

Lehrstuhl für Maschinen- und Apparatekunde

**Untersuchung der in Tabletten auftretenden
Spannungen beim Kompaktieren**

—

**Einfluss spezifischer Stoffeigenschaften und
Prozessparameter**

Stefan Haas

Vollständiger Abdruck der von der Fakultät Wissenschaftszentrum Weihenstephan für Ernährung, Landnutzung und Umwelt der Technischen Universität München zur Erlangung des akademischen Grades eines

Doktor-Ingenieurs

genehmigten Dissertation.

Vorsitzender: Univ.Prof. Dr.-Ing. Roland Meyer-Pitroff

Prüfer der Dissertation: 1. Univ.Prof. Dr.-Ing. Karl Sommer
2. Univ.Prof. Dr.-Ing. habil. Johann Stichlmair

Die Dissertation wurde am 11. August 2005 bei der Technischen Universität München eingereicht und durch die Fakultät Wissenschaftszentrum Weihenstephan für Landnutzung, Ernährung und Umwelt am 23. November 2005 angenommen.

Vorwort

Die vorliegende Arbeit wurde in der Zeit von Oktober 2001 bis März 2005 an der Fakultät Wissenschaftszentrum Weihenstephan für Ernährung, Landnutzung und Umwelt der Technischen Universität München am Lehrstuhl für Maschinen- und Apparatekunde durchgeführt.

Mein herzlichster Dank gilt an dieser Stelle allen, die diese Arbeit ermöglicht und zu ihrem Gelingen beigetragen haben:

Mein ganz besonderer Dank gilt meinem Doktorvater Herrn Prof. Dr.-Ing. Karl Sommer für die Möglichkeit, die Arbeit an seinem Institut durchführen zu können. Die stete Bereitschaft von Herrn Prof. Dr.-Ing. Karl Sommer zu vielen lehrreichen Diskussionen und das entgegengebrachte Vertrauen haben wesentlich zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen.

Herrn Prof. Dr.-Ing. Johann Stichlmair, Lehrstuhl für Fluidverfahrenstechnik, TU München, danke ich für die Übernahme des Korreferates.

Herrn Prof. Dr.-Ing. Roland Meyer-Pitroff, Lehrstuhl für Energie- und Umwelttechnik der Lebensmittelindustrie, danke ich für die Übernahme des Vorsitzes.

Herrn Dr. Klaus Zimmermann möchte ich an dieser Stelle für die Möglichkeit herzlich danken, dass ich die Dissertation in Zusammenarbeit mit dem Nestlé PTC Kempththal und dem Nestlé PTC Singen durchführen konnte. Ohne seine Zustimmung zu dieser Zusammenarbeit wäre diese Arbeit nicht zustande gekommen.

Herrn Dr. Ulrich Zürcher und Herrn Dr. Stefan Palzer danke ich für die Betreuung der Arbeit seitens Nestlé. Die vielen interessanten und hilfreichen „Meetings“, sowie die enge Zusammenarbeit während der gesamten Zeit, haben entscheidend zum Gelingen der Arbeit beigetragen.

Weiterhin danke ich all meinen Kollegen des Lehrstuhls für die gute Zusammenarbeit, für die zahlreichen Diskussionen und die schöne Zeit am Lehrstuhl.

Allen Diplomanden, Semestranten und HiWis gilt mein Dank für die wertvolle Mitarbeit bei den Versuchsdurchführungen und Auswertungen. Ihr aufgebrachtes Engagement und die Umsetzung eigener Ideen haben wesentlich zu dieser Arbeit beigetragen.

Meinen Dank möchte ich auch den Mitarbeitern der Werkstatt unter der Leitung von Herrn Rauscher für die Anfertigung zahlreicher Sonderteile aussprechen, ohne die diese Arbeit nicht möglich gewesen wäre.

Meiner lieben Freundin Bonnie Dethlefsen, die mich bei der schriftlichen Ausarbeitung dieser Arbeit von allen anderen Arbeiten entlastet und mir zudem tatkräftig geholfen hat, danke ich ganz besonders.

