando éstas entran en colisión. Estos puentes se consolidan gracias al secado por el aire caliente de fluidización.

En este estudio, el jet de esperado fue caracterizado (forma, ángulo; tamaño y distribución de tamaño de las gotas espreadas) para diferentes condiciones de espreado. Una región de “mojado”, de baja temperatura, donde la aglomeración es producida, fue identificada, realizando mediciones de temperatura en el lecho fluidizado de esferas de vidrio espreando agua. El tamaño y la forma de esta región dependen de las condiciones de operación (temperatura del aire de entrada, carga de partículas, alimentación del líquido de espreado y presión del aire de esperado). Ensayos de aglomeración realizados con esferas de vidrio, insolubles, (~160 µm) espreando soluciones de goma de acacia (20-30% p/p) y con partículas solubles de maltodextrina (~180 µm) espreando agua o soluciones de maltodextrina/ goma de acacia (20% p/p). Una aglomeración controlada es obtenida con una región de mojado ocupando entre 18 y 30% del lecho fluidizado. Las partículas insolubles requieren un recubrimiento inicial para aglomerarse mientras que las partículas solubles se aglomeran en cuanto su superficie es mojada. En ambos casos, un tamaño máximo es obtenido y los más altos son obtenidos con las partículas solubles y una alimentación del líquido de espreado elevado. El análisis de las propiedades del polvo muestra una baja resistencia mecánica y tamaños pequeños de aglomerados cuando las gotas esperadas son pequeñas. Los aglomerados más grandes e irregulares son los más resistentes. A partir de los balances de población, un modelo que describe el crecimiento en tamaño de las partículas en la región de mojado, es propuesto y validado.

Palabras clave: fluidización, partículas, polvo, aglomeración

Communications en congrès

Jimenez Teresa, Turchiuli Christelle, Elisabeth Dumoulin
Agglomération en Lit fluidisé – Zone de mouillage et Cinétique de croissance
Journées de l'Ecole Doctorale ABIES.15, 16 Mars. Paris, France.

Jimenez Teresa, Turchiuli Christelle, Elisabeth Dumoulin
Process variables effect on physical properties and particle growth in fluidized bed
agglomeration.
V Congreso Iberoamericano de Ingenieria en Alimentos.
4-7 Septembre, 2005. Puerto Vallarta, Mexique.

Jimenez Teresa, Turchiuli Christelle, Elisabeth Dumoulin
Agglomération des particules par voie humide dans un lit fluidisé conique.
Récents Progrès en Génie des Procédés, Numéro 92 – 2005.
SFGP 2005. 20-22 Septembre 2005. Toulouse, France.

Turchiuli Christelle, Jimenez Teresa, Delongvert Elodie, Dumoulin Elisabeth.
Food Powders : particles shape and end-use properties.
13th World Congress of Food Science and Technology. IUFOST 2006.
17-21 Septembre 2006. Nantes, France

Publication

Jimenez Teresa, Turchiuli Christelle, Elisabeth Dumoulin (2006)
Particles agglomeration in a conical fluidized bed in relation with air temperature profiles.
Chemical Engineering Science, vol. 61(18), 5954-5961.

Table des matières

Remerciements

Résumé, Abstract, Resumen

Communications de travaux

Table de matières

| | |
|--|----|
| Introduction | 1 |
| CHAPITRE I. Etude Bibliographique | |
| 1. L'agglomération de particules solides | 5 |
| 1.1. Le principe | |
| 1.2. L'agglomération en lit fluidisé | |
| 2. La fluidisation des particules | 7 |
| 2.1. Le principe | |
| 2.2. Limites du domaine de fluidisation | |
| 2.3. Cas du lit fluidisé conique | |
| 3. La pulvérisation des gouttes | 11 |
| 3.1. Le principe | |
| 3.2. Les techniques de mesures de la taille des gouttes | |
| 3.3. Taille des gouttes obtenues avec une buse bi-fluide | |
| 4. Les collisions en lit fluidisé | 14 |
| 4.1. Contacts gouttes-particules solides | |
| 4.2. Collisions particule-particule | |
| 4.3. Ponts liquides | |
| 4.4. Consolidation par séchage | |
| 5. Caractéristiques et propriétés des particules/agglomérats et des poudres | 17 |
| 5.1. La taille et forme des particules | |
| 5.2. Masses volumiques et porosité | |
| 5.3. Ecoulement | |
| 5.4. Friabilité | |
| 5.5. Instantanéisation (mouillabilité) | |
| 5.6. Influence des paramètres opératoires | |
| 6. Modélisation de la croissance par agglomération | 24 |
| 6.1. Modèles simples | |
| 6.1.1. Modèles basés sur les collisions entre particules | |
| 6.1.2. Modèles basés sur la structure des agglomérats | |
| 6.1.3. Modèles utilisant les bilans de matière et chaleur | |
| 6.2. Modèles utilisant les bilans de population | |
| 6.2.1. Description générale | |
| 6.2.2. Méthodes de résolution | |
| 6.2.3. Applications des équations de bilans de population | |
| 7. Conclusion | 35 |
| CHAPITRE II. Matériels et Méthodes | |
| 1. Produits | 38 |
| 1.1. Billes de verre | |
| 1.2. Maltodextrine | |
| 1.3. Solutions de liant à pulvériser | |
| 2. Pilote d'agglomération en lit fluidisé | 38 |
| 2.1. Air de fluidisation | |
| 2.2. Liquide à pulvériser | |
| 2.3. Buse de pulvérisation | |
| 3. Déroulement d'un essai pour la cartographie des températures | 40 |
| 4. Déroulement d'un essai d'agglomération | 41 |
| 5. Essais hors pilote | 43 |
| 5.1. Angle du jet de liquide pulvérisé | |
| 5.2. Taille et distribution de taille des gouttes pulvérisées | |
| 6. Caractérisation des particules, agglomérats, poudres et solutions | 44 |
| 6.1. Particules et agglomérats | |
| 6.1.1. Taille et distribution de taille (analyse granulométrique) | |

- 6.1.2. Masses volumiques
 - 6.1.2.1. Masses volumiques vrac et tassée
 - 6.1.2.2. Masse volumique vraie et apparente
- 6.1.3. Porosité
- 6.1.4. Images en microscopie optique
- 6.2. Poudres
 - 6.2.1. Coulabilité
 - 6.2.2. Friabilité
 - 6.2.3. Mouillabilité
 - 6.2.4. Teneur en eau
 - 6.2.5. Teneur en liant des agglomérats
- 6.3. Solutions pulvérisées
 - 6.3.1. Masse volumique
 - 6.3.2. Indice de réfraction
 - 6.3.3. Viscosité
 - 6.3.4. Tension superficielle

CHAPITRE III. Résultats et discussion

| | |
|---|-----------|
| 1. La pulvérisation | 53 |
| 1.1. Géométrie du jet de pulvérisation | |
| 1.2. Surface du lit mouillée par le jet de liquide pulvérisé et collage contre les parois | |
| 1.3. Taille des gouttes | |
| 1.4. Conclusion | |
| 2. Zones thermiques dans le lit fluidisé de particules en présence d'un jet de pulvérisation | 64 |
| 2.1. Identification des zones thermiques | |
| 2.2. La zone isotherme et la température moyenne de l'air dans le lit fluidisé | |
| 2.3. La zone active de mouillage et l'agglomération des particules | |
| 2.3.1. Calcul du volume V_m de la zone active de mouillage | |
| 2.3.2. Influence des conditions opératoires sur le volume V_m | |
| 2.4. Allure des zones thermiques et circulation des particules | |
| 2.5. Relation entre V_m et le mécanisme de croissance des particules | |
| 2.6. Conclusion | |
| 3. Cinétiques de croissance et propriétés des agglomérats | 71 |
| 3.1. Evolution de la taille des particules pendant les essais d'agglomération | |
| 3.1.1. Formation des agglomérats | |
| 3.1.2. Effet de l'étape de séchage et refroidissement | |
| 3.2. Teneur en liant des agglomérats | |
| 3.3. Propriétés des agglomérats finaux | |
| 3.3.1. Taille | |
| 3.3.2. Résistance mécanique (Friabilité) | |
| 3.3.3. Masses volumiques et coulabilité | |
| 3.3.4. Mouillabilité | |
| 3.3.5. Forme (Analyse d'image) | |
| 3.4. Conclusion | |
| 4. La modélisation du procédé d'agglomération par les bilans de population | 86 |
| 4.1. Le modèle | |
| 4.1.1. Représentation du système d'agglomération en lit fluidisé avec pulvérisation au-dessus du lit | |
| 4.1.2. Equations des bilans de population pour un système d'agglomération à deux zones | |
| 4.1.3. Discrétisation des équations des bilans de population | |
| 4.1.3.1. Terme de croissance par dépôt | |
| 4.1.3.2. Terme d'agglomération | |
| 4.1.3.3. Le système d'équations différentielles discrétisées | |
| 4.1.4. Détermination de G , β , Q_s et Q_h | |
| 4.1.4.1. Vitesse de croissance par dépôt (G) | |
| 4.1.4.2. Fonction d'agglomération (β) | |
| 4.1.4.3. Débits d'échange ($Q_s(t)$ et $Q_h(t)$) | |
| 4.1.5. Les classes de taille choisies | |
| 4.2. Résolution du système et identification des paramètres | |
| 4.2.1. Résolution du système d'équations différentielles | |

| | | |
|----------|--|--|
| 4.2.1.1. | Distribution de taille des particules initiales | |
| 4.2.1.2. | Variables du modèle | |
| 4.2.2. | Identification des paramètres β_0 , κ et γ | |
| 4.2.2.1. | Ordre de grandeur et intervalle de variation de β_0 , κ et γ | |
| 4.2.2.2. | Identification de β_0 , κ et γ pour l'essai 1 | |
| 4.2.3. | Sensibilité du modèle aux paramètres β_0 , κ et γ | |
| 4.2.4. | Identification de β_0 , κ et γ pour les autres essais | |
| 4.3. | Validation du modèle | |
| 4.3.1. | Représentation des résultats expérimentaux par le modèle | |
| 4.3.2. | Simulation de l'agglomération des particules de maltodextrine | |
| 4.4. | Conclusion | |

| | | |
|------------------------------------|-------|------------|
| Conclusion | | 109 |
| Nomenclature | | 113 |
| Références bibliographiques | | 117 |
| Annexes | | 123 |
| Figures et Tableau 1.1 | | |

INTRODUCTION

L'agglomération est décrite comme l'accroissement de la taille de particules solides par création de liaisons entre particules individuelles. Les agglomérats ainsi formés ont des propriétés physiques différentes des particules initiales: taille, forme, état de surface, surface spécifique, masse volumique, porosité. Ceci entraîne un comportement différent de la poudre (ensemble d'agglomérats) pour l'écoulement, le mélange, la mouillabilité, la résistance mécanique. Ainsi, par agglomération il est possible d'obtenir :

- Une diminution du taux de « fines » (de diamètre inférieur à 0,1 mm) ;
- Une modification de la masse volumique de la poudre à des fins technologiques ou commerciales, de la compressibilité, de l'aptitude au mélange en phase solide avec d'autres poudres, de l'aspect de la poudre ;
- Une augmentation de la mouillabilité, une meilleure aptitude à la dispersion et à la dissolution dans un solvant (boissons instantanées).

Le procédé d'agglomération de particules doit permettre de développer une certaine porosité avec un nouvel assemblage de particules : ceci n'est pas le cas du procédé d'agglomération par compression. Les procédés habituels en industrie alimentaire sont les tambours et les lits fluidisés, continus ou discontinus, utilisant l'air comme fluide porteur. Cela s'applique à des produits particuliers susceptibles de s'agglomérer avec des liants. Si les produits ont une aptitude au collage en présence d'humidité il existe une possibilité d'associer les particules entre elles en pulvérisant de l'eau ou une solution de liant à leur surface. Si les particules sont « inertes » (non-collantes) il faut créer des conditions où leur surface devient collante, en déposant (adhésion) à leur surface une pré-couche qui aura ces propriétés. La nature des liants utilisés dépend des objectifs recherchés. Les substances choisies sont souvent des polymères de type glucidique (amidon et dérivés), ou protéiques (gluten, gélatine, protéines laitières). Ils sont dissous dans l'eau (ou éthanol) avec des concentrations variables, et additionnés de surfactants, de plastifiants. Ils permettent de contrôler les mécanismes d'adhésion particule/liant/particule mais modifient dans une certaine mesure la composition.

L'agglomération de particules solides par voie humide en lit fluidisé résulte d'une succession d'étapes élémentaires que sont le mouillage de la surface des particules par le liquide (solvant, solution de liant), la collision et l'adhésion de particules entre elles. Ces étapes interviennent toutes dans le même appareil. La charge de particules est mise en mouvement par un courant ascendant d'air chaud (air de fluidisation), permettant l'individualisation et le mélange des particules. La pulvérisation de liquide dans le lit permet de mouiller la surface des particules entrant en contact avec le jet, en la rendant collante. En fonction des conditions de séchage par l'air chaud, le liquide déposé (goutte) va servir, au contact d'une autre particule, à établir un pont (ou une liaison) liquide qui sera solidifié par séchage. Si le séchage est trop intense on peut observer la croissance de chaque particule par dépôt (enrobage) ou bien s'il est insuffisant cela peut conduire à la prise en masse du lit. La répétition des étapes de mouillage, collision, séchage conduit à la « croissance par agglomération » (ou coalescence) qui est recherchée. Du fait de l'agitation du lit, les agglomérats sont soumis à des chocs, et il y a compétition entre coalescence et rupture.

L'étude présentée porte sur l'agglomération de particules solides (de taille ~150µm) par voie humide en lit fluidisé. L'objectif est de comprendre et de modéliser les mécanismes d'agglomération ou de croissance de taille en fonction des paramètres du procédé (air, vitesse

et température ; pulvérisation), des propriétés des particules (nature, taille, forme, quantité) et du liant utilisé.

La pulvérisation de solution de liant ou d'eau est un paramètre essentiel à maîtriser : contact du jet/gouttes avec les particules. L'existence d'une zone du lit fluidisé dans laquelle les particules mouillées peuvent s'associer, doit être contrôlée pour obtenir l'agglomération voulue. La consolidation des liaisons établies est indispensable pour conserver les propriétés des produits finis. L'étude bibliographique dresse un bilan des connaissances relatives au procédé d'agglomération en lit fluidisé. Notamment, elle décrit les phénomènes et mécanismes mis en jeu et identifie les paramètres opératoires et les propriétés des particules susceptibles de modifier le comportement des poudres obtenues. Différents modèles proposés dans la littérature pour décrire la croissance des agglomérats sont présentés.

L'étude expérimentale menée sur une installation pilote avec des produits modèles doit permettre, tout en représentant un procédé industriel, de comprendre l'influence des différents paramètres du procédé. La modélisation de la croissance des particules et de la distribution des tailles obtenues devrait conduire à définir les conditions pour obtenir une taille donnée, avec une distribution étroite, pour des produits donnés. La taille et les propriétés d'usage des poudres finales sont reliées aux conditions d'obtention des agglomérats. Cette étude doit permettre de faire le point sur ces différents aspects et d'en définir les limites.

CHAPITRE I

Etude bibliographique

1. L'agglomération de particules solides

1.1. Le principe

Nous nous intéressons plus particulièrement à la *technique d'agglomération par voie humide en lit fluidisé*, avec des particules ou des agglomérats de quelques centaines de micromètres à quelques millimètres de diamètre. Dans ce cas, le mécanisme et les conditions de l'agglomération reposent sur les forces interparticulaires, les forces physico-chimiques entre les gouttes de liquide pulvérisé et les particules, et les forces mécaniques dues au procédé (mélange, lit fluide, etc.). Il y a compétition entre les mécanismes de croissance (par coalescence ou par couche) et les mécanismes d'érosion. L'agglomération désigne une croissance par coalescence. Dans le cas d'une croissance par couche, on parle d'enrobage (Figure 1.1.1).

Les objectifs technologiques de l'agglomération (croissance par coalescence) et de l'enrobage (croissance par couche) diffèrent :

- la production d'agglomérats implique le mouillage de la surface des particules par une solution de liant dont la composition ou le comportement permet une adhésion importante entre particules lors des collisions et une consolidation des agglomérats après séchage.
- l'enrobage des particules implique le mouillage par une solution dont la composition et le comportement permettent un dépôt régulier et progressif des gouttes à la surface des particules et une adhésion minimale entre particules pour éviter l'agglomération.

Parmi les forces mises en jeu en agglomération (Schubert, 1981, 1987 ; Ormos, 1994), on distingue :

- les forces s'exerçant à distance comme les forces de Van der Waals (faibles, augmentant avec l'humidité de surface) et les forces électrostatiques ;
- les forces de contact permettant d'établir des ponts liquides ou solides (de même composition que les particules, ou constitués de liant).

Au-delà d'une certaine taille de particules (Figure 1.1.2), les forces de Van der Waals sont négligeables devant les forces engendrées par la masse des particules. Le nombre de forces à considérer décroît avec l'augmentation de taille des particules, les forces les plus importantes étant engendrées par les ponts solides.

Les différents équipements utilisés pour l'agglomération ont pour objectif de mettre en contact les particules avec les gouttes de solution de liant, puis les particules mouillées entre elles (Figure 1.1.3). Le séchage est indispensable comme étape intermédiaire lorsqu'on opère par grossissement progressif, et comme étape finale avant refroidissement (tour multi-étages pour lait en poudre aggloméré). La vitesse de séchage est un paramètre important de contrôle du procédé.

L'environnement du procédé doit être contrôlé du point de vue de la température et de l'humidité (séchage), de l'efficacité du mélange entre particules (collisions) et de l'introduction de liant.

Le fonctionnement en discontinu est privilégié en pharmacie. En chimie fine et en alimentaire, on cherche à rendre le procédé continu avec possibilité de recyclage des fines par exemple.

Les propriétés des particules influençant l'agglomération sont :

- la taille et la distribution de taille (on cherche à travailler dans un domaine étroit) ;

- la composition et le caractère hydrophile de la surface, sa mouillabilité (adhésion, angle de contact) et sa porosité (état de surface) ;
- la masse volumique et la forme.

1.2.L'agglomération en lit fluidisé

Dans un lit fluidisé les particules solides sont mises en mouvement (individualisées) par un courant ascendant d'air (ou gaz) chaud (Figure 1.1.3a). La pulvérisation d'eau (ou d'une solution de liant) en gouttes fines (10 - 50 μ m, fines par rapport à la taille des particules) au-dessus ou au sein du lit fluidisé de particules permet le mouillage de leur surface. Du fait de l'agitation importante, les particules humides entrent en collision permettant la formation de ponts liquides entre particules (énergie cinétique < dissipation visqueuse). Ces ponts sont solidifiés très rapidement par séchage (évaporation de l'eau ou du solvant) sous l'effet du courant d'air chaud.

La croissance par agglomération (coalescence) n'est possible que si :

- les gouttes pulvérisées atteignent les particules sans avoir le temps de sécher ;
- la quantité et les propriétés (viscosité) du liquide à la surface des particules associées aux conditions de séchage et d'agitation, permettent le collage des particules, en évitant l'enrobage individuel (croissance par couche), le mottage et la prise en masse (« quenching ») ;
- les ponts solides formés ont une résistance mécanique suffisante pour résister à l'abrasion lors des chocs entre agglomérats ou avec les parois de l'appareil.

Le procédé d'agglomération en lit fluidisé fait donc intervenir les différents phénomènes suivants :

- la *fluidisation des particules solides* ou mise en mouvement dans un courant ascendant d'air chaud permettant leur individualisation, et leur contact de façon aléatoire.
- la *pulvérisation de la solution* réalisée avec une buse (bifluide, par exemple, air comprimé et liquide) placée au-dessus ou au sein du lit de particules. L'objectif est de mouiller de façon contrôlée la surface des particules fluidisées (adhésion de gouttes de liquide à la surface de la particule).
- la *formation des ponts liquides* qui ne peut intervenir que s'il y a collision/contact entre les particules mouillées en surface et si le volume de solution est suffisant. La force d'adhésion/collage entre particules est fonction de la taille des particules et des propriétés physiques de la solution pulvérisée.
- le *séchage des ponts liquides* qui permet leur transformation en ponts solides et permet par évaporation du solvant d'augmenter la taille des particules par la formation des agglomérats.
- l'*attrition des particules*, due aux contraintes mécaniques (collisions entre particules ou avec les parois du fait de l'agitation importante au sein du lit) subies par les agglomérats dans le lit fluidisé.

Un schéma résumant les différents mécanismes mis en jeu est donné à la figure 1.1.4.

Les paramètres influençant la formation des agglomérats dans un lit fluidisé sont :

- a) les propriétés des matériaux : distribution de taille et forme des particules à agglomérer (régularité, état de surface, présence de pointes), propriétés et nature du liant, quantité de liant ajouté.

b) les conditions opératoires : débit et dispersion du liquide pulvérisé (forme du jet, taille des gouttes obtenues), débit, humidité et température de l'air.

c) les caractéristiques de l'équipement : dimensions, forme de la cuve, type et position de la buse de pulvérisation.

Les paramètres mentionnés en b) et c) concourent à la maîtrise de l'opération de croissance des agglomérats. Le débit d'air n'est pas un paramètre indépendant, il doit être augmenté lorsque les particules grossissent afin de maintenir une expansion du lit donnée et un mouvement des particules homogène (Ormos, 1994). L'homogénéité d'un lit fluidisé est meilleure quand le réacteur est large et de faible hauteur. Les diffuseurs (plaques perforées) peuvent aider à l'homogénéité du lit. Généralement, un réacteur de forme légèrement conique conduit à une meilleure homogénéité qu'un réacteur aux parois cylindriques. L'homogénéité d'un lit fluidisé est une des propriétés que l'on cherche à mesurer et à améliorer (Dumon, 1981).

2. La fluidisation des particules

2.1. Le principe

La fluidisation consiste à maintenir en suspension une phase solide pulvérulente par déplacement, de bas en haut, d'un fluide à travers ce milieu solide. Il y a expansion du lit de particules et le système di-phasique solide-fluide s'apparente à un fluide en mouvement (Krimitsas, 1995).

La *fluidisation* de la poudre est fonction de la taille et de la masse volumique des particules, et du débit d'air de fluidisation : la vitesse de l'air (U_a) doit être comprise entre la vitesse minimale de fluidisation (U_{mf}) et la vitesse terminale de chute des particules (U_t). On distingue 5 comportements différents des particules solides en fonction de la vitesse d'air (U_a) (Laguerie, 1994) (Figure 1.2.1) :

a) $U_a < U_{mf}$: le débit d'air est très faible et le gaz s'écoule à travers le lit de particules sans les déplacer. On a alors un lit fixe de particules sans fluidisation.

b) $U_a = U_{mf}$: le débit d'air est suffisant pour mettre en mouvement les particules. On définit la vitesse minimale de fluidisation (U_{mf}) lorsque la dernière particule immobile a été mise en mouvement, ce qui correspond à l'équilibre entre les forces de pesanteur et les forces de frottement exercées par le gaz sur les particules. Dans ce régime, appelé lit fluidisé, on considère que les particules sont parfaitement agitées.

c) $U_{mf} < U_a < U_t$: avec l'augmentation du débit d'air, des bulles d'air se forment dans le lit fluidisé et la fluidisation devient hétérogène, on appelle ce régime de vitesse « bullage » ou « bouillonnage ».

d) $U_a = U_t$: les bulles d'air au sein du lit sont de moins en moins discernables à mesure que le débit d'air augmente. La fluidisation devient turbulente et les particules les plus fines sont entraînées à l'extérieur du lit.

e) $U_a > U_t$: toutes les particules sont entraînées en dehors du lit. C'est le phénomène d'entraînement ou de transport pneumatique.

Les régimes décrits ne sont toutefois pas observables pour tous les types de poudres. Ils dépendent de l'aptitude de la poudre à être fluidisée. En considérant le diamètre des

particules (d_p) Geldart (1973) décrit 4 comportements différents en fonction de la différence de masse volumique entre les particules et l'air (Figure 1.2.2) :

- Le groupe A : poudres fusantes, fines (20 à 150 μ m) et légères (masse volumique vraie inférieure à 1500 kg/m³), caractérisées par une forte expansion du lit. Les catalyseurs de craquage d'hydrocarbures appartiennent à cette catégorie. Dans le domaine alimentaire, la maltodextrine appartient à ce groupe.
- Le groupe B : poudres sableuses, la taille moyenne est généralement comprise entre 80 et 800 μ m et la masse volumique vraie entre 1500 et 4000 kg/m³. Elles sont caractérisées par une faible expansion du lit.
- Le groupe C : poudres fines cohésives (<100 μ m), difficilement fluidisables. Des exemples de ce groupe sont la farine et le talc.
- Le groupe D : poudres granuleuses d'une taille > 800 μ m, caractérisées par une fluidisation turbulente. Parmi ces matériaux on peut trouver les grains et les agglomérats.

2.2.Limites du domaine de fluidisation

Le domaine de vitesse d'air à utiliser pour fluidiser un lit des particules correspond à des vitesses comprises entre la *vitesse minimale de fluidisation* (U_{mf}) et la *vitesse terminale de chute* (U_t) des particules (Figure 1.2.3).

Vitesse minimale de fluidisation (U_{mf})

La U_{mf} augmente avec la taille et la masse volumique des particules. Il est possible de calculer U_{mf} en égalant l'expression de la perte de charge du gaz dans le lit fixe (relation d'Ergun) et celle de la perte de charge du gaz ΔP dans le lit fluidisé (Kunii et Levenspiel, 1991) :

Lit fixe (relation d'Ergun) :

$$\frac{\Delta P}{H} = \frac{150(1-\varepsilon)^2 \mu_a U_a}{\varepsilon^3 d_p^2} + \frac{1,75(1-\varepsilon) \rho_a U_a^2}{\varepsilon^3 d_p} \quad (\text{Eq. 1.1})$$

Lit fluidisé (équilibre entre les forces de frottement du gaz sur les particules et le poids apparent de ces particules) :

$$\frac{\Delta P}{H} = (1-\varepsilon)(\rho_p - \rho_a)g \quad (\text{Eq. 1.2})$$

où Δp : perte de charge subie par le gaz (air) à travers le lit de particules, H : hauteur du lit de particules, U_a : vitesse d'air, ε : porosité du lit de particules, μ_a : viscosité dynamique d'air, ρ_p : masse volumique des particules, ρ_a : masse volumique du fluide, g : accélération due à la pesanteur.

D'où U_{mf} donnée par :

$$\frac{150(1-\varepsilon_{mf})^2 \mu_a U_{mf}}{\varepsilon_{mf}^3 d_p^2} + \frac{1,75(1-\varepsilon_{mf}) \rho_a U_{mf}^2}{\varepsilon_{mf}^3 d_p} = (1-\varepsilon_{mf})(\rho_p - \rho_a)g \quad (\text{Eq. 1.3})$$

où ε_{mf} : porosité du lit de particules à vitesse minimale de fluidisation (\approx porosité du lit fixe).

Des corrélations ont également été proposées pour le calcul direct de U_{mf} en fonction du diamètre des particules (Rhodes, 1998) :

- Pour les particules de $d_p < 100\mu\text{m}$:

$$U_{mf} = \frac{[(\rho_p - \rho_a)^{0,934} g^{0,934} d_p^{1,8}]}{1110\mu_a^{0,87} \rho_a^{0,066}} \quad (\text{Eq. 1.4})$$

- Pour des particules de $d_p > 100\mu\text{m}$:

$$U_{mf} = \left(\frac{\mu_a}{\rho_a d_p} \right) \left[(1135,7 + 0,0408 \text{Ar})^{1/2} - 33,7 \right] \quad (\text{Eq. 1.5})$$

où Ar est le nombre adimensionnel d'Archimède, $\text{Ar} = g \rho_a d_p^3 (\rho_p - \rho_a) / \mu_a^2$

Vitesse terminale de chute U_t

Pour le calcul de la vitesse terminale de chute des particules U_t on utilise généralement les expressions suivantes qui ont été établies pour des particules sphériques :

a) Selon le régime d'écoulement de l'air :

- Pour $\text{Re}_p < 2$ (régime laminaire – équation de Stokes) :

$$U_t = \frac{g d_p^2 (\rho_p - \rho_a)}{18\mu_a} \quad (\text{Eq. 1.6})$$

- Pour $2 < \text{Re}_p < 1000$ (régime intermédiaire – équation d'Allen) :

$$U_t = \left[\frac{g d_p^{1,6} (\rho_p - \rho_a)}{13,9 \rho_a^{0,4} \mu_a^{0,6}} \right]^{0,71} \quad (\text{Eq. 1.7})$$

- Pour $\text{Re}_p > 1000$ (régime turbulent – équation de Newton) :

$$U_t = 1,74 \left[\frac{g d_p (\rho_p - \rho_a)}{\rho_a} \right]^{0,5} \quad (\text{Eq. 1.8})$$

où Re_p : nombre de Reynolds de la particule en mouvement, $\text{Re}_p = U_a d_p \rho_a / \mu_a$

b) Pour tout régime d'écoulement (Kunii et Levenspiel, 1991):

$$U_t = U^* \left[\frac{\rho_a^2}{g \mu_a (\rho_p - \rho_a)} \right]^{-1/3} \quad (\text{Eq. 1.9})$$

$$\text{où } U^* = \left[\frac{18}{(d_p^*)^2} + \frac{0,591}{(d_p^*)^{0,5}} \right]^{-1} \quad (\text{Eq. 1.10})$$

$$\text{et } d_p^* = \text{Ar}^{1/3} \quad (\text{Eq. 1.11})$$

Vitesse de bullage ou bouillonnement U_b

Au-delà de la vitesse minimale de fluidisation U_{mf} , des bulles d'air sont créées dans la plupart des lits fluidisés avec du gaz. Ce type de fluidisation est appelé bouillonnement. Dans le cas de lits fluidisés sans bulle d'air on parle de fluidisation homogène, et de fluidisation hétérogène s'il y a formation des bulles d'air.

Pour expliquer l'expansion d'un lit fluidisé avec des bulles, le système est considéré avec deux phases : une phase de bouillonnement (les bulles de gaz) et une phase d'émulsion (les particules fluidisées autour des bulles d'air). Les bulles formées dans le lit entraînent les particules solides à la vitesse ascendante des bulles U_b . D'après Kunii et Levenspiel (1991) et Yu *et al.* (1999), la vitesse U_b est donnée par l'expression suivante :

$$U_b = (U_a - U_{mf}) + 0,711(g \cdot d_b)^{1/2} \quad (\text{Eq. 1.12})$$

$$\text{avec } d_b = 0,853 \left[1 + 0,272 (U_a - U_{mf}) \right]^{1/3} \cdot (1 + 0,0684 \cdot H_{lf})^{1,21} \quad (\text{Eq. 1.3})$$

où d_b : diamètre moyen des bulles [cm], et H_{lf} : hauteur du lit fluidisé [cm], U_a : vitesse de l'air à la hauteur H_{lf} [cm/s].

2.3.Cas du lit fluidisé conique

Les relations données ci-dessus ont été établies pour des lits fluidisés cylindriques qui sont les plus courants. Toutefois, lorsque les produits ont une large répartition granulométrique, on a recours à des lits coniques, plus communs en alimentaire. La forme conique du lit permet une vitesse superficielle du gaz élevée en bas du cône, pour fluidiser les grosses particules, et une vitesse plus faible en haut, pour éviter l'entraînement pneumatique des fines (Dumon, 1981 ; Bimbenet *et al.*, 2002).

Dans un lit fluidisé conique, on peut identifier cinq régimes de fluidisation (Peng et Fan, 1997; Jing *et al.*, 2000; Shan et al., 2001) : lit fixe, lit partiellement fluidisé, lit complètement fluidisé, régime de transition et régime turbulent (Figures 1.2.4 et 1.2.5).

Dans ce cas, Peng et Fan (1997) proposent des corrélations pour déterminer la vitesse minimale de fluidisation du gaz pour un lit conique (U_{mfp}) :

$$A \cdot (U_{mfp}) + B \cdot (D_0/D_1) \cdot U_{mfp}^2 - [g \cdot (1 - \varepsilon)(\rho_p - \rho_a)] \left[(D_1^2 + D_1 \cdot D_0 + D_0^2) / 3D_0^2 \right] = 0 \quad (\text{Eq. 1.14})$$

$$\text{avec } A = \frac{150(1 - \varepsilon)^2 \mu_a}{\varepsilon^3 \cdot d_p^3} \quad \text{et} \quad B = \frac{1,75(1 - \varepsilon)\rho_a}{\varepsilon^3 \cdot d_p}$$

où D_0 : diamètre inférieur du lit conique, D_1 : diamètre supérieur du lit fixe conique.

Une autre corrélation pour déterminer la vitesse minimale de fluidisation dans un lit conique, a été proposée par Jin *et al.* (2000). A partir du calcul du nombre d'Archimède, la corrélation proposée permet le calcul de Re_{mf} duquel peut être déduite U_{mf} .

$$Re_{mf} = 0,202 \left[Ar \cdot (D_1/D_0) \left(\frac{(D_1/D_0)^2 + (D_1/D_0) + 1}{3} \right) \right]^{1/2} \quad (\text{Eq. 1.15})$$

3. La pulvérisation des gouttes

3.1. Le principe

Lors de l'agglomération de particules en lit fluidisé, la surface des particules est mouillée par pulvérisation d'un liquide au-dessus du lit. Une buse fournit un jet de liquide dispersé qui va entrer en contact avec les particules en circulation. Le liquide pulvérisé peut être de l'eau ou un liant de viscosité variable en fonction de sa composition et de la température.

Le mécanisme de pulvérisation crée de fortes forces de friction à la surface du liquide provoquant la désintégration du liquide en petites gouttes. La taille des gouttes formées et la distribution de taille sont des paramètres importants pour maîtriser le procédé d'agglomération (Waldie, 1991).

La pulvérisation est liée au type de buse utilisé ainsi qu'à la nature, au débit, à la concentration et à la température (viscosité) du liquide, facteurs déterminant la taille des gouttes obtenues et la forme du jet. La zone du lit de particules touchée par les gouttes pulvérisées dépend donc de ces différents paramètres ainsi que de la position de la buse par rapport au lit (Becher et Schlünder, 1997).

La cinétique d'agglomération est influencée par la configuration de la pulvérisation, la vitesse des gouttes, et le degré de mélange entre les gouttes et les particules fluidisées fonction de la turbulence au sein du lit fluidisé. Généralement les conditions opératoires de pulvérisation doivent être fixées après quelques expériences dans des équipements pilotes car il n'existe pas de modèle simple reliant la pulvérisation à la cinétique d'agglomération.

Types de buses ou atomiseurs

Le type d'atomiseur ne détermine pas seulement l'énergie nécessaire pour la pulvérisation mais la taille et la distribution de tailles des gouttes, ainsi que la forme et la vitesse du jet. Les types d'atomiseurs (ou buses) les plus utilisés sont (Cherif, 1994 ; Filková et Mujumdar, 1995) :

- a) Les atomiseurs à turbine : le liquide est introduit au centre du disque rotatif et suit le trajet jusqu'au bord du disque entraîné par la force centrifuge, où il est désintégré en gouttes (Figure 1.3.1a). Le jet a un angle de 180° et forme un nuage de gouttes. Le diamètre moyen des gouttes produites est de 1 à 600 microns.
- b) Les atomiseurs à pression (mono-fluide) ou « single fluid nozzle » (Figure 1.3.1b) : le jet se forme par conversion de l'énergie de pression en énergie cinétique quand le liquide traverse la buse sous pression (5 à 7 MPa). Le liquide entre dans l'atomiseur tangentiellement et sort de l'orifice sous la forme d'un jet avec un angle qui varie entre 40° et 140° . Le domaine des diamètres de gouttes formées est de 10 à 800 microns. L'énergie consommée par ce type d'atomiseur est beaucoup plus faible que pour les atomiseurs à turbine et pneumatiques.
- c) Les atomiseurs pneumatiques (bi-fluides) : ces atomiseurs sont utilisés pour de faibles débits. Ils permettent d'obtenir différents modes de pulvérisation, à cône creux, à cône plein ou à jet plat. L'angle du jet de pulvérisation varie entre 20° et 60° selon la configuration de la buse. La pression de l'air comprimé utilisé est de 0,15 à 0,8 MPa. La dispersion du liquide en petites gouttes (5 à 300 microns) est assurée par les forces de cisaillement exercées par l'air (ou gaz) d'atomisation sur la phase liquide. Pour ce

type d'atomiseur l'écoulement de l'air dans l'espace annulaire de la buse permet d'éviter l'évaporation du liquide à l'intérieur de la buse. Selon l'endroit de mélange des flux air – liquide, on distingue deux groupes :

- a. Buses à mélange interne : la désintégration du liquide se fait à l'intérieur de la chambre de la buse (Figure 1.3.1c).
- b. Buses à mélange externe : les deux phases air et liquide se rencontrent à la sortie de l'orifice (Figure 1.3.1d). Ce type de buse est recommandé pour les liquides visqueux.

Les buses pneumatiques peuvent comporter les deux configurations, avec mélange externe et interne pour les buses à trois fluides (Figure 1.3.1e). Ces systèmes sont utilisés pour des liquides très visqueux.

D'autres types d'atomiseurs existent pour des cas particuliers de pulvérisation : systèmes soniques, électrostatiques et flashing (Saleh, 1998).

3.2. Les techniques de mesure de la taille des gouttes

Une évaluation de la taille de gouttes peut être réalisée en collectant et mesurant des gouttes représentatives dans une cellule contenant un liquide non-miscible. La cellule est placée dans le flux du jet de pulvérisation. L'efficacité de cette technique dépend de l'évaporation du liquide. Différents auteurs (Masters, 1976) ont montré qu'avec cette technique les gouttes d'eau d'une taille inférieure à 10-15 microns disparaissent en quelques secondes par évaporation. Les gouttes obtenues avec une buse pneumatique sont normalement petites et l'évaporation devient un facteur très important.

Une autre technique proposée par Gretzinger et Marshall (1961) pour des solutions de concentration connue, consiste à sécher les gouttes pulvérisées. Leur taille est calculée par un bilan matière à partir de la quantité de liquide pulvérisée et de la taille des particules sèches obtenues (dont on a déterminé la masse volumique). Toutefois il peut y avoir des vides à l'intérieur des particules et l'évolution de la taille des particules en fonction des conditions de séchage est complexe. L'application de cette technique est pratique pour des gouttes très petites et quand les particules solides obtenues sont complètement sèches.

La technique de pulvérisation d'un liquide (sans solvant) qui se solidifie dans l'atmosphère environnante évite les problèmes de la technique pulvérisation-séchage précédent. Quelques exemples utilisant cette technique sont : paraffine-cire, acide benzoïque et beta-naphtol, et cire microcristalline (Kim et Marshall, 1971). Cependant il faut tenir compte des viscosités des produits fondus pulvérisés.

Selon la technique de mesure la taille des gouttes varie et s'exprime sous différentes formes (Tableau 1.1). La conversion d'une forme à une autre dépend non seulement de la taille moyenne considérée mais aussi de la distribution de taille. Celle-ci n'est pas toujours précisée avec les résultats des travaux publiés.

D'autres techniques plus courantes sont décrites dans le paragraphe 5 concernant la mesure de la taille des particules.

3.3. Taille des gouttes obtenues avec une buse bi-fluide

La pulvérisation par une buse bi-fluide pneumatique implique l'impact d'un liquide avec un gaz à grande vitesse qui provoque la désintégration du liquide en petites gouttes. La taille des gouttes peut être modifiée par la collision et la coalescence des gouttes déjà formées (Filková et Cédik, 1984). La plupart des études montrent que la taille des gouttes produites par des buses pneumatiques est essentiellement fonction du débit de liquide, du débit d'air, de la pression de l'air, des diamètres de buse, et des propriétés des solutions pulvérisées (ρ_L , μ_L , σ). Les variables qui influencent la taille des gouttes pulvérisées peuvent être groupées sous forme de facteurs adimensionnels :

$$\frac{\bar{x}}{\Gamma} = f \left(\frac{D_a}{D_L}, \frac{D_L \cdot U_a^2 \cdot \rho_a}{\sigma_L}, \frac{M_a}{M_L}, \frac{\mu_L}{\sqrt{D_L \cdot \rho_L \cdot \sigma_L}}, \frac{\mu_L}{\mu_a}, \frac{\rho_L}{\rho_a} \right)$$

La variable Γ est un paramètre qui tient compte de l'effet de turbulence du gaz, et a la dimension d'une longueur. Les groupes adimensionnels sont : le rapport des diamètres de passage du gaz et du liquide (définis par la configuration de la buse), le nombre de Weber (forces dynamiques d'inertie et tension superficielle), le rapport des débits massiques d'air et de liquide (conditions opératoires), le nombre Z (force de viscosité) et le rapport des viscosités et masses volumiques (Kim et Marshall, 1971).

Les différentes équations empiriques développées pour prédire la taille des gouttes en utilisant des buses bi-fluides pneumatiques, sont données dans le tableau 1.1 avec leurs domaines de validité.

L'équation de Nukiyama-Tanasawa est la plus utilisée pour prédire la taille des gouttes pulvérisées par des buses pneumatiques avec mélange interne. La taille de gouttes est fonction de la vitesse relative de l'air et du liquide pulvérisé ainsi que des propriétés du liquide. Cette équation n'est pas adimensionnelle. En général, la taille moyenne des gouttes produites par les buses pneumatiques diminue quand le rapport des débits air-liquide augmente. Quand le débit du liquide est faible, et la valeur du rapport Q_a/Q_L est supérieure à 5000, la relation se réduit à : $d_{3,2} \propto (1/U_a)(\sigma_L/\rho_L)^{0,5}$.

L'équation de Kim et Marshall donne le diamètre moyen en volume ($d_{4,3}$) et elle est valable pour des buses avec mélange externe convergente et des liquides Newtoniens (Figure 1.3.2). Cette expression surestime les tailles des gouttes pour les plus petites gouttes dans les mêmes conditions opératoires. La force dynamique de pulvérisation et le rapport des débits massiques air – liquide sont les variables les plus importantes du fonctionnement de la buse. Les données expérimentales pour établir cette équation, ont été obtenues en utilisant la technique de pulvérisation-séchage.

Une autre équation exprimée en diamètre médian est celle de Gretzinger-Marshall pour des buses convergentes avec des débits de liquide faibles. Le domaine de mesure est de 5 à 30 microns pour un débit maximal de 88 kg/h. Cette corrélation est précise pour des configurations de buses bien définies. La distribution de taille est exprimée en diamètre médian avec une déviation standard géométrique.

L'équation de Hukuo-Hickike-Okado a été définie pour des liquides plus visqueux (0,9 – 37 poises). La forme de cette équation ressemble à celle de Nukiyama – Tanasawa.

4. Les collisions en lit fluidisé

Lors de l'agglomération de particules solides dans un lit fluidisé, différents phénomènes sont mis en jeu : le mouillage de la surface des particules fluidisées (par le liquide pulvérisé), la collision entre les particules mouillées, la formation de ponts liquides (adhésion effective entre particules suffisamment mouillées, collantes en surface), le séchage des ponts liquides, transformés en ponts solides (consolidation des agglomérats), et l'attrition des agglomérats (liée à la résistance mécanique et à l'agitation des agglomérats formés).

Le *mouillage* des particules par les gouttes de liquide dépend de paramètres liés aux particules (taille, nature, état de surface) et à la solution pulvérisée (concentration, densité et viscosité). La *formation des ponts liquides* ne peut intervenir que s'il y a collision entre particules mouillées (probabilité de collision suffisante liée à l'agitation et à la concentration des particules au sein du lit fluidisé) et si le volume et la viscosité de la solution sont suffisants. La force d'adhésion est fonction de la taille des particules et des propriétés physiques de la solution pulvérisée.

4.1. Contact gouttes-particules solides

L'adhésion des gouttes à la surface des particules dépend fortement des propriétés des matériaux : liquide pulvérisé et particules fluidisées. La cinétique de granulation est influencée par la vitesse d'addition des gouttes à la surface des particules fluidisées, la température et la cinétique de séchage.

L'adhésion des gouttes à la surface des particules suit différentes étapes pendant le procédé d'agglomération. Premièrement, la collision des gouttes avec les particules est influencée par le débit et la taille des gouttes et des particules fluidisées. Il existe 3 mécanismes pour décrire les collisions entre les gouttes et les particules : diffusion, forces inertielles, et interception. Chaque mécanisme se présente en fonction de la taille relative des particules/gouttes et de leur vitesse. Le mécanisme par diffusion est souvent présenté dans le cas de petites gouttes avec de faibles vitesses d'air. L'interception est le mécanisme le plus fréquent dans le cas de gouttes plus grosses : les collisions sont dues au passage de gouttes à une distance de la particule inférieure au rayon de la particule. Enfin, lorsqu'au lieu de suivre l'écoulement de l'air dévié autour de la particule, les gouttes, entraînées par leur vitesse et par leur masse, continuent leur trajet vers la particule, la collision a lieu par inertie. Après le contact entre la goutte et la particule, il y a rebond ou capture de la goutte. L'efficacité de l'impact est fonction de la vitesse des gouttes. Au-dessus de la vitesse critique U_c , les gouttes rebondissent sans adhérer à la surface des particules. Pour une goutte entrant en collision avec une surface horizontale sèche, U_c est donnée par l'expression suivante (Link et Schlünder, 1997) :

$$U_c = 4 \mu_L / [d_g \rho_L (3 \tan (\omega/2) + \tan^3 (\omega/2))^{-2/3}] (\tan^2 (\omega/2)) \quad (\text{Eq. 1.21})$$

où μ_L : viscosité du liquide, d_g : diamètre de la goutte, ρ_L : masse volumique du liquide, ω : angle de contact entre la goutte et la particule.

L'adhésion des gouttes à la surface des particules dépend de la nature du liquide, de ses propriétés physiques (tension de surface, viscosité, température de transition vitreuse T_g)

qui dépendent, entre autres, de la température au sein du lit et de celle de la solution de pulvérisation. Panda *et al.* (2001) ont montré que la vitesse de dépôt du liquide (Δm) à la surface des particules peut être exprimée par le produit de la quantité de collisions (η_c) et de la quantité d'adhésion (h). η_c et h sont fonction des paramètres du procédé et des propriétés physiques des gouttes et des particules. Panda *et al.* (2001) établissent des corrélations pour évaluer ces paramètres, dans le cas de la croissance par enrobage de billes de chlorure d'alumine (1.3 mm de diamètre) avec différentes solutions : chlorure de sodium (20%), chlorure de calcium (20%), lactose (16%) et maltodextrine (20%) et à différentes températures du lit. Ils ont montré que la nature et la tension superficielle du liquide pulvérisé ont un effet important sur le dépôt des gouttes à la surface des particules fluidisées. Par contre, la viscosité du liquide a une influence moindre :

$$\Delta m = \eta_c \cdot h \quad (\text{Eq. 1.22})$$

avec :

$$h = Ca^{0.7706} Re_g^{-2.1} (d_g / d_p)^{-1.0265}$$

$$Re_g = U_g d_g \rho_a / \mu_a$$

$$\eta_c = Re_g^{-1} (d_g / d_p)^{-0.314}$$

$$Ca = U_g \mu_L / \sigma_L$$

où Ca : nombre de capillarité, Re_g : nombre de Reynolds pour les gouttes.

Durant le procédé d'agglomération, il existe des conditions variables de température et humidité qui affectent les forces d'adhésion entre les particules. Les particules (surface) peuvent subir une transformation de l'état cristallin/ amorphe à l'état visqueux. Si on augmente la température ou l'humidité autour de ces particules, celles-ci deviennent collantes, à une température T_c appelée température de collage, liée à la température de transition vitreuse T_g . En étudiant l'agglomération de la maltodextrine (20-23 DE) dans un lit fluidisé, Palzer (2004, 2005) montre que les combinaisons température et humidité qui se situent entre les courbes de T_c et T_g du produit, conduisent à une agglomération contrôlée. Il conclut que si on peut identifier la région dans l'appareil où le produit se trouve dans ces conditions (entre la T_c et la T_g), il est possible d'influencer l'efficacité de l'agglomération des particules.

4.2. Collisions particule-particule

Ennis *et al.* (1991) ont identifié trois mécanismes de croissance des particules en fonction du nombre de Stokes visqueux (Stk). Ce paramètre compare l'énergie cinétique de collision et l'énergie dissipée du fait de la viscosité du liquide. Une collision entre deux particules est efficace si le nombre de Stokes est inférieur à la valeur critique Stk^* : la viscosité du film liquide entre les deux particules qui entrent en collision est suffisante pour dissiper leur énergie cinétique et éviter qu'il y ait rebond (Stk^* représente l'énergie minimum pour qu'il y ait rebond). Il y a plusieurs expressions pour Stk , les plus utilisées étant les suivantes :

$$Stk = \frac{\text{énergie cinétique}}{\text{dissipation visqueuse}}$$

– Rhodes (1998), Adetayo et Ennis (2000) :

$$Stk = \frac{\rho_p d_p U_p}{16\mu_l} \quad (\text{Eq. 1.23})$$

– Ennis *et al.* (1991), Adetayo *et al.* (1995), Snow *et al.* (1997) :

$$\text{Stk} = \frac{8\rho_p r_p U_o}{9\mu_L} \quad (\text{Eq. 1.24})$$

où la vitesse relative de collision entre les particules U_o pour le cas spécifique du lit fluidisé est $= 12 U_b r_p / d_b$, avec U_b la vitesse des bulles dans le lit fluidisé, d_b le diamètre des bulles du lit fluidisé et r_p le rayon des particules.

$$\text{Stk}^* = (1 + 1/c) \ln(e / r_u) \quad (\text{Eq. 1.25})$$

où c : coefficient de restitution de la collision, e : épaisseur du film de liquide à la surface de la particule, r_u : rugosité de la surface des particules (Figure 1.4.1).

Quand $\text{Stk} < \text{Stk}^*$ pour toutes les particules, le régime de croissance des particules est dit « non-inertiel ». Toutes les collisions sont efficaces. Dans ce cas, la croissance dépend de la viscosité de la solution, de la taille des particules et de l'énergie de collision. Quand les particules commencent à grossir, $\text{Stk} \approx \text{Stk}^*$ pour certaines particules, le régime devient « inertiel ». Finalement, quand la valeur moyenne de Stk est comparable à Stk^* pour toutes les particules, la croissance est équilibrée : il y a à la fois rupture et coalescence.

Selon une étude de Yu *et al.* (1999), quand la valeur moyenne de Stk est inférieure à Stk^* la croissance des particules par agglomération est très rapide. Par contre, quand $\text{Stk} \approx \text{Stk}^*$ la croissance des particules est plus lente et le phénomène dominant est l'enrobage. Ceci se traduit par un palier sur la courbe de la figure Figure 1.4.2 En moyenne, on atteint la limite théorique de croissance par coalescence.

4.3. Ponts liquides

Newitt et Conway (1958) ont identifié 4 états des ponts liquides en fonction de la quantité de liquide présente entre les particules : pendulaire, funiculaire, capillaire et goutte (Figure 1.4.3).

Dans l'état pendulaire, le liquide forme des ponts au niveau des points de contact entre les particules. Les ponts liquides pendulaires sont indépendants les uns des autres. Quand la proportion de liquide augmente, celui-ci peut se déplacer plus librement entre les particules et la force d'attraction entre les particules diminue : le liquide est dans l'état funiculaire.

Si la quantité de liquide est suffisante pour remplir les interstices entre les particules, le liquide est dans l'état capillaire. Finalement, quand les particules sont complètement dispersées dans le liquide, l'état de goutte se présente.

Généralement les ponts liquides sont caractérisés par une force (F_{pl}) à laquelle participent la pression capillaire ΔPc et la tension superficielle σ_L entre le liquide et le gaz (solution liante) (Pont, 2000 ; Gröger *et al.*, 2003) (Figure 1.4.4). Dans le cas des ponts liquides pendulaires cette force F_{pl} est donnée par :

$$F_{pl} = \pi \cdot \Delta Pc \cdot R_2^2 + 2 \pi \cdot R_2 \cdot \sigma_L \quad (\text{Eq. 1.26})$$

Avec la pression capillaire :

$$\Delta Pc = \sigma_L \cdot ((1/R_1) - (1/R_2)) \quad (\text{Eq. 1.27})$$

donc

$$F_{pl} = \pi \cdot \sigma_L \cdot R_2 \cdot ((R_2/R_1) + 1) \quad (\text{Eq. 1.28})$$

La croissance des particules, pendant le procédé d'agglomération en lit fluidisé, n'est possible que si ces forces de liaison entre les particules de l'agglomérat sont majoritaires. Les propriétés des matériaux influent sur la formation et la consolidation de ces liaisons.

4.4. Consolidation par séchage

Le *séchage des « particules »* permet la transformation des ponts liquides en ponts solides. C'est cette consolidation des ponts qui permet la croissance des agglomérats. Le séchage est fonction du débit, de la vitesse et de l'humidité relative de l'air dans le lit et de l'aptitude au séchage de la solution de liant.

L'étape de séchage est décrite généralement par des bilans de matière et de chaleur dans le lit fluidisé. Ils permettent d'établir des profils de température dans le lit, de déterminer la température de sortie de l'air et, à partir de l'estimation de la quantité d'eau (solvant) évaporée, de déterminer la teneur en eau des particules et l'humidité de l'air en sortie. Le calcul d'humidité des particules tout au long du procédé de granulation permet d'identifier les conditions de débit de la solution de pulvérisation pour lesquelles le phénomène d'agglomération est prédominant (mouillage des particules optimal sans prise en masse).

Les agglomérats obtenus doivent être suffisamment solides pour résister aux contraintes de production, manutention et transport. Mais pour les propriétés spécifiques d'instantanéisation, les ponts doivent pouvoir se rompre dans l'eau facilement.

5. Caractéristiques et propriétés des particules/agglomérats et des poudres

5.1. La taille et forme des particules

La taille et la forme des particules sont des caractéristiques fondamentales des poudres. Elles influencent le comportement de la poudre en vrac et cela a des conséquences sur les méthodes de mesure. Cela concerne diverses opérations unitaires dans l'industrie alimentaire comme la séparation, le mélange, le transport (écoulement, remplissage) et le stockage.

La technique de mesure de taille la plus ancienne, encore très pratiquée aujourd'hui, est le tamisage. La sédimentation utilise les propriétés de déplacement des poudres dans un liquide et les compteurs à variation de résistance mesurent la modification de propriétés électriques liée à la présence des particules dans le milieu. Les techniques les plus développées actuellement sont fondées sur les phénomènes d'interaction de la lumière avec les particules telles que les mesures par diffraction de la lumière laser, corrélation de photons, anémométrie Doppler. La mesure la plus directe de la taille est obtenue à l'aide d'un microscope ou d'une caméra équipée d'un objectif, pouvant être couplés à l'analyse d'image. Cette dernière méthode est la seule capable de mesurer la forme des particules (Melcion et Ilari, 2003).

L'analyse granulométrique

Le principe de l'analyse granulométrique est de caractériser une particule de matière par une dimension linéaire qui dépend de la méthode employée pour la déterminer. Il existe des méthodes qui fournissent directement une grandeur linéaire (ex. tamisage), mais il y a aussi celles qui utilisent des propriétés liées à une grandeur caractéristique de la particule (ex. volume, surface, masse). Ces méthodes conduisent à assimiler la particule à une sphère appelée « sphère équivalente ».

Le diamètre de la sphère équivalente ayant le même volume V_p ou surface S_p que la particule étudiée est défini par d_v et d_s respectivement :

$$d_v = \left(\frac{6V_p}{\pi} \right)^{1/3} \quad d_s = \left(\frac{S_p}{\pi} \right)^{1/2}$$

La notion de taille d'un objet n'est donc pas quelque chose d'univoque. Il faut toujours préciser à quel type de diamètre on se réfère et par quelle méthode il a été obtenu. En effet, pour des particules irrégulières, les différentes techniques de mesure peuvent conduire à des résultats différents et une même technique peut fournir plusieurs types de dimensions.

Un échantillon constitué de particules de tailles différentes peut être caractérisé par la *distribution de taille des particules*. Elle est souvent représentée par un histogramme ou une courbe cumulative, ou une courbe de fréquence des diamètres (Figure 1.5.1). A partir de ces distributions on déduit des paramètres caractéristiques tels que :

a) Le mode ou diamètre le plus fréquent d_f : diamètre correspondant au maximum sur l'histogramme ou au point d'inflexion du diagramme des fréquence cumulées.

b) Le diamètre médian d_{50} : diamètre correspondant à une fréquence cumulée de 50%. Les diamètres d_{90} et d_{10} correspondent à la dimension pour laquelle il y a 90% et 10% des particules de taille supérieure à d_{90} et d_{10} respectivement. L'étalement de la distribution de taille peut être caractérisé par : $(d_{90}-d_{10})/d_{50}$

c) La moyenne arithmétique \bar{d} : pour un échantillon fractionné en n classes de taille caractéristique D_i , le diamètre moyen en nombre \bar{d}_n et en masse \bar{d}_m sont définies par :

$$\bar{d}_n = \frac{\sum(n_i \cdot D_i)}{\sum n_i} \quad \bar{d}_m = \frac{\sum(m_i \cdot D_i)}{\sum m_i} = \sum x_i \cdot D_i$$

où n_i : nombre de particules dans la classe i , m_i : masse de particules dans la classe i , x_i : fraction massique des particules appartenant à la classe i .

d) Le diamètre Sauter $d_{3,2}$: diamètre moyen défini comme le rapport du volume total à la surface totale de la particule :

$$d_{3,2} = \frac{\sum(n_i \cdot D_i^3)}{\sum(n_i \cdot D_i^2)} \quad (\text{Eq. 1.29})$$

e) Le diamètre moyen en volume $d_{4,3}$:

$$d_{4,3} = \frac{\sum(n_i \cdot D_i^4)}{\sum(n_i \cdot D_i^3)} \quad (\text{Eq. 1.30})$$

L'analyse d'image

L'imagerie est un moyen de visualiser les objets en deux (ou trois) dimensions et l'analyse d'image permet d'apprécier non seulement les tailles, mais aussi *les formes* et leurs distributions. Les particules sont généralement visualisées isolées les unes des autres et caractérisées individuellement. Il est également possible de travailler directement sur des ensembles de particules, éventuellement présentées en vrac et de réaliser une analyse globale de la granulométrie à partir des images.

Les paramètres les plus élémentaires de l'analyse d'image sont la surface projetée S_p et le périmètre P des particules. Ces paramètres sont obtenus par simple comptage du nombre de pixels de l'objet et de son contour. La surface est le paramètre le plus robuste de l'analyse d'image et le moins sensible au grossissement ou à l'orientation des particules dans l'image. Au contraire, le périmètre peut énormément varier en fonction de la résolution de l'image donnant à ce paramètre une dimension dite fractale (Novales *et al.*, 2003).

Les analyses de forme des agglomérats peuvent servir à la compréhension de l'influence des différents paramètres opératoires sur les mécanismes d'agglomération. Des études (Wan et Lim, 1991a, b ; Turchiuli *et al.*, 2005) montrent que les agglomérats contenant plus de liant sont plus irréguliers. En étudiant le procédé d'agglomération en lit fluidisé avec des particules de zéine (protéine de maïs) en pulvérisant une solution de maltodextrine, Turchiuli *et al.* (2005) ont observé que les agglomérats, étant soumis aux forces d'abrasion/attrition pendant la fluidisation, montrent une forme plus sphérique quand le procédé a une durée plus longue.

5.2. Masses volumiques et porosité

Une poudre est constituée de particules individuelles (espaces entre elles), elles-mêmes plus ou moins poreuses (pores internes et de surface). La masse volumique d'un solide est le rapport de la « masse du produit » à son « volume » pour une température spécifiée. L'IUPAC (International Union of Pure and Applied Chemistry) en 1994 définit différents termes concernant les masses volumiques et la porosité des poudres (Melcion et Ilari, 2003) :

- La masse volumique vraie où les particules sont dépourvues de tout pore. Elle ne peut être obtenue qu'après un broyage colloïdal (particules $< 1 \mu\text{m}$). C'est la masse volumique de la matière solide « pure ».
- La masse volumique apparente comprend la matière solide et les pores (pores internes fermés, micropores) que le fluide utilisé pour la mesure (hélium, air, mercure) ne peut atteindre. Elle peut donc varier selon la méthode de mesure employée et comprendre à des degrés divers, les fissures de surface.
- La masse volumique vrac comprend en plus de la matière solide et du volume des pores fermés, le volume des pores de surface et les espaces interparticulaires. Elle dépend du degré de tassement de l'échantillon. La masse volumique tassée représente en pratique ce qui se passe dans un emballage fermé (boîte).
- La porosité est le rapport entre le volume des vides et le volume apparent de la poudre.

Lors du procédé d'agglomération, où la taille des « particules » augmente, la masse volumique de la poudre résultante a tendance à diminuer (Ormos et Pataki, 1979 ; Niskanen *et al.*, 1991 ; Wan et Lim, 1991). Cette propriété est aussi liée au degré de compressibilité de la poudre avec l'indice de Carr (IC) et le rapport de Hausner (IH) calculés à partir de la masse volumique vrac et tassée :

- le rapport de Hausner $(IH) = \rho_t / \rho_v$
- l'indice de Carr $(IC) = (\rho_t - \rho_v) / \rho_t$

où ρ_t : masse volumique tassée et ρ_v : masse volumique vrac.

Parmi les méthodes de caractérisation de la porosité des solides divisés, celle par adsorption gazeuse et celle par intrusion de mercure sont les plus répandues, et plus récemment les méthodes d'analyses d'image. Une application de cette méthode est réalisée par Pohl *et al.* (2004) pour mesurer la porosité sur différentes particules : amidon de riz, pectine, poudre de lait entier et poudre de lait écrémé. Les valeurs de porosité trouvées varient entre 0,5 et 0,8. Pour les poudres de lait (entier et écrémé) et la pectine, il est observé une diminution des valeurs de porosité pour les agglomérats de taille plus faible. Pour le reste des poudres, aucune relation directe n'est observée entre la porosité et la taille des agglomérats.

Ormos et Pataki (1979) observent que la porosité atteint une valeur limite quand la taille des particules augmente. Ils trouvent des valeurs de porosité plus élevées pour les particules non-sphériques (chlorure de sodium, nitrate de sodium) comparées aux particules de forme plus sphérique (billes de verre, sable) agglomérées avec une solution de gélatine.

La porosité et la structure des pores jouent un rôle important dans les échanges d'eau habituellement rencontrés au cours de la transformation et de la conservation des aliments. La mouillabilité des poudres alimentaires instantanées repose en partie sur la porosité de leur structure.

5.3. Ecoulement

L'écoulement en vrac des poudres est d'une grande importance dans les industries alimentaires compte tenu du nombre d'opérations unitaires dans lesquelles il intervient : séchage, stockage, mélange-dosage-formulation, pétrissage, conditionnement, etc. Les problèmes d'écoulement se posent à toutes les étapes du processus de fabrication des poudres. La tendance est de rechercher un compromis entre l'aptitude au mélange, la stabilité du mélange obtenu et le comportement à l'écoulement.

Les techniques qui permettent de mesurer des paramètres d'écoulement des poudres sont nombreuses (Teunou, 2003). On peut distinguer trois grandes classes de techniques pour étudier la relation entre contraintes et déformations d'une poudre :

- La combinaison de plusieurs essais pour caractériser l'écoulement d'une poudre selon Carr (Castel, 1995).
- La corrélation entre la compressibilité et l'écoulement (Peleg, 1977).
- L'approche de Jenike (1964), basée sur l'analyse des contraintes au sein d'un tas de poudre lors du cisaillement ou de la rupture. Elle intègre l'ensemble des effets des divers paramètres physiques : granulométrie, humidité, consolidation acquise ...

Chaque particule de poudre a tendance à se déplacer en fonction de sa densité, sa forme, sa taille, etc. Elle est gênée dans son mouvement par les interactions avec les autres particules, ou avec les parois avec lesquelles elle est en contact. Ces interactions, qui peuvent évoluer dans le temps, sont complexes et peuvent influencer l'écoulement des poudres. Les facteurs propres à la particule et à la poudre qui ont une influence sur l'écoulement sont : la taille des particules et la distribution granulométrie de la poudre, la masse volumique,

l'électricité statique, la cohésion et l'adhésion et la forme des particules. En général, la coulabilité augmente lorsque la taille des particules augmente (Schubert, 1981) et quand la distribution granulométrique a un faible étalement (uniformité des diamètres des particules). En dessous d'une certaine taille critique, les particules ont tendance à se coller entre elles ou à adhérer à la surface qui les supporte. Ceci s'explique par le fait que les particules sont soumises aux forces d'attraction qui deviennent importantes (de Van der Waals, par exemple) et le matériau s'écoule mal. Les particules se déplacent en fonction de leur masse volumique, ce qui peut être une cause de ségrégation. L'électricité statique, née des frictions des particules entre elles ou par contact des particules avec une surface, nuit à l'écoulement de la poudre provoquant une cohésion. Par contre, la forme des particules affecte les propriétés mécaniques des poudres, des aiguilles ou des particules anguleuses s'écoulant plus difficilement que des particules ovales ou sphériques (Wan et Lim, 1991a ; Turchiuli *et al.*, 2005).

D'autre part, la coulabilité diminue quand la teneur en eau de surface augmente ou par création de ponts liquides entre les particules, deux facteurs augmentant sa cohésion. Cet effet est recherché lorsqu'on veut agglomérer (effet positif), mais est nuisible lorsqu'il conduit au mottage dans le silo ou le lit fluidisé (effet négatif).

Les facteurs liés aux conditions extérieures qui influencent le comportement des poudres, y compris l'écoulement, sont l'humidité relative de l'air (HR), la température, l'intensité des contraintes qui s'exercent sur la poudre et la durée de stockage. L'humidité est un des facteurs essentiels de la non maîtrise de l'écoulement de poudres, gênant leur transport et leur stockage (Scoville et Peleg, 1981). Lorsque l'humidité augmente, l'écoulement de la poudre devient de plus en plus difficile, et s'explique par l'augmentation de la teneur en eau de la poudre (surtout en surface) qui entraîne la création de ponts liquides entre particules et freine l'écoulement. La température et l'humidité peuvent faciliter des modifications de structure (cristallisation des phases amorphes) si on atteint la température de transition vitreuse. La cristallisation d'une phase amorphe hygroscopique s'accompagne souvent d'une certaine désorption d'eau qui peut entraîner l'agglomération de la poudre et la formation de voûtes dans les silos.

5.4. Friabilité

Les poudres sont toujours soumises à des contraintes mécaniques pendant et après le procédé de fabrication, ce qui produit l'abrasion, l'attrition ou la rupture des agglomérats pas bien consolidés. En conséquence, des petites particules sont formées, modifiant les propriétés d'usage de la poudre et il est nécessaire de les séparer.

Différentes techniques existent pour mesurer la friabilité (Bemrose et Dridwater, 1987 ; Yan et Barbosa-Canovas, 2001 ; Utsumi *et al.*, 2001). En général, la friabilité s'exprime comme le pourcentage de la poudre dont la taille initiale a été réduite, après avoir été soumise à des chocs mécaniques dans un appareil spécifique et pendant un temps donné. Cependant, il n'existe pas d'indice universel de friabilité.

La résistance mécanique des agglomérats dépend de la consolidation des ponts établis entre les particules. Ceci est lié aux conditions opératoires et aux propriétés collantes des matériaux (particules et liants) qui entraînent la formation de ponts plus ou moins résistants (Rohera et Zahir, 1993, Yan et Barbosa-Canovas, 2001). L'augmentation de la concentration de la solution de liant ajoutée avec un même débit de pulvérisation (Ormos et Pataki, 1979 ; Turchiuli *et al.*, 2005) conduit à une agglomération très rapide, avec un débit d'évaporation élevé, et la consolidation des ponts entre les particules n'est pas suffisante. Pourtant les études

réalisées sur la friabilité des agglomérats concluent que les agglomérats les plus gros sont généralement moins friables.

5.5. Instantanéisation (mouillabilité)

L'instantanéisation des poudres regroupe les propriétés fonctionnelles de la poudre, appelées propriétés de reconstitution : la mouillabilité, l'immersibilité, la dispersibilité et la solubilité. Toutes ces propriétés sont liées entre elles. Une poudre se reconstitue très bien si elle se mouille, se disperse ou se solubilise très facilement (Teunou et Poncellet, 2003). Les exemples les plus courants sont les poudres instantanées de lait, café, cacao, levure, etc., utilisées pour leur dissolution rapide.

Quand un lit des particules est posé à la surface d'un liquide, les phases suivantes se déroulent simultanément (Schubert, 1993) :

- a) pénétration des particules dans le liquide,
- b) immersion des particules dans le liquide,
- c) dispersion de la poudre dans le liquide,
- d) dissolution des particules dans le liquide (si particules solubles).

Pour une poudre avec de bonnes propriétés d'instantanéité ces quatre phases durent quelques secondes.

La mouillabilité est généralement considérée comme un paramètre de contrôle, et fait référence à la phase a). La pénétration du liquide dans la poudre se fait par capillarité.

Le temps de mouillabilité peut diminuer en augmentant la taille des particules par agglomération. La masse volumique en vrac de la poudre augmente, et le liquide pénètre à travers les pores créés dans les agglomérats. Donc, les agglomérats doivent avoir une taille optimale. Si les agglomérats sont plus petits que la taille optimale, la poudre se mouille plus lentement. Pourtant, si les agglomérats sont beaucoup plus gros, la pénétration complète du liquide à travers les pores des agglomérats est plus longue. Le temps total de pénétration correspond à la pénétration du liquide dans le lit de particules et dans les agglomérats.

La mouillabilité est évaluée dans l'industrie des produits laitiers par « le temps en secondes, nécessaire à une certaine quantité de poudre pour pénétrer dans l'eau à travers sa surface libre au repos » (méthode Niro Atomizer, Pisécky, 1997). Une autre mesure liée à la mouillabilité d'une surface est l'angle de contact :

- $\omega_s = 0$, le mouillage est parfait,
- $0^\circ < \omega_s < 90^\circ$, le solide est mouillable (hydrophile) à des degrés divers ;
- $90^\circ < \omega_s < 180^\circ$, le solide est non mouillable (hydrophobe) à des degrés divers.

Un test d'immersion est développé par Pohl *et al.* (2004) pour mesurer la distance de mouillage d'un lit de particules (pectine), en utilisant un détecteur laser. Le suivi de la cinétique de mouillage montre que le liquide pénètre dans le lit assez rapidement, en moins d'une seconde, si les particules ont un diamètre compris entre 0,2 et 1 mm, et plus lentement pour les particules entre 0,1 et 0,2 mm.

5.6. Influence des paramètres opératoires

Les paramètres qui interviennent pendant le procédé d'agglomération en lit fluidisé et qui influencent la qualité du produit peuvent être classés par rapport à l'appareil, au produit et aux conditions opératoires (Tableau 1.2).

Tableau 1.2. Classification des paramètres du procédé d'agglomération en lit fluidisé (adapté d'Aulton et Banks, 1981).

| Paramètres de l'appareil | Paramètres opératoires | Paramètres du produit |
|------------------------------------|---|---|
| - Granulateur : taille et forme | - Charge initiale de particules | - Liant : type et quantité |
| - Grille de distribution d'air | - Fluidisation : débit d'air, température et humidité de l'air | - Solution de liant : solvant, concentration, température |
| - Buse de pulvérisation : position | - Pulvérisation : type de buse et configuration, débit du liquide, débit de l'air de pulvérisation, et pression | - Particules : taille, solubilité, aptitude au mouillage, fluidisation, état de surface |
| - Pression positive ou négative | | |

Leur influence est principalement due à la modification des conditions de séchage dans le lit fluidisé, de la circulation des particules, de la taille des gouttes du liquide pulvérisé et de sa composition (Aulton et Banks, 1981). La plupart des études sur la granulation en lit fluidisé s'intéressent au contrôle des paramètres opératoires pour des produits définis ; et les relations entre ces paramètres et la taille des agglomérats obtenus (Schaefer and Worts, 1978 ; Dencs et Ormos, 1982 ; Smith et Nienow, 1983 ; Yu *et al.*, 1999 ; Schaafsma *et al.*, 1998, 2000 ; Srinivasakannan et Balasubramaniam, 2003). Très peu d'études sont réalisées sur d'autres propriétés des poudres (Niskanen *et al.*, 1990).

Influence des caractéristiques du lit fluidisé

La charge des particules ainsi que le débit d'air de fluidisation affectent l'expansion du lit, donc la hauteur et la porosité du lit fluidisé. Si *la charge initiale de particules* est très importante, la fluidisation est inefficace et de grands blocs sont formés dus au mouillage en excès et local des particules fluidisées. Une augmentation du *débit d'air de fluidisation* entraîne une agitation importante des particules dans le lit, ce qui peut conduire à des problèmes d'abrasion des particules en diminuant l'efficacité du procédé de granulation. La turbulence ainsi créée dans le lit fluidisé influence le débit d'évaporation du liquide pulvérisé et donc l'efficacité de mouillage des particules pendant le procédé (Becher et Schlünder, 1998).

La *température de l'air de fluidisation* influence principalement le débit d'évaporation du liquide pulvérisé et par conséquent le mouillage des particules (Becher et Schlünder, 1998). Une température de l'air plus élevée entraîne la formation d'agglomérats de taille plus faible.

Influence de la pulvérisation

Pour maîtriser le procédé d'agglomération, il faut trouver un équilibre entre le débit pulvérisé et le débit d'évaporation, paramètres importants à contrôler dans ce procédé.

Différentes études montrent que l'augmentation du débit de la solution pulvérisée, correspond à une augmentation de la taille des agglomérats (Ormos et Pataki, 1979 ; Waldie *et al.*, 1987 ; Niskanen *et al.*, 1990, Dewettinck *et al.*, 1998 ; Pont, 2000).

L'augmentation de *la concentration de la solution de pulvérisation* ou *la quantité de liant pulvérisée* favorise l'augmentation de la taille des particules jusqu'à une concentration limite (Ormos et Pataki, 1979 ; Rohera et Zahir, 1993, Wan et Lim, 1991 ; Turchiuli *et al.*, 2005). A partir de cette concentration limite, qui dépend de la nature du liant, il n'y a plus

d'augmentation significative de la taille des agglomérats (Schaefer et Worts, 1978 ; Pont, 2000 ; Wan et Lim, 1991a, b) ; ou même les agglomérats sont plus petits et friables (Ormos et Pataki, 1979 ; 1991 ; Turchiuli *et al.*, 2005). Cet effet s'explique par le fait qu'à partir d'une concentration donnée, l'agglomération se produit tellement rapidement que la structure des agglomérats n'est pas assez consolidée. Les ponts formés sont plus fragiles et ces agglomérats ne subissent pas les forces d'attrition lors de la fluidisation pendant le procédé.

