

RÉPUBLIQUE ALGÉRIENNE DÉMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTÈRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPÉRIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE
UNIVERSITÉ IBN KHALDOUN – TIARET
FACULTE DES SCIENCES ET DE LA TECHNOLOGIE
ET SCIENCES DE LA MATIÈRE



Faculté des Sciences de la matière

Département de physique

Mémoire

Présenté par

M_m KEBIR Souhila

Pour obtenir le diplôme de

Master

Filière : physique

Spécialité: Génie des matériaux

Sujet :

Les paramètres d'écoulement des poudres fines

Soutenu le

Devant le jury :

M.BELARBI El-habib

Président

M.BAGHDAD Rachid

Examineur

M.TURKI Djamel

Encadreur

Année universitaire : 2016/2017

Remerciements

Je remercie **Dieu** tout puissant qui m'a donné la volonté et le courage pour réaliser ce travail.

J'exprime ma profonde gratitude à mon encadreur **M. Turki**, maître de conférences qui dirigé ce travail efficacement. Ces quelques lignes sont insuffisantes à exprimer ma reconnaissance pour la confiance qu'il m'a témoignée, pour l'attention jamais relâchée qu'il a porté mon travail, et pour ses conseils.

Je remercie le professeur **BELAARBI**, responsable de la spécialité Génie des Matériaux de m'avoir présidé le Jury de ce projet de fin d'étude, et le professeur **BAGHDAD**.

Je tiens aussi à remercier **mes Parents, mon Mari** et tout qui m'ont aidé au long de mon parcours.

Je tiens à présenter mes vifs remerciements et avec beaucoup de joie les personnes qui d'une manière ou d'une autre, ont contribué au bon déroulement et de l'élaboration de ce projet, tant au niveau humain qu'au niveau scientifique.

Et aux membres de jury, d'avoir accepté d'évaluer ce travail. Et sans oublier mes enseignants.

Sommaire

CHAPITRE I	03
I. Description des propriétés physiques des poudres	03
I.1. Taille, Forme, Distribution de la taille	03
I.1.1. Surface spécifique (Sw)	04
I.1.2. Volume superficiel (Vs)	04
I.1.4. Taille critique	04
I.2. Dynamique des milieux granulaires	04
I.2.1. Principe de dilatance de Reynolds	04
I.2.2. Frottement granulaire	05
I.2.3. Ecoulements	06
a. Ecoulement en masse	07
b. Ecoulement en noyau	07
I.3. Rhéomètre à poudre	09
I.3.1. Mesures de l'énergie d'écoulement	09
I.3.2. Mesure de l'écoulement de la poudre	11
I.3.3. Simplifier la complexité	12
I.3.4. La rhéologie des poudres avancée	12
CHAPITRE II	14
II. Analyse bibliographique : Technologie des poudres	14
II.1. Principe de la fabrication des comprimés	14
II.2. Préparation avant compression	16
II.3. Propriétés des poudres pharmaceutiques	17
II.3.1. La taille des particules	17

SOMMAIRE

II.3.2. La densité	17
II.3.3. La surface spécifique	17
II.4. La granulation	18
II.4.1. La granulation humide	18
II.4.2. La granulation sèche	19
II.5. L'opération de mélange	20
II.6. La compression directe	20
II.6.1. Excipients pour la compression directe	20
III. La Compression	22
III.1. Les modèles de compression	22
III.1.1. La compression des poudres	22
III.2. Etat des lieux	23
III.3. Les modèles de compression	23
III.3.2. L'équation de Walker	25
CHAPITRE III	26
IV. Milieu granulaire	26
IV.1. Définition du milieu granulaire	26
IV.2. Caractéristiques physique du milieu granulaire	28
IV.2.1. Taille et morphologie de la particule	28
IV.3. Techniques de mesure des propriétés physiques des poudres	29
IV.3.1. Diffraction de lumière	29
IV.3.2. Sédimentation/centrifugation	30
IV.3.3. Corrélation des photons (pour information)	31

SOMMAIRE

IV.4. Distribution granulométrique	32
IV.4.1. Densité	33
IV.4.2. Porosité	33
IV.4.3. Fluidisation des poudres	35
IV.4. Difficultés de la description du comportement du milieu granulaire	37
IV.5. Influence des paramètres sur la coulabilité	38
IV.5.1. La cohésion et les forces d'interaction	39
IV.5.1.1. Forces de Van der Waals	39
IV.5.1.2. Forces électrostatiques	39
IV.5.2. Influence des paramètres intrinsèques	40
IV.5.2.1. Morphologie des particules	40
IV.5.2.2. Taille de la particule	40
IV.5.2.3. Distribution granulométrique	40
IV.5.2.4. Porosité	41
IV.5.2.5. Teneur en eau	41
IV.5.2.6. Composition chimique	42
IV.6. Influence des paramètres extrinsèques	42
IV.6.1. Paramètres procès	42
IV.6.1.1. Historique de la poudre	42
IV.6.1.2. Surface des parois	42
IV.6.1.3. Vibrations	43
IV.6.2. Paramètres environnementaux	43
VI.6.2.1. Humidité	43
IV.6.2.2. Température	43
IV.7. Evaluation de la coulabilité d'une poudre	44

SOMMAIRE

IV.7.1. Méthodes indirectes	44
IV.7.1.1. Mesures angulaires	44
IV.7.1.2. Essai de tassement	47
IV.8. Aperçu théorique	49
IV.8.1. Diamètres et distributions	49
V. Dispositifs de mesure des propriétés d'écoulement	50
V.1. L'indice de Hausner	50
V.2. Angle de repos 'Talus'	53
V.3. L'angle de glissement	56
V.4. Mesures des contraintes de cisaillement	59
V.4.1. Principe des fonctions d'écoulement	59
V.4.2. L'état de densité critique	60
V.5. La cellule de cisaillement annulaire	61
V.6. Le test de cellule de cisaillement	62
Conclusion	67
Bibliographie	68

LISTE DES FIGURE

Chapitre 01 :

Figure I.1 : Complexité d'analyse de la taille des milieux divisés.....	04
Figure I.2 : Illustration de la dilatance de Reynolds.....	05
Figure I.3 : Régimes d'écoulement de billes en conduite verticale (d'après Bertho et al., 2002 et 2003). De gauche à droite : régime frictionnel, cinétique et d'onde de densité.....	07
Figure I-4 : Profil de l'écoulement en masse (à gauche) et en cheminée (à droite).....	08
Figure I.5 : Trajectoire de l'hélice pour la détermination de l'énergie découlement [36].....	10
Figure I.6 : Mouvement de l'hélice pour le conditionnement de la poudre [6,7].....	11
Figure I.7 : Evolution de l'énergie d'écoulement selon la vitesse de rotation de l'hélice et le type de poudre, et pour un fluide newtonien [6]	11
figure I.8 : un rhéomètre MCR.....	12
Fig I.9 : un rhéomètre MCR	14

Chapitre 02 :

Fig II.1 : les différents modes de compression [23].....	16
Figure II. 2 : Les différentes étapes de la granulation sèche (Lecompte, 2005)	21
Fig.II.3: les différentes phases de la compression sur une machine alternative.....	23
Fig. II.4 : comportement des poudres sous l'effet de la compression	25

Chapitre 03 :

Figure III.1. Classification des matériaux granulaires.....	30
Figure III.2 : Différentes formes de particules (selon USP29 <776>) [48]	31
Figure III.3. Représentation schématique des différents méthodes.....	35
Figure III.4 : Porosité intraparticulaire [51]	37
Figure III.5 : Représentation de différentes organisations d'un lit de poudre [52].....	37

Figure III-6. Classification des poudres suivant leur aptitude à la fluidisation (Castel, 1995)	39
Figure III.7 : Différents comportements du milieu granulaire [67]	41
Figure III.8 : Représentation des forces exercées sur une particule située à la surface d'un cône de poudre.....	47
Figure III.9 : Méthodes pour la mesure de l'angle de repos [52]	48
Figure III.10 : Schéma de l'appareillage pour l'essai de tassement [80]	50
Figure III. 11 : Dispositifs de mesure de l'indice d'Hausner	54
Figure III.12 : Tas de poudre formé par écoulement dans un entonnoir. L'angle θ est l'angle maximal observé lors de la formation du tas, et l'angle α est l'angle pour lequel l'écoulement se fige lorsque la pente du tas a dépassé l'angle θ	56
Figure III.13 : Dispositif utilisé pour les mesures d'angle de repos	57
Figure III.14 : dispositif de mesure de l'angle de glissement Compression uni axiale	58
Figure III.15 : Test de compression pour une poudre cohésive (a) et une poudre non cohésive (b) (à partir de http://www.freemantech.co.uk).....	59
Figure III.16 : Test de compression uniaxial.....	60
Figure III.17 : Evaluation de la densité en vrac, ρ_b et limite d'élasticité non confiné, σ_c , en fonction de la contrainte de consolidation, σ_1 . [91]	61
Figure III.18 : Les courbes des essais de cisaillement de poudres selon l'état de consolidation.	63
Figure III.19 : Schéma de la cellule de cisaillement annulaire de Schulze (95)	64
Figure III.20 : Cellule de Jenike (gauche) et cellule de Peschl (à droite) [96].....	65
Figure III.21 : Lieu cinématique de rupture obtenu à partir des essais de cisaillement [97] ...	66
Figure III.22 : Paramètres des points de rendement [97]	68
Figure III.23 : Représentation de la fonction de flux (A) et de l'indice de fluidité ffc	69



INTRODUCTION

Introduction

Travailler avec de la poudre peut s'avérer difficile, particulièrement au moment du traitement et du stockage. La plupart de ces défis sont liés à l'écoulement des poudres. Les poudres ne créent pas seulement des difficultés dans les procédés, le contrôle de l'apport et de l'administration est également très important. Afin de garantir un contrôle de la qualité efficace et un traitement des poudres homogène, vous pouvez simuler et déterminer l'écoulement des poudres sous de nombreuses conditions en transformant un rhéomètre MCR en rhéomètre à poudre en utilisant la nouvelle cellule poudre.

De nombreux facteurs influencent l'écoulement des poudres, comme la taille et la forme des particules, la structure chimique, l'humidité, la température, les propriétés de l'emballage, la charge électrostatique, la morphologie de la surface, l'adsorption de gaz, l'humidité atmosphérique et la répartition des dimensions des particules. Par conséquent, les poudres, sous formes de mélanges de solides, liquides et gaz, sont complexes. Cette complexité peut être simplifiée avec une valeur : Force de cohésion.

La force de cohésion est la résistance interne de la poudre à l'écoulement. En vous basant sur la force de cohésion, vous pouvez prévoir si la poudre s'écoulera de manière fluide à travers le processus ou si la qualité de la poudre a changé.

Les techniques d'analyse des propriétés d'écoulement des matériaux granulaires sont nombreuses. La plus répandue est celle développée par Jenike (1964), qui permet non seulement de donner une évaluation de la coulabilité du matériau, mais aussi de dimensionner les trémies des silos de stockage de manière à avoir un bon écoulement.

On peut distinguer, d'une manière globale, trois grandes classes de méthodes pour étudier la relation entre contraintes et déformations d'un matériau granulaire, chacune permettant d'accéder à certaines propriétés du matériau :

- ✚ la méthode utilisant un viscosimètre à double cylindre, qui est une méthode décrite par Devise (1974) ;
- ✚ les méthodes de mesures angulaires et de quelques comportements d'écoulement : indices de coulabilité ;

- ✚ la méthode d'étude de la déformation d'un volume de particules, sous l'effet d'une sollicitation connue. Celle-ci peut être normale, soit en compression, soit en traction (résistance à la tension) ou tangentielle, essai de cisaillement (frottement interne et cohésion).

Ces méthodes de caractérisation permettent de mesurer des paramètres de l'écoulement des matériaux granulaires dont certains sont suffisants pour décrire l'écoulement et la conception d'installation.

Chaque type d'essai met en œuvre une combinaison de propriétés, sans toujours les dissocier : par exemple, la compressibilité dépend des effets conjugués du frottement et des forces de liaisons interparticulaires.

Chapitre I

Description des propriétés physiques des poudres

I. Description des propriétés physiques des poudres :

Les poudres ont des propriétés très différentes des particules massives du même matériau. Ces différences sont dues au fait qu'il y a peu d'atomes (10^3 à 10^5) et à l'effet de surface (les atomes de surface n'ont pas la même coordination).

- On doit distinguer les poudres fines (entre 0,1 et 1 micron) et les poudres ultrafines (entre 1 et 100 nanomètres..).
- Le comportement global d'une poudre dépend directement de ces interactions et des caractéristiques des particules solides. Ainsi, la caractérisation d'un système particulaire se situe à trois niveaux Caractérisation et analyse des poudres- Propriétés physiques
- Les caractéristiques intrinsèques des particules (taille, masse volumique, forme, porosité, hygroscopicité, point de ramollissement, etc.) ;
- Les propriétés relatives à une population de particules (distribution de taille, masse volumique en vrac, homogénéité, etc.) ;
- les propriétés comportementales qui reflètent, de manière globale et à l'échelle macroscopique, les interactions existantes au sein du milieu particulaire ou entre les particules de poudre et son environnement. Il s'agit donc des caractères collectifs traduisant le comportement de la poudre dans des circonstances et/ou environnements variés. [1]

I.1. Taille, Forme, Distribution de la taille :

La taille des particules est sans doute le paramètre le plus recherché d'une poudre, tant pour la prédiction de son comportement que pour le calcul des opérations qui la mettent en œuvre : stockage, écoulement, séparation, fluidisation, échange thermique, réactions chimiques, dispersion, dissolution, etc. Et pourtant, que signifie la taille d'une poudre ?! Pour une particule de forme sphérique, une et une seule grandeur, en l'occurrence son **diamètre**, peut représenter sa taille. Cette dernière permet par ailleurs d'en déterminer rigoureusement toutes les autres caractéristiques géométriques (surface, volume, surface spécifique, etc.). [1]

I.1.1 : Surface spécifique (S_w) :

Selon Guyon E. et Troadec J.-P., Pour des poudres, le rapport surface sur volume est immensément supérieur à celui des matériaux massifs. On considère les particules sphériques de rayon R. [1]

$$\text{Surface} = 4\pi r^2$$

$$\text{Volume} = \left(\frac{4}{3}\right) \pi R^3 = M / \rho$$

La surface spécifique étant la surface par unité de poids: $S_w = \frac{3}{(r.R)}$ en m^2g^{-1} . Elle peut varier de 0,1 à 400 m^2g^{-1} . On la mesure par adsorption d'azote ou de gaz rare, par diffraction de rayons X ou par microscopie électronique.

I.1.2. Volume superficiel (V_s):

C'est le volume perturbé par le milieu extérieur. Soit a l'épaisseur de la zone perturbée:

$$V_s = \frac{4}{3} \pi \cdot [R^3 - (R-a)^3]$$

I.1.3. Taille critique :

En dessous de la taille critique, les particules d'une poudre vont présenter des propriétés très différentes de celles à l'état massif. [1]

I.2. Dynamique des milieux granulaires

Dans cette partie, nous nous intéressons plus particulièrement à décrire les propriétés des poudres lorsque celles-ci sont en écoulement.

I.2.1. Principe de dilatance de Reynolds

En plus de sa faculté à développer un réseau hétérogène de contraintes lors d'une sollicitation mécanique, une autre propriété fondamentale du milieu granulaire est sa dilatation avant sa mise en mouvement. Cette propriété, appelée dilatance, est à l'origine de comportements spécifiques de la matière en grain (Brown et Richards, 1970). C'est en 1885 que Reynolds observa qu'un milieu granulaire compact doit passer par une dilatation préalable avant de se mettre en mouvement (figure I-1). En effet, dans un empilement compact, le mouvement des particules est limité par les exclusions géométriques dues à leurs voisines.

Sous l'effet d'un cisaillement, le système passe par un état de compacité « critique » où il peut alors se mouvoir sans avoir à se dilater davantage. Cette propriété est importante pour comprendre les écoulements des matériaux granulaires en particulier lorsque ceux-ci sont confinés (Guyon et Troadec, 1994 ; Duran, 2000). [1]

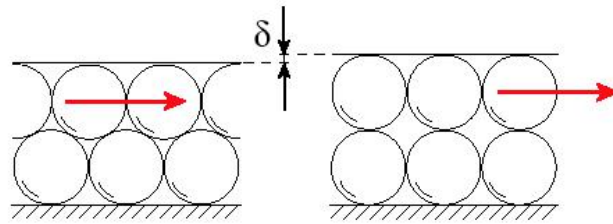


Figure I.1 : Illustration de la dilatance de Reynolds. [1]

I.2.2. Frottement granulaire

Coulomb a étudié les phénomènes de mécanique du sol et de friction solide. Il a également observé que la terre et le sable ne se remblayaient pas en talus avec la même pente. Il en a donc conclu que la forme du tas dépend de la propriété de frottement entre grains (Brown et Richards, 1970). [2]

En étudiant plus en détail la formation d'un tas, il est possible de remarquer qu'il existe deux pentes critiques. En ajoutant des grains sur un tas stable de poudre, ils s'accumulent pendant un certain temps. Une fois que la pente devient plus importante qu'un angle maximal, les grains se mettent en mouvement et la dévalent jusqu'à ce que celle-ci atteigne un angle minimal pour lequel l'écoulement se fige. La construction du tas se fait par une suite de tels événements, qui font osciller la pente entre ces deux angles (Claudin, 1999 ; Duran, 2000 et 2003 ; de Ryck *et al.*, 2005) [3,4]. L'analogie de Coulomb de la friction solide permet de relier cet angle maximal à un frottement solide entre grains. Pour cela, il suffit de dire que les grains de la surface du tas se mettent en mouvement lorsque la force de friction statique n'est plus suffisante pour les maintenir en place : la couche supérieure est équivalente à un patin disposé sur un plan incliné (Duran, 2000). Ainsi, la géométrie des surfaces en contact peut créer des blocages à cause de reliefs macroscopiques et donc une résistance au déplacement dans une direction. Cette résistance au déplacement due à la géométrie des

particules ou à des irrégularités de surface contribue à la cohésion globale en limitant le mouvement des particules en contact les unes par rapport aux autres.

I.2.3. Ecoulements

Les milieux granulaires en écoulement sont fortement dissipatifs, et lorsque l'apport d'énergie cesse, le milieu retourne rapidement au repos. Il faut donc pour entretenir le mouvement un apport constant d'énergie. La dissipation se fait entre les grains par frottement et par collision et également avec les parois du volume de confinement. Plusieurs régimes dynamiques peuvent être définis suivant les modes de dissipation de l'énergie. Ces régimes dépendent de la densité de la poudre et de l'importance du cisaillement. [4,5 ,6]

Le premier régime est dit frictionnel et apparaît lorsque l'empilement est dense et le cisaillement faible. La déformation de l'empilement est alors peu importante et les contacts sont nombreux et en grande partie persistants. Les forces se transmettent par un réseau, comme dans le cas statique, mais qui évolue au cours du temps. La dissipation d'énergie se fait alors par frottement. Ce régime est caractéristique des milieux denses qui s'écoulent lentement. Il est également appelé quasi-statique.

Un régime cinétique, appelé inertiel par Bagnold (1954), existe lorsque le milieu est dilué et fortement cisailé. Dans ce régime, les collisions sont dominantes et responsables de la dissipation d'énergie. La durée du contact au cours du choc est très courte devant le temps de vol entre deux collisions et les échanges d'énergie s'effectuent par transfert d'impulsion au cours des chocs. Le milieu est très agité et les fluctuations de vitesses sont très fortes. Ces deux caractéristiques se retrouvent dans le comportement d'un gaz, c'est pourquoi on s'inspire de la théorie cinétique des gaz pour décrire ce régime.

Entre ces cas extrêmes, il existe des situations intermédiaires d'écoulements de densité et de cisaillement assez forts. Dans ces régimes de transition coexistent généralement des zones diluées et des zones compactes.

La figure I-3 représente les différents types d'écoulement dans une conduite verticale de façon schématique.

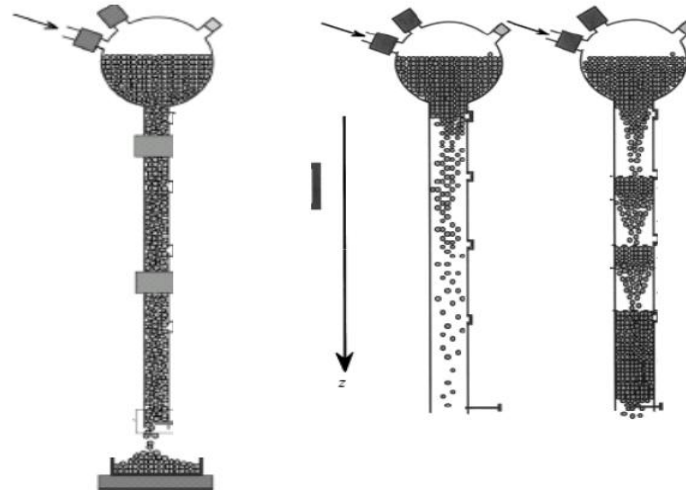


Figure I.2 : Régimes d'écoulement de billes en conduite verticale (d'après Bertho et al., 2002 et 2003). De gauche à droite : régime frictionnel, cinétique et d'onde de densité.

D'après Bertho et al, afin de rendre compte des observations faites dans le cas des écoulements se produisant lors du déstockage des matériaux à partir de récipient tels que les silos (à travers des orifices), deux modes d'écoulements lors de la décharge à travers des trémies ont été définis :

a. Ecoulement en masse

Il s'agit d'une mise en mouvement de l'ensemble des particules du matériau granulaire en tout point du silo. Ainsi, toute la masse granulaire se met simultanément en mouvement (figure I-3-gauche). La surface libre descend régulièrement et ne change pas de forme jusqu'à la jonction cylindre/trémie. [1, 5,6]

b. Ecoulement en noyau

Dans ce mode d'écoulement, seule la partie centrale s'écoule. Les couches supérieures de poudre glissent à travers une colonne centrale jusqu'à l'orifice de sortie. Il s'établit un déplacement relatif des particules avec des zones en mouvement et des zones stationnaires (figure I-3-droite). Si la zone stagnante n'atteint pas la surface libre, on parle alors d'écoulement semi-masse ou mixte.

