

N° d'ordre :.....

THÈSE

Présentée
pour obtenir

LE TITRE DE DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE TOULOUSE

Ecole doctorale : Génie des procédés et environnement
Spécialité : Génie des procédés

Par

Moulay Saddik KADIRI

COMPRESSION DE POUDRES PHARMACEUTIQUES ET INTERACTION AVEC L'OUTILLAGE ANALYSE EXPÉRIMENTALE ET MODÉLISATION NUMÉRIQUE

Soutenue publiquement le 30 novembre 2004 à l'école des Mines d'Albi Carmaux
devant le jury composé de :

M. Michel QUINTARD	Président
M. John A. DODDS	Directeur de thèse
M. Didier BOUVARD	Rapporteur
M. Pierre GUIGON	Rapporteur
M. Gérard THOMAS	Examineur
M. Abderrahim MICHRAFY	Tuteur

A mes parents

REMERCIEMENTS

Le travail consigné dans ce mémoire est non seulement le résultat d'un engagement personnel, mais le fruit de nombreux échanges tant au sein du Laboratoire du Génie des Procédés qu'à l'extérieur. Ainsi, je souhaite remercier ici l'ensemble des personnes qui ont contribué à l'aboutissement de ce travail.

D'abord, je remercie Monsieur Michel Quintard professeur à l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse de m'avoir fait l'honneur de présider le jury de ma thèse. Ma gratitude va également vers Messieurs, le professeur Didier Bouvard de l'Institut National Polytechnique de Grenoble et le Professeur Pierre Guigon de l'Université de Technologie de Compiègne pour avoir accepté d'être rapporteurs de ce mémoire. Je remercie également Monsieur Gérard Thomas professeur à l'école des Mines de St-Etienne d'avoir accepté d'examiner mon travail.

Cette thèse n'a été possible que grâce à Monsieur Abderrahim Michrafy qui a encadré ce travail. Je tiens à le remercier de l'intérêt qu'il a porté à cette thèse ainsi que ses conseils et son soutien qui resteront pour moi un précieux souvenir.

Je tiens à exprimer toute ma gratitude et ma reconnaissance à Monsieur John Dodds, mon directeur de thèse, pour m'avoir accueilli au sein du Laboratoire de Génie des Procédés de l'Ecole des Mines d'Albi-Carmaux.

Ces travaux ont pu être réalisés dans un environnement humain particulièrement favorable. Je pense à Emeline et Marilyn avec qui j'ai partagé un bureau, des idées, des conseils, des joies et de précieux souvenirs. J'adresse également tous mes remerciements aux personnes du laboratoire de génie des procédés de l'Ecole des Mines d'Albi-Carmaux qui ont su rendre ces trois années agréables.

Pour conclure, je tiens à remercier mes parents qui m'ont soutenu inconditionnellement et qui ont toujours été là compréhensifs.

SOMMAIRE

SOMMAIRE

Introduction générale	11
Chapitre I. Généralités et étude bibliographique	17
I.1. Compression de poudres pharmaceutiques	21
1.1. Généralités	21
1.2. La compaction de poudres	22
1.2.1. Étape du procédé	22
1.2.2. Mécanismes intervenant dans la cohésion du comprimé	25
1.2.3. Paramètres importants	26
1.2.4. Problèmes rencontrés dans l'industrie et solutions apportées	26
1.2.5. Approches expérimentales et de modélisation	28
1.2.6. Autres domaines industriels utilisant la mise en forme par compression	28
I.2. Étude bibliographique sur la compaction des poudres	31
2.1. Méthodes de caractérisation de la compression en matrice	31
2.1.1. Relations pression - densité	32
2.1.2. Analyse quantitative de la courbe de compression	36
2.1.3. Compactabilité	37
2.1.4. Retour élastique	38
2.2. Transmission de force à travers le lit de poudre	39
2.3. Transfert de force axial-radial	41
I.3. Approches de modélisation du comportement de poudres en compression	44
3.1. Modèles de type discret (micromécanique)	44
3.2. Modèles de type continu (macroscopique)	45
I.4. Conclusion	46
Chapitre II. Caractérisation de la compression en matrice	49
Introduction	53
II.1. Matériels et matériaux	53
1.1. Matériels utilisés	53
1.1.1. Presse Instron 5567	54
1.1.2. Presse alternative (Frogerais OA)	54
1.1.3. Presse hydraulique	55
1.1.4. Cellule de cisaillement annulaire	55
1.1.5. Appareil de rupture diamétrale Erweka	56

1.2.	Matériaux testés _____	56
1.2.1	La cellulose microcristalline _____	57
1.2.2	Le lactose _____	57
1.2.3	Le stéarate de magnésium _____	58
II.2.	Résultats et analyses de la compression en matrice _____	59
2.1.	Réponse de la poudre au cycle de compression _____	59
2.2.	Analyse par le modèle de Heckel _____	60
2.3.	Analyse par le modèle de Kawakita _____	61
2.4.	Retour élastique _____	62
2.5.	Caractérisation du transfert des contraintes axiale - radiale _____	63
2.5.1	Influence de la vitesse sur le transfert axial - radial _____	63
2.5.2	Effet de la lubrification sur le transfert axial - radial _____	65
2.5.3	Effet de la température sur le transfert axial - radial _____	68
II.3.	Conclusion _____	69
 Chapitre III. Caractérisation des propriétés mécaniques et tribologiques _____		 71
Introduction _____		75
III.1.	Propriétés mécaniques des comprimés _____	75
1.1.	Résistance mécanique par rupture diamétrale _____	75
1.1.1	Principe de l'essai _____	75
1.1.2	Calcul de densités relatives _____	77
1.1.3	Résultats _____	78
1.2.	Module d'Young _____	78
1.2.1	Module d'Young par compression simple _____	78
1.2.2	Module d'Young par flexion trois points _____	81
1.3.	Coefficient de Poisson _____	82
1.3.1	Méthode d'estimation du coefficient de Poisson _____	82
1.3.2	Résultats _____	85
1.4.	Rupture par compression simple _____	87
1.4.1	Essai de rupture uniaxiale _____	87
1.4.2	Résultats _____	87
1.5.	Cohésion et angle de frottement interne _____	88
1.5.1	Principe de l'essai _____	89
1.5.2	Résultats _____	89
1.6.	Frottement poudre/matrice _____	91
1.6.1	Méthode d'estimation du frottement poudre/matrice _____	91
1.6.2	Résultats dans le cas non lubrifié _____	93
1.6.3	Résultats dans le cas d'une matrice lubrifiée _____	95

1.6.4	Résultats dans le cas de poudre lubrifiée _____	95
III.2.	Distribution axiale de densité _____	96
2.1.	Objectif _____	96
2.2.	Méthode et essai _____	97
2.3.	Résultats _____	98
III.3.	Conclusion _____	99
Chapitre IV. Modélisation du comportement mécanique de poudres en compression _____		101
Introduction _____		105
IV.1.	L'approche "milieu continu" _____	106
IV.2.	Modélisation du problème de la compression _____	106
2.1.	Équilibre quasi-statique _____	106
2.2.	Loi de comportement de Drucker-Prager/Cap _____	108
2.2.1	Surface de charge _____	109
2.2.2	Critère d'écoulement _____	110
2.3.	Conditions aux limites (Cas de la compression en matrice) _____	110
2.4.	Conditions de contact et de frottement avec l'outillage (poinçons et matrice) _____	111
2.4.1	Condition du contact _____	111
2.4.2	Condition du frottement _____	112
IV.3.	Formulation variationnelle et approximation par éléments finis _____	113
3.1.	Formulation variationnelle du problème _____	113
3.2.	Approximation par éléments finis _____	113
IV.4.	Méthodologies d'identification des paramètres du modèle de comportement _____	114
4.1.	Identification de la cohésion d et de l'angle de frottement interne β _____	115
4.1.1	Cas de paramètres d , β et ν constants _____	115
4.1.2	Cas de paramètres d et β variables _____	117
4.2.	Identification de l'excentricité R et de la fonction de durcissement P_b _____	121
IV.5.	Conclusion _____	123
Chapitre V. Simulation numérique _____		125
Introduction _____		129
V.1.	Les caractéristiques de la poudre _____	130
1.1.	Les propriétés élastiques _____	130
1.2.	Les paramètres du modèle de Drucker-Prager/Cap _____	130

V.2. Résultats numériques	133
2.1. Compression avec poinçons plats	133
2.1.1 Cas de paramètres constants	134
2.1.2 Cas de paramètres variables	136
2.2. Compression avec poinçons concaves	139
2.2.1 Maillages et dimensions dans le cas de poinçons concaves	140
2.2.2 Résultats	141
2.3. Simulation de l'étape de décharge	145
2.3.1 Distribution de la densité relative après décharge	145
2.3.2 Contraintes de Von Mises après décharge	147
V.3. Distribution axiale de la densité	149
V.4. Étude de sensibilité	150
4.1. Sensibilité de la contrainte axiale aux paramètres du modèle (cas de la compression sans frottement)	151
4.2. Sensibilité des résultats aux paramètres du modèle (cas de la compression avec frottement)	153
4.2.1 Sensibilité des résultats de calcul au module d'Young E	153
4.2.2 Sensibilité des résultats de calcul au coefficient de Poisson ν	154
4.2.3 Sensibilité des résultats de calcul à l'excentricité R	155
V.5. Conclusion	156
Conclusion générale	159
Nomenclature	165
Bibliographie	171

INTRODUCTION GÉNÉRALE

INTRODUCTION GÉNÉRALE

La mise en forme de poudres par compression est un procédé largement utilisé dans de nombreux secteurs industriels comme la métallurgie des poudres (poudres métalliques et céramiques), l'agroalimentaire, le cosmétique, la pharmacie et récemment dans la réduction des poussières et des emballages. En pharmacie, ce procédé présente un excellent rendement pour un investissement initial important, mais pour un coût d'entretien faible compte tenu du prix des poinçons et leur durée de vie. Les comprimeuses ont actuellement une capacité de production allant jusqu'à trois cents mille comprimés par heure. Cependant, compte tenu des propriétés des poudres (ou mélange de poudres) qui sont très sensibles à la manutention, à la provenance ou à la manipulation, la réussite du procédé de compaction et la formation d'un comprimé conforme demande une compréhension des propriétés fondamentales des poudres. Ces propriétés, qui peuvent être d'ordre physico-chimique et/ou mécanique, permettent d'expliquer comment une formulation pourrait se comporter en compaction.

Par ailleurs, la formation d'un comprimé non conforme ou l'arrêt de production suite à une mauvaise production de comprimés ne remet pas forcément en cause la formulation. Les paramètres du procédé tels que la vitesse de compaction, la forme du comprimé, l'état de la lubrification, les changements de température et d'humidité ou l'état de maintenance des outils de compression (matrices, poinçons) sont souvent responsables de perturbation de la production.

Contrairement aux poudres métalliques, la compression de poudres pharmaceutiques ne présente pas de difficultés liées à la complexité de la forme du comprimé. On trouve généralement des formes relativement simples (comprimé plat, bombé, bâtonnet, ...etc). Par conséquent, la difficulté de l'écoulement de matière pour les formes complexes ne se retrouve pas (ou très peu) dans les comprimés pharmaceutiques. Par contre, d'autres difficultés surviennent :

- le comportement mécanique lié à la taille granulométrique des poudres pharmaceutiques (poudres fines) et à la nature des matériaux,
- le mélange de poudres (homogénéité) et le caractère cohésif des poudres,
- la lubrification par des poudres et non directement de l'outil,
- l'expansion du comprimé relativement importante lors de l'éjection (très faible pour les poudres métalliques).

Dans cette contribution à l'étude de la compression des poudres pharmaceutiques, nous proposons une démarche expérimentale et de modélisation. Cette démarche permettra de caractériser le comportement des poudres pharmaceutiques de l'état poudre à l'état comprimé durant le processus de compression et d'étudier les relations entre les propriétés de base des poudres et les propriétés finales du comprimé.

Ce rapport est organisé en cinq chapitres.

Le premier chapitre présente une étude bibliographique qui met l'accent sur les mécanismes et les paramètres importants intervenant au cours des étapes de la compression en matrice, ainsi que les aspects industriels et technologiques propres au procédé.

Le dispositif expérimental et les matériaux utilisés pour caractériser le comportement mécanique des poudres pendant la compression en matrice, sont présentés dans le deuxième chapitre.

Le troisième chapitre est consacré à la caractérisation des propriétés mécaniques de l'état poudre à l'état comprimé durant le processus de compaction. Ces propriétés mécaniques sont le module d'Young, le coefficient de Poisson, le frottement poudre/matrice, la cohésion et l'angle de frottement interne de la poudre des comprimés pour différentes densités. Par ailleurs, une procédure expérimentale a été mise en place pour estimer la distribution axiale de la densité dans le comprimé.

Dans le quatrième chapitre, on introduit la loi de comportement choisie pour la description de la compression de poudres en définissant les conditions aux limites, les conditions de contact ainsi que la loi de frottement utilisée. Ensuite, on définira le cadre mathématique pour la formulation variationnelle du problème de la compression en prenant en compte les conditions de contact et de frottement. Par ailleurs, pour identifier le modèle de comportement, deux méthodologies d'identification des paramètres de comportement sont proposées.

Le cinquième chapitre concerne la simulation numérique de la compression en matrice. Nous étudions la réponse du modèle de comportement en contraintes et en déformations dans le lit de poudre, pour un chargement de type "compression - décompression". Les résultats des simulations numériques sont illustrés dans le cas de la poudre de cellulose microcristalline *Vivapur 102* et sont confrontés aux mesures expérimentales. Enfin, dans le but de déterminer

les paramètres du modèle les plus influents, une étude de sensibilité des résultats du modèle de comportement aux variations des propriétés des poudres est proposée.

Enfin, nous terminons ce rapport par une conclusion, qui rassemble les points importants de cette étude et des perspectives.

***CHAPITRE I : Généralités & étude bibliographique
sur la compaction des poudres***

Sommaire

I.1.	Compression de poudres pharmaceutiques	21
1.1.	Généralités	21
1.2.	La compaction de poudres	22
1.2.1	Étape du procédé	22
1.2.2	Mécanismes intervenant dans la cohésion du comprimé	25
1.2.3	Paramètres importants	26
1.2.4	Problèmes rencontrés dans l'industrie et solutions apportées	27
1.2.5	Approches expérimentales et de modélisation	28
1.2.6	Autres domaines industriels utilisant la mise en forme par compression	30
I.2.	Étude bibliographique sur la compaction des poudres	31
2.1.	Méthodes de caractérisation de la compression en matrice	31
2.1.1	Relations pression - densité	32
2.1.2	Analyse quantitative de la courbe de compression	36
2.1.3	Compactabilité	37
2.1.4	Expansion après retrait du poinçon supérieur	38
2.2.	Transmission de force à travers le lit de poudre	39
2.3.	Transfert de force axial-radial	41
I.3.	Approches de modélisation du comportement de poudres en compression	44
3.1.	Modèles de type discret (micromécanique)	44
3.2.	Modèles de type continu (macroscopique)	45
I.4.	Conclusion	46

1.1. Compression de poudres pharmaceutiques

1.1. Généralités

Dans l'industrie pharmaceutique, la compression est une opération qui permet la mise en forme de poudres en comprimés. Le comprimé est l'une des formes galéniques les plus utilisées : environ la moitié des médicaments est fabriquée sous cette forme. Le comprimé est facile à consommer, se présente sous plusieurs formes avec différentes couleurs et présente une dose constante du principe actif. Cependant, plusieurs phénomènes peuvent entraîner la non-conformité des comprimés.

Le frottement de la poudre avec l'outillage (matrice et poinçons) durant le processus de compression mène à une hétérogénéité de la distribution de densité dans le comprimé. Cette hétérogénéité entraîne une dispersion des caractéristiques mécaniques, une tenue mécanique médiocre et parfois une non-homogénéité du principe actif pour les comprimés sécables. Par ailleurs, l'hétérogénéité continue de se développer pendant les phases du retrait du poinçon et de l'éjection du comprimé. En effet, l'expansion du comprimé due aux propriétés de la poudre et aux paramètres du procédé de compaction est bien connue dans le milieu pharmaceutique comme étant un phénomène redoutable pour la production. L'intérêt de maîtriser les paramètres du procédé de compression et d'analyser les propriétés fondamentales des poudres est donc important. Par ailleurs, la qualité de l'outillage, poinçons et matrice, ainsi que leur entretien régulier est un facteur déterminant pour la continuité de la production. En effet, les poinçons subissent des contraintes répétées qui limitent leur durée de vie (fatigue mécanique). Cette durée de vie est fortement réduite par le collage de poudres sur les têtes de poinçons qui, en plus d'accélérer la rupture, entraîne des dommages à la production de comprimés. Une

optimisation de la durée de vie des poinçons au niveau de la conception ainsi qu'un plan d'entretien serait nécessaire afin de prévoir leur changement après un certain temps pour assurer une qualité de production. L'enjeu industriel est important. Il s'agit d'une part de maîtriser le comportement de la poudre en compression et d'autre part de prendre en compte l'optimisation de l'outillage en conception et en fonctionnement. Une collaboration étroite entre outilleurs et producteurs de comprimés est fortement souhaitée.

En milieu de production, la qualité du comprimé est jugée au premier abord sur son apparence et la présence ou non de fissures. Le comprimé doit avoir une solidité suffisante qui assure d'une part des manipulations ultérieures (stockage, transport, ...) et d'autre part, des propriétés d'usage comme la dissolution ou la sécabilité.

Dans ce chapitre introductif, on présente les étapes du procédé tout en mettant au clair les paramètres importants qui influent sur la compaction. Nous décrivons les approches expérimentales et de modélisation dans les bureaux R&D du secteur industriel et dans le milieu académique. L'aspect des problèmes rencontrés dans l'industrie ainsi que les solutions apportées seront décrits. Enfin, nous présentons les autres secteurs industriels qui utilisent le procédé de compression.

1.2. La compaction de poudres

1.2.1 Étape du procédé

Les principales étapes du procédé de mise en forme par compression simple en matrice peuvent être décrites comme c'est schématisé dans la figure I.1. Il s'agit de quatre phases : remplissage de la matrice, compression ou charge, décharge ou retrait du poinçon puis éjection.

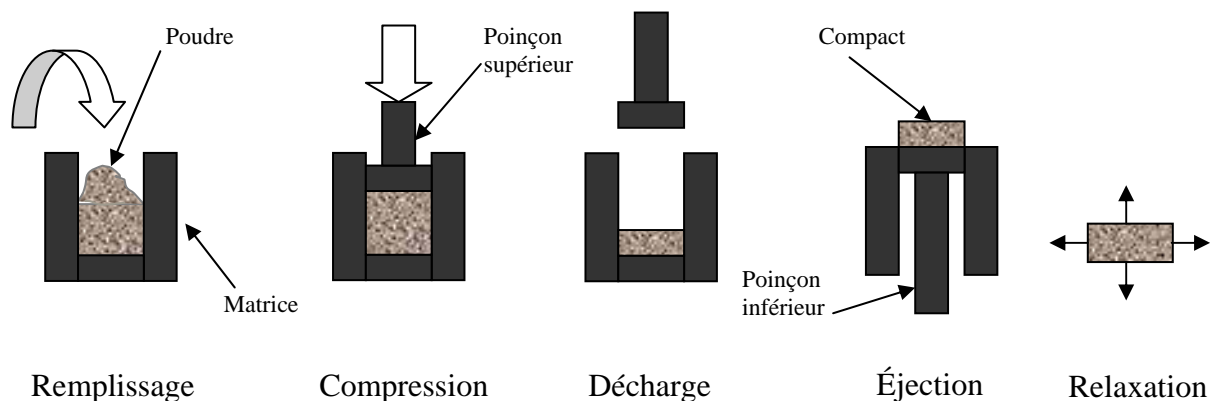


Figure I.1. Présentation du procédé de compression en matrice.

Ces étapes peuvent être définies comme suit :

Le remplissage : Le remplissage de la matrice se fait généralement d'une manière automatique dans les comprimeuses. La poudre s'écoule dans la matrice et un sabot vient araser la poudre. L'écoulement de la poudre est assuré par l'effet conjugué de la gravité et de la vibration du sabot. Il faut toutefois éviter les poudres cohésives qui s'écoulent mal (une opération de granulation est souvent utilisée dans ce cas) et veiller à ce qu'en cas de mélange de poudres, il n'y ait pas de ségrégation.

La compression : Cette étape permet de densifier la poudre et de la mettre en forme de comprimé. Le poinçon supérieur vient s'enfoncer dans la matrice. Cet enfoncement est contrôlé par une charge ou un déplacement imposés. En début de compaction, les particules se réarrangent par des glissements et des rotations pour former un empilement plus dense [1]. Le lit de poudre est alors débarrassé de l'excès d'air et le nombre de points de contact entre particules augmente. À la fin de cette étape du tassement, les particules ne peuvent plus glisser les unes par rapport aux autres et l'on assiste à une réelle résistance de la poudre à l'enfoncement du poinçon. Les particules subissent des déformations selon leur comportement mécanique. Des particules fragiles auront tendance à se fragmenter réalisant un nouveau réarrangement et une densification locale plus importante. Au cours de la fragmentation, de nouvelles particules se forment et le processus recommence : réarrangement, déformation réversible et irréversible, enchevêtrement et fragmentation jusqu'à une taille critique minimale [2]. Tandis que des particules ductiles vont plutôt se déformer de manière irréversible.

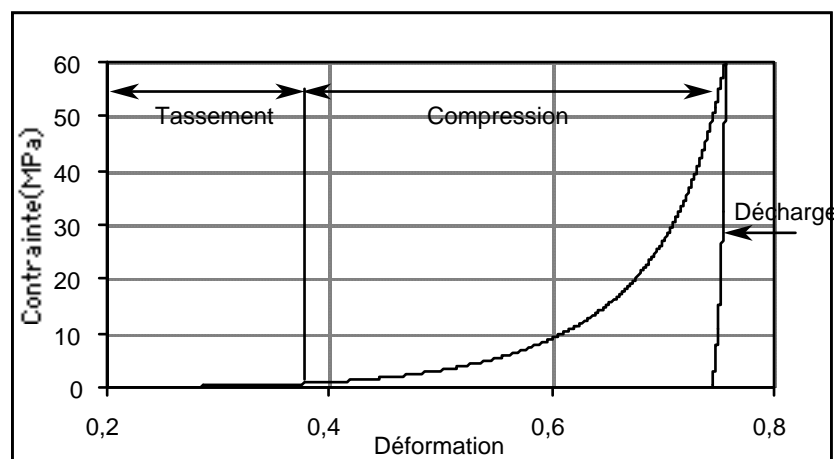


Figure I.2. Courbe typique de compression.

Ce comportement augmente la densité de la poudre. Au cours de cette étape, la poudre gagne en cohésion et la pression augmente rapidement. Une illustration des phases de la compression est représentée dans la figure I.2.

La décharge : C'est la phase du retrait du poinçon qui réalise la compression. Au cours de la compression, le lit de poudre a gagné de l'énergie fournie par les différents mécanismes qui ont contribué à la densification. Une partie de l'énergie est stockée sous forme élastique, qui dépend du comportement de la poudre et des paramètres du processus de compaction, sera restituée lors de l'étape de décharge [3]. Cette énergie emmagasinée est la source de l'expansion du comprimé [4]. Au cours de la décharge, le comprimé pourrait subir un rebond qui entraînerait son délaminage [2,5]. En effet, suite au retrait du poinçon, le comprimé est soumis à des contraintes en tension qui peuvent séparer les surfaces interparticulaires. Par conséquent, une détente du comprimé plus ou moins importante, selon les propriétés de la poudre et les conditions de la compression, peut entraîner le clivage du comprimé [2,3]. La figure I.3 illustre ce phénomène sur une poudre du lactose.



Figure I.3. Clivage d'un compact de lactose après éjection.

L'éjection : Cette opération est réalisée en général par remontée du poinçon inférieur ou descente de la matrice. Pendant l'éjection, le comprimé continue à se dilater et des contraintes de cisaillement s'exercent inégalement sur le comprimé [6,7]. Ces contraintes sont dues au frottement du comprimé avec la matrice [7]. Au cours de l'éjection, des phénomènes de collage à la paroi et de clivage de comprimé peuvent apparaître. La figure I.4 représente une courbe typique de la phase d'éjection. Au début de l'éjection, la contrainte est relativement importante pour initier le mouvement du comprimé puis décroît jusqu'à la fin de l'éjection.

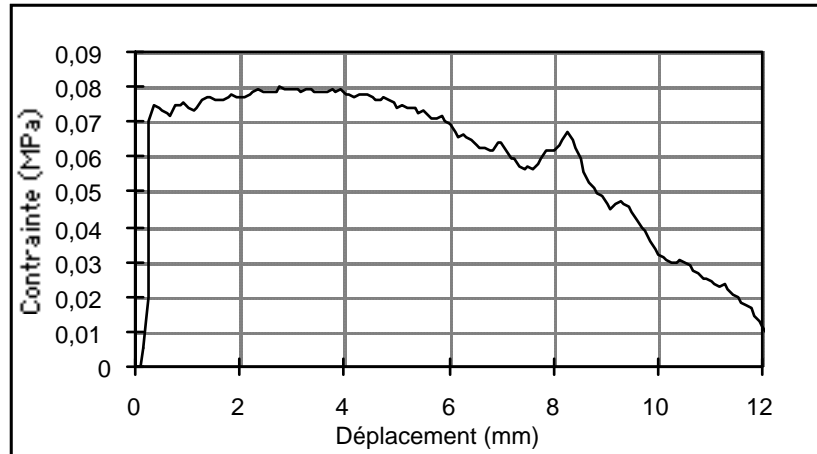


Figure I.4. Courbe d'éjection d'un comprimé de poudre de cellulose microcristalline Vivapur PH 102 : Contrainte appliquée en fonction du déplacement du poinçon inférieur.

La relaxation : Une fois le comprimé éjecté, il continue à se dilater pour atteindre au bout d'un certain temps un état d'équilibre stable, ou se fissurer quand la poudre est sensible à l'humidité par exemple. Dans ce processus, et selon le comportement de la poudre et l'état de contrainte générée en compression ainsi que les conditions de stockage, le comprimé pourrait se fissurer.

La compréhension de la compaction de poudres est toujours limitée par le nombre et la complexité des étapes et des paramètres contrôlant le procédé de compression. En effet, les différents mécanismes, réarrangement des particules, fragmentation, déformations réversibles et irréversibles, peuvent se produire en même temps ou successivement. De plus, le comprimé contient en plus du principe actif, des excipients, des liants, des lubrifiants et des colorants qui ont des comportements différents et dont le comportement en cas de mélange est difficile à prévoir [8].

1.2.2 Mécanismes intervenant dans la cohésion du comprimé

La compression crée un certain nombre de points de contact entre les particules. Par contre, on ne formera un comprimé que si des liaisons s'établissent entre ces points. Ces mécanismes de liaisons qui interviennent dans la cohésion du comprimé sont nombreux et leur importance varie en fonction de la nature des particules. Ces mécanismes ont été classés selon qu'ils induisent [9,10] :

Des ponts solides : En général, ce sont des ponts qui se construisent par des réactions chimiques, des fusions partielles ou de cristallisation.

Des forces d'attraction : La poudre est un assemblage de grains dispersés dans un gaz (l'air en général) où les particules restent en contact. Ce contact est dû à la gravité et à des attractions interparticulaires. Ces interactions dépendent de la nature des particules et de la distance entre particules. Quand il s'agit d'une poudre simple, ces interactions sont appelées forces de cohésion. Tandis que dans le cas de mélange, ces forces sont de nature adhésive. On distingue essentiellement trois types d'interactions qui sont :

- **Les interactions électrostatiques :** Ces forces sont attractives entre deux particules de charges q_1 et q_2 , distantes de r . Elles agissent à distance avec une force F_{12} selon la loi de Coulomb [11] :

$$F_{12} = \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0 r^2}$$

où la constante universelle $1/(4\pi\epsilon_0)$ vaut $9.10^9 \text{ N.m}^2/(\text{Coulomb})^2$.

- **Les interactions moléculaires :** Comme celles de Van Der Waals, ce sont des forces qui agissent à des distances interatomiques jusqu'à 10 nm [12].
- **Les forces capillaires :** Dans le cas de poudres humides qui contiennent une quantité d'eau, des forces capillaires sont généralement responsables de la création des ponts liquides. Les forces capillaires peuvent être importantes dans le cas de poudres cosmétiques par exemple [10].

Enchevêtrement : des liaisons interparticulaires peuvent être créées par enchevêtrement [2].

L'importance de ces mécanismes de liaisons dépend des conditions opératoires et des propriétés de la poudre et est influencée par différents paramètres importants qui sont décrits dans le paragraphe suivant.

1.2.3 Paramètres importants

Les paramètres qui influent sur le procédé et les propriétés des comprimés sont nombreux. Les particules possèdent des caractéristiques telles que la taille, la forme et le comportement mécanique (fragile ou ductile). Les interactions entre particules survenant au cours de la compression dépendent de ces caractéristiques. Ces interactions dépendent aussi de la présence éventuelle d'un liant ou d'un lubrifiant. D'autres paramètres sont également importants tels que la rugosité de la surface de l'outillage, son comportement et les paramètres du procédé comme la vitesse de compression, la forme des poinçons, et le temps d'application de la force.

Bien que le procédé de compression soit économique et rapide, il présente des difficultés liées à la poudre utilisée. La compressibilité et la compactabilité de la poudre sont deux

propriétés essentielles pour ce procédé. Elles sont définies comme suit [9] :

La compressibilité : C'est l'aptitude de la poudre à diminuer de volume sous l'effet de la pression. Elle a fait l'objet d'un très grand nombre de travaux, c'est ainsi que plusieurs équations ont été proposées reliant la pression à une mesure de consolidation telle que la densité, la porosité ou le volume.

La compactabilité : C'est l'aptitude de la poudre à former un compact de cohésion suffisante par densification. Si les particules sont très proches, des liaisons entre particules vont pouvoir s'établir donnant un compact dont la résistance est mesurable. Cette résistance peut être reliée à la densification, permettant de quantifier la compactabilité. On discutera des équations qui décrivent la compressibilité et la compactabilité dans la deuxième partie de ce chapitre.

1.2.4 Problèmes rencontrés dans l'industrie et solutions apportées

Comme nous l'avons précisé précédemment, plusieurs problèmes peuvent survenir lors du processus de compaction entraînant la non-conformité du comprimé. On peut citer ci-dessous quelques exemples qui sont les plus fréquents dans l'industrie pharmaceutique :

- **Clivage des comprimés** : Pendant l'étape de l'éjection, on peut observer des comprimés brisés dans leur épaisseur. Ce phénomène de clivage ou de délaminage initié par des dommages localisés intervient ou non selon la poudre et la pression appliquée par le poinçon supérieur pendant la compression. Ce phénomène peut s'initier lors de la décharge où le comprimé est soumis à des contraintes en tension qui peuvent séparer les surfaces interparticulaires et initier la propagation de fissures. Il peut continuer dans la phase de l'éjection. En effet, vers la fin de l'éjection, une partie du comprimé hors confinement est libre de se dilater, et une autre partie est contrainte dans la matrice. Cet état entraîne des contraintes de cisaillement qui favorisent la création et la propagation de fissures.
- **Rupture des poinçons** : Au bout d'un certain nombre de cycle de compression, le bord des poinçons se rompt par fatigue. Ce constat est encore plus fréquent pour des poinçons concaves. Il est à noter que cet endommagement est l'effet combiné de la fatigue mécanique et du collage de poudres dans les aspérités du poinçon.
- **Mauvaise dissolution** : Selon leur forme et la pression appliquée, les comprimés obtenus se dissolvent plus ou moins rapidement et ce pour le même mélange de poudres. Le temps de dissolution est très important dans l'industrie pharmaceutique car l'efficacité du principe actif en dépend fortement. Ce problème est souvent lié à la formulation, à la

nature des particules (granulation, taux d'humidité) et aux conditions opératoires de la compression.

- **Collage** : Le collage de la poudre à la paroi peut entraîner le clivage du comprimé et l'encrassement de la machine qui bloque la production. Le collage entraîne aussi la rupture prématurée des poinçons. En plus, la production de comprimés est souvent considérée comme défectueuse.
- **Régulation de la température** : La température peut augmenter par compression et selon les saisons. Les usines de production sont rarement régulées en température. Ceci peut entraîner des comportements différents de la poudre et affecte la qualité des constituants du comprimé. En effet, il est communément admis que la température sur les lieux de production s'élève à 30° ou 40°C. Il est alors normal de se poser la question sur le changement de phase de certains constituants.
- **Mauvaise coulabilité** : Un mauvais écoulement de la poudre peut entraîner une non-uniformité des masses de comprimés obtenus et empêche l'homogénéité au sein du comprimé [2]. La coulabilité de la poudre peut s'améliorer par granulation ou par mélange avec d'autres excipients.

Il n'est pas toujours facile de réunir toutes les conditions favorables à la compaction des poudres pharmaceutiques, et il s'avère fréquemment nécessaire de faire appel à des adjuvants qui favoriseront la cohésion des particules de poudre par divers mécanismes. Ces adjuvants doivent présenter certaines qualités comme une bonne coulabilité, un bon pouvoir liant et une libération satisfaisante du principe actif [22]. Pour satisfaire les exigences qui dépendent de la poudre utilisée, souvent une granulation préalable est préconisée. Ces exigences sont à revoir à chaque étape de formulation de produit [23]. Par ailleurs, pour réduire le frottement à la paroi et éviter le collage, les industriels utilisent généralement des lubrifiants. Cependant, ces lubrifiants entraînent souvent une augmentation de la pression radiale à la paroi [24] qui peut être néfaste lors de la décharge.

1.2.5 Approches expérimentales et de modélisation

Les investigations expérimentales ont été facilitées par le progrès de l'instrumentation. L'utilisation des presses excentriques instrumentées, des presses alternatives, des machines d'essais universelles et des simulateurs de compaction a permis de suivre l'évolution des forces qui se développent au cours de la compression. Ces données ont permis de mettre au point des tests d'évaluation et des approches expérimentales dans les bureaux de recherche et de développement (R&D) de l'industrie pharmaceutique et dans les laboratoires de recherche

du secteur académique.

Dans les bureaux de R&D de l'industrie pharmaceutique :

Seuls les grands groupes pharmaceutiques développent des moyens d'essais pour la mise au point de comprimé en liaison avec la phase de formulation. Les données expérimentales sont souvent obtenues à partir des mesures de la force en fonction de déplacement des poinçons, de la force d'éjection, et d'autres paramètres [12]. Ces données peuvent fournir des indicateurs pour améliorer les formulations et aider à maintenir les presses dans des conditions de fonctionnement idéales [13]. En effet, ces mesures peuvent fournir des informations sur :

- Le volume de mélange de poudres présent dans la matrice pour la régulation de la masse des comprimés.
- L'optimisation de la lubrification qui réduit les dispersions de propriétés dans le comprimé et qui, par ailleurs, peut fragiliser le comprimé.
- L'efficacité des opérations technologiques telles que la granulation ou la façon selon laquelle le mélange a été effectué (les résultats peuvent être influencés par le temps de mélange, le type de mélangeur, ainsi que l'ordre d'addition des différents composants) [14].
- Les forces maximales nécessaires à la formulation du comprimé commercialisable.

De plus, des mesures concernant le compact final peuvent permettre de quantifier des propriétés comme la dureté, la friabilité, la porosité, les caractéristiques de dissolution, et les dimensions physiques. Ces propriétés constituent des aspects importants de la qualité du produit. À présent, il n'y a aucune méthode prédictive universelle pour la formulation de comprimés. Mais, ces approches expérimentales peuvent avoir des applications pratiques dans les laboratoires de formulation.

Dans la recherche académique :

Dans les laboratoires de recherche académique sur la compression de poudres pharmaceutiques, les approches utilisées sont souvent basées sur des relations qui aident à évaluer les mécanismes de compaction et à comparer la compressibilité ou la compactabilité de poudres. Parmi les relations les plus populaires qui caractérisent la compressibilité celle de Heckel qui relie la pression à la densité relative [15,16]. Les relations entre la pression et l'état de densité sont généralement utilisées pour une description qualitative des mécanismes de consolidation et une caractérisation de l'aptitude de la poudre à se déformer plastiquement

[17]. Par ailleurs, la compactabilité est analysée par des relations entre la pression et une mesure de la résistance du comprimé telle que la contrainte de rupture diamétrale ou la dureté par indentation. D'autres approches s'intéressent à la relaxation élastique des comprimés permettant de définir des indices à base de variations dimensionnelles. Ces indices sont censés prévoir des phénomènes de clivage ou de délaminage [9].

C'est dans la dernière décennie qu'on a commencé à utiliser des approches de modélisation de comportement mécanique de poudres pour étudier la compression de poudres pharmaceutiques. Il est alors possible d'étudier le comportement de poudres à deux échelles :

- *Echelle microscopique (échelle du grain) :*

On se place au niveau des particules et l'on étudie leurs interactions et leurs comportements individuels. Cette approche discontinue ou discrète est basée sur la prise en compte des propriétés des particules et des conditions de contact entre particules [18] pour remonter au comportement moyen à l'échelle du volume élémentaire représentatif. Cette échelle de modélisation permet de formuler des lois de comportement macroscopiques.

- *Echelle macroscopique (échelle du volume élémentaire représentatif) :*

À cette échelle, le grain n'est pas considéré individuellement. Le lit de poudre est considéré comme un milieu continu fortement compressible. Ses propriétés sont identifiables à l'aide d'une série d'essais expérimentaux (essai triaxial, essai en matrice) et traduisent une réponse macroscopique [19,20,21] nécessaire à la caractérisation du comportement de la poudre.

La combinaison des deux approches, discrète et continue, serait certainement un moyen intéressant pour relier les propriétés microscopiques aux propriétés macroscopiques du solide divisé et surtout de bénéficier des avantages des deux méthodes l'une à l'échelle de la particule et l'autre à l'échelle de la mesure. On reviendra sur ces deux approches dans la deuxième partie de ce chapitre.

1.2.6 *Autres domaines industriels utilisant la mise en forme par compression*

La nécessité de densifier des solides divisés se révèle importante dans de nombreux domaines industriels. Les types de matériaux utilisés dans la compaction vont de la poudre fine aux sols rocailloux. La mise en forme par compression concerne :

- Les poudres métalliques (la compaction à froid est une première étape avant le frittage) pour la fabrication de pièces de précision, d'outillage...

- Les poudres céramiques pour la fabrication des pièces de l'art de la table....,
- Les produits cosmétiques destinés au maquillage,
- L'agroalimentaire comme les comprimés de jus de fruit....,
- L'agriculture comme les engrais,
- Le stockage des matériaux comme les déchets,
- La construction des routes dans le domaine du génie civil pour le drainage ou la stabilité de l'humidité.

Dans tous les cas, l'objectif principal est d'obtenir, d'une manière rapide et aussi reproductible que possible des compacts avec des caractéristiques précises. Parmi les applications recherchées, on note le gain de volume, la solidité suffisante pour une manipulation ultérieure, la réduction de poussière (poudres fines), pour des propriétés d'usage améliorées.

Par contre, dans la plupart des cas, la fonction finale du compact dépend fortement de l'histoire de la poudre, du procédé de compression et de l'outillage qui assure la mise en forme.

1.2. Étude bibliographique sur la compaction des poudres

2.1. Méthodes de caractérisation de la compression en matrice

L'instrumentation des presses de laboratoire a permis de recueillir des données sur le processus de compression ainsi que des données sur les comprimés. Ces données sont essentiellement obtenues à partir de mesures telles que l'évolution sur les poinçons supérieur et inférieur, des forces appliquées et des déplacements au cours du cycle de compression. De plus, avec une instrumentation un peu moins standard que celle des poinçons, on trouve des montages de mesure de la force ou la pression normale appliquée sur la surface de contact entre le compact et la matrice. Des mesures dimensionnelles sur le comprimé au cours de la compression et après éjection de celui-ci sont souvent exploitées pour caractériser le comportement mécanique du compact.

L'exploitation et l'interprétation de ces mesures passe par l'utilisation de modèles destinés à caractériser le comportement du comprimé. Le but de ce paragraphe est donc de rappeler ces différentes approches destinées à caractériser des propriétés comme la compressibilité et la compactabilité de la poudre ou les propriétés mécaniques comme le retour élastique des compacts et le clivage.

2.1.1 Relations pression - densité

La mesure de la force appliquée en fonction du déplacement du poinçon de compression est un moyen souvent utile pour établir des relations caractérisant la compressibilité des poudres. En effet, plusieurs équations dont la plupart empiriques ont été développées. Ces équations relient une mesure de consolidation comme la porosité, le volume relatif, la densité, la densité relative ou le rapport de vide, à la pression de consolidation. Le premier objectif de ces équations est d'exploiter les données expérimentales en analysant des propriétés permettant de comparer des poudres. Le deuxième objectif est de pouvoir prédire la pression nécessaire pour atteindre une densité donnée. Ce dernier objectif est l'originalité d'une relation pression – densité.

L'une des premières équations est probablement celle proposée par Walker en 1923 qui relie la pression appliquée et le volume relatif [25] :

$$V_r = a - k \ln P_a$$

où P_a est la pression appliquée, V_r est le volume relatif, a et k sont des constantes dépendantes de la poudre.

Bal'shin en 1938 a repris la même équation et a tenté de lui donner une justification théorique par application de la mécanique des fluides [26]. L'équation de Balshin a quelque peu éclairci le sujet, mais elle est peu utilisée. Une vingtaine d'équations ont été ensuite développées comme celles de Heckel, de Kawakita et de Cooper et Eaton [12].

En pharmacie, les modèles de Heckel [16] et de Kawakita [27] sont fréquemment utilisés. Ces équations permettent de comparer la compressibilité des poudres. Par ailleurs, ces équations sont critiquables [26,28]. Le principal inconvénient de ces équations réside dans le fait qu'elles ne proviennent pas de considérations théoriques du processus de compaction. De plus, elles ne prennent pas en compte les effets de la vitesse de compression, du temps de contact, des dimensions de la matrice, de la forme du compact, du frottement de la poudre avec la matrice. Néanmoins, ces équations représentent un outil privilégié pour comparer les comportements de poudres en compression en matrice. On présente ci-dessous les équations de Heckel et de Kawakita.

Équation de Heckel :

Heckel en 1961 a proposé de décomposer le compactage de poudres métalliques en trois étapes [29] :

- *Le remplissage de la matrice* qui permet d'obtenir une densité relative initiale ρ_0 qui dépend de la poudre.
- *Le réarrangement des particules* par des glissements et des rotations réalisant un empilement plus dense.
- *La déformation plastique* qui commence lorsque les particules ne peuvent plus se déplacer les unes par rapport aux autres.

Durant le processus de compaction, l'équation d'Heckel [15,16] décrit une corrélation entre la densité relative ρ_r et la pression appliquée P_a par le poinçon sur la poudre. L'équation s'écrit :

$$\ln\left(\frac{1}{1-\rho_r}\right) = \ln\left(\frac{1}{1-\rho_0}\right) + KP_a$$

où ρ_0 est la densité relative initiale de la poudre et K est une constante du matériau.

Différentes corrélations de la constante K aux propriétés mécaniques de poudre ont été proposées. Heckel a proposé une relation entre la constante K et la contrainte d'écoulement plastique de la poudre σ_0 exprimée par :

$$K = \frac{1}{3\sigma_0}$$

Hersey et Rees ont relié la constante K à la pression moyenne d'écoulement P_y (cité dans [12]) :

$$K = \frac{1}{P_y}$$

où P_y est la pression à partir de laquelle le matériau commence à se déformer plastiquement. En conséquence, la constante K est reliée à l'aptitude du matériau à se déformer plastiquement sous l'effet de la pression.

Comme la densité initiale ρ_0 est difficile à estimer, l'équation de Heckel est en général présentée sous la forme :

$$\ln\left(\frac{1}{1-\rho_r}\right) = KP_a + A \quad (I-1)$$

Cette équation est utilisée pour comparer des poudres et donner des informations sur la compressibilité des poudres. Il est à noter que la droite associée à l'équation (I-1) ne représente les données expérimentales que sur une zone de pressions importantes. Les prédictions aux faibles pressions sont en général loin des faits observés pendant l'expérience.

La figure I.5 représente le schéma représentatif selon l'équation de Heckel décrivant le comportement de la poudre en compression. Cette courbe typique de Heckel est en général linéaire pour les pressions importantes. Mais, il peut y avoir un changement de pente à des pressions importantes.

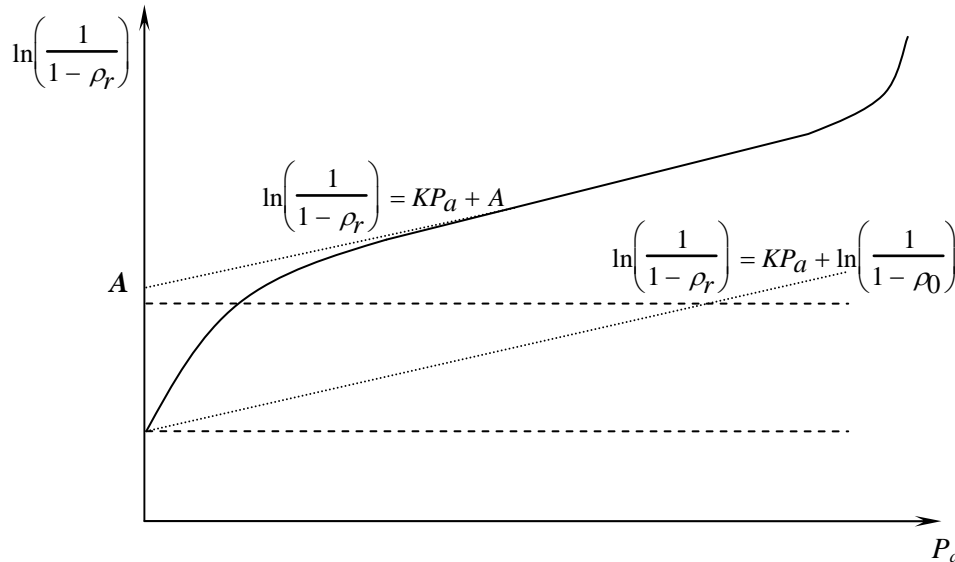


Figure I.5. Représentation de l'équation de Heckel.

