Approche continue appliquée à la mise en forme de matériaux granulaires.

Abderrahim Michrafy

▶ **To cite this version:**

Abderrahim Michrafy. Approche continue appliquée à la mise en forme de matériaux granulaires. : Procédés de compactage de poudres. Génie des procédés. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2011. tel-04418803

HAL Id: tel-04418803

https://imt-mines-albi.hal.science/tel-04418803

Submitted on 26 Jan 2024

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

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

Université Paul Sabatier de Toulouse

Ecole Doctorale : Mécanique, Energétique, Génie civil & Procédés

Habilitation à Diriger des Recherches

Présentée par

Abderrahim MICHRAFY

RAPSODEE-FRE CNRS 3213, Ecole des Mines, Albi

Approche continue appliquée à la mise en forme de matériaux granulaires. Procédés de compactage de poudres

HDR soutenue le 31 Mai 2011 à l'Ecole des Mines d'Albi, devant le jury :

P. Dorémus	Professeur des Universités, INPG, Grenoble	*Rapporteur*
P. Guigon	Professeur des Universités, UTC, Compiègne	*Rapporteur*
H. Muhr	Directeur de Recherche CNRS, LRGP, Nancy	*Rapporteur*
B. Biscans	Directeur de Recherche CNRS, LGC, Toulouse	
P. Laborde	Professeur des Universités, UPS, Toulouse	
P. Tchoreloff	Professeur des Universités, Paris-Sud, Paris	
G. Thomas	Professeur Emérite EMSE, St-Etienne	*Directeur HDR*
R. David	Directeur de la Recherche, Mines Albi	
J. Dodds	Visiting Professeur, UNSW, Sidney, Australie	

Remerciements

Les travaux de recherche présentés dans ce document ont été effectués au laboratoire RAPSODEE-FRE CNRS (Génie des Procédés des SOlides Divisés de l'Energie et de l'Environnement) de l'Ecole des Mines d'Albi.

Je tiens à remercier R. David et J. Dodds qui, les premiers, m'ont fait confiance lors de l'intégration en 2001 de l'Unité Mixte CNRS et qui m'ont donné l'opportunité de mener à bien ces travaux de recherche. Qu'ils veuillent bien accepter toute ma reconnaissance.

Je remercie également tout le personnel qui de près ou de loin a aidé au développement de cette activité par son aide technique, son soutien et par sa contribution à la qualité de l'environnement de travail.

Je tiens à exprimer mes sincères remerciements à Pierre Dorémus, Pierre Guigon et Hervé Muhr qui ont eu la charge de rapporter sur mon manuscrit. Qu'ils veuillent bien accepter ma gratitude.

Je remercie chaleureusement Béatrice Biscans, Patrick Laborde et Pierre Tchoreloff qui ont accepté de participer à ce jury et d'évaluer ces travaux. Leurs encouragements furent constants et leurs suggestions précieuses.

Un grand merci à Gérard Thomas, mon Directeur HDR, qui a orienté et guidé ce travail et qui n'a pas hésité à me faire profiter de son expérience. Je tiens à lui exprimer toute ma reconnaissance.

Les résultats présentés dans ce mémoire sont le fruit de travaux de collaborations et d'encadrements de doctorants, de masters et de stagiaires sans qui, ces travaux n'auraient pas avancé. Je les remercie chaleureusement.

Enfin, merci à tous ceux qui font que venir au travail est un réel plaisir !

SOMMAIRE

Partie A : Curriculum Vitae **1**

Partie B : Activités d'enseignement **3**

1. Parcours en enseignement 3
2. Bilan de l'activité enseignement 4
3. Encadrement de stages de fin d'études d'élèves ingénieurs de l'Ecole des Mines d'Albi 5

Partie C : Activités de Recherche **7**

1. Parcours scientifique pluridisciplinaire 7
2. Encadrements et co-encadrements 8
3. Participation à des jurys de 3ème cycle 9
4. Participation à des programmes nationaux et européens 9
5. Collaboration avec le milieu industriel 10
6. Review d'articles 10
7. Activités collectives 11
8. Production scientifique 11

Partie D : Thématique de Recherche **15**

1. Positionnement de mes activités de recherche 15
2. Thème de recherche 16

Chapitre I : Techniques expérimentales de caractérisation de procédés de compactage **19**

I.1 Procédé de compression en matrice **21**

1. Essai triaxial 22
2. Essais en matrice rigide instrumentée 22
3. Méthodes d'analyse 23
4. Frottement poudre-matrice 27
5. Quelques résultats significatifs 28
6. Propriétés élastiques 39

Conclusion I.1 **40**

I.2 Procédé de compactage à rouleau*x* **43**

1. Presse à rouleaux et instrumentation 44
2. Processus de compactage à rouleaux 46
3. L'alimentation 50
4. Homogénéité des plaquettes compactées 51
5. Vitesse de compactage 55
6. Friction 56

Conclusion I.2 **59**

Chapitre II : Modélisation de comportement de poudres en compression **61**

1. Modèles pour la compression de poudres 61
1.1 Modèles de type «métal poreux» 62
1.2 Modèles à fermeture (ou à Cap) 62
1.3 Principaux mécanismes de déformation 63
1.4 Critères de choix du modèle 64
1.5 Fonction de charge de Drucker Prager Cap 65
2. Identification des paramètres du modèle de Drucker Prager Cap 68
2.1 Cohésion et angle de frottement 68
2.2 Fonction de durcissement P_b et excentricité R 69
2.3 Autre procédure d'identification des paramètres 72
Conclusion II **73**

Chapitre III : Simulation numérique de procédés de compactage **75**
III.1 Simulation numérique du procédé de compression en matrice **77**
Quelques résultats significatifs **77**
1.1 Géométrie et définition du problème 77
1.2 Déformation du lit de poudre 78
1.3 Distribution de densité 80
1.4 Validations 81
Conclusion III.1 84
III.2 Simulation numérique du procédé de compactage à rouleaux **85**
2.1 Simulation du procédé en 2D **87**
1.1 Procédure de simulation 87
1.2 Analyse du processus de déformation 88
1.3 Distribution de densité 89
1.4 Sensibilité du modèle aux paramètres 90
2.2 Simulation du procédé en 3D **93**
2.1 Distribution de densité dans la largeur de la plaquette 93
Conclusion III.2 **94**

Conclusion et perspectives **95**

Références bibliographiques **101**

Quelques références bibliographiques personnelles **106**

Partie A : Curriculum Vitae

Présentation

Nom : MICHRAFY

Prénom : Abderrahim

Né(e) le : 6 juin 1961 au Maroc

Nationalité : Française

Fonction : Ingénieur de Recherche CNRS

Formation Universitaire

1980	Baccalauréat C, Casablanca, (Maroc)
1982	DEUG Mathématiques Physiques à l'Université de Rabat (Maroc)
1983	Licence de Mathématiques Appliquées à l'Université de Bordeaux
1984	Maîtrise de Mathématiques Appliquées à l'Université de Bordeaux
1985	DEA de Mathématiques Appliquées à l'Université de Bordeaux
1988	Doctorat de l'Université de Bordeaux (Mathématiques Appliquées)
1986 - 87	Séjour d'une année au Laboratoire de Mécanique des Solides (LMS) de l'Ecole Polytechnique (Palaiseau).

Expériences professionnelles

1988 – 89 *Allocataire d'enseignement et de recherche à l'Université de Bordeaux*

À l'Institut des Sciences Humaines Appliquées (ISHA) qui prépare à une Maîtrise, je m'occupais de cours et de travaux dirigés en mathématiques (Algèbre et Analyse) pour les élèves de niveau Bac+2.

1989 –96 *Ingénieur Systèmes et réseaux informatiques et responsable du centre de calcul au laboratoire des Sciences du Génie Chimique, Nancy*

Recruté au CNRS sur concours externe (Ingénieur de Recherche), j'ai travaillé en tant qu'ingénieur systèmes et réseaux informatiques et responsable du centre de calcul de la Craffe (centre de calcul commun à l'ENSIC, le LSGC et à deux UMR (DCPR et LCPM). Ma mission consistait à maintenir et à développer un réseau de systèmes hétérogènes MacOs, Windows, Unix (Sun, HP, Dec et IBM), à mettre en place des outils numériques et à animer le centre calcul par des formations aux utilisateurs (doctorants et chercheurs). J'avais aussi quelques missions de recherche avec le Professeur J. Villermaux.

1997 –00 *Ingénieur de recherche en calcul scientifique au CROMeP, actuellement ICA A, Ecole des Mines d'Albi (mise à disposition)*

Dans le cadre de la mobilité au CNRS, j'ai rejoint le Centre Matériaux (actuellement ICA A) de l'Ecole des Mines d'Albi où j'ai intégré l'axe de recherche Modélisation et Conception des Outillages dirigé par le Professeur Rolland Fortunier. J'ai essentiellement travaillé sur la modélisation de procédés de mise en forme comme le laminage à chaud et la fonderie gravitaire.

2001 – 10 *Ingénieur de Recherche CNRS au Laboratoire du Génie des Procédés des Solides Divisés LGPSD (UMR 2392), actuellement RAPSODEE (FRE 3213), Ecole des Mines d'Albi*

Dans cette nouvelle mission, j'ai intégré l'axe de mise en forme de poudres dirigé par le Professeur J. Dodds et ensuite par Driss Oulahna, HDR. J'ai monté une activité de recherche sur les procédés de compression de poudres et sur la granulation sèche par compactage à rouleaux.

Partie B : Activités d'enseignement

1. Parcours en enseignement

- 1988 – 89 *Université de Bordeaux*

Allocataire d'Enseignement et de Recherche à l'Université à l'Institut des Sciences Humaines Appliquées (ISHA) qui prépare à une Maîtrise en Sciences Humaines, je m'occupais de cours et de travaux dirigés en mathématiques (Algèbre et Analyse) pour les élèves de niveau Bac+2.

- 1991- 93 *Ecole Européenne des Ingénieurs en Génie des Matériaux*

Vacataire à l'Ecole Européenne des Ingénieurs en Génie des Matériaux (EEIGM) à Nancy, j'avais la charge des cours et TD en Informatique (Architectures des systèmes et langages de programmation), niveau 1° année du cycle ingénieur. J'ai monté une salle informatique de micro-ordinateurs en réseau Ethernet pour les TPs et rédigé un polycopié pour le support du cours (60 pages).

- 1991 – 96 *Centre commun de calcul (LSGC – ENSIC à Nancy)*

Formation des utilisateurs du centre de calcul dont j'étais responsable. Public : chercheurs, doctorants :
- Une formation en analyse numérique pour les systèmes différentiels et intégro-différentiels
- Une formation sur l'utilisation du système Unix et du réseau informatique. J'ai rédigé un manuel d'utilisation de 90 pages.

- 1997 – 10 *Ecole des Mines d'Albi-Carmaux*

1997 – 98 : TD en interpolation polynomiale, niveau 2ème année
TD de calcul tensoriel, niveau 2ème année

1998 – 99 : Cours Mécanique des Milieux continus , niveau 2ème année

1999 – 01 : Cours et TP, éléments finis, Option Matériaux, 4ème année. J'ai rédigé un polycopié pour le support du cours (50 pages).

1998 – 10 : TP Calcul de structures, niveau 3ème année

2001 – 10 : Cours en option pharmaceutique, 4ème année sur les procédés de compactage

2009 – 10 : Nouveau cours et TP sur les coques et les plaques, option Ingénierie et Matériaux (4ème année)

2010 : Formation par apprentissage, module de mise en forme, niveau 1ère année cycle ingénieur

- 2004 – 08 *IUT de Castres*

TP sur la mise en forme de poudres par compression

- 2010 *Faculté de Pharmacie (Chatenay Malabry)*

  Cours sous forme de conférence, niveau Master

- *2008 –10 Formation donnée en entreprise*

  Formation à Sanofi-Aventis (Vitry/Seine et Montpellier) sur les procédés de compactage et de granulation sèche, niveau : techniciens et ingénieurs (5 journée)

2. Bilan de l'activité enseignement

Les enseignements indiqués par (*) correspondent à un nouveau cours et à la rédaction de document.

Année	Matières	Cours / TD	Etablissement	Niveau	Nb heures/an
1986/89	Algèbre et analyse	Cours & TD	Univ. Bordeaux	2° DEUG	20
1988/89	Algèbre et analyse (*)	Cours & TD	" " "	2° DEUG	196
1991/93	Langage de programmation (*)	Cours & TP	EEIGM-Nancy	1° année	45
1991/96	Système Unix et outils réseaux (*)	TP	LSGC-Nancy	Doctorants & chercheurs	64
1997/98	Interpolation	TP	EMAC	2° année	15
	Calcul tensoriel	TD	" " "	" " "	15
1998/99	Mécanique des fluides	Cours & TD	" " "		15
	Calcul de structures	TD & TP			15
	Compléments d'éléments finis (*)	Cours & TP		3° année	15
1999/00	" " "	Cours & TP		" " "	30
	Calcul de structures	TP		2° année	15
2000/01	Compléments d'éléments finis	Cours & TP		3° année	30
	Calcul de structures	TP		2° année	15
2001/02	" " "	TP		" " "	12
	Procédés de compression	Cours	" " "	3° année	3
2002/09	Calcul de structures	TP	" " "	2° année	12
	Procédés de compression	Cours	" " "	3° année	3
2008/09	Compactage à rouleaux (*)	Cours (formation)	Sanofi-Aventis (Vitry/Seine)	ingénieurs et techniciens	16
2009/10	Plaques et coques (*)	Cours & TP	EMAC	3° année	4,5
	Calcul de structures	TP	" " "	2° année	12
	Procédés de compression	Cours	" " "	3° année	3
	mise en forme de poudres par compctage	TP	" " "	Apprentissage	10,50
2009/10	Compactage à rouleaux	Cours (formation)	Sanofi-Aventis (Montpellier)	ingénieurs et techniciens	24
2009/10	Compactage à rouleaux	Cours	Fac. de Pharmacie (Chatenay Malabry)	Master	2,50

3. Encadrement de stages de fin d'études d'élèves ingénieurs de l'Ecole des Mines d'Albi

En dernière année de leur cycle d'ingénieur, les élèves de l'Ecole des Mines effectuent un stage de fin d'études en entreprise qui est d'une durée de 5 à 6 mois. Un enseignant chercheur est choisi ou désigné pour le suivre dans son stage, lui rendre visite au moins une fois sur son lieu de stage pour s'assurer du bon déroulement de celui-ci, corriger son rapport de stage, organiser sa soutenance par une répétition avant la soutenance.

Il n'est pas facile de chiffrer cette activité qui dépend du sujet de stage et son intérêt pour l'encadrant, de l'aide scientifique qu'a l'élève dans son entreprise.

1998 : Gérard Steinmetz, TFE, stage de 6 mois au CROMeP stage en liaison avec Sollac (Group Usinor) à Florange

1999 : Guillaume Lavinal, TFE, stage de 8 mois à Sollac (Group Usinor) à Foss sur Mer

2000 : Jean-Marc Stojanovic, TFE, stage de 6 mois à Framatome

2001 : Laurent Risher, TFE, stage de 8 mois au CEA (Bordeaux)

2001 : Bertrand Hidas, TFE, stage 6 mois à Sanofi-Synthelabo (Centre Industriel de Tours)

2001 : Martin Laudijois, TFE, stage de 9 mois à EPMO (groupe Elizabeth Carbide)

2002 : Julien Buguand-Buguandet, TFE, stage de 6 mois à Yves Saint-Laurent

2005 : Gaëlle Menguy, TFE, stage 9 mois à Servier Industrie.

Partie C : Activités de Recherche

Parcours scientifique pluridisciplinaire

Après une licence, une maîtrise et un DEA de mathématiques appliquées à l'Université de Bordeaux, j'ai préparé ma thèse de doctorat au département de Mathématiques Appliquées entre 1985 et 1988 sous la direction de Patrick Laborde avec un séjour d'une année au Laboratoire de Mécanique des Solides (LMS) de l'Ecole Polytechnique (Palaiseau). Mon sujet de recherche portait sur la modélisation de l'endommagement des matériaux composites thermostructuraux SiC/SiC (Carbure de Silicium) en collaboration avec la Société Européenne de Propulsion (SEP) actuellement SNECMA. Plus précisément, la modélisation a été réalisée dans le cadre de la plasticité standard généralisée développée dans les travaux de Nguyen Quoc Son [Nguyen,1977]. Dans cette modélisation, la microstructure a été représentée par deux variables d'état représentant l'endommagement et l'écrouissage [Laborde,1990][Laborde,1991]. La variable d'endommagement et son évolution ont été décrites par l'approche de la contrainte effective développée dans les travaux de Chaboche [Chaboche,1982] et Lemaitre [Lemaitre,1985]**.** C'est à la fois ce concept physique basé sur des variables d'état décrivant la microstructure (dans le cadre de la mécanique des milieux continus) et identifiables par des essais mécaniques et le formalisme de la plasticité standard généralisée qui ont guidé la suite de mes orientations.

En octobre 1989, J'ai eu l'opportunité d'intégrer le CNRS sur concours externe, sur un poste d'Ingénieur de Recherche au Laboratoire des Sciences du Génie Chimique (LSGC) de Nancy. À cette occasion, j'ai pu découvrir le Génie des Procédés et les réacteurs chimiques en travaillant à mi-temps sur des modélisations de micro mélange dans les réacteurs [Villermaux,1990]. Le reste de mon activité était consacré au service systèmes et réseaux du pôle de la Craffe où j'étais responsable du centre de calcul. Cette dernière activité de service, à priori non valorisable dans le domaine de la recherche, reste néanmoins une expérience passionnante et riche sur le plan technique et humain.

De 1997 à 2000, j'ai bénéficié du programme de mobilité du CNRS pour rejoindre le centre Matériaux (actuellement Institue Clément Ader ICA-A) de l'Ecole des Mines d'Albi où j'ai intégré l'axe de recherche "Modélisation et Conception des Outillages".
Cette nouvelle situation m'a donné l'opportunité de développer une recherche originale orientée vers l'optimisation des propriétés du produit manufacturé (outillage) par la compréhension des relations entre les propriétés du matériau et des paramètres du procédé. Ce fut le cas dans le Master Recherche de Vincent Velay [Velay,1999] sur le procédé de laminage à chaud, du Master Recherche de Sonia Broucaret [Broucaret,1998] sur le transfert thermique dans les moules de fonderie et dans la collaboration avec Gilles Dour, enseignant chercheur au CROMeP, dans le cadre de la thèse de Gabriel Diaconnu [Diaconnu,2000] en partenariat avec le centre de recherche Pont-à-Mousson.

En 2001, l'intégration de l'Unité Mixte CNRS, laboratoire de génie des procédés des solides divisés, m'a conduit à un changement de thématique, mais c'était aussi l'opportunité de s'ouvrir à de nouveaux domaines de recherche. Après une période de réflexion, j'ai choisi d'animer un nouveau thème de recherche au laboratoire sur les procédés de compactage de poudres. Ce projet constituait à mon sens une ouverture scientifique associée à une continuité dans la démarche scientifique développée jusqu'alors.

2. Encadrements et co-encadrements

- *DEA et Master Recherche*

Co-encadrement du DEA de Sonia Broucaret; durée du stage 8 mois ; Formation Doctorale Génie mécanique, Tarbes, 1999 (taux d'encadrement : 50%)

Encadrement du DEA de Vincent Velay, durée du stage 6 mois ; Formation Doctorale Mathématiques Appliquées, Toulouse, 2000 (taux : 100%)

Encadrement du Master Recherche de Marcin Balicki, Master of Cooper Union University, NewYork, durée du stage 7 mois, 2003 (taux : 100%)

Encadrement du Master Recherche de Clément Possoz, durée du stage 8 mois ; Formation Doctorale Mathématiques Appliquées, Université Pierre & Marie Curie, 2006 (taux d'encadrement=100%)

- *Doctorants*

Co- encadrement de la thèse de Moulay Saddik KADIRI (2001 - 04), Directeur de thèse: J A Dodds, taux d'encadrement : 80%

Co-encadrement de la thèse de Harona Diarra (2005 – 08), Directeur de thèse : J A Dodds, taux d'encadrement : 90 %.

Co-encadrement de la thèse de Atef Dhaouadi (2009 – 12), Directeur de thèse : D. Oulahna, HDR, taux d'encadrement : 60%.

Co-encadrement de la thèse de Gabriel Diaconnu (CROMeP) pendant un an, lors de l'année sabbatique en Australie de son encadrant principal Gilles Dour (2003 - 04)

Co-encadrement de la thèse de Stefan Haas (doctorant Allemand) pendant son séjour à Albi (3 mois), 2003.

Co-encadrement de la thèse de Daniela Herold (doctorante Allemande) pendant son séjour à Albi (1 mois) en 2006 dans le cadre de programme Franco-Bavarois.

- *Postdoc*

Encadrement de post doc de M. S. Kadiri : 2 mois en 2005
Encadrement de post doc de Thierry VALLET, 6 mois, 2006-2007

- *Stages de fin d'études d'élèves IUT : Clermont-Ferrand et Toulouse*

Une douzaine d'élèves en stage d'une durée de 4 mois prolongés pour certains à 6 mois.
C. Simon, V. Raspal, F. Boudon, , F. Pierron, G. Penide, Y. Cottin, D. Visie, K. Choquet, A. Desormière, M. Chelhi, O. Doukar, A. Broussoux

3. Participation à des jurys de 3ème cycle

- ***Jury de DEA :***

DEA « Génie mécanique », Ecole d'Ingénieurs de Tarbes (ENIT)
Sonia Broucaret, Modélisation du transfert thermique dans un moule de fonderie,
soutenu en juin 1999

DEA « Mathématiques Appliquées», Université de Toulouse
Vincent Velay : Optimisation des paramètres matériau et procédé d'un laminoir cylindrique soutenu en juin 2000

Master Recherche **«** Master of the Cooper Union University, NewYork, USA »
Marcin Balicki, Numerical methods fo predicting roll press powder compaction parameters
soutenu en juillet 2003

Master Recherche « Mathématiques appliquées, Université Pierre & Marie Curie »
Clément Possoz, Modélisation thermomécanique de la compression de poudres cohésives,
soutenu en août 2006.

- ***Jury de THÈSE***

Examinateur de **M. S. Kadiri**, Compression de poudres pharmaceutiques et interaction avec l'outillage,
Thèse de l'INPT de Toulouse soutenue à Albi le 30 novembre 2004

Examinateur de **H. Diarra**, Procédé de compactage à rouleaux : Etude expérimentale et modélisation tridimensionelle par éléments finis
Thèse de l'INPT de Toulouse soutenue à Albi le 12 décembre 2008

Examinateur de **Harthong**, Modélisation du comportement de poudres métalliques à l'échelle du grain
Thèse de l'INPG, Grenoble, soutenue à Grenoble le 21 octobre 2010

4. Participation à des programmes nationaux et européens

- Montage de projet de coopération entre RAPSODEE et le laboratoire Allemand du professeur K. SOMMER « Chair of Process Engineering TU München – Weihenstephan » (01/01/2005 - 30/06/2006). Ce projet intitulé «Numerical modelling of rolling compaction process» a été financé par le centre interuniversitaire Franco-Bavarois. Deux chercheurs et un thésard d'Albi ont effectué un

séjour en Allemagne et réciproquement deux thésards Allemands ont effectué un séjour à Albi.

- Partenaire du programme de coopération Franco-Thaïlandais pour l'enseignement supérieur et la recherche, intitulé « Modélisation numérique de procédés d'élaboration à partir de la métallurgie des poudres » (2005 – 2008).

Les porteurs du projet :

Côté Français : Professeur Didier Bouvard et Christophe Martin (Directeur de Recherche) de l'Institut National Polytechnique de Grenoble (INPG), Laboratoire Génie Physique et Mécanique des Matériaux (GPM2)-ENSPG

Côté Thaïlandais : Dr. Julaluk Carmai of the King Mongkut's Institute of Technology North Bangkok (KMITNB).

- ANR IMCAT (Innovative Materials for CO_2 Captured by Adsorption Technology) sur le développement de solutions technologiques pour le captage du CO_2 des gaz de fumés à l'aide de nouveaux adsorbants. Quatre partenaires ont participé à ce projet : Air Liquid, L'Ecole Nationale Supérieure de Chimie de Paris, L'Institut de Chimie Moléculaire de l'Université de Bourgogne et l'Ecole des Mines d'Albi-Carmaux (2006 – 2009).

- Partenaire du projet « Marie Curie Initial Training Networks - ITN » du 7° PCRD. Appel : PF7-People-2011-ITN. Soumis en janvier 2011.

5. Collaboration avec le milieu industriel (avec remise de rapports)

2000-2002 : Société EPMO (Groupe Elizabeth Carbide) à Gien : Interaction outillage et compression de poudres.

2003-2004 : Société Sport Loisir Création (Tarn), Dimensionnement de plate-forme gonflable pour l'amorti de chute. Application au sport de loisir.

2004-2005 : Société Lhoist, Belgique, granulation sèche de poudres pour l'agriculture.

2005-2006 : Air Liquid, Paris, Mise en forme de poudres pour des applications d'adsorption de gaz.

2006-2007 : Société Weishardt, Graulhet (Tarn), faisabilité du compactage de poudres de gélatine et propriétés de dissolution

2010-2011 : Société Galderma, Aptitude à la compression uniaxiale de poudres de Lymécyline.

6. Review d'articles pour

Powder Technology,

Trans IchemE,

Industrial & Engineering Chemistry Research,

Chemical Engineering Science,

Particulate Science and Technology,

Drug Development and Industrial Pharmacy.

8. Activités collectives

- Membre du comité d'organisation du congrès EUROTHERM 81 qui s'est déroulé à Albi en juin 2007 organisé par l'IMFT, le CNRS, l'Ecole des Mines d'Albi et l'Université de Manchester. J'ai développé le site Web du congrès et assuré l'intégration des publications des participants sur le site.
- Membre du comité d'organisation du Jubilé de J. A. Dodds en 2008. Conception du site Web de l'événement organisé sous forme de colloque scientifique
- Représentant Hygiène et Sécurité pendant un an
- Mise à jour du site Web
- Installation et mise à jour de certains logiciels de calcul (Parsival, PFC,…).

9. Production scientifique

- ***Revues nationales et internationales à comité de lecture***

A. Michrafy, D. Ringenbacher, P. Tcheroloff, Modelling the compaction behaviour of powders : application to pharmaceutical powders,
Powder Technology, 127 (2002), pp. 257-266

A. Michrafy, M. S. Kadiri and J. A. Dodds, Wall friction and its effects on the density distribution in the compaction of pharmaceutical excipients,
Trans. IchemE, Vol 81, Part A (2003), pp. 946-951.

A. Michrafy, J.A. Dodds, M.S. Kadiri, Wall friction in the compaction of pharmaceutical powders: measurement and effect on the density distribution,
Powder Technology, 148 (2004), pp. 53-55

M.S. Kadiri , A. Michrafy, J. A. Dodds, Pharmaceutical powders compaction: experimental and numerical analysis of the density distribution,
Powder Technology, 157 (2005), pp. 176-182

A. Michrafy, S. Haas, M. S. Kadiri, K. Sommer, J. A. Dodds, The effects of ambient temperature on the compaction behaviour of pharmaceutical powders,
Journal of Process Mechanical Engineering, Vol. 220, Number 1 (2006), pp. 1-6

A. Michrafy, M. Michrafy, M.S. Kadiri, J.A. Dodds, Predictions of tensile strength of binary tablets using linear and power law mixing rules
Int. J. Pharmaceut., 333 (2007), 118-126.

G. Dour, F. Medjedoub, G. Diaconu, D. Girardin, A. Michrafy, T. Loulou and F. Rézaï-Aria,
Size effect in transient thermal fatigue testing and Thermo-mechanical screening of coatings
Int. J. Microstructure and Materials Properties, Vol. 3, Nos. 2/3,(2008), pp. 311-325

A. Michrafy, H. Diarra, J. A. Dodds, Compaction behavior of binary tablets
Powder Technology 190 (2009) 146–151

Z. Hatim, A. Michrafy, M. Elassfouri, F. Abida , Stoichiometry and Particles Morpphology Effects on the Aptitude to the Compaction of Apatitic Structure Powders
Powder Technology 190 (2009) 210-214

A. Michrafy, H. Diarra, J.A Dodds, M. Michrafy, L. Penazzi, Analysis of strain stress state in roller compaction process,
Powder Technology, 208 (2011) 417-422

A. Michrafy, H. Diarra, J. A. Dodds, M. Michrafy, Experimental and numerical analysis of homogeneity over strip width in roll compaction,
Powder Technology 206 (2011) 154–160

G. Dour, S. Broucaret, A. Oudin, A. Michrafy, F. Rézaï-Aria
Rôle du poteyage initiale du moule sur les sollicitations thermomécaniques des moules permanents de fonderie,
Matériaux & Techniques, n° Hors Série, Décembre 2000

S. Broucaret, A. Michrafy, G. Dour, Heat transfer and thermo-mechanical stress in gravity casting die; influence of process parameters,
J. of Materials Processing Technology, 110, (2001), 211-217

Publications issues de ma thèse

P. Laborde, A. Michrafy, On general constitutive equations involving damage,
Eur. J. Mech., A/Solids, 10, (1991), 213-237

P. Laborde, A. Michrafy, Une inclusion différentielle en théorie de l'endommagement
C.R.A.S., (1990)

- ***Conférences à titre invité***

Design and Mechanical analysis of tools and tablet compaction of pharmaceutical powders,
Centre de Recherche de Bayer® à Luverkusen – Germany, Mars, 2001

Roller compaction process, from the theory to the practice
Sanofi Aventis R&D, Vitry sur Seine, novembre, 2004

Review of recent measurements and modelling of rolling compaction of powders,
Meeting on tabletting and Roller Compaction (IchemE), Birmingham (UK), Novembre 2006

Propriétés d'excipients SMCC et MCC en compression
APGI (Association de Pharmacie Galénique Industrielle) et JRS Retenmaïer, Paris, Mars 2006

- ***Congrès nationaux et internationaux avec actes***

Broucaret S. Michrafy Abderrahim ; Ladevie Bruno ; Dour Gilles, Heat transfer in a gravity casting die : influence of process parameters
SHAKER VERLAG, 2000, pp. 705-712, ISBN 0-8265-7230-0

A. Michrafy, J.A. Dodds and M. S. Kadiri, Wall friction in the compaction of pharmaceutical powders: measurement and effect on the density distribution
Americain Institute of Physics, International Conference October 13-18th, Badajoz, Spain, 2003

M.S. Kadiri, A. Michrafy and J.A. Dodds, Compression de poudres pharmaceutiques et interaction avec l'outillage: Analyse expérimentale et modélisation numérique
9ème congrès de la Société Française de Génie des Procédé, St-Nazaire, 2003

Kadiri Moulay, Michrafy Abderrahim, DODDS John, A., Compression des poudres pharmaceutiques : analyse expérimentale et numérique de la distribution de densité
TEC & DOC - LAVOISIER, 2004, n° 91. - 9 p.
ISBN 2-910239-65-9

M. S. Kadiri, A. Michrafy, J. A. Dodds, Modélisation du comportement mécanique de poudres en compression
Proceeding of The Second International Conference "Nonlinear Phenomena, Modelling and Analysis", 2005, Errachidia, Morrocco

Michrafy A., Haas S., Kadiri M. S., Dodds J. A., Effects of die and punches temperature on the compaction of pharmaceutical powders
The Industrial Pharmacist Group, 2005, pp. 311-316 ISBN 974-9717-76-7

Diaconu, G., Loulou, T., Michrafy, A., Rezai Aria, F., Girardin, D. and Dour, G.,
A normalised approach to optimize the coating/substrate couples with regards to thermal stresses : conditions for thermo-mechanical screening,
Thermal Stresses 2005, Vienna, pp. 111-114, in F. Ziegler, R. H. a. C. A. (Eds.)

John A. Dodds, A. Michrafy, Uni-axial Powder Compaction: Measurements and Modelling
Meeting on tabletting and Roller Compaction (IchemE), Birmingham (UK), Novembre 2006

Dour Gilles, Medjedoub Farid , Diaconnu Gabriel , Girardin D., Michrafy Abderrahim, Loulou Tahar, Rezai-Aria Fahrad, Size effect in transient thermal fatigue testing and thermo-mechanical screening of coatings
Politecnico di Torino, 2006, vol. 2. - p. 555-562 , ISBN 88-8202-018-5

A. Michrafy, Compression de poudres pharmaceutiques en matrice: analyse expérimentale et modélisation
Journées sur les procédés de traitement et de mise en forme de solides divisés en voie séche, 16-17 mai 2006, Toulouse (Proceeding sur CD-ROM).

A. Michrafy, M. S. Kadiri, J.A. Dodds , Résistance mécanique de comprimés binaires concaves : effets de courbure et de proportions de mélange
Science et technologie des poudres & matériaux frittés, Ecole des Mines d'Albi, 23 – 25 mai 2007

Michrafy Abderrahim, Dodds John Allan, Kadiri Moulay Saddik, Modelling of pharmaceutical powder compaction and its sensitivity to powder properties and tablet curvature
SFGP, 2007, St-Etienne.

H. Diarra, A. Michrafy, J. A. Dodds, Three-dimensional FEM analysis of rolling compaction of pharmaceutical excipients,
Particulate Systems Analysis 2008, Stantford-upon-Avon, UK

H. Diarra, A. Michrafy, J.A. Dodds, Roll process compaction : study of the compact homogeneity by numerical simulation
First Workshop Tohoku University-EMAC-INSA, Albi 2008

Diarra, A. Michrafy, J. A. Dodds, M. Michrafy, Experimental and numerical analysis of homogeneity over strip width in roll compaction,
9th Inter. Sympo. On agglomeration and 4th International Granulation Workshop, 2009, Sheffield, UK

A. Michrafy, T.M. Chitu, D. Oulahna, Modification of granular behavior by roller compaction,
Proceeding of World Congress on Particle Technology, 2010, Nuremberg, ISBN 978-3-00-030570-2

Partie D : Thématique de recherche

1. Positionnement de mes activités de recherche

La thématique de recherche initiée en 2001 (date de l'intégration de l'Unité Mixte CNRS du génie des procédés des solides divisés), concerne la mise en forme de matériaux granulaires par compression. Son objectif est d'une part de mieux comprendre les relations entre les propriétés initiales des poudres, les paramètres du procédé et les propriétés d'usage du compact, et d'autre part de pouvoir prédire, par la modélisation les grandeurs physiques qui déterminent les propriétés d'usage.

Cette thématique a formellement des points communs avec les activités scientifiques que j'ai menées entre 1997 et 2000 au CROMeP (ICA-Albi). Cependant, des différences de fond existent au niveau du comportement rhéologique du milieu sollicité et des approches expérimentales pour identifier les paramètres pertinents du matériau, puisqu'on passe d'un matériau continue dense et incompressible (métaux et alliages), à un milieu granulaire discontinu et fortement compressible. De plus, le compactage de poudres dépend :

- De la nature du matériau (composition, structure interne, propriétés de surface, taille, forme,…)
- De procédés préalables à l'opération de compression, comme le mélange, la formulation, le traitement thermique…
- Des propriétés de comportement comme la coulabilité, la compactibilité, la compressibilité, l'élasticité, la plasticité, le caractère fragmentaire ou ductile, le caractère cristallin ou amorphe,…

Le procédé de compression de poudres sous forme de compact est largement utilisé pour des raisons de stabilité des produits, de robustesse ou encore de rentabilité. Cependant, la complexité du comportement des poudres et la dépendance des propriétés finales des compacts des paramètres du procédé reste un enjeu et un savoir faire à développer. Par ailleurs, l'automatisation et les cadences de production à l'aide de presses rotatives, demandent de bonnes propriétés d'écoulement (fluidité) des poudres pour assurer le même dosage. Pour la plupart des poudres cohésives, la mauvaise coulabilité rend difficiles ou impossibles les opérations industrielles comme la compression, le transport pneumatique ou la décharge de silos. Pour modifier et améliorer les propriétés fonctionnelles des poudres, les industriels ont souvent recours à des procédés pertinents préalables à l'opération de compression. Parmi les procédés utilisés, le procédé de compactage à rouleaux, appelé aussi procédé de granulation sèche par opposition au procédé de granulation humide.

Au-delà de son utilisation courante, ce procédé pose des questions fondamentales et opérationnelles comme la compréhension des modifications structurelles permettant d'améliorer les propriétés d'usage, la dépendance des propriétés finales des paramètres du procédé et le changement d'échelle du laboratoire à la production.

En passant de la granulation sèche à la compression en matrice, la chaîne de modifications structurelles et fonctionnelles des poudres est complexe. La figure 1a, montre les différentes étapes de modifications des propriétés des poudres.

Différentes échelles d'analyses existent. Sans être exhaustif, cela peut aller de l'échelle moléculaire, à l'échelle macroscopique en passant par l'échelle de la particule. Pour comprendre les relations entre les propriétés initiales des poudres, les paramètres du procédé et les propriétés d'usage du compact, le choix d'une échelle d'analyse aide à déterminer les moyens expérimentaux à mettre en place et les modèles adaptés. La figure 1b, résume deux démarches, l'une à l'échelle de la particule et l'autre macroscopique à l'échelle du volume représentatif considéré homogène et isotrope. Ces deux démarches peuvent être menées en parallèle ou combinées (couplées).

2. Thème de recherche

Mon thème de recherche s'inscrit dans le cadre de l'approche continue en ayant étudié de manière indépendante les deux procédés pour mieux maîtriser les étapes intermédiaires des modifications structurelles procédé par procédé. L'objectif est de mieux comprendre les relations « structures initiales propriétés finales *versus* les paramètres du procédé».

