

# **Cinétique de mélange et changement d'échelle en mélangeur Turbula**

## **Mixing kinetics and scale-up in a Turbula powder mixer**

MAYER-LAIGLE Claire<sup>\*</sup>, DIAZ Ester, GATUMEL Cendrine, BERTHIAUX Henri,

<sup>a</sup> Université de Toulouse ; Mines Albi ; CNRS; Centre RAPSODEE,

Campus Jarlard, F-81013 Albi cedex 09, France

### **Résumé**

L'objectif de ce papier est de définir des critères permettant l'extrapolation des résultats obtenus - en terme d'homogénéité d'un mélange de poudre réel - à l'échelle laboratoire à ceux obtenus à l'échelle pilote dans des mélangeurs de type TURBULA. Cette étude s'appuie sur une modélisation des mélangeurs sous Solidworks reliée à un travail expérimental. Il a été mis en évidence que les essais réalisés pour des accélérations identiques à la surfaces des cuves des mélangeurs conduisent à des mélanges possédant des caractéristiques d'homogénéité similaires.

### **Abstract**

The aim of this paper is to define criteria to extrapolate results – in term of homogeneity of a real powder mixture - from laboratory scale to those obtained in pilot scale in TURBULA devices. This study is based on modeling mixers, with Solidworks, connected to experimental work. It has been demonstrated that tests realised for same accelerations on the surfaces of tanks mixers lead to mixture having similar coefficients of variation.

**Mots-clés :** Mélange de poudres, Mélangeur Turbula, Cinétique de mélange, Changement d'échelle

**Key-words :** powder mixing, Turbula mixer, mixing kinetics, scale-up

## **1. Introduction**

De nombreux procédés industriels (pharmacie, cosmétique, agroalimentaire) utilisent des matières premières sous forme granulaires ou pulvérulentes. Ces procédés font généralement appel à une étape de mélange ou de prémélange de poudre. Il s'agit d'une étape clé au sein du procédé car la qualité du produit final est intimement liée à celle du mélange obtenu. Le respect d'un cahier des charges sur un produit fini passe ainsi souvent par le choix du mélangeur et de ses conditions d'opération. Parmi les nombreux dispositifs proposés pour la réalisation des mélanges de poudre, le choix d'un type de mélangeur repose sur des critères liés aux caractéristiques des produits, au volume de poudre à mélanger, aux contraintes de nettoyage mais aussi au coût de l'équipement (Berthiaux, 2002,). Mais une fois ce choix effectué, la recherche des meilleures conditions d'opération du procédé repose presque toujours sur un travail expérimental à réaliser à l'échelle du laboratoire. L'enjeu principal réside alors dans la transposition des résultats expérimentaux à ceux pouvant être obtenus aux échelles pilotes et industrielles. Cette extrapolation, propre à un équipement particulier, reste encore très empirique. En effet au contraire de l'agitation des fluides et du fait de la complexité et de la diversité des milieux granulaires et pulvérulents, il est difficile d'identifier des grandeurs qui permettent de caractériser une poudre et d'en prédire le comportement au sein d'un mélange.

Le changement d'échelle pour des mélangeurs de poudre repose généralement sur le principe des similarités qui peuvent être de trois ordres :

- Similarités d'ordre géométrique : Elles reposent sur un rapport constant entre deux grandeurs caractéristiques du système pour les deux tailles de mélangeurs considérées. Nous pouvons citer, à titre d'exemple, la relation basée sur des critères géométriques permettant l'obtention du temps de mélange optimal (temps de mélange minimum pour lequel le coefficient de variation est le plus faible) pour des mélangeurs à vis orbitale (Entrop, 1978):

$$N_v * t_m = \alpha * (L/D_v)^\beta \quad (1)$$

Où  $N_v$  : vitesse de rotation de la vis,  $t_m$  : temps de mélange optimal,  $L$  : longueur de la vis,  $D_v$  : diamètre de la vis,  $\alpha, \beta$  : paramètres empiriques dépendant de la poudre utilisée.