Heckel a proposé que la première partie non linéaire de la courbe peut être attribuée au réarrangement des particules avant d'avoir des liaisons interparticulaires. La partie linéaire de la courbe a été attribuée aux déformations plastiques.

L'application des courbes de Heckel à la compaction des poudres pharmaceutiques permet une interprétation des mécanismes de consolidations et une mesure de la pression moyenne d'écoulement P_y de la poudre. L'équation de Heckel peut parfois fournir une mesure utile de la densité en fonction de la pression appliquée. Cependant, les courbes de Heckel dépendent de la machine de compression utilisée, des conditions de la compression, des dimensions de la matrice, de la forme du compact et du temps.

Du même type d'équations que celle de Heckel, l'équation de Kawakita est souvent utilisée pour caractériser les poudres pharmaceutiques.

Équation de Kawakita :

Cette équation a été proposée par Kawakita et Ludde en 1970 [27] et s'écrit :

$$\frac{P_a}{C} = \frac{1}{ab} + \frac{P_a}{a}$$

où $C = \frac{V_0 - V_p}{V_0}$, V_0 est le volume initial apparent, V_p est le volume sous la pression P_a , a et b sont des constantes déduites de la courbe P_a/C en fonction de P_a qui est en général une droite affine (figure I.6). Il a été suggéré [27] que la constante a est égale à la porosité initiale. Cependant, ce n'est pas toujours le cas dans la pratique. La constante a est considérée comme une indication de la compressibilité de la poudre. Par ailleurs, la constante b a la dimension de l'inverse d'une pression. Mais, elle n'a pas de corrélation avec aucune propriété mécanique de la poudre [26].

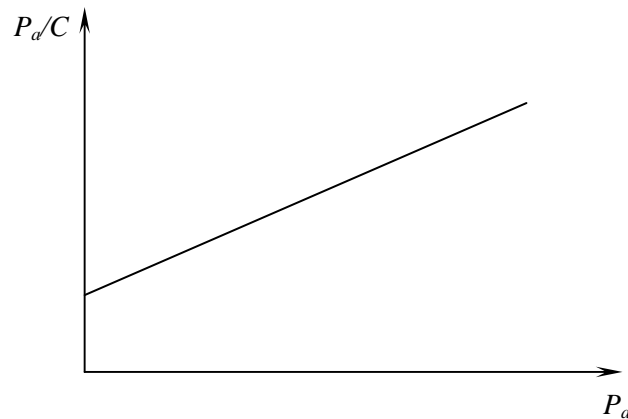


Figure I.6. Représentation de l'équation de Kawakita

Kawakita et Ludde ont montré qu'une attention particulière doit être faite pendant la mesure du volume initial V_0 , et que des fluctuations dans la valeur mesurée de V_0 peuvent entraîner parfois des déviations importantes. Il est généralement confirmé que l'équation de Kawakita est la mieux adaptée pour les faibles pressions et les grandes porosités. En effet, la courbe n'est plus linéaire à partir de certaines pressions. L'équation de Kawakita est appliquée fréquemment au tassement et à la densification par vibration (porosité importante). Dans le cas de tassement, la pression est remplacée par le nombre de coups. Dans le cas d'une machine de vibration, la pression est remplacée par le temps [27].

Il est certainement impossible qu'une seule équation de compaction prenne en compte tous les mécanismes présents dans les phases de compression. Une "bonne" équation devrait rendre compte des changements des mécanismes présents pendant la compaction. L'idéal est qu'elle dérive d'un travail de modélisation raisonnable et s'applique à une classe de solides divisés.

2.1.2 Analyse quantitative de la courbe de compression

Au cours de la compression, le lit de poudre emmagasine de l'énergie fournie par les différents mécanismes qui contribuent à la densification. Il est utile parfois d'estimer le travail de compaction [17]. La figure I.7 représente les différents travaux mis en jeu pendant la compression. Le travail total fourni pendant la compaction est représenté par la surface ABD . La partie élastique de ce travail est restituée par l'outillage pendant la décharge. Cette récupération est représentée par la surface DBC .

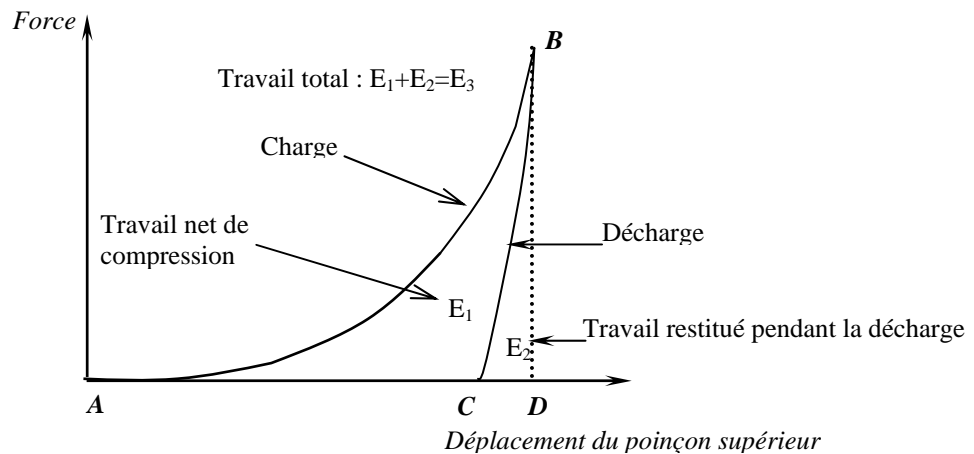


Figure I.7. Travail de compaction.

La surface ABC représente le travail net qui a contribué à la formation du compact. Ce travail est une mesure de la résistance du compact bien que sa valeur inclue le travail fourni pour surmonter le frottement à la paroi [30]. En effet, certains auteurs [13,17] ont établi une corrélation entre le travail net et la contrainte de rupture du compact obtenu et ont déduit que l'énergie absorbée est utilisée pour la déformation plastique et la formation de liaisons interparticulaires. Par ailleurs, le travail nécessaire pour surmonter le frottement à la paroi peut être calculé à partir de la différence entre le travail fourni par le poinçon supérieur et le travail transmis au poinçon inférieur [12].

Il est à noter que l'expansion du compact enregistrée à la décharge n'est pas complète. Pendant le retrait du poinçon supérieur, la force s'annule quand il n'y a plus de contact entre le poinçon et le compact. Mais, l'expansion du compact pourrait continuer. Cependant, le travail net mesuré à partir du cycle de compression pourrait ne pas représenter vraiment le travail total fourni pendant la compression [12]. Par ailleurs, les erreurs de la déformation des poinçons et de la précision de déplacement rendent difficile une mesure exacte du travail de compaction. Ces erreurs ont plus d'effet pour des pressions importantes où le déplacement du poinçon est petit.

Dans le cas idéal d'une déformation purement élastique, le travail nécessaire est entièrement récupéré pendant la décharge et par conséquent, le travail net n'a pas contribué à la formation du compact. Alors que dans le cas d'une déformation purement plastique, la déformation est irréversible. Le travail net est totalement conservé et l'expansion du comprimé est nulle. En général, plus cette expansion est importante, plus le compact obtenu est fragile. Par ailleurs, quand la déformation plastique est dominante, le compact obtenu a une tenue mécanique dont la résistance est mesurable. Cette résistance peut être reliée à la densification permettant ainsi de quantifier la compactabilité.

2.1.3 Compactabilité

Les équations reliant la pression appliquée à l'état de densité telles que celles de Heckel et de Kawakita sont utiles pour quantifier la compressibilité de la poudre. Cependant, ces relations ne fournissent aucune information sur la compactabilité de la poudre. Une poudre compactable est une poudre dont les particules se lient entre elles sous l'effet de la pression et peuvent former un comprimé d'une solidité suffisante pour une manipulation ultérieure. La compactabilité est clairement une propriété essentielle dans le processus de compression. La mesure de la résistance d'un comprimé peut être reliée à la densification permettant ainsi de quantifier la compactabilité. Plusieurs auteurs cités dans [9] se sont intéressés à ce type de relations entre la résistance du compact et son état de densité.

Leuenberger et ses collaborateurs ont proposé que la dureté Brinell d'un compact peut être corrélée à la pression de compaction, et la densité relative sous la forme [30] :

$$H_B = H_{B_{max}} (1 - \exp(-\gamma P_a \rho_r))$$

où H_B est la dureté de Brinell d'un comprimé formé à une pression P_a , $H_{B_{max}}$ est la dureté Brinell du comprimé extrapolée à porosité nulle, ρ_r est la densité relative et le paramètre γ en MPa^{-1} appelé susceptibilité à la compression est le taux avec lequel H_B augmente avec la contrainte de compression P_a . Les matériaux plastiques se caractérisent par des valeurs de $H_{B_{max}}$ relativement faibles. Alors que les matériaux fragiles se caractérisent par des valeurs de $H_{B_{max}}$ plus élevées. Le paramètre γ prend une valeur élevée pour des matériaux plastiques et une valeur plus faible pour des matériaux fragiles [9]. Leuenberger et al. ont montré que ce paramètre décrit indirectement la compressibilité des poudres : une poudre pour laquelle γ est élevée donne même à de faibles pressions une valeur de résistance proche de la valeur maximale théorique traduisant une compressibilité élevée. La question qui se pose est quelle est la validité de la mesure de la dureté dans le cas d'un matériaux poreux ? Il est difficile d'être certain que l'indentation a été faite sur un grain ou un pore. Une telle mesure peut

varier d'une partie du comprimé à une autre. Ridgway et al. (cité dans [31]) ont montré que la mesure de la dureté Brinell atteint son maximum au centre de la face du compact. Par ailleurs, la mesure de la dureté dépend des conditions expérimentales et de la méthode de mesure. La pente de la courbe force– dureté a été utilisée comme un indice de cohésion pour classer des matériaux. La plupart des travaux sur la compactabilité ont montré que l'augmentation de la force de compaction entraîne une augmentation de la résistance du compact. Cependant, en pratique, ce n'est pas toujours le cas, l'application de pressions importantes sur certaines poudres peut mener au clivage ou au délaminage du compact [13].

2.1.4 Expansion après retrait du poinçon supérieur

Pendant le retrait du poinçon supérieur, le comprimé subit une détente élastique plus ou moins importante selon la poudre et les conditions opératoires. Une détente importante du comprimé peut être néfaste et peut fragiliser le comprimé. En effet, suite au retrait du poinçon, le comprimé est soumis à des contraintes en tension qui peuvent séparer les surfaces interparticulaires.

Les courbes force-déplacement sont utilisées pour obtenir une information sur l'élasticité de la poudre (figure I.8). Le point *D* sur la figure I.8 correspond au déplacement du poinçon supérieur à charge maximale et le point *C* correspond au déplacement quand la charge s'annule. L'expansion du comprimé est la différence entre ces deux déplacements.

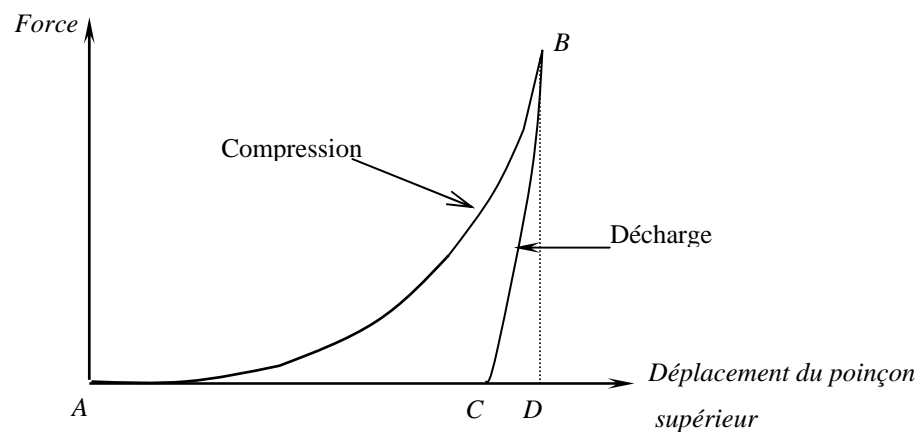


Figure I.8. Expansion après retrait du poinçon.

Une des techniques utilisées pour analyser la détente du comprimé est d'effectuer plusieurs cycles de compression sur une poudre contenue dans une matrice pour une pression et une vitesse données sans l'éjection. La courbe force-déplacement se stabilise après un certain nombre de cycles et le lit de poudre est supposé ne subir qu'une déformation réversible [30].

Le travail fourni pendant le dernier cycle peut être considéré comme un indicateur de l'élasticité de la poudre.

L'expansion du comprimé après retrait du poinçon supérieur est définie par [9] :

$$ER = \frac{h_e - h_c}{h_c}$$

où h_c et h_e sont les épaisseurs du comprimé sous compression et après éjection respectivement. Cet indice ER permet de quantifier la détente du comprimé et de comparer le comportement des poudres pendant la décharge. Les poudres pharmaceutiques montrent souvent une viscoélasticité qui peut être influencée par le taux de compression, contrairement aux poudres métalliques qui semblent avoir une dépendance moindre à la vitesse. Les caractéristiques des comprimés obtenus à l'aide de presses excentriques à des vitesses faibles peuvent changer dans le cas de presses rotatives à vitesses élevées. Les poudres qui donnent des comprimés solides avec des presses excentriques ne se comportent pas toujours bien dans le cas de presses rotatives. La différence entre ces deux types de presses est principalement le temps pendant lequel la pression est appliquée. La durée est plus importante dans le cas de la presse excentrique. Par ailleurs, la durée du contact pendant laquelle la pression est appliquée et le temps durant lequel le comprimé est sous pression maximale pourraient aussi avoir un effet sur les caractéristiques du comprimé obtenu.

2.2. Transmission de force à travers le lit de poudre

Pendant la compression en matrice, le lit de poudre montre une résistance à la pression exercée par le poinçon. Cependant, la pression n'est pas transmise uniformément à cause du frottement à la paroi et au frottement interparticulaire. La transmission de force dépend des propriétés de la poudre, des conditions de compaction et des conditions d'interface entre la poudre et la matrice. La force transmise diminue en s'éloignant du poinçon qui effectue la compression. La figure I.9 représente les forces appliquées pendant la compression en matrice.

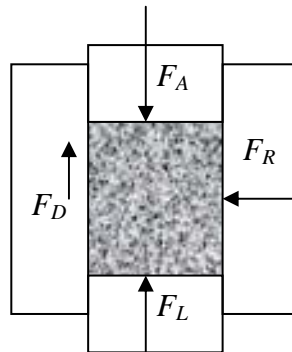


Figure I.9. Forces appliquées sur un lit de poudre en compression.

Dans le cas d'un fluide parfait, on a :

$$F_A = F_L = F_R$$

où F_A est la force appliquée par le poinçon supérieur, F_L est la force transmise au poinçon inférieur et F_R est la force radiale transmise à la matrice.

Dans le cas d'une poudre, une partie de la force appliquée est transmise à la matrice et apparaît comme une force de réaction à la paroi F_D . Le reste de la force appliquée est transmis à travers la poudre au poinçon inférieur. L'équilibre de force peut être exprimé par :

$$F_A = F_L + F_D$$

La force F_D étant la force de frottement poudre-matrice, alors que la force F_L est la force qui a réellement contribué à la densification [31]. Avec l'augmentation de la pression, le mouvement entre particules diminue et le frottement poudre/matrice devient le plus dominant [31] dans la distribution de la densité. L'ajout d'un lubrifiant dans la formulation réduit sensiblement le frottement à la paroi et améliore la transmission de la pression à travers le lit de poudre [32,33]. Cependant, la lubrification peut réduire la résistance du comprimé, augmenter le temps de désintégration et peut générer des contraintes de cisaillement qui, pendant la décharge et l'éjection, peuvent être néfastes [13,24]. Le rapport de transmission F_L/F_A est utilisé pour estimer l'efficacité du lubrifiant [12].

Le modèle analytique basé sur la méthode des tranches introduit par Janssen et amélioré par Walker [34, 57] suppose que la pression axiale est constante sur un plan perpendiculaire à l'axe de compression. Autrement dit, les gradients de contraintes et de densité dans le sens radial sont négligeables. Cette hypothèse n'est apparemment pas valable au voisinage de l'interface poudre-poinçon [35]. À l'aide de cette hypothèse simplificatrice et par un bilan de forces appliquées, on peut montrer dans le cas d'une matrice de rayon r que la contrainte axiale moyenne à une distance z à partir du haut du comprimé s'écrit [3] :

$$\sigma_a(z) = P_a \exp\left(-\frac{2\mu\alpha}{r} z\right) \quad (I-2)$$

où P_a est la pression appliquée ($=\sigma_a(z=0)$), μ est le coefficient de frottement de la loi de Coulomb et α est le coefficient de proportionnalité entre la pression radiale et axiale ($\alpha=\sigma_r/\sigma_a$) appelé coefficient de transfert. Ce coefficient est supposé constant le long du comprimé. Dans le cas d'un fluide, α est égal à 1. La relation (I-2) montre que la contrainte axiale décroît exponentiellement le long de l'axe de compression.

Les mesures des forces axiales en haut et en bas du lit de poudre ne pose habituellement pas de problèmes particuliers : des capteurs de forces installés sur les poinçons supérieur et inférieur permettent de déterminer les forces axiales exercées sur les deux faces du lit de

poudre. Par contre, il est un peu délicat de mesurer les contraintes radiales durant l'essai.

Le paragraphe suivant porte sur l'utilisation de la mesure de la pression radiale dans la caractérisation de la compression en matrice.

2.3. Transfert de force axial-radial

La mesure de la pression radiale à la paroi de la matrice se fait généralement en utilisant des jauges de déformation, des capteurs piézoélectriques ou des barres de mesure liées à des capteurs de force. La déformation de la jauge collée à la paroi de la matrice au cours de la compression entraîne une variation de sa résistance électrique qui est ensuite convertie en force. Bien sûr, un étalonnage de la jauge ou des jauges de déformation est nécessaire. L'étalonnage consiste à déterminer la relation entre les déformations extérieures de la matrice et la contrainte radiale intérieure. Par ailleurs, les capteurs piézoélectriques contiennent des cristaux en quartz qui, quand ils sont soumis à une force, développent une charge électrique proportionnelle à la force appliquée. Cependant, les capteurs piézoélectriques ne donnent pas une mesure stable en chargement statique, mais ils sont idéalement convenables pour un chargement dynamique [36]. Une mesure directe de la pression radiale peut se faire à l'aide de capteurs mesurant la force exercée sur des barres en contact avec la poudre. Ce type de mesure de la pression radiale directement au contact de la poudre a été utilisé par Strijbos et al. et Ernst et al. cités dans [37].

Nelson [24] est l'un des premiers à mesurer la force à la paroi en utilisant une matrice avec un capteur de force inséré dans l'épaisseur de la matrice. La force exercée sur le capteur par le lit de poudre au cours de la compression est mesurée. Cependant, cette mesure n'a pas été étendue à la phase de décharge.

Long [6,7] a proposé une analyse mécanique des courbes de pression radiale en fonction de la pression axiale. Il a mesuré la pression radiale pendant un cycle de compression complet en supposant que la matrice est parfaitement rigide et aucun frottement entre la poudre et la matrice. Long a considéré un lit de poudre cylindrique se comportant comme un solide non poreux et que les déformations sont indépendantes du temps. Il a décrit deux allures possibles du cycle de pression radiale pour deux matériaux idéaux :

- (a) Un matériau dont la contrainte de cisaillement maximale est constante (figure I.10 (a)).
- (b) Un matériau dont la contrainte de cisaillement maximale est fonction linéaire de la contrainte normale (critère de Mohr) (figure I.10 (b)).

Au début de la compression, les particules se réarrangent pour former un empilement dense et commencent à subir une déformation élastique. Pendant cette étape, la contrainte axiale appliquée σ_a génère une contrainte radiale σ_r transmise à la paroi de la matrice qui s'écrit :

$$\sigma_r = \nu\sigma_a$$

où ν est le coefficient de Poisson du solide.

Avec l'augmentation de la contrainte axiale, la limite élastique est dépassée (points A et A' sur la figure I.10) et au delà de cette limite des déformations plastiques et des fragmentations peuvent se produire. À ce stade, pour le cas (a), la contrainte radiale est égale à la contrainte axiale et la pente de (AB) est donc égale à 1. Pour le cas (b), la pente de $(A'B')$ peut changer. La contrainte axiale maximale est atteinte aux points B et B' pour les cas (a) et (b) respectivement. Pendant la décharge, la contrainte radiale commence à décroître suivant (BC) et $(B'C')$ pour (a) et (b) respectivement. Par ailleurs, les pentes de (OA) , (BC) , (OA') et $(B'C')$ sont égales à ν .

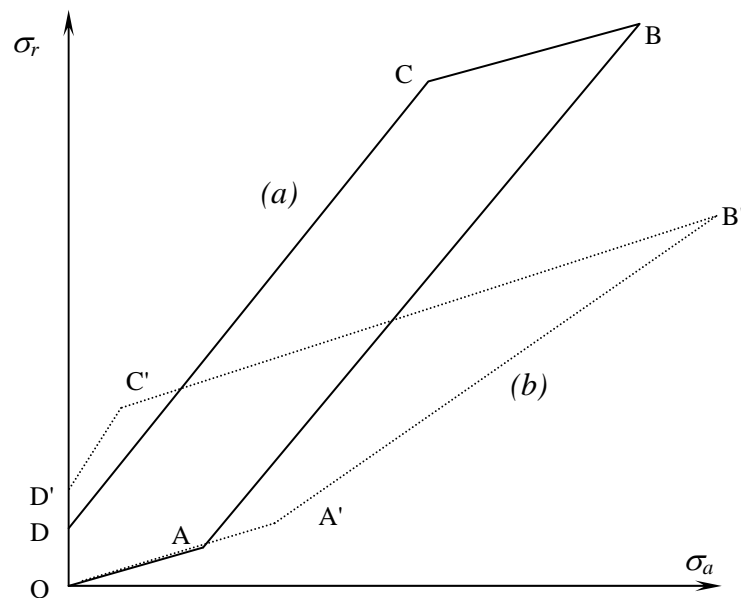


Figure. I.10. Cycle de pression radiale

(a) avec cisaillement constant. (b) avec cisaillement selon le critère de Mohr.

Pendant la dernière étape de la décharge (CD) et $(C'D')$, la contrainte radiale σ_r diminue plus vite que la contrainte axiale σ_a . Cette étape est atteinte si σ_a était assez grande. Aux points D et D' où la contrainte axiale est nulle, il est possible que des contraintes radiales résiduelles s'exercent encore sur le compact. Ces contraintes résiduelles sont légèrement plus importantes dans le cas d'un matériau de type (b).

Long a montré que si la matrice était élastique, les pentes de (OA) , (BC) , (OA') et $(B'C')$ seront réduites. Par ailleurs, les droites de (AB) et $(A'B')$ restent inchangées en position et en pente, le seul changement touchera le point A (et A') qui se déplacera un peu en bas. Dans le

cas d'une matrice élastique, la poudre subit une pression supplémentaire exercée par la matrice. Alors, la pression radiale devient plus importante que dans le cas d'une matrice rigide.

Leigh et al. [38] ont utilisé des jauges de déformation de silicone pour mesurer la pression à la paroi. La paroi de la matrice a été coupée à deux endroits opposés et une jauge de déformation a été collée de chaque côté. La partie coupée est de $1,27\text{ cm}$ laissant une épaisseur de la matrice de $0,31\text{ cm}$. Leigh et al. ont travaillé sur l'étude du cycle de pression radiale pour des poudres pharmaceutiques. Leurs résultats indiquent que les poudres qui montrent un comportement proche du type Mohr (cas (b)) produisent des comprimés qui ont une tendance au clivage. C'est le cas des granulés de l'acétaminophène par exemple. Ces granulés mélangés avec le liant polyvinylpyrrolidone se comportent comme un matériau à cisaillement maximal constant (cas (a)) et ne présentent pas de défauts de clivage. Contrairement à ces résultats, d'autres auteurs cités dans [12] ont trouvé qu'il y a des poudres ayant un comportement de Mohr et qui ne présentent pas de clivage.

Les travaux sur le transfert axial - radial ont montré le rôle de la pression radiale résiduelle et de l'élasticité de la matrice dans la production des fissures. Par ailleurs, les deux cycles idéaux proposés par Long peuvent permettre de classer les poudres et de faire des prédictions du clivage. Cependant, ces modèles ont été formulés dans un cadre idéal sur des compacts isotropes en compression en matrice rigide sans frottement. Ceci est loin d'être vrai pour les poudres qui présentent des comportements complexes. Néanmoins, ces études ne sont pas négligeables et ont montré l'importance de l'analyse du transfert axial-radial dans la caractérisation de la compression en matrice.

En parallèle de toutes ces méthodes de caractérisation de poudres en compression que nous avons présentées ci-dessus, il existe aussi des approches de modélisation qui permettent de simuler numériquement la mise en forme par compression. En effet, la modélisation numérique est souvent une alternative pour comprendre le comportement des poudres en compression ainsi que l'influence des paramètres du procédé sur la distribution de densité dans le compact.

I.3. Approches de modélisation du comportement mécanique de poudres en compression

L'utilisation des approches de modélisation de comportement mécanique de poudres en compression a commencé dans la dernière décennie. Deux approches sont utilisées, l'approche micromécanique et l'approche macroscopique. Ces deux approches, qui peuvent être complémentaires, seront présentées dans ce qui suit :

3.1. Modèles de type discret (micromécanique)

Les modèles discrets consistent à considérer le lit de poudre comme un assemblage de grains. Chaque grain est considéré comme un corps rigide ou simplement déformable avec un nombre fini de degré de liberté. Cette approche est basée sur la prise en compte des propriétés des particules et des conditions de contact entre grains (ces conditions peuvent-être de type Hertz). Les grains sont donc capables d'interagir par des actions de contact, voire des actions à distance [39]. Pour des raisons de limitation en taille de mémoire et en temps de calcul, les échantillons de matériaux granulaires nécessitent un nombre limité de particules pour un calcul numérique. Ce nombre varie avec la taille mémoire et se situe en général entre 1000 à 300000 particules [39]. Cependant, de tels échantillons sont d'une taille bien petite par rapport à celle des structures. À titre d'exemple, 1 cm³ de sable fin de diamètre de 0,1 mm contient environ 10⁶ grains. Des hypothèses de périodicité sont souvent utilisées pour simuler un échantillon raisonnable, mais l'influence des conditions aux limites réduit le champ de cette hypothèse. S'il semble plus adéquat de considérer un lit de poudre comme un assemblage de particules entourées d'air ou d'eau, le calcul d'une grande structure par éléments discrets peut-être combiné avec la mécanique des milieux continus.

Le but de la modélisation micromécanique est de comprendre les mécanismes intergranulaires et le comportement résultant d'un échantillon représentatif. L'intérêt du calcul par éléments discrets réside dans la possibilité d'accéder à certaines grandeurs comme le réseau de forces intergranulaires qui sont difficilement mesurables par l'expérience. En général, l'assemblage de grains est modélisé par des sphères ou des polyèdres. Chaque grain est supposé en contact avec son voisinage et le nombre de contacts par grain dépend du mode d'empilement étudié.

Dans le cas de la simulation de la compression à froid en matrice, il faut distinguer les différentes étapes du procédé. En effet, les mécanismes à prendre en compte sont très différents lors des deux étapes, remplissage et densification. Pour le remplissage, un des objectifs d'une telle modélisation est de prévoir une distribution de densités en fin de

remplissage de la matrice. La distribution de densité initiale peut dépendre de la forme et la taille des grains, le frottement entre particules, le frottement des particules avec la matrice, la pesanteur, la forme et la vitesse du sabot. L'analyse de l'étape de compression par l'approche discrète nécessite la détermination des forces de contact et des surfaces de contact entre grains. Lorsque la pression appliquée est encore faible les grains se réarrangent, et le mécanisme de déformation est élastique avec un frottement particule/particule et particule/matrice. Avec l'augmentation de la pression, la déformation des grains devient irréversible. Il faut donc tenir compte du comportement irréversible des grains et de la variation de leur forme. Une modélisation de la compression à froid d'un assemblage aléatoire de sphères de taille unique a été proposée par Fleck [40,41]. La densité relative initiale de l'assemblage est de 0,64. Ce modèle permet un passage micro-macro et utilise un paramètre de cohésion entre les grains. Cette modélisation a permis le calcul de la surface de charge (surface des contraintes admissibles reliant les contraintes de cisaillement et de pression) associée au comportement d'un assemblage de grains. Cette surface de charge pourrait servir à une modélisation dans le cadre de la mécanique des milieux continus.

La modélisation par éléments discrets semble une approche intéressante pour la simulation de la compression de poudres. Cependant, il faut développer des expériences spécifiques pour valider les résultats simulés. Selon la littérature, cette approche discrète nécessite des développements et peut représenter dans l'avenir un axe de recherche important pour la simulation de la compression de poudres et surtout de la phase de remplissage.

Il a été choisi dans le cadre de cette thèse d'opter pour une approche macroscopique dans le cadre des milieux continus pour simuler la compression des poudres. Cette modélisation par éléments finis semble la mieux adaptée à l'heure actuelle pour simuler le procédé de compression en liaison avec les conditions aux limites imposées par l'outillage.

3.2. Modèles de type continu (macroscopique)

Dans cette approche, le grain n'est pas pris en compte individuellement. Le lit de poudre est considéré comme un milieu continu fortement compressible. En effet, la poudre peut être considérée comme un milieu continu lorsque l'on s'intéresse au comportement macroscopique d'un lit de poudre de plusieurs millimètres comprenant plusieurs millions de grains. Les propriétés de ce milieu sont décrites par des quantités propres à un comportement moyen macroscopique. On ne fait pas référence aux mécanismes intervenant à l'échelle de la particule. Ce type d'approche a été souvent utilisé pour modéliser la mise en forme par compression en matrice de poudres métalliques et céramiques [19,35,42,43] et récemment dans le cas de poudres pharmaceutiques [20,21]. L'avantage de cette approche est qu'elle peut

prendre en compte la géométrie, le chargement complexe de la mise en forme, les interactions de contact entre la poudre et l'outillage, ainsi que la rhéologie du comportement mécanique de la poudre. Par ailleurs, elle permet le changement d'échelle de laboratoire à celle du pilote.

Les propriétés du lit de poudre sont identifiables à travers une série d'essais expérimentaux. La réponse moyenne macroscopique du lit de poudre aux certaines sollicitations spécifiques permet d'identifier les propriétés de la poudre en fonction de l'état de densité. Une fois le comportement de la poudre identifié, il peut être intégré dans un code de calcul par éléments finis pour simuler les phases du procédé de compression. Au cours des phases du procédé de la compression que nous avons présentées précédemment, nous avons mis en évidence différents mécanismes tels que la densification de la poudre, le frottement de la poudre avec l'outillage, le retour élastique et le clivage du comprimé. Ces mécanismes sont identifiés à travers des paramètres qu'on explicitera dans l'étude expérimentale qui fait l'objet du chapitre suivant.

I.4. Conclusion

Dans ce premier chapitre, nous avons présenté :

- la compression de poudres pharmaceutiques qui est le cadre de ce travail de cette thèse. L'accent est mis sur les mécanismes et les paramètres importants intervenants au cours des étapes du procédé de compaction à froid. Ainsi que les aspects industriels et technologiques propres au procédé de compression.
- les différentes approches destinées à caractériser des propriétés comme la compressibilité et la compactabilité de la poudre ou les propriétés mécaniques comme la détente des comprimés et le clivage.
- les approches de modélisation du comportement de poudres en compression. Nous avons choisi dans le cadre de cette thèse une approche macroscopique dans le cadre de la mécanique des milieux continus pour modéliser la compression de poudres.

Le comportement de la poudre est un point crucial de la modélisation numérique, il est donc nécessaire de mettre au point une étude expérimentale pour caractériser ce comportement. On présentera dans le prochain chapitre le dispositif expérimental et les matériaux choisis pour la caractérisation de la compression en matrice. Par ailleurs, le comportement des poudres au cours de la compression sera analysé à l'aide des approches de Heckel et de Kawakita et par l'estimation du retour élastique et du transfert axial-radial. Cette étude expérimentale va nous aider à comprendre le comportement des poudres testées en compression, décharge et éjection.

ÉTUDE EXPÉRIMENTALE

CHAPITRE II : Caractérisation de la compression en matrice

Sommaire

Introduction	53
II.1. Matériels et matériaux	53
1.1. Matériels utilisés	53
1.1.1 Presse Instron 5567	54
1.1.2 Presse alternative (Frogerais OA)	54
1.1.3 Presse hydraulique	55
1.1.4 Cellule de cisaillement annulaire	55
1.1.5 Appareil de rupture diamétrale Erweka	56
1.2. Matériaux testés	56
1.2.1 La cellulose microcristalline	57
1.2.2 Le lactose	57
1.2.3 Le stéarate de magnésium	58
II.2. Résultats et analyses de la compression en matrice	59
2.1. Réponse de la poudre au cycle de compression	59
2.2. Analyse par le modèle de Heckel	60
2.3. Analyse par le modèle de Kawakita	61
2.4. Expansion du comprimé	62
2.5. Caractérisation du transfert des contraintes axiale - radiale	63
2.5.1 Influence de la vitesse sur le transfert axial - radial	63
2.5.2 Effet de la lubrification sur le transfert axial - radial	65
2.5.3 Effet de la température sur le transfert axial - radial	68
II.3. Conclusion	69

Introduction

L'objectif de ce chapitre est de présenter le dispositif expérimental et les matériaux utilisés pour caractériser le comportement mécanique des poudres pendant la compression en matrice. Cette caractérisation permettra d'analyser les mécanismes mis en jeu au cours de la compression en matrice et d'étudier l'influence des conditions de compression sur le comportement de la poudre. Dans ce cadre, nous avons étudié le comportement de différentes poudres durant le cycle de compression (charge, décharge et éjection). Les approches de Heckel et de Kawakita ont été utilisées pour analyser le comportement des poudres au cours de la compression. Par ailleurs, une caractérisation du retour élastique après charge a été effectuée, de même le transfert des contraintes axiale - radiale a été étudié en prenant en compte l'effet de la lubrification, de la température et de la vitesse de compression.

II.1. Matériels et matériaux

Les mesures consistent à suivre les pressions appliquées sur le lit de poudre et les déplacements de sa hauteur. Pour notre étude, nous avons utilisé les moyens matériels qui sont décrits ci-dessous pour caractériser les poudres étudiées. Certains de ces équipements sont dans notre laboratoire, alors que d'autres ont été utilisés dans le cadre de collaborations.

1.1. Matériels utilisés

Pour cette étude, nous avons utilisé trois presses, une cellule de cisaillement et un appareil de rupture diamétrale. Dans ce qui suit, nous allons décrire ces matériels d'une manière succincte.

1.1.1 Presse Instron 5567

La presse *Instron* utilisée est présentée sur la figure II.1. Le poinçon supérieur est équipé d'un capteur de force et de déplacement. La force maximale appliquée par la presse est de 30 KN. La vitesse de compression est variable de 0 à 500 mm/min. Les matrices utilisées ont une section d'un cm^2 et leurs hauteurs sont de 2,2 et 9 centimètres.

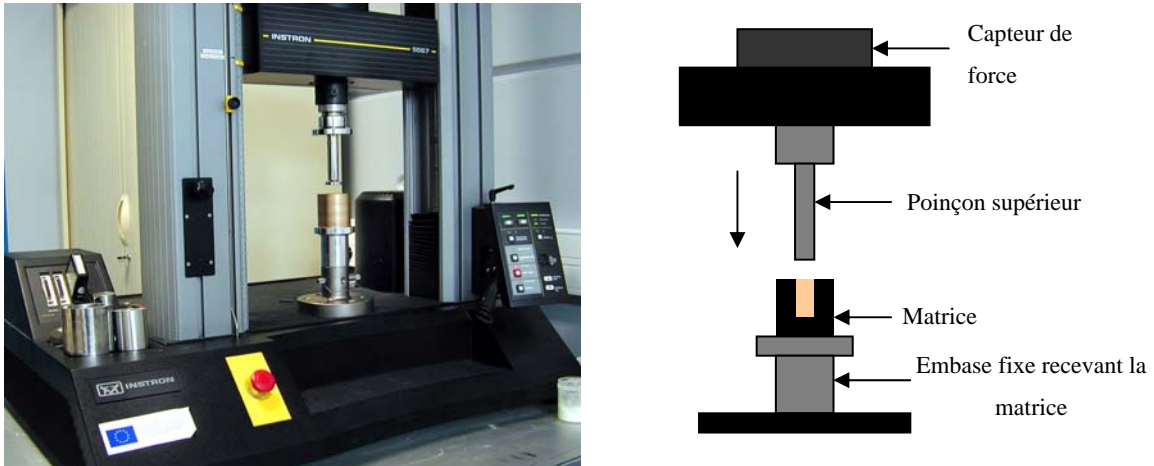


Figure II.1. Presse Instron 5567.

1.1.2 Presse alternative (Frogerais OA)

Dans cette presse, les poinçons sont équipés de capteurs de force et de déplacement. La matrice est dotée d'une jauge de déformation radiale. La cadence de fabrication de comprimés est d'environ 60 comprimés/min. La matrice a une section d'un cm^2 et d'une hauteur pouvant aller d'un centimètre jusqu'à 2,2 centimètres. Le principe de fonctionnement de cette presse est schématisé sur la figure II.2.

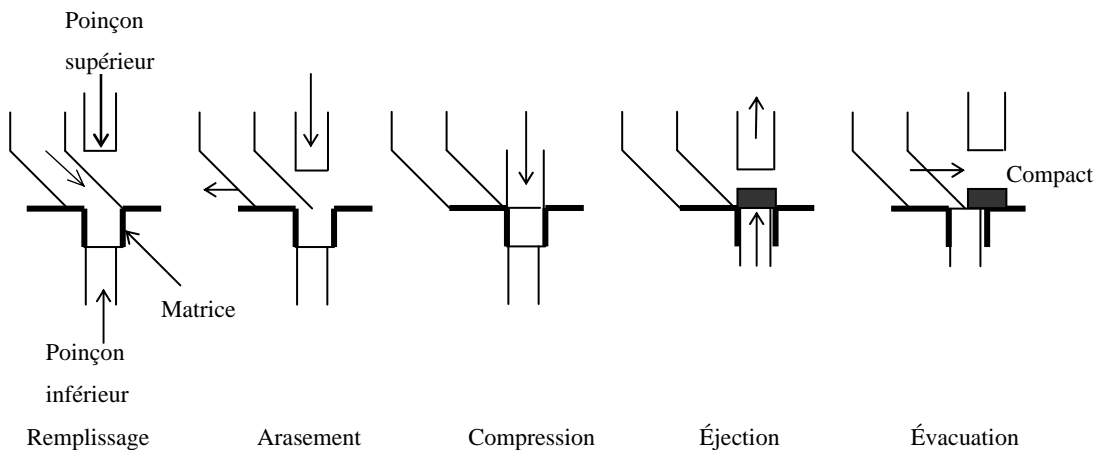


Figure II.2. Étapes de fonctionnement de la presse Frogerais.

1.1.3 Presse hydraulique

Une presse hydraulique a été utilisée dans le cadre d'une collaboration avec le laboratoire de "Lehrstuhl für maschinen und apparatekunde" à Freising en Allemagne. Une illustration de cette presse est présentée sur la figure II.3. Cette presse est équipée d'une matrice dotée d'une jauge de déformation radiale. Le poinçon supérieur est fixe et la compression se fait à l'aide du poinçon inférieur. La matrice est installée à l'intérieur d'une chambre qui permet de varier la température et de contrôler l'humidité. La vitesse de compression peut aller jusqu'à 60 mm/s.

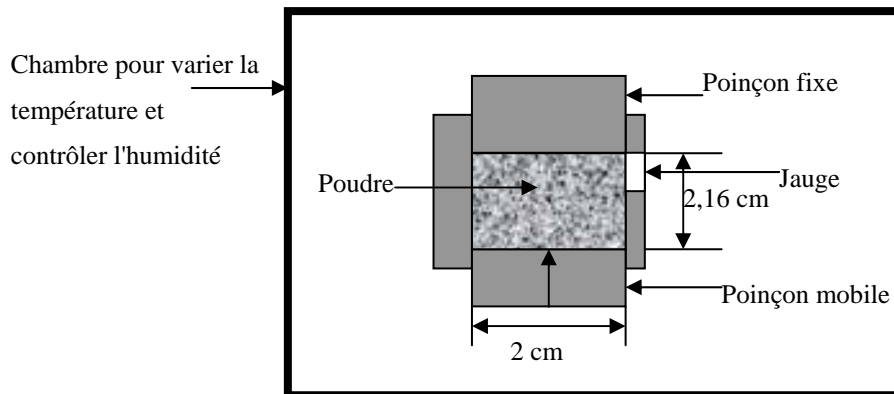


Figure II.3. schéma de la presse utilisée.

1.1.4 Cellule de cisaillement annulaire

La cellule de cisaillement annulaire est schématisée sur la figure II.4. La cellule et le couvercle sont munis de 12 ailettes de 4 mm. Le chargement normal de la cellule se fait en accrochant au couvercle un pendule muni de masses allant de 100 g à 25 Kg. Le couvercle est maintenu en sa position de départ à l'aide de deux capteurs de force situés à l'extrémité de deux tiges parallèles de raideur $k = 1 \pm 10^5$ N/m. Ces deux tiges sont situées à une distance $L = 12,5$ cm de l'axe. La vitesse de rotation se règle à l'aide d'un potentiomètre qui varie de 1 à 10. La vitesse angulaire ω correspondante varie de $1,5 \cdot 10^{-4}$ rad/s à $4 \cdot 10^{-3}$ rad/s, soit encore 2 tours/jour à 2 tours/heure.

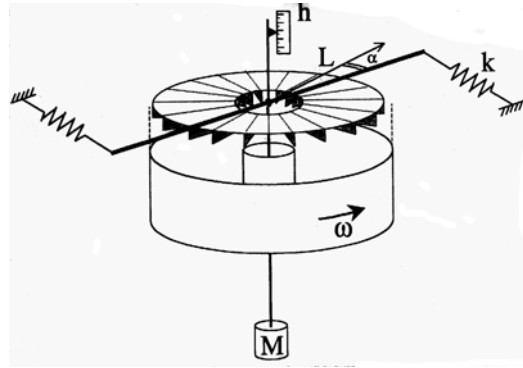


Figure II.4. Schéma de la cellule annulaire de cisaillement.

1.1.5 Appareil de rupture diamétrale Erweka

L'essai de traction étant difficile à réaliser sur des matériaux granulaires, l'essai de rupture diamétrale est en général utilisé pour mesurer la résistance à la rupture en traction d'un comprimé. L'appareil *Erweka TBH 30* présentée sur la figure II.5 a été utilisé pour réaliser cet essai qui consiste à écraser un échantillon cylindrique entre deux mors d'une presse comme le montre la figure II.6.



Figure II.5. Appareil Erweka TBH 30

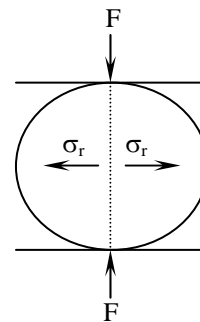


Figure II.6. Principe de l'essai de rupture diamétrale

La force maximale mesurée par cet appareil est de 500 N. Le comprimé testé doit avoir une épaisseur de 1,5 à 12 mm et un diamètre de 3 à 30 mm.

1.2. Matériaux testés

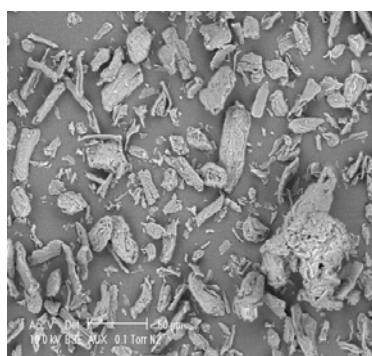
Dans nos essais, nous avons utilisé trois poudres de cellulose microcristalline et une poudre du lactose. Le choix de ces poudres est lié à leur vaste utilisation et à leurs comportements différents. Les celluloses ont un comportement plastique (i.e un comportement de déformations irréversibles dominant) tandis que le lactose a un comportement fragmentaire. Par ailleurs, le lubrifiant utilisé est la poudre de stéarate de magnésium.