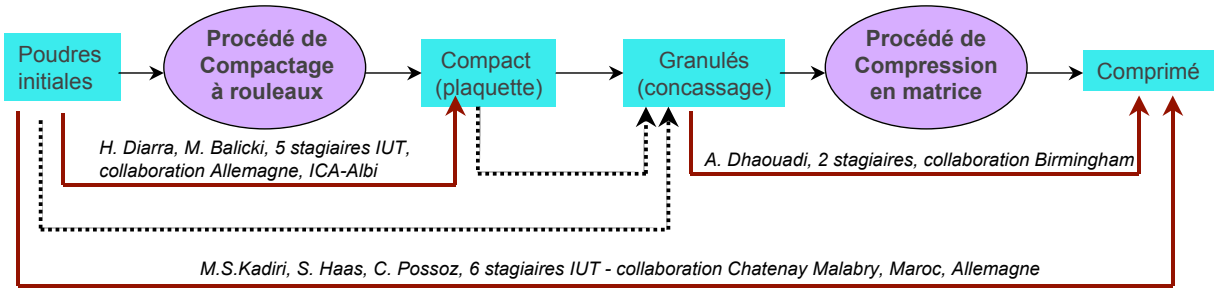


Fig. 1a Schéma descriptif des étapes de modifications des propriétés des poudres

Pour mener à bien ce travail, nous avons développé conjointement des moyens expérimentaux de caractérisations de matériaux granulaires en compression et de nouvelles approches de modélisation par éléments finis dans le domaine spécifique de la compression de poudres pharmaceutiques. Ces approches sont par ailleurs utilisées en métallurgie des poudres (poudres métalliques et céramiques) pour la prédiction de la distribution de densité, pour l'analyse de l'écoulement de la matière dans des géométries complexes.

Cependant, ce n'est que récemment (dans les dix dernières d'années) que l'approche continue s'est développée dans le domaine des procédés de compactage de poudres pharmaceutiques. Nous y avons activement contribué par nos travaux sur la modélisation du procédé de compression en matrice dans la thèse de M. S. Kadiri [Kadiri,2004], dans la thèse de Stefan Haas, doctorant Allemand en séjour de trois mois à Albi et dans le Master Recherche de Clément Possoz [Possoz,2006]. Nous avons aussi mis en œuvre l'approche continue dans le procédé de compactage à rouleaux en 2D et en 3D dans la

thèse de Harona Diarra [Harona,2008], dans le Master Recherche de Marcin Balicki [Balicki,2003] et dans le cadre du projet Franco-Bavarois entre notre laboratoire et la «Chair of Process Engineering TU München – Weihenstephan» du Professeur K. Sommer, projet intitulé «Numerical modelling of rolling compaction process». D'autres collaborations ont été nouées avec le Laboratoire de physique pharmaceutique de Chatenay Malabry (Professuer P. Tchoreloff) et le laboratoire Electrochimie et Biomatériaux, de l'Université, El Jadida, au Maroc. Toutes ces collaborations ont abouti a des publications communes. Sans oublier les petites mains des 12 stagiaires de l'IUT de Clermont-Ferrand et l'IUT de Toulouse qui ont fortement contribué à l'enrichissement de ces travaux durant leurs stages.

Ces travaux se poursuivent actuellement au laboratoire pour explorer et affiner les modèles rhéologiques macroscopiques à partir des propriétés mécaniques des particules individuelles.

Comme la plupart des recherches dans les Ecoles des Mines, cette activité s'est enrichie du soutien de plusieurs entreprises : Bayer® (Liverkusen en Allemagne), EPMO (groupe Elizabeth Carbide), Lhoist®, JRS Rettenmaïer, Sanofi-Aventis, Air Liquid et de l'ANR IMCAT (Innovative Materials for CO_2 Captured by Adsorption Technology) sur le développement de solutions technologiques pour le captage du CO_2 des gaz de fumés à l'aide de nouveaux adsorbants. Quatre partenaires ont participé à ce projet : Air Liquid, L'Ecole Nationale Supérieure de Chimie de Paris, L'Institut de Chimie Moléculaire de l'Université de Bourgogne et l'Ecole des Mines d'Albi

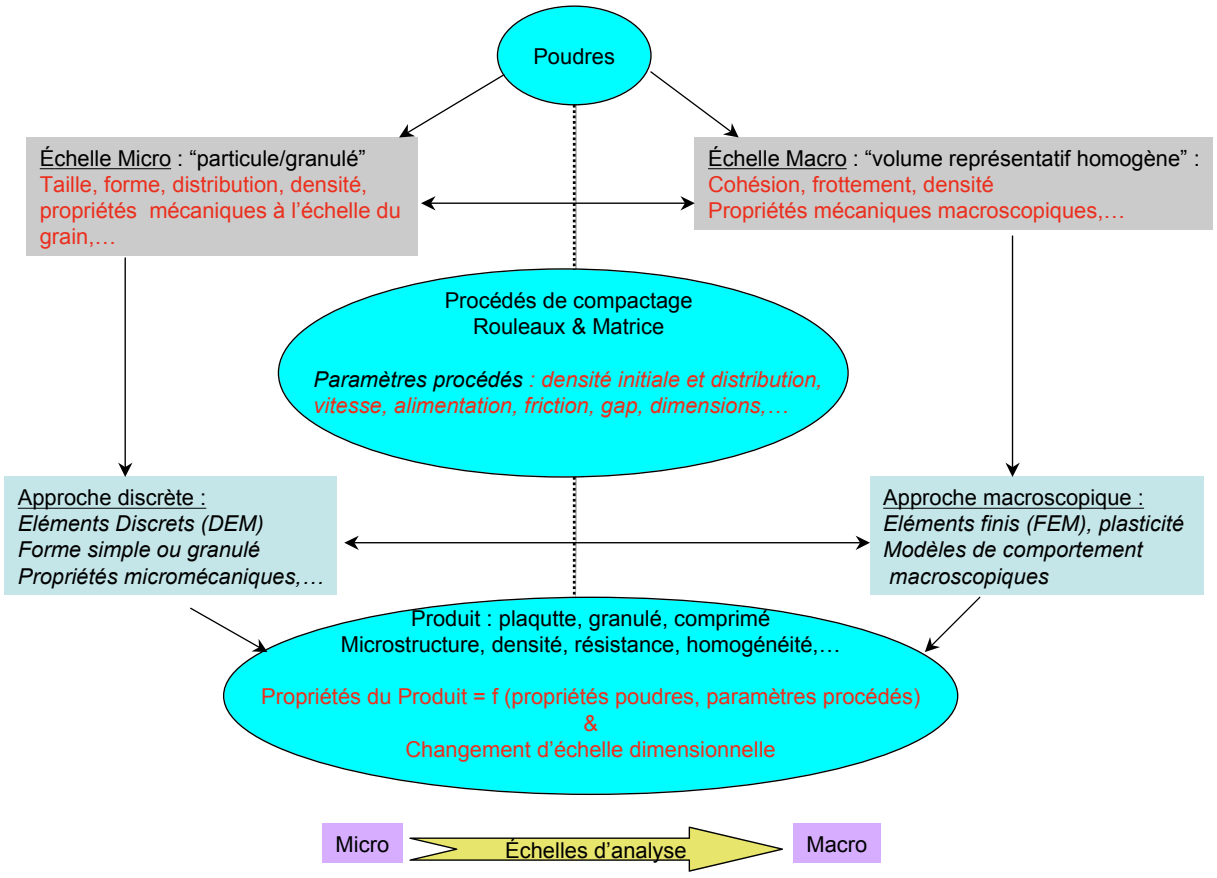


Fig. 1b Différentes échelles d'analyses

Ce rapport présente le bilan de cette activité de recherche. Il est organisé en trois chapitres, d'une conclusion et de perspectives de projet de recherche.

Le premier chapitre «Techniques expérimentales de caractérisation de procédés de compactage», concerne les moyens expérimentaux développés et la méthodologie de caractérisation des propriétés mécaniques des poudres et des paramètres des procédés de compactage. La pertinence et la validité de ces choix sont discutées. Des résultats significatifs sont présentés pour illustrer l'intérêt des outils développés pour la caractérisation et l'analyse du comportement en compression de poudres composées d'un matériau unique ou de mélange binaire.

Le deuxième chapitre «modélisation de comportement de poudres en compression» discutera du choix de la rhéologie du comportement de poudres. On décrira brièvement les approches existantes issues de la mécanique des métaux poreux ou de la mécanique des sols en précisant les mécanismes essentiels qu'ils décrivent. Par la suite, on décrira les principales caractéristiques macroscopiques du comportement des poudres pharmaceutiques et les modèles continus les plus adaptés à la spécificité de leurs comportements. Ce chapitre se terminera par la description de la démarche d'identification des paramètres du modèle à partir d'essais mécaniques.

Le troisième chapitre « Simulation numérique de procédés de compactage » présente les développements de la simulation numérique des procédés de compression directe et du compactage à rouleaux dans l'environnement du logiciel Abaqus ®.
Pour illustrer la capacité de l'approche continue à prédire de manière très satisfaisante le processus de densification et l'influence des paramètres des procédés sur les propriétés finales, des résultats significatifs de simulations numériques en 2D et en 3D sont présentés. On discutera alors des apports et des limitations de l'approche continue par la confrontation des prévisions aux données expérimentales.

Chapitre I

Techniques expérimentales de caractérisation de procédés de compactage

Introduction

Les opérations de mise en forme de milieux granulaires par compactage sont très répandues dans des domaines variés comme la pharmacie, la métallurgie des poudres (poudres céramiques et métalliques), les détergents (lessives, adoucissants), l'agroalimentaire ou encore l'agriculture (fertilisation des sols) ou la biomasse. Dans le domaine pharmaceutique, deux procédés complémentaires sont utilisés pour la mise en forme des matériaux granulaires : le procédé de compression directe (compression en matrice) pour former des comprimés et le procédé de compactage à rouleaux (granulation sèche) pour produire des granulés avec une microstructure et des propriétés mécaniques contrôlées. Ce dernier procédé est souvent utilisé pour les principes actifs ou formulations qui ont de mauvaises propriétés fonctionnelles comme la coulabilité, propriété nécessaire à l'opération de mise forme par compression directe.

Il en résulte que les propriétés des matériaux denses et leur optimisation sont étroitement liées à la formulation (proportion de phases solides dans le mélange), aux mécanismes intervenant aux différentes échelles de la microstructure (déformation, fragmentation), à la sollicitation mécanique et thermique (vitesse de déformation, température de l'outillage,…), aux propriétés d'interfaces (frottement) et aux paramètres des procédés. Une analyse fine des mécanismes de densification et des différentes interactions procédé-matériau est donc nécessaire pour comprendre les propriétés fonctionnelles des compacts et de mettre au point des modèles de comportement locaux permettant de représenter le comportement macroscopique.

Pour y parvenir, nous avons mis en place des moyens d'essais et de caractérisation de matériaux granulaires et des méthodes d'interprétation basées sur la mécanique des milieux continus. Ces outils expérimentaux ont pour but d'améliorer la compréhension et la connaissance des relations « structures initiales - propriétés finales *versus* paramètres procédés ».

Le procédé de compactage en matrice et le procédé de compactage à rouleaux sont deux procédés de compactage de poudres qui différèrent à plusieurs points de vues : par l'action mécanique appliquée sur la poudre, par la déformation engendrée au niveau des particules et par le nombre de paramètres ajustables. C'est pour la clarté de la présentation que nous avons fait le choix de les décrire séparément.

I.1 Procédé de compression en matrice

Introduction

La caractérisation des poudres pharmaceutiques en compression consiste en général en la caractérisation de certaines propriétés physiques à l'aide d'une presse uni axiale dont le poinçon supérieur est équipé d'un capteur de force et d'un capteur de déplacement. Rares sont les presses où le poinçon inférieur est équipé de capteur de force et de déplacement. Quant à l'instrumentation de la matrice pour la mesure de la contrainte radiale, elle est rare ou inexistante au démarrage de cette activité de recherche. Les propriétés les plus couramment caractérisées sont la distribution de tailles des particules, la coulabilité (ou fluidité), la compressibilité ou encore la limite d'écoulement plastique. Ces propriétés sont souvent utilisées pour comparer les poudres entre elles et pour classer, à l'aide de modèle de type Heckel [Heckel,1961] ou Kawakita [Kawakia,1970] par exemple, les poudres selon leur caractère fragmentaire ou plastique. Il existe aussi une classe d'indices qui permettent de qualifier le caractère élastique ou plastique d'une poudre [Çelik,1985].

La caractérisation de ces propriétés est souvent appliquée à la formulation, à la transposition de données de la presse laboratoire à la production à l'aide de presses rotatives ou encore pour anticiper sur le phénomène de clivage (endommagement par fissurations de compacts). Cependant, peu d'études concernent l'hétérogénéité ou la présence de gradient de déformation qui est souvent néfaste à la formation de compact. Pour répondre à ces questions et aller plus loin dans la compréhension des mécanismes de densification de poudres pharmaceutiques par l'analyse des états de déformations et des contraintes dans le compact, des moyens expérimentaux de de caractérisation en compression et des approches de modélisation dans le domaine spécifique de la compression de poudres pharmaceutiques ont été développés. Ces développements ont été favorisés et guidés par la richesse de la littérature en mécanique des sols et en métallurgie des poudres.

L'objectif dans ces essais est de caractériser le comportement du milieu granulaire suite à une sollicitation mécanique compressive en vue de relier l'état de contrainte appliquée et la réponse du matériau en termes de déformation et de densité. Comme toute caractérisation de comportement de matériau (acier, composite, mousse,…), la méthode la plus utilisée (de nouvelles approches basées sur la mesure de champs sont de plus en plus utilisées surtout pour des déformations non homogènes) est basée sur le choix de chemins de sollicitations particuliers (traction simple, compression simple, cisaillement,…) permettant de relier la contrainte appliquée à la déformation homogène. Il est donc important de dimensionner la géométrie de l'éprouvette pour assurer une sollicitation en déformation qui soit le plus homogène possible dans la zone de mesure et permettre une analyse des données expérimentales.
Dans le cadre de la caractérisation du comportement de milieux granulaires et notamment en métallurgie des poudres, deux types d'essais sont employés : l'essai de compression en matrice rigide instrumentée et l'essai triaxial.

1 Essai triaxial

Ce type d'essai, rarement employé pour la caractérisation des poudres pharmaceutiques, reste l'essai idéal pour caractériser le comportement de poudres pour des chemins de chargements variés. Cet essai est utilisé lorsque la géométrie des compacts est complexe. Il a aussi l'avantage de fournir de meilleurs résultats pour des sollicitations à faibles densités contrairement à l'essai en matrice rigide instrumentée. Cependant, ce type d'essai est plus complexe à mettre en place et n'apporte pas plus d'informations sur le comportement de poudres pharmaceutiques au regard des géométries simples des comprimés pharmaceutiques.

2 Essais en matrice rigide instrumentée

Cet essai constitue la base de l'expérimentation pour la caractérisation du comportement de poudres et qui présente une analogie directe avec le procédé de compression dans le domaine des poudres pharmaceutiques où la géométrie de la pièce est relativement simple (cylindrique, bâtonnet, plat, concave avec simple ou double rayon de courbure). Le coût de l'équipement et la reproductibilité des essais constituent les principaux avantages de l'essai de compression en matrice rigide. Cependant, l'un des principaux inconvénients est lié au frottement entre la matrice et la poudre qui génère un état de densité non homogène rendant difficile l'exploitation directe des données de l'essai.

Le recours à une méthode indirecte de mesure basée sur la méthode des tranches [Nedderman**,**1992] constitue un outil intéressant pour l'exploitation des données. Pour exploiter cette méthode dans l'analyse et la caractérisation du comportement en compression, il est donc nécessaire de mettre au point une instrumentation adaptée pour accéder en même temps, à la pression appliquée, à la pression transmise et à la pression radiale pendant le cycle de compression. Il existe principalement deux types d'instrumentation : (i) une instrumentation par des jauges de déformation (pont de Wheatstone) collées à la surface externe de la matrice et calibrées en contrainte et (ii) une instrumentation par un capteur de force qui débouche à la surface de contact entre la poudre et la matrice. Dans ces deux cas de figures, un ou plusieurs capteurs sont disposés le long de la hauteur de la matrice comme le montre le schéma de la figure 2a. Les valeurs des $\sigma_r i, i = 1..n$ sont en général différentes et dépendent de la hauteur actuelle du compact.

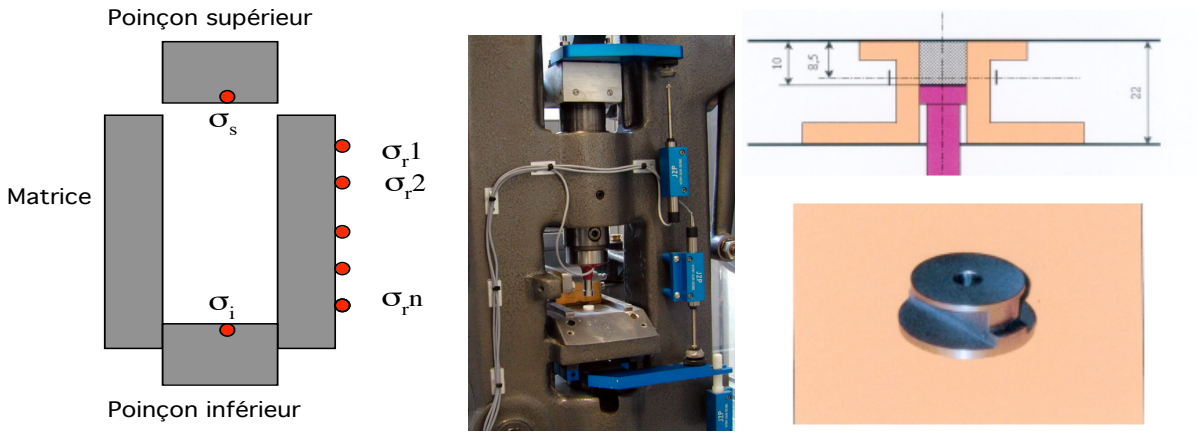


Fig 2a Disposition des capteurs radiaux *Fig 2b Instrumentation de la presse Frogerais®*

Pour notre presse (Fig. 2b), la matrice a été équipée par une jauge de déformation située à 1,5 mm du bas de la chambre de 1 cm^3 pour mesurer la déformation externe lorsque la paroi interne de la matrice est soumise à une pression normale. Ainsi, pour une compression de 1 cm^3 de volume de poudre, la jauge est à mi-hauteur du compact à la fin de la compression pour un compact de 3 mm de hauteur.

3 Méthodes d'analyse

3.1 Détermination des contraintes dans le compact : méthode des tranches

Le caractère inhomogène de la compression en matrice ne permet pas de relier directement les grandeurs mesurées à l'état de contrainte dans le compact. Il est donc nécessaire d'introduire un modèle permettant de caractériser la distribution de l'état de contrainte axiale. La méthode basée sur la théorie de l'équilibre des tranches [Nedderman,1992] (mécanique des milieux continus) est employée dans ce cadre. Cette approche est basée sur les hypothèses suivantes (Fig. 3) :

(i) la contrainte radiale est proportionnelle à la contrainte axiale

(ii) le gradient de la contrainte radiale est négligé

(iii) la contrainte tangentielle est proportionnelle à la contrainte radiale le long de la surface de contact poudre-matrice.

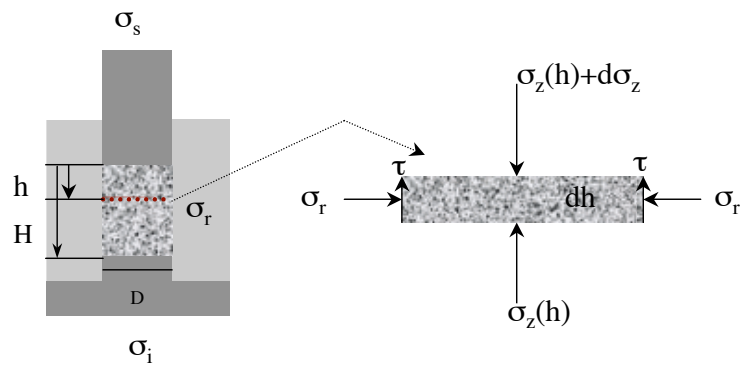


Fig 3 Contraintes appliquées sur une tranche d'épaisseur dh et située à la hauteur h.
(σ_s et σ_i contrainte supérieure et inférieure)

Le frottement poudre-matrice est de type Coulomb. Il est caractérisé par un coefficient de frottement μ supposé uniforme sur la tranche dh située à la hauteur h. Ce coefficient est déterminé par le ratio de la contrainte normale (radiale) σ_r et la contrainte tangentielle τ dans la zone de contact poudre-matrice (Fig. 3) :

$$\mu(h) = \sigma_r / \tau \tag{I.1}$$

On définit également le coefficient de transmission radiale (ou coefficient de transfert) des contraintes $\alpha(h)$ par le ratio de la contrainte radiale et de la contrainte axiale. Comme pour le coefficient de frottement, le coefficient de transfert dépend de h :

$$\alpha(h) = \sigma_r(h)/\sigma_z(h) \tag{I.2}$$

L'équilibre d'une tranche située à la distance h comptée à partir du haut du compact, permet déterminer la contrainte moyenne axiale $\sigma_z(h)$ par :

$$\sigma_z(h)/\sigma_s = \exp(-4\mu\alpha h/D) \tag{I.3}$$

ou encore

$$\ln(\sigma_z(h)/\sigma_s) = \frac{-4\alpha\mu}{D}h + c \tag{I.4}$$

où la constante c=0 car pour h=0, $\sigma_z(0) = \sigma_s$.

Pour h=H, on a $\sigma_z(H) = \sigma_i$ et par conséquent on a :

$$\alpha\mu = \frac{D}{4H}\ln(\sigma_s/\sigma_i) \tag{I.5}$$

L'idée est de calculer des valeurs moyennes sur H de α et μ. Pour cela, on commence par calculer les contraintes moyennes $\overline{\sigma}_z$ et $\overline{\sigma}_r$ sur la hauteur H :

$$\overline{\sigma}_z(H) = \frac{1}{H}\int_0^H \sigma_z(h)dh = \frac{(\sigma_i - \sigma_s)}{\ln(\sigma_i/\sigma_s)} \tag{I.6}$$

$$\overline{\sigma}_r(H) = \frac{1}{H}\int_0^H \sigma_r(h)dh$$

Les valeurs constantes par rapport à H, du coefficient de transfert $\alpha = \overline{\sigma}_r / \overline{\sigma}_z$ et du coefficient de frottement ($\mu = \frac{D}{4H}\frac{\ln(\sigma_s/\sigma_i)}{\alpha}$) sont déterminées par :

$$\alpha(H) = \bar{\sigma}_r \frac{\ln(\sigma_s/\sigma_i)}{(\sigma_s - \sigma_i)} \quad \text{(I.7)}$$

$$\mu(H) = \frac{D}{4H} \frac{(\sigma_s - \sigma_i)}{\bar{\sigma}_r} \quad \text{(I.8)}$$

Dans le cas d'une matrice instrumentée par plusieurs capteurs de mesure de pressions radiales, la contrainte radiale moyenne $\bar{\sigma}_r$ est obtenue par la moyenne arithmétique des mesures.
En présence d'un seul capteur de mesure de la contrainte radiale (ce qui est le cas de notre instrumentation), la mesure est supposée représenter la valeur moyenne sur H (i.e $\bar{\sigma}_r = \sigma_r$).
La jauge de mesure étant située à 1,5 mm du poinçon inférieur, cette hypothèse est raisonnable pour les pressions élevées (la jauge se trouve alors à la mi-hauteur du comprimé). Par contre l'hypothèse est critiquable pour les faibles pressions (au début de la compression). D'ailleurs, les résultats obtenus sur différentes poudres montrent une mauvaise mesure de la contrainte radiale pour les densités relatives inférieures à 0,3.

Remarque :

Pour les poudres ayant de bonnes propriétés de densification, le coefficient de transfert (équation I.7) peut-être approché par $\alpha(H) = \sigma_r/\sigma_s$ car $\frac{\ln(\sigma_s/\sigma_i)}{(\sigma_s - \sigma_i)} \rightarrow \frac{1}{\sigma_s}$. Cette approximation est souvent suffisante pour analyser le comportement de poudres pharmaceutiques.

De la même façon que $\alpha(H)$, on définit le coefficient de transmission axiale des contraintes dans le lit de poudre $\phi(H)$ par :

$$\phi(H) = \sigma_i/\sigma_s \quad \text{(I.9)}$$

L'équation (I.8) s'écrit de manière équivalente à :

$$\mu(H) = -\ln(\phi)/(4\alpha H/D) \quad \text{(I.10)}$$

Le coefficient ϕ est accessible directement par la mesure et permet de caractériser le comportement macroscopique de la poudre dans le sens axial de la compression. Son homologue α traduit plutôt le comportement dans la direction transverse.

Pour des sollicitations multiaxiale, il est souvent commode de représenter l'état de contrainte et de déformation à l'aide d'invariants (grandeurs indépendantes des axes de référence où elles sont définies). Il existe trois invariants dont deux sont les plus influents sur le comportement de milieux granulaires : la pression hydrostatique p qui favorise l'augmentation de la cohésion des particules du compact et la contrainte équivalent de Von-Misès q qui mesure l'état de cisaillement dans le compact

et qui est souvent source de phénomène de clivage. À partir de l'essai de compression en matrice, ces deux grandeurs sont définies par :

$$p(H) = (\overline{\sigma}_z + 2\overline{\sigma}_r)/3 \ ; \qquad q(H) = \left|\overline{\sigma}_z - \overline{\sigma}_r\right| \tag{I.11}$$

En considérant la définition de α (i.e $\overline{\sigma}_r = \alpha\overline{\sigma}_z$), on déduit que :

$$q/p = 3\frac{(1-\alpha)}{(1+2\alpha)} \tag{I.12}$$

3.2 Calibration de la jauge radiale

L'opération de calibrage consiste à établir une relation entre la déformation de la matrice et la contrainte radiale. En présence de plusieurs capteurs sur la paroi de la matrice, la déformation moyenne de la matrice est reliée à la contrainte radiale moyenne.

Un seul point de mesure n'est pas en général suffisant, puisqu'une telle mesure est ponctuelle et ne représente pas la moyenne de la déformation de la matrice. Ceci constitue une limitation à la précision des mesures. Cependant, cette limitation est à modérer dans le cas des poudres pharmaceutiques où la valeur de α est souvent une constante et peut alors être identifiée dans la zone des pressions élevées où le compact est approximativement centré sur la position de la jauge. C'est sur cette base que la jauge a été placée à 1,5 mm du poinçon inférieur.

Pour calibrer la jauge de déformation en contrainte, on effectue une série d'étalonnage pour différentes hauteurs de compact en utilisant des disques minces de matériau «caoutchouc silicone» qui a un comportement incompressible (conserve un volume constant) et isotrope (la pression axiale et identique à la pression radiale).

Pour déterminer la pression radiale exercée par une poudre en compression, on identifie à partir de la hauteur H du compact les deux courbes d'étalonnage obtenues respectivement pour l'épaisseur juste inférieure et juste supérieure à H. La valeur de la contrainte radiale est alors évaluée par interpolation linéaire.

Dans les figures 4 est représentée les contraintes axiale, transmise et radiale pendant le cycle de compression. La figure 5 représente l'évolution de la contrainte radiale en fonction de la contrainte axiale pendant le cycle de compression.

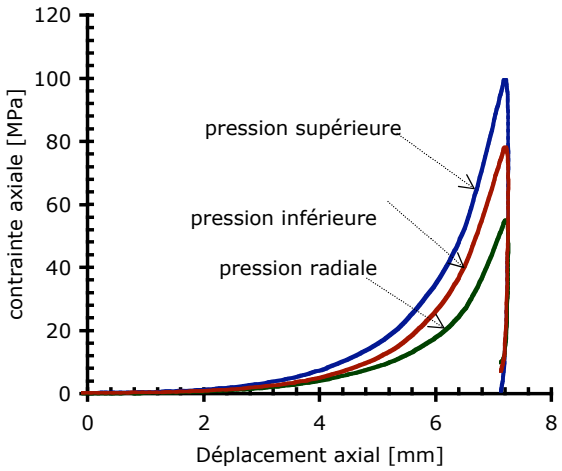


Figure 4 Cycle de compression en matrice

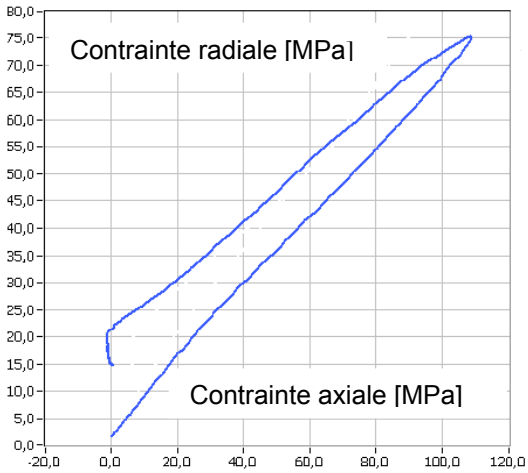


Figure 5 Contrainte radiale versus contrainte axiale

4 Frottement poudre-matrice

Le processus de compression de poudres en matrice, en particulier la distribution de densité et de contraintes ou encore les phénomènes de clivage (endommagement par fissurations) généré par les gradients de propriétés, est principalement influencé par deux mécanismes : le frottement entre les particules dû au réarrangement des particules et le frottement entre la poudre et la matrice. Le frottement inter particulaire est important dans la phase de réarrangement et dépend de l'état de surface, de la forme des particules et du comportement (fragmentaire, plastique,…). Les essais de type Jenike à l'aide d'une cellule annulaire permettent de caractériser le frottement interparticulaire (angle de frottement) pour les faibles pressions de confinement (<1MPa). Cependant, les matériaux granulaires fragmentaires se compactent par un processus complexe de réarrangements-fragmentations successifs. Pour des pressions plus élevées, nous verrons dans le cadre de la modélisation du comportement étudié comment déterminer l'angle de frottement interne de poudres en compression pour des pressions plus élevées.

L'autre composante du frottement en compression correspond au frottement poudre-matrice qui caractérise le comportement tribologique des deux surfaces en contact. C'est ce frottement qui représente l'un des facteurs les plus influents sur le processus de densification de poudres.

Ils existent essentiellement deux méthodes de mesure du frottement, l'une est basée sur l'essai de compression en matrice et l'autre développée dans [Pavier,1997] basée sur le cisaillement plan-plan. Contrairement à la méthode employée dans l'essai en matrice, l'essai plan-plan ne suppose aucun modèle mécanique et fournit une mesure directe de l'effort global tangentiel.

Dans notre démarche relative à nos applications, il nous est apparu important, de caractériser le frottement à partir de l'essai de compression en matrice. Parce que, nous nous intéressons au rôle du frottement dans le procédé de compactage en matrice et à son effet sur la distribution de propriétés dans le compact. Dans ce cadre, l'équation (I.10) a été utilisée pour estimer le coefficient de frottement.

Dans l'équation (I.10), le frottement prend en compte les hypothèses de la méthode des tranches et fait intervenir des grandeurs sans dimensions. Cette méthode permet une évaluation globale des conditions de frottement. Par contre elle ne donne pas d'indication sur la loi réelle du frottement.
L'évolution du coefficient de frottement traduit ici, une compétition entre la transmission axiale et radiale des contraintes. Cette technique d'estimation du coefficient de frottement est très utilisée en métallurgie des poudres [Li,1996] [Pavier,1996][Wikman,2000].

Une autre expression de calcul du coefficient de frottement de Coulomb utilisée dans [Cedergren,2002] pour la caractérisation de poudres métalliques, consiste à réécrire l'équation (I.8) sous la forme :

$$\mu = \frac{(\sigma_s - \sigma_i)\pi R^2}{2\pi RH\sigma_r} \qquad \text{(I.13)}$$

où la force résistive tangentielle à la paroi $F\tau = (\sigma_s - \sigma_i)\pi R^2$ et la force radiale $Fr = 2\pi RH\sigma_r$ sont constantes le long de la hauteur H.

5 Quelques résultats significatifs

Le développement de moyens expérimentaux et d'outils d'interprétation des données, équations (I.1) à (I.13) constituent notre principale contribution au domaine expérimental de la compression directe de poudres pharmaceutiques. À l'aide de ces outils, différents travaux expérimentaux ont été réalisés pour analyser le comportement de poudres simples ou mélange binaire.

Pour illustrer l'intérêt de ces outils dans la caractérisation et l'analyse du comportement en compression de poudres, quelques exemples sont présentés dans le paragraphe suivant. Pour plus de détails, on peut se reporter aux articles cités.

5.1 Comportement de poudres simples

5.1.1 Caractère fragmentaire des poudres pharmaceutiques

Le comportement des poudres pharmaceutiques se distingue de celui des poudres métalliques par le caractère fragmentaire. Ce caractère fragmentaire est à la base des processus de leur densification comme cela est schématisé dans les courbes de la figure 5. En effet, les poudres métalliques se déforment principalement par réarrangement et par déformation plastique des particules, alors que les poudres pharmaceutiques qui sont sous forme de granulés suivent un processus successif de déformation basée sur le réarrangement, la fragmentation et la densification.

Le caractère plastique ou fragmentaire des poudres est souvent étudié par le modèle de Heckel. Dans ce modèle, la classification plastique ou fragmentaire est faite à partir du seuil de plasticité σ_y=3K où K est la constante du modèle de Heckel. Cependant, dans ses travaux, Heckel s'intéressait

aux poudres plastiques *ductiles* et non aux poudres *fragiles*. Cette confusion rend parfois ambiguë l'extrapolation aux poudres pharmaceutiques.

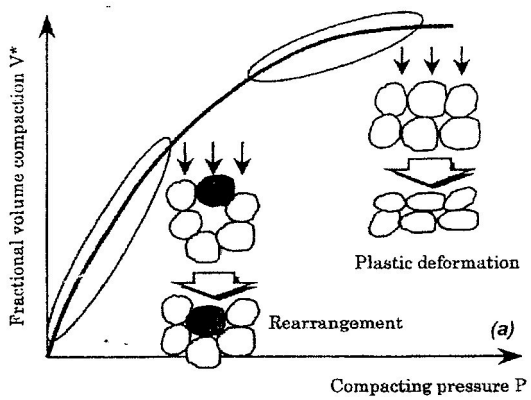


Figure 5a Processus de densification des poudres ductiles

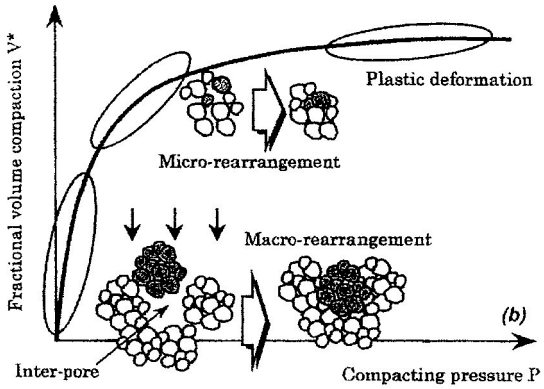


Figure 5b Processus de densification des fragmentaires (d'après [Kondoh,2000]).

L'exemple présenté ci-dessous, montre que l'analyse de la transmission radiale lors de la compression en matrice caractérise mieux le comportement fragmentaire.

Il s'agit dans cet exemple, de la compression de poudre de cellulose microcristalline silicifiée (Prosolv® de chez J. S. Rettenmaïr). La photo MEB (Fig. 6) montre la structure granulaire de cette poudre dont la taille moyenne de particules est de 90 μm.

Les figures 7 et 8 montrent l'évolution de la transmission radiale α et de la transmission axiale ϕ en fonction de la pression appliquée. On constate que dans la phase conpressive, la transmission radiale est presque constante, alors que la transmission axiale augmente avec le niveau de la pression.

Une autre manière de représenter ce comportement est d'utiliser l'équation (I.11) qui permet de tracer le chemin de chargement du cycle de compression dans le plan (p,q) (Fig. 9). Dans ce plan, la pente q/p est presque constante, indépendamment du niveau de la pression. Ce qui correspond à un coefficient de transmission radiale constant (équation I.12).

Ce comportement se distingue de celui des poudres métalliques dont la transmission radiale augmente constamment avec la pression [Cedergren,2002][Bonnefoy,2001]. Leurs comportements est de type

plastique ductile. L'utilisation de l'équation (I.11) dans le cas des poudres métalliques, donne un chemin de chargement incurvé traduisant ainsi une augmentation de α avec la pression.

Dans le cas de poudres simples, le comportement fragmentaire des poudres granulées (poudres pharmaceutiques et céramiques) peut être caractérisé par le fait que le coefficient de transmission radiale est constant.