Diese Arbeit widme ich meinen Eltern Marianne und Bruno Haas. Sie haben mich immer in meinen Vorhaben unterstützt und dadurch das Zustandekommen dieser Arbeit ermöglicht. Dafür bin ich ihnen sehr dankbar.

Für die finanzielle Unterstützung möchte ich mich bei der Firma Nestlé und beim Verein der Freunde des Lehrstuhls für Maschinen- und Apparatetechnik e.V. bedanken.

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis	I
Abkürzungsverzeichnis	V
Abbildungsverzeichnis	XI
Tabellenverzeichnis	XVII
1 Einleitung und Zielsetzung	1
2 Grundlagen	4
2.1 Der Verdichtungsprozess	4
2.1.1 Physikalische Vorgänge beim Verpressen	4
2.1.2 Temperatur, Produktfeuchte und Glasübergang beim Tablettieren	6
2.1.3 Rheologische Betrachtung des Verdichtungsvorgangs	7
2.1.4 Spannungsverhältnisse	11
2.1.5 Die Fließfähigkeit von Schüttgütern	13
2.2 Glasübergangszustand	15
2.2.1 Grundlagen	15
2.2.2 Einflüsse auf die Glasübergangstemperatur (Lebensmittel)	18
2.2.2.1 Wassergehalt	18
2.2.2.2 Molekulgewicht	20
2.2.2.3 Flexibilität der Hauptketten	22
2.2.2.4 Einfluss von Seitenketten	23
2.2.3 Messmethoden zur Bestimmung der Glasübergangstemperatur	24
2.2.3.1 Dynamische Differenzkalorimetrie (DSC)	24
2.2.3.2 Dynamisch-Mechanische Analyse (DMA)	28

2.2.3.3	Thermomechanische Analyse (TMA)	32
2.2.3.4	Phase Transition Analyzer (PTA)	35
2.2.3.5	Kernresonanzspektroskopie (NMR)	38
2.2.4	Mathematische Modelle zur Vorhersage der Glasübergangstemperatur	40
2.2.4.1	Lineare Abhängigkeit und Modell von Fox	41
2.2.4.2	Gordon-Taylor & Couchman-Karasz Gleichung	42
2.2.4.3	Glasübergangstemperatur als Funktion der Wasseraktivität (a_w -Wert)	44
2.3	Messtechnische Erfassung des Verdichtungsverlaufes und ableitbare Parameter	46
2.3.1	Kraft-Weg-Kurven	46
2.3.2	Kraft-Zeit-Kurven	47
2.3.3	Auswertung mittels Dichte- und Höhenwerten	50
2.3.4	Festigkeit von Tabletten	51
2.4	Die radiale Kraft auf die Matrizenwand	54
2.4.1	Das Horizontallastverhältnis	54
2.4.2	Bisherige Applikationen zur Erfassung der Matrizenwandkraft	56
2.4.3	Die remanente Radialspannung	57
2.4.4	Axiale und radiale Druckverläufe in der Tablette	59
2.4.5	Axial-Radial-Diagramme	62
2.5	Vergleich unterschiedlicher Pressentypen	64
2.5.1	Rundläuferpresse	64
2.5.2	Exzenterpresse	66
2.5.3	Hydraulische Unterstempelpresse	67
3	Material und Methoden	68
3.1	Versuchsanlagen zur Tablettierung	68
3.1.1	Aufbau der hydraulischen Unterstempelpresse	69
3.1.2	Messtechnische Ausstattung der hydraulischen Unterstempelpresse	73
3.1.2.1	Instrumentierung und Kalibrierung der Stempel	73
3.1.2.2	Instrumentierung und Kalibrierung der Matrize	76
3.1.2.3	Wegmessung	80
3.1.2.4	Aufbau der Messkette	81
3.1.3	Rundläufertablettenpresse Fette 3090	84
3.1.4	Rundläufertablettenpresse Fette 1200i G	85
3.2	Diametraler Bruchfestigkeitstest	86

