Apport de l'approche numérique DEM pour la compréhension de l'évolution des propriétés physico-chimiques des particules lors de l'enrobage en voie sèche

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

▶ **To cite this version:**

Eric Serris, Akira Sato, Philippe Grosseau, Gérard Thomas, Alain Chamayou, et al.. Apport de l'approche numérique DEM pour la compréhension de l'évolution des propriétés physico-chimiques des particules lors de l'enrobage en voie sèche. XIV° Congrès de la Société Française de Génie des Procédés, Oct 2013, Lyon, France. pp.No 38. hal-00872895

HAL Id: hal-00872895
https://hal.science/hal-00872895

Submitted on 15 Oct 2013

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.

Apport de l'approche numérique DEM pour la compréhension de l'évolution des propriétés physico-chimiques des particules lors de l'enrobage en voie sèche

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

[a]Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint Etienne
LGF-UMR CNRS 5307, 158 cours Fauriel, 42023 Saint-Etienne, France
[b]Ecole des Mines d'Albi Carmaux, Centre Rapsodee
UMR CNRS 5302, Université de Toulouse, Campus Jarlard, 81013 Albi, France

Résumé

Dans cette étude, l'intérêt est porté sur l'effet des conditions opératoires sur l'enrobage en voie sèche de grosses particules « hôtes » par de fines particules « invitées » et aussi sur la modélisation de cet enrobage selon la méthode par éléments discrets (DEM) afin de mieux comprendre les phénomènes mis en jeu. Dans ce travail, les matériaux choisis comme particules hôtes sont les Suglets® (des granules sphériques constituées principalement de sucre) et les particules invitées sont en stéarate de magnésium (StMg). Ces deux éléments sont introduits en poudre dans un mélangeur de 1L à fort taux de cisaillement, le Cyclomix. Les propriétés du produit final, comme la coulabilité, la mouillabilité et le degré d'avancement du revêtement, ont été caractérisées. La variation de l'indice de coulabilité est étudiée en fonction de la durée de traitement dans le Cyclomix pour diverses vitesses de rotation, taux de remplissage et rapport de taille de particules hôte et invitée. La coulabilité des produits a été améliorée en augmentant la durée du mélange ou la vitesse de rotation, tandis que le taux de remplissage de solide ne semble pas avoir d'importance marquée. Le degré de recouvrement des particules hôtes augmente avec la durée de mélange, et la vitesse de rotation des pales.

La simulation des mouvements de particules dans le mélangeur par DEM a permis d'obtenir des informations sur la position, la vitesse des particules, et d'autres paramètres énergétiques, ainsi qu'une estimation du degré de mélange à tout instant. Grâce à l'interprétation de ces mouvements de particules à l'intérieur du Cyclomix, nous pouvons expliquer les différences de comportements déduites de l'analyse des propriétés physico-chimiques (Sato et al 2012) des produits composites obtenus.

Mots-clés: DEM, Enrobage, Mouvements de particules, Coulabilité, Mouillabilité.

1. Introduction

L'enrobage en voie sèche est une technologie relativement nouvelle pour modifier des propriétés de particules. Dans un tel procédé, des petites particules (particules invitées) se collent sur la surface de particules plus grandes (particules hôtes) par des actions mécaniques comme des cisaillements et des forces d'impact. Il intéresse divers domaines industriels, car il n'utilise aucun solvant organique, et ce procédé économique est compatible avec les contraintes environnementales. Il y a de nombreuses publications sur la production de particules composites par l'enrobage (Alonso et al. 1989, Watano et al. 2000, Ouabbas et al. 2009a). Par contre, il y moins d'études trouvées sur l'optimisation du procédé (Iwasaki et al. 2002) et sur l'analyse de ce procédé de façon théorique (Thomas et al. 2009).

La méthode des éléments discrets (DEM) est une des méthodes numériques les plus utilisées pour analyser le comportement de particules solides. Elle a été appliquée dans de nombreux domaines avec succès (Clearly et al. 2002, Machett et al., 2000; Kano et al. 1997).

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

Le but de notre étude est de comprendre l'effet de paramètres du procédé d'enrobage (comme la durée d'opération, la vitesse de rotation et le taux de remplissage de produit dans le cyclomix) sur l'enrobage. Les analyses des propriétés des produits finaux, comme la coulabilité et la mouillabilité, l'estimation de la composition des produits et de l'écoulement des particules ont été effectuées. La simulation numérique a été conduite par la DEM pour mieux comprendre les phénomènes apparaissant lors du mélangeage, afin d'optimiser le procédé.