1.2.1 La cellulose microcristalline

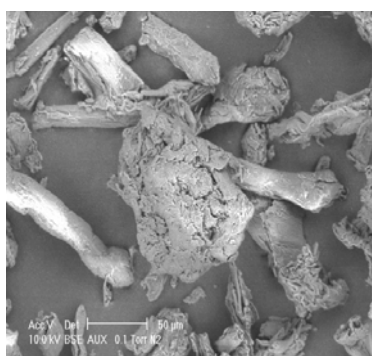
La cellulose microcristalline est une poudre blanche, inodore, insipide et non toxique qui s'écoule bien. Elle est largement utilisée dans l'industrie pharmaceutique comme diluant. Cet excipient est aussi considéré comme lubrifiant et désintégrant pour les formes solides telles que les comprimés. La cellulose microcristalline est aussi utilisée en cosmétique et en alimentation. Dans l'industrie cosmétique, elle est utilisée car elle est capable d'absorber les corps gras et les parfums [2].

La cellulose microcristalline est représentée par la formule $(C_6H_{10}O_5)_n$ avec n de l'ordre de 220 [45]. Elle est commercialisée sous différents grades et tailles de particules. Nous avons testé trois celluloses microcristallines (MCC), *Avicel PH 105* fournie par *SEPPIC*, *Vivapur 101* et *Vivapur 102* fournies par *JRS*. Le tableau II.1 représente les caractéristiques morphologiques, taille et densités vraie et apparente des poudres celluloses microcristallines testées.

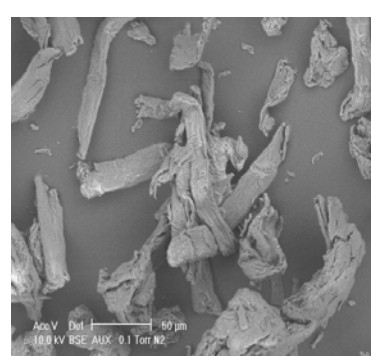
Tableau II.1. Caractéristiques des poudres celluloses microcristallines.



MCC Avicel PH 105



MCC Vivapur 101



MCC Vivapur 102

Poudre	Taille	Densité vraie	Densité apparente
Avicel PH 105	20 µm	1,514 g/cm ³	0,23 g/cm ³
Vivapur 101	50 µm	1,503 g/cm ³	0,29 g/cm ³
Vivapur 102	90 µm	1,599 g/cm ³	0,27 g/cm ³

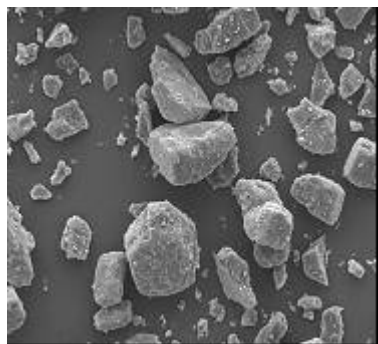
1.2.2 Le lactose

Le lactose est le principal constituant du lait et du lactosérum. Le lactose industriel est extrait du lactosérum concentré. Il est utilisé dans l'industrie alimentaire pour ses propriétés énergétiques et fonctionnelles [46]. Le lactose est aussi largement utilisé dans la fabrication des comprimés et des gélules pharmaceutiques comme excipient ou diluant. Il a un

comportement fragmentaire en compression [47].

Nous avons choisi un lactose broyé fin (*GranuLac140*) qui est de type α -lactose monohydraté. Le α -lactose monohydraté se représente par la formule $C_{12}H_{22}O_{11},H_2O$ [45, 46]. Le *GranuLac 140* a un comportement cohésif et donc ne s'écoule pas bien. Le tableau II.2 représente les caractéristiques principales du lactose *GranuLac 140*.

Tableau II.2. Caractéristiques du lactose *GranuLac 140*.



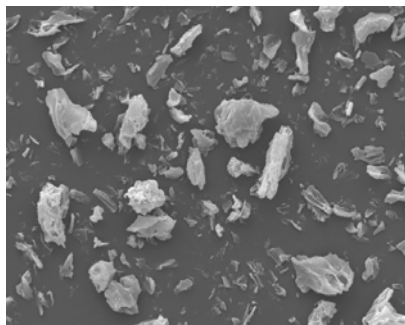
Lactose GranuLac 140

Poudre	Taille (d50)	Densité vraie	Densité apparente
GranuLac 140	70 μm	1,54 g/cm^3	0,63 g/cm^3

1.2.3 Le stéarate de magnésium

Le stéarate de magnésium est largement utilisé dans les formulations de produits cosmétiques, alimentaires et pharmaceutiques. Il est principalement utilisé comme lubrifiant dans la fabrication de comprimés à un pourcentage de 0,25 à 5%. Le stéarate de magnésium se représente par la formule $C_{36}H_{70}MgO_4$ [45].

Le tableau II.3. représente les caractéristiques du stéarate de magnésium.



Stéarate de magnésium

Tableau II.3. Caractéristiques du stéarate de magnésium (StMg).

Poudre	Taille	Densité vraie	Densité apparente
StMg	6 μm	1,05 g/cm^3	0,16 g/cm^3

II.2. Résultats et analyses de la compression en matrice

L'objectif de ce paragraphe est l'étude du comportement des poudres présentées précédemment au cours de la compression en matrice. Après avoir présenté le profil des cycles charge/décharge, nous analyserons les résultats par les approches de Heckel et de Kawakita. Par ailleurs, la variation dimensionnelle des comprimés à la sortie de la matrice a été estimée pour rendre compte du rebond élastique. Enfin, la transmission de la charge axiale en force radiale (normale à la matrice) a été mesurée en prenant en compte l'influence de la lubrification, la vitesse de compression ainsi que l'effet de la température.

2.1. Réponse de la poudre au cycle de compression

Les cycles de compression des poudres utilisées sont représentés sur la figure II.7. Ces cycles sont obtenus à l'aide de la presse *Instron* par compression en matrice d'un centimètre cube de poudre à une pression de 100 MPa. Les poudres MCC V. 101, V. 102 et le lactose *GranuLac 140* semblent avoir des comportements similaires en tassement. On constate également que la poudre MCC *Avicel PH 105* est plus compressible que les autres poudres.

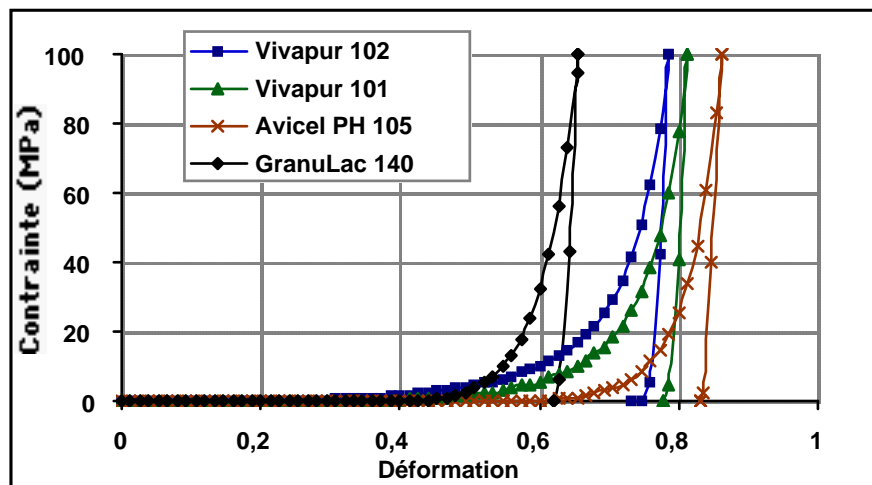


Figure II.7. Cycles de compression des poudres utilisées.

L'observation du cycle de compression montre que la phase de tassement de l'*Avicel PH 105* est plus importante que celle des trois autres poudres. La contrainte maximale est atteinte dans le cas du lactose *GranuLac 140* à 66% de déformation. Elle est atteinte plus vite par rapport aux autres poudres, la *Vivapur 102* à 79%, la *Vivapur 101* à 81% et l'*Avicel PH 105* à 86%. Ce résultat montre que la poudre du lactose résiste plus à la compression. En effet, le caractère fragmentaire du *GranuLac 140* réduit sa compressibilité tandis que le comportement plastique des celluloses entraîne une réduction volumique importante.

2.2. Analyse par le modèle de Heckel

Les courbes de Heckel des poudres utilisées sont représentées sur la figure II.8. On remarque qu'aux faibles pressions le lactose *GranuLac 140* a une réponse non linéaire plus importante que celles des poudres celluloses. Selon l'analyse de Heckel [15,16], cette partie non linéaire est attribuée au réarrangement particulaire. La partie non linéaire de la courbe du lactose *GranuLac 140* peut s'expliquer par son comportement fragmentaire. La nature fragile des grains du lactose entraîne une densification par des réarrangements suite aux fragmentations successives.

L'équation de la partie linéaire de la courbe s'écrit selon Heckel sous la forme :

$$\ln\left(\frac{1}{1-\rho_r}\right) = KP + A$$

où P est la contrainte appliquée, K et A sont des constantes dépendantes de la poudre.

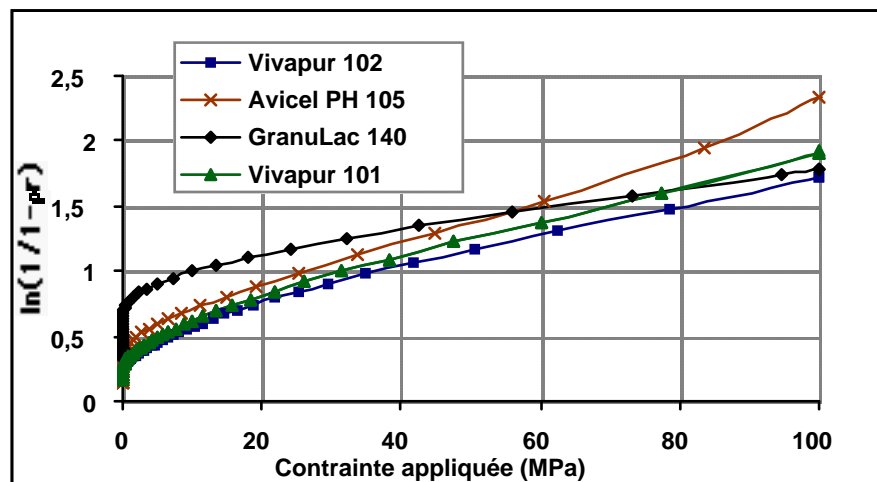


Figure II.8. Courbes de Heckel : $\ln\left(\frac{1}{1-\rho_r}\right)$ en fonction de la pression appliquée, où ρ_r est la densité relative.

Les constantes K et A ainsi que la pression moyenne d'écoulement P_y pour chaque poudre sont représentées dans le tableau II.4. Selon Heckel, La pente K peut donner une mesure du caractère plastique de la poudre compactée. Par conséquent, une grande pente indique un grand degré de plasticité. Les résultats obtenus montrent que l'*Avicel PH 105* a la plus grande pente et le *GranuLac 140* a la plus petite pente. Le calcul de la pression moyenne d'écoulement P_y qui est égale à l'inverse de la pente K et qui à partir de laquelle le matériau commence à se déformer plastiquement [12] montre que les celluloses ont un écoulement plastique plus rapide que celui du lactose. La poudre *Avicel PH 105* est la plus rapide à se déformer plastiquement par rapport aux autres poudres. Le lactose *GranuLac 140* a la plus

grande pression d'écoulement et donc son comportement fragmentaire est le plus dominant pendant la densification. Une faible pression moyenne d'écoulement reflète une faible résistance à la compression et une bonne densification [48], ce qui est le cas des celluloses et surtout l'*Avicel PH 105*.

Tableau II.4. Constantes de Heckel et pression d'écoulement pour les poudres utilisées.

	K	A	$P_y(\text{MPa})$
Vivapur 101	0,014	0,519	70,42
Vivapur 102	0,013	0,501	78,74
Avicel PH 105	0,017	0,540	58,14
GranuLac 140	0,008	0,959	119,05

2.3. Analyse par le modèle de Kawakita

De même que précédemment, les résultats en compression force-déplacement peuvent aussi être analysés par l'équation de Kawakita. Les courbes qui en résultent sont des droites affines qui s'écrivent sous la forme :

$$\frac{P}{C} = \frac{1}{a}P + \frac{1}{ab}$$

où P est la contrainte appliquée, $C = (V_0 - V)/V_0$ est la variation volumique où V_0 est le volume initial et V est le volume sous la pression P , a et b des constantes dépendantes de la poudre.

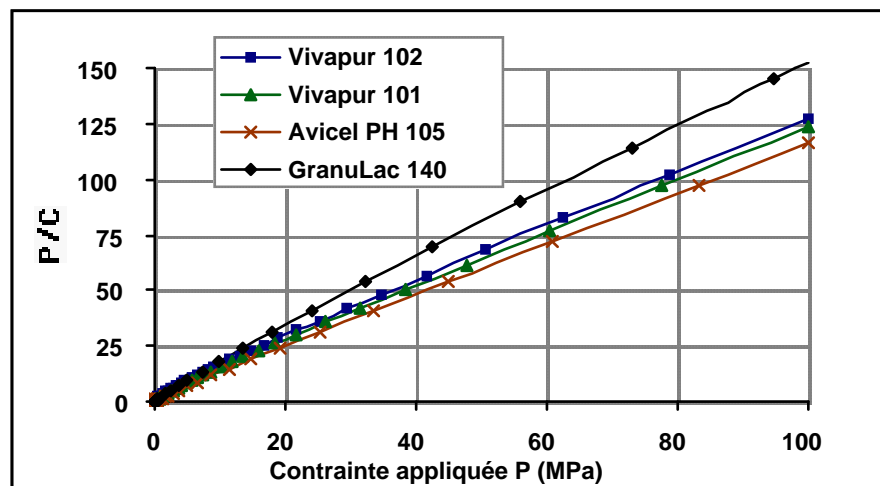


Figure II.9. Présentation des courbes de Kawakita.

Les courbes de Kawakita des différentes poudres sont représentées sur la figure II.9. Les constantes a et b ont été calculées pour chaque poudre et sont représentées sur le tableau II.5.

La constante a fournit une indication sur la compressibilité de la poudre. Par conséquent, la poudre *Avicel PH 105* a la meilleure aptitude à se densifier sous la pression ($a=0,849$) par rapport aux autres poudres et principalement le *GranuLac 140* ($a=0,645$) qui est le moins compressible.

Tableau II.5. Constantes de l'équation de Kawakita

	a	$b(\text{MPa})^{-1}$
Vivapur 101	0,797	1,291
Vivapur 102	0,772	0,787
Avicel PH 105	0,849	3,994
GranuLac 140	0,645	2,436

L'interprétation et le sens physique de la constante b ne sont pas clairement étudiés. Le paramètre b ou $1/b$ a été relié à la pression d'écoulement [49] ou à la contrainte de rupture des particules par Adams et McKeown (cité dans [50]).

2.4. Expansion du comprimé

On définit l'expansion du comprimé après éjection par :

$$EE_{ej} = \frac{h_{ej} - h_c}{h_c}$$

et l'expansion après 48 heures par :

$$EE_{48h} = \frac{h_{48} - h_c}{h_c}$$

où h_c est la hauteur du comprimé en fin de compression, h_{ej} est la hauteur après éjection et h_{48} est la hauteur après 48 heures.

Le tableau II.6. représente les hauteurs et l'expansion après éjection et après 48 heures des poudres utilisées.

La poudre *Avicel PH 105* a une détente importante par rapport aux autres poudres. Cette détente a été estimée à 7,9% après éjection et continue après 48 heures pour atteindre 9,3%. Le lactose *GranuLac 140* a une expansion plus faible par rapport aux autres poudres. Il est de 0,9% après éjection pour atteindre 1,3% après 48 heures. L'expansion après 48 heures du *GranuLac 140* a augmenté de 30,6% tandis que l'expansion de l'*Avicel PH 105* n'a augmenté que de 17,3%. Par ailleurs, l'expansion de toutes les poudres testées est devenue négligeable après 48 heures.

Tableau II.6. Expansion du comprimé après éjection et après 48 heures.

	$h_c(mm)$	$h_{ej}(mm)$	$h_{48}(mm)$	EE_{ej}	EE_{48}
Vivapur 101	1,87	1,90	1,92	0,016	0,025
Vivapur 102	2,14	2,26	2,28	0,058	0,068
Avicel PH 105	1,39	1,50	1,52	0,079	0,093
GranuLac 140	3,44	3,47	3,48	0,009	0,013

2.5. Caractérisation du transfert des contraintes axiale - radiale

Pour mesurer la pression radiale au cours de la compression, nous avons utilisé une presse alternative (Frogerais OA) et une presse hydraulique (voir figures II.2 et II.3). Le rapport H/D (H et D sont respectivement la hauteur et le diamètre du comprimé) est de 0,32 ($H = 6,4 \text{ mm}$ et $D = 20 \text{ mm}$) pour la presse hydraulique et de 0,22 ($H = 2,5 \text{ mm}$ et $D = 11,28 \text{ mm}$) pour la presse alternative. Durant les tests de compression, on s'arrange à ce que la jauge de déformation soit approximativement à mi-hauteur du compact en fin de compression. Un étalonnage préalable de la jauge permet de déterminer la pression radiale. La poudre *Vivapur 102* a été choisie pour caractériser le transfert des contraintes axiale - radiale sous différentes conditions. Cette étude porte sur l'influence de la vitesse de compression (10 mm/s - 52 mm/s), de la lubrification ainsi que la température ($20, 36, 46, 53$ et 57°C) sur le transfert de contraintes axiale - radiale. L'illustration de l'influence sera sur le coefficient $\alpha = \sigma_r/\sigma_a$ où σ_r est la pression radiale et σ_a est la pression axiale.

2.5.1 Influence de la vitesse sur le transfert axial - radial

Nous avons effectué à l'aide de la presse hydraulique des essais de compression à des vitesses de compression (10 et 52 mm/s). La masse de la poudre *Vivapur 102* utilisée est de $2,5 \text{ g}$.

Sur la figure II.10 sont représentées deux courbes de compression de la poudre *Vivapur 102* à 10 et à 52 mm/s . Les essais ont été refaits trois pour chaque cas et les résultats sont reproductibles (voir figures II.14 et II.15).

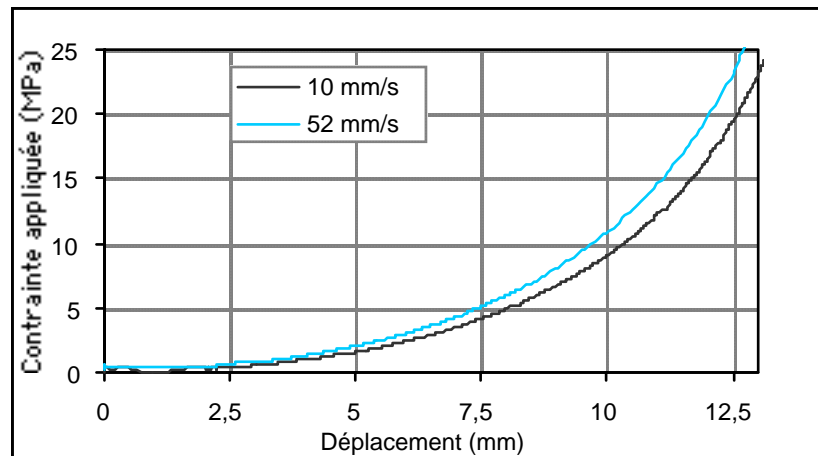


Figure II.10. Courbes de compression de la poudre *Vivapur 102* à 10 et à 52 mm/s à l'aide de la presse hydraulique ($H/D=0,3$).

On constate sur la figure II.10 un léger effet de la vitesse sur le comportement de la poudre. Les deux vitesses testées rentrent dans la gamme de faibles vitesses. Pour des vitesses plus élevées, on pourrait consulter [51]. De plus, on peut noter que, même pour de faibles vitesses, le caractère fragmentaire de certaines poudres peut entraîner la rupture des compacts. C'est le cas de la poudre de Lactose qui pour des vitesses de 5 mm/min forme des comprimés sans clivage, alors que pour une vitesse de compression de 52 mm/s, les comprimés présentent un délaminage au centre du comprimé (voir figure II.11).



Figure II.11. Clivage d'un compact du lactose après éjection.

L'évolution du coefficient de transfert α en fonction de la densité relative à 10 et à 52 mm/s est représentée sur la figure II.12.

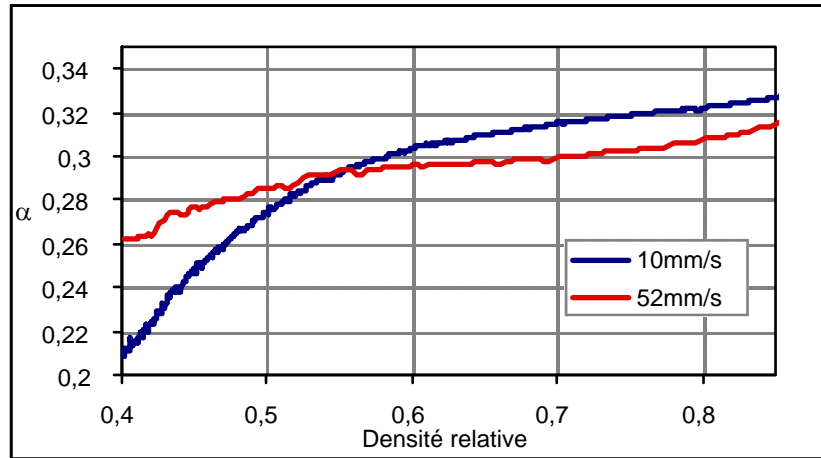


Figure II.12. Coefficient de transfert de la *Vivapur 102* en fonction de la densité relative à 10 et à 52 mm/s à l'aide de la presse hydraulique ($H/D = 0,3$).

Le transfert axial-radial évolue peu avec la vitesse de compression dans le cadre des vitesses testées.

2.5.2 Effet de la lubrification sur le transfert axial - radial

Dans les formulations de comprimés pharmaceutiques, il est usuel d'ajouter un pourcentage de lubrifiant dans le mélange de poudres. Nous avons suivi la pression radiale au cours de la compression de la poudre *Vivapur 102* seule dans un premier temps et de la *Vivapur 102* mélangée avec 0,5% en masse du stéarate de magnésium dans un deuxième temps. La vitesse de compression est de 10 mm/s et la masse de la poudre utilisée est de 2,5 g.

La figure II.13 présente l'évolution du coefficient de transfert α en fonction de la densité relative de la poudre *Vivapur 102* avec et sans lubrification dans le cas des tests réalisés par la presse hydraulique ($H/D = 0,3$: $H = 6,4$ mm et $D = 21,6$ mm).

Le coefficient de transfert évolue très peu avec l'ajout du lubrifiant dans le cas de la presse hydraulique. Le coefficient de transfert obtenu est de l'ordre de 0,3 qui est une valeur faible par rapport aux valeurs classiques. Il est à noter que tous les essais ont été refaits trois fois et les résultats sont reproductibles (voir figures II.14 et II.15).

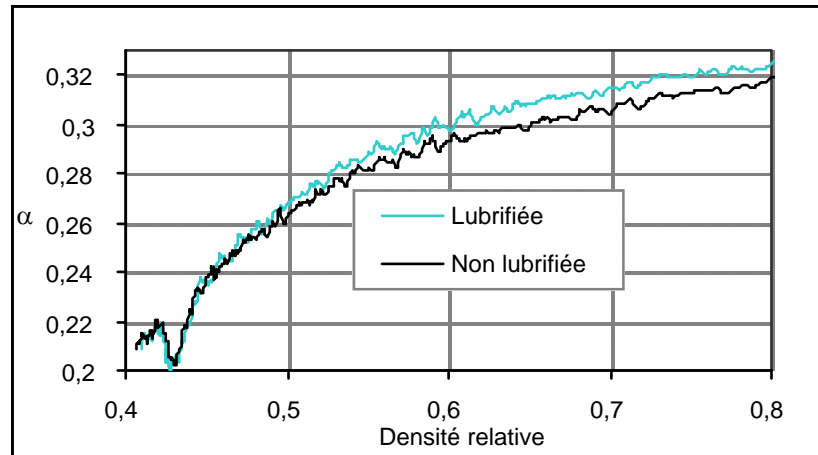


Figure II.13. Coefficient du transfert axial-radial au cours de la compression de la poudre *Vivapur 102* avec et sans lubrification dans le cas de la presse hydraulique ($H/D = 0,3$).

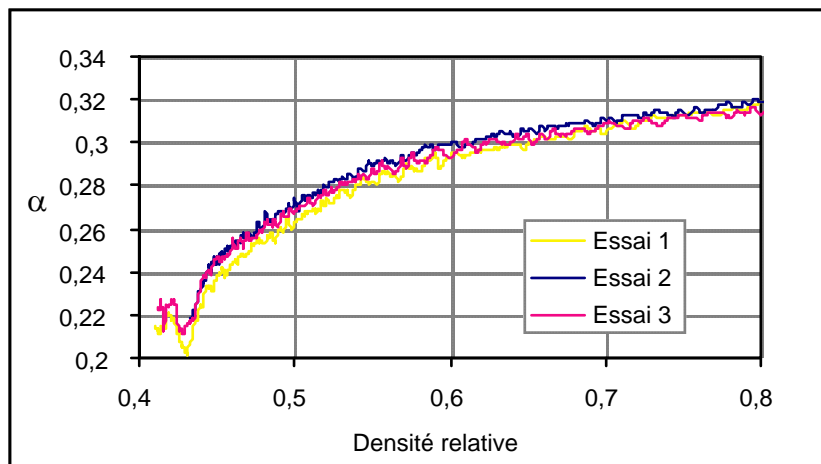


Figure II.14. Reproductibilité : Évolution du transfert axial-radial au cours de la compression de la *Vivapur 102* sans lubrification dans le cas de la presse hydraulique ($H/D = 0,3$).

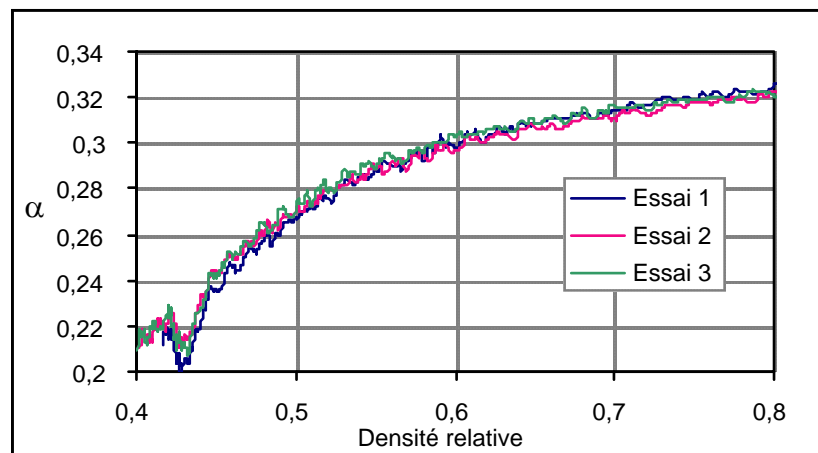


Figure II.15 Reproductibilité : Évolution du transfert axial-radial au cours de la compression de la *Vivapur 102* avec lubrification dans le cas de la presse hydraulique ($H/D = 0,3$).

Dans le cas des tests réalisés à l'aide de la presse alternative Frogerais, le volume du lit de poudre est plus petit que celui de la matrice de la presse hydraulique (1 cm^3 contre $7,32 \text{ cm}^3$). La vitesse de compression est de l'ordre de $31,25 \text{ mm/s}$. Sur la figure II.16 est représentée la courbe de la pression radiale σ_r en fonction de la pression axiale σ_a . Le rapport σ_r/σ_a est de l'ordre de $0,4$ dans le cas non lubrifié et de $0,45$ dans le cas lubrifié. Les mesures effectuées sont très reproductibles comme le montrent les figures II.17 et II.18.

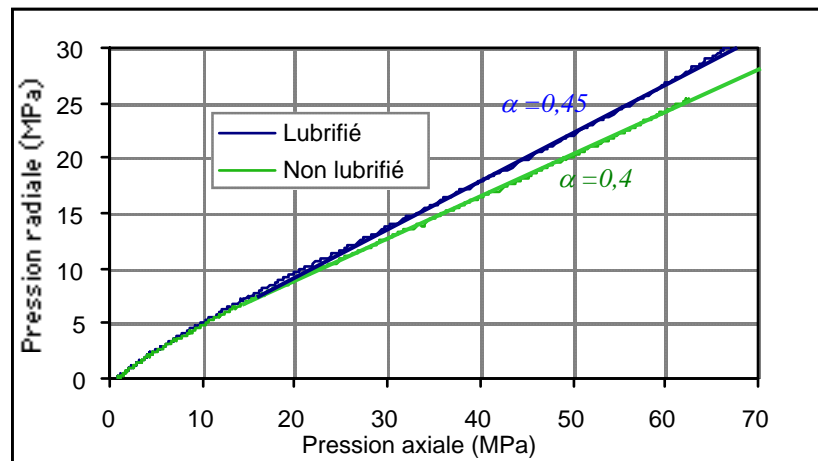


Figure II.16. Évolution de la pression radiale en fonction de la pression axiale de la poudre Vivapur 102 avec et sans lubrification (presse alternative : $H/D=0,22$, $H=2,5 \text{ mm}$ et $D=11,28\text{mm}$).

Les essais ont été refaits cinq fois pour les deux cas avec et sans lubrification. Les figures II.17 et II.18 représentent les cinq essais effectués pour chaque cas et montrent la reproductibilité des résultats de la presse alternative.

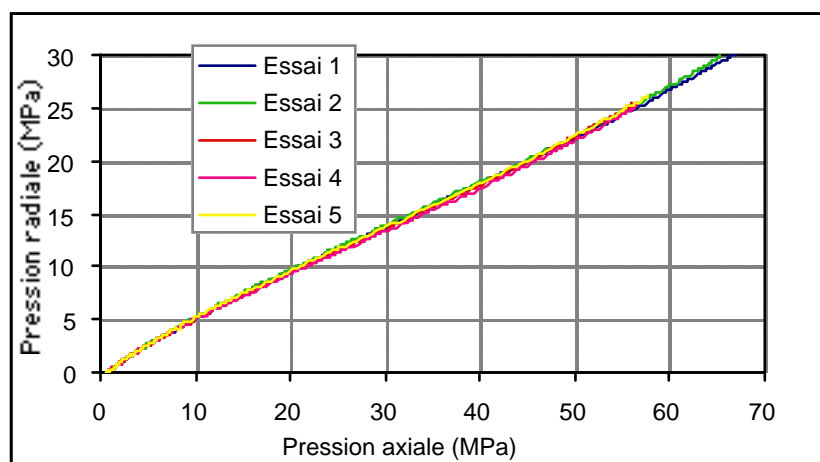


Figure II.17. Évolution de la pression radiale en fonction de la pression axiale pour cinq essais de compression de la poudre Vivapur 102 avec lubrification (presse alternative : $H/D=0,22$, $H=2,5\text{mm}$ et $D=11,28\text{mm}$).

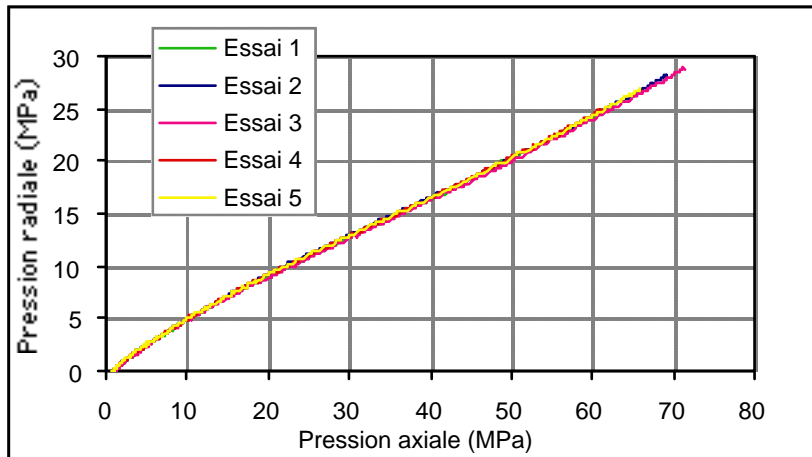


Figure II.18. Évolution de la pression radiale en fonction de la pression axiale pour cinq essais de compression de la poudre Vivapur 102 sans lubrification (presse alternative : $H/D=0,22$, $H=2,5\text{mm}$ et $D=11,28\text{mm}$)

Les valeurs obtenues pour le coefficient de transfert α dans le cas de la presse alternative semblent plus réalistes et seront utilisées dans la modélisation de la compression. La différence entre les valeurs obtenues par les deux presses peut être liée à l'effet du rapport dimensionnel ($H/D = 0,22$ pour la presse alternative et $H/D = 0,3$ pour la presse hydraulique). Un approfondissement sur l'origine de cette différence serait à faire parmi les perspectives de ce travail.

2.5.3 Effet de la température sur le transfert axial - radial

La température peut augmenter par compression et peut entraîner des comportements différents de la poudre et affecter la qualité des constituants du comprimé. En effet, il pourrait y avoir des températures de 30° à 40°C sur les lieux de production. Afin d'explicitier l'effet de la température, nous avons choisi d'étudier son influence sur le transfert axial-radial.

La matrice de la presse hydraulique est logée dans une chambre contrôlable en température. L'échauffement de la chambre entraîne l'échauffement de la matrice et une fois la température voulue est atteinte, on la fixe pendant une minute avant de lancer l'essai de compression afin que la matrice et la poudre aient la même température. Le transfert axial-radial a été mesuré pour cinq températures différentes : température ambiante (20°C), 36 , 46 , 53 et 57°C .

La figure II.19 représente l'évolution du coefficient de transfert α en fonction de la densité relative aux différentes températures.

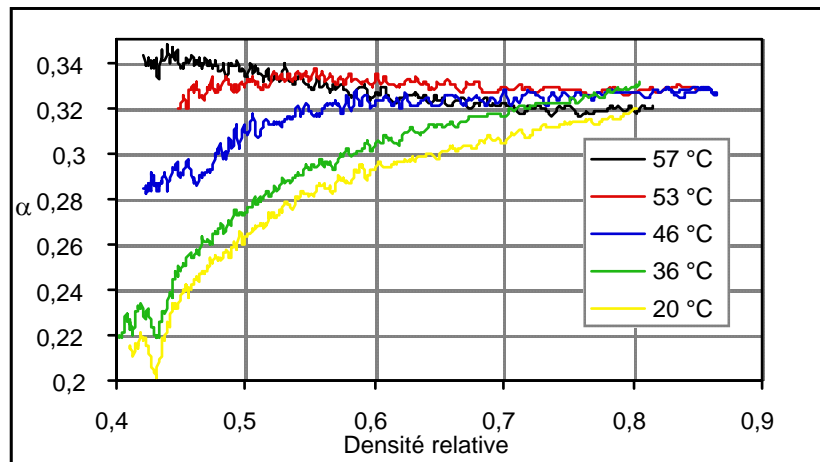


Figure II.19. Effet de la température sur le transfert axial-radial au cours de la compression de la poudre Vivapur 102 dans le cas de la presse hydraulique.

Comme on peut le constater sur la figure II.19, la température influe sur le transfert axial-radial pour les densités relatives inférieures à 0,70 (i.e 30% de porosité). En effet, le transfert axial-radial à 0,45 de densité relative passe de 0,22 pour 20°C à 0,34 pour 57°C. Cependant, pour des densités relatives supérieures à 0,70, l'effet de la température devient négligeable. On constate aussi que le coefficient de transfert devient relativement constant pour 53°C et 57°C. Ces essais ont été refaits trois fois et les résultats sont reproductibles.

L'augmentation de la pression radiale sous l'effet de la température pourrait s'expliquer par un échauffement de l'air interparticulaire qui se dilate entraînant une meilleure transmission de la pression. La presse alternative (Frogerais) n'étant malheureusement pas munie d'une cellule chauffante, nous n'avons pas pu faire des essais pour comparer les résultats tels que cela était fait pour la température ambiante.

II.3. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les moyens expérimentaux disponibles pour analyser le comportement mécanique des poudres, ainsi que les matériaux utilisés. Les dispositifs mis en œuvre montrent une évolution des caractéristiques des poudres au cours de leur densification.

Nous avons analysé la compression des celluloses microcristallines, *Vivapur 101* et *102* et *Avicel PH 105*, ainsi que le lactose *GranuLac 140*. Le caractère fragmentaire du *GranuLac 140* réduit sa compressibilité tandis que le comportement plastique des celluloses entraîne une

réduction volumique importante. Une analyse par l'approche de Heckel a montré que le lactose *GranuLac 140* a une pression d'écoulement plus importante que celles des celluloses et par conséquent son comportement fragmentaire est plus dominant au cours de la compression. Par ailleurs, l'approche de Kawakita a montré que la poudre *Avicel PH 105* a la meilleure aptitude à se densifier sous la pression ($a=0,849$) par rapport aux autres poudres et principalement le *GranuLac 140* ($a=0,645$) qui est le moins compressible.

La poudre *Avicel PH 105* a une expansion (après éjection) importante par rapport aux autres poudres. Son expansion après éjection a été estimée à 7,9% et continue après 48 heures pour atteindre 9,3%. Le lactose *GranuLac 140* a une détente plus faible par rapport aux autres poudres. Il est de 0,9% après éjection pour atteindre 1,3% après 48 heures. L'expansion après 48 heures du comprimé *GranuLac 140* a augmenté de 30,6% tandis que celle du comprimé *Avicel PH 105* n'a augmenté que de 17,3%. Par ailleurs, la détente de toutes les poudres testées est devenue négligeable après 48 heures.

La vitesse de déformation influe peu sur la forme de la courbe de compression de la poudre *Vivapur 102*. Nous n'avons pas noté d'influence importante de la vitesse sur le coefficient de transfert α dans la gamme de vitesses testées (faibles vitesses 10 mm/s - 52 mm/s). Par ailleurs, les essais de compression avec et sans lubrification de la poudre montrent une légère influence sur le coefficient de transfert α pour les deux rapports H/D du comprimés testés. Les essais ont été refaits trois fois dans le cas de la presse hydraulique et cinq fois dans le cas de la presse alternative avec une reproductibilité des résultats. Par ailleurs, l'augmentation de la température améliore le transfert axial-radial pour les densités relatives inférieures à 0,70 (i.e 30% de porosité). Cependant, pour des densités relatives supérieures à 0,70, l'effet de la température devient négligeable.

Les analyses précédentes ont mis en évidence des mécanismes de déformations relativement complexes. Pour la description du comportement de la poudre, la densité semble être un bon paramètre interne qui pourrait décrire la structure du compact. La pression en compression, le frottement poudre-matrice sont deux paramètres influents en compression. Par ailleurs, les contraintes de cisaillement semblent dominer le comportement pendant la phase finale de la décharge et pendant l'éjection. L'analyse de la compression jusqu'à l'éjection requiert ainsi la prise en compte des phénomènes d'élasticité, de plasticité et de mécanismes de rupture.

Suite à l'ensemble des éléments mis en relief dans ce chapitre et qui a permis de classer des poudres et de les analyser, nous allons caractériser les propriétés mécaniques des comprimés et du frottement poudre-matrice.

***CHAPITRE III : Caractérisation des propriétés
mécaniques et tribologiques***

Sommaire

Introduction	75
III.1. Propriétés mécaniques des comprimés	75
1.1. Résistance mécanique par rupture diamétrale	75
1.1.1 Principe de l'essai	75
1.1.2 Calcul de densités relatives	77
1.1.3 Résultats	78
1.2. Module d'Young	78
1.2.1 Module d'Young par compression simple	78
1.2.2 Module d'Young par flexion trois points	81
1.3. Coefficient de Poisson	82
1.3.1 Méthode d'estimation du coefficient de Poisson	82
1.3.2 Résultats	85
1.4. Rupture par compression simple	87
1.4.1 Essai de rupture uniaxiale	87
1.4.2 Résultats	88
1.5. Cohésion et angle de frottement interne	88
1.5.1 Principe de l'essai	89
1.5.2 Résultats	90
1.6. Frottement poudre/matrice	91
1.6.1 Méthode d'estimation du frottement poudre/matrice	91
1.6.2 Résultats dans le cas non lubrifié	93
1.6.3 Résultats dans le cas d'une matrice lubrifiée	95
1.6.4 Résultats dans le cas de poudre lubrifiée	95
III.2. Distribution axiale de densité	96
2.1. Objectif	96
2.2. Méthode et essai	97
2.3. Résultats	98
III.3. Conclusion	99

Introduction

Dans le but de caractériser les propriétés mécaniques de la poudre au comprimé durant le processus de compaction, nous avons réalisé un certain nombre d'essais dans ce sens. Les propriétés mécaniques que nous souhaitons suivre sont le module d'Young, le coefficient de Poisson, le frottement poudre/matrice, la cohésion et l'angle de frottement interne de la poudre des compacts pour différentes densités. Pour la cohésion et l'angle de frottement, nous avons utilisé une cellule annulaire de cisaillement de poudre tant que la contrainte normale de compaction est en dessous de 10 KPa . Pour ce qui concerne les comprimés, ces propriétés ont été caractérisées par des mesures de contraintes à la rupture diamétrale et uniaxiale sous l'hypothèse que le comportement à la rupture des comprimés est décrit par le modèle de Drucker-Prager (linéarité entre la pression hydrostatique appliquée et le cisaillement maximal). Par ailleurs, une procédure expérimentale simple a été mise en place pour estimer la distribution axiale de la densité dans le comprimé. Elle sera utilisée pour une comparaison ultérieure avec les calculs numériques.

Dans ce qui suit, nous décrivons les essais ainsi que les résultats pour les poudres tests considérées.

V.1. Propriétés mécaniques des comprimés

1.1. Résistance mécanique par rupture diamétrale

1.1.1 *Principe de l'essai*

L'essai de rupture diamétrale (appelé aussi test brésilien) est utilisé pour estimer la force F nécessaire pour rompre le comprimé diamétralement. Cette force peut dépendre de la forme

du comprimé selon qu'il est plat ou bombé. L'appareil utilisé pour réaliser cet essai a été présenté précédemment (voir figures II.5 et II.6 au chapitre II). En supposant que les contraintes de traction et de compression sont équivalentes, la contrainte de rupture diamétrale pour un comprimé cylindrique plat est calculée par :

$$\sigma_{rd} = \frac{2F}{\pi Dh} \quad (\text{III-1})$$

où F est la force de rupture, D est le diamètre et h est l'épaisseur du comprimé.

L'équation (III-1) est appliquée dans le cas d'une rupture diamétrale nette d'un compact plat comme le montre la figure III.1.



Figure III.1. Rupture diamétrale d'un compact plat de cellulose microcristalline Vivapur 102.

Dans le cas d'un comprimé bombé (figure III.2), la contrainte de rupture diamétrale ne peut pas être déduit par la formule (III-1). Elle peut être calculée numériquement par éléments finis. Cependant, la contrainte de rupture dans le comprimé est à calculer pour chaque forme donnée. Une équation permettant de calculer la contrainte de rupture en fonction de la force de rupture et de la forme a été établie par Pitt et al. [51,52]. Cette équation a été validée par les auteurs pour des échantillons du gypse et s'écrit sous la forme :

$$\sigma_t = \frac{10F}{\pi D^2} \left(2,84 \frac{h}{D} - 0,126 \frac{h}{t} + 3,15 \frac{t}{D} + 0,01 \right)^{-1} \quad (\text{III-2})$$

où F est la force de rupture, D est le diamètre, h est l'épaisseur totale du comprimé et t est l'épaisseur de la partie cylindrique plate du comprimé.

Une illustration d'un comprimé bombé est représentée sur la figure III.2.

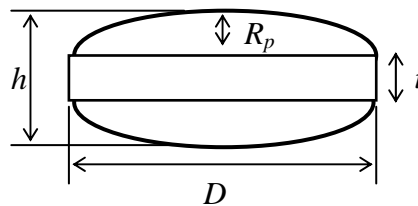


Figure III.2. Dimensions utilisées pour un comprimé bombé.

Les comprimés ont été préparés à l'aide de la presse *Instron* avec des poinçons plats ou présentant une courbure avec différentes profondeurs. Les résultats sont présentés ci-dessous.

1.1.2 Calcul de densités relatives

Dans le but de décrire les propriétés mécaniques des comprimés plats et bombés en fonction de la densité relative, nous avons évalué la densité apparente (rapport entre la masse de la poudre et le volume du comprimé) pour les comprimés plats et bombés. Par ailleurs, la densité vraie (la masse de la poudre sur le volume du solide) est mesurée par pycnométrie à Helium . Pour un comprimé plat, la densité apparente s'écrit :

$$\rho_{app} = \frac{m}{V} = \frac{m}{\pi \left(\frac{D}{2}\right)^2 h}$$

où m est la masse du comprimé, D et h sont respectivement le diamètre et l'épaisseur du comprimé.

Pour calculer la densité apparente d'un comprimé bombé, il va falloir estimer le volume d'un tel comprimé représenté sur la figure III.2. Ce volume est la somme de la partie cylindrique :

$$V_1 = \pi \frac{D^2}{4} t$$

et des deux parties bombées équivalentes au volume d'un ellipsoïde :

$$V_2 = \frac{4}{3} \pi \left(\frac{D}{2}\right)^2 R_p$$

où R_p est la profondeur du poinçon.