- Similarités cinématiques : Elles consistent à garder constant un rapport de vitesses pour deux points en correspondance dans chacun des deux systèmes considérés. Alexander et al. (2002) utilisent notamment ce principe en étudiant (par analyse d'image) la vitesse des particules à la surface de deux mélangeurs à tambour rotatif de tailles différentes. Leur étude aboutit à la définition de relations valables dans les conditions de l'expérience mais difficilement généralisables.

- Similarités dynamiques : Elles se réfèrent à un rapport de forces égal entre deux points en correspondance dans chacun des deux systèmes. Pour les mélangeurs à tambour rotatif, l'utilisation du nombre de Froude ( $Fr$ ), traduisant un ratio entre force centrifuge et gravité, constitue un exemple classique de similarité dynamique utilisé pour les mélangeurs à cuve (Poux et al., 1991), même s'il n'est probablement pas suffisant (Ding et al., 2000) :

$$Fr = R * N^2 / g \quad (2)$$

Où  $N$  : vitesse de rotation de la cuve,  $R$  : rayon de la cuve

Le travail présenté ici s'inscrit dans le cadre du projet de recherche MASCOTE, financé par l'ANR, qui vise à concevoir de nouvelles plaques bipolaires composites pour les piles à combustibles de type PEMFC, à partir d'un mélange à sec de poudres de catalyseur, durcisseur, résine époxy et graphite (constituant clé du mélange). Ce mélange doit ensuite être injecté et moulé pour produire les plaques bipolaires. La qualité du mélange a ainsi une influence directe sur les performances mécaniques, électriques et thermiques des plaques au sein de la pile. L'ensemble des constituants doivent être mélangés au sein d'un mélangeur Turbula dont l'action repose sur la combinaison de trois mouvements : une translation, une rotation, et une inversion selon la théorie géométrique de Schatz (Wohlhart, 1981). Cette combinaison entraîne un mouvement tri-dimensionnel chaotique devant permettre l'obtention rapide d'un mélange homogène. Afin de déterminer un -ou plusieurs- critère(s) d'extrapolation pour les mélangeurs Turbula, nous avons réalisé une étude géométrique, avant de nous pencher sur une étude cinématique et dynamique de ces mélangeurs. Notre objectif est de fournir un cadre d'interprétation des résultats expérimentaux obtenus pour l'appareil de laboratoire (Turbula T2F) et le pilote (Turbula T10B).

## 2. Étude géométrique, cinématique et dynamique du mélangeur Turbula



Figure 1 : Les trois tailles standards de Turbula. De gauche à droite , T 2B, T 10 B et T 50 A

## 2.1 Étude géométrique

Les trois mélangeurs Turbula standards commercialisés correspondent à trois volumes de cuve, le T2F (volume maximal 2 l), le T10B (volume maximal 17 l) et le T50A (volume maximal 55 l). La spécificité du mouvement, telle que l'a décrite Pierre Schatz, repose sur une égalité de longueur entre l'entraxe et le rayon de l'étrier (Wohlhart, 1981). Cette longueur (voir figure 2) est donc caractéristique de l'équipement. Les différentes côtes géométriques des mélangeurs de la gamme ont été synthétisées au sein du tableau 1.

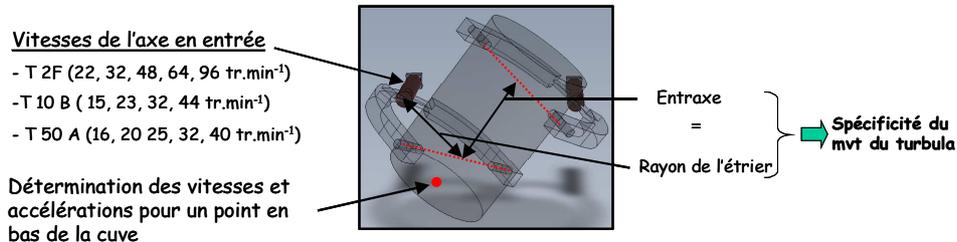


Figure 2 : Représentation schématique d'un mélangeur Turbula

Tableau 1 : Longueurs et rapports caractéristiques pour les Turbula 2F et 10 B et 50 A