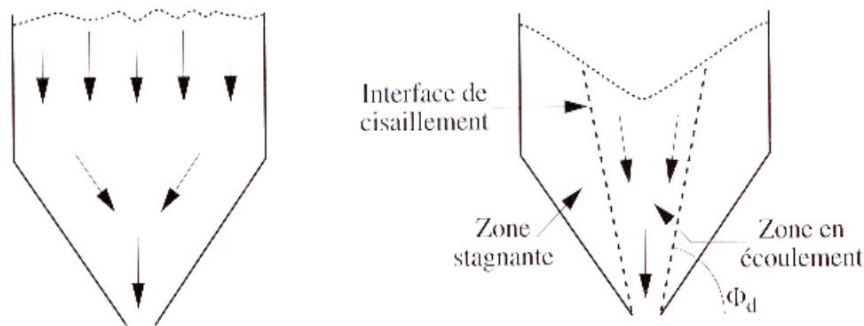


Figure I-3 : Profil de l'écoulement en masse (à gauche) et en cheminée (à droite) [6]

Le fait que l'on ait l'un ou l'autre mode d'écoulement dépend de la géométrie du récipient. Un matériau granulaire contenu dans un récipient à fond plat dont l'ouverture est petite aura tendance à s'écouler en noyau tandis qu'une trémie haute et terminée par un convergent donnera un écoulement en masse. [6]

L'écoulement dépend aussi de la nature de la poudre stockée. La description des propriétés des poudres en écoulement ainsi que les conditions conduisant à ces différents types d'écoulement en fonction des propriétés des poudres sont décrites dans divers travaux menés sur les écoulements gravitaires lors des décharges de silos. [7, 8, 9, 10,11]

Le comportement idéal, du point de vue de l'écoulement, est représenté par des particules sphériques à surface lisse car il y a, dans ce cas, réduction maximale de la surface de contact.

Au cours de cette partie, nous avons exposé les diverses propriétés des matériaux granulaires tant au niveau macroscopique que microscopique. Nous avons vu que pour bien caractériser un matériau granulaire, il est nécessaire de bien connaître ses caractéristiques physiques et géométriques qui vont dépendre des particules qui le constituent ainsi que des phénomènes d'interaction agissant entre ces particules. Par ailleurs, ces diverses caractéristiques vont avoir des répercussions au niveau de la statique des empilements, mais aussi sur la dynamique des matériaux.

Ainsi, la description d'un matériau granulaire nécessite la détermination de diverses propriétés collectives telles que la cohésion, les masses volumiques apparentes, les mesures angulaires, les débits massiques ; mais aussi celles des particules constitutives comme la taille, la forme, la surface, etc. De plus, nous avons vu qu'à partir de certaines de ces propriétés il était possible de déterminer différents indices permettant de classer et de comparer les matériaux entre eux.

Les diverses propriétés des poudres que nous venons de présenter peuvent être déterminées par l'intermédiaire de plusieurs techniques mises en œuvre dans divers dispositifs que nous présenterons plus en détail au cours du paragraphe II-2. (12)

I.3. Rhéomètre à poudre

Le comportement d'une poudre peut être comparé, selon les cas, à celui d'un liquide ou à celui d'un solide. En considérant ce fait, les milieux granulaires obéissent à des modèles similaires à ceux des systèmes classiques, dans la mesure où l'on travaille avec des grandeurs adaptés, telles que la viscosité ou les contraintes frictionnelles. C'est dans cette optique que des rhéomètres à poudre ont été mis au point afin de déterminer des paramètres caractéristiques de la coulabilité d'une poudre [6].

Cependant, ce type d'approche peut rencontrer certaines difficultés dans la mesure où une poudre ne peut être assimilée ni à un solide, ni à un liquide. Malgré cette difficulté, quelques rhéomètres à poudre sont actuellement sur le marché [6].

I.3.1. Mesures de l'énergie d'écoulement

L'énergie d'écoulement est l'énergie requise pour induire un mouvement au sein du lit de poudre. La société Freeman Technology a développé un rhéomètre permettant de déterminer cette énergie [6].

Cette énergie est calculée à partir du travail que doit fournir une hélice tournant dans le sens antihoraire, afin de pénétrer dans le lit de poudre (figure I.4).

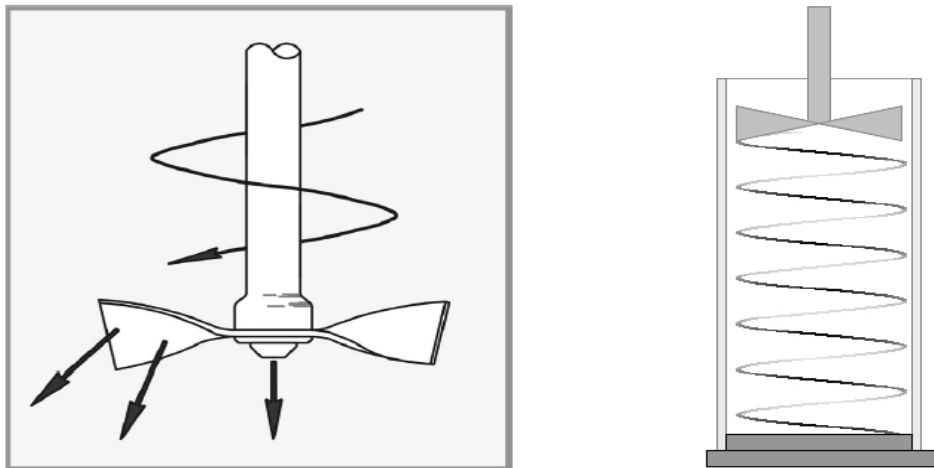


Figure I.4 : Trajectoire de l'hélice pour la détermination de l'énergie d'écoulement [d'après Millington-smithd-ft4powder rhéomètre 2014]

Cette valeur dépend de l'organisation initiale de la poudre dans la cellule de mesure, et donc de la manière dont la poudre a été préparée puis versée dans la cellule. Un conditionnement de la poudre est donc nécessaire afin d'obtenir des résultats reproductibles. Ce conditionnement consiste au désenchevêtrement de la poudre, via le mouvement d'une hélice tournant dans le sens horaire au sein du lit de poudre (figure I.5).

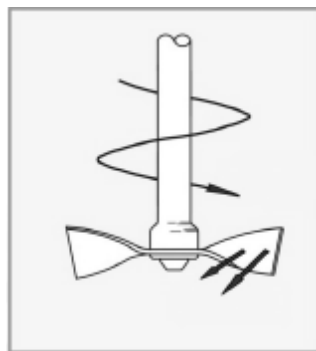


Figure I.5 : Mouvement de l'hélice pour le conditionnement de la poudre [6,7]

Cette valeur dépend aussi de la méthode employée, et principalement de la vitesse de rotation de l'hélice. Les interprétations peuvent être différentes suivant que les mesures sont effectuées avec une vitesse de rotation de l'hélice faible ou élevée (figure I.13) :

- A faible vitesse de rotation, l'hélice doit principalement lutter contre les forces d'interaction pour se déplacer dans le lit de poudre. Pour ces vitesses faibles, l'énergie d'écoulement sera donc plus élevée pour les poudres cohésives. [6]
- A vitesse élevée de rotation, l'hélice doit principalement lutter contre les forces frictionnelles pour se déplacer dans le lit de poudre. Ces forces seront plus importantes pour des poudres dont les particules se sont organisées en une structure compacte. Les poudres non-cohésives ayant une organisation plus dense que les poudres cohésives [27,28], l'énergie d'écoulement sera donc plus élevée pour les poudres non-cohésives

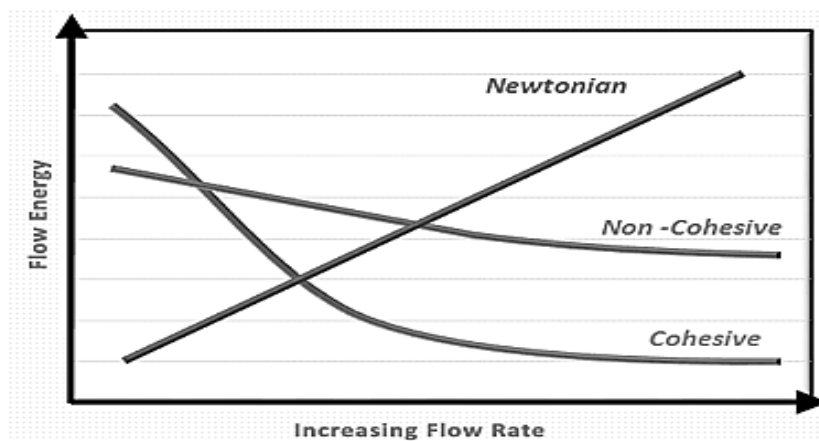


Figure I.6 : Evolution de l'énergie d'écoulement selon la vitesse de rotation de l'hélice et le type de poudre, et pour un fluide newtonien [6]

I.3.2. Mesure de l'écoulement de la poudre

Le travail avec des poudres est un véritable challenge, notamment lorsqu'il s'agit de leur traitement et de leur stockage, ainsi que du contrôle de l'admission et de la livraison. La plupart de ces challenges sont en rapport avec l'écoulement des poudres. L'écoulement des poudres est influencé par une large série de facteurs tels que la taille et la forme des particules, la structure chimique, l'humidité, la température, le comportement de packaging, la charge statique, la morphologie de surface, etc. [13]

Un rhéomètre MCR combiné à la cellule à poudre peut simuler et déterminer l'écoulement de la poudre dans différentes conditions et garantit ainsi un contrôle qualité efficace ainsi qu'un traitement homogène de la poudre.

La nouvelle cellule à poudre (Powder Cell) d'Anton Paar pour le célèbre rhéomètre MCR transfère l'éventail complet des méthodes rhéologiques traditionnelles dans le domaine

des poudres. Il est maintenant possible de simuler et de déterminer l'écoulement des poudres dans différentes conditions.

Cela est important dans le domaine du contrôle de la qualité, mais également pour étudier l'écoulement granulaire sec, spécialement à l'état fluidisé et presque fluidisé. L'association d'un rhéomètre MCR et d'une cellule à poudre est la solution parfaite pour de réelles études rhéologiques des poudres dans le domaine du contrôle de la qualité ainsi que dans la recherche et le développement. [13]

I.3.3.Simplifier la complexité

Les poudres, qui sont un mélange de solides, de liquides et de gaz, sont complexes. Cette complexité peut être simplifiée par une valeur : la résistance de cohésion.

La résistance de cohésion correspond à la résistance interne de la poudre à l'écoulement. A partir de la résistance de cohésion, il est possible de prévoir si la poudre s'écoulera de manière homogène ou si la qualité d'une poudre a changé. La valeur de résistance de cohésion varie quel que soit le facteur qui influence une poudre. Cette valeur peut être déterminée facilement et avec précision grâce à un rhéomètre MCR associé à la cellule à poudre.

La cellule à poudre d'Anton Par fournit des résultats fiables et reproductibles en effaçant la « mémoire poudre » avec la fluidisation. De plus, un programme de mesure automatique garantit des résultats en deux minutes et donc un rendement élevé. La cellule à poudre est facile à utiliser. Elle permet un étalonnage automatique et une visualisation en direct des mesures. Les coûts d'exploitation sont faibles et l'unique capot de protection contre la poussière protège l'opérateur et l'instrument contre les fines particules de poussière, qui peuvent être potentiellement dangereuses. [D'après le Site [www.antonpaarGmbH/mesures - de -l'écoulement- des -poudre MCR.com](http://www.antonpaarGmbH/mesures-de-l'ecoulement-des-poudre-MCR.com)]

I.3.4. La rhéologie des poudres avancée

Plus qu'un simple instrument de contrôle de qualité, la cellule à poudre est également le seul instrument permettant d'étudier les écoulements granulaires secs, spécialement à l'état fluidisé ou quasi fluidisé. Elle fournit l'extraordinaire précision des rhéomètres MCR dans le domaine des milieux granulaires. Elle ne comprend pas uniquement un dispositif à chute de

pression de grande précision, mais permet également la réalisation de tests rotationnels et oscillatoires dans tous les états de consolidation ou de fluidisation, ainsi que dans les états intermédiaires. Un autre avantage réside dans le régulateur de débit massique de précision, qui rassemble de nouvelles données entre la charge zéro et l'état fluidisé. [13]



Fig I.7 : un rhéomètre MCR. [D'après le Site www.antonpaarGmbH/mesures-de-l'écoulement-des-poudre-MCR.com]

Chapitre II

Technologie des poudres

II. Analyse bibliographique : Technologie des poudres

II.1.Principe de la fabrication des comprimés

Le principe de la fabrication des comprimés est partiellement défini dans la monographie de la pharmacopée européenne. Les comprimés sont des préparations de consistance solide. En réalité, il ne suffit pas de placer la dose de poudre destinée à faire un comprimé dans la matrice d'une machine et de la comprimer. En effet, la poudre doit avoir des propriétés physiques et mécaniques particulières. D'une part, elle doit avoir une fluidité assurant un remplissage précis, d'autre part, elle doit être constituée de particules capables de s'agglutiner pour rester liées les unes aux autres pendant et après compression. [13]

Toutefois, cette propriétés d'agglutinations ne doit pas être telle que le grain adhère aux poinçon et à la matrice. En fait, peu de principes actifs peuvent être directement comprimés directement (compression directe). Dans la grande majorité des cas, les principes actifs nécessitent un traitement spécial, tel que la granulation. Le but de cette granulation est surtout de modifier la texture du mélange pour augmenter sa densité (meilleure fluidité). Les granulés utilisés pour la fabrication des comprimés, font aujourd'hui l'objet de recherches très actives, tant théoriques qu'expérimentales (des centaines de publications par an). [13]

Celles-ci s'inscrivent dans le cadre large des matériaux désordonnés. Les grandes gammes de tailles, de forme, l'absence ou la présence de liants organiques et les larges intervalles de contraintes, auxquelles sont habituellement soumis les poudres, rendent difficile une uniformisation des méthodologies d'études [13].

La fabrication du comprimé, consiste à faire subir à un mélange de diverses poudres, de principe actif (PA) et d'autres ingrédients (appelés adjuvants ou excipients) appropriés une certaine pression (voir figure II.1) [14, 15, 16,17]. La phase de compression est d'ailleurs, le dénominateur commun à la conception des médicaments [18,19].

En ce qui concerne la compression, lorsqu'un volume de poudre, soumis à des sollicitations variables, passe d'une géométrie E à une géométrie E', on dit qu'il est déformé. Au premier niveau de l'application de la contrainte, le matériau subit une déformation élastique (réversible, les déformations sont proportionnelles à la contraintes si elle est uniaxiale). Si la contrainte persiste d'augmenter, on aura une déformation plastique (pour une contrainte au-delà d'une limite appelée généralement seuil d'écoulement plastique).

Dans ce cas, il y a eu lieu un changement irréversible et/ou une fragmentation où le solide se rompt, les déformations élastiques atteignent alors des valeurs critiques [20].

Une compression adéquate des poudres pharmaceutiques nécessite donc une bonne compréhension des caractéristiques des poudres pharmaceutiques, des propriétés physicochimiques et des propriétés mécaniques. Ceci permettra de prévoir le comportement de la formulation durant le processus de compression [21]. La complexité du processus de compaction qui est vue comme simple opération mécanique a été reconnue depuis son existence. Des problèmes existent encore, tels que l'usage limité de la compression directe, la faible dureté du comprimé. De plus, l'usage des données de la physique de base dans le travail de formulation pour prévoir le comportement de la compaction des particules telle que la compressibilité « capacité de réduction de volume » et la compactibilité « capacité de développer un compact cohérent » est très limité [22,23]. Ainsi, la formulation des comprimés reste encore basée sur des connaissances empiriques plutôt que sur des résultats théoriques

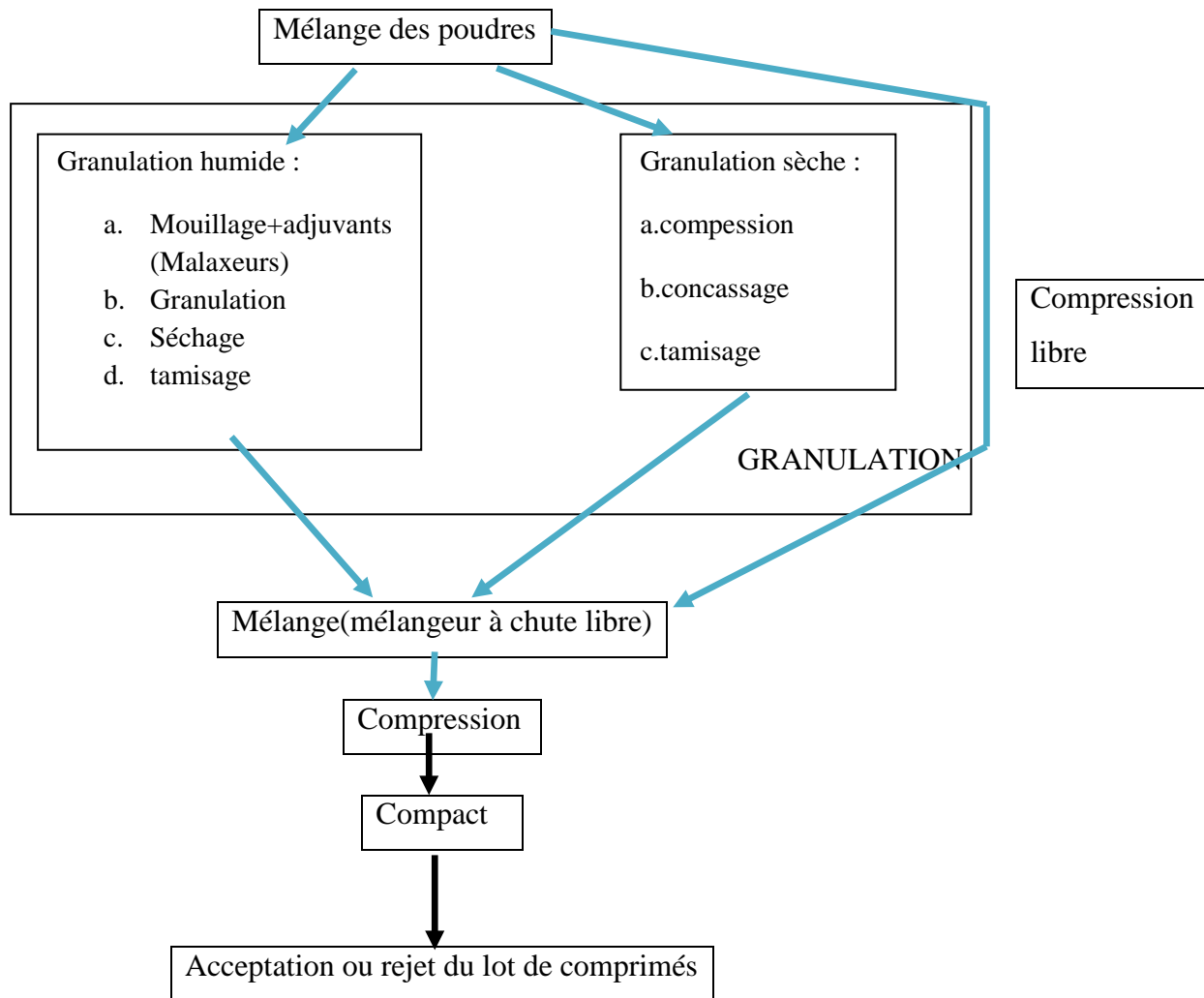


Fig II.1 : les différents modes de compression [23]

Avant toute compression, il est impératif de trouver une formulation adéquate, ceci dit, trouver les excipients adéquats au principe actif, pour assurer une certaine qualité du comprimé, donc ceci, nécessite avant tout la préparation des poudres.

La fabrication des comprimés passe par deux phases :

Une phase de granulation qui sert à améliorer la densité de certaines poudres et leur comprimabilité, en ajoutant d'autres produits (excipients) destinés à cet effet, elle peut être sèche ou humide, selon la nature du principe actif. Ensuite, la phase de compression proprement dite, on distingue deux types également : la compression après granulation et la compression directe. Cette dernière présente un stade de recherche très active [22, 25, 26, 27, 28], vue les grands avantages qu'elle présente, par rapport, au coût et à la simplicité de l'opération. On verra ceci plus loin. Une fois le comprimé fabriqué, il est impératif de le soumettre à une série de tests dis de la pharmacopée afin d'établir sa validité à la consommation ou son rejet. [27, 28,29]

II.2.Préparation avant compression

Les poudres pharmaceutiques doivent être préparées avant la phase de compression, il est nécessaire d'améliorer leur densité, afin d'améliorer leur écoulement et homogénéiser la taille des particules. L'étape qui permet ces préparations est la granulation dont on trouve la granulation sèche, dans le cas où le principe actif n'est pas résistant à l'humidité et la granulation humide. [29]

II.2.1. Préparation du principe actif

La synthèse chimique des principes actifs est définies et parfois fixée par : la structure cristallographique. L'habitus cristallin, soit la forme des particules. La texture des particules, imposée par la procédure de cristallisation [29] Les étapes de finition de la synthèse du principe actif (cristallisation, séchage, broyage...) [23] sont optimisées pour conduire à un matériau dont les propriétés physiques sont satisfaisantes en termes de stabilité, dissolution,...