Par conséquent, le volume total apparent s'écrit :

$$V = \pi \frac{D^2}{4} \left(\frac{4}{3} R_p + t \right)$$

D'où l'expression de la densité apparente :

$$\rho_{app} = \frac{m}{\pi \frac{D^2}{4} \left(\frac{4}{3} R_p + t \right)}$$

Dans le cas d'un comprimé bombé, nous avons utilisé deux poinçons concaves :

- Poinçon R20 avec une profondeur $R_p=0,08 \text{ cm}$
- Poinçon R10 avec une profondeur $R_p=0,174 \text{ cm}$

1.1.3 Résultats

La figure III.3 représente l'évolution de la contrainte de rupture en fonction de la densité relative pour la *Vivapur 102* mélangée avec 1% en masse de stéarate de magnésium compactée avec différentes formes de poinçons. Le mélange est effectué à l'aide d'un mélangeur *Turbula* pendant 2 minutes.

Les forces choisies pour la préparation des comprimés sont de 5 à 20 kN. Nous avons constaté que plus le comprimé est bombé, plus sa densité relative est faible à une force de compression donnée.

La figure III.3 montre que la contrainte de rupture croît avec la densité relative. Par ailleurs, pour une densité relative donnée, on constate que la contrainte de rupture est plus grande pour les comprimés bombés (i.e. les comprimés obtenus avec un poinçon *R10* (le plus profond) sont les plus résistants, suivis par ceux qui sont obtenus par le poinçon *R20* et ensuite les comprimés plats).

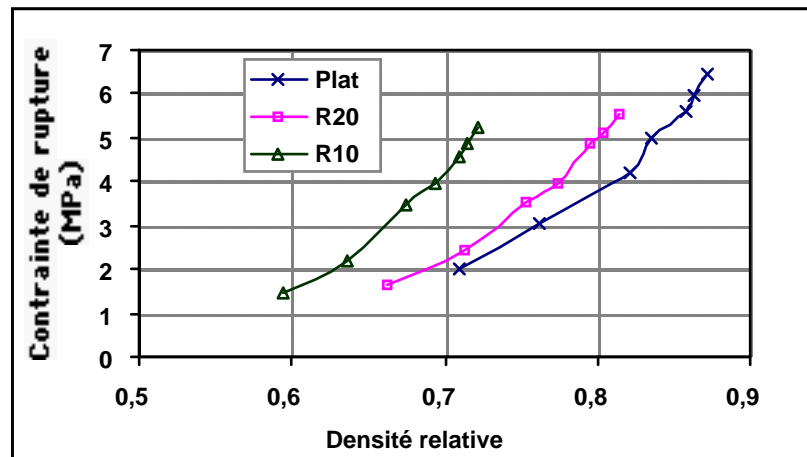


Figure III.3. Contrainte à la rupture diamétrale en fonction de la densité relative pour la *Vivapur 102* mélangée avec 1% du stéarate de magnésium.

1.2. Module d'Young

1.2.1 Module d'Young par compression simple

L'essai de compression simple (sans confinement) est généralement utilisé pour estimer la contrainte à la rupture uniaxiale et les propriétés élastiques du compact. Celui-ci est soumis à une déformation à vitesse constante. La réponse macroscopique du compact est donnée par une courbe contrainte-déformation. Nous avons utilisé cet essai pour déterminer l'évolution du module d'Young E et de la contrainte à la rupture uniaxiale σ_{Ru} en fonction de la densité du compact de la *Vivapur 102*.

L'essai a été effectué à l'aide d'une presse *Instron*. Le compact de *Vivapur 102* sollicité est de géométrie cylindrique et placé entre deux poinçons. Une illustration est présentée sur la figure III.4. Afin de limiter la déformation en tonneau du compact qui conduit généralement à un état de contrainte non-uniforme, nous avons lubrifié le contact entre le compact et les poinçons.

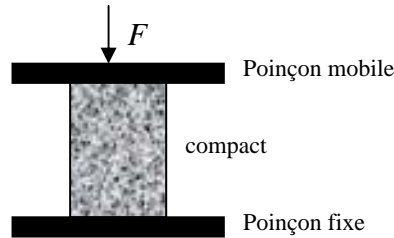


Figure III.4. Test de compression simple.

La préparation des compacts est faite à l'aide d'une matrice cylindrique d'une hauteur de 90 mm et d'une section de 1 cm² permettant d'obtenir des compacts qui vérifient $\frac{H}{D} \geq 2$. La matrice est lubrifiée avec du stéarate du magnésium avant la réalisation de chaque compact. Ces compacts ont été préformés par l'application d'une force F allant de 1 à 11 kN sur un lit de poudre de 2,5 g de *Vivapur 102*, ce qui correspond à des pressions de 10 à 110 MPa. Les compacts sont stockés 48 heures à humidité constante. La relaxation des compacts après 48 heures devient négligeable. Les dimensions sont ensuite mesurées à l'aide d'un pied à coulisse. Deux cycles charge-décharge ont été effectués pour chaque essai (voir figure III.5).

Pour chaque niveau de force (correspondant à une densité relative), nous évaluons le module d'Young par :

$$\sigma = E \varepsilon$$

où σ est la contrainte appliquée et ε est la déformation axiale du compact. Le module d'Young E est la pente de la courbe contrainte appliquée - déformation. Nous avons choisi de prendre le module d'Young égal à la pente de la partie linéaire où les courbes de charge et de décharge coïncident (partie entourée dans la figure III.5). La déformation axiale est égale à d/H où d est le déplacement du poinçon supérieur et H est la hauteur initiale du compact. L'élasticité du bâti a été mesurée et a été prise en compte dans le calcul de la déformation du compact. Le module d'Young obtenu est une réponse macroscopique vis-à-vis du comportement réel du compact.

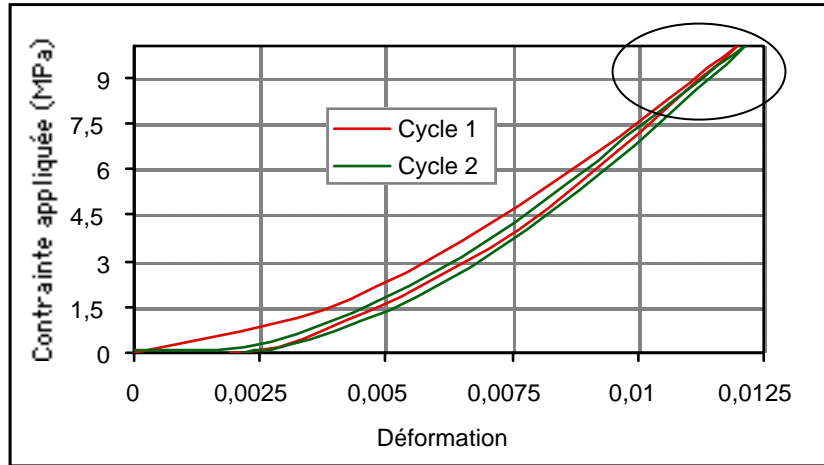


Figure III.5. Cycles charge-décharge par compression simple d'un comprimé de Vivapur 102.

La figure III.6 présente l'évolution du module d'Young E obtenu par compression simple en fonction de la densité relative. On observe une évolution croissante du module d'Young en fonction de la densité relative des compacts que l'on peut lisser en utilisant la fonction exponentielle :

$$E = E_0 \exp(A \times \rho_r)$$

avec $E_0 = 4,3643 \text{ MPa}$ et $A = 7,3953$.

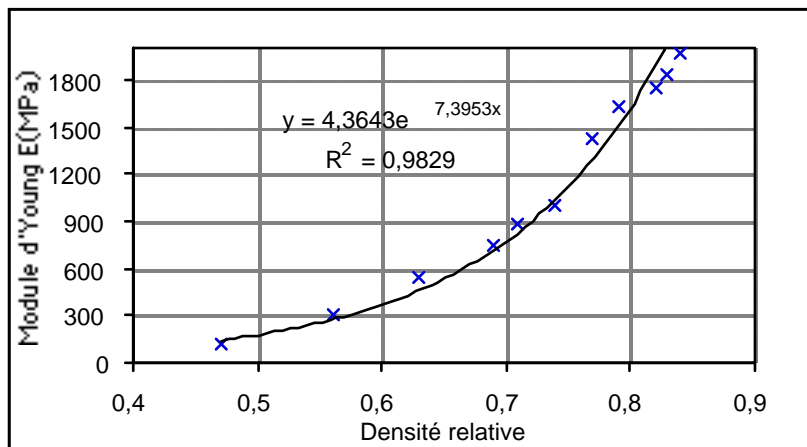


Figure III.6. Évolution du module d'Young de la Vivapur 102 en fonction de la densité relative (par compression simple)..

1.2.2 Module d'Young par flexion trois points

Nous avons préparé des compacts parallélépipédiques de poudre cellulose microcristalline *Vivapur 102* de dimensions $40 \times 6 \times h$ avec h varie avec la densité. La matrice a été lubrifiée avec du stéarate du magnésium avant la réalisation de chacune des barrettes pour avoir une homogénéité de la distribution de la densité. Les barrettes sont produites par l'application d'une force F allant de 5 à 40 kN, correspondant à des pressions de 21 à 170 MPa. La masse de poudre pour chaque barrette est de 2 g. Les barrettes sont stockées 48 heures dans une cloche à humidité contrôlée, maintenue à 48% RH. Les dimensions des barrettes ont été ensuite mesurées à l'aide d'un pied à coulisse.

Nous pouvons suivre la force appliquée sur la barrette par l'indenteur en fonction de la flèche. Le module d'Young est la pente de la courbe contrainte-déformation, où la contrainte est égale à $3Fp/2lh^2$ et la déformation est égale à $6hd/p^2$, où d est la flèche, F est la force appliquée, p la distance entre les deux supports, l la largeur de la barrette et h l'épaisseur qui varie avec la densité.

La figure III.7 présente l'évolution du module d'Young E obtenu par flexion trois points en fonction de la densité relative. Le module d'Young croît en fonction de la densité relative des barrettes et les valeurs obtenues peuvent être lissées en utilisant la fonction exponentielle :

$$E = E_0 \exp(A \times \rho_r)$$

avec $E_0 = 6,7372 \text{ MPa}$ et $A = 7,4062$.

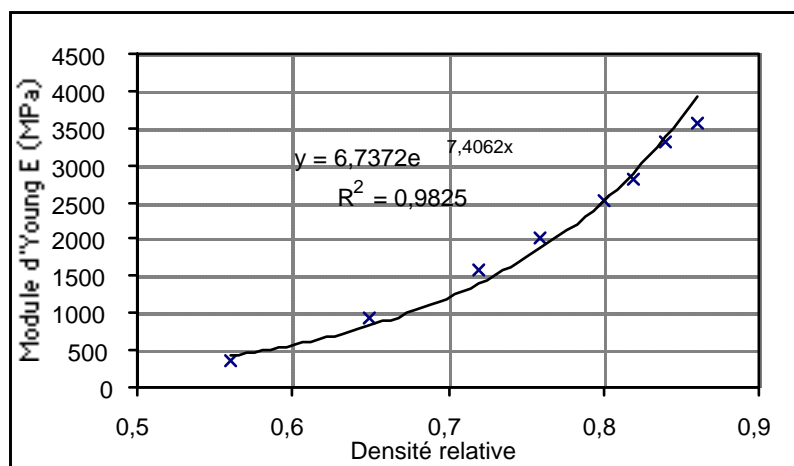


Figure III.7. Évolution du module d'Young de la *Vivapur 102* en fonction de la densité relative (par flexion trois points).

Le module d'Young obtenu par flexion trois points est supérieur à celui obtenu par compression simple (voir figure III.8). Ceci est dû probablement à la distribution de la porosité des compacts obtenus par compression en matrice cylindrique et dans les barrettes. En effet, le module d'Young obtenu est une mesure macroscopique et les compacts sollicités dans les deux méthodes de mesures n'ont pas la même géométrie. De plus, la distribution de densité n'est pas tout à fait homogène même avec lubrification. Par conséquent, la réponse d'un compact cylindrique à une compression simple et d'une barrette à une flexion trois points n'est pas la même. Cela dit, le module d'Young utilisé dans la simulation numérique pour une géométrie cylindrique ou parallélépipédique doit-être celui correspondant à l'essai.

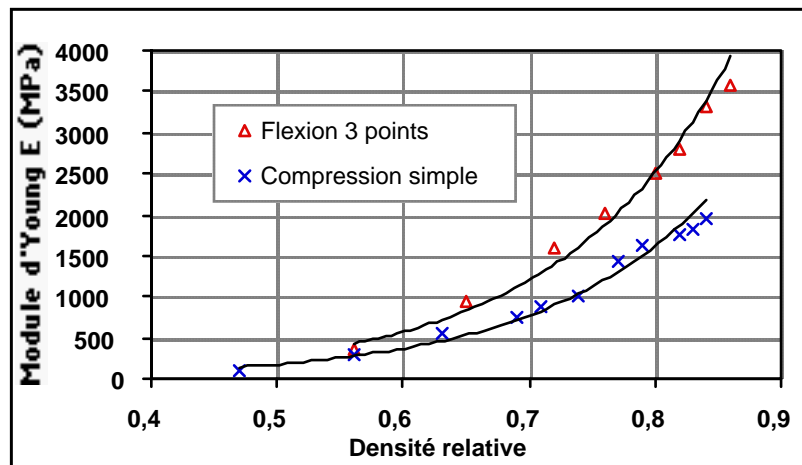


Figure III.8. Évolutions du module d'Young de la *Vivapur 102* obtenu par flexion 3 points et par compression simple en fonction de la densité relative.

1.3. Coefficient de Poisson

Le coefficient de Poisson traduit le rapport entre la déformation élastique radiale et la déformation élastique axiale. Dans le cas d'une compression simple, la relation qui intervient entre la direction de sollicitation (z) et la direction transverse (r) est telle que :

$$\varepsilon_r = -\nu \varepsilon_z$$

Ce coefficient est particulièrement difficile à mesurer directement dans le cas des poudres pharmaceutiques. Nous avons adopté une démarche indirecte basée sur la mesure de la pente de décharge élastique du cycle de compression en matrice et l'utilisation des relations d'élasticité.

1.3.1 Méthode d'estimation du coefficient de Poisson

La figure III.9 représente la courbe de compression en matrice de la poudre (MCC) *Vivapur 102*. Cette courbe représente l'évolution de la contrainte axiale σ_z appliquée sur le lit de poudre dans une matrice fermée en fonction de la déformation axiale ε_z .

Comme nous l'avons déjà décrit dans le premier chapitre, lors du chargement ((AB) sur la figure III.9) la poudre subit des déformations élastiques et plastiques. Pendant la décharge (BD) ou du retrait du poinçon, le compact se dilate suite à la restitution d'une partie de l'énergie stockée sous forme élastique et qui dépend du comportement de la poudre et du processus de compaction. On suppose dans ce qui suit que le début de la décharge (partie (BC)) est purement élastique et que c'est seulement à la fin de la décharge que des contraintes de cisaillement pouvant entraîner la rupture peuvent avoir lieu.

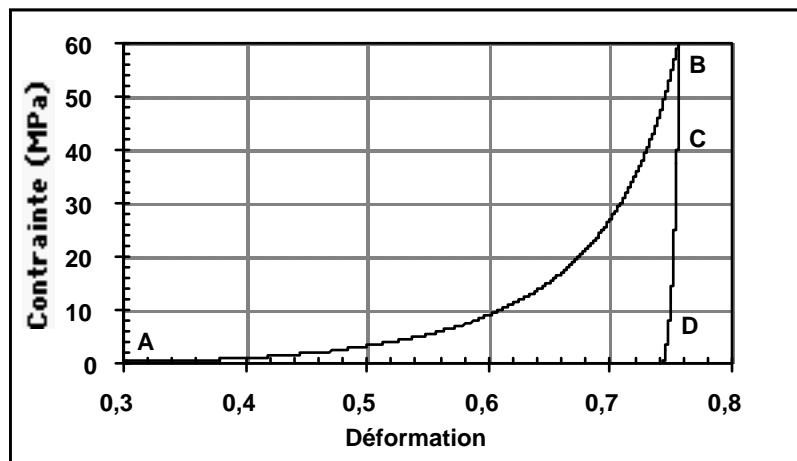


Figure III.9. Courbe de compression en matrice de la poudre *Vivapur 102* à 60 MPa.

Pendant la compression en matrice cylindrique, le tenseur des contraintes s'écrit sous la forme :

$$\sigma = \begin{pmatrix} \sigma_r & & \\ & \sigma_r & \\ & & \sigma_z \end{pmatrix}$$

où σ_r est la pression radiale et σ_z est la pression axiale.

La matrice est supposée rigide et par conséquent la déformation radiale est nulle. La loi de Hooke implique :

$$\sigma_r - \nu(\sigma_z + \sigma_r) = 0 \quad \text{(III-3)}$$

où ν est le coefficient de Poisson.

Dans le domaine de déformation élastique ε_z s'écrit sous la forme :

$$\begin{aligned}\varepsilon_z &= \frac{1+\nu}{E} \sigma_z - \frac{\nu}{E} tr(\sigma) \\ &= \frac{1+\nu}{E} \sigma_z - \frac{\nu}{E} (2\sigma_r + \sigma_z) \\ &= \frac{1}{E} \sigma_z - 2\frac{\nu}{E} \sigma_r\end{aligned}$$

avec E le module d'Young.

En introduisant (III-3) dans l'expression de la déformation axiale on trouve :

$$\begin{aligned}\varepsilon_z &= \frac{1}{E} \sigma_z - \frac{2\nu}{E} \frac{\nu}{1-\nu} \sigma_z \\ &= \frac{1}{E} \left(1 - 2\nu \frac{\nu}{1-\nu} \right) \sigma_z\end{aligned}\tag{III-4}$$

On définit :

$$\text{Le module de compressibilité : } K = \frac{E}{3(1-2\nu)}\tag{III-5}$$

$$\text{et le module de cisaillement : } G = \frac{E}{2(1+\nu)}\tag{III-6}$$

En utilisant (III.5-6), la déformation axiale élastique s'écrit alors :

$$\varepsilon_z = \left[\frac{(1+\nu)(1-2\nu)}{(1-\nu)E} \right] \sigma_z = \frac{1}{K + \frac{4}{3}G} \sigma_z\tag{III-7}$$

Par conséquent, la pente de la courbe de décharge est égale à :

$$S = K + \frac{4}{3}G$$

On a donc le système suivant :

$$\left\{ \begin{array}{l} S = K + \frac{4}{3}G \\ K = \frac{E}{3(1-2\nu)} \\ G = \frac{E}{2(1+\nu)} \end{array} \right.$$

La combinaison des équations de ce système permet de montrer que le coefficient de poisson ν est solution de l'équation suivante :

$$\nu^2 - a\nu + a = 0\tag{III-8}$$

où $a = \frac{E-S}{2S}$, avec E le module d'Young et S la pente décharge qui sont indexés à la densité relative de la poudre.

1.3.2 Résultats

Pour calculer le coefficient de Poisson de la poudre *Vivapur 102* en utilisant l'équation (III-8), nous avons donc besoin de l'évolution des pentes de décharge et du module d'Young en fonction de la densité relative. Pour calculer les pentes de décharge, nous avons effectué des cycles charge-décharge pendant la compression dans une matrice d'une hauteur de 9 cm et d'une section d'un cm^2 .

La figure III.10 présente les cycles charge-décharge obtenus par compression en matrice de la poudre *Vivapur 102*. La masse de la poudre utilisée est de 2,5 g. Nous avons effectué un arrêt de 2 minutes à pression maximale après chaque chargement avant de passer à la décharge. Cet arrêt de 2 minutes a limité l'aspect "visqueux" de la courbe de décharge et nous a donné des courbes de décharge linéaires dont la pente est facile à calculer.

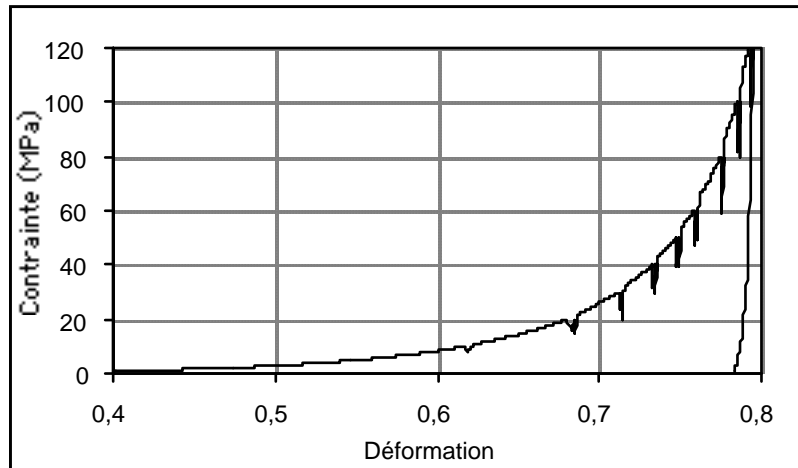


Figure III.10. Cycles charge - décharge pendant la compression en matrice de la poudre *Vivapur 102*.

L'évolution des pentes de décharge en fonction de la densité relative est présentée sur la figure III.11. On observe une évolution croissante des pentes de décharge pour des densités relatives inférieures à 0,75. Cette évolution devient moins rapide pour les densités relatives supérieures à 0,75.

Nous avons utilisé le module d'Young E obtenu par compression simple présenté sur la figure III.6. Ce module d'Young a été estimé dans les mêmes conditions (matrice, masse de poudre,...) que celles dans lesquelles les cycles de charge-décharge ont été effectués.

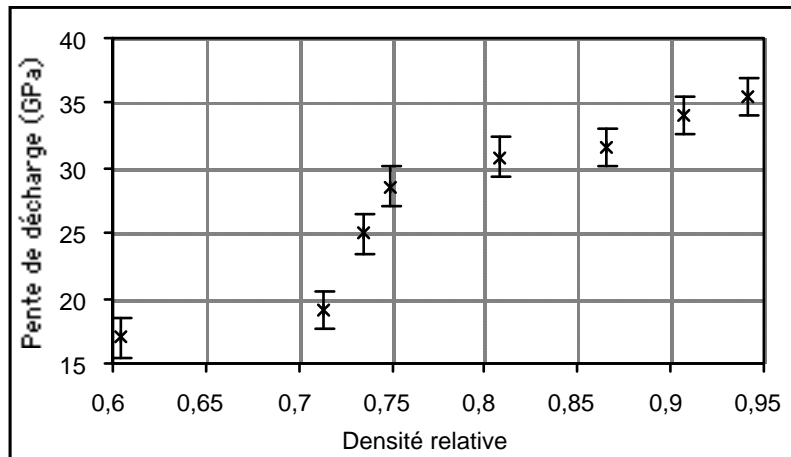


Figure III.11. Évolution des pentes de décharge de la poudre Vivapur 102 en fonction de la densité relative.

Le coefficient de Poisson obtenu à l'aide des pentes de décharge et du module d'Young est présenté sur la figure III.12. Le coefficient de Poisson décroît en fonction de la densité relative.

Ce résultat nous semble aberrant. Par ailleurs, les résultats de la littérature ne sont pas en accords. Roberts [54] a utilisé un module d'Young obtenu par flexion quatre points et un module de cisaillement obtenu par torsion pour calculer indirectement le coefficient de Poisson d'une poudre de cellulose microcristalline. Le coefficient de Poisson obtenu par Roberts est de 0,20 pour une densité relative de 0,72, puis diminue jusqu'à des valeurs très faibles autour de 0,03, pour augmenter ensuite jusqu'à 0,16 pour une densité relative de 0,95.

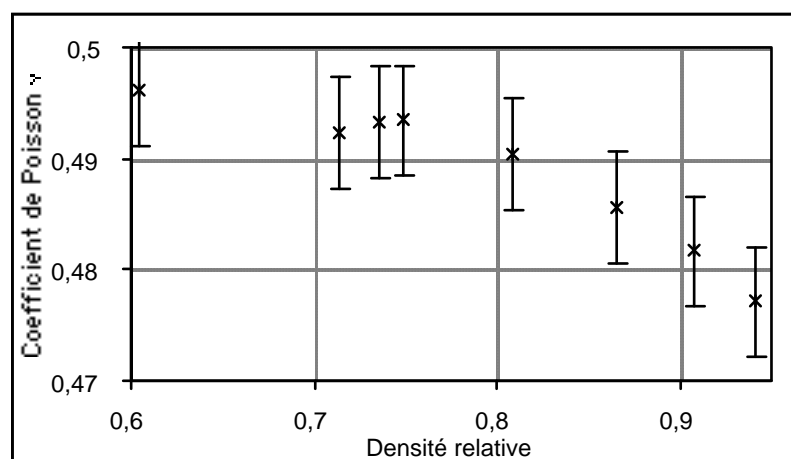


Figure III.12. Évolution du coefficient de Poisson de la poudre Vivapur 102 en fonction de la densité relative.

Ketolainen [55] a mesuré le coefficient de Poisson d'une cellulose microcristalline par photoacoustique. Le coefficient de Poisson obtenu est de 0,34 à 0,58 de densité relative, il décroît ensuite jusqu'à 0,135, pour augmenter jusqu'à 0,23 à 0,82 de densité relative.

Compte tenu de la dispersion des résultats de coefficient de Poisson, il serait préférable de fixer un coefficient de Poisson "raisonnable" et de déduire le module d'Young E à partir des pentes de décharge de la compression en matrice.

1.4. Rupture par compression simple

1.4.1 Essai de rupture uniaxiale

Si on augmente la pression appliquée en continu sur le compact pendant une compression simple, le compact s'effondre (voir figure III.13) et la contrainte chute comme le montre la figure III.14.



Figure III.13. Compact de *Vivapur 102* au cours d'une compression simple.

La contrainte à la rupture en compression simple est identifiée à la contrainte maximale atteinte avant adoucissement au cours de la sollicitation.

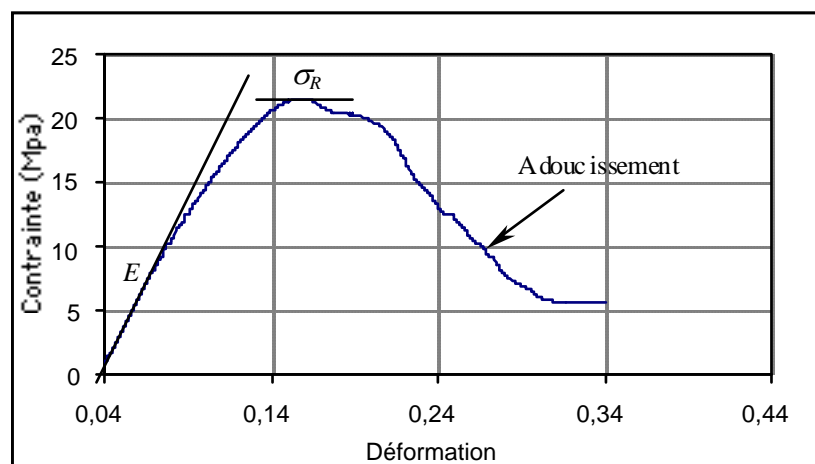


Figure III.14. Contrainte appliquée sur un compact cylindrique de *Vivapur 102* jusqu'à la rupture en fonction de la déformation axiale.

1.4.2 Résultats

La figure III.15 représente l'évolution de la contrainte à la rupture en fonction de la densité relative des compacts cylindriques de *Vivapur 102* sollicités en compression simple.

Les résultats obtenus montrent que la contrainte à la rupture uniaxiale croît en fonction de la densité relative.

Les mesures obtenues peuvent être lissées par la fonction exponentielle :

$$\sigma_u = A \exp(B \times \rho_r)$$

avec $A = 0,0705 \text{ MPa}$ et $B = 8,9589$.

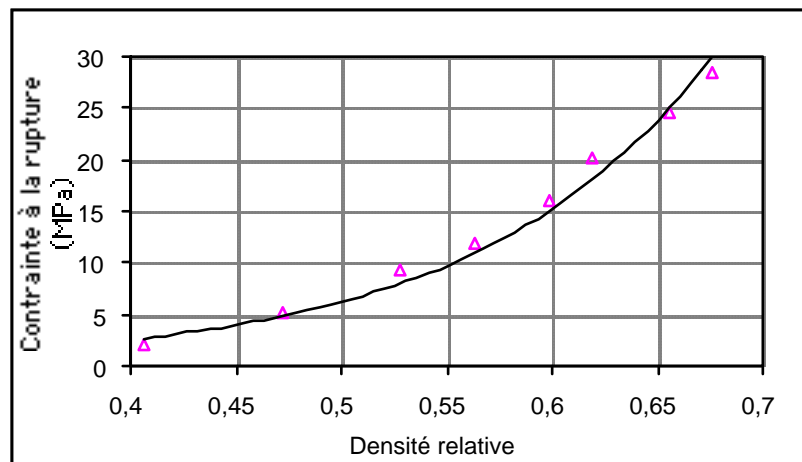


Figure III.15. Évolution de la contrainte à la rupture uniaxiale de compacts en *Vivapur 102* en fonction de la densité relative.

L'objectif de ces essais est d'estimer la cohésion et l'angle de frottement interne de la poudre en fonction de la densité relative. L'approche utilisée pour l'estimation de ces deux paramètres, cohésion et angle de frottement interne, est basé sur un croisement des contraintes de rupture diamétrale et uniaxiale avec la droite de rupture de Drucker-Prager. Cette partie sera décrite au quatrième chapitre et les résultats seront présentés par la suite.

La cohésion et l'angle de frottement interne ont été estimés aussi à l'aide de la cellule annulaire de cisaillement. La méthode et les résultats obtenus sont présentés au paragraphe suivant.

1.5. Cohésion et angle de frottement interne

Un assemblage de particules soumis à une sollicitation extérieure se réarrange pour assurer l'équilibre. L'état de contrainte en un point de l'assemblage peut se décomposer en une contrainte tangentielle. Lorsque la contrainte tangentielle atteint un maximum, indépendant de

toute facette choisie, le critère de Coulomb suggère que cette contrainte de rupture est proportionnelle à la contrainte normale au point considéré. Ce qui se traduit par :

$$\tau_{\max} = C + \sigma_n \tan \varphi$$

avec τ_{\max} est la contrainte de cisaillement maximale, σ_n est la contrainte normale, C est la cohésion et φ est l'angle de frottement interne. On utilisera ce critère dans le cas d'une cellule annulaire de cisaillement.

1.5.1 Principe de l'essai

À partir de l'évolution de la contrainte de cisaillement τ en fonction du temps, on déduit la courbe de la contrainte de cisaillement en fonction de la contrainte normale comme le montre la figure III.16. Chaque contrainte normale donne un état de densité et une droite de rupture (lieu d'écoulement). Le critère de Mohr Coulomb nous permet de calculer la tangente de l'angle de frottement interne φ qui est la pente de la droite de rupture et la cohésion C comme étant son intersection avec l'axe τ . Chaque droite de rupture correspond à un état de densité donné.

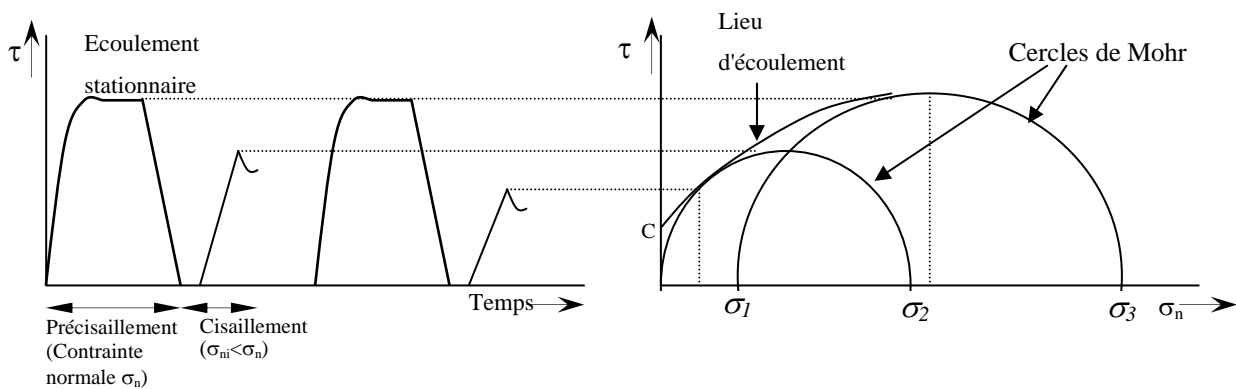


Figure III.16. Test de cisaillement et lieu d'écoulement.

où σ_1 , σ_2 et σ_3 sont les contraintes principales. La contrainte σ_1 est la contrainte minimale à appliquer sur une voûte pour la rompre. Le cercle de Mohr représentatif de l'état des contraintes doit passer par l'origine. En effet, il est possible qu'une arche qui s'est formée lors de l'écoulement ne soit soumise à aucune contrainte. Pour être à la limite de rupture, il faut d'autre part que ce cercle soit tangent à la droite de rupture. La contrainte maximale qui peut s'appliquer sur une voûte est donnée par la contrainte principale majeure de ce cercle σ_3 .

Les résultats obtenus pour la poudre de cellulose microcristalline *Vivapur 102* sont présentés dans le paragraphe suivant.

1.5.2 Résultats

Les figures III.17 et III.18 présentent respectivement l'évolution de la cohésion et de l'angle de frottement interne en fonction de la densité relative. Les résultats montrent une évolution croissante de la cohésion et une lente décroissance de l'angle de frottement interne en fonction de la densité relative.

D'une manière intuitive, nous avons tendance à dire que plus on comprime plus la cohésion entre les particules augmente et le mouvement des particules diminue. Par conséquent, le frottement interparticulaire diminue.

Nous étions limités par rapport aux forces normales appliquées (quelques dizaines de kPa). Par conséquent, les densités relatives obtenues sont faibles et inférieures à 0,3. La cellule de cisaillement nous a permis d'avoir un ordre de grandeur de la cohésion et de l'angle de frottement interne aux faibles densités. Mais, la transposition de ces résultats à la compression en matrice est à prendre avec précaution car les conditions aux limites ont peu d'influence en cellule de cisaillement contrairement à la compression en matrice. Le fait que le diamètre de la matrice utilisée pour la compression est petit pourrait avoir une influence sur le frottement interne et sur la cohésion de la poudre pendant la compression.

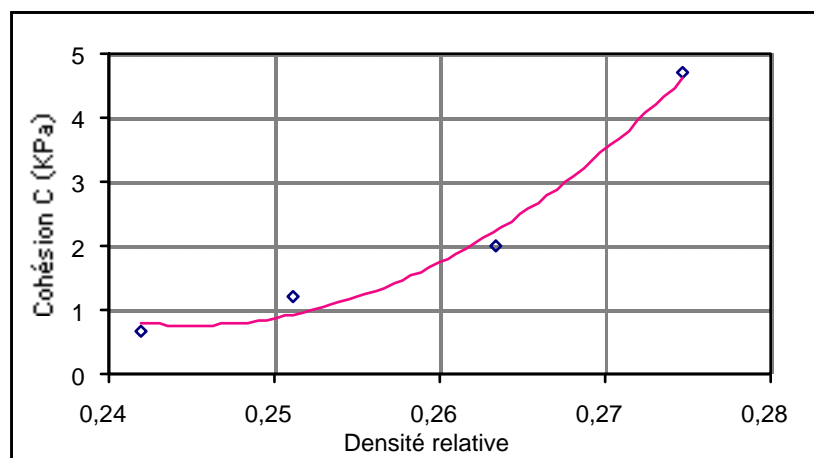


Figure III.17. Cohésion C de la Vivapur 102 en fonction de la densité relative.

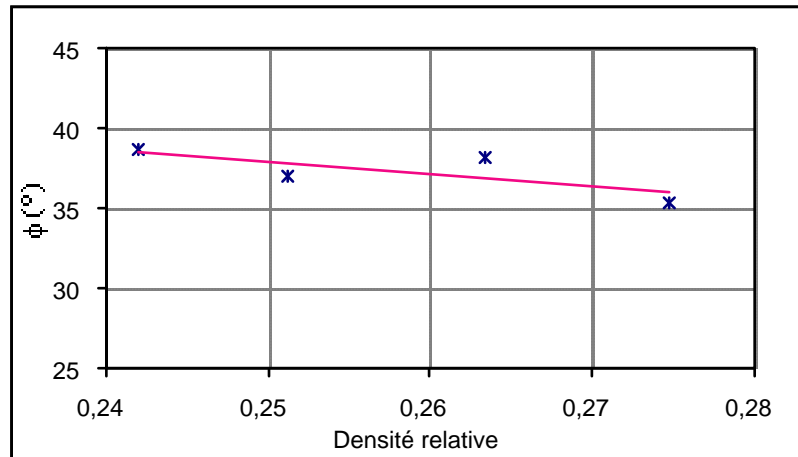


Figure III.18. Angle de frottement interne ϕ de la *Vivapur 102* en fonction de la densité relative.

Les résultats de l'angle de frottement interne sont rares et parfois contradictoires dans la littérature. Stanley [56] a estimé l'angle de frottement de la poudre *Dioxyde de Titane* à l'aide d'une cellule de cisaillement. Ses résultats montrent une évolution décroissante de l'angle de frottement interne en fonction de la pression de consolidation. Toutefois, un autre résultat récent de Sinka [21] montre plutôt une croissance de l'angle de frottement interne et une évolution exponentielle de la cohésion.

Nous reviendrons sur ces deux paramètres, cohésion et angle de frottement, dans le chapitre de modélisation.

On présente dans ce qui suit un autre paramètre important dans la compression en matrice. Ce paramètre est le frottement poudre/matrice qui est présent tout au long des étapes du processus de compaction.

1.6. Frottement poudre/matrice

1.6.1 Méthode d'estimation du frottement poudre/matrice

Le frottement de la poudre avec la matrice mène à une hétérogénéité de la distribution de densité dans le comprimé. Cette hétérogénéité entraîne une dispersion des caractéristiques mécaniques, une tenue mécanique médiocre et parfois une non-homogénéité du principe actif pour les comprimés sécables. Par ailleurs, l'hétérogénéité continue de se développer pendant les phases du retrait du poinçon et de l'éjection du comprimé. Le frottement peut dépendre de plusieurs facteurs : pressions de contact, densité de la poudre, vitesse de compression, rugosité de la paroi et de l'état de lubrification. L'interaction entre la poudre et les outils est présente tout au long des étapes du procédé, compression, décharge et éjection.

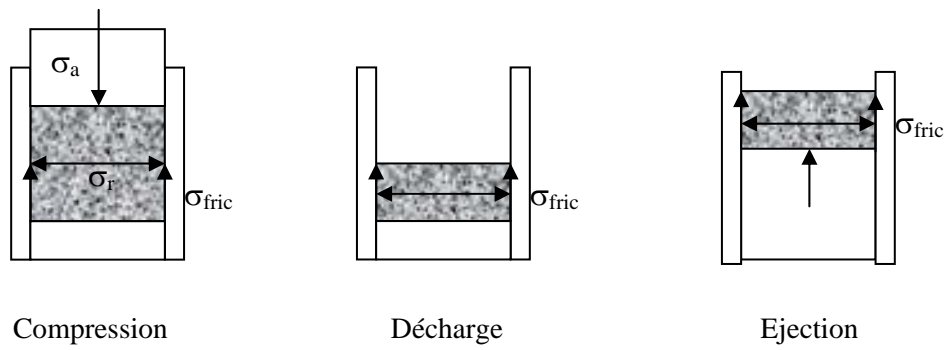


Figure III.19. Présence du frottement tout au long des étapes du procédé de compaction.

Cette interaction se caractérise par une contrainte tangentielle fonction entre autres de la contrainte normale, de la densité courante du compact et de l'état de surface de l'outillage. Cette interaction est représentée par un coefficient de frottement défini par :

$$\mu = \frac{\sigma_{fric}}{\sigma_r}$$

où σ_{fric} est la contrainte nécessaire pour surmonter le frottement à la paroi et σ_r est la contrainte radiale exercée sur la matrice par la poudre.

Il est possible de mesurer σ_r par plusieurs méthodes (Long [6]; Leigh [38]; Es-Saheb [51]), mais il est difficile d'accéder à σ_{fric} par des mesures directes. Pour déterminer le coefficient de frottement, nous avons utilisé le modèle analytique de Janssen-Walker basé sur la méthode des tranches [57]. Ce modèle nous permet de calculer la contrainte axiale moyenne $\sigma_a(z)$ à une profondeur z du haut du compact (voir figure III.20) en fonction de la contrainte appliquée σ_a :

$$\sigma_a(z) = \sigma_a \exp\left[-4\mu\alpha\frac{z}{D}\right] \quad (III-9)$$

avec α peut être interprété comme le rapport entre la contrainte radiale et la contrainte axiale moyenne ($\alpha = \sigma_r / \sigma_a(z)$), D est le diamètre et H est la hauteur du lit de poudre.

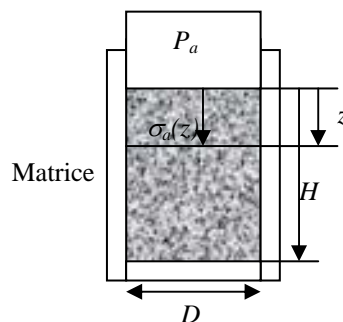


Figure III.20. Contrainte axiale moyenne à une profondeur z du haut du compact pour une pression axiale appliquée σ_a .

Le coefficient du frottement peut être alors déduit à partir de la relation III-9 :

$$\mu = \frac{\ln\left(\frac{\sigma_t}{\sigma_a}\right)}{-4\alpha\frac{H}{D}} \quad (\text{III-10})$$

Les paramètres de l'expression (III-10) sont accessibles en compression en matrice. Le coefficient du frottement est obtenu par la mesure du rapport de transmission (σ_r/σ_a), le rapport du transfert α , la hauteur H et le diamètre D du lit de poudre. Le coefficient du transfert a été déterminé à l'aide de la presse alternative *Frogerais*. Les mesures obtenues sont dans le même ordre de grandeur des résultats publiés par Es-Saheb [51]. Cependant, ces mesures ont été évaluées pour σ_r/σ_a au lieu de $\sigma_r/\sigma_a(z)$ parce que $\sigma_a(z)$ est difficile à mesurer. Les données obtenues montrent un coefficient de transfert qui peut être pris constant. Pour les poudres de cellulose microcristalline, le coefficient de transfert estimé est en moyenne de l'ordre de 0,4 dans le cas non lubrifié et de 0,45 dans le cas lubrifié.

Trois états de lubrification sont testés :

- ↪ **état non lubrifié,**
- ↪ Matrice lubrifiée avec du stéarate de magnésium,
- ↪ Poudre lubrifiée avec 1% du stéarate de magnésium.

Le frottement a été estimé pour les poudres celluloses microcristalline *Vivapur 101*, *102* et *Avicel PH 105* à l'aide de la presse alternative *Frogerais* dont la matrice est instrumentée en jauge radiale. La matrice utilisée a un diamètre de 11,28 mm et une hauteur d'un cm³. La vitesse moyenne de compression est de 31,25 mm/s.

Pour éviter les problèmes de remplissage au début de l'essai, on ne garde que les six derniers comprimés pour lesquels il y a une uniformité des masses.

Les contraintes axiales aux poinçons supérieur et inférieur, ainsi que la hauteur du comprimé ont été mesurées pour chaque expérience.

1.6.2 Résultats dans le cas non lubrifié

La figure III.21 représente le coefficient de frottement des poudres de cellulose microcristalline *Avicel PH 105* (notée 105), *Vivapur 101* (notée 101) et *Vivapur 102* (notée 102) dans le cas d'une compression sans lubrification. Les valeurs très élevées du coefficient de frottement au début de la compression sont dues aux perturbations incohérentes des pressions appliquée et transmise qui sont conséquentes probablement de collage de poudre à la paroi. Des perturbations similaires sont présentées dans les travaux récents de Sinka [21].

Pour l'Avicel PH 105 et la Vivapur 102, le coefficient de frottement diminue pour des densités relatives inférieures à 0,7 pour se stabiliser ensuite autour de 0,4 pour la Vivapur 102 et de 0,3 pour l'Avicel PH 105.

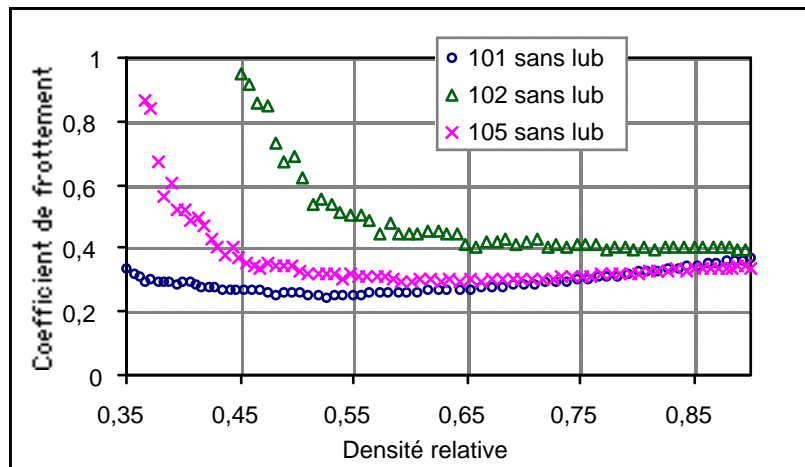


Figure III.21. Coefficient de frottement des poudres de cellulose microcristalline Avicel PH 105 (105), Vivapur 101 (101) et Vivapur 102 (102) en fonction de la densité relative dans le cas d'une matrice non lubrifiée.