	T2F	T10B	T50A
Entraxe (cf fig 2) E	130 mm	225 mm	360 mm
Longueur de la cuve L	200 mm	360 mm	565 mm
Diamètre de la cuve D	130 mm	252 mm	370 mm
Volume de la cuve V	2 l	17 l	55 l
E/D	1,00	0,89	0,97
E/L	0,65	0,625	0,63
L/D	1,54	1,43	1,52

Au vu des dimensions et des ratios calculés, il apparaît que le rapport E/L est sensiblement égal pour les trois mélangeurs. Ce ratio semble être un invariant du système, et nous pouvons donc nous interroger sur la possibilité d'étendre la formule (1) aux mélangeurs Turbula en faisant jouer à E/L le rôle du rapport L/D<sub>v</sub>. Ceci impliquerait que pour un système de poudre donné, le nombre de tours nécessaire à l'obtention d'un mélange homogène soit indépendant de la taille de mélangeur choisie.

## 2.2 Étude cinématique et dynamique

La vitesse de rotation des axes constitue l'actionneur principal des mélangeurs Turbula (fig 2). Toutefois, il ne s'agit pas d'une variable transposable directement à toutes les échelles car les vitesses et accélérations d'un point donné de la cuve, pouvant être assimilée à une particule du mélange, sont également dépendantes des dimensions de la cuve, avec des conséquences immédiates sur la qualité du mélange obtenu. Nous avons ainsi étudié le mouvement des cuves de ces mélangeurs pour les trois tailles disponibles à partir du logiciel Solidworks de simulation cinématique. Pour cela, nous avons extrait de la simulation les amplitudes des vitesses et accélérations moyennes d'un point situé en bas de cuve, qui correspond au fond du lit de poudre au sein du mélangeur. Lors de l'opération de mélange, la poudre est « renversée » : les particules se trouvant plutôt en bas du lit de poudre se retrouvent alors en haut et vice-versa. Ce point synthétise donc les vitesses (fig 3a) et accélérations (fig 3b) que peuvent subir typiquement les particules au sein du mélangeur. La figure 3 montre qu'il est possible d'obtenir des vitesses moyennes identiques en fond de cuve, ou des accélérations, pour des échelles différentes. Par exemple, les vitesses moyennes en bas de cuve obtenues en T 2F à 32 tr.min<sup>-1</sup> seront identiques à celles obtenues en T 10B si la vitesse de rotation des axes est d'environ 17 tr.min<sup>-1</sup>. De même des accélérations moyennes identiques seront obtenues pour ce point avec le T 2F et le T 10 B pour des vitesses des axes égales respectivement à 32 et 24 tr.min<sup>-1</sup>.

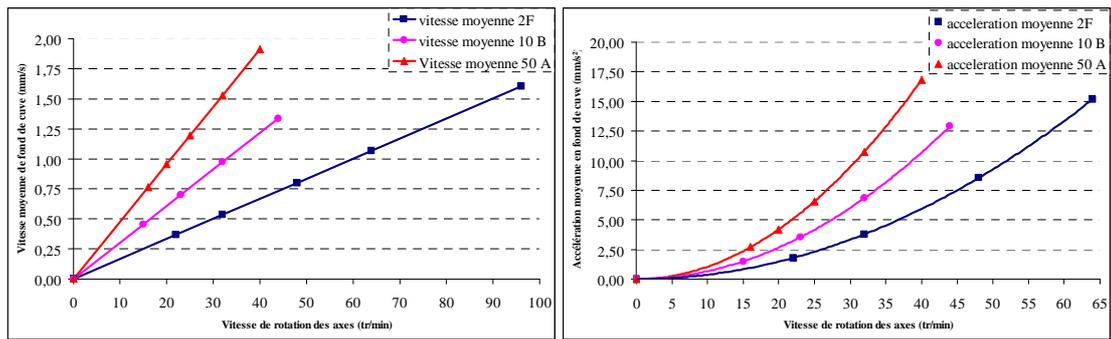


Figure 3 : Correspondances des vitesses (à gauche) et accélérations (à droite) moyennes pour un point en bas de cuve dans les trois mélangeurs Turbula standards.

### 3. Caractérisation de l'homogénéité des mélanges

L'étude de l'homogénéité d'un mélange de poudre nécessite la détermination préalable des méthodes d'échantillonnage (nombre et taille des échantillons à prélever, méthode de prélèvement) et d'analyse pour ce mélange. Ces méthodes doivent être adaptées à la nature des poudres considérées ainsi qu'à l'usage auquel est destiné le produit final.