D'autre part, Waldie *et al.* (1987) ont étudié l'effet de la taille des gouttes (pression et débit de pulvérisation) sur la formation des agglomérats (lactose et billes de verre) en pulvérisant une solution de polyvinyl-pyrrolidone PVP à 5%. Ils ont trouvé qu'une diminution de *taille des gouttes pulvérisées* entraîne une diminution de la taille des agglomérats obtenus. Ils montrent aussi, qu'une augmentation du débit d'air de pulvérisation entraîne une diminution de taille des gouttes. Et, une distribution de taille des gouttes plus étroite, entraîne la formation d'agglomérats avec une distribution de taille plus étroite. Finalement ils concluent que la formation des agglomérats peut être due à la combinaison de gouttes individuelles avec des groupes de particules fluidisées et non à des collisions binaires.

6. Modélisation de la croissance par agglomération

La croissance des particules par agglomération résulte d'une compétition entre deux phénomènes (Smith et Nienow, 1983b ; Saleh, 1998) :

- La coalescence des particules due à la présence de liquide au sein du lit fluidisé (formation des agglomérats),
- La rupture des agglomérats à cause du phénomène d'attrition.

L'importance relative de ces deux mécanismes dépend de la quantité et des propriétés physiques de la solution pulvérisée, des caractéristiques du lit fluidisé (vitesse du gaz, porosité du lit fluidisé) et de la nature des particules constituant le lit.

En général, *les modèles de croissance de particules solides* par granulation (agglomération ou enrobage) sont de deux types (Pont, 2000) :

- a) Modèles empiriques : ce sont des modèles de type « boîte noire » dans lesquels la physique du procédé n'est pas considérée. L'effet des paramètres d'entrée (conditions opératoires) sur la sortie du système (taille moyenne de la poudre) est représenté par une fonction de transfert.
- b) Modèles théoriques qui peuvent être divisés en deux groupes :
 - Simples ils permettent de décrire l'évolution de la taille moyenne des particules présentes dans le système.
 - Détaillés ils permettent de représenter l'évolution de la distribution de taille des particules en réalisant le plus souvent un bilan de population sur les particules présentes dans le système.

6.1. Modèles simples

6.1.1. Modèles basés sur les collisions entre particules

La croissance des particules par agglomération est basée sur une série de collisions binaires entre particules. La vitesse de coalescence de particules de la classe i avec des particules de la classe j dépend de leur concentration en nombre n_i et n_j . La coalescence des particules est considérée aléatoire et la vitesse de croissance dépend du produit, de la fréquence de collision K_{ij} et de la fraction E_{ij} de chocs non-élastiques dans le système. La cinétique d'agglomération (G_{ij}) est exprimée par la relation suivante (Sastry et Fuerstenau, 1970 ; Sastry, 1975) :

$$G_{ij} = K_{ij} E_{ij} (n_i n_j / N_T^{(2-a)}) \quad (\text{Eq. 1.31})$$

où K_{ij} : fréquence de collision, E_{ij} : fraction de chocs non-élastiques, N_T : nombre total de particules, a : encombrement du milieu ($a = 1$ pour un milieu dense et $a = 2$ pour un milieu dilué).

Un autre modèle est celui proposé par Tardos *et al.* (1997) pour décrire la croissance de particules, leur déformation et rupture pendant le procédé d'agglomération en lit fluidisé, en utilisant le nombre de Stokes. Les équations proposées incluent l'énergie dissipée dans les ponts liquides lorsque deux particules entrent en collision (Ennis *et al.*, 1991). L'ensemble des corrélations avec le nombre de Stokes, décrit la croissance des particules suivant différents régimes en fonction de la taille de l'agglomérat. Le modèle est valable quand les pertes d'énergie par déformation interne des particules sont moins grandes que celles intervenant à la surface. C'est le cas lorsqu'on a des granules rigides et de faibles vitesses d'impact.

6.1.2. Modèles basés sur la structure des agglomérats

Smith et Nienow (1983 a, b) ont proposé un modèle d'agglomération en lit fluidisé discontinu qui relie le diamètre moyen des agglomérats formés à la quantité de liant pulvérisée. A partir d'une représentation idéalisée d'un agglomérat (Figure 1.6.1) constitué de particules initiales, de liant solide et d'air piégé dans le volume de l'agglomérat, ils montrent que le rapport Y entre le volume de liant pulvérisé et le volume total de particules initiales dans le lit est une fonction linéaire de d , le rapport de taille entre les particules initiales et les agglomérats :

$$Y = k (f - 3 s \cdot d_p) \quad (\text{Eq. 1.32})$$

où $k = \varepsilon_a / (1 - \varepsilon_a)$ = fraction volumique de « vide » dans un agglomérat de porosité ε (« vide » = air + liant), s = paramètre adimensionnel caractéristique du retrait du liant dans les interstices entre particules à la surface de l'agglomérat sur une épaisseur ($s \cdot r_u$), f = fraction volumique du « vide » dans l'agglomérat occupée par le liant ($1-f$) = fraction occupée par l'air)

Le tracé de $Y = f(d)$ conduit à une droite dont la pente vaut $(-3k s)$ et l'ordonnée à l'origine est $(k f)$.

Une relation est proposée pour la détermination de f à partir de Y , ρ_p et ρ_{liant} , les masses volumiques vraies des particules initiales et du liant et ρ_{ap} la masse volumique « apparente » ou « d'enveloppe » des agglomérats :

$$f = Y \rho_{\text{ap}} / (Y \cdot \rho_{\text{liant}} + \rho_p - \rho_{\text{ap}}) \quad (\text{Eq. 1.33})$$

Connaissant f , l'ordonnée à l'origine de la droite $Y = f(d)$ permet de déterminer k puis s à partir de la pente de la droite.

Ce modèle a été validé par des essais d'agglomération en lit fluidisé de billes de verre avec des solutions de Carbowax à 5% et 1%. Les courbes $Y = f(d)$ obtenues étaient des droites. Leur exploitation a permis de déterminer les valeurs de f et s pour les deux concentrations de la solution de liant : f et s augmentent lorsque la concentration augmente.

Pont (2000) a proposé une loi phénoménologique permettant de relier la constante cinétique d'agglomération (β), définie comme la pente de la droite représentant l'évolution du diamètre moyen massique en fonction du temps, aux paramètres physico-chimiques et à la taille des particules initiales :

$$\beta = 13560 \sigma_L \cdot \cos \omega_s \cdot d_p^{-1.5} + 0,24 \quad (\text{Eq. 1.34})$$

Cette loi semi-empirique est limitée aux particules de taille inférieure à 400 μm .

6.1.3. Modèles utilisant les bilans de matière et chaleur

Dans les modèles les plus simples, le lit fluidisé est supposé parfaitement agité avec une distribution homogène du liquide sur l'ensemble des particules. Les teneurs en eau estimées sont plus faibles que celles obtenues en réalité. Il y a des modèles qui introduisent dans les bilans le facteur de mouillage des particules $\varphi = S_{\text{pm}} / S_{\text{pt}}$, rapport entre la surface mouillée des particules (S_{pm}) et la surface totale des particules (S_{pt}) (Heinrich et Mörl, 1999a, b).

Afin de caractériser la distribution du liquide pulvérisé dans la « zone de pulvérisation » du lit fluidisé où les particules entrent en contact avec les gouttes de liquide, certains auteurs ont introduit la notion de débit de pulvérisation adimensionnel (Ψ_a) (Watano *et al.*, 1995 ; Lister *et al.*, 2001 ; Hapgood *et al.*, 2004). Le terme Ψ_a est défini comme le rapport entre le débit surfacique de liquide pulvérisé (surface couverte par les gouttes pulvérisées par unité de temps) et le débit surfacique de solide A' (surface de solide traversant la zone de pulvérisation par unité de temps). Cette notion est utilisée dans les bilans de matière et chaleur pour évaluer l'efficacité du séchage pendant le procédé d'agglomération dans un lit fluidisé.

Certains modèles plus récents décrivent le phénomène de séchage de façon plus détaillée avec l'introduction d'un coefficient de dispersion axial des particules solides dans le lit fluidisé, avec des équations en coordonnées cylindriques afin de prendre en compte leur position, et proposent une distribution des particules solides dans différentes régions du lit avec des temps de séjour et des conditions de séchage différentes (Becher et Schlünder, 1997).

D'après différentes études sur les distributions de température et humidité dans le lit fluidisé avec pulvérisation en « top » (Smith et Nienow, 1982 ; 1983a ; Maronga et

Wnukowski, 1997a, b ; 1998 ; Caiyuan *et al.*, 2002 ; Heinrich *et al.*, 2003), le lit fluidisé peut être divisé en trois régions différentes :

- a) *Région d'évaporation* : c'est la région supérieure du lit (très proche de la buse de pulvérisation) où il y a principalement mouillage des particules et évaporation du solvant (eau) pulvérisé.
- b) *Région isotherme* : c'est la région centrale du lit dans laquelle il n'y a ni transfert de matière, ni transfert de chaleur. L'air de fluidisation et les particules sont à la même température. La teneur en eau des particules et l'humidité de l'air sont constantes.
- c) *Région de transfert actif* : c'est la région inférieure du lit dans laquelle le gradient de température est très grand par rapport à la hauteur du lit.

Des bilans de matière et de chaleur sur l'ensemble du lit fluidisé et sur chacune des différentes zones permettent d'établir des équations pour le calcul théorique de la température du lit, de la température de l'air en sortie et de l'humidité de l'air en sortie, et la teneur en eau des particules dans la région d'évaporation. Heinrich *et al.* (2003) ont trouvé que pour des débits de pulvérisation élevés, des lits fluidisés avec une hauteur faible, la région isotherme est difficile à identifier et ils considèrent seulement deux régions, supérieures et inférieures.

6.2. Modèles utilisant les bilans de population

6.2.1. Description générale

L'équation du bilan de population (PBE) est une fonction de continuité qui décrit l'évolution au cours du temps d'une population de particules possédant un certain nombre de propriétés (volume, masse, diamètre, ...). Le formalisme a été appliqué dans de nombreux domaines du génie des procédés pour représenter les systèmes particulaires.

En général, la PBE décrit la variation au cours du temps de la concentration en nombre n des particules ayant une propriété p donnée. Cette évolution est la somme de différentes contributions :

$$\text{Variation de la concentration en nombre des particules ayant la propriété } p \text{ par unité de temps} = \left\{ \begin{array}{l} \pm \text{ agglomération} \quad \pm \text{ rupture} \quad - \text{ dissolution} \quad + \text{ nucléation} \\ + \text{ flux entrant} \quad - \text{ flux sortant} \quad - \text{ croissance par dépôt} \end{array} \right\}$$

d'où

$$\frac{\partial n(p, t)}{\partial t} = \left\{ \begin{array}{l} \pm n \text{ agglom} \quad \pm n \text{ rupt} \quad - n \text{ dissol} \quad + n \text{ nucl} \\ + n \text{ in} \quad - n \text{ out} \quad - n \text{ dep} \end{array} \right\}$$

Dans le cas de l'agglomération, la propriété p considérée est le plus souvent la taille ou le volume des particules.

Le symbole \pm met en évidence le fait que les termes d'agglomération et de rupture sont la somme de deux contributions. Une contribution positive correspond à l'apparition de particules p par agglomération de particules plus petites ou rupture de particules plus grosses. Et une contribution négative correspond à la disparition de particules p pour former une particule plus grosse dans le cas de l'agglomération ou un fragment plus petit dans le cas de la rupture.

Pour l'agglomération en lit fluidisé, Hounslow *et al.* (1988) et Reynolds (2004) montrent que les termes ayant une influence sur la distribution de densité de population des particules sont : l'augmentation de taille par dépôt de solide à la surface des particules (n_{dep}), et les termes d'agglomération (n_{agglom}) et de rupture (n_{rupt}).

a) Terme d'agglomération

Les deux composantes, F et E du terme d'agglomération décrivent, respectivement, l'apparition et la disparition de particules ayant la propriété p . Ainsi, si la propriété est le volume v , on a :

$$n_{agglom}(v,t) = F(v,t) - E(v,t)$$

$F(v,t)$: vitesse d'apparition des particules de volume v par agrégation de particules de volumes u et $v-u$ (Figure 1.6.2).

$E(v,t)$: vitesse de disparition des particules de volume v par agrégation avec une particule de volume u pour former une particule plus grosse (Figure 1.6.3).

Les expressions de F et E font intervenir un paramètre $\beta(v,u)$ appelé « noyau d'agglomération » qui représente la fréquence des collisions entre particules de volumes v et u qui permettent la formation d'une particule de volume $v+u$. C'est en fait une autre représentation du terme $K_{ij} \cdot E_{ij}$ utilisé dans le modèle proposé par Sastry et Fuerstenau (1970) :

$$F(v,t) = \frac{1}{2} \int_0^v \beta(v-u, u) \cdot n(v-u, t) \cdot n(u, t) \, du \quad (\text{Eq. 1.35})$$

$$E(v,t) = \int_0^\infty \beta(v, u) \cdot n(u, t) \, du \quad (\text{Eq. 1.36})$$

d'où

$$n_{agglom}(t, v) = \frac{1}{2} \int_0^v \beta(v-u, u) \cdot n(v-u, t) \cdot n(u, t) \, du - \int_0^\infty \beta(v, u) \cdot n(u, t) \, du \quad (\text{Eq. 1.37})$$

Le facteur $\frac{1}{2}$ dans l'expression de F est introduit pour éviter qu'un agglomérat de volume v obtenu à partir de deux particules u plus petites, ne soit compté deux fois. $n(v,t)$ représente la concentration en nombre des particules de volume v à l'instant t .

Le noyau d'agglomération β est lié à la taille des particules, au procédé, aux paramètres opératoires et aux propriétés des matériaux. On peut le séparer en deux parties :

$$\beta(v,u) = \beta_0 \beta^*(v,u)$$

où β_0 : paramètre indépendant de la taille des particules, lié aux propriétés des matériaux et aux paramètres opératoires,

$\beta^*(v,u)$: paramètre fonction de la taille des particules dont la forme est liée au procédé et éventuellement aux paramètres opératoires.

b) Terme de rupture

Si la propriété p considérée est le volume, on a :

$$n_{\text{rupt}}(v,t) = C(v,t) - D(v,t)$$

$D(v,t)$ est la vitesse de disparition par rupture des particules de volume v .

$C(v,t)$ est la vitesse d'apparition des particules de volume v du fait de la rupture d'une particule de volume u plus grosse (Figure 1.6.4) :

$$D(v,t) = S(v) n(v,t) \quad (\text{Eq. 1.38})$$

et

$$C(v,t) = \int_v^\infty b(u,v) \cdot S(u) \cdot n(u,t) du \quad (\text{Eq. 1.39})$$

avec

$S(v)$: constante de vitesse de rupture des particules de volume v (cinétique du 1^{ère} ordre)

$n(v,t)$: concentration en nombre des particules de volume v .

avec

$b(u,v)$: fonction de rupture = probabilité pour qu'une particule u donne un fragment v

$S(u)$: constante de vitesse de rupture

$n(u,t)$: concentration en nombre des particules de volume u

D'où l'expression de $n_{\text{rupt}}(v,t)$:

$$n_{\text{rupt}}(v,t) = \int_v^\infty b(u,v) \cdot S(u) \cdot n(u,t) du - S(v) \cdot n(v,t) \quad (\text{Eq. 140})$$

c) Terme de croissance par dépôt

La vitesse de croissance est supposée indépendante de la taille (ou du volume) de la particule. On a donc, si la propriété p considérée est le volume :

$$n_{\text{dep}}(v,t) = G \frac{\partial n(v,t)}{\partial v} \quad (\text{Eq. 1.41})$$

où G est la vitesse linéaire de croissance du dépôt = dv / dt .

6.2.2. Méthodes de résolution

Pour la résolution par des méthodes numériques, les équations des bilans de population continues sont réduites à une série d'équations différentielles ordinaires. Les méthodes de résolution les plus connues et décrites en détail par Ramkrishna (2000) sont :

- La méthode des approximations successives
- La méthode des transformées de Laplace
- La méthode des moments,
- Les méthodes de discrétisation
- La méthode de Monte Carlo.

Les méthodes de discrétisation, divisent le domaine de taille en petites cellules et une équation de bilan dans chaque cellule est utilisée. Le problème principal des méthodes de discrétisation est que le modèle ne soit pas consistant avec la conservation de masse ou une autre propriété associée à la population. La précision des solutions est souvent améliorée en utilisant un maillage plus fin mais cela allonge la durée de calcul.

La méthode du pivot fixe proposée par Kumar et Ramkishna (1996) semble la plus efficace et flexible des méthodes de discrétisation des équations car elle préserve les propriétés d'intérêt dans la population. Cette technique divise le domaine de taille en n classes. Le domaine de la classe i est défini entre deux tailles v_i et v_{i+1} . Chaque particule de cette classe est représentée par la taille x_i tel que $v_i < x_i < v_{i+1}$. Le maillage du domaine peut être uniforme ou de forme géométrique ($v_{i+1} = 2v_i$) (Figure 1.6.5). Les maillages peuvent être adaptés selon l'application et la précision nécessaire dans certaines classes (Kumar *et al.*, 2006, Dueñas *et al.*, 2006).

6.2.3. Applications des équations de bilans de population

Le phénomène d'agrégation existe dans différents domaines :

- en physique : agrégation des particules colloïdales (gélification) (Kumar *et al.*, 2006) ;
- en météorologie : l'apparition des gouttes dans les nuages atmosphériques,
- en chimie : réaction des polymères, industrie pharmaceutique (Rohera et Zahir, 1993), production des fertilisants, métallurgie (Dueñas *et al.*, 2006) ; cristallisation (Marchal *et al.*, 1988)
- en alimentaire : encapsulation ou agglomération des poudres instantanées.

Il existe des modèles qui servent à étudier la taille des particules, exprimée en diamètre ou en volume ; et ceux qui s'intéressent aux transferts de matière et chaleur dans le lit fluidisé. Dans ce derniers cas, les propriétés décrites par les bilans de population peuvent être la température ou la teneur en eau des particules (Tableaux 1.3 et 1.4).

Tableau 1.3. Application des équations des bilans de population pour décrire les mécanismes de croissance des particules.

| Domaine d'application | Propriété étudiée | Paramètres étudiés | Concept développé | Référence |
|---|--|---|--|----------------------------------|
| Lit fluidisé - Billes de verre - PVP comme liant | Taille : diamètre | - Influence de la taille des gouttes pulvérisées. - Concentration du liant | - Hypothèse sur le mécanisme d'agglomération : les gouttes coalescent avec un groupe des particules. - Noyau d'agglomération : coalescence aléatoire. | Waldie <i>et al.</i> , 1987. |
| Cristallisation Oxalate de calcium | Taille : volume des particules. Nombre des particules. | - Méthode de résolution en calculant les distributions pour différents moments. | - Méthode de résolution : discrétisation utilisant des intervalles avec une série géométrique. - Noyau d'agglomération : indépendant de la taille. | Hounslow <i>et al.</i> , 1988. |
| Cristallisation | Taille : diamètre | Concentrations des particules | - Méthode de résolution : Discrétisation, méthode des classes. | Marchal <i>et al.</i> , 1988 |
| Lit fluidisé : enrobage des produits pharmaceutiques | Masse | - Taille des 2 zones dans le lit fluidisé - Durée du procédé - Méthodes de résolution : numérique, analytique, transformation des moments | - Division du lit fluidisé en deux zones : active et non- active. | Wnukowski et Setterwall, 1989. |
| Granulateur à tambour. Fertilisants : Sulfate d'ammonium, phosphate de mono-ammonium, phosphate de di-ammonium. | Taille : diamètre. | - Quantité d'eau. - Durée du procédé. - Distribution de taille initiale. | - Mécanismes d'agglomération en différentes étapes : 1 ^{ère} . Décrite par un noyau d'agglomération de coalescence aléatoire, 2 ^{ème} . Décrite par un noyau d'agglomération dépendant de la taille. - Les étapes sont définies par la saturation de liquide dans les particules. | Adetayo <i>et al.</i> 1995. |
| Lit fluidisé : Enrobage | Masse | - Débit de pulvérisation. - Débit des particules d'échange dans les régions du lit fluidisé. | - Différentes régions dans le lit fluidisé 2 ou 3. - Méthode de résolution : Transformation des moments. | Maronga et Wnukowski, 1997a. |
| Lit fluidisé : Enrobage - Sable, aluminium - Liant : NaCl | Nombre des particules | - Distribution initiale des particules. - Débit de pulvérisation. | - Modèle à deux zones. - Termes d'enrobage et agglomération. - Noyaux d'agglomération : coalescence aléatoire et préférentielle. | Saleh, 1998. |
| Granulateur à tambour. Fertilisants. | Taille : diamètre | - Données de Adetayo <i>et al.</i> , 1995. | - Le noyau d'agglomération est en corrélation avec le nombre de Stokes. | Adetayo et Ennis, 2000. |
| Lit fluidisé, discontinu et continu : Enrobage | Taille : diamètre. Nombre des particules. | - Durée du procédé. - Débit d'entrée des particules. | - Probabilité des collisions. - Termes d'enrobage et attrition dans la PBE. | Heinrich <i>et al.</i> , 2002. |
| Production de nano-particules en grande quantité (sintering) | Taille : volume. Masse | - Quantité de liant - Porosité des particules - Saturation des pores | - Noyaux de coalescence utilisés : ceux proposés par Adetayo <i>et al.</i> , 2000. | Verkoeijen <i>et al.</i> , 2002. |
| Lit fluidisé - Carbonate de sodium - Liant : polyéthylène glycol | Vitesse de la particule dans le lit fluidisé | - Durée du procédé | - Noyau d'agglomération liée à l'énergie cinétique des particules. | Tan <i>et al.</i> , 2004. |
| Lit fluidisé. - Billes de verre (creuses ou lises en surface), lactose, carbonate de sodium. - Liant : PEG | Taille : diamètre. | - Type du matériel. - Températures du procédé (effet des propriétés fondants du liant, « melting agglomeration ») - Débit de pulvérisation. | - Noyau d'agglomération : qui explique l'effet de la vitesse de collision des particules pour la formation d'un agglomérat à partir des deux particules. | Borefijn et Hounslow, 2005. |
| Gélification | Taille : volume | - Forme des noyaux d'agglomération : addition, produit et coagulation brownienne. - Méthode de résolution : pivot fixe et cellule moyenne | - Méthode de résolution : Technique de la cellule moyenne (Cell average technique) | Kumar <i>et al.</i> , 2006. |

Tableau 1.4. Modèles thermodynamiques sur les lits fluidisés ou la pulvérisation sur un lit de particules.

| Bilans utilisés | Matériel | Propriétés étudiées | Concepts | Référence |
|---|---|--|---|------------------------------------|
| Transferts de chaleur | Taille d'équipements des lits fluidisés avec pulvérisation par le haut. Particules : lactose + amidon de maïs. Liant : Hydroxypropylcellulose | - Position de la buse. - Rapport de la surface du jet pulvérisé en contact avec la partie supérieure du lit fluidisé. | Humidité relative de l'air. Efficacité du séchage. | Watano <i>et al.</i> 1995. |
| Bilans de matière.. Bilans de quantité de mouvement. | Lit fluidisé, pulvérisation par le bas. | - Distribution d'humidité dans le lit fluidisé. | Vitesse des particules et de l'air de fluidisation. Zone de mouillage : répartition du liquide pulvérisé sur les particules. | Becher <i>et Schlünder</i> , 1997. |
| Bilans de matière. Bilans de chaleur. | Lit fluidisé, pulvérisation par le haut. Particules : billes de verre, sphères de bois. Pulvérisation : eau. | - Température et humidité relative de l'air de fluidisation. - Débit du liquide de pulvérisation. | Degré de mouillage (degree of wetness) : distribution de liquide dans le lit : air et particules. Distribution radiale et axiale des températures et humidité de l'air dans le lit fluidisé. | Heinrich <i>et Mörl</i> , 1999. |
| Bilans de chaleur. | Lit fluidisé, pulvérisation par le haut. Particules : billes de verre. Pulvérisation : eau. | - Propriétés thermodynamiques de l'air. | Enthalpie due à la pulvérisation. Efficacité de l'évaporation. | Dewettinck <i>et al.</i> , 1999. |
| Bilans de matière. Bilans de chaleur. Bilans de population (diamètre des particules) | Lit fluidisé, pulvérisation par le haut, continu. Enrobage. Particules : billes de verre Pulvérisation : CMC | - Distributions de température et humidité de l'air. - Débits d'entrée et sortie des particules. | Degré de mouillage (degree of wetness). Efficacité de séchage. Termes affectant la taille des particules : dépôt et attrition. Identification des 3 zones thermiques dans le lit fluidisé. | Heinrich <i>et al.</i> , 2002. |
| Bilans de matière. Bilans de chaleur. Bilans de population (température et l'humidité de l'air) | Lit fluidisé, pulvérisation par le haut. Application: enrobage. | - Propriétés thermodynamiques de l'air. - Débits de l'air et du liquide de pulvérisation. | Propriétés étudiées avec les bilans de population : température du lit fluidisé, teneur en eau à la surface des particules, quantité de matière déposée sur les particules, position des particules dans le lit fluidisé. | Ronsse, 2006. |

Un résultat intéressant des études thermodynamiques est l'identification des différentes régions thermiques dans le lit fluidisé pour la maîtrise des procédés de granulation (Maronga *et Wnukowski*, 1997b, 1998 ; Saleh, 1998 ; Heinrich *et al.*, 2002 ; Goldschmidt *et al.*, 2003 ; Ronsse, 2006). Ce concept est lié aux études concernant la croissance des particules avec les bilans de population dans les lits fluidisés avec l'idée de séparer le lit fluidisé en différentes régions où les différents phénomènes de croissance, dépôt et agglomération, ont lieu.

Saleh (1998) propose un modèle de croissance par agglomération/enrobage dans un lit fluidisé cylindrique avec pulvérisation « top » en deux zones :

- a) Le modèle à une zone : il considère que le soluté est uniformément réparti sur la surface totale des particules constituant le lit fluidisé. Le bilan de population simplifié est le suivant :

$$\frac{\partial(\psi)}{\partial t} = \frac{\partial(\psi B)}{\partial L} + r'_a \quad (\text{Eq. 1.42})$$

où ψ : distribution des particules dans le système [np / (np.m)], B : vitesse de croissance des particules par dépôt [m/s], L : taille caractéristique des particules [m], r'_a : vitesse de croissance par agglomération [np / (np.m.s)].

b) Le modèle à deux zones : l'échange des particules entre ces deux zones est considéré de type convectif.

- Zone 1 : située au voisinage du système de pulvérisation où ont lieu le mouillage et le séchage des particules. Dans cette zone, la taille des particules augmente par les mécanismes d'enrobage et d'agglomération.

$$\partial(\psi_1) / \partial t = \partial(\psi B) / \partial L - Q(\psi_1 - \psi_2) / (\Lambda N_T) - (\psi_1 \partial N_T) / (N_T \partial t) + r'_a \quad (\text{Eq. 1.43})$$

où Q : débit volumique du solide [np /s], N_T : nombre totale des particules [np], Λ: fraction volumique du lit fluidisé affectée par la pulvérisation.

- Zone 2 : située dans la partie inférieure du lit, elle se comporte comme un mélangeur et un préchauffeur des particules. Le bilan de population y est représenté par l'équation suivante :

$$\partial(\psi_2) / \partial t = - Q(\psi_2 - \psi_1) / ((1-\lambda) N_T) - (\psi_2 \partial N_T) / (N_T \partial t) \quad (\text{Eq. 1.44})$$

où ψ₁, ψ₂ : distribution en nombre des particules dans la zone 1 et 2 respectivement, ayant une taille comprise entre L et L + dL par unité de volume du compartiment 1 et 2.

Saleh (1998) a montré que la modélisation de la croissance par enrobage-granulation, basée sur le bilan de population, permet de représenter de manière adéquate la croissance de particules de sable enrobées par une solution de NaCl (à 20%). Dans le cas de la modélisation du phénomène d'enrobage, le modèle à deux zones conduit à des résultats identiques à ceux obtenus par le modèle à une zone. Pour les fines particules le modèle de recouvrement en surface a tendance à sous-estimer la croissance des particules et le mécanisme d'agglomération peut se produire. Pour le modèle à deux zones, dans le cas où le phénomène d'agglomération est prédominant, les résultats théoriques s'accordent de manière très satisfaisante avec ses expériences.

A partir des études réalisées dans les différents domaines d'application pour le phénomène d'agrégation, différentes formes sont proposées pour le noyau (« kernel ») d'agglomération β pour les bilans de population. Les coefficients des corrélations empiriques et semi-empiriques proposées doivent être trouvés expérimentalement (Tableau 1.5).

Tableau 1.5. Corrélations pour le noyau d'agglomération β. (Adapté de Cryer, 1999).

| Noyau d'agglomération | | Référence |
|--|---|--|
| $\beta(u,v) = \beta_0$ | Coalescence aléatoire | Kapur et Fuerstenau (1969) |
| $\beta(u,v) = a(u+v)$ | Addition | Golovin (1963) |
| $\beta(u,v) = a(u-v)^2 / (u+v)$ | | Golovin (1963) |
| $\beta(u,v) = \beta_0 (u+v)^a / (uv)^b$ | Coalescence préférentielle | Kapur (1972), Peglow <i>et al.</i> (2006) |
| $\beta(u,v) = \beta_0 (u^{2/3} + v^{2/3}) / (1/u + 1/v)$ | | Sastry (1975) |
| $\beta(u,v) = \begin{cases} \beta_1, & t \leq t_1 \\ 0, & S \leq S_{crit} \\ \beta_2(u+v), & t > t_1 \text{ et } S > S_{crit} \end{cases}$ | Sat, Sat _{crit} = saturation de liquide de la particule β ₁ , β ₂ = constantes t, t ₁ = temps du procédé, définis avec Stk (collisions effectives des particules) | Adetayo <i>et al.</i> (1995) |
| $\beta(u,v) = (u^{1/2} + v^{1/2})^2 (u^{-2} + v^{-2})^{1/2}$ | | Hounslow (1998) |
| $\beta(u,v) = \begin{cases} \beta_0, & w \leq w^* \\ 0, & w > w^* \end{cases}$ | w = (uv) ^a / (u+v) ^b w* = volume critique d'un granule, défini avec Stk β ₀ , a, b = constantes | Adetayo <i>et al.</i> (2000) |
| $\beta(u,v) = \beta_0 (u+v)^2 (u^{-1/3} + v^{-1/3})^{1/2}$ | Définis par l'énergie cinétique des particules | Tan <i>et al.</i> (2004), Boerefijn et Hounslow (2005) |

Le noyau d'agglomération $\beta(u,v) = \beta_0$ initialement proposé par Kapur et Fuerstenau (1969) est aussi appelé noyau de coalescence aléatoire (random coalescence) et il est indépendant de la taille. Un autre noyau utilisé dans le cas d'une croissance par coalescence préférentielle dépendant de la taille, a la forme suivante :

$$\beta(u,v) = \beta_0 \cdot \frac{(u+v)^a}{(u \cdot v)^b} \quad (\text{Eq. 1.45})$$

où le β_0 est une constante représentant la vitesse de coalescence.

Les noyaux d'agglomération qui sont dépendants de la taille, sont parfois liés aux mécanismes de collisions et aux forces hydrodynamiques : mouvement brownien, écoulement laminaire ou turbulent, inertie des particules dans des écoulements turbulents, ou sédimentation différentielle (Vanni, 2000). Le noyau de mouvement brownien est très utilisé dans le procédé de cristallisation. Le noyau d'addition (« sum kernel ») est utilisé dans le cas de collisions gouvernées par l'hydrodynamique. Enfin, le noyau de sédimentation différentielle est appliqué quand les collisions sont fortement influencées par le mouvement des particules, lorsque différentes forces s'appliquent avec une intensité différente sur chaque particule.

Adetayo et Ennis (2000) proposent d'utiliser le noyau de coalescence préférentielle en définissant une taille critique w^* . Cette valeur est calculée à partir du nombre de Stokes, représentant l'énergie cinétique et la dissipation visqueuse des collisions ; et du nombre de Stokes critique Stk^* , qui représente l'énergie critique pour que les particules rebondissent. La validation du modèle est réalisée avec des données expérimentales pour l'agglomération de différents fertilisants dans un tambour. Ce noyau d'agglomération par coalescence préférentielle est aussi utilisé pour décrire l'évolution de la taille de particules de cellulose microcristalline dans un lit fluidisé (pilote UniGlatt) avec pulvérisation par le haut d'une solution de liant utilisé dans l'industrie pharmaceutique (Pharmacoat 606) par Peglow *et al.* (2006). Ils ont développé une technique pour l'identification des coefficients a et b de cette fonction d'agglomération $\beta(u,v)$ (Eq. 1.45). Les étapes pour l'identification de ces coefficients sont les suivantes :

- Utiliser les données expérimentales d'un essai de référence.
- Sélectionner un intervalle de variation pour chaque coefficient, a et b à partir des données expérimentales.
- Pour chaque paire de coefficients calculer la constante β_0 .
- Simuler la distribution de taille avec les valeurs de a , b et β_0 .
- Estimer la somme des erreurs relatives RE entre la distribution simulée et la distribution expérimentale.
- Choisir le couple de coefficients a et b avec la valeur la plus petite de RE estimée.
- Ce couple de coefficients a et b est utilisé pour le reste des essais en calculant β_0 .

On s'est intéressé à cette fonction d'agglomération car l'application des bilans de population pour étudier la croissance des particules par agglomération, est réalisée dans un pilote de mêmes dimensions que le nôtre, avec pulvérisation par le haut, et les distributions simulées donnent de bonnes corrélations avec les données expérimentales.

7. Conclusion

Les différents phénomènes physiques intervenant pour la formation des agglomérats, ont été étudiés séparément de façon détaillée : collisions gouttes-particules, collisions particules-particules, cinétique de séchage. Toutefois ces études concernent un nombre limité de matériaux, souvent non alimentaires.

Des études mettent en évidence que la maîtrise du procédé d'agglomération dans un lit fluidisé se concentre sur l'identification de la zone dite de « mouillage » dans le lit fluidisé, où le phénomène d'agglomération se produit. Dans cette zone, la croissance des particules est favorisée par les contacts entre les gouttes pulvérisées et les particules fluidisées, qui sont à l'origine des ponts entre les particules pour la formation des agglomérats. La grandeur de cette zone est définie par la distribution des températures et humidités de l'air dans le lit fluidisé. Les paramètres opératoires affectant ces distributions sont la température et le débit de l'air de fluidisation, le débit du liquide pulvérisé, la circulation des particules définie par la charge et le type des particules, et la pénétration du jet de pulvérisation dans le lit ou la surface du jet en contact avec le lit fluidisé.

Les paramètres influençant le plus les propriétés finales des agglomérats (distribution de taille, résistance mécanique, écoulement, mouillabilité) sont le débit du liquide de pulvérisation, la concentration du liquide pulvérisé, la nature des particules et liants utilisés.

Plus récemment, l'utilisation des bilans de population a permis de décrire les mécanismes de croissance (nucléation, coalescence et rupture) plus globalement, et a aidé à mieux comprendre le procédé d'agglomération. Les corrélations utilisées incluent les effets de quelques paramètres (propriétés des matériaux et conditions opératoires) sur la formation des agglomérats.

Dans cette étude, nous considérons l'agglomération humide de particules en lit fluidisé avec circulation d'air chaud. L'objectif est de mieux comprendre les phénomènes et de proposer un modèle mettant en évidence l'influence des conditions opératoires sur les cinétiques de croissance et les propriétés des agglomérats.

La pulvérisation du liquide dans le lit fluidisé jouant un rôle important sur l'agglomération des particules, nous avons étudié, dans un premier temps, la pulvérisation : la forme et l'angle du jet, ainsi que la distribution de taille des gouttes pulvérisées pour différentes solutions (eau, gomme d'acacia à 20 et 30%, et maltodextrine à 20%). Les liquides pulvérisés choisis ont des propriétés collantes qui favorisent l'agglomération des particules. Les paramètres étudiés dans cette partie sont : *le réglage de la buse, la pression de l'air de pulvérisation et le débit du liquide pulvérisé.*

Puis nous avons étudié un lit fluidisé avec des billes de verre (considérées comme des particules modèles, inertes et de forme sphérique) en pulvérisant de l'eau, pour mesurer les distributions de température de l'air au contact des particules. Le but de cette étude est l'identification de la zone dite « de mouillage » dans le lit fluidisé, qui permet la maîtrise du procédé d'agglomération ; c'est-à-dire, l'identification des domaines utiles à l'agglomération en évitant la prise en masse. Les différents paramètres étudiés dans cette partie de l'étude sont : *la charge initiale des particules, la température de l'air de fluidisation, le débit du liquide et la pression d'air de pulvérisation.*

Ensuite, des essais d'agglomération sont réalisés pour valider les domaines définis pour une agglomération contrôlée. On a choisi deux *types de particules*, insolubles dans l'eau (billes de verre) et solubles (maltodextrine), *en pulvérisant différents liquides* : une solution de gomme d'acacia (utilisé comme liant pour les deux types de particules), une solution de

maltodextrine et de l'eau pour l'agglomération des particules de maltodextrine. L'effet de la *concentration de la solution* est étudié en variant la concentration de la gomme d'acacia (20 et 30% w/w) pour l'agglomération des billes de verre.

Les propriétés des poudres et des particules ont été choisies en considérant leur importance pour la qualité finale des poudres dans le domaine alimentaire : *distribution de taille, coulabilité, mouillabilité, résistance mécanique (friabilité), masse volumique vrac, tassée, vraie et apparente, porosité et forme des particules.*

Finalement, on s'est intéressé à la *modélisation de la croissance de taille des particules et de l'évolution de leur distribution de taille* pendant le procédé d'agglomération, en utilisant des *équations de bilan de population*, en considérant les différents phénomènes influençant la croissance des particules (enrobage et agglomération) se présentant dans les différentes zones thermiques du lit fluidisé.

CHAPITRE II

Matériels et Méthodes

1. Produits

1.1. Billes de verre

Les billes de verre (PLS300, DUP, France) ont un diamètre médian d_{50} de 160 μm , et une masse volumique vraie de 2490 $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ (pycnomètre à air). Elles sont conservées dans un récipient plastique fermé, à 25 °C.

1.2. Maltodextrine

La poudre de maltodextrine DE12 (Glucidex 12, Roquette, France) est tamisée en utilisant des tamis d'ouvertures de 100 et 250 μm pour obtenir des particules de diamètre médian d_{50} 180 μm , et une masse volumique vraie de 1424 $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$. Elle est conservée à 25 °C dans un récipient en plastique fermé. Avant les essais, la poudre est séchée dans une étuve à 105 °C pendant 24 h.

1.3. Solutions de liant à pulvériser

Deux liants sont utilisés, la gomme d'acacia (IRX 61410, CNI, France) et la maltodextrine DE12. Les solutions sont préparées avec des concentrations de 20 ou 30 g/100 g de solution. La poudre est ajoutée doucement dans l'eau à 20°C, sous agitation à l'aide d'un agitateur à pale (Heidolph RZM50, Tüv Bayern, Allemagne) réglé à 800-1300 rpm.

Les solutions préparées sont stockées à 5°C avant leur utilisation après 24 ou 48 h.

Pour certains essais d'agglomération de maltodextrine on pulvérise de l'eau déminéralisée pure.

2. Pilote d'agglomération en lit fluidisé

Les essais d'agglomération sont réalisés sur un pilote Uni-Glatt (Figure 2.2.1) (Glatt GmbH, Binzen, Allemagne) fonctionnant en discontinu. Celui-ci permet la fluidisation par de l'air chaud des particules introduites dans la cuve, la pulvérisation d'un liquide qui mouille la surface des particules fluidisées pour produire leur agglomération, et le séchage des ponts formés.

La cuve de fluidisation a la forme d'un cône tronqué (diamètre inférieur 0,14 m ; hauteur 0,45 m ; angle du cône 9,8°). Le lit fluidisé avec un volume 7 dm^3 (Hlf 24 cm, diamètre supérieur 24 cm, diamètre inférieur 14 cm) (Figure 2.2.1a). Dans la partie inférieure de la cuve, une grille à mailles régulières carrées permet de distribuer l'air de fluidisation. Au-dessus de la cuve, un filtre à manches retient les fines particules entraînées par l'air de fluidisation. Ces particules sont recirculées par le système de secouage du filtre, réglable en durée et fréquence (de 0 à 10 s toutes les 0 à 10 min) : dans notre étude 3 s toutes les 25 s.

2.1. Air de fluidisation

L'air ambiant est aspiré par un ventilateur de puissance constante situé à la sortie du dispositif. Son débit est réglé par un clapet dont l'ouverture peut varier de 0 à 90°. Il est chauffé par des résistances électriques, et sa température est régulée à partir d'une mesure de température avec une sonde placée juste après les résistances dans le conduit d'entrée. Un

thermocouple de type T est placé à 6 cm du fond de la cuve pour mesurer la température de l'air à l'intérieur du lit fluidisé. Un anémomètre à fil chaud (Veloci-Calc Plus, TSI, USA) placé dans le conduit de sortie de l'air (Figure 2.2.2) permet de mesurer la température et la vitesse d'air (± 0.015 m/s) et d'en estimer le débit volumique (section de passage).

2.2. Liquide à pulvériser

Le récipient contenant le liquide à pulvériser est placé sur une balance (Mettler PG3001-S, Toledo, Suisse) reliée à un ordinateur permettant l'enregistrement en continu de la masse de liquide pulvérisé.

Le liquide est délivré par une pompe péristaltique (Flocon 1001-SR/65, Petro Gas, Berlin, Allemagne) réglable (0 à 10 l/min). Les débits volumiques (eau) correspondant aux réglages de la pompe utilisés, sont donnés dans le tableau 2.2.1 (tuyau de diamètre interne 3,1 mm, C-Flex 6424-16, Masterflex, France).

Tableau 2.2.1 .Etalonnage de la pompe péristaltique. (diamètre interne du tuyau : 3,1 mm)

| Réglage de la pompe (#) | Débit liquide (ml.min ⁻¹) |
|-------------------------|---------------------------------------|
| 5 | 2,65 |
| 10 | 5,33 |
| 15 | 7,75 |

2.3. Buse de pulvérisation

Le pilote est équipé d'une buse pneumatique bifluide (type 970, Schlick) à mélange externe (air-liquide). L'orifice central de sortie du liquide a un diamètre de 1,2 mm (Figure 2.2.3). La buse est placée de telle sorte que l'extrémité de l'arrivée du liquide soit située à 0,26 m du fond de la cuve.

La pression relative de l'air comprimé utilisé pour la pulvérisation (1 à 5 bar), est contrôlée par un manomètre. Les vitesses d'air de pulvérisation et les vitesses de liquide à la sortie de la buse pour différents débits et différentes pressions, sont montrées dans le tableau 2.2.2. La buse peut être réglée pour varier l'angle du jet de pulvérisation, en modifiant la distance séparant les arrivées d'air comprimé et de liquide, et en jouant sur la vitesse d'arrivée d'air. Ce réglage est possible en vissant la partie extérieure de la buse, en serrant jusqu'à la position désirée (6 positions) avec 1 à 3 tours à partir d'une fermeture complète. Un écrou permet de bloquer le réglage.

Pour tous les essais d'agglomération, le même réglage de la buse a été utilisé (position 1 avec 0 tour avant fermeture complète de la buse).

Tableau 2.2.2 Evolutions des vitesses du liquide pulvérisé et de l'air de pulvérisation à la sortie de la buse en fonction du débit de liquide et de la pression relative de l'air.
(section orifice liquide : $1,13 \times 10^{-6} \text{ m}^2$ et section orifice air : $2,61 \times 10^{-6} \text{ m}^2$)

| Débit liquide (ml.min^{-1}) | Vitesse liquide (m.s^{-1}) | Pression (bar) | Vitesse air (Ua) (m.s^{-1}) | Débit d'air (Qa) ($\text{m}^3.\text{s}^{-1}$) x 10^{-4} |
|---|--|-------------------|---|--|
| 2,65 | 0,04 | 1 | 122 | 3,19 |
| 5,33 | 0,08 | 2 | 181 | 4,72 |
| 7,75 | 0,11 | 3 | 255 | 6,67 |

Le débit d'air de pulvérisation est faible par rapport au débit d'air de fluidisation donc influe peu sur les conditions de séchage pendant le procédé.

3. Déroulement d'un essai pour la cartographie des températures

La cartographie des températures d'air dans la cuve conique du lit fluidisé est réalisée avec les billes de verre en pulvérisant de l'eau à 20°C. L'air de fluidisation est introduit avec un débit constant de $150 \text{ m}^3\text{h}^{-1}$ et une température de chauffage contrôlée. La hauteur du lit fluidisé varie entre 20 et 25 cm ($H_{\text{lf}} \sim 24 \text{ cm}$).

La distribution des températures d'air dans le lit fluidisé est obtenue en utilisant 3 séries de thermocouples disposées respectivement au centre, à 3 et à 6 cm du centre de la cuve (Figure 2.3.1). Chaque série comprend 6 thermocouples de type T placés à 6, 10, 16, 20, 22 et 24 cm du fond de la cuve. Un programme sous Labview 6 (National Instrument) permet l'acquisition et l'enregistrement des températures au niveau des 6 thermocouples toutes les 5 secondes. Chaque série est enregistrée successivement pendant 5 s. Pour chaque thermocouple et chaque position on prend une valeur moyenne (Figure 2.3.2).

Après chauffage du lit fluidisé jusqu'à l'état stationnaire (températures constantes à $\pm 0,5^\circ\text{C}$), l'eau est pulvérisée à la surface du lit de billes de verre avec un débit constant. Dans ces conditions il y a seulement mouillage des particules et séchage par l'air (pas d'agglomération). Un nouvel état stationnaire s'établit. Les températures de l'air sont relevées lorsqu'elles sont stables à $\pm 1^\circ\text{C}$.

Un premier essai de référence est défini (après des essais préliminaires) : charge de billes de verre 500g, température de consigne de l'air de fluidisation 70°C, débit de liquide pulvérisé 5,33 g/min, pression de l'air de pulvérisation 1 bar.

Neuf essais sont ensuite réalisés en modifiant un seul de ces 4 paramètres par rapport à la valeur de référence (Tableau 2.3.1) : charge de billes de verre 250 g et 750 g, température de consigne de l'air de fluidisation 60°C et 80°C, débit d'eau pulvérisée 2,65 g/min et 7,55 g/min, pression de l'air de pulvérisation 2 et 3 bars.

Tableau 2.3.1. Conditions opératoires pour l'établissement des cartographies de températures d'air dans le lit fluidisé de billes de verre en pulvérisant de l'eau à 20°C.

| Essai | Débit du liquide pulvérisé | Pression relative de l'air de pulvérisation | Température de consigne de l'air | Charge initiale des particules |
|--------------------------|----------------------------|---|----------------------------------|--------------------------------|
| | Q _L (ml/min) | P (bar) | T (°C) | Ch (g) |
| 1a (Référence) | 5,33 | 1 | 70 | 500 |
| 2a | 2,65 | 1 | 70 | 500 |
| 3a | 7,75 | 1 | 70 | 500 |
| 4a | 5,33 | 2 | 70 | 500 |
| 5a | 5,33 | 3 | 70 | 500 |
| 6a | 5,33 | 1 | 60 | 500 |
| 7a | 5,33 | 1 | 80 | 500 |
| 8a | 5,33 | 1 | 70 | 250 |
| 9a | 5,33 | 1 | 70 | 750 |

4. Déroulement d'un essai d'agglomération

La préparation du pilote (2h) avant l'essai consiste à :

- Régler la buse de pulvérisation (position 1 avec 0 tour) et la monter sur la cuve.
- Peser et répartir la charge initiale de particules sur la grille dans la cuve (hauteur régulière).
- Mettre en place les filtres puis placer la cuve chargée sur le pilote.
- Brancher les différentes connections du pilote : l'air comprimé et l'arrivée de liquide pour la buse bi-fluide ; le thermocouple pour la mesure de température de l'air à l'intérieur de la cuve (à 6 cm du fond et 3 cm de la paroi) ; et la sonde de l'anémomètre pour la mesure de vitesse d'air en sortie.
- Placer le bécher contenant le liquide à pulvériser (20°C), sur la balance reliée à l'ordinateur. Avec la pompe en manuel remplir le tuyau d'arrivée de liquide jusqu'à l'entrée dans la buse.
- Régler la pompe pour délivrer le liquide à pulvériser ; la pression de l'air comprimé pour la pulvérisation ; la fréquence de secouage des filtres (3s /25s)
- Afficher la consigne de température de l'air. Mettre en marche le ventilateur (clapet fermé) et fixer la hauteur du lit fluidisé en ouvrant doucement le clapet. Démarrer l'acquisition des données (température de l'air dans la cuve et masse pulvérisée) au niveau de l'ordinateur (programme Glatt).

Les essais d'agglomération consistent en trois étapes (Figure 2.4.1) :

1. *Chauffage du lit* : on attend environ 20 min pour obtenir une température de l'air homogène et constante dans le lit fluidisé
2. *Pulvérisation / Séchage* : la durée dépend du débit de liquide choisi et de la quantité de liant introduite. La pompe péristaltique délivre un débit volumique de liquide constant pendant cette phase (Figure 2.4.2). La température de consigne et le débit de l'air de fluidisation sont maintenus constants pendant toute cette phase.
3. *Refroidissement / Séchage final* : une fois la pulvérisation arrêtée (arrêt de la pompe), la température de consigne pour l'air de fluidisation est réglée à 25°C. La durée de cette étape est d'environ 10 min.

Avant et pendant l'étape de pulvérisation / séchage, des échantillons de poudre sont prélevés régulièrement, chaque 5 ou 10 min, pour l'analyse granulométrique des particules. Les prélèvements sont réalisés avec un tube en plastique rigide passé à travers des ouvertures dans un hublot en plexiglass (Figure 2.4.3). Le point de prélèvement se situe à 8,5 cm du fond de la cuve et 6 cm de l'axe central (possibilité de modifier l'emplacement). Chaque prélèvement permet de récupérer 2 à 4 g de poudre.

Le produit obtenu à la fin de l'essai est conservé dans un bocal en verre (à température ambiante) fermé hermétiquement grâce à un joint en caoutchouc.

Afin d'étudier l'influence des conditions opératoires sur le procédé d'agglomération avec des particules solides différentes (billes de verre et maltodextrine) on fixe dans tous les cas, la même hauteur du lit fluidisé : 0,24 m du fond de la cuve, correspondant à une même distance (2 cm) entre la buse de pulvérisation et le lit fluidisé. Compte tenu de la masse volumique différente des particules utilisées, le débit d'air de fluidisation est ajusté en fonction de la nature des particules. Par exemple pour une charge de 500 g de billes de verre le débit d'air est réglé à 157 m³/h et pour 280 g de maltodextrine à 120 m³/h.

Les paramètres opératoires que nous avons fait varier sont *la charge initiale de particules, la température de consigne de l'air, le débit de la solution pulvérisée, et la pression d'air de pulvérisation*. Les paramètres concernant le produit sont : *le type de particules (solubles – maltodextrine - et non solubles - billes de verre -), la nature et la concentration du liquide pulvérisé (eau, solution de GA, solution de MD) et la quantité de liant pulvérisée*. Les seize conditions testées sont décrites dans le tableau 2.4.1.

Tableau 2.4.1. Conditions opératoires pour les essais d'agglomération en lit fluidisé. (BV: billes de verre, MD: maltodextrine, GA: gomme d'acacia)

| Essai | Charge initiale de particules | Liquide pulvérisé et concentration | Débit du liquide pulvérisé | Pression relative de l'air de pulvérisation | Température de consigne de l'air |
|----------------------------|-------------------------------|------------------------------------|----------------------------|---|----------------------------------|
| | Ch (g) | C _L (% w/w) | Q _L (ml/min) | P (bar) | T (°C) |
| | BV | Solution GA | | | |
| 1 | 500 | 20 | 5,33 | 1 | 70 |
| 2 | 500 | 20 | 2,65 | 1 | 70 |
| 3 | 500 | 20 | 7,75 | 1 | 70 |
| 4 | 500 | 20 | 5,33 | 2 | 70 |
| 5 | 500 | 20 | 5,33 | 3 | 70 |
| 6x | 500 | 20 | 5,33 | 1 | 60 |
| 6 | 500 | 20 | 5,33 | 1 | 80 |
| 7 | 500 | 30 | 5,33 | 1 | 70 |
| 8x | 250 | 20 | 5,33 | 1 | 70 |
| 8 | 750 | 20 | 5,33 | 1 | 70 |
| 9 (= 1 prolongé) | 500 | 20 | 5,33 | 1 | 70 |
| | MD | | | | |
| 10 | 280 | eau | 5,33 | 1 | 70 |
| 11 | 280 | eau | 2,65 | 1 | 70 |
| 12 | 280 | eau | 5,33 | 2 | 70 |
| 13 | 280 | eau | 5,33 | 1 | 80 |
| 14 | 420 | eau | 5,33 | 1 | 70 |
| 15 | 280 | Solution GA 20 | 5,33 | 1 | 70 |
| 16 | 280 | Solution MD 20 | 5,33 | 1 | 70 |

5. Essais hors pilote

5.2. Angle du jet de liquide pulvérisé

Les essais pour déterminer *l'angle du jet* ont été réalisés en-dehors de la chambre du pilote, en pulvérisant de l'eau colorée au bleu de méthylène, à température ambiante (20°C), et en mesurant le diamètre de la tache obtenue sur une feuille de papier blanche (A3) placée sous la buse. Pour obtenir une tache définie régulière, la buse est placée à une distance $h = 16$ cm au-dessus de la feuille de papier (Figure 2.5.1). La forme et la couleur sont observées. Les mesures sont répétées 3 fois.

L'angle de jet est calculé avec la relation suivante :

$$\tan\left(\frac{\theta}{2}\right) = \frac{D}{2 \cdot h_b} \quad (\text{Eq. 2.1})$$

où D diamètre moyen de la tache [cm], h_b distance entre la buse et la feuille [cm], θ angle du jet (°). D est le diamètre moyen entre le plus petit et le plus grand diamètre mesurés ($\pm 2^\circ$).

Des mesures ont été faites avec différents débits de liquide et pression d'air de pulvérisation. Dans les expériences réelles d'agglomération, l'extrémité de la sortie du liquide de la buse de pulvérisation est placée à 26 cm du fond de la cuve et à une distance du haut du lit fluidisé de particules variant de 2 à 3 cm.

5.3. Taille et distribution de taille des gouttes pulvérisées

La distribution de taille des gouttes pulvérisées a été mesurée par diffraction laser (Spraytec*, Malvern, Fr, *prêté par la Sté*). La distribution de taille est obtenue à partir de l'intensité angulaire de la lumière diffractée par le jet de pulvérisation qui traverse le faisceau laser. Les données sont analysées en appliquant le modèle optique de la théorie de Mie qui prend en compte l'indice de réfraction du liquide.

Les calculs de la distribution de taille sont réalisés en utilisant un algorithme pour les dispersions multiples qui assure une bonne précision des résultats avec une obscuration jusqu'à 98%. La gamme de tailles des gouttes mesurables est de 0,1 à 600 μm avec une lentille de 300 mm. La précision et la répétabilité des mesures sont de $\pm 1\%$ pour le d_{50} .

La mesure de la distribution de taille des gouttes est réalisée en dehors de la cuve d'agglomération (Figure 2.5.2). La buse est placée à 2 cm au-dessus du faisceau laser. Cette distance correspond à la distance entre la buse et le haut du lit fluidisé pour les essais d'agglomération. Pour chaque condition, la durée de la mesure était de 1 min avec acquisition des mesures chaque seconde. Toutes les mesures ont été répétées au moins 1 fois (moyenne sur 2 mesures). Le logiciel permet de récupérer les données de la distribution de taille de gouttes en % volume ainsi que les diamètres d_{10} , d_{50} , d_{90} , $d_{3,2}$ et $d_{4,3}$ pour chaque mesure.

6. Caractérisation des particules, agglomérats, poudres et solutions

6.1. Particules et agglomérats

6.1.1. Taille et distribution de taille (analyse granulométrique)

La distribution de taille des agglomérats est obtenue par tamisage manuel de 2 à 4 g de poudre placée sur 16 tamis (ϕ 0,05 m, Retsch, France) d'ouvertures normalisées AFNOR avec des diamètres en progression géométrique ($r = 2^{1/3}$) entre 100 μm et 3150 μm . Pour tamiser la poudre, les tamis sont empilés selon leur ouverture (la plus petite en-dessous), et secoués doucement. Pour assurer un bon tamisage, des séries de 5 tamis maximum sont utilisées successivement.

A partir de la fraction massique obtenue pour chaque classe granulométrique, on trace la courbe des refus cumulés (fréquence cumulée en plus grand que), dont on déduit les d_{10} , d_{50} , et d_{90} correspondant à un refus cumulé de 90, 50 et 10%, respectivement. Par définition :

- d_{90} = 90% de passant soit 10% de refus et
- d_{10} = 10% de passant soit 90% de refus.

6.1.2. Masses volumiques

6.1.2.1. Masses volumiques vrac et tassée

Elles sont mesurées avec l'appareil de tassement décrit dans la norme NF T 51 042 : il provoque 250 chutes/min d'une hauteur de $3 \pm 0,2\text{mm}$ (Figure 2.6.1). On fixe une éprouvette graduée (± 2 ml) de 250 ml sur le support avec 50g d'échantillon. On relève le volume initial de la poudre dans l'éprouvette, puis le volume après 5 min de tassement correspondant à 1250 chutes.

La *masse volumique vrac* (ρ_v) est la masse de poudre divisée par le volume occupé avant le tassement (g/ml, g/cm^3).

La *masse volumique tassée* (ρ_t) est la masse de poudre initiale divisée par le volume occupé après 5min ou 1250 chutes de tassement (g/ml, g/cm^3).

Les valeurs de masse volumique vrac et tassée sont utilisées pour calculer l'indice de Carr (IC) et l'indice de Hausner (IH), qui caractérisent respectivement l'aptitude au tassement de la poudre et les frottements entre particules lors de l'écoulement de la poudre (Tableau 2.6.1):

$$\begin{aligned} \text{le rapport de Hausner} & \quad (\text{IH}) = \rho_t / \rho_v \\ \text{l'indice de Carr} & \quad (\text{IC}) = (\rho_t - \rho_v) / \rho_t \end{aligned}$$

Tableau 2-6.1. Interprétation des indices de Hausner et de Carr (Castel, 1995)

| Indice Hausner (IH) | Poudre | Écoulement |
|----------------------------|---|-------------------|
| IH < 1,2 | Sableuse ou granuleuse | Libre |
| 1,2 < IH < 1,4 | Fusante | Moyen |
| IH > 1,4 | Cohésive | Pas libre |
| Indice Carr (IC) | | |
| 0,05 – 0,15 | Poudre sans fines ni fibres | Excellent |
| 0,15 – 0,18 | Poudre sans fines ni fibres | Bon |
| 0,18 – 0,22 | Poudre avec peu de fines et densité élevée des particules | Médiocre |
| 0,22 – 0,35 | Poudre avec fines, fusante | Mauvais |
| 0,35 – 0,40 | Poudre cohésive | Très mauvais |
| IC > 0,40 | Poudre très cohésive | Exécration |

6.1.2.2. Masses volumiques vraie et apparente

La masse volumique apparente ρ_{ap} d'une particule est le rapport entre la masse de la particule solide et son volume, incluant les pores internes (fermés) de la particule (Figure 2.6.2).

La masse volumique vraie ρ_{vraie} considère le volume occupé par la masse de matière constituant la particule (squelette). Le volume considéré ne comprend aucun pore de la particule (ni interne, ni en surface) (Figure 2.6.2).

Pour la mesure des masses volumiques ρ_{ap} et ρ_{vraie} on a utilisé un pycnomètre à déplacement de gaz (air) (AccuPyc 1330, Micrometrics, France). Avant l'analyse au pycnomètre, la poudre doit être séchée à l'étuve (105°C, 48 h) et refroidie dans un dessiccateur (contenant du gel de silice). Pour la mesure de la masse volumique apparente ρ_{ap} on place environ 1,5 g de poudre sèche directement après pesée dans la cellule du pycnomètre (petit récipient). Pour déterminer la masse volumique vraie ρ_{vraie} , la poudre est préalablement broyée à l'aide d'un mortier en porcelaine pour éliminer les vides internes des particules. Il est important de broyer finement pour ouvrir tous les pores. Pour les billes de verre et la maltodextrine avant agglomération, sans porosité interne, la mesure sans broyage préalable donne la masse volumique vraie ρ_{vraie} (qui dans ce cas est égale à ρ_{ap}).

Le pycnomètre est constitué de deux chambres de volumes calibrés V_1 et V_2 communiquant grâce à l'ouverture d'une vanne (Figure 2.6.3). Au début de la mesure la vanne est fermée, les deux chambres sont à la pression atmosphérique P_a ; la cellule V_1 contient l'échantillon de masse M_{ech} et de volume V_p . Ensuite, le volume de cette chambre est mis sous une pression P_1 ($P_1 > P_a$) de 1,3 bar. L'équation des gaz parfaits, pour l'air de la chambre contenant l'échantillon donne pour l'air :

$$P_1 (V_1 - V_p) = n_1 \cdot R \cdot T_a \quad (\text{Eq. 2.2})$$

où n_1 est le nombre des moles de gaz dans la chambre, R la constante des gaz parfaits, et T_a la température ambiante.

Dans la seconde chambre, l'équation des gaz parfaits donne :

$$P_a \cdot V_2 = n_2 \cdot R \cdot T_a \quad (\text{Eq. 2.3})$$

Quand la vanne entre les deux chambres est ouverte, l'air de la première chambre se répand dans la seconde jusqu'à ce qu'il y ait équilibre de pression entre les deux chambres. Le volume d'air dans les deux chambres est à la pression intermédiaire P_e , et l'équation des gaz parfaits donne :

$$P_e (V_1 - V_p + V_2) = (n_1 + n_2) R \cdot T_a \quad (\text{Eq. 2.4})$$

Après substitution des deux premières équations dans la troisième et après arrangement on obtient :

$$V_p = V_1 - \frac{V_2}{\frac{P_1 - P_a}{P_e - P_a} - 1} \quad (\text{Eq. 2.5})$$

V_1 , V_2 sont connues, P_1 , P_e et P_a mesurées. La masse volumique (vraie ou apparente) est donnée par $\rho = M_{ech} / V_p$. La déviation standard des mesures est de 0,002 g/cm³.

6.1.3. Porosité

La porosité ε se définit comme le rapport entre le volume des vides et le volume de la poudre (IUPAC, 1994). En pratique la notion de porosité d'un milieu divisé doit être considérée en relation avec son état de consolidation. Cela permet de distinguer la porosité *interparticulaire* formée par les vides entre les particules qui diminue avec le tassement et la

porosité *intraparticulaire* formée des vacuoles (pores fermés) et fissures de la particule, elle-même en communication, ou pas, avec sa surface (Figure 2.6.2).

La porosité totale se divise en une porosité ouverte accessible aux molécules de gaz (ou liquide) et une porosité fermée qui ne l'est pas. A partir des mesures des masses volumiques ρ_{vraie} et ρ_{app} on accède au volume des pores fermés (porosité intraparticulaire) et on peut en déduire la porosité interne ε_{int} avec la relation suivante :

$$\varepsilon_{\text{int}} = 1 - \frac{\rho_{\text{app}}}{\rho_{\text{vraie}}} \quad (\text{Eq. 2.6})$$

6.1.4. Images en microscope optique

Les particules sont déposées sur une lame noire (scotch noir sur lame en verre) et déposées en ligne à l'aide d'une spatule incurvée, de façon à ce qu'elles ne se touchent et ne se cassent pas. La lame est observée au microscope optique (objectif x 2) avec éclairage par le dessus (lampes de bureau de chaque côté du microscope).

On a adapté un appareil photo numérique (CAMEDIA C-5060, Olympus, Japon) au microscope (BX60, Olympus, Fr) pour enregistrer les images de chaque particule prise pour être analysée individuellement. L'appareil photo est réglé pour la prise d'image avec un ISO 80, le mode zoom numérique désactivé et réglé manuellement au maximum, le format de l'image à 1024x768, la fonction en noir et blanc et sans flash (DeLongvert, 2005). Pour la calibration de mesure des images on a pris deux photos d'une lame graduée (1 mm, graduée en 1/100) : une parallèlement et l'autre perpendiculairement à l'objectif du microscope. Les images sont enregistrées sur la carte mémoire de l'appareil photo numérique, et récupérées avec un câble USB qui relie l'appareil photo numérique à l'ordinateur. Pour réaliser l'analyse d'images celles-ci sont converties en format Tiff, avec le logiciel Irfanview.

L'analyse de forme des particules est réalisée sur le logiciel Scion Image (Scion Corporation, Frederick, USA) utilisé par Turchiuli *et al.* (2005). La calibration des pixels (mesure en mm) doit être faite avec les images de la lame graduée : le rapport x/y (aspect ratio) avec x pixels pour l'image horizontale et y pixels pour l'image verticale de la lame graduée. Pour chaque échantillon, 200 particules sont analysées.

Les diamètres de Féret, également souvent utilisés, correspondent à des distances entre points extrêmes des particules selon différentes orientations. Ils sont couramment mesurés pour des angles de 0, 45 et 90° (Figure 2.6.4).

Les descripteurs de forme récupérés pour analyser la poudre sont :

- La circularité C : il compare la surface des images en 2D avec celle d'un disque du même diamètre. Plus elle est proche de 1, plus la forme est circulaire.

$$C = \frac{P_p^2}{4 \cdot \pi \cdot S_p} \quad (\text{Eq. 2.7})$$

avec P_p : périmètre de la particule et S_p : surface de la particule.

- L'élongation F : il est le rapport entre les diamètres de Feret maximal (D_{fmax}) et minimal (D_{fmin}), lesquels sont associés à la longueur et la largeur de la particule respectivement.

$$F = \frac{D_{\text{fmax}}}{D_{\text{fmin}}} \quad (\text{Eq. 2.8})$$

- La rondeur (roundness) R : il compare le périmètre des particules a celui d'un disque du même diamètre maximal Feret.

$$R = \frac{D_{\text{fmax}}}{D_{\text{eq}}} \quad (\text{Eq. 2.9})$$

où Deq : diamètre équivalent, diamètre du cercle qui a la même surface que la surface projetée de la particule ($Deq = 2 (S_p/\pi)^{1/2}$).

6.2. Poudres

6.2.1. Coulabilité

La coulabilité est un test pour déterminer l'aptitude des solides divisés à s'écouler verticalement. Pour une poudre donnée, cette propriété dépend non seulement des propriétés physiques des particules individuelles (taille, surface, forme), mais aussi de l'environnement dans lequel elle se trouve, notamment l'humidité et la température. C'est pourquoi avant toute mesure de coulabilité les échantillons sont stockés dans un dessiccateur contenant P_2O_5 à $20^\circ C$ pendant 48h afin d'être « conditionnés ».

La mesure est réalisée avec un entonnoir en verre comme décrit dans la norme AFNOR NF B 35032 (Figure 2.6.5). Un bouchon est utilisé pour l'obturation de l'orifice de l'entonnoir. On verse 100 g de poudre dans l'entonnoir et on mesure le temps d'écoulement (secondes) de la totalité de l'échantillon à partir du moment où on libère l'orifice de l'entonnoir. Une limitation de cette analyse est la taille des agglomérats. En effet, l'orifice de l'entonnoir étant de 12 mm, si l'on considère qu'il doit être 8 fois supérieur au diamètre des particules de poudre analysées, il n'est, en théorie, utilisable que pour des particules inférieures à $1500 \mu m$. La variabilité des mesures est inférieure à 10%.

La coulabilité (s) est liée aux indices de Carr et Hausner, calculés à partir des masses volumiques vrac et tassée.

6.2.2. Friabilité

La friabilité est une propriété qui décrit la résistance mécanique de la poudre soumise à des chocs et/ou à l'abrasion : taux de brisure, fines créées. C'est une propriété importante pour la qualité finale de la poudre, son utilisation et son transport.

Il n'existe pas de méthode universelle pour la mesurer. Elle peut être estimée par un indice de friabilité qui correspond au pourcentage de la poudre réduite à une taille inférieure à une taille fixée, pendant une période de temps donnée en utilisant un appareil spécifique (Bemrose *et al.*, 1987).

Les mesures de friabilité sont réalisées sur un échantillon de 10 g de poudre placé sur un tamis (0,2 m de diamètre, Retsch, France) d'une ouverture de $315 \mu m$. Cette ouverture a été choisie par rapport à la plus petite taille des agglomérats obtenus. La poudre est d'abord tamisée manuellement très doucement, pour éliminer les particules de diamètre inférieur à $315 \mu m$ dans l'échantillon initial. Puis les particules de taille supérieure à $315 \mu m$ sont soumises à une agitation mécanique violente grâce à une tamiseuse (Analysette 3 Spartan, Fritsch GMBH, Allemagne ; vibrations de 2 mm d'amplitude pendant 2, 5, 10, 15, 20 ou 25 min). L'indice de friabilité est défini comme le pourcentage de poudre initiale de taille inférieure à $315 \mu m$ après 25 min de secouage. Plus l'indice de friabilité est faible, plus la poudre a une résistance mécanique élevée et donc une friabilité faible.

6.2.3. Mouillabilité

Cette propriété représente l'aptitude de la poudre à être mouillée par de l'eau à $20^\circ C$. Elle est exprimée par le temps (s) nécessaire à une certaine quantité de poudre pour pénétrer

dans l'eau à travers sa surface libre au repos. La méthode d'analyse utilisée est préconisée par les Laboratoires de Recherche de Niro Atomizer (Pisecky, 1997) pour les produits laitiers en poudre. On utilise un entonnoir en carton (de surface lisse), dont l'orifice est bouché par un pilon, que l'on place au-dessus d'un bécher de 400ml, contenant 100 ml d'eau à 20°C, avec une distance de 1 cm entre la base de l'entonnoir et la surface de l'eau. L'échantillon pesé (10 g) est placé dans l'entonnoir. On soulève le pilon pour laisser tomber la poudre à la surface de l'eau et on mesure le temps nécessaire pour que toute la poudre soit mouillée par l'eau (disparaisse de la surface) (Figure 2.6.6).

6.2.4. Teneur en eau

La teneur en eau est déterminée pour les poudres initiales et pour les différents produits finaux des essais d'agglomération. Celle-ci est une caractéristique importante de la poudre puisqu'elle influe sur son comportement pendant son transport, son stockage et son utilisation.

L'analyse consiste à sécher une masse connue d'échantillon m_i (1 à 2 g) jusqu'à obtenir un poids constant correspondant à la matière sèche m_s . On calcule la teneur en eau en utilisant la relation suivante :

$$X_{\text{eau}} = \frac{m_i - m_s}{m_s} \quad (\text{Eq. 2.10})$$

avec X_{eau} kg d'eau / kg de matière sèche.

Le poids constant pour les différents échantillons est obtenu, en général, après 48 h de séchage à l'étuve à 105°C.

6.2.5. Teneur en liant des agglomérats

Dans les cas de la pulvérisation d'une solution de gomme d'acacia pour l'agglomération des billes de verre, on a quantifié la teneur en liant de la poudre finale.

La poudre est d'abord séchée dans une étuve à 105°C pendant 48 h. Une masse m_p de poudre de ~1 g est pesée ($\pm 1\text{mg}$), et placée dans 10 g d'eau à 20°C afin de dissoudre la gomme d'acacia contenue dans l'échantillon. A l'aide d'un réfractomètre (Atago 3T, Abbe, France) on mesure l'indice de réfraction (précision $\pm 0,05$ g MS/ 100 g) de la solution obtenue (gomme d'acacia et eau). Le réfractomètre est couplé à un thermostat afin de maintenir la température de la cellule de mesure à $20,0 \pm 0,1^\circ\text{C}$. La teneur en liant m_{GA} de la solution est obtenue en reportant l'indice de réfraction sur une courbe d'étalonnage. Celle-ci est obtenue à partir de mesures de l'indice de réfraction de solutions étalons préparées avec différentes masses connues (0 à 0,3 g) de gomme d'acacia (séchée à 105°C) dissoute dans 10 g d'eau (Figure 2.6.7).

Pour chaque échantillon, trois solutions sont préparées et analysées.

La quantité de gomme d'acacia X_{GA} (g gomme d'acacia / 100 g de billes de verre) dans la poudre est donnée par la relation suivante :

$$X_{GA} = \frac{m_{GA}}{m_p - m_{GA}} \cdot 100 \quad (\text{Eq. 2.11})$$

où m_{GA} est la masse de gomme d'acacia déduite de la courbe d'étalonnage correspondant à la masse m_p d'échantillon analysé (billes de verre + gomme d'acacia).

6.3. Solutions pulvérisées

6.3.1. Masse volumique

La masse volumique des solutions est obtenue en utilisant des pycnomètres calibrés en verre de volume 10 ml. Les mesures sont réalisées à 20°C et répétées trois fois. Le remplissage du pycnomètre avec le liquide à analyser doit se faire en évitant la formation de bulles d'air. La masse volumique est obtenue en divisant la masse de liquide introduite, par le volume du pycnomètre ($\pm 0,001 \text{ g/cm}^3$).

6.3.2. Indice de réfraction

A l'aide d'un réfractomètre (Atago 3T, Abbe, France) on a mesuré l'indice de réfraction (précision $\pm 0,05 \text{ g MS/ 100 g}$) de la solution préparée pour l'analyse de taille de gouttes par diffraction laser. Le réfractomètre est couplé à un thermostat qui permet de maintenir la température de la cellule de mesure à $20,0 \pm 0,1^\circ\text{C}$.

6.3.3. Viscosité

La viscosité décrit la propriété physique de résistance d'un liquide à l'écoulement. Elle influence la taille des gouttes formées pendant la pulvérisation (ch. 1. taille des gouttes).

Les mesures de la viscosité en régime dynamique des solutions utilisées, ont été réalisées à l'aide d'un rhéomètre rotatif (RFS-II, Rheometrics Fluids Spectrometer Scientific, France). Il est équipé de cylindres coaxiaux présentant un entrefer (R1/R2) de 0,95 pour un volume d'échantillon de 12 ml. Le fluide est emprisonné entre les deux cylindres dont l'un est fixe, l'autre mobile. La relation entre la contrainte tangentielle (τ) et la vitesse de cisaillement (γ_c) est obtenue directement en soumettant l'échantillon à une vitesse de cisaillement uniforme et en mesurant la contrainte tangentielle correspondante.

Le logiciel RS1 Orchestrator est utilisé pour définir le type de test pour mesurer la viscosité et traiter les données. Le type de mesure choisi était en *mode stationnaire* pour un *test d'écoulement* à différentes vitesses de cisaillement (Steady rate sweep test) à 20°C, et une géométrie de l'échantillon de type *Couette* (cylindre-cylindre). La gamme de variation pour la vitesse de cisaillement fixée est de 1 à 500 s^{-1} .