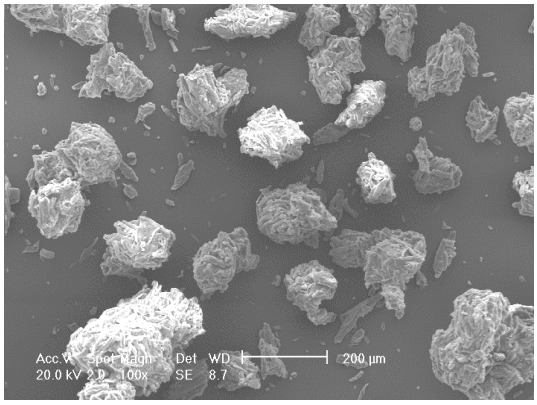


Figure 6 Granule de cellulose microcristalline (Prosolv®)

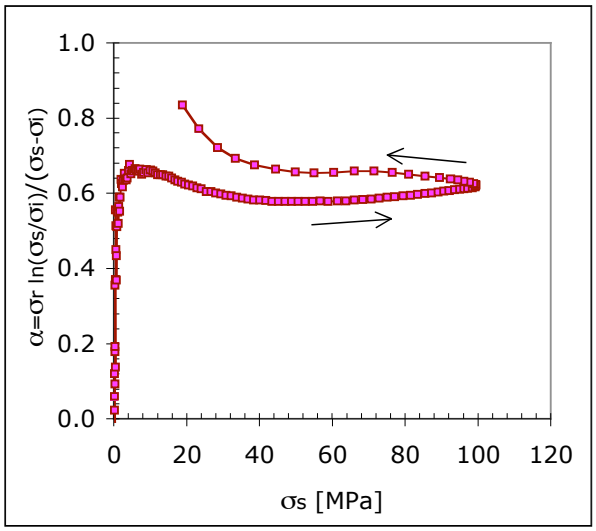


Figure 7 Transmission radiale des contraintes

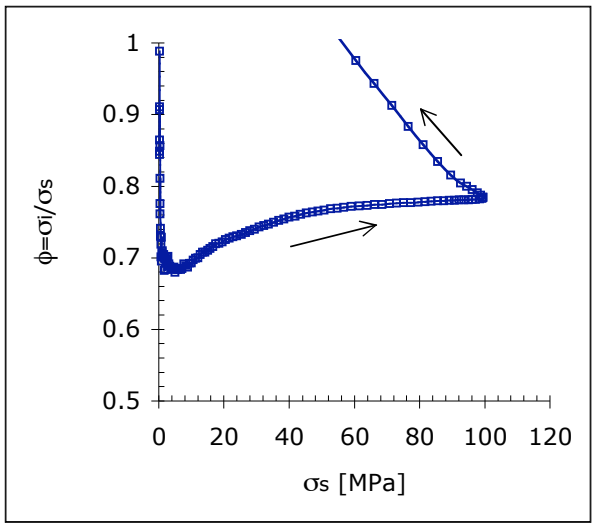


Figure 8 Transmission axiale des contraintes - H initial = 10 mm ; H final= ,.8 mm

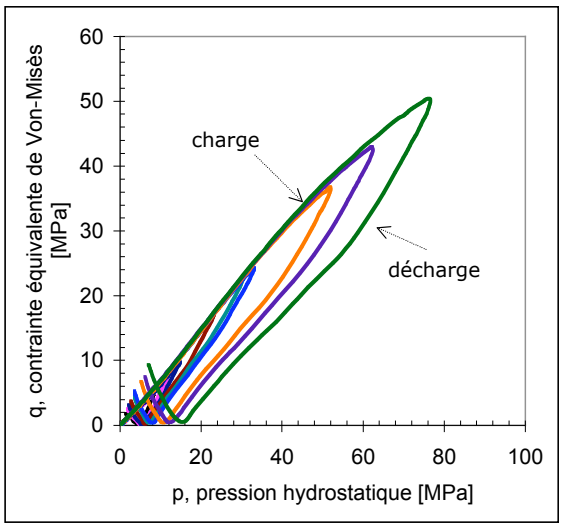


Figure 9 Cycle de compression en matrice dans le plan (p,q)

5.1.2 Lubrification

Dans l'industrie pharmaceutique, la lubrification de formulations de poudres destinées à la compression directe est souvent employée pour limiter le rôle du frottement à la paroi avec l'outillage (poinçons et matrice). Ce mode de lubrification consiste à ajouter, en faible quantité (0,1 à 2% en masse), une poudre lubrifiante comme le Stéarate de Magnésium (St Mg) par exemple. Cependant, ces

lubrifiants causent souvent une augmentation de la pression radiale [Nelson,1955] et peuvent entraîner un cisaillement excessif dans le compact dans la phase de décharge. Cette méthode de lubrification est très facile à réaliser puisque le lubrifiant est additionné à la poudre et sa dispersion est assurée par un mélangeur. Cependant, ce mode de lubrification n'est pas reproductible et la question qui se pose est de comprendre si la lubrification par le mélange du lubrifiant à la poudre est optimale.

Pour mieux comprendre l'effet du mode de lubrification sur les propriétés de la compression, nous avons comparé l'évolution du coefficient de frottement de la lubrification d'une poudre par mélange avec du St Mg à celui de la compression de la poudre en ayant au préalable lubrifié la matrice par la compression de la poudre de St Mg.
Cette investigation expérimentale a été réalisée sur deux poudres de cellulose microcristalline Avicel PH 101 et PH 102. Ces poudres de même nature chimique se différencient par leur taille (table 1). La compression a été réalisée dans les mêmes conditions opératoires et les coefficients de frottement dans les deux situations de lubrification sont représentés dans les figures 10 et 11.
Pour d'autres résultats sur l'effet du mode de lubrification sur les propriétés de la compression, on peut se reporter à [Michrafy,2003].

Poudre	Taille moyenne (μm)	Densité au pychnomètre à Helium (g/cm^3)	Densité apparente (g/cm^3)
Avicel PH 101	50	1,503	0,29
Avicel PH 102	90	1,599	0,27
StMg	6	1,05	0,16

Table 1. Propriétés basiques de poudres

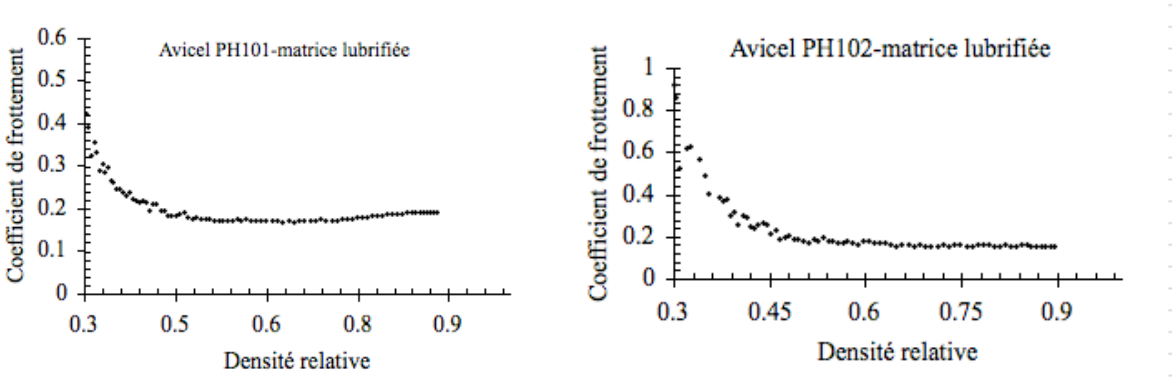


Figure 10 Frottement dans le cas d'une matrice lubrifiée(lubrification de la matrice par compression de St Mg)

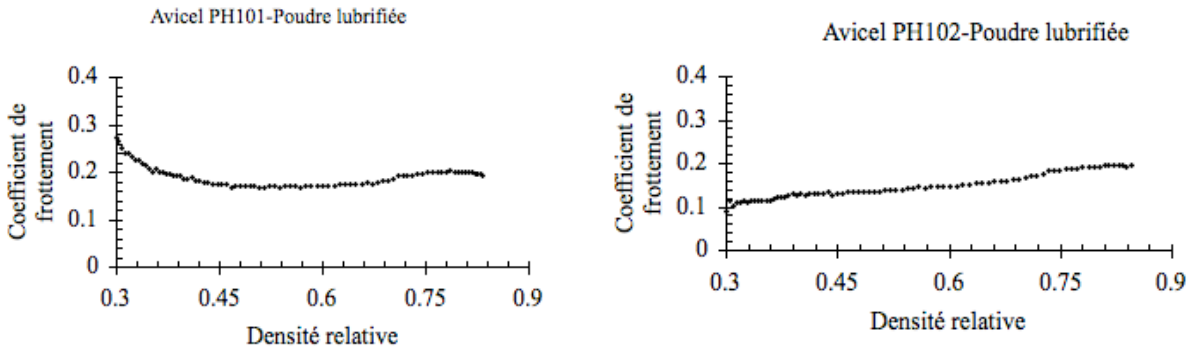


Figure 11 Frottement dans le cas d'une poudre de cellulose lubrifiée (+1% de St Mg en masse)

Dans le cas de la matrice lubrifiée, qui est le mode de lubrification de référence ici, le coefficient de frottement décroît avec la densité relative et tend vers une valeur asymptotique de 0,2 indiquant ainsi que la lubrification de la matrice par le stéarate de Magnésium joue bien son rôle de réduction du frottement poudre-matrice pendant le compactage.

Le cas de la lubrification de la poudre est beaucoup plus complexe à analyser car ce mode de lubrification dépend du mélange et de l'homogénéité de la dispersion du stéarate dans le lit de poudre. Cependant, la valeur moyenne sur l'intervalle de densité tend vers 0,2. Ce résultat montre bien que la lubrification de la poudre répond bien à la réduction de frottement poudre-matrice même s'il est difficile de comprendre quels sont les mécanismes mis en jeu à l'échelle de la microstructure, pour expliquer les profils observés.

Ce travail reste incomplet à notre avis et devrait être complété par l'étude de poudres modèles (par exemple des billes enrobées par un lubrifiant) et par la mise en place d'une analyse micromécanique de la compression à l'aide de la méthode des éléments discrets.

5.1.3 Frottement et stœchiométrie

L'aptitude des poudres à la compression dépend aussi de la composition chimique des poudres. En effet, dans le cadre d'une collaboration avec l'Université d'El Jadida (Maroc), nous avons étudié l'aptitude de biomatériaux utilisés comme substitution en chirurgie dentaire. Ces biomatériaux, synthétisés à partir de structures hydroxyapatite, présentent une bonne biocompatibilité et une excellente bioactivité. Cependant, la faible résistance de ses structures nous a amené à étudier leurs propriétés mécaniques en fonction de leur stœchiométrie en Calcium (Ca) et en Phosphate (P) [Hatim,2009].

Différentes microstructures ont été synthétisés avec un ratio molaire (Calcium/Phosphate) Ca/P entre 1,5 et 1,8.

Dans la table 2, les structures HAP1 – HAP3 présentent une déficience en Ca, alors que la structure HAP 4 présente un léger excès de Ca. Ces structures ont une distribution de taille de particules et une

densité apparente similaire. La structure HAP 5 est une apatite de Carbonate avec des particules fines et une densité apparente deux fois plus faible.

Matériau	Ca/P rapport molaire ± 0,0005	Taille moyenne (µm)	Densité au pychnomètre à Helium - g/cm^3	Densité apparente g /cm^3
HAP 1	1,51	91,2±0,1	2,681±0,020	0,403
HAP 2	1,62	81,9±1,0	2,923±0,019	0,412
HAP 3	1,63	89,4±0,8	2,979±0,003	0,403
HAP 4	1,72	76,4±1,2	2,910±0,022	0,411
HAP 5	1,78	15,2±0,5	3,001±0,018	0,202

Table 2a Propriétés basiques des biomatériaux

Matériau	Densité relative	Transmission axiale (%)	Transmission radiale (%)	Coefficient de Frottement	Résistance mécanique (MPa)
HAP 1	0,49	90	41,8	0,22	0,79±0,02
HAP 2	0,43	90	45,3	0,20	0,61±0,03
HAP 3	0,45	88	45,8	0,24	0,67±0,08
HAP 4	0,46	71	43	0,69	0,55±0,03
HAP 5	0,39	95,5	42	**0,1**	**3,12±0,08**

Table 2b Aptitude à la compression des biomatériaux

L'analyse de l'aptitude à la compression de ces structures a montré en particulier que la résistance mécanique la plus élevée correspondait à la composition chimique Ca/P = 1,78 (HP 5) pour laquelle le coefficient de frottement est le plus faible (meilleure densification).
Cette collaboration montre que l'aptitude à la compression de biomatériaux dépend du ratio Ca/P et des propriétés micro structurelles des granulés (forme, porosité, état de surface (rugueux ou lisse)). Cependant, ces résultats encourageants dépendent du procédé de fabrication des granulés (méthode de neutralisation). Une étude quantitative et systémique sur la reproductibilité des propriétés des poudres élaborées par la méthode de neutralisation devrait apporter une meilleure réponse à la relation entre le ratio Ca/P, la microstructure et l'aptitude à la compression.

5.1.4 Frottement en présence d'outillage chaud

Les propriétés fonctionnelles des compacts dépendent des paramètres du procédé de compaction. Dans les installations industrielles, la température ambiante subit des variations dues aux cadences de production et à la température extérieure particulièrement élevée pendant la saison chaude. De telles conditions augmentent la température des outillages (matrices et poinçons) qui sont en contact avec la

poudre. De plus, le processus de compaction génère un échauffement dû au frottement poudre/matrice, particule/particule et à la déformation plastique. L'élévation de température dépend en général de la pression de compactage, de la nature du lubrifiant et de la vitesse de compression. Différentes études ont été consacrées à l'élévation de température dans le processus de compression de poudres [Simon,1992][Ketolainen,1992][Goubier,2004] [Michrafy,2006] [Zavaliangos,2008] et montrent que la température du compact augmente de 10 à 12°C par rapport à la température de la poudre. Des mesures récentes au laboratoire, de la compression de poudres de cellulose microcristalline à l'aide d'une presse alternative (Frogerais OA) est d'un capteur thermique de type K, montrent un gain de 10°C en moyenne (mesures après éjection du comprimé). Compte tenu de la sensibilité des poudres pharmaceutiques à la variation de température (certaines poudres comme le stéarate de Magnésium ont des points de fusion autour de 30 à 40°C), le cumul de ces différentes sources d'échauffement entraînerait une dégradation de propriétés physiques de certaines poudres.

Dans le cadre d'une collaboration avec la Chair of Process Engineering TU München – Weihenstephan, soutenue par le centre interuniversitaire Franco-Bavarois, on s'est intéressé à l'évaluation de l'effet de l'échauffement de l'outillage (matrice et poinçons) sur le comportement mécanique en compression [Michrafy,2006]. L'objectif ici est d'analyser les modifications de comportement de poudres lorsque la température des outillages augmente. Ces modifications ont été caractérisées à l'aide des outils développés.

La figure 12 montre le schéma de principe de l'équipement utilisé. Cet équipement a été développé en Allemagne dans l'équipe du Prof. Sommer. La chambre de l'enceinte de compression est équipée d'un capteur de température. La jauge de contrainte est située à 17,5 mm du poinçon inférieur et à 2,5 mm du poinçon supérieur. La compression est réalisée par le poinçon inférieur. La température de la chambre a été variée de 20 à 57°C et celle de la poudre a été fixée à 20 °. Les propriétés de frottement, de transmission axiale et radiale des contraintes ont été mesurées pour rendre compte de l'impact de l'échauffement de l'outillage sur la compression. Il résulte de cette étude que la pression radiale, le frottement et la transmission de contrainte radiale augmentent avec la température (figures 13 et 14). L'augmentation de la pression radiale entraîne une baisse de la résistance thermique de contact et améliore le transfert thermique de la matrice vers la poudre (selon la conductivité thermique et la densité de la poudre).

Par ailleurs, ce travail a été poursuivi dans le cadre du Master Recherche de Clément Possoz [Possoz,2006] pour modéliser le couplage thermique-mécanique de la compression à l'aide du logiciel Abaqus®.
Le travail sur l'échauffement des poudres en compression reste incomplet à ce jour et devra être complété autant au niveau expérimentale qu'au niveau modélisation. En particulier, les résultats expérimentaux doivent être complété en choisissant des produits à bas point de fusion et en mesurant la température à la surface du compact par infra-rouge (sans contact) ou par contact à l'aide de capteur de type K. Ces mesures doivent aussi servir d'abaques pour la validation de la simulation numérique.

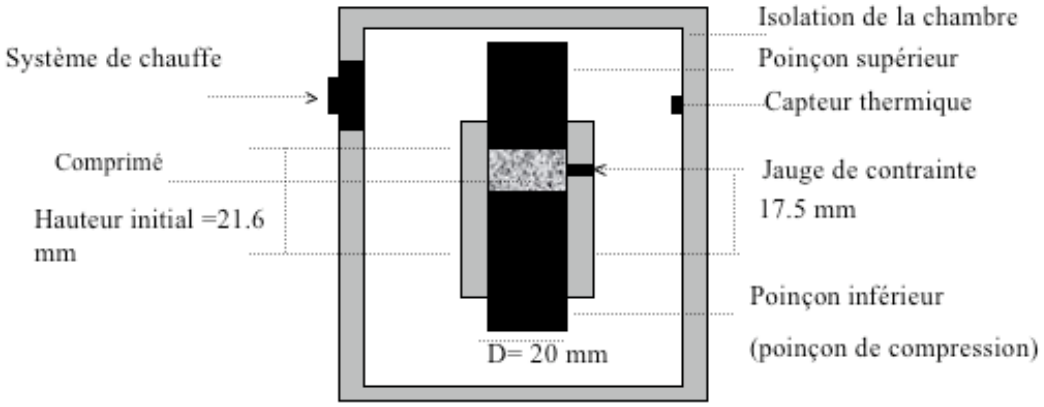


Figure 12 Schéma de l'équipement utilisé pour la mesure de la température dans la chambre de compression

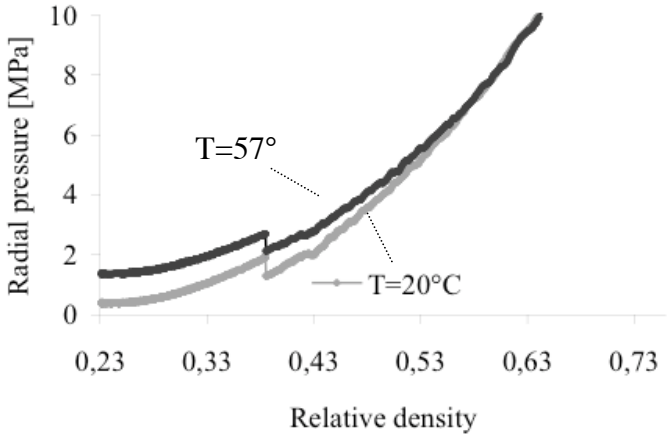


Figure 13 Effet de la température ambiante sur ambiante la la pression radiale

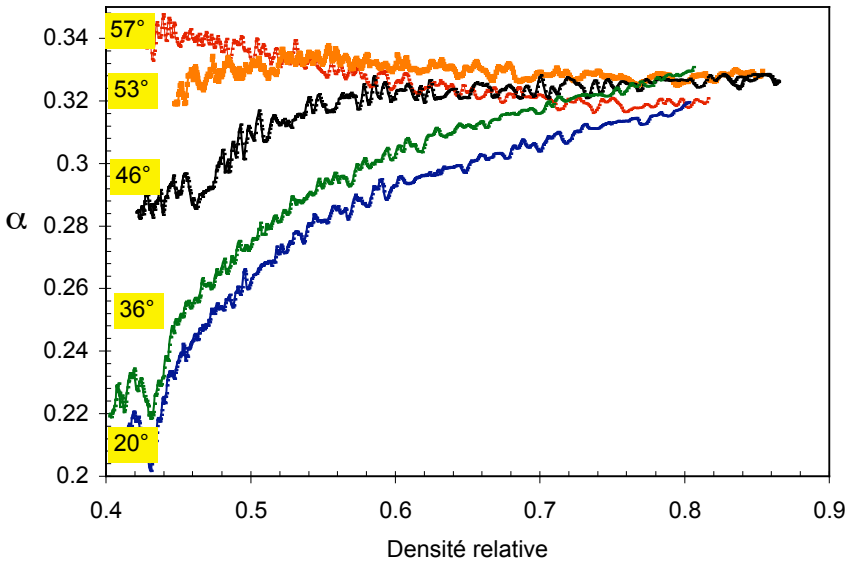


Figure 14 Effet de la température sur la transmission radiale des contraintes

5.2 Comportement de mélange binaire

5.2 .1 Frottement et proportions de phases

Contrairement aux poudres simples, les mélanges binaires montrent une compétition entre les comportements des deux constituants. Le comportement macroscopique résultant dépend des proportions de phases. Les mécanismes de densification de mélange binaire sont très complexes et la recherche scientifique est très active dans ce domaine [Masteau,1999][Leuenberger,1985], [Ramirez,2004][Wu,2005][Busignies,2006a].

Pour tenter de comprendre le rôle de chaque phase dans un mélange binaire nous avons considéré un couple composé d'une poudre de lactose et d'une poudre de cellulose microcristalline silicifiée (Figs. 15 et 16). Nous avons étudié le comportement des mélanges à partir de l'évolution du frottement et de la transmission axiale et radiale des contraintes en fonction des proportions de phases et de la pression de compactage.
L'objectif est de montrer qu'avec les outils simples développés on peut obtenir des informations très riches dans le cas des mélanges binaires.

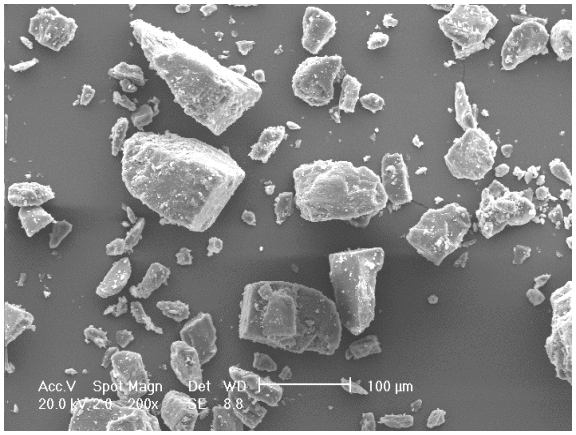


Figure 15 Particule de Lactose (garnulac® 140) d_{50}=70µm ; densité apparente=0,66 g/cm^3

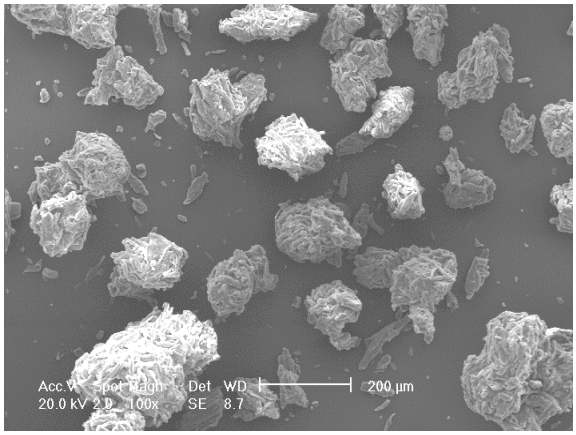


Figure 16 Particule de cellulose microcristalline silicifiée d_{50}=90µm ; densité apparente=0,32 g/cm^3 ; densité au pychnométre à Helium =1,59 (prosolv® 90)

La figure 17 montre l'évolution du coefficient de frottement en fonction du dosage massique en lactose. La figure 18 montre l'évolution du frottement et de la transmission radiale à 50-50 en masse. Pour plus de détails, on peut se reporter à [Michrafy,2009].
Trois types de comportements ont été observés :

- Pour le dosage en lactose supérieur à 50% en masse, le comportement est dominé par celui du lactose. En effet, cela se traduit par un faible coefficient de frottement (le lactose majoritaire se comporte comme un lubrifiant dans le mélange binaire) et une bonne transmission axiale et radiale des contraintes.
- Pour des dosages de lactose inférieur à 50% en masse, le comportement est dominé par celui

de la cellulose microcristalline. L'évolution du coefficient de frottement augmente constamment avec le dosage du lactose de 0,4 pour la cellulose seule à 0,6 pour le mélange à 35% en masse de lactose. En effet, l'augmentation du dosage en lactose entraîne une augmentation sensible de la transmission radiale du mélange binaire.

- Le dosage à 50-50 en masse montre une transition de comportement à 70 MPa (percolation). Pour un niveau de pression de 70 MPa (ou 50 MPa de pression radiale, Fig. 18), le frottement augmente jusqu'à une valeur de 0,6 en ralentissant la transmission d'efforts dans le lit de poudre. Une fois ce stade de pression passé, le coefficient de frottement décroît jusqu'à 0,2. Cette évolution traduit une modification des propriétés de contact entre le mélange de poudres et la matrice.

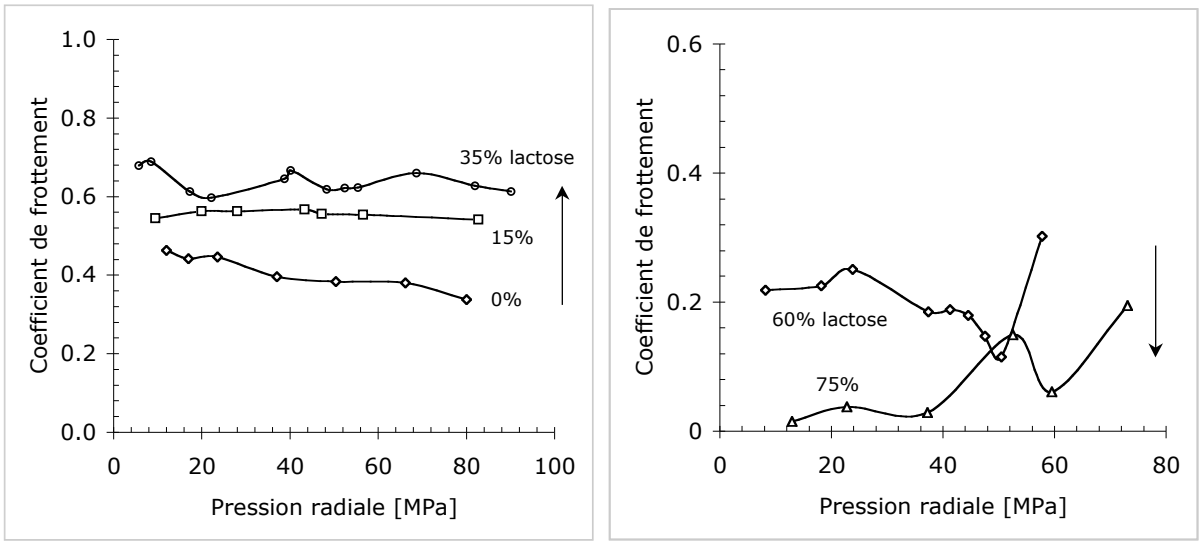


Figure17 Evolution du coefficient de frottement avec le dosage en masse du lactose

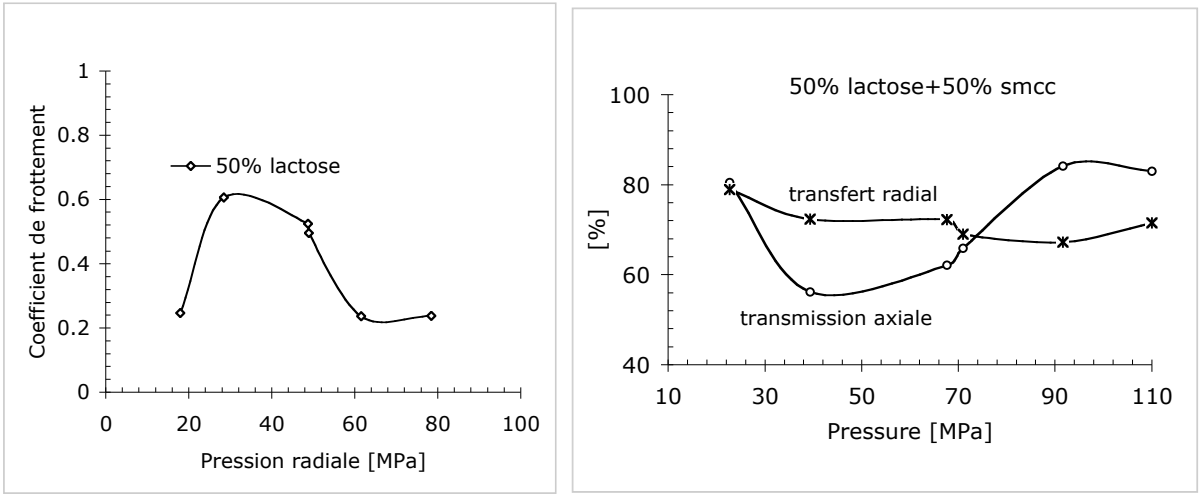


Figure 18 Coefficient de frottement et transmission radiale des contraintes pour le mélange 50-50 en masse.

5.2 .2 Résistance mécanique et mélange binaire

Dans le cadre des mélanges binaires, la prédiction de la résistance mécanique de compact à partir

de la résistance mécanique des constituants présentent un intérêt académique pour le développement de modélisations basées sur les lois de mélange. Plusieurs travaux ont été conduits dans ce domaine [Sheikh-Salem,1981][Riepma,1990][Chan,1983][Masteau,1999][Kuentz,2000][Ramirez,2004] [Busignies,2006b].

La littérature dans ce domaine montre la complexité des phénomènes mis en jeu dans la compression de mélange binaire et la difficulté de disposer d'une théorie unique pour expliquer la résistance du mélange binaire à partir du comportement des constituants. Deux approches ont été développées dans la littérature, l'une basée sur la théorie de la percolation [Leuenberger,1997] et l'autre sur le modèle de Ryshkewitch-Duckworth [Ryshkewitch,1953] [Duckworth,1953]. Ce dernier modèle est plus adapté aux mélanges de poudres que nous avons analysés. Dans ce modèle, la résistance $\sigma_{t.m}$ et la porosité ε_m du mélange binaire sont corrélées par :

$$\ln (\sigma_{t.m} / \sigma_{\infty.m}) = -\kappa_m \ \varepsilon_m \qquad \text{(I.14)}$$

avec $\sigma_{\infty.m}$ la résistance du mélange binaire à porosité nulle et κ_m une constante matériau. Ces deux constantes dépendent de la composition des constituants.

Nous avons étudié les capacités de prédiction de ce modèle pour trois formulations binaires constituée chacune de poudres de lactose et de poudres de cellulose microcristalline (MCC) [Michrafy,2007].
La résistance à porosité nulle $\sigma_{\infty.m}$ est calculée à partir de celle des constituants $\sigma_{\infty.1}$ et $\sigma_{\infty.2}$.
Pour cela, deux lois de mélange ont été utilisées :

(i) Une loi de mélange linéaire

$$\sigma_{\infty.m} = \eta\ \sigma_{m.1} + (1-\eta)\ \sigma_{m.2} \qquad \text{(I.15)}$$

(ii) Une loi de mélange puissance

$$\sigma_{\infty.m} = (\sigma_{m.1})^{\eta}\ (\sigma_{m.2})^{(1-\eta)} \qquad \text{(I.16)}$$

où η la fraction volumique de la poudre MCC déterminée à partir de la fraction massique α et des densités (pycnomètre à Hélium) $\rho_{t.1}$ et $\rho_{t.m}$ du mélange :

$$\eta = \alpha\ \rho_{t.m}/\rho_{t.1} \qquad \text{(I.17)}$$

La densité (pycnomètre à Hélium) $\rho_{t.m}$ du mélange binaire est calculée par la loi de mélange linéaire :

$$\rho_{t.m} = (\alpha/\rho_{t.1} + (1-\alpha)/\rho_{t.2})^{-1} \qquad \text{(I.18)}$$

De la même manière κ_m est déterminé à partir des constantes des constituants κ_1 et κ_2 par une corrélation linéaire et puissance :

$$\kappa_m = \eta\ \kappa_1 + (1-\eta)\ \kappa_2 \qquad \text{(I.19)}$$

$$\kappa_m = \kappa_1^{\eta}\, \kappa_2^{(1-\eta)} \qquad \text{(I.20)}$$

Au total, quatre combinaisons ont été ainsi formulées. Les prédictions de ces modèles ont été comparées aux mesures sur les trois formulations. Il résulte de cette étude que la combinaison d'une loi de mélange linéaire pour $\sigma_{\infty.m}$ et d'une loi puissance pour κ_m donne les meilleures prédictions indépendamment des proportions de phases et des formulations. Cependant, cette prédiction reste valable dans le domaine des mesures disponibles et ne peut pas être valide au-delà.

Ces résultats montrent que la prédiction des propriétés de mélange binaires à partir des propriétés des constituants et complexe et reste encore à nos jours un problème ouvert. La prise en compte des proportions de mélange ne suffit pas à expliquer le comportement en mélange binaire et il serait fort intéressant d'aborder le problème par des expérimentations numériques à l'aide des méthodes particulaires.

6. Propriétés élastiques

Pour un matériau granulaire en compression, la première phase relative au réarrangements-glissements entre particules correspond à des mécanismes non linéaires. Durant cette phase, la transmission de contraintes élastiques par le contact particule-particule est faible. Le rôle des propriétés élastiques est alors secondaire. Dans la phase de densification par déformation (dominée par la déformation irréversible), les transmissions de contraintes élastiques par contact entre particules deviennent importantes. Les propriétés élastiques qui en résultent contribuent alors à la déformation du milieu granulaire.

Pour nos activités de recherche, la mesure des propriétés élastiques pour les poudres pharmaceutiques répond à deux objectifs :

- Comparer le comportement élastique de poudres ou formulations par le biais de l'évolution des propriétés élastiques en fonction de la densité.
- Établir une base de données matériaux pour le développement de simulations numériques en compression de poudres.

Il existe deux types d'approches mécaniques pour l'étude des propriétés élastiques de matériaux granulaires :

- L'approche micromécanique [Walton,1987] basée sur la déformation de contact entre particules (déformation de type Hertz) qui conduit à un comportement non linéaire où les propriétés élastiques dépendent de la densité, de la contrainte appliquée et du nombre de coordination. Cette approche qui est plus préconisée dans les simulations par éléments discrets (DEM) n'a pas été exploitée jusqu'alors dans nos travaux, mais elle est employée dans nos études en cours sur la relation entre la microstructure et la déformation de granules.
- L'approche de type «milieu continu» où les propriétés élastiques sont considérés linéaires et ne dépendent que de la densité du compact. Ce qui est plus valable dans le cas de pressions élevées. C'est cette approche que nous avons employée pour la mesure de propriétés de compacts à différentes densités. Cette approche est suffisante au regard de la modélisation continue employée pour le procédé de compactage. La détermination des propriétés élastiques

(module d'Young et coefficient de Poisson) peut se faire directement à l'aide d'essais de charge décharge en compression uni axiale [Riera,1998] [Pavier,1996].

Cette méthode de mesure a été employée pour la caractérisation des propriétés élastiques de compacts de cellulose microcristalline. Dans la figure 10 et 20 est tracée l'évolution des propriétés en fonction de la densité relative.

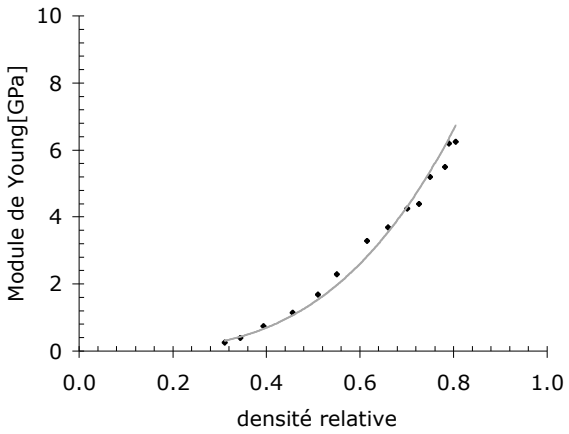


Figure 19 Module d'Young / densité relative $E(\rho_r=1)=10,30$ GPa

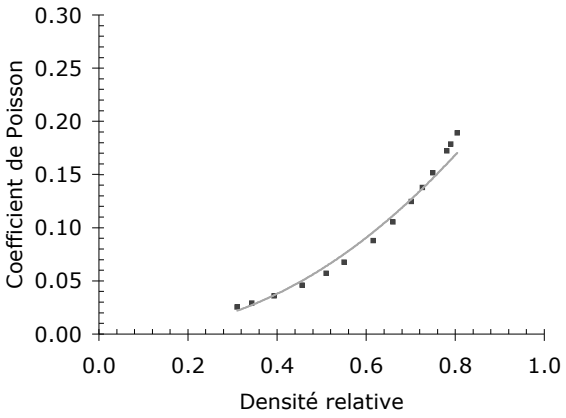


Figure 20 Coefficient de Poisson / densité relative ; $\nu\ (\rho_r=1) = 0,28$

Ces mesures montrent que les propriétés élastiques augmentent avec la densification. Cependant, ces résultats sont relatifs à la poudre de cellulose microcristalline dont les compacts sont manipulables à partir de 0,3 de densité relative. En général, la caractérisation de beaucoup de poudres pharmaceutiques reste très délicate à cause de leur caractère fragile.

Conclusion I.1

L'étude de la caractérisation du comportement de matériaux granulaires en compression directe a nécessité le développement de moyens expérimentaux originaux et des outils d'interprétation pour la caractérisation des poudres pharmaceutiques.

Nous avons montré par des exemples significatifs qu'il était possible de caractériser le processus de densification des poudres et de le relier à certains paramètres du procédé, à la stœchiométrie de biomatériaux ou encore aux proportions de phase dans le cas de mélange binaire. On s'est aussi intéressé au facteur environnemental de la température sur la dégradation des propriétés de certains constituants. Ce travail expérimental devrait se poursuivre par la mesure de la température de compacts par des techniques infrarouges et par la modélisation du couplage thermique mécanique de la compression déjà initiée dans le Master Recherche de Clément Possoz.