3.3	Messung der Wasseraktivität (a_w -Wert)	87
3.4	Verwendete Rohstoffe	90
3.4.1	Maltodextrin	90
3.4.2	Tablettenschmiermittel	93
3.5	Vorbereitung der Substanzen	94
3.6	Tablettierung	96
4	Ergebnisse und Diskussion der Pressversuche	103
4.1	Einfluss von Druck und Zeit bei der Kompaktierung	103
4.1.1	Rundläufertablettenpresse versus hydraulische Unterstempel­ presse	103
4.1.2	Pressversuche mit der hydraulischen Unterstempel­ presse	107
4.1.3	Pressversuche mit der Fette 3090 (eckige Tabletten)	112
4.1.3.1	Tablettenfestigkeit und elastische Rückdehnung	112
4.1.3.2	REM-Aufnahmen der hergestellten Tabletten	117
4.1.4	Pressversuche mit der Fette 1200i G (runde Tabletten)	119
4.1.4.1	Tablettenfestigkeit und elastische Rückdehnung	119
4.1.4.2	Kraft-Zeit-Verläufe bei unterschiedlichen Pressbedingungen	123
4.1.4.3	Festigkeit von Tabletten gleicher Dichte	127
4.2	Einfluss der Feuchtigkeit (a_w -Wert) bei der Kompaktierung	129
4.2.1	Tablettenfestigkeit und elastische Rückdehnung	131
4.2.2	REM-Aufnahmen von Bruch- und Oberflächen der hergestellten Ta- bletten	134
4.2.3	Kraft-Zeit-Verläufe in Abhängigkeit vom a_w -Wert	137
4.2.4	Ausstoßkräfte und remanente Radialspannungen der hergestellten Ta- bletten	141
5	Kalibrierung der Sensoren und Modellierung der Matrizendurchbiegung	144
5.1	Kalibrierung der Sensoren	144
5.1.1	Kalibrierung der Unter- und Oberstempelkraft	145
5.1.2	Kalibrierung der Matrizenwandkraft	147
5.1.2.1	Korrekturfunktion Oberstempelversatz	147
5.1.2.2	Kalibrierung mittels Flächenlast	148
5.1.2.3	Kalibrierung mittels Einzelbelastung	151
5.2	Modellierung der Matrizendurchbiegung	153
5.2.1	Theorie zum Berechnungsmodell	153

5.2.2	Modellierung mittels Berechnungssoftware „Mathcad“	157
5.2.2.1	Bestimmung der Konstanten λ und K	158
5.2.2.2	Bestimmung der radialen Druckverteilung	163
6	Zusammenfassung	170
7	Summary	174
	Literaturverzeichnis	177
A	Kalibrierung der Matrizenwandkraft	183
A.1	Steigungen der DMS-Reihen bei variierender Flächenbelastung	183
A.2	Steigungen der DMS-Reihen bei variierender Einzelbelastung	184
B	Daten für Mathcadberechnungen	186
B.1	Daten für λ -Berechnung	186
B.2	Daten für Berechnung der radialen Druckverteilung	186

Abkürzungsverzeichnis

Abkürzungen Materialverhalten und Viscoelastizität:

Abkürzung	Bezeichnung	Einheit
D	Dämpfer	
E	Elastizitätsmodul	N/m^2
F	Feder	
t	Zeit	s
ε	Deformation	-
ε_D	Deformation Dämpfer	-
ε_F	Deformation Feder	-
$\dot{\varepsilon}$	Dehnrage	s^{-1}
$\dot{\varepsilon}_D$	Dehnrage Dämpfer	s^{-1}
$\dot{\varepsilon}_F$	Dehnrage Feder	s^{-1}
η	Viskosität	$\text{N/m}^2\text{s}$
σ_0	aufgebrachte Spannung	-
σ_D	Dämpferspannung	N/m^2
σ_F	Federspannung	N/m^2

Abkürzungen der Verfahrenstechnik:

Abkürzung	Bezeichnung	Einheit
A	Querschnittsfläche des Presskanals	m^2
d	Presskanaldurchmesser	m
D	Tablettendurchmesser	m