Les solutions de maltodextrine à 20% w/w, de gomme d'acacia à 20 et 30% w/w ont toutes montré un comportement de fluide Newtonien : la viscosité μ_L est indépendante de la vitesse de cisaillement, et il existe une proportionnalité linéaire entre la contrainte tangentielle et la vitesse de cisaillement:

$$\tau = \mu_L \cdot \gamma_c \quad (\text{Eq. 2.12})$$

où μ_L est la viscosité dynamique du fluide [Pa.s] (Figure 2.6.8) .

6.3.4. Tension superficielle

Dans des termes thermodynamiques, la tension superficielle est l'énergie interfaciale libre en excès (N/m) produite pendant la formation réversible d'une surface entre deux phases. Pour un liquide pur en équilibre avec sa pression de vapeur, la tension superficielle et l'énergie libre interfaciale sont égales à zéro. L'analyse des forces superficielles liquide-gaz, liquide-liquide ou liquide-solide, donne des informations importantes sur les phénomènes d'adsorption et adhésion de macromolécules.

La tension superficielle influence la taille des gouttes produites par la buse bi-bifluide.

Les mesures de tension superficielle σ_L ont été réalisées avec un tensiomètre à goutte (Tracker, IT Concept, France) en utilisant la méthode de la goutte pendante (Figure 2.6.9a) (Département Sciences des Aliments, ENSIA).

Le liquide est introduit dans une seringue (PS 18) thermostatée à 25°C pour former une goutte de 7 μ l suspendue dans l'air (25°C), dans une cuvette de quartz. Le profil de la goutte est digitalisé en vidéo par une caméra reliée à un ordinateur, et analysé par le logiciel DROP. L'équation de Laplace permet de décrire le profil de la goutte et de calculer la tension superficielle γ_{L-G} :

$$\frac{1}{x} \cdot \frac{d}{dx} \cdot (x \cdot \sin\theta_g) = \frac{2}{b} - C \cdot z \quad (\text{Eq. 2.13})$$

où x et z sont les coordonnées cartésiennes du profil de la goutte (Figure 2.6.9b), b est le rayon de courbure à l'apex de la goutte, θ_g est l'angle de la tangente du profil de la goutte et C est la constante de capillarité = $g \cdot \Delta\rho / \sigma_L$, où g est l'accélération de la pesanteur et $\Delta\rho$ est la différence de densités entre le liquide et le gaz ($\rho_{\text{air}} = 1.17 \text{ kg/m}^3$, à 25°C).

La tension superficielle mesurée est la moyenne sur 10 mesures enregistrées pendant la phase initiale (0 à 5 s) de la formation de la goutte pendante. La précision de l'appareil est de 0,02 N/m.

Les liquides analysés sont ceux utilisés pour la pulvérisation (eau, gomme d'acacia à 20%, gomme d'acacia à 30%, et maltodextrine à 20%). Ils sont préparés et stockés à 10°C, 24 h, mais tempérés à 25°C à l'aide d'un bain marie avant l'analyse.

Le tableau 2.6.2 donne les principales caractéristiques des produits utilisés.

Tableau 2.6.2. Récapitulatif des caractéristiques physico-chimiques des produits utilisés.

| Particules solides | Diamètre médian | Masse volumique vraie | Teneur en eau |
|--------------------|------------------------|---------------------------------------|------------------|
| | $d_{50} (\mu\text{m})$ | $\rho_{\text{vraie}} (\text{kg/m}^3)$ | (g eau/100 g MS) |
| Billes de verre | 160 | 2490 | < 1 |
| Maltodextrine | 180 | 1424 | 8,7 |
| Gomme d'acacia | - | 1212 | 10,0 |

| Liquides pulvérisés | Masse volumique vraie | Viscosité dynamique | Tension superficielle |
|------------------------|---------------------------------------|---------------------------------------|---|
| | $\rho_{\text{vraie}} (\text{kg/m}^3)$ | $\mu (\text{mPa.s}) 20^\circ\text{C}$ | $\sigma (\text{mN/m}) 20^\circ\text{C}$ |
| Eau | 998 | 1 | 80 |
| Gomme d'acacia 20% w/w | 1082 | 43 | 67,5 |
| Gomme d'acacia 30% w/w | 1135 | 204 | 68,3 |
| Maltodextrine 20% w/w | 1075 | 4,4 | 68,3 |

Note : propriétés mesurées à 20°C.

CHAPITRE III

Résultats et discussion

La pulvérisation étant l'une des étapes clés du procédé, la première partie de ce chapitre porte sur la caractérisation du jet de liquide pulvérisé (forme, angle, taille et distribution de taille des gouttes) afin de fixer les domaines de variation des paramètres de pulvérisation à étudier (débit et viscosité du liquide, pression relative de l'air) et le réglage de la buse.

Dans la deuxième partie différentes "zones thermiques" dans le lit fluidisé sont identifiées et caractérisées à partir de mesures de la température de l'air dans un lit de billes de verre avec pulvérisation d'eau. La position, la forme et la taille de ces zones sont représentatives des transferts de matière et de chaleur au sein du lit qui sont déterminants pour la croissance des agglomérats.

Enfin, la troisième partie présente les résultats d'essais d'agglomération réalisés avec d'une part, des billes de verre, non solubles, sphériques, utilisées comme particules "modèles" en pulvérisant une solution de gomme d'acacia ; et d'autre part, des particules de maltodextrine, solubles dans l'eau, irrégulières, couramment utilisées en alimentaire, en pulvérisant de l'eau, ou une solution de gomme d'acacia. Le suivi de l'évolution de la taille des particules au cours du procédé et la caractérisation des propriétés des agglomérats et des poudres obtenus en fonction des conditions opératoires et des produits (particules, liants) utilisés permettent de mettre en évidence les conditions les plus favorables à l'agglomération (économiquement et/ou en termes de qualité des poudres).

Sur les bases des différents travaux publiés dans la littérature et des résultats de l'étude réalisée, le quatrième et dernier chapitre propose un modèle décrivant l'évolution de la distribution de taille des agglomérats au cours de la croissance en lit fluidisé.

1. La pulvérisation de liquide par buse bi-fluide

La pulvérisation du liquide (solvant, solution de liant) utilisé pour l'agglomération est susceptible d'avoir une grande influence sur les phénomènes mis en jeu et les propriétés des agglomérats obtenus (taille, forme ...). L'étude est effectuée avec une buse bi-fluide.

Les principaux paramètres pouvant influencer la pulvérisation sont :

- le type de buse (diamètre des orifices) et son réglage ;
- la viscosité et la tension superficielle du liquide pulvérisé qui sont fonction de sa nature, de la température et de la concentration s'il s'agit d'une solution ;
- le débit de liquide pulvérisé ;
- le débit ou la pression relative de l'air de pulvérisation.

Ces paramètres peuvent modifier la distribution de taille des gouttes formées et la géométrie du jet de liquide pulvérisé (forme, homogénéité et angle). La distribution de taille des gouttes détermine surtout la formation des ponts liquides entre particules, alors que la géométrie du jet a plutôt une influence sur la fraction des particules qui seront « mouillées » par le liquide et le collage contre les parois de la cuve.

1.1.Géométrie du jet de pulvérisation

La géométrie du jet de pulvérisation a été étudiée à l'aide du montage de la figure 2.5.1 (Chapitre II - Matériel et méthodes), qui permet d'une part, de connaître la répartition des gouttes pulvérisées, donnée par la forme et la coloration de la tache obtenue, et d'autre part, de déterminer l'angle du jet. Dans tous les cas étudiés (eau colorée au bleu de méthylène, à 20°C; débits de liquide 2,65 ; 5,33 et 7,75 ml/min et pressions relatives de l'air 1, 2 et 3 bar), cette tache, légèrement ovale (circularité 0,98), continue et uniforme en couleur, montre que le jet est de type « cône plein » et que la pulvérisation est homogène en débit sur toute la zone couverte. En fonction du débit, de la pression relative et du réglage de la buse, les angles de jet mesurés sont compris entre 20 et 40°. La sortie de la buse est considérée comme le sommet du cône.

Influence du débit de liquide pulvérisé

L'effet du débit de liquide pulvérisé (eau colorée à 20°C), pour différentes pressions relatives de l'air, sur l'angle du jet de pulvérisation est donné à la figure 3.1.1.

Quelle que soit la pression relative, une augmentation du débit de liquide entraîne une augmentation de l'angle du jet. Quand le débit est multiplié par 3, l'augmentation de l'angle du jet est de 7° à 1 bar, 4° à 2 bars et 3° à 3 bars. L'influence du débit de liquide sur l'angle du jet, dans la gamme de débits étudiée (2,65 à 7,75 ml/min) est plus sensible pour la faible pression relative de l'air (1 bar).

Influence de la pression relative de l'air

Quand la pression relative de l'air dans la buse augmente de 1 à 3 bars, l'angle du jet de pulvérisation diminue en fonction du débit (Figure 3.1.1). Cette diminution est plus importante de 1 à 2 bars (de 9 à 11°) que de 2 à 3 bars (de 2 à 3°). Quand on augmente la pression relative d'air dans la buse, le liquide est soumis à une force plus grande, générant un jet plus étroit, et impliquant sans doute une pénétration plus profonde du jet dans le lit. Guignon (2001) a trouvé le même effet de la pression relative de l'air sur le jet de

pulvérisation dans le cas d'une pulvérisation avec buse bi-fluide par le bas (jet dirigé vers le haut).

Influence du réglage de la buse

L'effet de l'augmentation de la distance entre les orifices de sortie de l'air et du liquide au niveau de la buse, en augmentant le nombre de tours pour une position donnée (position 1), sur l'angle du jet de pulvérisation est donné à la figure 3.1.2. A 1 bar, l'angle du jet passe de 33 à 27° quand on passe de 0 à 2 tours alors qu'à 2 et 3 bars le réglage a peu d'influence (fluctuation d'environ 3° de l'angle du jet).

Ces résultats ont été obtenus en-dehors de la cuve de fluidisation, à l'air libre. Or, lors des essais d'agglomération, le jet de liquide pulvérisé sera soumis au flux d'air de fluidisation ascendant. Compte tenu de la forme conique de la cuve, la vitesse de l'air de fluidisation diminue à mesure qu'il traverse le lit de particules. Elle passe ainsi de 2,7 m.s⁻¹ au niveau de la grille à 1 m.s⁻¹ au niveau de la buse où elle est très inférieure à la vitesse de l'air de pulvérisation (entre 96 et 200 m/s pour une pression relative de l'air entre 1 et 3 bar). L'air de fluidisation devrait donc avoir une influence limitée sur la géométrie du jet dans la partie supérieure du lit qui nous intéresse.

A partir de ces résultats, il a été décidé, pour les essais suivants de travailler avec un réglage de la buse à la position 1 sans tour. C'est dans ces conditions que l'angle du jet de liquide est le plus grand et le plus homogène en forme. Il est aussi plus sensible au débit de liquide et à la pression relative de l'air de pulvérisation.

1.2.Surface du lit mouillée par le jet de liquide pulvérisé et collage contre les parois

Pour les essais d'agglomération il est important de connaître la surface S du lit couverte par le jet à l'endroit où celui-ci entre en contact avec les particules fluidisées (haut du lit). Travailler avec un angle de jet élevé conduit à une zone mouillée plus large. La surface mouillée S est fonction de la distance entre la buse et le haut du lit fluidisé (h_b [cm]), et de l'angle du jet (θ [°]):

$$S = \pi h_b^2 [\tan (\theta/2)]^2 \quad (\text{Eq. 3.1})$$

Elle augmente proportionnellement au carré de la distance buse-lit de particules et est donc susceptible d'évoluer au cours des essais d'agglomération si la hauteur du lit n'est pas constante. A courte distance, l'influence de la pression relative de l'air et du débit de liquide sur S est faible (Figure 3.1.3). Lorsque la distance buse-lit est supérieure à 4 cm, c'est la pression relative de l'air qui a la plus grande influence sur la surface mouillée (elle a la plus grande influence sur l'angle du jet). Pour une distance h_b de 2 cm qui est la distance buse-lit moyenne au cours des essais d'agglomération réalisés, S passe de 1,5 à 0,5 cm² lorsque la pression relative de l'air passe de 1 à 3 bars avec un débit de 5,33 ml/min et de 1,1 à 1,6 cm² lorsque le débit d'eau passe de 2,65 à 7,75 ml/min avec une pression relative de 1 bar. A l'entrée dans le lit, le jet mouille donc moins de 1 % de la surface du lit (375 cm²). La surface mouillée augmente ensuite rapidement à mesure que le jet pénètre dans le lit pour atteindre 10 à 40 cm² à une profondeur de 8 cm (en fonction de la pression relative de l'air et du débit de

liquide). Dans les conditions des essais réalisés, ceci représente 3,5 à 14 % de la section du lit à cette hauteur (290 cm²).

Plus l'angle du jet est grand, plus la probabilité pour que le liquide pulvérisé atteigne les parois de la cuve est grande. Dans la gamme de débits de liquide et pressions relatives testés, l'angle du jet est compris entre 20 et 40°. Compte tenu de la géométrie de la cuve conique de fluidisation, pour les angles supérieurs à 30° le jet atteindrait les parois dans la partie inférieure de la cuve, entre 0 et 5 cm au-dessus de la grille de distribution de l'air. Dans la gamme de débits testés, ceci peut donc se produire si la pression de pulvérisation est fixée à 1 bar, mais pas pour 2 ou 3 bars. Dans le cas du lit fluidisé, en présence des particules et du courant ascendant d'air chaud, le jet de pulvérisation est intercepté par les particules dans la zone supérieure du lit, où il est de plus partiellement séché par l'air de fluidisation. Pour toutes les conditions testées il est probable que le jet de liquide soit intégralement déposé sur les particules sans atteindre les parois.

1.3. Taille des gouttes

Influence des paramètres de pulvérisation sur la taille des gouttes

Les tailles des gouttes mesurées pour l'eau et différentes solutions en fonction de la pression relative de l'air, et du débit de liquide (Tableau 3.1.1) montrent d'une part, que pour un même liquide, la taille des gouttes augmente lorsque le débit de liquide augmente. Cet effet est en accord avec les études sur la pulvérisation avec des buses bi-fluides rapportées dans la littérature (Masters, 1976 ; Filková et Mujumdar, 1995). D'autre part, on a aussi constaté que l'augmentation du débit de l'air dans la buse (1,15 à 2,40 m³/h) en augmentant la pression relative de 1 à 3 bar, entraîne une diminution de la taille des gouttes (Kim et Marshall, 1971).

Dans le cas de *l'eau*, l'influence de la pression relative de l'air de pulvérisation (1 à 3 bar) sur la taille des gouttes est plus importante que celle du débit de liquide (2,65 à 7,75 ml/min). Par exemple, le diamètre de Sauter $d_{3,2}$ des gouttes diminue de moitié (51 à 24 μm) quand la pression relative de l'air de pulvérisation passe de 1 à 2 bar, avec un même débit de liquide (5,33 ml/min). Par contre, quand on augmente le débit du liquide de 2,65 à 7,75 ml/min, le $d_{3,2}$ augmente seulement de 15% (45 à 58 μm) pour une pression relative de 1 bar. Et, lorsqu'on augmente la pression relative de l'air de pulvérisation de 1 à 3 bar, l'effet du débit de liquide sur la taille des gouttes devient de moins en moins important.

Dans le cas de *solutions de gomme d'acacia*, la taille des gouttes (d_{50} , $d_{3,2}$ et $d_{4,3}$) double lorsque la concentration de la solution passe de 20 à 30% en masse, avec les mêmes conditions opératoires. On peut attribuer cet effet à la différence de viscosité des solutions pulvérisées (43 et 204 mPa.s respectivement).

Pour la *solution de maltodextrine* à 20% en masse, les gouttes ont des tailles plus élevées que pour la solution de gomme d'acacia à 20% ou l'eau bien que la viscosité de la solution (4,4 mPa.s) soient proche de celle de l'eau et inférieure à celle de la solution de gomme acacia. La tension superficielle est la même pour les solutions de maltodextrine et de gomme d'acacia.

Ces résultats montrent que la nature de la solution utilisée et sa viscosité ont une grande influence sur la taille des gouttes pulvérisées. Le choix de la solution de liant et surtout de sa concentration sera déterminant pour l'agglomération des particules.

Tableau 3.1.1 . Diamètres des gouttes en fonction de la pression relative de l'air et du débit de liquide pour l'eau et différentes solutions à 20°C. (GA 20 : gomme d'acacia à 20% en masse, GA 30 : gomme d'acacia à 30% en masse, MD 20 : maltodextrine à 20% en masse)

| Pression d'air bar | Débit du liquide ml/min | d_{10} μm | d_{50} μm | d_{90} μm | étalement $(d_{90}-d_{10})/d_{50}$ | $d_{3,2}$ μm | $d_{4,3}$ μm |
|---|-------------------------------|---------------------------|---------------------------|---------------------------|---------------------------------------|----------------------------|----------------------------|
| Eau (20°C, $\rho_L = 998 \text{ kg/m}^3$, $\mu_L = 1 \text{ mPa.s}$, $\sigma_L = 80 \text{ mN/m}$) | | | | | | | |
| 1 | 2,65 | 13 | 35 | 89 | 2,2 | 25 | 45 |
| 1 | 5,33 | 14 | 39 | 102 | 2,3 | 27 | 51 |
| 1 | 7,75 | 14 | 44 | 119 | 2,4 | 29 | 58 |
| 2 | 2,65 | 7 | 17 | 38 | 1,8 | 11 | 21 |
| 2 | 5,33 | 8 | 19 | 43 | 1,9 | 13 | 24 |
| 2 | 7,75 | 8 | 20 | 47 | 2,0 | 14 | 25 |
| 3 | 2,65 | 5 | 14 | 29 | 1,7 | 10 | 16 |
| 3 | 5,33 | 6 | 15 | 33 | 1,8 | 11 | 18 |
| 3 | 7,75 | 6 | 16 | 35 | 1,8 | 11 | 20 |
| GA 20 (20°C, $\rho_L = 1082 \text{ kg/m}^3$, $\mu_L = 43 \text{ mPa.s}$, $\sigma_L = 67,5 \text{ mN/m}$) | | | | | | | |
| 1 | 2,65 | 12 | 64 | 176 | 2,5 | 29 | 82 |
| 1 | 5,33 | 13 | 69 | 185 | 2,5 | 30 | 86 |
| 1 | 7,75 | 15 | 75 | 206 | 2,5 | 33 | 95 |
| 2 | 5,33 | 5 | 26 | 94 | 3,4 | 13 | 39 |
| 3 | 5,33 | 4 | 21 | 82 | 3,7 | 11 | 34 |
| GA 30 (20°C, $\rho_L = 1135 \text{ kg/m}^3$, $\mu_L = 204 \text{ mPa.s}$, $\sigma_L = 68,3 \text{ mN/m}$) | | | | | | | |
| 1 | 5,33 | 27 | 117 | 450 | 3,6 | 53 | 188 |
| MD 20 (20°C, $\rho_L = 1075 \text{ kg/m}^3$, $\mu_L = 4,4 \text{ mPa.s}$, $\sigma_L = 68,3 \text{ mN/m}$) | | | | | | | |
| 1 | 2,65 | 20 | 94 | 209 | 2,0 | 39 | 106 |
| 1 | 5,33 | 17 | 90 | 212 | 2,2 | 35 | 104 |

Distributions de taille des gouttes

Dans le cas de l'eau, les distributions de taille des gouttes sont monomodales (Figure 3.1.4a) avec un étalement faible compris entre 1,8 et 2,2 (Tableau 3.1.1). On peut dire que la pulvérisation de l'eau dans les conditions étudiées produit un jet de liquide avec des gouttes homogènes en taille. Pour la solution de maltodextrine, même si l'étalement est plus ou moins identique à celui de l'eau (2,0-2,2), la distribution de taille des gouttes, également monomodale, est décalée vers la droite. Elle n'est pas symétrique et présente une traîne vers les classes de petits diamètres (Figure 3.1.4b). Du fait des propriétés physiques de la solution de maltodextrine (viscosité, tension superficielle), on peut en déduire que le liquide présente une résistance à la division en fines gouttes ou une tendance à coalescer plus grande que celle de l'eau. Le même effet est observé pour la solution de la gomme d'acacia à 20% (Figure 3.1.4c,d,e). Les distributions de taille des gouttes ne sont pas symétriques et plus étalées. Elles tendent à devenir bimodales avec un épaulement au niveau des classes de diamètre inférieur à 20 μm qui est d'autant plus important que la pression relative de l'air est élevée. Pour la solution de gomme d'acacia à 30% en masse, encore plus visqueuse, l'étalement est encore plus grand et la distribution quasiment bimodale. Avec ces résultats on confirme, comme dans d'autres études sur la pulvérisation en utilisant des buses pneumatiques (Filková et Mujumdar, 1995), que les liquides moins visqueux produisent des gouttes avec une taille moyenne petite et très homogène, tandis que les liquides plus visqueux produisent des gouttes avec une taille moyenne plus élevée et une distribution de taille étalée.

Un jet de pulvérisation avec une distribution de taille des gouttes homogène permet d'envisager une agglomération des particules avec des ponts uniformes en volume et donc la formation d'agglomérats avec une distribution de taille homogène.

Taille des gouttes expérimentale et calculée

A partir des équations empiriques trouvées dans la littérature pour le calcul du diamètre des gouttes en fonction des paramètres de pulvérisation (Tableau 3.1.2), on a calculé les diamètres de Sauter ($d_{3,2}$) et diamètres moyens en volume ($d_{4,3}$) théoriques et on les a comparés à nos valeurs expérimentales, pour l'eau (Figure 3.1.5), la solution de gomme d'acacia à 20% (Figure 3.1.6) et la solution de maltodextrine (Figure 3.1.7). Les trois équations de Nukiyama-Tanasawa (Eq. 1.16, 1.17 et 1.18) correspondent à des versions différentes avec des coefficients et des unités différents (Filková et Cedik, 1984 ; Filková et Mujumdar, 1995 ; Masters, 1976).

Tableau 3.1.2. Equations empiriques donnant la taille des gouttes pulvérisées par une buse bi-fluide pneumatique. (ρ_L, μ_L, σ_L : masse volumique, viscosité dynamique et tension superficielle du liquide; $U_a, U_L, Q_a, Q_L, M_a, M_L$: vitesses, débits volumiques et débits massiques de l'air et du liquide à la sortie de la buse bi-fluide.

| | Unités |
|--|--|
| Nukiyama –Tanasawa | |
| (Masters 1976, Filková et Cedik, 1984 ; Filková et Mujumdar, 1995) | |
| (Eq. 1.16) | $U_r = U_a - U_L = \text{m/s}; Q_L, Q_a = [\text{m}^3/\text{s}]; \mu_L = [\text{P}]; \sigma_L = [\text{dyne/cm}]; \rho_L = [\text{kg/m}^3]$ |
| $d_{3,2} [\mu\text{m}] = \left(\frac{585}{U_r} \right) \left(\frac{\sigma_L}{\rho_L} \right)^{0,5} + 597 \left(\frac{\mu_L}{\sqrt{\sigma_L \rho_L}} \right)^{0,45} \left(\frac{Q_L \times 10^3}{Q_a} \right)^{1,5}$ | |
| (Eq. 1.17) | $U_r = \text{m/s}; Q_L, Q_a = [\text{m}^3/\text{s}]; \mu_L = [\text{cP}]; \sigma_L = [\text{N/m}]; \rho_L = [\text{kg/m}^3]$ |
| $d_{3,2} [\mu\text{m}] = \left(\frac{585 \times 10^3}{U_r} \right) \left(\frac{\sigma_L}{\rho_L} \right)^{0,5} + 597 \left(\frac{\mu_L}{\sqrt{\sigma_L \rho_L}} \right)^{0,45} \left(\frac{Q_L \times 10^3}{Q_a} \right)^{1,5}$ | |
| (Eq. 1.18) | $U_a = \text{ft/s}; Q_L, Q_a = [\text{ft}^3/\text{min}]; \mu_L = [\text{P}]; \sigma_L = [\text{dynes/cm}]; \rho_L = [\text{lb/ft}^3]$ |
| $d_{3,2} [\mu\text{m}] = \left(\frac{1410}{U_a} \right) \left(\frac{\sigma_L}{\rho_L} \right)^{0,5} + 191 \left(\frac{\mu_L}{\sqrt{\sigma_L \rho_L}} \right)^{0,45} \left(\frac{Q_L \times 10^3}{Q_a} \right)^{1,5}$ | |
| Kim -Marshall | |
| (Kim et Marshall, 1971 ; Masters, 1976) | |
| (Eq. 1.19) | $U_r, U_a, U_L = \text{ft/s}; M_L, M_a = [\text{lb/min}]; \mu_L = [\text{cP}]; \sigma_L = [\text{dynes/cm}]; \rho_L = [\text{lb/ft}^3]; S_a = \text{in}^2$ |
| $d_{4,3} [\mu\text{m}] = 249 \left(\frac{\sigma_L^{0,41} \mu_L^{0,32}}{(U_r^2 \rho_a)^{0,57} S_a^{0,36} \rho_L^{0,16}} \right) + 1260 \left(\frac{\mu_L^2}{\rho_L \sigma_L} \right)^{0,17} \left(\frac{1}{U_r^{0,54}} \right) \left(\frac{M_a}{M_L} \right)^m$ | |
| $m = 1$ quand $M_a/M_L < 3$; $m = -0,5$ quand $M_a/M_L > 3$ | |
| Gretzinger -Marshall | |
| (Masters, 1976) | |
| (Eq. 1.20) | $M_L, M_a = [\text{lb/min}]; \mu_a = [\text{P}]; G_a = M_a / S_a = [\text{lb} \cdot \text{min}^{-1} \cdot \text{ft}^2]; D_L = \text{cm}$ |
| $d_{4,3} [\mu\text{m}] = 2600 \left(\frac{M_L \mu_a}{M_a G_a D_L} \right)^{0,4}$ | |
| Hukuo-Hikiche-Okado | |
| (Hukuo et al., 1977) | |
| (Eq. 1.21) | $U_r = U_a - U_L = \text{m/s}; Q_L, Q_a = [\text{cm}^3/\text{s}]; \mu_L = [\text{P}]; \sigma_L = [\text{dyne/cm}]; \rho_L = [\text{g/cm}^3]$ |
| $d_{3,2} [\text{mm}] = \left(\frac{0,47}{U_r^{0,61}} \right) \left(\frac{\sigma_L}{\rho_L} \right)^{0,36} + 0,14 \left(\frac{\mu_L}{\sqrt{\sigma_L \rho_L}} \right)^{0,43} \left(\frac{Q_L \times 10^3}{Q_a} \right)^{0,64}$ | |

Tableau 3.1.3. Diamètres de Sauter ($d_{3,2}$) mesurés et calculés (Eq. 1.18 de Nukiyama-Tanasawa) pour les solutions de gomme d'acacia. ($P = 1$ bar, $Q_L = 5,33$ ml/min)

| Solution pulvérisée | $d_{3,2}$ exp. (μm) | $d_{3,2}$ calculé (μm) | Erreur (%) |
|----------------------------|---|--|-------------------|
| Gomme d'acacia 20% w/w | 29,9 | 26,3 | 12,1 |
| Gomme d'acacia 30% w/w | 53,1 | 49,0 | 7,8 |

On peut observer, sur les figures 3.1.5, 3.1.6 et 3.1.7 que, dans la plupart des cas, les équations qui conduisent à un diamètre théorique proche de la valeur expérimentale sont l'équation 1.18 de Nukiyama-Tanasawa pour le $d_{3,2}$ et celle de Kim et Marshall (Eq. 1.19) pour le $d_{4,3}$. En ce qui concerne l'équation de Nukiyama-Tanasawa, ce résultat est surprenant car elle a été établie pour des buses bi-fluides à mélange interne alors que la buse utilisée dans cette étude est à mélange externe. Les équations 1.21 et 1.17 sont celles qui donnent les valeurs théoriques les plus éloignées des valeurs expérimentales. Dans tous les cas elles surestiment largement le diamètre des gouttes.

Pour la solution de gomme d'acacia à 30%, compte tenu des domaines de validité des différentes équations (Tableau 1.1) seule l'équation 1.18 de Nukiyama-Tanasawa était applicable. Le diamètre des gouttes ($d_{3,2}$) calculé présente un écart de 8% avec la valeur expérimentale (Tableau 3.1.3).

Les équations 1.18 et 1.19 qui donnent les meilleurs résultats ont des formes relativement différentes. Notamment, dans l'équation 1.19, la viscosité du liquide intervient dans les 2 termes alors qu'elle n'apparaît que dans le second terme de l'équation 1.18. L'équation 1.19 fait également intervenir la vitesse relative U_r entre l'air et le liquide au dénominateur du second terme, alors que celle-ci n'apparaît pas dans l'équation 1.18.

Les erreurs relatives entre les diamètres de gouttes mesurés et les diamètres calculés avec les équations 1.18 et 1.19 sont toutefois relativement élevées ($7,8 \% \leq \text{erreur} \leq 83,6 \%$ - tableau 3.1.4)

Dans le cas de l'eau, seule l'équation 1.19 de Kim et Marshall donne des valeurs correctes. Pour les solutions de gomme d'acacia c'est plutôt l'équation 1.18. Pour la solution de maltodextrine, aucune des deux n'est satisfaisante.

Afin d'être en mesure d'estimer correctement la taille des gouttes formées dans le cas de notre buse, dans nos conditions d'utilisation, nous avons établi une équation empirique à partir de nos données expérimentales.

Obtention d'une équation empirique pour le calcul de la taille des gouttes

Nous avons choisi d'établir une équation pour le calcul du diamètre Sauter ($d_{3,2}$) et une pour le calcul du diamètre moyen en volume ($d_{4,3}$). Pour plus de clarté, ces équations font intervenir des termes adimensionnels et les variables sont exprimées dans les unités du système international (SI). La forme de ces équations est inspirée de l'équation de Nukiyama-Tanasawa. Elle inclut un premier terme (l'inverse du nombre de Weber) qui décrit les forces dynamiques d'inertie et de tension superficielle ; et un deuxième terme qui comprend le rapport des vitesses de l'air et du liquide à la sortie de la buse bi-fluide, et un facteur qui décrit la force de viscosité.

Tableau 3.1.4. Erreur de prédiction du diamètre de Sauter ($d_{3,2}$) et du diamètre moyen en volume ($d_{4,3}$) avec les équations empiriques de Nukiyama-Tanasawa (Eq. 1.18) et Kim-Marshall (Eq. 1.19), pour différentes conditions opératoires.

| Pression d'air bar | Débit du liquide ml/min | $d_{3,2}$ | | | $d_{4,3}$ | | |
|--------------------------|-------------------------------|-------------|----------|-------------|--------------|----------|-------------|
| | | Exp. | Eq. 1.18 | % Erreur | Exp. | Eq. 1.19 | % Erreur |
| Eau | | | | | | | |
| 1 | 2,65 | 24,9 | 5,4 | 78,3 | 44,6 | 30,5 | 31,6 |
| 1 | 5,33 | 27,1 | 8,1 | 70,1 | 50,7 | 32,2 | 36,5 |
| 1 | 7,75 | 29,5 | 11,2 | 62,0 | 57,7 | 33,3 | 42,3 |
| 2 | 2,65 | 10,8 | 3,5 | 67,7 | 21,2 | 19,6 | 7,6 |
| 2 | 5,33 | 13,2 | 5,0 | 62,2 | 23,5 | 20,7 | 12,0 |
| 2 | 7,75 | 14,1 | 6,7 | 52,4 | 25,4 | 21,5 | 15,3 |
| 3 | 2,65 | 10,5 | 2,4 | 77,1 | 16,0 | 13,3 | 16,9 |
| 3 | 5,33 | 11,4 | 3,3 | 71,0 | 18,4 | 14,1 | 23,4 |
| 3 | 7,75 | 10,9 | 4,3 | 60,7 | 19,8 | 14,6 | 26,4 |
| GA 20 | | | | | | | |
| 1 | 2,65 | 28,7 | 11,5 | 59,9 | 81,5 | 96,1 | 17,9 |
| 1 | 5,33 | 29,9 | 26,3 | 12,1 | 86,4 | 102,4 | 18,6 |
| 1 | 7,75 | 32,8 | 43,5 | 32,7 | 95,3 | 106,8 | 12,1 |
| 2 | 5,33 | 12,9 | 15,1 | 16,8 | 39,2 | 66,1 | 68,5 |
| 3 | 5,33 | 10,7 | 9,2 | 13,6 | 33,9 | 45,0 | 32,9 |
| GA 30 | | | | | | | |
| 1 | 5,33 | 53,1 | 49,0 | 7,8 | 188,4 | 170,4 | 9,5 |
| MD 20 | | | | | | | |
| 1 | 2,65 | 39,1 | 6,4 | 83,6 | 106,3 | 46,4 | 56,3 |
| 1 | 5,33 | 34,9 | 11,7 | 66,5 | 103,9 | 49,3 | 52,5 |

$$d[m] = A \underbrace{\left(\frac{\sigma_L}{\rho_L U_a^2} \right)}_{\text{Forces dynamiques d'inertie}} + B \underbrace{\left(\frac{\mu_L^2}{\rho_L \sigma_L} \right)}_{\text{Force de viscosité}} \underbrace{\left(\frac{U_a}{U_L} \right)^C}_{\text{Rapport des vitesses air - liquide}} \quad (\text{Eq. 3.2})$$

Les valeurs des coefficients A, B et C de ces équations sont obtenues en minimisant la somme des carrés des écarts (SCE) entre les valeurs expérimentales et calculées (Tableau 3.1.5). Puis, chacun des deux termes de l'équation a été considéré séparément pour estimer son effet sur le calcul du diamètre des gouttes (et pour optimiser l'ajustement de l'équation aux données expérimentales) (Tableau 3.1.5 et figure 3.1.8). Alors que le premier terme permet à lui seul une bonne estimation du diamètre des gouttes, le second terme qui fait pourtant intervenir la viscosité du liquide sous-estime largement les valeurs. Toutefois, c'est en utilisant simultanément les deux termes que l'on obtient la meilleure corrélation ($r^2 = 0,80$) entre diamètres calculés et diamètres théoriques.

Tableau 3.1.5. Valeurs des coefficients A, B et C de l'équation 5 et SCE minimale correspondante pour le calcul du diamètre de Sauter ($d_{3,2}$) et du diamètre moyen en volume ($d_{4,3}$) des gouttes pulvérisées (unités SI).

| Equation | $d_{3,2}$ (m) | $d_{4,3}$ (m) |
|---|--|--|
| <p>Premier terme (un coefficient) (Eq. 3.3)</p> $d[m] = A \left(\frac{\sigma_L}{\rho_L U_a^2} \right)$ | <p>A = 6,886 x 10³ SCE = 1,14 x 10⁻⁹</p> | <p>A = 1,7826 x 10⁴ SCE = 2,31 x 10⁻⁸</p> |
| <p>Deuxième terme (deux coefficients) (Eq. 3.4)</p> $d[m] = B \left(\frac{\mu_L^2}{\rho_L \sigma_L} \right) \left(\frac{U_a}{U_L} \right)^C$ | <p>B = 5,95 x 10⁻⁷ C = 1,64 SCE = 8,05 x 10⁻⁹</p> | <p>B = 3,84 x 10⁻⁵ C = 1,25 SCE = 5,09 x 10⁻⁸</p> |
| <p>Deux termes (trois coefficients) (Eq. 3.5)</p> $d[m] = A \left(\frac{\sigma_L}{\rho_L U_a^2} \right) + B \left(\frac{\mu_L^2}{\rho_L \sigma_L} \right) \left(\frac{U_a}{U_L} \right)^C$ | <p>A = 6,265 x 10³ B = 8,95 x 10⁻⁵ C = 0,865 SCE = 4,37 x 10⁻¹⁰</p> | <p>A = 1,495 x 10⁴ B = 2,209 x 10⁻⁴ C = 0,952 SCE = 7,64 x 10⁻⁹</p> |

De manière générale, l'erreur relative entre diamètre calculé (avec les deux termes) et diamètre mesuré est plus faible ($\leq 37,7$ %) pour le diamètre de Sauter ($d_{3,2}$) que pour le diamètre moyen en volume ($d_{4,3}$) ($\leq 83,5$ %) (Tableaux 3.1.6 et 3.1.7). Les équations établies (avec deux termes) permettent de prédire de façon satisfaisante les diamètres des gouttes pour les solutions de gomme d'acacia à 20 et 30 % en masse qui ont des viscosités élevées. Par contre, pour l'eau et la solution de maltodextrine à 20%, les valeurs calculées restent relativement éloignées des valeurs mesurées. Ceci semble lié au fait que dans ces deux cas, la viscosité du liquide est faible (1 mPa.s pour l'eau et 4,4 mPa.s pour la solution de maltodextrine à 20% en masse) ce qui conduit à une valeur quasiment nulle du second terme.

La viscosité du liquide ayant une forte influence sur la prédiction de la taille des gouttes pulvérisées, on a décidé d'établir deux équations empiriques : une pour les liquides de viscosité faible comprise entre 1 et 4,4 mPa.s (Eq. 5a et 5b), comme l'eau et la solution de maltodextrine à 20% en masse ; et une pour les liquides de viscosité élevée comprise entre 43 et 204 mPa.s (Eq. 5c et 5d) comme les solutions de gomme d'acacia à 20 et 30% en masse. Les coefficients de ces équations sont donnés au tableau 3.1.8.

Les erreurs de prédiction pour les liquides de faible viscosité sont $\leq 27,7$ et 36,6 % pour le $d_{4,3}$ et $d_{3,2}$ respectivement (Tableau 3.1.9). Pour les liquides de viscosité élevée (solutions de gomme d'acacia), même si on obtient des erreurs $\sim 30\%$ pour quelques essais, la corrélation entre les données expérimentales et calculées est bonne (Tableau 3.1.10, Figure 3.1.9). Si on compare avec l'équation empirique 1 de la littérature, on observe une meilleure corrélation ($0,97 \leq r^2 \leq 0,99$ au lieu de $0,77 \leq r^2 \leq 0,84$) pour le calcul de la taille des gouttes (Figures 3.1.8 et 3.1.9). *Ces résultats montrent que la prédiction de la taille des gouttes dépend fortement de la viscosité du liquide pulvérisé, donc le calcul est plus précis avec un domaine de valeurs de viscosité étroite.*

Tableau 3.1.6. Effet de chaque terme de l'équation 5 sur le diamètre de Sauter ($d_{3,2}$) calculé.

| Pression d'air (bar) | Débit du liquide (ml/min) | $d_{3,2}$ (μm) | | | | | | |
|----------------------------|---------------------------------|--------------------------------|---------|----------|----------------------|----------|---------|----------|
| | | Exp. | Eq. 3.3 | % Erreur | Eq. 3.4 | % Erreur | Eq. 3.5 | % Erreur |
| Eau | | | | | | | | |
| 1 | 2,65 | 24,9 | 37,7 | 51,3 | $3,7 \times 10^{-3}$ | 99,9 | 34,3 | 37,7 |
| 1 | 5,33 | 27,1 | 37,7 | 39,2 | $1,3 \times 10^{-3}$ | 99,9 | 34,3 | 26,6 |
| 1 | 7,75 | 29,5 | 37,7 | 28,0 | $7,0 \times 10^{-4}$ | 99,9 | 34,3 | 16,5 |
| 2 | 2,65 | 10,8 | 15,5 | 42,8 | $7,6 \times 10^{-3}$ | 99,9 | 14,1 | 29,9 |
| 2 | 5,33 | 13,2 | 15,5 | 16,7 | $2,6 \times 10^{-3}$ | 99,9 | 14,1 | 6,2 |
| 2 | 7,75 | 14,1 | 15,5 | 9,7 | $1,5 \times 10^{-3}$ | 99,9 | 14,1 | 0,1 |
| 3 | 2,65 | 10,5 | 8,7 | 17,0 | $1,2 \times 10^{-2}$ | 99,9 | 7,9 | 24,5 |
| 3 | 5,33 | 11,4 | 8,7 | 23,5 | $4,2 \times 10^{-3}$ | 99,9 | 7,9 | 30,4 |
| 3 | 7,75 | 10,9 | 8,7 | 20,6 | $2,3 \times 10^{-3}$ | 99,9 | 7,9 | 27,7 |
| GA 20 | | | | | | | | |
| 1 | 2,65 | 28,7 | 29,3 | 2,3 | 7,3 | 74,7 | 28,9 | 0,8 |
| 1 | 5,33 | 29,9 | 29,3 | 1,9 | 2,5 | 91,6 | 28,0 | 6,5 |
| 1 | 7,75 | 32,8 | 29,3 | 10,5 | 1,4 | 95,7 | 27,6 | 15,7 |
| 2 | 5,33 | 12,9 | 12,0 | 7,0 | 5,3 | 59,4 | 12,8 | 0,9 |
| 3 | 5,33 | 10,7 | 6,8 | 36,5 | 8,4 | 21,0 | 8,6 | 19,5 |
| GA 30 | | | | | | | | |
| 1 | 5,33 | 53,1 | 28,3 | 46,7 | 54,7 | 3,1 | 53,5 | 0,7 |
| MD 20 | | | | | | | | |
| 1 | 2,65 | 39,1 | 29,9 | 23,5 | $7,9 \times 10^{-2}$ | 99,8 | 27,2 | 30,3 |
| 1 | 5,33 | 34,9 | 29,9 | 14,4 | $2,7 \times 10^{-2}$ | 99,9 | 27,2 | 22,1 |

Tableau 3.1.7. Effet de chaque terme de l'équation 5 sur le diamètre moyen en volume ($d_{4,3}$) calculé.

| Pression d'air (bar) | Débit du liquide (ml/min) | $d_{4,3}$ (μm) | | | | | | |
|----------------------------|---------------------------------|--------------------------------|---------|----------|-----------------------|----------|---------|----------|
| | | Exp. | Eq. 3.3 | % Erreur | Eq. 3.4 | % Erreur | Eq. 3.5 | % Erreur |
| Eau | | | | | | | | |
| 1 | 2,65 | 44,6 | 97,6 | 118,9 | $1,1 \times 10^{-2}$ | 99,9 | 81,8 | 83,5 |
| 1 | 5,33 | 50,7 | 97,6 | 92,6 | $4,71 \times 10^{-3}$ | 99,9 | 81,8 | 61,4 |
| 1 | 7,75 | 57,7 | 97,6 | 69,2 | $3,0 \times 10^{-3}$ | 99,9 | 81,8 | 41,8 |
| 2 | 2,65 | 21,2 | 40,0 | 88,5 | $1,8 \times 10^{-2}$ | 99,9 | 33,5 | 57,9 |
| 2 | 5,33 | 23,5 | 40,0 | 70,1 | $8,2 \times 10^{-3}$ | 99,9 | 33,5 | 42,5 |
| 2 | 7,75 | 25,4 | 40,0 | 57,6 | $5,2 \times 10^{-3}$ | 99,9 | 33,5 | 32,0 |
| 3 | 2,65 | 16,0 | 22,5 | 40,5 | $2,6 \times 10^{-2}$ | 99,8 | 18,9 | 18,1 |
| 3 | 5,33 | 18,4 | 22,5 | 22,2 | $1,2 \times 10^{-2}$ | 99,9 | 18,9 | 2,7 |
| 3 | 7,75 | 19,8 | 22,5 | 13,5 | $7,5 \times 10^{-3}$ | 99,9 | 18,9 | 4,7 |
| GA 20 | | | | | | | | |
| 1 | 2,65 | 81,5 | 76,0 | 6,8 | 20,8 | 74,5 | 74,7 | 8,4 |
| 1 | 5,33 | 86,4 | 76,0 | 12,1 | 9,3 | 89,2 | 69,7 | 19,3 |
| 1 | 7,75 | 95,3 | 76,0 | 20,3 | 5,9 | 93,8 | 67,9 | 28,7 |
| 2 | 5,33 | 39,2 | 31,1 | 20,6 | 16,2 | 58,7 | 35,3 | 10,0 |
| 3 | 5,33 | 33,9 | 17,5 | 48,3 | 23,2 | 31,3 | 26,7 | 21,1 |
| GA 30 | | | | | | | | |
| 1 | 5,33 | 188,4 | 73,3 | 61,1 | 201,3 | 6,9 | 191,1 | 1,4 |
| MD 20 | | | | | | | | |
| 1 | 2,65 | 106,3 | 77,4 | 27,2 | 0,2 | 99,8 | 65,0 | 38,8 |
| 1 | 5,33 | 103,9 | 77,4 | 25,5 | 0,1 | 99,9 | 64,9 | 37,5 |

Tableau 3.1.8. Equations empiriques établies pour le calcul du diamètre de Sauter ($d_{3,2}$) et du diamètre moyen en volume ($d_{4,3}$) en fonction de la viscosité du liquide. ρ_L : masse volumique [kg/m^3], μ_L : viscosité dynamique [Pa.s], σ_L : tension superficielle [N/m], U_a et U_L : vitesses de l'air et de liquide à la sortie de la buse bi-fluide à mélange externe [m/s].

| Equation | |
|--|--|
| Liquides de viscosité faible (1 à 4,4 mPa.s) (Eq. 3.5a) $d_{3,2} [m] = 5,022 \cdot 10^3 \left(\frac{\sigma_L}{\rho_L U_a^2} \right) + 1,546 \left(\frac{\mu_L^2}{\rho_L \sigma_L} \right) \left(\frac{U_a}{U_L} \right)^{-0,4693}$ SCE = $6,448 \times 10^{-11}$ | (Eq. 3.5b) $d_{4,3} [m] = 8,905 \cdot 10^3 \left(\frac{\sigma_L}{\rho_L U_a^2} \right) + 181,05 \left(\frac{\mu_L^2}{\rho_L \sigma_L} \right) \left(\frac{U_a}{U_L} \right)^{-0,0406}$ SCE = $1,4798 \times 10^{-10}$ |
| Liquides de viscosité élevée (43 à 204 mPa.s) (Eq. 3.5c) $d_{3,2} [m] = 6,938 \cdot 10^3 \left(\frac{\sigma_L}{\rho_L U_a^2} \right) + 31,694 \left(\frac{\mu_L^2}{\rho_L \sigma_L} \right) \left(\frac{U_a}{U_L} \right)^{0,8898}$ SCE = $1,611 \times 10^{-11}$ | (Eq. 3.5d) $d_{4,3} [m] = 1,955 \cdot 10^4 \left(\frac{\sigma_L}{\rho_L U_a^2} \right) + 0,122 \left(\frac{\mu_L^2}{\rho_L \sigma_L} \right) \left(\frac{U_a}{U_L} \right)^{-0,0685}$ SCE = $1,9147 \times 10^{-10}$ |

Tableau 3.1.9. Diamètre de Sauter ($d_{3,2}$) et diamètre moyen en volume ($d_{4,3}$) calculé avec l'équation 3.5a et 3.5b pour les liquides de viscosité faible.

| Pression d'air (bar) | Débit du liquide (ml/min) | $d_{3,2}$ (μm) | | | $d_{4,3}$ (μm) | | |
|--------------------------|---------------------------|-----------------------------|-------|----------|-----------------------------|-------|----------|
| | | Exp. | Calc. | % Erreur | Exp. | Calc. | % Erreur |
| Eau (1 mPa.s) | | | | | | | |
| 1 | 2,65 | 34,3 | 28,3 | 13,7 | 44,6 | 51,9 | 16,4 |
| 1 | 5,33 | 34,3 | 28,1 | 3,7 | 50,7 | 51,8 | 2,2 |
| 1 | 7,75 | 34,3 | 28,0 | 4,9 | 57,7 | 51,8 | 10,2 |
| 2 | 2,65 | 14,1 | 12,3 | 13,5 | 21,2 | 23,2 | 9,4 |
| 2 | 5,33 | 14,1 | 12,0 | 9,2 | 23,5 | 23,1 | 1,7 |
| 2 | 7,75 | 14,1 | 11,9 | 15,5 | 25,4 | 23 | 9,4 |
| 3 | 2,65 | 7,9 | 7,5 | 28,4 | 16 | 14,5 | 9,4 |
| 3 | 5,33 | 7,9 | 7,2 | 36,6 | 18,4 | 14,4 | 21,7 |
| 3 | 7,75 | 7,9 | 7,1 | 35,5 | 19,8 | 14,3 | 27,8 |
| MD 20 (4,4 mPa.s) | | | | | | | |
| 1 | 2,65 | 27,2 | 39,5 | 1,2 | 106,3 | 106,2 | 0,1 |
| 1 | 5,33 | 27,2 | 34,9 | 0,1 | 103,9 | 104,4 | 0,5 |

Tableau 3.1.10. Diamètre de Sauter ($d_{3,2}$) et diamètre moyen en volume ($d_{4,3}$) calculé avec l'équation 3.5c et 3.5d pour les liquides de viscosité élevée.

| Pression d'air (bar) | Débit du liquide (ml/min) | $d_{3,2}$ (μm) | | | $d_{4,3}$ (μm) | | |
|--------------------------|---------------------------|-----------------------------|-------|----------|-----------------------------|-------|----------|
| | | Exp. | Calc. | % Erreur | Exp. | Calc. | % Erreur |
| GA 20 (43 mPa.s) | | | | | | | |
| 1 | 2,65 | 28,69 | 30,2 | 5,3 | 81,5 | 88,5 | 8,6 |
| 1 | 5,33 | 29,91 | 30,7 | 2,6 | 86,4 | 88,3 | 2,2 |
| 1 | 7,75 | 32,77 | 31,1 | 5,0 | 95,3 | 88,2 | 7,5 |
| 2 | 5,33 | 12,93 | 12,9 | 0,4 | 39,2 | 39,3 | 0,3 |
| 3 | 5,33 | 10,65 | 7,4 | 30,4 | 33,9 | 24,5 | 27,7 |
| GA 30 (204 mPa.s) | | | | | | | |
| 1 | 5,33 | 53,12 | 53,2 | 0,2 | 188,4 | 188,7 | 0,2 |

1.4. Conclusion

Cette étude de l'influence des paramètres de pulvérisation sur la géométrie du jet et la distribution de taille des gouttes a permis de montrer que dans les conditions étudiées, le jet est conique et homogène en débit avec un angle compris entre 20 et 40°.

Le débit de la solution pulvérisée ainsi que le réglage de la buse (ouverture) ont un effet faible sur *l'angle de jet de pulvérisation* (variation de 3 à 7°). Toutefois, le jet de pulvérisation est plus homogène quand la buse est réglée à la position 1 sans tour.

La pression relative de l'air dans la buse de pulvérisation a un effet important sur l'angle du jet de pulvérisation (diminution d'environ 15° lorsqu'on passe de 1 à 3 bar). Pour augmenter la surface du lit mouillée pour le jet, il est préférable d'utiliser une pression relative de l'air de 1 bar.

Les résultats sur *la taille et la distribution de taille des gouttes* montrent que dans le cas de l'eau les gouttes pulvérisées sont plus petites et plus homogènes en taille en comparaison avec les solutions de gomme d'acacia ou de maltodextrine. On attribue cet effet à la viscosité des solutions, car on confirme que les solutions plus visqueuses produisent des gouttes plus grosses et peu homogènes en taille ce qui peut influencer l'homogénéité de la taille des agglomérats formés.

La taille des gouttes est proportionnelle au débit du liquide et inversement proportionnelle au débit d'air de pulvérisation. La pression relative de l'air de pulvérisation (débit d'air dans la buse) est la variable opératoire de pulvérisation qui a le plus d'influence sur la taille des gouttes obtenues.

L'équation 1C de Nukiyama-Tanasawa donne une bonne approximation de la taille des gouttes pulvérisées dans nos conditions opératoires. En utilisant la forme de cette équation, on a établi *une équation spécifique pour calculer la taille de gouttes pulvérisées* dans nos conditions. Le premier terme de l'équation fait intervenir les forces d'inertie et la tension superficielle, tandis que le deuxième terme fait intervenir notamment la viscosité du liquide pulvérisé. On a identifié les trois coefficients de cette équation pour calculer le diamètre de Sauter ($d_{3,2}$) ou le diamètre moyen en volume ($d_{4,3}$) des gouttes pulvérisées dans le cas de liquides avec des propriétés physiques différentes : masse volumique (ρ_L) comprise entre 998 à 1135 kg/m³, tension superficielle (σ_L) comprise entre 68 et 80 mN/m et viscosité entre 1 et 204 mPa.s. Les premiers résultats de la prédiction montrent que la viscosité est une propriété qui influence fortement le calcul de la taille des gouttes et on propose finalement deux équations empiriques : une pour les liquides de faible viscosité, comprise entre 1 et 4,4 mPa.s, et une autre pour les liquides de viscosité élevée, comprise entre 43 et 204 mPa.s. La corrélation entre les données expérimentales et les valeurs calculées avec les équations proposées est bonne ($r^2 = 0,98$).

2. Zones thermiques dans le lit fluidisé de particules en présence d'un jet de pulvérisation

L'agglomération des particules en lit fluidisé par pulvérisation d'un solvant ou d'une solution de liant suppose le mouillage de la surface des particules, leur contact pour l'établissement de ponts, le séchage de ces ponts et leur stabilité. La croissance des agglomérats est progressive : les particules fluidisées sont mouillées dans une zone de mouillage puis elles circulent dans le lit, s'agglomèrent par contact avec d'autres particules et sèchent avant de revenir dans la zone de mouillage. Pour vérifier l'existence de cette zone, et déterminer ses caractéristiques en fonction des conditions opératoires, nous avons étudié le mouillage/ séchage d'un lit fluidisé de billes de verre sur lesquelles était pulvérisée de l'eau. Pour cela, nous avons mesuré la température de l'air au voisinage de ces billes. Des thermocouples ont été disposés dans une zone d'étude cylindrique de 12 cm de diamètre centrée sur l'axe de la cuve, qui s'étend de la surface du lit au bas du lit à 6 cm au-dessus de la grille de distribution d'air ; la pulvérisation se faisant à 2 cm au-dessus de la surface du lit fluidisé (Figure 3.2.1). Les dimensions de la zone étudiée ont été choisies de manière à couvrir tout le volume du lit touché par le jet de liquide pulvérisé. Elle représente 32 % du volume total du lit fluidisé. Compte tenu de la forme conique du jet et de la cuve, nous pouvons considérer une symétrie axiale des températures de l'air dans le lit fluidisé. Neuf conditions ont été testées (Tableau 3.2.1) en modifiant chaque fois un paramètre (débit de liquide pulvérisé, pression relative de l'air de pulvérisation, température de consigne de l'air de fluidisation, charge de particules).

Tableau 3.2.1. Conditions opératoires des essais réalisés et température moyenne du lit fluidisé T_b .

| Essai | Q_L (ml/min) | P (bar) | T (°C) | Ch (g) | T_b (°C) |
|-----------|----------------|----------|-----------|------------|------------|
| 1a | 5,33 | 1 | 70 | 500 | 52 |
| 2a | 2,65 | 1 | 70 | 500 | 54 |
| 3a | 7,75 | 1 | 70 | 500 | 50 |
| 4a | 5,33 | 2 | 70 | 500 | 52 |
| 5a | 5,33 | 3 | 70 | 500 | 52 |
| 6a | 5,33 | 1 | 60 | 500 | 46 |
| 7a | 5,33 | 1 | 80 | 500 | 60 |
| 8a | 5,33 | 1 | 70 | 250 | 53 |
| 9a | 5,33 | 1 | 70 | 750 | 53 |

(Q_L : débit du liquide de pulvérisation, P : pression relative de l'air de pulvérisation, Ch : charge initiale en particules).

2.1. Identification des zones thermiques

Les mesures de températures dans le lit fluidisé montrent dans tous les cas l'existence d'une région de basse température sous la buse de pulvérisation qui s'étend de la surface du lit vers le centre (Figure 3.2.1 et **annexe 3**). Dans cette région, les températures de l'air sont de 20 à 40°C inférieures à la température de consigne T. Les profils de température sont représentés par des isothermes symétriques par rapport à l'axe de la cuve, proches les unes des autres traduisant de forts gradients. Dans cette zone centrale « froide », les particules

fluidisées sont mouillées par le liquide pulvérisé (à 20°C) et il y a évaporation du solvant qui contribue au refroidissement de l'air. Cette région correspond à la *zone active de mouillage*.

Du fait de l'agitation due à l'air de fluidisation, les particules sont ensuite transférées vers la zone périphérique du lit, région plus chaude où le séchage se poursuit. Dans cette zone périphérique les isothermes sont de plus en plus écartées, les températures de l'air sont élevées et presque constantes ($\Delta T \leq 2^\circ\text{C}$) jusqu'au bord de la zone étudiée. Cette région correspond à la *zone isotherme*.

Dans la partie inférieure du lit fluidisé, juste au-dessus de la grille de distribution d'air, un gradient important de température a été observé. Par exemple, pour l'essai 1a, l'écart de température mesuré entre la grille et le bas de la zone d'étude (6 cm au-dessus de la grille) est de 10°C. Cette région correspond à la *zone de transfert actif de chaleur*, où les particules froides qui arrivent des zones supérieures, sont chauffées par l'air chaud d'entrée.

Un schéma des zones thermiques identifiées à partir des cartographies de températures est donné à la figure 3.2.2.

2.2. La zone isotherme et la température moyenne de l'air dans le lit fluidisé

Dans la zone isotherme l'écart de température sur une verticale à 6 cm de l'axe du lit, entre la surface et un point situé à une profondeur de 18 cm (6 cm au-dessus de la grille) ne dépasse pas 1°C pour chaque condition testée. Par contre, *cette température T_b varie selon les conditions et représente une température caractéristique associée à chaque condition* : nous pouvons la considérer comme représentative de la « *température moyenne du lit* ». (Tableau 3.2.1). Au cours des essais d'agglomération la température moyenne du lit T_{lf} sera mesurée à l'aide d'une sonde placée 6 cm au-dessus de la grille et à 6 cm du centre de la cuve (Figure 3.2.2).

Pour toutes les conditions opératoires étudiées, on observe un écart de 15 à 20°C entre la température de consigne T de l'air et la température T_b . Cet écart dépend surtout de la température d'entrée de l'air et du débit de liquide du pulvérisé (Tableau 3.2.1). Avec une température T de 70°C, T_b diminue de 54 à 50°C quand le débit de liquide pulvérisé augmente de 2,65 à 7,75 ml/min (essais 1a à 3a) et pour un même débit de liquide (5,33 ml/min), T_b passe de 46 à 60°C lorsque la température de consigne T de l'air de fluidisation passe de 60 à 80°C (essais 1a, 6a et 7a). La charge initiale de particules (8a, 9a) et la pression d'air de pulvérisation (4a, 5a) n'ont pas montré un effet important sur T_b en comparaison avec l'essai 1a. Pour les 3 pressions relatives (1, 2 et 3 bar), le débit d'air de pulvérisation (1,1 ; 1,8 et 2,4 m³/h respectivement) est faible par rapport au débit de l'air de fluidisation (157 m³/h). Avec la solution pulvérisée à température ambiante, il contribue aux faibles températures observées principalement dans la zone de mouillage.

2.3. La zone active de mouillage et l'agglomération des particules

Lorsqu'une croissance par agglomération est recherchée, les particules doivent être suffisamment mouillées pour que les collisions conduisent à la formation de ponts entre elles. Pour une croissance contrôlée il est indispensable que la zone de mouillage soit suffisamment étendue. Une zone trop étroite ne permettrait pas un mouillage suffisant. Par contre, si la zone périphérique de séchage est insuffisante, une prise en masse du lit de particules est probable.

2.3.1. Calcul du volume V_m de la zone active de mouillage

Les isothermes en 2 dimensions obtenues (Figure 3.2.1b) sont utilisées comme des surfaces de révolution autour de l'axe central du lit fluidisé pour délimiter la zone active de mouillage dans tout le volume du lit fluidisé. Dans ce qui suit, la limite de la zone active de mouillage correspond à l'isotherme de température 2°C inférieure à la température T_b mesurée. La méthode utilisée pour le calcul de V_m est donnée en annexe 2.

Le pourcentage du volume total du lit fluidisé occupé par la zone active de mouillage ($100 \times V_m/V_{lf}$) pour les différentes conditions testées est donné dans le tableau 3.2.2.

A partir de l'isotherme limite de cette zone, il a également été possible de déterminer la profondeur de pénétration du jet de pulvérisation dans le lit de particules, correspondant à la hauteur H_m de la zone active de mouillage.

Tableau 3.2.2. Influence des conditions opératoires sur la fraction du volume du lit occupée par la zone active de mouillage V_m/V_{lf} , la profondeur de pénétration du jet de pulvérisation H_m et le mécanisme de croissance probable.

| Essai | Q_L (ml/min) | P (bar) | T ($^\circ\text{C}$) | Ch (g) | V_m/V_{lf} (%) | H_m (cm) | Mécanisme de croissance probable |
|-------|-------------------|------------|---------------------------|-----------|---------------------|---------------|-------------------------------------|
| 1a | 5,33 | 1 | 70 | 500 | 29 | 16 | Agglomération |
| 2a | 2,65 | 1 | 70 | 500 | 14 | 14 | Enrobage/ faible agglomération |
| 3a | 7,75 | 1 | 70 | 500 | 29 | 17 | Agglomération |
| 4a | 5,33 | 2 | 70 | 500 | 18 | 17 | Enrobage/ faible agglomération |
| 5a | 5,33 | 3 | 70 | 500 | 28 | 18 | Agglomération |
| 6a | 5,33 | 1 | 60 | 500 | >30 | 18 | Prise en masse |
| 7a | 5,33 | 1 | 80 | 500 | 22 | 14,5 | Agglomération |
| 8a | 5,33 | 1 | 70 | 250 | >31 | 17,5 | Prise en masse |
| 9a | 5,33 | 1 | 70 | 750 | 24 | 12 | Agglomération |

(Q_L : débit de liquide pulvérisé, P : pression relative de l'air de pulvérisation, Ch : charge initiale en particules, V_m : volume de la zone active de mouillage, V_{lf} : volume du lit fluidisé, H_m : profondeur de pénétration du jet de pulvérisation).

2.3.2. Influence des conditions opératoires sur le volume V_m

Lorsque la *charge initiale des particules* augmente de 250 g à 750g, la probabilité de collision entre les gouttes de liquide pulvérisé et les particules fluidisées augmente car la concentration des particules solides dans le lit fluidisé augmente (116 au lieu de 38,3 g/m^3). Par conséquent, la porosité du lit fluidisé diminue de 0,98 à 0,95 et on observe une diminution de la fraction du volume occupée par la zone active de mouillage (de 31 à 24 %) et de la profondeur de pénétration du jet de pulvérisation de 17,5 à 12 cm.

La *température d'entrée de l'air* de fluidisation définit la capacité de l'air à évaporer l'eau pulvérisée. Quand la température est basse (60°C), les gouttes de liquide pulvérisé

pénètrent loin dans le lit fluidisé (jusqu'à 18 cm sous la surface du lit), et le volume V_m est grand (>30 % du volume total du lit fluidisé). Au contraire, une température de l'air T élevée (80°C), provoque une évaporation rapide des gouttes de liquide pulvérisé et un volume V_m plus petit (22% du volume total du lit fluidisé).

La *pression relative de l'air* de pulvérisation influence l'angle du jet et la vitesse du liquide pulvérisé, ainsi que la taille des gouttes formées. Avec une pression relative de l'air plus élevée, l'angle du jet et le diamètre des gouttes de liquide pulvérisé sont plus petits, et la vitesse de projection des gouttes augmente. Ainsi, quand on augmente la pression relative de l'air de 1 à 2 bar, le volume de la zone active de mouillage diminue de 29 à 18 % du volume total du lit fluidisé avec des gouttes pulvérisées plus petites (19 au lieu de 39 μm) qui sèchent plus rapidement, et un angle du jet plus étroit (27° au lieu de 38°) correspondant à une surface mouillée plus petite. Quand la pression relative de l'air est augmentée à 3 bar (essai 5a), l'allure des isothermes et donc de la zone active de mouillage change complètement par rapport aux autres essais. Les isothermes correspondant aux basses températures sont séparées en deux régions (Figure 3.2.3). Une région est située dans la partie supérieure du lit fluidisé, près de la buse de pulvérisation comme dans les autres essais, et une autre région apparaît dans la partie inférieure de la zone de mesure (centrée à 10 cm au-dessus de la grille de distribution de l'air). Cette modification dans les profils de température peut être attribuée à la faible probabilité de collision entre les gouttes de liquide et les particules solides dans la partie supérieure du lit à cause de la grande vitesse de projection des gouttes quand elles rentrent dans le lit fluidisé, provoquant ainsi la formation d'une région humide de basse température plus bas dans le lit. De plus, la vitesse élevée de l'air de pulvérisation engendre probablement des turbulences modifiant la circulation des particules dans la chambre. Il en résulte que le volume de la zone active de mouillage est grand, occupant 28% du volume total du lit fluidisé.

Le *débit de liquide pulvérisé* est un paramètre opératoire qui influence aussi l'angle du jet et la taille des gouttes formées, modifiant ainsi les conditions de mouillage et de séchage dans le lit fluidisé. Quand le débit est augmenté de 2,65 à 7,75 ml/min, l'angle du jet de pulvérisation augmente de 33° à 40° et le diamètre des gouttes de liquide pulvérisé passe de 35 à 45 μm , ce qui les rend plus difficiles à sécher. Dans ce cas, la fraction du lit occupée par la zone active de mouillage augmente de 14 à 29% et la profondeur de pénétration du jet de pulvérisation augmente de 14 à 17 cm.

2.4. Allure des zones thermiques et circulation des particules

Les isothermes délimitant la région de basse température dans le lit fluidisé présentent deux allures différentes selon les conditions opératoires correspondant à des circulations des particules dans le lit fluidisé différentes. Pour des lits fluidisés cylindriques Kunii et Levenspiel (1991) et Maronga et Wnukowski (1998) ont obtenu des résultats semblables (cf. bibliographie). La première allure, appelée de *type entonnoir* (Figure 3.2.4a), se présente pour deux essais : quand on utilise une charge initiale de particules de 250 g (8a) et quand on fixe la température de consigne de l'air T à 60°C (6a). Pour ces deux essais, le lit fluidisé est très humide et la probabilité de prise en masse des particules est élevée. Cette allure des isothermes correspond à une circulation spécifique des particules pour laquelle les particules montent au centre du lit fluidisé. Quand elles arrivent dans la partie supérieure du lit fluidisé, elles sont mouillées par les gouttes de liquide pulvérisé, puis les particules mouillées descendent par les côtés, le long des parois de la cuve. Lors des essais d'agglomération on

travaille avec des produits collants et il est possible que ce type de circulation conduise au collage des particules contre les parois de la cuve. Pour le reste des essais, l'allure des isothermes est de *type cloche* (Figure 3.2.4b). Dans ce cas, les particules montent sur les côtés du lit fluidisé, près des parois de la cuve et descendent par le centre, après mouillage par les gouttes de liquide pulvérisé. Ce deuxième mode de circulation des particules est sans doute plus favorable à une agglomération contrôlée car ce sont des particules plus sèches et chaudes qui sont en contact avec les parois de la cuve.

2.5.Relation entre V_m et le mécanisme de croissance des particules : essais d'agglomération billes verre / gomme d'acacia

Dans le but de confirmer l'existence et le rôle du volume de la zone active de mouillage sur la croissance des particules, des essais d'agglomération ont été réalisés en pulvérisant une solution de gomme d'acacia (GA) à 20% et 30% en masse, sur les billes de verre, dans les mêmes conditions opératoires que celles fixées pour l'établissement des cartographies de température. La température du lit fluidisé T_{lf} est mesurée pendant les essais d'agglomération et comparée avec la température moyenne du lit fluidisé T_b trouvée dans la zone isotherme qui occupe la plus grande fraction du volume du lit lors des essais billes de verre / eau.

Pour une agglomération contrôlée, la surface des particules doit être suffisamment mouillée par les gouttes de liquide pulvérisé pour créer des ponts entre elles au moment de leur collision. Ainsi, seules les particules qui traversent la zone active de mouillage, c'est-à-dire, le volume V_m dans le lit fluidisé, sont susceptibles de s'agglomérer. Les conditions opératoires provoquant un grand volume V_m , devraient alors être favorables à la croissance des particules par agglomération. Dans l'étude sur la croissance *par enrobage* des particules dans un lit fluidisé cylindrique, Saleh (1998) trouve que la zone active de mouillage occupe moins de 3% du volume total du lit fluidisé. Parmi les conditions opératoires testées dans notre étude *pour l'agglomération*, billes de verre / eau, celles qui correspondent à une fraction du lit occupée par V_m faible (<20%) devraient conduire à une croissance des particules plutôt par enrobage, ou à une croissance par agglomération très faible. Au contraire, avec les conditions opératoires produisant des volumes V_m grands (fraction du lit fluidisé > 30%), le séchage des ponts liquides formés entre les particules sera insuffisant, avec le risque de générer la prise en masse des particules ("wet quenching"). Ainsi, l'agglomération contrôlée des particules devrait se produire uniquement quand les conditions opératoires conduisent à un volume V_m occupant entre 20 et 30% du volume total du lit fluidisé (Tableau 3.2.2).

Dans nos essais d'agglomération (tableau 3.2.3), il y a eu prise en masse des particules pour deux conditions opératoires : avec une charge initiale des particules de 250 g ($T = 70^\circ\text{C}$, essai 8b) et avec une température de l'air T de 60°C ($Ch = 500$ g, essai 6b) ; après respectivement 20 et 40 min de pulvérisation de la solution de GA à 20% en masse. Ces conditions correspondent à un volume V_m occupant plus de 30% du volume du lit (Tableau 3.2.2, essais 8a et 6a respectivement). Dans le premier cas, on attribue la prise en masse au rapport entre le volume de liquide pulvérisé et le volume des particules qui a été doublé par rapport à l'essai de référence ($Ch = 500$ g, essai 1). Et dans le deuxième cas, à la température du lit T_b qui était très basse (45°C), ce qui a provoqué un séchage insuffisant des ponts liquides formés entre les gouttes pulvérisées et les particules.

L'essai réalisé avec un faible débit du liquide de pulvérisation (2,65 ml/min, essai 2b), correspond à un volume V_m occupant seulement 14% du volume total du lit fluidisé. Cet essai a conduit à une agglomération très faible avec une augmentation de la taille des particules

faible (2 fois la taille initiale). Pour l'essai avec une pression relative de l'air de 2 bar, le volume V_m correspondant était de 18% du volume total du lit fluidisé, et l'augmentation de la taille des particules a été seulement de 360 μm . Pour le cas d'une pression relative de l'air de pulvérisation de 3 bar, qui montrait un $V_m/V_{lf} = 28\%$, avec une zone active de mouillage répartie en deux régions séparées, l'agglomération a également été très faible (160 à 200 μm). Ceci est sans doute dû au fait que cette condition correspond à une pulvérisation du liquide avec une taille des gouttes très petite, et donc à des ponts liquides fragiles.

Ces résultats montrent que la croissance par agglomération contrôlée est obtenue pour un volume V_m entre 18 et 30% du volume total du lit fluidisé, sauf lorsque la taille des gouttes de liquide pulvérisé diminue et devient insuffisante pour permettre la formation des ponts liquides.

L'utilisation d'une solution de liant plus concentrée (30% au lieu de 20% en masse) a peu modifié les conditions de séchage dans la chambre et la taille des gouttes, et une croissance des particules par agglomération a également été obtenue. La température T_{lf} était 1°C supérieure par rapport à l'essai de référence avec une solution à 20% car cette condition générait une quantité d'eau à évaporer plus faible.

Si on compare la température T_{lf} avec la température T_b (calculée à partir des isothermes, tableau 3.2.1), on observe que T_{lf} est supérieure à T_b de 1 à 2°C. En effet, lorsqu'on pulvérise avec le même débit une solution de GA (20% ou 30% w/w) au lieu de l'eau, il y a moins d'eau à évaporer. *Ceci confirme que la température T_{lf} peut être utilisée comme un paramètre de contrôle lors des essais d'agglomération.*

Tableau 3.2.3. Influence des conditions opératoires sur la température du lit fluidisé T_{lf} avant et pendant la pulvérisation de la solution de gomme d'acacia pour l'agglomération des billes de verre, et mécanisme de croissance des particules. (Q_L : débit du liquide de pulvérisation, P : pression relative de l'air de pulvérisation, Ch : charge initiale des particules, C_L : concentration du liant).

| Essai | Q_L (ml/min) | P (bar) | T (°C) | Ch (g) | C_L (% w/w) | T_{lf} avant pulvérisation (°C) | T_{lf} pendant pulvérisation (°C) | Mécanisme de croissance |
|------------|-------------------|--------------|-------------|-------------|------------------|---|---|--|
| 1b | 5,33 | 1 | 70 | 500 | 20 | 56 | 53 | Agglomération |
| 2b | 2,65 | 1 | 70 | 500 | 20 | 56 | 55 | Agglomération faible (160 → 360 μm) |
| 3b | 7,75 | 1 | 70 | 500 | 20 | 56 | 52 | Agglomération |
| 4b | 5,33 | 2 | 70 | 500 | 20 | 56 | 53 | Agglomération faible (160 → 360 μm) |
| 5b | 5,33 | 3 | 70 | 500 | 20 | 56 | 52 | Agglomération faible (160 → 200 μm) |
| 6b | 5,33 | 1 | 60 | 500 | 20 | 48 | 45 | Prise en masse ^a |
| 7b | 5,33 | 1 | 80 | 500 | 20 | 62 | 58 | Agglomération |
| 8b | 5,33 | 1 | 70 | 250 | 20 | 56 | 52 | Prise en masse ^b |
| 9b | 5,33 | 1 | 70 | 750 | 20 | 56 | 55 | Agglomération |
| 10b | 5,33 | 1 | 70 | 500 | 30 | 56 | 54 | Agglomération |

^a : Après 40 min de pulvérisation, ^b : après 20 min de pulvérisation.

2.6. Conclusion

Les cartographies de températures obtenues dans le lit fluidisé conique de billes de verre ont permis l'identification de trois zones thermiques.

Une zone de basses températures appelée *zone active de mouillage* est située dans la partie supérieure centrale du lit fluidisé juste en-dessous de la buse de pulvérisation. Elle correspond à la fraction du lit fluidisé où le liquide pulvérisé mouille la surface des particules. La température de l'air mesurée dans cette zone est inférieure de 40°C par rapport à la température de consigne de l'air T (comprise entre 60 et 80°C) et on y observe de très forts gradients de température. La taille et l'allure de cette zone où l'agglomération a lieu dépendent des conditions opératoires : température d'entrée de l'air, débit du liquide et pression relative de l'air de pulvérisation, charge initiale des particules qui par conséquent, influencent le mécanisme de croissance des particules.