Ces travaux ont pu progresser grâce à l'ouverture scientifique qui était d'un apport fondamental au développement de cette activité. Cela s'est traduit au niveau des approches expérimentales pour l'instrumentation et les méthodes d'interprétation de données dans le cadre de la mécanique des

milieux continus. La collaboration avec des laboratoires comme Chatenay-Malabry, Université de Munich et l'Université d'El Jadida (Maroc), dont les préoccupations scientifiques sont complémentaires à nos développements a aussi contribué à ses travaux. Les collaborations industrielles que ce soient des outilleurs ou des développeurs de matériaux granulaires a justifié l'intérêt et la pertinence de ces travaux pour le développement et l'expertise.

I.2 Procédé de compactage à rouleaux

Introduction

Les principes actifs qui peuvent, dans certains cas, représenter 50 à 100% de la formulation ne présentent pas souvent de bonnes propriétés physiques pour le transport et la compression en matrice. Leur mauvaise coulabilité rend difficile ou impossible l'opération industrielle de compression à l'aide de presses rotatives. Pour améliorer les propriétés fonctionnelles de la formulation, on a souvent recours à des procédés pertinents préalables à l'étape de compression directe qui confère de bonnes propriétés au mélange et assure in fine la faisabilité industrielle du comprimé.

Deux types de procédés sont très utilisés dans l'industrie pharmaceutique et permettent de modifier les propriétés fonctionnelles des poudres :

- Le procédé de granulation humide qui, par l'ajout d'un liant liquide permet la fabrication de granulés par la formation de ponts liquide entre les particules (une opération de séchage est préconisée pour assurer des propriétés mécaniques adéquates).
- Le procédé de granulation sèche qui est plus adapté aux matériaux granulaires dont les propriétés thérapeutiques se dégradent en présence de liants liquides ou de solvants et d'opération de séchage, et qui permet de granuler le mélange de poudres en créant des ponts solide-solide avec une bonne cohésion.

La granulation sèche est un procédé d'agglomération de poudres. Cette opération est réalisée à l'aide d'une presse à rouleaux. Au-delà de son utilisation pour les principes actifs sensibles à la voie humide et au séchage, ce procédé est utilisé dans une variété d'industrie comme la pharmacie, la chimie fine, la métallurgie des poudres (poudres métalliques et céramiques) et la biomasse. À l'opposé du procédé de granulation humide, le procédé de granulation sèche est un procédé continue et économique. Il existe plusieurs types de presses à rouleaux utilisées pour l'opération de la granulation sèche de poudres. Parmi les plus utilisées, on trouve les presses à alimentation verticale peu adaptées aux poudres très cohésives et les presses à alimentation horizontale forcée par la présence d'une vis sans fin bien adaptée à la granulation des principes actifs dont la coulabilité est médiocre. Enfin, il existe une version hybride de presse à alimentation hors axe. Le principe de la granulation sèche par compactage à rouleaux est basé sur le transport de poudre par la vis sans fin entre deux rouleaux tournant en contre rotations. La poudre est ensuite entraînée entre les rouleaux qui appliquent une pression sur le mélange de poudres pour former une plaquette. Cette dernière est ensuite concassée et les particules qui en résultent possèdent de bonnes propriétés mécaniques pour l'étape de la compression directe ou la mise en sachets.

Au-delà de l'utilisation courante de ce procédé, le procédé de granulation sèche par compactage à rouleaux pose des questions fondamentales et technologiques. Parmi les questions fondamentales, il y

a (i) la compréhension des modifications structurelles à l'échelle des grains et des granules permettant d'améliorer les propriétés d'usage, (ii) la dépendance des propriétés finales de granulés des paramètres du procédé et des propriétés de poudres primaires et (iii) le changement d'échelle du laboratoire au pilote et à la production. Ce dernier thème présente des verrous scientifiques et industriels loin d'être complètement maîtrisé et reste un enjeu industriel qui freine le développement du procédé en comparaison avec le procédé de granulation humide.
Sur le plan technologique, le procédé de compactage à rouleaux présente de sérieux problèmes qui limitent son utilisation à des principes actifs où la granulation humide n'est pas possible, alors que c'est un procédé propre économique et continu. Parmi les raisons qui limitent sa généralisation, on note en premier lieu des aspects culturels (dans l'industrie pharmacie, on a beaucoup investi dans la granulation humide et il est difficile de changer les mentalités). En deuxième lieu, on note une multitude de fabricants de presse à rouleaux avec des fonctionnements différents. Chaque fabricant utilise son expérience pour apporter des solutions au problème de l'alimentation (mono vis, bi vis) et au problème du compactage (largeur et diamètre des roues). Cette diversité nuit au développement massif du procédé. Il y a aussi un manque de connaissance sur le fonctionnement du procédé, en particulier le flou que l'on peut constater sur le rôle de la pression hydraulique dans le procédé. Enfin, le problème critique à sa généralisation dans la production est lié au changement d'échelles tout en assurant la même qualité du granulé entre la presse du laboratoire et le pilote ou encore la production.

Plusieurs travaux récents en France [Guigon,2003] [Simon,2003] [Lecompte,2005a] [Lecompte,2005b], en Angleterre [Bindhumadhavan,2005] [Miguelez-Moran,2008] [Miguelez-Moran,2009], en Allemagne [Schönert,2002] [Sommer,2003] et aux USA [Dec,2003] [Zinchuk,2004] [Sinha,2010] ont été consacrés au procédé de compactage à rouleaux. Des avancées très importantes ont été réalisées sur le plan de la compréhension du procédé par l'innovation en instrumentation. Cependant, il est toujours loin d'être totalement maîtrisé. Les raisons principales sont liées à l'interaction entre le procédé par ses nombreux paramètres et le comportement des poudres d'une part et à la transposition d'échelles entre le laboratoire et la production d'autre part.

C'est dans le cadre de la compréhension des mécanismes de déformations, de la modélisation continue du comportement mécanique de poudres et de la simulation numérique par éléments finis du procédé que mes travaux s'inscrivent. L'originalité de la contribution dans ce travail réside dans la modélisation du procédé en 2D et 3D et dans l'analyse de l'interaction entre les paramètres du procédé, les propriétés de poudres et les propriétés des compacts. C'est aussi dans l'intérêt porté au problème de la transposition d'échelles (domaine d'intérêt industriel), pour lequel la modélisation mathématique devrait apporter des propositions significatives.
Mais avant de modéliser, il est nécessaire d'observer et de mesurer pour comprendre. Pour obtenir des données interprétables, il est indispensable de développer des moyens de mesures qui permettent de comprendre la relation entre les propriétés primaires des poudres, les paramètres du procédé et les propriétés finales du produit mis en forme.

1. Presse à rouleaux et instrumentation

Il existe plusieurs types de presses à rouleaux utilisées pour l'opération de la granulation sèche de

poudres. Ces presses diffèrent par leurs systèmes d'alimentation. Compte tenu des secteurs industriels de collaborations (pharmacie, cosmétique, poudres pour l'agriculture), nous avons fait le choix d'une presse à rouleaux à alimentation horizontale forcée par une vis sans fin. Cette presse dont le schéma de description est représenté dans (Fig. 1) est le compacteur B050PH de Komarek®. Elle est équipée de roues lisses de diamètre 100 mm et de 38 mm de largeur. La vis est à pas constant.

Dans le procédé de compactage à rouleaux, plusieurs paramètres peuvent être mesurés : les vitesses et les couples de la vis et du rouleau, l'entrefer (ouverture entre les rouleaux), la pression hydraulique qui permet d'ajuster l'entrefer et la pression de contact entre le rouleau et la poudre qui mesure l'effort de compactage. C'est par la mesure de ce dernier paramètre que l'on peut estimer la pression de compactage appliquée par le rouleau sur la poudre (pression normale de contact).

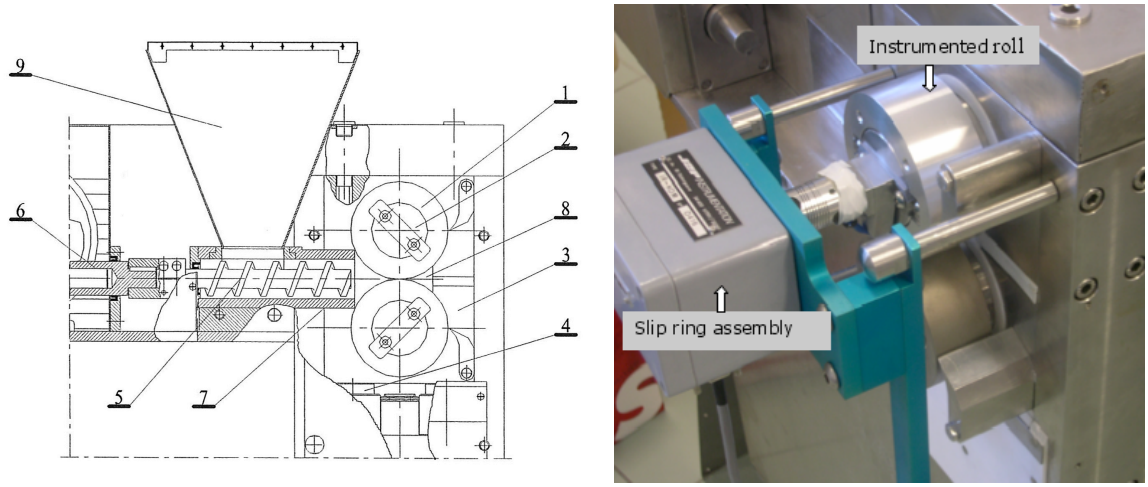


Figure 1 Schéma descriptif de la presse à rouleaux B050PH - Komarek®
1-Rouleau, 2- système hydraulique, 5- vis sans fin, 7- chambre d'alimentation, 8- plaques de confinement latéral, 9- silo.

Pour y parvenir, plusieurs approches expérimentales ont été mises au point dans la littérature [Chekmarev,1963] [Dec,1990][Michel,1994] [Kuleshov,1985] [Simon,2000] [Schönert,2002] [Lecompte,2005a] [Bindhumadhavan,2005] [Miguelez-Moran,2008].
Dans le cadre de la thèse de Harona Diarra [Harona,2008], nous avons choisi d'instrumenter le rouleau avec trois jauges de déformations dans la largeur du rouleau (une au centre et deux sur le bord du rouleau) et cela pour mesurer les pressions de compactage et pour analyser l'homogénéité des pressions le long de la largeur du rouleau. L'avantage de cette instrumentation est l'absence de contact entre la poudre et le capteur, ce qui augmente la durée de vie du système de mesure en présence de poudres fines. Les jauges de déformations ont été calibrées en forces. Un programme d'acquisition sous labView, avec une interface graphique a été développé par Denis Marty technicien au laboratoire, pour suivre au cours du temps, l'ensemble des mesures.
La figure 2 décrit le montage du système de mesure. L'ensemble des paramètres du procédé sont mesurés : vitesse de la vis et du rouleau, couples de la vis et du rouleau, forces de compactage, ouverture entre les rouleaux, angle de rotation du rouleau.

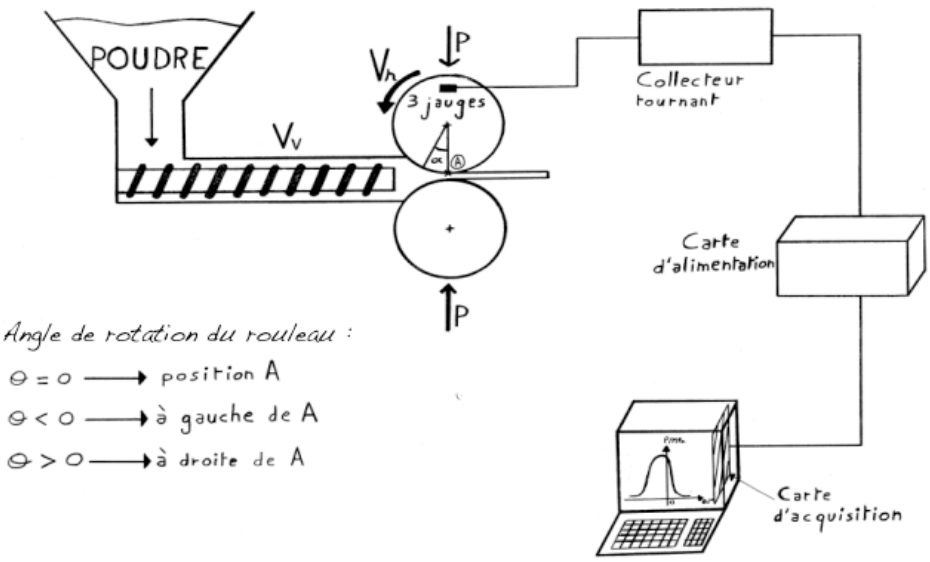


Figure 2 Schéma du montage expérimental du compacteur à rouleaux

La mesure des paramètres du procédé au cours de la mise en forme des poudres et la caractérisation du comportement de poudres en compression de l'état poudre à l'état dense constituent les deux principales données qui permettent de :

i) Comprendre l'agglomération des poudres par compactage à rouleaux
ii) Établir des corrélations entre les paramètres du procédé, les propriétés des poudres et les propriétés du compact
iii) Étudier l'impact des différents paramètres du procédé sur la qualité du compact (tenue mécanique)
iv) Modéliser le procédé de compactage à rouleaux

2. Processus de compactage à rouleaux

La granulation sèche des poudres par compactage à rouleaux est basée sur le transport de poudre par une vis sans fin. La poudre est alors acheminée entre les deux rouleaux qui sont en contre rotation et qui appliquent une pression pour compacter la poudre sous forme de plaquette. Le processus d'entraînement et de densification des poudres entre les rouleaux s'accompagne de plusieurs mécanismes. Ces mécanismes ont été identifiés et formulés par Johanson dans son modèle en prenant en compte les propriétés du milieu granulaire et les principaux paramètres du procédé [Johanson,1965]. Dans ses travaux, Johanson a introduit le concept d'angle de grippage α (nip angle en anglais) qui définit deux zones contiguës : avant l'angle de grippage le milieu granulaire est entraîné par glissement relatif avec le rouleau et une fois l'angle de grippage atteint, le milieu granulaire est supposée transporté par collage au rouleau et densifié sous l'effet de la pression P appliquée par le rouleau. Considérant ses hypothèses, Johansson introduit deux équations pour déterminer l'angle de grippage et aboutit à la distribution de pression entre les rouleaux. Le modèle de Johanson représente l'alimentation des rouleaux par une pression uniforme et n'introduit pas l'effet de

la vitesse du rouleau. Par ailleurs, le milieu granulaire est décrit par des propriétés simples à l'état faiblement dense (angle interne de frottement, coefficient de compressibilité et angle de frottement avec la paroi).

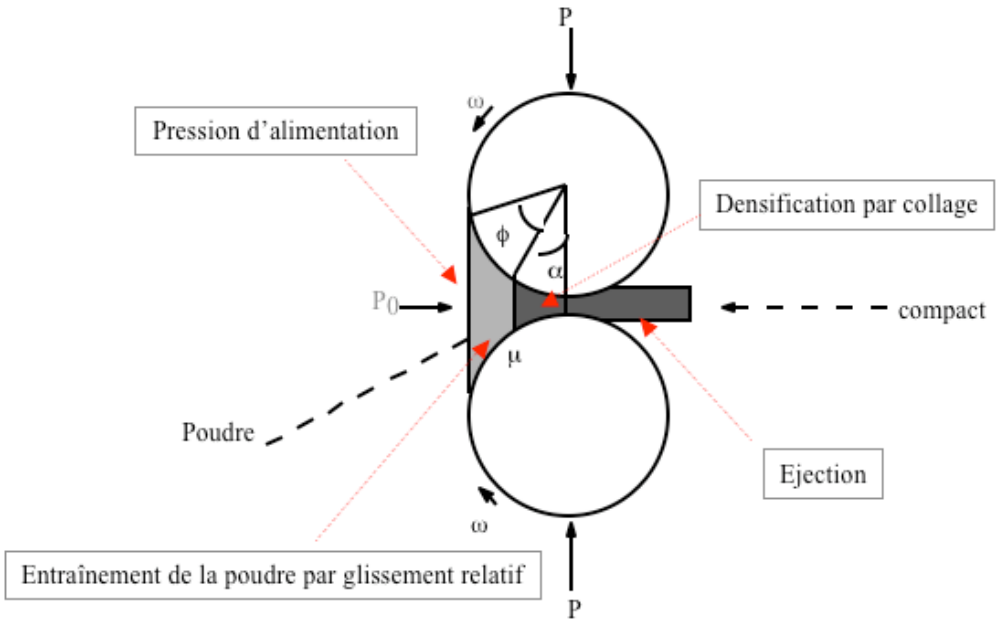


Figure 3 Schéma du processus de déformation en compactage à rouleaux

Malgré sa simplicité, ce modèle introduit une hypothèse forte qui considère l'existence d'un angle de grippage qui constitue la base du modèle. Cet angle de grippage est influencé par d'autres paramètres du procédé et par des propriétés du milieu granulaire. Il a donc une importance fondamentale. Par ailleurs, il est difficile de se rendre compte, à priori, de son rôle dans la prédiction du procédé.

Avant de disposer d'un outil expérimental pour le compactage à rouleaux, nous nous sommes intéressés à la compréhension du procédé par la modélisation. C'est dans le cadre du Master de Marcin Balicki [Balicki,2003] que nous avons analysé le processus de compactage à rouleaux. Dans notre démarche, nous avons développé un simulateur numérique de compactage à rouleaux. Ce simulateur, basé sur le modèle de Johanson, a été développé sous Matlab (1700 lignes de code avec une base de données matériaux et une interface graphique conviviale). Elle permet de simuler plusieurs paramètres du procédé et les corréler à des propriétés matériaux. Cet outil nous a permis de nous rendre compte de la complexité du procédé et des processus de compactage sous-jacents dans le cadre de l'approche continue de Johanson. En particulier, l'effet de propriétés de poudres comme la compressibilité, le frottement inter particulaire ou encore le frottement poudre-rouleau sur la pression de compactage ou sur l'angle de grippage. Compte tenu du nombre important de paramètres dans le procédé, ce simulateur a permis de rendre accessible virtuellement, des corrélations entre des paramètres du procédé comme l'évolution de la pression maximale de compactage avec l'entrefer ou encore l'effet du frottement poudre-rouleau sur l'angle de grippage.

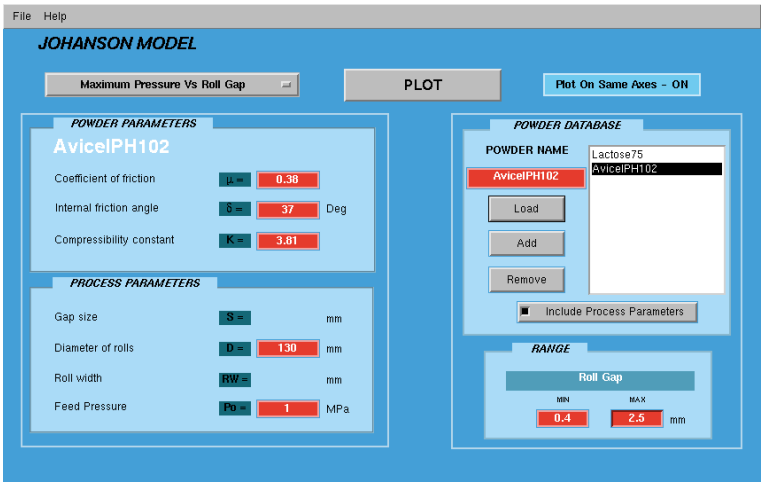
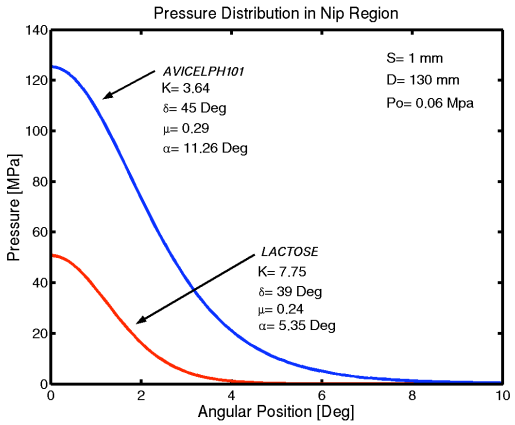
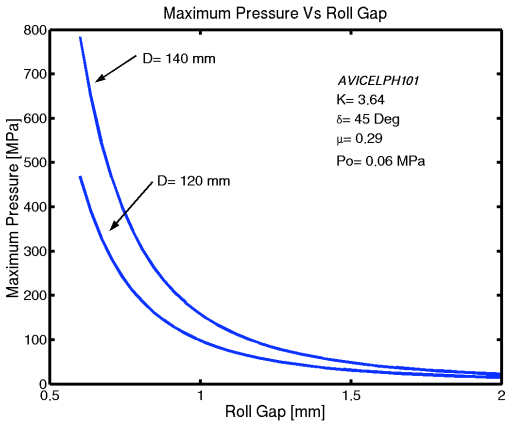
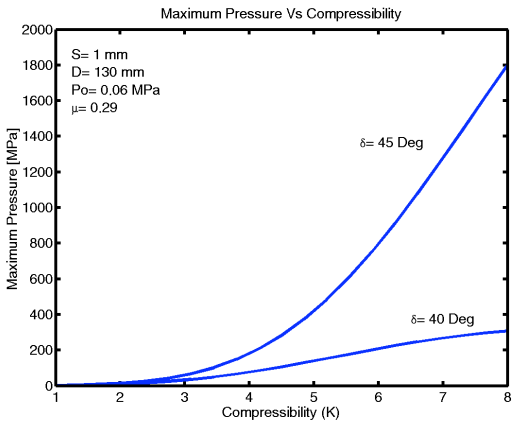
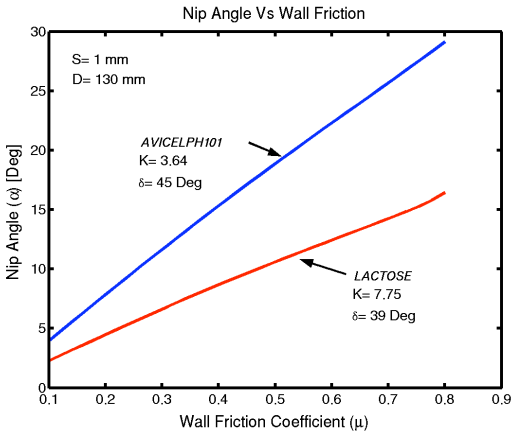


Figure 4 Interface graphique du simulateur de compactage à rouleaux









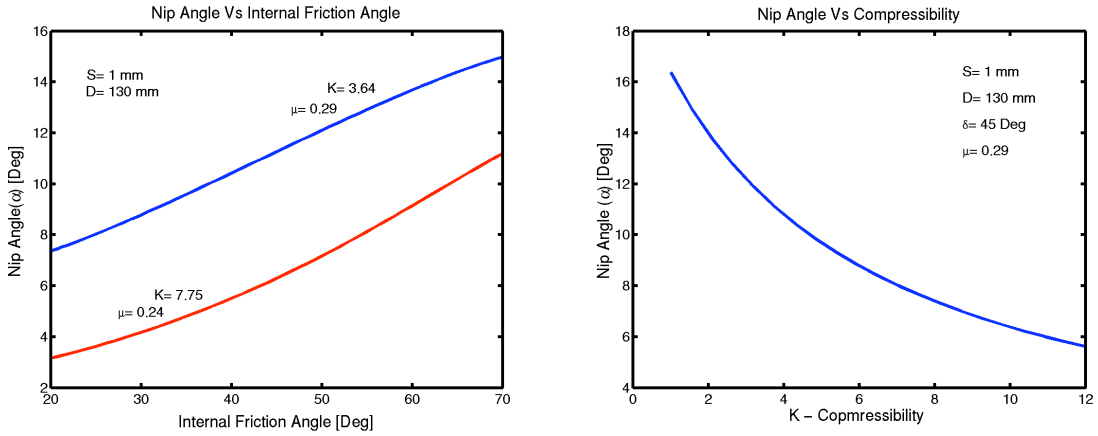


Figure 5 Corrélations entre différents paramètres du procédé via le modèle de Johanson

Le modèle de Johanson est un modèle 2D qui représente des corrélations entre les propriétés du matériau granulaire et les paramètres du procédé. Cependant, ce modèle ne représente pas complètement le procédé réel et le recours à la mesure est donc essentiel. En particulier, dans le procédé à alimentation horizontale, les vitesses de l'alimentation et des rouleaux doivent être synchronisé pour éviter la suralimentation ou la sous-alimentation en poudres. Une corrélation entre les vitesses (vis et rouleau) [Simon,2003] [Harona,2008] ou du coefficient de travail [Lecompte,2005b] permet de déterminer l'espace de travail d'une bonne granulation. L'exemple de la cellulose SMCC90 (Fig 6) montre trois zones de vitesses. Seules les vitesses choisies dans la zone 2 permettent de former des plaquettes sans défauts.

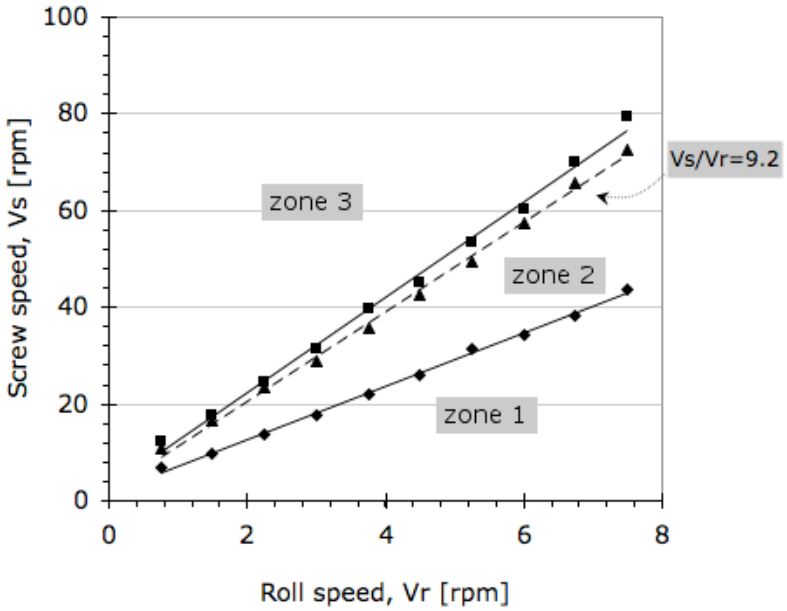


Figure 6 Zones de fonctionnement de la presse dans l'espace des vitesses (cas d'une cellulose microcristalline)

Malgré les limitations du modèle de Johanson dans la description du processus de déformation de la poudre entre les rouleaux [Sommer,2003] [Michrafy,2010a], il a le mérite de proposer une vision

réaliste permettant de comprendre la complexité du lien entre les paramètres du procédé et les propriétés du milieu granulaire.
Le comportement (écoulement et densification) de la poudre dans la zone entre les rouleaux a fait récemment l'objet d'investigations expérimentales [Guigon,2003] [Miguelez-Moran,2008] par des caméras rapides et de modélisations par éléments finis [Dec,2003] [Michrafy,2010b]. Ces études ont apporté des avancées significatives pour la compréhension du processus de déformations de la poudre entre les rouleaux et promettent d'apporter des solutions aux problèmes ouverts du changement d'échelles.

3. L'alimentation

Le système d'alimentation des rouleaux par vis est le système limitant de la capacité de la presse car l'alimentation est fortement dépendante des propriétés du milieu granulaire et des caractéristiques géométriques de la vis. Par ailleurs, l'alimentation joue un rôle important dans l'homogénéité du compactage entre les rouleaux.
Dans les travaux de thèse de Daniela Herold [Projet-Franco-Bavarois], nous avons montré expérimentalement, qu'avec des poudres fines et cohésives de Bentonite (d_{50}=7,4 microns) et de calcaire (d_{50}=20 microns) que l'augmentation de la vitesse de la vis n'entraîne pas d'augmentation du débit de sortie. Cependant, pour des poudres ayant une bonne coulabilité comme la cellulose, le débit de l'alimentation augmente avec l'augmentation de la vitesse de la vis.
Plusieurs propriétés physiques du milieu granulaire peuvent expliquer le comportement observé comme la taille des particules, la perméabilité du milieu granulaire, les charges électrostatiques, le frottement poudre-vis ou poudre-trémie.
Dans ses travaux, Johanson a formalisé la relation entre la perméabilité de la poudre, le gradient de pression de l'air et la vitesse du rouleau (Fig. 7).

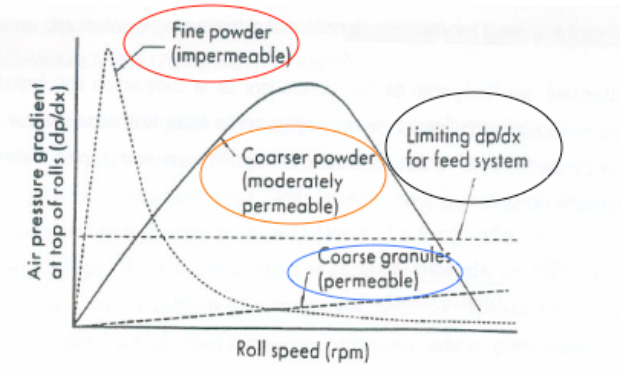


Figure 7 Gradient de pression d'air à l'entrée de la zone d'alimentation versus la vitesse du rouleau et de la perméabilité de la poudred'après Johanson.[Johanson,1965]

En effet pour des poudres fines ou moyennement fines, le gradient de pression d'air peut être important et dépend du niveau de vitesse du rouleau. Alors que pour les poudres de grosses particules où l'air peut-être évacué, l'effet de l'air est négligeable. Ce graphe montre aussi, qu'il est possible

d'adapter la vitesse de production en fonction de la perméabilité de la poudre.

La mesure directe de la pression d'alimentation est difficile et sa détermination est nécessaire à la modélisation du procédé, car considérée comme condition aux limites à l'entrée des rouleaux. D'ailleurs, sa valeur est souvent considérée comme un paramètre de calage. Dans les travaux de Johanson [Johanson,1965], des valeurs de pression d'alimentation entre 0,014 et 1,4 MPa ont été proposées alors que dans les travaux de Dec et al. [Dec,2003], les pressions d'alimentation varient entre 0,21 et 0,42 MPa.

Dans la thèse de H. Diarra [Harona,2008], nous avons utilisé le modèle de Yu et al. [Yu,1997] pour déterminer, à l'aide de mesures de couples avec ou sans les rouleaux, la pression d'alimentation. Rappelons que le modèle de Yu relie les paramètres géométriques de la vis, les propriétés de poudre et les propriétés de frottement aux interfaces, au couple et à la pression moyenne fournie par la vis. Le frottement aux interfaces concerne le frottement "poudre-vis", "poudre-trémis" et "poudre-poudre" dans la zone de cisaillement "trémis-vis". Les paramètres de frottement aux interfaces sont difficilement accessibles par la mesure. C'est l'un des points faibles de ce modèle.
En faisant varier les paramètres du modèle dans des intervalles acceptables pour les poudres étudiées, les valeurs de pression d'alimentation estimées se situent entre 0,1 et 1 MPa. Ces valeurs confirment les propositions de Johanson. Cependant l'absence de validation expérimentale des pressions d'alimentation constitue un manque d'information cruciale sur l'état de la poudre dans la zone d'alimentation que le modèle de Yu ne comble pas.

4. Homogénéité des plaquettes compactées

Différents travaux expérimentaux se sont intéressés à l'homogénéité de densité des plaquettes [Tundermann,1969] [Simon,2000] [Lecompte,2005a] [Miguelez-Moran,2009] [Harona,2008]. Les travaux de Tunderman sur le compactage de poudres de fer ont montré que la distribution de densité dans la largeur des plaquettes dépend de la taille des particules et ce dans les mêmes conditions opératoires de mise en forme. Les particules « grosses » de tailles 150 μm forment des plaquettes qui présentent une distribution de densité uniforme dans la partie centrale de la plaquette, alors que les plaquettes de poudres fines (40 μm) présentent un profil avec un gradient de densité dans la largeur (Fig. 8). Ce comportement est expliqué par la présence de l'air dans la poudre fine qui s'échappe de la poudre se trouvant sur les bords, par contre l'air reste confiné au niveau du centre. Cette situation est plus amplifiée à vitesse de compactage élevée.

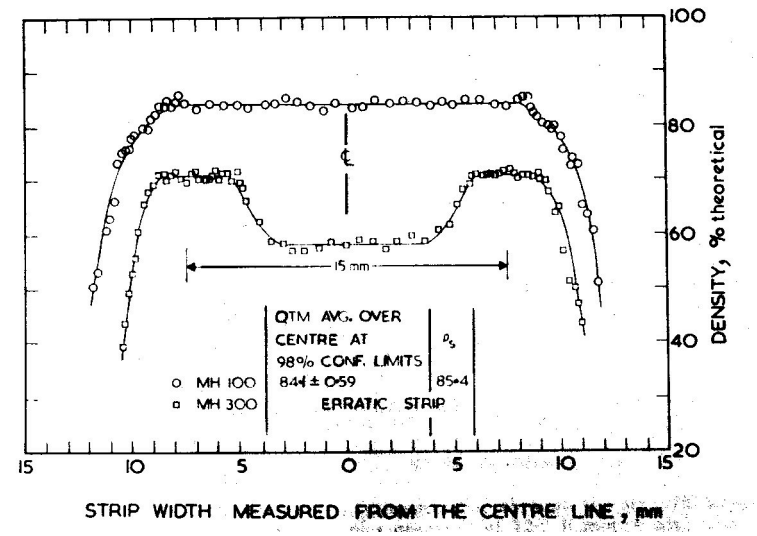


Figure 8 Distribution de masse volumique de plaquettes obtenues à partir de deux poudres de fer (MH100 et MH300) avec la même vitesse de rotation du rouleau. D'après Tunderman [Tundermann,1969].

Plutard, les travaux de Simon [Simon,2000] sur le lactose monohydrate mélangé avec 4% de charbon ont montré le rôle de l'alimentation par vis sur l'hétérogénéité de comportement observée. Par ailleurs, Lecompte et al. [Lecompte,2005a] a montré que dans le cas du compactage de poudres organiques, la distribution de pression de compactage dans la largeur du rouleau est homogène si la dernière spire de la vis est suffisamment loin des rouleaux.

Ces deux derniers résultats ne sont pas contradictoires, mais montrent bien la complexité du problème en termes de comportement de poudres et d'interaction avec l'outil (la presse et ses paramètres). L'une des difficultés majeures pour comparer des données est la variété des presses et des systèmes d'alimentation et la complexité du comportement de poudres.

Dans nos travaux [Harona,2008][Michrafy,2010b] sur la cellulose microcristalline, nous avons mis en évidence l'hétérogénéité de propriétés des plaquettes par différentes techniques expérimentales : la diffusion de la lumière à travers la plaquette, la porosimètrie au mercure, la micro indentation et la microscopie numérique. L'observation de la diffusion de la lumière à travers l'épaisseur de la plaquette (Fig. 9) a montré une hétérogénéité dans le sens du compactage et dans la largeur de la plaquette. Cette hétérogénéité s'est matérialisée par des zones claires et sombres en forme de sinusoïdes.

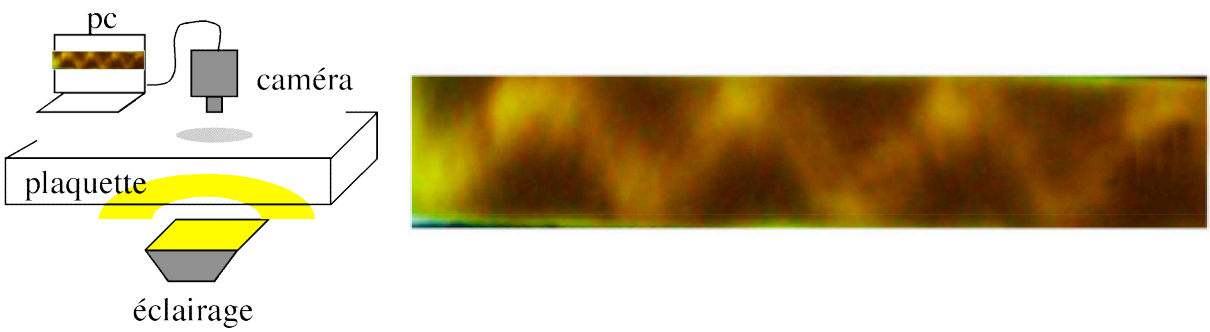


Figure 9 Franges de diffusion de lumière dans un compact de cellulose microcristalline

Un comportement similaire a été observé par Simon et al. [Simon,2003] sur le compactage du lactose en utilisant le charbon comme traceur.
La question naturelle qui se pose est de comprendre si les franges sombres et claires correspondent à des niveaux de densités différentes. Dans l'objectif d'apporter une réponse à cette question, des pastilles ont été prélevées dans la plaquette suivant la grille de la figure 10.

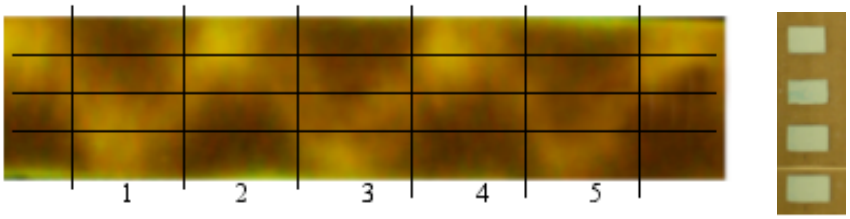


Figure 10 grilles de prélèvement de pastilles dans la largeur de la plaque. Pastilles analysées par porosimétrie au mercure : 4 pastilles par colonne de grille.