Généralement, les propriétés technologiques -c'est-à-dire l'aptitude à la comprimabilité incluant l'aptitude à l'écoulement, à la densification et à acquérir de la cohésion – ne sont pas optimisées au stade préliminaire du développement chimique de la molécule, faute de moyens de caractérisation prévisionnels, basés sur quelques grammes de principe actif seulement. La caractérisation de l'aptitude à la comprimabilité des principes actifs, réalisée simultanément au choix du procédé de finition, permettrait d'optimiser globalement les aspects biopharmaceutiques et technologiques des matériaux. Dans ce but,

une méthodologie de caractérisation technologique des principes actifs, utilisant seulement quelques grammes de poudre, est proposée.

La cohésion est identifiée comme étant la propriété limitante à optimiser. Une telle approche peut être utilisée pour rendre compte de l'adéquation d'un matériaux au procédé de mise en forme ou pour orienter la formulation vers des procédés de mise en forme adaptée [25].

II.3. Propriétés des poudres pharmaceutiques fine

L'étude des propriétés des poudres pharmaceutiques présente un aspect très important qui déterminent le comportement de la compression et la qualité du produit, parmi lesquelles on peut citer:

II.3.1. La taille des particules

La taille moyenne et le rang des particules dans la dispersion des systèmes pharmaceutiques peut avoir un impact important sur les propriétés de tels systèmes. La détermination de la taille et la distribution des particules a une grande importance dans l'évaluation des systèmes dispersés d'où l'importance des méthodes de mesure associées à ce paramètre [17,24] . Dans l'industrie pharmaceutique il faut comprendre les caractéristiques des poudres durant leur préparation. Cette compréhension peut être requise par la connaissance des propriétés mécaniques des constituants. Mais malheureusement faire des mesures précises sur de fines particules est pratiquement impossible.

II.3.2. La densité

La densité est le rapport d'une masse M qui occupe un volume V , on l'exprime par g/cm^3 , ce volume V est occupé par les particules solides et le vide. Ainsi, on détermine la densité massique ou la densité apparente qui est légèrement inférieure par rapport à la densité réelle [19]. On utilise ce paramètre pour déterminer la quantité de poudre qu'il faut mettre dans une capsule ou dans la matrice.

II.3.3. La surface spécifique

La surface spécifique peut être définie de plusieurs façons : c'est la surface externe visible, la surface externe qui est la somme des surfaces externes de toutes les particules ou la surface totale incluant les structures fines et les pores à l'intérieure des particules [19]. La surface spécifique est un facteur très important pour le mécanisme de la dissolution, car le temps de dissolution est faible quand la surface spécifique est grande [22].

II.4. La granulation

La granulation a pour but de transformer des particules de poudres cristallisées ou amorphes en agrégats solides plus ou moins résistants et plus ou moins poreux appelés granulés ou grains. Les particules y sont liées par des liaisons intermoléculaires diverses : force de Van Der Waals, liaison hydrogène [23,31].

Le granulé constitue un stade intermédiaire très fréquent dans la fabrication des comprimés, mais il peut aussi être utilisé directement soit sous forme multi-doses, soit réparti en doses unitaires telles que capsules dures, cachets, sachets ou paquets. Par rapport à un simple mélange de poudres, le granulé présente un certain nombre d'avantages dont : meilleure conservation de l'homogénéité [32], plus grande densité [33,34], facilité d'écoulement supérieur [35], plus grande aptitude à la compression [26] et porosité supérieure facilitant la dissolution [36]. Ces propriétés sont fonction des adjuvants (excipients) utilisés et du mode de préparation qui sont donc à choisir en tenant compte de l'utilisation envisagée [35,37].

La granulation peut être basée sur les paramètres suivants : angle de repose [22], dureté [38,39], densité [22,39], forme géométrique [34,39,41,42,43]. Pour évaluer les performances la forme sphérique a été proposée [19] et qui était l'objet des travaux de W.Satoru et N.Tetsuya. Ces derniers ont réalisé la commande de la taille uniforme des particules durant le processus de granulation par commande floue combinée à un procédé de traitement d'image. Ceci a permis l'obtention des granulés de taille homogène [44].

Les principes actifs doivent être préparés pour adapter leurs caractéristiques à la compression. Cependant, certains ne gardent pas leur stabilité dans des conditions humides. Pour cela, on distingue deux types de granulation : humide et sèche.

II.4.1. La granulation humide

La poudre ou mélange pulvérisant est additionnée d'un liquide de mouillage, ceci est réalisé dans un mélangeur-malaxeur [31,23]. Les liquides de mouillage peuvent être ajoutés directement dans le mélangeur, ils peuvent être classés en solvant et en liquides agglutinants. Les solvants On peut citer l'eau, l'alcool plus au moins dilué. On choisit un liquide qui ne dissout que légèrement la poudre. En effet s'il la dissout trop facilement, les granulés après passage ultérieur dans le granulateur, vont s'agglomérer les uns aux autres et donner une masse compacte. En revanche, si c'est un trop mauvais solvant, il n'y aura pas cohésion suffisante après séchage. Avec un solvant convenable, ce qui forme le ciment entre les particules, c'est la petite fraction dissoute qui solidifie ou cristallise en croûte à la surface des particules voisines qui se trouvent ainsi soudées les unes aux autres.

Les liquides agglutinants On utilise des solutions ou pseudo solutions de produits de longues chaînes qui après évaporation vont coller les particules les unes aux autres, comme agglutinant (liants), on peut utiliser la gélatine, l'amidon, les gommés arabiques et adragante, la pectine, la dextrine, la méthyl-cellulose, les alginates,... Ils ont l'avantage d'être utilisables même si la poudre est insoluble, mais reste à savoir à quel dosage il faut les rajouter, car encore aujourd'hui, les quantités sont recherchées par tâtonnement [31,23].

II.4.2. La granulation sèche :

La granulation sèche n'est utilisée, que lorsque le principe actif ne supporte ni l'humidité ni le séchage par la chaleur ou qu'il est trop soluble dans l'eau ou l'alcool [23].

La granulation en voie sèche, dont les étapes sont décrites sur la Figure 2, est généralement appliquée aux matériaux sensibles à la chaleur, ou pouvant réagir avec un liquide. Dans ce cas, la granulation est effectuée sans apport de liant sous forme de liquide de mouillage, ou avec l'aide d'un agent liant sec (amidon, gélatines, sucres, dérivés celluloses...). Ce procédé permet donc d'éviter l'étape de séchage. Il est mis en oeuvre dans des presses à rouleaux. La poudre ou le mélange de poudres est alimenté d'une trémie avec une vis sans fin entre deux rouleaux qui entraînent et compriment la poudre en réduisant le volume disponible et en exerçant une force déterminée sur le matériau. En général, des plaquettes ou des filières sont obtenues, qui sont ensuite concassées et tamisées. Dans certains secteurs industriels, cette dernière étape porte aussi le nom de granulation (Lecompte, 2005).

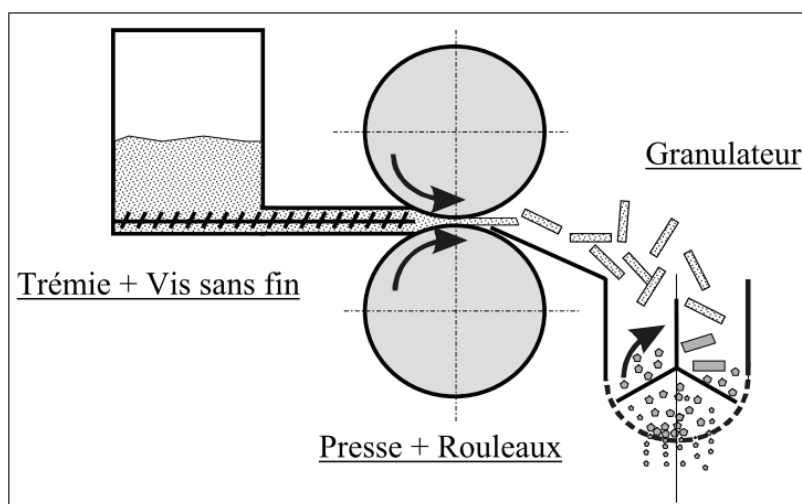


Figure II. 2 Les différentes étapes de la granulation sèche (Lecompte, 2005)

II.5. L'opération de mélange

Après granulation les produits sont mixés de telle sorte à avoir une poudre homogène, présentant des caractéristiques uniformes. Cette opération est très importante car si l'on ne mélange pas bien on aura une distribution non uniforme du principe actif, ainsi, une non uniformité du ce dernier [22], surtout quand il s'agit des comprimés sécables, d'où la non satisfaction des tests de la pharmacopée.

II.6. La compression directe

La compression directe consiste à faire subir une pression directe sans opérations préalables aux particules, elle est utilisée essentiellement pour les matériaux qui ne résistent pas à l'humidité [25]. Elle représente un axe de recherche très important dans le domaine de l'industrie pharmaceutique [35,24], de nombreux chercheurs penchent vers le développement de nouveaux excipients destinés à la compression directe [27,28].

Ce procédé est beaucoup plus facile, plus économique (car il évite les nombreuses phases de granulation qui sont très complexe) [22]. De plus, elle requiert peu d'opérations, plus de stabilité pour le principe actif sensible à l'humidité ou à la chaleur, pour certain produit, on obtient un temps de dissolution plus court, peu d'excipients à utiliser.

Toutefois, la compression directe présente également de nombreux inconvénients : elle nécessite de très hautes pression, ce qui va affecter les caractéristiques du principe actif, le pourcentage du principe actif est limité à 50mg seulement, elle n'est pas applicable pour les produits de faible densité. La compression se fait le comme montre la figure II.2, on énumère quatre opérations réalisées séquentiellement [23]:

- L'alimentation : cela consiste à remplir la matrice avec le mélange de poudre destinée à la compression.
- L'arasage : cette opération élimine le surplus de matière de façon à avoir des comprimés homogène.
- La compression proprement dite: on applique sur le lit de poudre une pression exercée pour le poinçon supérieur de telle sorte à avoir un compact cohérent.
- L'éjection : le poinçon supérieur étant en position haute, le poinçon inférieur pousse le comprimé pour le dégager de la matrice, ainsi le cycle est terminé. Et continue avec une autre matrice.

II.6.1. Excipients pour la compression directe

Les très grandes gammes de tailles, de forme, de déformabilité des particules mises en jeu, l'absence ou la présence d'un liant organique et les très larges intervalles de contraintes

auxquelles ils sont soumis, rendent impossible une uniformisation des méthodologies d'études [16] . Bien que les principes gouvernant la compression directe sont connus depuis des années, mais les techniques sont récemment établies comme conséquence de l'introduction

Catégorie	Exemples	Effets
Diluent (fill)	<ul style="list-style-type: none"> • Lactose • Amidon • Dicalcium • Phosphate • Microcristalline cellulose 	✓ Améliore la densité et améliore l'écoulement et la compression.
Glidant	<ul style="list-style-type: none"> • Silicone ; dioxyde ; Talc 	✓ Améliore l'écoulement de la poudre via la tuyauterie des équipements
Lubrifiant	Stearate de Magnesium acide stearique	Améliore l'écoulement de la poudre via la tuyauterie des équipements et améliore les qualités de l'éjection

Tableau 01: Excipients communément utilisés dans la Formulation solide

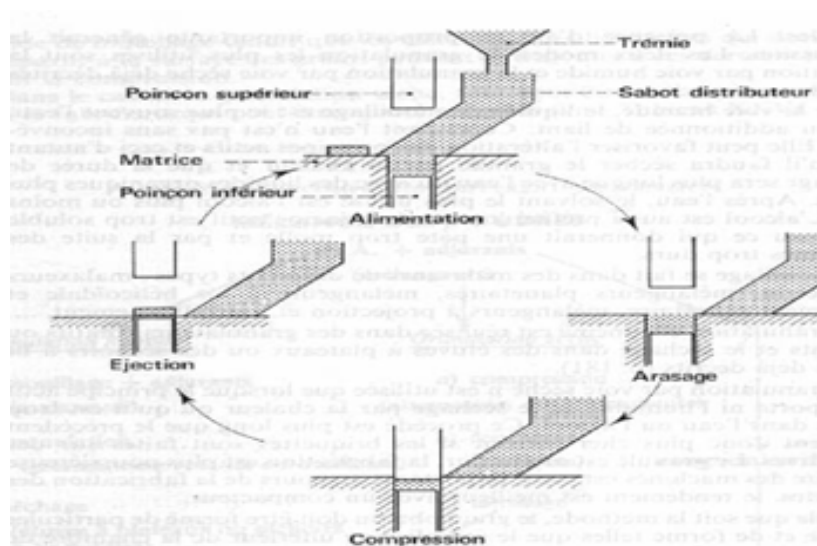


Fig.II.3: les différentes phases de la compression sur une machine alternative [23]

Ces excipients ne sont pas compressible tous seuls mais sont mélangés avec de large proportion du principe actif (PA) sans détérioration de la qualité du comprimé. En plus de la bonne coulabilité que doit avoir les excipients, ils doivent présenter également : Une grande densité. [23]

Il doit être reproductible. Ces attributs sont les plus critiques pour la compression directe, les caractéristiques citées en dessus doivent être requises par tous les excipients, et ils doivent aussi être : Physiquement et chimiquement stables quand ils sont en contact avec l'humidité, l'air et la chaleur. Chimiquement inertes, i.e, ils n'accélèrent pas la dégradation d'autres d'excipients et du principe actif. Compactable avec d'autres constituants du mélange. Répandu, disponible chez plusieurs fournisseurs. [48]

Les matériaux disponibles pour la compression directe peuvent être classés selon leur désintégration et leurs propriétés d'écoulement :

Matériaux agissant comme agent désintégrant à écoulement pauvre (faible) tel que la cellulose microcristalline 'MCC' et l'amidon compressible directement. Matériaux à écoulement libre non désintégrant tel que le calcium dibasique, le phosphate di-hydrate.

Poudres à écoulement libre, désintégrant par dissolution tel que le lactose, le manitol et le maltose. Excipients combinés : excipients combinés d'une manière synergique qui sont plus utiles qu'une simple mixture telle que la cellulose microcristalline simplifiée [48].

III. La Compression

La complexité du processus de compression a suscité de plusieurs recherches, beaucoup de modèles ont été proposés, plus au moins valables. La liaison des paramètres des modèles existants sont peu reliaer aux caractéristiques physiques des poudres, d'où beaucoup de complication. [22,23]

III.1. Les modèles de compression

III.1.1. La compression des poudres

La littérature abondante dans le domaine de la compression des poudres peut être classée en trois grandes catégories : [22]

1. Des articles analysant des formulations de compacts et des solutions pour améliorer le procédé de compression.
2. Des études méthodologiques évaluant les propriétés pendant la compression et les propriétés mécaniques des compacts obtenus.

3. Des essais de modélisation des mécanismes intervenant dans la compression. Dans tous les cas, la compression consiste à appliquer à une quantité de poudre contenue dans une matrice une pression donnée. La force est transmise à travers la masse de poudre par des contacts intermoléculaires dans toutes les directions. Le résultat dépend de plusieurs facteurs parmi, des paramètres liés à la poudre [22,19], de la méthode de remplissage de la matrice [33,22] ainsi que des conditions opératoires [23]. Habituellement, les poudres sont classées en deux groupes (fig II.4):

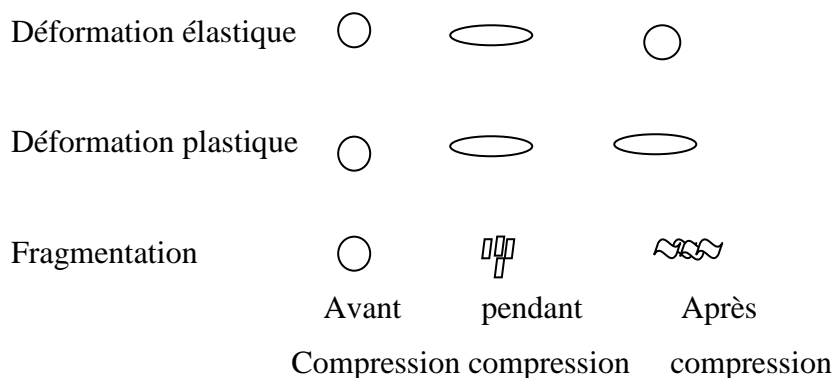


Fig. II.4 : comportement des poudres sous l'effet de la compression [23]

Les poudres ductiles : elles subissent des déformations réversibles du type élastique puis des déformations irréversibles du type plastique. Telles que les poudres métalliques et les composés possédant une structure cristalline régulière [22,19]. Les poudres fragiles : elles subissent une importante fragmentation.

Les particules soumises à une contrainte plus importante se déforment d'une manière plastique irréversible puis pour les très fortes pressions, le phénomène est réversible. Comme poudres fragiles on a un grand nombre de matières organiques. [22, 19]

III.2. Etat des lieux

Modéliser de façon rigoureuse les phénomènes intervenant pendant la compression, pour aboutir à une relation porosité=f (pression). Ceci doit tenir compte de certains paramètres, tels que la taille des particules, leur forme, la cristallinité, ainsi que des facteurs liés aux conditions opératoires [33,22,19], la vitesse de l'application de la pression, l'humidité est un objectif qui n'a pas encore été atteint aujourd'hui. [33, 19]

III.3. Les modèles de compression

Un bon modèle de compression doit répondre à certaines recommandations [29]

Le modèle doit couvrir toute la plage de densification, ou la plus grande possible.

Les paramètres du modèle doivent être reliés aux propriétés des poudres. Les paramètres doivent être sensibles aux changements de formulations et aux conditions opératoires. Le modèle et ses paramètres doivent être faciles à évaluer. Il doit pouvoir distinguer les poudres en terme de comportement à la compression. On trouve dans la littérature traitant de la compression des poudres plusieurs modèles dont le degré de complexité varie de l'un à l'autre, mais quelques équations restent les plus utilisées malgré certaines incohérences. [21] La plupart des modèles peuvent être rejetés car ils ne satisfont pas les conditions aux limites physiquement acceptables (par exemple la porosité doit être égale à la porosité initiale sous pression nulle). [21]

Les modèles de compaction des poudres sont réunis dans le tableau 2. Les modèles les plus utilisés sont le modèle de Heckel [21], le modèle de Kawakita [42,22] et le modèle de Walker [42,22]. Ces derniers sont les plus proches vis-à-vis des résultats obtenus expérimentalement et qui tiennent compte des conditions initiales. Dans ces modèles, on a introduit la densité relative de la poudre p_r comme paramètre pour pouvoir caractériser toutes les substances pouvant être soumises à la compression

Nom	Equation
Walker	$\frac{1}{p_r} = A' - K' \log p_c$
Heckel	$\ln \frac{1}{1-p_r} = K \sigma_c + A$
Cooper-Eaton	$\frac{p_r - p_i}{p_r(1 - p_i)} = a_1 e - \frac{k_1}{p_c} + \frac{k_2}{p_c}$
Kawakita	$\frac{p_r - p_i}{p_r} = \frac{a d p_c}{1 + b p_c}$
Gonthier	$1 - p_r = K^n e^{-B p} + \alpha e^{-B p_c}$
Ramakrishnan	$\ln = \frac{1}{1 - \frac{p_r - p_{rt}}{1 - p_{rt}}} = m p_c^n$
Mastou	$(1 - p_r)^{(1-a)} - (1 - p_i)^{(1-a)} = (a - 1) K$ r
Katharina	$\ln \frac{1}{1 - p_{rel}} = d t + e p + f$

Tableau N° 02: Modèles de compression des poudres [21,22,42]

Où :

ρ_r : densité relative sous la contrainte ρ_i : densité relative initiale

ρ_{rt} : densité relative de la poudre tassée ρ_∞ : Densité maximale théorique à P_∞ ρ_a : seuil de pression.

Les autres symboles sont des constantes liées aux caractéristiques physiques de la poudre.

III.3.1. L'équation de Walker : [34,22]

Il décrit l'évolution du volume relatif V , sous une certaine contrainte P

Le modèle est donné par l'équation suivante :

$$100.V = -W.\log(P) + C \quad 01$$

V : volume relatif.

P : pression.

W, C : constantes.

Le paramètre W exprime le coefficient de compressibilité, il décrit le taux de changement du volume quand la pression est augmentée d'un facteur de 10. La compressibilité est affectée par les erreurs ou le changement de la densité des particules tant que le volume relatif est basé sur la cette grandeur (compressibilité).

La normalisation avec la densité est une relation linéaire, tout changement de densité est directement proportionnel avec W .

On remarque que ce modèle ne satisfait pas la condition initiale, cependant, si l'on a une pression nulle, on aura une forme indéterminée. Bien que W soit lié à la compressibilité, C est à déterminer mais aucune méthode n'est là encore mentionnée.

Chapitre III

Technique de mesure des propriétés physiques des poudres

IV. Milieu granulaire

IV.1. Définition du milieu granulaire

Un milieu granulaire, ou poudre, est un terme qui désigne une collection de particules solides hétérogènes, de dimensions généralement inférieures au millimètre, dispersées dans une phase continue gazeuse. Les milieux granulaires présentent un comportement particulier, intermédiaire entre celui des solides et celui des liquides. [46]

En effet, si on verse une poudre dans un récipient, celle-ci prend la forme du récipient, comme les liquides. Cependant, si on incline ce récipient de quelques degrés, la poudre ne bouge pas, comme si elle était un bloc solide. Et si on incline encore plus le récipient, la surface libre de la poudre va commencer à s'écouler, tel un liquide.

Néanmoins, même si le comportement des liquides et des solides sont bien connus et peuvent être décrits par des expressions mathématiques, la description du comportement des poudres, dont sa coulabilité, est largement empirique. A ce jour, il n'existe pas de modèles mathématiques permettant de décrire le comportement d'une poudre, dont sa coulabilité.