#### 3.1 Procédure d'échantillonnage

- Taille et nombre d'échantillons à prélever

L'échelle d'observation du mélange (i.e. la taille des échantillons à prélever) est à relier à l'utilisation finale du produit. Dans le cas considéré, les propriétés mécaniques, thermiques et électriques des plaques bipolaires devaient être garanties pour une surface de 9 mm<sup>2</sup>, soit une masse de 70 mg environ. Le taux de remplissage des cuves des mélangeurs T2F et T10B a été fixé à 50 % en volume, ce qui correspond respectivement à des masses de mélange de 420 g et de 3,570 kg, soit encore 6000 et 51000 échantillons au maximum. En l'absence d'une méthodologie en ligne, un échantillonnage exhaustif n'est donc pas envisageable. Une étude statistique, basée sur l'hypothèse que les teneurs des échantillons sont distribuées selon une loi normale a permis de mettre en évidence que la prise de 60 échantillons est suffisante pour pouvoir comparer deux essais de mélange (Mayer-Laigle et al., 2011).

- Méthode de prélèvement des échantillons

Après mélange à différents temps d'opération, la poudre est déversée via une goulotte vibrante sur une bande transporteuse dont la vitesse est ajustable. Les échantillons sont prélevés de manière aléatoire et au moyen de racks (voir figure 4a). La vitesse et l'amplitude des vibrations de la goulotte permet d'ajuster la taille des échantillons. La validité de ce dispositif pour évaluer l'homogénéité des mélanges a été démontré dans des travaux antérieurs (Massol-Chaudeur et al., 2002).

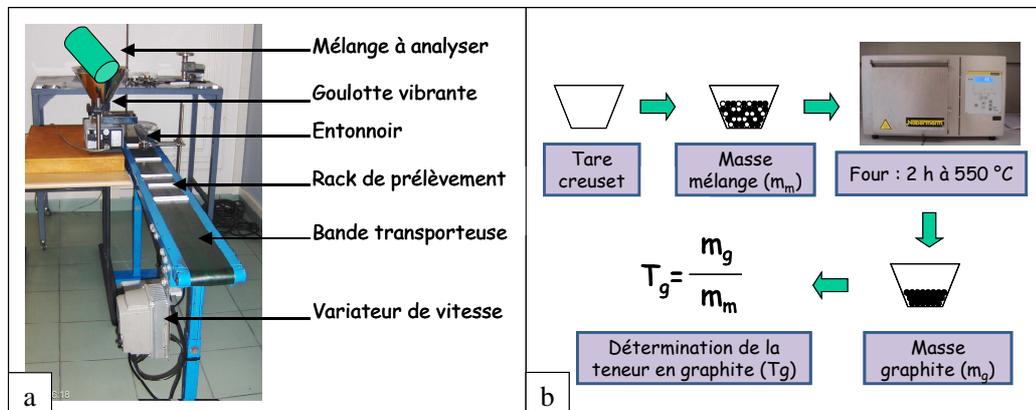


Figure 4 : Protocole de prélèvement (a) et d'analyse des échantillons(b)

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

Les méthodes d'analyses de la composition d'un échantillon sont basées sur l'étude d'une caractéristique chimique ou physique d'un ou de plusieurs constituants. La méthodologies développée ici repose sur la combustion de la matrice (mélange catalyseur, durcisseur et résine époxy) pendant 2 h dans un four à 550°C. Cette procédure, confirmée par des essais ATG, permet de brûler la totalité de la résine sans cendre résiduelle. Elle engendre également une perte de masse de 0,4 % pour le graphite (correspondant à une humidité adsorbée à la surface des grains de graphites). La teneur en graphite peut alors être déterminée comme le ratio entre la masse de graphite (masse après combustion corrigée afin d'intégrer la perte de masse de 0,4 %) et la masse de l'échantillon. L'homogénéité des mélanges est ensuite quantifiée grâce à l'intensité de ségrégation (Danckwerts, 1952) qui peut être assimilée au coefficient de variation (équation 3) des compositions des échantillons prélevés. Une diminution de l'intensité de ségrégation traduit une augmentation de l'homogénéité du mélange :

$$CV = \sigma/\mu \quad (\text{avec } \sigma : \text{écart-type des compositions et } \mu : \text{moyenne des échantillons analysés}) \quad (3)$$