2. Matériaux et méthodes

2.1 Matériaux

Les matériaux choisis sont, pour les particules hôtes les Suglets®, et pour les particules invitées le stéarate de magnésium (StMg). Les propriétés des deux matériaux sont montrées dans le Tableau 1. Les Suglets®, produits de NP pharm (Colorcon INC.) sont des granules sphériques constitués principalement de sucre, avec une forte tendance hydrophile. Ce matériau est normalement utilisé en formulation comme excipient pour les capsules et les comprimés. Ces particules sont utilisées dans les technologies de contrôle et de libération de principe actif en pharmacie. Les Suglets® sont cristallisées et sphériques. Le diamètre médian en volume, D_{50} vaut environ 250 µm. Pour les particules invitées, le stéarate de magnésium (StMg) 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. Le D_{50} vaut environ 5 µm.

Table 1: Propriétés des particules choisies

Matériaux	D_{50} [µm]	Masse volumique (pycnomètre Hélium) [kg/m^3]	Attractivité /eau
Suglets®	250	1580	hydrophile
StMg	5	1120	hydrophobe

2.2 Procédé d'enrobage

Le Cyclomix, un mélangeur à haut cisaillement fourni par la société Hosokawa Micron B.V., a été choisi pour effectuer l'enrobage en voie sèche.

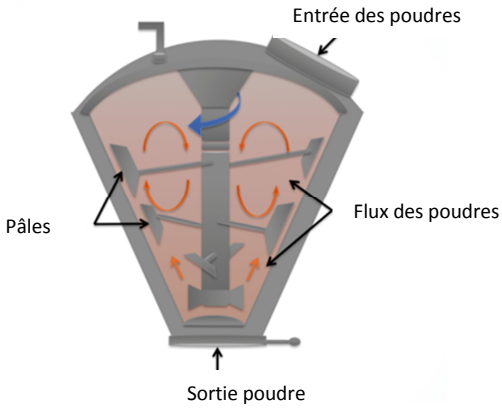

Figure 1. Schéma du Cyclomix, mélangeur à haut taux de cisaillement

Cet appareil est essentiellement composé d'une chambre de mélange fixe, verticale et de forme conique, équipée d'un axe tournant à grande vitesse ω, avec des pales se déplaçant le long de la paroi. Le Cyclomix a déjà été utilisé avec succès pour faire l'enrobage en voie sèche (Ouabbas et al. 2009b). Supposant que les particules invitées et hôtes ont des tailles homogènes, et que toutes les particules sont de forme sphérique, la fraction massique pour former une monocouche sur la surface des particules hôtes, w peut être obtenue par l'équation suivante avec le rapport de taille de particules hôte et invitée, 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 compacité surfacique (à 2 dimensions) de particules invitées sur la surface de particules hôtes, et ρ_H et ρ_I sont des masses volumiques des grains de particules hôtes et invitées, et R_H et R_I sont les rayons de particules hôtes et invitées. Nous supposons que C_{2D} est la compacité de la structure hexagonale à 2D, soit C_{2D}=0.906. Alors la fraction massique *w* pour une monocouche est estimée à 5.0 %. Pour observer l'effet des conditions opératoires, la fraction massique a été fixée à cette valeur. La vitesse de rotation ω varie de 250 à 1500 tr/min et la durée d'opération est de 30 s à 600 s. Le taux de remplissage J du Cyclomix (rapport du volume apparent de grains solides, introduits de façon non tassée dans l'appareil, au volume du Cyclomix) est de 20 à 60% (162 g – 486 g de Suglets®).

2.3 La coulabilité

Pour vérifier la modification de propriétés de surface, plusieurs techniques ont été utilisées. Le Freeman Technology Powder Rheometer (FT-4) a été choisi pour analyser la coulabilité des produits. Cet appareil peut mesurer l'indice de coulabilité (flow rate index (FRI)) qui présente des variations en sens contraire de la coulabilité de la poudre : une valeur FRI élevée signifie que la poudre est très cohésive, très peu coulable.