A partir des essais d'agglomération des billes de verre en pulvérisant une solution de gomme d'acacia, on a montré qu'une agglomération contrôlée est possible quand *le volume de la zone active de mouillage* V_m occupe entre 18 et 30% du volume total du lit fluidisé. Si le volume V_m occupe plus de 30% du lit, il y a prise en masse des particules, tandis que si le volume V_m occupe moins de 18% la croissance des particules a lieu essentiellement par dépôt de liant (enrobage) ce qui se traduit par une faible augmentation de la taille des particules.

Dans la zone périphérique du lit fluidisé, autour de la zone active de mouillage on a identifié une *zone isotherme*, dans laquelle on observe des températures homogènes ($\pm 2^\circ\text{C}$). La température moyenne dans cette zone représente bien *la température moyenne du lit fluidisé*. Cette température est fortement liée aux conditions opératoires et peut être utilisée comme un paramètre de contrôle du procédé. Pour qu'il y ait majoritairement croissance par agglomération, la température moyenne du lit doit être comprise entre 49 et 54°C (pour les conditions testées).

La zone appelée *zone de transfert actif de chaleur* est située dans la partie inférieure du lit fluidisé, juste au-dessus de la grille de distribution d'air. Dans cette zone a lieu le chauffage des particules par l'air chaud d'entrée.

Deux types *d'allure des isothermes d'air* ont été observés. Ils sont liés à la circulation des particules en fonction des conditions opératoires. La plupart des essais ont montré une allure de *type cloche*. Les deux essais conduisant à la prise en masse des particules présentaient une allure de *type entonnoir*.

La relation trouvée entre les cartographies de températures et les mécanismes de croissance des particules permet de mieux comprendre l'influence des paramètres opératoires sur le procédé d'agglomération.

3. Cinétiques de croissance et propriétés des agglomérats

Des essais d'agglomération ont été réalisés afin de mettre en évidence l'influence des variables opératoires (débit et quantité de liquide pulvérisé, pression relative de l'air de pulvérisation, température de l'air de fluidisation, charge de particules initiales, nature et concentration de la solution de liant) sur *les cinétiques de croissance* des billes de verre (BV) agglomérées en pulvérisant une solution de gomme d'acacia (GA) (essais 1 à 9, Tableau 3.1). Pour comparer le comportement des particules solubles et non solubles, l'influence des mêmes conditions opératoires sur l'agglomération de la maltodextrine (MD) en pulvérisant de l'eau, une solution de gomme d'acacia ou une solution de maltodextrine a également été étudiée (essais 10 à 16, Tableau 3.1). Le débit d'air de fluidisation a été fixé à 157 m³/h pour les billes de verre et à 120 m³/h pour la maltodextrine, de manière à avoir une hauteur de lit identique.

Afin de comparer *les propriétés des agglomérats* obtenus, les conditions des essais sont choisies :

- pour obtenir des particules finales avec la même quantité de liant (20 g liant/100 g particules initiales) : essais 1 à 6 et 8 pour les billes de verre; 15 et 16 pour la maltodextrine.
- pour pulvériser la même quantité d'eau (140 g/100 g particules initiales) dans le cas de la maltodextrine : essais 10 à 13 ; sauf dans le cas où l'on a fait varier la charge de particules (essai 14) et pulvérisé 95 g eau/100 g MD.

Avec ces critères, la durée des essais varie selon les conditions opératoires (débit de la solution, charge de particules initiales). Pour les essais 7 et 9 on a augmenté la quantité de gomme d'acacia déposée sur les billes de verre, soit en pulvérisant une solution de liant plus concentrée (30% en masse), soit en augmentant le temps de pulvérisation (150 min).

Les résultats des différents essais seront comparés avec les essais 1 (pour les billes de verre) et 10 (pour la maltodextrine) dits « de référence ».

La répétabilité des essais pour la cinétique de croissance (évolution du diamètre médian d_{50} en fonction du temps) a été testée pour différentes conditions (Annexe 4). La figure 3.1 donne les résultats obtenus dans le cas des conditions de référence pour les billes de verre (essai 1). Les 3 essais réalisés montrent peu de différence dans l'allure des courbes obtenues et donc une bonne répétabilité.

3.1. Evolution de la taille des particules pendant les essais d'agglomération

Les essais d'agglomération réalisés comportent trois étapes (c.f. Matériel et méthodes). Les particules à agglomérer sont d'abord chauffées jusqu'à une température constante par *fluidisation avec de l'air chaud* (étape 1, 20 min). Puis commence l'étape de *pulvérisation* dont la durée varie en fonction des essais. C'est pendant cette étape que l'agglomération des particules est attendue. Enfin, après arrêt de la pulvérisation commence l'étape de *séchage/refroidissement* (étape 3, 10 min) (Figure 3.2).

Tableau 3.1. Conditions opératoires pour les essais d'agglomération. (BV : billes de verre, MD : maltodextrine, GA : gomme d'acacia, Q_L : débit du liquide de pulvérisation, P : pression relative de l'air de pulvérisation, T : consigne de température de l'air, Ch : charge des particules, C_L : concentration de la solution de liant)

| Essai | Ch (g) | C_L (% w/w) | Q_L (ml/min) | P (bar) | T (°C) | Teneur en liant théorique (g/ 100g particules) | Durée de la pulvérisation (min) |
|-----------|------------|---------------|----------------|----------|-----------|--|---------------------------------|
| | BV | GA | | | | | |
| 1 | 500 | 20 | 5,33 | 1 | 70 | 20 | 85 |
| 2 | 500 | 20 | 2,65 | 1 | 70 | 20 | 170 |
| 3 | 500 | 20 | 7,75 | 1 | 70 | 20 | 55 |
| 4 | 500 | 20 | 5,33 | 2 | 70 | 20 | 85 |
| 5 | 500 | 20 | 5,33 | 3 | 70 | 20 | 85 |
| 6 | 500 | 20 | 5,33 | 1 | 80 | 20 | 85 |
| 7 | 500 | 30 | 5,33 | 1 | 70 | 30 | 85 |
| 8 | 750 | 20 | 5,33 | 1 | 70 | 20 | 120 |
| 9 | 500 | 20 | 5,33 | 1 | 70 | 35 | 150 |
| | MD | | | | | | |
| 10 | 280 | Eau | 5,33 | 1 | 70 | 0 | 75 |
| 11 | 280 | Eau | 2,65 | 1 | 70 | 0 | 155 |
| 12 | 280 | Eau | 5,33 | 2 | 70 | 0 | 75 |
| 13 | 280 | Eau | 5,33 | 1 | 80 | 0 | 75 |
| 14 | 420 | Eau | 5,33 | 1 | 70 | 0 | 75 |
| 15 | 280 | GA 20 | 5,33 | 1 | 70 | 20 | 45 |
| 16 | 280 | MD 20 | 5,33 | 1 | 70 | 20 | 45 |

3.1.1. Formation des agglomérats

a) Billes de verre

Pour qu'il y ait agglomération de particules non solubles dans l'eau (non collantes), il est nécessaire d'utiliser le liant pulvérisé comme agent de collage.

La surface des billes de verre est tout d'abord recouverte, enrobée, avec une fine couche de gomme d'acacia, nécessaire pour établir des contacts collants entre les particules. Ceci correspond à la première phase observée dans les courbes de croissance des particules, appelée *phase d'initiation* (Figure 3.1). Pendant cette phase il n'y a presque pas de variation de la taille (d_{50}). La deuxième phase appelée *phase à vitesse constante* correspond à l'augmentation de la taille des particules avec une vitesse constante, jusqu'à atteindre une taille maximale. Si l'on prolonge la pulvérisation il n'y a plus d'évolution de la taille ce qui correspond à la troisième phase, ou *phase d'équilibre* entre la formation et la destruction des agglomérats par rupture due aux collisions ou par attrition.

Les courbes de la figure 3.3 donnent l'évolution du diamètre médian d_{50} des agglomérats pendant la pulvérisation du liant et au début de l'étape de séchage/refroidissement au cours de laquelle on observe dans tous les cas une diminution de la taille. Pour les essais 4, 5 et 6, correspondant à des conditions peu favorables à l'agglomération, la taille des agglomérats diminue légèrement pendant la phase d'équilibre.

Phase d'initiation

Une réduction de 50% de la durée de la phase d'initiation est observée en augmentant le débit de liquide pulvérisé de 5,33 ml/min à 7,75 ml/min, ou la concentration de la solution de gomme d'acacia de 20 à 30 % en masse (essais 1, 3 et 7) (Tableau 3.2). L'effet contraire est observé avec une augmentation de la pression de l'air de pulvérisation de 1 à 3 bar, ou de la charge initiale des particules de 500 à 750g (essais 1, 5 et 8). La prolongation de la phase d'initiation pour ces essais s'explique par une croissance des particules par dépôt du liant à la surface des particules plutôt que par agglomération. On peut dire que pendant cette phase, le dépôt de liant à la surface des particules n'est pas suffisant pour commencer l'agglomération parce que : le liant sèche très vite (gouttes petites pour une pression d'air élevée, par exemple) ou la surface à recouvrir est plus importante (charge élevée).

Phase de croissance

Quand on pulvérise une solution de gomme d'acacia à 20% en masse la croissance des agglomérats la plus rapide (13,9 $\mu\text{m}/\text{min}$) est obtenue quand on utilise un débit de liquide (Q_L) plus important (essais 3 : 7,75 ml/min) (Tableau 3.2). Pour cet essai les gouttes pulvérisées sont légèrement plus grosses ($d_{3,2} = 33 \mu\text{m}$ au lieu de 30 μm dans les conditions de l'essai 1) et surtout, il y a plus de liant disponible pour la formation des ponts entre les particules. La vitesse de croissance pendant la phase à vitesse constante diminue quand on diminue Q_L (13,9 ; 8,2 et 2,3 et $\mu\text{m}/\text{min}$ pour les essais 3, 1 et 2 respectivement) et quand on augmente la charge initiale des particules (5,95 $\mu\text{m}/\text{min}$ pour l'essai 8) (Figure 3.2).

Phase d'équilibre / arrêt de croissance

Un diamètre maximal est atteint correspondant à un arrêt de la croissance. A ce point-là, la taille des agglomérats est faible, 592, 508, 650, 726 μm (essais 4, 5, 6, 8) pour des pressions de pulvérisation élevées (2 et 3 bar), une température de l'air de fluidisation élevée (80°C), ou une charge initiale de particules importante (750 g) (par rapport à 823 μm pour l'essai 1 de référence (1 bar, 70°C, et 500 g)) (Tableau 3.2). L'augmentation de la pression de l'air de pulvérisation produit des gouttes plus petites ($d_{3,2} = 30 \mu\text{m}$ pour 1 bar, 13 μm pour 2 bar et 11 μm pour 3 bar), séchant plus vite, et par conséquent moins efficaces pour la formation des ponts liquides entre les particules. D'autre part, l'augmentation de la température de l'air de fluidisation et de la charge de particules initiale génèrent un mouillage de la surface des particules moins important que dans les conditions de référence, car la première condition correspond à une évaporation du solvant plus rapide et la deuxième à un rapport liant/particule plus faible.

La pulvérisation d'une solution de liant plus concentrée (essai 7), 30% au lieu de 20 % en masse, augmente significativement la vitesse de croissance des agglomérats (14,73 $\mu\text{m}/\text{min}$ au lieu de 8,2 $\mu\text{m}/\text{min}$), et la taille maximale des agglomérats (976 μm par rapport à 716 μm). En effet, avec ce paramètre on augmente la vitesse d'addition du liant, mais aussi la viscosité de la solution (204 mPa.s pour 30% ; 43 mPa.s pour 20%). Une solution de liant plus visqueuse produit des gouttes de taille plus grande ($d_{3,2} = 53 \mu\text{m}$ pour la solution à 30% au lieu de $d_{3,2} = 30 \mu\text{m}$ pour la solution à 20% en masse), donc les ponts liquides formés entre les particules sont plus grands et plus résistants.

Les courbes de la figure 3.3.b donnant l'évolution du diamètre médian des agglomérats en fonction de la quantité de liant pulvérisée montre que, pour les essais 1, 3 et 8, les différences observées à la figure 3.3.a sont dues uniquement à des vitesses d'introduction du liant différentes car, pour la même quantité de liant pulvérisée par particule, on a la même

croissance dans les trois cas. Par contre, pour les essais 2 et 7, la croissance n'est pas uniquement fonction de la quantité de liant pulvérisée. Lorsque le débit de liant est très faible (essai 2), le mécanisme de croissance change et on passe d'une croissance par agglomération à une croissance par dépôt (enrobage) avec très peu de ponts solides formés entre les particules. A l'inverse, lorsqu'on augmente la concentration de la solution de liant (essai 7) et donc sa viscosité, on ne modifie pas le mécanisme de croissance, mais la taille limite des agglomérats. Les ponts liquides entre particules sont plus visqueux et résistent mieux aux chocs. On obtient des agglomérats plus gros.

b) Maltodextrine

Dans le cas de la maltodextrine, la surface des particules initiales, solubles dans l'eau, devient collante dès que le liquide pulvérisé entre en contact avec elle. En conséquence, pour les cinétiques de croissance, il n'existe pas de phase d'initiation comme dans le cas des billes de verre (Figure 3.4). Les particules de maltodextrine sont agglomérées rapidement dès le début de la pulvérisation. La *phase à vitesse constante* est bien définie, ainsi que la *phase d'équilibre*. Un palier est observé pour toutes les conditions testées. Quand on pulvérise de l'eau, la taille maximale des agglomérats (1570 μm) est atteinte après 30 min de pulvérisation avec la vitesse d'agglomération la plus élevée, pour l'essai 10 (70°C, 1 bar, 280 g, 5,33 ml/min). Par rapport aux autres essais avec pulvérisation d'eau (11 à 14), ces conditions correspondent à une faible charge en particules, un débit de pulvérisation élevé ou une pression de pulvérisation plus faible et donc des gouttes plus grosses et/ou une vitesse d'addition du liquide plus grande. Ces évolutions sont en accord avec celles observées pour les billes de verre.

Les courbes de la figure 3.4 montrent également qu'en pulvérisant de l'eau (essai 10), l'agglomération de la maltodextrine est plus rapide (40 $\mu\text{m}/\text{min}$) qu'en pulvérisant, dans les mêmes conditions et avec le même débit, une solution de gomme d'acacia à 20% en masse (29 $\mu\text{m}/\text{min}$, essai 15) ou une solution de maltodextrine à 20% en masse (27 $\mu\text{m}/\text{min}$, essai 16). On attribue ce résultat au fait que, dans le premier cas, on introduit plus d'eau (par rapport à la matière sèche totale), ce qui rend la surface des particules de maltodextrine plus collante. D'autre part, quand on pulvérise la solution de gomme acacia à 20% la vitesse de croissance et la taille maximale atteinte (935 μm) sont plus élevées que quand on pulvérise la solution de maltodextrine à 20% pour laquelle on atteint une taille maximale de 782 μm . On peut en déduire que la solution de gomme acacia est un meilleur liant que la solution de maltodextrine pour l'agglomération des particules de maltodextrine dans les conditions testées.

c) Conclusion

Selon les conditions opératoires, la taille maximale est atteinte entre 60 et 160 min de pulvérisation pour les billes de verre (incluant ~15 min de la phase d'initiation) et entre 20 et 60 min pour la maltodextrine, c'est-à-dire plus rapidement. Dans les deux cas, le plus faible débit de liquide de pulvérisation correspond à une phase de croissance à vitesse constante plus longue (160 et 80 min pour les billes de verre et la maltodextrine, respectivement). La taille maximale des agglomérats est plus importante pour les conditions avec lesquelles on introduit plus de liquide par particule. Vis-à-vis de la consommation d'énergie, le procédé d'agglomération devrait être arrêté quand on atteint la taille maximale des agglomérats (avant le début du palier), sauf si une prolongation permet d'améliorer les propriétés des agglomérats formés (consolidation par exemple).

Tableau 3.2. Caractéristiques des différentes phases de croissance pendant l'étape de pulvérisation lors de l'agglomération de billes de verre (BV) avec de la gomme d'acacia (GA); et de particules de maltodextrine (MD) avec de l'eau, une solution de gomme d'acacia ou une solution de maltodextrine. (Q_L : débit du liquide de pulvérisation, P : pression relative de l'air de pulvérisation, T : température de consigne de l'air, Ch : charge des particules, C_L : concentration du liant).

| Essai | Conditions opératoires | Phase d'initiation | | Phase d'équilibre | |
|----------------|---|--------------------|--|-----------------------|---|
| | | Durée (min) | Vitesse de croissance ($\mu\text{m}/\text{min}$) | Début du palier (min) | d_{50} au début du palier (μm) |
| BV + GA | | | | | |
| 1 | Référence : 5,33 ml/min, 1 bar, 70°C, 20% w/w, 500 g BV | 10 | 8,2 ($r^2 = 0,98$) | 90* | 823* |
| 2 | $Q_L = 2,65$ ml/min | 60 | 2,3 ($r^2 = 0,98$) | 160 | 414 |
| 3 | $Q_L = 7,75$ ml/min | 5 | 13,9 ($r^2 = 0,99$) | 70* | 1090* |
| 4 | P = 2 bar | 15 | 9,6 ($r^2 = 0,97$) | 60 | 592 |
| 5 | P = 3 bar | 30 | 9,5 ($r^2 = 0,80$) | 60 | 508 |
| 6 | T = 80°C | 10 | 7,8 ($r^2 = 0,95$) | 70 | 650 |
| 7 | $C_L = 30$ % w/w | 5 | 14,7 ($r^2 = 0,98$) | 60 | 976 |
| 8 | Ch = 750 g | 20 | 5,9 ($r^2 = 0,98$) | 160 | 726 |
| MD+Eau | | | | | |
| 10 | Référence : 5,33 ml/min, 1 bar, 70°C, 20% w/w, 280 g MD | - | 40,5 ($r^2 = 0,98$) | 30 | 1570 |
| 11 | MD+Eau $Q_L = 2,65$ ml/min | - | 5,8 ($r^2 = 0,99$) | 60 | 530 |
| 12 | MD+Eau P = 2 bar | - | 6,9 ($r^2 = 0,96$) | 30 | 458 |
| 13 | MD+Eau T = 80°C | - | 38,5 ($r^2 = 0,98$) | 40 | 1041 |
| 14 | MD+Eau Ch = 420 g | - | 15,5 ($r^2 = 0,93$) | 30 | 662 |
| 15 | MD + GA 20% w/w | - | 29,2 ($r^2 = 0,96$) | 30 | 935 |
| 16 | MD + MD 20% w/w | - | 27,1 ($r^2 = 0,99$) | 20 | 782 |

* Essais 1 et 3 prolongés pour identifier la fin de croissance ou début du « palier ».

3.1.2. Effet de l'étape de séchage/refroidissement

Après la pulvérisation du liant, l'étape de séchage/refroidissement (10 min) permet d'obtenir les *agglomérats finaux*. Pendant cette dernière étape où l'air de fluidisation est refroidi jusqu'à 30°C les ponts solidifiés sont consolidés (séchage supplémentaire). Mais les agglomérats sont également soumis aux contraintes mécaniques dues aux collisions avec les autres agglomérats et contre les parois de la cuve de fluidisation, ce qui provoque l'attrition et / ou la rupture des agglomérats fragiles, modifiant plus au moins la taille (diamètre médian

d_{50}) et la distribution de taille des agglomérats finaux en fonction de leur résistance mécanique.

La comparaison des distributions de taille des agglomérats, avant et après l'étape de séchage/refroidissement (Figure 3.5), montre que la diminution de taille observée est le résultat de la disparition des agglomérats les plus gros par rupture et de l'apparition de particules fines ($<200 \mu\text{m}$) par abrasion. Les distributions de taille après cette étape sont de deux types : sans (Figure 3.5a) ou avec (Figure 3.5b) disparition complète des agglomérats les plus gros.

a) Billes de verre

La variation normalisée des diamètres médians (Δd_{50}) pendant l'étape de séchage/refroidissement est donnée au tableau 3.3. Pour les billes de verre agglomérées avec une solution de gomme d'acacia, la diminution de taille est de l'ordre de 20 à 30% sauf pour les essais avec une pression relative de l'air de pulvérisation plus élevée (33 et 50% pour 2 et 3 bar respectivement) et lorsqu'on modifie Q_L . Δd_{50} passe de 21 à 5 et 15% lorsque le débit de solution pulvérisée passe de 5,33 à 2,65 et 7,75 ml/min respectivement. Les essais 4, 5 et 6 pour lesquels les valeurs de Δd_{50} les plus élevées ont été obtenues correspondent aux cas où l'on n'a pas observé de palier pendant la phase d'équilibre, mais une diminution du d_{50} (Figure 3.3). Ces conditions opératoires produisent des ponts petits et fragiles entre les particules. Ceci est probablement dû à une pulvérisation très fine, du fait de l'augmentation de la pression de l'air de pulvérisation (essais 4 et 5), et à la rapide évaporation du solvant avec une température d'air plus élevée (essai 6). Dans ce cas le temps pendant lequel la surface des particules est collante est plus court. En ce qui concerne l'influence du débit de liquide pulvérisé, il semble que lorsqu'il est plus élevé (essai 3), les gouttes pulvérisées sont plus grosses produisant des ponts plus solides entre les particules et donc des agglomérats plus gros (631 μm) et moins fragiles ($\Delta d_{50} = 0,15$). La faible valeur de Δd_{50} (0,05) observée avec le plus petit débit de liquide (2,65 ml/min, essai 2) correspond au cas où très peu de billes de verre ont été agglomérées, il y a donc très peu de rupture d'agglomérats et essentiellement abrasion du dépôt de liant à la surface des particules. L'augmentation de la quantité de liant introduit sur les billes de verre (de 20 g / 100 g billes de verre à 30 ou 35 g / 100 g billes de verre), obtenue par l'augmentation de la concentration de la solution pulvérisée (essai 7) ou par l'augmentation de la durée de l'étape de pulvérisation (essai 9), n'a pas eu d'effet significatif sur la résistance mécanique des agglomérats formés. Il y a toujours une diminution importante de la taille des agglomérats pendant l'étape de séchage/refroidissement (19% et 27%), par rapport à l'essai de référence (21%, essai 1). Mais finalement la taille des agglomérats est du même ordre (essai 9) ou plus élevée (essai 7), avec un temps global plus court.

b) Maltodextrine

Quand on pulvérise de l'eau pour l'agglomération de la maltodextrine (essai 10 à 14), on observe le plus grand Δd_{50} (Tableau 3.3), pour l'essai réalisé avec la température de l'air de fluidisation la plus élevée (80°C, essai 13), condition opératoire qui correspond à un séchage rapide. La pulvérisation d'une solution de gomme d'acacia (essai 15) ou de maltodextrine (essai 16), au lieu de l'eau, pour l'agglomération des particules de maltodextrine, n'améliore pas la résistance mécanique des agglomérats pendant l'étape de séchage/refroidissement. Pour ces essais (15, 16) la durée de l'étape de pulvérisation était de 45 min au lieu de 75 min si on compare avec l'essai 10 (maltodextrine + eau) avec les mêmes conditions opératoires. Le Δd_{50} de 0,35 pour l'essai 16, est plus élevé que celui obtenu pour l'essai 15 ($\Delta d_{50} = 0,27$).

Tableau 3.3. Distribution de taille des agglomérats des billes de verre (BV), ou de maltodextrine (MD) pulvérisant une solution de gomme d'acacia (GA), de maltodextrine (MD) ou de l'eau avant et après l'étape de séchage / refroidissement et la durée totale de l'essai d'agglomération. (Q_L : débit du liquide de pulvérisation, P : pression relative de l'air de pulvérisation, T : consigne de température de l'air, Ch : charge des particules, C_L : concentration du liant).

| Essai | Condition opératoire | Avant | | | Après | | | Δd_{50} normalisée ($d_{50}-d'_{50}$)/ d_{50} | Durée de la fluidisation (min) |
|--|----------------------|-------------------------------|-------------------------------|-------------------------------|--------------------------------|--------------------------------|--------------------------------|--|--------------------------------|
| | | séchage/refroidissement | | | séchage/refroidissement | | | | |
| | | d_{90} (μm) | d_{50} (μm) | d_{10} (μm) | d'_{90} (μm) | d'_{50} (μm) | d'_{10} (μm) | | |
| Référence : BV + GA 5,33 ml/min, 1 bar, 70°C, 20% w/w, 500 g BV, 20 g | | | | | | | | | |
| 1 | GA/100 g BV | 367 | 693 | 1129 | 225 | 546 | 892 | 0.21 | 115 |
| 2 | $Q_L = 2,65$ ml/min | 170 | 381 | 703 | 150 | 362 | 616 | 0.05 | 200 |
| 3 | $Q_L = 7,75$ ml/min | 387 | 744 | 1303 | 283 | 631 | 1102 | 0.15 | 85 |
| 4 | P = 2 bar | 217 | 534 | 850 | 195 | 359 | 525 | 0.33 | 115 |
| 5 | P = 3 bar | 166 | 405 | 598 | 149 | 201 | 330 | 0.50 | 115 |
| 6 | T = 80°C | 247 | 546 | 838 | 179 | 393 | 597 | 0.28 | 115 |
| C _L = 30 % w/w, 30 g | | | | | | | | | |
| 7 | GA/100 g BV | 437 | 913 | 1397 | 475 | 744 | 1115 | 0.19 | 115 |
| 8 | Ch = 750 g | 362 | 726 | 1056 | 184 | 532 | 766 | 0.27 | 150 |
| 9 | 35 g GA/100 g BV | 474 | 799 | 1090 | 318 | 580 | 858 | 0.27 | 180 |
| Référence : MD+Eau 5,33 ml/min, 1 bar, 70°C, 280 g MD | | | | | | | | | |
| 10 | | 810 | 1570 | 2143 | 588 | 1110 | 1756 | 0.29 | 105 |
| 11 | $Q_L = 2,65$ ml/min | 252 | 530 | 988 | 235 | 420 | 704 | 0.21 | 185 |
| 12 | P = 2 bar | 221 | 458 | 963 | 205 | 347 | 577 | 0.24 | 105 |
| 13 | T = 80°C | 517 | 1041 | 1680 | 334 | 653 | 1284 | 0.37 | 105 |
| 14 | Ch = 420 g | 335 | 662 | 1084 | 265 | 549 | 848 | 0.17 | 105 |
| 15 | MD + GA 20% w/w | 489 | 935 | 1452 | 370 | 684 | 1068 | 0.27 | 75 |
| 16 | MD + MD 20% w/w | 417 | 782 | 1202 | 243 | 511 | 808 | 0.35 | 75 |

c) Conclusion

Que ce soit pour les billes de verre ou les particules de maltodextrine, l'étape de séchage/refroidissement entraîne une diminution de 20 à 30% du diamètre médian des agglomérats formés pendant l'étape de pulvérisation. Cette diminution correspond à la rupture des plus gros agglomérats et à l'apparition de fines particules. Cette modification de la distribution de taille est à prendre en compte lors du choix des conditions de l'essai.

3.2. Teneur en liant des agglomérats

La durée de l'étape de pulvérisation est calculée à partir du débit du liquide de pulvérisation (Q_L) et de sa concentration (C_L), pour pulvériser une quantité donnée de gomme d'acacia sur les particules initiales. Or, les gouttes de liant peuvent sécher avant d'atteindre les particules et être entraînées vers le filtre réduisant ainsi la quantité de liant disponible pour l'agglomération. Pour les billes de verre (BV) agglomérées avec de la gomme d'acacia (GA) nous avons donc vérifié la teneur en liant des agglomérats obtenus (Tableau 3.4).

Tableau 3.4. Teneur en gomme d'acacia (GA) des agglomérats finaux pour les différents essais d'agglomération avec billes de verre (BV). (Q_L : débit du liquide de pulvérisation, P : pression relative de l'air de pulvérisation, T : consigne de température de l'air, Ch : charge des particules, C_L : concentration du liant)

| Essai | Conditions opératoires | g GA / g BV théorique* | g GA / g BV mesurée |
|-------|--|------------------------|---------------------|
| | Référence : BV + GA | | |
| 1 | 5,33 ml/min, 1 bar, 70°C, 20% w/w, 500 g BV, 20 g GA/100 g BV | 0,196 | 0,173 |
| 2 | $Q_L = 2,65$ ml/min | 0,195 | 0,170 |
| 3 | $Q_L = 7,75$ ml/min | 0,184 | 0,175 |
| 4 | P = 2 bar | 0,196 | 0,195 |
| 5 | P = 3 bar | 0,196 | 0,192 |
| 6 | T = 80 °C | 0,196 | 0,177 |
| 7 | $C_L = 30$ % w/w, 30 g GA/100 g BV | 0,308 | 0,270 |
| 8 | Ch = 750 g | 0,184 | 0,184 |
| 9 | 35 g GA/100 g BV | 0,346 | 0,341 |

Note : $\sigma_{\text{mesures}} \pm 0,01$. * à partir des concentrations des solutions préparées et de la masse pulvérisée.

Par rapport à la quantité de liant pulvérisé (0,20 ; 0,30 ou 0,35 g GA / g BV), on trouve dans tous les cas une différence inférieure à -13%. Cette différence peut être attribuée, à la précision de la méthode de mesure et, éventuellement, à des pertes de liant, séché avant agglomération dans le lit fluidisé et entraîné par l'air de fluidisation.

Afin de vérifier si le liant pulvérisé était réparti uniformément sur les agglomérats quelle que soit leur taille, on a séparé par tamisage les agglomérats finaux en trois classes : agglomérats petits ($d < 315 \mu\text{m}$), moyens (entre 315 et 630 μm) et grands ($d > 630 \mu\text{m}$) et mesuré la teneur en liant dans chaque classe. Le diamètre médian de la plupart des agglomérats est situé dans la classe des moyens. Les agglomérats analysés sont ceux des essais 1, 2 et 3, pour étudier l'effet du débit du liquide de pulvérisation (Q_L) (Tableau 3.5).

Tableau 3.5. Teneur en liant par classe pour les billes de verre agglomérées avec de la gomme d'acacia (teneur théorique ~0,2 g GA/g BV). (Q_L : débit du liquide de pulvérisation)

| Essai | Q_L (ml/min) | Agglomérat | g GA / g BV |
|-------|----------------|-------------------------|-------------|
| 1 | 5,33 | < 315 μm | 0,16 |
| | | 315 - 630 μm | 0,16 |
| | | > 630 μm | 0,18 |
| 2 | 2,65 | < 315 μm | 0,12 |
| | | 315 - 630 μm | 0,14 |
| | | > 630 μm | 0,18 |
| 3 | 7,75 | < 315 μm | 0,16 |
| | | 315 - 630 μm | 0,18 |
| | | > 630 μm | 0,18 |

Les valeurs obtenues (Tableau 3.5) sont légèrement inférieures à celles du tableau 3.4. Ceci est peut-être lié à un problème d'échantillonnage. Quoiqu'il en soit, les résultats (Tableau 3.5) montrent que les agglomérats les plus gros contiennent plus de liant que les agglomérats plus petits du même essai. Ce résultat est lié au mécanisme de croissance par agglomération : la taille des agglomérats augmente par la formation de ponts liquides entre les particules, il ne peut donc y avoir croissance que s'il y a suffisamment de liant déposé à leur surface.

La teneur en liant dans la classe des particules les plus petites n'est pas plus grande que dans les autres classes. Ceci reste vrai pour l'essai avec le débit de liquide le plus faible (essai 2) pendant lequel le débit d'eau à évaporer est le plus faible par rapport aux autres essais (séchage plus important). Il semble donc que la totalité du liant perdu par séchage pendant la pulvérisation soit entraînée vers les filtres.

Pour le débit le plus faible (2,65 ml/min, essai 2) on constate que la teneur en liant dans la classe inférieure est plus faible par rapport aux autres essais : 12 comparé à 16 g / 100 g BV. Par contre, pour les agglomérats les plus gros (630 μm), la teneur en liant est la même pour les 3 essais (18 g / 100 g BV). Cette valeur correspond peut-être à la teneur optimale pour une croissance contrôlée.

3.3. Propriétés des agglomérats finaux

Les analyses sont réalisées sur les « agglomérats finaux », c'est-à-dire sur la poudre récupérée après l'étape de séchage/refroidissement. Les agglomérats de billes de verre + gomme d'acacia ainsi que ceux de maltodextrine récupérés contenaient 1 à 2 g d'eau / 100 g de matière sèche.

3.3.1. Taille

Le diamètre médian (d_{50}) des agglomérats varie entre 201 et 744 μm pour les billes de verre, et entre 347 et 1110 μm pour les particules de maltodextrine (Tableau 3.6). Ceci confirme que l'agglomération de particules solubles, comme c'est le cas de la maltodextrine, est plus efficace que pour des particules non solubles (Pont et al., 2001 ; Ormos et Pataki, 1979). Les agglomérats les plus gros (1110 μm) sont obtenus par agglomération de maltodextrine en pulvérisant de l'eau avec un débit Q_L de 5,33 ml/min. Un essai avec un débit de liquide plus élevé a conduit à la prise en masse du lit fluidisé.

De même, pour les billes de verre, les agglomérats les plus grands sont obtenus avec l'utilisation d'une concentration de liant plus élevée (30%, essai 7) ou avec un débit de pulvérisation élevé (7,75 ml/min, essai 3) correspondant dans les deux cas à un débit de liant déposé par particule élevé et une taille de gouttes élevée ($d_{3,2} > 30 \mu\text{m}$). La taille des gouttes pulvérisées a, en effet, une influence importante sur la taille des agglomérats obtenus (Figure 3.6). Plus les gouttes sont grosses, plus les ponts liquides formés sont gros et résistants et plus la croissance est importante. Toutefois cet effet se conjugue avec ceux liés à l'hydrodynamique du lit, aux propriétés de la solution pulvérisée et au séchage. D'autres conditions opératoires utilisant des concentrations de liant plus élevées pourraient être testées pour essayer d'obtenir des agglomérats plus gros.

3.3.2. Résistance mécanique (Friabilité)

La résistance mécanique des agglomérats est acquise pendant la pulvérisation et parfois consolidée pendant l'étape finale de séchage/refroidissement. Cette propriété est importante pour la stabilité du produit pendant sa manipulation, son transport et son utilisation finale. Des ponts cassés peuvent constituer une surface active ou non protégée, vis-à-vis de l'hygroscopicité, de l'oxydation ou d'autres réactions.

La résistance mécanique a été évaluée pour les agglomérats de taille supérieure à 315 μm , séparés par tamisage. Cette propriété est exprimée comme l'indice de friabilité (% des agglomérats cassés/masse initiale). On peut observer que les agglomérats les plus résistants (indice de friabilité faible) correspondent aux agglomérats de plus grande taille pour les deux types de particules, billes de verre et maltodextrine (Figure 3.7, Tableau 3.6). Rappelons que les agglomérats finaux ont subi 10 min de séchage/refroidissement, ce qui représente déjà un « test » de résistance.

Pour les billes de verre, les essais avec un débit de liquide faible (essai 2) et une pression d'air de pulvérisation élevée (essais 4 et 5) correspondent à des agglomérats très fragiles (indice de friabilité de 19, 26 et 29%) (Figure 3.8). Ces conditions opératoires produisent des gouttes de taille petite ($d_{3,2} < 40 \mu\text{m}$), conduisant à la formation de ponts entre particules plus petits et fragiles donc à des agglomérats petits et peu résistants aux contraintes mécaniques.

Quand on augmente la quantité de gomme d'acacia pulvérisée de 20 à 30 ou 35 g de gomme d'acacia/100 g de billes de verre (essais 7 et 9) on observe une diminution de l'indice de friabilité de 9 à 5 et 3% respectivement, ce qui correspond à une amélioration de la résistance mécanique des agglomérats. L'augmentation de la durée de la pulvérisation, avec les conditions opératoires de référence (essai 9), correspond à des agglomérats de même taille finale, mais plus résistants. Par contre, l'utilisation d'une solution de liant plus concentrée (essai 7), produit des agglomérats aussi résistants, mais de taille finale plus grande. Ce qui est également intéressant avec cet essai c'est la réduction de la durée du procédé.

Tableau 3.6. Propriétés physiques des billes de verre, de la maltodextrine et des agglomérats finaux. d_{50} : diamètre médian, ρ_{vrac} : masse volumique vrac, $\rho_{\text{tassée}}$: masse volumique tassée. (BV : billes de verre, MD : maltodextrine, GA : gomme d'acacia, Q_L : débit du liquide de pulvérisation, P : pression relative de l'air de pulvérisation, T : consigne de température de l'air, Ch : charge des particules, C_L : concentration du liant)

| Essai | d_{50} (μm) | ρ_{vrac} (g/cm^3) | $\rho_{\text{tassée}}$ (g/cm^3) | Indice Hausner | Indice Carr | Friabilité (%) | Mouillabilité (s) | Ecoulement (s) | |
|---|-------------------------------|--|--|-------------------|----------------|-------------------|----------------------|-------------------|------|
| <i>Billes de verre initiales</i> | | | | | | | | | |
| | 160 | 1,47 | 1,53 | 1,04 | 0,04 | - | 0 | 1,29 | |
| Référence : BV + GA 5,33 ml/min, 1 bar, 70°C, 20% w/w, 500 g | | | | | | | | | |
| 1 | BV, 20 g GA/100 g BV | 546 | 0,77 | 0,87 | 1,13 | 0,11 | 9,0 | 31 | 2,94 |
| 2 | $Q_L = 2,65$ ml/min | 362 | 0,91 | 1,01 | 1,11 | 0,10 | 18,8 | 17 | 2,34 |
| 3 | $Q_L = 7,75$ ml/min | 631 | 0,72 | 0,82 | 1,14 | 0,12 | 9,2 | 95 | 3,28 |
| 4 | P = 2 bar | 359 | 0,93 | 1,01 | 1,09 | 0,09 | 25,6 | 25 | 2,23 |
| 5 | P = 3 bar | 201 | 0,99 | 1,10 | 1,11 | 0,10 | 28,8 | 15 | 2,14 |
| 6 | T = 80 °C | 393 | 0,75 | 0,86 | 1,15 | 0,12 | 7,0 | 61 | 3,16 |
| $C_L = 30$ % w/w, 30 g | | | | | | | | | |
| 7 | GA/100 g BV | 744 | 0,59 | 0,67 | 1,14 | 0,13 | 5,5 | 24 | 4,79 |
| 8 | Ch = 750 g | 532 | 0,79 | 0,93 | 1,18 | 0,16 | 11,0 | 17 | 5,88 |
| 9 | 35 g GA/100 g BV | 580 | 0,69 | 0,74 | 1,07 | 0,10 | 3,2 | 49 | 3,67 |
| <i>Maltodextrine initiale</i> | | | | | | | | | |
| | 180 | 0,46 | 0,56 | 1,22 | 0,17 | - | 519 | - | |
| Référence : MD+Eau 5,33 ml/min, 1 bar, 70°C, 280 g MD | | | | | | | | | |
| 10 | 70°C, 280 g MD | 1110 | 0,23 | 0,26 | 1,13 | 0,12 | 2,0 | 7 | - |
| 11 | $Q_L = 2,65$ ml/min | 420 | 0,39 | 0,45 | 1,15 | 0,13 | 52,8 | 0,4 | - |
| 12 | P = 2 bar | 347 | 0,49 | 0,54 | 1,10 | 0,09 | 58,1 | 0,8 | - |
| 13 | T = 80°C | 653 | 0,35 | 0,40 | 1,14 | 0,11 | 1,1 | 1,4 | - |
| 14 | Ch = 420 g | 549 | 0,28 | 0,33 | 1,18 | 0,14 | 4,9 | 0,8 | - |
| 15 | MD + GA 20% w/w | 684 | 0,31 | 0,34 | 1,10 | 0,11 | 1,1 | >1200 | - |
| 16 | MD + MD 20% w/w | 511 | 0,34 | 0,38 | 1,12 | 0,13 | 5,2 | 1,50 | - |

3.3.3. Masses volumiques et coulabilité

a) Masses volumiques vraie et apparente

La masse volumique apparente (ρ_{app}) mesurée au pycnomètre à air sur les agglomérats finaux inclut le volume de vide non accessible à l'air (pores fermés) alors que la masse volumique vraie (ρ_{vraie}) mesurée sur la poudre après broyage prend en compte uniquement le volume de solide dans les agglomérats.

A partir de ces deux masses volumiques, il est possible d'estimer la porosité fermée ϵ_{int} dans les agglomérats obtenus (Tableau 3.7) :

$$\epsilon_{\text{int}} = 1 - (\rho_{\text{app}} / \rho_{\text{vraie}}) \quad (\text{Eq. 2.6})$$

Les masses volumiques vraies des billes de verre, de la maltodextrine et de la gomme d'acacia sont respectivement 2490, 1424 et 1212 kg/m^3 . Pour les agglomérats, les ρ_{app} sont proches pour tous les essais (entre 2240 et 2270 kg/m^3) sauf pour l'essai 7 où la teneur en gomme d'acacia est plus importante (~ 30 g/ 100 g BV au lieu de ≈ 20 g/ 100 g BV), ce qui se

traduit par une ρ_{app} plus faible (2125 kg/m^3). Pour la ρ_{vraie} (après broyage), les valeurs sont légèrement plus élevées du fait de l'élimination des pores fermés mais l'évolution reste la même.

Tableau 3.7. Porosité fermée et masses volumiques apparente et vraie des agglomérats de billes de verre. (BV : billes de verre, GA : gomme d'acacia, Q_L : débit du liquide de pulvérisation, P : pression relative de l'air de pulvérisation, T : consigne de température de l'air, Ch : charge des particules, C_L : concentration du liant)

| Essai | | $\rho_{app} \text{ (kg/m}^3\text{)}$ | $\rho_{vraie} \text{ (kg/m}^3\text{)}$ | $\varepsilon_{int} \text{ (%)}$ |
|-------|---|--------------------------------------|--|---------------------------------|
| | Référence : 5,33 ml/min, 1 | | | |
| 1 | bar, 70°C, 20% w/w, 500 g BV | 2256 | 2286 | 1,3 |
| 2 | $Q_L = 2,65 \text{ ml/min}$ | 2272 | 2293 | 0,9 |
| 3 | $Q_L = 7,75 \text{ ml/min}$ | 2249 | 2280 | 1,4 |
| 4 | P = 2 bar | 2242 | 2260 | 0,8 |
| 5 | P = 3 bar | 2258 | 2269 | 0,5 |
| 6 | T = 80 °C | 2255 | 2276 | 0,9 |
| 7 | GA = 30 % - 30% w/w | 2125 | 2178 | 2,4 |
| 8 | Ch = 750 g | 2255 | 2275 | 0,9 |

Les agglomérats finaux montrent en général une porosité fermée faible, comprise entre 0,5 et 2,4%. Les agglomérats les moins poreux ont été obtenus avec le débit de liquide le plus faible ou avec des pressions de l'air de pulvérisation élevées (essais 2, 4 et 5). Ces conditions opératoires correspondent aux diamètres des gouttes de liquide pulvérisé les plus faibles ($d_{3,2} < 30 \mu\text{m}$) et aux agglomérats les plus petits ($d_{50} < 360 \mu\text{m}$). On peut supposer qu'il y a moins de liant dans chaque pont formé entre les particules favorisant ainsi l'enrobage des particules par rapport à l'agglomération, et lorsqu'il y a agglomération, les pores fermés sont plus petits.

Il en est de même pour les essais 6 et 8. En augmentant la température de l'air de fluidisation, les gouttes se déposent à la surface des particules et sèchent rapidement avant collision avec une autre particule, formant une couche autour de la particule. Avec cette condition (80°C, essai 6), les agglomérats formés sont partiellement « enrobés » et donc moins gros et moins poreux (porosité fermée $< 1\%$). Pour une charge initiale de particules plus grande (750 g, essai 8) avec un même débit de liquide de pulvérisation, la quantité de liant disponible pour former des ponts est plus faible, par conséquent les ponts sont plus petits et les agglomérats moins poreux.

Au contraire, quand on augmente la concentration du liquide de pulvérisation, on augmente la quantité du liant par rapport à la quantité de particules, les ponts formés sont plus gros, la porosité de l'agglomérat final est plus élevée. Ceci peut représenter un avantage pour améliorer la solubilité (dispersibilité) de la poudre.

b) Masses volumiques vrac et tassée

Dans tous les cas, les masses volumiques vrac et tassée des agglomérats sont plus faibles que celles des particules initiales (Tableau 3.6) : entre 0,6 et 1,1 g/cm^3 par rapport à 1,5 g/cm^3 pour les billes de verre, et entre 0,2 et 0,45 g/cm^3 par rapport à 0,5 pour la maltodextrine sauf pour l'essai 12 correspondant aux agglomérats les plus petits.

En effet, (Figure 3.9a) lorsque la taille des agglomérats augmente leurs masses volumiques diminuent. La formation des ponts entre les particules, entraîne une augmentation du volume des agglomérats, et la création de pores dans les agglomérats (vides inter-particulaires) qui ont des formes de plus en plus irrégulières. Par exemple, pour les

agglomérats de billes de verre obtenus en pulvérisant du liant à 30 % w/w (essai 7), qui ont une taille de 744 μm , les masses volumiques vrac et tassée sont de 0,59 et 0,67 g/cm^3 respectivement, plus faibles que celles des agglomérats obtenus en pulvérisant du liant à 20% w/w, qui sont de 0,77 et 0,87 g/cm^3 respectivement, pour une taille de 546 μm (essai 1).

c) Coulabilité

Les indices de compressibilité de Hausner (IH) et de Carr (IC), calculés à partir des masses volumiques vrac et tassée pour les agglomérats de billes de verre et de maltodextrine, sont dans tous les cas inférieurs à 1,2 et 0,16 respectivement (Tableau 3.6). Ces valeurs correspondent à une bonne aptitude au tassement de la poudre et à un bon comportement lors de son écoulement. De plus, la caractéristique électrostatique observée pour les billes de verre initiales disparaît avec l'agglomération en pulvérisant de la gomme d'acacia. Ceci est probablement dû à la fine couche d'enrobage formée sur les billes de verre pendant la phase d'initiation.

Les valeurs des indices IH et IC pour les différents agglomérats sont proches, montrant ainsi que l'effet des conditions opératoires sur leur aptitude à l'écoulement et au tassement est faible.

Les temps d'écoulement mesurés lors des tests de coulabilité confirment ces résultats (Figure 3.10). L'aptitude à l'écoulement est très bonne pour les billes de verre agglomérées avec de la gomme d'acacia, avec des temps compris entre 3 et 6 s. Dans la plupart des cas, le temps d'écoulement diminue avec la taille des agglomérats. Toutefois, dans certains cas l'évolution inverse est observée. Ceci peut être dû au fait que l'aptitude à l'écoulement dépend également de la forme des particules. Les billes de verre initiales sphériques s'écoulent plus facilement que les agglomérats irréguliers.

3.3.4. Mouillabilité

La mouillabilité (ou instantanéité, ou ré-hydratabilité) est une propriété très importante dans le domaine alimentaire pour les poudres instantanées obtenues en général par agglomération de particules individuelles. L'augmentation de la taille des particules et de la porosité sont les objectifs principaux du procédé d'agglomération, pour améliorer la dispersion de la poudre dans les liquides (eau, lait, ...). Les temps courts pour le test de mouillabilité dans l'eau au repos représentent une bonne aptitude à la dispersion des agglomérats.

a) Billes de verre

Le temps nécessaire pour mouiller complètement les agglomérats obtenus au cours des différents essais est compris entre 0,25 et 1,5 min (Tableau 3.6). Ce temps est plus grand pour les particules agglomérées que pour les billes de verre initiales qui se mouillaient instantanément. Ceci est dû en partie à la présence de gomme d'acacia à la surface des billes et à la masse volumique (apparente) plus faible des agglomérats (entre 2100 et 2300 kg/m^3) par rapport aux billes de verre initiales (2450 kg/m^3). Cette propriété est améliorée (de 31 à 17 s) quand on diminue le débit du liquide pulvérisé de 5,33 à 2,65 ml/min et quand on augmente la pression d'air de pulvérisation de 1 à 3 bar (essais 2, 4 et 5). Ces conditions opératoires correspondent à des particules peu agglomérées (taille petite) de forme proche de celle des billes de verre initiales, ce qui favorise la submersion des particules dans l'eau.

Pour les autres essais, il est difficile de corrélérer l'évolution de la mouillabilité à la taille ou à la masse volumique des agglomérats. En effet, la mouillabilité est fortement liée à la porosité ouverte des agglomérats qui n'a pas été estimée ici.

b) Maltodextrine

La mouillabilité est bien meilleure ($< 2s$) pour toutes les particules de maltodextrine agglomérées par rapport aux particules initiales (8 min), sauf pour l'essai 15 (Tableau 3.6). Les agglomérats obtenus en pulvérisant une solution de gomme d'acacia (essai 15) montrent une mauvaise mouillabilité (> 20 min). Ceci s'explique par la mauvaise propriété de mouillabilité de la gomme d'acacia sèche (> 30 min), comparée à celle de la maltodextrine sèche (8 min).

3.3.5. Forme par analyse d'image

Les images des particules obtenues au microscope optique (Figure 3.11) permettent le calcul de différents descripteurs de forme comme la circularité, l'élongation et la « roundness ». La circularité C compare la surface de l'image en 2D de la particule avec celle d'un disque de même diamètre. L'élongation F est le rapport entre les diamètres de Féret maximal et minimal, lesquels sont associés à la longueur et à la largeur de la particule respectivement. Et, le descripteur roundness R compare le périmètre de la particule à celui d'un disque de même diamètre de Féret maximal. L'analyse d'image a été réalisée seulement sur les billes de verre agglomérées avec de la gomme d'acacia (Tableau 3.8).

La forme sphérique des billes de verre initiales, valeurs de F , R et C proche de 1, n'est pas très modifiée s'il n'y a pas beaucoup d'agglomération. En effet, on montre à la figure 3.12 que les valeurs de ces descripteurs augmentent avec la taille des agglomérats, sauf pour l'élongation F qui n'est, semble-t-il, pas représentative de la forme des agglomérats formés et garde une valeur proche de 1,45 pour tous les essais. Par contre, les valeurs de C et R permettent de distinguer les agglomérats de forme plus régulière et sphérique, disons « enrobés ou moins agglomérés », de ceux de forme irrégulière. La circularité C augmente linéairement avec la taille des agglomérats. Plus les agglomérats sont gros, plus ils ont une forme irrégulière. Les valeurs de R permettent de distinguer les gros agglomérats de forme irrégulière (R environ 1,30) des petits agglomérats de forme plus sphérique (R environ 1,22).

Les agglomérats ayant les valeurs de R et C les plus faibles, avec une forme plus régulière et sphérique, correspondent aux essais réalisés avec un débit 2,65 ml/min (essai 2) et une pression relative d'air plus importante (essais 4 et 5). Pour ces agglomérats on a montré précédemment qu'ils sont plus friables, car formés par des ponts plus petits entre particules, ils sont moins agglomérés et ont été « arrondis » par frottement. Rappelons que les particules agglomérées avec un débit plus faible (2,65 ml/min, essai 2) ont été soumises à la fluidisation plus longtemps (200 min) dans le but de pulvériser 20 g de gomme d'acacia/100 g de billes de verre. On observe cette relation entre la friabilité et la forme des agglomérats à la figure 3.13: les agglomérats les plus fragiles sont aussi les plus petits et les plus réguliers.

Une autre propriété liée à la forme est l'aptitude à l'écoulement (indice de Carr). Les agglomérats de forme plus irrégulière (C et R plus élevées), et plus gros, montrent une diminution de l'aptitude à l'écoulement avec des valeurs d'indice de Carr plus élevées (Figure 3.14) par rapport aux agglomérats « enrobés ou moins agglomérés ».

Pour la mouillabilité (Figure 3.15) on n'a pas observé de relation avec les descripteurs de forme obtenus. Cette propriété de la poudre dépend d'autres propriétés des agglomérats telles que leur composition, leurs propriétés de surface, leur porosité.

Tableau 3.8. Descripteurs de forme des particules de billes de verre agglomérées avec de la gomme d'acacia. F : élongation, R : roundness, C : circularité. . (BV : billes de verre, MD : maltodextrine, GA : gomme d'acacia, Q_L : débit du liquide de pulvérisation, P : pression relative de l'air de pulvérisation, T : consigne de température de l'air, Ch : charge des particules, C_L : concentration du liant)

| Essai | | d ₅₀ (µm) | F | R | C | IC |
|-----------|--|----------------------|-------|-------|-------|------|
| | Référence : 5,33 ml/min, 1 bar, | | | | | |
| 1c | 70°C, 20% w/w, 500 g BV | 546 | 1,441 | 1,293 | 2,003 | 0,11 |
| 2 | Q_L = 2,65 ml/min | 362 | 1,389 | 1,211 | 1,621 | 0,10 |
| 3c | Q_L = 7,75 ml/min | 631 | 1,448 | 1,293 | 2,294 | 0,12 |
| 4 | P = 2 bar | 360 | 1,446 | 1,250 | 1,672 | 0,09 |
| 5 | P = 3 bar | 201 | 1,441 | 1,224 | 1,538 | 0,10 |
| 6 | T = 80 °C | 393 | 1,464 | 1,298 | 1,971 | 0,12 |
| 7 | GA = 30 %, 30% w/w | 747 | 1,433 | 1,296 | 2,039 | 0,13 |
| 8 | Ch = 750 g | 532 | 1,475 | 1,320 | 1,926 | 0,16 |

3.4. Conclusion

Les billes de verre (d₅₀ = 160 µm) agglomérées avec une solution de gomme d'acacia ont montré trois phases de croissance pendant l'agglomération. La phase initiale représente le dépôt de liant à la surface des billes de verre initiales, nécessaire pour ce type de particules non solubles dans l'eau, pour rendre leur surface collante. La deuxième phase correspond à une croissance à vitesse constante des agglomérats, pour atteindre une taille maximale (jusqu'à 900 µm). Finalement on observe la troisième phase avec apparition d'un palier ou décroissance de taille.

Les particules de maltodextrine, solubles dans l'eau s'agglomèrent dès leur mise en contact avec le liquide de pulvérisation (eau, solution de gomme d'acacia ou de maltodextrine). Par conséquent on observe seulement deux phases pendant la croissance des agglomérats : une phase de croissance à vitesse constante suivie d'une phase d'équilibre pendant laquelle un palier apparaît. La taille maximale obtenue au palier est de 1100 µm pour les agglomérats de maltodextrine formés en pulvérisant de l'eau. Ces résultats confirment que les particules solubles dans l'eau s'agglomèrent plus rapidement que les particules non solubles.

L'agglomération des particules de maltodextrine a permis d'améliorer leurs propriétés de coulabilité et de mouillabilité tandis que pour les billes de verre, les agglomérats de forme irrégulière et moins denses, montrent des propriétés de transport moins intéressantes par rapport aux particules initiales.

La consolidation et les propriétés physiques des agglomérats dépendent de la vitesse de formation (débit du liquide de pulvérisation, collage de la surface des particules), de la vitesse de séchage (concentration et viscosité du liquide de pulvérisation, température de l'air de fluidisation), et des collisions entre les particules (charge initiale).

4. La modélisation du procédé d'agglomération par les bilans de population

Suite à l'étude bibliographique il nous a semblé intéressant d'utiliser les bilans de population pour modéliser l'évolution de la taille et de la distribution de taille des particules en cours d'agglomération. Les bilans considèrent des particules sphériques de volume v correspondant à un diamètre d_p donné. Les transferts de chaleur et de quantité de mouvement sont implicites dans ces bilans.

4.1. Le modèle

Dans le cas d'un système ouvert de volume V dans lequel il y a croissance par dépôt et agglomération, et décroissance par rupture de particules, la *forme générale de l'équation du bilan de population* pour les particules de volume v est :

$$\begin{array}{c}
 \text{Débit =} \\
 \text{d'accumulation}
 \end{array}
 = \frac{1}{V} \cdot \frac{d(V \cdot \Psi(v,t))}{dt}
 = \frac{1}{V} \cdot \left[\underbrace{\dot{Q}_{in}(t) \cdot \Psi_{in}(v,t)}_{\text{Débit d'entrée}} - \underbrace{\dot{Q}_{out}(t) \cdot \Psi_{out}(v,t)}_{\text{Débit de sortie}} \right] + \underbrace{\left[-\frac{\partial}{\partial v} \left[\frac{dv}{dt} \cdot \Psi(v,t) \right] + F - E + C - D \right]}_{\text{Débit de transformation}}$$

Dépôt
↑
Rupture
Agglomération

(Eq. 3.6)

où

- V : volume du réacteur (m^3)
- $\Psi(v,t)$: fonction de densité de particules en nombre par unité de volume de réacteur et par unité de volume de particule ($np \cdot m^{-3} \cdot m^{-3}$)
- $\dot{Q}_{entrée}, \dot{Q}_{sortie}$: débit volumique de particules à l'entrée et à la sortie du réacteur ($m^3 \cdot s^{-1}$)
- v : volume de particule (m^3)
- C, D : débits spécifiques de production et de consommation de particules de volume v par *rupture* (par unité de volume de réacteur et par unité de volume de particule) ($np \cdot m^{-3} \cdot m^{-3} \cdot s^{-1}$)
- F, E : débits spécifiques de production et de consommation de particules de volume v par *agglomération* (par unité de volume de réacteur et par unité de volume de particule) ($np \cdot m^{-3} \cdot m^{-3} \cdot s^{-1}$)

4.1.1. Représentation du système d'agglomération en lit fluidisé avec pulvérisation au-dessus du lit

Dans le cas de l'agglomération de particules en lit fluidisé avec pulvérisation de liquide par le dessus (TOP SPRAY), les cartographies de température d'air ont montré l'existence de trois zones :

1. *Zone active de mouillage* : située dans la partie supérieure du lit, sous la buse de pulvérisation. C'est la zone dans laquelle le liquide pulvérisé entre en contact avec les particules.
2. *Zone isotherme* : située dans la partie centrale du lit et autour de la zone de mouillage.
3. *Zone de transfert actif de chaleur* : située dans la partie inférieure du lit. L'air chaud qui entre réchauffe les particules.

La *zone active de mouillage* dans laquelle les températures d'air les plus basses ont été mesurées est aussi la zone dans laquelle l'humidité est la plus élevée. On considère donc (**Hypothèse 1**) que l'agglomération a lieu uniquement dans cette zone. Dans la *zone isotherme* et la *zone de transfert actif de chaleur* il y a uniquement mélange des particules et éventuellement rupture par collision ou abrasion.

Du fait de l'agitation au sein du lit fluidisé, chaque zone peut être considérée comme parfaitement agitée (**Hypothèse 2**) avec en permanence transfert de particules d'une zone à l'autre. Pour la modélisation de l'agglomération pendant l'étape de pulvérisation, le système peut être représenté par deux réacteurs A et B parfaitement agités associés en série avec échange de matière entre les deux (Figure 4.1) (**Hypothèse 3**). Le réacteur A correspond à la *zone active de mouillage* dans laquelle a lieu l'agglomération. Le réacteur B correspond aux *zones isotherme* et de *transfert actif de chaleur*. Le volume de chacun de ces réacteurs dépend des conditions opératoires. Le volume du réacteur A correspond au volume V_m estimé à partir des cartographies de température réalisées (cf. Chapitre III.2), il occupe la fraction $\alpha = V_m/V_{lf}$ du volume total du lit fluidisé. Il est supposé constant pendant toute la durée de l'agglomération (**Hypothèse 4**) pour des conditions opératoires données.

Si l'on considère que les particules sont réparties de façon homogène dans tout le volume du lit fluidisé (**Hypothèse 5**), le nombre de particules dans chacun des deux réacteurs à l'instant t est :

$$N_A(t) = \alpha \cdot N_T(t) \quad (\text{Eq. 3.7})$$

$$N_B(t) = (1 - \alpha) \cdot N_T(t) \quad (\text{Eq. 3.8})$$

avec $N_T(t)$ le nombre total de particules dans le lit fluidisé à l'instant t et α , la fraction du volume total du lit fluidisé occupée par la zone active de mouillage.

$$\alpha = V_m/V_{lf} = V_A/V_{lf} \quad (\text{Eq. 3.9})$$

$$(1 - \alpha) = V_B/V_{lf} \quad (\text{Eq. 3.10})$$

Les fonctions de densité de population dans chacune des deux zones (chacun des deux réacteurs) sont notées $\Psi^A(v,t)$ et $\Psi^B(v,t)$. La fonction de densité de population dans le lit fluidisé (ensemble réacteur A + réacteur B) est alors :

$$\Psi(v,t) = \alpha \cdot \Psi^A(v,t) + (1-\alpha) \cdot \Psi^B(v,t) \quad (\text{Eq. 3.11})$$

4.1.2. Equations des bilans de population pour un système d'agglomération à deux zones

En appliquant l'équation des bilans de population aux réacteurs A et B du modèle proposé, on a :

a) Pour le réacteur A :

Un terme d'échange de matière avec le réacteur B et un terme de transformation par dépôt et par agglomération.

$$\frac{1}{V_A} \cdot \frac{d(V_A \cdot \Psi^A(v,t))}{dt} = \frac{1}{V_A} \cdot \underbrace{\left[\dot{Q}_s(t) \cdot \Psi^B(v,t) - \dot{Q}_h(t) \cdot \Psi^A(v,t) \right]}_{\text{Echange}} - \underbrace{\frac{\partial}{\partial v} \left[\frac{dv}{dt} \cdot \Psi^A(v,t) \right]}_{\text{Dépôt}} + \underbrace{F - E}_{\text{Agglomération}} \quad (\text{Eq. 3.12})$$

Dans le cas d'un réacteur de volume V_A constant, l'équation s'écrit :

$$\boxed{\frac{d\Psi^A(v,t)}{dt} = \frac{1}{V_A} \cdot \left[\dot{Q}_s(t) \cdot \Psi^B(v,t) - \dot{Q}_h(t) \cdot \Psi^A(v,t) \right] - \frac{\partial}{\partial v} \left[\frac{dv}{dt} \cdot \Psi^A(v,t) \right] + F - E} \quad (\text{Eq. 3.13})$$

Terme de croissance par dépôt

Si l'on fait l'hypothèse que la vitesse de croissance par dépôt $G = dv/dt$ est indépendante de la taille des particules (**Hypothèse 6**), le terme de croissance par dépôt devient :

$$-\frac{\partial}{\partial v} \left[\frac{dv}{dt} \cdot \Psi^A(v,t) \right] = -\frac{\partial}{\partial v} [G \cdot \Psi^A(v,t)] = -G \cdot \frac{\partial \Psi^A(v,t)}{\partial v} \quad (\text{Eq. 3.14})$$

Terme d'apparition par agglomération (F)

Considérant qu'une particule de volume v est obtenue par agglomération de 2 particules de volumes respectifs $(v-u)$ et u inférieurs à v (Figure 4.2.a), le débit spécifique d'apparition des particules de volume v par agglomération, dans le réacteur A, est :

$$F(v) = \frac{1}{2} \int_0^v \beta(v-u, u) \cdot \Psi^A(v-u, t) \cdot \Psi^A(u, t) du \quad (\text{Eq. 3.15})$$

où $\beta(v-u, u)$ est appelé "fonction d'agglomération" ($m^3 \cdot np^{-1} \cdot s^{-1}$). Elle "représente" la probabilité de collision "efficace" entre les particules $(v-u)$ et u . C'est une fonction symétrique telle que $\beta(v-u, u) = \beta(u, v-u)$.

Terme de disparition par agglomération (E)

Une particule de volume v peut disparaître par agglomération avec une particule de volume u quelconque pour donner naissance à une nouvelle particule de volume $(v+u)$ (Figure 4.2.b). On a donc :

$$E(v) = \Psi^A(v, t) \cdot \int_0^\infty \beta(v, u) \cdot \Psi^A(u, t) du \quad (\text{Eq. 3.16})$$

b) Pour le réacteur B :

Il y a uniquement échange de matière avec le réacteur A et éventuellement transformation par rupture. Dans notre cas, on ne considère pas le terme de rupture.

$$\frac{1}{V_B} \cdot \frac{d(V_B \cdot \Psi^B(v, t))}{dt} = \frac{1}{V_B} \cdot \left[\dot{Q}_h(t) \cdot \Psi^A(v, t) - \dot{Q}_s(t) \cdot \Psi^B(v, t) \right] \quad (\text{Eq. 3.17})$$

D'où, dans le cas d'un réacteur de volume V_B constant, l'équation s'écrit:

$$\frac{d\Psi^B(v, t)}{dt} = \frac{1}{V_B} \cdot \left[\dot{Q}_h(t) \cdot \Psi^A(v, t) - \dot{Q}_s(t) \cdot \Psi^B(v, t) \right] \quad (\text{Eq. 3.18})$$

c) Pour le système :

On aboutit à un système de deux équations intégral-différentielles (une pour chaque réacteur) dont la résolution numérique nécessite une discrétisation (Eqs. 3.13 et 3.18).

$$\begin{cases} \frac{d\Psi^A(v, t)}{dt} = \frac{1}{V_A} \cdot \left[\dot{Q}_s(t) \cdot \Psi^B(v, t) - \dot{Q}_h(t) \cdot \Psi^A(v, t) \right] - \frac{\partial}{\partial v} \left[\frac{dv}{dt} \cdot \Psi^A(v, t) \right] + F - E \\ \frac{d\Psi^B(v, t)}{dt} = \frac{1}{V_B} \cdot \left[\dot{Q}_h(t) \cdot \Psi^A(v, t) - \dot{Q}_s(t) \cdot \Psi^B(v, t) \right] \end{cases}$$

4.1.3. Discrétisation des équations des bilans de population

La discrétisation des équations du bilan de population consiste à formuler ces équations dans un espace de taille (volume v) discret divisé en n classes. Pour cela on intègre chaque équation continue sur un intervalle de taille $[v_i; v_{i+1}]$. La fonction de densité de population discrétisée est notée $\Phi_i(t)$ (Figure 4.3). Elle est telle que :

$$\Phi_i(t) = \int_{v_i}^{v_{i+1}} \Psi(v, t) \cdot dv \quad (\text{Eq. 3.19})$$

où $\Phi_i(t)$, fonction discrète, représente le nombre de particules dans la classe i par unité de volume de réacteur ($\text{np} \cdot \text{m}^{-3}$).

$\Psi(v, t)$, fonction continue, représente le nombre de particules de volume v par unité de volume de réacteur et par unité de volume de particule ($\text{np} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{m}^{-3}$).

4.1.3.1. Terme de croissance par dépôt

La forme discrète du terme de dépôt est obtenue par intégration entre v_i et v_{i+1} :

$$-G \cdot \int_{v_i}^{v_{i+1}} \frac{\partial \Psi^A(v, t)}{\partial v} = G \left[\Psi^A(v_i, t) - \Psi^A(v_{i+1}, t) \right] \quad (\text{Eq. 3.20})$$

Si l'on suppose (**Hypothèse 7**) que $\Psi(v, t)$ prend une valeur constante $\Psi'_i(t)$ sur la classe i comprise entre v_i et v_{i+1} et que $\Psi(v_i, t)$ est la moyenne arithmétique de $\Psi(v, t)$ entre les classes $i-1$ et i , on a (Marchal *et al.*, 1988) (Figure 4.4) :

$$\Psi(v_i, t) = \frac{\Psi'_i(t) + \Psi'_{i-1}(t)}{2} \quad (\text{Eq. 3.21})$$

Comme $\Phi_i(t) = \int_{v_i}^{v_{i+1}} \Psi(v, t) \cdot dv$

avec $\Psi(v, t) = \Psi'_i(t) = \text{constante, entre } v_i \text{ et } v_{i+1}$

on a : $\Phi_i(t) = \Psi'_i(t) \cdot \int_{v_i}^{v_{i+1}} dv = \Psi'_i(t) \cdot (v_{i+1} - v_i)$ (Eq. 3.22)

d'où $\Psi'_i(t) = \frac{\Phi_i(t)}{(v_{i+1} - v_i)}$ (Eq. 3.23)

De même, $\Psi'_{i-1}(t) = \frac{\Phi_{i-1}(t)}{(v_i - v_{i-1})}$ (Eq. 3.24)

et

$$\Psi(v_i, t) = \frac{1}{2} \left[\frac{\Phi'_i(t)}{(v_{i+1} - v_i)} + \frac{\Phi'_{i-1}(t)}{(v_i - v_{i-1})} \right] \quad (\text{Eq. 3.25})$$

Pour une classe $i \neq 1 \neq n$, le terme de dépôt dans le réacteur A, sous forme discrétisée est :

$$G[\Psi^A(v_i, t) - \Psi^A(v_{i+1}, t)] = G \cdot \left[\frac{1}{2} \left(\frac{\Phi_{i-1}^A(t)}{(v_i - v_{i-1})} + \frac{\Phi_i^A(t)}{(v_{i+1} - v_i)} \right) - \frac{1}{2} \left(\frac{\Phi_i^A(t)}{(v_{i+1} - v_i)} + \frac{\Phi_{i+1}^A(t)}{(v_{i+2} - v_{i+1})} \right) \right]$$

D'où, en simplifiant :

$$D_i(t) = G[\Psi^A(v_i, t) - \Psi^A(v_{i+1}, t)] = G \cdot \frac{1}{2} \left[\frac{\Phi_{i-1}^A(t)}{(v_i - v_{i-1})} - \frac{\Phi_{i+1}^A(t)}{(v_{i+2} - v_{i+1})} \right] \quad (\text{Eq. 3.26})$$

Pour la première classe $i = 1$, comprise entre v_1 et v_2 (Figure 4.5), $\Psi(v, t)$ prend la valeur $\Psi'_1(t)$, constante pour toute la classe 1.

On a donc $\Psi(v_1, t) = \Psi'_1(t)$

et $\Phi_1(t) = \int_{v_1}^{v_2} \Psi(v, t) dv = \Psi'_1(t) \int_{v_1}^{v_2} dv = \Psi'_1(t) \cdot (v_2 - v_1)$

D'où $\Psi'_1(t) = \frac{\Phi_1(t)}{(v_2 - v_1)} = \Psi(v_1, t)$

Le terme de dépôt dans le réacteur A sous forme discrétisée, pour la classe 1 s'écrit alors :

$$G[\Psi^A(v_1, t) - \Psi^A(v_2, t)] = G \left[\frac{\Phi_1^A(t)}{(v_2 - v_1)} - \frac{1}{2} \left(\frac{\Phi_1^A(t)}{(v_2 - v_1)} + \frac{\Phi_2^A(t)}{(v_3 - v_2)} \right) \right]$$

D'où, en simplifiant

$$D_1(t) = G[\Psi^A(v_1, t) - \Psi^A(v_2, t)] = G \cdot \frac{1}{2} \left[\frac{\Phi_1^A(t)}{(v_2 - v_1)} - \frac{\Phi_2^A(t)}{(v_3 - v_2)} \right] \quad (\text{Eq. 3.27})$$

Pour la dernière classe $i = n$, comprise entre v_n et v_{n+1} (Figure 4.6), $\Psi(v,t)$ prend la valeur $\Psi'_n(t)$, constante pour toute la classe n .

On a donc $\Psi(v_{n+1},t) = \Psi'_n(t)$

et
$$\Phi_n(t) = \int_{v_n}^{v_{n+1}} \Psi(v,t)dv = \Psi'_n(t) \int_{v_n}^{v_{n+1}} dv = \Psi'_n(t) \cdot (v_{n+1} - v_n)$$

D'où

$$\Psi'_n(t) = \left(\frac{\Phi_n}{v_{n+1} - v_n} \right) = \Psi(v_n, t)$$

Si $\Psi(v_n, t)$ est la moyenne arithmétique de $\Psi(v, t)$ entre les classes $n-1$ et n , on a :

$$\Psi(v_n, t) = \frac{\Psi'_{n-1}(t) + \Psi'_n(t)}{2}$$

Le terme de dépôt dans le réacteur A sous forme discrétisée, pour la classe n s'écrit alors :

$$G[\Psi^A(v_n, t) - \Psi^A(v_{n+1}, t)] = G \left[\frac{1}{2} \left(\frac{\Phi_{n-1}^A}{(v_n - v_{n-1})} + \frac{\Phi_n^A}{(v_{n+1} - v_n)} \right) - \frac{\Phi_n^A(t)}{(v_{n+1} - v_n)} \right]$$

D'où, en simplifiant

$$\boxed{D_n(t) = G[\Psi^A(v_n, t) - \Psi^A(v_{n+1}, t)] = G \cdot \frac{1}{2} \left[\frac{\Phi_{n-1}^A}{(v_n - v_{n-1})} - \frac{\Phi_n^A(t)}{(v_{n+1} - v_n)} \right]} \quad (\text{Eq. 3.28})$$

4.1.3.2. Terme d'agglomération

Nous avons choisi d'utiliser la méthode dite "du pivot fixe" développée par Kumar et Ramkrishna en 1996 décrite comme étant la plus générale et la plus flexible des méthodes de discrétisation (Kumar *et al.*, 2006). Cette méthode assure la conservation du nombre et de la masse de particules et peut être généralisée afin d'assurer également la conservation de n'importe quelle autre propriété de la population. Elle présente également l'avantage d'être indépendante de la discrétisation utilisée lors de la résolution numérique ultérieure.

Pour cette discrétisation, l'échelle de taille (volume de particule) est divisée en n classes. La classe i correspond aux particules de volumes compris entre v_i et v_{i+1} (définis par les ouvertures de tamis utilisés pour la détermination expérimentale des distributions de taille). Les particules appartenant à la classe i sont représentées par un volume x_i , appelé "point de grille", tel que $v_i < x_i < v_{i+1}$. Dans ce qui suit, les volumes x_i correspondent à la moyenne entre les deux bornes de la classe ($x_i = (v_i + v_{i+1})/2$). Lorsqu'une nouvelle particule de taille (ou volume) v dans l'intervalle $[x_i; x_{i+1}]$ est formée par agglomération ou rupture, une fraction $a(v, x_i)$ et une fraction $b(v, x_{i+1})$ de cette particule sont attribuées respectivement aux populations à x_i et x_{i+1} . Ainsi, la population représentée par le volume x_i récupère une fraction de particule pour chaque particule formée dans le domaine de taille $[x_{i-1}; x_i]$ ou $[x_i; x_{i+1}]$ (Figure 4.7). Les fractions a et b vérifient de plus :

$$a(v, x_i) + b(v, x_{i+1}) = 1 \quad (\text{Eq. 3.29})$$

La discrétisation des termes d'apparition et de disparition par agglomération $F(v)$ et $E(v)$ par cette méthode, en assurant la conservation du nombre et de la masse des particules conduit à (Annexe 6) :

$$F_i = \sum_{j,k, x_{i-1} \leq v \leq x_{i+1}}^{j \geq k} \left(1 - \frac{1}{2} \delta_{j,k}\right) \eta(v) \beta_{j,k} \cdot \Phi_j^A \cdot \Phi_k^A$$

et

$$E_i = \Phi_i^A \cdot \sum_{k=1}^n \beta_{i,k} \cdot \Phi_k^A$$

avec

$$\eta(v) = \begin{cases} \frac{x_{i+1} - v}{x_{i+1} - x_i}, & x_i \leq v \leq x_{i+1} \\ \frac{v - x_{i-1}}{x_i - x_{i-1}}, & x_{i-1} \leq v \leq x_i \end{cases} \quad \text{et} \quad \delta_{j,k} = \begin{cases} 1, & j = k \\ 0, & j \neq k \end{cases}$$

4.1.3.3. Le système d'équations différentielles discrétisées

Pour les deux réacteurs on obtient finalement le système de deux équations différentielles suivant :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d\Phi_i^A}{dt} = \frac{1}{V_A} \cdot \left[\dot{Q}_s(t) \cdot \Phi_i^B - \dot{Q}_h(t) \cdot \Phi_i^A \right] + D_i(t) + \sum_{j,k, x_{i-1} \leq v \leq x_{i+1}}^{j \geq k} \left(1 - \frac{1}{2} \cdot \delta_{j,k}\right) \cdot \eta(v) \cdot \beta_{j,k} \cdot \Phi_j^A \cdot \Phi_k^A - \Phi_i^A \cdot \sum_{k=1}^N \beta_{i,k} \cdot \Phi_k^A \\ \frac{d\Phi_i^B}{dt} = \frac{1}{V_B} \cdot \left[\dot{Q}_h(t) \cdot \Phi_i^A - \dot{Q}_s(t) \cdot \Phi_i^B \right] \end{array} \right. \quad \begin{array}{l} \text{(Eq. 3.22)} \\ \text{(Eq. 3.23)} \end{array}$$

La résolution de ce système nécessite d'estimer la vitesse de croissance par dépôt (G), les débits d'échange entre les deux zones ($\dot{Q}_s(t)$ et $\dot{Q}_h(t)$) et la fonction d'agglomération β .