## 4. Résultats et discussion

La figure 5 représente la cinétique de mélange en T2F, sous l'angle de l'évolution de l'intensité de ségrégation avec le nombre de tour, variable choisie pour se rapprocher des corrélations existantes. Les barres d'erreur qui y figurent ont été déterminées par le test statistique de student et représentent les biais introduits par l'échantillonnage. Ceux-ci sont d'autant plus importants que les mélanges sont de moins bonne qualité puisque le nombre d'échantillons est fixé. Typiquement, il n'existe plus de distinction entre les CV, dès lors que le nombre de tours est supérieur à 12, quelle que soit la vitesse considérée. Ce résultat va dans le sens de ceux obtenus dans la littérature (eq 1).

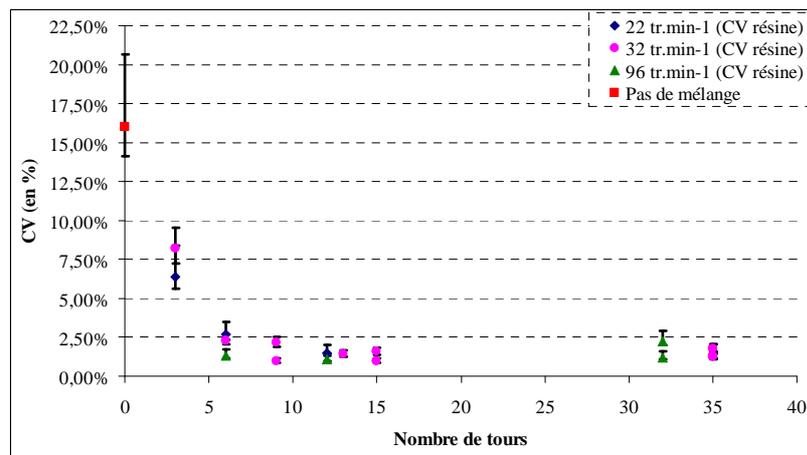


Figure 5 : Cinétiques de mélanges obtenues pour les vitesses des axes 22, 32, et 96 tr.min<sup>-1</sup> en T2F.

C'est cette procédure, visant à suivre la cinétique de mélange et repérer le nombre optimum de tours, qui a été répétée pour différentes conditions opératoires dans les deux tailles de mélangeur disponibles, prenant en compte le principe de similarité explicité plus haut. Le tableau 2 résume les coefficients de variations obtenus pour des vitesses ou des accélérations similaires en bas de cuve. On compare ainsi des essais en T2F à 32tr.min<sup>-1</sup>, soit avec des essais en T10B à 15tr.min<sup>-1</sup> pour étudier la similarité cinématique, soit avec des essais à 23 tr.min<sup>-1</sup> pour étudier la similarité dynamique. (Les vitesses de 32 tr.min-1 en T 2F, et 15 et 23 tr.min-1 pour le T 10 B correspondent à des vitesses standards de rotation des axes, cf figure 2). Puisqu'il existe déjà une similarité géométrique, liée au rapport E/L, nous comparons également des essais réalisés à des nombres de tours identiques, se plaçant dans le cadre des corrélations existantes pour les mélangeurs de poudre. Les moyennes sont données à titre indicatif. Les valeurs des CV entre crochets correspondent aux barres d'erreurs déterminées selon le test de student. La conservation des accélérations en bas de cuve, d'une taille de mélangeur à l'autre, conduit à des coefficients de variations très proches pour un nombre de tours identique. L'accélération de la cuve,

directement reliée aux forces centrifuges que subissent les particules, semble constituer un critère déterminant pour l'extrapolation des résultats entre les différentes tailles de mélangeurs.