2.4 La mouillabilité

Dans notre étude, une goutte d'eau de 10 µl a été déposée sur la surface du lit de poudres, et l'angle de contact a été mesuré après 30 s de dépôt d'une goutte. En plus, pour éviter de casser des particules enrobées, le lit de poudre n'a pas été compressé, mais juste déposé avec une spatule, et aplati à la spatule pour donner une surface de poudre plus homogène et la plus plate possible. La mesure de l'angle de contact a été effectuée trois fois sur chaque échantillon et la valeur moyenne a été utilisée.

3. Résultats expérimentaux

3.1 La coulabilité

La figure 2 (a,b) présente l'évolution de l'indice de coulabilité (FRI) pour chaque remplissage (J) : à *J* = 20 % (a), à J=60 %(b).

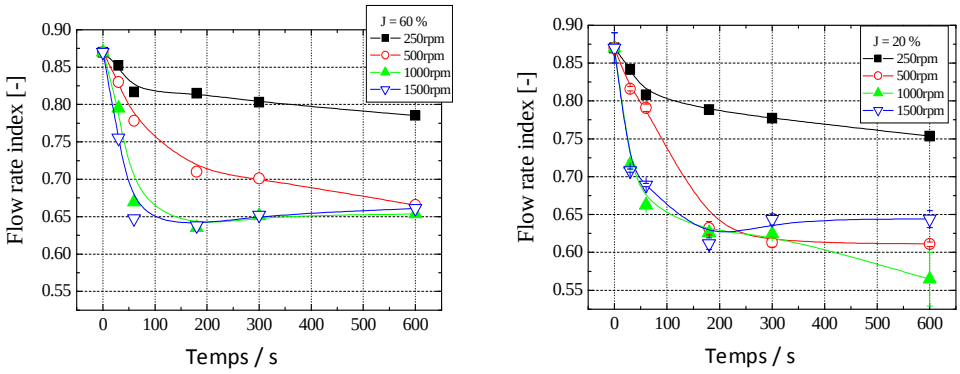

Figure 2. Fonctions Flow Rate index (FRI) en fonction de la durée d'opération t, à différentes vitesses de rotation ω, et pour différents taux de remplissage (a) J = 20 %, (b) 60%.

En général, le FRI diminue quand on augmente la durée d'opération, c'est à dire que la coulabilité des produits est améliorée quand la durée d'opération augmente. Le FRI diminue plus vite avec des vitesses de rotation des pales plus élevées. Ceci peut être expliqué par le fait que le mélange, lors d'opérations à vitesse de rotation plus élevée reçoit beaucoup plus d'énergie mécanique, et les pales peuvent ainsi transmettre aux particules des vitesses plus grandes. En conséquent, les interactions entre particules hôtes et invitées sont plus nombreuses. L'enrobage a donc lieu plus rapidement. Comme l'écoulement des

particules enrobées est meilleur que celui des particules hôtes, les courbes d'évolution du FRI varient davantage quand la vitesse de rotation augmente. Par ailleurs examinons l'influence du taux de remplissage J. La différence des courbes entre J=20%, J=40 % et J=60 % est assez petite. L'effet du taux de remplissage ne semble pas majeur pour rechercher une amélioration de coulabilité.

3.2 La mouillabilité

La Figure 3 montre la variation de l'angle de contact des particules enrobées avec la durée d'opération t, à différentes vitesses de rotation ω, et taux de remplissage *J* = 20 % (a), et J=60 % (b).

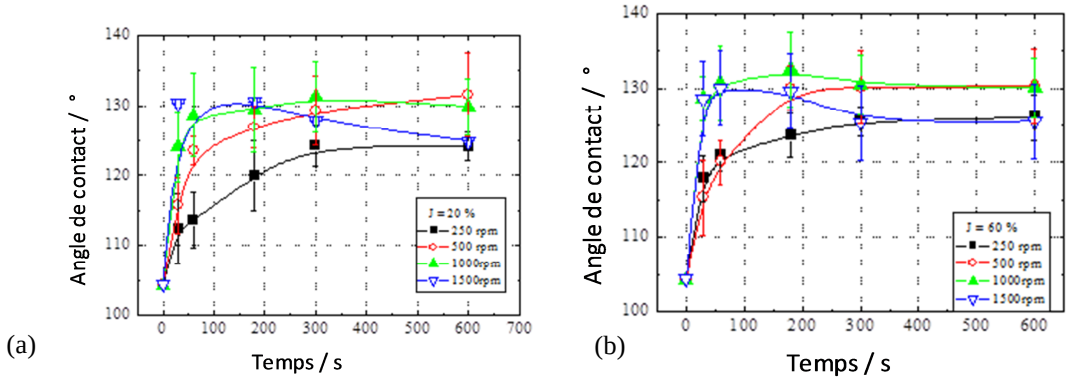

Figure 3. Influence de la durée d'opération t sur l'angle de contact eau-solide, à différentes vitesses de rotation ω, et pour différents taux de remplissage (a) J = 20 %, (b) 60%.