Cependant, le comportement de la Vivapur 101 semble être un peu différent, le coefficient de frottement décroît jusqu'à 0,27 pour augmenter ensuite jusqu'à 0,4 en fin de compression. Ce comportement est dû au fait que la hauteur du compact continue à diminuer, tandis que le rapport de transmission (σ_v/σ_a) dans le cas du Vivapur 101 est approximativement constant (0,85) comme le montre la figure III.22. De l'équation (III-8), on déduit que le coefficient de frottement augmente puisque α , D sont constants, H diminue et $\ln(\sigma_v/\sigma_a)$ est constant. Par contre, dans le cas de la Vivapur 102 le rapport de transmission croît avec la diminution de la hauteur.

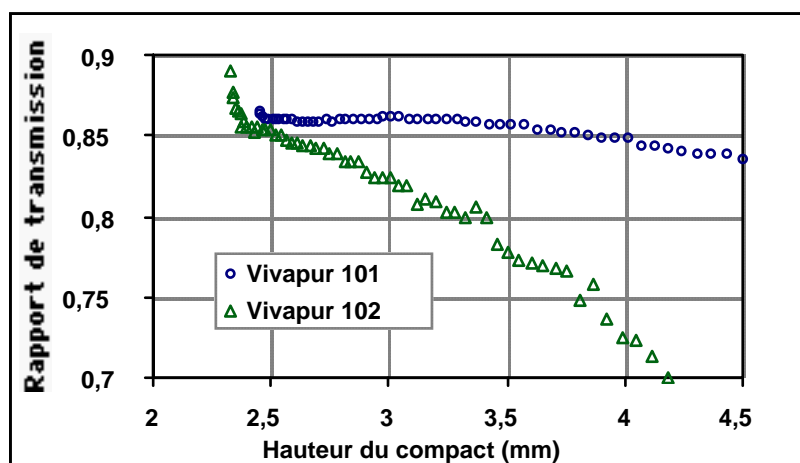


Figure III.22. Rapport de transmission en fonction de la hauteur du compact (cas non lubrifié).

1.6.3 Résultats dans le cas d'une matrice lubrifiée

La figure III.23 représente le coefficient du frottement en fonction de la densité relative dans le cas d'une matrice lubrifiée. Le coefficient de frottement est de 0,18 pour la *Vivapur 101* et de 0,16 pour la *Vivapur 102* en fin de compression.

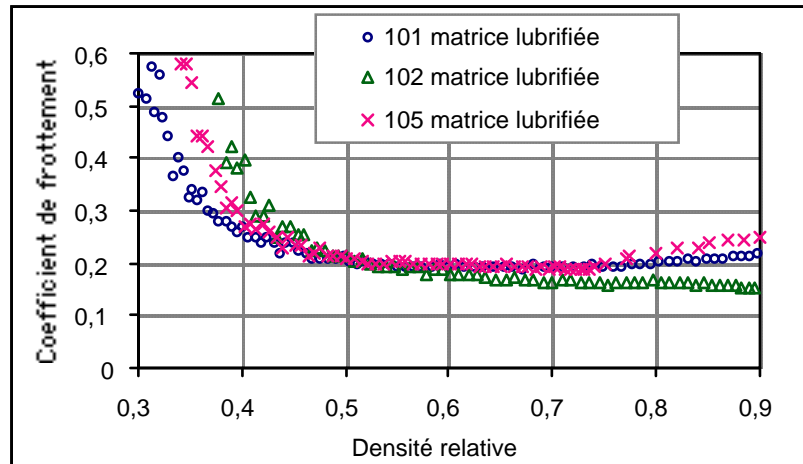


Figure III.23. Coefficient de frottement des poudres de cellulose microcristalline *Avicel PH 105* (105), *Vivapur 101* (101) et *Vivapur 102* (102) en fonction de la densité relative (cas de matrice lubrifiée).

Pour l'*Avicel PH 105*, le coefficient du frottement diminue jusqu'à 0,16 pour augmenter jusqu'à 0,25 en fin de compression. On remarque que la lubrification de la matrice a pour effet de réduire le coefficient du frottement.

1.6.4 Résultats dans le cas de poudre lubrifiée

La figure III.24 présente l'évolution du coefficient du frottement en fonction de la densité relative dans le cas de poudre lubrifiée avec 1% en masse du stéarate de magnésium.

Dans ce cas, le comportement est différent d'une poudre à une autre. Le coefficient du frottement de la *Vivapur 101* diminue, puis augmente un peu autour d'une valeur moyenne de 0,2. Pour la *Vivapur 102*, le coefficient du frottement augmente en continu jusqu'à 0,2. Le coefficient du frottement de l'*Avicel PH 105* diminue jusqu'à 0,15 sans convergence vers une valeur constante.

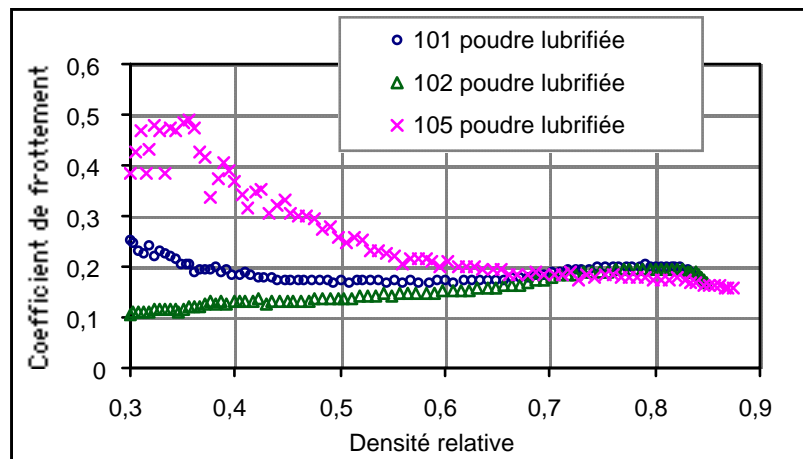


Figure III.24. Coefficient du frottement des poudre de cellulose microcristalline *Avicel PH 105* (105), *Vivapur 101* (101) et *Vivapur 102* (102) en fonction de la densité relative (cas poudre lubrifiée).

Ces résultats montrent un comportement complexe du frottement quand la lubrification est effectuée par mélange poudre/lubrifiant. Les mécanismes par lesquels le lubrifiant s'expulse vers la paroi de la matrice dépendent de plusieurs paramètres comme la taille des particules, le niveau de pression appliquée, la cohésion entre la poudre et le lubrifiant et le comportement du lubrifiant en contact avec la paroi de la matrice. Mais, il est clair que le mélange poudre/lubrifiant contribue à la réduction du coefficient de frottement.

V.2. Distribution axiale de densité

2.1. Objectif

La distribution de la densité dans les comprimés pharmaceutiques affecte souvent les propriétés mécaniques et les caractéristiques de dissolution. Pendant la compaction, la transmission de force se fait de manière non homogène et non uniforme. La distribution de densité qui en résulte dans le compact dépend alors du frottement interparticulaire ainsi que des conditions aux limites comme le contact poudre/matrice et l'état de lubrification. L'hétérogénéité de la densité peut-être source de problèmes comme le clivage ou le délaminage du comprimé pendant la décharge et l'éjection.

Dans cette étude, nous cherchons à mesurer la distribution axiale de densité en utilisant une procédure expérimentale. Le but étant de disposer d'un moyen rapide d'évaluation de la distribution de densité. Plusieurs auteurs ont travaillé sur la mesure expérimentale de la distribution de densité dans les compacts. Parmi les méthodes utilisées, on trouve la microindentation [21,59], la tomographie par rayons X [60], la radioscopie par NMR (Résonance Magnétique Nucléaire) [61], et la radiographie [19]. Souvent les techniques de

mesure de la densité sont coûteuses, difficiles à mettre au point et parfois donnent des résultats qualitatifs [62]. Nous avons utilisé [58] une procédure simple pour mesurer la distribution axiale de densité dans des comprimés de cellulose microcristalline *Vivapur 102*. Une tentative de mesure par tomographie aux rayons X sur des comprimés de *Vivapur 102* a échoué dans le sens où aucun contraste n'était possible.

2.2. Méthode et essai

Il nous a été difficile de couper un comprimé de cellulose microcristalline *Vivapur 102* en plusieurs tranches sans l'endommager. Cette procédure est souvent utilisée pour les poudres métalliques. Pour contourner cette difficulté, nous avons procédé de la manière suivante. Des compacts de faible épaisseur, et de même masse (0,55 g en poudre *Vivapur 102*) ont été précompactés à une pression maximale de 10 MPa dans une matrice cylindrique de diamètre 11,28 mm, lubrifiée avec du stéarate du magnésium. Ce niveau de charge donne une certaine cohésion aux compacts. La lubrification permet une certaine homogénéité de la densité. Ensuite, ces compacts ont été empilés par groupe de cinq dans une autre matrice non lubrifiée de diamètre 11,29 mm. Chaque groupe de cinq compacts est comprimé à une charge maximale de 30, 40, 50 ou 60 MPa. Le compact ainsi formé est ensuite éjecté et les tranches séparées. Aucun endommagement n'a été constaté sur les faces de contact entre tranches. La densité apparente de chaque tranche a été mesurée pour estimer la distribution axiale de la densité. Compte tenu de la faible épaisseur des tranches, nous avons supposé que la densité est homogène au niveau de chaque tranche.

L'empilement des cinq pastilles est illustré dans la figure III.25. La densité relative initiale moyenne des cinq tranches empilées est de 0,46.

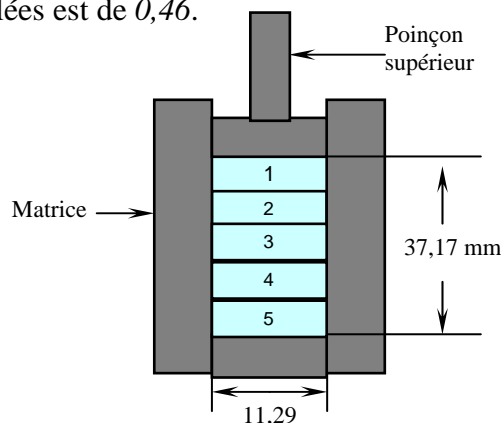


Figure III.25. Compaction de cinq tranches préformées à 10 MPa.

La figure III.26 présente la courbe de compression (contrainte – déformation) des cinq tranches compactées à une pression de 60 MPa. Pour s'assurer de la reproductibilité des résultats, les essais ont été refaits trois fois.

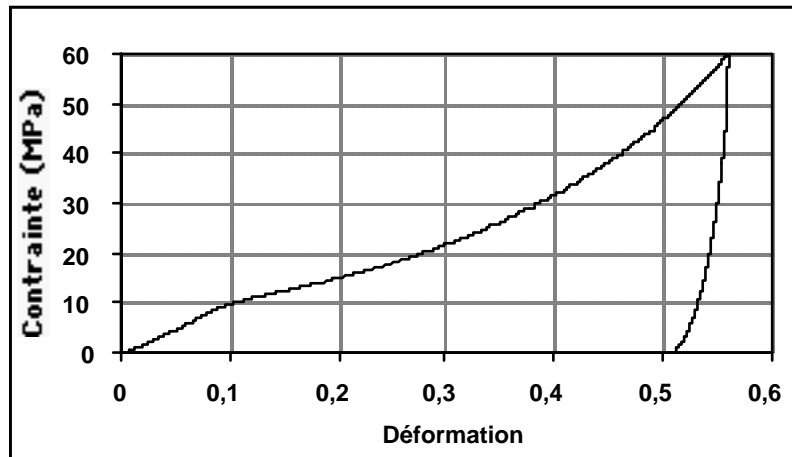


Figure III.26. Courbe de compression des cinq tranches à 60 MPa.

2.3. Résultats

Le tableau III.1 représente les mesures de densité relative des cinq tranches après éjection et séparation des tranches dans le cas d'une compression à 60 MPa.

Tableau III.1. Cas 60 MPa : Densités relatives des tranches après éjection.

$h(\text{mm})^*$	Essai 1	Essai 2	Essai 3	Moyenne	Écart type
21,37	0,7315	0,7446	0,7312	0,7358	0,00625403
16,74	0,7242	0,7302	0,7272	0,7271	0,00245332
12,02	0,7194	0,7113	0,7176	0,7162	0,00346503
7,245	0,7107	0,7082	0,7097	0,7096	0,00102694
2,422	0,7037	0,7006	0,7032	0,7025	0,00133682

(*) h est la distance du bas du compact (Origine) au centre de la tranche.

La figure III.27 présente l'évolution de la densité relative en fonction de la hauteur pour les différents niveaux de compaction.

Les résultats obtenus montrent que la densité relative décroît du haut vers le bas du compact. Ceci s'explique par le fait que plus on s'éloigne du poinçon supérieur plus la transmission de force se réduit à cause du frottement de la poudre avec la matrice et du frottement interparticulaire.

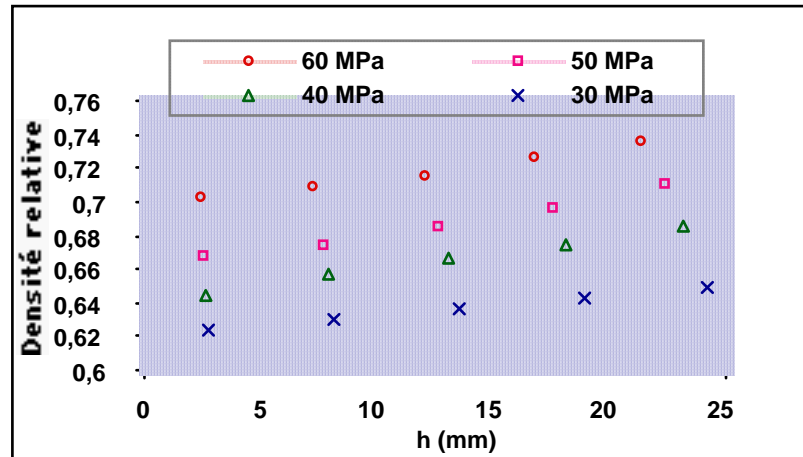


Figure III.27. Évolution de la densité relative en fonction de la hauteur du compact de cellulose microcristalline *Vivapur 102*.

La densité relative de chaque tranche dépend de l'état de pression au niveau de cette tranche. Effectivement, les tranches supérieures subissent plus de pression par rapport aux tranches inférieures et sont par conséquent plus denses.

Les mesures de la densité relative obtenues à l'aide de cette procédure expérimentale simple serviront à la comparaison avec les résultats de la simulation numérique présentés au cinquième chapitre.

V.3. Conclusion

L'étude expérimentale que nous avons menée dans ce chapitre a permis de rassembler une base d'informations notamment sur les propriétés mécaniques des poudres, le frottement poudre/matrice et la distribution axiale de densité.

L'essai de rupture diamétrale est étudié dans le cas de poudre lubrifiée (*Vivapur 102* + 1% du stéarate de magnésium). L'essai a été effectué pour des comprimés plats et bombés (*R10* et *R20*). La contrainte de rupture croît avec la densité relative. Par ailleurs, pour une densité relative donnée, on constate que la contrainte de rupture est plus grande pour les comprimés bombés (i.e. les comprimés obtenus avec un poinçon *R10* (le plus profond) sont les plus résistants, suivis par ceux obtenus par le poinçon *R20* et ensuite les comprimés plats).

L'essai de compression simple est généralement utilisé pour décrire le comportement mécanique des poudres. Nous avons utilisé cet essai pour déterminer le module d'Young et la contrainte à la rupture uniaxiale de la *Vivapur 102*. Le module d'Young et la contrainte à la rupture augmentent en fonction de la densité relative.

Le module d'Young a également été déterminé par flexion trois points. Le module d'Young obtenu par flexion trois points est supérieur à celui obtenu par compression simple. Ceci est dû probablement au caractère poreux des compacts. Il vaut mieux utiliser un module d'Young obtenu par compression simple dans le cas de la simulation de la compression en matrice, pour rester dans le même type de géométrie.

Nous avons estimé la cohésion et l'angle de frottement interne de la *Vivapur 102* selon le modèle de Mohr Coulomb à l'aide d'une cellule annulaire de cisaillement. Cet essai nous a permis d'avoir un ordre de grandeur de la cohésion et de l'angle de frottement interne.

Une méthode indirecte de mesure a été utilisée pour estimer le coefficient de Poisson. Cette démarche est basée sur les pentes de décharge et des relations d'élasticité.

Le frottement poudre/matrice a été estimé pour trois poudres avec trois états de lubrification. Le coefficient de frottement diminue dans un premier temps, pour se stabiliser ou augmenter dans un deuxième temps. On constate également que la lubrification réduit le coefficient de frottement.

Nous avons utilisé une procédure expérimentale simple pour mesurer la distribution axiale de densité dans des comprimés de cellulose microcristalline *Vivapur 102*. Les résultats obtenus montrent que la densité relative décroît du haut vers le bas du compact. Ces mesures de la densité relative serviront à la comparaison avec les résultats de la simulation numérique.

Ces données expérimentales vont également être utilisées pour ajuster les paramètres du modèle retenu pour réaliser la simulation numérique de la compression de la poudre *Vivapur 102*.

***CHAPITRE IV : Modélisation du comportement
mécanique des poudres en compression***

Sommaire

Introduction	105
IV.1. L'approche "milieu continu"	106
IV.2. Modélisation du problème de la compression	106
2.1. Équilibre quasi-statique	106
2.2. Loi de comportement de Drucker-Prager/Cap	108
2.2.1 Surface de charge	109
2.2.2 Critère d'écoulement	110
2.3. Conditions aux limites (Cas de la compression en matrice)	110
2.4. Conditions de contact et de frottement avec l'outillage (poinçons et matrice)	111
2.4.1 Condition du contact	111
2.4.2 Condition du frottement	112
IV.3. Formulation variationnelle et approximation par éléments finis	113
3.1. Formulation variationnelle du problème	113
3.2. Approximation par éléments finis	113
IV.4. Méthodologies d'identification des paramètres du modèle de comportement	114
4.1. Identification de la cohésion d et de l'angle de frottement interne β	115
4.1.1 Cas de paramètres d , β et ν constants	115
4.1.2 Cas de paramètres d et β variables	117
4.2. Identification de l'excentricité R et de la fonction de durcissement P_b	121
IV.5. Conclusion	123

Introduction

Comme nous l'avons présenté dans le premier chapitre, les techniques communément utilisées pour analyser le comportement mécanique de poudres pharmaceutiques sont basées sur les équations de Heckel [15,16] et de Kawakita [27] pour l'étude de la compressibilité et l'équation de dureté pour l'étude de la compactabilité [30]. De plus, des indices caractérisant le caractère élastique ou plastique d'une poudre sont estimés à partir des variations dimensionnelles du compact durant le cycle de compression. Ces indices sont souvent utilisés pour définir des critères de clivage de compact [9,12]. Cependant, peu d'informations sont obtenues sur l'hétérogénéité des distributions de densité, de déformations ou de contraintes durant le processus de compression. Plusieurs travaux [19,20,21,35,72,78] montrent le caractère hétérogène de la répartition de densité dans le compact. Dans ce sens, les outils de modélisations développés pour les milieux continus compressibles associés à la méthode des éléments finis, présentent un cadre thermodynamiquement cohérent et numériquement bien étudié. L'avantage de cette approche est qu'elle permet de rendre compte du comportement mécanique de la poudre en tant que milieu poreux, de prendre en compte le chargement et l'outillage qui met en forme la poudre à travers les conditions de contact et de frottement.

Dans un premier paragraphe, on introduira la loi de comportement choisie pour la description de la compression de poudres. Ensuite, nous définissons les conditions aux limites, les conditions de contact entre le lit de poudre et l'outillage ainsi que la loi de frottement utilisée.

Dans un deuxième paragraphe, on définit le cadre mathématique pour la formulation variationnelle du problème de la compression. En particulier, comment prendre en compte les conditions de contact et de frottement dans la formulation variationnelle ainsi que la résolution par éléments finis.

Enfin, nous présentons dans le dernier paragraphe les méthodologies d'identification des paramètres du modèle de comportement.

IV.1. L'approche "milieu continu"

Dans l'approche continue, le lit de poudre est considéré à l'échelle macroscopique comme un milieu continu fortement compressible. Les caractéristiques de ce milieu sont décrites par des propriétés mécaniques correspondant à un comportement moyen. On ne fait pas référence à des grandeurs de la particule comme la taille ou la forme. L'avantage de cette approche est qu'elle permet de prendre en compte la géométrie, le chargement complexe de la mise en forme, les interactions de contact entre le comprimé et l'outillage, ainsi que le comportement mécanique de la poudre.

IV.2. Modélisation du problème de la compression

2.1. Équilibre quasi-statique

Plusieurs modèles décrivant le comportement mécanique en compression de poudres ont été développés [29,37,63]. La plupart d'entre eux, basés sur la théorie de l'élastoplasticité, ont relativement les mêmes formulations, mais différents par leurs surfaces de charge et leurs critères d'écoulement. Compte tenu du fait que les poudres présentent une variation volumique (enchevêtrement par exemple) sous l'effet de l'application de contrainte déviatoire (ce n'est pas le cas des métaux par exemple), les critères d'écoulement sont adaptés pour prendre en compte ce caractère spécifique (plasticité non-standard ou non-associée).

Dans ce travail, nous nous intéresserons à l'utilisation du modèle de Drucker-Prager/Cap [66-69] (qui sera décrit dans le paragraphe suivant). Le choix de ce modèle est essentiellement motivé par :

- La prise en compte de la cohésion et l'angle de frottement interne de la poudre,
- La prise en compte de l'enchevêtrement éventuel de poudres,
- L'intégration dans sa fonction de charge du critère de rupture de Drucker-Prager pour les poudres cohésives.

Ce modèle :

- possède un certain degré de facilité pour l'identification,
- est disponible dans le code d'éléments finis *Abaqus/Standard* (ce qui n'est pas négligeable compte tenu de l'effort de programmation des modules d'éléments finis).

Le comportement de poudres en compression est souvent dépendant de la vitesse de chargement et les mécanismes mis en jeu ne sont pas de même nature. Cela a été montré à

travers les essais réalisés à différentes vitesses de compression (*Chap. II. Parag. 2.5*).

Dans ce travail de modélisation, nous avons choisi de s'intéresser au comportement quasi-statique de poudres pharmaceutiques durant le cycle de compression. Le but étant de tester les capacités du modèle à rendre compte du comportement du compact en termes de distribution de densité, de résistance mécanique ou à terme de critères de clivage lors de la relaxation des contraintes.

Le chargement considéré est quasi-statique. Dans ce cas, les forces appliquées évoluent suffisamment lentement de manière à considérer les effets dynamiques négligeables. Le paramètre "temps" considéré est un paramètre de chargement. En compression en matrice, le lit de poudre est considéré en équilibre à chaque niveau de chargement. Le comportement mécanique de la poudre en compression est modélisé par une suite d'états d'équilibre et un état initial donné (figure IV.1). Pour chaque incrément de charge Δf correspond un incrément de déformation $\Delta \varepsilon$, de contraintes $\Delta \sigma$, et de densité $\Delta \rho$ solution de système d'équations non linéaires.

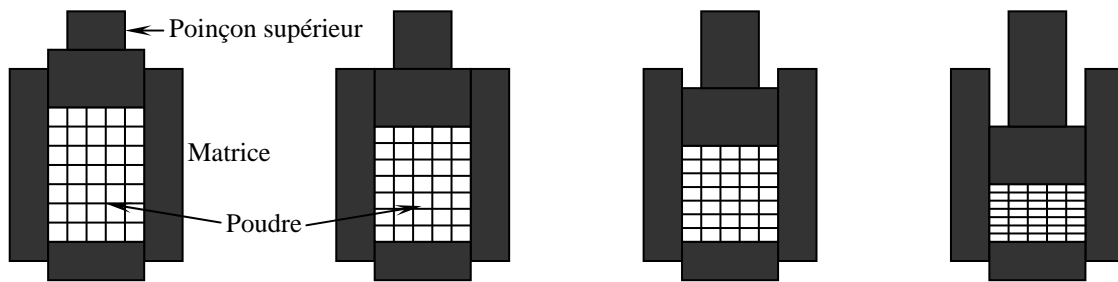


Figure IV.1. Suite d'états d'équilibre.

Dans le concept des modèles de type élastoplastique, l'incrément de déformation totale $\Delta \varepsilon = (\Delta \varepsilon_{ij})$ se décompose en un incrément de déformation élastique $\Delta \varepsilon^{el}$ et un incrément de déformation irréversible $\Delta \varepsilon^{ir}$ [19,20] :

$$\Delta \varepsilon = \Delta \varepsilon^{el} + \Delta \varepsilon^{ir} \quad (IV-1)$$

Le comportement élastique étant supposé linéaire et dépendant de l'état de densité actuelle du milieu (discrétisation explicite des propriétés mécaniques) :

$$\Delta \sigma_{ij} = D_{ijkl}^{el}(\rho) \Delta \varepsilon_{kl}^{el} \quad (IV-2)$$

où D_{ijkl}^{el} est le tenseur élastique défini par :

$$D_{ijkl}^{el} = \frac{E(\rho)}{1 + \nu(\rho)} \left[\frac{1}{2} (\delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk}) + \frac{\nu(\rho)}{1 - 2\nu(\rho)} \delta_{ij} \delta_{kl} \right]$$

Le lit de poudre occupe un domaine Ω de frontière S . L'équilibre incrémental s'écrit :

$$\frac{\partial \Delta \sigma_{ij}}{\partial x_j} + \Delta f_i = 0 \quad \text{sur } \Omega \quad (\text{IV-3})$$

où $\Delta \sigma = (\Delta \sigma_{ij})$ est l'incrément du tenseur des contraintes de Cauchy et Δf_i est l'incrément du vecteur de forces volumiques (gravité).

Comme la déformation d'un lit de poudre peut atteindre 80%, on se placera dans le cadre des grandes déformations. L'incrément de déformation ($\Delta \varepsilon_{ij}$) est alors relié aux incréments de déplacements (Δu_i) par [76] :

$$\Delta \varepsilon_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial \Delta u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial \Delta u_j}{\partial x_i} + \frac{\partial \Delta u_k}{\partial x_i} \frac{\partial \Delta u_k}{\partial x_j} \right) \quad (\text{IV-4})$$

La non-linéarité du comportement de la compression réside dans l'incrément de déformation irréversible $\Delta \varepsilon^{ir}$. Cet incrément est décrit d'une part par la fonction de charge qui distingue le comportement élastique du comportement irréversible et d'autre part, par le critère d'écoulement qui donne la direction et le module de $\Delta \varepsilon^{ir}$.

2.2. Loi de comportement de Drucker-Prager/Cap

Le modèle de Drucker-Prager/Cap a été décrit dans plusieurs travaux [19,20,35,72]. Ce modèle est fréquemment utilisé pour décrire le comportement en compression de poudres céramiques [19,42,43], métalliques [35] et récemment en compression de poudres pharmaceutiques [20,21]. Contrairement aux métaux, le comportement de poudre est sensible aux effets combinés de la pression hydrostatique p et la contrainte équivalente q . Le critère de charge de Drucker-Prager/Cap est une fonction de ces deux invariants de l'état de contrainte.

Rappelons qu'un tenseur de contrainte σ se décompose comme suit :

$$\sigma = \underbrace{pI}_{\text{partie sphérique}} + \underbrace{s}_{\text{partie déviatorique}}$$

où $p = \frac{1}{3} \text{tr}(\sigma)$ est la pression hydrostatique et s est le déviateur. On note :

$$q = \sqrt{3J_2}$$

la contrainte équivalente de Von Mises, où $J_2 = \frac{1}{2} \text{tr}(s : s)$ est le module du déviateur s .

Le critère de charge F est une fonction convexe de p et de q qui vérifie $F(p,q) \leq 0$. Son enveloppe ($F=0$) est la surface de charge.

2.2.1 Surface de charge

La surface de charge F du modèle de Drucker-Prager/Cap se compose de trois surfaces (figure IV.2). La surface de rupture F_s , la surface de Cap F_c et une troisième surface de transition F_t est introduite de manière à assurer une régularité de raccordement entre les deux surfaces F_s et F_t .

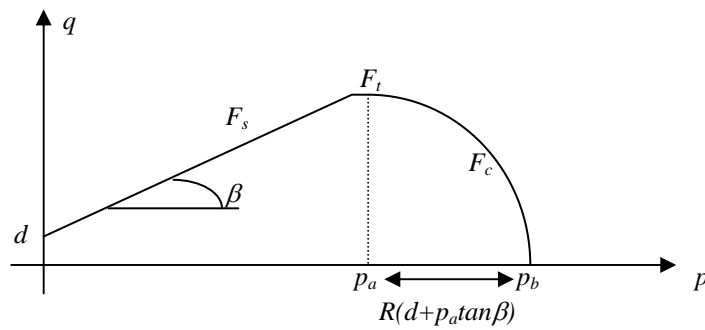


Figure IV.2. Le modèle de Drucker Prager/Cap présenté dans le plan (p, q) .

La surface de rupture F_s de Drucker-Prager a pour équation :

$$F_s = q - p \tan \beta - d = 0$$

où d et β sont respectivement la cohésion et l'angle de frottement interne de la poudre. Cette surface de charge caractérise l'état de contrainte critique pour la rupture du compact de cohésion d et d'angle de frottement β .

La surface de charge du Cap est décrite par l'équation d'une ellipse :

$$F_c = \sqrt{(p - p_a)^2 + \left(\frac{Rq}{(1 + \eta - \eta / \cos \beta)} \right)^2} - R(d + p_a \tan \beta) = 0 \quad (\text{IV-5})$$

où R est l'excentricité et p_a est le centre de l'ellipse (voir figure IV.2). La pression p_a est déterminée par :

$$p_a = \frac{p_b - Rd}{1 + R \tan \beta} \quad (\text{IV-6})$$

où p_b est la fonction de durcissement.

L'équation de la surface de transition s'écrit :

$$F_t = \sqrt{(p - p_a)^2 + (q - (1 - \eta / \cos \beta)(d + p_a \tan \beta))^2} - \eta(d + p_a \tan \beta) = 0 \quad (\text{IV-7})$$

où $\eta = 0,03$ est un coefficient de raccordement régulier des surfaces F_c et F_s .

2.2.2 Critère d'écoulement

L'évolution de la déformation irréversible qui résulte des mécanismes de la densification des particules est définie par des potentiels d'écoulement. Pour la surface de rupture et de transition, l'écoulement est non associé et le potentiel d'écoulement est donné par [19,20,72] :

$$G_s = \sqrt{\left((p_a - p) \tan \beta \right)^2 + \left(\frac{q}{1 + \eta - \eta / \cos \beta} \right)^2} \quad (\text{IV-8})$$

L'incrément de déformation irréversible est défini par (voir figure IV.3) :

$$\Delta \varepsilon^{ir} = \Delta \lambda \left(\frac{\partial G_s}{\partial p}(p, q), \frac{\partial G_s}{\partial q}(p, q) \right) \quad \text{si } F_s(p, q) = 0 \text{ ou } F_t(p, q) = 0$$

où le multiplicateur plastique $\Delta \lambda$ est un scalaire positif.

Pour la surface de charges du Cap, l'écoulement est associé et le potentiel G_c est égal à F_c :

$$G_c = F_c.$$

L'incrément de déformation irréversible est défini par :

$$\Delta \varepsilon^{ir} = \Delta \lambda \left(\frac{\partial F_c}{\partial p}(p, q), \frac{\partial F_c}{\partial q}(p, q) \right) \quad \text{si } F_c(p, q) = 0$$

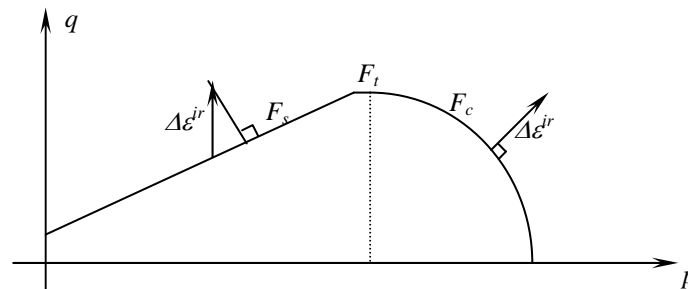


Figure IV.3. Incrément de déformation irréversible sur la surface de charge associée F_c et non associées F_s et F_t .

En compression en matrice, la déformation volumique augmente avec la charge et la position du Cap progresse alors. Cette progression est décrite par la fonction de durcissement p_b qui est fonction de la variation volumique.

Pour tenir compte des outils de mise en forme et des conditions de contact entre le lit de poudre, la matrice et les poinçons, les conditions aux limites doivent être précisées.

2.3. Conditions aux limites (Cas de la compression en matrice)

Pour simplifier l'écriture, nous définissons les conditions du contact et du frottement en omettant le symbole Δ .

Dans nos simulations numériques, nous analyserons les résultats du modèle dans la géométrie cylindrique. Nous supposons donc que la compression de poudres se fait dans une matrice cylindrique à l'aide d'un poinçon supérieur mobile et d'un poinçon inférieur fixe. Par ailleurs, pour des raisons de symétrie axiale nous travaillons dans le plan (r,z) avec $r \geq 0$.

Le lit de poudre occupe le domaine Ω de frontière $S = \Sigma_s \cup \Sigma_h \cup \Sigma_b \cup \Sigma_m$, où ces symboles sont indiqués dans la figure IV.4.

Le chargement est imposé par un déplacement u_d sur le poinçon supérieur Σ_h . Le poinçon inférieur et la matrice sont maintenus fixes. La condition de symétrie axiale se traduit par $(u_r = 0)$ sur l'axe Σ_s .

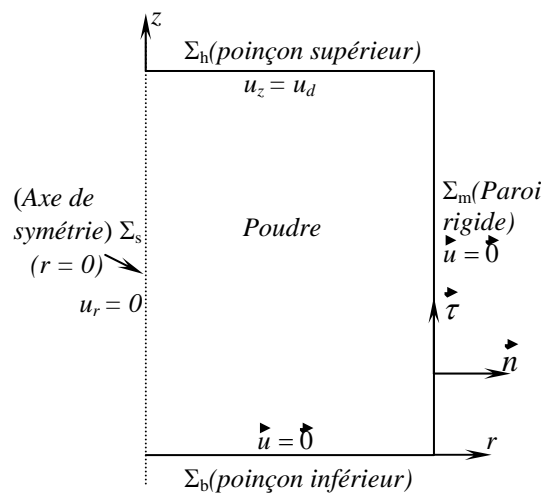


Figure IV.4. Conditions aux limites pendant la compression en matrice.

Les conditions aux limites (C.L.) s'écrivent alors :

$$(C.L.) \quad \begin{cases} u_z = u_d & \text{sur } \Sigma_h \\ u_r = 0 & \text{sur } \Sigma_s \\ \vec{u} = \vec{0} & \text{sur } \Sigma_m \text{ et } \Sigma_b \end{cases}$$

2.4. Conditions de contact et de frottement avec l'outillage (poinçons et matrice)

2.4.1 Condition du contact

Lors de la compaction, la poudre est en contact avec la matrice et avec les poinçons. Nous supposons que la matrice et les poinçons sont rigides. La condition de contact (C.C.) s'écrit alors [83,84,85] :

$$u_n = \vec{u} \cdot \vec{n} \leq 0 \quad (C.C.)$$

où \vec{n} est la normale extérieure sortante à la surface de contact et \vec{u} est le déplacement aux points du lit de poudre en contact avec l'outil.

2.4.2 Condition du frottement

Comme il a été montré expérimentalement, il existe un frottement au niveau des surfaces de contact. Nous considérons un frottement de type Coulomb avec un coefficient constant.

Soient respectivement σ_n et σ_T les composantes normale et tangentielle à la surface de contact du vecteur contrainte $\vec{\sigma}\vec{n}$ définis comme suit :

$$\sigma_n = \vec{\sigma}\vec{n}\cdot\vec{n}$$

$$\text{et } \vec{\sigma}_T = \vec{\sigma}\vec{n} - \sigma_n \vec{n}$$

Soit u_T le déplacement tangentiel défini par :

$$\vec{u}_T = \vec{u} - u_n \vec{n}$$

Nous avons les conditions suivantes (C.F.) le long de la surface de contact $\Gamma_c = \Sigma_m \cup \Sigma_h \cup \Sigma_b$:

$$(C.F.) \left\{ \begin{array}{l} \text{Si } u_n < 0 \Rightarrow \sigma_n = |\vec{\sigma}_T| = 0 \text{ sur } \Gamma_c \\ \text{Si } u_n = 0 \Rightarrow \sigma_n < 0 (\text{pression}) \text{ et } \left\{ \begin{array}{l} \text{Si } |\vec{\sigma}_T| < \mu |\sigma_n| \Rightarrow \vec{u}_T = \vec{0} \\ \text{Si } |\vec{\sigma}_T| = \mu |\sigma_n| \Rightarrow \vec{u}_T = -\kappa \vec{\sigma}_T \text{ et } \kappa \geq 0 \end{array} \right. \end{array} \right.$$

Pour un incrément de charge Δf donné, les incréments $\Delta\sigma$, $\Delta\varepsilon$ et $\Delta\varepsilon^{ir}$ sont solution du système d'équations (S) ci-dessous. Nous allons omettre le symbole Δ pour simplifier l'écriture :

$$(S) \left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} = 0 \quad \text{sur } \Omega \\ \varepsilon_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} + \frac{\partial u_k}{\partial x_i} \frac{\partial u_k}{\partial x_j} \right) \\ \varepsilon_{ij} = \varepsilon_{ij}^{el} + \varepsilon_{ij}^{ir} \\ \sigma_{ij} = D_{ijkl} \varepsilon_{kl}^{el} \\ \varepsilon^{ir} = \lambda \left(\frac{\partial G}{\partial p}(p, q), \frac{\partial G}{\partial q}(p, q) \right), \text{ avec } G = F_c \text{ si } F_c(p, q) = 0 \\ \quad \quad \quad G = G_s \text{ si } F_s(p, q) = 0 \text{ ou } G = G_s \text{ si } F_t(p, q) = 0 \\ + (C.L) \quad + (C.C) \quad + (C.F) \end{array} \right.$$

La forme "forte" du système d'équations (S) n'est pas adéquate à la résolution du système. On lui préfère la formulation faible, appelée aussi formulation variationnelle [37,64].

IV.3. Formulation variationnelle et approximation par éléments finis

3.1. Formulation variationnelle du problème

La formulation variationnelle définit un cadre de travail prenant en compte les conditions aux limites et les conditions de contact et de frottement. Par ailleurs, l'approximation par éléments finis est adaptée à la formulation variationnelle [76,77,82].

Soit U_{ad} l'espace des déplacements cinématiquement admissibles défini par :

$$U_{ad} = \{v \in C^1(\Omega) / v \text{ vérifie les conditions (C.L)}\}$$

avec $C^1(\Omega)$ est l'ensemble des fonctions dérivables et à dérivée continue.

K_{ad} est le convexe des fonctions cinématiquement admissibles défini par :

$$K_{ad} = \{v \in U_{ad} / v_n \leq 0\}$$

Soit

$$a(u, v) = \int_{\Omega} \sigma(u) \cdot \varepsilon(v) dV \quad u, v \in U_{ad}$$

le travail des contraintes σ dans la déformation ε .

Soit

$$j(u, v) = \int_{\Gamma_c} \mu |\sigma_n(u)| |v_T| ds$$

le travail des forces de frottement, où σ_n ($\sigma_{ij}n_i n_j$) est la composante normale de σ à Γ_c et v_T est la composante tangentielle de v à Γ_c .

La formulation variationnelle du problème (S) s'écrit alors :

$$(P) \begin{cases} \text{Trouver } u \in K_{ad} \text{ tel que} \\ a(u, v - u) + j(u, v) - j(u, u) \geq 0, \quad \forall v \in K_{ad} \end{cases}$$

Compte tenu du fait que l'opérateur $a(\dots)$ est symétrique, le problème (P) est un problème de minimisation avec contrainte (la contrainte est dans la définition du convexe K_{ad}). Les méthodes naturellement adaptées à la résolution de (P) sont le Lagrangien ou la méthode de Pénalisation. Les références [85,86] donnent des détails mathématiques sur ces méthodes.

Comme nous avons utilisé le logiciel *Abaqus* pour les simulations numériques de la compression, le choix de l'une ou l'autre de ces méthodes se fait à l'aide d'un mot clé faisant référence à la technique utilisée.

3.2. Approximation par éléments finis

Une fois la contrainte ($v_n \leq 0$ dans K_{ad}) est prise en compte à l'aide du Lagrangien ou par la méthode de pénalisation, on se retrouve avec un problème de minimisation sans contraintes. Ce problème est résolu de manière classique par éléments finis. Les éléments finis choisis pour la simulation numérique sont des éléments axisymétriques à 4 nœuds avec une

interpolation linéaire. Dans le langage d'*Abaqus*, ces éléments portent la référence "*CAX4R*". Il en résulte de l'approximation par éléments finis un système discret non linéaire dont les inconnues sont les déplacements nodaux. Le calcul des grandeurs déformation irréversible et contrainte se fait élément par élément à l'aide de la loi de comportement comme dans un calcul élastoplastique classique.

Par ailleurs, la densité se déduit sur chaque élément par l'expression :

$$\rho = \rho_0 \exp(\varepsilon_{vol}^{ir}) \quad (IV-9)$$

où ε_{vol}^{ir} est la déformation volumique irréversible.

IV.4. Méthodologies d'identification des paramètres du modèle de comportement

La loi constitutive [20,42] décrivant le comportement d'un lit de poudre en compression fait intervenir un certain nombre de propriétés mécaniques propres à la poudre. Ces propriétés caractérisant la poudre sont à identifier par des essais. Ces paramètres correspondent à la cohésion d de la poudre, à l'angle de frottement β , au module de rigidité E et au coefficient de poisson ν , à l'évolution de la densification de la poudre p_b ainsi que la courbure du Cap reliant le cisaillement à la pression hydrostatique en phase de compression.

Pour identifier le modèle sur une poudre donnée, nous avons considéré deux méthodologies :

1) La poudre est caractérisée par des propriétés mécaniques moyennes (d , β , ν) constantes. Par contre, la propriété de densification p_b évolue avec la variation volumique en compression. Cette approche est basée sur les mesures du cycle de compression en matrice (charge/décharge) et sur la définition du chemin de chargement dans l'espace des contraintes (p, q).

2) La poudre est caractérisée par des propriétés mécaniques (d , β , E) qui évoluent avec la densité relative de la poudre, un coefficient de Poisson constant et une évolution de la fonction de durcissement avec la variation volumique en compression. Cette approche utilise, en plus de l'approche précédente, des mesures supplémentaires à l'aide de la cellule de cisaillement et des tests de rupture diamétrale et uniaxiale.

Rappelons que notre modélisation s'inscrit dans le cadre des milieux continus compressibles.

Pour un compact cylindrique et homogène (état d'un lit de poudre en compression dans une matrice cylindrique bien lubrifiée par exemple), l'état de contrainte s'écrit :

$$\sigma = \begin{pmatrix} \sigma_r & & \\ & \sigma_r & \\ & & \sigma_z \end{pmatrix}$$

où σ_z est la contrainte axiale et σ_r est la contrainte radiale qui est égale à la contrainte transversale σ_θ . Nous définissons les deux invariants de ce tenseur de contraintes qui sont la pression hydrostatique p et la contrainte déviatoire q :

$$p = \frac{(\sigma_z + 2\sigma_r)}{3} \quad (IV-10)$$

$$q = |\sigma_z - \sigma_r|$$

Les deux méthodologies d'identification de la loi constitutive sont présentées ci-dessous dans le cas de la poudre de la cellulose microcristalline *Vivapur 102*. Ces données sont nécessaires à la simulation numérique du chapitre V.

4.1. Identification de la cohésion d et de l'angle de frottement interne β

4.1.1 Cas de paramètres d , β et ν constants

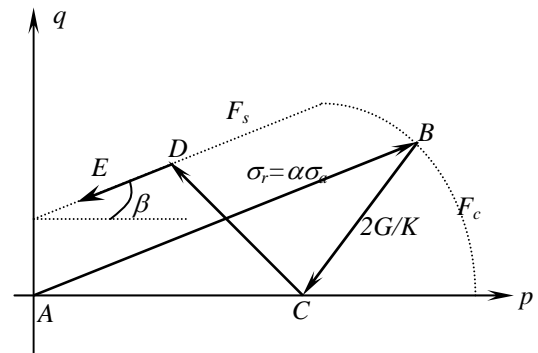
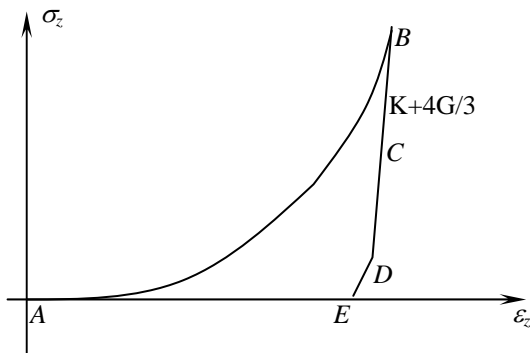


Figure IV.5. Courbe de compression en matrice. Figure IV.6. Chemin des contraintes dans (p, q) pour une compression uniaxiale en matrice.