Des analyses par porosimètre au mercure de ces pastilles réalisées au laboratoire par Sylvie Delconfetto, technicienne au laboratoire, ont montré que la densité est plus élevée au centre de la plaquette et plus faible sur les bords. La figure 11 montre les résultats d'analyse par porosimétrie au mercure. La distribution de densité ainsi mesurée ne présente pas de concordance avec les franges claires et sombres obtenues par diffusion de la lumière. Ce résultat a été confirmé récemment par une étude sur la même poudre avec un compacteur à alimentation verticale par Wu et al. [Miguelez-Moran,2009].

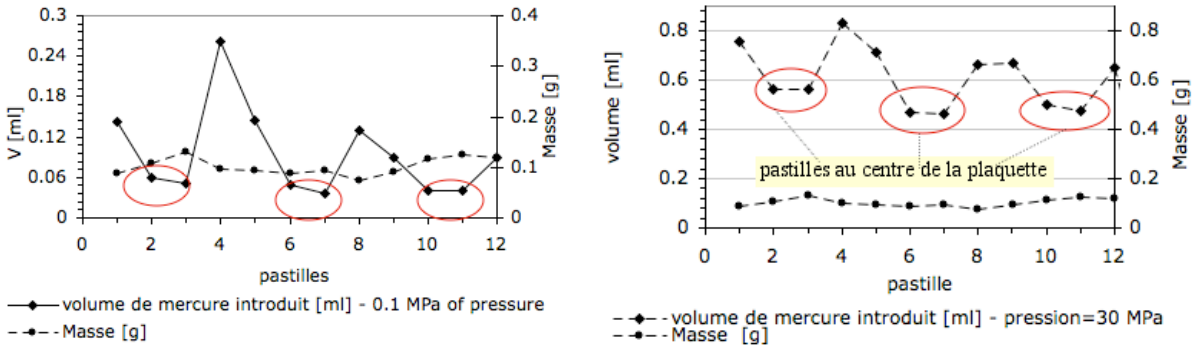


Figure 11 Mesure de volume de mercure introduit sous pression dans les pastilles

Le désaccord entre l'hétérogénéité entre les franges obtenues par diffusion de la lumière et la distribution de densité obtenue par porosimètrie au mercure pourrait s'expliquer par le fait que les deux méthodes d'analyse ne mesurent pas les mêmes propriétés : la diffusion de la lumière est une technique optique qui selon la propagation de la lumière met en évidence la texture (anisotropie) induite par le compactage et moins la densité.

L'homogénéité de la densité de la plaquette a été aussi analysée par micro indentation dans le cadre d'une collaboration avec le centre matériaux (CROMeP) de l'Ecole des Mines d'Albi. Une bille de 1,5 mm de diamètre a été utilisée pour l'indentation. Une série de trois points de mesure dans la largeur

de la plaquette et dont les positions sont connues par rapport à la sinusoïde, ont été indentés par une force de 5 N (Fig. 12). Dans cet essai, il s'agit de comparer la profondeur de pénétration de l'indenteur en fonction de sa position.

Les résultats contradictoires de cette analyse n'ont pas été concluants. La micro indentation est une technique qui n'est pas adaptée aux matériaux poreux.

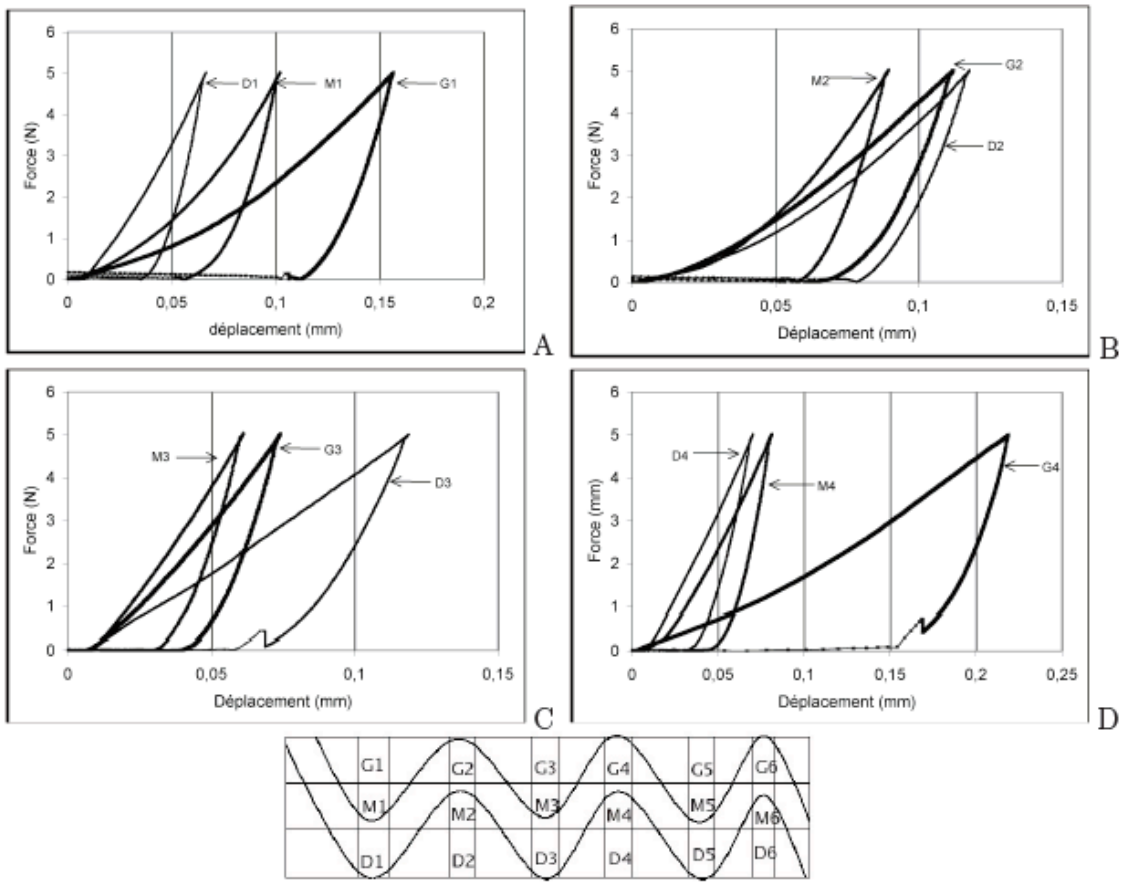


Figure 12 Courbes de force-déplacement par micro indentation de type Brinell (bille de 1,5 mm) de la plaquette.

Nous nous sommes aussi intéressés à la distribution de porosité dans l'épaisseur de la plaquette (épaisseur de 2 mm). Cet intérêt a été motivé par la modélisation numérique continue et sa capacité à prédire des distributions de densité dans la zone de l'entrefer.

À l'aide d'un microscope numérique (VHX-600 de chez Keyence France) ayant une bonne profondeur de champs, nous avons pu observer (Fig. 13) une hétérogénéité de porosité dans l'épaisseur de la plaquette. Les zones de fortes densité sont en contact avec les rouleaux, alors que le cœur de la plaquette est beaucoup moins dense.

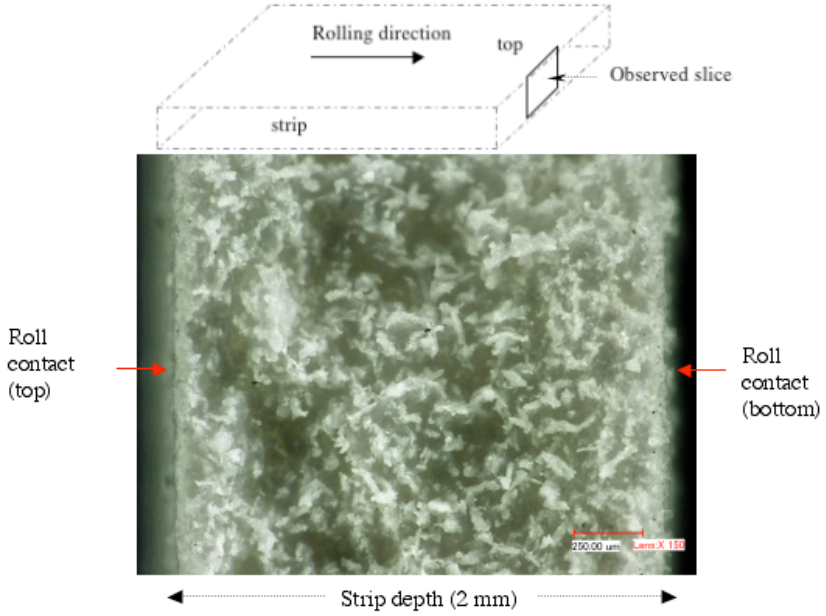


Figure 13 Micrographie par microscopie numérique de l'aspect de la microstructure (porosité) dans l'épaisseur de la plaquette (2 mm) : les bords en contact avec les rouleaux sont denses, le centre de la plaquette est poreux

5. Vitesse de compactage

Les vitesses de la vis et du rouleau, paramètres les plus prépondérants du procédé, agissent directement sur le débit d'alimentation et sur le temps de séjour de la poudre entre les rouleaux. De ce fait, les propriétés de la plaquette compactée en dépendent. L'augmentation de la vitesse de la vis et du rouleau est souvent synonyme de rendement. Dans sa thèse sur le compactage de lactose monohydrate, Simon [Simon,2000] a montré que, pour une vitesse de rouleau donnée, la pression de compactage augmente linéairement avec la vitesse de la vis . À l'inverse, l'augmentation de la vitesse du rouleau diminue la pression de compactage.

Dans ses travaux de thèse, H. Diarra [Diarra,2008] a étudié l'effet sur la pression de compactage, de l'évolution simultanée des vitesses de vis et du rouleau tout en gardant constant leur rapport (Vv≈9Vr). L'idée est d'augmenter le rendement en augmentant le débit massique par la vis et en réduisant le temps de séjour de la poudre entre les rouleaux (ce qui correspond à la pratique industrielle). Dans l'espace des vitesses, cela revient à choisir une droite dans la zone du bon fonctionnement. Dans cette étude qui concerne la poudre de cellulose microcristalline, la pression de compactage augmente avec l'augmentation linéaire des vitesses (Fig. 14). On constate que la densité apparente de la plaquette augmente jusqu'à une certaine vitesse du rouleau où une baisse est entamée (Fig. 15). Cette analyse montre bien l'existence, dans l'espace des vitesses, de chemins préférentiels assurent une amélioration du rendement (augmentation du débit massique et diminution du temps de séjour) tout en gardant une qualité de production. Ce paramètre est important dans un éventuel développement d'outils de changement d'échelles.

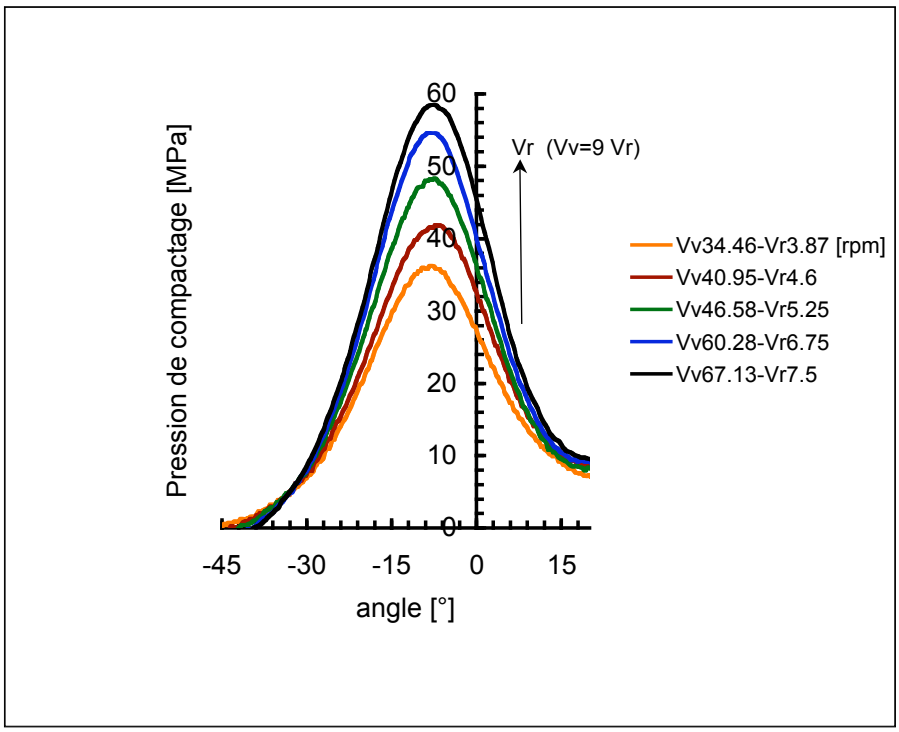


Figure 14 Evolution de la pression de compactage avec la variation du couple (vitesse vis, vitesse rouleau) avec un ratio «vitesse vis/vitesse rouleau» ≈9

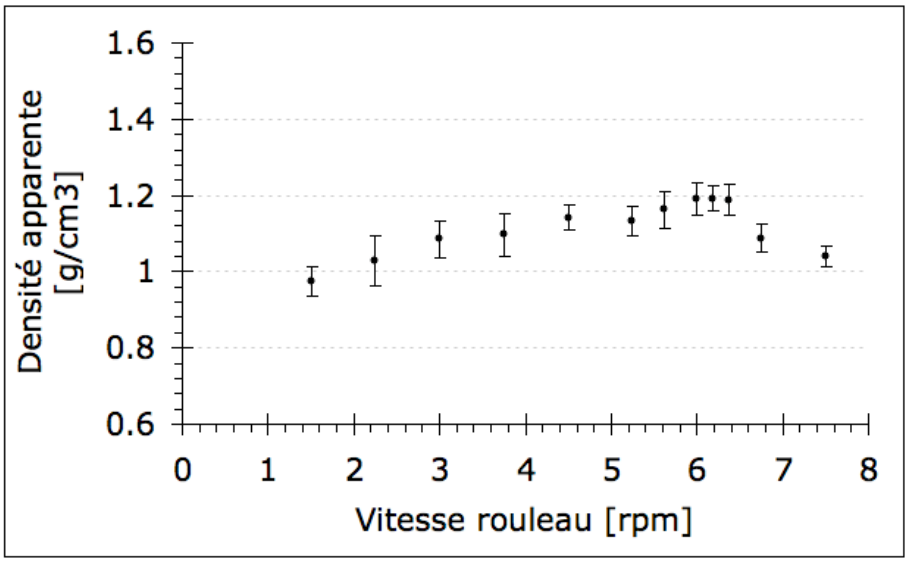


Figure 15 Evolution de la densité apparente de plaquette de cellulose microcristalline en fonction de la vitesse du rouleau (avec Vv/Vr ≈ 9)

6. Friction

6.1 Rôle du frottement dans le procédé

Comme dans le compactage en matrice, le frottement entre le rouleau et la poudre est d'importance fondamentale dans la conduite du procédé. Cette importance est renforcée par le fait que le processus de déformation du milieu granulaire entre les rouleaux est en partie basé sur les conditions de

frottement. Il n'y a pas de granulation sèche sans frottement !

Les rouleaux des presses sont lisses ou striés. Les stries sont souvent employées pour augmenter le frottement entre le rouleau et la poudre.

L'augmentation du frottement entre le rouleau et la poudre a plusieurs conséquences sur le procédé et sur les propriétés finales de la plaquette. En effet, dans le travail de Master Recherche de M. Balicki [Balicki,2003], l'analyse du procédé par le modèle de Johanson montre que l'augmentation du frottement entraîne une augmentation de l'angle de grippage (Fig. 16) et donc de la zone de compactage. Il s'ensuit une augmentation de la pression du compactage et de la densité de la plaquette.

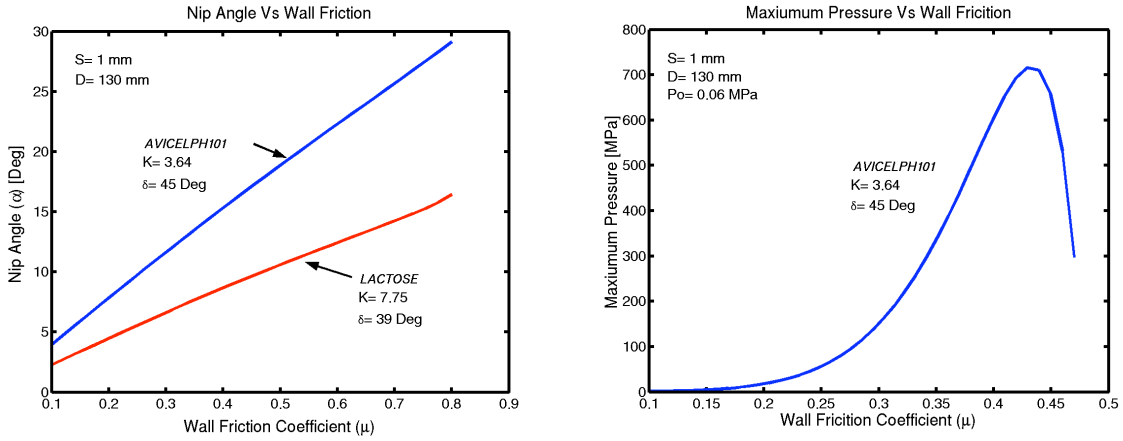


Figure 16 Evolution de l' angle de grippage et de la pression de compactage avec le frottement (Johanson).

6.2 Mouvement «slip-stick» en compactage à rouleaux

Aussi bien les travaux expérimentaux de Chekmarev et al. [Chekmarev,1963] et Shönert et al. [Schönert,2002] que la modélisation de Johanson [Johanson,1965], montrent clairement la présence d'un angle de grippage qui distingue deux zones contiguës : une zone de glissement relatif poudre-rouleau suivie d'une zone de collage où la compression est réalisée. Ce type de comportement rentre dans le cadre plus général de frottement intermittent avec oscillation de mouvement relatif étudié par Browden et Leben en 1939 [Browden,1939] et qualifié de mouvement «stick-slip ».

Pour représenter ce type de frottement on se place dans le cadre de Coulomb où l'on considère que « le glissement commence quand la force de frottement atteint une valeur critique proportionnelle à la force normale ». Le coefficient de proportionnalité correspond au coefficient de frottement de Coulomb qui dépend de la contrainte normale et de la vitesse de glissement relative.

Les conditions de mouvement «stick-slip» s'écrivent alors :

$$u_n < 0 \quad (pas\,de\,contact) \quad \Rightarrow \quad \sigma_\tau = 0$$

$$u_n > 0 \quad (contact) \quad \Rightarrow \quad \begin{cases} |\sigma_\tau| < \mu|\sigma_n| \quad \Rightarrow \quad \dot{u}_\tau = 0 \\ |\sigma_\tau| = \mu|\sigma_n| \quad (glissement) \Rightarrow \quad \dot{u}_\tau = \lambda|\sigma_\tau|, \quad \lambda \geq 0 \end{cases}$$

où u_n ,σ_n, u_τ ,σ_τ désignent respectivement les composantes normales et tangentielles du déplacement et de la contrainte. La vitesse tangentielle à la surface de contact est représentée par $\dot{u}_\tau$.
Les conditions décrites ci-dessus peuvent être remplacées par la condition suivante (appelée condition de complémentarité),

$$\left|\dot{u}_r\right|(|\sigma_\tau| - \mu|\sigma_n|) = 0$$

Cette équation montre bien que si le contact est fermé $(u_n \geq 0)$ et si le critère est atteint, il y a glissement relatif.
Dans cette représentation du contact-frottement, il n'y a pas d'angle de grippage supposé à priori !

6.3 Mesure du coefficient de frottement

Dans le modèle de Coulomb, le coefficient de frottement est défini par le ratio de la contrainte de cisaillement et la pression normale. La mesure de la pression normale est généralement plus accessible que la contrainte tangentielle grâce à plusieurs types d'instrumentations. La mesure de la contrainte tangentielle est plus rare à cause de la difficulté technique de mise en place et la calibration des capteurs.

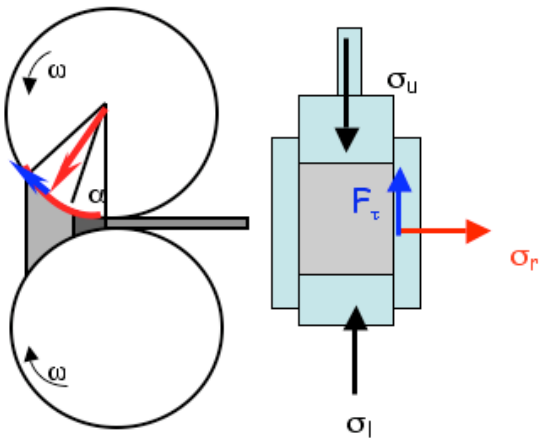


Figure 17 Similitude entre le frottement en compression en matrice et en compactage à rouleaux.

N'ayant pas développé de moyens de mesure de la contrainte tangentielle, nous avons considéré, dans notre approche, que le frottement entre la poudre et le rouleau est similaire au frottement entre la matrice et la poudre (même poudre, même état de surface pour le rouleau et la matrice). La force normale (respectivement tangentielle) au rouleau est assimilée à la force radiale (respectivement

tangentielle) dans l'essai de compression en matrice (Fig. 17). Le coefficient de frottement est estimé à l'aide de l'essai de compression en matrice, équation (I.10).

Conclusion I.2

Dans ce chapitre sur les techniques expérimentales et de caractérisations du procédé de compactage à rouleaux, nous avons décrit notre démarche scientifique pour la compréhension d'un procédé complexe dont l'étude expérimentale nécessite des mesures délicates. Cette démarche rentre dans le cadre de l'approche continue et est basée sur la complémentarité entre le développement de moyens expérimentaux originaux et le développement de simulateurs numériques.

Conscient du rôle de l'expérimentation dans la compréhension du procédé et dans le développement de la modélisation numérique, nous avons développé l'instrumentation d'une presse à rouleaux pour suivre l'ensemble des paramètres pertinents au cours du procédé. Nous avons montré, grâce à cette instrumentation, qu'il était possible de progresser dans la compréhension des mécanismes de déformation de poudres et de la relation entre certains paramètres du procédé et des propriétés des compacts. En particulier, l'influence de la vitesse des rouleaux et de la vis, l'effet de la vitesse de la vis sur la force de compactage ou encore l'impact de la vitesse des rouleaux sur la densité et l'homogénéité des plaquettes.

Pour caractériser les propriétés des compacts, nous avons mis en œuvre différentes techniques expérimentales pour recouper des informations de sources différentes à fin de mieux comprendre l'hétérogénéité observée des compacts. Ces résultats encourageants confirment la signature de la vis dans l'hétérogénéité des compacts. Cependant, ces résultats devraient être validé sur d'autres poudres et avec d'autres formes de vis.

Malgré les efforts accomplis à ce jour par la communauté de la technologie des poudres, le compactage à rouleaux pose des questions fondamentales et technologiques encore insolubles comme :

(i) la compréhension des modifications structurelles à l'échelle des grains et des granules permettant d'améliorer les propriétés d'usage,

(ii) la dépendance des propriétés finales de granulés des paramètres du procédé et des propriétés de poudres primaires et enfin,

(iii) le changement d'échelle du laboratoire au pilote et à la production. Ce dernier point présente un verrou scientifique et industriel loin d'être complètement maîtrisé et reste un enjeu industriel qui freine le développement du procédé en comparaison avec le procédé de granulation humide.

Chapitre II

Modélisation de comportement de poudres en compression

Introduction

Les matériaux granulaires sont des matériaux à structure discontinue et il existe des approches qui s'appliquent à décrire le milieu granulaire comme un assemblage de grains dont le comportement global résulte du comportement de chaque grain et des interactions inter particulaires (Méthodes des Eléments Discrets par exemple). Il est donc naturel, dans ces conditions, de se demander ce que vaut une approche continue pour décrire le comportement de milieux granulaires. En fait, la question est une question d'échelle d'observation, puisque la plupart des matériaux sont discontinus à l'échelle microscopique. C'est le cas des gaz, des liquides ou des solides. Les matériaux ont tous une dimension critique en dessous de laquelle la structure n'est pas continue et l'on sait que dans la plupart des cas une description continue peut représenter correctement leur comportement.
Le problème essentiel est donc de savoir si l'on peut définir le comportement d'un grand nombre d'objets (grains) par un petit nombre de grandeurs macroscopiques représentatives. Normalement, on doit pouvoir définir des grandeurs moyennes qui ont un sens physique et qui permettent de décrire le comportement de milieux granulaires avec une vision de milieu continu. Bien entendu, du nombre de paramètres minimums nécessaires à la description du comportement dépendra la difficulté de la représentation macroscopique du comportement et la complexité de la loi d'évolution.

Dans ce chapitre, nous rappellerons brièvement quelques approches continues, issues de la mécanique des métaux poreux ou de la mécanique des sols qui sont utilisées pour la modélisation du comportement de matériaux granulaires en compression. On précisera leurs principes de formulation et surtout les mécanismes essentiels qu'ils décrivent. Par la suite, on présentera les principales caractéristiques macroscopiques du comportement des poudres pharmaceutiques et les modèles continus les plus adaptés à la spécificité de leurs comportements. Cela nous conduira au choix argumenté du modèle de Drucker Prager Cap implémenté dans le logiciel Abaqus® que nous avons mis en oeuvre pour le développement de nos modélisations. Ensuite, je décrirai la démarche d'identification des paramètres du modèle à partir d'essais mécaniques simples sur des poudres pharmaceutiques : l'une simplifiée a permis de mener les premiers travaux de modélisation et l'autre plus élaborée suite à l'évolution du montage expérimental. Cette démarche progressive de modélisation s'explique par l'effort de développement en parallèle de la modélisation et des moyens expérimentaux.
Ce chapitre se terminera par une conclusion.

1. Modèles pour la compression de poudres

Rappelons qu'il existe deux types d'approches pour la modélisation de la compression de

matériaux granulaires : l'une continue développée à l'échelle macroscopique et l'autre discontinue à l'échelle microscopique (échelle de la particule). Ces deux approches se sont développées en parallèles et ne s'opposent pas, mais sont complémentaires avec leurs avantages et inconvénients (limitations). Cependant, la combinaison de ces deux techniques constitue une modélisation multi échelles plus riche, même si elle reste plus coûteuse au regard des données expérimentales disponibles et au temps de développement nécessaire.

Pour la compression de matériaux granulaires, les modèles continus appliqués sont développés dans le cadre de l'élastoplasticité et sont issus de la mécanique des sols (roches, sables, argiles,…) ou de la mécanique des métaux poreux (métaux avec des défauts ou des porosités). Selon le nombre et la nature des mécanismes à représenter, les modèles ont été modifiés et adaptés pour les applications de la compression de poudres. Nous présentons brièvement ci-dessous les fondements de ces deux approches en renvoyant le lecteur qui souhaite approfondir dans ce domaine, vers les références des auteurs. Une bonne synthèse bibliographique de ces approches est donnée dans les rapports de thèse de Gilles Coccoz [Coccoz,1995] et de Vincent Bonnefoy [Bonnefoy,2001].

1.1 Modèles de type « métal poreux »

Le principe des modèles de métaux poreux est de rendre sensible à la pression hydrostatique les critères de métaux denses (Von-Misès, Tresca,…) en prenant en compte la présence de cavités (porosité) dans le métal dense considéré comme matrice. La partie dense est alors considérée rigide parfaitement plastique et les défauts (porosité) sont assimilés à des sphères qui confèrent au matériau homogène équivalent la propriété de compressibilité. Une fonction dépendant de la pression hydrostatique (1^{er} invariant des contraintes) et de la contrainte équivalente de Von-Misès ($2^{ème}$ invariant des contraintes) est alors définie en tant que critère de plasticité. L'écoulement est considéré associé. Plusieurs modèles ont été développés dans cet esprit par Kuhn et Downey [Kuhn,1971], Green [Green,1972], Shima et Oyane [Shima,1976], Gurson, [Gurson,1976], Oyane, Shima et Tabata [Oyane,1978]. Cependant, ces modèles permettent de décrire le comportement de matériaux frittés, mais s'avèrent insuffisants pour décrire la compression des matériaux granulaires (compression à froid) car la plage de variation de la densité relative est grande.

1.2 Modèles à fermeture (ou à Cap)

Les modèles à fermeture qui prennent leur racine dans la mécanique des sols sont des modèles de type élastoplastique et ont été développés essentiellement par Drucker-Prager [Drucker,1952], Drucker, Gibson et Henkel [Drucker,1957], DiMaggio et Sandler [DiMaggio,1971]. Ils consistent à fermer l'enveloppe de rupture de Drucker-Prager sur l'axe des pressions hydrostatiques par une fonction de charge dont l'évolution est contrôlée par la densité relative (ou la déformation volumique plastique). Dans un premier temps, ces modèles composés de deux fonctions de charge étaient formulés avec un écoulement associé. La figure 17, donne une représentation du critère dans l'espace "pression hydrostatique, contrainte équivalente de Von-Misès".

L'analyse de ces modèles pour un chemin de chargement, comme cela est illustré dans la figure 18, montre que le cap se dilate dans un premier temps (loi associée) et se contracte (en pointillé) lors de la décharge élastique de la position 1 jusqu'à 2. Une fois le point 2 atteint (formant un angle entre le cap et l'enveloppe de rupture), le taux déformation plastique s'oriente comme cela est indiqué sur la figure 18 (loi associée) et provoque un mouvement supplémentaire du cap si l'état de contrainte reste fixe au point 2 (composante horizontale du vecteur taux de déformation plastique correspondant à un taux de déformation volumique plastique). Ce qui ne pouvait prendre en compte le caractère dilatant dans la compression des poudres. C'est à Drucker-Prager que revient l'idée de proposer une loi non associée permettant d'éliminer la composante horizontale du vecteur taux de déformation plastique et de bloquer toute déformation volumique supplémentaire (figure 19).

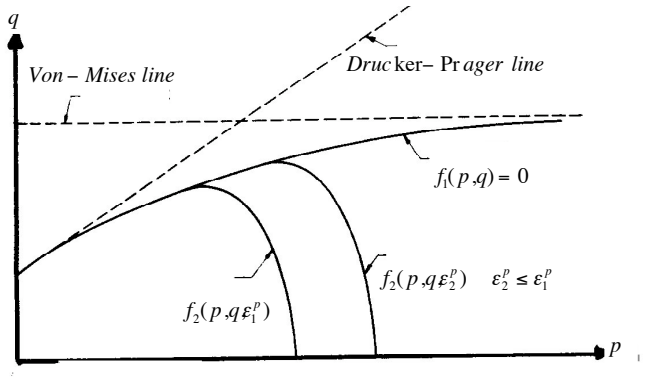


Figure 17 Représentation de critère de type Cap ([DiMaggio,1971])

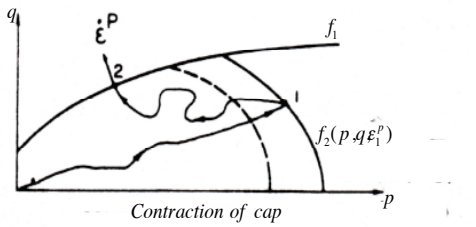


Figure 18 Analyse de l'impact de la loi d'écoulement associée sur le comportement

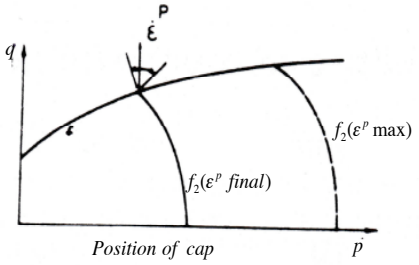


Figure 19 correction du modèle par une loi non associée

(d'après DiMaggio et Sandler [DiMaggio,1971])

Une autre amélioration a été apportée aux modèles à cap pour simplifier la transition entre le cap et l'enveloppe de rupture (angle) : Il s'agit de considérer un cap elliptique et une surface de transition régulière entre le cap et la surface de rupture.

1.3 Principaux mécanismes de déformation

Nous avons discuté dans la partie expérimentale, la différence de comportement mécanique entre les poudres pharmaceutiques et métalliques. Les poudres pharmaceutiques sont généralement des agglomérats fragmentaires et ont un processus de déformation similaire aux poudres céramiques granulées (alumine, …).
Cependant, à l'échelle macroscopique et selon les mécanismes décrits, les modèles peuvent aussi bien représenter le comportement des poudres métalliques, céramiques et pharmaceutiques. La différence de comportement entre ces poudres est plutôt prise en compte dans les paramètres du modèle qui sont identifiés à partir des données expérimentales.

Le processus de déformation des poudres s'accompagnent de plusieurs mécanismes : réarrangements et fragmentations successifs, friction inter particulaires et déformation irréversible. Contrairement aux matériaux denses dont le comportement élastoplastique est régit par une fonction de charge dépendant du second invariant des contraintes (contrainte équivalente de Von-Misès), le comportement de poudres pharmaceutiques est sensible à la pression hydrostatique et à la contrainte équivalente. En effet, ce sont deux mécanismes caractéristiques du comportement des poudres. Le mécanisme de densification mène à une réduction du volume de poudres (milieu compresssible) sous l'effet d'une pression hydrostatique, alors que le mécanisme dilatant conduit à une augmentation de volume résultant de l'augmentation de la taille des pores sous l'effet d'une contrainte de cisaillement. Ce dernier mécanisme est souvent considéré comme le mécanisme qui favorise le mouvement inter particulaires. En effet, Reynolds [Reynolds,1885] constata, suite à une série d'expériences, qu'un milieu granulaire ne pouvait se déformer notablement qu'en se dilatant préalablement pour que certains grains puissent se glisser dans les vides laissés entre les autres. Ainsi avant que la déformation n'ait pu avoir lieu, le milieu devra en général se dilater en augmentant les pores.

1.4 Critères de choix du modèle

Pour représenter les mécanismes importants dans le comportement de poudres pharmaceutiques, les modèles à cap apparaissent alors plus adaptés à la spécificité du comportement des matériaux granulaires. Ils permettent comme on vient de le dire de décrire le caractère densifiant et dilatant représentant deux propriétés caractéristiques des poudres. Cependant, dans nos développements liés à la compression de poudres pharmaceutiques pour le procédé de compression directe et le procédé de compactage à rouleaux, le choix parmi la liste des modèles à Cap a obéi à plusieurs critères :

- La capacité du modèle à décrire un ensemble de mécanismes prépondérants dans le comportement du matériau (comme on vient de le voir, les modèles à cap semblent plus adaptés à la spécificité du comportement de poudres),
- La possibilité de pouvoir identifier les paramètres du modèle à partir d'un nombre réduit d'essais simples.
- La disponibilité éventuelle du modèle dans un code de calcul car le temps de développement et de validation des algorithmes numériques sont fastidieux.
- Enfin, l'ouverture du logiciel permettant à l'utilisateur d'apporter des enrichissements par

l'utilisateur au modèle.

Avec ces critères, notre choix s'est naturellement orienté vers le modèle de Drucker-Prager Cap implémenté dans Abaqus®.

1.5 Fonction de charge de Drucker Prager Cap

On notera par la suite $S_{ij} = \sigma_{ij} - p\delta_{ij}$ le déviateur des contraintes.
Les deux invariants du tenseur des contraintes sont :
La pression hydrostatique définit par

$$p = \frac{1}{3}\sum \sigma_{kk}$$

et le module du déviateur des contraintes (ou contrainte équivalent de VonMisès) définit par

$$q = \frac{\sqrt{3}}{2}\sum s_{ij}s_{ij}$$

Dans le concept de la modélisation de type élastique plastique, l'incrément de déformation $d\varepsilon = (d\varepsilon_{ij})$ associé à un incrément de contraintes $d\sigma = (d\sigma_{ij})$ résulte de la contribution de l'incrément de la déformation élastique $d\varepsilon^{el}$ et de l'incrément de la déformation inélastique $d\varepsilon^{in}$:

$$d\varepsilon = d\varepsilon^{el} + d\varepsilon^{in}$$

N. B : Tout le long de ce manuscrit, nous préférons parler de déformation "inélastique" pour la compression de poudres (déformation irréversible) plutôt que de déformation "plastique" qui a un sens physique dans les matériaux métalliques.

Dans l'espace des contraintes *(p, q),* le critère de charge *F* est une fonction convexe de p et de q qui vérifie *F(p, q)≤0*. Son enveloppe *(F=0)* définit la surface de charge où le comportement est irréversible (évolution des variables internes). En dessous de cette surface (à l'intérieur de l'enveloppe *F < 0*), le comportement est linéaire élastique (les variables d'état restent inchangées).

1.5.1 Définition des surfaces de charge de Drucker Prager Cap

Le modèle de Drucker Prager Cap implémenté dans le code Abaqus® est formulé dans l'esprit des modèles à Cap présenté au chapitre II, §1.2. Il est formé de trois surface de charges :

- *Une surface de rupture* $F_s(p,q)$ correspondant à la ligne de glissement de Drucker Prager :

$$F_s = q - p\tan\beta - d = 0 \qquad \text{(II.1)}$$

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

- Une fermeture elliptique $F_c(p,q)$ ayant une courbure constante R :

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

où p_a est le centre de l'ellipse et R son l'excentricité.

