HAL
open science

Production de particules composites par enrobage en voie sèche dans un mélangeur cyclomix et modélisation DEM

Akira Sato, Eric Serris, Philippe Grosseau, Gérard Thomas, Alain Chamayou, Laurence Galet, Michel Baron

To cite this version:

Akira Sato, Eric Serris, Philippe Grosseau, Gérard Thomas, Alain Chamayou, et al.. Production de particules composites par enrobage en voie sèche dans un mélangeur cyclomix et modélisation DEM . XIII° Congrès de la SFGP 2011 Société Française de Génie des Procédés : Des procédés au service du produit au coeur de l'Europe, Nov 2011, Lille, France. pp.N°707. hal-00658274

HAL Id: hal-00658274

https://hal.science/hal-00658274v1

Submitted on 10 Jan 2012

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.

Récents Progrès en Génie des Procédés, Numéro 101 - 2011
ISSN 1775-335X - ISBN 2-910239-75-6, Ed. SFGP, Paris, France

Production de particules composites par enrobage en voie sèche dans un mélangeur cyclomix et modélisation DEM

Production of composite particles by dry coating and DEM simulation

SATO Akira[a,b], SERRIS Eric[a], GROSSEAU Philippe[a], THOMAS Gérard[a]
CHAMAYOU Alain[b], GALET Laurence[b], BARON Michel[b*]

[a]Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint Etienne
LPMG-FRE 3312, 158 cours Fauriel, 42023 Saint-Etienne, France
[b]Ecole des Mines d'Albi Carmaux, Centre Rapsodee
FRE CNRS 3213, Université de Toulouse, Campus Jarlard, 81013 Albi, France

Résumé

Une modélisation de l'enrobage en voie sèche selon la méthode par éléments discrets (DEM) a été développée afin de mieux comprendre les phénomènes mis en jeu. Dans ce procédé, des poudres de taille relativement grande (dites « hôtes ») sont recouvertes de particules fines (dites « invitées ») par l'application de forces mécaniques sans l'aide de solvants ni de liants hydrauliques. Dans ce travail, les matériaux choisis comme particules hôtes sont les Suglets® (des granules sphériques constituées principalement de sucre) et les particules invitées sont constituées de stéarate de magnésium (MgSt). Ces deux éléments sont introduits sous forme de poudre dans un mélangeur à fort cisaillement appelé Cyclomix. Les propriétés du produit final comme la coulabilité et la fraction massique ont été caractérisées. La variation de l'indice de coulabilité en fonction de la durée de traitement par Cyclomix pour 4 vitesses de rotation et 3 taux de remplissage différents. La coulabilité des produits a été améliorée avec une augmentation de la durée d'opération et de la vitesse de rotation. Mais le taux de remplissage ne semble pas influer sur l' amélioration de la coulabilité. Le rendement en produit, estimé par sa fraction massique, est analysé. La constante de taux d'enrobage est corrélée avec la distance de rotation obtenue par DEM. Il a été montré que l'efficacité d'enrobage peut être prévue par la simulation.
Mots-clés : Enrobage en voie sèche, Méthode par éléments discrets, Indice de coulabilité, Fraction massique, Constante de taux d'enrobage, Cyclomix

Abstract

We have developed investigations of the effect of the operation conditions on the dry coating and the motion of particles in the chamber by DEM simulations. Suglet® and magnesium stearate MgSt have been chosen as host/invited particles, respectively. The treatment of dry coating has been carried out in the Cyclomix, high shear mixer at different rotational speeds and filling ratio of the samples to observe the effect of the operation condition on the dry coating. The properties of the products, such as the flowability and the mass fraction have been analyzed. The flowability has been improved along with the operation time of Cyclomix. The higher speed of rotation of the Cyclomix can improve the flowability more rapidly. However, the flowability does not seem to be sensitive to the filling ratio. Then it could be concluded that taking the productivity into account, the operation condition with higher filling ratio would be more efficient. The mass fractions of the products at each operation conditions show similar tendency, then it is possible to approximate this tendency by the exponential curve. The coating rate constant induced by the approximate curve seems to have good correlation with the average rotation distance calculated by the DEM simulation. Then, the coating rate constant could be predicted by the DEM simulation.
Keywords : Dry coating, Discrete Element Method, Flowability, Mass fraction, Coating rate constant, Cyclomix