Sur la figure IV.5 qui représente le cycle de compression typique des poudres pharmaceutiques, le chargement est décrit par la courbe AB et la décharge par BE . Durant la phase de compression, nous avons :

$$\sigma_r = \alpha \sigma_z$$

avec α une constante. Par ailleurs, dans la phase de décharge, on distingue (voir figure IV.5) une phase de rebond élastique linéaire décrite par la courbe BD et une expansion non-linéaire décrite par DE . Dans l'objectif de simplifier la schématisation du comportement de la poudre, les portions BD et DE seront assimilées à des segments rectilignes. Dans l'espace des contraintes (p, q) , le trajet des contraintes en compression en matrice (cas α constant)

correspond au chemin $ABCDE$ de la figure IV.6. Lors de la formulation de modèles à Cap DiMaggio [66] a défini le trajet de chargement dans le cas le plus générale de la compression en matrice, en particulier quand α dépend de l'état de densité. Par ailleurs, pour modéliser le comportement de poudres céramiques en compression en matrice, Aydin [19] a proposé un trajet de chargement similaire à celui de la figure IV.6. Les deux points D et E définissent (par construction) la droite de rupture F_s . De plus, l'auteur a supposé le trajet de chargement AB parallèle à la surface de rupture F_s ce qui permet de définir l'angle de frottement interne en fonction de α . Cette hypothèse que nous admettons dans notre étude n'a pas été justifiée. Pour la poudre étudiée, $\alpha=0,4$. Il s'en suit :

$$\tan \beta = \frac{q(B)}{p(B)} = \frac{3(1-\alpha)}{1+2\alpha}$$

Ce qui donne un angle de frottement interne de 45° .

Le point C de la figure IV.6 est caractérisé par :

$$q(C)=0$$

La pression $p(C)$ s'exprime alors par :

$$p(C) = \sigma_z(C) = \sigma_r(C) = p(B) - q(B) / \frac{2G}{K}$$

Quant à la cohésion d , elle est estimée par l'équation :

$$d = q(D) - p(D) \tan \beta \quad (\text{IV-14})$$

Pour le calcul de la cohésion, nous avons donc besoin de déterminer la contrainte radiale au point D . Pour cela, on suppose qu'il existe une relation linéaire entre la contrainte axiale et la contrainte radiale pendant la décharge. Cette hypothèse est communément admise pour la compression en matrice [20] :

$$\sigma_z = a\sigma_r + b$$

où a et b deux constantes sont reliées aux mesures de la compression par :

$$a = \frac{[\sigma_z(B) - \sigma_z(C)]}{[\sigma_r(B) - \sigma_r(C)]}$$

$$b = \sigma_r(C)(1 - a)$$

Le calcul de a et b passe par l'estimation de $p(C) = p(B) - q(B)/(2G/K)$ et donc du module de compressibilité K et du module du cisaillement G . Ces deux propriétés sont reliées aux données de la compression en matrice (pentes BC sur Figures IV.5 et IV.6) par :

$$K + \frac{4}{3}G = \frac{\sigma_z(B) - \sigma_z(D)}{\varepsilon_z(B) - \varepsilon_z(D)}$$

$$\frac{2G}{K} = \frac{q(B)}{p(B) - p(C)}$$

avec

$$\nu = \frac{3K - 2G}{6K + 2G}$$

Ainsi, à partir des équations précédentes, l'estimation de $p(C)$ et par conséquent des constantes a et b passe par la donnée d'un coefficient de Poisson ν . Compte tenu de l'incohérence des résultats expérimentaux présentés au chapitre III sur ν , nous faisons le choix arbitraire de $\nu=0.29$. Néanmoins, cette valeur est inspirée de la relation obtenue par Long [6,7] :

$$\nu = \frac{\alpha}{1 + \alpha}$$

où α est le transfert axial-radial. Pour $\alpha=0,4$, le coefficient de Poisson est de 0,29.

Comme le point D (figure IV.6) est sur la droite BC , la contrainte radiale $\sigma_r(D)$ se déduit par :

$$\sigma_r(D) = (\sigma_z(D) - b) / a$$

et la cohésion d est calculée à partir de l'équation (IV-14).

Il est important de noter que le choix du point D est délicat car difficilement identifiable sur le graphe de la figure IV.5. De plus, le calcul de la cohésion d en dépend. Néanmoins, dans le tableau IV.1, plusieurs choix du point D ont été effectués et les cohésions correspondantes ont été calculées. On peut remarquer que la cohésion varie peu avec la valeur de $\sigma_z(D)$ dans la plage $0,5 - 5 MPa$. Par conséquent, nous avons fixé la valeur de $\sigma_z(D)$ à $3,5 MPa$. Il en résulte une cohésion de l'ordre de $0,65 MPa$.

Tableau IV.1. Différents choix du point D et cohésions correspondantes

$\sigma_z(D)$ (MPa)	0,5	2	3,5	5
d (MPa)	0,697	0,671	0,650	0,633

4.1.2 Cas de paramètres d et β variables

Nous avons utilisé deux approches expérimentales pour déterminer l'évolution de la cohésion et de l'angle de frottement interne en fonction de la densité. La première approche est basée sur le critère de Mohr (essais en cellule de cisaillement annulaire). Les résultats expérimentaux de l'approche sont présentés dans le troisième chapitre (parag. 1.5. p. 88).

La deuxième procédure expérimentale consiste à utiliser les résultats de la rupture uniaxiale et diamétrale pour déterminer les paramètres de la droite de rupture. Les deux essais de rupture, uniaxiale et diamétrale, ont été effectués sur des compacts de *Vivapur 102* préformés dans une matrice cylindrique de section d'un cm^2 . Nous présentons ici les résultats

de l'essai de rupture diamétrale obtenus dans les mêmes conditions de l'essai de rupture uniaxiale présenté dans le troisième chapitre (même matrice, masse, forme, vitesse de compression et lubrification).

La figure IV.7 représente l'évolution de la contrainte de rupture diamétrale de la cellulose microcristalline *Vivapur 102* en fonction de la densité relative.

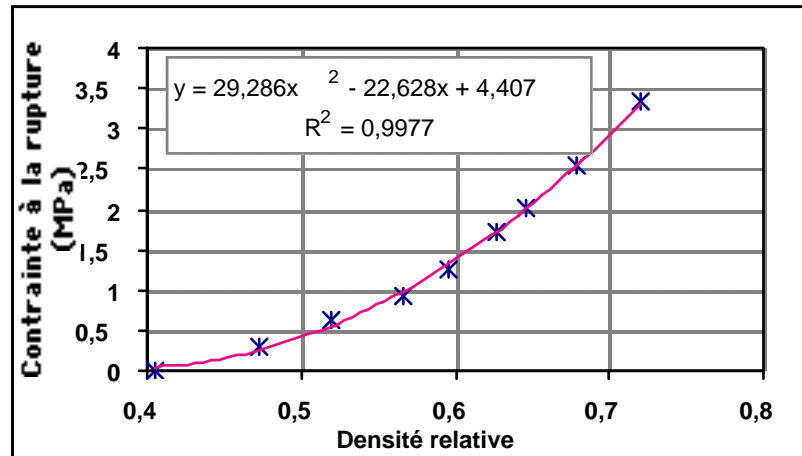


Figure IV.7. Contrainte de rupture diamétrale de la *Vivapur 102* en fonction de la densité relative.

La contrainte à la rupture diamétrale augmente en fonction de la densité relative et les valeurs obtenues peuvent être lissées à l'aide de la fonction polynomiale de second degré :

$$\sigma_D = A\rho^2 - B\rho + C$$

avec $A=29,286$, $B=22,628$ et $C=4,407$.

La figure IV.8 représente l'évolution des deux contraintes à la rupture diamétrale et uniaxiale. Pour un même état de densité, on constate que la contrainte à la rupture uniaxiale augmente beaucoup plus vite que la contrainte à la rupture diamétrale.

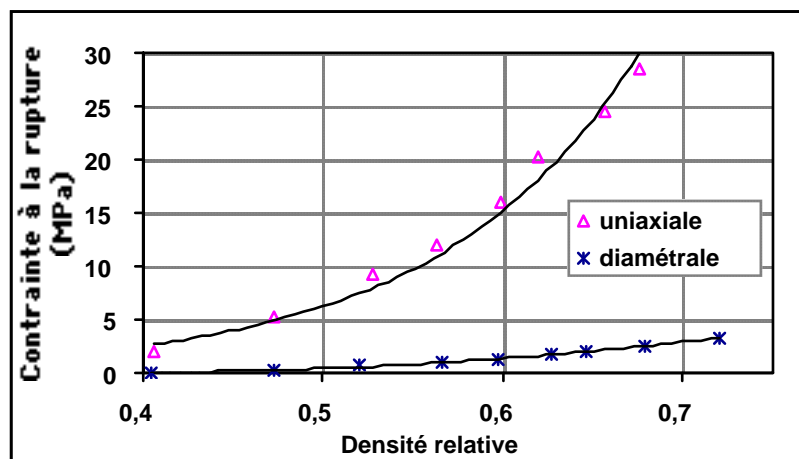


Figure IV.8. Évolution des contraintes à la rupture uniaxiale et diamétrale des compacts de *Vivapur 102* en fonction de la densité relative.

Pour utiliser ces résultats avec le modèle de Drucker-Prager/Cap, nous allons les représenter dans le plan des contraintes hydrostatique et déviatoire (p,q) . En utilisant les expressions (IV-1) et (IV-2), les résultats des essais de rupture s'expriment dans le plan (p,q) comme suit :

Pour l'essai de compression simple :

$$p = \frac{\sigma_{Ru}}{3}$$

$$q = \sigma_{Ru}$$

où σ_{Ru} est la contrainte de rupture uniaxiale.

Pour l'essai de compression diamétrale [70] :

$$p = \frac{2\sigma_{rd}}{3}$$

$$q = \sqrt{13}\sigma_{rd}$$

où σ_{rd} est la contrainte de rupture diamétrale.

Les contraintes à la rupture diamétrale et simple se situent sur des droites dont les pentes avec l'axe des contraintes hydrostatiques p sont respectivement de $\frac{3\sqrt{13}}{2}$ et 3.

La figure IV.9 présente un schéma situant les essais de compression simple, diamétrale et en matrice dans le modèle de Drucker-Prager/Cap [35].

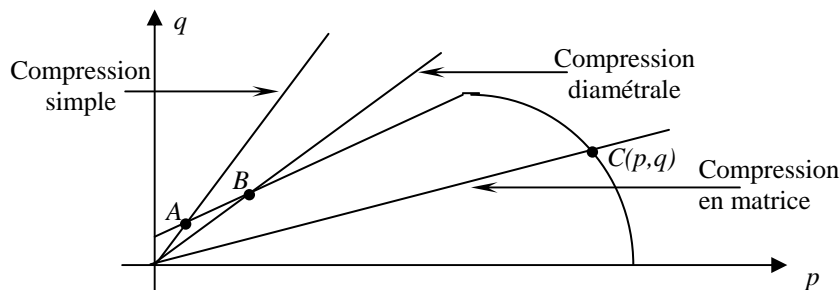


Figure IV.9. Représentation des essais expérimentaux dans le modèle de Drucker-Prager/Cap.

On constate sur la figure IV.9 que les deux paramètres d et β peuvent être complètement identifiés à partir des essais de rupture uniaxiale et diamétrale. En effet, on peut déterminer les deux points A et B correspondant respectivement aux contraintes à la rupture uniaxiale et diamétrale. Pour chaque état de densité, on a une droite de rupture unique qui passe par les deux points A et B . L'angle de frottement interne est déduit de la pente de la droite et la cohésion correspond à l'intersection de cette droite avec l'axe des contraintes déviatoires q .

Les figures IV.10 et IV.11 représentent respectivement les évolutions de la cohésion d et de l'angle de frottement interne β .

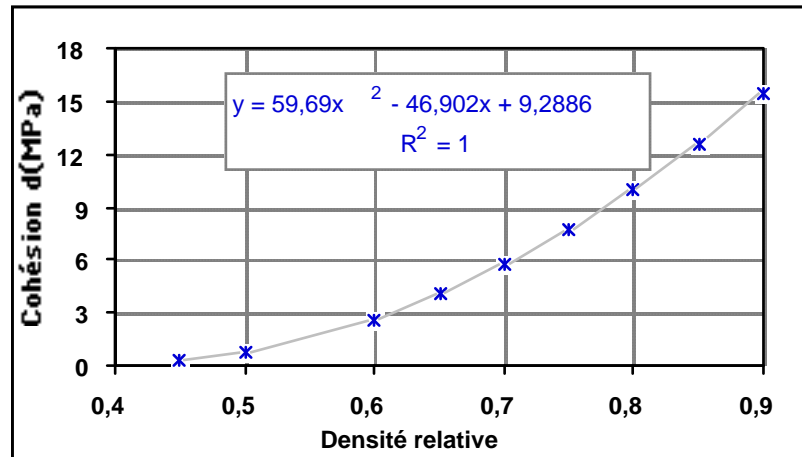


Figure IV.10. Évolution de la cohésion d en fonction de la densité relative de la cellulose microcristalline *Vivapur 102*.

On observe une évolution croissante de la cohésion d en fonction de la densité relative des compacts que l'on peut lisser en utilisant un polynôme de second degré :

$$d = A\rho_r^2 - B\rho_r + C$$

avec $A = 59,69 \text{ MPa}$, $B = 46,90 \text{ MPa}$ et $C = 9,29 \text{ MPa}$.

L'angle de frottement β décroît en fonction de la densité relative. Cependant, les valeurs obtenues sont largement supérieures aux mesures obtenues par la cellule de cisaillement. Les mesures par la cellule annulaire sont présentées au troisième chapitre.

En ce qui concerne les résultats de la cellule de cisaillement, les mesures sont obtenues aux faibles densités relatives ($<0,3$). Par contre, pour les résultats obtenus par rupture, les densités relatives étalées sont supérieures à $0,4$. Les comparaisons entre les deux résultats ne sont pas possibles. En effet, les conditions aux limites dans le cas de la cellule de cisaillement sont plus éloignées que dans le cas de la compression en matrice.

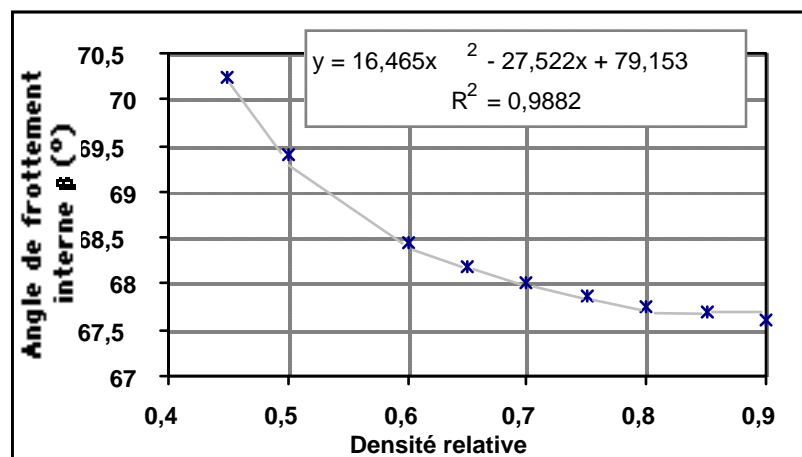


Figure IV.11. Évolution de l'angle de frottement interne en fonction de la densité relative de la cellulose microcristalline *Vivapur 102*.

Dans le cas de la cellule, les paramètres d et β de la droite de rupture de Drucker-Prager sont calculés à partir des paramètres C et ϕ du critère de Mohr-Coulomb en utilisant les relations suivantes :

$$\tan \beta = \frac{3 \tan \phi}{(3 + 4 \tan^2 \phi)^{1/2}}$$

$$d = \frac{3C}{(3 + 4 \tan^2 \phi)^{1/2}}$$

Comme nous l'avons déjà mentionné au troisième chapitre, les résultats de l'angle de frottement interne sont rares et parfois contradictoires dans la littérature. Stanley et al. [56] montrent une évolution décroissante de l'angle de frottement interne en fonction de la densité.

Récemment, Sinka et al. [21] montrent plutôt une croissance de l'angle de frottement interne et une évolution exponentielle de la cohésion. Pour étudier l'effet de l'erreur de l'identification de ces deux paramètres sur les résultats numériques, une étude de sensibilité est effectuée à la fin du chapitre V.

4.2. Identification de l'excentricité R et de la fonction de durcissement P_b

La position et la forme de la surface du Cap F_c sont déterminés par les deux paramètres R et p_b . Le paramètre R est l'excentricité de l'ellipse qui définit le Cap. Le paramètre p_b est appelé fonction de durcissement et permet de déterminer la position du Cap F_c .

Sur la figure IV.9, le point $C(p,q)$ correspond au point de la fin de compression. Ce point se trouve sur la surface F_c et vérifie l'équation suivante :

$$F_c = \sqrt{(p - p_a)^2 + \left(\frac{Rq}{(1 + \eta - \eta/\cos \beta)} \right)^2} - R(d + p_a \tan \beta) = 0$$

où le paramètre $\eta=0,03$ définit un raccordement régulier des surfaces de charge F_s et F_c . Pour simplifier les calculs, nous avons pris $(1 + \eta - \eta/\cos \beta \approx 1)$. L'équation de la surface F_c devient :

$$(p - p_a)^2 + (Rq)^2 - R^2(d + p_a \tan \beta)^2 = 0 \quad (\text{IV-15})$$

Tout d'abord, nous allons identifier les deux paramètres R et p_a . Pour cela, en plus de l'équation (IV-15), il est nécessaire d'introduire une deuxième équation qui sera déduite de la manière suivante [35].

La loi d'écoulement étant associée sur la surface du Cap F_c , le vecteur incrément de déformation irréversible $\overrightarrow{d\varepsilon}^{ir}$ est perpendiculaire à la surface F_c .

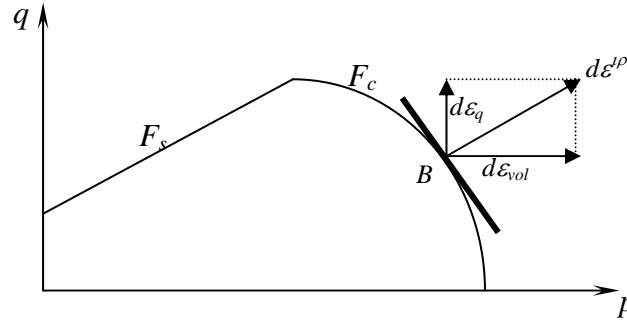


Figure IV.12. Décomposition du vecteur incrément de déformation.

Dans le plan $(\varepsilon_p, \varepsilon_q)$, on peut décomposer le vecteur incrément de déformation $\vec{d\varepsilon}^{ir}$ en une composante volumique $\vec{d\varepsilon}_p = \vec{d\varepsilon}_{vol}$ et une composante déviatoire $\vec{d\varepsilon}_q$ (figure IV.12) [35,71] :

$$\begin{aligned}\vec{d\varepsilon}_p &= \vec{d\varepsilon}_{vol} = 2\vec{d\varepsilon}_r + \vec{d\varepsilon}_z \\ \vec{d\varepsilon}_q &= \frac{2}{3}(\vec{d\varepsilon}_z - \vec{d\varepsilon}_r)\end{aligned}$$

où $\vec{d\varepsilon}_r$ est l'incrément de déformation radiale et $\vec{d\varepsilon}_z$ est l'incrément de déformation axiale.

En négligeant la déformation radiale devant la déformation axiale dans le cas d'une compression en matrice, on peut écrire :

$$\frac{\vec{d\varepsilon}_q}{\vec{d\varepsilon}_p} = \frac{2}{3} \quad (\text{IV-16})$$

L'équation (IV-16) montre que la pente de la normale à la surface du Cap au point $B(p, q)$ est égale à $2/3$.

Par conséquent, la pente de la tangente au Cap au point B est égale à $-3/2$ soit :

$$\frac{dq}{dp} = -\frac{p - p_a}{R^2 q} = -\frac{3}{2} \quad (\text{IV-17})$$

En combinant les équations (IV-15) et (IV-17), on obtient le polynôme suivant :

$$\left[\frac{2 \tan^2 \beta}{3q} \right] p_a^2 + \left[\frac{4d \tan \beta}{3q} + 1 \right] p_a + \left[\frac{2d^2}{3q} - \frac{2}{3} q - p \right] = 0 \quad (\text{IV-18})$$

où $p = \frac{(\sigma_z + 2\sigma_r)}{3}$ et $q = |\sigma_z - \sigma_r|$, avec σ_z est la contrainte axiale et σ_r est la contrainte radiale.

La résolution de l'équation (IV-18) permet de déterminer le paramètre p_a . L'excentricité R

est déduite de la relation (IV-17) et par suite la fonction de durcissement p_b est calculée de la relation (IV-6). En général, la fonction de durcissement p_b et l'excentricité R augmentent avec la densité relative. Les évolutions obtenues de p_b et de R sont présentées au chapitre V (parag. 2.1 p.125).

Il est aussi possible de déterminer les paramètres R et p_b par l'intermédiaire des mesures issues d'un dispositif de compression triaxiale utilisé généralement dans le cas de poudres métalliques [37,72].

IV.5. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons introduit la modélisation du comportement mécanique de poudre dans le cadre de la mécanique des milieux continus, ainsi que le problème aux limites et sa résolution par éléments finis. L'avantage de cette approche est qu'elle permet de prendre en compte la géométrie, le chargement complexe de la mise en forme, les interactions de contact entre la poudre et l'outillage, ainsi que le comportement mécanique de la poudre.

Le comportement des poudres en cours de densification a été schématisé par un modèle de comportement de type élastoplastique. La fonction de charge de Drucker-Prager/Cap a été retenue pour décrire le comportement de la poudre pendant la compression et la décompression. Ce modèle est déjà existant dans le code éléments finis *Abaqus*, il prend en compte le frottement entre particules, la cohésion de la poudre ainsi que la variation des propriétés mécaniques du compact en fonction de la densité. Deux méthodologies d'identification ont été proposées afin d'ajuster les paramètres du modèle.

Les résultats obtenus montrent une évolution croissante de la cohésion et une décroissance de l'angle de frottement interne en fonction de la densité relative. Les valeurs obtenues sont supérieures à celles qui ont été obtenues par la cellule de cisaillement. Cependant, il est important de noter que les conditions aux limites dans le cas de la matrice (1 cm² de section) sont différentes du cas de la cellule de cisaillement (85 cm²).

La fonction de durcissement p_b et l'excentricité R ont été identifiées à partir de l'essai de compression en matrice et de l'hypothèse de l'associativité de la loi d'écoulement sur la surface du Cap.

Suite à l'identification des paramètres du modèle, la simulation numérique constitue une suite logique dans la démarche de travail. Nous allons aborder au chapitre suivant la simulation numérique de la compression en matrice dans le cas de la poudre de cellulose microcristalline *Vivapur 102*.

CHAPITRE V : Simulation numérique

Sommaire

Introduction	129
V.1. Les caractéristiques de la poudre	130
1.1. Les propriétés élastiques	130
1.2. Les paramètres du modèle de Drucker-Prager/Cap	130
V.2. Résultats numériques	133
2.1. Compression avec poinçons plats	133
2.1.1 Cas de paramètres constants	134
1.1.2 Cas de paramètres variables	136
1.2. Compression avec poinçons concaves	139
1.2.1 Maillages et dimensions dans le cas de poinçons concaves	140
1.2.2 Résultats	141
1.3. Simulation de l'étape de décharge	145
1.3.1 Distribution de la densité relative après décharge	145
1.3.2 Contraintes de Von Mises après décharge	147
V.3. Distribution axiale de la densité	149
V.4. Étude de sensibilité	150
4.1. Sensibilité de la contrainte axiale aux paramètres du modèle (cas de la compression sans frottement)	151
4.2. Sensibilité des résultats aux paramètres E , ν et R (cas de la compression avec frottement)	153
4.2.1 Sensibilité des résultats de calcul au module d'Young E	153
4.2.2 Sensibilité des résultats de calcul au coefficient de Poisson ν	154
4.2.3 Sensibilité des résultats de calcul à l'excentricité R	155
V.5. Conclusion	156

Introduction

Dans le cadre de la compaction de poudres, la simulation numérique propose un outil permettant d'étudier les relations entre les propriétés des poudres, les paramètres du processus et les propriétés mécaniques finales du comprimé. Un des objectifs de la simulation numérique est d'aller vers l'optimisation des propriétés d'usage du compact vis-à-vis des propriétés initiales de la poudre et des conditions opératoires du processus. Ceci permet un gain de temps appréciable.

La pertinence d'une simulation numérique dépend des modèles mis en jeu et des mécanismes physiques que ces modèles prennent en compte. Cela dépend aussi des données expérimentales disponibles qui sont nécessaires pour calibrer les modèles.

Par ailleurs, le choix d'une méthode numérique adaptée pour la résolution du problème nécessite un investissement souvent consommateur du temps. Dans cette étude, nous avons choisi d'utiliser un code commercial *Abaqus* présentant les modules de base pour toute simulation numérique par éléments finis. De plus, on s'est placé dans le cadre "quasi-statique" de la compression où le temps ne correspond qu'à un paramètre de chargement et non à un temps "réel". Ainsi, l'effet de la vitesse de déformation du lit de poudre n'est pas considéré.

Dans ce chapitre, nous étudions la réponse du modèle de comportement de poudre, pour un chargement "compression - décompression" en contraintes et en déformation dans le lit de poudre.

Compte tenu du fait qu'environ 70% des comprimés pharmaceutiques sont bombés, nous sommes penchés sur l'effet de forme du poinçon sur les propriétés mécaniques du comprimé.

Les résultats des simulations numériques sont illustrés dans le cas de la poudre de cellulose

microcristalline *Vivapur 102* et sont comparés aux mesures expérimentales.

Enfin, une étude de sensibilité des résultats du modèle de comportement aux variations des propriétés des poudres est proposée.

V.1. Les caractéristiques de la poudre

Comme nous l'avons présenté dans le quatrième chapitre, le comportement de la poudre est de type élastoplastique dans lequel le comportement élastique est considéré linéaire isotrope dépendant de l'état de densité. Le comportement irréversible est représenté par le modèle de Drucker-Prager/Cap. Par ailleurs, le frottement de la poudre avec l'outillage est décrit par le modèle de Coulomb dont le coefficient est pris constant tout au long du calcul.

Dans ce qui suit, les différents paramètres utilisés dans la simulation numérique seront présentés.

1.1. Les propriétés élastiques

Le comportement élastique de la poudre est caractérisé par deux propriétés mécaniques, le module d'Young E et le coefficient de Poisson ν . Le module d'Young E de la poudre *Vivapur 102* a été obtenu par compression simple. L'évolution du module d'Young en fonction de la densité relative est représentée sur la figure III.6.

Les valeurs du module d'Young ont été lissées à l'aide de la fonction exponentielle :

$$E = E_0 \exp(A \times \rho_r)$$

avec $E_0 = 4,3643 \text{ MPa}$ et $A = 7,3953$.

La méthodologie d'identification présentée au quatrième chapitre (parag. 4.1 p. 115) a permis d'identifier un coefficient de Poisson ν égal à 0,29.

1.2. Les paramètres du modèle de Drucker-Prager/Cap

Le modèle de Drucker-Prager/Cap se caractérise par quatre paramètres. Ces paramètres sont la cohésion d , l'angle de frottement interne β , l'excentricité du cap R et la fonction de durcissement p_b . Les paramètres d et β définissent la droite de rupture et les paramètres p_b et R décrivent l'évolution de la surface du Cap (voir figure IV.2).

Les paramètres de la droite de rupture d et β caractéristiques de la poudre ont été déterminés à l'aide de la cellule de cisaillement annulaire pour des faibles densités relatives ($\rho_r \leq 0,3$) et à partir des essais de rupture diamétrale et axiale pour des densités relatives plus élevées ($0,3 \leq \rho_r \leq 0,8$).

Les mesures de d et β à l'aide de la cellule de cisaillement ont été présentées au chapitre III (paragraphe 1.5 p. 89). Ces mesures sont valables dans la plage de densité relative $\rho_r \leq 0,3$. Ces résultats ont été lissés par des fonctions d'interpolation (polynôme de 2nd degré pour d et de 1^{er} degré pour β). Par extension de ces fonctions à l'intervalle de densité relative [0,3-0,8], nous obtenons le graphe V.1. Cette extrapolation à l'intervalle [0,3-0,8] ne correspond à aucune mesure physique, mais elle servira dans l'étude de sensibilité présentée à la fin de ce chapitre.

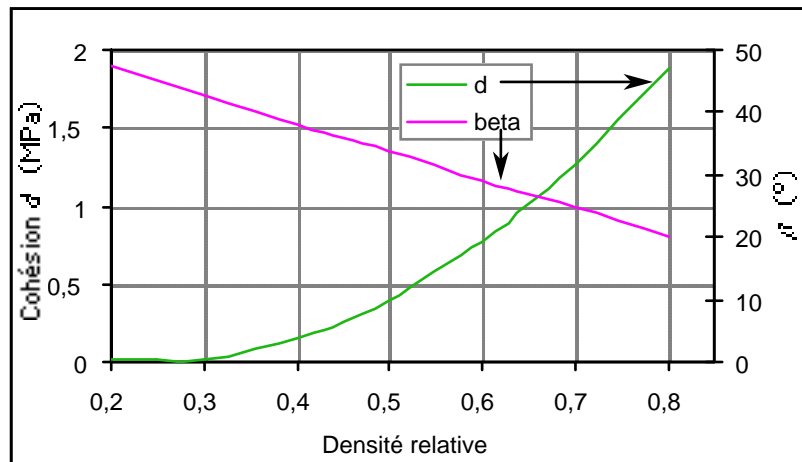


Figure V.1. Évolution de la cohésion d et de l'angle de frottement β en fonction de la densité relative : extrapolation des résultats de la cellule de cisaillement.

La cohésion d augmente et l'angle de frottement interne β décroît avec la densité relative. Les valeurs de la cohésion d sont extrapolées à l'aide du polynôme :

$$d = 6,113 \times \rho_r^2 - 3,001 \times \rho_r + 0,369$$

Pour les valeurs de l'angle de frottement interne β :

$$\beta = -45,519 \times \rho_r + 56,443$$

Ces allures sont en accord avec les résultats obtenus dans les thèses de Toussaint [35] et de Frachon [72] pour des poudres métalliques.

Dans l'espace (p,q) , les droites de rupture (surfaces F_s) obtenues à partir des paramètres d et β suivent l'évolution présentée sur la figure V.2 dans le plan (p,q) .

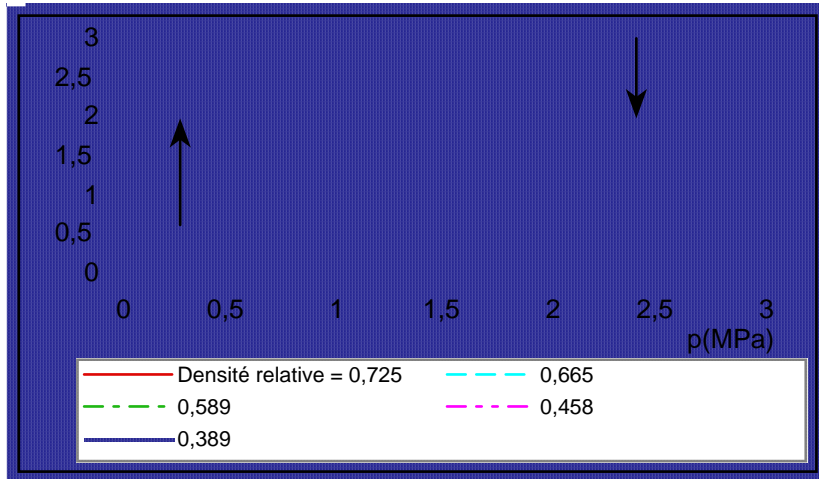


Figure V.2. Évolution de la surface de rupture dans le plan (p,q) pour plusieurs valeurs de densité relative : $(q+\tan\beta p + d=0, d$ et β du graphe V.1)

La fonction de durcissement p_b et l'excentricité du Cap R sont obtenues à partir de la courbe contrainte - déformation lors de la compression de la poudre et de la résolution de l'équation (IV-18). La figure V.3 représente l'évolution des paramètres p_b et R en fonction de la densité relative. On observe une évolution exponentielle du paramètre p_b et une évolution croissante de l'excentricité R en fonction de la densité relative.

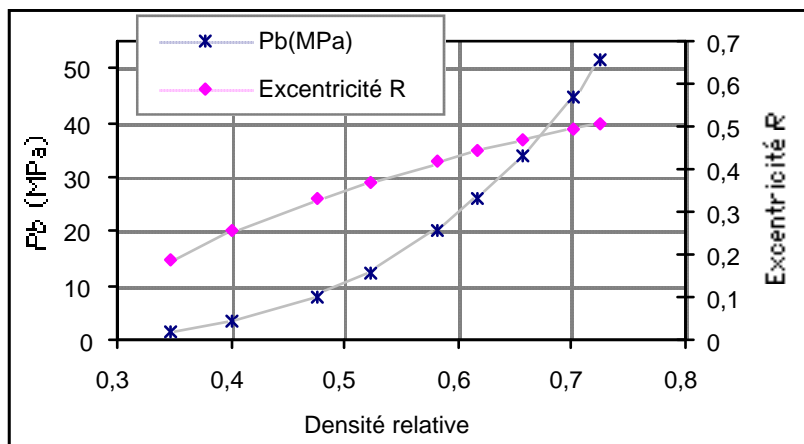


Figure V.3. Fonction de durcissement en fonction de la densité relative.

La surface de charge évolue en fonction de la densité relative dans le plan (p,q) . La figure V.4 représente les surfaces de charge de quatre états de densité.

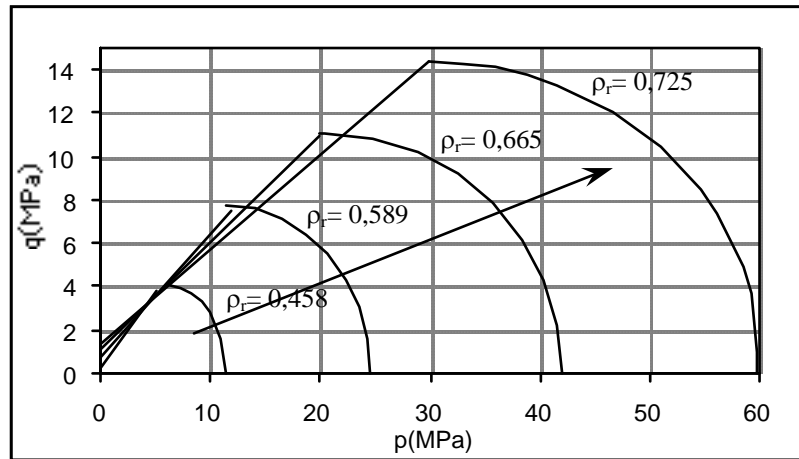


Figure V.4. Surface de charge dans le plan (p, q) pour quatre états de densité.

V.2. Résultats numériques

Les simulations numériques présentées dans ce paragraphe correspondent à trois géométries différentes. Un premier cas de compression avec des poinçons plats et deux autres cas avec des poinçons concaves notés *R10* et *R20* ayant une certaine courbure. Seules les étapes de charge et de décharge sont simulées. Pour des raisons de symétrie, seule la moitié du lit de poudre est maillée avec des éléments de type "CAX4R" axisymétriques de 4 nœuds à intégration réduite [69] et utilisant une interpolation linéaire (figure V.1). Ces simulations ont été conduites en imposant un déplacement au poinçon supérieur comme dans l'essai expérimental. Les poinçons et la matrice sont supposés rigides. Suites aux mesures expérimentales présentées au troisième chapitre (parag. 1.6 p. 91), le frottement imposé aux interfaces communes des surfaces rigides des outils et du lit de poudre est considéré constant. Le coefficient de frottement est pris égal à 0,16 dans le cas lubrifié et égal à 0,4 dans le cas non lubrifié.

2.1. Compression avec poinçons plats

Pour les simulations de la compression avec des poinçons plats, deux cas ont été étudiés. Dans le premier cas, les paramètres du modèle de Drucker-Prager/Cap sont considérés constants et identifiés à l'aide de la méthodologie présentée dans le quatrième chapitre (parag. 4.1 p. 115). Dans le deuxième cas, les paramètres évoluent en fonction de la densité relative. L'évolution des propriétés mécaniques avec la densité a été présentée dans les paragraphes précédents.

2.1.1 Cas de paramètres constants

Les dimensions du lit de poudre sont illustrées sur la figure V.5. Le volume de la matrice est de 1 cm^3 . La densité apparente initiale de la poudre *Vivapur 102* est de $0,27 \text{ g/cm}^3$. Par conséquent, la densité relative initiale est de $0,171$. Il convient de noter que la distribution initiale de la densité est supposée homogène. Cependant, il est possible d'avoir en pratique une hétérogénéité de la répartition initiale de la densité. Cette situation n'est pas prise en compte ici. Le déplacement imposé au poinçon supérieur est de $7,65 \text{ mm}$.

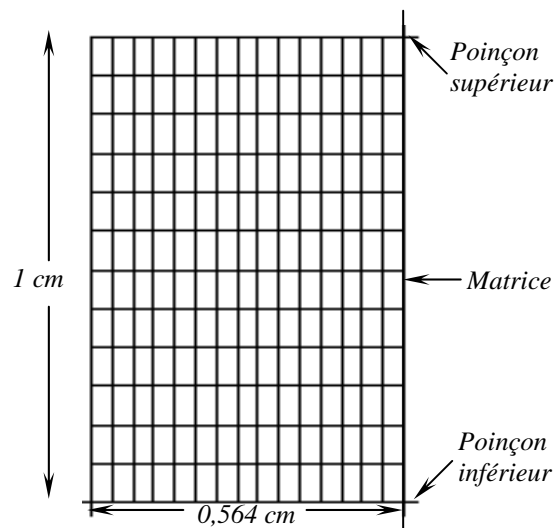


Figure V.5. Maillage de la moitié du lit de poudre dans le cas plat.

Le tableau V.1 représente les mesures et les calculs de la densité relative et des efforts sur les poinçons en fin de compression dans le cas où les paramètres du modèle sont constants. Les écarts relatifs calculés par rapport aux mesures de la densité relative et des efforts sont assez faibles. On constate également que la pression transmise calculée s'améliore dans le cas lubrifié.

Tableau V.1. Comparaison entre les mesures et les calculs de la densité et des pressions en **fin de compression** dans le cas de paramètres constants.

	Densité relative		Pression appliquée		Pression transmise	
	Lubrifiée	Non lub.	Lubrifiée	Non lub.	Lubrifiée	Non lub.
Mesure	0,731±0,4%	0,725±0,4%	50 MPa	50 MPa	45,5 MPa	42,5 MPa
Simulation	0,721	0,716	49,53	50,83	45,92	42,24
Erreur (%)	1,36	1,24	0,94	1,66	0,92	0,65

Les figures V.6 et V.7 représentent respectivement les distributions de la densité en fin de compression avec et sans lubrification.

Dans les deux cas, la simulation numérique produit un gradient de densité tout au long de la hauteur du comprimé. Cette hétérogénéité de la distribution de densité est due essentiellement au frottement imposé entre les outils et la poudre. Ainsi, la charge de compression imposée par le poinçon supérieur n'est pas intégralement transmise au sein du comprimé.

La densité la plus importante se trouve sur les bords supérieurs du comprimé avec une densité relative de 0,758 dans le cas lubrifié et de 0,807 dans le cas non lubrifié. Les bords inférieurs sont les moins denses avec une densité relative de 0,682 dans le cas lubrifié et de 0,621 dans le cas non lubrifié. L'écart entre les densités maximale et minimale dans le cas non lubrifié est plus important.

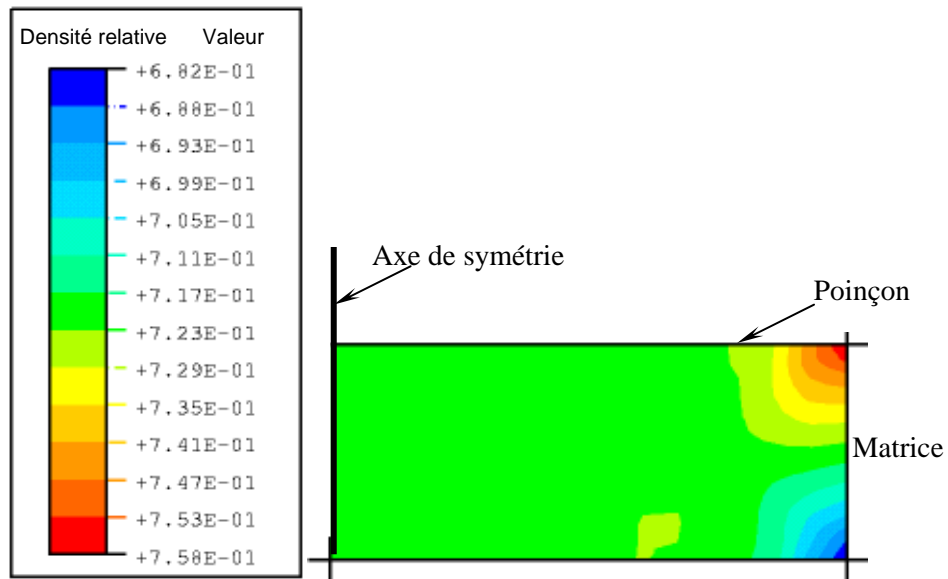


Figure V.6. Distribution de la densité relative dans la moitié du comprimé dans le cas lubrifié ($\mu = 0,16$) avec paramètres constants.

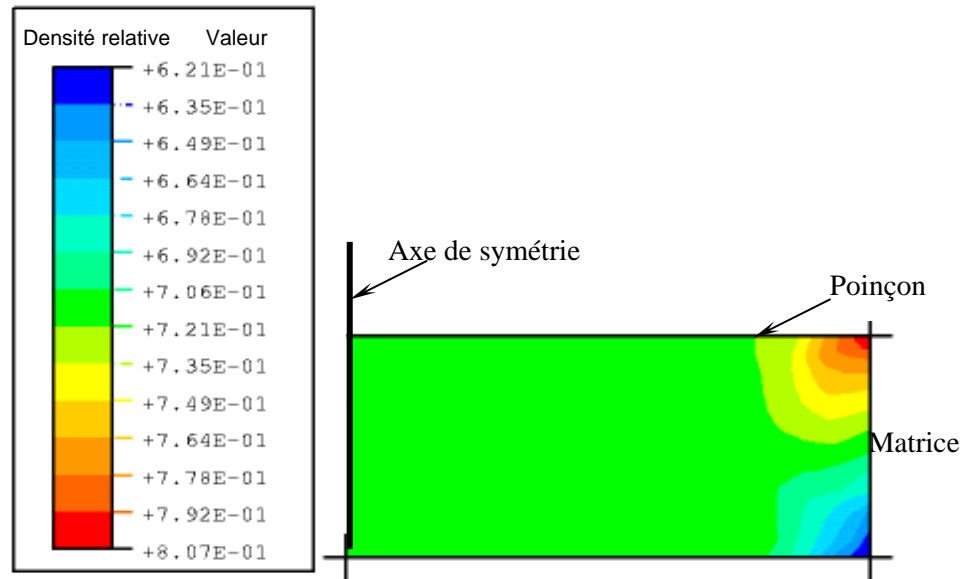


Figure V.7. Distribution de la densité relative dans la moitié du comprimé dans le cas non lubrifié ($\mu = 0,4$) avec paramètres constants.

Ces résultats sont similaires à ceux qui sont obtenus par Aydin et al. [19] et Michrafy et al. [20] dans le sens où les bords supérieurs sont les plus denses et les bords inférieurs sont les moins denses. L'utilisation d'un frottement important empêche la poudre de glisser le long des interfaces des poinçons et de la matrice [21]. Par conséquent, des régions très denses se développent sur les bords supérieurs du comprimé.

2.1.2 Cas de paramètres variables

Tous les paramètres du modèle sont fonctions de la densité relative et ont été présentés dans le premier paragraphe. Seul le coefficient du Poisson est pris constant et est égal à 0,29.

On présente dans ce qui suit les résultats numériques en fin de compression dans le cas non lubrifié ($\mu = 0,4$).

Le tableau V.2 présente les mesures et les calculs de la densité et des pressions en fin de compression.

Tableau V.2. Comparaison entre les mesures les calculs de la densité et des pressions en **fin de compression** dans le cas de paramètres variables.

	Densité relative	Pression appliquée	Pression transmise
Mesure	0,725 ± 0,4%	50 MPa	42,5 MPa
Simulation	0,713	51,31	42,54
Erreur (%)	1,655	2,62	0,04

L'écart entre la mesure et le calcul des efforts et de la densité relative moyenne en fin de compression est faible. On constate que la sous-estimation de la pression transmise entraîne la sous-estimation de la densité en bas du comprimé. La figure V.8 représente les courbes de compression expérimentale et simulée. La courbe simulée coïncide parfaitement avec la courbe expérimentale car la fonction du durcissement p_b est calculée à partir de la courbe expérimentale. Ceci constitue un premier moyen de confrontation du calcul à la mesure.

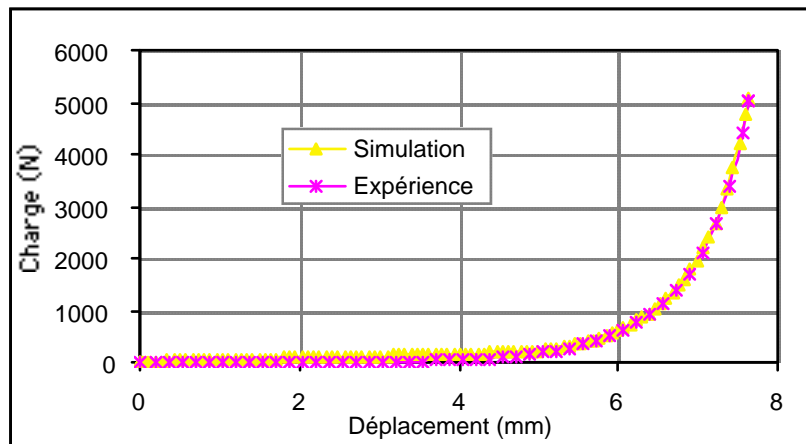


Figure V.8. Courbes de compression simulée et expérimentale de la *Vivapur 102* dans le cas de paramètres variables sans lubrification.