La pression p_a est déterminée par :

$$p_a = \frac{p_b - Rd}{1 + R\tan\beta} \qquad \text{(II.3)}$$

où p_b est la fonction de densification, qui définit la position du cap en fonction de la déformation volumique inélastique (ou densité relative). C'est une fonction croissante.

Remarque :

Le mécanisme de densification pour les poudres est comparable au mécanisme d'écrouissage pour les métaux. Cependant, la question de distinguer les deux mécanismes lorsqu'ils coexistent est discutée dans la littérature. Cela permet entre autres de disposer d'une deuxième variable d'état décrivant le mécanisme d'écrouissage et qui permet de prendre en compte le caractère anisotrope du comportement en présence de chargement complexe. Ce qu'une seule variable comme la densité relative ne peut faire.

- Une fonction de transition $F_t(p,q)$ entre le cap et la ligne de glissement pour assurer une connectivité régulière des deux surfaces.

$$F_t = \sqrt{(p - p_a)^2 + \left(q - (1 - \eta/\cos\beta)(d + p_a\tan\beta)\right)^2} - \eta(d + p_a\tan\beta) = 0 \qquad \text{(II.4)}$$

Une représentation graphique de l'espace des contraintes admissibles est illustrée dans la figure 20.

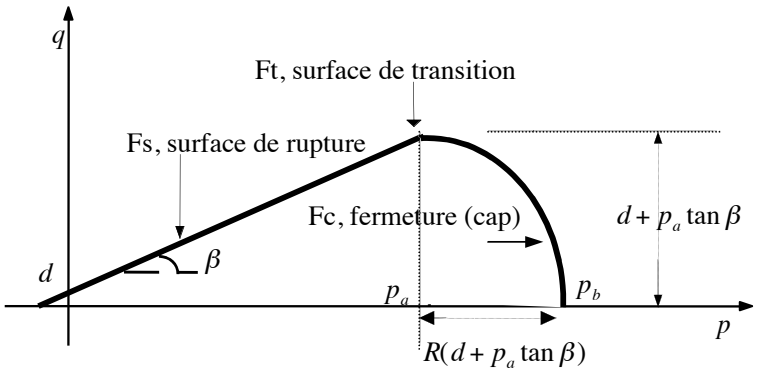


Figure 20 Espace des contraintes admissibles. Modèle de Drucker Prager Cap (Abaqus®)

1.5.2 Critère d'écoulement (F=0)

L'évolution de la déformation irréversible qui résulte des mécanismes de densification de la poudre 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 ([Abaqus]) :

$$G_S = \sqrt{((p_a - p)\tan\beta)^2 + \left(\frac{q}{1+\eta-\eta/\cos\beta}\right)^2} \qquad \text{(II.5)}$$

L'incrément de déformation irréversible est défini par (figure 21) :

$$d\varepsilon^{ir} = d\lambda\left(\frac{\partial G_S}{\partial p}(p,q), \frac{\partial G_S}{\partial q}(p,q)\right) \quad si\ F_s(p,q) = 0\ ou\ F_t(p,q) = 0 \qquad \text{(II.6)}$$

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

Pour la surface de charge du Cap, l'écoulement est *associé* et le potentiel G_c est égal à F_c.

L'incrément de déformation irréversible est défini par :

$$d\varepsilon^{ir} = d\lambda\left(\frac{\partial F_c}{\partial p}(p,q), \frac{\partial F_c}{\partial q}(p,q)\right) \quad si\ F_c(p,q) = 0 \qquad \text{(II.7)}$$

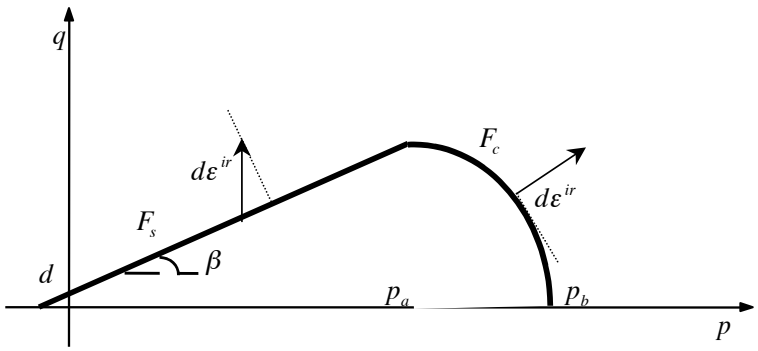


Figure 21 Schéma de l'incrément de déformation irréversible

1.5.3 Comportement élastique (F < 0)

Dans une approche de type élastoplastique, tant que l'état de contrainte est à l'intérieur de l'enveloppe de charge, le comportement élastique est supposé linéaire et dépendant de l'état de densité relative actuelle ρ_r :

$$d\sigma = D(\rho_r)d\varepsilon^{el} \tag{II.8}$$

où $D = D^{el}_{ijkl}$ est le tenseur d'élasticité défini par :

$$D^{el}_{ijkl} = \frac{E(\rho_r)}{1+\nu(\rho_r)}\left[\frac{1}{2}\left(\delta_{ik}\delta_{jl}+\delta_{il}\delta_{jk}\right)+\frac{\nu(\rho_r)}{1-2\nu(\rho_r)}\delta_{ij}\delta_{kl}\right] \tag{II.9}$$

où E et ν désignent le module d'Young et le coefficient de Poisson.
Dans la partie A, les propriétés élastiques pour une poudre de cellulose microcristalline ont été mesurées. Leurs évolutions en fonction de la densité relative sont données dans les figures 19 et 20 (chapitre I, p. 37).
Pour la simulation du procédé de mise en forme par compression directe ou par compactage à rouleaux, les équations de l'équilibre quasi-statique, des conditions aux limites et de conditions de contact et de frottement viendront s'ajouter aux équations du comportement de poudres décrites ci-dessus.

2. Identification des paramètres du modèle de Drucker Prager Cap

Dans le paragraphe 1.6 du chapitre I, les propriétés élastiques en fonction de la densité relative ont été caractérisées. Le frottement de type Coulomb a été aussi estimé à partir d'essais de compression en matrice. Il reste à identifier les propriétés de la surface de charge et de son évolution. C'est l'objet du paragraphe suivant.
L'identification des paramètres du modèle Drucker Prager Cap est faite classiquement à partir d'essais triaxiaux (compression hydrostatique, compression triaxiale avec chargement proportionnel,…). Ces tests sont souvent complexes au regard du chargement appliqué pour les poudres pharmaceutiques et sont plus adaptés aux poudres métalliques ou céramiques. Pour les poudres pharmaceutiques, une autre procédure, moins complète que la première mais plus facile à mettre en œuvre est préconisée ici.

2.1 Cohésion et angle de frottement

Pour la détermination de l'angle de frottement et la cohésion en fonction de la poudre de la densité, des essais de rupture diamétrale et rupture uni axiale de compacts obtenus par compression en matrice à différentes densités relatives sont suffisants.

En effet, l'essai de rupture en compression simple est décrit par l'état de contrainte σ tel que : $\sigma_{11}=\sigma_{ru}$ et $\sigma_{ij}=0$ pour $i,j \neq 1$. Il s'ensuit une relation simple entre pression hydrostatique p et la contrainte équivalente q :

$p=\sigma_{ru}/3$ et $q=\sigma_{ru}$ $\Rightarrow$ $q = \sqrt{3}\, p$ (II.10)

Par ailleurs, dans l'essai de rupture diamétrale de comprimé cylindrique, l'état de contrainte est tel que la pression et la contrainte équivalente se déduisent par :

$p= 2\sigma_{rd}/3$ et $q=\sqrt{13}\ \sigma_{rd} \Rightarrow$ $q = (3\sqrt{13}/2)p$ (II.11)

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

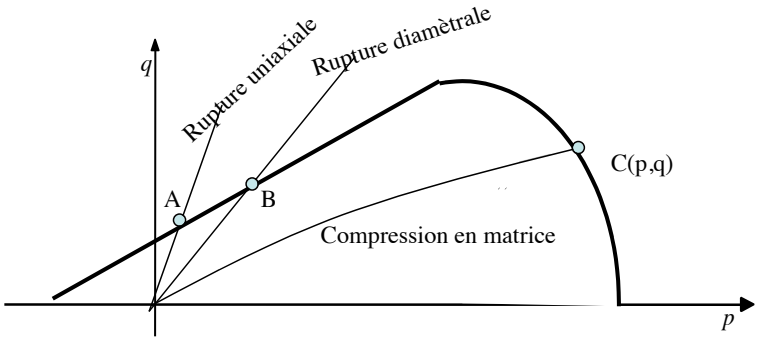


Figure 22 Schéma de la procédure d'identification de la fonction de charge de Drucker-Prager Cap

Ces deux essais se traduisent donc par deux droites de rupture dans l'espace (p,q). Ces droites (de rupture) coupent la droite de Drucker Prager en deux points qui permettent de la déterminer. La cohésion correspond alors à la contrainte équivalente pour une pression hydrostatique nulle et l'angle de frottement correspond à la pente de la droite (figure 22).
Pour chaque densité relative, les points A et B sont calculés et la cohésion et l'angle de frottement s'en suivent.

2.2 Fonction de durcissement P_b et excentricité R

Les paramètres de la surface de charge Fc : fonction de durcissement p_b et l'excentricité R du Cap évoluent en fonction de la densité relative et sont déterminés à partir des mesures de compression en matrice instrumentée.
Dans les conditions de la compression en matrice cylindrique, Les grandeurs suivantes sont calculées :

$$\varepsilon_{vol}^{ir} = \varepsilon_z - \frac{\sigma_z}{E} \qquad p = \frac{\sigma_z + 2\sigma_r}{3} \qquad q = \sigma_z - \sigma_r$$

Pour chaque densité relative ρ_r le point C(p,q) résultant de la compression en matrice intercepte le Cap comme c'est indiqué sur la figure 22 et vérifie l'équation de la surface F_c. Pour simplifier les calculs, nous considérerons $(1+\eta-\eta/\cos\beta \approx 1)$. Il s'ensuit :

$$(p-p_a)^2+(Rq)^2-R^2(d+p_a\tan\beta)^2=0 \qquad \text{(II.12)}$$

L'application de la loi d'écoulement associé en C(p,q) donne dans le plan $(\varepsilon_p,\varepsilon_q)$ (figure 23) :

$$d\varepsilon_p = d\varepsilon_z + 2d\varepsilon_r \qquad d\varepsilon_q = \frac{2}{3}(d\varepsilon_z - d\varepsilon_r)$$

où $d\varepsilon_r$ est l'incrément de déformation radiale et $d\varepsilon_z$ est l'incrément de déformation axiale.
La déformation radiale étant négligeable devant la déformation axiale. On en déduit que :

$$d\varepsilon_q / d\varepsilon_p = 2/3 \qquad \text{(II.13)}$$

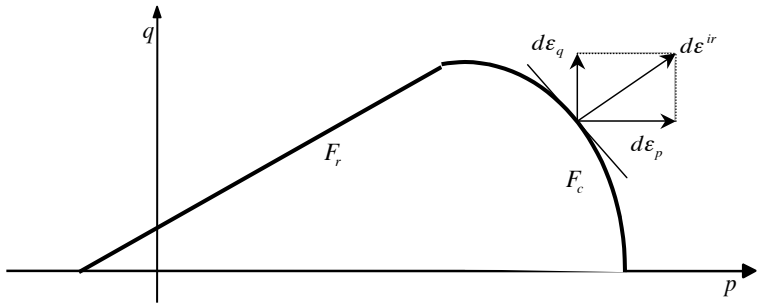


Figure 23 Décomposition de l'incrément de déformation irréversible

L'équation (II.13) montre que la pente de la normale à la surface du Cap au point *C(p,q)* est égale à *2/3*. Par conséquent, la pente de la tangente au Cap au point *C* est égale à *-3/2* soit :

$$\frac{dq}{dp} = -\frac{3}{2} = -\frac{p-p_a}{R^2 q} \qquad \text{(II.14)}$$

En combinant les équations (II.12) et (II.14), on obtient le polynôme suivant :

$$\left[\frac{2\tan^2\beta}{3q}\right]p_a^2+\left[\frac{4d\tan\beta}{3q}+1\right]p_a+\left[\frac{2d^2}{3q}-\frac{2}{3}q-p\right]=0 \qquad \text{(II.15)}$$

La résolution de l'équation (II.15) permet de déterminer le paramètre p_a. L'excentricité *R* est déduite alors de la relation (II.14). Ensuite, la fonction de durcissement p_b est calculée par la relation (II.12) en posant q=0 et p= p_b.
En général, la fonction de durcissement p_b et l'excentricité *R* augmentent avec la densité relative.

L'application de cette procédure a été mise en œuvre dans la thèse de Kadiri [Kadiri,2004] et a été améliorée dans la thèse de Harona Diarra [Diarra,2008]. Les résultats les plus complets concernent la poudre de cellulose microcristalline (Figure 24) où tous les paramètres du modèle évoluent avec la densité relative.

Avec ces données, l'évolution de la surface de charge est représentée dans la figure 25.

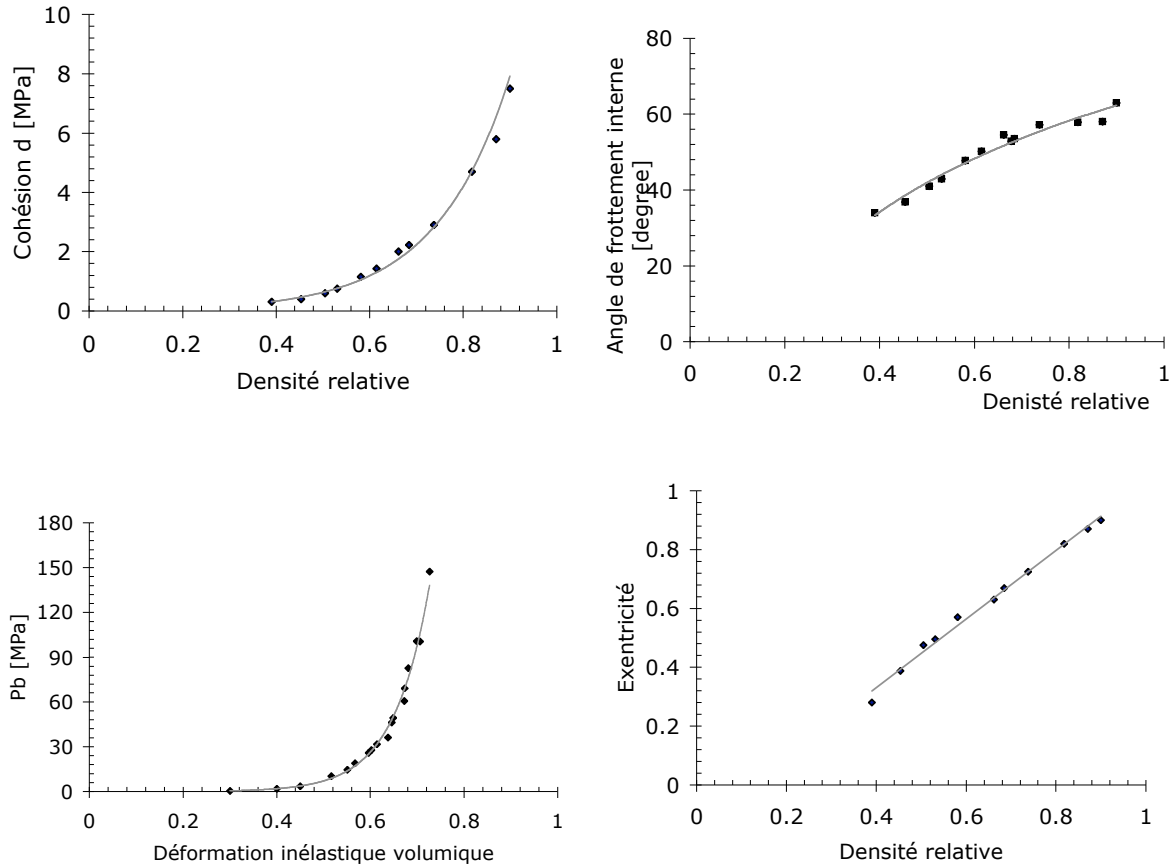


Figure 24 Evolution des paramètres du modèle de Drucker-Prager Cap. Données de cellulose microcristalline.

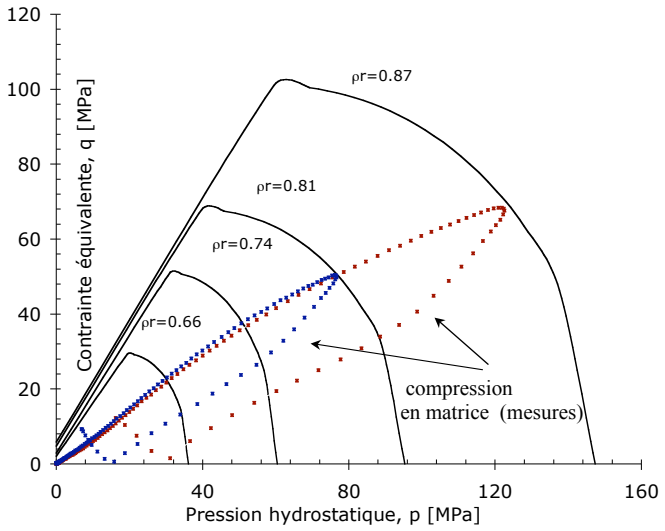


Figure 25 Evolution de la surface de charge avec la densité relative.
Les mesures de charge décharge de la compression en matrice sont représentées en pointillés.

2.3 Autre procédure d'identification des paramètres

La transposition de l'état de contrainte appliquée dans le cas de la compression en matrice, en chemin de chargement dans l'espace des contraintes admissibles (p,q) permet de :

- Fournir une interprétation des étapes de compression en matrice au sens du critère de Drucker Prager Cap,
- Définir une méthodologie simplifiée d'identification des paramètres du modèle.

Cette méthode a été employée dans nos premiers travaux avant l'instrumentation de la matrice par une jauge radiale. Elle est inspirée des travaux de Aidyn et Briscoe [Aydin,1996].

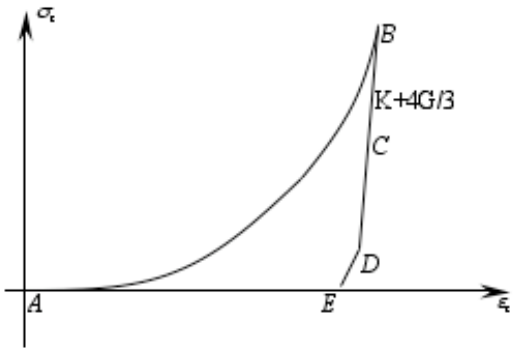


Figure 26 Cycle de compression en matrice

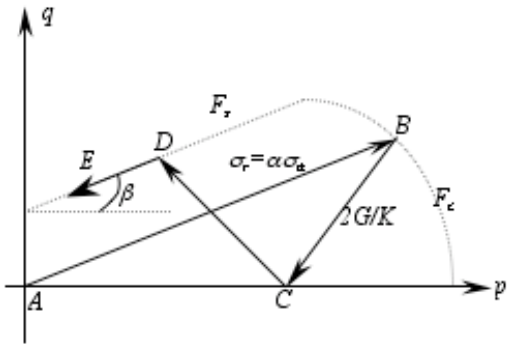


Figure 27 Représentation du cycle de compression dans l'espace (p,q). La transmission radiale est constante. G : module de cisaillement, K module de compressibilité.

Les essais de compression en matrice de poudres pharmaceutiques donnent généralement un rapport constant entre la contrainte axiale et la contrainte radiale. Cette propriété semble différencier le comportement des poudres pharmaceutiques des poudres métalliques. En exploitant le fait que la transmission radiale α soit constante, la transposition du cycle de compression ABCDE (fig 26) dans l'espace des contraintes permet de définir le chemin de chargement comme cela est indiqué dans Fig 27. Dans ce cas, la réponse du modèle de Drucker-Parger Cap décrit l'ensemble des étapes de la compression en matrice (phase compression AB, phase décharge BD et rebond élastique DE). En particulier, le rebond élastique DE, montre que l'état de contrainte est dans la surface de rupture. Ce qui permet de déduire que, pour certains matériaux granulaires, la rupture de compact se produirait pendant la phase du rebond. C'est ce qui pourrait expliquer la rupture de compact de poudre de lactose (Fig. 28).

Figure 28 Clivage de compact de poudre de lactose

L'analyse de la réponse du modèle à une sollicitation compressive en matrice a conduit aussi à la définition d'une procédure simplifiée pour l'identification des paramètres du modèle. Cette procédure est adaptée à la situation ou peu de données matériau sont disponibles. Elle nous a permis de poser les bases de la modélisation [Michrafy,2002] tout en progressant dans le montage expérimental.

Conclusion II

La modélisation du comportement mécanique de la compression des poudres pharmaceutiques a été formulée dans le cadre de l'élastoplasticité non associée en utilisant le modèle de Drucker-Prager Cap développé dans le code Abaqus®. Ce modèle décrit les principaux mécanismes macroscopiques du comportement des poudres pharmaceutiques, la surface de charge qui décrit le domaine des contraintes admissibles est constituée principalement d'une fermeture et d'une surface de rupture. Le caractère densifiant des poudres est représenté par une loi d'écoulement associée, alors que le caractère dilatant est décrit par une loi d'écoulement non associée.

L'identification des paramètres du modèle est basée sur des essais simples de compression uniaxiale, de rupture diamétrale et de compression en matrice instrumentée. Ces paramètres évoluent en fonction de la densité relative pour décrire les changements des propriétés mécaniques et de l'évolution de la surface de charge. Ces propriétés ont été caractérisées dans le cas de la poudre de cellulose microcristalline.

Malgré la simplicité de la procédure d'identification des paramètres, elle reste fastidieuse et consommatrice de temps. Par ailleurs, à part le cas de la cellulose microcristalline largement étudiée dans la littérature, la procédure reste difficilement exploitable pour les poudres pharmaceutiques dont les propriétés mécaniques sont faibles.

Chapitre III

Simulation numérique de procédés de compactage

Introduction

La simulation numérique du procédé de mise en forme de poudres par compression directe ou par compactage à rouleaux vise à mieux reproduire les processus de densification au cours du procédé et à déterminer les paramètres matériau et procédé les plus influents sur les propriétés finales du compact. Parmi les propriétés finales du compact, la distribution de densité et son homogénéité joue un rôle important dans la résistance mécanique ou encore le risque de clivage. C'est aussi un outil rapide pour analyser l'effet de la forme de l'outillage, du frottement ou encore de la distribution de la densité initiale sur l'homogénéité des propriétés finales. Cependant, la qualité des prédictions de la simulation numérique dépend de la précision des données matériau disponibles et du choix des méthodes numériques adaptées aux procédés de mise en forme.

Dans ce chapitre intitulé « Simulation numérique de procédés de compactage», je présenterai les développements pour la compression en matrice et pour le compactage à rouleaux dans le cadre du logiciel Abaqus®. Ces développements ont été menés dans les travaux de thèse de M.S. Kadiri [Kadiri,2004] et H. Diarra [Diarra,2008]. Dans ces travaux, l'approche lagrangienne pour la compression directe et l'approche Eulérienne-Lagrangienne avec remaillage automatique pour la simulation du compactage à rouleaux ont été mises en œuvre.

Pour illustrer la capacité de l'approche continue à prédire de manière très satisfaisante le processus de densification et l'influence des paramètres des procédés sur les propriétés finales, des résultats de simulations numériques en 2D et en 3D sont présentés. Je discuterai alors les apports et les limitations de l'approche continue ainsi que la validation de la modélisation.

III.1 Simulation numérique du procédé de compression en matrice

Dans le procédé de compression directe, nous nous sommes intéressés au comportement dans des conditions quasi-statiques. Les aspects dynamiques de la compression n'ont pas été considérés.
La simulation du procédé de compression en matrice par éléments finis est basée sur la résolution des équations de l'équilibre quasi-statique où les forces volumiques ont été négligées, de la loi de comportement de poudres (II.1 – II.7), des conditions de contact entre la poudre et l'outillage (matrice et poinçons) et des conditions aux limites et conditions initiales.
Comme la déformation du lit de poudre peut atteindre *80%*, on s'est placé dans le cadre des grandes déformations (milieu compressible).
La matrice et les poinçons sont considéré rigides. Cette hypothèse allège la gestion numérique des conditions de contact unilatéral. Le frottement entre la poudre et l'outillage est considéré de type Coulomb avec un coefficient de frottement constant. Pour réduire la taille des systèmes à résoudre, on s'est placé dans la configuration axisymétrique (géométrie 2D).
La discrétisation temporelle du système est réalisée par une méthode implicite pour sa précision et sa stabilité. Ce qui nous ramène à la résolution d'une suite de systèmes non linéaires (forme incrémentale).
L'approximation spatiale du système incrémental peut se faire de manière Eulérienne ou Lagrangienne. Notre choix s'est porté sur l'approche Lagrangienne où les mailles se déforment avec le matériau. Cette méthode est largement préconisée pour sa précision et son efficacité dans le calcul du contact et dans l'incorporation de modèles complexes.
Pour évaluer les potentialités du modèle à reproduire le comportement en compression de poudres pharmaceutiques, la démarche consiste à simuler le cycle charge décharge de la compression directe dans les mêmes conditions géométriques que l'expérience et de confronter les prévisions par simulation numérique aux mesures.
Deux formes de poinçons ont été considérées : poinçon plat et poinçon concave. Pour ce dernier, les investigations ont concerné l'effet de la profondeur de courbure. L'intérêt pour ces formes a été suscité par nos collaborations avec la société EPMO (Groupe Elizabeth Carbide) qui s'intéresse à la rupture prématurée des poinçons concaves suite aux sollicitations répétées, et à la collaboration avec le centre de recherche de la société BAYER (Liverkusen en Allemagne) pour l'optimisation de formulations.
Les exemples présentés dans ce chapitre sont le fruit de différentes contributions : thèse de Kadiri [Kadiri,2004], Master de Possoz [Possoz,2006] stages d'élèves d'IUT et la participation de techniciens du laboratoire. Pour plus de détails sur les résultats présentés ci-dessous, on peut se reporter à deux articles [Michrafy,2002] et [Kadiri,2005].

Quelques résultats significatifs

1.1 Géométrie et définition du problème

La figure 29 illustre l'exemple de trois géométries où la compression est réalisée par un poinçon plat et concave de diamètre 1,128 cm et de profondeurs de 0 (plat), 0,08 et 0,174 cm (concave). Les

volumes de poudres considérés correspondent aux volumes utilisés dans les essais expérimentaux. Le volume occupé par la poudre est maillé par des éléments finis axisymétriques à intégration réduite (CAX4R).
Les paramètres du modèle de Drucker-Prager Cap sont variables en fonction de la densité relative et le coefficient de frottement poudre matrice est de 0,4.

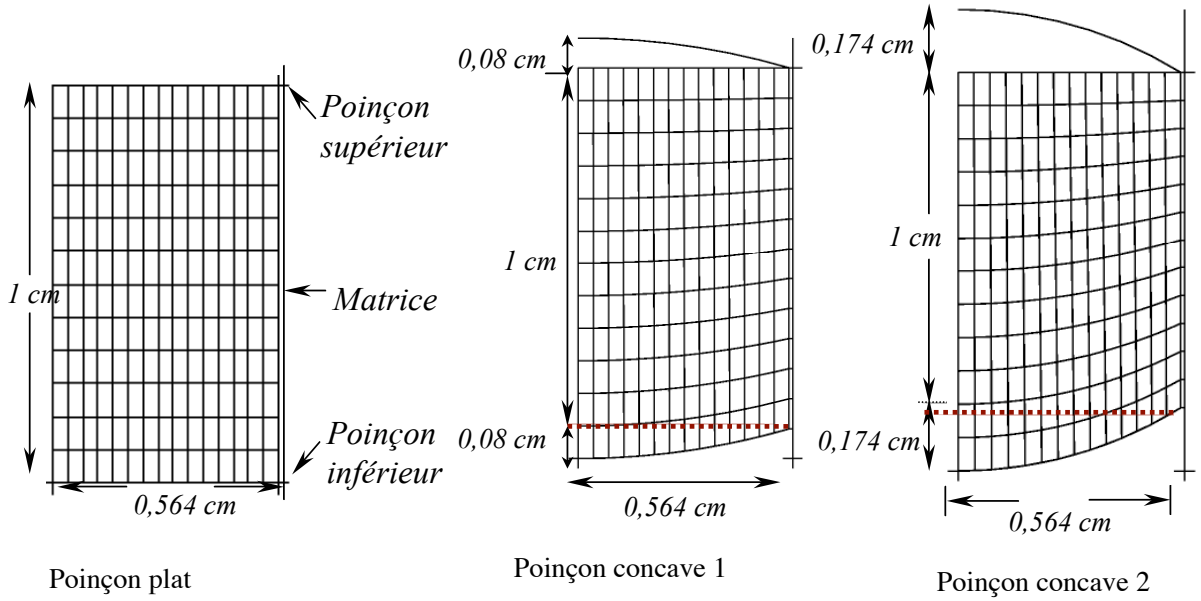


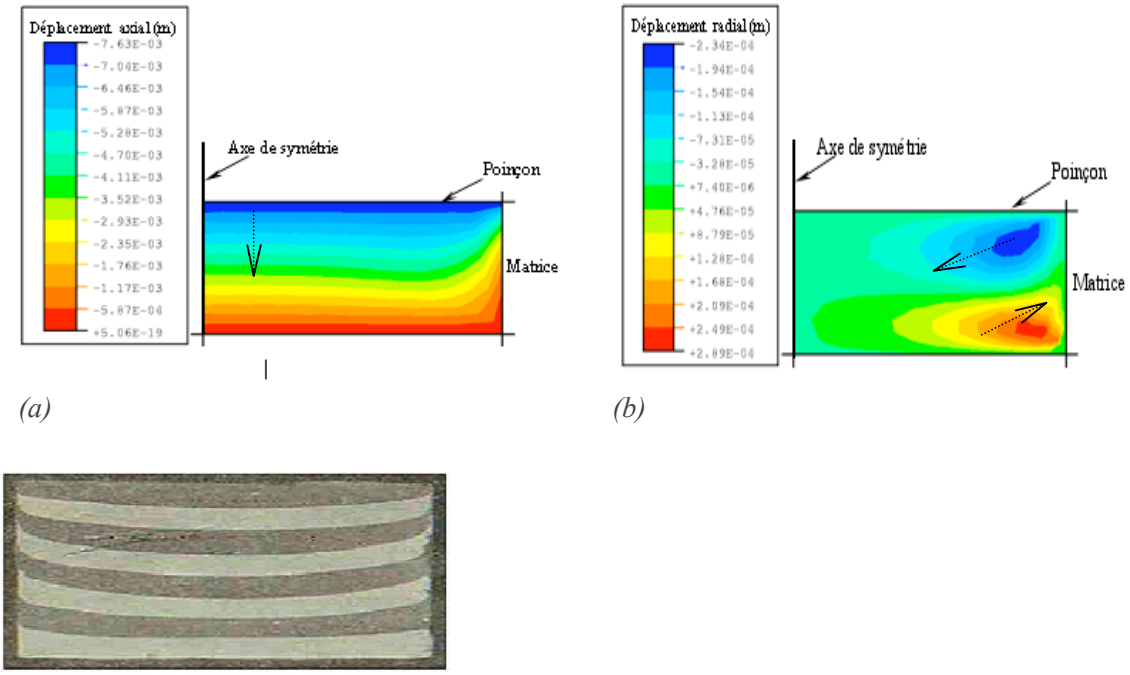
Figure 29 Maillage pour la simulation Lagrangienne de la compression : poinçons plats et concaves

Dans ces exemples, la densité initiale de poudre est supposée uniforme. Cette hypothèse ne semble pas représenter la réalité du remplissage de la matrice par la poudre. En effet, des travaux expérimentaux et de modélisation basée sur la méthode des éléments discrets [Wu,2004] ont montré l'hétérogénéité de la densité lors du remplissage. Cependant, cette hétérogénéité initiale semble avoir un effet dans les premiers stades de la compression, mais n'a pas d'impact sur les pressions élevées.
La compression est réalisée par le poinçon supérieur en imposant un déplacement maximal (7,5 mm dans les illustrations qui suivront). Le poinçon inférieur est fixe. Une fois le déplacement maximum atteint, la phase de décharge débute en annulant l'action du poinçon supérieur. Le compact est alors libre de déformer et l'on assiste à une redistribution des contraintes (relaxation) jusqu'à stabilisation totale.

1.2 Déformation du lit de poudre

L'approche continue est macroscopique et de ce fait la déformation du lit de poudre est obtenue à partir du déplacement du nuage de points du maillage qui sont des points matériels (représentation Lagrangienne).

Dans la figure 30 sont représentés les isovaleurs du déplacement axial (direction de la compression) et du déplacement radial (direction perpendiculaire) pendant la phase de charge. Le déplacement axial augmente du haut vers le bas donnant ainsi une vision réaliste du processus de densification qui consiste à transmettre la charge des couches supérieures aux couches inférieures du bas du lit de poudre. Ceci est cohérent avec les observations de Train [Train,1956] (Fig. 30 c). Les isovaleurs de la composante radiale du déplacement montrent par contre deux zones distinctes avec des signes opposées : en bas, la poudre se déplace radialement vers la paroi de la matrice, alors qu'en haut la poudre à tendance à se mouvoir vers l'intérieur. Le volume confiné entre les deux zones semble se déplacer uniquement dans le sens axial.



(a) *(b)*

(c) Déformation de lit de poudre d'après Train([Train,1956])

Figure 30 Déplacement axial (a) et (c) et radial (b) ; cas de poinçon plat

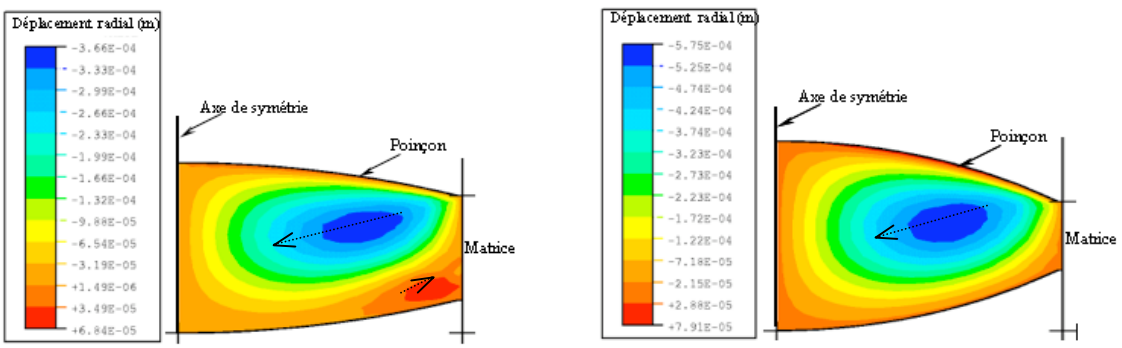


Figure 31 déplacement radial en présence de poinçon concave ; effet de la profondeur.

L'utilisation d'un poinçon concave modifie l'écoulement radial (Fig. 31). Sous l'effet de la courbure du poinçon, c'est essentiellement un écoulement radial vers l'axe de symétrie qui domine.

1.3 Distribution de densité

La compression de compacts plats et concaves a été simulée dans conditions similaires (même course de poinçon supérieur 0,76 cm, même frottement 0,4). Les distributions de densités relatives à la fin de la compression (charge) et après décharge sont représentées pour les deux géométries dans les figures 32 et 33. Pour chaque forme, le gonflement suite à la décharge est indiqué.

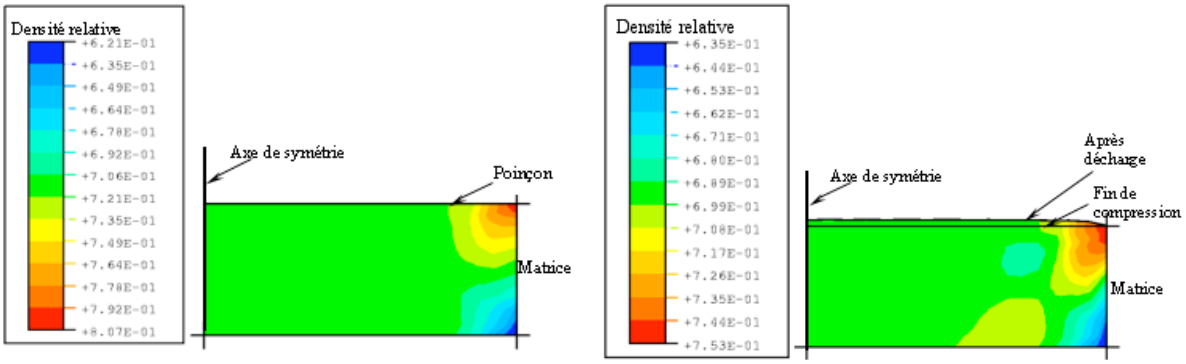


Figure 32 Distribution de densité dans le compact plat (charge et décharge).