Pour pouvoir bien étudier le milieu granulaire, il faut avant tout connaître les caractéristiques des particules, ainsi que de la poudre dans son ensemble. Brown et Richards (1970) ont proposé une terminologie et des définitions propres aux matériaux granulaires qui sont encore utilisées aujourd'hui (figure I-2). Ainsi, les matériaux granulaires sont classés en différentes catégories pouvant elles-mêmes être subdivisées le cas échéant.

- Poudre : matériau granulaire composé de particules de tailles inférieures à 100 μm . On distingue d'ailleurs les poudres granulaires (10 à 100 μm), superfines (1 à 10 μm) et ultrafines (0,1 à 1 μm).
- Solide granulaire : matériau composé de granulés dont la taille se situe entre 100 et 3 000 μm .
- Solide brisé : matériau granulaire dont la plupart des particules ont des tailles supérieures à 3 mm. C'est le cas des éboulements rocheux, ou des graviers qui servent à l'élaboration des bétons grossiers.

Un matériau granulaire est donc un ensemble de solides discrets qui restent en contact. Cette définition exclut tout ce qui concerne les lits fluidisés, les suspensions et autres milieux peu concentrés.

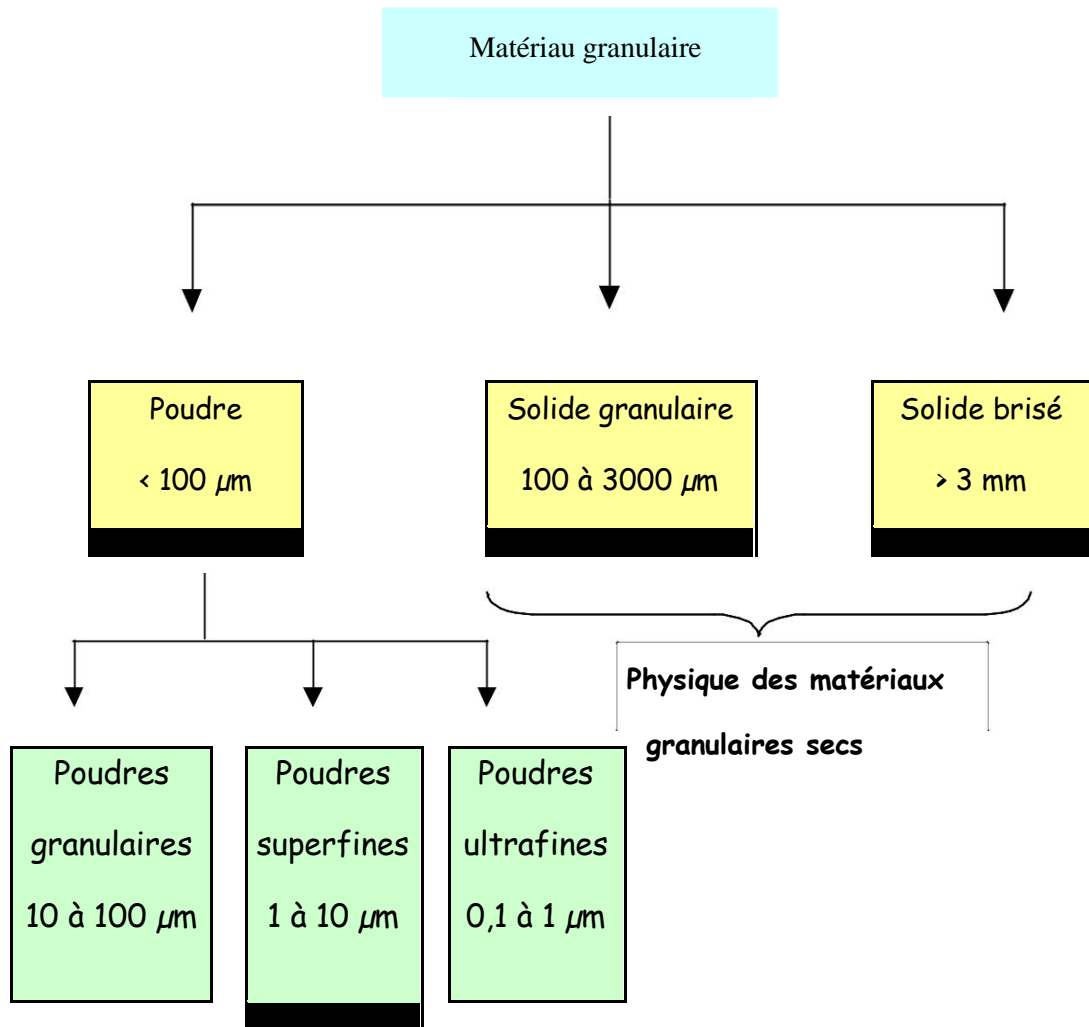


Figure III.1. Classification des matériaux granulaires. [46]

Les milieux granulaires présentent un comportement original, intermédiaire entre celui des trois états de la matière. En effet, une poudre résiste, dans une certaine mesure, à l'écrasement et au mouvement comme les solides, elle peut s'écouler comme les liquides et elle peut être compressée comme les gaz [46,47]. Par exemple, lorsqu'une poudre est contenue dans un réservoir elle va se comporter comme un liquide ou comme un solide selon

l'inclinaison donnée au réservoir. Cette transition entre le comportement liquide et solide est la propriété la plus remarquable des milieux granulaires. Néanmoins, contrairement aux liquides et aux solides dont les propriétés et le comportement sont bien connus, les milieux granulaires sont un état hybride de la matière dont la description est encore largement phénoménologique. [47]

Après cette brève description de la classification, nous allons voir maintenant plus particulièrement les différentes propriétés physiques permettant de caractériser les matériaux granulaires.

IV .2. Caractéristiques physique du milieu granulaire

Pour caractériser un milieu granulaire, on peut définir différents paramètres.

IV.2.1. Taille et morphologie de la particule

Les particules ne sont en général pas sphériques, et peuvent se présenter sous diverses formes (figure I.1) :




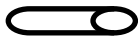

Symbole	Désignation	Croquis
I	Arêtes vives de dimensions à peu près égales dans les trois sens géométriques. Exemple : CUBE	
II	Arêtes vives dont l'une est nettement plus longue que celles dans les deux autres sens. Exemple : PRISME OBLONG	
III	Arêtes arrondies de dimensions à peu près égales dans les trois sens géométriques. Exemple : SPHERE	
IV	arêtes arrondies dont l'une est nettement plus longue que celles dans les deux autres sens. Exemple : CYLINDRE, BATONNET	
V	Arêtes arrondies dont l'une est nettement plus petite que celles dans les deux autres sens. Exemple : RONDELLE, LENTILLE, DISQUE	

Figure III.2 : Différentes formes de particules (selon USP29 <776>) [48]

Pour caractériser la taille et la forme des particules non sphériques, on utilise deux notions :

- Le diamètre équivalent qui correspond au diamètre d'une sphère qui possède une même caractéristique que la particule. Plusieurs diamètres équivalents peuvent être définis en fonction de la caractéristique conservée choisie : diamètre équivalent en volume, en surface, en surface spécifique, en surface projetée, en périmètre. Cette notion permet de définir une dimension caractéristique de la particule, et donc sa taille.
- Le facteur de sphéricité (Ψ_v) qui est le rapport entre la surface de la sphère ayant le même volume que la particule, par rapport à la surface de la particule. Cette notion permet de quantifier l'écart de la forme de la particule à la sphère. D'autres facteurs de sphéricité peuvent être également définis.

IV.3. Techniques de mesure des propriétés physiques des poudres

La méthode d'analyse granulométrique utilisée diffère selon la taille des particules à étudier. trois méthodes sont proposées: a) la diffraction de lumière pour les poudres de taille comprise entre 100nm et 1mm, b) la sédimentation pour les poudres de taille comprise entre 10nm et 300 μm , c) l'analyse d'images – pour toutes tailles mais présentant un intérêt particulier pour les poudres ou particules non-sphériques.

Une représentation schématique des différentes méthodes est présentée en Figure III. 3

IV.3.1. Diffraction de lumière

La diffraction par laser permet de mesurer des poudres allant de 3000 μm à environ 0.1 μm . Les limitations principales apparaissent lorsqu'il est nécessaire d'analyser des particules non-sphériques, et lorsque les propriétés optiques des matériaux ne sont pas disponibles. [49]

Les analyseurs à diffraction laser peuvent être utilisés avec des suspensions et des poudres sèches, là où, plus récemment, de meilleurs systèmes d'échantillonnage ont aidé à améliorer les mesures de poudres sèches. Le diffractogramme consiste en une superposition des images de diffraction de chaque taille de particules représentée dans la poudre analysée. Dans l'analyse des données, une distribution de taille initiale est "estimée" et un diffractogramme théorique est calculé, puis comparé avec les données réelles. Les différences entre les données "estimées" et "réelles" sont ensuite minimisées en utilisant la méthode des moindres aux carrés ; le résidu résultant de la différence

donnant un guide indiquant la validité du modèle utilisé afin de représenter les données. Le logiciel calcule ensuite la distribution en volume en tant que résultat fondamental et toute autre information est déduite de ce résultat en supposant que les particules ont une forme sphérique. Plusieurs études utilisant ce type d'instrument avec diverses particules montrent de très bons résultats pour des tailles de particules $> 10\mu\text{m}$. Pour des particules sphériques, les résultats sont précis et reproductibles, faisant de cet instrument un bon outil pour les poudres granulées. Les résultats avec une poudre de quartz standard, à une géométrie irrégulière, dans le domaine de $0.3 - 200\mu\text{m}$, sont moins précis mais toujours très reproductibles. La méthode est très populaire à cause de sa grande rapidité, l'analyse ne prend que quelques minutes. Une fois encore, les limitations principales de ce type d'instrument apparaissent lorsque les particules analysées sont plus fines que $1\mu\text{m}$ (la théorie de Mie doit alors être employée) ainsi que lorsqu'on est en présence de particules non-sphériques ou encore lorsque la différence entre l'indice de réfraction du solvant et de la poudre est faible. [49]

IV.3.2. Sédimentation/centrifugation

La sédimentation, qu'elle provienne de la gravité naturelle ou d'une force centrifuge, constitue une méthode populaire et très répandue. Dans le cas de la centrifugation, la limite inférieure peut atteindre $10\text{-}20\text{nm}$. L'hypothèse principale faite ici concerne la forme sphérique des particules suivant la loi de Stokes (Eq. 2 pour gravité et 3 pour centrifugation).

$$d = \sqrt{\frac{18n_0H}{(p-p_0)g}} \quad \text{Eq.2}$$

$$d = \sqrt{\frac{18n_0I n \frac{x_1}{x_2}}{(p-p_0)\omega^2 t}} \quad \text{Eq.3}$$

Où d est le diamètre d'une particule, η_0 la viscosité du liquide, H la distance de sédimentation, ρ la masse volumique des particules, ρ_0 la masse volumique du liquide, t le temps de sédimentation, x_1 la distance entre le centre de rotation et le plan de

sédimentation, x_2 la distance entre le centre de rotation et le plan de mesure, g l'accélération gravitationnelle et ω la vitesse de rotation.

La méthode de détection peut également conduire à des limitations. En effet, pour certains instruments qui utilisent l'absorbance de lumière, (pour déceler la sédimentation des particules), les phénomènes de diffraction deviennent importants lorsque la taille analysée est du même ordre de grandeur que la longueur d'onde de la lumière utilisée. Une correction mathématique des effets de la diffraction est alors nécessaire, correction qui requiert une connaissance précise des propriétés optiques des particules. Dans beaucoup de cas, le matériau composant celles-ci est bien connu et ses propriétés sont disponibles dans la littérature, mais cette limitation peut poser problème pour des matériaux mal caractérisés optiquement. [49]

L'utilisation de rayons X simplifie le problème, mais il devient alors nécessaire que le matériau analysé absorbe les rayons X pour une dilution adéquate qui évite des problèmes d'interactions entre les particules pendant la sédimentation (< 2% volume). Pour la plupart des poudres céramiques, malgré les relativement hautes concentrations requises, l'utilisation des rayons X est une très bonne méthode de détection et la centrifugeuse à disque avec détection à rayons X est probablement la plus adaptée pour obtenir précision et vitesse d'analyse des matières premières inorganiques.

IV.3.3. Corrélation des photons (pour information)

La diffusion dynamique de la lumière (en anglais, "dynamic light scattering (DLS)"), permet la mesure de particules de taille variant de 500 nm à 2 nm environ. La méthode de diffusion dynamique de la lumière (DLS) est basée sur le principe de diffusion de la lumière par des particules (colloïdales) soumises à des mouvements thermiques aléatoires. La diffusion de lumière varie avec le temps, et peut être reliée au coefficient de diffusion des particules dans un milieu donné et donc, par la suite, à un diamètre de particule. Pour une distribution étroite de particules au-dessous de 200nm, le DLS est une technique très efficace, rapide et précise. Les principaux problèmes interviennent lorsque la poudre à analyser n'a pas une distribution étroite ou possède plusieurs maximums (ou modes). L'interprétation des données brutes est délicate et une analyse par une autre méthode est préférable. [49]

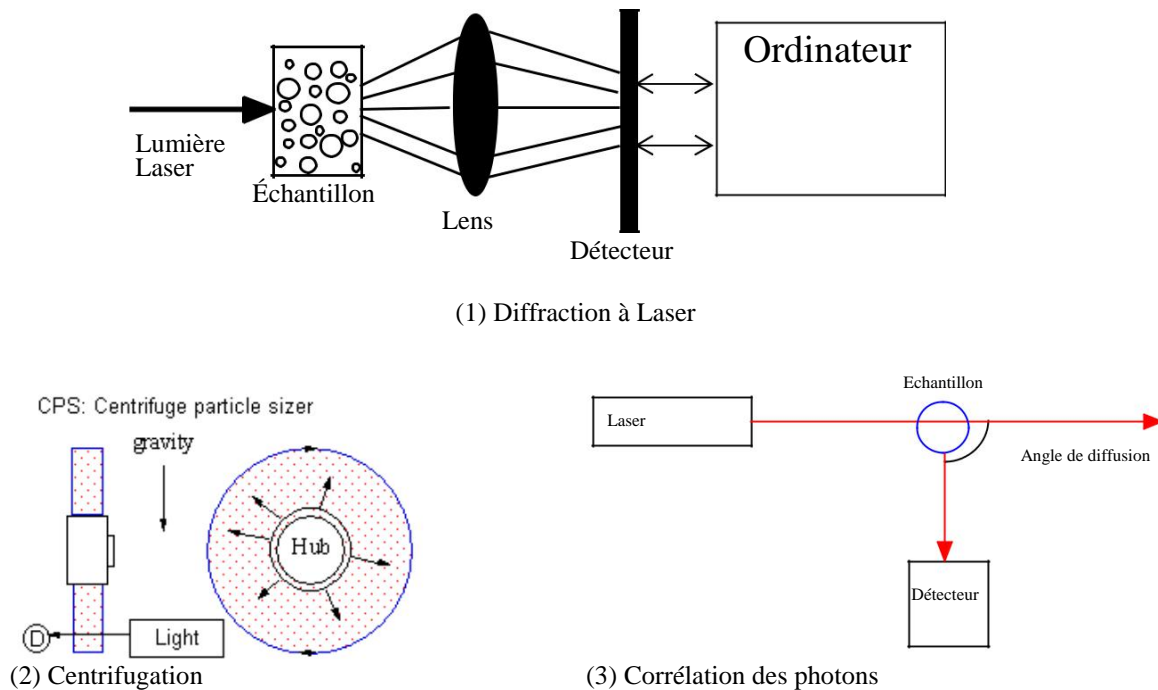


Figure III.3. Représentation schématique des différents méthodes : (a) diffraction à Laser, (b) sédimentation par centrifugation et analyse par absorption de lumière (c) corrélation des photons [49]

IV.4. Distribution granulométrique

En général, la taille des particules présentes dans une poudre est très dispersée. L'analyse granulométrique de la poudre permet de définir des paramètres moyennés représentatifs de l'ensemble de la distribution des tailles de particules, en particulier :

- Un diamètre moyen : les diamètres moyens les plus utilisés sont le diamètre de Sauter ou diamètre moyen en volume-surface noté $D[3,2]$, ainsi que le diamètre moyen en poids-volume noté $D[4,3]$. Ces diamètres sont calculés comme suit :

$$D[i, j] = \frac{\sum_K F_K D_K^i}{\sum_K F_K D_K^j} \quad 1.1$$

Avec F_k le nombre de particules de diamètre D_k .

- Des diamètres de distribution : en pratique, on définit les diamètres Dv_{10} , Dv_{50} et Dv_{90} , diamètres pour lesquels respectivement 10%, 50% et 90% du volume de la population se situe en dessous de ces diamètres.
- La largeur de distribution ou « span » : calculée à partir des diamètres Dv_{10} , Dv_{50} et Dv_{90} , elle permet de définir la dispersion en termes de taille de particules. La largeur

de distribution se calcule comme suit : en termes de taille de particules. La largeur de distribution se calcule comme suit :

$$\text{Span} = D_{v90} - D_{v10} / D_{v50} \quad (\text{I.2})$$

IV.4.1. Densité

Contrairement aux liquides, solides et gaz pour lesquels leur densité ne dépend que de la température et de la pression, les poudres voient leur densité varier en fonction de l'organisation dans laquelle elles se trouvent. Ainsi, on peut définir plusieurs types de densité:

- La densité aérée : il s'agit de la masse de poudre rapportée au volume occupé, une fois les particules bien individualisées. Cette densité peut être obtenue en faisant passer la poudre à travers un tamis, avant de la verser dans un récipient de volume connu et de peser la masse de poudre introduite.
- La densité vrac : il s'agit de la masse de poudre rapportée au volume occupé, la poudre étant simplement versée dans un récipient de volume connu.
- La densité tassée : il s'agit de la masse de poudre rapportée au volume occupé, après que la poudre ait subi une série de tassements normés ou de vibrations, jusqu'à atteindre son organisation la plus compacte.

Il est possible de déterminer une densité intrinsèque à la poudre, appelée densité vraie : il s'agit de la masse de poudre rapporté au volume de poudre, excluant les porosités interparticulaires et intraparticulaires. Cette densité est accessible via un pycnomètre à hélium ou pycnomètre à eau pour les poudres non solubles et ne présentant pas de problème de mouillabilité.

IV.4.2. Porosité

Une particule n'occupe pas forcément tout le volume délimité par son contour. Elle peut présenter des cavités ou pores, ouvertes ou non sur l'extérieur (figure III.2). On définit une porosité interne comme le rapport entre le volume des pores et le volume délimité par le contour de la particule.

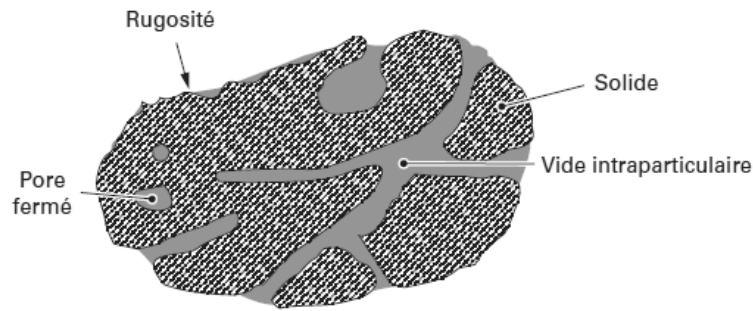


Figure III.2 : Porosité intraparticulaire [51]

De même que pour une particule, un empilement de particules présente aussi des vides laissés entre les particules. On définit une porosité interstitielle, comme le rapport entre le volume des pores interstitiels et le volume occupé par le lit de poudre. Selon l'organisation de ce lit de poudre, la porosité interstitielle sera plus ou moins grande (figure I.3).

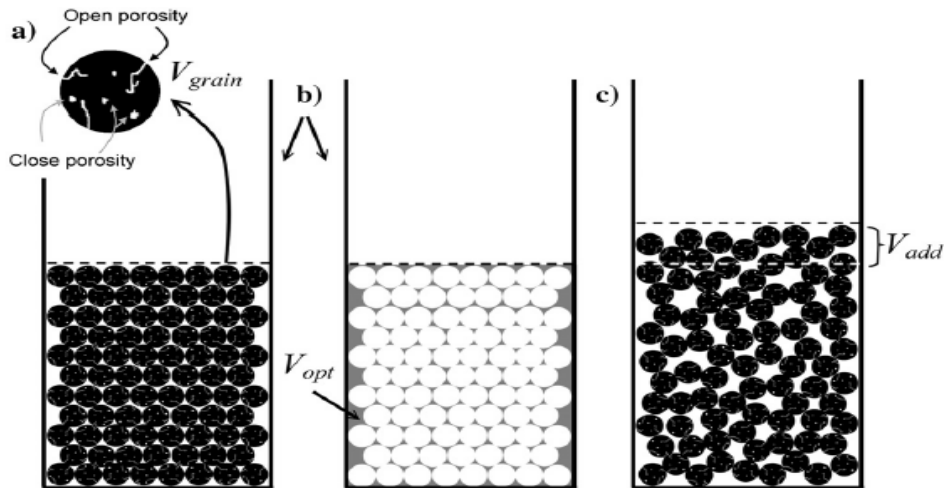


Figure III.3 : Représentation de différentes organisations d'un lit de poudre [52] a) Pores intragranulaires et intergranulaires. b) Organisation optimale d'un lit de poudre. c) Organisation aléatoire d'un lit de poudre

Malgré la possibilité de déterminer certaines caractéristiques d'un milieu granulaire, correspondant en général à son état statique, la description de son comportement global, notamment son comportement dynamique, reste complexe. En effet, le comportement d'une poudre est le résultat des interactions interparticulaires, interactions qui dépendent notamment des caractéristiques citées ci-dessus, mais aussi des interactions de la poudre avec son environnement et des sollicitations auxquelles elle est soumise

La porosité est la grandeur complémentaire de la compacité, elle traduit le volume relatif des vides dans un matériau. Elle est définie par la relation I-4 suivante :

$$\varepsilon = 1 - C \quad (\text{I-4})$$

De la même manière que la compacité, la porosité est fonction du tassement de la poudre et elle est également fonction du nombre de points de contact entre les particules.