[*] Auteur/s à qui la correspondance devrait être adressée : baron@enstimac.fr

1. Introduction

L'enrobage en voie sèche est une technologie relativement nouvelle pour modifier les propriétés de particules. Dans ce procédé, des petites particles (particules invitées) se collent sur la surface de particules plus grandes (particules hôtes) par les actions mécaniques comme des cisaillements et des forces d'impact. Ce procédé intéresse divers domaines industriels, car il n'utilise pas de solvant organique et c'est un procédé économique compatible avec les contraintes evironnementales. Il existe de nombreuses publications sur la production de particules composites par enrobage (Alonso et al. 1989, Watano et al. 2000, Ouabbas et al. 2009). Par contre, peu d'études ont été consacrées à l'optimisation du procédé (Iwasaki et al. 2002, Lefevre et al. 2011) et à l'analyse de ce procédé d'un point de vue théorique (Thomas et al. 2009). Du côté numérique, la méthode des éléments discrets (DEM) est l'une des méthodes les plus populaires pour analyser le comportement de particules solides et elle a été appliquée dans de nombreux domaines avec succès (Clearly et al. 2002 , Kano et al. 1997, Sato et al. 2010). Le but de notre étude est de comprendre l'effet des paramètres du procédé (comme la durée d'opération, le vitesse de rotation, le taux de remplissage) sur l'enrobage par la caractérisation des propriétés des produits comme la coulabilité et l'estimation de fraction massique du produit et d'analyser l'écoulement des particules par la simulation numérique qui a été effectuée par DEM pour l'optimisation du procédé.

2. Matériels et Méthodes

2.1 Matériaux

Les matériaux choisis comme particules hôtes sont les Suglets et les particules invitées sont le stéarate de magnésium. Les propriétés de ces deux matériaux figurent dans la Table 1. Les Suglets, produits de NP pharm (Colorcon INC.), sont des granules sphériques constitués principalement de sucre, et donc présentent des carastéristiques hydorophiles. Ce matériau est normalement utilisé comme excipient dans les capsules et les comprimés, surtout dans la formulation multiparticulaire. Ces particules peuvent être imprégnées de substances actives et/ou enrobées pour fournir des médicaments à libération contrôlée. Les Suglets sont sphériques et leur surface semble être de nature cristalline. Le diamétre médian, D_{50} est d'environ 250 μm. Pour les particules invitées, le stéarate de Magnesium (MgSt) a été choisi. Cette poudre est très cohésive et de nature hydrophobe, insoluble dans l'eau et utilisée largement dans la formulation pharmaceutique comme lubrifiant. Son D_{50} est d'environ 5 μm.

Table 1. Les propriétés de particules choisies

Matériaux	*D*50 (μm)	densité [kg/m3]	hydrophilie
Suglets	250	158.0	Hydrophile
StMg	5	112.0	Hydrophobe

2.2 Procédé d'enrobage

Le cyclomix, un mélangeur à haut cisaillement fabriqué par la société Hosokawa Micron B.V., a été choisi pour effectuer l'enrobage en voie sèche. Cet appareil est essentiellement composé d'une chambre de mélange stationnaire, verticale et de forme conique équipée d'un axe vertical tournant à grande vitesse sur lequel sont fixées des pales se déplaçant le long de la paroi (Figure 1). Le Cyclomix a déjà été utilisé pour l'enrobage en voie sèche (Ouabbas et al. 2009). En supposant que les particules invitées et hôtes ont des tailles homogènes, et que toutes les particules sont de forme sphèrique, la fraction massique pour former une monocouche sur la surface des particules hôtes, w peut être obtenue par cette équation avec le taux de taille, K_H (Thomas et al. 2009):