La valeur initiale montrée sur les figures ci-dessus a été calculée à partir de l'hypothèse suivante : on écrit que l'angle de contact θ de la particule enrobée après une durée de l'opération t est proportionnel à la fraction de surface (1-S_H) des particules invitées eq. (3)), quand les particules hôtes et invitées viennent d'être introduites (pas mélangées, ni enduites) initialement dans le système. Dans cette équation, nous allons prendre la valeur $\theta_H=0$ pour les particules très hydrophiles comme les Suglets®.
La fraction de surface initiale S_{H0} est donnée par l'eq. 4):

$$\theta(t)= S_H \theta_H + (1- S_H) \theta_I \quad (3)$$

$$S_{H0} = \frac{{k_H}^2}{4C_{2D}(k_H+1)^2+ {k_H}^2} \quad (4)$$

Lorsque l'angle de contact d'une particule hôte θ_H et d'une particule invitée θ_I sont respectivement 0° et 132°, la valeur théorique calculée par l'équation (3) donnant l'angle de contact pour le mélange initial θ(0) se trouve à 104°. Nous pouvons remarquer que l'état physique à t=0 correspond à un état où les deux types de grains sont présents sans aucun revêtement, avec une probabilité de rencontre avec la goutte liée à leur fraction surfacique.

Dans la Figure 3 (a), à 250 tours par minute, l'angle de contact augmente en fonction du temps de traitement. D'après l'hypothèse ci-dessus, la fraction de surface du matériau revêtu va augmenter également. En d'autres termes, le processus de revêtement est fonction du temps de traitement; à 500 tr./min progresse plus rapidement qu'à 250 tr./min. À 1000 tr./min, θ (t) augmente avec le temps et est asymptotique à l' angle θ_I des particules invitées (132°). Dans figure 5 (b), on observe que ces courbes ont presque la même tendance générale que celle de la figure 3 (a) ainsi, l'angle de contact de produit n'est pas sensible au rapport de remplissage d'un mélangeur à haut cisaillement. Ces résultats ont été également confirmés pour J = 40%.

Pour résumer, toutes les particules revêtues ont un angle de contact supérieur à 90 °, et la mouillabilité des particules enrobées va de l'hydrophile à l'hydrophobe même avec un petit temps de traitement et une plus basse vitesse de rotation du mélangeur. Pour des faibles vitesses de rotation le mélange est plus lent et n'est pas complet. Pour les vitesses de 500 et 1000 tr./min, l'enrobage est assez rapide et les propriétés restent stable (après 300s de mélangeage). Pour la vitesse de 1500 tr./min l'enrobage est encore plus

rapide, mais les propriétés se dégradent au cours du temps, l'angler de mouillage baisse après 100s de temps d'opération.

4 Résultats obtenus par simulations numériques

4.1 Simulation du mouvement de particules hôtes

Le mouvement des particules a été réalisé avec une simulation par éléments discret(DEM). Cette méthode appliquée à ce système à été explicité précédemment (Sato et al 2013). Les particules choisies pour la modélisation sont les "Suglets®", et les propriétés sont portées dans la table 2. L'état initial des poudres est un empilement hexagonal compact.

Table 2. Paramètre de la simulation

Module de Young	E [GPa]	4.5
Coefficient de Poisson	[-]	0.30
Densité	[kg/m3]	1600
Coefficient de restitution	[-]	0.16
Pas de temps	Δt [µs]	2.0
Temps de simulation	T [s]	1.5

Les effets de la gravité ont été introduits comme condition externe au système soumis aux forces des chocs des pâles en mouvement. Pour réduire le temps de calcul, un nombre de particules plus petit a été choisi (40000) avec des diamètres plus gros (2 mm). La figure 4 représente sur des coupes de Cyclomix la vitesse normalisée des particules en couleur pour chaque vitesse de rotation des pales a) 100 tr. /min , (b) 500 tr. /min , (c) 1000 tr. /min and (d) 3000 tr. /min .