E_1	Energieanteil für Verformung und Reibung	Nm
E_2	Energieanteil für die elastische Verformung	Nm
ff_c	Fließfaktor	-
F	Kraft	N
F_G	Gleitreibung	N
F_H	Haftreibung	N
F_n	Normalkraft	N
F_o	Oberstempelkraft	N
F_{press}	Presskraft	N
F_u	Unterstempelkraft	N
F_V	Kraft in vertikaler Richtung	N
$h_{Ausstoß}$	Tablettenhöhe nach Ausstoß	m
h_{min}	minimale Tablettenhöhe während dem Verpressen	m
H	Höhe des Verdichtungsgebietes	m
p	spezifischer Dampfdruck	bar
p_0	Dampfdruck Wasser	bar
PI	Plastizität	-
t	Tablettendicke	m
U	Umfang des Presskanals	m
v	Geschwindigkeit	m/s
y	axiale Koordinate	-
ε	Porosität	m^3/kg
λ	Horizontallastverhältnis	-
μ	Wandreibungskoeffizient	-
μ_0	Haftreibungskoeffizient	-
μ_g	Gleitreibungskoeffizient	-
ρ_s	Schüttgutedichte	kg/m^3
ρ_w	wahre Dichte des Tablettiergemisches	kg/m^3
σ_1	Verfestigungsspannung, Normalspannung	Pa
σ_2	Normalspannung	Pa
σ_c	Schüttgutfestigkeit	Pa
σ_o	Spannung am Oberstempel	Pa
σ_r	Radialspannung	Pa
$\sigma_{r,r}$	remanente Radialspannung	Pa

σ_t	Zugfestigkeit (tensile strength)	Pa
σ_u	Spannung am Unterstempel	Pa
σ_y	Axialspannung	Pa
τ	Schubspannung	Pa

Abkürzungen der Glasübergangstheorie:

Abkürzung	Bezeichnung	Einheit
a_w	Wasseraktivität	-
A	Parameter aus der Khalloufi-Gleichung $T_{gs} \cdot K^2 \cdot (1 - T_{gs})$	-
A_{mod}	Modulationsamplitude	°C/min
A(t)	Heizratenamplitude	°C/min
B	Parameter aus der Khalloufi-Gleichung $K \cdot [T_{gs} \cdot (T_{gs} - 2) + T_{gs} \cdot X_m \cdot T_{gw} \cdot k]$	-
c_p	spezifische Wärmekapazität	J/gK
Δc_p	Änderung der spezifischen Wärmekapazität	J/gK
Δc_{ps}	Änderung der spezifischen Wärmekapazität eines Feststoffs beim Glasübergang	J/gK
Δc_{pw}	Änderung der spezifischen Wärmekapazität von Wasser beim Glasübergang	J/gK
E^*, G^*, K^*, L^*	komplexes Modul	N/mm ²
E', G'	Speichermodul	N/mm ²
E'', G''	Verlustmodul	N/mm ²
k	Parameter aus der Gordon und Taylor Gleichung $\Delta c_{p2} / \Delta c_{p1}$	-
m	Masse	kg
M_V	Molekülgewicht	-
p	Sättigungsdampfdruck von Wasser im Probenmaterial	bar
p_0	Sättigungsdampfdruck von reinem Wasser	bar
P	Periodendauer	s
q	Wärme	J
\dot{Q}	Wärmestrom	W
t	Zeit	s