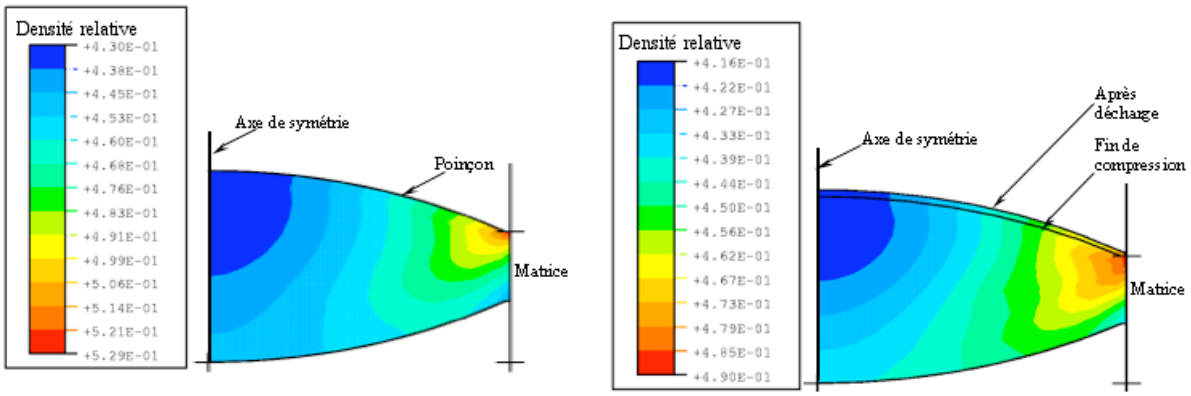


Figure 33 Distribution de densité (charge et décharge). Cas du poinçon concave (profondeur=0,174cm)

Dans les deux formes géométriques, la densité n'est pas homogène. Le gradient de densité obtenu est dû aux effets combinés du frottement poudre-outillage et à la courbure du poinçon.

Dans le cas de poinçon plat, le gradient de densité est localisé essentiellement dans la zone proche du contact avec la matrice avec une densité relative maximale (respectivement minimale) dans le coin haut (respectivement dans le coin en bas). Dans la zone centrale du compact, la densité est plutôt uniforme. La densité relative varie globalement entre 0,6 et 0,8 à la fin de la phase de charge. Dans la phase de la décharge, le comprimé gagne en volume (gonflement) et on constate une légère redistribution de densité au voisinage de la matrice.

La situation en présence de poinçon concave est différente (Fig. 33). La densité présente un maximum au contact de la matrice et un minimum situé juste en dessous du poinçon.

Cette configuration est généralement néfaste à la résistance mécanique des compacts concaves. La figure 34 montre la rupture diamétrale d'un compact concave qui présente un déchaussement (ou décalotage) de la partie supérieure. Ce qui est probablement dû à la présence d'une zone de faible densité dans la partie centrale supérieure et peu cohésive avec la couche inférieure du compact.

Figure 34 test de rupture diamétrale de compact concave (cellulose microcristalline).

1.4 Validations

1.1.4.1 Distribution de densité

Si la distribution de densité est accessible par la simulation numérique, il est beaucoup plus difficile de la mesurer et particulièrement dans les poudres à applications pharmaceutiques. Plusieurs techniques développées dans le cadre des poudres métalliques ne s'appliquent pas. Les techniques les plus accessibles à faible coût d'investissement, sont souvent basées sur la découpe d'échantillons dont la densité est mesurée par différentes techniques (méthode d'Archimède, porosimétrie) ou alors par micro indentation pour établir une cartographie de dureté. Cependant, l'application à des compacts pharmaceutiques se révèle difficile. En effet, le compact pharmaceutique est plus fragile, et toute découpe entraîne des fractures multiples avec des porosités ouvertes sensibles à la décompression. Par ailleurs, la micro indentation (Brinell) est loin d'être fiable pour les poudres pharmaceutiques et nos essais n'ont jamais été concluants. Cependant, les travaux de Sinka et al. [Sinka,2003] sur des compacts concaves montrent une tendance similaire entre la mesure par micro indentation et simulation numérique.

D'autres techniques ont été employées pour l'analyse de la distribution de densité dans les compacts pharmaceutiques. Il s'agit de techniques de tomographie aux Rayons X [Farber,2003] [Busignies,2006a], de radioscopie à Résonance Magnétique Nucléaire [Nebgen,1977], [Djemai,2006] ou d'auto-radiographie [Aydin,1996].

L'analyse par ces techniques, de la distribution de densité montre des tendances similaires entre la simulation numérique et la mesure.

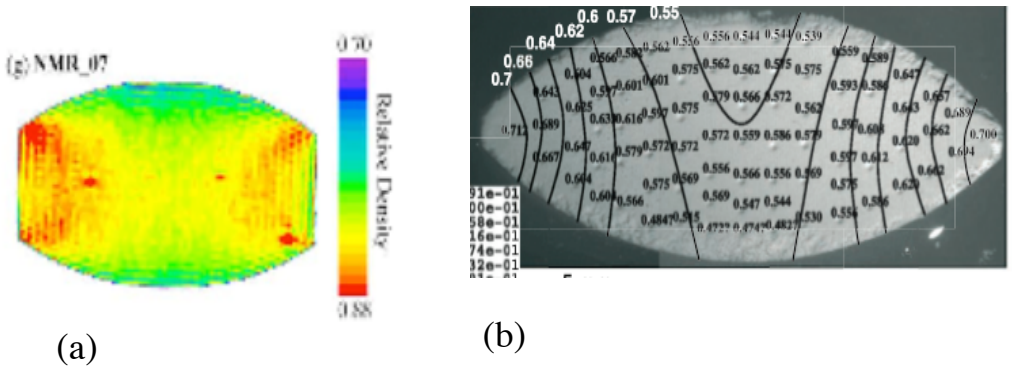


Figure 35 Mesures de la distribution de densité : (a) par résonance magnétique, d'après Djemai et al. [Aydin,1996] *et (b) par micro indentation, d'après Sinka et al*. [Sinka,2003]

Dans les travaux de Kadiri [Kadiri,2004] sur la distribution de densité, une procédure simple a été mise en place pour comparer les prédictions à la mesure. Cela consiste à fabriquer, dans des conditions de lubrification de la matrice, des pastilles de faibles épaisseurs et de faibles densités, de les empiler dans une matrice et de les comprimer ensemble (Fig. 36). Après éjection, les pastilles sont dissociées sans dommage et leurs densités mesurées par porosimétrie à mercure.

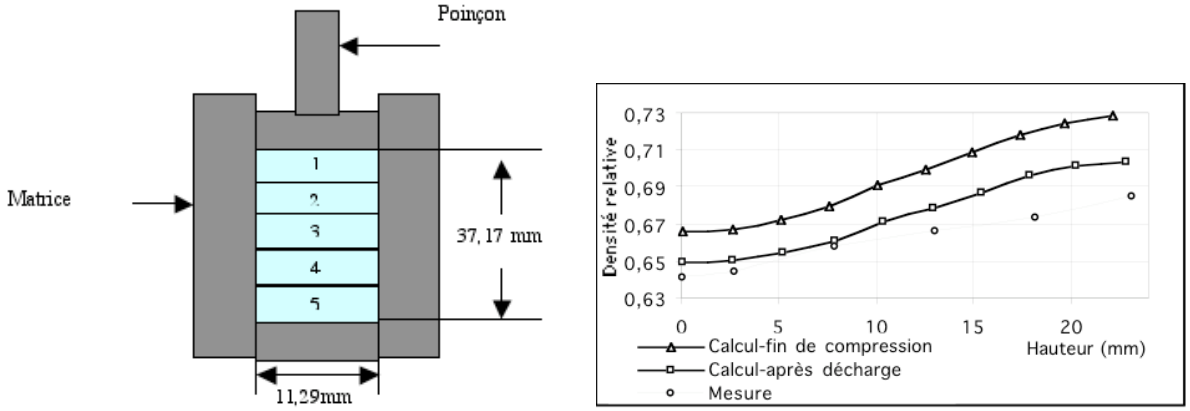


Figure 36 Densité relative : comparaison entre la mesure et la simulation numérique

Par ailleurs, cette expérience a été simulée en utilisant le modèle de Drucker-Prager Cap et la densité moyenne par tranches a été calculée le long de l'axe de compression. Les résultats de cette investigation sont représentés dans la figure 36 et montre que la simulation du cycle charge décharge donne une bonne prédiction des densités en bas du compact et une mauvaise prédiction en haut du compact. Des résultats similaires sur une poudre céramique (Alumine) ont été obtenus par [Aydin,1996]. Cette mauvaise prédiction en haut du compact est probablement dû à l'utilisation de paramètres identiques dans la phase de charge et la phase de décharge (coefficient de frottement, fonction de durcissement p_b). En effet, ces propriétés ne sont pas expérimentalement mesurées dans la phase de décharge.

1.4.2 Clivage

Le clivage est le nom attribué à la fissuration ou à la rupture observée dans le compact juste après sa fabrication ou après stockage. Ce dommage est redouté dans la fabrication de comprimés et souvent complexe à prédire car il dépend de plusieurs facteurs comme la formulation, le frottement, la forme, la taille granulométrique, la vitesse de compression, etc.

Le clivage peut se manifester sous différentes formes : une fissuration au centre du compact, comme pour le lactose, une fissuration multiple le long du compact comme le cas du CaO ou encore une fissuration de la partie supérieure du compact CaOMgO (décalotage).

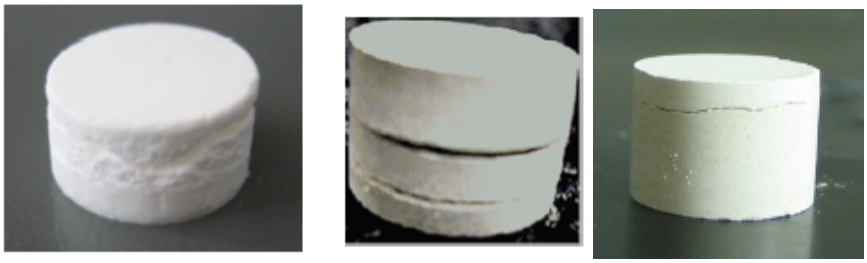


Figure 37 Clivage de compacts : Lactose, CaO et CaOMgO

D'un point de vue de la mécanique de l'endommagement, ces fissurations sont la conséquence de gradient de propriétés dans le compact et une modélisation continue par éléments finis peut donc permettre d'analyser le risque de clivage.

L'analyse expérimentale du cycle de compression montre que c'est dans la phase de décharge que le comprimé est soumis à une traction (suite au retrait du poinçon supérieur) et à une compression appliquée par la matrice (restitution de l'énergie élastique stockée dans la matrice). Selon l'état de cohésion atteint à la fin de la compression, un tel état de contrainte présente des risques de clivage du compact.

Pour rendre compte des possibilités du modèle à analyser le clivage, la simulation numérique du cycle de compression de la poudre de lactose [Michrafy,2002] a été réalisé et l'analyse des contraintes équivalentes de Von-Misès, à la fin de la phase de décharge, donne les isovaleurs de la figure 38.

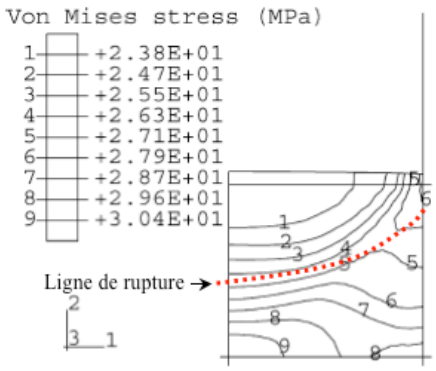


Figure 38 Isovaleurs de la Contrainte équivalente de Von-Misès après simulation de la décharge de la compression de la poudre de lactose.

Dans cette figure, une ligne sépare deux zones : la zone supérieure qui a une bonne cohésion et où les contraintes de cisaillement restent modérées et la zone inférieure, peu cohésive et où les contraintes de cisaillement sont plus élevées. On en déduit un risque de rupture le long de cette ligne. Cette ligne de rupture est en accord avec la ligne de clivage observé sur le comprimé du lactose (Fig. 38). Cependant, il est plus difficile de rendre compte du clivage multiple ou du décalotage (Fig. 37). Pour aller plus loin dans la prédiction du clivage, il est important d'enrichir l'approche continue par des variables décrivant la microstructure. Ce point sera discuté dans les perspectives.

Conclusion III.1

Nous avons montré qu'il était possible, par la modélisation de la compression de poudres pharmaceutiques, de décrire de manière réaliste les propriétés finales du compact à partir de la connaissance des propriétés initiales de la poudre et des paramètres du procédé. La simulation du cycle de compression permet d'accéder à la distribution de déplacements, des contraintes, des déformations et des densités dans tout le volume de poudre et de fournir une image réaliste du processus de densification. Nous avons aussi montré qu'il était possible de rendre compte de l'effet de la géométrie du poinçon sur la distribution de densité. Cette approche permet à la fois de déterminer les contraintes appliquées sur les poinçons, ce qui intéresse les outilleurs pour améliorer la qualité et la durée de vie des outillages, et aussi la distribution de densité du compact concave. Dans ce cas, la modélisation montre clairement un gradient de densité bien prononcé entre le haut et le bas du compact qui pourrait être responsable du clivage dans certains poudres.

Cependant, cette modélisation présente des limitations liées au caractère macroscopique de la description. Pour améliorer la qualité prédictive de nos modélisations, une voie consiste à enrichir les modèles de la mécanique des milieux continus par des variables de microstructures. Ces approches communément appelées « mécanique des milieux continus *généralisés* », font l'objet de développements importants dans la communauté de la mécanique et des matériaux. Leur utilisation dans nos applications serait fort intéressante.

Malgré les insuffisances citées de l'approche continue « *classique* », elle a apporté ces dix dernières années à la compression directe de poudres pharmaceutiques, un outil performant et moderne pour l'optimisation du procédé, pour la mise au point de formulations et pour la conception de forme de comprimé et d'outillage.

III.2 Simulation numérique du procédé de compactage à rouleaux

La modélisation du procédé de compactage à rouleaux vise à mieux comprendre le processus de déformation des poudres entre les rouleaux et à relier, de manière continue, les propriétés finales de la plaquette compactée aux propriétés initiales des poudres, aux paramètres du procédé et aux dimensions de la presse. L'objectif, in fine est d'optimiser le fonctionnement du procédé en réduisant le temps de mises au point très coûteux d'une part, et d'aller vers la transposition d'échelles du procédé du laboratoire au pilote et à la production d'autre part. Ce dernier volet du procédé reste encore un problème ouvert.

Des avancées très importantes ont été réalisées sur le plan de la compréhension du procédé par une instrumentation de plus en plus innovante [Guigon,2003] [Simon,2003], [Lecompte,2005a] [Lecompte,2005b] [Bindhumadhavan, 2005] [Miguelez-Moran,2008] [Miguelez-Moran,2009] [Schönert,2002] [Sommer,2003] [Dec,2003] [Zinchuk,2004] [Harona,2008][Sinha,2010]. Ces travaux expérimentaux ont généré suffisamment de données sur le procédé et sur l'impact des paramètres du procédé sur les propriétés du compact. Cependant, il est difficile de se passer de l'expérimentation dont le coût d'investissement en temps et en matériel est important, pour extrapoler les mesures d'une situation à une autre (changement de tailles de roues, changement d'état de surface, changement de formulations, …).

Les premiers travaux de modélisation du procédé ont été initiés par Johanson [Johanson,1965]. Ils ont permis de développer un premier modèle en 2D pour le compactage à rouleaux. Ce modèle ingénieux a mis en place les premières équations décrivant le processus de compactage à rouleaux et qui sont basées sur *l'introduction, à priori, d'un angle de grippage* qui distingue deux zones caractérisées par la nature du mouvement relatif entre la poudre et le rouleau. L'utilisation de l'angle de grippage est d'ailleurs bien antérieure au modèle de Johanson. Cependant, aucune méthode de mesure n'était disponible pour l'évaluer. L'un des objectifs du modèle de Johanson est donc de fournir une méthode de détermination de l'angle de grippage et par la même occasion de décrire un processus de déformation des poudres dans la zone entre les rouleaux. Ce modèle était à la base de notre intérêt pour le procédé de compactage à rouleaux. Les premiers développements effectués dans le travail de Marcin Balicki [Balicki,2003] (Master Recherche de 'The Cooper Union Alber Nerkin Engineering, New York, USA'), nous ont amené à nous poser les bonnes questions et à nous orienter vers une approche continue de la modélisation du procédé. C'est dans le cadre du projet de coopération avec la « *Chair of Process Engineering TU München – Weihenstephan* » intitulé «*Numerical modelling of rolling compaction process*», financé par le centre interuniversitaire Franco-Bavarois que ces travaux ont débuté. Enfin, c'est dans les travaux de thèse de Harona Diarra [Diarra,2008] que cette approche a été mise en oeuvre dans le logiciel Abaqus®.

L'originalité de la contribution dans ce travail réside dans la modélisation du procédé en 2D et en 3D. Le but étant d'analyser l'interaction entre les paramètres du procédé, les propriétés de poudres et les propriétés des plaquettes.

En étudiant le processus de déformation des poudres entre les rouleaux [Michrafy,2010a] nous avons montré que la modélisation du procédé de compactage en 2D donne une représentation réaliste

du processus de déformation de la poudre entre les rouleaux. En particulier, l'existence de deux zones contiguës dont le processus de déformation est régit par un mécanisme de type slip-stick. L'angle qui sépare ces deux zones est bien l'angle de grippage qui est à la base du modèle de Johanson.
Nous avons aussi montré qu'il est possible de prédire des propriétés caractéristiques du procédé comme la distribution de pression et de densité entre les rouleaux en fonction des propriétés initiales de la poudre et des conditions d'alimentation.

Des études expérimentales récentes ont révélé une hétérogénéité de comportement de plaquettes de poudres compactées ([Simon,2000][Lecompte,2005][Diarra,2008]). L'origine de ces hétérogénéités ont été largement discutées et des pistes d'explications ont été suggérées. La voie d'investigation par la modélisation est un autre outil permettant d'aller vers la compréhension de ces résultats et particulièrement pour analyser la distribution de densité dans la largeur et l'épaisseur de plaquettes. C'est dans ce sens que la modélisation 3D du procédé de compactage à rouleaux [Michrafy,2010b] a été développée. Les résultats obtenus, en accord avec les mesures expérimentales et avec des études expérimentales récentes sur le sujet [Miguelez-Moran,2009], montrent les potentialités de l'approche continue dans la description réaliste du procédé de compactage à rouleaux.

Dans le procédé de compactage à rouleaux, l'alimentation horizontale par vis sans fin reste un facteur dominant dans la conduite du procédé et sa modélisation par éléments finis reste laborieuse. Dans les résultats de simulations numériques, l'alimentation a été représentée soit par une pression d'alimentation comme cela est proposé par Johanson, soit par un débit d'alimentation. L'influence de ces deux représentations sur la qualité des prédictions de l'approche continue a été aussi analysée.
Les simulations numériques du procédé de compression directe et du procédé de compactage à rouleaux partagent le modèle de comportement de poudres (Drucker-Prager Cap). Comme nous l'avons souligné pour la compression directe, la qualité des prédictions de la modélisation continue dépend de la précision des données sur le matériau granulaire. Une étude de sensibilité des prédictions aux propriétés du matériau [Michrafy,2010a] a été conduite et a permis de déterminer les propriétés les plus influentes.

Ce chapitre s'attache à illustrer par quelques exemples d'études, les potentialités de l'approche continue à décrire de manière réaliste le processus de compactage entre les rouleaux, les pressions de compactage, la distribution de densité, l'hétérogénéité.

2.1 Simulation du procédé en 2D

1.1 Procédure de simulation

Le développement de la simulation numérique du compactage à rouleaux est réalisé dans l'environnement d'Abaqus® Explicit. Pour évaluer la capacité de la modélisation à reproduire les mécanismes fondamentaux de déformation dans le compactage à rouleaux, on se place dans les conditions de l'expérience. Le diamètre de la roue est de 100 mm et sa largeur est de 38 mm. Ce sont les dimensions de la presse employée pour les mesures expérimentales. Par ailleurs, nous considérons des paramètres matériau constants. Seul, la fonction d'évolution du Cap p_b est variable en fonction de la déformation volumique inélastique [Michrafy,2010a].

Pour la spécificité du procédé de compactage à rouleaux (alimentation continue en poudres, écoulement et déformation de la poudre), la simulation numérique du problème aux limites (Fig 39) associe une intégration explicite couplée à une approche de type Euler Lagrange Arbitraire (ALE) avec un remaillage automatique. Ce choix permet de prévenir les distorsions du maillage. Dans cette technique numérique, le domaine ALE (domaine occupé par la poudre) peut être complètement Lagrangien (les nœuds se déplacent avec le mouvement de la poudre), complètement Eulérien (les nœuds sont fixes et la poudre s'écoulent à travers les mailles) ou un mixte de ces représentations. Plus généralement, cette technique est recommandée dans la modélisation de l'interaction « fluide-structure ». La poudre n'est pas considérée ici comme un fluide, mais on doit non seulement assurer un flux continu de poudres en entrée et en sortie du domaine ALE (conditions aux limites), mais aussi la déformation de la poudre dans la zone du compactage.

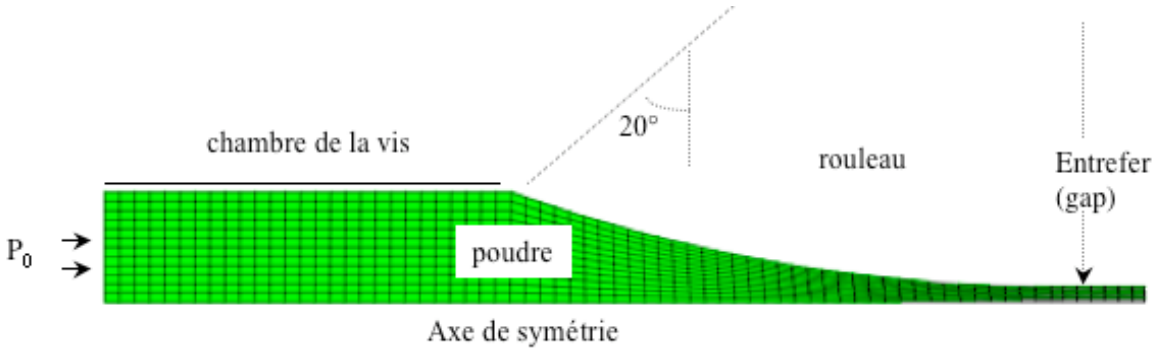


Figure 39 Définition du problème 2D et maillage du domaine occupé par la poudre

La simulation numérique du procédé de compactage en 2D permet de renseigner sur plusieurs paramètres du procédé comme la pression de compactage, les vitesses, la densité, les contraintes de cisaillement à l'interface «rouleau-poudre ». Le cisaillement étant responsable de la déformation de la poudre entre les rouleaux.

Une présentation de quelques résultats significatifs est proposée ci-dessous.

1.2 Analyse du processus de déformation

L'analyse de la réponse du modèle en vitesses et en contraintes en fonction de l'angle de rotation du rouleau montre dans la figure 40, qu'il existe quatre zones contiguës :

- Une zone d'alimentation (entre –30 et –20°) où la poudre s'écoule avec une vitesse constante de ~ 30 mm/s sous l'effet de la pression d'alimentation appliquée.
- En contact avec le rouleau qui tourne à une vitesse de 58 mm/s, l'entraînement de la poudre est accéléré par le rouleau jusqu'à atteindre la vitesse de ce dernier. Cette zone s'étend approximativement entre -20 et -9°. Dans cette zone, la vitesse de la poudre est inférieure à la vitesse du rouleau et c'est ce mécanisme de glissement qui permet d'entraîner la poudre entre les rouleaux. La pression du rouleau s'accompagne d'une contrainte de cisaillement (frottement de Coulomb) qui initie la déformation de la poudre et confirme la résistance de la poudre à l'avancement imposé par le rouleau.
- Une fois la vitesse de la poudre a rattrapé la vitesse du rouleau (angle -9°), le mouvement de la poudre accompagne celui du rouleau jusqu'à l'angle 0° (zone de collage). C'est la zone du compactage où l'on assiste alors, à une élévation rapide de la pression de compactage qui atteint son maximum un peu avant l'entrefer comme cela est observé expérimentalement. Par ailleurs, la contrainte de cisaillement change de signe pour entamer une augmentation de vitesse permettant l'éjection de la plaquette.
- La dernière zone, concerne la phase de l'évacuation de la plaquette (0 - 5°). La pression et le cisaillement diminuent jusqu'à s'annuler et la vitesse de la poudre devient plus rapide que la vitesse du rouleau (70 mm/s).

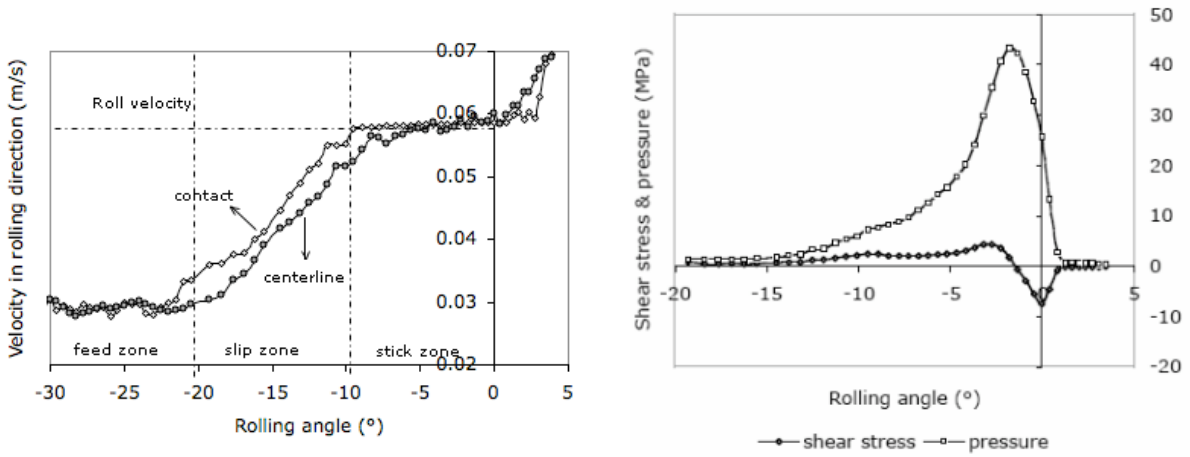


Figure 40 Profils des vitesses et des contraintes dans la zone de contact poudre-rouleau

Les zones de glissement et de collage résultent de la modélisation continue sans pour autant imposer une quelconque existence d'angle de grippage comme cela est préconisé dans le modèle de Johanson. Partant de la définition de l'angle de grippage comme étant l'angle où la zone de glissement et la zone de collage se rencontrent, il est possible de le calculer (ici, l'angle de grippage est de l'ordre de 9°).

Une analyse par les équations de Johansson donne une valeur similaire. Ainsi, le concept du modèle de Johanson basé sur l'hypothèse d'existence d'un angle de grippage est bien fondé.
Suite à cette analyse, on peut se rendre compte que la modélisation continue permet de reproduire les principaux mécanismes de déformation dans le procédé de compactage à rouleaux.

1.3 Distribution de densité

Un autre exemple qui montre l'intérêt de la modélisation continue dans le procédé de compactage à rouleaux est, la détermination de la distribution de densité entre les rouleaux. Le résultat de la figure 41, montre l'augmentation de la densité au fur et à mesure que la pression de compactage augmente dans la zone de compactage. La densité atteinte au niveau de l'entrefer est de l'ordre de 1050 à 1110 Kg/m^3 ce qui est en accord avec la mesure de la densité apparente (figure 15, p. 53). Cependant, on constate au niveau de l'entrefer que la densité simulée est uniforme dans l'épaisseur de la plaquette. Ce résultat ne décrit pas l'observation expérimentale par microscopie numérique (figure 42) où un gradient de porosité est bien marqué. Ce constat montre la limitation de l'approche continue à représenter la microstructure.

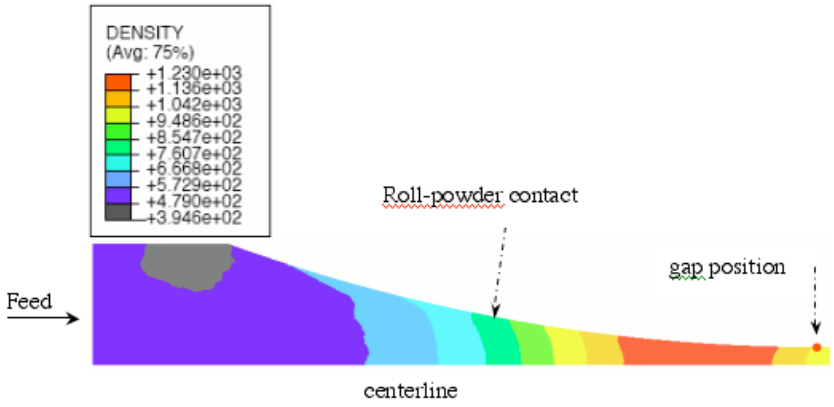


Figure 41 Distribution de densité entre les rouleaux (simulation numérique)

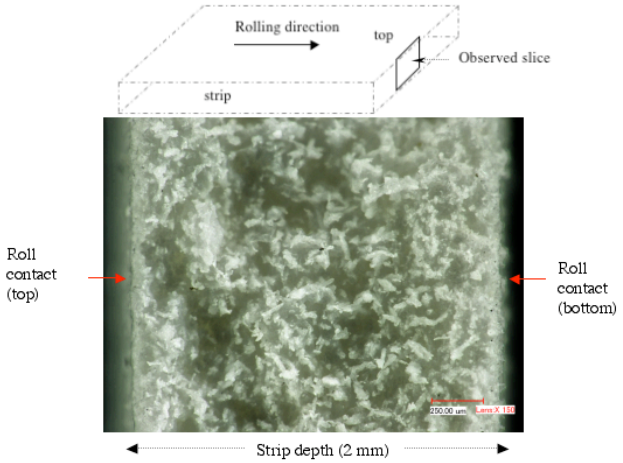


Figure 42 Distribution de porosité dans l'épaisseur de 2 mm de la plaquette de cellulose microcristalline (observation par microscopie numérique)

1.4 Sensibilité du modèle aux paramètres

La qualité de prédiction du modèle dépend de la précision des données matériau (propriétés élastiques, excentricité, frottement interne, cohésion…), des conditions aux limites et initiales imposées (frottement, pression d'alimentation, hauteur de la poudre à l'entrée des rouleaux, densité initiale,…) et du maillage. De ce fait, une analyse de sensibilité du modèle aux différents paramètres est souhaitée. Cependant, le nombre de paramètres est relativement important et certains paramètres sont dépendants les uns des autres. C'est le cas par exemple de l'excentricité du cap qui dépend de la cohésion, de l'angle de frottement interne et de la fonction de durcissement p_b.
Dans ce paragraphe, nous ne prétendons pas étudier la sensibilité du modèle aux différents paramètres (étude qui devrait être minutieusement préparée), mais l'impact de certains paramètres influents sur le comportement du procédé. Pour illustrer ce propos, l'une des questions que l'on s'est posé est de comprendre comment l'excentricité R et le module d'Young impactent sur le maximum et la forme de la pression de compactage et sur l'angle de grippage, qui caractérise la largeur de zone de compactage ?

1.4.1 Influence du module d'Young

Les résultats présentés dans la figure 43 sont obtenus avec un module d'Young variant entre 0,5 et 5 GPa alors que les autres paramètres sont gardés constants (ν=0,3, d=0, b=65°, R=0,6 et p_b de la figure 24, p.67).
Comme on pourrait s'attendre, l'augmentation de la rigidité de la poudre s'accompagne d'une augmentation de la pression maximale de compactage (fig. 43). Cette évolution est non linéaire et prend une tendance logarithmique. On constate par ailleurs, que la rigidité du matériau granulaire n'a aucun effet sur la forme de la distribution de compactage qui reste invariable. Le caractère invariable de la forme de la distribution de la pression de compactage a été démontré dans les travaux de Chekmarev [Chekmarev,1963] où les données expérimentales pour le compactage de poudres métalliques montrent que la forme de la distribution de pression ne dépend pas du type de poudre métallique, de la largeur et de l'épaisseur de la plaquette.

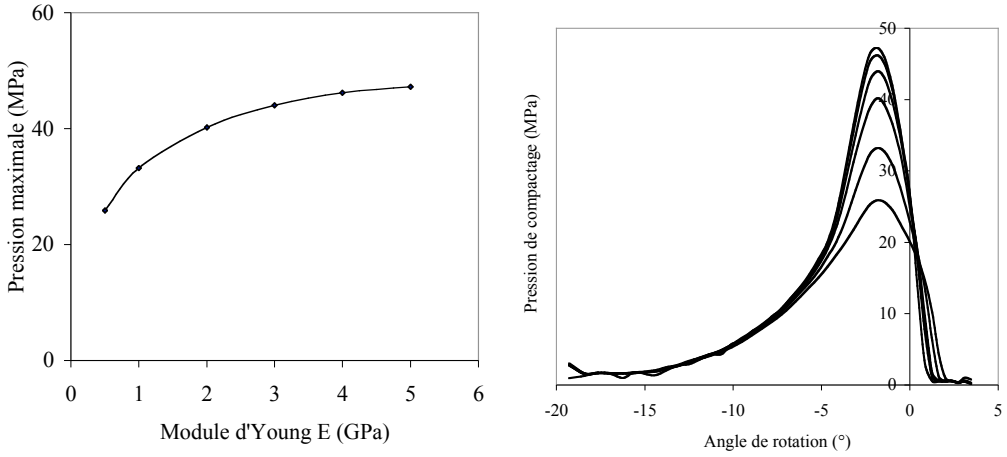


Figure 43 Evolution de la pression de compactage avec le module d'Young

1.4.2 Influence de l'excentricité

L'effet de l'excentricité est analysé dans l'intervalle 0,4 - 1 en considérant les autres paramètres constants (E=5. GPa, ν=0,3, d=0, b=65° et p_b de la figure 14). Cette situation est schématisée dans la figure 44.

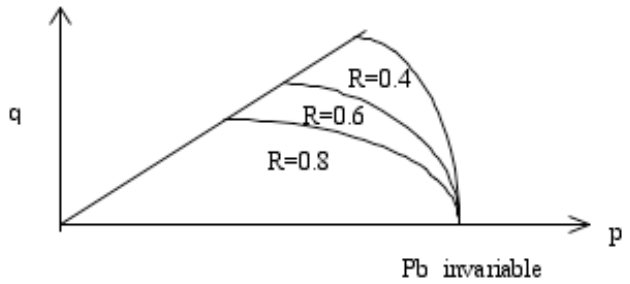


Figure 44 Profils de l'excentricité associé à une même valeur de p_b.

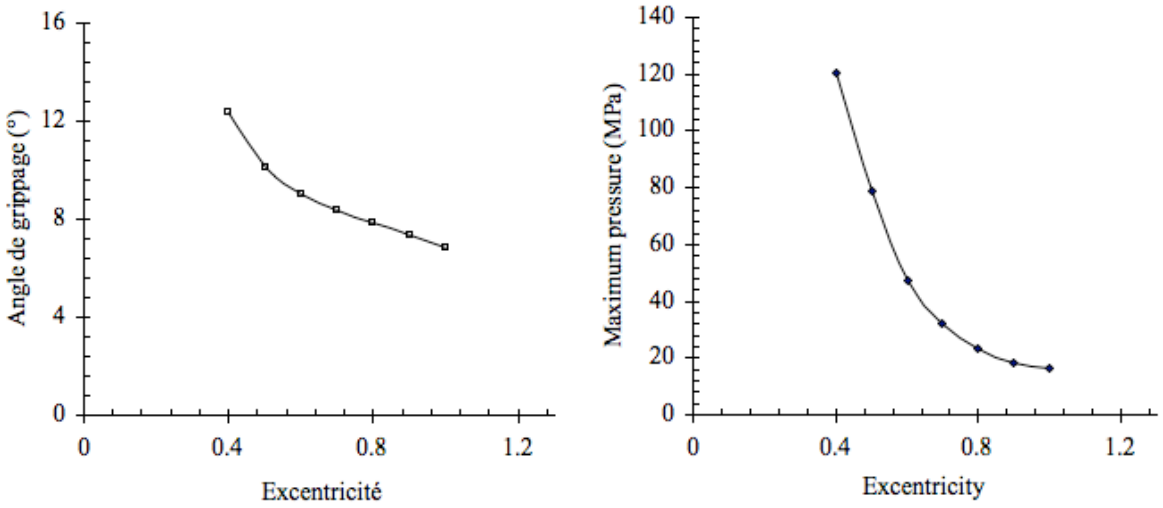


Figure 45 Evolution de l 'angle de grippage et de la pression maximale en fonction de l'excentricité

L'analyse de l'impact de l'excentricité a porté sur la pression maximale de compactage et sur l'angle de grippage (Fig. 45). On constate que pour un matériau granulaire dont l'excentricité est proche de 1, l'angle de grippage et la pression de compactage sont faibles. Ce qui peut compromettre la formation de plaquettes. L'autre situation est celle de matériau granulaire dont l'excentricité tend vers 0.4. Dans ce cas, l'angle de grippage tend vers 12° et la pression maximale est élevée. Dans ces conditions, la zone de compactage est suffisante pour uniformiser la pression de compactage.

Au-delà de l'analyse de sensibilité de la modélisation aux paramètres, ces résultats montrent bien la cohérence de la réponse du modèle de Drucker-Prager Cap dans la description du comportement de poudres en compactage à rouleaux.