IV.4.3. Fluidisation des poudres

Une autre propriété remarquable d'une poudre est son aptitude à être fluidisée. La fluidisation est le phénomène qui consiste à donner à des solides, plus ou moins finement divisés, les propriétés d'un fluide grâce à leur mise en suspension dans un gaz ou un liquide.

Cette propriété, qui trouve des applications industrielles variées dans de nombreux domaines comme par exemple le traitement des effluents gazeux ou liquide, la chimie, le transport pneumatique, fait l'objet de nombreux ouvrages et travaux tant expérimentaux que théoriques [53, 54, 55, 56, 57, 58, 59, 60, 61,62]

Au cours de l'opération de fluidisation, l'état de la suspension va changer en fonction de la vitesse du courant gazeux. En effet, si les particules sont placées sur une plaque du type tôle perforée ou plaque poreuse, en formant ainsi une couche régulière, et si un courant gazeux ascendant passe au travers de la plaque, on peut observer toute une série de phénomènes, allant de la non fluidisation à l'entraînement des particules, suivant la vitesse du courant gazeux.

Compte tenu des caractéristiques physiques des particules, l'opération de fluidisation n'est pas réalisable avec toutes les poudres. Pour des particules de très petite taille, pour lesquelles les forces de contact entre grains sont très importantes par rapport aux forces extérieures, il peut y avoir apparition d'un phénomène de « renardage » (circulation du gaz par de petits geysers) et il sera pratiquement impossible d'atteindre l'état fluidisé. Il en est de même pour les très grosses particules qui offrent, du fait des espaces interstitiels importants, des chemins préférentiels au courant gazeux.

Ainsi, un classement des poudres en 4 catégories, figure I-3 et tableau I-5, par rapport à leur comportement vis-à-vis de la fluidisation a été proposé par Geldart (1973).

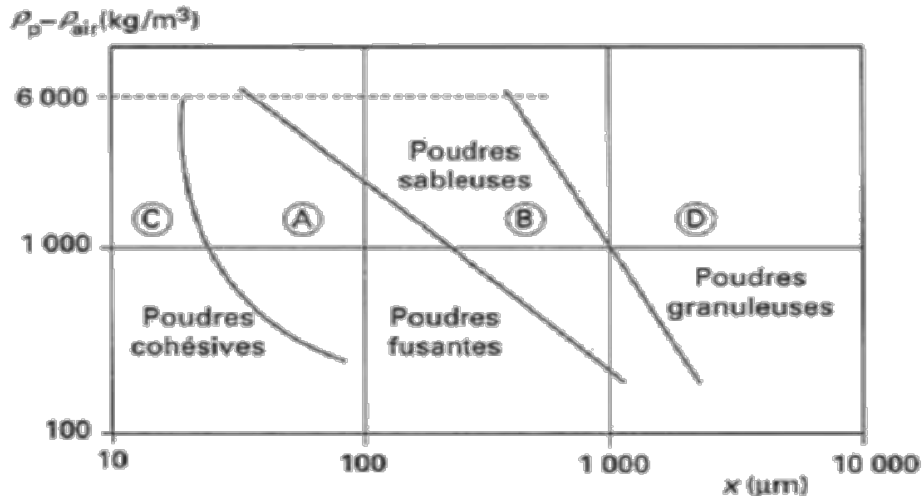


Figure III-4. Classification des poudres suivant leur aptitude à la fluidisation (Castel, 1995)

Catégorie	Type de poudres	Fluidisation	Caractéristiques
A	Fusantes	Aisée	Fluidisation particulière, forte expansion du lit, bullage (vitesse du fluide > vitesse minimale de fluidisation)
B	Sableuses	Aisée	Fluidisation agrégative, faible expansion du lit (vitesse du fluide < vitesse minimale de fluidisation)
C	Cohésives	Difficile	Difficiles à fluidiser, besoin d'agitation ou de vibration, Renardage
D	Granuleuses	Instable	Vitesse de fluidisation élevée, fluidisation turbulente, explosion de bulles en surface

Tableau III-1. Caractéristiques de la fluidisation des différentes catégories de poudres de la classification de Geldart.

Les caractéristiques physiques d'une poudre dépendent de paramètres tels que la taille, la forme et la masse volumique des particules [63, 64, 65,66] mais également de l'arrangement de celles-ci les unes par rapport aux autres.

IV.4. Difficultés de la description du comportement du milieu granulaire

D'un point de vue état de la matière, un milieu granulaire ne peut être décrit comme [52] :

- Un solide, même s'il peut être déformé
- Un liquide, même s'il peut s'écouler
- Un gaz, même s'il peut être comprimé

Cette nature complexe du milieu granulaire rend son étude complexe, car les différents modèles établis pour décrire les solides, les liquides ou les gaz ne peuvent s'appliquer simplement.

En plus de posséder une nature complexe, de nombreux éléments rendent difficile l'établissement de théories et d'équations permettant de décrire avec précision le comportement d'une poudre [67] :

- La présence d'un grand nombre de particules hétérogènes dans un petit volume : par exemple, une cuillère de sucre contient environ 10^5 particules pouvant avoir des caractéristiques différentes. Une des difficultés dans la description du comportement global de la poudre va être de tenir compte de cette hétérogénéité.
- Les fluctuations thermiques sont négligeables : dans le cas des gaz et des liquides, les fluctuations thermiques induisent un mouvement brownien des molécules, permettant ainsi de faire des mesures sur des configurations différentes du système, et donc de déterminer ses caractéristiques macroscopiques en moyennant les mesures sur ces différentes configurations. Dans le cas des poudres, étant donnée la taille des particules, les fluctuations thermiques sont insuffisantes pour induire un mouvement brownien des particules, ce qui empêche donc de faire des mesures moyennes sur différentes configurations.
- La granularité est observable : dans le cas des poudres, la séparation entre l'échelle microscopique et macroscopique reste floue. Par exemple, sur un tas de sable, on observe des écoulements sur des épaisseurs d'une dizaine de grains voire sur plusieurs dizaines en fonction des caractéristiques des grains et du système de mesure [68]. Ceci rend difficile la définition d'un milieu continu, ainsi que d'un volume élémentaire représentatif du milieu granulaire.

- Les interactions de contact sont complexes : les contacts entre particules mettent en jeu plusieurs phénomènes de natures différentes, tels que les chocs inélastiques et les frictions. Ces différents phénomènes dissipent l'énergie cinétique, rendant délicate la description du comportement global des poudres.

Le milieu granulaire se présente sous plusieurs états (figure III.5) : selon les types de sollicitations que subit la poudre, celle-ci peut se comporter de diverses manières. Un tas de grains posés sur une surface reste immobile, malgré les contraintes existantes au sein du tas, et dans ce cas, la poudre se comporte comme un solide. Dans un sablier la poudre s'écoule, tel un liquide. En milieu fortement agité, les particules bougent dans tous les sens et interagissent entre elles par collision, tel un gaz.

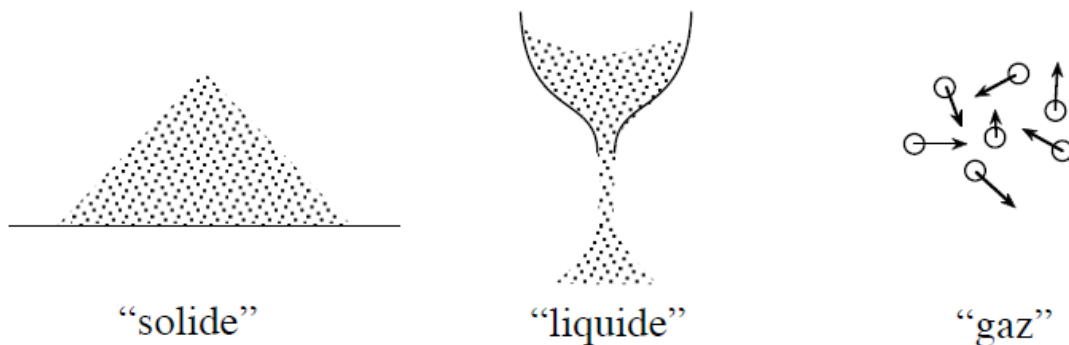


Figure III.5: Différents comportements du milieu granulaire [67]

Parmi les comportements que peuvent présenter une poudre, la coulabilité est une de celle qui intéressent le plus les industriels : son aptitude à s'écouler librement et de manière régulière, sous forme de particules individualisées, sous l'action de la force de gravité représente le comportement idéal recherché. En effet, la coulabilité des poudres conditionne le bon fonctionnement des procédés, et donc impacte la qualité finale du produit.

IV.5. Influence des paramètres sur la coulabilité

La coulabilité des poudres est la résultante des interactions interparticulaires, ainsi que des interactions de la poudre avec l'environnement. Une poudre peut s'écouler librement si la force de gravité l'emporte sur les forces responsables de la cohésion de la poudre, c'est-à-dire les forces dues aux différentes interactions. Ces interactions dépendent des caractéristiques de la poudre, mais aussi de l'environnement dans lequel elle se trouve, ainsi que des procédés

intervenant dans la manipulation de la poudre. Les différents paramètres ayant une influence sur la coulabilité peuvent être classés de la façon suivante (tableau I.1) :

Paramètres intrinsèques	Paramètres extrinsèques
Caractéristiques de la particule : <ul style="list-style-type: none"> • Morphologie • Taille • Porosité • Teneur en eau • Composition chimique Caractéristiques de la poudre : <ul style="list-style-type: none"> • Distribution granulométrique 	Paramètres process : <ul style="list-style-type: none"> • Historique de la poudre • Surface des parois • Vibrations ou autres sollicitations • mécaniques Paramètres environnementaux : <ul style="list-style-type: none"> • Humidité • Température

Tableau III.2 : Paramètres influençant la coulabilité des poudres [68]

IV.5.1. La cohésion et les forces d'interaction

Une poudre qui ne s'écoule pas librement est dite cohésive. Ce comportement cohésif est dû à la présence des forces d'interaction qui dominent la force de gravité, empêchant ainsi son écoulement libre. L'importance de ces forces d'interaction est fonction de la distance séparant les particules :

Plus les particules sont proches, plus ces forces sont importantes. Ces interactions peuvent être de nature différente. Les interactions fréquemment rencontrées dans un milieu granulaire sont décrites ci-dessous [51,69].

IV.5.1.1. Forces de Van der Waals

Les forces de Van der Waals sont des forces attractives de nature électromagnétiques. Ces forces sont faibles, mais peuvent devenir non négligeables devant la force de gravité, pour des particules très fines.

IV.5.1.2. Forces électrostatiques

Les forces électrostatiques sont des forces attractives ou répulsives qui interviennent dans le cas où les particules sont chargées. Les particules peuvent accumuler des charges lors de collision particule-particule ou particule-paroi, mais aussi si l'air est trop sec.

IV.5.2. Influence des paramètres intrinsèques

IV.5.2.1. Morphologie des particules

Selon la forme des particules, celles-ci vont s'écouler plus ou moins facilement [70–71]. Pour des particules présentant une forme qui s'éloigne de la sphère, c'est-à-dire pour des formes allongées telle que les bâtonnets ou encore les aiguilles, l'écoulement sera difficile. En effet, pour ce type de morphologie, les particules offrent une surface de contact importante, engendrant des frottements importants lors de la mise en écoulement de la poudre.

L'état de surface des particules a aussi un impact sur l'écoulement des poudres [71]. Les particules peuvent présenter une surface plus ou moins lisse. Ainsi il sera plus difficile de mettre en écoulement des particules présentant une surface rugueuse, du fait de frictions plus importantes pour celles-ci.

IV.5.2.2. Taille de la particule

L'influence de la taille des particules sur la coulabilité est décrite dans de nombreuses publications [72–73]. Celles-ci rapportent que pour une poudre de même nature, l'augmentation de la taille des particules s'accompagnent d'une diminution de la cohésion, et donc une meilleure coulabilité. En effet, les particules de taille importante auront une masse élevée ainsi qu'une surface de contact réduite, d'où une balance force de gravité / forces de cohésion en faveur de la force de gravité.

Ainsi, avec la mesure de la taille des particules, on peut classer les poudres en deux catégories [67] :

- Les poudres de taille importante (supérieure à 100 μm), pour lesquelles la force de gravité l'emporte sur les forces de cohésion, et qui donc s'écoulent facilement.
- Et inversement pour les poudres de petite taille (inférieure à 100 μm), pour lesquelles l'écoulement est difficile.

IV.5.2.3. Distribution granulométrique

La distribution granulométrique, et plus particulièrement la proportion de fines au sein d'une poudre influence aussi sa coulabilité.

Des publications [72,73,75] rapportent qu'une proportion importante de fines au sein de la poudre est en défaveur de l'écoulement. En effet, les fines peuvent s'adsorber à la surface des particules plus grosses, créant ainsi des aspérités à la surface de ces dernières [74,75]. Cette rugosité va engendrer des forces de friction supplémentaires lors de la mise en écoulement de la poudre, rendant donc l'écoulement difficile.

Cependant, la présence de fines peut aussi avoir un effet favorable sur la coulabilité, en particulier si les grosses particules présentes des surfaces rugueuses [75]. En effet, en recouvrant les grosses, les fines vont lisser la surface des grosses, diminuant ainsi les forces de friction.

IV.5.2.4. Porosité

Lorsqu'on verse une poudre dans un récipient, les particules s'empilent en laissant des vides entre elles. Il a été rapporté que cette porosité interstitielle est la conséquence de la capacité de la poudre à piéger l'air au moment où l'on verse celle-ci dans un récipient [51]. Cette porosité interstitielle, ou plus précisément cette capacité à piéger l'air, puis par la suite à le restituer, impacte la coulabilité d'une poudre.

Une poudre présentant une forte porosité, donc ayant une grande capacité à piéger l'air, aura tendance à moins s'écouler, et ceci est d'autant plus vrai que sa capacité à restituer l'air est faible.

IV.5.2.5. Teneur en eau

En général, les particules ne sont pas totalement sèches et contiennent de l'eau. Trois types d'eau peuvent être différenciés [67,76]

- L'eau de constitution : il s'agit de l'eau chimiquement liée à la particule
- L'eau d'adsorption : il s'agit de l'eau présente à la surface des particules et physiquement liée à celle-ci. La quantité de cette eau présente à la surface dépend des conditions de température et de pression de l'air ambiant.
- L'eau libre : il s'agit de l'eau en excès, présente également à la surface.
- Parmi ces types d'eau, l'eau présente à la surface des particules influence la coulabilité d'une poudre. La présence d'eau à la surface des particules peut avoir des effets différents sur l'écoulement de la poudre :

- En « faible » quantité, cette eau pourrait avoir un effet lubrifiant. Cet effet lubrifiant se traduit par diminution des forces électrostatiques entre particules, mais aussi une diminution des frictions, rendant ainsi l'écoulement plus facile.
- En « forte » quantité, cette eau va diminuer les distances interparticulaires, via les forces capillaires et la création de ponts liquides, rendant ainsi la poudre plus cohésive, et rendant donc son écoulement plus difficile.

IV.5.2.6. Composition chimique

La composition chimique des particules et plus précisément, la composition chimique de leur surface impacte aussi la coulabilité d'une poudre.

Des particules présentant à leur surface des corps gras permettent de limiter les frictions entre particules, conduisant ainsi à un meilleur écoulement de la poudre [76].

La composition chimique impacte aussi certaines propriétés des particules, et en particulier, son hygroscopicité, c'est-à-dire sa capacité à adsorber l'eau. Comme vu plus haut, la capacité d'adsorption de la particule, et donc sa teneur en eau, influence la coulabilité de la poudre.

IV.6. Influence des paramètres extrinsèques

IV.6.1. Paramètres procès

IV.6.1.1. Historique de la poudre

L'historique de la poudre, c'est-à-dire sa manipulation, son stockage ainsi que son transport, peut avoir un impact sur sa coulabilité [69,72,76]. Selon la manière dont a été manipulée la poudre, celle-ci sera dans un certain état d'organisation, et présentera donc une certaine cohésivité. Cette cohésivité peut être importante si la poudre se trouve dans un état où les distances interparticulaires sont très faibles, c'est-à-dire si la poudre se trouve dans un état compact : dans ce cas, l'écoulement de la poudre sera difficile.

IV.6.1.2. Surface des parois

De la même manière que les particules interagissent entre elles, ces particules peuvent aussi interagir avec les parois. Comme pour les particules, ces interactions dépendent de l'état de surface de la paroi, c'est-à-dire : [72]

- Du type de matériau : selon le type de matériau de la paroi, les interactions seront plus ou moins fortes.

- De la rugosité : une paroi rugueuse aura tendance à renforcer les forces de friction, empêchant ainsi un écoulement libre de la poudre.
- De la quantité d'eau présente à la surface : comme pour les particules, des ponts liquides peuvent se créer entre la paroi et les particules.

IV.6.1.3. Vibrations

Une poudre subissant des vibrations va se réorganiser. Plus une poudre subit de vibrations, plus celle-ci va se réorganiser dans un état compact [67]. Cet état compact est défavorable à la coulabilité d'une poudre, dans la mesure où dans cet état, les distances interparticulaires sont réduites, et donc les interactions interparticulaires sont plus importantes : la poudre devient donc plus cohésive.

III.6.2. Paramètres environnementaux

VI.6.2.1. Humidité

L'humidité du milieu peut impacter la coulabilité d'une poudre, par influence de la teneur en eau de cette dernière. En effet, plus le milieu est humide, plus la teneur en eau de la poudre sera élevée [78 ;79]. Cet effet de l'humidité peut être favorable ou non sur la coulabilité d'une poudre :

- A faible humidité, l'écoulement peut être amélioré par effet lubrifiant de l'eau présente à la surface des particules.
- A forte humidité, la poudre peut prendre en masse, empêchant ainsi tout écoulement.

IV.6.2.2. Température

La température impacte la coulabilité d'une poudre selon différents modes :

- La température modifie l'humidité de l'air [79] : plus la température est élevée, plus l'humidité absolue de l'air peut être élevée et on a vu précédemment que l'humidité de l'air a un impact sur la coulabilité d'une poudre, via l'influence sur sa teneur en eau.
- La température modifie les propriétés de la poudre [79] : en particulier, une augmentation de température entraîne une diminution de la capacité d'adsorption d'eau de la poudre. Par diminution de cette capacité d'adsorption, la création de ponts liquides ainsi que la prise en masse sont limitées.

- En fonction des propriétés du matériau, l'élévation de température peut être suffisante pour atteindre la température de transition vitreuse et ainsi modifier la texture de la poudre, voire engendrer une prise en masse.

IV.7. Evaluation de la coulabilité d'une poudre

Afin d'évaluer la coulabilité d'une poudre, de nombreuses techniques de mesure ont été développées.

Cependant, ces différentes techniques de mesure peuvent donner des résultats contradictoires entre elles, dans la mesure où elles explorent la poudre de différentes manières : certaines techniques en font une analyse statique de la poudre, tandis que d'autres en font une analyse dynamique.

Nous nous limiterons ici à la description des méthodes de mesures effectivement employées au cours de ce travail.

Ces différentes techniques de mesure sont divisées en deux catégories [50] : les méthodes indirectes et les méthodes directes.

IV.7.1. Méthodes indirectes

Les méthodes indirectes utilisent des techniques de mesure proches des procédés d'utilisation de la poudre, pour évaluer son degré de cohésion. Ces méthodes sont rapides, simples à mettre en œuvre, et comparatives pour un même site. C'est pourquoi, ces méthodes sont largement employées dans l'industrie, dans le cadre du contrôle qualité des produits.

Cependant, ces méthodes dépendent fortement de l'opérateur, en particulier, lors de la préparation de la poudre.

IV.7.1.1. Mesures angulaires

Lorsqu'on forme un tas de poudre, celui-ci prend la forme d'un cône, dont l'angle à la base ne peut excéder une certaine valeur. Lors de la construction du cône, les poudres situées à la surface du cône sont soumises à trois forces (figure I.6) :

- Le poids F , qui tend à faire glisser la particule le long de la surface du cône.
- La réaction R_N du cône
- Les forces de frictions R_T , dépendantes de la réaction du cône et du coefficient de frottement de la poudre μ

$$R_T = \mu \cdot R_N$$

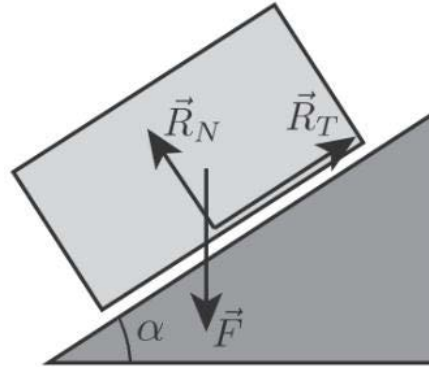


Figure III.8 : Représentation des forces exercées sur une particule située à la surface d'un cône de poudre [52]

Pour l'angle maximal α que peut former le cône, les forces tendant à faire glisser la particule et les forces qui tendent à la retenir se compensent. La projection des forces sur un axe parallèle et un axe perpendiculaire à la surface du cône donne :

$$F \cdot \sin(\alpha) = R_T$$

$$F \cdot \cos(\alpha) = R_N \quad (I.6)$$

Avec la relation I.5 :

$$F \cdot \sin(\alpha) = \mu \cdot R_N$$

$$F \cdot \cos(\alpha) = R_N \quad (I.7)$$

Soit finalement

$$\mu = \tan(\alpha) \quad (I.8)$$

F : Le poids de la particule.