4.1.4. Détermination de G , β , $\dot{Q}_s(t)$ et $\dot{Q}_h(t)$

4.1.4.1. Vitesse de croissance par dépôt (G)

Si le liant pulvérisé se répartit uniformément sur les $N_A(t)$ particules contenues dans le réacteur A (« zone de mouillage ») au temps t (**Hypothèse 8**), un bilan massique sur le liant déposé conduit à :

$$Q'_L \cdot C_L = \sum_i N_i^A(t) \cdot \frac{dm_i}{dt} \quad \text{(Eq. 3.24)}$$

où Q'_L : débit massique de solution pulvérisée ($\text{kg} \cdot \text{s}^{-1}$)
 C_L : concentration massique du liant dans la solution pulvérisée ($\text{kg liant/kg solution}$)
 $N_i^A(t)$: nombre de particules de la classe i dans le réacteur A au temps t
 dm_i/dt : masse de liant déposée par unité de temps sur 1 particule de la classe i

Si le liant recouvre la totalité de la surface de la particule supposée sphérique pour former une couche uniforme (**Hypothèse 9**), on a :

$$dm_i/dt = \rho_{\text{liant}} \cdot dv_i/dt \quad (\text{Eq. 3.25})$$

où ρ_{liant} : masse volumique du liant ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$)
 dv_i/dt : variation du volume des particules de la classe i due au dépôt de liant ($\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$)

Avec une vitesse de croissance par dépôt $G = dv/dt$ indépendante de la taille des particules (**Hypothèse 6**), on a :

$$Q'_L \cdot C_L = \rho_{\text{liant}} \cdot G \cdot \sum_i N_i^A(t)$$

$$\text{d'où} \quad G = \frac{dv}{dt} = \frac{Q'_L \cdot C_L}{\rho_{\text{liant}} \cdot \sum_i N_i^A(t)} = \frac{Q'_L \cdot C_L}{\rho_{\text{liant}} \cdot N_A(t)}$$

avec $N_A(t)$, le nombre total de particules dans le réacteur A au temps t , tel que :

$$N_A(t) = \sum_i \Phi_i^A \cdot V_A(t) \quad (\text{Eq. 3.26})$$

Finalement :

$$G = \frac{Q'_L \cdot C_L}{\rho_{\text{liant}} \cdot V_A \cdot \sum_i \Phi_i^A} \quad (\text{Eq. 3.27})$$

4.1.4.2. Fonction d'agglomération (β)

Différentes expressions sont proposées dans la littérature pour la fonction d'agglomération («agglomeration kernel») (Kapur, 1972 ; Peglow *et al.* 2006). Nous avons choisi d'utiliser la fonction dite "de collision non aléatoire" (non-random coalescence) qui a été utilisée par Peglow *et al.* (2006) pour décrire de façon adéquat l'agglomération des particules de cellulose microcristalline (CMC) dans un appareil et des conditions comparables aux nôtres ;

$$\beta_{i,k} = \beta_o \cdot \frac{(x_i + x_k)^\kappa}{(x_i \cdot x_k)^\gamma} \quad (\text{Eq. 3.28})$$

où x_i et x_k sont les volumes représentatifs ("points de grille") des particules appartenant aux classes i et k respectivement.

Les coefficients κ et γ déterminent la forme de la distribution de taille (plus ou moins large), tandis que β_o est une constante qui traduit la cinétique d'évolution de la distribution de taille. Elle dépend des conditions opératoires.

4.1.4.3. Débits d'échange $Q_s(t)$ et $Q_h(t)$

Si l'on suppose que les particules sont entraînées par les bulles d'air qui montent dans le lit (**Hypothèse 10**), le débit ascendant de particules (Q_s) entre la zone isotherme (réacteur B) et la zone de mouillage (réacteur A) peut être estimé à partir du temps de circulation t_c des particules dans le lit :

$$Q_s = \frac{M_p(t)}{t_c \cdot \rho_p} \quad (\text{Eq. 3.29})$$

où $M_p(t)$ est la masse totale de particules dans le lit fluidisé au temps t [kg], ρ_p est la masse volumique des particules [$\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$] et les unités de Q_s sont [$\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}$].

Le temps de circulation t_c est fonction de la vitesse minimale de fluidisation des particules U_{mf} , de la vitesse de l'air U_a et de la vitesse ascendante des bulles d'air U_b (Rowe, 1973; Saleh, 1998) :

$$t_c = \frac{H'}{0,6(U_a - U_{mf})} \cdot \left(1 - \frac{U_a - U_{mf}}{U_b}\right)^{-1} \quad (\text{Eq. 3.30})$$

où H' est définie, dans notre cas, comme la distance entre la grille de distribution de l'air et le bas de la zone de mouillage. Cette hauteur a été déterminée, pour chaque essai, à partir de l'étude des profils de température d'air.

Vitesse minimale de fluidisation (U_{mf})

La vitesse minimale de fluidisation U_{mf} dans le lit conique est calculée à partir de l'équation de Peng et Fan (1997) établie pour les lits coniques. Cette expression fait intervenir le diamètre et la masse volumique des particules ainsi que les dimensions du lit fluidisé :

$$A \cdot U_{mf} + B \cdot \left(\frac{D_0}{D_1}\right) \cdot U_{mf}^2 - (1 - \varepsilon) \cdot (\rho_p - \rho_a) \cdot g \cdot \left(\frac{D_0^2 + D_0 \cdot D_1 + D_1^2}{3 \cdot D_0^2}\right) = 0 \quad (\text{Eq. 1.14})$$

$$\text{où } A = 150 \cdot \frac{(1 - \varepsilon)^2 \cdot \mu_a}{\varepsilon^3 \cdot d_p^2} \quad \text{et} \quad B = 1,75 \cdot \frac{(1 - \varepsilon) \cdot \rho_a}{\varepsilon^3 \cdot d_p}$$

où ε : porosité du lit fixe, a été estimée à 0,4 pour un lit de billes de verre sphériques et à 0,7 pour un lit de particules de maltodextrine.

Vitesse d'air (U_a)

La vitesse d'air U_a dans le lit conique est fonction de la section de passage à la hauteur H' . Elle est calculée par la relation suivante :

$$U_a = \frac{Q_a}{S_{Ha}} = \frac{Q_a}{\pi(Ha \cdot \tan \theta + r_0)^2} \quad (\text{Eq. 3.31})$$

où $U_a = [\text{m/s}]$, Q_a : débit volumique de l'air de fluidisation = [m^3/s], S : section de passage de l'air = [m^2], $H' = [\text{m}]$, θ : angle de la cuve conique = $10^\circ = 0,175 \text{ rad}$, r_0 : rayon inférieur de la cuve conique = 0,07 m.

Vitesse ascendante des bulles d'air (U_b)

D'après Kunii et Levenspiel (1991) et Yu *et al.* (1999), la vitesse U_b est donnée par l'expression suivante :

$$U_b = (U_a - U_{mf}) + 0,711(g \cdot d_b)^{1/2} \quad (\text{Eq. 1.12})$$

avec
$$d_b = 0,853[1 + 0,272(U_a - U_{mf})]^{1/3} \cdot (1 + 0,0684 \cdot H_{lf})^{1,21} \quad (\text{Eq. 1.13})$$

où d_b : diamètre moyen des bulles d'air [cm], H_{lf} : hauteur du lit fluidisé [cm], U_a : vitesse de l'air à la hauteur H_a [cm/s].

Dans ce qui suit, t_c a été estimé pour les particules initiales (billes de verre, particules de maltodextrine) et supposé constant pendant toute la durée de l'essai (**Hypothèse 11**).

L'estimation du débit descendant (Q_h), entre la zone de mouillage (réacteur A) et la zone isotherme (réacteur B), est plus délicate. Le plus souvent on considère qu'il est égal à Q_s (**Hypothèse 12**) :

$$Q_h(t) = Q_s(t)$$

4.1.5. Les classes de taille choisies

L'échelle de taille (volume v) est divisée en $n = 16$ classes dont les bornes v_i sont calculées à partir des ouvertures d_{tamis} des tamis utilisés pour la détermination des distributions de taille lors des essais d'agglomération. Chaque classe i comprise entre v_i et v_{i+1} est représentée par un volume caractéristique x_i ("point de grille") correspondant à la moyenne arithmétique entre v_i et v_{i+1} (Tableau 3.4.1).

Tableau 3.4.1. Les $n=16$ classes choisies.

| Classe i | d_{tamis} (μm) | v_i (. $10^{-10} m^3$) | $d_{classe i}$ (μm) | x_i (. $10^{-10} m^3$) |
|-------------|----------------------------|------------------------------|-------------------------------|------------------------------|
| 1 | 80 | 0,003 | 90 | 0,004 |
| 2 | 100 | 0,005 | 112,5 | 0,008 |
| 3 | 125 | 0,010 | 142,5 | 0,016 |
| 4 | 160 | 0,021 | 180 | 0,032 |
| 5 | 200 | 0,042 | 225 | 0,062 |
| 6 | 250 | 0,082 | 282,5 | 0,123 |
| 7 | 315 | 0,164 | 357,5 | 0,249 |
| 8 | 400 | 0,335 | 450 | 0,495 |
| 9 | 500 | 0,654 | 565 | 0,982 |
| 10 | 630 | 1,309 | 715 | 1,995 |
| 11 | 800 | 2,681 | 900 | 3,958 |
| 12 | 1000 | 5,236 | 1125 | 7,731 |
| 13 | 1250 | 10,227 | 1425 | 15,836 |
| 14 | 1600 | 21,447 | 1800 | 31,666 |
| 15 | 2000 | 41,888 | 2250 | 61,848 |
| n=16 | 2500 | 81,812 | 2825 | 122,730 |
| | 3150 | 163,655 | | |

4.2. Résolution du système et identification des paramètres

Le système d'équations différentielles discrétisées à résoudre comporte 16 équations différentielles pour chaque réacteur, soit **32 équations** au total. Il fait intervenir **3 paramètres** β , κ et γ liés à la fonction d'agglomération β et repose sur **12 hypothèses** :

1. L'agglomération a lieu uniquement dans la zone de "mouillage". Dans la zone "isotherme" et la zone de "transfert de chaleur" il y a uniquement mélange des particules et éventuellement rupture par collision ou abrasion.
2. Chaque zone peut être considérée comme parfaitement agitée et il y a en permanence transfert de particules d'une zone à l'autre.
3. Le système peut être représenté par deux réacteurs parfaitement agités associés en série A et B avec échange de matière entre les deux. Le réacteur A correspond à la zone de "mouillage". Le réacteur B correspond aux zones "isotherme" et de "transfert de chaleur". Le volume de chacun des réacteurs dépend des conditions opératoires.
4. Le volume du lit fluidisé, le volume de la zone de mouillage et le volume des zones "isotherme" et de "transfert de chaleur" sont constants pendant toute la durée de l'agglomération pour des conditions opératoires données.
5. Les particules sont réparties de façon homogène dans tout le volume du lit fluidisé.
6. La vitesse de croissance par dépôt $G = dv/dt$ est indépendante de la taille des particules.
7. $\Psi(v_i, t)$ prend une valeur constante $\Psi'(v_i, t)$ sur la classe i comprise entre v_i et v_{i+1} et $\Psi(v_i, t)$ est la moyenne arithmétique de Ψ entre les classes $i-1$ et i .
8. Le liant pulvérisé se répartit uniformément sur les $N_A(t)$ particules contenues dans la zone de "mouillage" au temps t .
9. Le liant recouvre la totalité de la surface de la particule supposée sphérique pour former une couche uniforme.
10. Le mouvement ascendant des particules est dû à l'entraînement par les bulles d'air qui montent dans le lit fluidisé.
11. Le temps de circulation t_c est constant pendant l'agglomération, identique pour toutes les particules quelle que soit leur taille.
12. Les débits d'échange de particules entre les deux zones du lit fluidisé sont égaux.

4.2.1. Résolution du système d'équations différentielles

Le système d'équations différentielles discrétisées obtenu, ainsi que le reste des fonctions liées aux paramètres du modèle, sont programmés sur MATLAB 6.1 (Tableau 3.4.2).

Pour la résolution du système, on utilise la fonction « ode15s » (Solve Stiff differential equations) de MATLAB qui permet la résolution de systèmes différentiels raides à partir des conditions initiales. L'intérêt de cette fonction est la détermination automatique du pas temporel d'intégration.

Pour l'initialisation des calculs lors de la résolution du système, il est nécessaire de fixer les conditions initiales (instant $t = 0$). Ainsi, outre les valeurs de différentes variables utilisées dans le modèle, il faut fournir la distribution de taille des particules initiales.

Tableau 3.4.2. Equations du modèle d'agglomération.

| Réacteur A | | Unités |
|---|--|---|
| $\frac{d\Phi_i^A}{dt} = \frac{1}{V_A} \cdot [Q_s(t) \cdot \Phi_i^B - Q_h(t) \cdot \Phi_i^A] + D_i(t) + \sum_{j,k,x_i-1 \leq v \leq x_{i+1}} \left(1 - \frac{1}{2} \delta_{j,k}\right) \cdot \eta(v) \cdot \beta_{j,k} \cdot \Phi_j^A \cdot \Phi_k^A - \Phi_i^A \cdot \sum_{k=1}^N \beta_{i,k} \cdot \Phi_k^A$ | | $\frac{d\Phi_i^A}{dt}$ [np / m ³ lit/s] |
| avec $V_A = \alpha \cdot V_{lf}$ | | V_A [m ³] |
| Réacteur B | | Unités |
| $\frac{d\Phi_i^B}{dt} = \frac{1}{V_B} \cdot [Q_h(t) \cdot \Phi_i^A - Q_s(t) \cdot \Phi_i^B]$ | | $\frac{d\Phi_i^B}{dt}$ [np / m ³ lit/s] |
| avec $V_B = (1 - \alpha) \cdot V_{lit}$ | | V_B [m ³] |
| Débits d'échange entre les réacteurs | | |
| $Q_s(t) = Q_h(t) = \frac{M_p}{tc \cdot \rho_p}$ | $tc = \frac{H'}{0,6(U_a - U_{mf})} \cdot \left(1 - \frac{U_a - U_{mf}}{U_b}\right)^{-1}$ | Q_h, Q_s [m ³ /s] tc [s] |
| $U_a = \frac{Q_a}{S_{Ha}} = \frac{Q_a}{\pi(Ha \cdot \tan \theta + (D_0/2)^2)}$ | $U_b = (U_a - U_{mf}) + 0,711(g \cdot d_b)^{1/2}$ | U_a, U_b [m/s] U_{mf} [m/s] |
| $A \cdot U_{mf} + B \cdot \left(\frac{D_0}{D_1}\right) \cdot U_{mf} - (1 - \varepsilon) \cdot (\rho_p - \rho_a) \cdot g \cdot \left(\frac{D_0^2 + D_0 \cdot D_1 + D_1^2}{3 \cdot D_0^2}\right) = 0$ | | H, D ₀ , D ₁ [m] Θ [°] ε [-] |
| avec $A = 150 \cdot \frac{(1 - \varepsilon)^2 \cdot \mu_a}{\varepsilon^3 \cdot d_p^2}$ | $B = 1,75 \cdot \frac{(1 - \varepsilon) \cdot \rho_a}{\varepsilon^3 \cdot d_p}$ | |
| $d_b = 0,853[1 + 0,272(U_a - U_{mf})]^{1/3} \cdot (1 + 0,0684 \cdot H_{lf})^{1,21}$ | | |
| Terme de croissance par dépôt | | |
| <u>Pour la classe $i \neq 1 \neq n$</u> | | |
| $D_i(t) = G \cdot \frac{1}{2} \left[\frac{\Phi_{i-1}^A(t)}{(v_i - v_{i-1})} - \frac{\Phi_{i+1}^A(t)}{(v_{i+2} - v_{i+1})} \right]$ | | v [m ³] |
| <u>Pour la classe $i = 1$</u> | | |
| $D_1(t) = G \cdot \frac{1}{2} \left[\frac{\Phi_1^A}{(v_2 - v_1)} - \frac{\Phi_2^A}{(v_3 - v_2)} \right]$ | | |
| <u>Pour la classe $i = n$</u> | | |
| $D_n(t) = G \cdot \frac{1}{2} \left[\frac{\Phi_{n-1}^A}{(v_n - v_{n-1})} - \frac{\Phi_n^A(t)}{(v_{n+1} - v_n)} \right]$ | | |
| Vitesse de croissance par dépôt | | |
| $G = \frac{Q'_L \cdot C_L}{\rho_{liant} \cdot V_A \cdot \sum_i \Phi_i^A}$ | | G [m ³ /s] |
| Termes d'agglomération | | |
| $F_i = \sum_{j,k,x_i-1 \leq v \leq x_{i+1}} \left(1 - \frac{1}{2} \delta_{j,k}\right) \eta(v) \cdot \beta_{j,k} \cdot \Phi_j^A \cdot \Phi_k^A$ | | x [m ³] |
| $\eta(v) = \begin{cases} \frac{x_{i+1} - v}{x_{i+1} - x_i}, & x_i \leq v \leq x_{i+1} \\ \frac{v - x_{i-1}}{x_i - x_{i-1}}, & x_{i-1} \leq v \leq x_i \end{cases}$ | $\delta_{j,k} = \begin{cases} 1, & j = k \\ 0, & j \neq k \end{cases}$ | |
| $E_i = \Phi_i^A \cdot \sum_{k=1}^{ncl} \beta_{i,k} \cdot \Phi_k^A$ | | |
| Fonction d'agglomération | | |
| $\beta_{i,j} = \beta_0 \cdot \frac{(x_i + x_j)^k}{(x_i \cdot x_j)^y}$ | | β_{ij} [m ³ lit/np / s] |
| Bilans de matière | | |
| $M_p(t) = M_0 + Q_L \cdot C_L \cdot t$ | | $M_p(t)$ [kg] |
| $V_{part}(t) = V_A \cdot \sum_i \Phi_i^A(t) \cdot x_i + V_B \cdot \sum_i \Phi_i^B(t) \cdot x_i$ | | $V_p(t)$ [m ³] $\Phi_i(t)$ [np / m ³ lit] |
| $\Phi_i(t) = \frac{w_i(t) \cdot V_p(t)}{V_{lit} \cdot v_i}$ | | |

4.2.1.1. Distribution de taille des particules initiales

Les distributions de taille des particules initiales (billes de verre et maltodextrine) ont été obtenues par tamisage. Elles sont exprimées sous la forme de fractions massiques $w_i(t)$ dans chaque classe i qui doivent être converties en densités de particules $\phi_i(t)$ [np particules/m³ lit] au temps t :

$$\Phi_i(t) = \frac{w_i(t) \cdot M_p(t)}{\rho_p \cdot V_{lit} \cdot x_i} = \frac{w_i(t) \cdot V_p(t)}{V_{lit} \cdot x_i} \quad (\text{Eq. 3.32})$$

Remarque : lorsqu'il y a pulvérisation de solvant pur, la masse volumique vraie ρ_p des agglomérats est supposée constante au cours de l'agglomération et égale à la masse volumique ρ_{p0} des particules initiales. S'il y a pulvérisation de liant, elle évolue au cours du temps : $\rho_p(t) = (M_0 + Q_L \cdot C_L \cdot t) / (M_0 / \rho_{p0} + Q_L \cdot C_L \cdot t / \rho_{liant})$

Les distributions de taille des billes de verre et des particules de maltodextrine utilisées sont données au tableau 3.4.3. A l'instant initial, les densités de population dans les deux zones sont identiques :

$$\phi_i^A(0) = \phi_i^B(0) = \phi_i(0)$$

Tableau 3.4.3. Distributions de taille des particules initiales (t=0) sous la forme de fractions massiques w_i et de densités de population ϕ_i .

| Classe i | x_i (.10 ⁻¹⁰ m ³) | $w_i^A(0)$ = $w_i^B(0)$ (-) | $\Phi_i^A(0)$ = $\Phi_i^B(0)$ (.10 ⁶ np.m ⁻³) |
|-------------|---|-----------------------------------|--|
| 1 | 0,00382 | 0,0002 | 12,01 |
| 2 | 0,00746 | 0,0051 | 196,69 |
| 3 | 0,0152 | 0,1885 | 3589,52 |
| 4 | 0,0305 | 0,8026 | 7581,19 |
| 5 | 0,0596 | 0,0034 | 16,52 |
| 6 | 0,118 | 0,0001 | 0,32 |
| 7 | 0,239 | 0,0001 | 0,10 |
| 8 | 0,477 | 0 | 0 |
| 9 | 0,944 | 0 | 0 |
| 10 | 1,91 | 0 | 0 |
| 11 | 3,82 | 0 | 0 |
| 12 | 7,46 | 0 | 0 |
| 13 | 15,2 | 0 | 0 |
| 14 | 30,5 | 0 | 0 |
| 15 | 59,6 | 0 | 0 |
| 16 | 118 | 0 | 0 |

a) Billes de verre

| Classe i | x_i (.10 ⁻¹⁰ m ³) | $w_i^A(0)$ = $w_i^B(0)$ (-) | $\Phi_i^A(0)$ = $\Phi_i^B(0)$ (.10 ⁶ np.m ⁻³) |
|-------------|---|-----------------------------------|--|
| 1 | 0,00382 | 0,0511 | 3783,92 |
| 2 | 0,00746 | 0,1896 | 7181,71 |
| 3 | 0,0152 | 0,2913 | 5430,17 |
| 4 | 0,0305 | 0,3260 | 3015,81 |
| 5 | 0,0596 | 0,1366 | 647,02 |
| 6 | 0,118 | 0,0054 | 12,81 |
| 7 | 0,239 | 0 | 0 |
| 8 | 0,477 | 0 | 0 |
| 9 | 0,944 | 0 | 0 |
| 10 | 1,91 | 0 | 0 |
| 11 | 3,82 | 0 | 0 |
| 12 | 7,46 | 0 | 0 |
| 13 | 15,2 | 0 | 0 |
| 14 | 30,5 | 0 | 0 |
| 15 | 59,6 | 0 | 0 |
| 16 | 118 | 0 | 0 |

b) Particules de maltodextrine

4.2.1.2. Variables du modèle

Outre les trois paramètres β_0 , κ et γ de la fonction d'agglomération qui devront être identifiés, le modèle fait intervenir différentes variables dont les valeurs sont fixées au cours des essais ou déterminées expérimentalement. Certaines varient en fonction des essais,

d'autres sont constantes. Ces variables sont listées au tableau 3.4.4 où il est également indiqué, le cas échéant, de quoi elles dépendent, comment elles sont obtenues et leur valeur pour l'essai de référence (essai 1) avec les billes de verre.

Tableau 3.4.4. Les variables du modèle et leur valeur pour l'essai de référence avec billes de verre (essai 1).

| | Variable | Valeur | Unités | |
|--|--|--|-----------------------|------|
| Conditions opératoires | Charge initiale de particules M_0 (fixée) | 0,50 | kg | |
| | Température de consigne de l'air T (fixée) | 70 | °C | |
| | Débit massique de liant Q_L (fixé) | $9,61 \times 10^{-05}$ | kg/s | |
| | Concentration massique de la solution de liant C_L (fixée) | 0,20 | kg liant/ kg solution | |
| | Pression relative de l'air de pulvérisation P (fixée) | 1 | bar | |
| | Débit d'entrée de l'air de fluidisation Q_a (fixé) | 0,044 | m ³ /s | |
| | Air | Température du lit fluidisé* $T_{if} = f(T, Q_L, C_L, M_0, P)$ (mesurée) | 55 | °C |
| | | Viscosité d'air de fluidisation $\mu_a = f(T_{if})$ (à 55°C, littérature) | 19,74 | Pa.s |
| Masse volumique de l'air de fluidisation $\rho_a = f(T_{if})$ (à 55°C, littérature) | | 1,098 | kg/m ³ | |
| Zones | | Fraction du volume du lit occupée par le réacteur $A (V_m/V_{lit})^*$ $\alpha = f(T, Q_L, C_L, M_0, P)$ (profils de température) | 0,29 | - |
| | Distance entre la grille et le bas du réacteur A* $H = f(T, Q_L, C_L, M_0, P)$ (profils de température) | 0,8 | m | |
| | Lit | Hauteur du lit fluidisé H_{if} (constante) | 0,24 | m |
| Volume du lit fluidisé V_{if} (constant) | | $6,96 \cdot 10^{-3}$ | m ³ | |
| Géométrie de la cuve | Diamètre supérieur du lit fixe $D_1 = f(M_0, \text{particules})$ | 0,147 | m | |
| | Diamètre inférieur du lit fixe D_0 (constant) | 0,14 | m | |
| | Angle de la cuve Θ (constant) | 10 | ° | |
| | Propriétés des produits | Particules (billes de verre) | | |
| Masse volumique des particules initiales ρ_{p0} (constante) | | 2490 | kg/m ³ | |
| Diamètre médian des particules initiales dp_0 (constant) | | 160×10^{-6} | m | |
| Porosité du lit fixe ε (constante) | | 0,4 | - | |
| Liant (gomme d'acacia) | | | | |
| Masse volumique du liant ρ_{liant} (fixé) | | 1212 | kg/m ³ | |

* variables déterminées à partir d'essais préliminaires (cartographies de température d'air)

4.2.2. Identification des paramètres β_0 , κ et γ

L'identification des trois paramètres β_0 , κ et γ a été réalisée pour les **essais d'agglomération avec les billes de verre** (essais 1 à 8) à partir des distributions de taille mesurées à différents temps ($\Delta t \cong 5$ min) **pendant la phase de croissance** (les phases d'initiation et d'équilibre ne sont pas prises en compte).

Pour cela, un programme recherchant les valeurs de β_0 , κ et γ conduisant à la valeur minimale de la somme des carrés des écarts (SCE) entre distributions de taille théoriques et expérimentales aux différents temps de prélèvement pendant la phase de croissance a été développé. Il fait appel à la fonction *lsqnonlin* de MATLAB qui utilise un algorithme de minimisation non linéaire de type Levenberg-Marquardt pour trouver la valeur optimale de la fonction donnée (SCE) en faisant varier les valeurs des paramètres (ici β_0 , κ et γ) dans des intervalles donnés suivant des pas donnés.

La première étape de l'identification a donc été la détermination de l'ordre de grandeur et de l'intervalle de variation de β_0 , κ et γ puis l'étude de la sensibilité du modèle aux paramètres β_0 , κ et γ .

4.2.2.1. Ordre de grandeur et intervalle de variation de β_0 , κ et γ

Pour déterminer l'ordre de grandeur de β_0 , nous avons supposé:

- a) que la fonction d'agglomération $\beta_{i,k}$ est indépendante de la taille des particules ($\kappa = \gamma = 0$) d'où:

$$\beta_{i,k} = \beta_0 \quad (\text{Eq. 3.33})$$

- b) que le lit fluidisé est constitué d'une seule zone dans laquelle il y a uniquement agglomération (termes de dépôt et d'échange négligeables).

Les valeurs de β_0 ont été calculées à partir des distributions de taille obtenues expérimentalement au cours de l'essai d'agglomération 1. Afin de simplifier les calculs, nous n'avons considéré que trois classes granulométriques (diamètres moyens: $d_1 = 165\mu\text{m}$, $d_2 = 525\mu\text{m}$ et $d_3 = 1650\mu\text{m}$).

Dans ces conditions, la variation au cours du temps de la fonction de densité de population **pour la classe 1** est :

$$\frac{d\varphi_1}{dt} = \frac{1}{2}\eta(v)\beta_0\varphi_1^2 - \varphi_1 \sum_{k=1}^3 \beta_0\varphi_k \quad (\text{Eq. 3.34})$$

d'où, entre $t = 0$ et t , on a :

$$\frac{\Delta\varphi_1}{\Delta t} = \frac{1}{2}\eta(v)\beta_0\varphi_1^2 - \beta_0\varphi_1(\varphi_1 + \varphi_2 + \varphi_3) \quad (\text{Eq. 3.35})$$

et β_0 est donné par :

$$\beta_0 = \frac{\varphi_1(t) - \varphi_1(0)}{t \cdot \left[\frac{1}{2}\eta(v)\varphi_1(t)^2 - \varphi_1(t) \cdot (\varphi_1(t) + \varphi_2(t) + \varphi_3(t)) \right]} \quad (\text{Eq. 3.36})$$

Pour $t = 30, 60$ et 90 minutes, nous avons obtenu des valeurs de β_0 égales à $0,24 \cdot 10^{-12}$, $2,4 \cdot 10^{-12}$ et $140 \cdot 10^{-12} \text{ m}^3 \cdot \text{np}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ respectivement. Nous avons finalement retenu la valeur de $2,4 \cdot 10^{-12}$ pour l'ordre de grandeur de β_0 .

Pour définir les intervalles de variation de β_0 , κ et γ à tester, nous avons calculé les distributions de taille données par le modèle entre $t = 1$ et 90 min, dans les conditions de l'essai de référence (essai 1), en considérant les 16 classes granulométriques données au tableau 3.4.1, avec la fonction d'agglomération :

$$\beta_{i,k} = \beta_0 \cdot \frac{(x_i + x_k)^\kappa}{(x_i \cdot x_k)^\gamma} \quad (\text{Eq. 3.28})$$

- a) Dans un premier temps, β_0 a été fixé à $2,4 \cdot 10^{-12}$ et on a fait varier indépendamment κ et γ par pas de 0,5, autour de la valeur 1. Seules les simulations avec κ compris entre 0,5 et 3,5 et γ compris entre 0,5 et 1,5 ont conduit à des évolutions des distributions de taille cohérentes avec les résultats expérimentaux. En dehors de ces intervalles, les équations du modèle ne convergent pas (tendent vers l'infini) ou conduisent à des distributions de taille qui n'évoluent pas au cours du temps.
- b) Afin d'affiner les pas de variation pour κ et γ , sans trop augmenter le nombre de valeurs à tester, et de définir l'intervalle de variation pour β_0 , nous avons procédé à une nouvelle série de simulations avec $\beta_0 = [1 \cdot 10^{-12} ; 50 \cdot 10^{-12}]$, $\kappa = [0,5 ; 3,5]$ et $\gamma = [0,5 ; 1,5]$ en faisant varier en même temps deux coefficients. Ces nouvelles simulations ont permis de définir des intervalles plus étroits pour les trois coefficients (Tableau 3.4.5).

Tableau 3.4.5. Intervalles et pas de variation pour l'identification des coefficients β_0 , κ et γ .

| Paramètre | Intervalle | Le pas de variation |
|---|----------------|---------------------|
| $\beta_0 [\cdot 10^{-12} \text{ m}^{3(1-\kappa+2\gamma)} \cdot \text{np}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}]$ | [1,01 ; 20,01] | 0,1 (191 valeurs) |
| κ | [1,80 ; 2,5] | 0,05 (15 valeurs) |
| γ | [0,8 ; 0,96] | 0,01 (17 valeurs) |

4.2.2.2. Identification de β_0 , κ et γ pour l'essai 1

L'algorithme de minimisation de la SCE pour l'essai de référence (essai 1), en balayant les (191x15x17) 48705 combinaisons du tableau 3.4.5, a conduit à une valeur minimale de **SCE de 0,2459** pour :

$$\begin{cases} \beta_0 = 9,71 \times 10^{-12} \text{ m}^{3(1-\kappa+2\gamma)} \cdot \text{np}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \\ \kappa = 1,805 \\ \gamma = 0,83 \end{cases}$$

* La valeur de 0,2459 pour la SCE minimale est tout à fait satisfaisante. Elle représente la somme des carrés des écarts entre fraction massique théorique et expérimentale pour chaque classe et à chaque temps t pour lequel nous disposons d'une distribution expérimentale (une dizaine de distributions avec chacune des 16 classes, soit environ 160 valeurs). L'écart moyen, pour chaque fraction massique ($0 \leq w_i \leq 1$), est donc de l'ordre de $(0.2459/160)^{1/2} = 0,04$.

La bonne adéquation entre distributions de taille calculées et expérimentales est confirmée à la figure 4.8 avec de légers décalages aux temps les plus courts (phase d'initiation) et aux temps les plus longs (fin de la phase de croissance).

4.2.2.3. Sensibilité du modèle aux paramètres β_0 , κ et γ

Dans le but de connaître la sensibilité du modèle aux paramètres de la fonction d'agglomération :

$$\beta(u, v) = \beta_0 \cdot \frac{(u + v)^\kappa}{(u \cdot v)^\gamma} \quad (\text{Eq. 3.28})$$

on a fait varier un paramètre à la fois (β_0 , κ ou γ) de cette fonction.

A la figure 4.9 on observe que quand on augmente β_0 de 2×10^{-12} à 20×10^{-12} ($m^{3(1-\kappa+2\gamma)}/np.s$), les distributions de taille deviennent plus étalées et se décalent vers les tailles plus grandes tout en gardant une forme symétrique. Ainsi, la fraction massique dans la classe majoritaire diminue dès qu'on augmente la valeur de β_0 .

Une évolution similaire est observée (Figure 4.10) quand on diminue la valeur du coefficient κ . Lorsque κ passe de 1,90 à 1,75 la forme de la distribution change légèrement. Pour une valeur de 1,90, la distribution est étroite et symétrique, tout comme pour $\kappa = 1,80$. Par contre, avec la valeur de κ plus petite ($\kappa = 1,75$) la distribution de taille montre une traîne vers les classes de diamètres petits.

Pour le coefficient γ , on observe qu'avec une variation de seulement 0,1 ($0,75 \leq \gamma \leq 0,85$), la distribution de taille change de façon très importante tant en ce qui concerne la position que l'étalement (Figure 4.11). La distribution est décalée vers les grandes tailles et devient plus étalée quand γ augmente, mais sa forme semble rester symétrique.

4.2.2.4. Identification de β_0 , κ et γ pour les autres essais

Les valeurs de κ et γ étant surtout fonctions du procédé d'agglomération et de l'appareil (Peglow, 2006), nous avons choisi, pour les autres essais avec les billes de verre (essais 2 à 8), de fixer les valeurs κ et γ à 1,805 et 0,83 respectivement et de minimiser la SCE en faisant varier uniquement β_0 dans l'intervalle $[1,01 ; 20,01] \cdot 10^{-12}$ par pas de $0,1 \cdot 10^{-12}$ (191 valeurs).

Les valeurs obtenues pour β_0 et la SCE minimale correspondante sont données dans le tableau 3.4.6. Dans tous les cas, les valeurs de SCE faibles ($< 0,65$) montrent qu'il y a une bonne corrélation entre les distributions de taille théoriques calculées par le modèle aux différents temps et les distributions expérimentales.

Tableau 3.4.6. Coefficient β_0 de la fonction d'agglomération et valeur de la SCE entre distributions théoriques données par le modèle et données expérimentales pour l'agglomération des billes de verre en pulvérisant un solution de gomme d'acacia.

| Essai | Condition opératoire | $\beta_0 \times 10^{-12}$ | SCE |
|--------------------|--|---------------------------|--------|
| Référence : | | | |
| 1 | 5,33 ml/min, 1 bar, 70°C, 20% w/w, 500 g BV | 9,71 | 0,2459 |
| 2 | $Q_L = 2,65$ ml/min | 4,01 | 0,3434 |
| 3 | $Q_L = 7,75$ ml/min | 17,41 | 0,2702 |
| 4 | $P = 2$ bar | 14,11 | 0,6309 |
| 5 | $P = 3$ bar | 4,71 | 0,6255 |
| 6 | $T = 80^\circ\text{C}$ | 10,91 | 0,3801 |
| 7 | $C_L = 30$ % w/w | 16,71 | 0,4130 |
| 8 | $Ch = 750$ g | 4,31 | 0,4253 |

Les valeurs de SCE les plus élevées ($> 0,6$) ont été obtenues pour les essais 4 et 5 dans lesquels on a augmenté la pression de l'air de pulvérisation à 2 et 3 bars respectivement. Pour ces deux essais, nous avons relancé le programme de minimisation de la SCE en faisant varier les trois paramètres (β_0 , κ et γ) sur les mêmes intervalles que pour l'essai de référence (48705 combinaisons – tableau 5). Aucune des nouvelles combinaisons testées n'a conduit à une diminution significative de la SCE (Figure 4.12). Pour les essais considérés cela confirme que les valeurs de κ et γ sont indépendantes des conditions de fonctionnement et restent constantes pour tous les essais avec les billes de verre ($\kappa = 1,805$ et $\gamma = 0,83$ – essais 1 à 8).

Dans le cas des essais 4 et 5 l'écart entre distributions calculées et expérimentales peut être attribué au fait que, avec des pressions de pulvérisation plus élevées, les gouttes de liant pulvérisées étaient plus petites et ont conduit à des agglomérats fragiles se cassant facilement sous l'effet de l'agitation et conduisant à des distributions de taille bimodales. Or, de par la forme de la fonction d'agglomération $\beta(u,v)$ choisie, le modèle ne permet pas de simuler des distributions de taille bimodales. Il fait seulement apparaître des distributions de plus en plus larges à mesure que les agglomérats grossissent (t augmente). Ainsi, on peut noter (Figure 4.13) que les distributions calculées rendent tout de même bien compte de l'étalement des distributions expérimentales.

4.3. Validation du modèle

4.3.1. Représentation des résultats expérimentaux par le modèle

Représentation des distributions de taille

Comme nous l'avons vu à la figure 4.8 pour l'essai 1 (référence), il y a une bonne adéquation entre les distributions de taille théoriques et expérimentales pendant la phase de croissance. Pendant la phase d'initiation ($t < 1200$ s), les distributions calculées se décalent un petit peu trop rapidement vers les grandes tailles (croissance simulée trop rapide) et sont plus étalées que les distributions théoriques. Ceci est dû au fait que le modèle ne simule pas cette phase où il y a essentiellement dépôt du liant à la surface des particules. Ceci est confirmé par les courbes de la figure 4.14 qui comparent l'évolution théorique du diamètre médian en fonction du temps à l'évolution obtenue expérimentalement. On peut observer que la phase de croissance est bien simulée pour tous les essais sauf pour l'essai 5 ($P = 3$ bar) et pour l'essai 8 ($Ch = 750$ g).

En termes d'étalement de la distribution, les données du tableau 7 montrent que le modèle simule bien les distributions à la fin de la phase de croissance, mais pour les essais où celle-ci a été suivie d'une phase d'équilibre (non prise en compte par le modèle), l'écart en distribution théorique et distribution expérimentale à la fin de la pulvérisation est plus grand. Si on compare l'évolution du diamètre médian simulé par le modèle avec les données expérimentales pendant le temps de pulvérisation, on observe (Figure 4.15) que le modèle surestime la taille de particules après la phase de croissance. Le terme de rupture pourrait être ajouté dans le modèle pour considérer la décroissance des particules pendant la phase d'équilibre, qui suit la phase de croissance.

Tableau 7. d_{50} , d_{10} et d_{90} calculés et expérimentaux à la fin de la phase de croissance et à la fin de la pulvérisation pour les essais 1 à 8.

| A la fin de la phase de croissance | | | | | | | |
|------------------------------------|----------------|------------------------------------|-------------------------------------|------------------------------------|-------------------------------------|------------------------------------|-------------------------------------|
| Essai | Temps (min) | d_{10} exp. (μm) | d_{10} calc. (μm) | d_{50} exp. (μm) | d_{50} calc. (μm) | d_{90} exp. (μm) | d_{90} calc. (μm) |
| 1 | 90 | 1315 | 1531 | 823 | 794 | 456 | 368 |
| 2 | 160 | 680 | 558 | 414 | 332 | 172 | 189 |
| 3 | 70 | 1578 | 2020 | 1090 | 1057 | 618 | 481 |
| 4 | 70 | 840 | 937 | 592 | 512 | 365 | 258 |
| 5 | 70 | 673 | 548 | 508 | 327 | 185 | 191 |
| 6 | 70 | 953 | 885 | 650 | 490 | 421 | 249 |
| 7 | 60 | 1381 | 1776 | 976 | 928 | 423 | 424 |
| 8 | 120 | 1056 | 1055 | 726 | 561 | 362 | 277 |

| A la fin de la pulvérisation | | | | | | | |
|------------------------------|----------------|------------------------------------|-------------------------------------|------------------------------------|-------------------------------------|------------------------------------|-------------------------------------|
| Essai | Temps (min) | d_{10} exp. (μm) | d_{10} calc. (μm) | d_{50} exp. (μm) | d_{50} calc. (μm) | d_{90} exp. (μm) | d_{90} calc. (μm) |
| 1 | 150 | 1090 | 2551 | 799 | 1636 | 174 | 749 |
| 2 | 185 | 703 | 588 | 381 | 344 | 170 | 194 |
| 3 | 100 | 2029 | 2624 | 1181 | 1840 | 669 | 879 |
| 4 | 85 | 850 | 1262 | 534 | 660 | 217 | 313 |
| 5 | 85 | 598 | 672 | 405 | 383 | 166 | 207 |
| 6 | 85 | 838 | 1172 | 546 | 624 | 247 | 299 |
| 7 | 85 | 1397 | 2489 | 913 | 1520 | 437 | 690 |
| 8 | 120 | 1056 | 1055 | 726 | 561 | 362 | 277 |

Relation entre β_0 et la vitesse de croissance r

Afin de vérifier que les valeurs de β_0 données par le modèle ont un sens physique, nous les avons comparées aux valeurs de la vitesse de croissance r pendant la phase de croissance obtenues expérimentalement (tableau 3.2). La figure 4.16 montre que, hormis pour les essais 4 et 5 mal représentés par le modèle, il y a une très bonne corrélation entre ces deux paramètres, confirmant le sens physique de β_0 . Une relation entre β_0 et le diamètre médian maximal des agglomérats atteint à la fin de l'étape de pulvérisation a également pu être mise en évidence (figure 4.17). Elle représente que la croissance des agglomérats est d'autant plus importante qu'elle est rapide.

Relation entre β_0 et les paramètres opératoires

Comme nous l'avons vu lors de l'identification des paramètres β_0 , κ et γ du modèle, seul β_0 est fonction des paramètres opératoires (débit de liant Q_L , température de l'air de fluidisation T , pression relative de l'air de pulvérisation P et charge initiale M_0). κ et γ dépendent, eux, uniquement de la géométrie de la cuve. Les essais réalisés avec les billes de verre en pulvérisant une solution de gomme d'acacia ont permis de montrer que :

- β_0 dépend fortement du débit de la solution de liant pulvérisée avec une augmentation quasiment linéaire de β_0 en fonction de Q_L dans le domaine étudié (figure 4.18). Ceci se traduit par une augmentation d'autant plus rapide de la taille des agglomérats et des distributions de taille d'autant plus décalées vers les grandes tailles que Q_L est élevé (figure 4.19).

- b) β_0 dépend peu de la température de l'air de fluidisation. Ce paramètre a surtout une influence sur le volume de la zone de mouillage ($\alpha = V_m/V_{lf}$) qui passe de 29% à 22% du volume du lit fluidisé lorsque T passe de 70 à 80°C, mais il a peu d'influence sur la façon dont les particules s'agglomèrent (figure 4.20).
- c) β_0 dépend de la charge de particules initiales puisque lorsque celle-ci est augmentée de 50% (500 → 750 g), β_0 diminue dans la même proportion (9,71 → 4,31.10⁻¹² m^{2.565}.s⁻¹). La charge de particules initiales intervient également sur la valeur des débits d'échange entre les deux zones Q_s et Q_h (qui augmentent lorsque la charge augmente) et sur le volume de la zone active de mouillage (α diminue lorsque M_0 augmente). L'augmentation de la charge de particules initiales entraîne une diminution de la croissance des agglomérats (figure 4.21).
- d) β_0 dépend fortement de la concentration de la solution de liant pulvérisée puisque lorsque celle-ci passe de 20 à 30% en masse, β_0 passe de 9,71 à 16,71.10⁻¹² m^{2.565}.s⁻¹. L'augmentation de la concentration de la solution de liant entraîne également une augmentation de la vitesse de croissance par dépôt G. Ceci se traduit par une augmentation de la croissance des agglomérats lorsque C_L augmente (figure 4.22).
- e) β_0 dépend fortement de la pression relative de l'air de pulvérisation. Même si le modèle ne permet pas de simuler les distributions bimodales obtenues avec des pressions supérieures à 1 bar, nous avons vu qu'il donne une bonne idée de l'étalement de la distribution.

4.3.2. Simulation de l'agglomération des particules de maltodextrine

Les résultats obtenus avec les billes de verre montrent que les paramètres κ et γ restent inchangés dans un même équipement ($\kappa = 1,805$ et $\gamma = 0,83$). Par contre, le paramètre β_0 de la fonction d'agglomération dépend des conditions opératoires.

Comme le mécanisme d'agglomération est différent pour les particules solubles -cas de la maltodextrine en pulvérisant de l'eau- par rapport aux particules insolubles -cas des billes de verre en pulvérisant une solution- quelques modifications sont apportées au modèle :

- a) Le terme de croissance des particules par dépôt est égal à zero ;
- b) La masse de particules (M_t) est constante.

Détermination de β_0 pour l'essai 10 de référence

D'après les résultats précédents, il est en théorie possible d'estimer la valeur de β_0 à partir de la valeur de la vitesse de croissance r . Dans les conditions de référence, la vitesse de croissance obtenue avec les billes de verre est de 8,2 $\mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ (essai 1), avec la maltodextrine elle est de 40,5 $\mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ (essai 10). Compte tenu de la relation mise en évidence entre β_0 et r (Figure 4.16), on peut s'attendre, pour l'essai 10 avec la maltodextrine, à une valeur de β_0 de l'ordre de 48.10⁻¹² m^{2.565}.s⁻¹ (40,5 x 1,1879.10⁻¹²). Avec cette valeur de β_0 et les conditions opératoires correspondant à l'essai 10, le modèle donne des distributions de taille calculées proches des résultats expérimentaux (SCE = 0,2506) (Figure 4.23), ce qui confirme que la relation entre β_0 et r est applicable quelles que soient les particules agglomérées (solubles ou non).

Contrairement aux billes de verre, dans le cas des particules de maltodextrine il n'y a pas de phase d'initiation et les distributions de taille calculées permettent de simuler l'étape de pulvérisation.

Simulation de l'essai 11

Nous avons vu, dans le cas des billes de verre, que β_0 augmente linéairement avec le débit de liquide pulvérisé. A partir de la valeur de β_0 dans les conditions de référence avec un débit de $5,33 \text{ ml}\cdot\text{min}^{-1}$ (essai 10), il est donc possible d'estimer la valeur théorique de β_0 dans les mêmes conditions mais avec un débit de pulvérisation de $2,65 \text{ ml}\cdot\text{min}^{-1}$ (essai 11) :

$$\beta_0/\beta_{\text{ref}} = 0,213 \times Q_L \quad (\text{Eq. 3.37})$$

Donc pour l'essai 11, $\beta_0 = 0,213 \times 2,65 \times 48 \cdot 10^{-12} = 27,1 \cdot 10^{-12} \text{ m}^{2,565} \cdot \text{s}^{-1}$.

Les courbes de la figure 4.24 montrent que les distributions de taille calculées avec cette valeur de β_0 sont en accord (SCE = 0,1265) avec les distributions de taille expérimentales.

4.4. Conclusion

Le modèle proposé pour décrire l'évolution des distributions de taille des particules pendant l'étape de pulvérisation en utilisant des bilans de population simule bien l'agglomération des particules dans le lit fluidisé conique divisé en deux régions (réacteurs A et B).

Ce modèle fait intervenir trois paramètres β_0 , κ et γ qui sont les coefficients de la fonction d'agglomération $\beta(u,v)$. Nous avons choisi, pour cette fonction, une forme du type « collision non aléatoire » (non-random coalescence), généralement appliquée pour la croissance des particules par agglomération.

Il existe une bonne corrélation entre les valeurs calculées par le modèle et les données expérimentales pour les cinétiques d'évolution des distributions de taille, sauf pour les essais correspondant aux pressions d'air de pulvérisation de 2 et 3 bar. Pour ces essais les distributions de taille expérimentales deviennent bimodales du fait de la formation d'agglomérats fragiles. Le modèle ne prenant pas en compte le phénomène de rupture, il ne simule pas l'apparition de distributions bimodales mais donne tout de même une idée de l'étalement des distributions obtenues.

Dans les cas des billes de verre non solubles, une phase d'initiation a été observée pendant les premières minutes de la pulvérisation. Au cours de cette phase, il y a seulement dépôt du liant à la surface des particules sans agglomération. Le modèle ne prend pas en compte cette phase. Il simule uniquement la phase de croissance qui suit. Ceci entraîne, pendant les premières minutes de pulvérisation ($t = 20 \text{ min}$), une surestimation des distributions de taille par le modèle, mais après 20 min et jusqu'à 90 min, la simulation du modèle est bonne. Dans le cas des particules de maltodextrine solubles, la phase d'initiation n'a pas été observée et la croissance commence dès le début de la pulvérisation comme le prévoit le modèle. L'accord entre distributions théoriques et expérimentales est donc satisfaisant dès les premières minutes de la simulation. Que ce soit pour les billes de verre ou les particules de maltodextrine, on a observé expérimentalement, pour certains essais l'arrêt de la croissance à la fin de l'étape de pulvérisation. Le modèle ne simulant pas la rupture, cette phase est mal représentée.

L'identification des paramètres β_0 , κ et γ à partir des résultats expérimentaux pour les billes de verre conduit, dans le cas de notre installation, à des valeurs de κ et γ :

$$\kappa = 1,805$$

et $\gamma = 0,83$

β_0 dépend des conditions opératoires : débit de la solution de liant, charge initiale des particules, pression de pulvérisation. Nous avons pu mettre en évidence une relation linéaire entre β_0 et r , la vitesse de croissance pendant la phase de croissance obtenue à partir de l'évolution du diamètre médian au cours du temps.

CONCLUSION

Les résultats de cette étude complètent les connaissances théoriques et expérimentales relatives à l'agglomération de particules en lit fluidisé. Ils permettent une meilleure maîtrise du procédé dans l'appareil de taille pilote utilisé avec l'identification des paramètres opératoires clés et la quantification de leur impact sur la croissance et les propriétés des agglomérats.

Les principales étapes du procédé identifiées et qui doivent être maîtrisées, sont :

- la pulvérisation du liquide (solvant ou solution de liant) en gouttes dont la taille et la distribution de taille dépendent des paramètres de pulvérisation (débit et viscosité du liquide, pression relative de l'air).

- la fluidisation des particules solides, qui est fonction de leurs propriétés (taille, masse volumique) et de leur charge, de la géométrie de la cuve et du débit d'air de fluidisation. Elle permet la mise en contact des particules et du liquide pulvérisé et les collisions entre particules indispensables à la formation des ponts pour la croissance progressive des agglomérats.

- les échanges de matière et de chaleur au sein du lit fluidisé de particules. Ils déterminent la fraction de particules mouillées par le liquide pulvérisé et le séchage qui permet la consolidation des ponts formés en évitant la prise en masse du lit.

Pour leur caractérisation, différentes mesures sur les liquides utilisés et les poudres avant et après agglomération ont été mises en place, et le pilote d'agglomération a été instrumenté pour l'acquisition/la mesure de données pendant le procédé : débit d'air de fluidisation, masse de liquide pulvérisé, températures de l'air de fluidisation en entrée, en sortie et au sein du lit.

L'étude spécifique de la pulvérisation avec la buse bi-fluide utilisée a permis la caractérisation détaillée du jet de liquide en fonction des paramètres de pulvérisation (débit et viscosité du liquide, pression relative de l'air, réglage de la buse). Celui-ci a la forme d'un cône plein, homogène, dont l'angle (20-40°) diminue lorsque la pression relative de l'air augmente (1-3 bars) réduisant ainsi la surface du lit mouillée par le jet. La taille (15 à 100 µm) et la distribution de taille des gouttes de liquide, qui doivent être en rapport avec la taille des particules à agglomérer, dépendent essentiellement de la pression de l'air de pulvérisation et de la viscosité du liquide.

La mesure de la température de l'air en différents points du lit fluidisé de billes de verre sur lequel était pulvérisée de l'eau, a permis l'identification de trois zones dans le lit dans lesquelles les transferts de matière et de chaleur sont différents. Le volume de la "zone active de mouillage" où les particules sont touchées par le jet de liquide pulvérisé et où les conditions (température faible, humidité élevée) sont favorables à l'agglomération a pu être estimé pour différentes conditions opératoires (débit de liquide, pression relative de l'air de pulvérisation, charge de particules, température d'entrée de l'air de fluidisation). La température de l'air mesurée dans la "zone isotherme" est caractéristique de l'essai réalisé et des conditions de séchage. Elle peut être utilisée lors des essais d'agglomération pour le diagnostic d'éventuels dysfonctionnements (prise en masse du lit, colmatage des filtres ou de la buse...).

Des essais d'agglomération réalisés avec d'une part, des billes de verre en pulvérisant des solutions de gomme d'acacia (20 – 30 % en masse) et d'autre part, des particules de maltodextrine de forme irrégulière et solubles dans l'eau en pulvérisant de l'eau et des solutions de gomme d'acacia et de maltodextrine (20 % en masse) ont permis de confirmer le lien entre le volume de la zone active de mouillage et le mécanisme de croissance.

L'agglomération contrôlée des particules est obtenue seulement dans des conditions où cette zone occupe 18 à 30 % du volume total du lit. En dehors de ces limites il y a risque de colmatage du lit ou grossissement par enrobage. Outre l'influence des paramètres opératoires cités plus haut, ces essais ont également permis de mettre en évidence les différences de comportement entre les particules solubles (maltodextrine) et non solubles (billes de verre). Alors que dans le premier cas, l'agglomération peut être réalisée sans modification de la composition de la poudre (pulvérisation de solvant éliminé par séchage), dans le cas des particules non solubles, l'utilisation d'un liant est indispensable pour la formation des ponts solides. Ceci se traduit par des cinétiques de croissance d'allure différente. Alors que pour les particules solubles la croissance commence dès le début de la pulvérisation, dans le cas des billes de verre, elle est précédée d'une phase d'initiation plus ou moins longue pendant laquelle il y a dépôt de liant à la surface des particules pour la rendre collante. Cette phase supplémentaire augmente d'autant la durée et donc le coût de l'opération. Dans les deux cas la croissance s'arrête lorsqu'une taille maximale est atteinte. Celle-ci est fonction de la nature des particules et du liant et des conditions opératoires. Elle est plus élevée pour les particules de maltodextrine que pour les billes de verre et diminue lorsque le débit de liant pulvérisé diminue (diminution du débit de pulvérisation et/ou de la concentration de la solution) ou lorsque les gouttes pulvérisées sont plus petites. Pour les billes de verre, la prolongation de la pulvérisation pendant cette phase d'équilibre n'a pas apporté de modification significative des propriétés des agglomérats obtenus. Il semble donc plus judicieux, d'un point de vue économique de stopper la pulvérisation dès la fin de la phase de croissance (diminution de la durée et de la quantité de liant).

L'étude de l'impact de l'étape de séchage/refroidissement, qui suit l'agglomération, sur la distribution de taille des agglomérats obtenus a mis en évidence, dans tous les cas, la destruction partielle des plus gros agglomérats avec une diminution de 20 % minimum du diamètre médian et dans certains cas, l'apparition de fines. Cette étape est donc un point clé du procédé qui doit être pris en considération au même titre que la croissance.

La caractérisation des propriétés des poudres (masses volumiques, écoulement, mouillabilité) a montré que celles-ci dépendent peu des paramètres opératoires. Elles sont surtout fonction des particules et liants utilisés et de la taille des agglomérats. Plus les agglomérats sont gros, plus leur forme est irrégulière et plus leur résistance mécanique est élevée. Dans le cas des particules de maltodextrine, l'agglomération permet d'améliorer leur coulabilité et leur mouillabilité.

Le modèle proposé basé sur les bilans de population, considère deux zones dans le lit fluidisé définies à partir des "zones thermiques" identifiées, la croissance par agglomération ne se produisant que dans la zone mouillée par le jet de liquide pulvérisé. Il fait intervenir trois paramètres, liés à la "fonction d'agglomération" : deux sont fixés pour un appareil donné et le troisième est corrélé aux paramètres opératoires. Ils sont identifiés à partir des résultats des essais réalisés avec les billes de verre et le modèle est validé avec d'autres essais en particulier ceux pour l'agglomération de maltodextrine. Ce modèle permet de simuler de façon satisfaisante l'évolution de la distribution de taille au cours de la pulvérisation. Il constitue un outil pour le choix des conditions opératoires optimales (durée de l'opération, quantité de liant) permettant d'obtenir des agglomérats de taille donnée.

Ce travail sur l'agglomération a montré l'importance de l'étape de séchage/refroidissement qui pourrait être optimisée pour endommager au minimum les agglomérats formés (diminution durée, contraintes mécaniques). Les résultats obtenus, à l'échelle pilote, sur une installation donnée avec des particules données et en mode discontinu doivent être étendus à d'autres installations, d'autres particules et extrapolés à l'échelle

industrielle. Le modèle proposé présente l'avantage d'être facilement extrapolable, mais peut être complété en envisageant d'autres formes de la fonction d'agglomération et en prenant en compte la rupture pour mieux simuler l'arrêt de croissance observé. Des corrélations entre les paramètres du modèle et les conditions opératoires pourraient également être établies.

NOMENCLATURE

| | | |
|---------------------------------|---|--------------------|
| A' | Débit surfacique de solide dans la zone de pulvérisation | $m^2.s^{-1}$ |
| Ar | Nombre d'Archimède | - |
| b(u,v) | Fonction de rupture (PBE) | |
| B | Vitesse de croissance par dépôt | $m.s^{-1}$ |
| c | Coefficient de restitution de collision (gouttes-particules) | - |
| C | Circularité (descripteur de forme par analyse d'image) | - |
| Ca | Nombre de capillarité | - |
| Ch | Charge des particules | kg, g |
| C _L | Concentration de liant en masse | % w/w |
| C(v), C(v,t) | Vitesse d'apparition d'une particule v par rupture d'une particule u (PBE) | |
| d _{3,2} | Diamètre de Sauter | $\mu m, mm$ |
| d _{4,3} | Diamètre moyen du volume équivalent | μm |
| d ₅₀ | Diamètre médian | $\mu m, m$ |
| $\bar{d}, \bar{d}_n, \bar{d}_m$ | Diamètre moyen d'une particule, en nombre (n) ou en masse (m) | $\mu m, m$ |
| d _b | Diamètre des bulles du lit fluidisé | cm |
| df | Diamètre correspondant au mode dans un histogramme de distribution de taille | m |
| d _g | Diamètre d'une goutte | m, μm |
| d _p | Diamètre d'une particule | m |
| d _v | Diamètre d'une sphère équivalente de même volume V _p | m |
| d _s | Diamètre d'une sphère équivalente de même surface S _p | m |
| D | Diamètre moyen d'une tache colorée par le jet de pulvérisation | cm |
| D ₀ | Diamètre inférieur du lit fluidisé conique | m |
| D ₁ | Diamètre supérieur du lit fluidisé conique | m |
| D _a , D _L | Diamètres de passage de l'air/liquide dans une buse bi-fluide | m |
| D _{eq} | Diamètre équivalent | μm |
| Dfmax, Dfmin | Diamètre de Féret maximal ou minimal de la particule | μm |
| D(v), D(v,t) | Vitesse de disparition des particules par rupture (PBE) | |
| e | Épaisseur du film de liquide à la surface d'une particule | m |
| E _{ij} | Fraction de chocs non-élastiques entre les particules de la classe i et j | - |
| E(v), E(v,t) | Vitesse de disparition des particules par agrégation (PBE) | |
| f | Fraction de vide des agglomérats occupée par la solution | - |
| F | Elongation (descripteur de forme par analyse d'image) | - |
| | | |
| F _{pl} | Force toroïdale du pont liquide | $N = kg.m.s^{-2}$ |
| F(v), F(v,t) | Vitesse d'apparition des particules par agrégation (PBE) | |
| g | Accélération de la pesanteur | $9,81 m.s^{-2}$ |
| G | Vitesse de croissance par dépôt en volume | $m^3.s^{-1}$ |
| Ga | Rapport Ma/Sa pour le calcul de la taille de gouttes | $lb.min^{-1}.ft^2$ |
| G _{ij} | Cinétique d'agglomération des particules de la classe i et j | s^{-1} |
| h | Quantité d'adhésion | - |
| h _b | Distance entre le haut du lit fluidisé et la buse de pulvérisation | cm |
| H | Hauteur du lit fixe des particules | m |
| H' | Distance entre la grille de distribution de l'air et la zone de mouillage ($H' = H_{if} - H_m$) | m |
| Ha | Hauteur du lit fluidisé pour une section du lit fluidisé donnée | m |
| H _{if} | Hauteur du lit fluidisé | m |
| H _m | Profondeur de pénétration du jet de pulvérisation | cm |
| k | Rapport entre la fraction de volume vide et le volume solide de l'agglomérat | - |
| K _{ij} | Fréquence de collisions entre les particules de la classe i et j | s^{-1} |
| L | Taille caractéristique des particules | m |
| m _i | Masse des particules dans la classe i | kg |
| M _L | Débit massique du liquide de pulvérisation | $lb.min^{-1}$ |
| M _a | Débit massique de l'air de pulvérisation | $lb.min^{-1}$ |
| M _o | Masse initiale des particules | kg |
| M _p | Masse des particules | kg |
| n _i | Nombre des particules dans la classe i | - |
| np | Nombre de particules | - |
| N _A , N _B | Nombre des particules dans le réacteur A et dans le réacteur B | - |

| | | |
|-------------------|---|----------------------------|
| N_T | Nombre total des particules dans le lit fluidisé | np |
| P | Pression de l'air de pulvérisation | bar |
| P_p | Périmètre de la particule | m |
| Q_a | Débit volumique de l'air | $m^3.s^{-1}$ |
| $Q_{entrée}$ | Débit volumique des particules entrant dans le réacteur de volume V | $m^3.s^{-1}$ |
| Q_h | Débit volumique des particules entrant dans le réacteur B | $m^3.s^{-1}$ |
| Q_L | Débit volumique de liquide | $m^3.s^{-1}$ |
| Q'_L | Débit massique de solution pulvérisée | $kg.s^{-1}$ |
| Q_s | Débit volumique des particules entrant dans le réacteur A | $m^3.s^{-1}$ |
| Q_{sortie} | Débit volumique des particules sortant du réacteur de volume V | $m^3.s^{-1}$ |
| R_1, R_2 | Rayon des menisques d'un pont liquide | m |
| r^*a | Vitesse de croissance par agglomération | $np.(np.m.s)^{-1}$ |
| r | Vitesse de croissance de taille | $\mu m.min^{-1}$ |
| R | Roundness (descripteur de forme par analyse d'image) | - |
| Re_g | Nombre de Reynolds-gouttes | - |
| Re_{mf} | Nombre de Reynolds à vitesse minimale de fluidisation | - |
| Re_p | Nombre de Reynolds-particules | - |
| r_u | Rugosité de la particule | m |
| r_o | Rayon inférieur du lit fluidisé conique | m |
| r_p | Rayon d'une particule | m |
| s | Espace adimensionnel dans un agglomérat | - |
| S | Surface mouillée du lit fluidisé | cm^2 |
| S_a | Surface de la section de passage de l'air dans une buse bi-fluide | in^2 |
| Sat, Sat_{crit} | Saturation/ saturation critique de liquide dans l'agglomérat | - |
| S_{Ha} | Section de passage de l'air dans un lit fluidisé conique | m^2 |
| S_p | Surface équivalente des particules | m^2 |
| S_{pm} | Surface des particules mouillées | m^2 |
| S_{pt} | Surface totale des particules | m^2 |
| Stk, Stk^* | Nombre de Stokes/ nombre de Stokes critique | - |
| $S(u)$ | Constante de vitesse de rupture (PBE) | - |
| t | Temps | s |
| tc | Temps de circulation des particules | s |
| T | Température de consigne de l'air de fluidisation | $^{\circ}C$ |
| Tb | Température mesurée lors des essais billes de verre-eau | $^{\circ}C$ |
| Tc | Température de collage | $^{\circ}C$ |
| Tg | Température de transition vitreuse | $^{\circ}C$ |
| T_{if} | Température moyenne du lit fluidisé | $^{\circ}C$ |
| U_a | Vitesse du gaz de fluidisation | $m.s^{-1}$ |
| U_b | Vitesse des bulles de gaz dans le lit fluidisé | $m.s^{-1}, cm.s^{-1}$ |
| U_c | Vitesse critique des particules | $m.s^{-1}$ |
| U_{mf} | Vitesse minimale de fluidisation | $m.s^{-1}$ |
| U_{mfp} | Vitesse minimale de fluidisation partielle du gaz dans un lit conique | $m.s^{-1}, ft.s^{-1}$ |
| U_o | Vitesse relative de collision entre particules | $m.s^{-1}$ |
| U_p | Vitesse des particules | $m.s^{-1}$ |
| U_r | Vitesse relative de l'air de pulvérisation | $m.s^{-1}$ |
| U_t | Vitesse terminale de chute des particules | $m.s^{-1}$ |
| v | Volume d'une particule | m^3 |
| V | Volume du réacteur | m^3 |
| V_A, V_B | Volume du réacteur A et du réacteur B | m^3 |
| V_{if} | Volume du lit fluidisé | m^3 |
| V_m | Volume de la zone de mouillage | m^3 |
| V_p | Volume d'une sphère équivalente | m^3 |
| w^* | Volume critique des granules | $m^3, \mu m^3$ |
| w_i | Fraction massique des particules dans la classe i | - |
| X_{eau} | Teneur en eau | kg eau/kg de matière sèche |

| | | |
|----------|--|-------------------------|
| X_{GA} | Teneur en gomme d'acacia sur les billes de verre | g/100 g billes de verre |
| Y | Rapport du volume de la solution liant à la quantité initiale des particules | - |

| | | |
|---------------------|---|--|
| Δm | Masse de liquide à la surface des particules | kg |
| ΔP | Perte de charge du lit fluidisé | Pa = kg/(m . s ²) |
| ΔP_c | Différence de pression capillaire d'un pont liquide | N |
| Ψ | Densité de population dans le système, distribution continue des particules | np.(np. m) ⁻¹ |
| Ψ^A, Ψ^B | Densité de population dans le réacteur A et dans le réacteur B | np.(np. m) ⁻¹ |
| Ψ_a | Flux de liquide adimensionnel | - |
| α | Fraction du volume du lit fluidisé occupée par la zone de mouillage | - |
| β | Fonction d'agglomération, vitesse par agrégation (PBE) | m ³ .nb ⁻¹ .s ⁻¹ |
| δ | Delta Dirac | - |
| ε | Porosité du lit fixe des particules | - |
| ε_a | Porosité de l'agglomérat | - |
| ε_{mf} | Porosité du lit de particules à vitesse minimale de fluidisation | - |
| ε_{int} | Porosité fermée d'un agglomérat, intraparticulaire | - |
| Φ_i | Densité de population des particules sous forme discrète | np.m ³ |
| η_c | Quantité des collisions | - |
| φ | Mouillage des particules | - |
| Λ | Fraction volumique du lit fluidisé affectée par la pulvérisation | % |
| μ_a | Viscosité dynamique de l'air | Pa . s = kg/(m . s) |
| μ_L | Viscosité du liquide | Pa . s = kg.(m . s) ⁻¹ |
| θ | Angle du jet | ° |
| ρ_a | Masse volumique de l'air | kg.m ⁻³ |
| ρ_{app} | Masse volumique apparente d'un agglomérat | kg.m ⁻³ |
| ρ_L | Masse volumique du liquide | kg.m ⁻³ , lb.ft ⁻³ , g.cm ³ |
| ρ_{liant} | Masse volumique vraie du liant (matière sèche) | kg.m ⁻³ |
| ρ_p | Masse volumique des particules | kg.m ⁻³ |
| ρ_t | Masse volumique tassée d'un lit des particules | kg.m ⁻³ |
| ρ_v | Masse volumique vrac d'un lit des particules | kg.m ⁻³ |
| ρ_{vraie} | Masse volumique vraie | kg.m ⁻³ |
| σ_L | Tension superficielle (liquide-vapeur) | N.m ⁻¹ , dyne.cm ⁻¹ |
| τ | Contrainte tangentielle d'un fluide | Pa |
| ω | Angle de contact goutte-particule | ° |
| ω_s | Angle de contact goutte-surface (mesure de mouillabilité) | ° |

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Adetayo A.A., Lister J.D., Pratsinis S.E. et Ennis B.J. (1995). Population balance modeling of drum granulation of materials with wide size distribution. *Powder Technol.* **82**, 37-49.
- Adetayo A.A. et Ennis B.J. (2000). A new approach to modeling granulation processes for simulation and control purposes. *Powder Technol.* **108**, 202-209.
- Aulton M.E. et Banks M. (1981). Fluidised bed granulation- factors influencing the quality of the product. *Int. J. Pharm. Tech. Prod. Mfr.* **2**(4), 24-29.
- Becher R. et Schlünder E. (1997). Fluidized bed granulation : gas flow, particle motion and moisture distribution. *Chem. Eng. Process.* **36**, 261-269.
- Becher R. et Schlünder E. (1998). Fluidized bed granulation – the importance of a drying zone for the particle growth mechanism. *Chem. Eng. Process.* **37**, 1-6.
- Bemrose C.R. et Dridwater J. (1987). A review of attrition and attrition test methods. *Powder Technol.* **49**, 97-126.
- Boerefijn R. et Hounslow M.J. (2005). Studies of fluid bed granulation in an industrial RD context. *Chem. Eng. Sci.* **60**, 3879-3890.
- Bimbenet J., Duquenoy A. et Trystram G. (2002). *Opérations mécaniques sur les solides divisés*. Dunod, Paris, 564p.
- Castel B. (1995). Mise en forme des solides. In : *Techniques de l'ingénieur*. Paris. **J3380**, 1-26.
- Caiyuan Y., Tao Q. et Xizhong W. (2002). Heat and mass transfer for process of fluidized-bed spray granulation. *Drying 2002*. Proceedings of the 13th International Drying Symposium (China, 27-30 August). **A**, 688-695.
- Cherif R. (1994). Contribution à l'étude de l'enrobage des particules solides en lit fluidisé. Thèse Génie de Procédés. INP, Toulouse.
- Cryer S.A. (1999). Modeling agglomeration processes in fluid-bed granulation. *AIChE Journal.* **45**(10), 2069-2078.
- Dencs B. et Ormos Z. (1982). Particle formation from solution in a gas fluidized bed. II. *Powder Technol.* **31**, 93-99.
- Dewettinck K., Deroo L., Messens W. et Huyghebaert A. (1998). Agglomeration tendency during top-spray fluidized bed coating with gums. *Lebensm. Wiss. u. Technol.* **31**, 576-584.
- Dewettinck K., Visscher A., Deroo L. et Huyghebaert A. (1999). Modeling the steady-state thermodynamic operation point of top-spray fluidized bed processing. *J. Food Eng.* **39**, 131-143.
- Dueñas M., Ausland G., Fjeld, M. et Lie B. (2002). Simulation of a hydrometallurgical leaching reactor modeled as a DAE system. *Modelling, Identification and Control.* **23**(2), 93-116.
- Dumon R. (1981). *Les applications industrielles des lits fluidisés*. Masson, Paris. 162p.
- Ennis B.J., Tardos G.T. et Pfeffer R. (1991). A microlevel-based characterization of granulation phenomena. *Powder Technol.* **65**, 257-272.
- Filková I. et Cedik P. (1984). Nozzle atomization in spray drying. In : *Advances in drying*. Eds. Mujumdar A.S. Hemisphere Publishing Co. London. **3**, 204-215.

- Filková I. et Mujumdar A.S. (1995). Industrial spray drying. In : *Handbook of Industrial Drying*. 2ème Ed. Mujumdar A.S. Marcel Dekker Inc. New York. **1**, 263-307.
- Geldart D. (1973). Types of gas fluidization. *Powder Technol.* **7**, 285-292.
- Goldschmidt M.J.V., Weijers G.G.C., Boerefijn R. et Kuipers J.A.M. (2003). Discrete element modeling of fluidized bed spray granulation. *Powder Technol.* **138**, 39-45.
- Golovin A.M. (1963). The solution of the coagulation equation for raindrops, taking condensation into account. *Soviet Physics-Doklady.* **8**, 191-193.
- Gretzinger J. et Marshall W.R. (1961). In : *Spray Drying*. Ed. Masters K. (1976). 2ème Ed. John Wiley Sons, New York, 206-230.
- Grogër T., Tüzün U., et Heyes D.M. (2003). Modelling and measuring of cohesion in wet granular materials. *Powder Technol.* **133**, 203-215.
- Guignon B. (2001). *L'enrobage de solides divisés en réacteur à lit fluide*. Thèse Génie des Procédés. ENSIA, Massy. 136p.
- Hapgood K.P., Lister J.D., White E.T., Mort P.R. et Jones D.G. (2004). Dimensionless spray flux in wet granulation: Monte Carlo simulations and experimental validation. *Powder Technol.* **141**, 20-30.
- Heinrich S. et Mörl L. (1999a). Description of the temperature, humidity and concentration distribution in gas-liquid-solid fluidized beds. *Int. J. Therm. Sci.* **38**, 142-147.
- Heinrich S. et Mörl L. (1999b). Fluidized bed spray granulation- A new model for the description of particle wetting and of temperature and concentration distribution. *Chem. Eng. Process.* **38**, 635-663.
- Heinrich S., Peglow M., Ihlow M., Henneberg M., et Mörl L. (2002). Analysis of the start-up process in continuous fluidized bed spray granulation by population balance modelling. *Chem. Eng. Sci.* **57**, 4369-4390.
- Heinrich S., Blumschein J., Henneberg M., Ihlow M., Peglow M. et Mörl L. (2003). Study of dynamic multi-dimensional temperature and concentration distributions in liquid-sprayed fluidized beds. *Chem. Eng. Sci.* **58**, 5135-5160.
- Hounslow M., Ryall R. et Marshall V.R. (1988). A discretized population balance for nucleation, growth, and aggregation. *AIChE. J.* **34**(11), 1821-1832.
- Hukuo K., Hikichi Y. et Okado K. (1977). Atomization of high-viscous liquids by parallel-flow air-liquid two-phase nozzles. *Unit Operations Processes.* **87**, 121.
- Jin S., Hu Q., Wang J. et Jin Y. (2000). Fluidization of coarse particles in gas-solid conical beds. *Chem. Eng. Processing.* **39**, 379-387.
- Jenike A.W. (1964). Storage and flow of solids. *Bull. of the University of Utah.* **53**, 123.
- Kapur P.C. et Fuerstenau D.W. (1969). Coalescence model for granulation. *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.* **8**, 56-62.
- Kapur P.C. (1972). Kinetics of granulation by non-random coalescence mechanism. *Chem. Eng. Sci.* **27**, 1863-1869.
- Kim K.Y. et Marshall W.R. (1971). Drop-size distributions from pneumatic atomizers. *AIChE Journal.* **17**(3), 575-584.