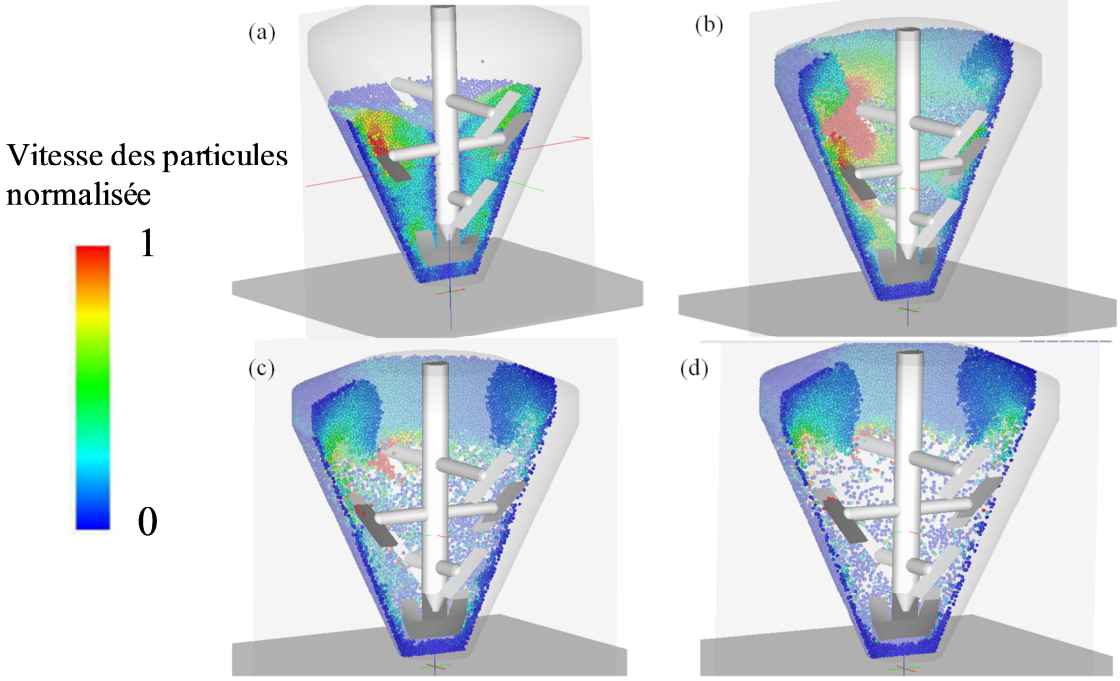

Figure 4 : Vitesse normalisée des particules correspondant à chaque vitesse de rotation : (a) 100 tr. /min, (b) 500 tr. /min, (c) 1000 tr. /min et (d) 3000 tr. /min dans la section transversale.

Pour les faibles vitesses de rotation (100 tr. /min), le lit de particule reste sous la pale du haut, et les particules qui se situent prés de la pale possèdent la vitesse relative la plus élevée. A 500 tr. /min , le lit de poudre atteint le haut du cyclomix, puis à 1000 tr. /min la plupart des particules se situent dans la partie

haut du réacteur. A 3000 tr. /min, les particules se situent également au niveau supérieur du Cyclomix et il y a de moins en moins de particules au milieu du cyclomix.

4.2. Simulation des mouvements de particules avec deux classes de particules sans adhésion

Les simulations ont été menées pour connaitre l'influence de la vitesse de rotation des pales sur le mélange de particules hôtes et invitées. La vitesse de rotation varie de 250 à 1500 tr. /min . Le taux de remplissage est fixé à 40 % pour les particules hôtes et à 20 % pour les particules invitées. Le temps de mélange simulé est de 3.0 s. La taille des particules est de 3 mm pour les particules hôtes et de 1 mm pour les particules invitées. Tous les paramètres physiques sont reportés dans le tableau 3. Pour l'état initial du lit de poudre, les particules invitées sont au dessus des particules hôtes.