2.2 Simulation du procédé en 3D

La simulation numérique du procédé en dimension 2 est suffisante pour reproduire le compactage à rouleaux dans le sens du roulement et dans l'épaisseur de la plaquette. Cependant, pour l'analyse du comportement de la plaquette dans le sens transversal, la simulation 3D s'impose.
La simulation du compactage à rouleaux en 3D est motivée par plusieurs travaux expérimentaux qui montrent une hétérogénéité de comportement dans la largeur de la plaquette. Cette hétérogénéité est due en partie à la taille granulométrique et à la vis d'alimentation.
Pour représenter la condition de transition entre la vis et l'entrée des rouleaux, deux types de conditions aux limites ont été considérées dans les simulations 3D : une pression d'alimentation constante et un débit d'alimentation constant. L'effet de ces deux conditions sur la distribution de densité dans la largeur de la plaquette est analysé en tenant compte des données expérimentales.
La procédure de simulation en 3D est similaire à celle qui est utilisée en 2D. La difficulté est dans le maillage 3D qui prend presque 60% du temps de développement (fig. 46) et le développement de procédure externe pour prendre en compte la dépendance des paramètres matériau en fonction de l'évolution de la densité (données des figures 19,20 et 24, page 67). Les dimensions utilisées des roues sont celles de la presse du laboratoire (Diamètre 100 mm et largeur 38 mm).

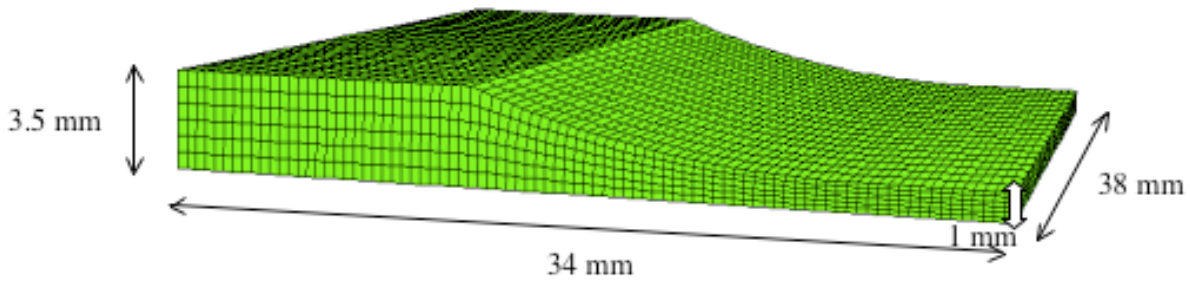


Figure 46 Maillage 3D du domaine occupé par la poudre

Dans la configuration de la presse, deux plaques métalliques sont placées de chaque côté des rouleaux pour empêcher la perte de poudres. Une condition de type 'non pénétration' de la poudre (déplacement normal nul) a été considérée dans ce sens. D'autres types de conditions sont possibles comme la présence d'une surface de contact avec frottement ou encore une condition de vitesse normale nulle à la paroi comme pour les fluides. Ces conditions ne sont pas encore mises en œuvre.

2.1 Distribution de densité dans la largeur de la plaquette

Pour illustrer l'intérêt de la modélisation 3D et les possibilités qu'elle offre à représenter le procédé, nous avons choisi de considérer la distribution de densité dans la largeur de la plaquette au niveau de l'entrefer. La figure 47 montre les résultats de simulation numérique pour une pression

d'alimentation constante et pour un débit constant. Les profils et les niveaux de densités obtenues ont des tendances différentes et illustrent bien l'effet du choix de la condition d'alimentation.
La comparaison des profils des densités calculées et mesurées montre que le choix du débit d'alimentation pour représenter l'entrée de la poudre entre les rouleaux, reproduit bien les données expérimentales qui montrent que la densité est plus élevée au centre de la plaque et plus faible sur les bords [Michrafy,2010b]. Ce résultat est aussi en accord avec les mesures récentes obtenus dans [Miguelez-Moran,2009].

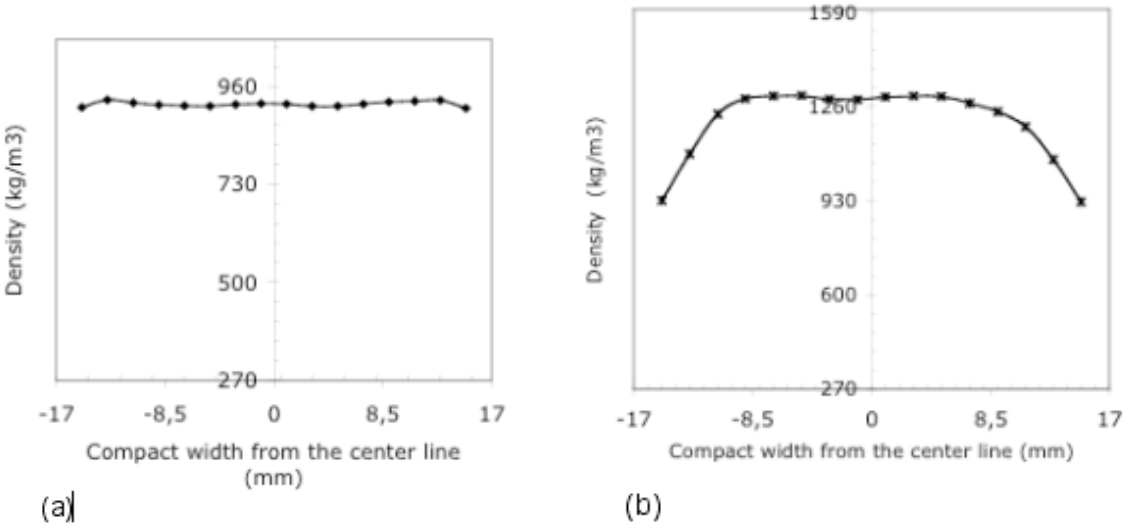


Figure 47 Distribution de densité dans la largeur de plaquette de cellulose microcristalline
(a) : l'alimentation est représentée par une pression constante
(b) : l'alimentation est représentée par un débit constant.

Conclusion III.2

Dans ce chapitre, nous avons présenté l'état de nos travaux sur la simulation numérique du procédé de compactage à rouleaux en 2D et 3D. On s'est attaché à démonter que la modélisation continue par éléments finis du procédé de compactage, permet de reproduire le fonctionnement du procédé et d'aider à accroître nos connaissances dans ce domaine. Nous avons montré par des exemples significatifs que l'on peut décrire de manière très satisfaisante des mécanismes fondamentaux qui sont à la base du fonctionnement du procédé et de prédire des propriétés finales dans la plaquette en accord avec des mesures expérimentales. Cependant, la qualité des prédictions dépend de la précision des données et du maillage.

Nous n'avons pas complètement exploité les potentialités de la modélisation continue dans le procédé de compactage à rouleaux, en particulier dans la transposition d'échelles du laboratoire au pilote ou à la production. Nous pensons qu'il est important que les développements progressent dans ce domaine, encore ouvert, pour apporter des outils nécessaires au développement du procédé dans le secteur industriel.

Conclusion et perspectives

Le bilan

Dans les travaux de recherche menés depuis bientôt dix ans, on s'est attaché à développer de manière conjointe, des moyens de caractérisation et des moyens de modélisation dans le domaine de la mise en forme des poudres par compression en matrice et par compactage à rouleaux.

Le développement expérimental a concerné l'instrumentation de deux presses et le développement d'outils de caractérisation du comportement de poudres. À l'aide de ces outils, différents travaux expérimentaux ont été réalisés pour analyser le comportement de poudres simples ou mélange binaire. Dans ces travaux de caractérisation, nous avons progressé sur plusieurs problématiques scientifiques autour des propriétés mécaniques des poudres et des compacts et de leurs relations avec des paramètres des procédés de mise en forme. Nous avons montré que les propriétés finales des compacts sont étroitement liées à la formulation (proportions de dosages des phases solides), aux propriétés micro structurelles et moléculaires des poudres (porosité, stoechiométrie, structure fragmentaires ou non fragmentaires), à la sollicitation mécanique et thermique (vitesse de déformation, cycle de chargement, température des outillages), aux modes de lubrification (frottement) et à la forme géométrique (plat, concave,…). Cependant, le comportement de poudres est de nature multi-échelles et multi-physiques dans le sens où des mécanismes mécaniques, physico-chimiques et thermiques sont couplés à l'échelle micro (échelle des particules) et ont un impact sur le comportement aux échelles macroscopiques.

Nous avons aussi progressé au niveau de la modélisation continue des deux procédés et surtout dans la compréhension du fonctionnement des procédés et dans la prédiction des relations entre les propriétés macroscopiques des poudres, des paramètres du procédé et des propriétés finales du produit (plaquette, granulé, compact). Tout au long de ce rapport, nous avons montré par différentes contributions, les capacités de l'approche continue à mieux rendre compte des relations "structures initiales - procédés - propriétés finales". Cependant, si l'on considère toute la chaîne de modifications structurelles et fonctionnelles des poudres en passant du compactage à rouleaux à la compression directe (figure 1), plusieurs mécanismes fondamentaux sont encore mal compris et constituent des verrous scientifiques pour le développement des procédés et des produits. La compréhension de tels mécanismes intervenants à l'échelle de la particule ou l'agglomérat et mettant en jeu des mécanismes multi-physiques nécessite de combiner des outils de modélisations fines et des moyens innovants de mesures.

L'ensemble de ces travaux s'est enrichi par différentes disciplines scientifiques comme la métallurgie des poudres, la plasticité et la simulation numérique par éléments finis et grâce à

l'ouverture scientifique qui était d'un apport fondamental au développement de cette activité. Cela s'est traduit par la collaboration avec des laboratoires comme Chatenay-Malabry, l'Université de Munich et l'Université d'El Jadida (Maroc) dont les préoccupations scientifiques sont complémentaires à la nôtre. Les collaborations industrielles que ce soient des outilleurs ou des développeurs de matériaux granulaires a justifié l'intérêt et la pertinence de ces travaux pour le développement et l'expertise.

Projet de recherche

Des avancées substantielles ont été accomplies dans la compréhension de plusieurs phénomènes intervenant dans le comportement macroscopique de poudres en compression et dans les relations «structure initiale -paramètres procédé - propriétés finales ». Cependant, le comportement de poudres est de nature multi-échelles et multi-physiques et les modélisations développées ne permettent pas de prendre en compte les phénomènes mis en jeu à l'échelle des particules comme la structure et le comportement des granules, les propriétés de surface (rugosité, adsorption) ou encore le caractère cristallin ou amorphe des poudres. Ces modélisations ne permettent pas non plus de prédire correctement la localisation de la déformation qui est souvent le précurseur du clivage et de la rupture dans les matériaux denses.

Nous pensons que la compréhension des relations entre le comportement des particules et le comportement macroscopique moyen est nécessaire et passe par la combinaison d'approches expérimentales et de modélisations à différentes échelles. Dans cette perspective, des techniques d'analyses comme la microscopie numérique, la micro tomographie aux rayons X et la caractérisation micromécanique sont particulièrement intéressantes du point de vue de la caractérisation des propriétés mécaniques et des microstructures. Dans ce cadre une étude de couplage entre l'observation optique et la sollicitation mécanique à l'échelle de la particule a été initiée. Cependant, les techniques expérimentales doivent êtres combinés avec des modélisations fines pour pouvoir quantifier des grandeurs physiques.

Mon projet de recherche s'inscrit dans une démarche à la fois de continuité et d'ouverture.
La continuité concerne les procédés de mise en forme par compactage, mais avec une vision et des approches à l'échelle de la particule. Nous avons identifié des prolongements à nos travaux actuels qui sont listés ci-dessous.
L'ouverture à d'autres thématiques et d'autres problématiques physiques a toujours été à la base de mes motivations. Elle s'articulera autour de domaines connexes comme la granulation humide ou l'enrobage dont certaines actions de collaboration sont en cours.

Une partie de ces développements devra être réalisé dans le cadre d'un projet européen du Programme

Communautaire de Recherche et Développement (7° PCRD) déposé début 2011, et qui fédère 8 laboratoires européens et 3 partenaires industriels.

Relations « propriétés de poudres initiales – propriétés des granulés »

L'utilisation industrielle du procédé de compactage à rouleaux a pour objectif de modifier les propriétés structurelles des poudres pour améliorer leurs propriétés fonctionnelles. Cela passe par la formation de compacts, leurs concassages sous formes de granulés (agglomérats) et le compactage ou la mise en sachet de ces derniers. Dans nos développements actuels, la caractérisation macroscopique des propriétés initiales des poudres, des paramètres du procédé et des compacts est une première étape à la compréhension des relations « propriétés initiales – paramètres du procédé – propriétés des plaquettes». Cependant, dans le processus de formation des granulés, les modifications micro structurelles des poudres initiales en granules reste incomprise. Un premier travail a été commencé dans le stage d'Aurélia Broussoux [Broussoux,2010] sur des granulés de mélange cellulose-lactose produits avec différents paramètres de procédé (collaboration avec Sanofi-Aventis). Dans ce travail, on s'est attaché à comprendre les modifications micro structurelles des poudres et des granulés et leurs impacts sur le comportement en compression. Ce travail encourageant se poursuivra à deux niveaux :
Dans le premier niveau, on étudiera les relations entre les propriétés des plaquettes et celles des granulés obtenus par concassage. L'objectif est de comprendre, par l'analyse de la microstructure, les modifications engendrées pendant l'opération de concassage des plaquettes. Ainsi nous aurons une meilleure connaissance des relations « propriétés des poudres initiales - propriétés des plaquettes - propriétés des granules » en fonction des paramètres du procédé.
Dans une deuxième étape, on étudiera le comportement des granulés pendant la phase du remplissage de la matrice et pendant la compression par la méthode des éléments discrets. L'objectif est de comprendre l'effet de la taille, de la porosité et de la structure de l'agglomérat sur les propriétés des compacts. Ces résultats permettront de comprendre les modifications micro structurelles des poudres par le procédé de compactage à rouleaux.

Couplage thermique-mécanique en compression

Le processus de compression génère un échauffement dû au frottement poudre/matrice, particule/particule et à la déformation plastique. L'élévation de température dépend en général de la pression de compactage, de la nature du lubrifiant, de la vitesse de compression et de la température des outillages. L'étude expérimentale de l'échauffement des poudres par compression directe a commencé dans la thèse de M. S. Kadiri en 2004 en collaboration avec la «Chair of Process Engineering TU München » et s'est poursuivie par modélisation numérique dans le Master Recherche de C. Possoz [Possoz,2006]. Compte tenu de son intérêt et son originalité dans les applications

pharmaceutiques, ce travail devra se poursuivre avec un meilleur choix de poudres et une modélisation du couplage thermique et mécanique pour prédire les distributions de température dans le compact.

Propriétés d'adsorption et contrainte mécanique

Un autre champ d'application que nous avons commencé à étudier dans le cadre de l'ANR IMCAT, concerne les matériaux granulaires pour les applications de captage de CO_2 (Catalyseurs). Pour ces matériaux qui ont de bonnes propriétés d'adsorption et de désorption, une opération de mise en forme par compression a été explorée pour augmenter leurs propriétés mécaniques. Cependant, une baisse importante des propriétés d'adsorption a été observée. Cette investigation nous a suggéré d'aller plus loin dans la compréhension des relations «contraintes mécaniques - propriétés d'adsorption » et surtout la compréhension des mécanismes internes mis en jeu. Ce sera un autre axe de recherche dans lequel nous nous investirons car c'est un domaine en plein essor par son attrait technologique et environnemental. Cet axe de recherche sera conduit en collaboration interne avec D. Oulahna et se basera sur le montage expérimental développé dans les travaux de thèse de E. Touzis [Touzis,2005] sur la caractérisation de propriétés de microstructures de milieux granulaires.

Simulation discrète de l'alimentation par vis

Le compactage à rouleaux à l'aide d'une presse à alimentation horizontale est bien adapté au compactage de poudres très cohésives. Cependant, l'alimentation reste la partie dominante du procédé. En particulier son efficacité dépend de la forme de la vis. Dans ce sens, une modélisation analytique du transport de poudres par vis a été développée dans la thèse de H. diarra [Diarra,2008] afin de déterminer la pression et le débit d'alimentation comme conditions aux limites à la simulation numérique du compactage à rouleaux. Cependant, cette analyse basée sur le modèle de Yu [Yu,1997] n'a pas aidé à mieux comprendre le rôle de l'alimentation par vis. Nous pensons qu'il est plus judicieux d'analyser l'alimentation par vis en utilisant la méthode des éléments discrets (DEM) en vue de déterminer le débit et la pression d'alimentation qui restent encore inaccessibles à nos jours alors qu'ils sont nécessaires à la modélisation du compactage. Ce travail a été initié dans le postdoc de Kadiri à l'aide de PFC 3D. Mais faute de temps (postdoc trop court : 2 mois), ce projet n'a pu aboutir. La réalisation de ce projet n'a pas seulement un impact direct sur l'activité du compactage à rouleaux, mais bâtira aussi des développements qui peuvent êtres exploités dans d'autres procédés étudiés au laboratoire comme le mélange, la granulation ou le séchage de poudres.

Changement d'échelles

L'autre plan de travail est celui du changement d'échelle «scale-up». En effet, le changement d'échelle du laboratoire au pilote et à la production présente des verrous scientifiques et industriels loin d'être maîtrisé et reste un enjeu industriel qui freine le développement du procédé. Nous pensons l'aborder de deux façons : la première consiste à identifier l'impact sur les propriétés du compact des paramètres du procédé de trois types de presses : alimentation horizontale, alimentation verticale et

alimentation hors axe en collaboration avec l'Université de Birmingham et l'Université de Basel. La deuxième est basée sur la modélisation numérique par éléments finis 3D du procédé, modélisation déjà initiée dans les travaux de la thèse de H. Diarra [Diarra,2008] mais avec l'utilisation de données issues de la simulation discrète de l'alimentation.

Milieu granulaire faiblement humide

Les outils expérimentaux que nous avons développés ont été appliqués essentiellement à des poudres à l'état sec où le rôle des forces mécaniques est dominant dans le contact grain-grain. Cependant, il est bien connu que l'ajout d'un liquide, même en petite quantité dans un milieu granulaire change de manière substantielle son comportement par rapport à l'état sec. Ce changement de comportement est constaté par le gain de cohésion observée macroscopiquement (en granulation humide, cela se traduit par l'augmentation du couple d'agitation par exemple) et qui est attribuée à la formation de ponts liquides aux contacts entre les particules. Dans ce cadre et en collaboration interne avec l'équipe de la granulation humide, on s'attachera dans un premier temps, à développer des moyens expérimentaux pour mesurer les forces exercées par un pont liquide entre deux particules pour valider les lois qui décrivant les interactions entre grains. Dans une deuxième étape et en utilisant des approches de type homogénéisation statistique, on déterminera des grandeurs macroscopiques permettant de valider la modélisation « micr-macro » en comparant les prévisions et les mesures macroscopiques.

Enrichissement de l'approche continue

Nous avons montré que l'approche continue développée dans nos travaux présente des limitations en particulier pour la description de la microstructure ou la prédiction du clivage. En effet, d'une part c'est une approche macroscopique où l'élément de volume est considéré homogène en termes de microstructure, d'autre part la seule variable d'état représentant la microstructure est la densité relative (ou porosité) au niveau de l'élément de volume. Or, la situation du clivage est révélatrice d'un phénomène de localisation de déformation dans la structure. La localisation de la déformation apparaît souvent sous la forme de bande étroite dans les matériaux granulaires et bien d'autres matériaux comme les roches, les métaux et les polymères. Ces bandes étroites de localisations de la déformation sont souvent les précurseurs de la rupture dans les matériaux denses et qu'il est souhaitable de pouvoir les prédire en employant des modèles de la mécanique des milieux continus *enrichis* par des variables représentant la microstructure (i.e : *milieux à microstructures* , *milieux du second gradient*, *milieux de Cosserat)*.

Références bibliographiques

[Abaqus] Hibbit, Karlsson and Sorensson, Inc.,
Abaqus Theory Manual Version 5.8 p. 4.4.4-1.
[Aydin,1996] Aydin, I., Briscoe, B. J., Sanliturk, K. Y, The internal form of compacted ceramic components : a comparison of a finite element modelling with experiment,
Powder Technology, vol. 89, (1996), pp. 239-254.
[Bindhumadhavan, 2005] Bindhumadhavan G, Seville JPK, Adams N, Greenwood RW, Fitzpatrick S.
Chemical Engineering Science, Vol. 60, (2005), pp. 3891-3897
[Bonnefoy,2001] Bonnefoy V., Modélisation du comportement de poudres métalliques et céramiques en compression,
Thèse de Doctorat de l'INPG, 2001.
[Browden,1939] Browden F. P. and Leben L., The nature of sliding and the analysis of friction, Proc.
Roy. Soc. Lond. A, 169 (1939), pp. 371-391
[Busignies,2006a] Busignies, V., Leclerc, B., Porion, P., Evesque, P., Couarraze, G., Tchoreloff, P.
European J. of Pharm. and Biopharm. 64, (2006), pp. 66–74
[Busignies,2006b] Busignies, V., Leclerc, B., Porion, P., Evesque, P., Couarraze, G., Tchoreloff, P.,
European J. of Pharm. and Biopharm., 64, (2006), pp. 51–65
[Cedergren,2002] Cedergren J., Sorensen N. J., A. Bergmark, Three-dimensional analysis of compaction of metal powder,
Mechanics of Materials, 34, 5, (2002), 43-59
[Çelik,1985] Çelik M., Travers D.N.,
Drug Devel. Ind. Pharm. 11, (1985), 299.
[Chaboche,1982] Chaboche J. L., Le concept de contrainte effective appliquée à l'élasticité et à la viscoélasticité en présence d'endommagement anisotrope, (1982), *comportement mécanique des solides anisotropes*, *colloque Internationale du CNRS, n° 295.*
[Chan,1983] Chan, S.Y., Pilpel, N., Cheng, D.C.-H. The tensile strengths of single powders and binary mixtures.
Powder Technology, 34, (1983),173-189
[Chekmarev,1963] Chekmarev A. P., Klimenko P. A., and Vinogradov G. A., Investigation of specific pressure, specific friction and the coefficient of friction during metal powder rolling,
Sov. Powder Metall. Met. Ceram., (1963), 112-115.
[Coccoz,1995] Coccoz G., Compactage à froid des poudres métalliques : approches expérimentale et simulation numérique,
Thèse de Doctorat de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 1995.
[Dec,2003] Dec, R. T., Zavaliangos A., Cunningham J. C., Comparison of various modeling methods for analysis of powder compaction in roller press,
Powder Technology 130, (2003), 265-271.
[Dec,1990] Dec R. T. Roll press agglomeration of industriel wastes, Second International Symposium on Extraction and Processing for the treatment and minimization of wastes, (1996),

Eds. V. Ramachandran et C. C. Nesbitt, The Minerals, Metals & Materials Society.
[DiMaggio,1971] DiMaggio, F. L., and Sandler, I.S, Material model for granular soils, J. of the Engi. Mech. Division.
Proceeding of the American Society of civil Engineers, (1971), 935-950.
[Djemai,2006] Djemai A., Sinka I.C.,
International Journal of Pharmaceutics 319, (2006), 55–62
[Drucker,1952] Drucker D.C. and Prager W., Soil mechanics and plastic analysis or limit design,
Quarterly of Applied Mathematics, vol. 10, (1952), pp. 157-175
[Drucker,1957] Drucker D.C., Gibson R .E. and Henkel D.J ., Soil mechanics and work-hardening theories of plasticity,
Transactions ASCE, vol. 122, (1957), pp. 338-346.
[Duckworth,1953] Duckworth, W., 1953. Discussion of Ryshkewitch paper.
J. Am. Ceram. Soc. 36, 68
[Farber,2003] Farber L., Tardos G., Michaels J.N., Use of X-ray tomography to study the porosity and morphology of granules,
Powder Technol. 132, (2003), 57– 63.
[Goubier,2004] Goubier H., Rouèche, E., Serris E., Thomas G., Périer-Camby L., Etude de l'influence de la température sur la compressibilité et la résistance à la rupture de matériaux granulaires,
Science et Technologie des Poudres, 4 au 6 mai (2004), Compiègne, France.
[Green,1972] Green R.J., A plasticity theory for porous solids,
Int. J. of Mechanical Science, Vol. 14, (1972), pp. 215-224
[Guigon,2003] Guigon P., Simon O., Roll press-influence of force feed systems on compaction,
Powder Technology 130 (2003) 41-48.
[Gurson,1977] Gurson A.L, Continuum theory of ductile rupture by void nucleation and growth. Part 1 : Yield criteria and flow roles for porous ductile media,
ASME J. Eng. Mater. Technology, Vol. 99, (1977), pp. 2.
[Heckel,1961] Heckel, R. W.,
Trans. Metall. Soc., AIME, 221 (1961), 671.
[Johanson,1965] Johanson J. R., A rolling theory for granular solids,
ASME Journal of applied mechanics 32, Series E, (1965), 842-848.
[Kawakia,1970] Kawakia, K. and Lûdde K.H. Some considerations on powder compression equation.
Powder technology, 4, (1970/71),61 – 68.
[Ketolainen,1992] Ketolainen J., Ilkka J. and Paronen P., Temperature changes during tebletting measured using infrared thermoviewer,
International Journal of Pharmaceutics, vol. 92, Issues 1-3 (1992) , 157-166
[Kondoh,2000] Kondoh, K.,Watanabe, H., Hashimoto, H., Analysis of compaction behaviour of wet granulated aluminium alloy powder,
Powder Metallurgy, Vol. 43, n°4, (2000), pp. 359-363
[Kuentz,2000] Kuentz, M., Leuenberger, H. A new theoretical approach to tablet strength of binary mixture consisting of a well and poorly compactable substance.

European J. Pharm. and Biopharm, 49,(2000),151-159
[Kuhn,1971] Kuhn H.A., Downey C.L., Deformation characteristics and plasticity theory of sintered powder materials,
Int. J. Powder Metallurgy, Vol. 7,(1971), pp. 15.
[Kuleshov,1985] Kulshov I.E., Photoelastic investigation of contact stresses in metal powder rolling,
Sov. Poder Mettall Met Ceram., (1985), 23-25
[Laborde,1990] Laborde P. et Michrafy A., Etude d'un modèle avec endommagement,
C.R. Acad. Sci. Paris, 1990, t.310, Série I, pp. 613-616
[Laborde,1991] Laborde P. and Michrafy A., On general constitutive equations involving damage
Eur. J. Mech., A/Solids, 1991, 10, pp. 213-237.
[Lecompte,2005a] Lecompte Th., Doremus, P., Thomas, G., Perier-Camby, L., Le Thiesse, J.-C, Masteau, J.-C and Debove, L., Dry granulation of organic powders-dependence of pressure 2D distribution on different process parameters,
Chemical Engineering Science, 60, (2005), 3933-3940
[Lecompte,2005b] Lecompte Th., Etude expérimentale et numérique de la compression de poudre organique en presse à rouleaux, alimentée par une vis sans fin.
Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique de Gronoble, 2005.
[Leuenberger,1985] Leuenberger, H., Compression of binary powder mixtures and solubility parameters of solids.
Int. J. Pharm. 27, (1985), 127-138
[Lemaitre,1985] Lemaitre J., A continuous damage mechanics model for ductile fracture, (1985)
J. Eng. Mater. Tech., 107
[Leuenberger,1997] Leuenberger H., and Ineichen L.,
European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics, vol. 44, (1997), pp. 269-27
[Li,1996] Li, Y., Liu, H., Rockabrand, A., Wall friction and lubrication during the compaction of coal logs.
Powder Technology, 87,(1996), pp, 259-267
[Masteau,1999] Masteau, J.-C., Thomas, G., Evolution and modelling of compacted binary mixture porosity. Application to pharmaceutical tablets,
J. Chim. Phys. Vol. 96, N°7, (1999), p. 1245-1268
[Michel,1994] Contribution à l'étude de l'agglomération des poudres en presse à rouleaux lisses, (1994),
Thèse de l'Université de Technologie de Compiègne.
[Miguelez-Moran,2008]Miguelez-Moran, A.M., Wu C.-Y. and Seviller J.P.K. The effect of lubrication on density distributions of roller compacted ribbons,
Int. J. Pharmaceuticals., 362, (2008,)52-59.
[Miguelez-Moran,2009] Miguelez-Moran, A.M., Wu C.-Y., Dong H. and Seviller J.P.K., 2009, Characterisation of density distributions in roller compacted ribbons using micro-indentation and X-ray microcomputed tomography.
Euro. J. Pharm. Biopharm., 72, (2009), 173-182
[Nebgen,1977] Nebgen G., Gross D., Lehmann V., Muller F., 1H-NMR microscopy of tablets,

J. Pharm. Sci. 84 (1977) 283–291
[Nedderman,1992] Nedderman R.M., Statics and Kinematics of Granular Materials, *Cambridge University Press, 1992.*
[Nelson,1955] Nelson, E,
J. Am. Pharm. Assoc. Sci. Ed., (1955), 44, 494.
[Nguyen,1977] On the elastic-plastic initial boundary problem and its numerical integration
Int. J. Numer. Meth. Eng., 1977, 11
[Oyane,1978] Oyane, M., Shima, S and Tabata, T., Consideration of basic equations, and their application, in the forming of metal powders and porous metals,
J. Mech. Working Technology, 1, (1978) 325-341.
[Pavier,1997] Pavier, E., Dorémus, P.,Friction Behavior of an Iron Powder Investigated with Two Different Apparatus,
Proceeding of International Workshop on Modeling of Metal Powder Forming Processes, Grenoble, France, (1997), 21-23
[Pavier,1996] Pavier E and Doremus P. Mechanical Behaviour of lubricated iron powder. PM'96.
Advances in Powder Metllurgy & Particulate Materials, Vol. 2, Part 6, (1996), pp. 27-40.
[Ramirez,2004] Ramirez, N., Melgoza, L.M, Kuentz, M., Sandoval, H., Caraballo, I., Comparison of different mathematical models for tensile strength-relative density profiles of binary tablets.
European J. Pharm. Sci., 22, (2004), 19
[Reynolds,1885] Reynolds O., Phil. Mag. fifth series, 20, (1885), p. 469.
[Riepma,1990] Riepma, K.A., Lerk, C.F., De Boer, A.H., Bolhuis, G.K. and Kussendrager, K.D., Consolidation and compaction of powder mixtures. I. Binary mixtures of same particle size fractions of different types of crystalline lactose.
Int. J. Pharm. 66,(1990), pp. 47–52.
[Riera,1998] Riera MD and Prado JM. 1998, Uniaxial compression tests on powder metllurgical compacts.
Powder Metallurgy World Congress and exhibition, . CD-Document N°615, EPMA, UK
[Ryshkewitch,1953] Ryshkewitch, E., Compression strength of porous sintered alumina and zirconia.
J. Am. Ceram. Soc. 36, (1953.), 65-68.
[Schönert,2002] Schönert K., Sander U., Shear stresses and material slip in high pressure roller mills,
Powder Technology 122 ; (2002), 136-144.
[Sheikh-Salem,1981] Sheikh-Salem, M., Fell, J.T. Compaction characteristics of mixtures of materials with dissimilar compaction mechanisms.
Int. J. Pharm. Tech. Manuf. 2 (1), (1981),19-22.
[Shima,1976] Shima S. , and Oyane M., Plasticity theory for porous metals,
Int. J. of Mechanical Sciences, Vol. 18, (1976), pp. 258-291.
[Simon,1992] Simon R. Bechard and G. B. Down, Infrared Imaging of Pharmaceutical Materials Undergoing Compaction,
Pharmaceutical Research, Vol. 9, (1992), 4.
[Simon,2000] Simon O., Etude experimentale de l'interaction alimentation-compaction dans une presse à rouleaux lisses alimentée par une vis horizontale,

Thèse de Doctorat, Université de Technologie de Compiègne, 2000
[Simon,2003] Simon, O. and Guigon, P., Correlation between powder-packing properties and roll press compact heterogeneity,
Powder Technology, 130, (2003), pp. 257 – 264
[Sinka,2010] Sinha T., Bharadwaj R., Curtis J.S., Hancock B.C., Wassgren C.,
Powder Technology 202, (2010), 46–54
[Sinka,2003] Sinka I.C., Cunningham J.C., Zavaliango A.,
Powder Technology 133 (2003) 33-43
[Sommer,2003] Sommer K. and Hauser G., Flow and compression properties of feed solids for roll-type presses and extrusion presses,
Powder Technology 130, (2003), 272-276
[Touzis,2005] Contribution à la formulation de produits solides :dispositif experimental de suivi de la porosité, tortuosité et perméabilité au cours de la libération d'un soluté,
Thèse de l'INPT, Université de Toulouse, 2005
[Train,1956] Train D., An investigation into the compaction of powders,
Journal of Pharmacy and Pharmacology 8 (10) ,(1956), 745-759.
[Tundermann,1969] Tundermann, J. H. and Singer, R. E., Deformation and densification during the rolling of metal powders,
Powder Metallurgy, 12 (23), (1969), pp. 219-242
[Villermaux,1990] Villermaux J., Mixing and Chemical Reaction. Semi-quantitative cretiria based on comparison of characteristic time constants,
Proceeding of AIChE Meeting, Chicago, (1990), November 11-16.
[Walton,1987] Walton, K. J., (1987),
Mech. Phy. Solids.
[Wikman,2000] Wikman B., Solimannezhad H., Larsson R., Oldenburg M and Häggblad H-A., Wall friction coefficient EstmationThrough Modelling of powder die pressing
experiment,
Powder Metallurgy, 43, (2000), pp. 132-138.
[Wu,2004] Wu CY and Cocks ACF., Flow behaviour of powders during die-filling,
Powder Met., 47, (2004) , 127-135
[Wu,2005] Wu, C.-Y., Best, S. M., Bentham, A. C., Hancock, B.C., Bonfield, W. A simple predictive model for the tensile strength of binary tablets.
European Journal of Pharmaceutical Sciences, V. 25, (2005), 331-336
[Wu,2005] Wu, C.-Y., Best, S. M., Bentham, A. C., Hancock, B.C., Bonfield, W. A simple predictive model for the tensile strength of binary tablets.
European Journal of Pharmaceutical Sciences, V. 25, Issues 2-3, (2005), 331-336.
[Yu,1997] Yu. Y. and Arnold P. C. , Theoretical modelling of torque requirements for single screw feeders.
Powder technology, 93, (1997), 151-162
[Zavaliangos,2008] A. Zavaliangos, S. Galen, J. Cunningham, Temperature évolution during compaction of pharmaceutical powders

J. Pharmaceutical Sciences, vol.97, n° 8,
[Zinchuk,2004] Zinchuk AV, Mullarney MP, Hancock BC, Simulation of roller compaction using a laboratory scale compaction simulator,
International J. of Pharmaceutics, Vol. 269, (2004), pp. 403-415

Quelques références bibliographiques personnelles

[Michrafy,2002] Michrafy A., Ringenbacher D., Tchoreloff P., Modelling the compaction behaviour of powders: application to pharmaceutical powders,
Powder Technology 127 (2002) 257– 266
[Michrafy,2003] Michrafy A., Kadiri M. S., Dodds, J. A., Wall friction and its effects on the density distribution in the compaction of pharmaceutical excipients,
Trans. IchemE, vol. 81, Part. A (2003), pp. 946-952
[Balicki,2003] Balicki M., Numerical methods for predicting roll press powder compaction parameters,
Master Recherche de 'The Cooper Union, Alber Nerkin Engineering School, New York, USA', 2003
[Kadiri,2004] Kadiri M. S., Compression de poudres pharmaceutiques et interaction avec l'outillage. Analyse expérimentale et modélisation numérique,
Thèse de l'INPT, Université de Toulouse, 2004.
[Kadiri,2005] Kadiri M. S., Michrafy A., Dodds J. A., Pharmaceutical powders compaction: Experimental and numerical analysis of the density distribution,
Powder Technology 157 (2005) 176 – 182
[Michrafy,2006] Michrafy A. Haas S., Kadiri M. S., Sommer K., Dodds J. A., The effects of Ambient Temperaure on the Compaction of Pharmaceutical Powders,
J. Process Mechanical Engineering, Vol. 220 (2006), pp. 1-6.
[Possoz,2006] Possoz C., Modélisation thermomécanique de la compression de poudres cohésives.
Rapport de stage Master Recherche de l'Université Pierre et Marie Curie, 2006
[Michrafy,2007] Michrafy A., Michrafy M., Kadiri M. S.,Dodds J.A., Predictions of tensile strength of binary tablets using linear and power law mixing rules,
International Journal of Pharmaceutics 333 (2007) 118–126
[Harona,2008]Diarra H., Procédé de compactage à rouleaux : étude expérimentale et modélisation tridimensionnelle par éléments finis,
Thèse de l'INPT, Université de Toulouse, 2008.
[Michrafy,2009] Michrafy A., Diarra H., Dodds, J.A., Comapction behavior of binary mixtures,
Powder Technology 190 (2009) 146-151
[Hatim,2009] Hatim Z., Michrafy A., Elassfouri M., Abida F., Stoichiometry and particles morphology effects on the aptitude to the compaction of apatitic structure powders,
Powder Technology 190 (2009) 210–214
[Michrafy,2010a] Michrafy A., Diarra H., Dodds J.A., Michrafy M., Penazzi L., Analysis of strain-stress state in roller compaction,
Powder Technology, 208 (2011) 417-422

[Michrafy,2010b] A. Michrafy A., Diarra H., Dodds J.A., Michrafy M., Experimental and numerical analysis of homogeneity over strip width in roll compaction,
Powder Technology 206 (2011) 154–160

[Projet-Franco-Bavarois] Numerical modelling of rolling compaction process, *projet franco-Bavarois (01/01/2005 - 30/06/2006)*

[Broussoux,2010] Modification de la microstructure et du comportement de poudres par le procédé de compactage à rouleaux,
Rapport de stage de fin d'études, 2010.