T	Temperatur	$^{\circ}\text{C}$
ΔT	Temperaturdifferenz	$^{\circ}\text{C}$
T_c	Kristallisationstemperatur	$^{\circ}\text{C}$
T_{eig}	extrapolierte Anfangstemperatur	$^{\circ}\text{C}$
T_{elg}	extrapolierte Endtemperatur	$^{\circ}\text{C}$
T_g	Glasübergangstemperatur	$^{\circ}\text{C}$
$T_{g\alpha}$	Glasübergangstemperatur aus der α -Kurve	$^{\circ}\text{C}$
T_{g1}, T_{g2}	Glasübergangstemperatur der ersten bzw. zweiten Komponente	$^{\circ}\text{C}$
T_{gm}	Glasübergangstemperatur der Mischung	$^{\circ}\text{C}$
T_{gs}	Glasübergangstemperatur des Feststoffs	$^{\circ}\text{C}$
T_{gw}	Glasübergangstemperatur von Wasser	$^{\circ}\text{C}$
T_{ig}	Anfangstemperatur	$^{\circ}\text{C}$
T_{lg}	Endtemperatur	$^{\circ}\text{C}$
T_m	Schmelztemperatur	$^{\circ}\text{C}$
T_{mg}	Mittelpunktstemperatur	$^{\circ}\text{C}$
T_1	Spin-Gitter-Relaxationszeit	s
T_{2S}	Spin-Spin-Relaxationszeit	s
v	Heizrate	$^{\circ}\text{C}/\text{min}$
v_L	lineare Heizrate	$^{\circ}\text{C}/\text{min}$
w_1, w_2	Massenanteil der ersten bzw. zweiten Komponente	-
W_m	Massenanteil der Feststoffkomponente	-
X	Wassergehalt der Probe	-
X_m, K, C	temperaturabhängige Parameter aus der GAB-Gleichung	-
α	Parameter aus der Khalloufi-Gleichung $K^2 \cdot (1 - T_{gs})$	-
$\alpha(T)$	differentieller thermischer Längenausdehnungskoeffizient	$\mu\text{m}/\text{m}^{\circ}\text{C}$
β	Parameter aus der Khalloufi-Gleichung $K \cdot (T_{gs} - 2 + T_{gs} \cdot W_m \cdot k)$	-
δ	Phasenwinkel	$^{\circ}$
ε_A	Verformungsamplitude	N/mm^2
σ_A	Spannungsamplitude	N/mm^2
ω	Kreisfrequenz	s^{-1}

Abkürzungen der Modellierung:

Abkürzung	Bezeichnung	Einheit
b_1	Anpassungsparameter	-
c_1, \dots, c_4	Integrationskonstanten	-
C	Konstante	Pa
E	Elastizitätsmodul	N/m^2
F	Kraft	N
h_1	Belastungshöhe	mm
J_y	Flächenträgheitsmoment	cm^4
k_s	Proportionalitätsfaktor	-
K	Bettungsziffer	Pa/cm^2
l	Länge	-
L_1	Belastungsgrenze Links	-
MP	Mittelpunkt Belastungsbereich	-
M_y	Biegemoment	Nm
p	Druck	Pa
$q_b(x)$	Streckenlast der Bettung	N/m
$q_z(x)$	ausgeübte Streckenlast	N/m
R_1	Belastungsgrenze Rechts	-
U	Umfang	mm
$w(x)$	örtliche Durchbiegung	N/m^2

weitere Abkürzungen:

Abkürzung	Bezeichnung
B	Bestimmtheitsmaß
DMA	Dynamisch-Mechanische Analyse
DMS	Dehnungsmessstreifen
DMTA	Dynamisch-Mechanisch-Thermische Analyse
DSC	Dynamische Differenzkalorimetrie
GAB	(Guggenheim-Anderson-de Boer)-Gleichung
HRC	Härtegrad nach Rockwell

MDSC	Temperaturmodulierte DSC
NMR	Kernresonanzspektroskopie
PTA	Phase Transition Analyser
REM	Rasterelektronenmikroskop
RGF	relative Gleichgewichtsfeuchte
RLL	Rigid Lattice Limit
TMA	Thermo-Mechanische Analyse
TTL	Transistor-Transistor-Logik