Table 3: Paramètre de la simulation pour des particules hôtes et invitées

		note	**invitée**
Module de Young	E [GPa]	4.5	2.2
Coefficient de Poisson	[-]	0.30	0.30
Densité	[kg/m3]	1600	1120
Coefficient de restitution	[-]	0.3	0.0
Nombre de particules	[-]	14 148	190 986
Temps de simulation	T [s]	3.0	

Pour observer dans le mélangeur, des coupes ont été réalisées à chaque vitesse de rotation et des photographies des simulations sont portées sur la figure 5 (les particules invitées en bleu et les hôtes en rouge).

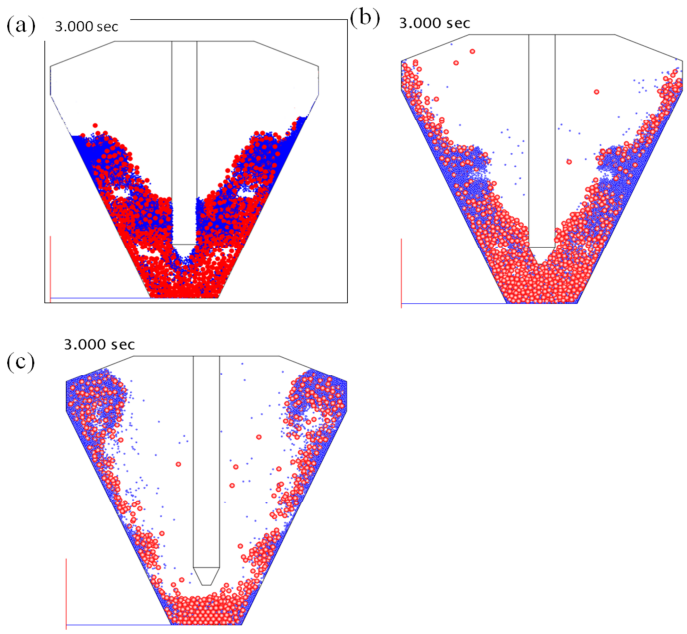

Figure 5 : Coupe de la chambre de mélange pour différentes vitesses de rotation: (a) 250 tr. /min , (b) 500 tr. /min , (c) 1500 tr. /min , T= 3s (particules hôtes en rouge et invitée en bleu).

A 250 tr. /min les particules sont toujours localisées autour de la troisième paire de pâles. A 500 tr. /min , les particules remontent dans le mélangeur au niveau de la paroi. Cela peut nous permettre de faire l'hypothèse que le mélangeage se situe le long des parois. A 1500 tr. /min , les particules arrivent en haut du mélangeur et peuvent ensuite redescendre à l'intérieur du mélangeur par gravité pour ensuite être plus facilement disponible pour un meilleur mélangeage.

5 Discussions

Pour les faibles vitesses de rotation, les évolutions de la coulabilité et de la mouillabilité sont assez lente et l'enrobage n'est pas complet (Si nous analysons les mouvements de particules (figure 4 et 5), les

particules restent en bas du mélangeur et ne sont pas individualisées. Donc il faut beaucoup de temps pour que les petites particules invitées collent aux surfaces des plus grosses. Il n'y a pas d'enrobage complet à cause d'un mélangeage insuffisant. Pour les vitesses de 500 et 1000 tr./min l'enrobage est rapide et les propriétés varient peu dès lors que l'enrobage est terminé. Les particules remplissent le mélangeur (figure 4) et il y a une individualisation des particules le long des parois qui permet un mélange assez intime et qui conduit à l'enrobage complet des grains de Suglets®. Pour les vitesses supérieures (> 1000 tr./min) l'enrobage est encore plus rapide avec une dégradation des propriétés (angle de mouillage qui baisse). Les particules sont rapidement enrobées car le brassage se fait de mieux en mieux comme nous pouvons l'observer figure 5c. Ensuite ces particules subissent des impacts de plus en plus fort qui peuvent engendrer de l'attrition ou de la fragmentation des objets composites.

6. Conclusion

L'analyse de l'effet des conditions opératoires sur l'enrobage utilisant des Suglets® et du StMg comme les particules hôtes et invitées a été effectuée. La simulation de l'écoulement de particules dans le mélangeur a été réalisée par la DEM. En fonction de ces études, quelques points intéressants ont été trouvés.

La coulabilité de produits est améliorée si on augmente la durée d'opération et la vitesse de rotation. Mais le taux de remplissage du mélangeur ne semble pas jouer sur la coulabilité. Le rendement pratique d'enrobage est donc meilleur avec un plus grand remplissage.