μ : Le coefficient de frottement de la poudre.

α : L'angle maximal que peut former le cône.

Cet angle de repos est donc le reflet des frictions interparticulaires existantes au sein d'un tas de poudre. Il existe de nombreuses méthodes pour déterminer cet angle de repos (figure I.7).

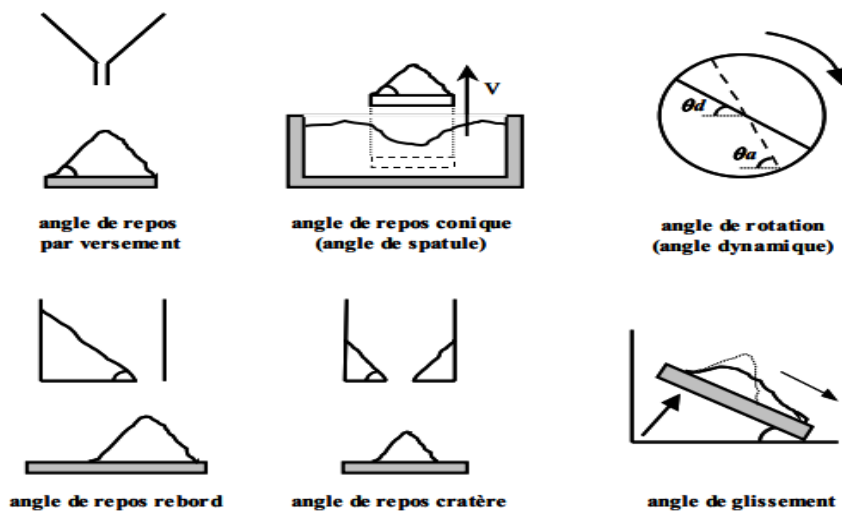


Figure III.9 : Méthodes pour la mesure de l'angle de repos [52]

Les mesures de l'angle de repos sont très dépendantes de la méthode utilisée, ainsi que de la manière dont est construit le cône. En effet, l'angle de repos dépend de la vitesse d'écoulement de la poudre sur la surface, ainsi que de la hauteur d'écoulement, de la masse d'échantillon ainsi que de l'humidité de l'air environnant [78]. Une attention particulière doit être portée sur la formation du cône, celui-ci doit être construit de la même manière afin d'avoir des mesures comparables.

De plus, ces méthodes posent des difficultés expérimentales liées à la ségrégation du matériau et à la consolidation ou à l'aération de la poudre lors de la formation du cône.

A noter que parmi les différentes méthodes de mesure, la mesure de l'angle de rotation dans un tambour tournant permet de s'affranchir de la dépendance de l'opérateur. Cette méthode de mesure permet de déterminer deux angles :

- L'angle d'avalanche qui correspond à l'angle maximal que fait le tas de poudre, donc celui mesuré juste avant l'écoulement.
- L'angle de repos dynamique correspondant à l'angle minimal que fait le tas de poudre, donc celui mesuré au moment où l'écoulement s'arrête.
- Pour interpréter les mesures d'angles de repos, il existe des tables, notamment celle de la Pharmacopée européenne [80], liant l'angle de repos mesuré à la coulabilité de la poudre (tableau.2) :

Aptitude à l'écoulement	Angle de repos (degrés)
Excellente	25-30
Bonne	31-35
Assez bonne (facilitation non nécessaire)	36-40
Passable (risque de blocage)	41-45
Médiocre (facilitation nécessaire par agitation ou vibration)	46-55
Très médiocre	56-65
Extrêmement médiocre	> 66

Tableau III.2 : Interprétation des résultats d'angle de repos [80]

IV.7.1.2. Essai de tassement

La capacité d'une poudre à se réarranger est représentative des interactions particulières, et donc de la cohésion du milieu et de sa coulabilité. Une poudre cohésive versée dans un récipient aura tendance à adopter une organisation lâche [81]. Le tassement de la poudre par chocs successifs permet le réarrangement de la poudre, en cassant les liens entre particules, ainsi qu'à l'évacuation de l'air interstitiel. Plus l'organisation initiale de la poudre est lâche, ce qui est le cas des poudres cohésives, plus la poudre aura la possibilité de se réarranger en une organisation plus compacte.

Les mesures de densités aérées et densités tassées permettent donc d'évaluer la cohésivité d'une poudre. La densité tassée est obtenue après avoir appliqué un certain nombre de chocs à la poudre, jusqu'à que celle-ci adopte sa structure la plus compacte.

L'essai de tassement peut être réalisé dans un densimètre, dont l'appareillage est décrit dans la Pharmacopée Européenne (figure III.10)

A partir de la mesure des densités aérées et densités tassées, il est possible de calculer deux indices permettent d'évaluer la capacité de la poudre à se réarranger, et donc la cohésivité et la coulabilité de la poudre :

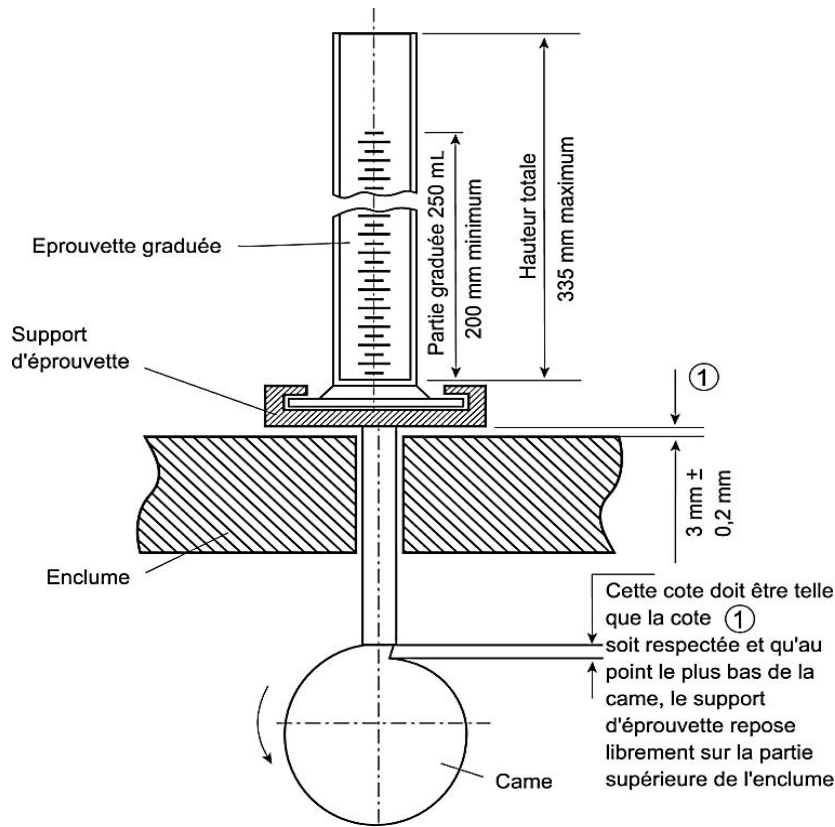


Figure III.10 : Schéma de l'appareillage pour l'essai de tassement [80]

$$\text{L'indice de Carr : } IC = 100 \cdot \frac{\rho_{\text{tassée}} \rho_{\text{aérée}}}{\rho_{\text{aérée}}} \quad (\text{I.9})$$

$$\text{L'indice de Hausner : } HR = \frac{\rho_{\text{tassée}}}{\rho_{\text{aérée}}} = \frac{V_{\text{aérée}}}{V_{\text{tassée}}} \quad (\text{I.10})$$

Où $\rho_{\text{tassée}}$ et $V_{\text{tassée}}$, et $\rho_{\text{aérée}}$ et $V_{\text{aérée}}$ représentent respectivement la masse volumique après tassement, et la masse volumique et le volume aérés de la poudre.

Des tables, notamment celle de la Pharmacopée Européenne [80], permettent de faire le rapprochement entre ces indices et la coulabilité d'une poudre (tableau III.3)

Aptitude à l'écoulement	Indice de compressibilité (pour cent)	Indice de Hausner
Excellente	1-10	1,00-1,11
Bonne	11-15	1,12-1,18
Assez bonne	16-20	1,19-1,25
Passable	21-25	1,26-1,34
Médiocre	26-31	1,35-1,45
Très médiocre	32-37	1,46-1,59
Extrêmement médiocre	> 38	> 1,60

Tableau III.3 : Interprétation des résultats de tassement [80]

Cependant, ces indices ne sont pas des valeurs intrinsèques de la poudre et dépendent de la méthodologie employée, en particulier, du mode de préparation et du mode de remplissage. En effet, la méthodologie employée conditionne l'organisation initiale de la poudre, et donc la lecture de la densité aérée. De plus, après remplissage de l'éprouvette, la surface du lit de poudre n'est pas toujours horizontale, engendrant difficulté supplémentaire dans la lecture de la densité aérée.

D'autres paramètres peuvent influencer les mesures tels que la masse de l'échantillon, le diamètre de l'éprouvette ou encore la rotation possible de l'éprouvette au cours du test [46].

IV.8. Aperçu théorique

IV.8.1. Diamètres et distributions

Une mesure de la distribution de taille des particules est souvent effectuée dans le but de relier cette analyse à une propriété ou un comportement particulier de la poudre. De plus, lors du choix d'une méthode de mesure de la distribution de taille des particules, l'application finale doit être toujours prise en compte. Ainsi, par exemple, il importe de savoir si la poudre sera utilisée sèche ou dispersée dans un liquide. Cependant les différentes méthodes de mesure de distribution de taille des particules ont souvent des limitations. Lorsque celles-ci sont ignorées, les corrélations avec la propriété particulière qui nous intéresse peuvent être erronées.

Très souvent, lorsqu'on lit la section concernant la caractérisation d'une poudre dans des publications scientifiques, on trouve des expressions telles que "la taille moyenne des particules était de 2 microns" - ceci sans aucune référence à la méthode de mesure ou à la base de distribution. La figure 1 montre un exemple d'une même distribution reportée graphiquement en tant qu'une distribution basée sur le nombre ou le volume. La différence mise en évidence illustre l'importance d'une définition précise d'une valeur telle que "la taille moyenne des particules".

V. Dispositifs de mesure des propriétés d'écoulement :

V.1. L'indice de Hausner

L'indice d'Hausner est une grandeur physique sans dimension qui décrit l'aptitude à l'écoulement d'une poudre ou d'un matériau granulaire.

Cet indice a été défini par le métallurgiste des poudres autrichien Henry H. Hausner (1900-1995) [82 ,83].

Le rapport Hausner est un nombre qui est lié à la fluidité d'une poudre ou un matériau granulaire ; Il est une valeur liée à la fluidité d'une poudre, mais en tenant compte de la densité et de la densité compactée.

L'indice de Hausner est égal au rapport de la masse volumique tassée sur la masse volumique apparente ou comme le rapport du volume apparent sur le volume tassé :

$$HR = \frac{\rho_t}{\rho_a}$$

ρ_t : La masse volumique tassée

ρ_c : La masse volumique apparente

L'indice de Hausner (H) est lié à l'indice de Carr (C), un autre indicateur d'écoulement de poudre, par la formule :

$$IH = 100 / (100-C)$$

L'indice de Carr et l'indice de Hausner sont parfois critiqués : leur lien avec l'écoulement a été établi de manière empirique sans base théorique. Malgré cela, leur utilisation persiste

en raison de leur facilité de mesure (l'équipement requis est léger et facile de mise en œuvre).

Les deux indices ne sont pas des propriétés absolues d'un matériau ; leur valeur peut varier en fonction de la méthodologie utilisée pour les déterminer. [84]

Le rapport Hausner est utilisé dans une grande variété d'industries comme pharmacie galénique, agroalimentaire, en bâtiment et travaux publics et en métallurgie des poudres.

Indice d'Hausner	Aptitude d'écoulement
1.09 – 1.10	Excellent
1.10 -1.14	Très bonne
1.14-1.19	Bonne
1.19 -1.25	Régulier
>1.25	Mauvais

Tableau03 Interprétation de l'indice d'Hausner [84]

Un rapport de Hausner supérieur à 1,2 est considéré comme une indication d'un mauvais écoulement mais d'une bonne compressibilité et d'une bonne cohésion. Les vibrations peuvent facilement tasser la poudre pendant le transport par exemple.

Un indice de Hausner inférieur à 1,2 est considéré comme une indication d'un bon écoulement mais d'une faible compressibilité et d'une faible cohésion³.

1.2.1. Indice de Hausner L'indice de Hausner, rapport entre la densité tassée et la densité aérée, est un indice permettant de qualifier la coulabilité d'une poudre. Les densités aérées et tassées des poudres ont été déterminées grâce au densimètre Densitap ETD-20, de la société Granuloshop, équipé d'une éprouvette de 250 mL et 34,7 mm de diamètre (figure III.2). Ce densimètre respecte les normes définies par la Pharmacopée Européenne.



(a) : tassement manuel (Exemple Fabrication des gélules).[du site Altheaprovence.com/blog/fabriquer-gelules-medicinales]



(b) : Tassement automatique.[du site www.sllc.com/hosokawa-micron-pt-powder-tester]

Figure III. 11 : Dispositifs de mesure de l'indice d'Hausner

V.2. Angle de Talus

Le sable, assemblée de grains minéraux de taille submillimétrique possède un comportement collectif qui n'est ni celui d'un solide puisqu'il coule, ni celui d'un liquide.

. L'angle de talus est l'angle (par rapport à l'horizontale) formé par la poudre (ou le sable) qui coule, c'est une méthode simple et rapide pour mesurer l'écoulements des poudres. Les angles faibles de talus correspondent à des écoulements libre, cependant que les angles les plus élevés signifient des écoulements non libres (structure cohésive). [85,52]

D'après Carr ; l'écoulement des poudres classifient selon l'angle de talus (tableau) :

Angle de talus	Description
25-30°	Écoulement libre
30-38°	moyennement libre
38-45°	Médiocre
45-55°	Cohésif
>55°	Très cohésif

Tableau III.12 : Description des écoulements pour des différents angles de talus [82 ,52].

En effet, un tas de sable peut supporter des contraintes de cisaillement et en particulier sa surface n'est pas forcément horizontale. En fait, elle peut prendre une inclinaison mais limitée : cet angle maximal θ est appelé angle de repos, ou angle de talus. On peut l'observer en alimentant le monticule par son sommet [85,52]

La propriété la plus remarquée d'une poudre est l'angle caractéristique du tas qu'il forme, appelé l'angle de repos, que l'on observe en versant la poudre à partir d'un entonnoir. L'angle de repos est un paramètre souvent utilisé pour évaluer l'écoulement d'une poudre. Bien que ce phénomène s'avère simple, notre compréhension sur ce mécanisme physique est encore très limitée.

Les modèles physiques sur l'influence d'interactions interparticulaires et de rugosité de surface sur l'angle de repos sont étudiés. Une croissance d'interactions et de rugosité conduit à l'augmentation de l'angle de repos de la poudre et ainsi à une diminution de son

écoulement. À son tour, l'écoulement d'un transporteur influence la qualité du mélange de poudre.

La propriété la plus visible d'un milieu granulaire comme le sable sec, par exemple, est l'angle caractéristique du tas qu'il forme, appelé l'angle de talus ou simplement angle de repos, que l'on observe en versant la poudre à partir d'un entonnoir, illustré par la figure (figure ci-dessous).

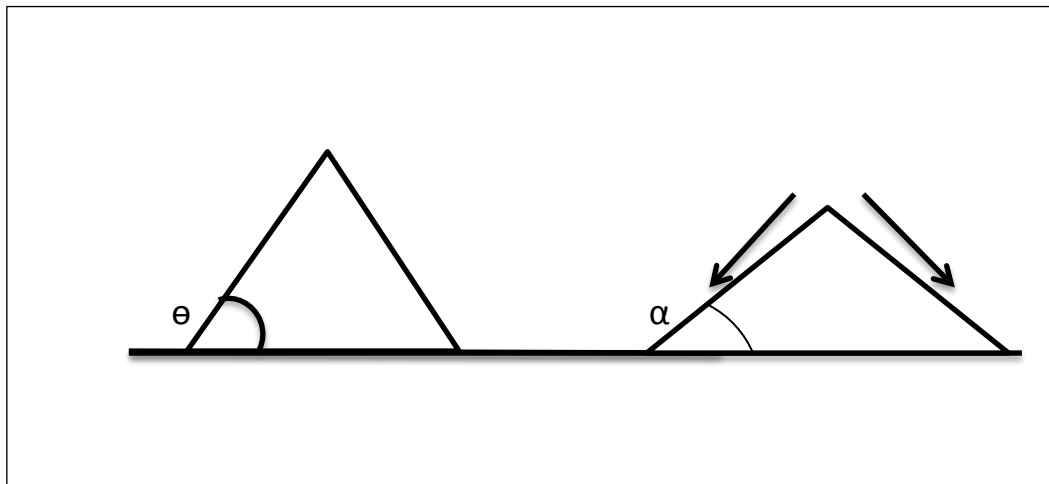


Figure III.12 : Tas de poudre formé par écoulement dans un entonnoir. L'angle θ est l'angle maximal observé lors de la formation du tas, et l'angle α est l'angle pour lequel l'écoulement se fige lorsque la pente du tas a dépassé l'angle θ . [51]

A la fin du XVIII^{ème} siècle, Coulomb a étudié les phénomènes de mécanique du sol et de friction solide. Il a observé également que la terre et le sable ne se remblaient pas en talus avec la même pente. Il a conclu que la forme du tas dépend de la propriété de frottement entre grains [47].

En étudiant plus en détail la formation d'un tas, on se rend compte qu'en réalité il existe deux pentes critiques. En ajoutant des grains sur un tas stable de poudre, ces grains s'accumulent pendant quelque temps et la pente dépasse localement l'angle du tas. Une fois que la pente devient plus grande qu'un angle maximal θ ; les grains se mettent en mouvement et dévalent la pente. Celle-ci diminuée jusqu'à un angle minimal α pour lequel l'écoulement se fige (figure III.12)

L'utilisation des résultats de mesures par l'IGC et par l'AFM permet de calculer les valeurs théoriques de l'angle de repos. Ces dernières sont montrées bien corrélées avec les mesures

expérimentales. Dans une étude sur l'angle de repos dynamique, des auteurs ont montré une bonne corrélation entre le descripteur de l'angle de repos dynamique et la dispersion de la poudre.

Cependant, l'étude de l'influence de l'angle de repos sur les propriétés des poudres pour est très limitée bien qu'il soit un excellent indicateur de l'interaction inter-particulaires.

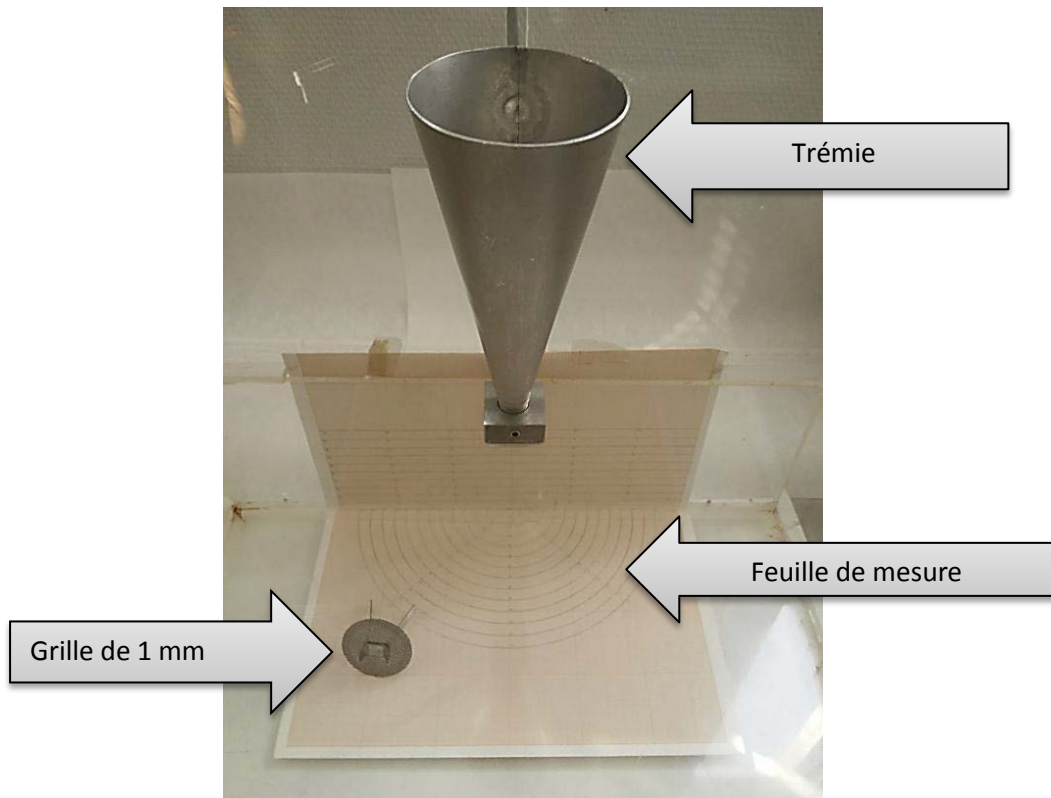


Figure III.13 : Dispositif utilisé pour les mesures d'angle de repos [du site gardco.com/pages/desty/powderangel.cfm]

La poudre à étudier est versée dans la trémie, équipée d'une grille de 1 mm d'ouverture, permettant la désagglomération de la poudre. La poudre ainsi désagglomérée tombe sur le support en plexiglas®, en formant un demi-cône. La mesure du diamètre de base ainsi que de la hauteur du demi-cône ainsi formé permet de déterminer l'angle de repos :

$$\tan(\alpha) = \frac{2 \cdot h}{d} \quad \text{(III.1)}$$

Avec :

h la hauteur du demi-cône, et d le diamètre de sa base.