Abbildungsverzeichnis

2.1	Modellvorstellung Maxwell-Körper	8
2.2	Modellvorstellung Kelvin-Voigt-Körper	9
2.3	Belastungsfall durch zweiaxialen Druck mit den Normalspannungen σ_1 , σ_2 und τ [Zimmer, 1996]	11
2.4	Fließkurven eines Schüttgutes bei unterschiedlichen Porositäten	12
2.5	Fließkurven eines Schüttgutes beim Verdichten	13
2.6	Einaxialer Modellversuch zur Druckfestigkeit [Schulze, 2003]	13
2.7	Schüttgutfestigkeit σ_c in Abhängigkeit von der Verfestigungsspannung σ_1 ; Bereiche unterschiedlicher Fließfähigkeit [Schulze, 2003]	14
2.8	Temperaturverlauf beim Erhitzen eines Kristalls und eines amorphen Feststoffes [Kratzert, 2005]	16
2.9	Typischer Glasübergang, der durch eine stufenförmige Änderung des Wärmestroms gekennzeichnet ist [Ehrenstein u. a., 1998]	17
2.10	Schematische Darstellung eines teilkristallinen Polymers [Schenz, 1995]	18
2.11	Weichmachereffekt bei amorphen Substanzen [Palzer und Zürcher, 2004a]	19
2.12	DSC Thermogramm für gefriergetrocknetes Erdbeerpulver bei unterschiedlicher relativer Feuchtigkeit [Khalloufi u. a., 2000]	20
2.13	Einfluss des Molekulargewichtes von Maltodextrinen mit unterschiedlichen DE-Werten auf die Glasübergangstemperatur (bereitetgestellt von Palzer, Nestlé PTC Singen)	21
2.14	Einfluss des Molekulargewichtes von Poly (DL Milchsäure) auf die Glasübergangstemperatur einer trockenen(\blacklozenge) sowie feuchten (\blacklozenge) Poly (DL Milchsäure) Probe [Steendam u. a., 2001b]	22
2.15	Strukturformelausschnitt von Polydimethylsiloxan	22
2.16	Strukturformelausschnitt von Polyphenylsulfon	23

2.17	Strukturformel von Polymethylmethacrylat (links) und Polypropylmethacrylat (rechts) mit zugehörigen Glasübergangstemperaturen [Polymer-Science-Department, 2005]	24
2.18	Prinzip der Dynamischen Differenzkalorimetrie (DSC)	25
2.19	Messkurve eines DSC Gerätes bei Erreichen der Glasübergangstemperatur	25
2.20	Thermogramm bei der Messung einer teilkristallinen Struktur	26
2.21	Temperatur als Funktion der Zeit bei einem typischen DSC und MDSC Experiment	27
2.22	Messkurve eines DMA Gerätes	28
2.23	Glasübergang als Maximum des Verlustmoduls G''_{max} und des Verlustfaktors $\tan \delta_{max}$ im Vergleich zur Mittelpunktstemperatur des stufenförmigen Speichermodulabfalls [Ehrenstein u. a., 1998]	30
2.24	Prinzip Torsionsschwinggerät	31
2.25	Schematischer Aufbau eines DMA Gerätes unter vertikaler Belastung mit den möglichen Einspannvorrichtungen [Ehrenstein u. a., 1998]	32
2.26	Schematischer Aufbau einer TMA-Apparatur	33
2.27	Unterschiedliche Stempelformen der TMA	34
2.28	Ausdehnungsverhalten im Bereich des Glasübergangs (links: Zugmodus, rechts: Penetration) [Ehrenstein u. a., 1998]	34
2.29	Schematische Darstellung eines Phase Transition Analyser [Strahm und Plattner, 2001]	36
2.30	Schematische Darstellung einer Messung mittels PTA [Strahm und Plattner, 2001]	37
2.31	Aufzeichnung der Verschiebung der Probenkammer während einer PTA-Messung [Strahm und Plattner, 2001]	37
2.32	Spin-Spin-Relaxationszeit von Maltodextrin in Abhängigkeit von der Temperatur bei unterschiedlichem Wassergehalt ($\blacklozenge = 91g/kg$; $\square = 120g/kg$; $\blacktriangle = 147g/kg$; $\times = 183g/kg$) [Ruan und Long, 1998]	39
2.33	Spin-Gitter-Relaxationszeit von Maltodextrin in Abhängigkeit von der Temperatur bei unterschiedlichem Wassergehalt ($\blacklozenge = 91g/kg$; $\square = 120g/kg$; $\blacktriangle = 147g/kg$; $\times = 183g/kg$) [Ruan und Long, 1998]	40
2.34	Vergleich verschiedener Modelle zur Vorhersage der Glasübergangstemperatur von Erdbeerpulver; T_g als Funktion des Wassergehaltes [Khalloufi u. a., 2000]	42