La simulation DEM de l'écoulement dans le mélangeur autorise l'observation de l'intérieur du mouvement d'ensemble des particules ce qui n'est pas possible par des moyens expérimentaux. Cela nous permet d'expliquer les changements des propriétés des composites obtenus par des différences de comportements et cela a aussi permis de localiser la zone préférentielle ou se déroule l'enrobage. Il faut maintenant essayer de se rapprocher des systèmes réels avec des études mettant en jeu des grains de taille plus petite et avec un nombre de grains supérieur. De même, il faudra envisager de travailler avec d'autres systèmes pour avoir l'influence de la nature des particules.

Références

M. Alonso, M. Satoh, K. Myanami, 1988, Powder coating rotary mixer rocking motion, Powder Technology, 56 135-141.

P.W. Clearly and M.L. Sawley, 2002, DEM modelling of industrial granular flows: 3D case studies and the effect of particle shape on hopper discharge, Applied Mathematical Modelling, 26, 89-111

T. Iwasaki, M. Satoh, T. Ito, 2002, Determination of optimum operating conditions based on energy requirements for dry particle coating in a dry process, Powder Technology 123, 108-113

J. Kano, N. Chujo and F. Saito, 1997, A method for simulating three dimensional motion of balls under presence of powder in a tumbling mill, Advanced powder technology, 8, 39-51

A.J. Matchett., Yanagida T., Okudaira Y., Kobayashi S., 2000, Vibrating powder beds: a comparison of experimental and Distinct Element method simulated data, Powder Technology, 107, 13-30

Y. Ouabbas, A. Chamayou, L. Galet, M. Baron, G. Thomas, P. Grosseau, B. Guilhot, 2009, Surface modification of silica particles by dry coating : Characterization and powder ageing, Powder Technology, 190a 200-209

Y. Ouabbas, J. Dodds, A. Chamayou, M. Baron, 2009, Particle-particle coating in a cyclomix impact mixer Powder Technology, 189b, 245-252

A. Sato, E. Serris, P. Grosseau, G. Thomas, A. Chamayou, L. Galet, M. Baron, 2012, Effect of operating conditions on dry particle coating in a high shear mixer, Powder Technology 229, 97–103

A. Sato, E. Serris, P. Grosseau, G. Thomas, A. Chamayou, L. Galet, M. Baron, 2013, Experiment and simulation of dry particle coating, Chemical Engineering science 86, 164–172

G. Thomas, Y. Ouabbas, P. Grosseau, M. Baron, A. Chamayou, L. Galet, 2010, Modeling the mean interaction forces between powder particle : Application to silica gel-magnesium stearate mixtures , Applied Surface Science, 255, 7500-7507

S. Watano, R. Pfeffer, R.N. Davé and W. Dunphy, 1998, Dry particle coating by a newly developed rotating fluidized bed coater, Advanced Technologies for Particle Processing: AIChE Conference, Vol. I, 598-565

DEM numerical approach to better understand physico-chemical properties evolution of particles treated by dry particle coating processes

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

[a]Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint Etienne
LGF-UMR CNRS 5307, 158 cours Fauriel, 42023 Saint-Etienne, France
[b]Ecole des Mines d'Albi Carmaux, Centre Rapsodee
UMR CNRS 5302, Université de Toulouse, Campus Jarlard, 81013 Albi, France

Abstract:
Investigations of the effect of the operation conditions on the dry coating and the motion of particles in a high shear mixer by the DEM simulation have been done. The Suglet® and the MgSt materials have been chosen as the host/invited particles, respectively. The treatment of dry coating has been carried out in the Cyclomix, high shear mixer at different rotational speeds, filling ratio of the samples and particle size ratio to observe the effect of the operation conditions on the dry coating. The properties of the products, such as the flowability, wettability and the conversion ratio have been analyzed. The flowability has been improved along with the operation time of Cyclomix. Higher speeds of rotation of the Cyclomix can improve the flowability more rapidly. However, the flowability does not seem to be sensitive to the filling ratio.
To simulate the flow of host/guest particles in the mixer, the Discrete Element Method (DEM) was applied. Experimental results such as flowability and wettability can be explained with particles flows evolutions inside the Cyclomix with different rotational speed.

* Authors(s) to whom the correspondence should be sent : serris@emse.fr