$$w = \frac{4C_{2D}(k_H + 1)^2}{4C_{2D}(k_H + 1)^2 + \frac{\rho_H}{\rho_I} k_H{}^3} \quad (1)$$

$$k_H = \frac{R_H}{R_I} \quad (2)$$

Où C_{2D} est la fraction de remplissage de particules invitées sur la surface de particules hôtes, ρ_H et ρ_I sont les densités de particles hôtes et invitées, et R_H et R_I sont les rayons de particules hôtes et invitées. Estimant que la fraction de remplissage est celle de la structure hexagonale : C_{2D} = 0.906, la fraction massique pour une monocouche est de 5.0 %. Pour observer l'effet des conditions opératoires, la fraction

massique a été fixée. La vitesse de rotation varie de 250 à 1500 tr/min et la durée d'opération de 30 s à 600 s. Le taux de remplissage est de 20 à 60 % (162 g – 486 g).

Table 2. Conditions opératoires

Appareil	Vitesse de rotation [tr./min]	Durée d'opération [s]	Remplissage [%]	Fraction massique MgSt [%]
Cyclomix	250 – 1500	30 – 600	20 – 60	5

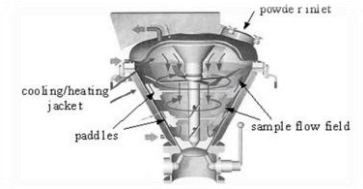

Figure 1. Schéma du cyclomix

2.3 La coulabilité

Pour vérifier la modification de la propriété de surface, plusieurs techniques ont été mises en oeuvre. Le *Freeman Technology powder rheometer* (FT-4) a été utilisé pour analyser la coulabilité des produits. Cet appareil peut mesurer l'indice de coulabilité (flow rate index (FRI)) de la poudre, une valeur élevée indiquant une poudre plus cohésive.

2.4 Estimation de la fraction massique par tamisage

Le tamisage des produits a été réalisé pour estimer la fraction massique de chaque type de particule. Après enrobage, le produit passe le tamis à 160 µm en 10 min. La masse des particules passant le tamis, *m*, qui peut être assimilée en première approche à celle des particules invitées qui ne collent pas à la surface des particules hôtes par l'opération d'enrobage, ou dont les forces adhésion ne sont pas suffisamment fortes pour résister au tamisage, a été mesurée. La fraction massique du produit peut être estimé par l'equation suivante :

$$w_e = \frac{m_{ini} - m}{M + m} \times 100 \qquad (3)$$

Où w_e est la fraction massique du produit estimé, M est la masse de particules qui restent au dessus du tamis, et m_{ini} est la masse de particules invitées introduites initialement dans le mélangeur Cyclomix.

2.5 La simulation de l'écoulement des particules par DEM

Pour observer l'écoulement des particules dans le Cyclomix, La DEM qui est développée par le Laboratoire du Prof. Saito à l'Université du Tohoku, Japon, a été appliquée dans notre étude. Au début, les particules avec les propriétés des particules hôtes (Table 3) ont été placées dans le bol du Cyclomix, en utilisant un empilement de structure hexagonale. Pour être compatible avec le temps de calcul, un nombre de particules limité (environ 40 000), mais présentant des tailles supérieures (2 mm) a été utilisé. Pour estimer l'efficacité de l'enrobage, plusieurs valeurs peuvent être comparées aux données expérimentales comme la fréquence de collision, des energies d'impacts, la distribution des forces de collision etc. Mais la distance de rotation moyenne φ_{avg} utilisée dans l'équation eq. (4) et figure 2 peut être considérée comme l'une des valeurs importantes calculées dans notre étude.

$$\varphi_{avg} = \frac{\sum_{N}^{i=1} \varphi_i}{N} \qquad (3)$$

Où φ_i est une distance de rotation de particule i – ième et N correspond au nombre de particules