2.35	Verschiedene Berechnungsmodelle zur Vorhersage der Glasübergangstemperatur angewendet am Beispiel amorphen Wassers [Roos, 2000]	43
2.36	Vergleich gemessener und berechneter Glasübergangstemperaturen in Abhängigkeit der Wasseraktivität [Palzer und Zürcher, 2004a]	45
2.37	Schematische Darstellung eines Kraft-Weg-Diagramms	47
2.38	Schematische Darstellung eines Kraft-Zeit-Diagramms einer Rundläufertablettenpresse	49
2.39	Schematische Darstellung eines Kraft-Zeit-Diagramms einer hydraulischen Unterstempelpresse	50
2.40	Zugfestigkeitsmessung mittels diametralem Druckversuch	52
2.41	Vertikal belastetes Schüttgutelement in einem Behälter mit unendlicher Tiefe und reibungsfreier Innenwand	54
2.42	Kräftegleichgewicht an einem Schüttgutelement bei der Verdichtung	55
2.43	Spannungsprofil in der Tablette während des Verdichtens [Long, 1960]	60
2.44	Spannungsprofil in der Tablette während und nach dem Ausstoßen [Long, 1960]	60
2.45	Bild einer gedeckelnden Tablette	61
2.46	Druckverteilung über den Querschnitt einer planen Tablette [Filbry, 1986]	62
2.47	Schematisches Axial-Radial-Diagramm [Ritschel und Bauer-Brandl, 2002]	62
2.48	Prozessablauf Rundläufertablettenpresse (Fette GmbH)	64
2.49	Schematische Darstellung des Kompressionsverlaufs bei der Exzenterpresse. 1 = Füllschuh, 2 = Matrize, 3 = Oberstempel, 4 = Matrizenplatte, 5 = Unterstempel [Ritschel und Bauer-Brandl, 2002]	66
3.1	Aufbau der Tablettenpresse	69
3.2	Versuchsanlage im Technikum des Lehrstuhls für Maschinen- und Apparatekunde	70
3.3	Schematische Darstellung der Presszelle: (1)Presszelle, (2)Grundplatte, (3)Flansch, (4)Gegenlagerspindel, (5)Schubstange, (6)Tombakbalg, (7)Matrize, (8)Oberstempel, (9)Unterstempel, (10)Tablette, (11)Handrad, (12)Wegmesser	71
3.4	Schalttafel der Hydraulikanlage	72
3.5	Anordnung der DMS-Streifen an Ober- und Unterstempel	73
3.6	Schematischer Aufbau der Kalibrierung in der Presse	74
3.7	Schematische Darstellung der Stempeleindringtiefen und DMS-Positionierung	76
3.8	Applikation der Dehnungsmesstreifen auf der Matrize	77
3.9	Dichtscheiben zur Wasserkalibrierung	78
3.10	Positioniervorrichtung zum Einbringen der unteren Dichtscheibe	78

3.11 Schematische Darstellung der Wasserkalibrierung	79
3.12 Inkrementaler Wegaufnehmer	81
3.13 Aufbau der Messkette	82
3.14 Catman-Bausteine	83
3.15 Bruchtester TBH 1000	86
3.16 Rotronic HygroLab 2	88
3.17 Kalibriergerade a_w -Wert-Messung	88
3.18 Glasübergangstemperatur in Abhängigkeit der Wasseraktivität von Glucidex 21 W (bereitgestellt von Zürcher, Nestlé PTC Singen)	91
3.19 Sorptionsisotherme von Glucidex 21 W (bereitgestellt von Zürcher, Nestlé PTC Singen)	91
3.20 Partikelgrößenverteilung von Glucidex 21 W	92
3.21 Fließfunktion von Glucidex 21 W	92
3.22 Partikelgrößenverteilung von Magnesiumstearat	93
3.23 Klumpenbildung von Glucidex 21 W	95
3.24 Nullstellen der Sensoren	97
3.25 Online-Dokument	98
3.26 Einstellung Periodendauer	98
3.27 Einstellung Trigger	99
3.28 Einstellung Unterstempelweg	100
3.29 Einstellring mit und ohne Anschlag	101
4.1 Vergleich Stempelgeschwindigkeiten	104
4.2 Vergleich Gesamtbelastungszeiten	105
4.3 Gesamtbelastungszeit versus Stempelgeschwindigkeit	107
4.4 Tensile strength bei unterschiedlichen Stempelgeschwindigkeiten in Abhängig- keit von der Gesamtbelastungszeit (Maltodextrin)	108
4.5 Elastische Rückdehnung bei unterschiedlichen Stempelgeschwindigkeiten in Abhängigkeit von der Gesamtbelastungszeit (Maltodextrin)	110
4.6 Tensile strength bei unterschiedlichen Gesamtbelastungszeiten mit maximaler Stempelgeschwindigkeit (Maltodextrin)	111
4.7 Elastische Rückdehnung bei unterschiedlichen Gesamtbelastungszeiten mit ma- ximaler Stempelgeschwindigkeit (Maltodextrin)	112
4.8 Bruchfestigkeit bei unterschiedlichen Presskräften in Abhängigkeit von der Ge- samtbelastungszeit (a_w -Wert = 0,19)	113