- Krimitas N. (1995). *Agglomération et enrobage de poudres alimentaires en lit fluidisé : application à la formulation de poudres dosées en fer et acide ascorique*. Mémoire de DEA, ENSIA, Massy. 55 p.
- Kumar S. et Ramkrishna D. (1996). On the solution of population balance equations by discretization-I. A fixed pivot technique. *Chem. Eng. Sci.* **51**(8), 1311-1332.
- Kumar J., Peglow M., Warnecke G., Heinrich S. et Mörl L. (2006). Improved accuracy and convergence of discretized population balance for aggregation : the cell average technique. *Chem. Eng. Sci.* **61**, 3327-3342.
- Kunii D. et Levenspiel O. (1991). *Fluidization Engineering*. 2nd ed. Butterworth-Heinemann, Boston, 491p.
- Laguerie C. (1994). Motion, heat and mass transfers. In: *Powder Technology and Pharmaceutical Processes*. Eds. Chulia D., Deleuil M., Pourcelot Y. Elsevier, Amsterdam. **9**, 165-190.
- Link K., et Schlünder E. (1997). Fluidized bed spray granulation. Investigation of the coating process on a single sphere. *Chem. Eng. Processing*. **36**, 443-457.
- Lister J.D., Hapwood K.P., Michaels J.N., Sims A., Roberts M., Kameneni S.K., Hsu T. (2001). Liquid distribution in wet granulation : dimensionless spray flux. *Powder Technol.* **114**, 32-39.
- Marchal P., David R., Klein P.K. et Villermaux J. (1988). Crystallization and precipitation engineering-I. An efficient method for solving population balance in crystallization with agglomeration. *Chem. Eng. Sci.* **43**(1), 59-67.
- Maronga S.J. et Wnukowski P. (1997a). Modelling of the three-domain fluidized-bed particulate coating process. *Chem. Eng. Sci.* **52**(17), 2915-2925.
- Maronga S.J. et Wnukowski P. (1997b). Establishing temperature and humidity profiles in fluidized bed particulate coating. *Powder Technol.* **94**, 181-185.
- Maronga S.J. et Wnukowski P. (1998). The use of humidity and temperature profiles in optimizing the size of fluidized bed in a coating process. *Chem. Eng. Processing*. **37**, 423-432.
- Masters K. (1976). *Spray Drying*. 2^{ème} Ed. John Wiley Sons, New York, 206-230.
- Melcion J.P. et Ilari J.L. (2003). *Technologie des pulvérulents dans les IAA*. Ed. Lavoisier, Paris. 814 p.
- Novalés B., Devaux M.F., Deschault F et Melcion J.P. (2003). Caractérisation de la taille et de la forme des particules. In : *Technologie des pulvérulents dans les IAA*. Eds. Melcion J.P. et Ilari J.L. Lavoisier, Paris. 31-63.
- Newitt D.M. et Conway J.M. (1958). A contribution to the theory and practice of granulation, *Trans. Inst. Chem. Eng.* **36**, 422-442.
- Niskanen T., Yliruusi J., Niskanen M. et Kontro O. (1990). Granulation of potassium chloride in instrumented fluidized bed granulator- Part I : effect of flow rate. *Acta Pharm. Fennica*. **99**, 13-22.
- Niskanen T., Niskanen M., Yliruusi J. et Kristoffersson E. (1991). Granulation in instrumented fluidized bed granulator- evaluation of the effects of two independent process variables on granule properties. *Acta Pharm. Nord*. **3**(1), 19-24.
- Ormos Z. et Pataki K. (1979). Studies on granulation in a fluidized bed VII. The effect of raw material upon the granule formation. *Hungarian J. Industrial Chem.* **7**, 89-104.
- Ormos Z.D. (1994). Granulation and coating. In : *Powder Technology and Pharmaceutical Processes*. Eds. Chulia D., Deleuil M., Pourcelot Y. Elsevier, Amsterdam. **9**, 359-376.

- Palzer S. (2004). Impact of glass transition of amorphous components on the agglomeration of food powders. *Proceedings of ICEF9*, Montpellier France.
- Palzer S. (2005). The effect of glass transition on the desired and undesired agglomeration of amorphous food powders. *Chem. Eng. Sci.* **60**, 3959-3968.
- Panda R.C., Zank J. et Martin H. (2001). Modelling the droplet deposition behavior on a single particle in fluidized bed spray granulation process. *Powder Technol.* **115**, 51-57.
- Peglow M., Kumar J., Warnecke G., Heinrich S. et Mörl L. (2006). A new technique to determine rate constants for growth and agglomeration with size- and time-dependent nuclei formation. *Chem. Eng. Sci.* **61**, 282-292.
- Peleg M. (1977). Flowability of food powders and methods for its evaluation. *J. Food Process Eng.* **1**, 303-328.
- Peng Y. et Fan L. (1997). Hydrodynamic characteristics of fluidization in liquid-solid tapered beds. *Chem. Eng. Sci.* **52**(14), 2277-2290.
- Pisecky J. (1997). *Handbook of milk powder manufacture*. Niro A/S. Copenhagen. 261p.
- Pohl M., Hogeckamp S., Mandac A. et Schubert H. (2004). Instant properties of agglomerated food powders. *Proceedings of ICEF9*, Montpellier France.
- Pont V. (2000). *Contribution à l'étude de la granulation des poudres en lit fluidisé. Influence des paramètres du procédé et physico-chimiques sur la cinétique de granulation*. Thèse Génie de Procédés. INP, Toulouse.
- Ramkrishna D. (2000). *Population balances – Theory and applications of particulate systems in engineering*. Academic press, San Diego. 355p.
- Reynolds G. (2004). An introduction to population balance modeling for granulation systems. Granulation course 22-23 Juin 2004, The University of Sheffield, U.K.
- Rhodes M. (1998). *Introduction to Particle Technology*. John Wiley Sons Ltd., England, **283p**.
- Rodriguez-Patiño J.M., Rodríguez-Niño M.R. et Carrera-Sanchez C. (1999). Dynamic interfacial rheology as a tool for the characterization of whey protein isolates gelation at the oil-water interface. *J. Agric. Food Chem.* **47**, 3640-3648.
- Ronsse F. (2006). Modelling heat and mass transfer in fluidised bed coating processes. Thèse Applied Biological Sciences. Universiteit Gent, Gent, 328p.
- Rohera B.D. et Zahir A. (1993). Granulations in a fluidized-bed : effect of binders and their concentrations on granule growth and modelling the relationship between granule size and binder concentration. *Drug Development and Industrial Pharmacy.* **19**(7), 773-792.
- Rowe P.N. (1973). Estimation of solids circulation rate in a bubbling fluidized bed. *Chem. Eng. Sci.* **28**, 979-980.
- Saleh K. (1998). *Contribution à l'étude de l'enrobage des poudres en lit fluidisé: étude expérimentale et modélisation du processus*. Thèse Génie de Procédés. INP, Toulouse, 237p.
- Sastry K.V.S. (1975). Similarity size distribution of agglomerates during their growth by coalescence in granulation of green pelletization. *Int. J. Miner. Process.* **2**, 187.
- Sastry K.V.S., Fuerstenau D.W. (1970). Size distribution of agglomerates in coalescing disperse systems. *Eng. Chem. Fundamentals.* **9**(1): 45.

- Schubert H. (1981). Principles of agglomeration. *Int. Chem. Eng.* 21(3): 363-377.
- Schubert H. (1987). Food particle technology. Part I: properties of particles and particulate food systems. *J. Food Eng.* 6: 1-32.
- Schubert H. (1993). Instantization of powdered food products. *Int. Chem. Eng.* 33(1), 28-45.
- Scoville E. et Peleg M. (1981). Evaluation of the effects of liquid bridges on the bulk properties of model powders. *J. Food Sci.* 46, 174-177.
- Schaafsma S.H., Vonk P., Segers P. et Kossen N.W.F. (1998). Description of agglomerate growth. *Powder Technol.* 97, 183-190.
- Schaafsma S.H., Vonk P., Kossen N.W.F. (2000). Fluid bed agglomeration with a narrow droplet size distribution. *International Journal of Pharmaceutics.* 193, 175-187.
- Schaefer T. et Worts O. (1978). Control of fluidized bed granulation. III. Effects of inlet air temperature and liquid flow rate on granule size and size distribution. Control of moisture content of granules in the drying phase. *Arch. Pharm. Chem. Sci.* 6, 1-13.
- Srinivasakannan C., Balasubramaniam N. (2003). Particle growth in fluidised bed granulation. *Chem. Biochem. Eng. Q.*, 17(3), 201-205.
- Shan J., Guobin C., Fan M., Yu B., Jinfu W. et Yong J. (2001). Fluidization of fine particles in conical beds. *Powder Technol.* 118, 271-274.
- Smith P.G et Nienow A.W. (1982). On atomizing a liquid into a gas fluidized bed. *Chem. Eng. Sci.* 37(6), 950-954.
- Smith P.G et Nienow A.W. (1983a). Particle growth mechanisms in fluidised bed granulation – I. *Chem. Eng. Sci.* 38(8), 1223-1231.
- Smith P.G et Nienow A.W. (1983b). Particle growth mechanisms in fluidised bed granulation – II. *Chem. Eng. Sci.* 38(8), 1233-1240.
- Snow R.H., Allen T., Ennis B.J., Lister J.D. (1997). Section 20: Size reduction and size enlargement. In: *Perry's Chemical Engineers Handbook*, 7th ed. Perry R.H., Green D.W. McGraw-Hill, New York.
- Tan H.S., Goldschmidt M.J.V., Boerefijn R., Hounslow M.J., Salman A.D. et Kuipers J.A.M. (2004). Building population balance model theory of granular flow. *Powder Technol.* 142, 103-109.
- Tardos G.I., Khan M.I., Mort P.R. (1997). Critical parameters and limiting conditions in binder granulation of fine powders. *Powder Technol.* 94, 245-258.
- Teunou E. (2003). Caractéristiques mécaniques et rhéologiques des poudres – test de cisaillement. In : *Technologie des pulvérulents dans les IAA*. Eds. Melcion J.P. et Ilari J.L. Lavoisier, Paris. 93-116.
- Teunou E. et Poncelet D. (2003). Instantanéisation des poudres. In : *Technologie des pulvérulents dans les IAA*. Eds. Melcion J.P. et Ilari J.L. Lavoisier, Paris. 653-665.
- Turchiuli C., Eloualia Z., Mansouri N.E. et Dumoulin E. (2005). Fluidised bed agglomeration : agglomerates shape and end-use properties. *Powder Technol.* 157, 168-175.
- Vanni M. (2000). Approximate population balanced equations for aggregation-breakage processes. *J. Colloid and Interface Sci.* 221, 143-160.

- Verkoeijen D., Pouw G.A., Gabriël M.H.M. et Scarlett B. (2002). Population balances for particulate processes- a volume approach. *Chem. Eng. Sci.* **57**, 2287-2303.
- Utsumi R., Hata T., Hirano T., Mori H., Tsubaki J. et Maeda T. (2001). Attrition testing of granules with a tapping sieve. *Powder Technol.* **119**, 128-133.
- Waldie B., Wilkinson D., Zachra L. (1987). Kinetics and mechanisms of growth in batch and continuous fluidized bed granulation. *Chem. Eng. Sci.* **42**(4), 653-665.
- Waldie B. (1991). Growth mechanism and the dependence of granule size on drop size in fluidized bed granulation. *Chem. Eng. Sci.* **46**(11), 2781-2785.
- Wan L.S.C. et Lim K.S. (1991a). Granulation of mixtures of lactose and starch by a fluidized bed technique. *S.T.P. Pharma. Sci.* **1**(5), 285-293.
- Wan L.S.C. et Lim K.S. (1991b). Action of binders in the fluidized bed granulation of lactose. *S.T.P. Pharma. Sci.* **1**(4), 248-255.
- Watano S., Sato Y., Miyamoto K., Murakami T., Ito Y., Kamata T. Et Oda N. (1995). Scale-up of fluidized bed granulation I. Preliminary experimental approach for optimization of process variables. *Chem. Pharm. Bull.* **43**(7), 1212-1216.
- Wnukowski P. et Setterwall F. (1989). The coating of particles in a fluidized bed (residence time distribution in a system of two coupled perfect mixers). *Chem. Eng. Sci.* **44**(3), 493-505.
- Yan H. et Barbosa-Canovas G.V. (2001). Attrition evaluation for selected agglomerated food powders : the effect of agglomerate size and water activity. *J. Food Process Eng.* **24**, 37-49.
- Yu C.Y., Xu Y.K. et Wang X.Z. (1999). Study of fluidized-bed spray granulation. *Drying Technol.* **17**(9), 1893-1904.

ANNEXES

Annexe 1

Protocole d'un essai d'agglomération dans le lit fluidisé Uni-Glatt

La préparation du pilote Uni-Glatt avant l'essai (~ 2h) consiste à :

- régler la buse de pulvérisation : même réglage pour toutes les essais à la position 1 avec 0 tour avant fermeture complète de la buse
- mettre en place la buse et la grille dans la cuve conique
- peser et introduire la charge initiale de particules (préalablement conditionnées) dans la cuve et la répartir sur la grille, puis mesurer, en 4 points, la hauteur du lit fixe de particules
- mettre en place le filtre puis la cuve chargée sur le pilote
- brancher les différentes connections du pilote : l'air comprimé et le tuyau d'arrivée de liquide (bi- fluide), le thermocouple pour la mesure de la température de l'air à l'intérieur de la cuve, à 6 cm du fond et 3 cm de la paroi, et la sonde de l'anémomètre pour la mesure de la vitesse d'air à la sortie du pilote
- brancher la balance et la carte du thermocouple à l'ordinateur, et accéder au programme Glatt
- régler le secouage du filtre à une fréquence de 3 s toutes les 25 s
- conditionner le liquide à pulvériser à une température de 20°C, à l'aide d'un bain-marie. Placer le bécquet contenant le liquide de pulvérisation sur la balance et avec la pompe en manuel, remplir le tuyau jusqu'à 2 cm avant l'arrivée de la connexion au pilote, puis régler la pompe de pulvérisation au débit désiré
- ouvrir la vanne de l'arrivée de l'air comprimé pour la buse de pulvérisation et régler à la pression désirée
- mettre en marche le ventilateur (clapet fermé)
- régler la température de consigne de l'air et ouvrir doucement le clapet pour fixer la hauteur du lit fluidisé
- lancer l'acquisition des données (température de l'air dans la cuve et masse de liquide pulvérisé) sur l'ordinateur.

Les essais d'agglomération consistaient en trois étapes :

- *chauffage du lit* : on attend environ 20 min pour obtenir une température de l'air homogène du lit fluidisé
- *pulvérisation / séchage* : la durée dépend du débit de liquide choisi et de la quantité de liant introduite
- *refroidissement / séchage final* : une fois la pulvérisation arrêtée, la température de consigne pour l'air de fluidisation est réglée à 25°C ; la durée de cette étape est d'environ 10 min.

Avant et pendant l'étape de pulvérisation on fait des prélèvements d'échantillons de poudre régulièrement (chaque 5 ou 10 min) à 8,5 cm du fond de la cuve avec le dispositif en plastique en introduisant une longueur de tube de 9,5 cm, mesurée à partir du bout du dispositif, pour l'analyse granulométrique des particules.

Après l'essai d'agglomération :

- récupérer le produit et le stocker dans un bocal en verre avec fermeture hermétique à température ambiante
- nettoyer le pilote (1 h)
- analyser le produit.

Annexe 2

Calcul du volume de la zone de mouillage V_m

Pour calculer le volume de la zone active de mouillage (V_m) on a programmé un algorithme pour trouver la température $T_{x,y}$ avec un ΔT inférieur à 2°C pour chaque position dans le lit : sur l'axe x (la distance horizontale du centre de la cuve, de 0 à 6 cm) et sur l'axe y (la distance verticale du lit à partir de 6 cm du fond de la cuve jusqu'à 24 cm, -la hauteur du lit fluidisé-) (Figure A1). Pour une température $T_{x,y}$ avec une $\Delta t \leq 2^\circ\text{C}$, on calcule le volume d'un anneau avec une épaisseur de 1 cm, un rayon interne égal à sa position horizontale x , et un rayon externe égale à $x+1$ de sorte que les isothermes au centre de la cuve (position horizontale $x=0$) sont considérées comme des cylindres de hauteur 1 cm. On obtient le volume de la zone active- mouillage (V_m) à partir de la somme des volumes des anneaux pour chaque plan du lit fluidisé et pour chaque distance du centre de la cuve.

Le volume total du lit fluidisé (V_{lf}) est calculé comme le volume d'un cône tronqué : $V_{lf} = (\pi/3) (h) (R^2 + r^2 + (R) (r))$, où h est la hauteur du lit fluidisé (24 cm), R est le rayon de la cuve conique à la hauteur du lit fluidisé (11,25 cm), et r est le rayon inférieur du lit fluidisé conique (7 cm). Le pourcentage du volume de la zone de mouillage V_m est : $100.(V_m/V_{lf})$.

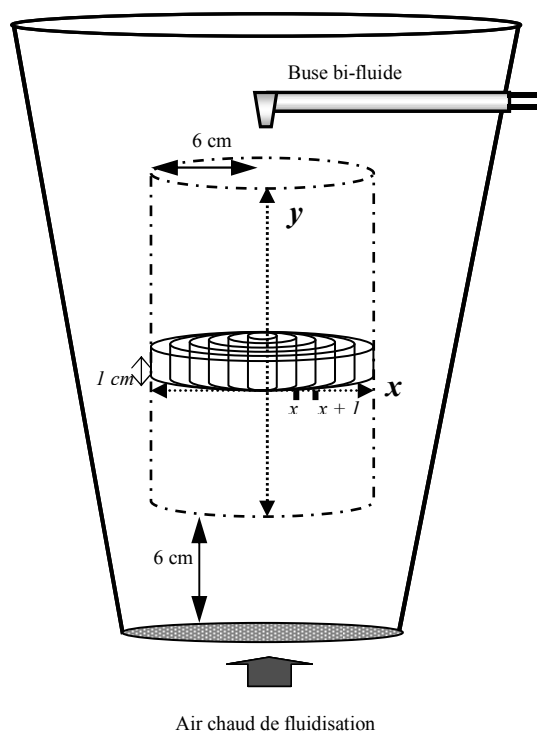
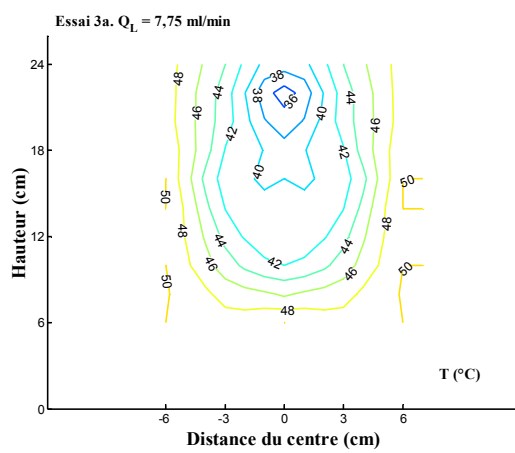
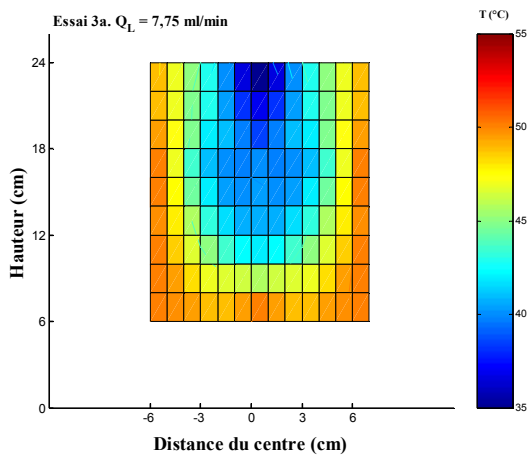
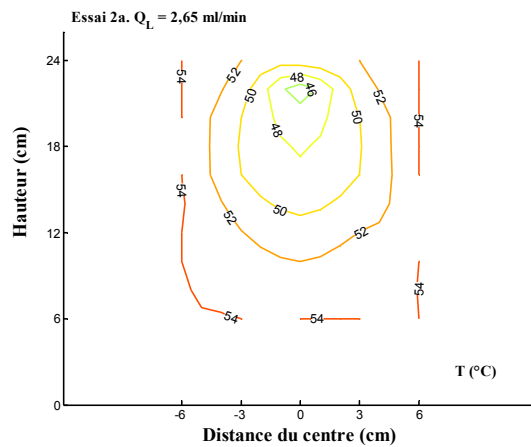
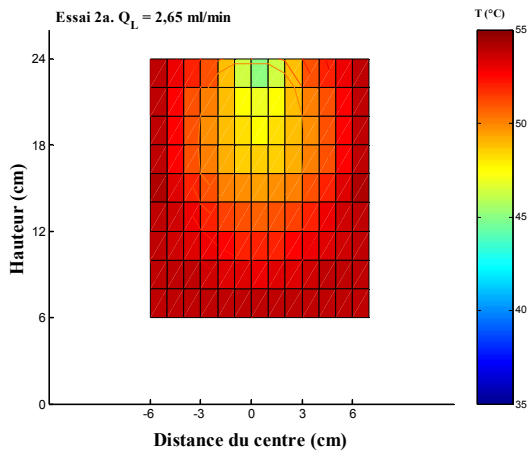
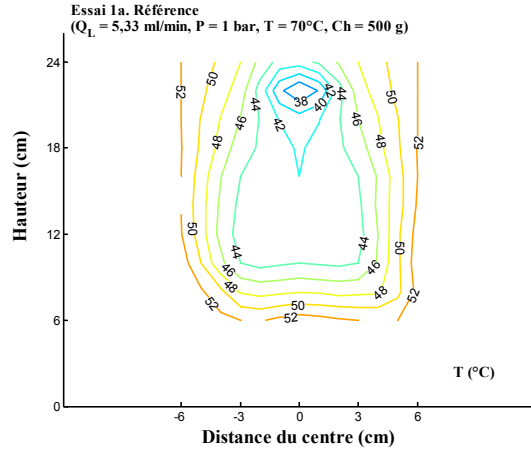
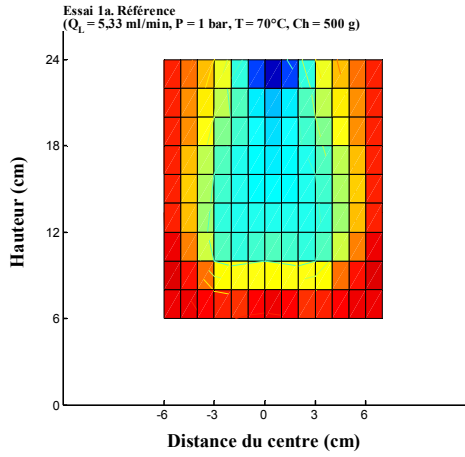


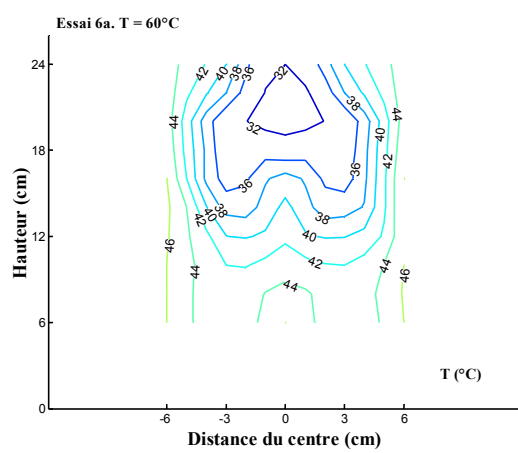
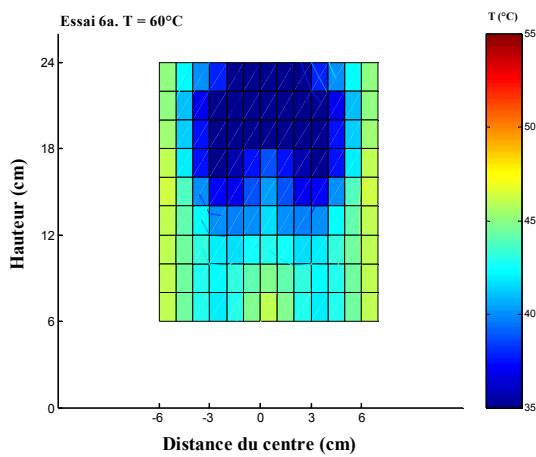
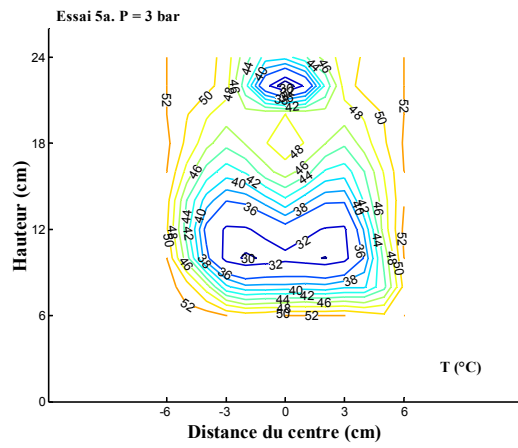
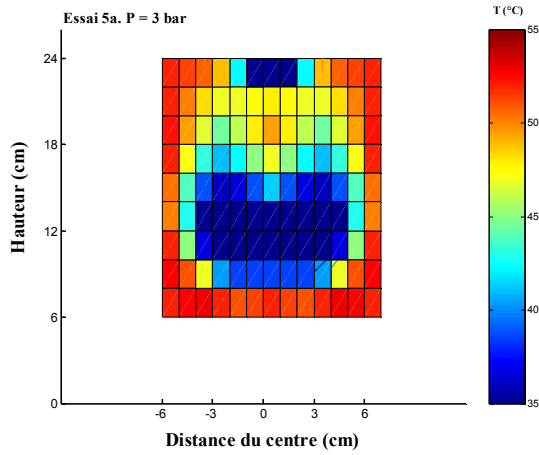
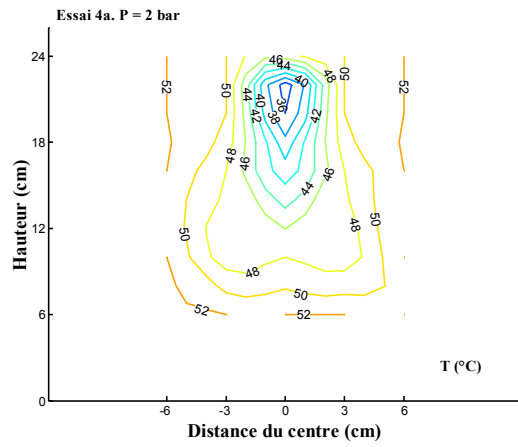
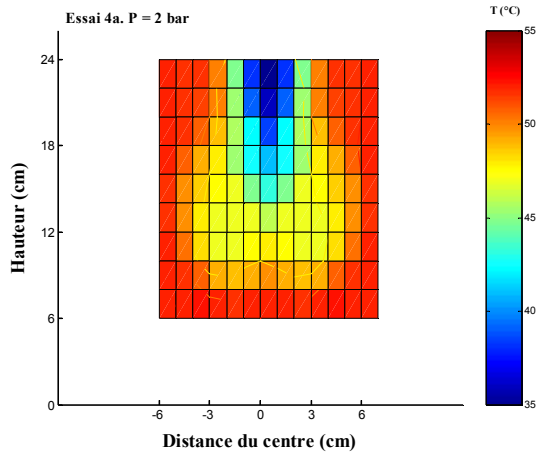
Figure A1. Schéma du lit fluidisé pour le calcul du volume de la *zone active de mouillage* comprise dans la zone de mesure (---).

Annexe 3

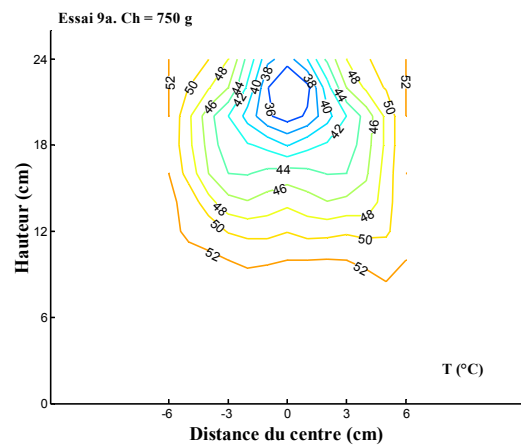
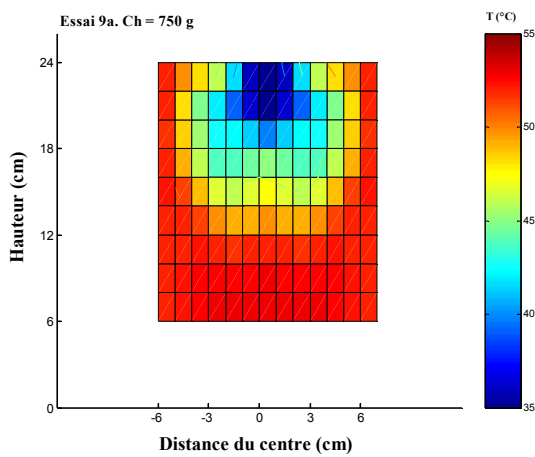
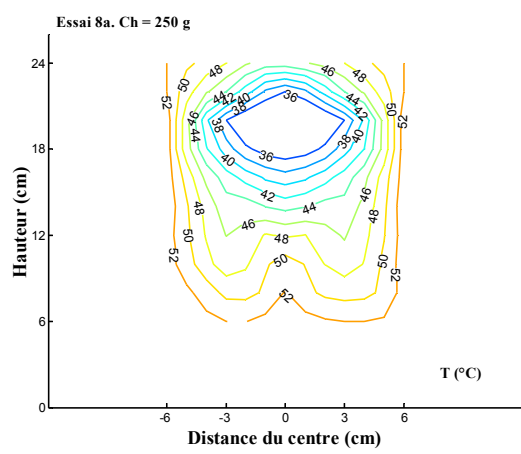
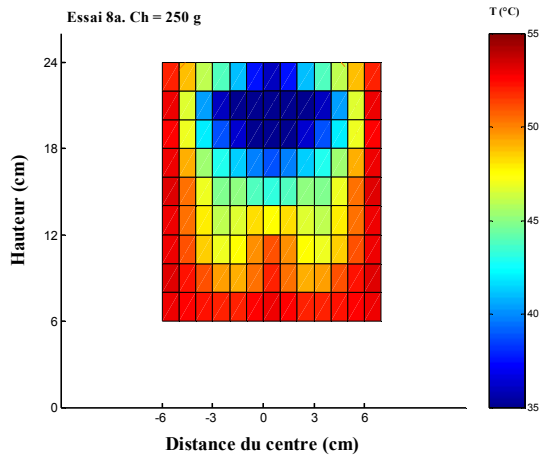
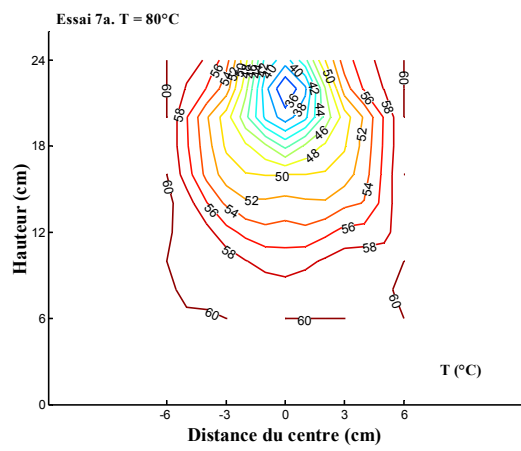
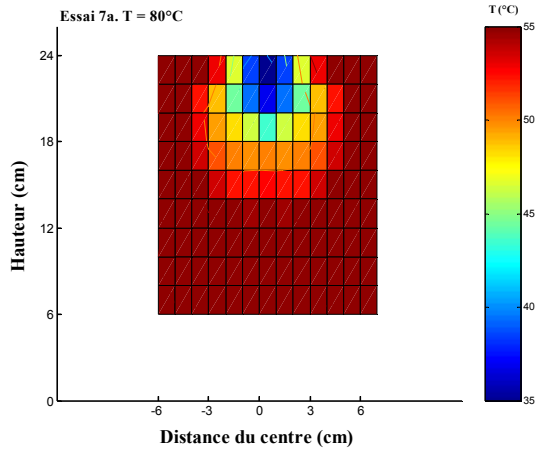
Répartition des températures de l'air de fluidisation dans un lit fluidisé de billes de verre en présence d'un jet de pulvérisation d'eau.



Suite annexe 3



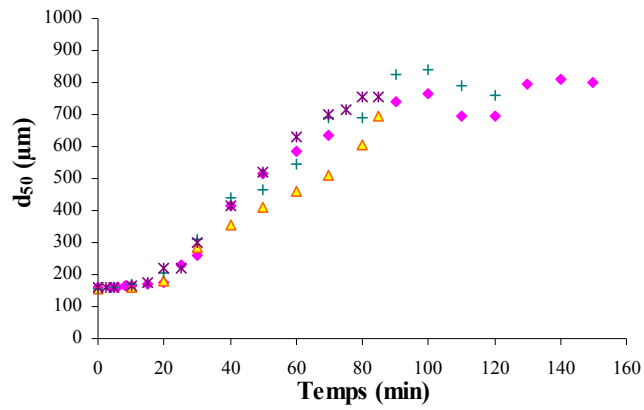
Suite annexe 3



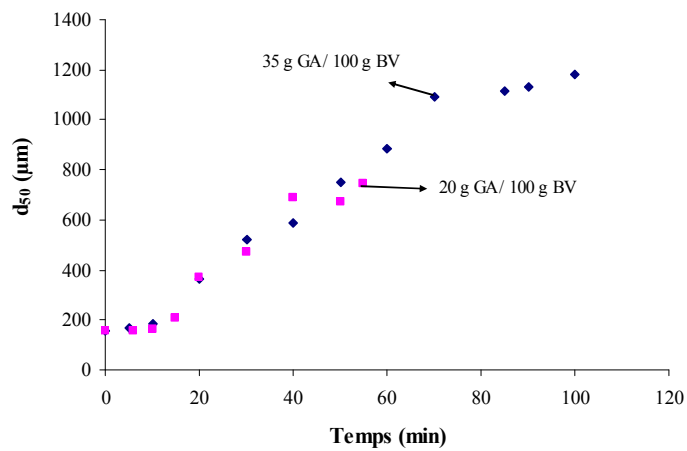
Annexe 4

Rétabilité des essais d'agglomération des billes de verre-gomme d'acacia

- A. Essai de référence : $Q_L = 5,33$ ml/min, $P = 1$ bar, $T = 70^\circ\text{C}$, Ch = 500 g billes de verre, $C_L = 20\%$ w/w.



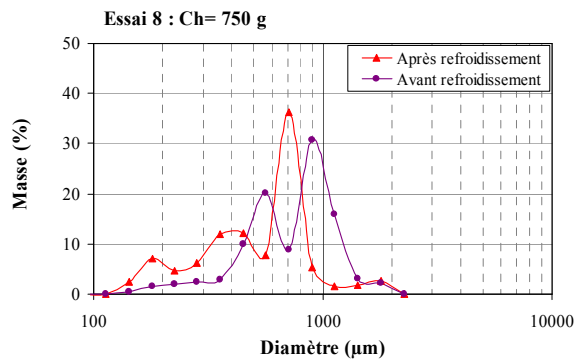
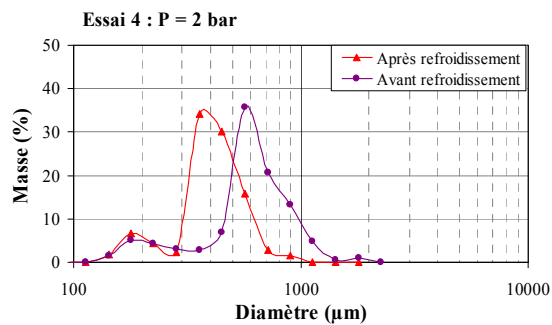
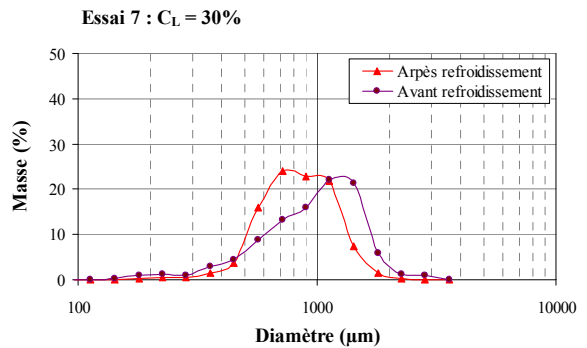
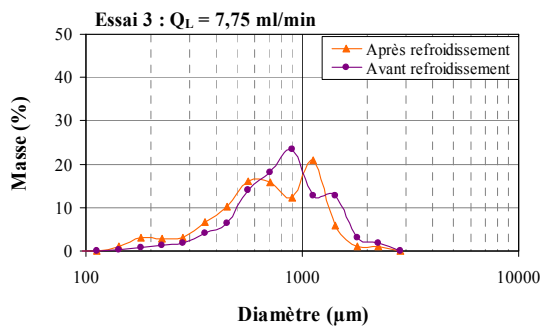
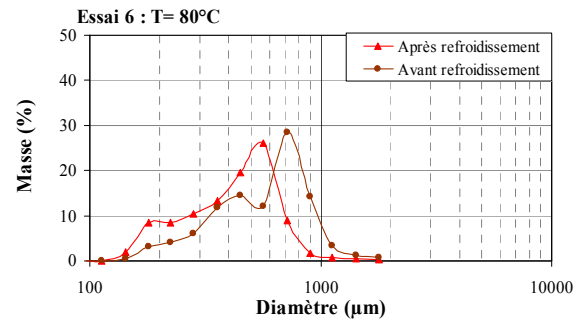
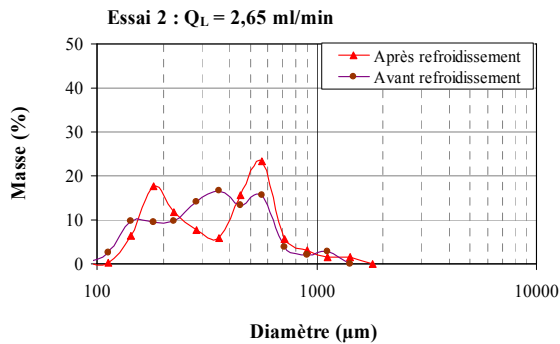
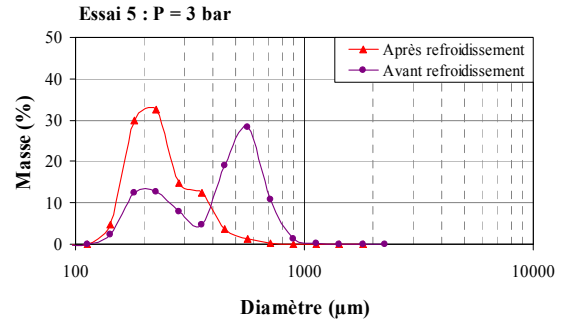
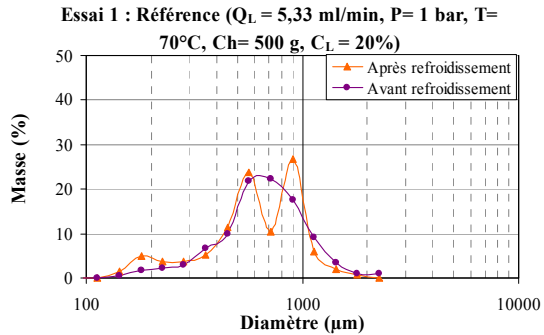
- B. $Q_L = 7,75$ ml/min, $P = 1$ bar, $T = 70^\circ\text{C}$, Ch = 500 g billes de verre, $C_L = 20\%$ w/w.



Annexe 5

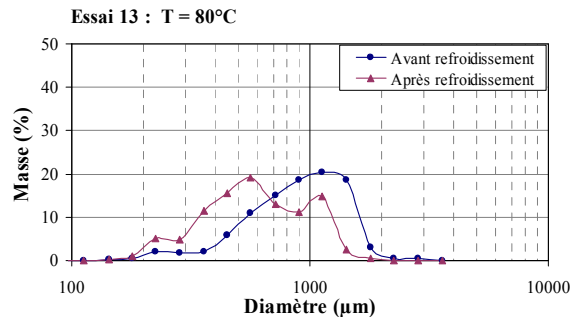
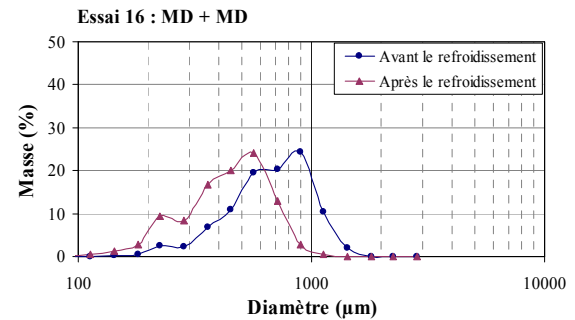
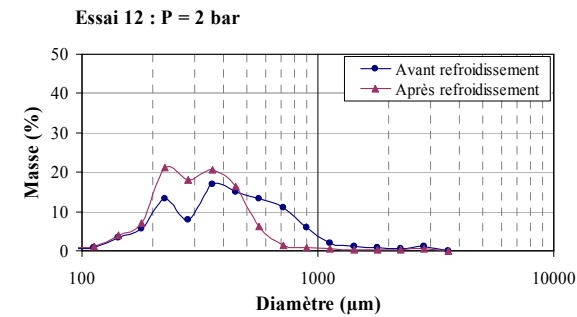
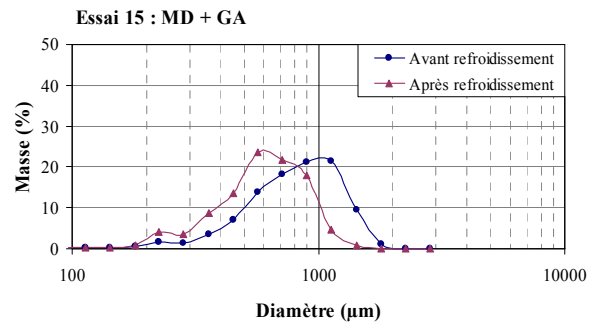
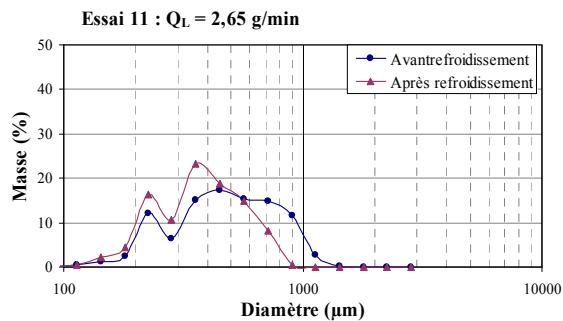
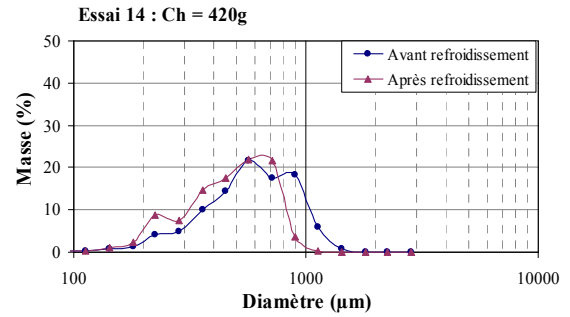
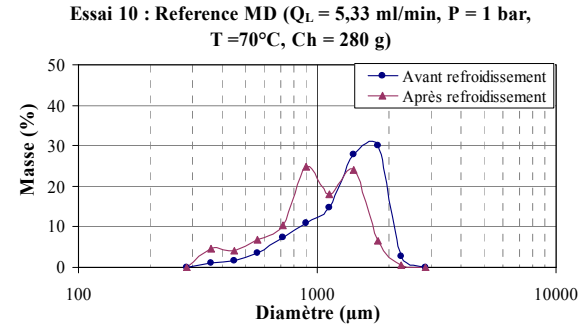
Distributions de taille des agglomérats avant et après refroidissement/séchage

A. Billes de verre – gomme d'acacia



Suite annexe 5

B. Maltodextrine-eau, maltodextrine-gomme d'acacia et maltodextrine-maltodextrine.



Annexe 6

La discrétisation des termes d'apparition et de disparition par agglomération $F(v)$ et $E(v)$ par la méthode du pivot fixe

La forme discrète du terme de disparition est obtenue en intégrant $E(v)$ sur l'intervalle $[v_i; v_{i+1}]$:

$$E_i = \int_{v_i}^{v_{i+1}} \Psi^\Lambda(v, t) \cdot \int_0^\infty \beta(v, u) \cdot \Psi^\Lambda(u, t) \cdot du \cdot dv$$

que l'on peut écrire sous la forme (Kumar et al., 2006) :

$$E_i = \int_{v_i}^{v_{i+1}} \Psi^\Lambda(v, t) \cdot \sum_{j=1}^N \int_{v_j}^{v_{j+1}} \beta(v, u) \cdot \Psi^\Lambda(u, t) \cdot du \cdot dv$$

où
$$\Psi^\Lambda(v, t) = \sum_{k=1}^N \varphi_k^\Lambda(t) \cdot \delta(v - x_k)$$

On a donc :

$$E_i = \int_{v=v_i}^{v_{i+1}} \sum_{k=1}^N [\varphi_k^\Lambda(t) \cdot \delta(v - x_k)] \cdot \sum_{j=1}^N \int_{u=v_j}^{v_{j+1}} \beta(v, u) \cdot \sum_{k=1}^N [\varphi_k^\Lambda(t) \cdot \delta(u - x_k)] \cdot du \cdot dv$$

et d'après les propriétés de la fonction delta de Dirac :

$$\begin{aligned} E_i &= \int_{v=v_i}^{v_{i+1}} \sum_{k=1}^N [\varphi_k^\Lambda(t) \cdot \delta(v - x_k)] \cdot \sum_{j=1}^N \beta(v, x_j) \cdot \varphi_j^\Lambda(t) \cdot dv \\ &= \sum_{j=1}^N \varphi_j^\Lambda(t) \int_{v=v_i}^{v_{i+1}} \sum_{k=1}^N [\varphi_k^\Lambda(t) \cdot \delta(v - x_k)] \cdot \beta(v, x_j) \cdot dv \\ &= \sum_{j=1}^N \beta(x_i, x_j) \varphi_j^\Lambda(t) \varphi_i^\Lambda(t) \end{aligned}$$

De même, la forme discrète du terme d'apparition est obtenue en intégrant $F(v)$ sur l'intervalle $[v_i; v_{i+1}]$:

$$F_i = \int_{v_i}^{v_{i+1}} F(v) dv = \int_{v_i}^{v_{i+1}} \left(\frac{1}{2} \int_0^v \beta(v-u, u) \cdot \Psi^\Lambda(v-u, t) \cdot \Psi^\Lambda(u, t) du \right) dv$$

La méthode de discrétisation avec pivot fixe consiste à attribuer une fraction $a(v, x_i)$ et une fraction $b(v, x_{i+1})$ des particules apparaissant dans la classe i aux populations à x_i et x_{i+1} :

$$\begin{aligned} F_i &= \frac{1}{2} \int_{x_i}^{x_{i+1}} a(v, x_i) \left(\int_0^v \beta(v-u, u) \cdot \Psi^\Lambda(v-u, t) \cdot \Psi^\Lambda(u, t) du \right) dv \\ &+ \frac{1}{2} \int_{x_{i-1}}^{x_i} b(v, x_{i+1}) \left(\int_0^v \beta(v-u, u) \cdot \Psi^\Lambda(v-u, t) \cdot \Psi^\Lambda(u, t) du \right) dv \end{aligned}$$

Suite annexe 6

Pour qu'il y ait conservation du nombre et de la masse ($m = \rho_p \cdot v$ avec $\rho_p = \text{cte}$) de particules après discrétisation, on impose :

$$\begin{cases} a(v, x_i) + b(v, x_{i+1}) = 1 \\ a(v, x_i) \cdot x_i + b(v, x_{i+1}) \cdot x_{i+1} = v \end{cases}$$

d'où $(1 - b(v, x_{i+1})) \cdot x_i + b(v, x_{i+1}) \cdot x_{i+1} = v$

et $b(v, x_{i+1}) = (v - x_i) / (x_{i+1} - x_i)$

ce qui conduit finalement à :

$$\begin{cases} a(v, x_i) = (x_{i+1} - v) / (x_{i+1} - x_i) \\ b(v, x_i) = (v - x_{i-1}) / (x_i - x_{i-1}) \end{cases}$$

Comme précédemment, différentes étapes utilisant notamment les propriétés de la fonction delta de Dirac $\delta_{j,k}$ permettent d'aboutir à la forme finale de F_i (Kumar et al., 2006) :

$$F_i = \sum_{\substack{j \geq k \\ x_{i-1} \leq v = (x_j + x_k) \leq x_{i+1}}} \left(1 - \frac{1}{2} \delta_{j,k} \right) \cdot \eta(v) \cdot \beta_{j,k} \cdot \Phi_j^A \cdot \Phi_k^A$$

où $\eta(v) = \begin{cases} \frac{x_{i+1} - v}{x_{i+1} - x_i}, & x_i \leq v \leq x_{i+1} \\ \frac{v - x_{i-1}}{x_i - x_{i-1}}, & x_{i-1} \leq v \leq x_i \end{cases}$ et $\delta_{j,k} = \begin{cases} 1, & j = k \\ 0, & j \neq k \end{cases}$

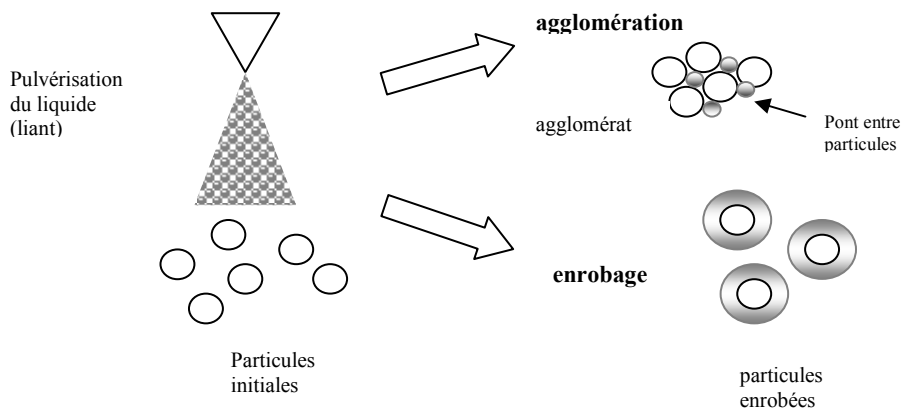


Figure 1.1.1. Mécanismes de croissance de particules en voie humide.

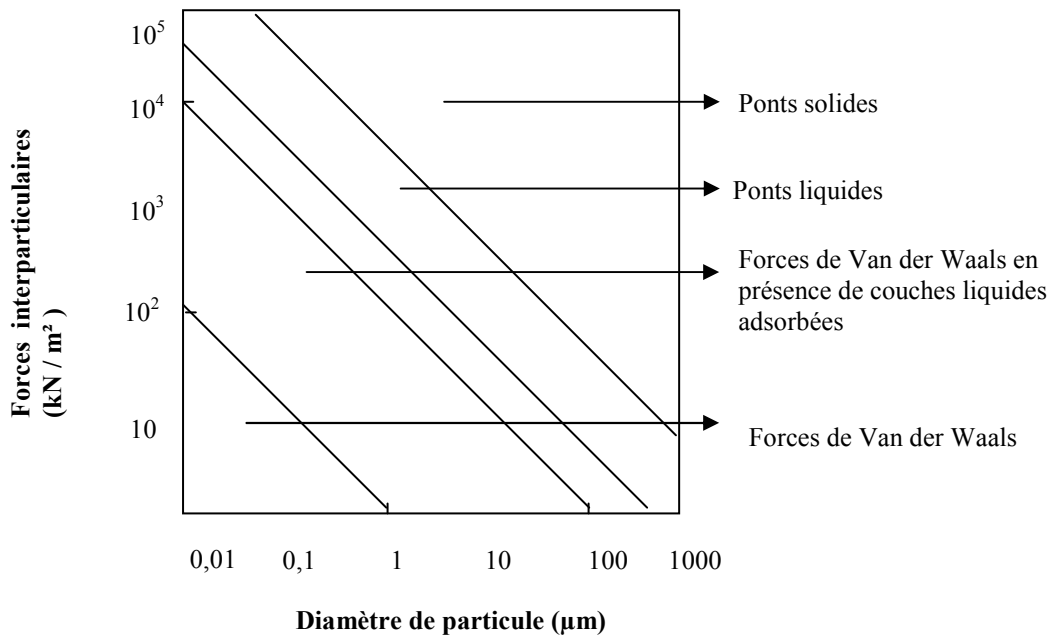


Figure 1.1.2. Forces interparticulaires pour différents mécanismes de liaison (D'après Rhodes, 1998).

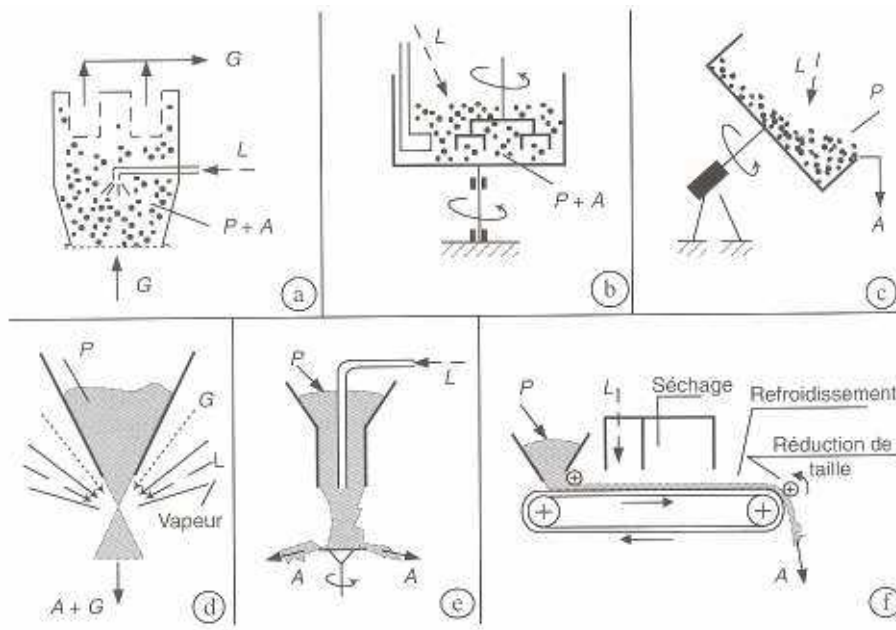


Figure 1.1.3. Procédés de fabrication des produits agglomérés en voie humide : lit fluidisé (a), mélangeur (b), agglomérateur à tambour rotatif (c), jet de vapeur (d), sur disque rotatif (e), sur bande (f). L : liquide, P : poudre, G : gaz, A : agglomérat. (D'après Bimbenet et al., 2002).

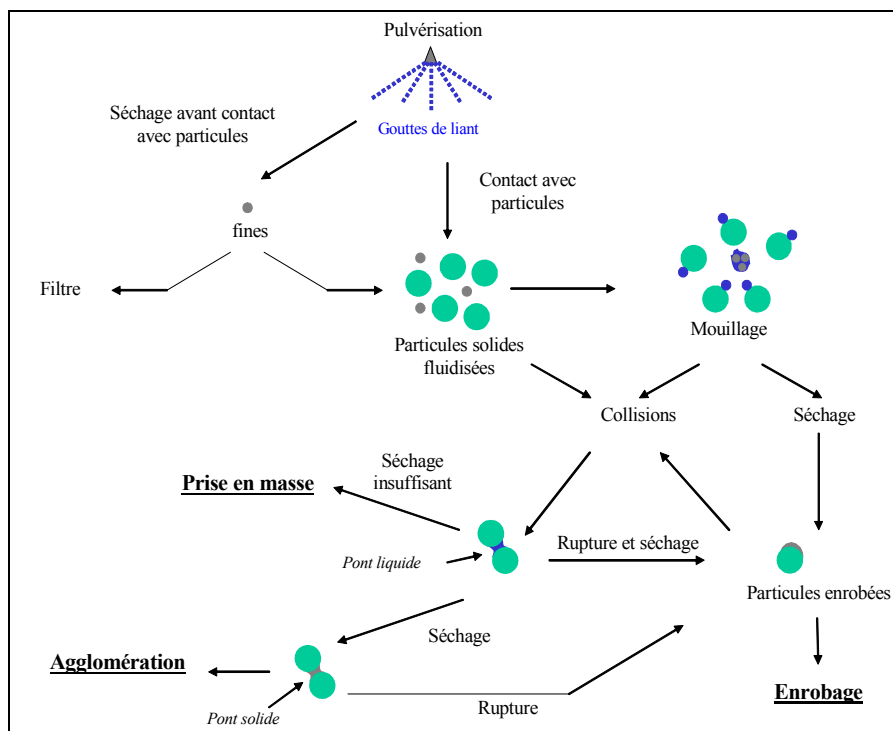


Figure 1.1.4. Mécanismes mis en jeu lors de la croissance des particules en lit fluidisé.

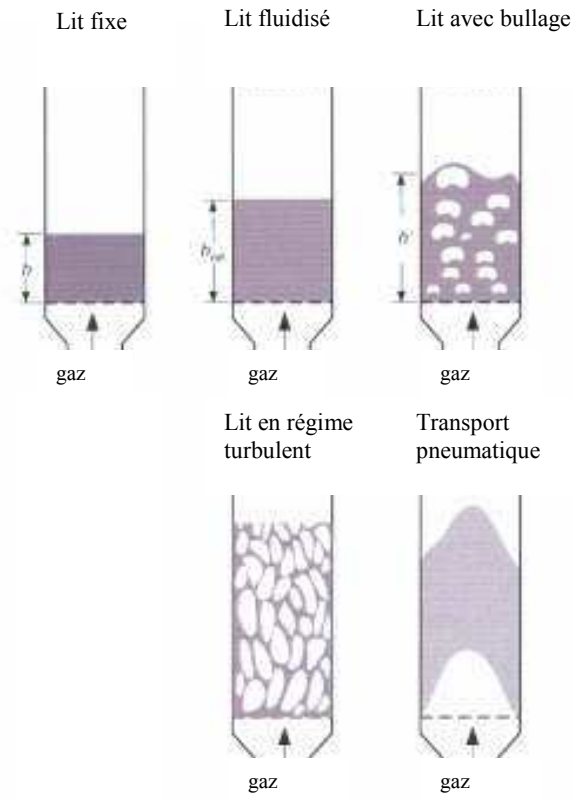


Figure 1.2.1. Régimes de fluidisation dans un lit cylindrique. (D'après Kunii et Levenspiel, 1991).

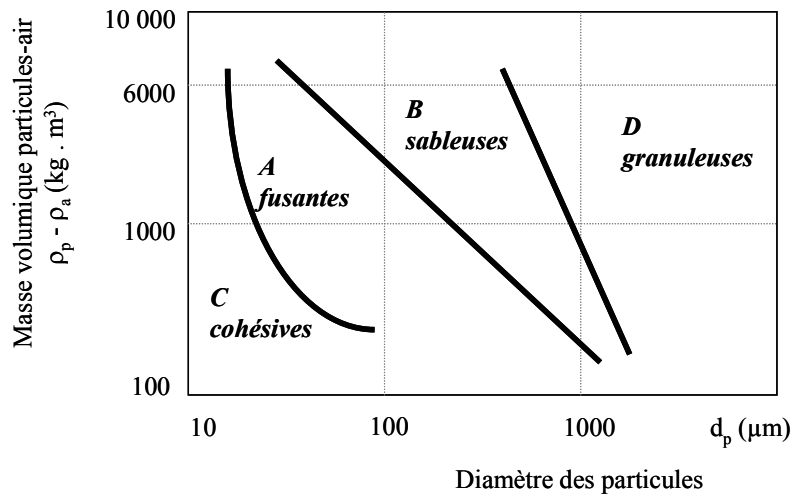


Figure 1.2.2. Classification de Geldart pour les particules solides, selon leur aptitude à la fluidisation. (D'après Bimbenet et al., 2002).

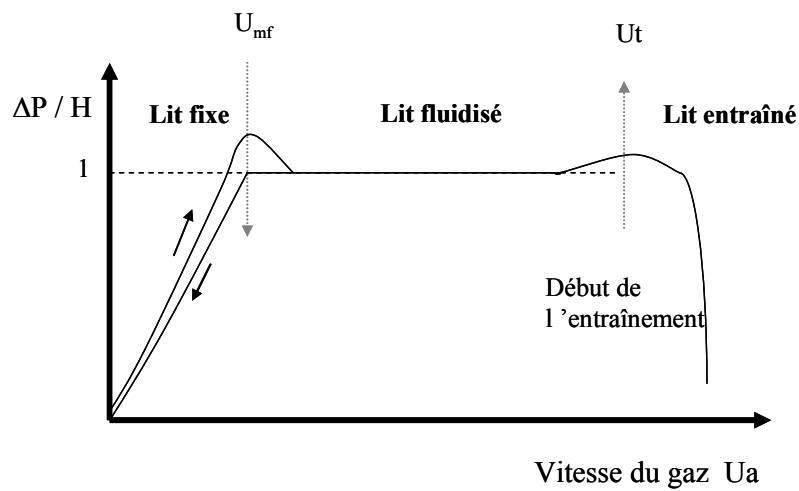


Figure 1.2.3. Variation de la perte de charge dans un lit fluidisé cylindrique en fonction de la vitesse du gaz de fluidisation.

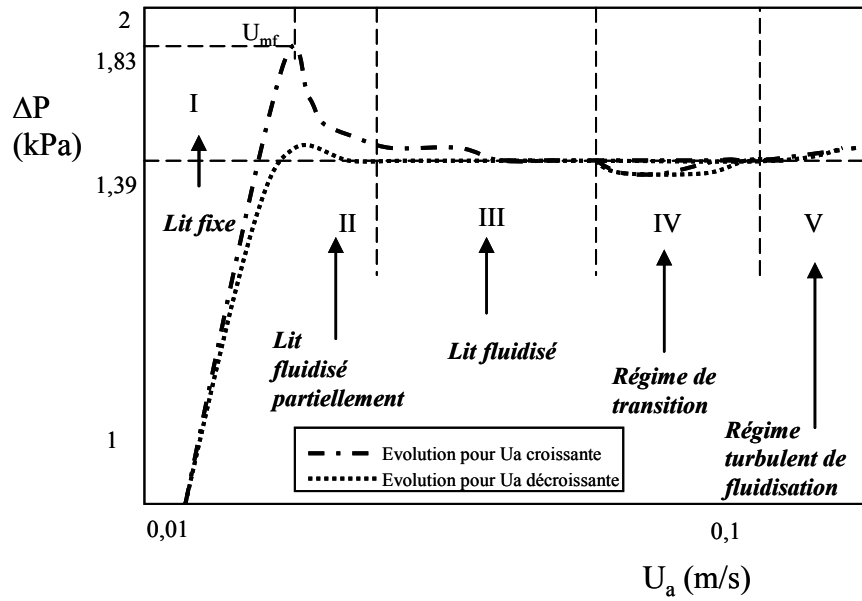


Figure 1.2.4. Pertes de charge dans un lit fluidisé conique (angle = 30°, hauteur = 0,178 m) en fonction de la vitesse d'air de fluidisation. (D'après Peng et Fan, 1997).

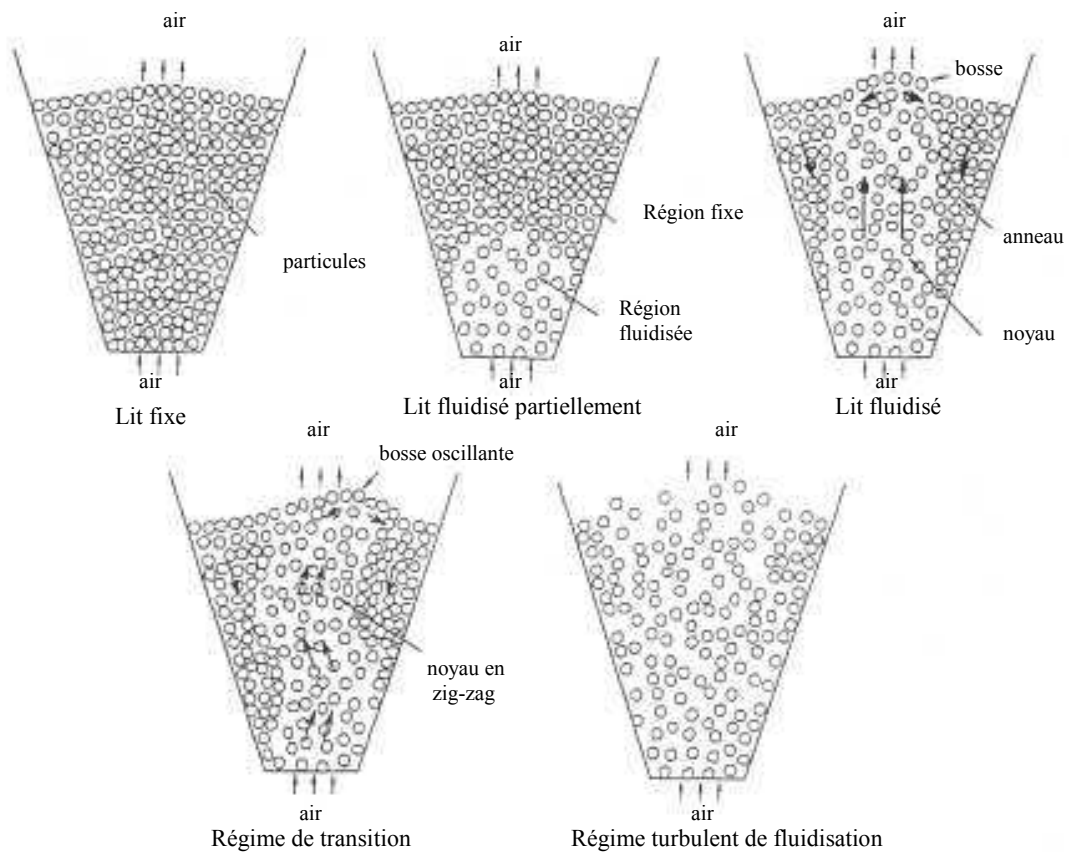
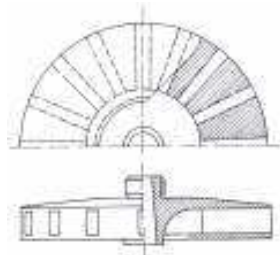
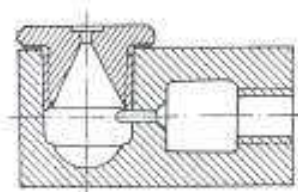


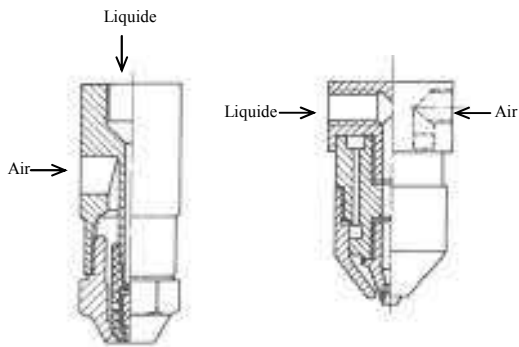
Figure 1.2.5. Régimes de fluidisation dans un lit fluidisé conique. (D'après Peng et Fan, 1997).



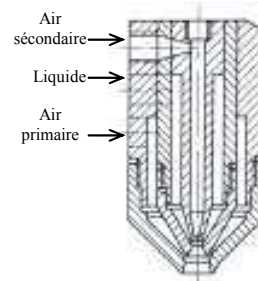
a. Turbine



b. Buse à pression (mono-fluide)



Buses pneumatiques bi-fluides
c. Mélange interne **d. Mélange externe**



e. Buse pneumatique combinée de mélange interne-externe (trois fluides)

Figure 1.3.1. Types d'atomiseurs.

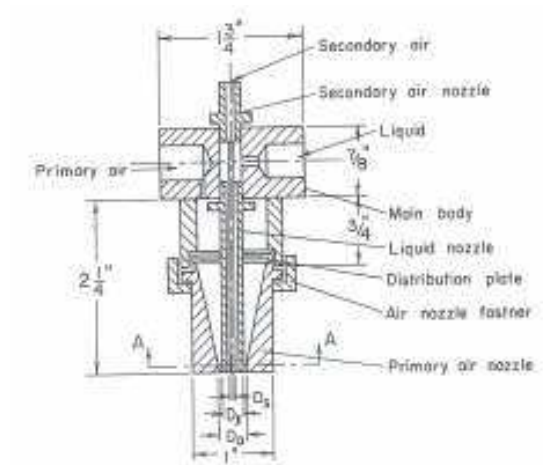


Figure 1.3.2. Buse pneumatique convergente à mélange externe.
 (D'après Kim et Marshall, 1971).

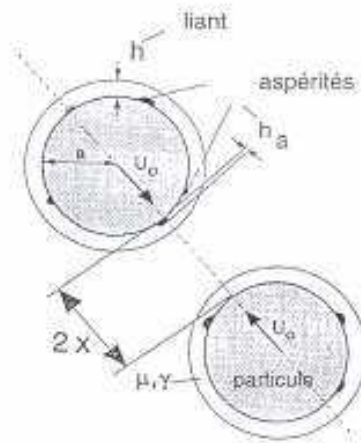


Figure 1.4.1. Collision entre particules mouillées. (Adapté d'Ennis et al., 1991).

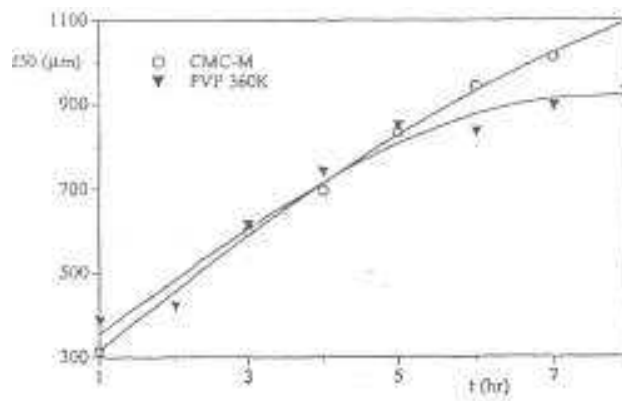


Figure 1.4.2. Diamètre médian des granules en fonction du temps avec CMC-Na (M) et PVP comme liants. (D'après Ennis et al., 1991).

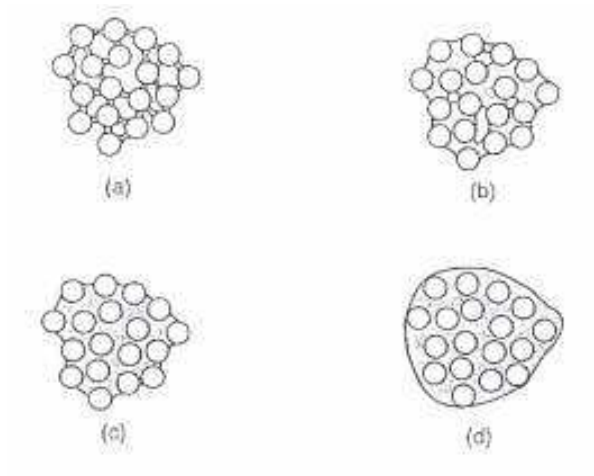


Figure 1.4.3. Liaison liquide entre particules : pendulaire (a), funiculaire (b), capillaire (c), goutte (d).

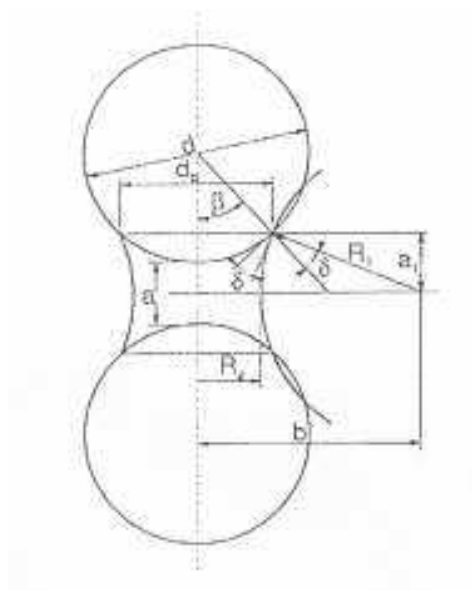


Figure 1.4.4. Modèle d'un pont liquide. (D'après Gröger et al., 2003).