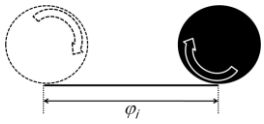

Figure 2. Calcul de la distance de rotation

3. Résultat et discussion

3.1 La coulabilité

La Figure 3 (a-d) présente l'evolution de l'indice de coulabilité (FRI) à chaque remplissage à 250 tr. /min (a), 500 tr/min (b), 1000 tr/min (c), 1500 tr/min (d). En général, le FRI diminue avec une augmentation de la durée d'opération, c'est à dire que la coulabilité des produits est améliorée avec la durée d'opération. Le FRI diminue plus vite avec des vitesses de rotation plus élevées. Ceci semble logique, car une vitesse de rotation plus élevée peut donner une energie plus élevée pour l'écoulement des particules. En conséquence, les interactions entre particules hôtes et invitées sont plus importantes, et l'enrobage est plus rapide. A 250 tr/min (Figure 3 (a)), le FRI diminue plus vite à taux de remplissage moindre. Mais, au-dessus de 500 tr/min, cette tendance est un peu différente par rapport à celle de 250 tr/min, et surtout, la différence entre les taux de remplissages de 40 % et 60 % est faible. Ceci est peut-être attribuable au fait qu'à faible vitesse de rotation, l'interaction entre les particules hôtes et invitées n'est pas suffisamment forte pour l'enrobage, donc la dépendance au taux de remplissage est plus grande que celle à vitesse de rotation plus élevée. Il est en tout cas possible de noter que le taux de remplissage ne semble pas influer sur l'amélioration de coulabilité.

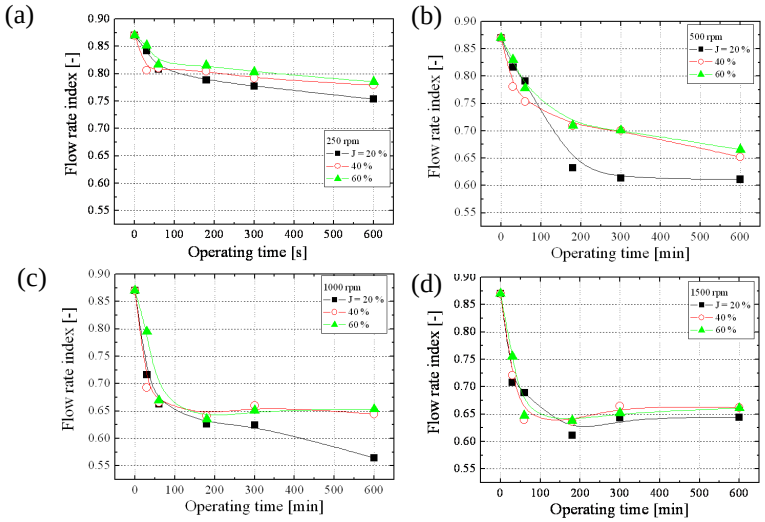

Figure 3 Indice de coulabilié en fonction de la durée d'opération pour chaque taux de remplissage : (a) 250 tr/min, (b) 500 tr/min, (c) 1000 tr/min, (d) 1500 tr/min

3.2 Estimation de la fraction massique par tamisage

La Figure 4 présente l'évolution de la fraction massique éstimée en fonction du temps. La fraction massique augmente avec l'augmentation de la durée d'opération, ainsi que de la vitesse de rotation. La différence entre chaque taux de remplissage n'est pas significative mais, à moindre remplissage. Elle augmente un peu plus vite. Cette évolution semble exponentielle. En théorie, on peut supposer qu'elle peut atteindre la fraction massique idéale (soit dans notre étude 5%), mais à cause de la perte de particules invitées qui peuvent se coller sur la paroi ou les pales du mélangeur, elle doit tendre vers une asymptote autour de la fraction massique initiale. Donc, la fraction massique w, pour une certaine durée d'opération t , peut s'exprimer ainsi :