La distribution de la densité relative en fin de compression dans le cas de paramètres variables sans lubrification est illustrée dans la figure V.9. La densité la plus importante se trouve sur les bords supérieurs du comprimé avec une densité relative de 0,792. Les bords inférieurs sont les moins denses avec une densité relative de 0,635.

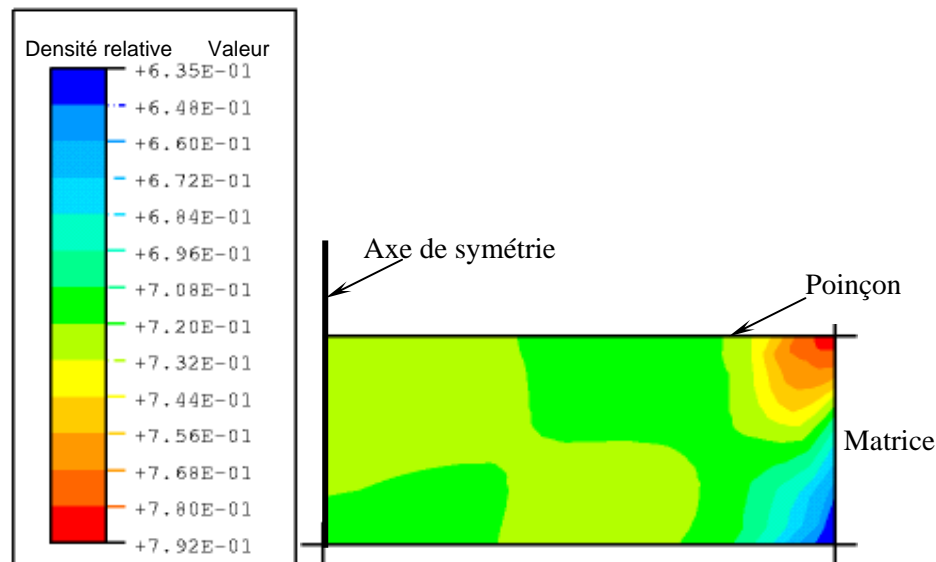


Figure V.9. Distribution de la densité relative en fin de compression dans le cas de paramètres variables de la Vivapur 102 sans lubrification.

Le déplacement axial en fin de compression est illustré sur la figure V.10. On constate que le déplacement axial décroît du haut vers le bas du comprimé montrant que l'effort axial se transmet des couches supérieures vers les couches inférieures comme l'a observé Train [78].

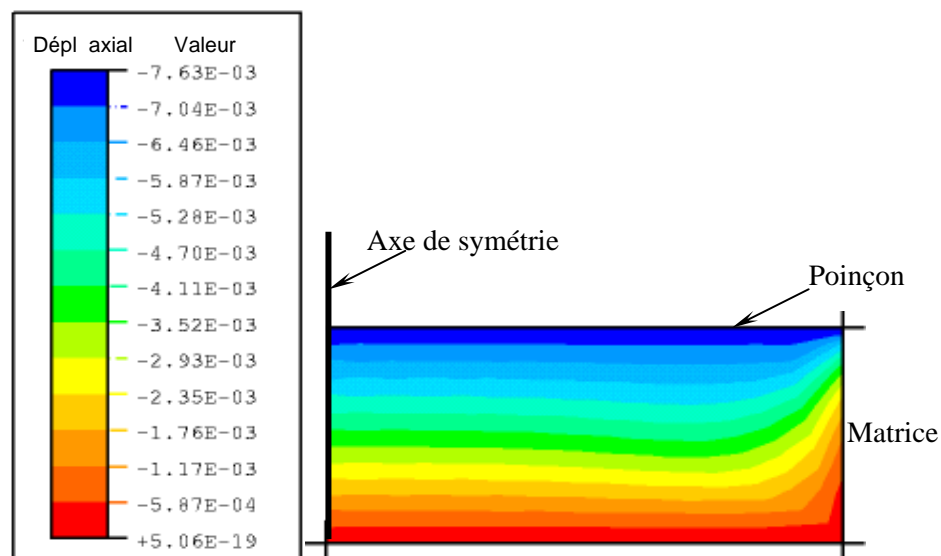


Figure V.10. Déplacement axial en fin de compression dans le cas de paramètres variables de la Vivapur 102 sans lubrification.

La figure V.11 représente le déplacement radial en fin de compression. On distingue deux écoulements différents : un écoulement radial vers l'extérieur en bas et un écoulement vers l'intérieur en haut du comprimé comme le montre la figure V.12. Les valeurs du déplacement radial sont inférieures à celles du déplacement axial. Des résultats similaires ont été obtenus

dans [20] et [79].

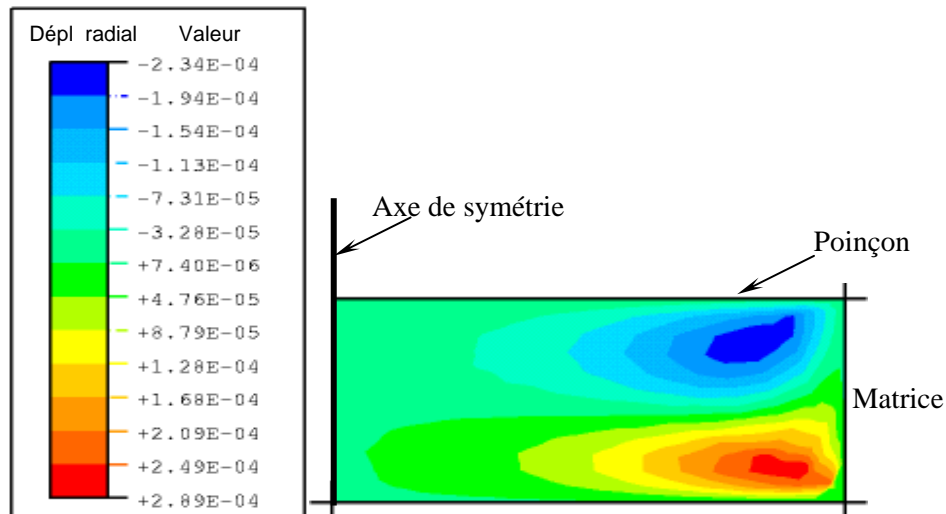


Figure V.11. Déplacement radial en fin de compression avec des paramètres variables de la Vivapur 102 sans lubrification.

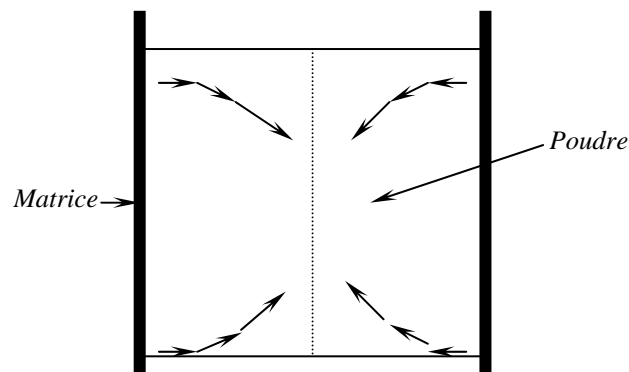


Figure V.12. Écoulement radial de la poudre au cours de la compression.

Les résultats obtenus dans le cas de poinçons plats semblent acceptables. En effet, dans les deux cas étudiés (paramètres constants ou variables), l'écart entre la simulation et l'expérience est faible. Cependant, dans l'industrie pharmaceutique plus de la moitié des comprimés sont de forme bombée. Nous nous sommes donc penchés sur l'étude de l'effet de la forme sur le comportement de la poudre en utilisant deux poinçons concaves de profondeurs différentes.

2.2. Compression avec poinçons concaves

La compression de la poudre de cellulose microcristalline *Vivapur 102* a été effectuée à l'aide de deux poinçons concaves *R10* et *R20* (*R10* de profondeur $R_p = 1,74 \text{ mm}$ et *R20* de profondeur $R_p = 0,8 \text{ mm}$) et avec la même matrice (de diamètre $D = 11,28 \text{ mm}$) utilisée dans le cas de poinçons plats. Les maillages et les dimensions sont présentés dans le paragraphe suivant.

2.2.1 Maillages et dimensions dans le cas de poinçons concaves

Comme dans le cas de poinçons plats et pour des raisons de symétrie, seule la moitié du lit de poudre est maillée avec des éléments axisymétriques de 4 nœuds à intégration réduite [69] en utilisant une interpolation linéaire. Les figures V.13 et V.14 représentent les maillages utilisés et les lignes rigides représentant les poinçons.

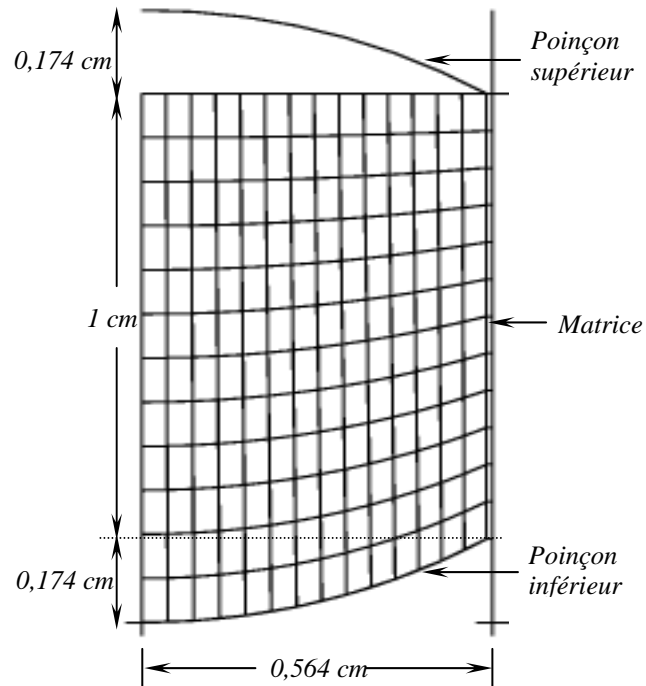


Figure V.13. Maillage de la moitié du comprimé dans le cas de poinçons R10.

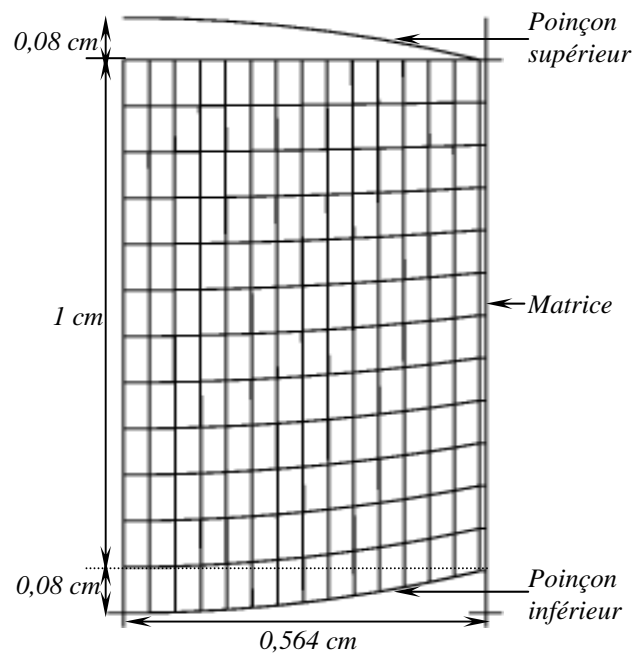


Figure V.14. Maillage de la moitié du comprimé dans le cas de poinçons R20.

Le poinçon *R10* a une profondeur de $1,74\text{ mm}$, alors que le poinçon *R20* a une profondeur de $0,8\text{ mm}$. Le poinçon *R10* est un arc d'un cercle de rayon de 10 mm et le poinçon *R20* est un arc de rayon de 20 mm . Tous les paramètres du modèle évoluent en fonction de la densité relative. Seul le coefficient de Poisson est pris constant et égal à $0,29$ tout au long du calcul. L'évolution des propriétés mécaniques de la poudre a été présentée dans le premier paragraphe de ce chapitre. Dans ce qui suit, nous présentons les résultats dans le cas d'une compression sans lubrification. Le coefficient de frottement est donc pris constant et égal à $0,4$.

2.2.2 Résultats

Les figures V.15 et V.16 représentent les distributions de la densité en fin de compression avec les poinçons *R10* et *R20* respectivement. Comme dans les cas précédents, les bords supérieurs sont les plus denses. Cependant, dans le cas des poinçons *R10* un noyau moins dense se trouve en haut proche de l'axe de symétrie. Ces calculs sont qualitativement en accord avec les mesures obtenues par tomographie aux rayons X présentées par Sinka et al.[87].

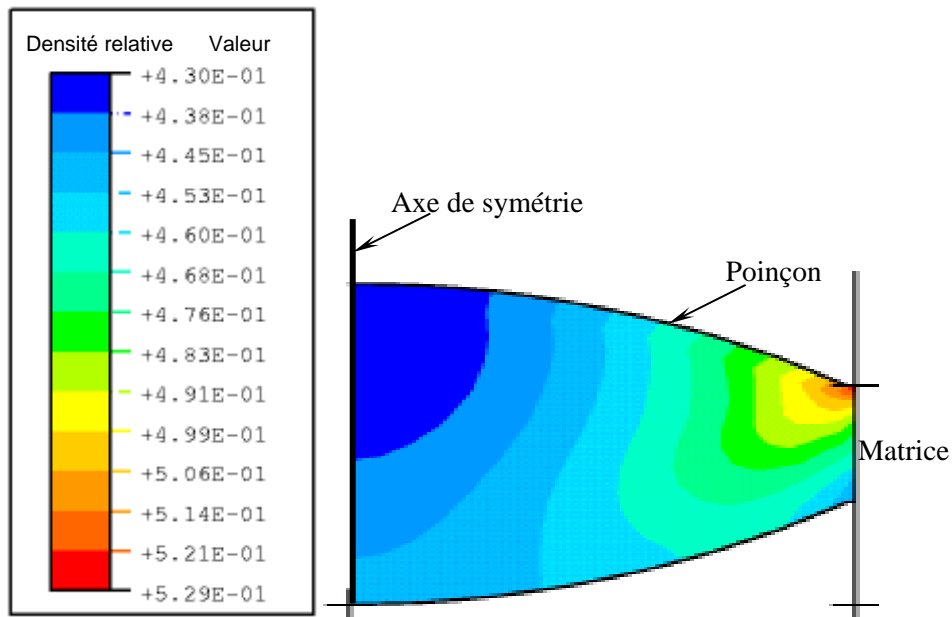


Figure V.15. Distribution de la densité relative en fin de compression dans le cas de poinçons *R10*.

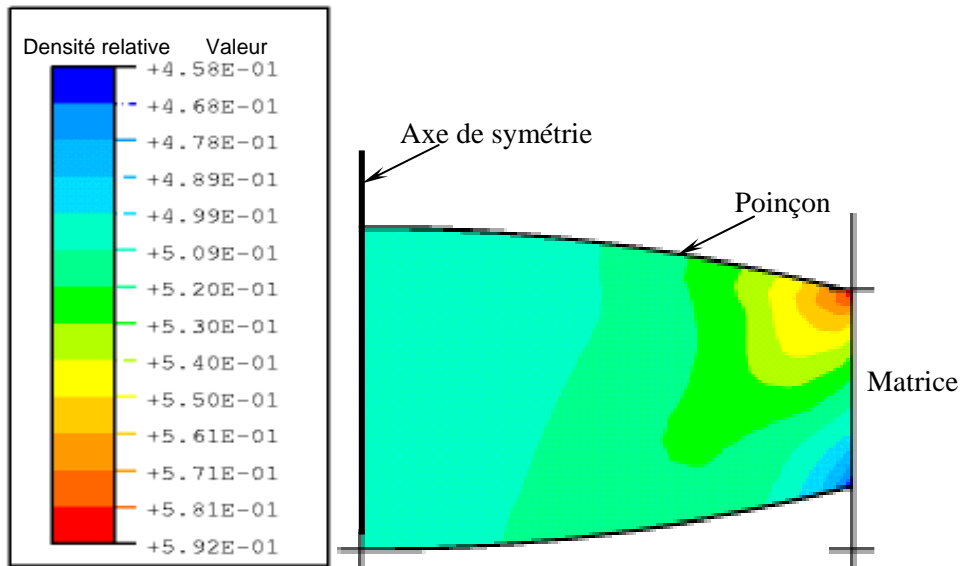


Figure V.16. Distribution de la densité relative en fin de compression dans le cas de poinçons R20.

Cette hétérogénéité de la répartition de la densité a des effets sur la résistance mécanique du comprimé et sur ses propriétés d'usage [21]. En effet, les parties moins denses subissent des endommagements au cours des manipulations, de transport, ou de stockage et peuvent avoir également une vitesse de dissolution plus rapide.

Dans le cas des poinçons R20, un gradient de densité existe dans le comprimé. Ce gradient de densité ressemble à celui qui est généré dans le cas de poinçons plats. En effet, la partie la plus dense se trouve au bord supérieur et la moins dense au bord inférieur du comprimé. On constate également que plus la profondeur du poinçon diminue, plus la zone la moins dense au niveau des bords inférieurs augmente. Le déplacement axial décroît du haut vers le bas du comprimé comme dans le cas de poinçons plats montrant une transmission décroissante de l'effort axial.

Les figures V.17 et V.18 représentent le déplacement radial en fin de compression dans le cas des poinçons R10 et R20 respectivement. Pour les poinçons R20, on distingue deux parties différentes : une petite partie en bas avec un écoulement vers l'extérieur et une grande partie en haut avec un écoulement vers l'intérieur. Pour les poinçons R10, l'écoulement radial est en grande partie vers l'intérieur. La forme du poinçon influe sur l'écoulement de la poudre au cours de la compression.

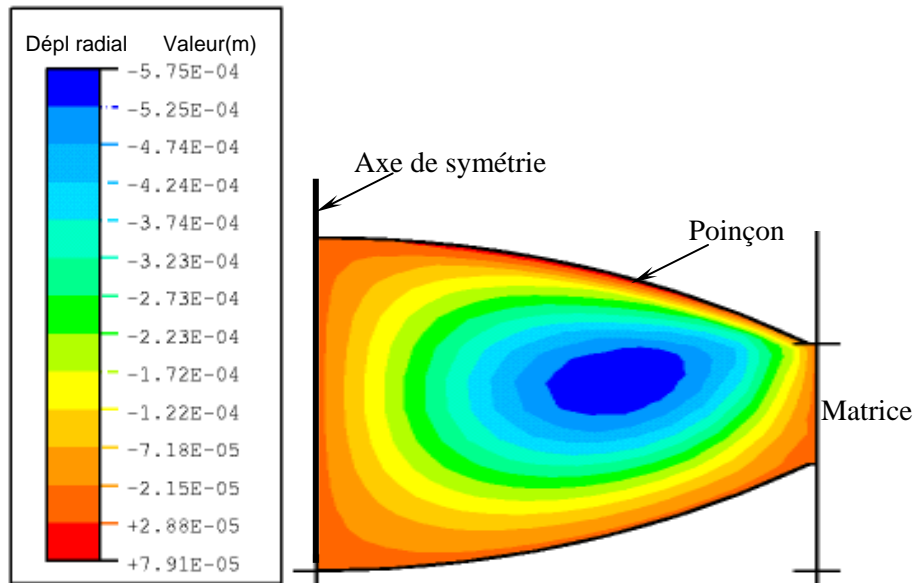


Figure V.17. Iso-valeurs du déplacement radial en fin de compression dans le cas de poinçons *R10*.

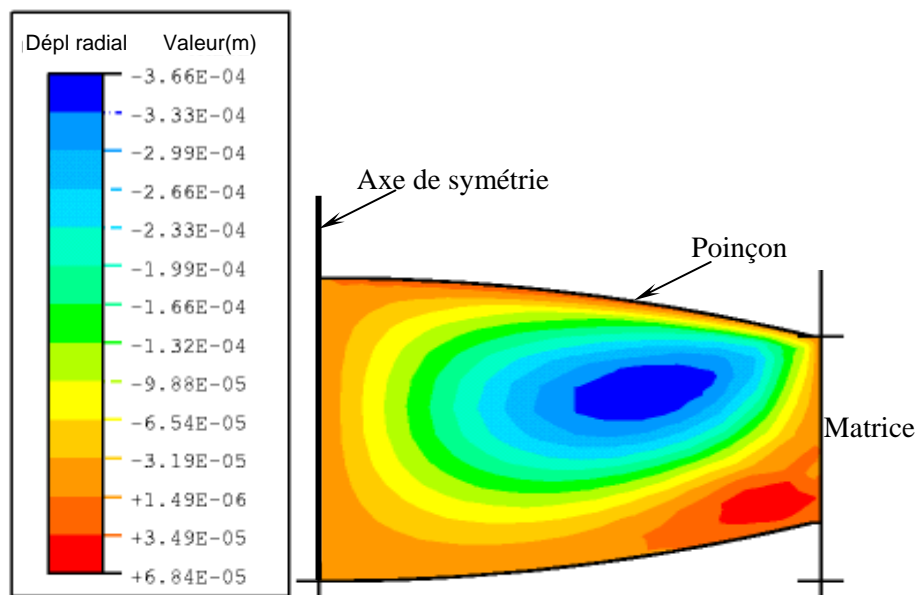


Figure V.18. Iso-valeurs du déplacement radial en fin de compression dans le cas de poinçons *R20*.

Le mouvement radial et axial de la poudre est contraint par les forces de frottement particulièrement près de la paroi de la matrice. Ceci entraîne en conséquence un gradient de densité et de contraintes à l'intérieur du comprimé.

Nous avons constaté que la contrainte axiale a des valeurs maximales sur les bords supérieurs entraînant une densification importante dans ces endroits comme on l'a montré

précédemment (voir figure IV.19). Le poinçon supérieur et la matrice subissent sur les bords supérieurs des contraintes qui pourraient conduire à une usure localisée ou un écaillage du revêtement de surface.

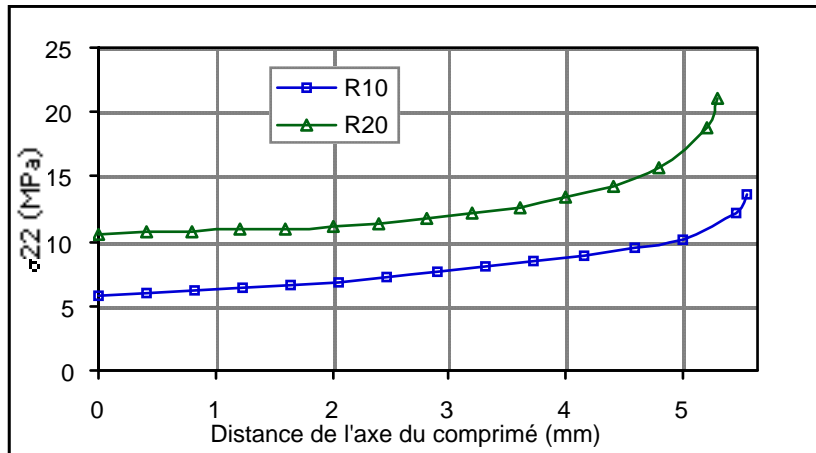


Figure V.19. Contrainte axiale sur les éléments en contact avec le poinçon supérieur dans les cas R10 et R20.

Les figures V.20 et V.21 représentent les courbes expérimentale et numérique de la charge en fonction de la densité relative pour les poinçons R20 et R10 respectivement. Pour les faibles densités, les courbes simulée et mesurée coïncident parfaitement dans les deux cas.

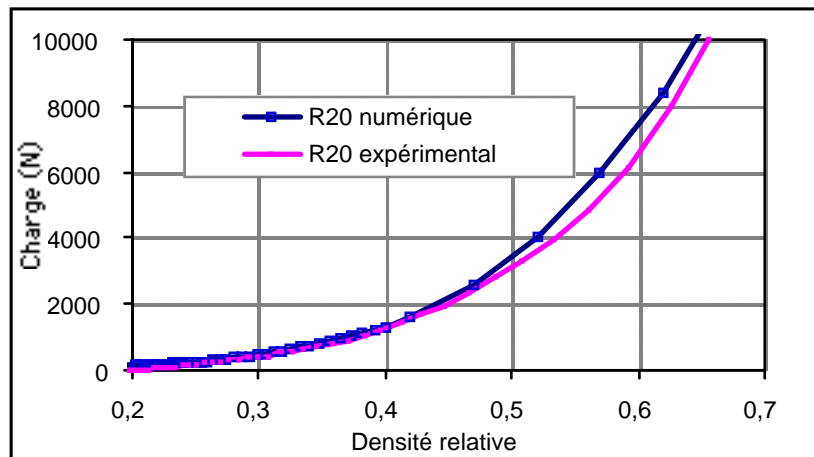


Figure V.20. Comparaison des courbes de compression expérimentale et numérique dans le cas de poinçons R20.

L'écart entre les courbes expérimentale et numérique augmente avec la densité relative, mais reste assez faible.

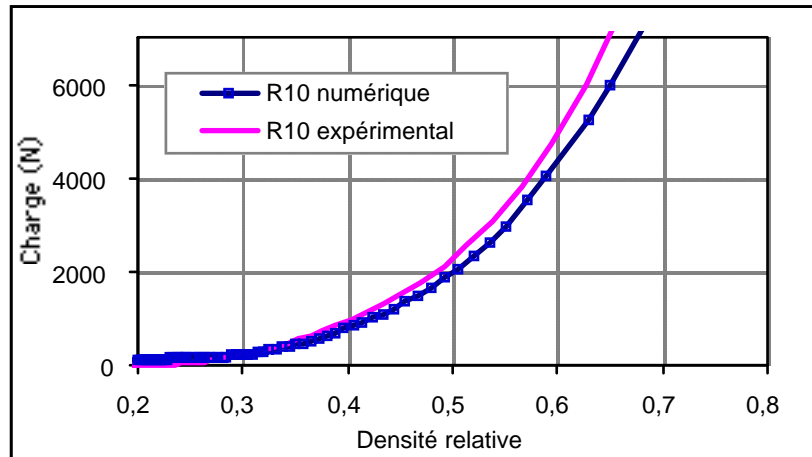


Figure V.21. Comparaison des courbes de compression expérimentale et numérique dans le cas de poinçons *R10*.

La simulation de l'étape de compression a permis de reproduire les répartitions de densité et de contraintes dans le comprimé et de calculer les efforts maximaux en fin de compression. Les résultats obtenus montrent une hétérogénéité de la distribution de densité et de contraintes dans le comprimé. Par ailleurs, cette hétérogénéité continue de se développer pendant la phase du retrait du poinçon. Au cours de la décharge, le comprimé pourrait subir un rebond qui entraînerait son délaminage [5]. En effet, suite au retrait du poinçon, le comprimé est soumis à des contraintes en tension qui peuvent séparer les surfaces interparticulaires. Dans le paragraphe suivant, nous allons étudier le comportement de la poudre pendant l'étape de la décharge pour les trois formes de poinçons (plat, *R10* et *R20*).

2.3. Simulation de l'étape de décharge

L'étape de la décharge est une étape de relaxation où la charge passe rapidement d'une valeur maximale à une valeur nulle. Par conséquent, le calcul de la transition est délicat (problème similaire en endommagement, en rupture ou en flambage de structure). L'utilisation d'un algorithme adéquat (algorithme de *Riks* par exemple) [69] est donc nécessaire pour ce genre de problème.

2.3.1 Distribution de la densité relative après décharge

La figure V.22 représente la distribution de la densité relative après décharge dans le cas d'une compression avec des poinçons plats. Lors de la décharge, le comprimé subit une détente élastique et une redistribution de densité se produit. Le maximum de la densité relative se situe toujours sur les bords supérieurs et diminue de 0,792 en fin de compression à 0,753 après décharge.

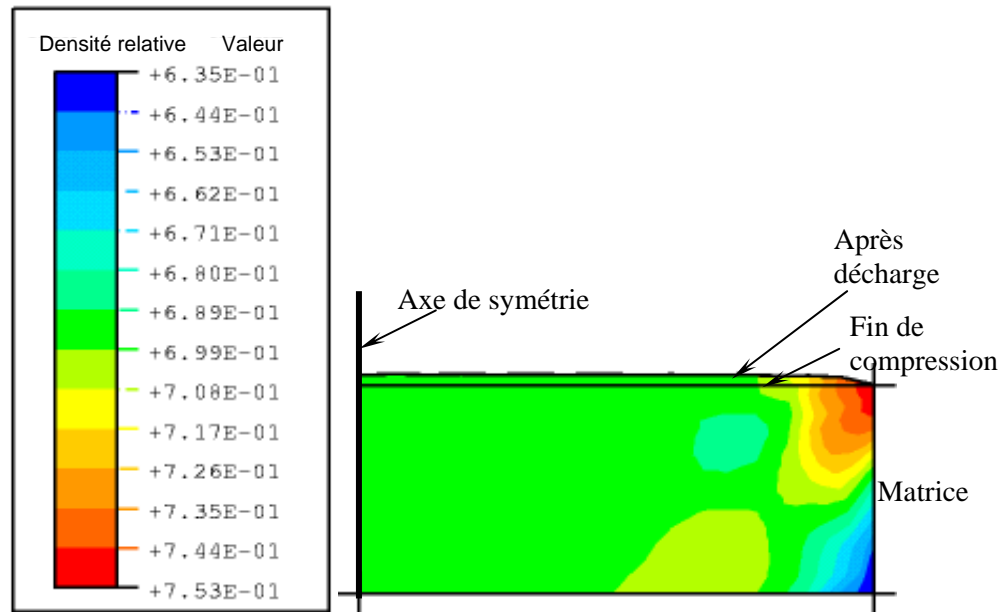


Figure V.22. Distribution de la densité relative après décharge dans le cas de poinçons plats.

Les figures V.23 et V.24 représentent la distribution de la densité relative après décharge dans le cas de poinçons *R10* et *R20* respectivement.

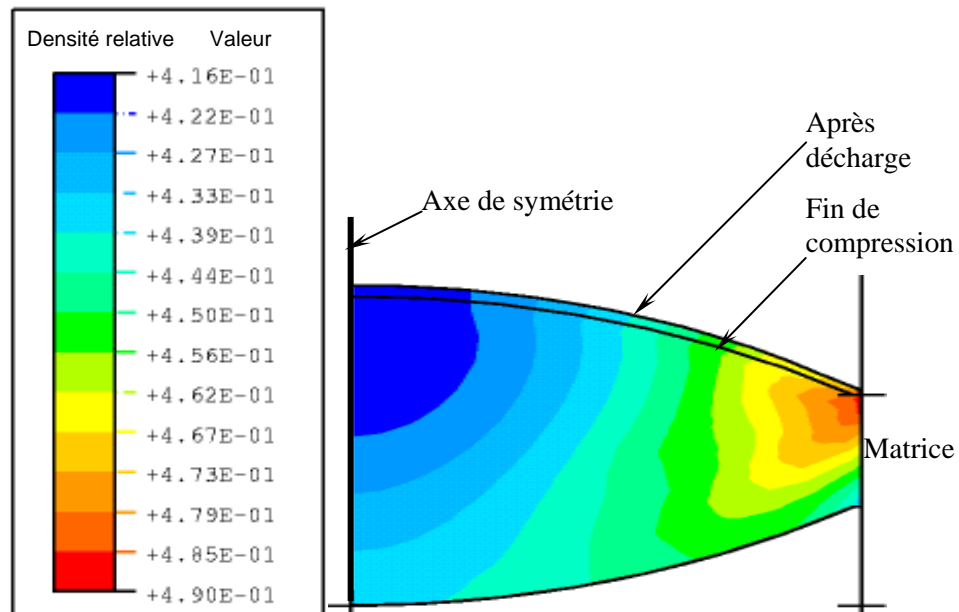


Figure V.23. Distribution de la densité relative après décharge dans le cas de poinçons *R10*.

Le maximum de la densité relative se situe toujours sur les bords supérieurs et passe de 0,529 en fin de compression à 0,490 après décharge pour *R10* et de 0,592 à 0,554 pour *R20*. Par ailleurs, le minimum de la densité relative se trouve proche de l'axe de symétrie en haut du comprimé et passe de 0,430 à 0,416 pour *R10* et de 0,458 à 0,448 pour *R20*.

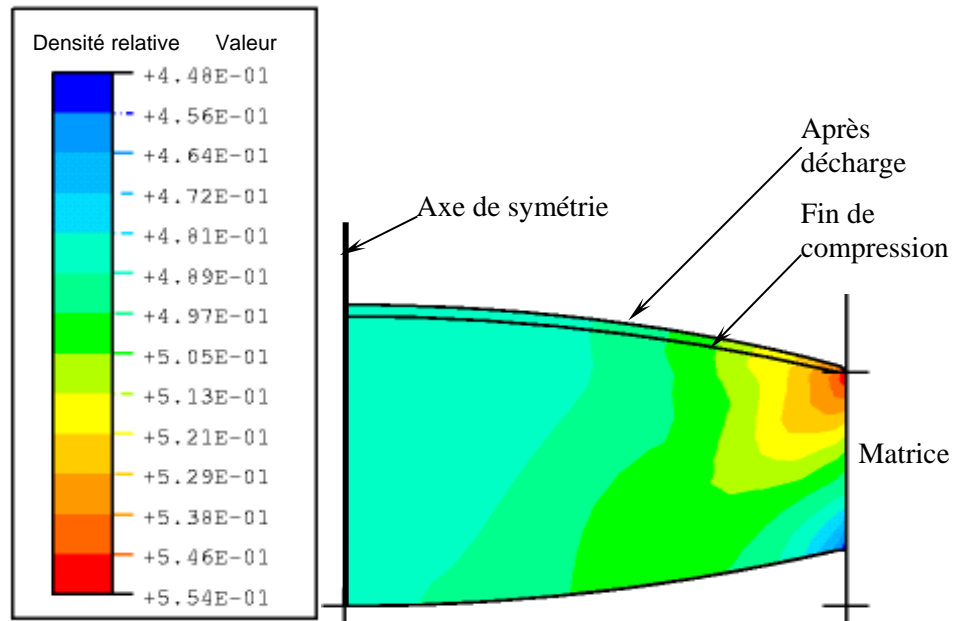


Figure V.24. Distribution de la densité relative après décharge dans le cas de poinçons R20.

2.3.2 Contraintes de Von Mises après décharge

La figure V.25 représente la contrainte équivalente de Von Mises après décharge dans le cas de poinçons plats. Les iso-valeurs des contraintes de Von Mises présentent un profil de cisaillement maximal à environ 45° . Si la poudre présente une tendance au clivage, c'est bien dans ces zones que l'initiation des fissures est potentielle.

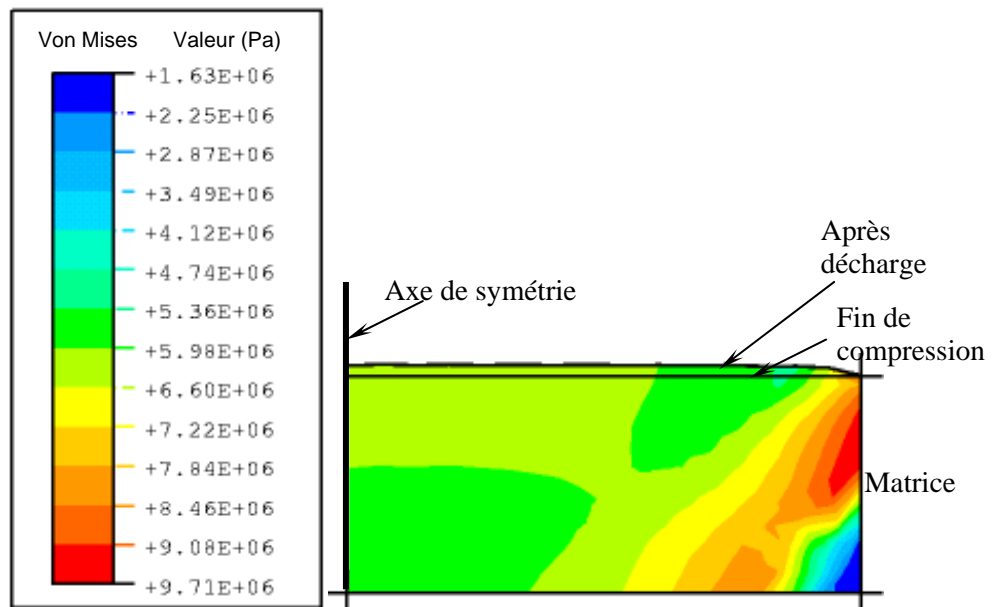


Figure V.25. Contrainte de Von Mises après décharge dans le cas de poinçons plats.

Les iso-valeurs des contraintes de Von Mises dans le cas des poinçons *R10* et *R20* sont tracées respectivement dans les figures V.26 et V.27. Les valeurs maximales de la contrainte de Von Mises se trouvent aux bords supérieurs du comprimé. Par contre, les valeurs minimales se trouvent proches de l'axe de symétrie. On constate qu'il y a un effet de la forme du poinçon sur la distribution de contraintes dans le comprimé. Par ailleurs, dans tous les cas de poinçons plat ou concaves, les résultats obtenus montrent, des régions très denses avec de fortes contraintes de cisaillement sur les bords supérieurs où il est possible que le comprimé puisse avoir une tendance au clivage ou une initiation de fissures [87].

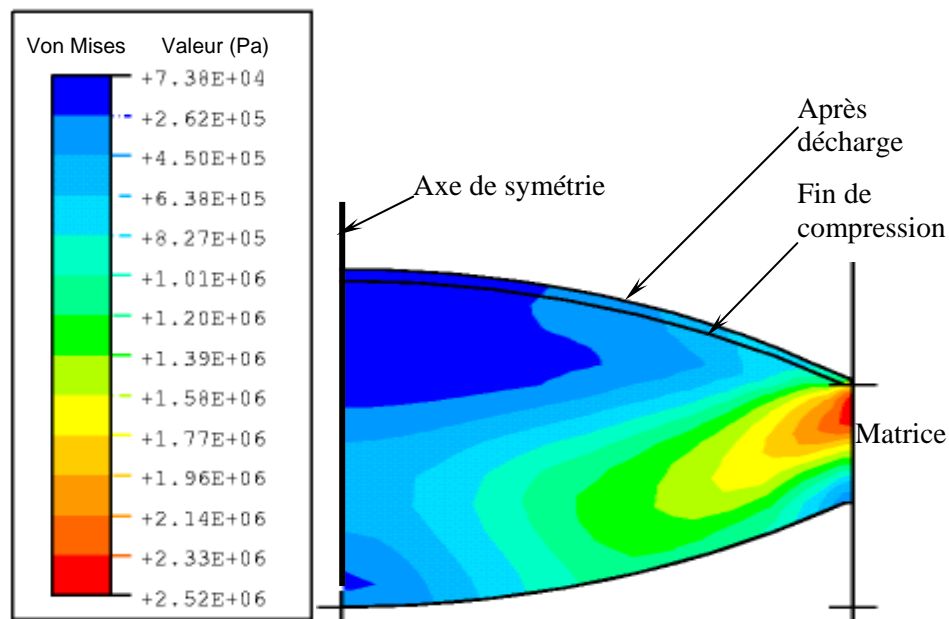


Figure V.26. Contrainte de Von Mises après décharge dans le cas de poinçons *R10*.

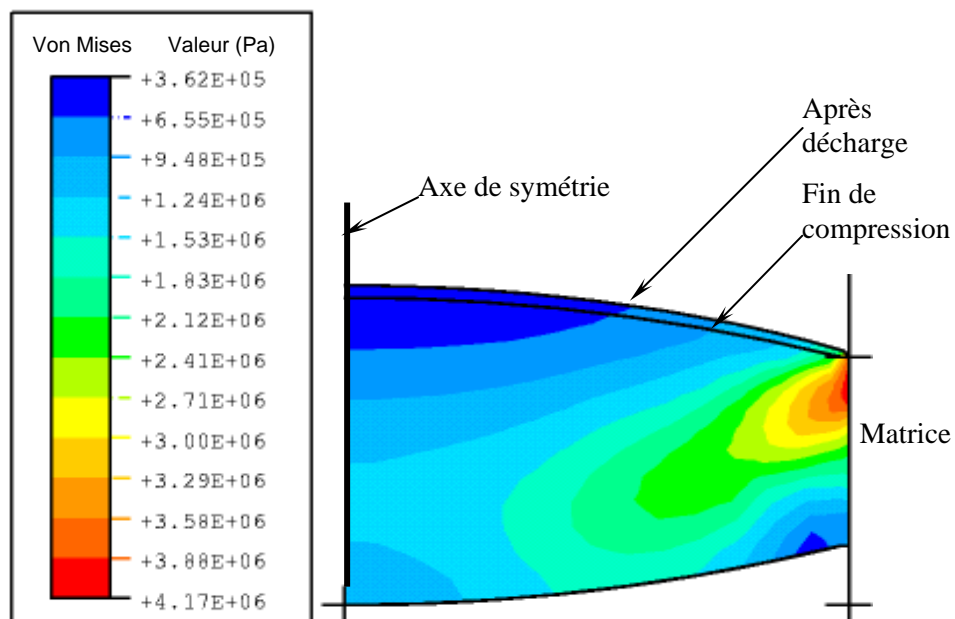


Figure V.27. Contrainte de Von Mises après décharge dans le cas de poinçons *R20*.

L'étude des étapes de charge et de décharge a permis de simuler l'évolution de la distribution de densité dans le comprimé. Cette distribution de densité qui résulte de la transmission de contraintes dans le comprimé dépend du frottement interparticulaire ainsi que des conditions aux limites comme le contact poudre/matrice et l'état de lubrification. Par conséquent, cette distribution hétérogène affecte souvent les propriétés mécaniques et les caractéristiques de dissolution du comprimé. Par ailleurs, l'hétérogénéité de la distribution de densité peut-être source de problèmes comme le clivage ou le délaminage du comprimé pendant la décharge et l'éjection.

Dans le paragraphe suivant, les mesures de la distribution axiale de la densité présentées dans le troisième chapitre (parag. III.2 p. 96) seront confrontées aux calculs par éléments finis.

V.3. Distribution axiale de la densité

La procédure expérimentale consiste à empiler des tranches préformées de la poudre *Vivapur 102* par groupe de cinq dans une matrice. Ces tranches ont été compactées à différentes pressions. Le compact ainsi obtenu a été ensuite éjecté et les tranches séparées. La densité apparente de chaque tranche est mesurée pour estimer la distribution axiale de la densité.

Pour comparer les mesures obtenues et les valeurs calculées par modélisation, nous avons simulé les étapes de la compression et de la décharge dans les mêmes conditions de l'expérience. Cette étude nous a permis de confronter les mesures aux calculs. Nous avons simulé les étapes de compression et de décompression dans les mêmes conditions de la procédure expérimentale [80,81]. L'évolution des paramètres du modèle a été présentée dans le premier paragraphe de ce chapitre.

Les figures V.28 et V.29 représentent les mesures et les calculs de la densité relative axiale en fonction de la hauteur du comprimé (le zéro est en bas du comprimé) en fin de chargement et après décharge. La densité axiale calculée étant obtenue à partir de la déformation volumique (équations IV.9) des éléments finis se trouvant sur l'axe central.

La densité relative axiale calculée par éléments finis en fin de compression décroît du haut vers le bas du comprimé. La densité calculée en fin de compression est supérieure à celle qui est obtenue par l'expérience. En effet, le compact n'a pas encore subi de retour élastique supplémentaire dû à l'éjection.

La densité relative axiale calculée après décharge décroît du haut vers le bas du compact tout en se rapprochant des mesures. Ce résultat est similaire à celui obtenu par Aydin [19] lors de la compression de poudres céramiques. Les calculs après décharge sont qualitativement en

accord avec la mesure.

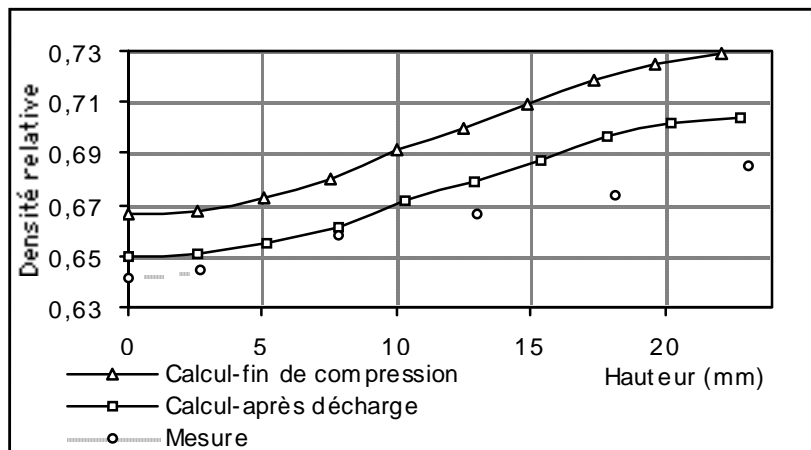


Figure V.28. Mesure et calcul de la densité relative axiale en fin de compression et après décharge pour un niveau de compression de 40 MPa.