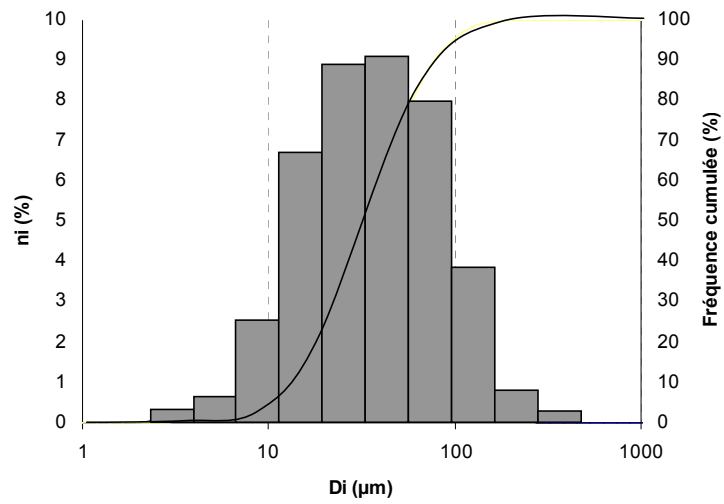


Figure 1.5.1. Représentation de la distribution de taille en histogramme et diagramme de fréquence cumulée pour la taille des particules D_i .

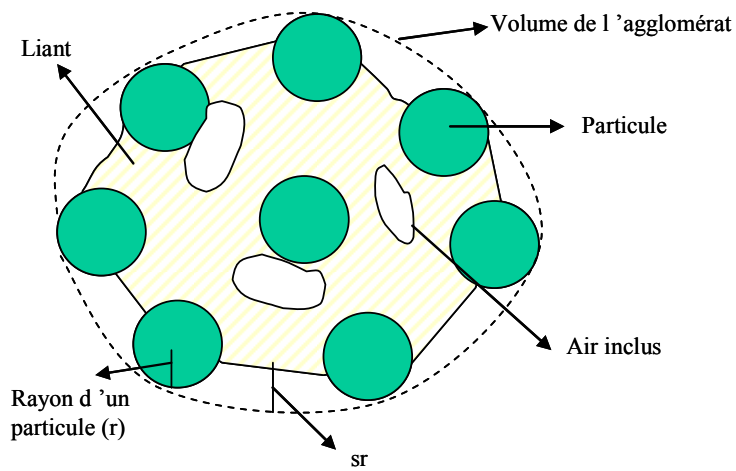


Figure 1.6.1. Représentation d'un agglomérat avec de l'air inclus. (D'après Smith et Nienow, 1983).

$F(t, v)$: les particules de volume v sont créées par l'agrégation des particules u et $v-u$

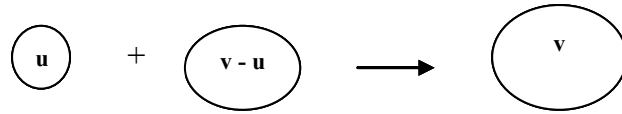


Figure 1.6.2. Formation des particules de volume v dans le mécanisme d'agglomération.

$E(t, v)$: les particules de taille v sont perdues quand elles s'agrègent avec une autre particule de taille u pour former une particule plus grande.

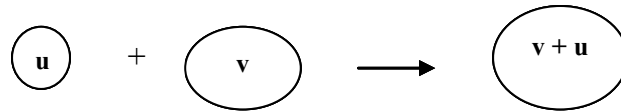


Figure 1.6.3. Disparition des particules de volume v dans le mécanisme d'agglomération.

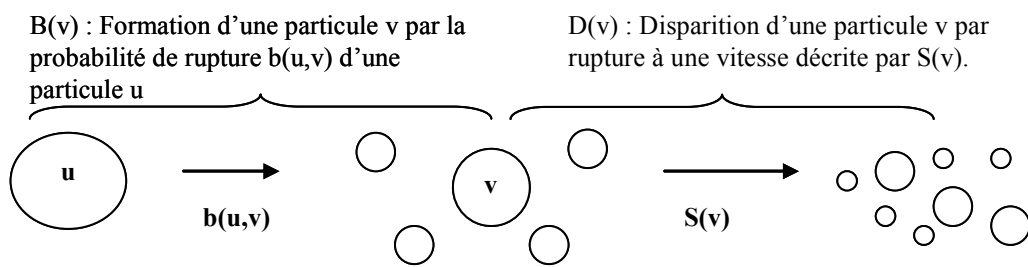


Figure 1.6.4. Mécanisme de rupture d'une particule de volume v .

Tableau 1.1. Equations empiriques pour déterminer la taille des gouttes pulvérisées par une buse bi-fluide pneumatique.

| Equations | Unités | Domaine de validité | Référence |
|---|--|---|---|
| Nukiyama -Tanasawa (Eq. 1.16) $d_{3,2} [\mu\text{m}] = \left(\frac{585}{U_r} \right) \left(\frac{\sigma_L}{\rho_L} \right)^{0,5} + 597 \left(\frac{\mu_L}{\sqrt{\sigma_L \cdot \rho_L}} \right)^{0,45} \left(\frac{Q_L \times 10^3}{Q_a} \right)^{1,5}$ | $U_r = U_a - U_L = \text{m/s}; Q_L, Q_a = [\text{m}^3/\text{s}]; \mu_L = [\text{P}]; \sigma_L = [\text{dyne/cm}]; \rho_L = [\text{kg/m}^3]$ | <ul style="list-style-type: none"> · Buse avec mélange interne · $Q_L =$ jusqu'à 0,45 l/min. | Filková et Cedik, 1984 ; Kim et Marshall, 1971 |
| (Eq. 1.17) $d_{3,2} [\mu\text{m}] = \left(\frac{585 \times 10^3}{U_r} \right) \left(\frac{\sigma_L}{\rho_L} \right)^{0,5} + 597 \left(\frac{\mu_L}{\sqrt{\sigma_L \cdot \rho_L}} \right)^{0,45} \left(\frac{Q_L \times 10^3}{Q_a} \right)^{1,5}$ | $U_r = \text{m/s}; Q_L, Q_a = [\text{m}^3/\text{s}]; \mu_L = [\text{cP}]; \sigma_L = [\text{N/m}]; \rho_L = [\text{kg/m}^3]$ | | Filková et Mujumdar, 1995 |
| (Eq. 1.18) $d_{3,2} [\mu\text{m}] = \left(\frac{1410}{U_a} \right) \left(\frac{\sigma_L}{\rho_L} \right)^{0,5} + 191 \left(\frac{\mu_L}{\sqrt{\sigma_L \cdot \rho_L}} \right)^{0,45} \left(\frac{Q_L \times 10^3}{Q_a} \right)^{1,5}$ | $U_a = \text{ft/s}; Q_L, Q_a = [\text{ft}^3/\text{min}]; \mu_L = [\text{P}]; \sigma_L = [\text{dynes/cm}]; \rho_L = [\text{lb/ft}^3]$ | <ul style="list-style-type: none"> · Buse avec mélange interne · $U_L = 0,02 - 1,0 \text{ lb/min}$ · $\mu_L = 0,3 - 30 \text{ cP}$ · $\sigma_L = 19 - 73 \text{ dynes/cm}$ · $\rho_L = 43 - 75 \text{ lb/ft}^3$ · $d_{3,2} = 7 - 97 \mu\text{m}$ | Masters, 1976 |
| Kim -Marshall (Eq. 1.19) $d_{4,3} [\mu\text{m}] = 249 \left(\frac{\sigma_L^{0,41} \cdot \mu_L^{0,32}}{(U_r^2 \cdot \rho_a)^{0,57} \cdot S_a^{0,36} \cdot \rho_L^{0,16}} \right) + 1260 \left(\frac{\mu_L^2}{\rho_L \cdot \sigma_L} \right)^{0,17} \left(\frac{1}{U_r^{0,54}} \right) \left(\frac{M_a}{M_L} \right)^m$ <p>$m = 1$ quand $M_a/M_L < 3$; $m = -0,5$ quand $M_a/M_L > 3$</p> | $U_r, U_a, U_L = \text{ft/s}; M_L, M_a = [\text{lb/min}]; \mu_L = [\text{cP}]; \sigma_L = [\text{dynes/cm}]; \rho_L = [\text{lb/ft}^3]; S_a = \text{in}^2$ | <ul style="list-style-type: none"> · Buse avec mélange externe · $U_a = 250 \text{ ft/s}$ -sonique · $\mu_L = 8 - 5 \text{ cP}$ · $\sigma_L = 30 - 50 \text{ dynes/cm}$ · $\rho_L = 50 - 65 \text{ lb/ft}^3$ · $M_a/M_L = 0,06 - 40$ · $d_{4,3} = 6 - 350 \mu\text{m}$ | Masters, 1976 Kim et Marshall, 1971 |
| Gretzinger -Marshall (Eq. 1.20) $d_{4,3} [\mu\text{m}] = 2600 \left(\frac{M_L \cdot \mu_a}{M_a \cdot G_a \cdot D_L} \right)^{0,4}$ | $M_L, M_a = [\text{lb/min}]; \mu_a = [\text{P}]; G_a = M_a / S_a = [\text{lb} \cdot \text{min}^{-1} \cdot \text{ft}^2]; D_L = \text{cm}$ | <ul style="list-style-type: none"> · Buse avec mélange externe · $\mu_a = 1 - 30 \text{ cP}$ · $M_a/M_L = 1 - 25$ · $d_{4,3} = 5 - 30 \mu\text{m}$ · $d_L = 0,145 - 0,279 \text{ in}$ | Masters, 1976 |
| Hukuo-Hikiche-Okado (Eq. 1.21) $d_{3,2} [\text{mm}] = \left(\frac{0,47}{U_r^{0,61}} \right) \left(\frac{\sigma_L}{\rho_L} \right)^{0,36} + 0,14 \left(\frac{\mu_L}{\sqrt{\sigma_L \cdot \rho_L}} \right)^{0,43} \left(\frac{Q_L \times 10^3}{Q_a} \right)^{0,64}$ | $U_r = U_a - U_L = \text{m/s}; Q_L, Q_a = [\text{cm}^3/\text{s}]; \mu_L = [\text{P}]; \sigma_L = [\text{dyne/cm}]; \rho_L = [\text{g/cm}^3]$ | <ul style="list-style-type: none"> · Flux parallèle, deux phases air-liquide · $\mu_L = 0,9 - 37 \text{ P}$ · $\sigma_L = 47,7 - 89,8 \text{ dynes/cm}$ · $\rho_L = 1,45 - 1,58 \text{ g/cm}^3$ | Hukuo <i>et al.</i> , 1977 |

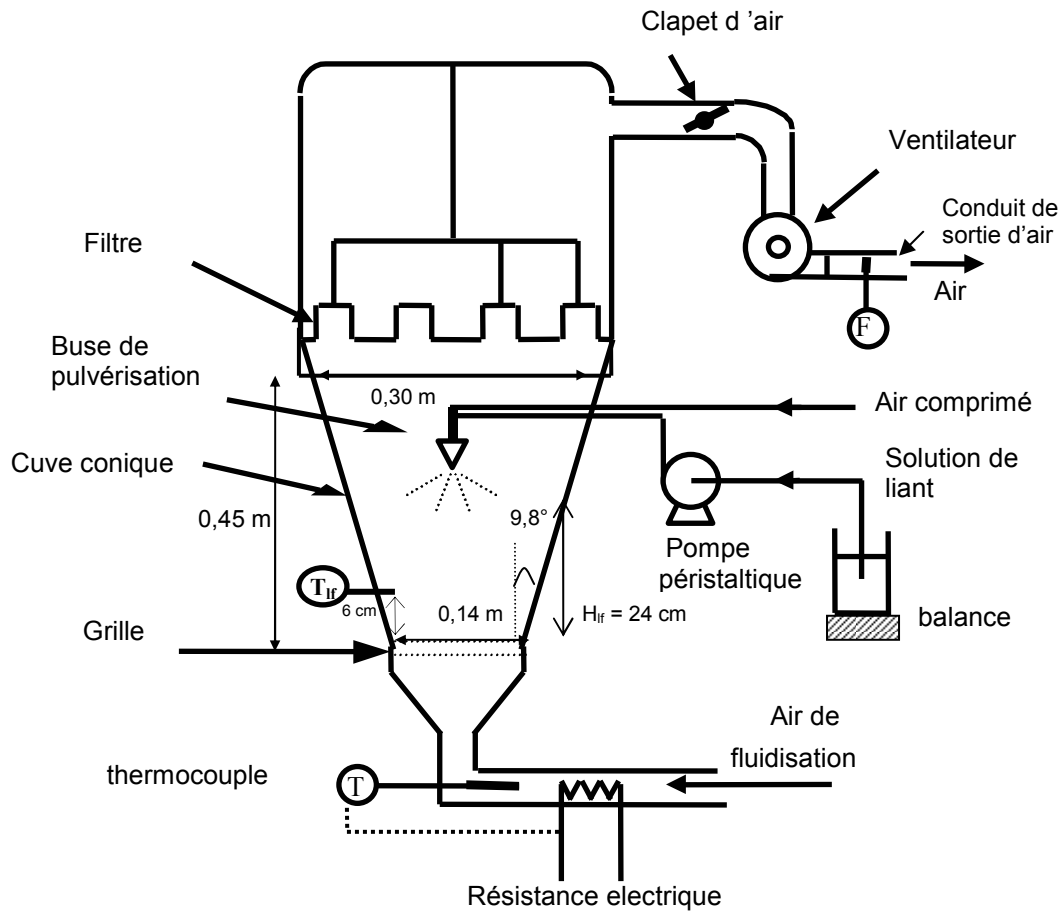


Figure 2.2.1. Pilote d'agglomération en lit fluidisé (Uni-Glatt) avec pulvérisation par le haut.

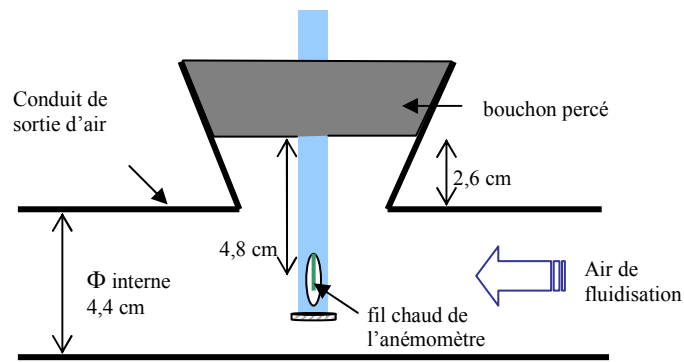
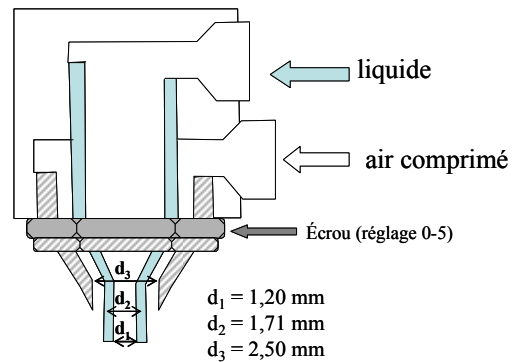


Figure 2.2.2. Sonde de l'anémomètre (Veloci-Calc Plus, TSI, USA) placé dans le conduit de sortie de l'air de fluidisation.



a



b

Figure 2.2.3. Buse pneumatique bifluide à mélange externe (type 970, Schlick) installée sur le pilote Uni-Glatt, **a** : photo, **b** : schéma.

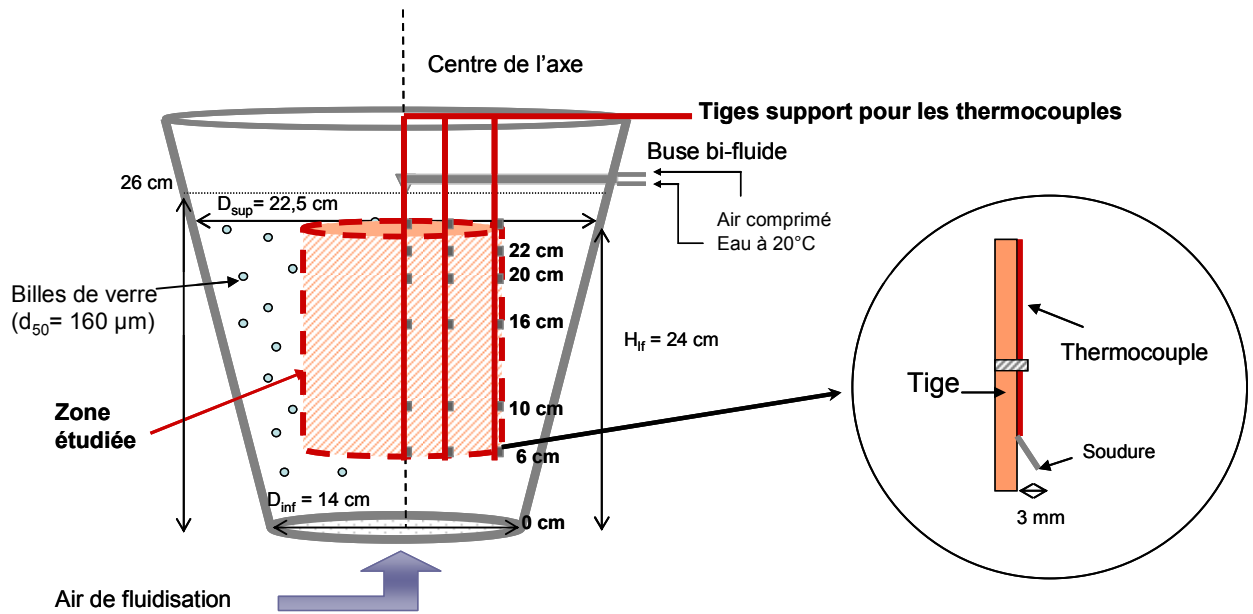


Figure 2.3.1. Position des thermocouples dans la cuve de fluidisation pour les cartographies de températures d'air.

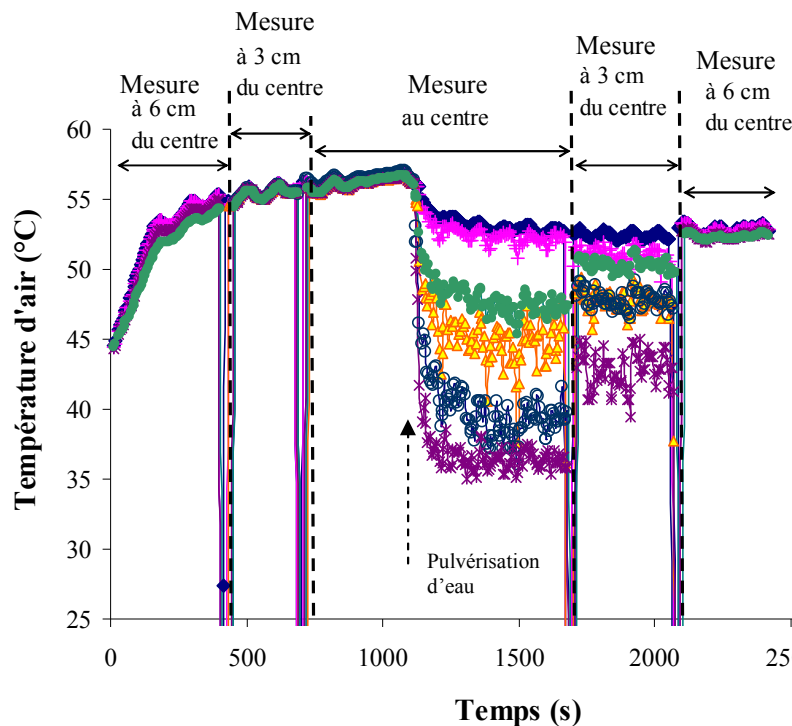


Figure 2.3.2. Mesures de température d'air à différentes positions dans la cuve du lit fluidisé des billes de verre en présence d'un jet d'eau pulvérisé par le haut (Température de consigne = 70°C, pulvérisation d'eau à 5,33 ml/min, P = 1 bar, 500 g billes de verre).

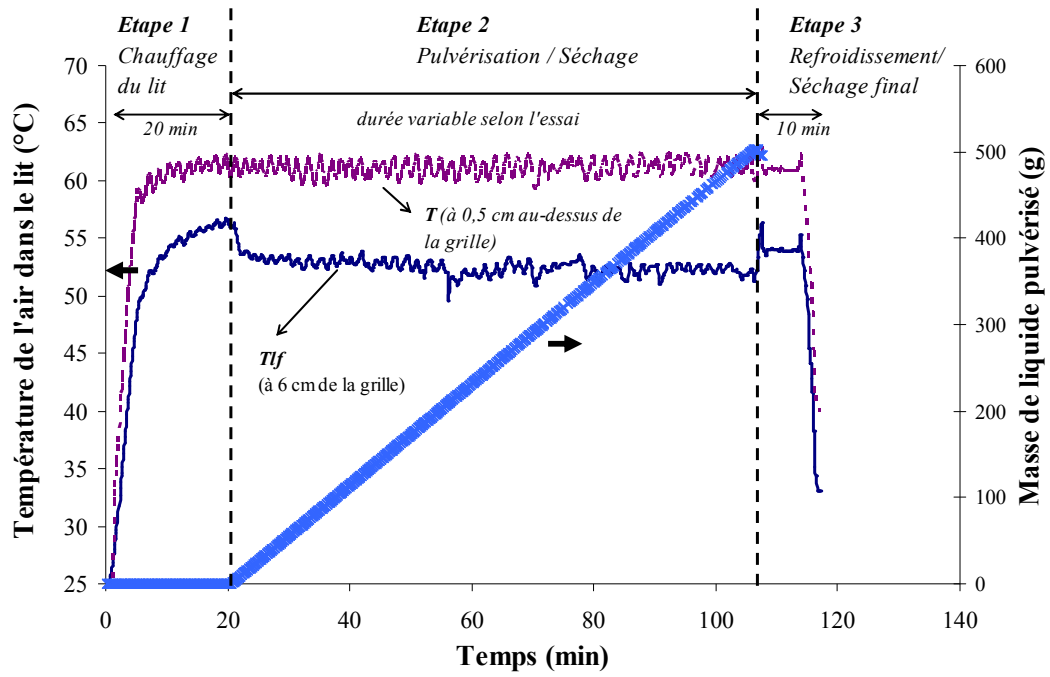


Figure 2.4.1. Température de l'air de fluidisation pendant un essai d'agglomération dans le lit fluidisé.

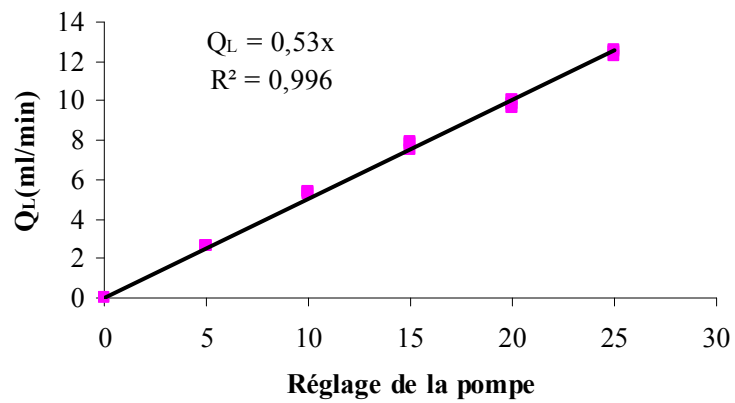


Figure 2.4.2. Corrélation du réglage de la pompe péristaltique et le débit Q_L d'eau à 20°C.

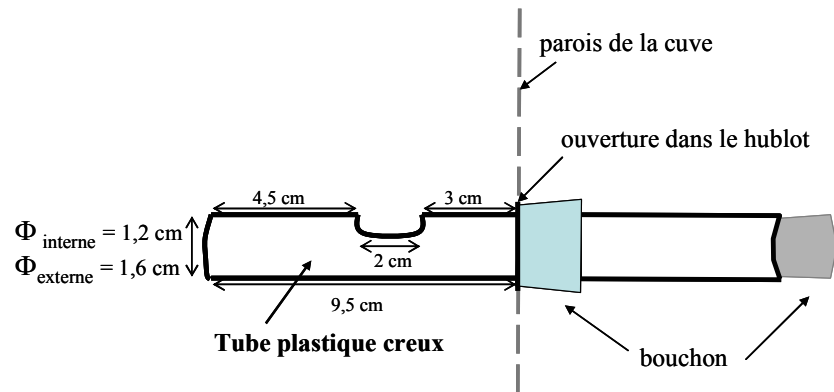


Figure 2.4.3. Dispositif pour les prélèvements des échantillons pendant les essais d'agglomération.

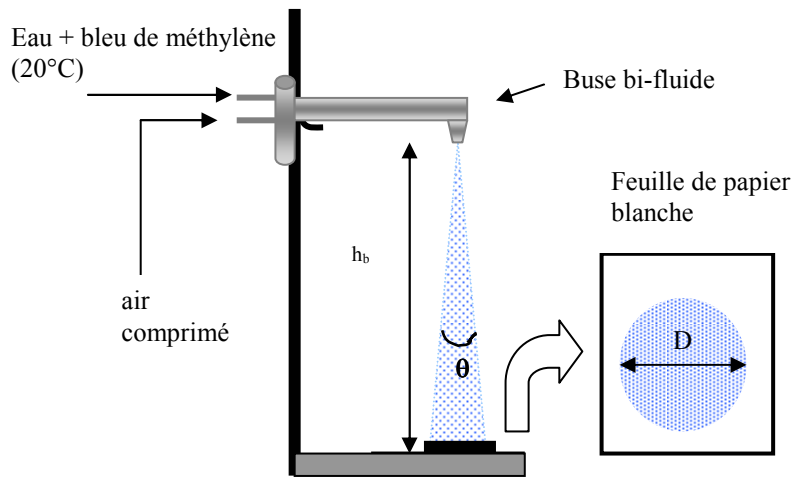


Figure 2.5.1. Installation de la buse bi-fluide pour la détermination de l'angle du jet de pulvérisation.

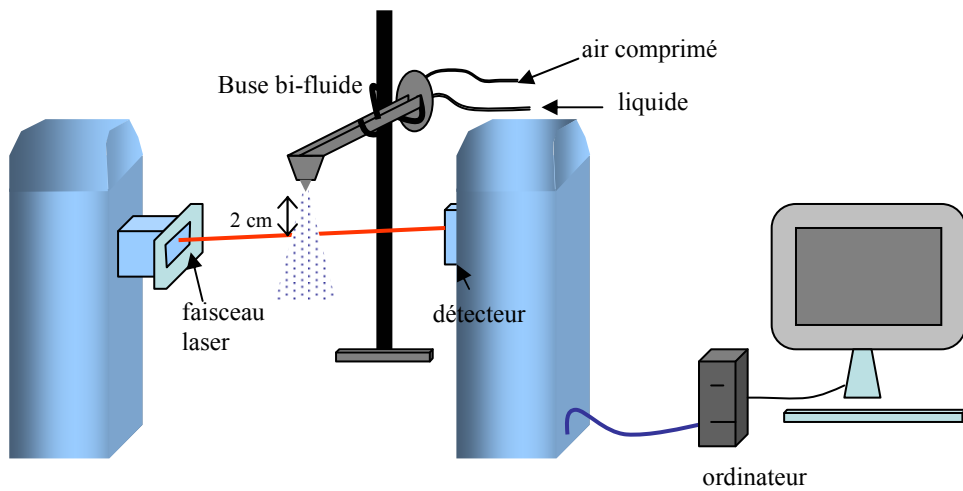


Figure 2.5.2. Position de la buse pour la mesure de la distribution de taille des gouttes par diffraction laser (Spraytec, Malvern).

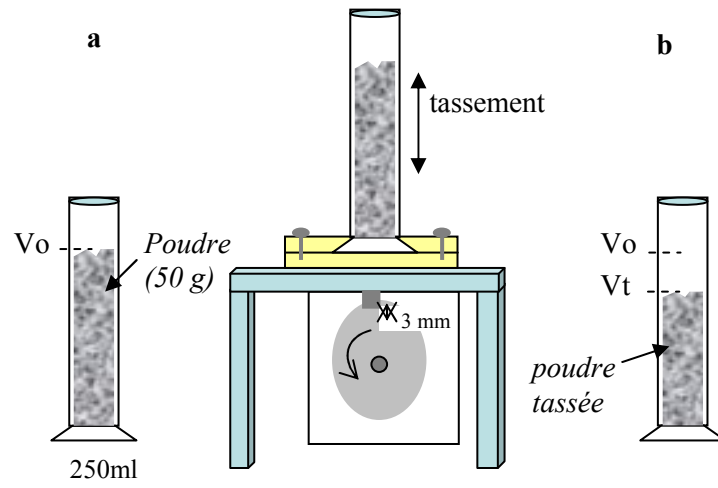


Figure 2.6.1. Dispositif de mesure des masses volumiques vrac (a) et tassée (b).

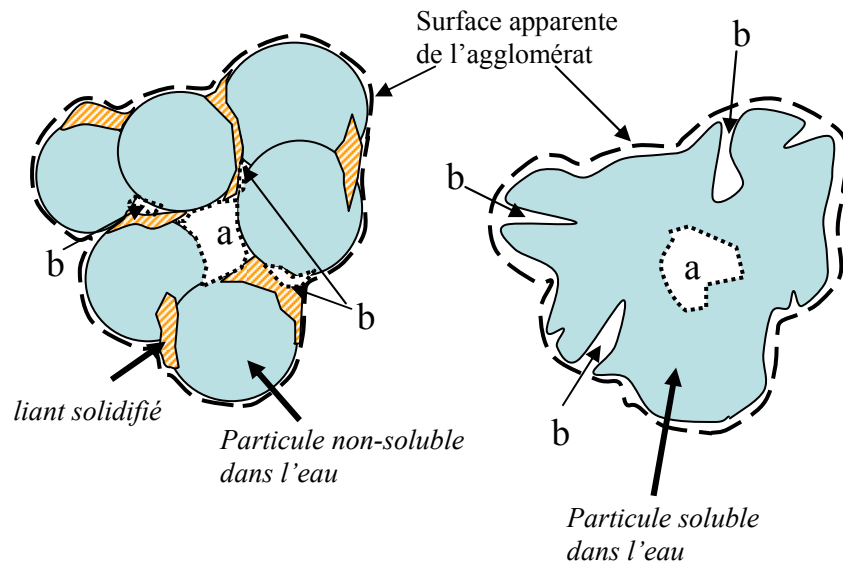


Figure 2.6.2. Coupe transversale d'agglomérats présentant des pores fermés (a) et ouverts (b) (Melcion et Ilari, 2003).

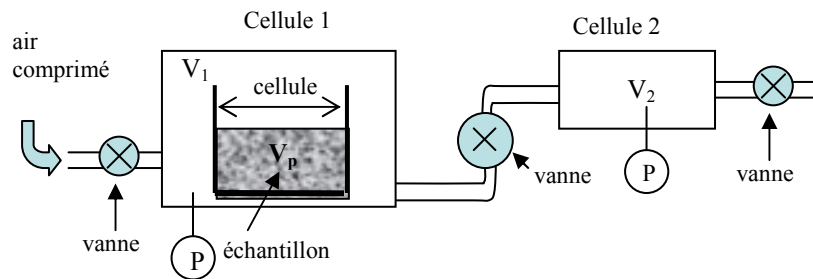


Figure 2.6.3. Schéma de principe d'un pycnomètre par déplacement de gaz pour la mesure de masse volumique vraie ou apparente.

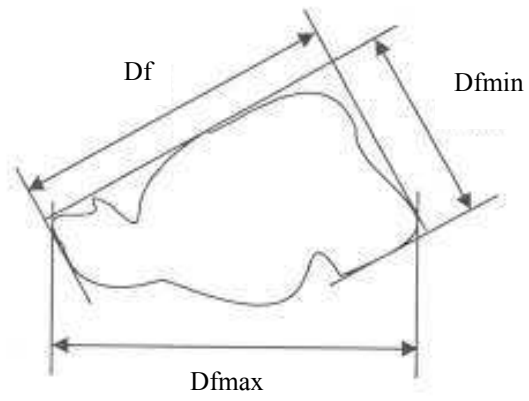


Figure 2.6.4. Diamètres de F eret (maximal (D_{fmax}) et minimaux (D_{fmin})) d'une particule irr eguli ere.

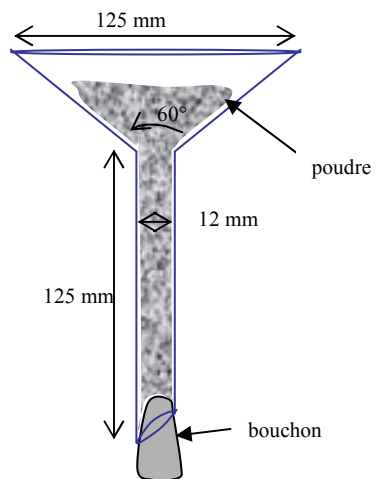


Figure 2.6.5. Dispositif pour la mesure de la coulabilité (Norme NF B 35032).

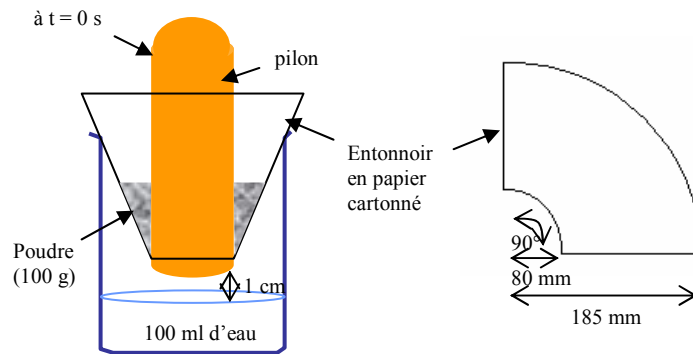


Figure 2.6.6. Dispositif pour mesurer la mouillabilité des poudres.

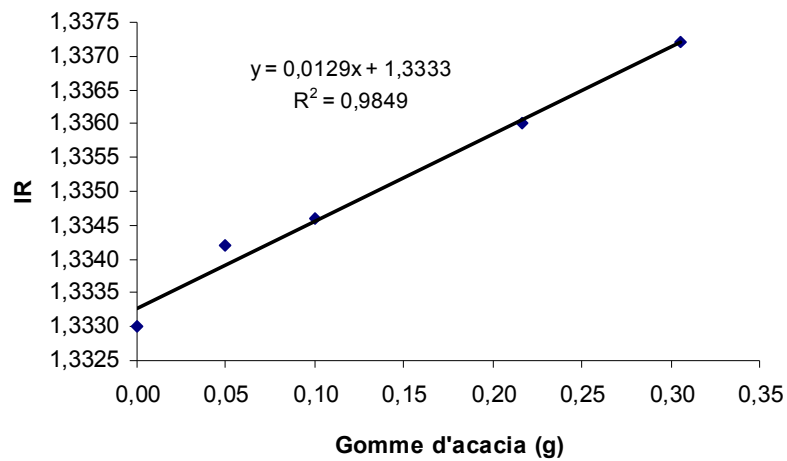


Figure 2.6.7. Indice de réfraction d'une solution de gomme d'acacia (x g de gomme d'acacia dans 10 g d'eau) en fonction de sa composition.

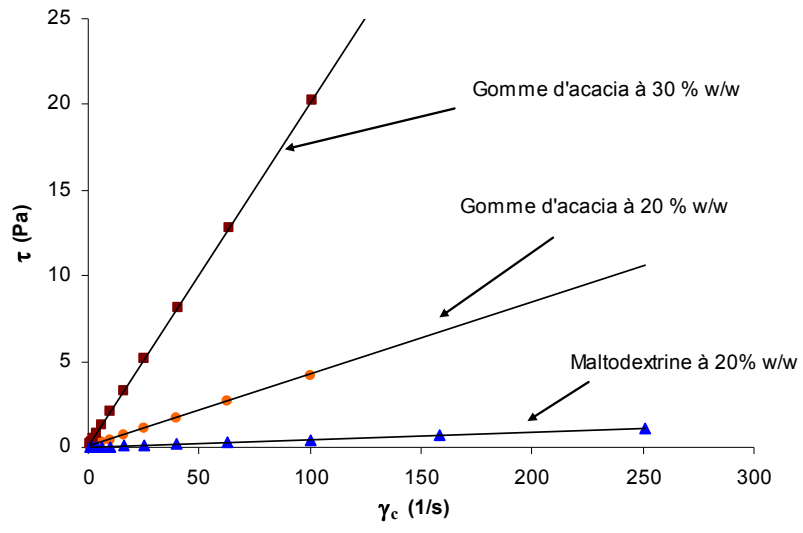


Figure 2.6.8. Comportement rhéologique ($\tau = \mu_L \cdot \gamma_c$) des solutions pulvérisées.

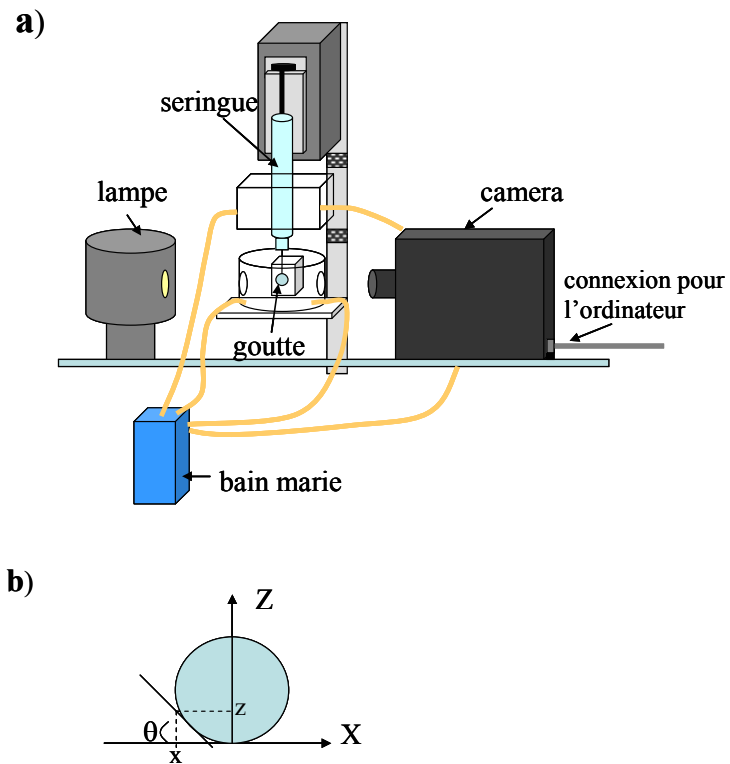


Figure 2.6.9. Tensiomètre utilisé pour mesurer la tension superficielle des liquides par la méthode de la goutte pendante (a) et schéma de la goutte pendante analysé par l'ordinateur (b). (Laboratoire de Biophysique, ENSIA). (D'après Rodriguez-Patiño *et al.*, 1999)

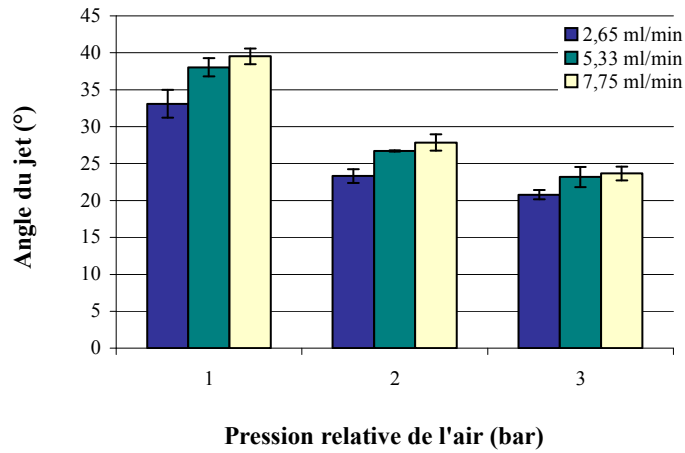


Figure 3.1.1 Influences de la pression relative de l'air de pulvérisation et du débit de liquide (eau colorée, 20°C) au niveau de la buse de pulvérisation (0 tour, position 1) sur l'angle du jet.

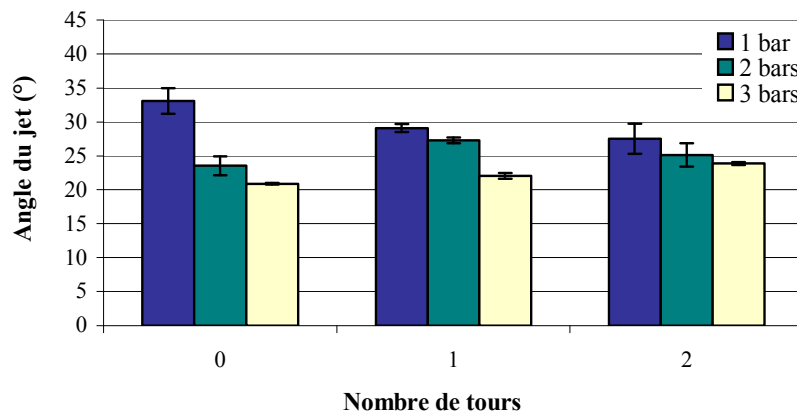


Figure 3.1.2 Influence du réglage de la buse de pulvérisation (nombre de tours à la position 1) sur l'angle du jet pour un débit d'eau de 2,65 ml/min à différentes pressions relatives de l'air comprimé.

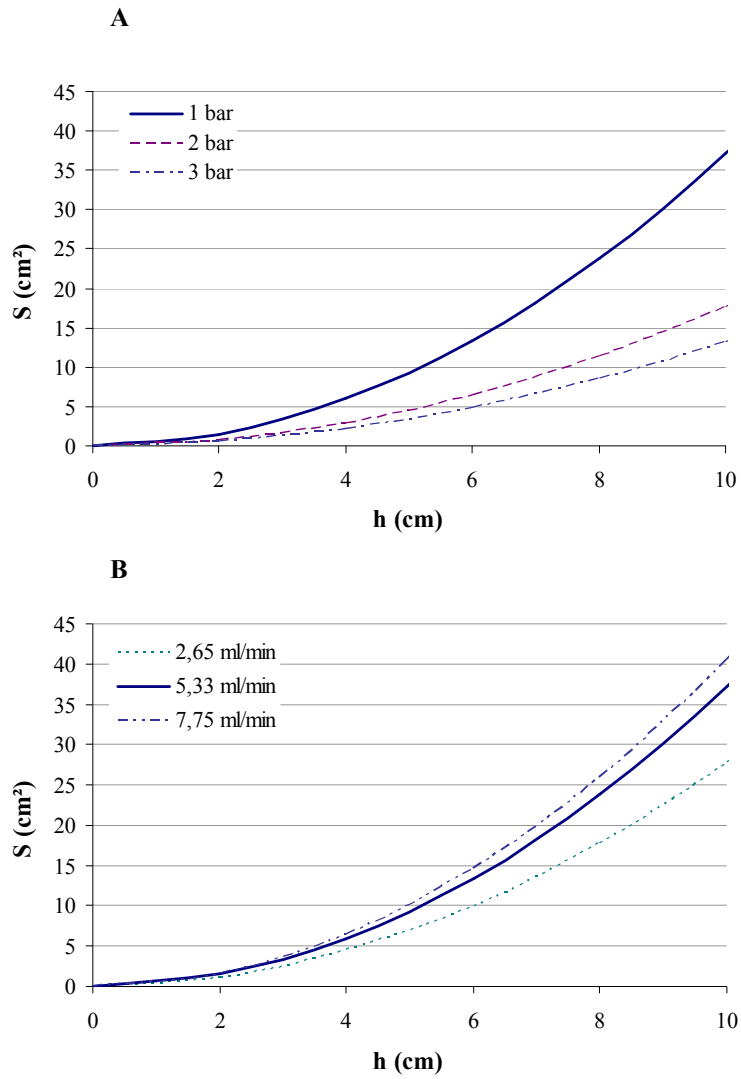


Figure 3.1.3 Surface (S) de la base du jet à différentes distances (h) de la buse, pour différentes pressions relatives de l'air à 5,33 ml/min (**A**) et différents débits de liquide à 1 bar (**B**).

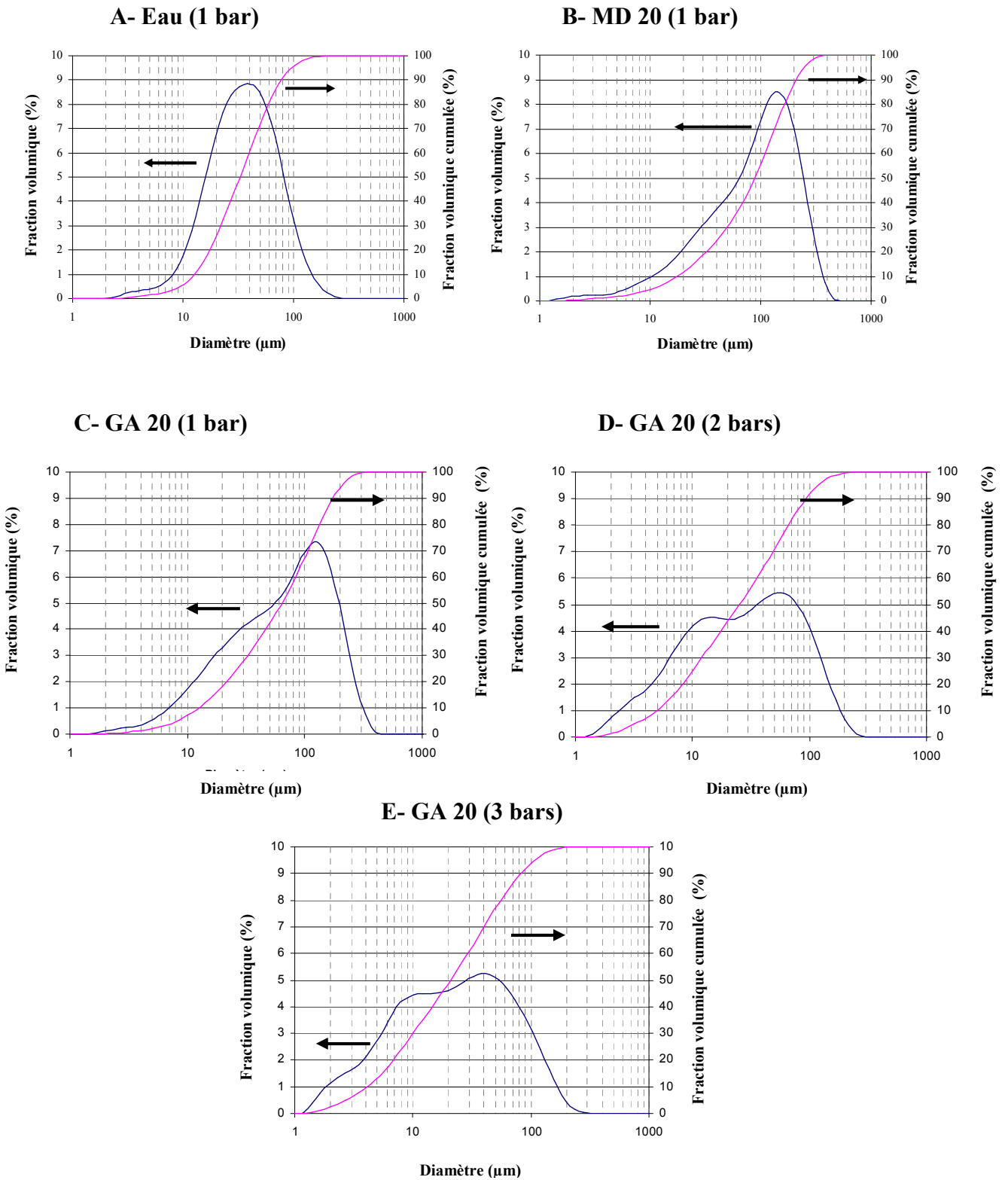
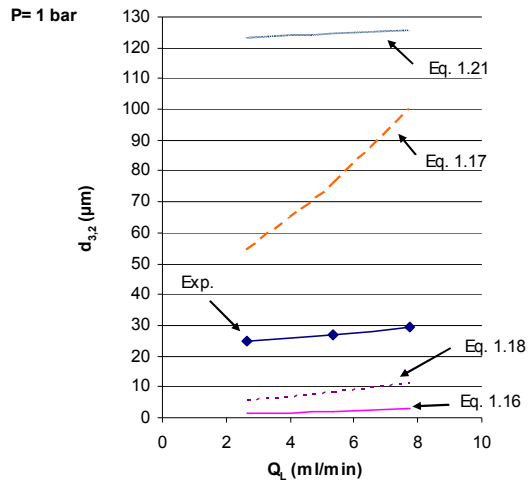


Figure 3.1.4 Distribution de la taille des gouttes pour l'eau pulvérisée à 1 bar et 2,65 ml/min (A), une solution de maltodextrine à 20% en masse à 1 bar et 5,33 ml/min (B) et une solution de gomme d'acacia à 20% en masse à 5,33 ml/min et différentes pressions d'air : 1 bar (C), 2 bar (D) et 3 bar (E).

A.



B.

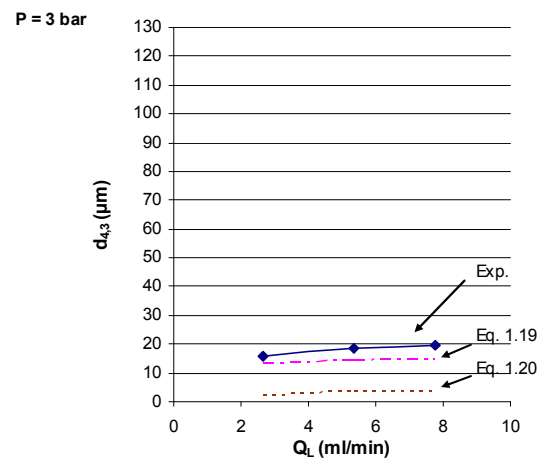
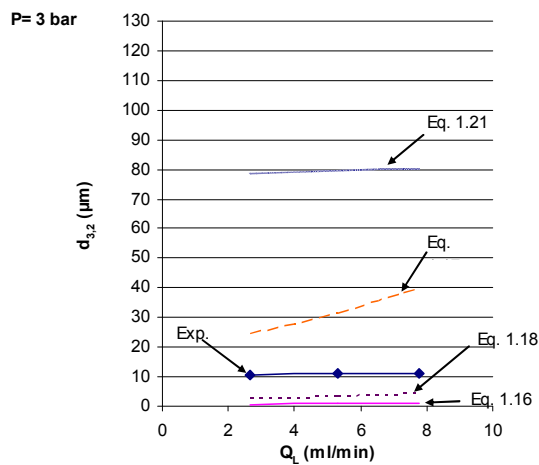
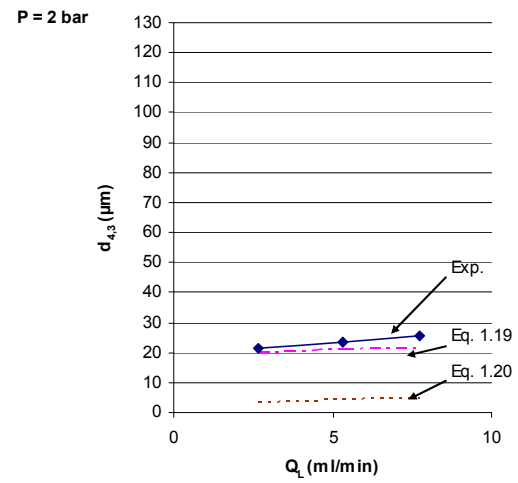
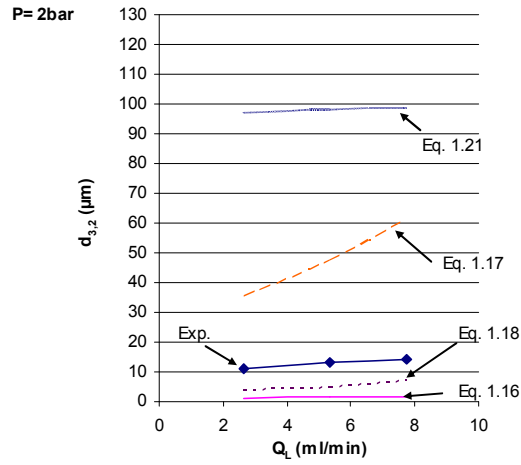
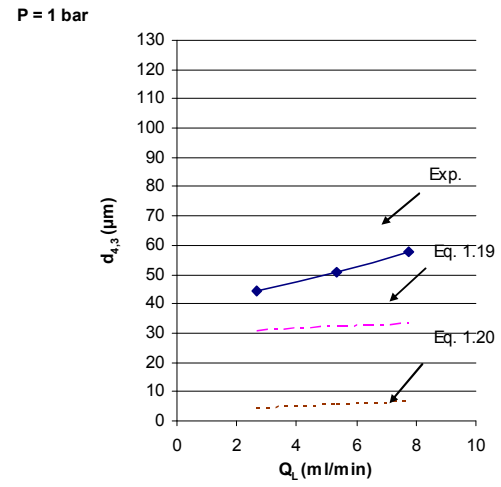


Figure 3.1.5 Tailles des gouttes en $d_{3,2}$ (A) et $d_{4,3}$ (B) expérimentales et calculées pour l'eau pulvérisée par une buse bi-fluide à différents débits de liquide et pour différentes pressions d'air.

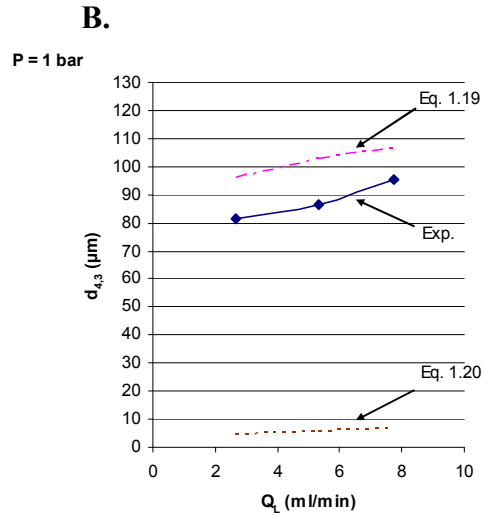
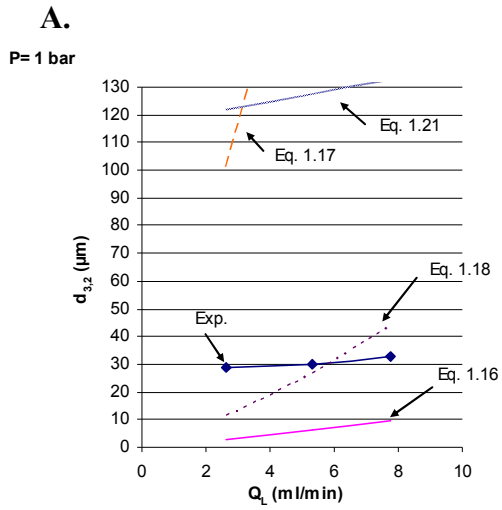


Figure 3.1.6 Tailles des gouttes en $d_{3,2}$ (A) et $d_{4,3}$ (B) expérimentales et calculées en fonction du débit de liquide pour une solution de *gomme d'acacia* à 20% pulvérisée par une buse bi-fluide à 1 bar.

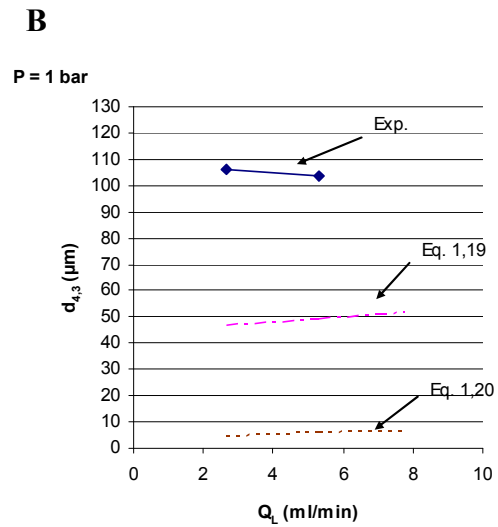
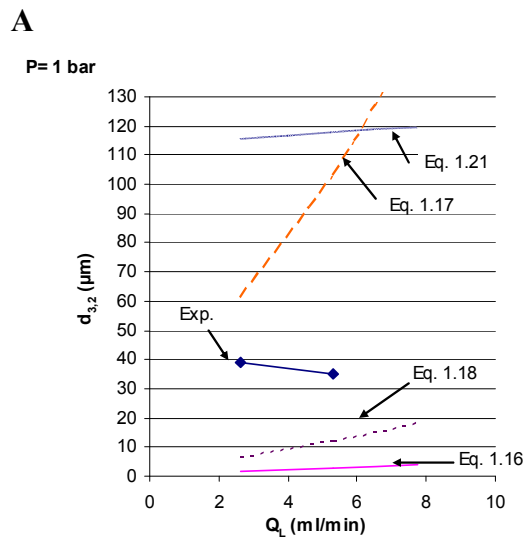


Figure 3.1.7 Tailles des gouttes en $d_{3,2}$ (A) et $d_{4,3}$ (B) expérimentales et calculées en fonction du débit de liquide pour une solution de *maltodextrine* à 20% pulvérisée par une buse bi-fluide à 1 bar.

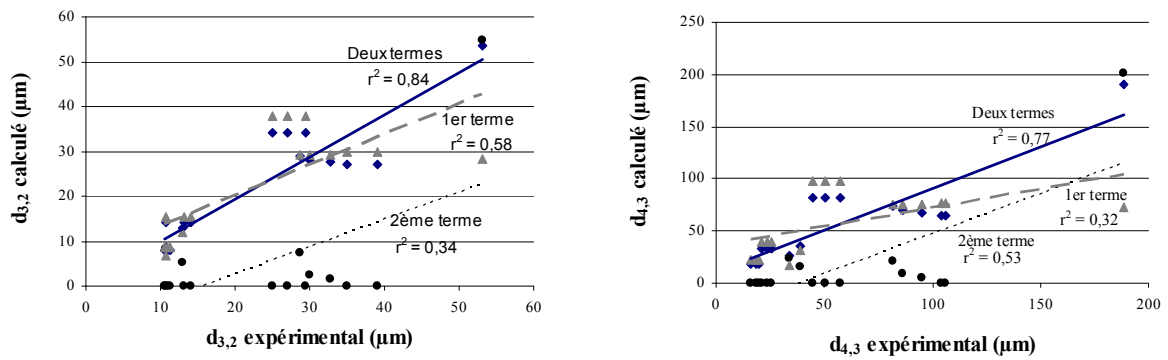


Figure 3.1.8. Influence des deux termes de l'équation 3.2 proposée pour le calcul du diamètre des gouttes pulvérisées. Diamètres calculés avec le 1^{er} terme uniquement \blacktriangle (Eq. 3.3), le 2^{ème} terme uniquement \bullet (Eq. 3.4), les deux termes \blacklozenge (Eq. 3.5).

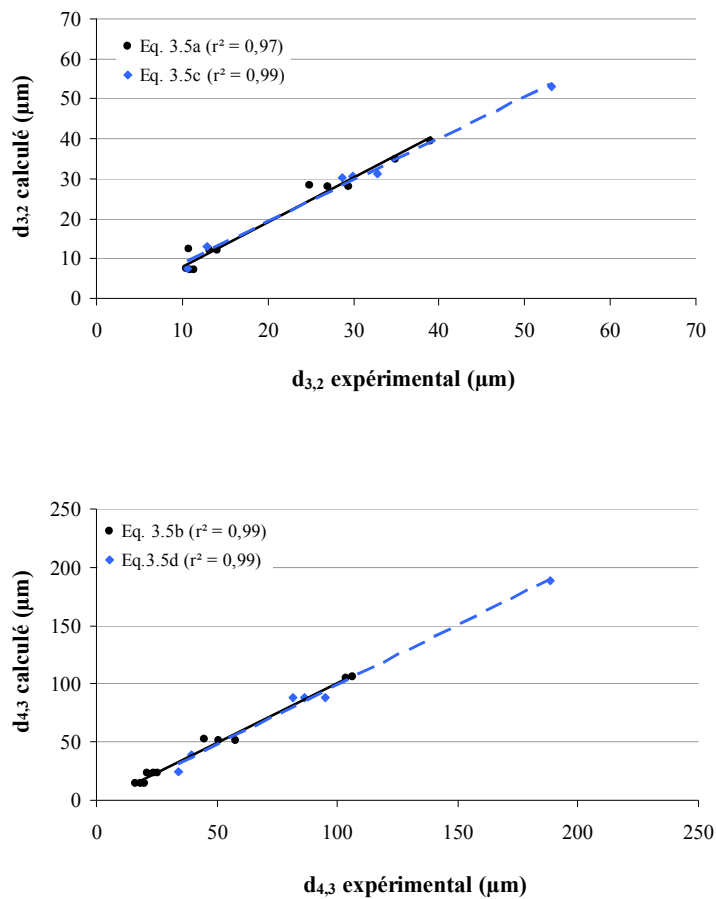


Figure 3.1.9. Diamètres de gouttes $d_{3,2}$ et $d_{4,3}$ calculés pour les liquides de viscosité comprise entre 1 à 4,4 mPa.s, Eq. 3.5a et 3.5b (—) et de viscosité comprise entre 43 à 204 mPa.s, Eq. 3.5c et 3.5d (- - -).

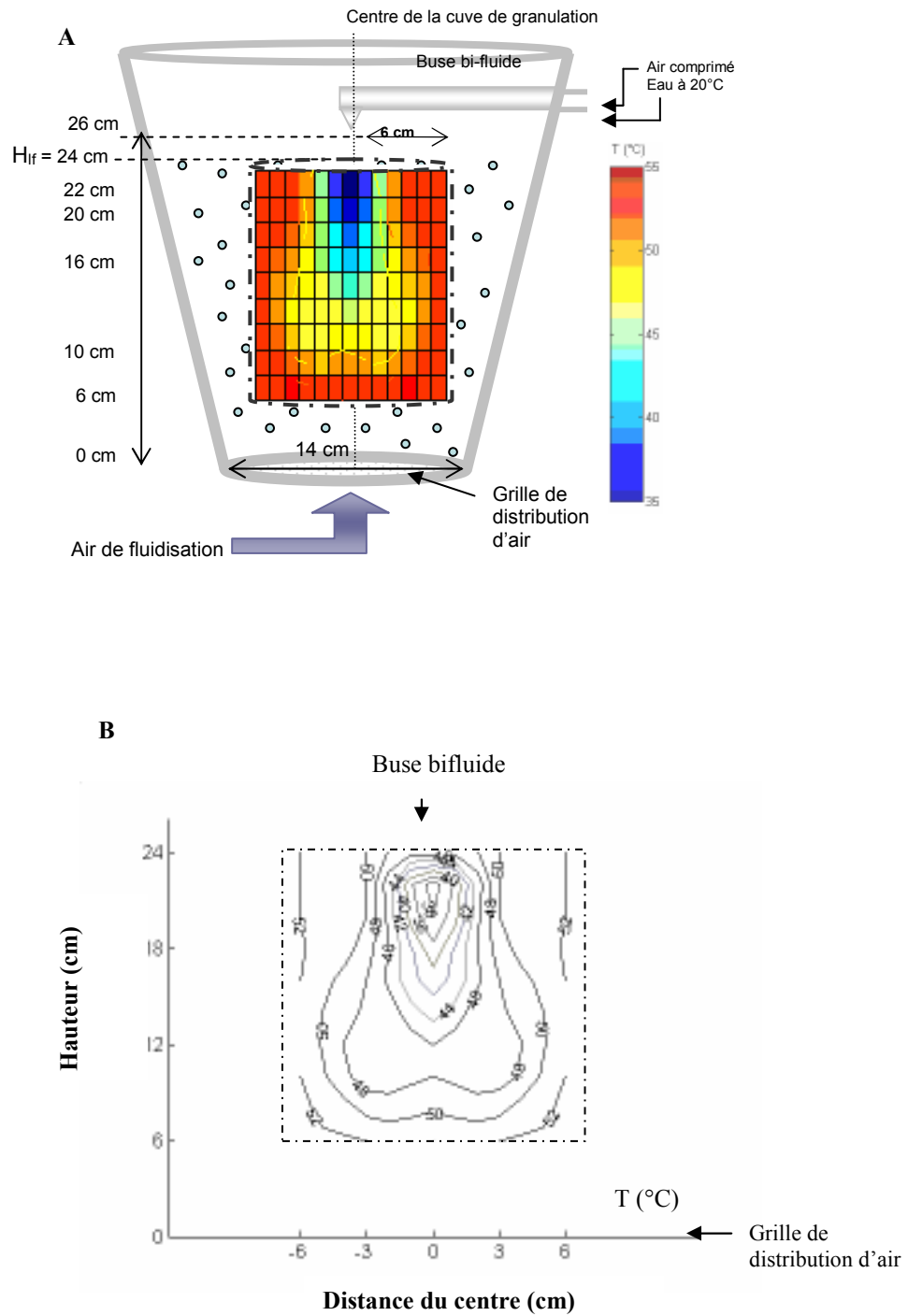


Figure 3.2.1. Répartition des températures de l'air de fluidisation dans un lit de billes de verre avec pulvérisation d'eau par le dessus (essai 4a). (-.-.-) limite de la zone de mesure dans la cuve de fluidisation (A) et isothermes 2D correspondantes (B).

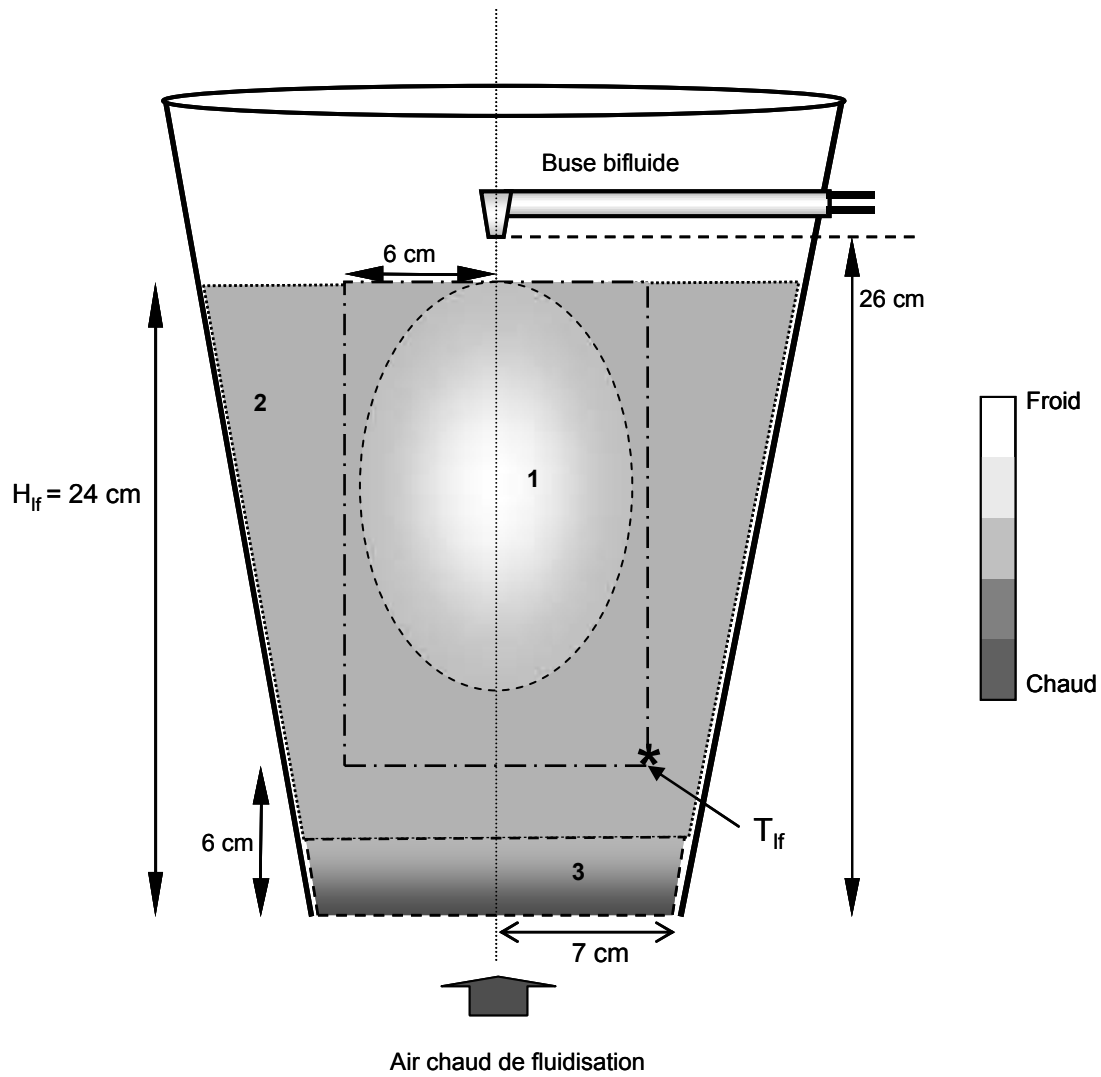


Figure 3.2.2. Schéma des zones thermiques identifiées dans un lit fluidisé conique en présence d'un jet de pulvérisation d'eau (1 : zone active de mouillage (---), 2 : zone isotherme (····) et 3 : zone de transfert actif de chaleur (- · - ·)). H_{lf} : hauteur du lit fluidisé de particules. (---) Limite de la zone de mesure. (*) Emplacement de la sonde utilisée pour la mesure de la température du lit T_{lf} .

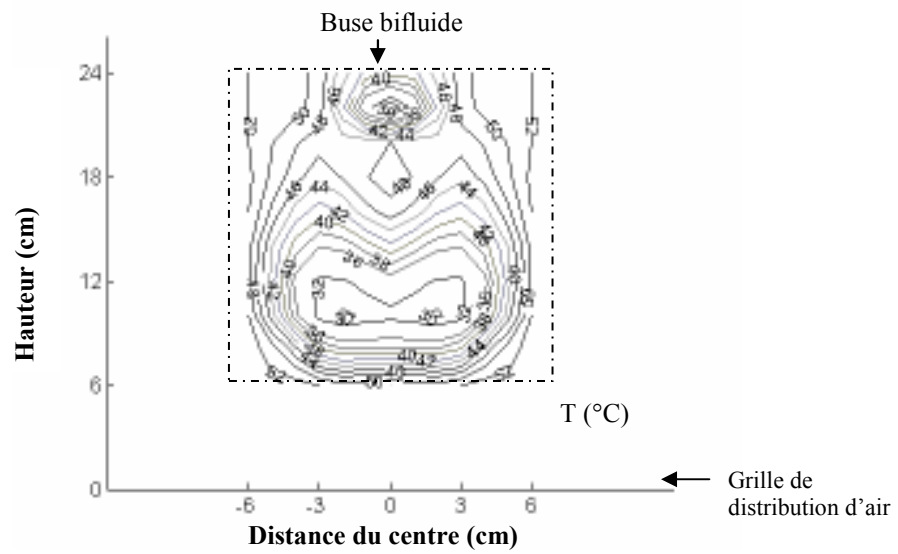


Figure 3.2.3. Répartition des températures de l'air pour l'essai 5a avec une pression relative de l'air de pulvérisation de 3 bar. (---) Limite de la zone de mesure.

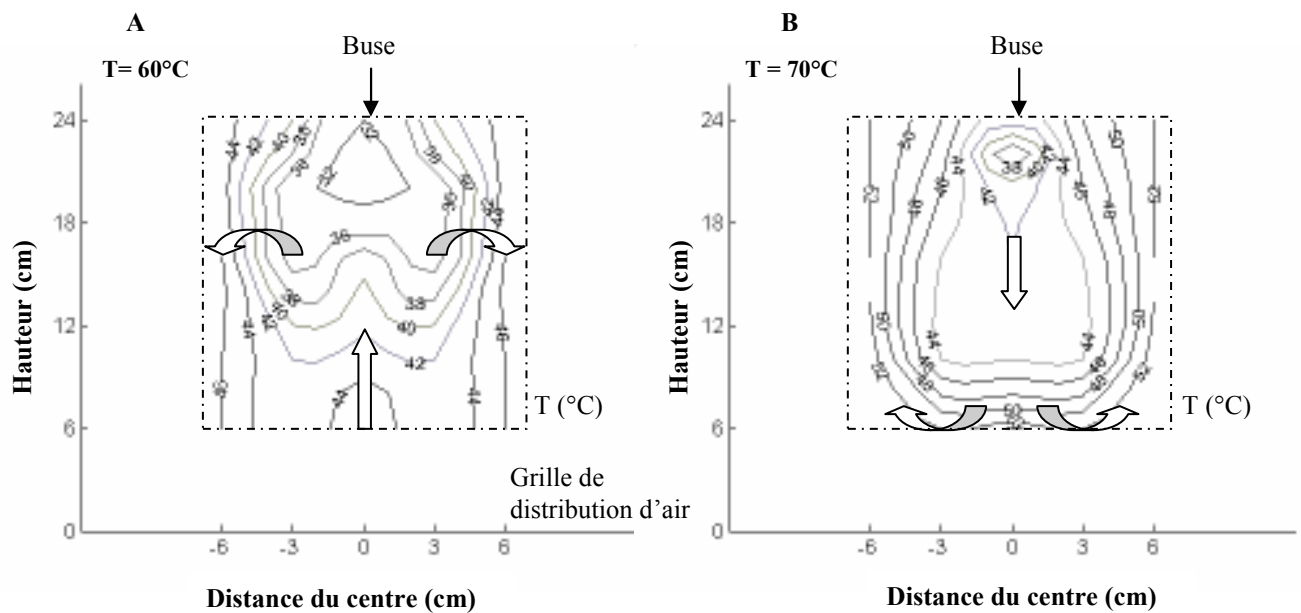


Figure 3.2.4. Répartition des températures de l'air pour la fluidisation de billes de verre en pulvérisant de l'eau (5,33 ml/min, 1 bar) avec différentes températures d'entrée de l'air de fluidisation (T), présentant les deux allures des isothermes obtenues : type entonnoir (A) et type cloche (B). (---) Limite de la zone de mesure.

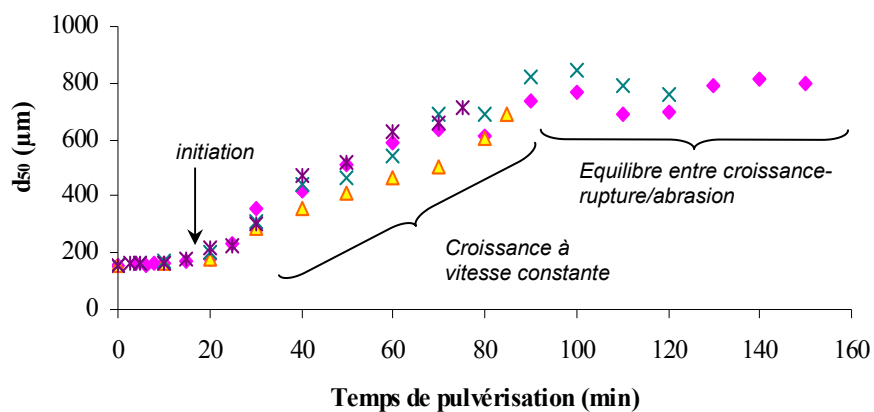


Figure 3.1. Répétabilité des essais et allure des courbes de croissance. Conditions de l'essai 1 (de référence) : 500 g billes de verre, solution de gomme d'acacia 20% w/w, 5,33 ml/min, 1 bar, 70°C.