$$w(t) = w_0\left[1 - \exp(-K_c t^{0.25})\right] \qquad (5)$$

Où w_0 est la fraction massique idéale et K_c est défini comme la constante du taux d'enrobage. Les courbes qui correspondent à l'eq. (5) sont présentées dans la figure 4. Elles sont bien en accord avec les points expérimentaux et le coefficient de correlation, R^2 est supérieur à 0.98. Il est donc possible de dire que l'enrobage peut s'exprimer par l'eq. (5) et l'efficacité des conditions opératoires sur l'enrobage peut être évaluée par K_c.

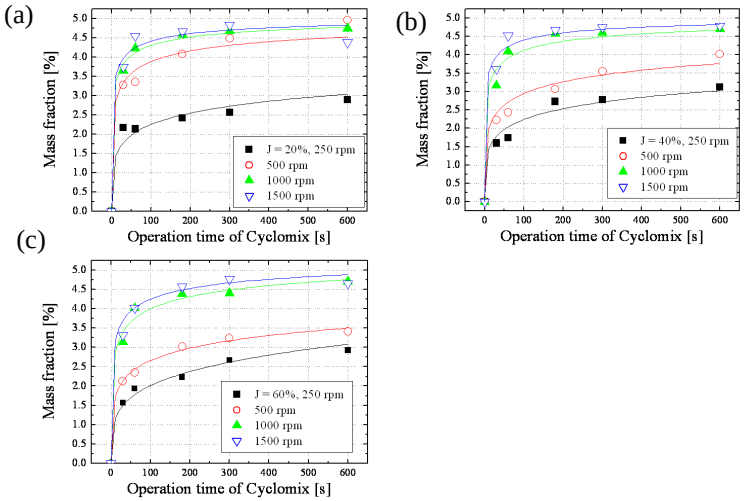

Figure 4 Fraction massique en fonction de la durée d'opération pour différents taux de remplissage : (a) J = 20 %, (b) J = 40 %, (c) J = 60 %

3.3 Résultat numérique et comparaison avec le résultat expérimental

Sur la capture d'écran de la figure 5, la couleur correspond aux distributions de vitesse des particules (les particules en bleu ont une vitesse faible, et celles en rouge une vitesse élevée). On observe que les particules autour des pales ont une vitesse relative plus élevée. La plupart des particules montent jusqu'au sommet du bol, les pales projetant les particules vers la paroi puis, en raison de la forme conique du bol, les particules sont entraînées vers le sommet du bol, et enfin, redescendent autour de l'axe vertical, entraînées par un mouvement de pompage.

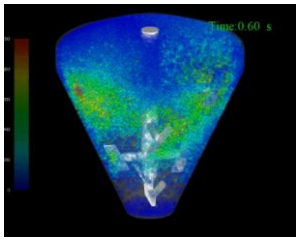

Figure 5 Simulation du mélangeage et enrobage au cyclomix

La figure 6 montre la distance de rotation moyenne calculée en fonction de la vitesse de rotation. La distance de rotation moyenne augmente avec la vitesse de rotation et semble atteindre un palier. Avec l'augmentation du taux de remplissage, la distance de rotation diminue. On peut l'attribuer au fait que l'énergie transmise à chaque particule par la rotation du mobile d'agitation diminue un peu lorsque le remplissage augmente.