V.3. L'angle de glissement

L'angle de glissement a été déterminé à l'aide d'un dispositif composé d'un plan incliné mobile sur lequel était fixé un conteneur carré creux (126 mm × 126 mm x 37,8 mm) à une extrémité (figures 3). Sur le plan on dépose une couche régulière des particules. L'angle de glissement a été déterminé en soulevant progressivement le plan incliné jusqu'à ce que les particules commencent à glisser, jusqu'à ne plus voir des particules sur le plan. L'angle établi par le plan incliné à l'horizontale à laquelle les particules ont commencé à glisser a été estimé comme l'angle de glissement. Pour $\alpha < 32^\circ$ l'écoulement est libre et pour $\alpha > 32^\circ$ écoulement non libre. [86,87]



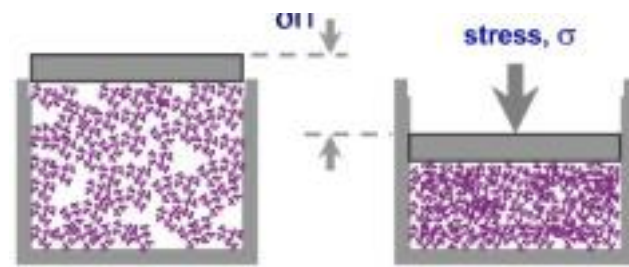
Figure III.14 : dispositif de mesure de l'angle de glissement
Compression uni axiale

[du site [Slidesharecdn.com/tipe-les-milieus-granulaires](https://www.slidesharecdn.com/tipe-les-milieus-granulaires)]

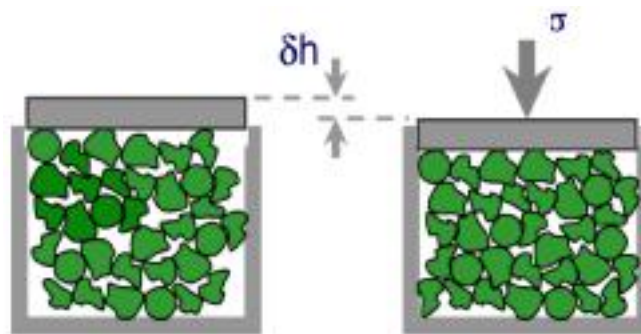
Dans un test de consolidation, un échantillon de poudre est chargé dans un cylindre par un piston. Appliqué par une contrainte relativement élevée et, par conséquent, ce test peut indiquer le comportement de la poudre qui est stocké dans un silo [88].

Le principe est d'appliquer une contrainte de compression normale, σ , sur le lit en poudre et une mesure La réduction apparente du volume, ΔV [89]. La compressibilité est alors calculée par le Rapport entre la réduction de volume et le volume initial. Ce test est basé sur le

Influence des forces adhésives interparticulaires sur la densité apparente. Dans les solides en vrac lâches des pores importants sont formés en raison de l'action des forces adhésives. Ce n'est pas le cas avec des poudres à écoulement libre. Ainsi, on s'attend à ce que des solides en vrac sont plus compressibles (Figure 1-10):



a) Poudres Cohésives



b) Poudres non cohésives

Figure III.15 : Test de compression pour une poudre cohésive (a) et une poudre non cohésive (b) (à partir de <http://www.freemantech.co.uk>)

Comme le montre la figure 1-11, un cylindre creux (avec section transversale A) est rempli d'une poudre, en supposant que la paroi interne est sans frottement. Le matériau en poudre est comprimé en appliquant une contrainte σ_1 dans la direction verticale, appelée "contrainte de consolidation".

Après consolidation, la plaque poreuse est enlevée. L'échantillon consolidé de poudre cylindrique est ensuite compacté par une contrainte normale croissante jusqu'à la rupture. Le point de rupture s'appelle le «Résistance à la compression», « résistance cohésive» ou

«résistance à l'élasticité non confinée», σ_c . [90] En effectuant des tests de compression uniaxial (Figure 1-11) à différentes contraintes de consolidation, différentes paires de valeurs (σ_c, σ_1) et (ρ_b, σ_1) peuvent être obtenues.

Tracer ces paires de valeurs dans un diagramme σ_c, σ_1 et un diagramme ρ_b, σ_1 , entraîne habituellement des courbes comme illustré à la Figure 1-12.

La densité apparente, ρ_b et la limite d'élasticité non confiné, σ_c , augmentent généralement avec l'augmentation de la contrainte de consolidation, σ_1 . La courbe σ_c vs σ_1 s'appelle la "fonction de flux", ou "Fonction de flux instantané", pour souligner que la contrainte est mesurée directement après consolidation. Comme cela sera expliqué dans la section suivante, l'obtention de la fonction de flux est également l'un des principaux objectifs des tests de cisaillement

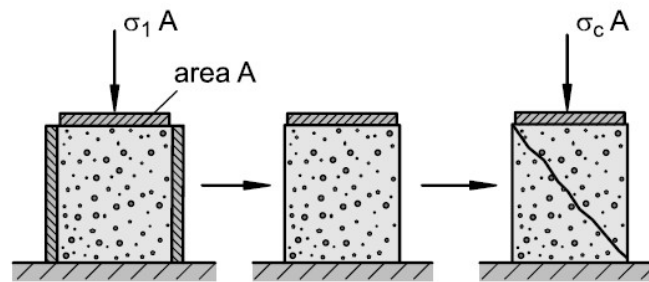


Figure III.16 : Test de compression uniaxial[89]

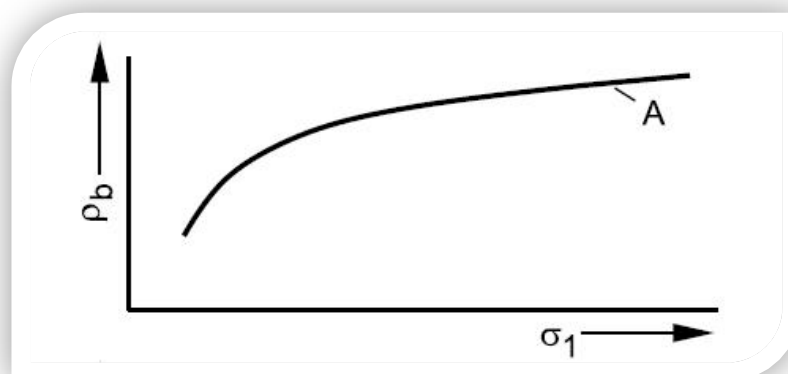


Figure III.17 : Evaluation de la densité en vrac, ρ_b et limite d'élasticité non confiné, σ_c , en fonction de la contrainte de consolidation, σ_1 . [91]

V.4. Mesures des contraintes de cisaillement :

V.4.1. Principes des fonctions d'écoulement

Quand l'extrémité inférieure d'un silo est ouverte, la poudre stockée peut s'écouler ou non, selon la formation d'arche cohésive. La raison de ce problème d'écoulement est que la cohésion du produit et le frottement inter-particulaires permettent à la poudre de supporter des contraintes tangentielles sans s'écouler. Le problème est rendu encore plus compliqué par le fait que les milieux granulaires sont compressibles et que la cohésion de la poudre dépend de son tassement (Lubert, 2000). [92]

Pour éviter ce type de problème industriel, Jenike (1964), dans les années 60, a proposé une méthode pour dimensionner les trémies d'écoulement en fonction des propriétés de rupture de la poudre. Sa méthode consiste à réaliser des expériences avec la poudre pour obtenir ce qu'il appelle la fonction d'écoulement. Cette fonction d'écoulement représente la contrainte maximale que supporte une surface libre sans s'effondrer en fonction de la contrainte maximale qu'a subit la poudre. [92,93]

Une autre partie de son travail a été de calculer les coefficients de Rankine dans des trémies de différents angles d'ouverture en fonction des propriétés en écoulement (angle de friction apparent de la poudre). Ce coefficient de Rankine est aussi appelé coefficient de réduction de contraintes et facteur d'écoulement par Jenike.

Dans la section suivante la procédure de Jenike pour déterminer la fonction d'écoulement des poudres est décrite.

La méthodologie de Jenike pour déterminer la fonction d'écoulement est une méthode standardisée (Jenike, 1964 ; "Standard Shear Testing Technique (SSTT) for Particulate Solids Using Jenike Shear Cell ", 1989 & American Society for Testing and Materials (ASTM) Committee, 1998) qui quantifie les propriétés d'écoulement du milieu granulaire, observant le point de rupture de la poudre quelle que soit sa compacité.

La première étape de la caractérisation consiste à déterminer les conditions qui provoquent l'écoulement de la poudre au repos en traçant la courbe appelée lieu cinématique

de rupture. Ensuite, l'ensemble d'un minimum de quatre lieux de ruptures permet l'obtention de la fonction d'écoulement.

Chaque lieu de rupture est un ensemble des points de rupture caractéristiques d'un état de consolidation donné, et cette consolidation est achevée lorsque l'état de densité critique de la poudre sous la contrainte normale de consolidation est atteint. Une explication plus concrète est présentée par la suite. [94]

V.4.2.L'état de densité critique

Comme déjà mentionné, un milieu granulaire change son volume quand il est mis en écoulement: il s'expand s'il est originellement bien compacté, ou se contracte s'il n'était pas tassé, pour atteindre une densité critique.

L'état de densité critique est défini comme l'état de la poudre où sa densité ne varie plus (compacité constante). En réalité, c'est le volume apparent de la poudre qui ne varie plus, car elle ne se dilate plus, et comme la densité est liée au volume, la densité elle aussi devient constante.

Pendant un essai de cisaillement, la poudre peut arriver à l'état de densité critique de trois façons différentes, selon la figure 1.12.

La courbe A est obtenue lorsque le milieu a été compacté (consolidé) sous une charge supérieure à la charge de cisaillement. La poudre doit alors se dilater pour se déplacer, ce qui provoque un maximum de la force de cisaillement.

La courbe B correspond à un milieu sous-consolidé. Dans ce cas, la poudre se compacte au début du cisaillement jusqu'à ce qu'elle atteigne sa densité critique.

La courbe C correspond à un milieu consolidé à l'état critique et il n'y a pas de changement de volume pendant le cisaillement.

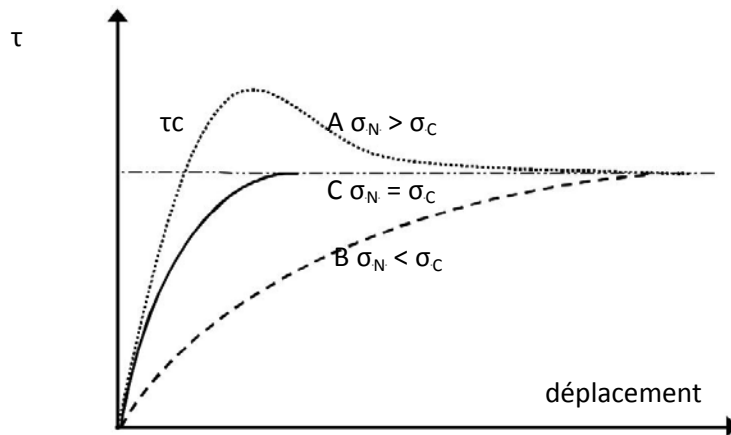


Figure III.18 : Les courbes des essais de cisaillement de poudres selon l'état de consolidation.[94]

Ce comportement justifie le protocole de mesure de Jenike : avant chaque mesure d'un point de rupture, le milieu granulaire doit être consolidé sous la même contrainte normale pour retrouver sa densité critique, caractéristique de cette contrainte normale. Si l'on ne prend pas ces précautions avant d'effectuer chaque cisaillement, la valeur mesurée à la rupture dépendra de l'histoire de contraintes de l'échantillon testé. [94]

V.5. La cellule de cisaillement annulaire

La méthode de Jenike est une méthode de caractérisation des matériaux granulaires basée sur l'étude des contraintes au sein d'un volume de grain lors du cisaillement ou de la rupture. Cette approche a l'avantage d'intégrer tous les paramètres physiques d'un matériau granulaire : granulométrie, humidité... et de pouvoir reconstituer les conditions d'exploitation, notamment la consolidation du matériau granulaire acquise au cours du temps. Cette méthode permet aussi le dimensionnement des trémies de silos (Jenike, 1964). Mais elle présente l'inconvénient de nécessiter un matériel de mesure adapté ainsi qu'un certain savoir-faire. De plus sa mise en place est assez laborieuse. La cellule de cisaillement annulaire a été initialement développée par Walker (1965), mais c'est la version de Schulze qui est la plus utilisée de nos jours (figure III.19). Le grand avantage de la cellule de cisaillement annulaire est qu'elle permet de cisailier la poudre indéfiniment et donne ainsi la possibilité de réaliser

plusieurs mesures avec un même échantillon. Avec cette cellule, on peut également quantifier l'expansion du milieu granulaire, car elle dispose de capteur de déplacement vertical.

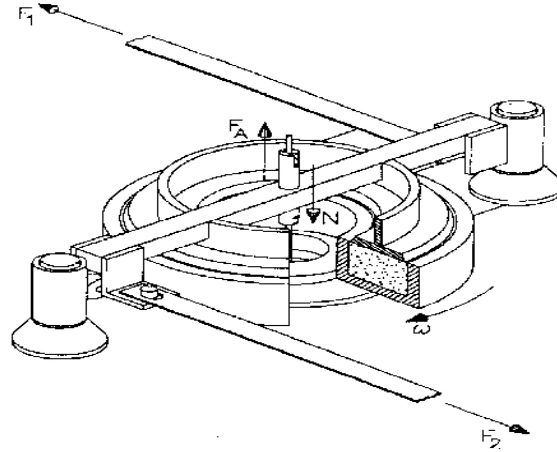


Figure III.19 : Schéma de la cellule de cisaillement annulaire de Schulze [95].

La cellule est constituée d'une base et d'un couvercle de forme annulaire. La poudre est placée à l'intérieur de la base et la force normale est appliquée sur le couvercle. Tant la base que le couvercle sont munis de dents pour s'assurer que le cisaillement s'effectue au sein de l'échantillon et non entre la surface du couvercle et la poudre.

Le bas de la cellule est entraîné par un moteur et le couvercle est maintenu par des capteurs de force. Quand le moteur est mis en rotation faible et constante, les capteurs de force enregistrent la force nécessaire pour empêcher le couvercle de suivre cette rotation. Le seul point négatif de cette cellule est que la vitesse de cisaillement varie légèrement dans le milieu, car la vitesse (linéaire) dépend du rayon de l'anneau.

V.6. Le test de cellule de cisaillement

Le test de la cellule de cisaillement est généralement utilisé pour évaluer la fluidité d'un matériau en poudre par la caractérisation de ses propriétés mécaniques. La contrainte appliquée est relativement élevée et donc ce test peut indiquer le comportement de la poudre dans les silos ou les trémies. Le principe de ce test est d'appliquer une contrainte de compression normale, σ , à un lit en poudre, puis mesurer la contrainte de cisaillement requise, τ , pour provoquer l'écoulement de la poudre dans un plan horizontal.

Traditionnellement, la poudre est contenue dans une cellule de cisaillement cylindrique. Cette cellule de cisaillement se compose de deux parties qui peuvent se déplacer l'une contre l'autre. Le flux est causé par le mouvement relatif des deux parties superposées de la cellule, ce qui conduit à la défaillance du lit de poudre à l'interface entre ces deux parties. Il existe différents types de cellules de cisaillement telles que Jenike, Peschl, Schulze, Freeman, etc. (La figure 1-13 montre un exemple de la cellule de Jenike et de la cellule de Peschl)

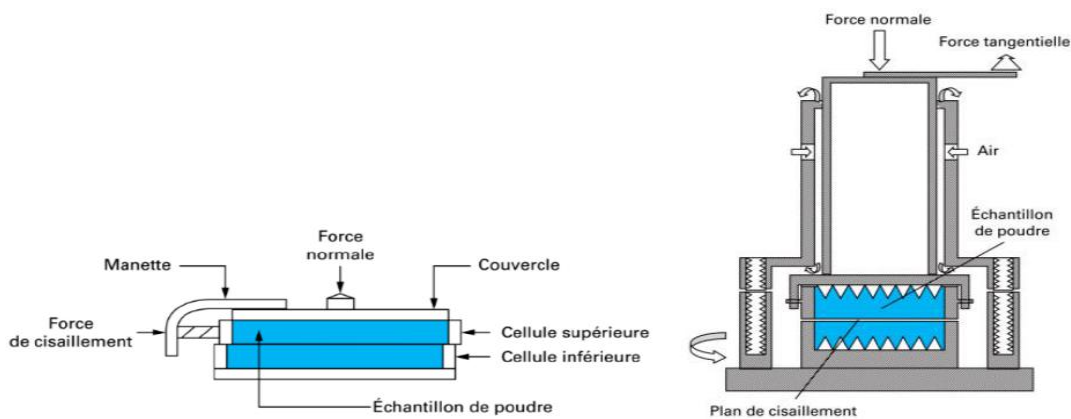


Figure III.20 : Cellule de Jenike (gauche) et cellule de Peschl (à droite) [96]

La mesure de la limite de rendement dans un essai de cisaillement se compose de deux parties

La courbe du lieu de rupture est obtenue expérimentalement à l'aide d'une boîte de cisaillement. Cette courbe est construite à partir d'un certain nombre de points de rupture de la poudre, où l'obtention de chacun de ces points est fait à travers la procédure de Jenike. Cette procédure est divisée en deux parties : (Figure III-14)

- **Le pré-cisaillement (ou La consolidation critique)** : cette étape est nécessaire pour des résultats reproductibles car la rupture d'un échantillon de poudre dépend de sa consolidation. Ici, une charge normale correspondant à une contrainte de pré-consolidation σ_{pre} , est appliquée sur l'échantillon, puis la poudre est cisailée. La contrainte de cisaillement augmente jusqu'à ce que le milieu cède et se mette en écoulement. La force de cisaillement requise pour maintenir le flux se stabilisera progressivement et l'écoulement à l'état stable est

atteint. La contrainte de cisaillement et la contrainte de pré-consolidation (ou contrainte tangentielle) sont ensuite annulées.

- **L'essai de cisaillement:** Une fois que la contrainte tangentielle est annulée, une nouvelle contrainte σ_{sh} , qui est inférieure à σ_{pre} , est appliquée au milieu de la poudre. Ensuite, l'échantillon de poudre est cisailé jusqu'à rupture jusqu'à une contrainte de cisaillement τ_{sh} .

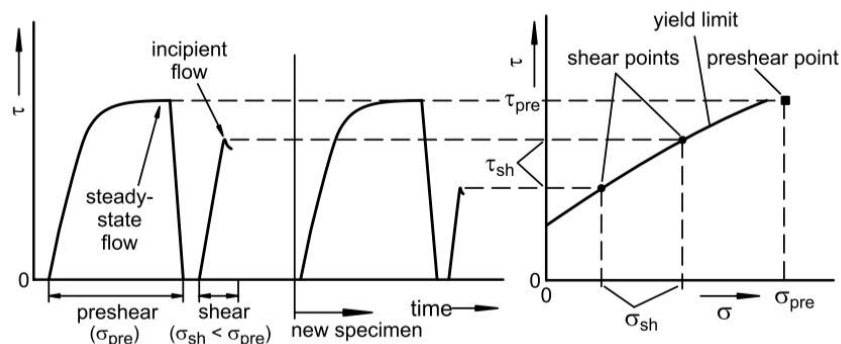


Figure III.21 : Lieu cinématique de rupture obtenu à partir des essais de cisaillement [97]

Chaque test commence par une pré-consolidation de la poudre à une pression normale fixe σ_{pre} , qui détermine l'état initial de consolidation du lit en poudre. Ensuite, différentes contraintes normales, σ_i , sont appliquées ($\sigma_i < \sigma_{pre}$) et les contraintes de cisaillement correspondantes, τ_i , sont mesurées. Les contraintes normales, σ_i , sont appliquées à un ordre croissant ou décroissant et entre chacune d'elles, l'échantillon est renvoyé à son état initial de consolidation, σ_{pre} . La courbe $\tau_i = f(\sigma_i)$ ainsi obtenue est appelée : " Lieu cinématique de rupture obtenu à partir des essais de cisaillement ".

Il fournit des informations sur le degré de cohésion du système de particules: plus une poudre est cohésive, plus son lieu de rendement est élevé. Il convient de noter que le lieu de rendement dépend de la densité apparente de la poudre, ce qui signifie que cela dépend de l'état initial de consolidation, σ_{pre} .

Pour chaque point de rendement, il est possible d'extraire les paramètres suivants (Figure 1-15) [97]:

La contrainte de consolidation majeure, σ_1 , est obtenu en dessinant un grand cercle de contrainte de Mohr passant par le point de pré-cisaillement et la tangente au point de rendement;

- La limite d'élasticité non confinée, σ_c est obtenue en traçant le cercle de contrainte de Mohr qui traverse l'origine et c'est la tangente au point de rendement;

- La cohésion, τ_c , est la contrainte de cisaillement correspondre à une contrainte normale, $\sigma = 0$. Elle est obtenue en extrapolant le point de rendement à l'axe τ ;

- L'angle linéaire du frottement interne, ϕ_{lin} , correspond à l'angle formé entre le point de rendement linéarisé et l'axe σ ;

- L'angle effectif de friction interne, ϕ_e , correspond à l'angle formé entre le point de rendement effectif et l'axe σ . Notez que le lieu de rendement effectif est obtenu en traçant la ligne passant par l'origine et la tangente au grand cercle de Mohr

Pour surmonter l'effet de la densité et du niveau de compactage de la poudre, il est nécessaire d'obtenir un nombre de point de rendement correspondant à une contrainte de pré-consolidation différente, σ_{pre} . Après plusieurs couples différents (σ_1 , σ_c) sont obtenus, il est possible d'établir la "fonction de flux" $\sigma_c = f(\sigma_1)$, propriété intrinsèque de la poudre car elle ne dépend pas de l'état de consolidation.