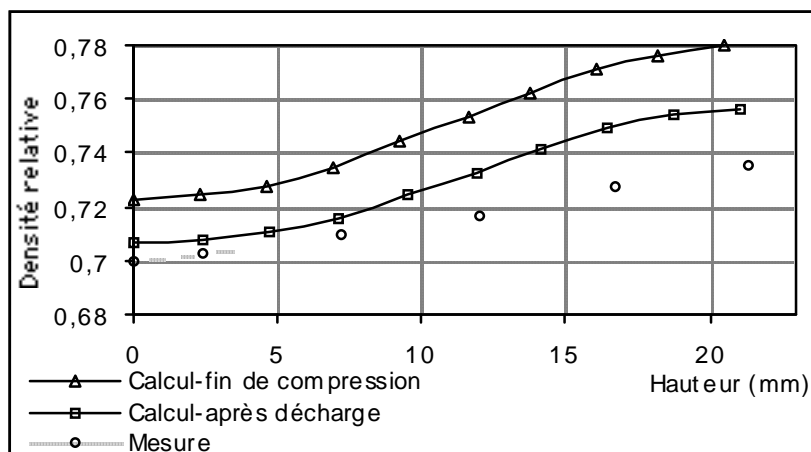


Figure V.29. Mesure et calcul de la densité relative axiale en fin de compression et après décharge pour un niveau de compression de 60 MPa.

V.4. Étude de sensibilité

Les différences entre les calculs et les mesures peuvent avoir différentes raisons. Elles peuvent être dues à la représentativité des phénomènes physiques par la modélisation, à la méthode de calibration ou à la méthode numérique utilisée. Dans le modèle physique utilisé pour représenter la compression de poudre un ensemble de paramètres ont été identifiés par une procédure de calibration à partir des mesures expérimentales. Compte tenu de la spécificité du procédé de compaction de poudres pharmaceutiques, il est difficile d'accéder avec précision à tous les paramètres du modèle. Les paramètres utilisés sont les propriétés

élastiques (module d'Young E et coefficient de Poisson ν), les propriétés mécaniques de la poudre (la cohésion d et l'angle de frottement interne β) et l'excentricité R du Cap qui décrit la densification de la poudre. L'étude de sensibilité proposée ici consiste à déterminer les paramètres les plus influents sur le trajet de chargement dans l'espace (p, q) et sur la contrainte appliquée.

Deux situations ont été analysées :

- Le cas de la compression parfaitement lubrifiée ($\mu = 0$) : Sous cette hypothèse, nous explicitons de manière analytique la relation entre le déviateur q et la pression hydrostatique p pour mettre en exergue l'effet des paramètres sur le trajet de chargement. Par ailleurs, en explicitant la pression axiale σ_z en fonction des paramètres d , β , R et p_b , nous verrons qu'il n'y a pas a priori une possibilité unique de choix de paramètres de manière à ce que la contrainte axiale calculée soit identique à la valeur mesurée.
- Le cas de la compression en tenant compte du frottement poudre-matrice : Dans cette configuration, le calcul analytique n'est pas possible. Le recours au numérique est inévitable. La question posée pour l'étude de sensibilité envisagée est : " Quels sont les paramètres les plus influents sur le trajet de chargement (p, q) en compression et sur la contrainte transmise à la poudre par le poinçon ?". Pour cela, nous allons analyser numériquement l'effet de la variation de chaque paramètre seul. Les autres paramètres seront inchangés.

4.1. Sensibilité de la contrainte axiale aux paramètres du modèle (cas de la compression sans frottement)

En reprenant l'équation de la surface du Cap :

$$F_c(p, q) = \sqrt{(p - p_a)^2 + \left(\frac{Rq}{(1 + \eta - \eta/\cos\beta)} \right)^2} - R(d + p_a \tan\beta) = 0$$

on obtient :

$$q = A \sqrt{(d + p_a \tan\beta)^2 - \frac{(p - p_a)^2}{R^2}} \quad (\text{V-1})$$

avec $A = 1 + \eta - \eta/\cos\beta$.

L'équation (V-1) peut être utilisée pour étudier l'effet de la variation des paramètres $(d, \beta, p_a$ et $R)$ sur le chemin des contrainte dans le plan (p, q) .

Il a été déjà montré au quatrième chapitre que la pente de la tangente à la surface du Cap est égale à $-3/2$ (voir figure V.30). En dérivant l'équation (V-1) par rapport à p on obtient :

$$\frac{dq}{dp} = \frac{-2 \frac{A^2}{R^2} (p - p_a)}{2A \sqrt{(d + p_a \tan \beta)^2 - \frac{(p - p_a)^2}{R^2}}} = \frac{-3}{2} \quad (\text{V-2})$$

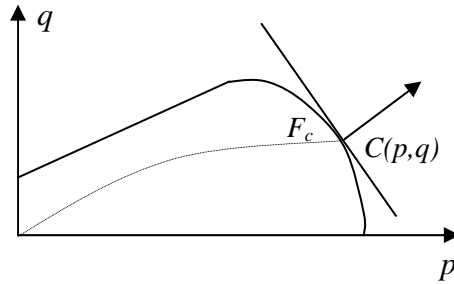


Figure V.30. Le point $C(p,q)$ atteint en fin du chargement.

À partir des équations (V-1) et (V-2), on calcule les coordonnées du point C en fin de compression qui est représenté sur la figure V.29 :

$$C(p,q) : \begin{cases} p = p_a + \frac{R^2(d + p_a \tan \beta)}{\sqrt{R^2 + \left(\frac{2}{3}\right)^2 A^2}} \\ q = \frac{2}{3}(d + p_a \tan \beta)A^2 \\ \quad \sqrt{R^2 + \left(\frac{2}{3}\right)^2 A^2} \end{cases}$$

avec :

$$p_a = \frac{p_b - Rd}{1 + R \tan \beta}$$

La contrainte axiale atteinte en fin de compression est exprimée par la relation :

$$\sigma_z = \frac{3p + 2q}{3} = p_a + (d + p_a \tan \beta) \sqrt{R^2 + \left(\frac{2}{3}\right)^2 A^2} \quad (\text{V-3})$$

L'équation (V-3) montre que la contrainte axiale est fortement dépendante des paramètres fonction des paramètres d , β , R et p_b . En conséquence, la méthode d'identification est source d'écart entre la mesure et les calculs.

L'analyse présentée ci-dessus ne prend pas en compte le frottement de la poudre avec l'outillage. Dans ce qui suit, la sensibilité est étudiée dans le cas d'une compression avec frottement pour un centimètre-cube de la *Vivapur 102*.

4.2. Sensibilité des résultats aux paramètres E , ν et R (cas de la compression avec frottement)

Dans ce paragraphe, nous allons étudier l'effet de la variation des paramètres E , ν , et R sur le trajet de contraintes (p,q) et sur la contrainte appliquée par le poinçon sur la poudre en fin de compression. Nous avons choisi trois évolutions pour chaque paramètre.

4.2.1 Sensibilité des résultats de calcul au module d'Young E

La figure V.31 représente trois évolutions du module d'Young E . Une première évolution qu'on appellera cas de référence correspond aux mesures obtenues par compression simple. Deux autres évolutions E_1 et E_2 ont été choisies respectivement pour surestimer et sous-estimer le cas de référence. L'évolution E_1 est obtenue à partir de l'essai de flexion trois points. L'autre évolution E_2 a été obtenue en laissant le même écart entre le cas de référence et l'évolution E_1 . Les autres paramètres d , β et R sont variables et ont été présentés dans le premier paragraphe de ce chapitre. Le coefficient de Poisson est égal à $0,29$ et le coefficient de frottement est égal à $0,4$.

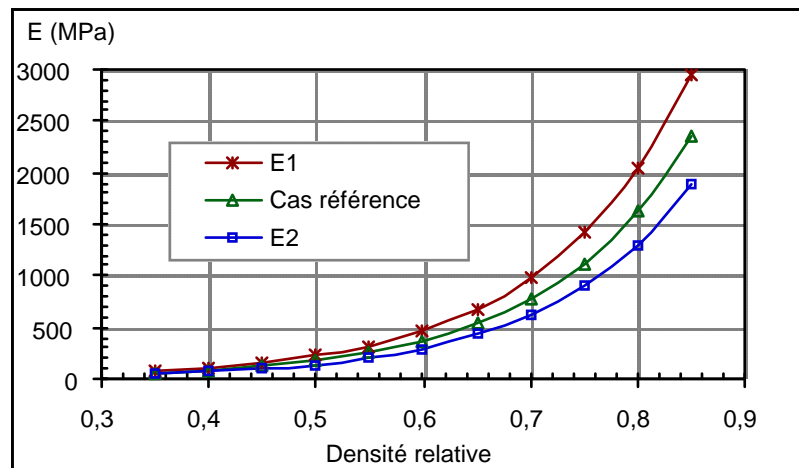


Figure V.31. Variations du module d'Young E .

La figure V.32 représente le chemin des contraintes dans le plan (p,q) pour les trois évolutions du module d'Young E . La variation du module d'Young n'influe pas beaucoup sur le trajet des contraintes (p,q) . Cependant, la contrainte transmise par le poinçon à la poudre est calculée à partir de la contrainte axiale σ_{22} sur les éléments du contact avec le poinçon supérieur. Sa valeur maximale est de $48,07 MPa$ pour l'évolution E_2 , $51,31 MPa$ pour le cas

de référence et de $53,3 \text{ MPa}$ pour l'évolution E_1 . On remarque que la contrainte appliquée augmente avec la surestimation du module d'Young. Par ailleurs, il n'y a pas un grand effet sur la densité relative. Une surestimation du module d'Young implique un incrément de déformation volumique élastique plus petit et un incrément de déformation volumique irréversible plus grand. Ce qui entraîne une influence sur la fonction de durcissement p_b et dans ce cas se trouve supérieure au cas de référence. Ainsi, la contrainte appliquée sur la poudre par le poinçon est plus importante.

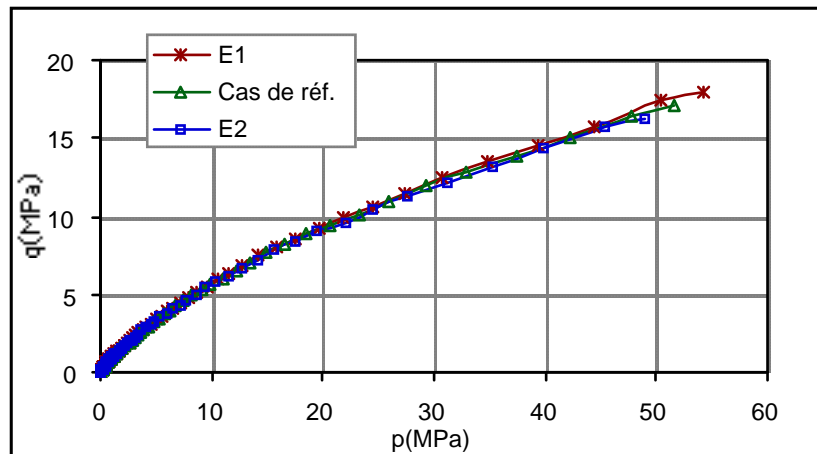


Figure V.32. Chemins des contraintes dans le plan (p, q) .

4.2.2 Sensibilité des résultats de calcul au coefficient de Poisson ν

Les valeurs du coefficient de Poisson sont données par trois constantes présentées dans le tableau V.3. Les autres paramètres du modèle restent inchangés.

Tableau V.3. Valeurs prises par le coefficient de Poisson ν .

ν_1	Référence	ν_2
0,25	0,29	0,33

La figure V.33 représente le chemin des contraintes dans le plan (p, q) pour les trois valeurs du coefficient de Poisson.

La variation du coefficient de Poisson n'a presque pas d'effet sur le chemin des contraintes. Par ailleurs, la contrainte σ_{22} appliquée par le poinçon à la poudre augmente avec le coefficient de Poisson. La contrainte appliquée passe de $49,2 \text{ MPa}$ pour un coefficient de Poisson de $0,25$ à $53,1 \text{ MPa}$ pour $0,33$. Autrement dit, une variation du coefficient de Poisson de $13,8\%$ entraîne une variation de $3,4\%$ de la contrainte appliquée. Par ailleurs, nous avons constaté que les densités relatives maximale et minimale diminuent avec l'augmentation du

coefficient de Poisson.

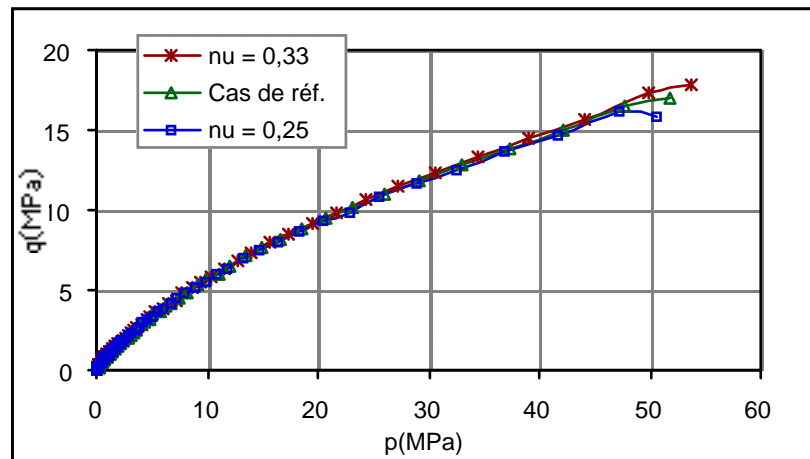


Figure V.33. Chemins des contraintes dans le plan (p,q) .

4.2.3 Sensibilité des résultats de calcul à l'excentricité R

La figure V.34 représente les trois évolutions choisies pour l'excentricité R . Les valeurs de référence sont celles présentées dans le premier paragraphe de ce chapitre. Ces valeurs ont été calculées avec la méthode d'identification présentées dans le quatrième chapitre (parag. 6.2 p.115). Les évolutions R_1 et R_2 ont été choisies de telle sorte qu'elles sous-estiment et surestiment respectivement les valeurs de référence (R réf).

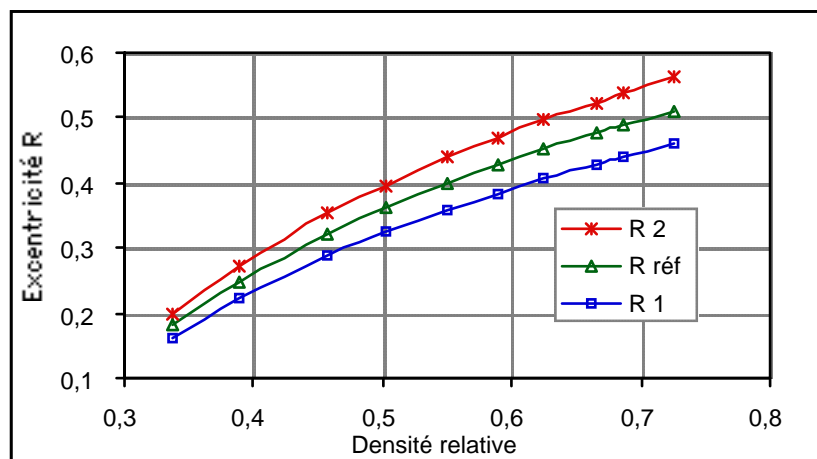


Figure V.34. Variations de l'excentricité R .

Les chemins de contraintes (p,q) sont illustrés par la figure V.35. On constate que la variation de l'excentricité a un effet léger sur le chemin de chargement (p,q) et sur la contrainte appliquée. En effet, une surestimation de l'excentricité R entraîne une augmentation

de la contrainte appliquée qui est de $51,85 \text{ MPa}$ pour l'évolution R_2 et de $51,31 \text{ MPa}$ pour l'évolution de référence ($R \text{ réf.}$).

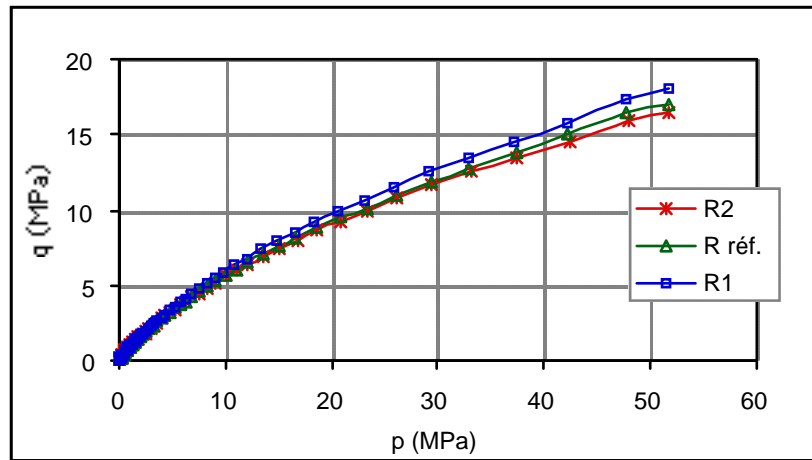


Figure V.35. Chemins des contraintes (p,q) pour les trois évolutions de l'excentricité R .

En compression, la cohésion d et l'angle de frottement β ne devraient pas avoir d'effet sur le chemin des contraintes qui ne dépend que de la forme du Cap. Pour une étude de sensibilité des résultats à ces deux paramètres d et β , il serait nécessaire de prendre en compte leur influence sur l'excentricité R et sur la fonction de durcissement p_b . De ce point de vue, la sensibilité des résultats à la variation seule de d et β ne semble pas pertinente.

V.5. Conclusion

Ce chapitre présente les résultats de la simulation numérique du problème aux limites dans le cas de la compression en matrice. Le comportement mécanique a été schématisé par le modèle de Drucker-Prager/Cap qui fait intervenir des paramètres caractéristiques de la poudre. Dans les deux cas de paramètres variables ou constants, les résultats de la simulation numérique semblent acceptables et rendent bien compte des mesures expérimentales. Les simulations numériques ont porté sur trois formes de poinçons (plat et concaves). Le frottement de la poudre avec l'outillage (poinçons et matrice) a été introduit par un coefficient de frottement constant égal à $0,16$ dans le cas lubrifié et à $0,4$ dans le cas non lubrifié. Les résultats de la simulation numérique montrent un gradient de densité sur la hauteur du comprimé. Cette hétérogénéité de la distribution de densité est due essentiellement au frottement imposé entre les outils et la poudre et aux mécanismes de déformation générée par les conditions aux limites au cours de la compression. Ainsi, la charge de compression imposée par le poinçon supérieur n'est pas intégralement transmise au sein du comprimé.

L'écart entre les densités supérieure et inférieure dans le cas non lubrifié est plus important. Le déplacement axial décroît du haut vers le bas du comprimé montrant une transmission décroissante de l'effort axial. Le déplacement radial de la poudre dans le cas de poinçons plats montre deux "écoulements" différents : un écoulement radial vers l'extérieur localisé en bas du comprimé et un écoulement vers l'intérieur en haut du comprimé. Les valeurs du déplacement radial sont inférieures à celles du déplacement axial. La forme du poinçon influe sur l'écoulement de la poudre au cours de la compression et sur la distribution de la densité. L'écart entre les courbes de compression numérique et expérimentale (charge - densité relative) est très faible. La contrainte axiale a des valeurs maximales sur les bords supérieurs entraînant une densification importante. Le poinçon supérieur et la matrice subissent des contraintes aux bords supérieurs qui pourraient conduire à une usure localisée ou un écaillage du revêtement de surface.

La décharge a été simulée pour les trois formes de poinçons pour estimer la relaxation des contraintes dans le comprimé. Lors de la décharge, le comprimé subit une expansion qui entraîne une redistribution de densité. Les iso-valeurs du champ de contraintes de Von Mises ont des valeurs maximales sur les bords supérieurs. À ces endroits, la poudre est soumise à un cisaillement important qui peut entraîner une tendance au clivage.

Pour comparer les mesures de la distribution axiale de la densité présentées au troisième chapitre (parag. III.2 p. 90) avec les prévisions du calcul numérique, nous avons simulé les étapes de la compression et de la décompression dans les mêmes conditions que l'expérience. Cette étude nous a permis de tester un moyen expérimental simple pour mesurer la densité axiale et de la comparer aux résultats numériques. La densité relative axiale calculée par éléments finis en fin de compression décroît du haut vers le bas du comprimé. La densité calculée en fin de compression est supérieure à celle qui est obtenue par l'expérience. En effet, le compact n'a pas encore subi de détente supplémentaire due à l'éjection. La densité relative axiale calculée après décharge décroît jusqu'en bas du compact. Les calculs après décharge sont qualitativement en accord avec les mesures.

Une dernière étude traite de la sensibilité de certains résultats du modèle aux paramètres décrivant le comportement à la compression du lit de poudre. Il s'en sort de cette étude que l'influence des paramètres élastiques E et ν sur le trajet des contraintes (p, q) est relativement faible. Cependant, la contrainte axiale est sensible à la variation du module d'Young. Par ailleurs, l'excentricité R a un léger effet sur le chemin des contraintes et sur la contrainte appliquée.

CONCLUSION GÉNÉRALE

CONCLUSION GÉNÉRALE

Dans ce travail, on s'est intéressé à l'étude de poudres pharmaceutiques au cours de la compression en matrice. Nous avons mis en place une étude expérimentale de caractérisation des propriétés mécaniques de poudres, de propriétés élastiques des compacts et du frottement entre la poudre en compression et l'outillage. Un modèle de comportement mécanique de poudres en compression convenable pour la spécificité des poudres pharmaceutiques a été exploité. Il s'agit d'un modèle macroscopique de type élastoplastique avec une fonction charge de type "Cap" (modèle de Drucker Prager/Cap). Ce modèle prend en compte les propriétés mécaniques de la poudre comme la cohésion et le frottement interne, le durcissement lors de la compression (augmentation de la résistance mécanique du comprimé avec la force de compression) et l'évolution des propriétés élastiques du comprimé en fonction de la densité. Pour représenter le comportement d'une poudre donnée, nous avons proposé deux méthodologies d'identification du modèle à partir des données expérimentales. L'une est basée sur les mesures obtenues en compression en matrice et la description du chemin de chargement dans l'espace des contraintes "pression hydrostatique – contrainte équivalente de Von-Mises", l'autre est plutôt basée sur la loi d'écoulement associative en compression qui permet de déterminer les paramètres R et p_b et les essais de rupture diamétrale et uniaxiale pour les paramètres d et β .

Par ailleurs, un cadre mathématique de formulation du problème aux limites de la compression dans un outillage rigide est mis en place. La prise en compte des conditions de contact et de frottement entre le comprimé et l'outillage se ramène alors à la résolution d'un problème de minimisation avec contraintes. Ensuite, le problème est approché par la méthode des éléments finis après introduction du Lagrangien pour éliminer la contrainte.

Les simulations numériques ont concerné l'étude de l'effet du frottement entre la poudre en compression et la matrice sur la distribution de contraintes et de déformations dans le comprimé. Les résultats montrent que le frottement est responsable de l'hétérogénéité de densité dans le comprimé. En particulier, la densité axiale mesurée est qualitativement comparable à celle obtenue par simulation numérique de la compression. De plus, compte

tenu de la relaxation non-négligeable des comprimés pharmaceutiques, les densités calculées après simulation de la décharge sont beaucoup plus proches de la mesure. Cette approche montre que l'on peut relier les propriétés mécaniques de base des poudres, les paramètres du procédé et les propriétés finales du compact.

Par ailleurs et compte tenu du fait que 70% de poinçons vendus sur le marché pharmaceutique sont bombés (possède une courbure à un rayon ou deux rayons et avec différentes profondeurs), on s'est intéressé à l'effet de la forme du poinçon sur les propriétés mécaniques du compact. Des mesures expérimentales et des simulations numériques ont été réalisées pour des comprimés bombés (deux profondeurs différentes de poinçons). Sur le plan de la mesure, les résistances mécaniques des comprimés plats et bombés ont été comparées. Il en sort que, à densité équivalente, les comprimés bombés sont plus résistants que les comprimés plats. Par ailleurs, les simulations numériques de la forme bombée montrent des profils de distributions de densités différents de ceux des comprimés plats. Ces distributions sont comparables à des résultats expérimentaux récents obtenus par tomographie aux rayons X [87].

À la suite de ce travail, de nombreuses perspectives sont envisageables :

- Sur le plan de la mesure, il est nécessaire de mesurer la pression radiale appliquée par la poudre sur la matrice pendant la compression. Cette pression dépend du comportement de la poudre et intervient dans l'identification du modèle de comportement. Dans ce sens, une matrice instrumentée par une jauge de contrainte radiale est mise en place et devrait apporter plus d'informations sur le comportement transverse à la direction de la compression.
- Sur le plan numérique, nous avons considéré l'hypothèse de l'équilibre quasi-statique de la compression en matrice. Ceci a permis de tester la pertinence du modèle à prendre en compte le comportement de la poudre en compression. Cependant, le procédé industriel est loin d'être quasi-statique et le comportement dynamique des poudres pharmaceutiques en compression serait inévitable. Il est alors important de disposer de modèles de comportement qui peuvent prendre en compte les effets de vitesse de déformations d'une part, et de méthodes numériques efficaces pour résoudre les problèmes associés d'autre part.
- Nous avons considéré dans nos simulations une distribution initiale homogène de la densité. Il serait intéressant de faire appel à la méthode des éléments discrets pour estimer la distribution de la densité après remplissage et de la combiner à l'approche continue afin

d'étudier l'influence de la distribution de densité initiale sur le résultat de la compression. L'approche discrète serait aussi un moyen intéressant pour formuler d'autres lois de comportement prenant en compte des propriétés microscopiques de la poudre pour alimenter des simulations basées sur les méthodes continues.

NOMENCLATURE

NOMENCLATURE

- r : rayon du comprimé
 D : diamètre du comprimé
 h : épaisseur du comprimé
 t : épaisseur de la partie cylindrique plate du comprimé (cas de comprimés bombés)
 R_p : profondeur du poinçon
 H : hauteur du lit de poudre
 V_0 : volume initial apparent
 V_r : volume relatif (=volume apparent/volume vrai)
 ρ_0 : densité relative initiale
 ρ_r : densité relative (=densité apparente/densité vraie)
- h_c : l'épaisseur du comprimé en fin de compression
 h_{ej} : l'épaisseur du comprimé après éjection
 h_{48} : l'épaisseur du comprimé après 48 heures
 ER : Expansion du comprimé après retrait du poinçon supérieur
 EE_{ej} : Expansion du comprimé après éjection $(= (h_{ej} - h_c) / h_c)$
 EE_{48} : Expansion après 48 heures $(= (h_{48} - h_c) / h_c)$
- P_y : pression moyenne d'écoulement
 H_B : dureté Brinell d'un compact
- F_A : force appliquée par le poinçon supérieur
 F_T : force transmise au poinçon inférieur
 F_R : force radiale transmise à la matrice
 F_p : force due au frottement poudre/matrice
 F_i : force due au frottement interparticulaire
 F_D : force de réaction à la paroi de la matrice $(F_D = F_i + F_p)$
- μ : coefficient de frottement selon la loi de Coulomb
 P, P_a, σ_a : contrainte axiale appliquée par le poinçon sur le lit de poudre

$\sigma_a(z)$: contrainte axiale moyenne à une profondeur z du haut du compact

σ_r : pression radiale transmise à la paroi de la matrice

α : coefficient de transfert axial-radial ($\alpha = \sigma_r / \sigma_a$)

σ_{rd} : contrainte de rupture diamétrale

σ_{Ru} : contrainte de rupture uniaxiale

E : module d'Young

ν : coefficient de Poisson

K : module de compressibilité

G : module de cisaillement

S : pente de la courbe de décharge

τ_{max} : contrainte maximale de cisaillement

σ_n : contrainte normale

C : cohésion de la poudre selon le critère de Coulomb

φ, ϕ : angle de frottement interne de la poudre selon le critère de Coulomb

σ : tenseur de contraintes de Cauchy

s : tenseur des contraintes déviatoires ($= \sigma - (p/3)\mathbf{I}$)

J_2 : second invariant du tenseur des contraintes déviatoires s ($J_2 = \frac{1}{2} tr(s : s)$)

p : pression hydrostatique ($p = \frac{1}{3} tr(\sigma)$)

q : contrainte équivalente de Von Mises

d : cohésion selon le modèle de Drucker-Prager

β : angle de frottement interne selon le modèle de Drucker-Prager

p_b : fonction de durcissement

R : excentricité du Cap

F_s : surface de rupture de Drucker-Prager

F_c : surface du Cap du modèle de Drucker-Prager/Cap

F_t : surface de transition

ε_z : déformation dans la direction axiale z

ε_r : déformation radiale

ε_{vol}^{ir} : déformation volumique irréversible

ε : déformation totale

ε^{el} : déformation élastique

ε^{ir} : déformation irréversible

f : forces volumiques ($f=(f_i)$)

λ : multiplicateur plastique

η : paramètre de régularisation du raccordement des deux surfaces F_s et F_c ($\eta=0,03$).

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

BIBLIOGRAPHIE

[1] BOUVARD, D.

Approches micromécaniques de la compression et du frittage des poudres
Propos scientifiques, 2001 -I, n°26, 28-37.

[2] N'DRI-STEMPFER, B.

Etude de l'incidence des procédés de granulation et de compression sur la couleur des compacts de poudres et de granulés
Thèse INPG & ENSMSE, Génie des procédés, 2001.

[3] RENOUARD, M.

De la particule au compact : vers une explication du phénomène de clivage des comprimés de Paracétamol
Thèse Université de Technologie de Compiègne, 2001.

[4] VAN DER VOORT MAARSCHALK, K.

Stress relaxation of compacts produced from viscoelastic materials,
Int. J. of Pharm., 1997, 151, 27-34.

[5] PORTAL, G.

Analyse et optimisation du procédé de compactage de poudres utilisées dans les piles thermiques
Thèse Université Paul Sabatier de Toulouse, Sciences des matériaux, 1999.

[6] LONG, W. M.

Radial pressures in powder compaction
Powder Metall., 1960, 6, 73-86.

[7] LONG, W. M.

Die design and related questions in powder compaction
2nd symposium of special ceramics, 1962, 327-340.

[8] MASTEAU, J.C. and THOMAS, G.

Evolution and modelling of porosity and specific surface area of pharmaceutical tablets during compaction,
Powders & Grains 97, Behringer & Jenkins (eds), 1997.

[9] TAKTAKJAMA, S.

Contribution à l'étude du comportement en compression de poudres et de leurs mélanges
Thèse de Lille 2, 1997.

[10] PONCHEL, G.

La densification des poudres pharmaceutiques : fragmentation particulaire et compressibilité intrinsèque

Thèse de doctorat, Univ. Paris-Sud, 1987.

[11] SCHMIDT, R.

Comportement des matériaux dans les milieux biologiques

Traité des matériaux 7, Presses Polytech. et Univ. Romandes, 1999.

[12] ÇELIK, M.

Overview of compaction data analysis techniques

Drug development and industrial pharmacy, 1992, 18 (6&7), 767-810.

[13] WATT, P.R.

In tablet machine instrumentation in pharmaceuticals, Principles and Practice

(Watt, P.R., ed.), Ellis Horwood, 1988, 397-428.

[14] GUYOT, J-C. and al.,

Les sucres en compression : qualités requises et évaluation

Lab. pharmacotechnie industrielle, fac. Sci. Pharm. Bio., Univ Lille 2.

[15] HECKEL, R.W.

Density-Pressure relationships in powder compaction

Trans. Metal. Soc. Of Aime, 1961, 221, 671-675.

[16] HECKEL, R. W.

An analysis of powder compaction phenomena

Trans. Metal. Soc. Of Aime, 1961, 221, 1001-1008.

[17] KRYCER, I. and POPE, DAVID G.

The interpretation of powder compaction data - A critical review

Drug development and industrial pharmacy, 1982, 8(3), 307-342.

[18] MARTIN, C.L. and al.

Study of particle rearrangement during powder compaction by the discrete element method

J. mech. phys. solids, 2003, 51, 667-693.

[19] AYDIN, I. and al.

The internal form of compacted ceramic components : a comparison of finite element modelling with experiment

Powder Technology, 1996, 89, 239-254.

[20] MICHRAFY, A. and al.,

Modelling the compaction behaviour of powders : application to pharmaceutical powders

Powder Technology, 2002, 127, 257-266.

[21] SINKA, I.C. and al.

The effect of wall friction in the compaction of pharmaceutical tablets with curved faces : a validation study of the Drucker-Prager Cap model

Powder Technology, 2003, 133, 33-43.

[22] EN ZIAN

Direct compression tablets using microcrystalline cellulose

Pharmaceutica Acta Helvetiae, 1972, 47, 321-363.

[23] CASTEL, B.

Procédés et appareils

Techniques de l'ingénieur, J 3 382.

[24] NELSON, E

J. Am. Pharm. Assoc. Sci. Ed., 1955, 44, 494.

[25] WALKER, E. E.

The properties of powders. Part VI. The compressibility of powders

Transactions of the Faraday Society, 19, 73 – 82, 1923.

[26] DENNY, P.J.

Compaction equations : a comparison of the Heckel and Kawakita equations

Powder Technology, 127, 162 – 172, 2002.

[27] KAWAKITA, K. and al.

Some considerations on powder compression equations

Powder technology, 4, 61 – 68, 1970/71.

[28] RUE, P.J. and REES, J.E.

Limitations of the Heckel relation for predicting powder compaction mechanisms

J. Pharm. Pharmac., 30, 642, 1978.

[29] COCCOZ, G.

Compactage à froid des poudres métalliques : Approche expérimentale et simulation numérique

Thèse, ENSMP, 1995.

[30] JAIN, S.

Mechanical properties of powders for compaction and tableting : an overview

PSTT vol.2, N°1, 1999.

[31] MACLEOD, H. M. and al.

Compaction of ceramics

Enlargement & compact of particulate solids, Butter Wortho 4 Co Ltd, U.K., 1983.

[32] BRISCOE, B. J. and ROUGH, S.L.

The effects of wall friction in powder compaction

Colloids & Surfaces, 137, 103 – 116, 1998.

[33] LI, Y. and al.

Wall friction and lubrication during compaction of coal logs

Powder technology, 87, 259 – 267, 1996.

[34] MONEDERO, P. M.

Study of the compaction mechanisms of lactose-based direct compression excipients using indentation hardness and heckel plots

J. Pharm. Pharmacol., 46, 177 – 181, 1994.

[35] TOUSSAINT, F.

Étude expérimentale et simulation numérique de la mise en forme par compression et frittage de poudres

Thèse, INPG, 2001.

[36] THACKER, H.S.

Instrumentation of tablet machines,

N.G. Stanley Wood (ed), in Enlargement and compaction of particulate solids, Butterworths & co ltd, Chap. 10, UK, 1983.

[37] MOSBAH, P.

Étude expérimentale et modélisation du comportement de poudres métalliques au cours du compactage en matrice fermée

Thèse, Univ. Joseph Fourier-Grenoble 1, 1995.

[38] LEIGH, S. and al.

Compression characteristics of some pharmaceutical materials

J. Pharm. Sci., 56, 888 – 892, 1967.

[39] CAMBOU, B. and JEAN, M.

Micromécanique des matériaux granulaires

Paris, Hermès Science Publications, 2001.

[40] FLECK, N.A. and al.

Yielding of metal powder bonded by isolated contacts

J. Mech. and Phys. solids, 40 (5), 1139 - 1162, 1992.

[41] FLECK, N.A. and al.

On the cold compaction of powders

J. Mech. and Phys. solids, 43 (9), 1409 - 1431, 1995.

[42] AYDIN, I. and al.

Dimensional variation of die-pressed ceramic green compacts : comparison of a finite element modelling with experiment

J. Europ. Ceramic Society, 17, 1201-1212, 1997.

[43] ZIPSE, H.

Finite element simulation of the die pressing and sintering of a ceramic component

J. Europ. Ceramic Society, 17, 1707-1713, 1997.

[44] POUYFAUCON, M.

Etude de l'homogénéité de poudres complexes : application à un mélange polyvitamine

Thèse en pharmacie, Bordeaux 2, ufr sci. pharm., 1994.

[45] WADE, A. and al.

Handbook of pharmaceutical excipients

2nd edition, Eds Wade A. and Weller P.J., Pharmaceutical press, London, GB, 1994.

[46] MASSOL-CHAUDEUR, S.

Caractérisation de l'état de mélange de poudres : cas de mélanges faiblement dosés

Thèse, INPL, Janvier 2000.

[47] BOLHUIS, G.K. and CHOWHAN, Z.T.

Materials for direct compaction

Pharmaceutical powder compaction technology (edited by G. Alderborn et C. Nyström),
Drugs & pharm. Sci., V71, 1995.

[48] ISIMI, C. Y. and al.

Effect of the diluent type on compressional characteristics of the mixed stem bark extract of
A-l and P-a tablet formulation

Acta Pharm., 53, 49-56, 2003.

[49] KAWAKITA, K.

Characteristic constants in Kawakita's powder compression equation

J. Powder Bulk. Solids Technol., 1, 3-8, 1977.

[50] SONNERGAARD, J.M.

Investigation of a new mathematical model for compression of pharmaceutical powders

Europ. J. Pharm. Sci., 14, 149-157, 2001.

[51] ES-SAHEB, M.H.

Uniaxial strain rate effects in pharmaceutical powders during cold compaction

J. of materials science, 27, 4151 - 4159, 1992.

[52] PITT, K. G. and al.

Stress distribution in doubly-convex cylindrical discs under diametral loading
J. Phys. (D), 22, 1114-1127, 1989.

[53] PITT, K. G. and al.

Effects of compaction variables on porosity and material tensile strength of convex-faced aspirin tablets

J. Pharm. Pharmacol., 42, 219-225, 1990.

[54] ROBERTS, R.J., ROWE, R.C. and YORK, P.

The poisson's ratio of microcrystalline cellulose

Int. J. of Pharm., 105, 177-180, 1994.

[55] KETOLAINEN, J. and al.

Photoacoustic evaluation of elasticity and integrity of pharmaceutical tablets

Int. J. of Pharm., 125, 45-53, 1995.

[56] STANLEY-WOOD, N. and al.

Variations in, and Relationships of surface area, internal angle of friction and compact diametral fracture strength with degree of compaction

Part. Part. Syst. Charact., 5, 186-192, 1988.

[57] NEDDERMAN, R.M.

Statics and kinematics of granular materials

Cambridge univ. Press, Cambridge, 1992.

[58] MICHRAFY, A., KADIRI, M.S. and DODDS, J.A.

Wall friction and its effects on the density distribution in the compaction of pharmaceutical excipients

Trans IchemE, vol 81, Part A, 946-952, September 2003.

[59] HAN, H.N., KIM, H.S., OH, K.H. and LEE, D.N.

Elastoplastic finite element analysis for porous metals

Powder Metallurgy, 37, n°2, 140-146, 1994.

[60] FARBER, L., TARDOS, G. and MICHAELS, J.N.

Use of X-ray tomography to study the porosity and morphology of granules

Powder Technology, 132, 57-63, 2003.

[61] NEBGEN, G., GROSS, D., LEHMANN, V. and MULLER, F.

¹H-NMR microscopy of tablets

J. Pharm. Sci., 84, 283-291, 1977.

[62] THOMAS, T.

Contribution à la compréhension des phénomènes physiques et métallurgiques intervenant durant la consolidation dynamique de poudres

Thèse de doctorat, ENSMP, 1992.

[63] HAGGBLAD, H.A.

Constitutive models for powder materials

Powder technology, 67, 127-136, 1991.

[64] LEMAITRE, J. et CHABOCHE, J.L.

Mécanique des matériaux solides

Dunod, 1996.

[65] ZAOUI, A.

Comportement des matériaux

cours E.N.S.T.A., 1983.

[66] DIMAGGIO, F. L., ASCE, M. and SANDLER, I.S.

Material model for granular soils

J. Engineering mechanics division, EM 3, 935- 950, 1971.

[67] DRUCKER, D. C., PRAGER, W.

Soil mechanics plastic analysis limit design

Quarterly of applied mathematics, 10, 157-165, 1952.

[68] DRUCKER, D. C. and al.

Soil mechanics and work-hardening theories of plasticity

Trans. ASCE, American society of civil engineers, 122, 338-346, 1957.

[69] HIBBIT, KARLSSON, and SORENSSON, Inc.

ABAQUS Theory Manual Version 5.8.

[70] MARTIN, C.L. and al.

Cohesion and dilatation of powder compacts containing hard phase particles under highly deviatoric stress states

Mechanics of materials, 32, 405-421, 2000.

[71] LIU MARTIN, D. and al.

A structured Cam Clay model

Research report n° R814, D. civil engineering, Univ. Sidney, Mars 2002.

[72] FRACHON, A.

Modélisation et simulation numérique de la compression en matrice de poudres métalliques

Thèse, INPG, 2002.

[73] DHATT, G. and TOUZOT, G.

Une présentation de la méthode des éléments finis
Collection Université de Compiègne, 1984.

[74] EVESQUE, P.

Mécanique des milieux granulaires
Poudres & Grains NS, 72-105, décembre 2000.

[75] PARK, H. and KIM, K.T.

Consolidation behavior of SiC powder under cold compaction
Materials Science and Engineering, A299, 116-124, 2001.

[76] CEDERGREN, J. and al.

Three-dimensional analysis of compaction of metal powder
Mechanics of materials, 34, 43-59, 2002.

[77] KHOEI, A.R. and LEWIS, R.W.

Finite element simulation for dynamic large elastoplastic deformation in metal powder forming

Finite elements in analysis and design, 30, 335-352, 1998.

[78] TRAIN, D.

An investigation into the compaction of powders
J. Pharm. Pharmacol., 8, 745-761, 1956.

[79] AL-KHATTAT, I.M. and AL-HASSANI, S.T.S.

Towards a computer-aided analysis and design of tablet compaction
Chem. Eng. Sci., vol 42, n°4, 707-712, 1987.

[80] KADIRI, M.S., MICHRAFY, A. and DODDS, J. A.

Compaction de poudres pharmaceutiques : analyse expérimentale et modélisation numérique de la distribution de la densité

Récents Progrès en Génie des Procédés, 4^{ème} colloque « science et technologie des poudres »
Compiègne, 4-6 Mai 2004.

[81] A. MICHRAFY, J.A. DODDS and M.S. KADIRI

Wall friction in the compaction of pharmaceutical powders : measurement and effect on the density distribution

148, 53-55, Powder Technology 2004.

[82] DUVAUT, G.

Mécanique des milieux continus
Ed. Masson, 1990.

[83] ODEN, J.T., MARTINS, J.A.C.,

Models and computational methods for dynamics friction phenomena

Comp. meth. In app. mech. & eng., 52, 527-634, 1985.

[84] RODIC, T., OWEN, D.R.J.,

Plasticity theory friction joint element

Comp. Plasticity : models, soft. & app. Part II, 1043-1062, 1989.

[85] KIKUCHI, N., ODEN, J.T.

Contact problem in elasticity : a study of variational inequalities and finite element methods
SIAM, 1988.

[86] CIARLET, P.G.

Introduction à l'analyse numérique matricielle et à l'optimisation

Ed. Masson, 1985.

[87] SINKA, I.C. and al.

Measurement of density variations in tablets using X-ray computed tomography

Int. J. of pharmaceutics, 271, 215-224, 2004.

[88] EILIAZADEH, B. and al.

Effects of punch geometry on powder movement during pharmaceutical tableting processes

Int. J. of solids and structures, 41, 5967-5977, 2004.

RESUME

L'objet de cette thèse est l'étude de poudres pharmaceutiques au cours de la compression en matrice. Une étude expérimentale de caractérisation des propriétés mécaniques des poudres, des comprimés et du frottement entre la poudre et l'outillage a été réalisée. Par ailleurs, pour étudier la relation entre les propriétés des poudres et celles du comprimé formé, un modèle de comportement mécanique a été proposé dans le cadre de la mécanique des milieux continus compressibles. Les paramètres matériaux du modèle ont été identifiés à partir des données expérimentales. La formulation mathématique du problème aux limites de la compression dans un outillage rigide se ramène à un problème d'optimisation avec contraintes qui est résolu par éléments finis. Les simulations numériques ont été réalisées sur plusieurs formes de comprimés. Les résultats montrent que le modèle rend bien compte du comportement de la poudre en compression et fournit un outil de suivi de la densité pendant la compression.

PHARMACEUTICAL POWDER COMPACTION AND INTERACTION WITH TOOLS

EXPERIMENTAL ANALYSIS AND NUMERICAL MODELISATION

ABSTRACT

The object of this thesis is the study of pharmaceutical powders during die compaction. An experimental study was used to characterize the mechanical properties of powders, of tablets and the friction between powder and tools (die and punches). In order to study the relationship between the powder and the formed tablet properties, a model of mechanical behavior was proposed using the approach of compressible continuous media. The model parameters were identified from experimental data with two types of procedures. In addition, the mathematical formulation of the boundary problem of compaction in rigid tools brings back to an optimization problem with constraint which is solved by finite element method. The numerical simulations were carried out on several shapes of tablets. The results show that the model accounts well for the powder behavior during die compaction and provides a mean to follow the density during compaction.

DISCIPLINE : GENIE DES PROCEDES ET ENVIRONNEMENT

MOTS CLES : compression en matrice, distribution de densité, frottement poudre-outils, comportement mécanique, simulation numérique, éléments finis.

Laboratoire de génie des procédés et solides divisés (LGPSD UMR 2392)

Ecole des Mines d'Albi-Carmaux Campus Jarlard, 81013 ALBI Cedex 09, France