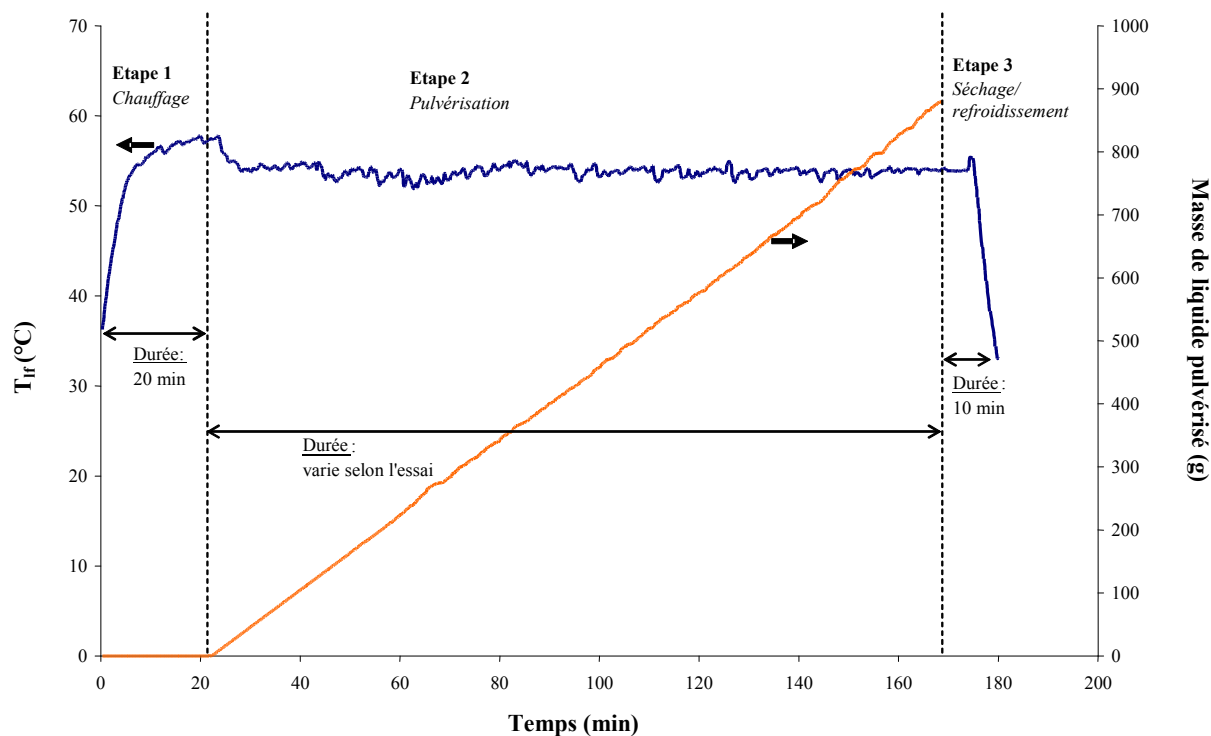


Figure 3.2. Evolution de la température moyenne du lit fluidisé et de la masse de liquide pulvérisé pendant les différentes étapes d'un essai d'agglomération.

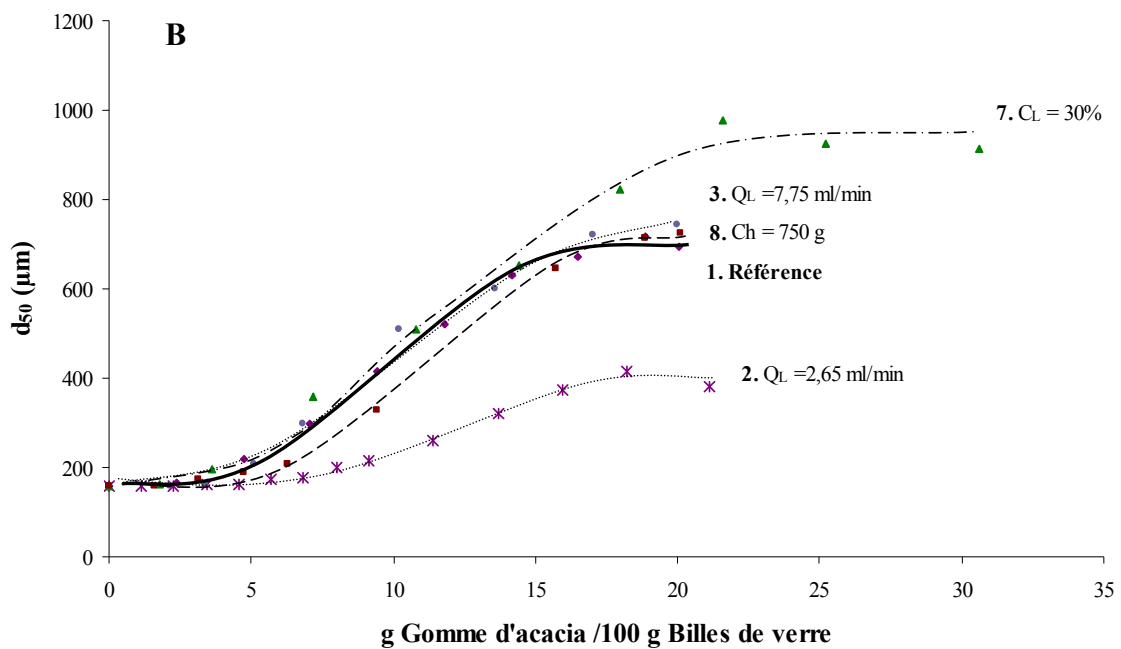
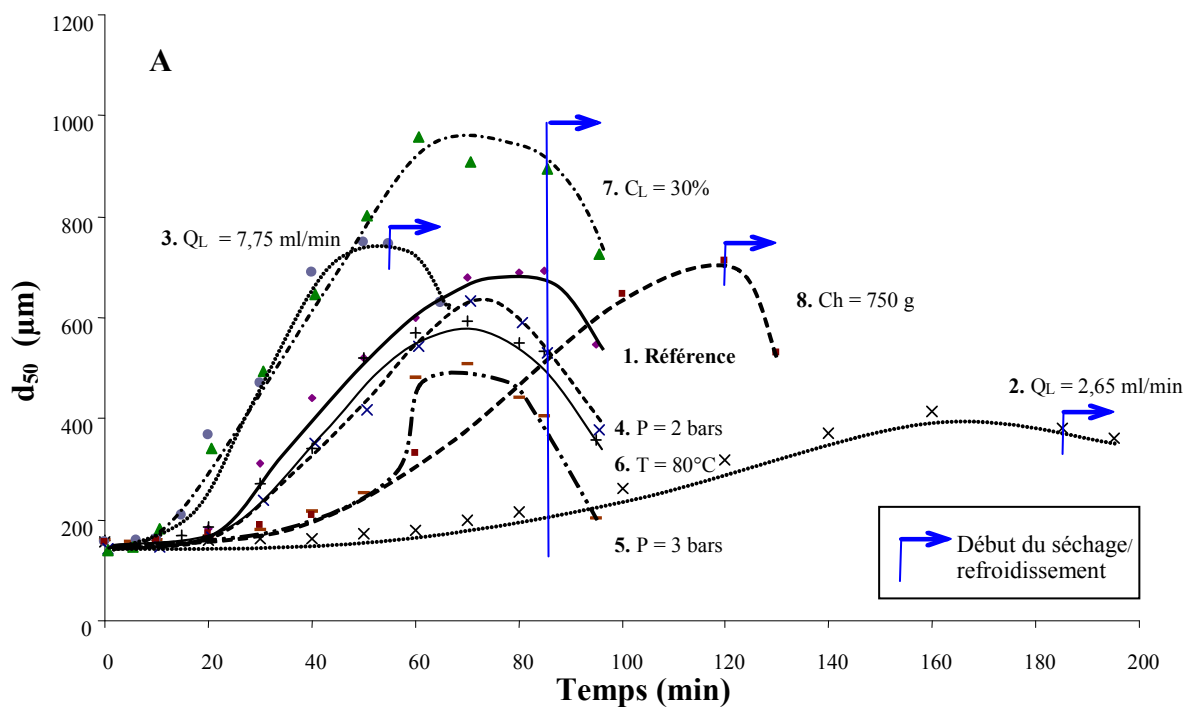


Figure 3.3. Influence des conditions opératoires sur l'évolution du diamètre médian des agglomérats de billes de verre- gomme d'acacia pendant la pulvérisation du liant et au début de l'étape de séchage/ refroidissement, en fonction du temps de pulvérisation (A) et de la quantité de liant pulvérisée (B). Référence : 5,33 ml/min, 1 bar, 70°C, 500g, 20% w/w.

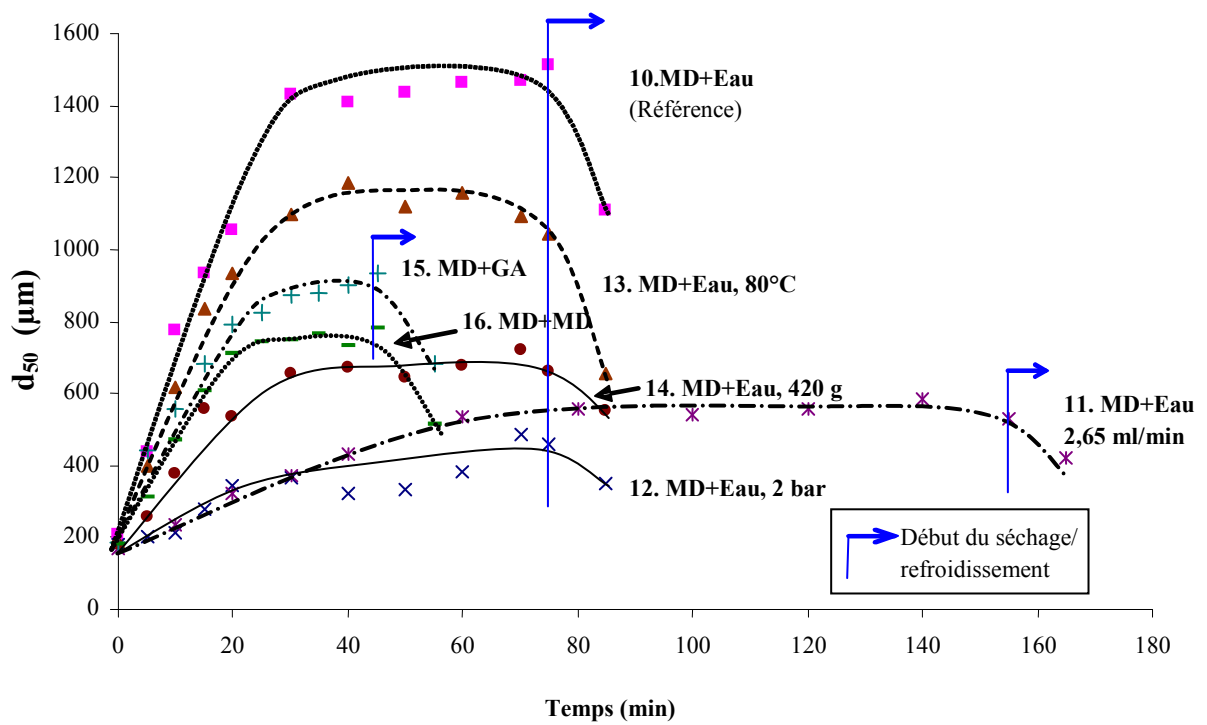


Figure 3.4. Influence des conditions opératoires sur l'évolution du diamètre médian des particules de maltodextrine (MD) pendant la pulvérisation d'eau (MD+ Eau), d'une solution de gomme d'acacia à 20% en masse (MD+ GA) ou d'une solution de maltodextrine à 20% en masse (MD+MD) et au début de l'étape de séchage/refroidissement. (Référence : 280 g, 70°C, 5,33 ml/min, 1 bar).

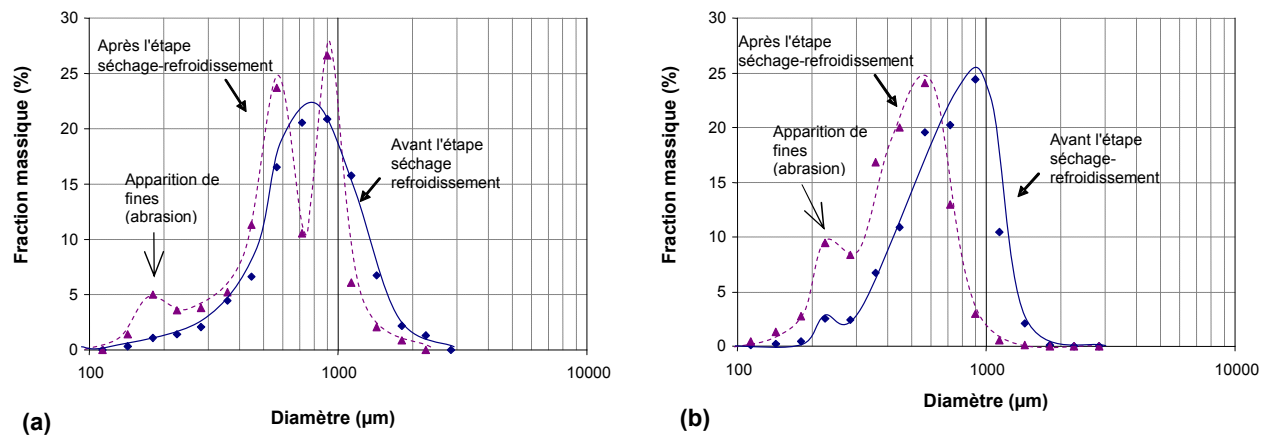


Figure 3.5. Comparaison des distributions de taille des particules avant et après l'étape de séchage-refroidissement. **(a)** disparition partielle des agglomérats les plus gros (billes de verre-gomme d'acacia, essai 1) **(b)** disparition des agglomérats les plus gros (maltodextrine- maltodextrine, essai 16).

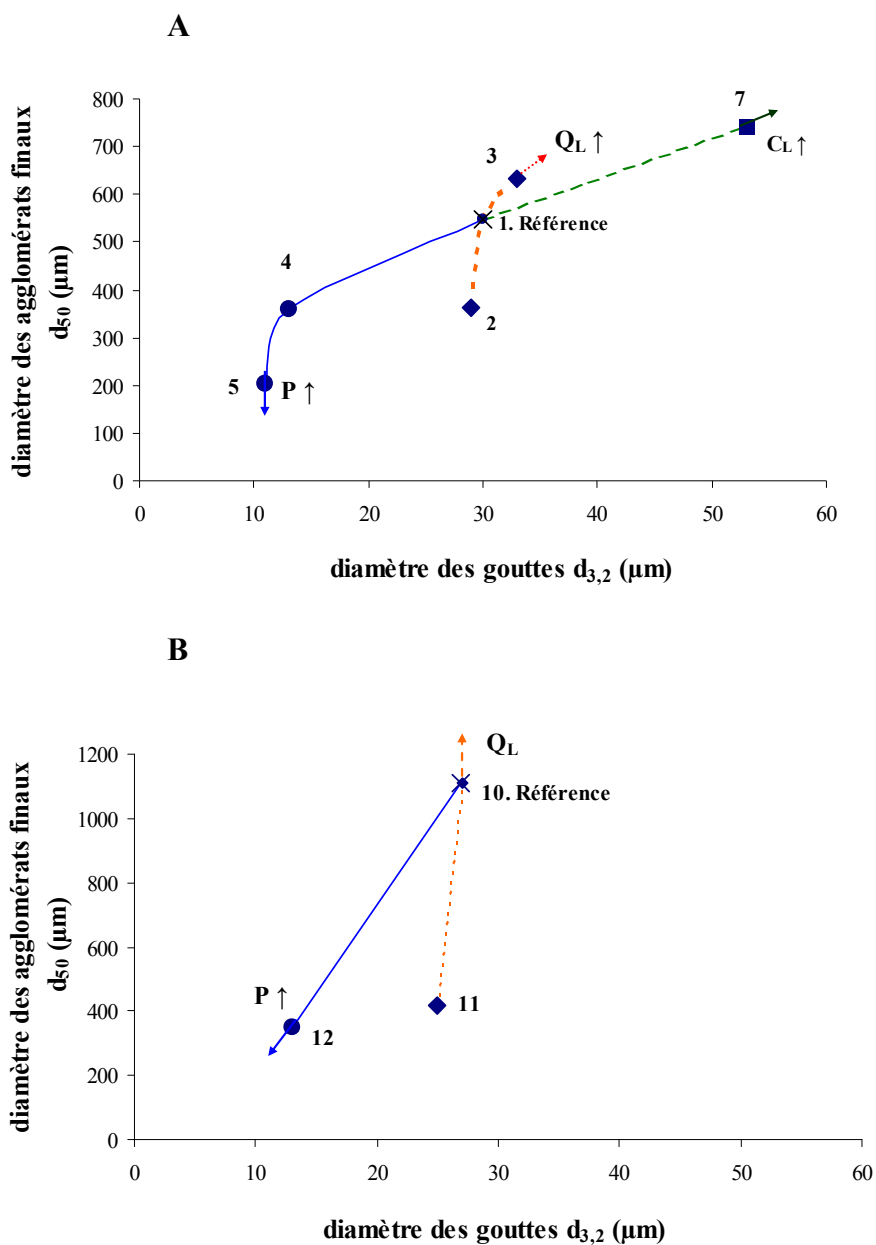


Figure 3.6. Effet du diamètre des gouttes pulvérisées sur la taille des *agglomérats finaux* : billes de verre agglomérées avec de la gomme d'acacia (A) et maltodextrine agglomérée avec de l'eau (B), en variant les conditions de pulvérisation : Q_L = débit du liquide de pulvérisation (♦), P = pression relative de l'air de pulvérisation (●) et C_L = concentration de la solution de la gomme d'acacia (■).

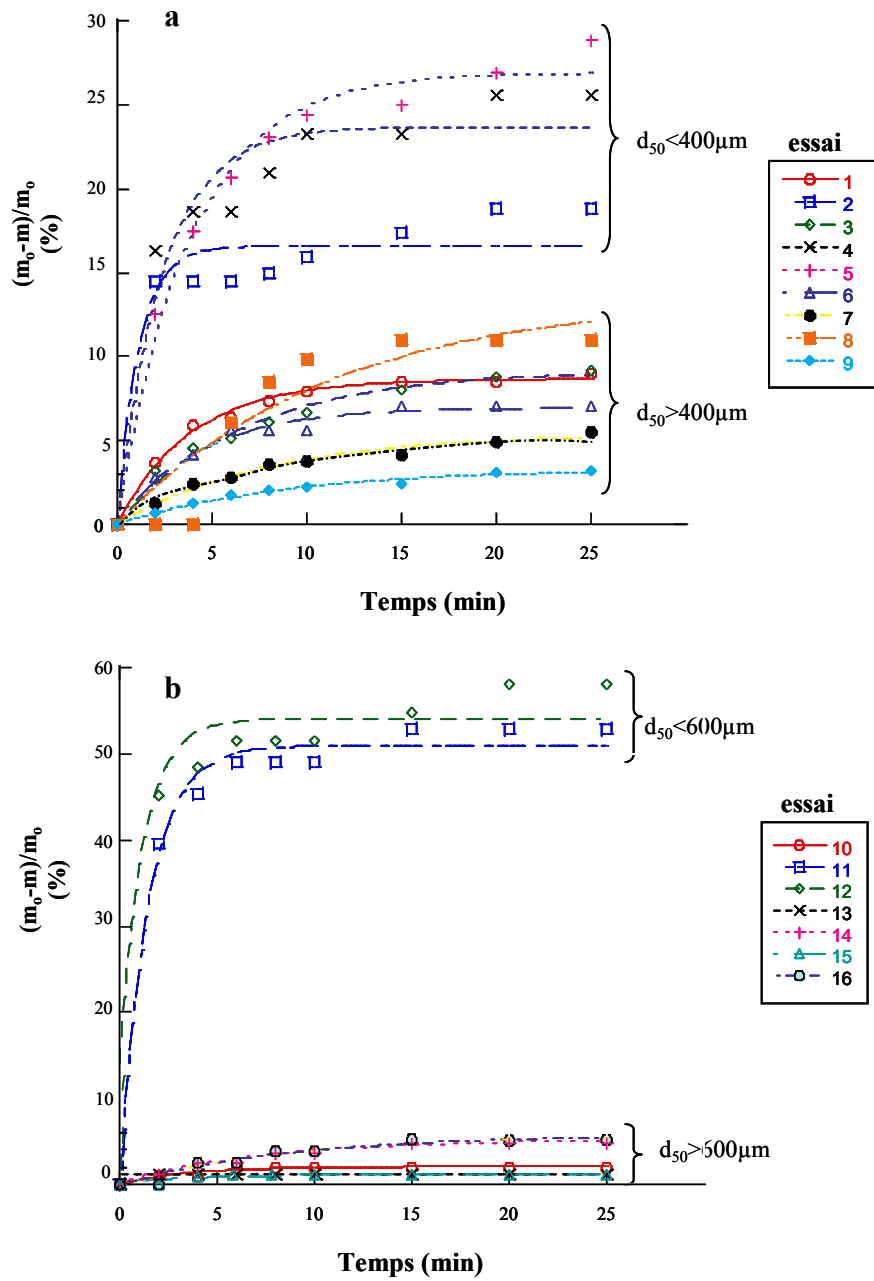


Figure 3.7. Indice de friabilité pour les agglomérats de billes de verre-gomme d'acacia (a) (essais 1 à 9) et de maltodextrine (b) (essais 10 à 16). d_{50} : diamètre médian des agglomérats.

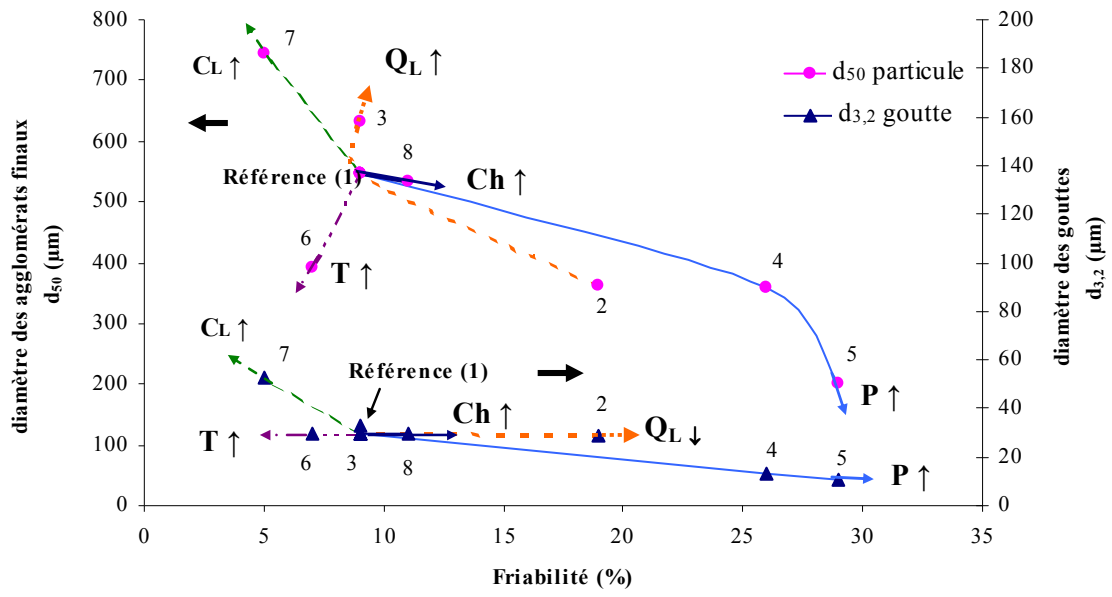
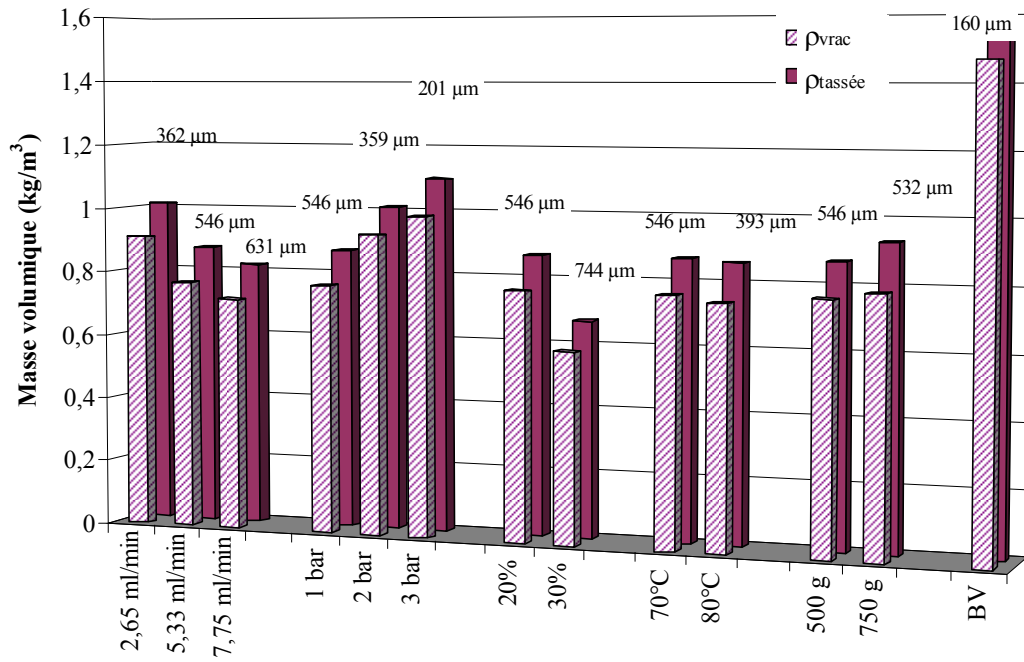


Figure 3.8. Influence de la taille finale des agglomérats et la taille des gouttes du liquide pulvérisé sur la friabilité des agglomérats de billes de verre-gomme d'acacia.

a



b

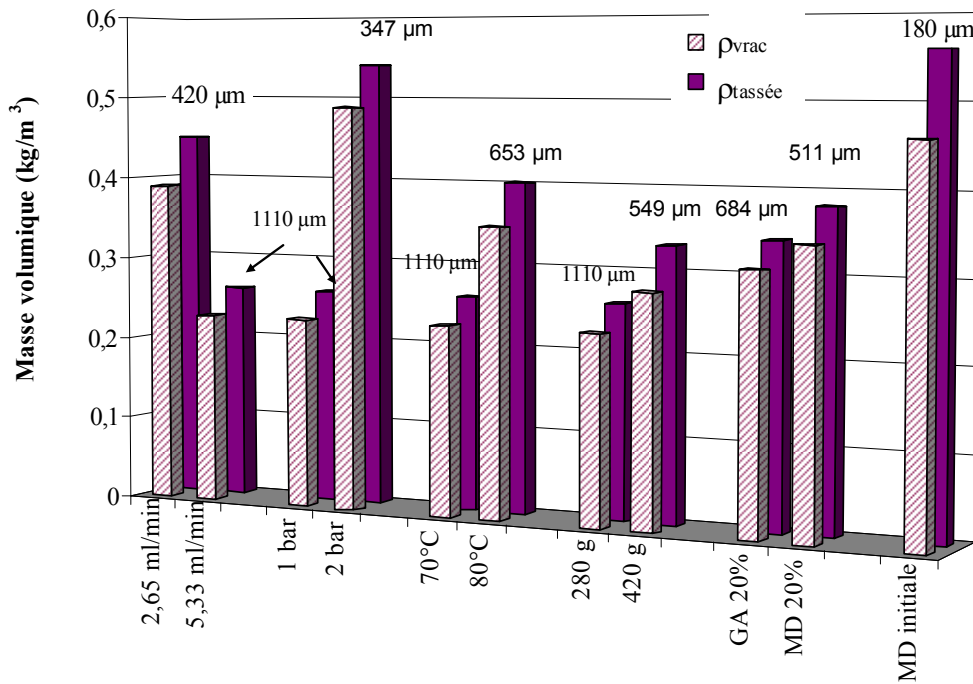


Figure 3.9. Influence des conditions opératoires sur les masses volumiques vrac et tassée pour les agglomérats des billes de verre-gomme d'acacia (a) et de maltodextrine (b).

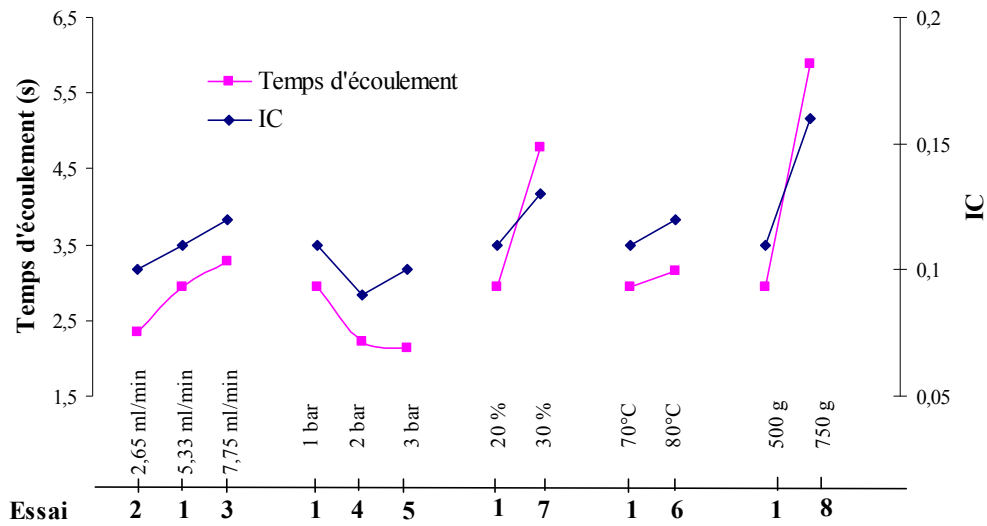
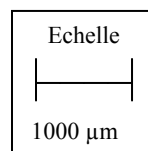
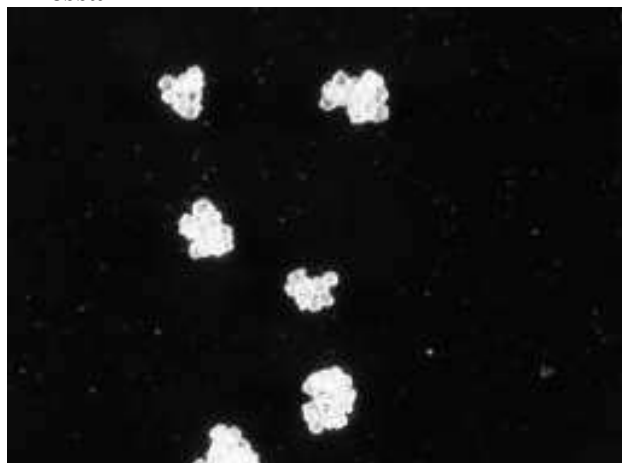
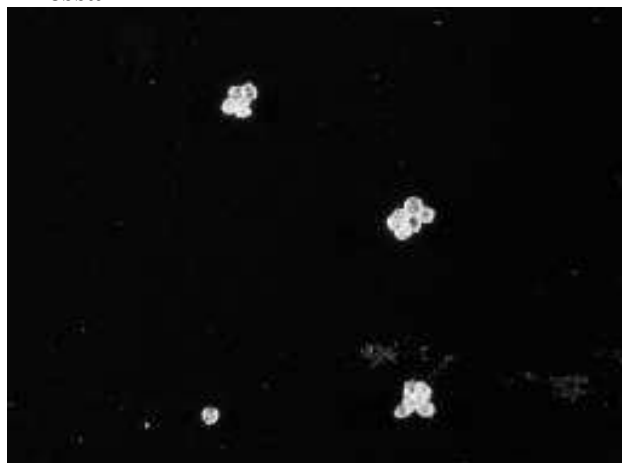


Figure 3.10. Influence des différentes conditions opératoires sur le temps d'écoulement et l'indice de Carr (IC) pour les agglomérats de billes de verre-gomme d'acacia.

A- essai 1



B- essai 2



C- essai 5

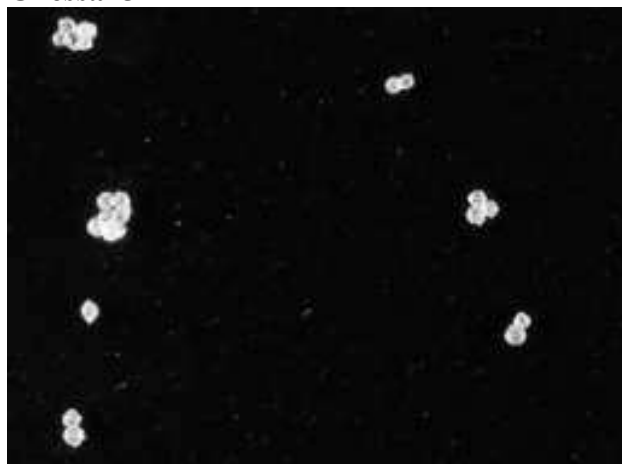


Figure 3.11. Images au microscope optique des agglomérats de billes de verre-gomme d'acacia pour les essais : (A) 1. Référence (500 g, 5,33 ml/min, 1 bar, 70°C, 20 g gomme d'acacia/ 100 g billes de verre, 20%), (B) 2. $Q_L = 2,65$ ml/min et (C) 5. $P = 3$ bar.

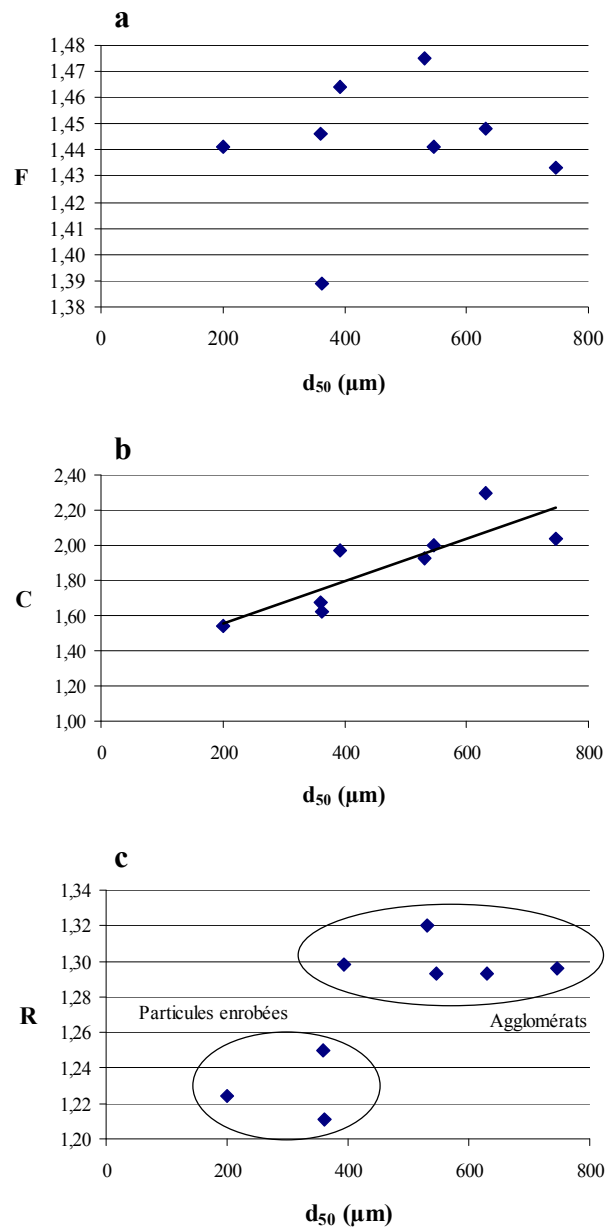


Figure 3.12. Relation entre les descripteurs de forme : (a) elongation F, (b) circularité C, (c) roundness R et le diamètre médian des agglomérats de billes de verre-gomme d'acacia.

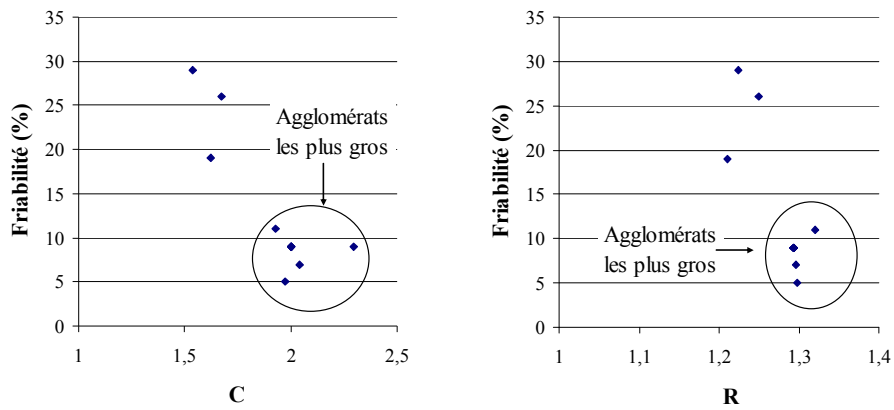


Figure 3.13. Relation entre la friabilité des agglomérats de billes de verre-gomme d'acacia et leur forme : (a) circularité C et (b) roundness R.

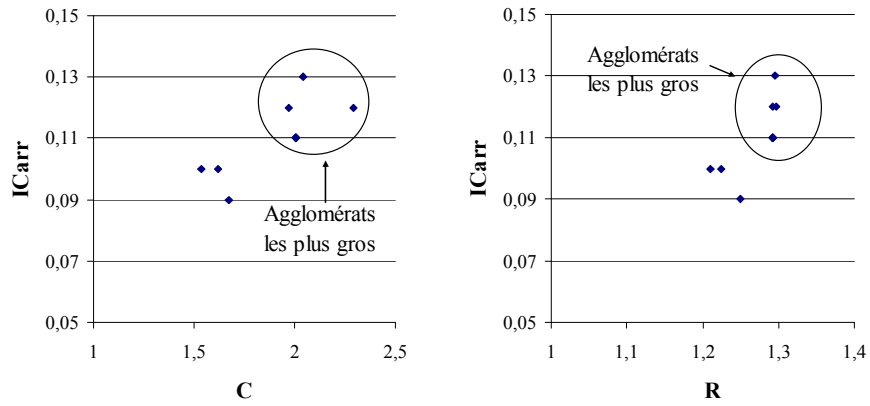


Figure 3.14. Relation entre l'aptitude à l'écoulement (ICarr) des agglomérats de billes de verre-gomme d'acacia et leur forme : (a) circularité C et (b) roundness R.

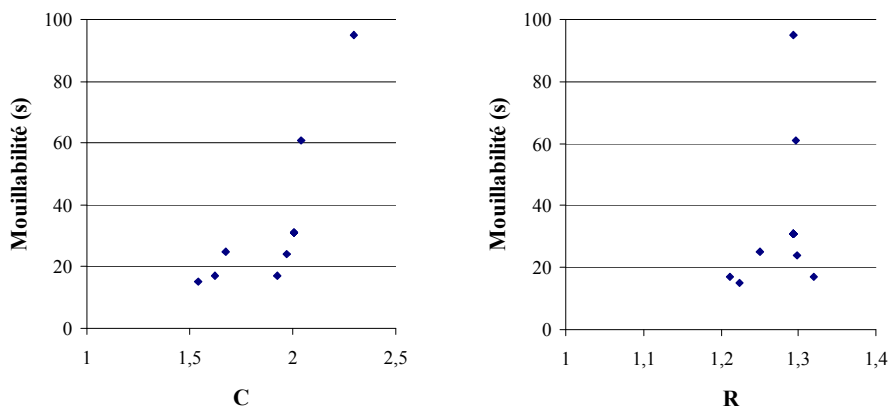


Figure 3.15. Relation entre la mouillabilité des agglomérats de billes de verre-gomme d'acacia et leur forme : (a) circularité C et (b) roundness R.

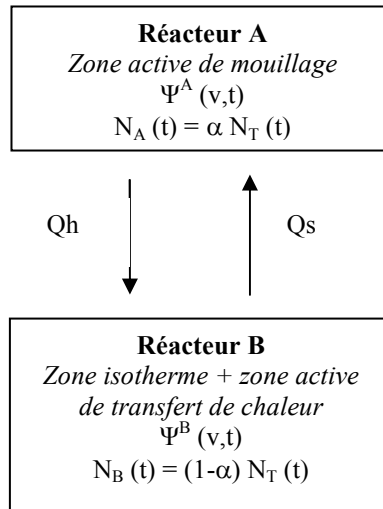


Figure 4.1 Modélisation de l'agglomération en lit fluidisé par deux réacteurs parfaitement mélangés.

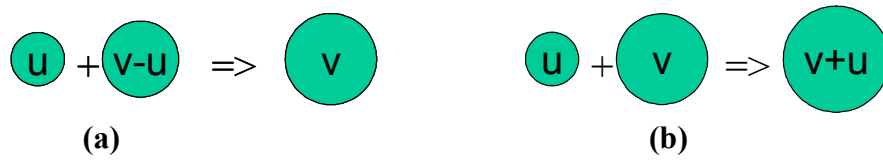


Figure 4.2. Apparition (a) et disparition (b) de particules de volume v par agglomération.

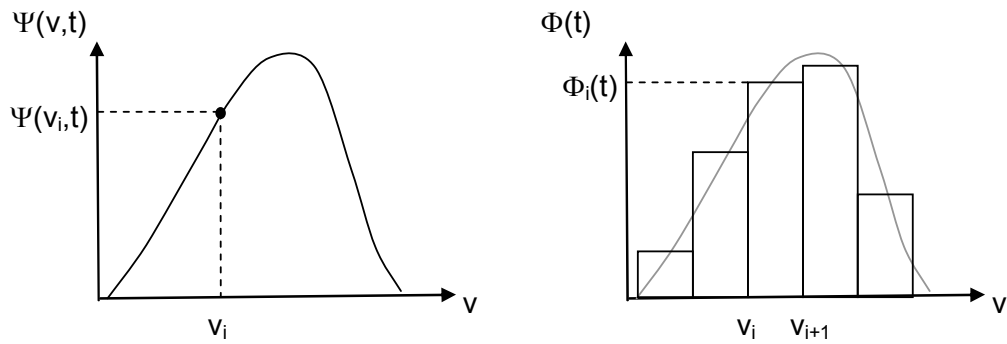


Figure 4.3. Fonction de densité de population continue $\Psi(v,t)$ et discrète $\phi_i(t)$.

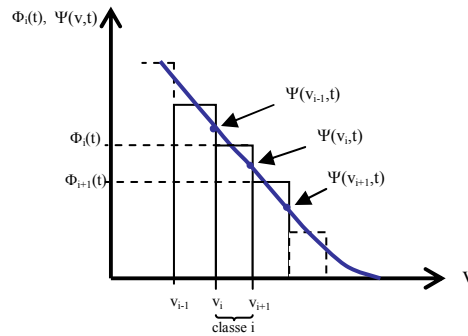


Figure 4.4 Discretisation de la fonction de densité de population $\Psi(v,t)$, fonction continue, en $\Phi_i(t)$, fonction discrète pour *la classe i*.

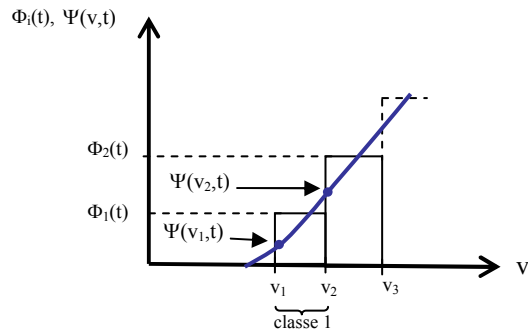


Figure 4.5 Discretisation de la fonction de densité de population $\Psi(v,t)$, fonction continue, en $\Phi_i(t)$, fonction discrète pour *la première classe*.

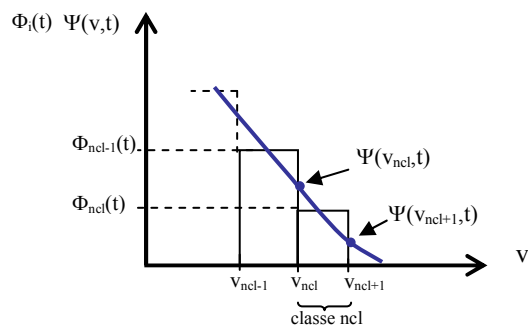


Figure 4.6 Discretisation de la fonction de densité de population $\Psi(v,t)$, fonction continue, en $\Phi_i(t)$, fonction discrète pour *la dernière classe*.

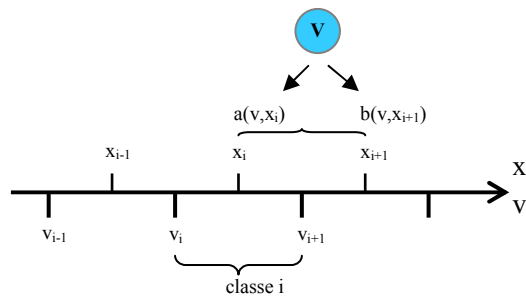


Figure 4.7 Grille utilisée pour la discrétisation des termes d'agglomération par la méthode du pivot fixe.

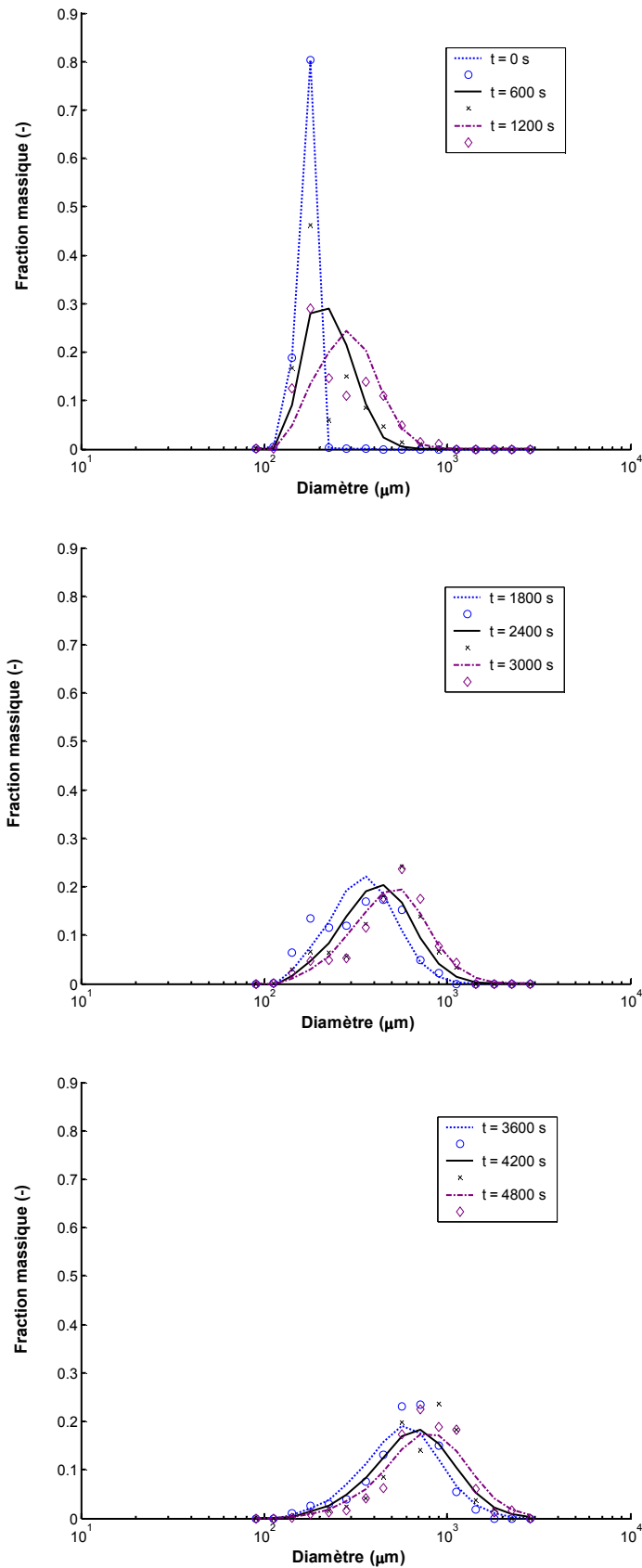


Figure 4.8. Evaluation des distributions de taille théoriques (traits) et expérimentales (points) au cours du temps pendant la pulvérisation d'une solution de la gomme d'acacia (20% w/w) pour l'agglomération des billes de verre dans les conditions de l'essai 1 de référence (500 g billes de verre, 70°C, 1 bar, 5,33 ml/min). ($\beta_0 = 9,71 \times 10^{-12}$, $\gamma = 0,83$, $\kappa = 1,805$).

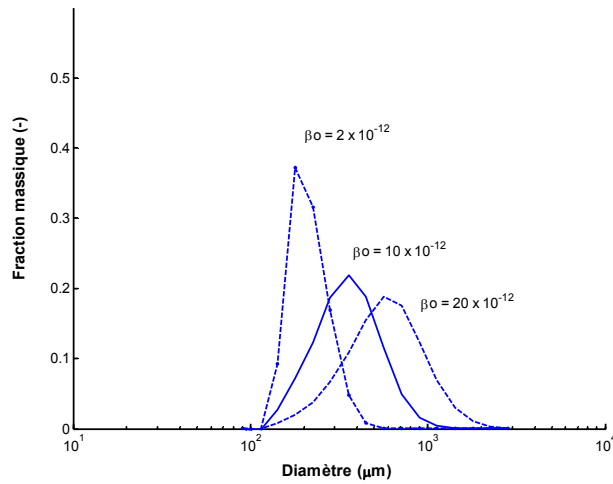


Figure 4.9. Influence du coefficient β_0 sur la distribution de taille théorique (après 45 min de pulvérisation, $\kappa = 1.805$, $\gamma = 0.83$), pour l'essai 1 de référence (500 g billes de verre, 70°C, 20% w/w gomme d'acacia, 1 bar, 5,33 ml/min).

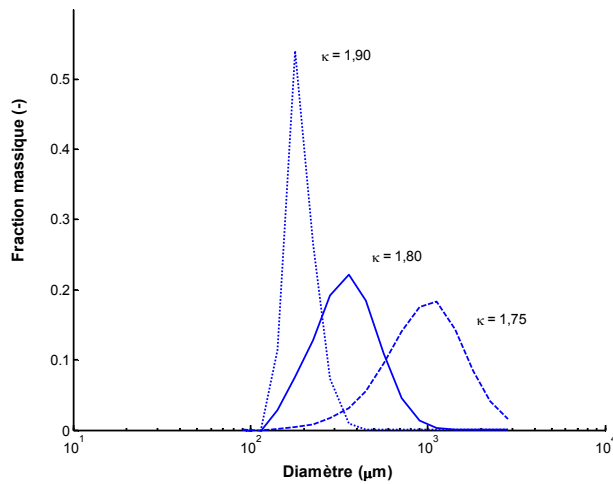


Figure 4.10. Influence du coefficient κ sur la distribution de taille théorique (après 45 min de pulvérisation, $\beta_0 = 9,71 \times 10^{-12}$, $\gamma = 0.83$), pour l'essai 1 de référence (500 g billes de verre, 70°C, 20% w/w gomme d'acacia, 1 bar, 5,33 ml/min).

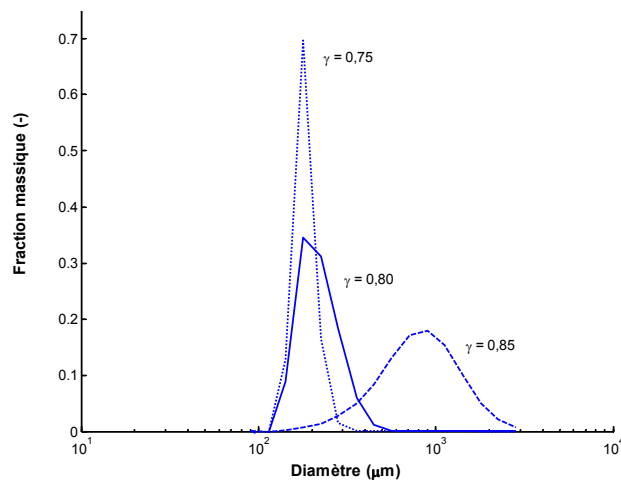


Figure 4.11. Influence du coefficient γ sur la distribution de taille théorique (après 45 min de pulvérisation, $\beta_0 = 9,71 \times 10^{-12}$, $\kappa = 1.805$), pour l'essai 1 de référence (500 g billes de verre, 70°C, 20% w/w gomme d'acacia, 1 bar, 5,33 ml/min).

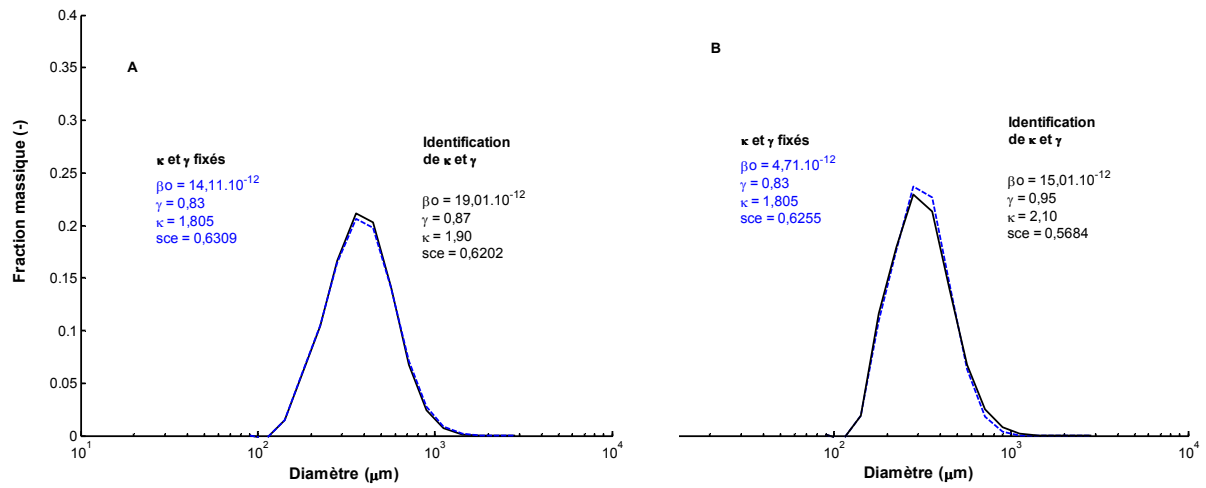


Figure 4.12. Distributions de taille calculées en utilisant les valeurs de β_0 obtenues avec κ et γ fixés (1,80 et 0,83) (---) et en identifiant les 3 paramètres (—), pour l'essai 4 ($P = 2$ bar - **A**) et 5 ($P = 3$ bar - **B**).

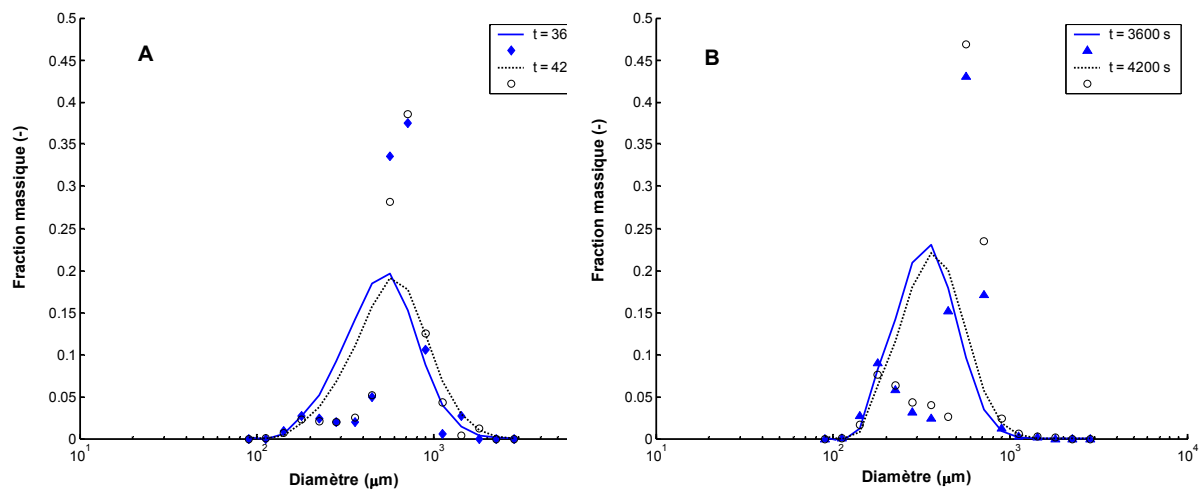


Figure 4.13. Distributions de taille théoriques (traits) et expérimentales (points) pour les essais 4 (**A**) et 5 (**B**).

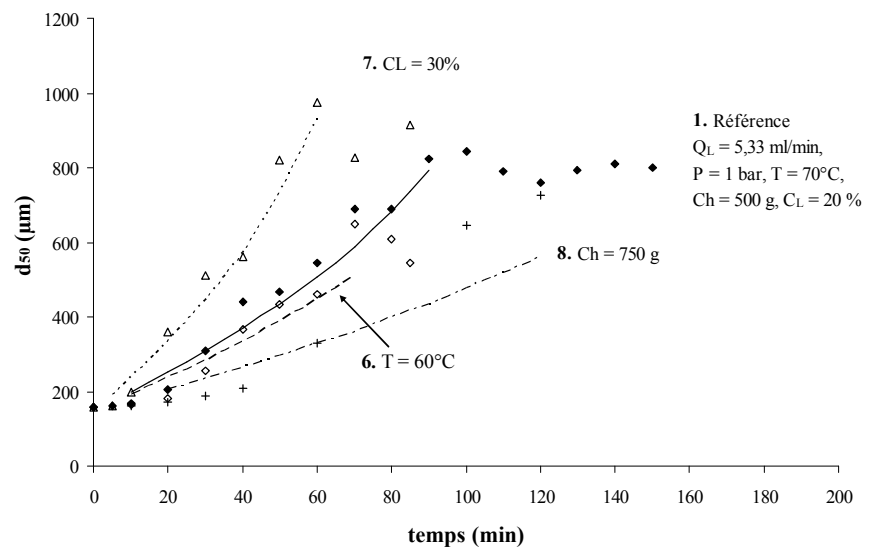
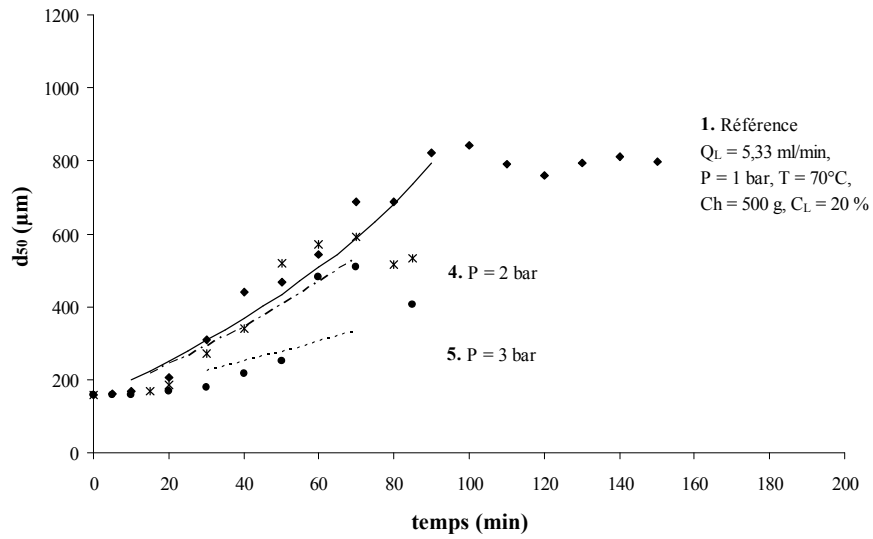
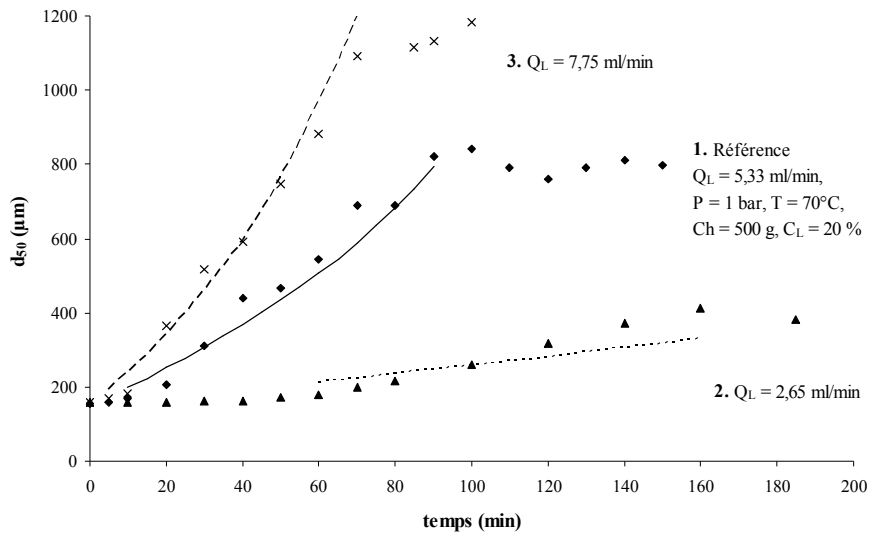


Figure 4.14 Evolution théorique (traits) et expérimentales (points) du diamètre médian en fonction du temps de pulvérisation pour les essais 1 à 8.

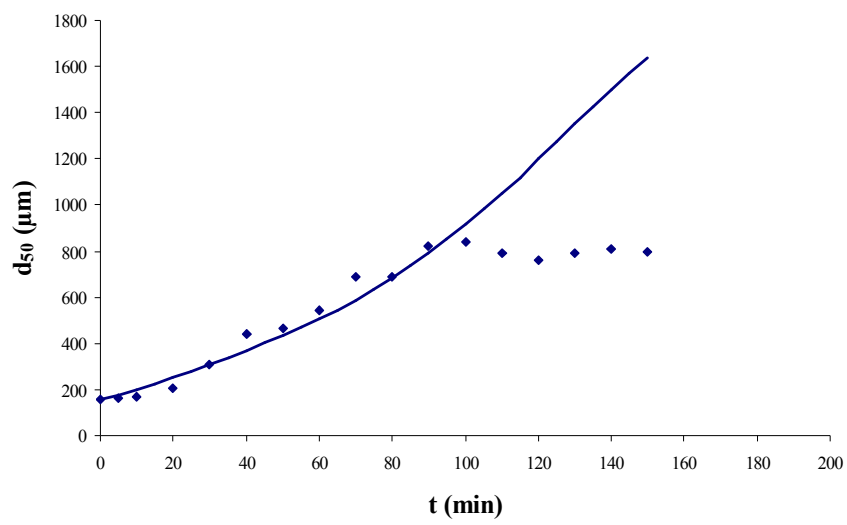


Figure 4.15. Evolution du diamètre médian pendant le temps de pulvérisation, théorique (trait) et expérimentale (points) pour l'essai de référence de billes de verre (1).

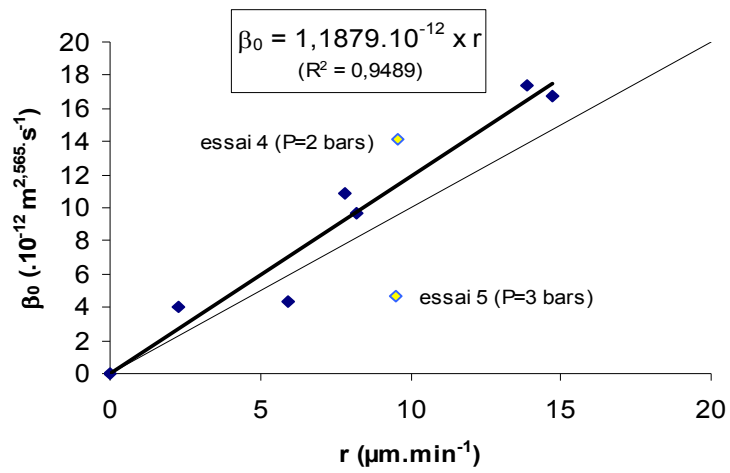


Figure 4.16. Relation entre β_0 et la vitesse de croissance r .

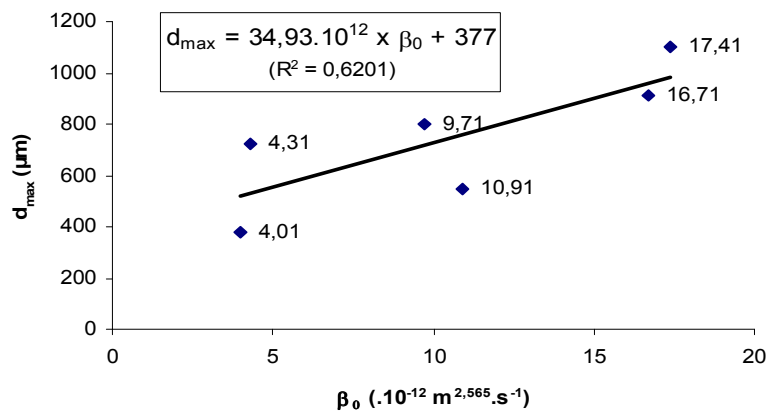


Figure 4.17. Relation entre β_0 et le diamètre maximal atteint pendant l'étape de pulvérisation.

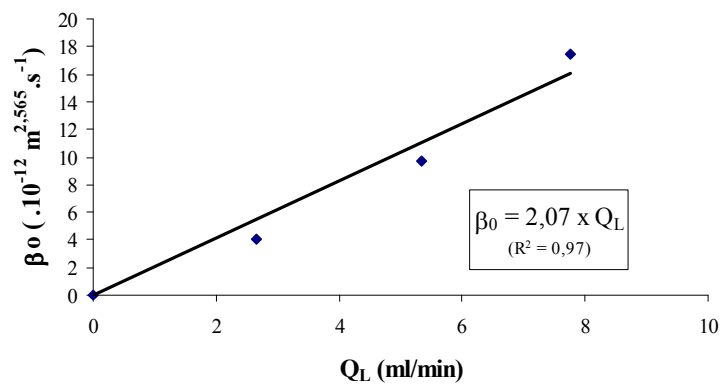


Figure 4.18. Evolution de β_0 en fonction du débit de la solution de liant Q_L .

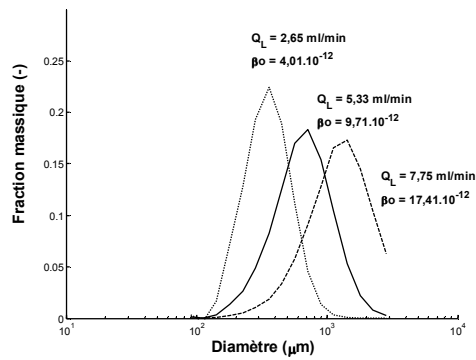


Figure 4.19. Effet du débit de liquide de pulvérisation sur les distributions de taille théoriques (traits) et expérimentales (points) (70 min de pulvérisation, gomme d'acacia 20% w/w, 500 g billes de verre, 70°C, 1 bar). ($\gamma = 0,83$, $\kappa = 1,805$).

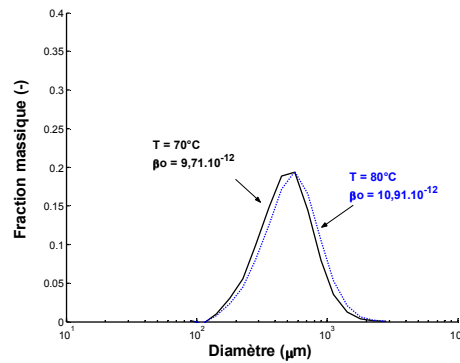


Figure 4.20. Effet de la température de l'air de fluidisation sur les distributions de taille théoriques (traits) et expérimentales (points) (50 min de pulvérisation, gomme d'acacia 20% w/w, 500 g billes de verre, 5,33 ml/min, 1 bar). ($\gamma = 0,83$, $\kappa = 1,805$).

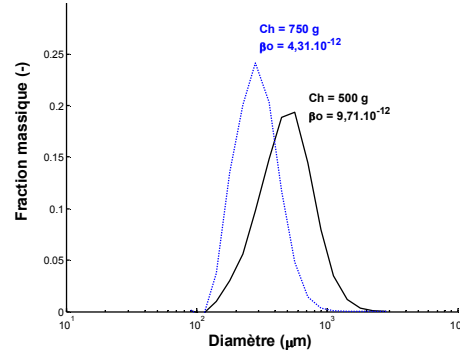


Figure 4.21. Effet de la charge initiale de billes de verre sur les distributions de taille théoriques (traits) et expérimentales (points) (50 min de pulvérisation, gomme d'acacia 20% w/w, 70°C, 5,33 ml/min, 1 bar). ($\gamma = 0,83$, $\kappa = 1,805$).

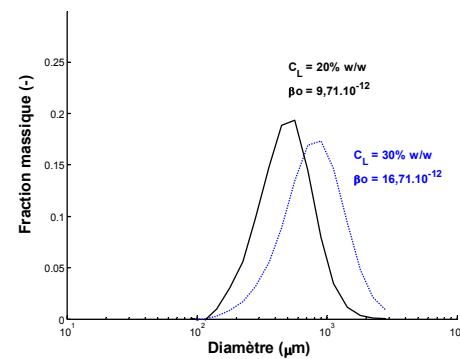


Figure 4.22. Effet de la concentration de la solution de gomme d'acacia sur les distributions de taille théoriques (traits) et expérimentales (points) (50 min de pulvérisation, 500 g billes de verre, 70°C, 5,33 ml/min, 1 bar). ($\gamma = 0,83$, $\kappa = 1,805$).

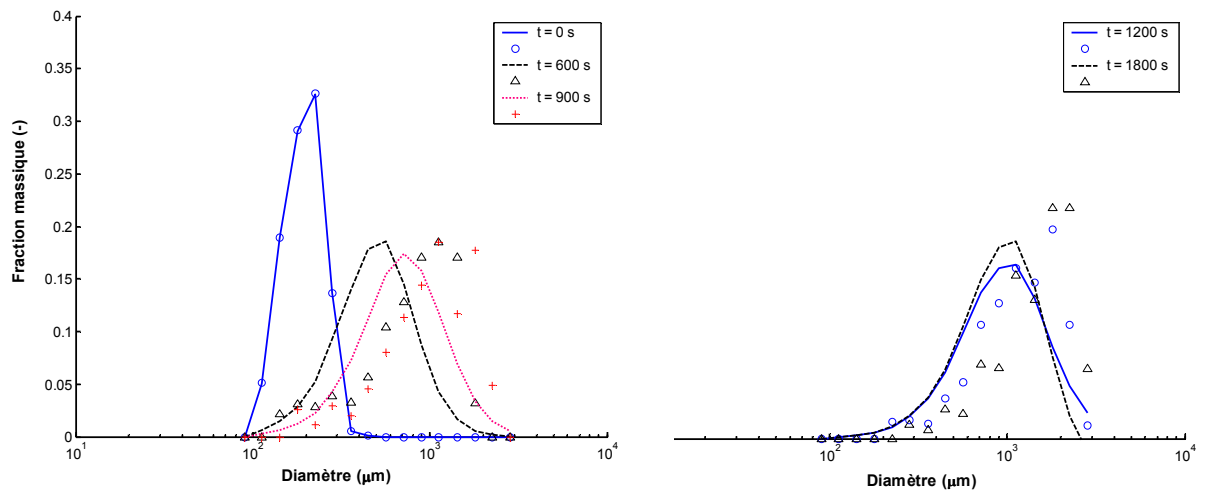


Figure 4.23. Evolution des distributions de taille théoriques (traits) et expérimentales (points) au cours du temps pendant la pulvérisation d'eau pour l'agglomération de particules de maltodextrine dans les conditions de l'essai référence (essai 10) avec $\beta_0 = 48 \cdot 10^{-12}$, $\kappa = 1,805$ et $\gamma = 0,83$.

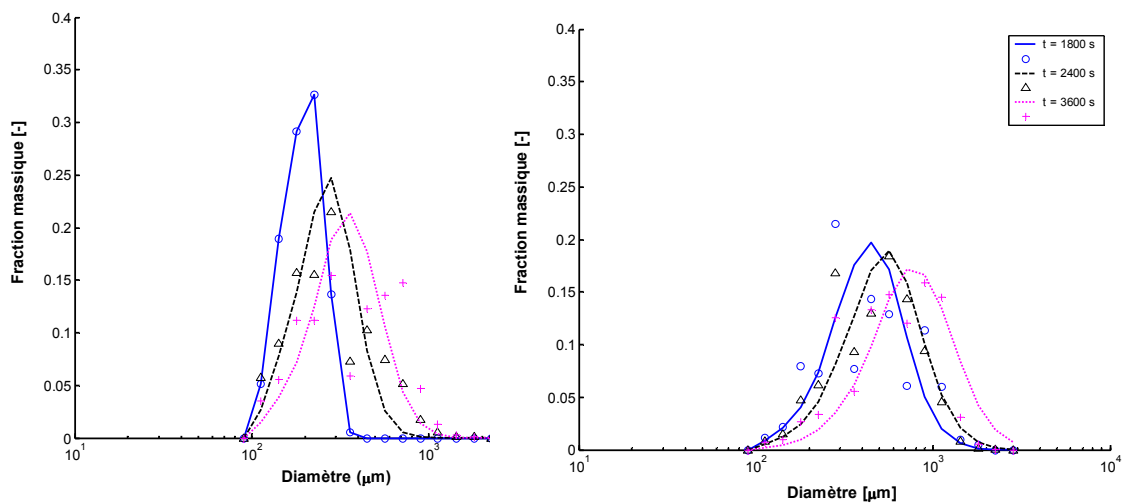


Figure 4.24. Evolution des distributions de taille théoriques (traits) et expérimentales (points) au cours du temps pendant la pulvérisation d'eau pour l'agglomération de particules de maltodextrine dans les conditions de l'essai 11 avec $\beta_0 = 27 \cdot 10^{-12}$, $\kappa = 1,805$ et $\gamma = 0,83$.