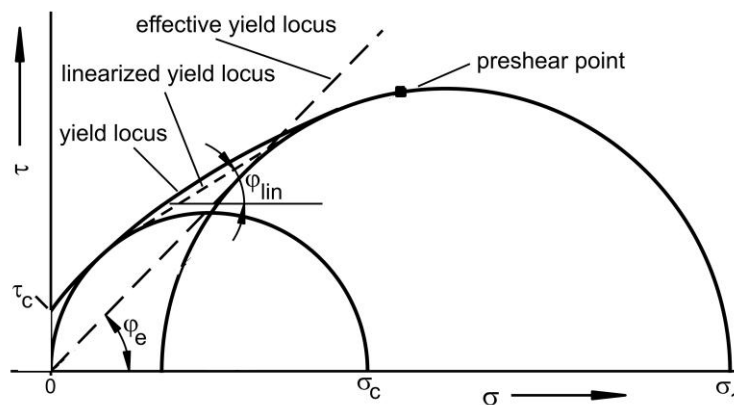


Figure III.22 : Paramètres des points de rendement [97]

L'indice de fluidité, ffc , peut également être défini par le rapport de la contrainte de consolidation majeure σ_1 et la limite d'élasticité non confinée, σ_c :

$$\text{Équation 1-28 } ffc = \sigma_1 / \sigma_c$$

Ce ratio est un indice des propriétés d'écoulement et peut être utilisé pour classifier la fluidité. De manière analogue à Jenike (1961, 1964), Thomas et Schubert (1979) ont proposé de trier des poudres en cinq catégories qui sont présentées dans le tableau 1-3 et la figure 1-16.

Valeur de ffc	Type d'écoulement
$ffc < 1$	Il n'y a pas d'écoulement
$1 < ffc < 2$	Très cohésive
$2 < ffc < 4$	Cohésive
$4 < ffc < 10$	Facile
$10 < ffc$	Écoulement libre

Tableau 1-3 Classification selon indice de fluidité ffc

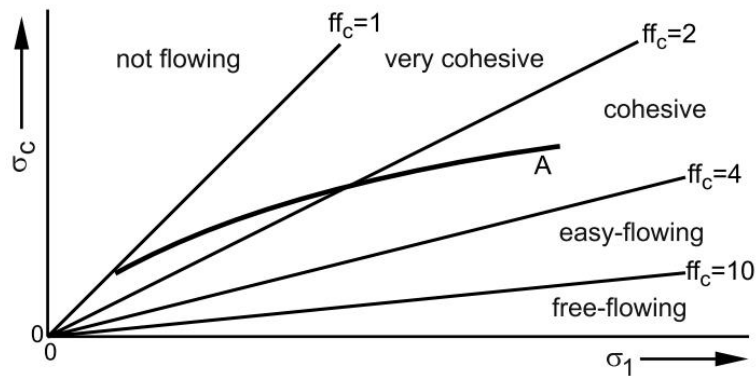


Figure III.23 : Représentation de la fonction de flux (A) et de l'indice de fluidité ffc



CONCLUSION

Conclusion

Les poudres fines ont une place très importante dans de nombreux secteurs de l'activité humaine. On les rencontre en génie civil (ballasts des voies ferrées, sables, ciments, bétons, routes, digues,...), et mécanique des sols et des roches (glissements de terrains, avalanches, mouvements de dunes, minerais,...), mais aussi dans l'industrie pharmaceutique, cosmétique et chimique (poudres de lessives, engrais,...), dans le secteur agroalimentaire (céréales, farines, blé, sucre, riz,...), et même dans l'industrie spatiale ; Près de 70% de la matière que manipulent les industriels est sous forme granulaire.

Ce travail s'accroît essentiellement sur les paramètres d'écoulement des poudres ; différents paramètres ont été expliqués qui vont servir pour des références aux chercheurs dans la technologie des poudres.

Différentes mesures permettent d'obtenir des informations sur les propriétés d'écoulement des poudres fines. Même pour la mesure d'une telle propriété, celle-ci peut être obtenus par différents dispositifs.

Le choix d'un dispositif dépend alors des paramètres à déterminer. Pour un simple test de conformité ou qualité, des mesures de comportement peuvent être suffisants.

La détermination d'écoulement d'une poudre se fait par un assemblage de plusieurs paramètres, angle de talus, indice d'HAUSNER, et la cellule de cisaillement... etc. Tous ces essais peuvent nous servir des résultats fiables sur l'écoulement d'une poudre.

Une poudres ne peut être caractérisé par un paramètre mais par un croisement plusieurs paramètres. Donc un croisement de un ou plusieurs paramètres peuvent déterminer ou caractériser la poudre en étude.



BIBLIOGRAPHIE

Bibliographie

- [1] Claudin P. (1999). La physique des tas de sable. Annales de Physique, vol. 24, n°2. EDP Sciences, Les Ulis.
- [2] Brown R.L. et Richards J.C. (1970). Principles of powder mechanics : essays on the packing and flow of powders and bulk solids. Ed. Pergamon Press, Oxford.
- [3] Bideau D. et Ammi M. (2001). Ecoulements gravitaires : sabliers et silos. Dans Mécanique des milieux granulaires, Lanier J., Ed. Hermes Science, Paris.
- [4] Guyon E. et Trodec J.-P. (1994). Du sac de billes au tas de sable. Ed. Odile Jacob, Paris.
- [5] Fayed M.E. et Otten L. (1997). Handbook of powder science & technology. Second edition. Ed. Chapman & Hall, New York.
- [6] Bideau D. et Ammi M. (2003). Stockage (silos), écoulement et extraction. Dans Technologie des pulvérulents dans les IAA, Melcion J.-P. et Iliari J.-L., Ed. Tec & Doc Lavoisier, Sciences et techniques agro-alimentaires.
- [7] Jenike A.W. (1964). Storage and flow of solids. The Utah Engineering Experiment Station, University of Utah, Bulletin n°123, vol.53, n°26.
- [8] Jenike A.W. et Johanson J.R. (1969). On the theory of bin loads. Trans. ASME., J. Eng. Ind. Ser. B, 91, 339-344.
- [9] Jenike A.W., Johanson J.R. et Carson J.W. (1973a). Bin loads. Part 2: Concepts. Trans. ASME., J. Eng. Ind. Ser. B, 95, 1-5.
- [10] Jenike A.W., Johanson J.R. et Carson J.W. (1973b). Bin loads. Part 3: Mass-flow bins. Trans ASME., J. Eng. Ind. Ser. B, 95, 6-12.

[11] Jenike A.W., Johanson J.R. et Carson J.W. (1973c). Bin loads. Part 4: Funnel-flow bins. Trans. ASME., J. Eng. Ind. Ser. B, 95, 13-16.

[12] Abdullah E. C. et Geldart D. (1999). The use of bulk density measurements as flowability indicators. Powder Technology, 102, 151-165.

[13] Frinculeasa, 1999. Approche des propriétés de compressibilité et comprimabilité des systèmes granulaires, approche méthodologique et modélisation. Thèse de doctorat. Université Paris XI.

[14] Mira Jivraj, Luigi G. Martini, 2000. An overview of the different excipients useful for the direct compression of tablets. PSTT Vol. 3, No. 2 February 2000.

[15] C. Ferrero, M.R. Jiménez-Castellanos, 2002. The influence of carbohydrate nature and drying methods on the compaction properties and pore structure of new methyl methacrylate copolymers. International Journal of Pharmaceutics, 248, 157-171.

[16] Sanjeev H. Kothari, Vijay Kumar, 2002. Comparative evaluations of powder and mechanical properties of low crystallinity celluloses, microcrystalline celluloses, and powdered celluloses. International Journal of Pharmaceutics, 232, 69-80.

[17] Brian E. Jones, 2001. The filling of powders into two-piece hard capsules. International Journal of Pharmaceutics, 227, 5-26.

[18] Goran Alderborn, Christer Nystrom, 1995. Pharmaceutical powder Compaction Technology. Drugs and Pharmaceutical sciences, volume 71.

[19] Jens T. Carstensen, 2001. Advanced Pharmaceutical Solids. Drugs and Pharmaceutical sciences, volume 110.

[20] Sarra N. Campbell Roberts, Adrian C. Williams, 2002. Quantitative analysis of mannitol polymorphs. X-ray powder diffractometry exploring preferred orientation effects. Journal of Pharmaceutical and Biomedical Analysis, 28, 1149-1159.

[21] Frinculeasa, 1999. approche des propriétés de compressibilité et comprimabilité des systèmes granulaires, approche méthodologique et modélisation. Thèse de doctorat. Université Paris XI.

[22] Goran Alderborn, Christer Nystrom, 1995. Pharmaceutical powder Compaction Technology. Drugs and Pharmaceutical sciences, volume 71.

[23] A. Le Hir, 1992. Pharmacie Galénique. Edition Masson.

[24] C. Ferrero, M.R. Jimé'nez-Castellanos, 2002. The influence of carbohydrate nature and drying methods on the compaction properties and pore structure of new methyl methacrylate copolymers. International Journal of Pharmaceutics, 248, 157_/171.

[25] Gerad K. Bolhuis , Anko C. Eissens, 2001 DC Calcium lactate, a new filler-binder for direct compaction of tablets. International Journal of Pharmaceutics 221, 77–86.

[26] Mira Jivraj, Luigi G. Martini, 2000. An overview of the different excipients useful for the direct compression of tablets. PSTT Vol. 3, No. 2 February 2000.

[27] R. Steendam , C.F. Lerk, 1998. Poly(DL-lactic acid) as a direct compression excipient in controlled release tablets Part I. Compaction behaviour and release characteristics of poly(DL-lactic acid) matrix tablets. International Journal of Pharmaceutics, 175, 33–46.

[28] Jacques Bourquin , Heinz Schmidli, 1998. Advantages of Artificial Neural Networks (ANNs) as alternative modelling technique for data sets showing non-linear relationships using data from a galenical study on a solid dosage form. European Journal of Pharmaceutical Sciences, 7, 5–16.

[29] Christina Gustafsson , Maria Cristina Bonferoni, 1999. Characterisation of particle properties and compaction behaviour of hydroxypropyl methylcellulose with different degrees of methoxy/hydroxypropyl substitution. *European Journal of Pharmaceutical Sciences*, 9, 171–184.

[30] Association pour l'Exposition Internationale du Génie des Procédés, 1999. *Matières premières et technologies d'aujourd'hui et de demain*, 14 et 15 avril 1999.

[31] A. H_ Gerristen and S. Stemerdmg, 1980. Crackling of Powdered Materials During Moderate Compression. *Powder Technology*, 27, 183 – 188.

[32] Leuenberger, 2001. New trends in the production of pharmaceutical granules:batch versus continuous processing. *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics* 52, 289–296.

[33] K. Kachrimanis, V. Karamyan , 2003.Artificial neural networks (ANNs) and modeling of powder flow.*International Journal of Pharmaceutics*, 250, 13_23.

[34] J. M. Sonnergaard, 2000. Impact of particle density and initial volume on mathematical compression models, *European Journal of Pharmaceutical Sciences*, 4, 307-315.*

[35] Gerad K. Bolhuis , Anko C. Eissens, 2001 DC Calcium lactate, a new filler-binder for direct compaction of tablets. *International Journal of Pharmaceutics* 221, 77–86.

[36] Ranjana Chopra, Goëran Alderborn, 2002. The influence of pellet shape and surface properties on the drug release from uncoated and coated pellets. *International Journal of Pharmaceutics*, 239, 171–178.

[37] Brian E. Jones, 2001. The filling of powders into two-piece hard capsules. *International Journal of Pharmaceutics*, 227, 5–26.

- [38] Thomas Abberger, 2001. The effect of powder type, free moisture and deformation behaviour of granules on the kinetics of fluid-bed granulation. *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics*, 52, 327–336.
- [39] Satoru Watanoa,*, Tetsuya Numaa, 2001. Feedback control in high shear granulation of pharmaceutical powders. *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics*, 52, 337–345.
- [40] D. Poquillon, J. Lemaitre, 2002. Cold compaction of iron powders—relations between powder morphology and mechanical properties Part I: Powder preparation and compaction. *Powder Technology*, 126, 65– 74.
- [41] Markus Krummea, Lothar Schwabeb, 2000. Development of computerised procedures for the characterisation of the tableting properties with eccentric machines: extended Heckel analysis. *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics*, 49, 275-286.
- [42] Katharina M. Picker, 2000. Influence of tableting on the enzymatic activity of different α -amylases using various excipients. *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics*, 53, 181–185.
- [43] Merja Riippia, Veli-Pekka Tanninena, 2000. Effect of compression force on the crystal properties of erythromycin acistrate tablets. *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics*, 50, 365-371
- [44] Satoru Watanoa,*, Tetsuya Numaa, 2001. Feedback control in high shear granulation of pharmaceutical powders. *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics*, 52, 337–345.
- [45] Peter Kühn and Jobst B. Mielck, 2002. Tableting of pellet–matrix systems: ability of parameters from dynamic and kinetic models to elucidate the densification of matrix formers and of pellets. *International Journal of Pharmaceutics*, 248, 101-114.
- [46] Fayed M.E. et Otten L. (1997). *Handbook of powder science & technology*. Second edition. Ed. Chapman & Hall, New York.

- [47] Tomas J. (2004). Product design of cohesive powders – Mechanical properties, compression and flow behaviour. *Chem. Eng. Technol.*, 27, 605-618.
- [48] United States Pharmacopeia Convention. *United States Pharmacopeia. USP29- NF24 éd.* 2005.2716 p.
- [49] Saleh K, Guigon P. *Caractérisation et analyse des poudres - vol j2251.* Ed. Techniques Ingénieur; 2009. p. 17.
- [50] Traina K, Cloots R, Bontempi S, Lumay G, Vandewalle N, Boschini F. Flow abilities of powders and granular materials evidenced from dynamical tap density measurement. *Powder Technol.* févr 2013;235:842- 52.
- [51] Condotta R. *Coulabilité des poudres cohésives: mesures aux faibles contraintes, granulaires humides et application à une poudre industrielle.* [Thèse]: Institut Polytechnique de Toulouse;2005.
- [52] Geldart D. (1972). The effect of particle size and size distribution on the behaviour of gazfluidised beds. *Powder Technology*, 6, 201-215.
- [54] Geldart D. (1973). Types of gaz fluidization. *Powder Technology*, 7, 285-292.
- [55] Molerus O. (1982). Interpretation of Geldart's type A, B, C and D powders by taking into account interparticle cohesion forces. *Powder Technology*, 33, 81-87.
- [56] Batchelor G. K. (1988). A new theory of the instability of a uniform fluidized bed. *Journal of Fluid Mechanics*, 193, 75-110.
- [57] Batchelor G. K. (1993). Secondary instability of a gas-fluidized bed. *Journal of Fluid Mechanics*, 257, 359-371.
- [58] Pell M. (1990). *Gas fluidization.* Elsevier Science Publishers, collection *Hanbook of Powder Technology*, volume 8.

- [59] Zenz F.A. (1997). Fluidization phenomena and fluidized bed technology. Dans Handbook of powder science & technology. Fayed M.E. et Otten L..Second edition. Ed. Chapman & Hall,New York.
- [60] Wang Z., Kwauk M. et Li H. (1998). Fluidization of fine particles. Chemical Engineering Science, 53, 377-395.
- [61] Destoop T. (1999). Manutention pneumatique de produits en vrac. Techniques de l'ingénieur,AG7510.
- [62] Grace J.R., Leckner B., Zhu J. et Cheng Y. (2005). Fluidized beds. Dans Multiphase Flow Handbook, Chap. 5., Crowe C.T., Ed. CRC, Taylor & Francis.
- [63] Hausner H.H. (1967). Friction conditions in a mass of metal powder. Int. J. Powder Metallurgy, 3, 7-13.
- [64] Carr R.L. (1965). Evaluating flow properties of solids. Chem. Eng., 72, 163-168.
- [65] Carr R.L. (1965). Classifying flow properties of solids. Chem. Eng., 72, 69-72.
- [66] Carr R.L. (1976). Powder and granule properties and mechanics. Dans Gas-Solids Handling in the process industries, Marchello J.M. et Gomezplata A. (EDS.), New York, U.S.A.,Marcel Dekker, INC 8), 13-88.
- [67] Pouliquen O. Les milieux granulaires - Entre fluide et solide. Cours Ecole Nationale des Techniques Avancées de Paris et Institut Universitaire des Systèmes Thermiques et Industriel2001.
- [68] Félix G. Ecoulements de milieux granulaires en tambour tournant. Étude de quelques transitions de régime. Application à la ségrégation. [Thèse]: Institut National Polytechnique de Lorraine- INPL; 2002.

- [69] Masuda H, Higashitani K, Yoshida H. Powder technology handbook. Third Edition. CRC Press; 2010. 920 p.
- [70] Ortega-Rivas E, Juliano P, Yan H. Food powders: physical properties, processing, and functionality. Springer; 2005.
- [71] Lumay G, Boschini F, Traina K, Bontempi S, Remy J-C, Cloots R, et al. Measuring the flowing properties of powders and grains. Powder Technol. juill 2012;224:19- 27.
- [72] Li Q, Rudolph V, Weigl B, Earl A. Interparticle van der Waals force in powder flowability and compactibility. Int J Pharm. août 2004;280(1-2):77- 93.
- [73] Podczek F, Sharma M. The influence of particle size and shape of components of binary powder mixtures on the maximum volume reduction due to packing. Int J Pharm. 1996;137(1):417.
- [74] Liu LX, Marziano I, Bentham AC, Litster JD, E.T.White, Howes T. Effect of particle properties on the flowability of ibuprofen powders. Int J Pharm. oct 2008;362(1-2):109- 17.
- [75] Chik Z, Vallejo LE. Characterization of the angle of repose of binary granular materials. CanGeotech J. avr 2005;42(2):683- 92.
- [76] Ganesan V, Rosentrater KA, Muthukumarappan K. Flowability and handling characteristics of bulk solids and powders – a review with implications for DDGS. Biosyst Eng. Déc 2008;101(4):425- 35.
- [77] Raihane A, Bonnefoy O, Chaix J-M, Gelet J-L, Thomas G. Analysis of the densification of a vibrated sand packing. Powder Technol. mars 2011;208(2):289- 95.
- [78] Santomaso A, Lazzaro P, Canu P. Powder flowability and density ratios: the impact of granules packing. Chem Eng Sci. juill 2003;58(13):2857- 74.

- [79] Teunou E, Fitzpatrick JJ. Effect of relative humidity and temperature on food powder flowability. *J Food Eng.* nov 1999;42(2):109- 16.
- [80] Pharmacopée Européenne. 8ème édition. Strasbourg: Conseil de l'Europe; 2014.
- [81] Valverde JM, Castellanos A. Random loose packing of cohesive granular materials. *EPL Europhys Lett.* 1 sept 2006;75(6):985.
- [82] Beddow, J. K. 1995. "Professor Dr. Henry H. Hausner, 1900–1995." *Particle & Particle Systems Characterization* 12: 213. DOI:10.1002/ppsc.19950120411.
- [83] Podczeczek, Fridun & Brian E. Jones, eds. 2007. *Pharmaceutical Capsules*. Londres, Pharmaceutical Press, p. 111.
- [84] Sciences et Technologies des Poudres, http://nte.mines-albi.fr/STP/co/C3_Contentu_02-02.html
- [85] Influence des propriétés physicochimiques du principe actif et du transporteur sur la performance aérodynamique des mélanges de poudre pour inhalation Présentée et soutenue publiquement Le 16 Septembre 2011 à Lille Par LE Vãn Nha Phuong
- [86] B. Zhou, Unpublished M.S. thesis, Purdue University, West Lafayette, 2006.
- [87] Powder Technology Volume 203, Issue 3, 25 November 2010, X Zhao, Z Yang, G Gai, Y Yang - *Journal of food engineering*, 2009 – Elsevier
- [88] Hassanpour A., Ghadiri M., Distinct element analysis and experimental evaluation of the Heckel analysis of bulk powder compression, *Powder Technology*, 141 (2004) 251-261
- [89] Ming LI Study of the FT4 powder rheometer: comparison of the test methods and optimization of the protocols, janvier 2017

- [90] Jenike A.W., Storage and flow of solids. Bull. No. 123, 20th Printing, 1980.
- [91] Schulze D., Powders and Bulk Solids: Behavior, Characterization, Storage and Flow, Springer2008.
- [92] Schulze D., Powders and Bulk Solids: Behavior, Characterization, Storage and Flow, Springer2008.
- [93] Conesa C., Saleh K., Thomas A., Guigon P., Guillot N., Characterization of Flow Properties of Powder Coatings Used in the Automotive Industry, KONA Powder and Particle Journal, 22 (2004) 94-106.
- [94] Kwade A, Schulze D, S. J, Determination of the stress ratio in uniaxial compression tests., Powder Handling & Processing, 6 (1994) 199–203.
- [95] Schwedes J., Schulze D., Measurement of flow properties of bulk solids., Powder Technology, 61 (1990).
- [96] Conesa C., Saleh K., Thomas A., Guigon P., Guillot N., Characterization of Flow Properties of Powder Coatings Used in the Automotive Industry, KONA Powder and Particle Journal, 22 (2004) 94-106.
- [97] Schulze D., Powders and Bulk Solids: Behavior, Characterization, Storage and Flow, Springer2008.