Tableau 2 : Comparaison des coefficients de variations obtenus en T 2F et T 10 B

Nbre de Tours	T2F à 32 tr.min <sup>-1</sup>		T10 B / 15 tr.min <sup>-1</sup>		T10 B / 23 tr.min <sup>-1</sup>	
	Moyenne	CV	Moyenne	CV	Moyenne	CV
	3	85,00 %	<b>8,22 %</b> [7,25 % ; 9,54 %]	85,65 %	<b>6,86 %</b> [6,10% ; 8,03 %]	
6	85,21 %	<b>2,32 %</b> [2,05 %;3,12 %]	85,28 %	<b>3,20 %</b> [2,82 % ; 3,71 %]	85,72%	<b>2,22 %</b> [1,98 % ; 2,60 %]
12	84,62 %	<b>1,44 %</b> [1,27 %; 1,67 %]	84,88%	<b>1,76 %</b> [1,34 % ; 2,04 %]	84,88%	<b>1,53 %</b> [1,34 % ; 1,77 %]

Notons que la masse de poudre manipulée en T 10B engendre des contraintes supplémentaires et les essais doivent être judicieusement choisis afin de minimiser leur nombre. Il faut aussi remarquer que l'essai à 23 tr.min<sup>-1</sup> pendant 3 tours en T 10B n'a pas pu être réalisé. En effet l'inertie du mélangeur au démarrage est trop importante pour permettre à l'appareil d'atteindre réellement cette vitesse en 3 tours.

#### 4. Conclusion et perspectives

La modélisation cinématique du mouvement des différentes tailles de mélangeurs de la gamme Turbula nous a permis de déterminer des critères cinématiques et dynamiques que nous avons testés lors d'essais expérimentaux dans deux tailles de mélangeurs. L'utilisation de critères dynamiques (accélération en fond de cuve) conduit à des résultats allant dans le sens des corrélations existantes pour d'autres mélangeurs. Toutefois, les écarts entre les CV étant relativement faibles, l'étude d'un autre système de poudre ayant une plus forte tendance à la ségrégation semble s'imposer pour confirmer ces résultats. Nous prévoyons donc une autre étude expérimentale avec un système granulaire couscous/semoule pour lequel l'homogénéité est plus difficile à atteindre. Il est également nécessaire de réaliser un effort de formalisation sous l'angle de nombres adimensionnels. Le nombre de Froude semble tout indiqué pour refléter l'effet de l'accélération. Nos futurs travaux prendront en compte ces aspects, de même que des essais à une échelle encore supérieure (T 50 A).

#### Références

- A. Alexander, T. Shinbrot, F. J. Muzzio, 2002, Scaling surface velocities in rotating cylinders as a function of vessel radius, rotation rate, and particle size. *PowderTechnology*, 126(2), pp 174–190
- H. Berthiaux, 2002, Mélange et Homogénéisation des solides divisés, *Techniques de l'ingénieur*, Tome Génie des Procédés, J-3 pp. 397-416
- P. Danckwerts, 1952, The definition, measurement and some characteristics of mixtures, *Applied scientific research*. Section A, **3**, 279-296
- Y. L. Ding, R. N. Forster, J. P. K. Seville and D. J. Parker, 2001, Scaling relationships for rotating drums. *Chemical Engineering Science*, 56, pp 3737-3750
- W. Entrop, 1978, International Symposium on Mixing, Mons, D1, pp 1-14
- S. Massol-Chaudeur, H. Berthiaux, J.A. Dodds, 2002, Experimental study of the mixing kinetics of binary pharmaceutical powder mixtures, *Chemical Engineering Science*, 57 pp 4053-4065
- C. Mayer-Laigle, C. Gatamel, H. Berthiaux, 2011, A 2D autocorrelation method for assessing mixture homogeneity as applied to bipolar plates in fuel cell technology, *Advanced Powder Technology* (sous presse).
- M. Poux, P. Fayolle, J. Bertrand, D. Bridoux, J. Bousquet, 1991, Powder mixing: some practical rules applied to agitated systems, *Powder Technology*, 68, pp 213-234
- K. Wohlhart, 1981, A Dynamic analysis of the Turbula, *International Symposium on Gearing & Power Transmissions*, Tokyo

#### Remerciements

Les auteurs remercient l'Agence Nationale de la Recherche pour le financement de ces travaux à travers le projet MASCOTE