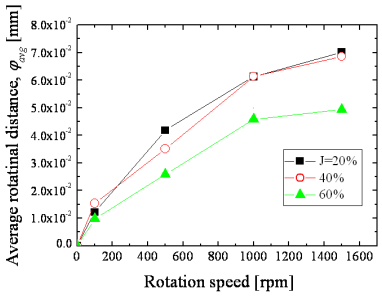

Figure 6 Distance de rotation moyenne en fonction de la vitesse de rotation

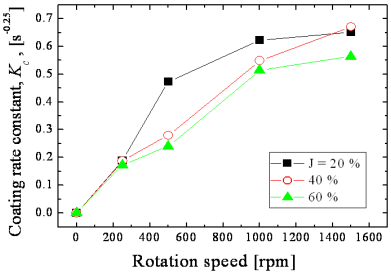

Figure 7 Constante de taux d'enrobage en fonction de la vitesse de rotation

La figure 7 présente la constante du taux d'enrobage K_c en fonction de la vitesse de rotation. La figure 6 qui est le résultat numérique et la figure 7 qui donne la valeur de K_c déduite de la courbe expérimentale sont très similaires. Donc, pour observer la relation entre la distance de rotation moyenne et la constance du taux d'enrobage clairement, la figure 8 présente la relation entre eux. Les points tracés dans la figure 8 peuvent être assez bien corrélés par une droite. Selon ce résultat, il est possible de prévoir la constante du taux d'enrobage par la simulation.

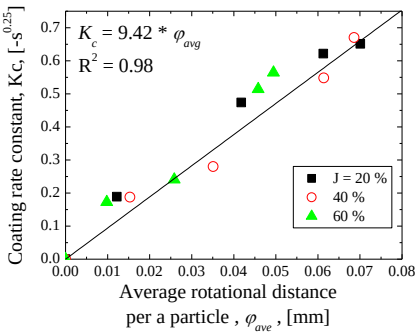

Figure 8 Relation entre la constante du taux d'enrobage et la distance de rotation moyenne

4. Conclusion

L'analyse de l'effet des conditions opératoires sur l'enrobage en utilisant des Suglets et du stéarate de Mg (StMg) en tant que particules respectivement hôtes et invitées a été effectuée. La simulation de l'écoulement de particules dans le mélangeur a été réalisée par DEM. En fonction de ces études, quelques points intéressants ont été trouvés.

(1) La coulabilité de produits a été améliorée avec l'augmentation de la durée d'opération ainsi que de la vitesse de rotation. Mais le taux de remplissage d'échantillon ne semble pas avoir d'influence sur l'amélioration de la coulabilité Donc en terme de productivité, un plus fort taux de remplissage peut être plus efficace.

(2) La fraction massique estimée présente une tendance très semblable pour chaque condition opératoire, donc elles peuvent être approximées par des courbes exponentielles. La constante définie dans les courbes, k_c peut être la valeur pour évaluer l'efficacité de l'enrobage.

(3) La simulation de l'écoulement dans le mélangeur permet clairement l'observation du mouvement de particules.

(4) La distance de rotation et la constante du taux d'enrobage sont bien corrélées. Donc la constante du taux d'enrobage peut être prévue par la simulation.

Remerciements

Nous voudrions remercier Colorcon INC qui nous a fourni gracieusement différents échantillons de Suglets.

Bibliographie

Alonso M., M. Satoh et K. Myanami, 1989, Powder Technology, 59, 42-52
Cleary P.W. et M. L. Sawley, 2002, Applied Mathematical Modelling, 26, 89-111
Iwasaki T., M. Satoh et T. Ito, 2002, 123, 105-113
Kano J., N. Chujo et F. Saito, 1997, Advanced powder technology, 8, 39-51
Sato A., J. Kano et F. Saito, 2010, Advanced Powder Technology, 21, 2, 212-216
Lefevre G., L. Galet et A. Chamayou, 2011, Powder Technology, 208, 372-377
Watano S., Y. Imada, K. Miyanami, C. Y. Wu, R. N. Dave, R. Pfeffer et T. Yoshida, 2000, Journal of Chemical Engineering of Japan, 33, 848-854
Ouabbas Y., J. Dodds, L. Galet, A. Chamayou et M. Baron, 2009, Powder Technology, 189, 245-252
Thomas G., Y. Ouabbas, P. Grosseau, M. Baron, A. Chamayou et L. Galet, 2009, Applied Surface Science, 255, 7500-7507