4.9	Bruchfestigkeit bei unterschiedlichen Presskräften in Abhängigkeit von der Gesamtbelastungszeit (a_w -Wert = 0,48)	114
4.10	Elastische Rückdehnung bei unterschiedlichen Presskräften in Abhängigkeit von der Gesamtbelastungszeit (a_w -Wert = 0,19)	115
4.11	Elastische Rückdehnung bei unterschiedlichen Presskräften in Abhängigkeit von der Gesamtbelastungszeit (a_w -Wert = 0,48)	116
4.12	Bruchfläche bei a_w -Wert 0,19; Gesamtbelastungszeit 76 ms; Presskraft 15 kN	118
4.13	Bruchfläche bei a_w -Wert 0,48; Gesamtbelastungszeit 76 ms; Presskraft 15 kN	118
4.14	Bruchfläche bei a_w -Wert 0,48; Gesamtbelastungszeit 457 ms; Presskraft 15 kN	118
4.15	Bruchfläche bei a_w -Wert 0,48; Gesamtbelastungszeit 354 ms; Presskraft 5 kN	119
4.16	Tensile strength bei unterschiedlichen Presskräften in Abhängigkeit von der Gesamtbelastungszeit (a_w -Wert = 0,19)	120
4.17	Tensile strength bei unterschiedlichen Presskräften in Abhängigkeit von der Gesamtbelastungszeit (a_w -Wert = 0,52)	121
4.18	Elastische Rückdehnungen bei unterschiedlichen Presskräften in Abhängigkeit von der Gesamtbelastungszeit (a_w -Wert = 0,19)	122
4.19	Elastische Rückdehnungen bei unterschiedlichen Presskräften in Abhängigkeit von der Gesamtbelastungszeit (a_w -Wert = 0,52)	123
4.20	Kraft-Zeit-Verlauf bei unterschiedlichen Gesamtbelastungszeiten (Presskraft = 10 kN, a_w -Wert = 0,19)	124
4.21	Kraft-Zeit-Verlauf bei unterschiedlichen Gesamtbelastungszeiten (Presskraft = 20 kN, a_w -Wert = 0,19)	125
4.22	Kraft-Zeit-Verlauf bei unterschiedlichen Gesamtbelastungszeiten (Presskraft = 10 kN, a_w -Wert = 0,52)	126
4.23	Kraft-Zeit-Verlauf bei unterschiedlichen Gesamtbelastungszeiten (Presskraft = 20 kN, a_w -Wert = 0,52)	126
4.24	Festigkeit von Tabletten gleicher Dichte	127
4.25	Tg- a_w -Diagramm für die Versuchsreihe	130
4.26	Tensile strength in Abhängigkeit vom a_w -Wert	131
4.27	Elastische Rückdehnung in Abhängigkeit vom a_w -Wert	132
4.28	Tablettendichte in Abhängigkeit vom a_w -Wert	133
4.29	Bruchfläche bei a_w -Wert 0,179	134
4.30	Bruchfläche bei a_w -Wert 0,637	134
4.31	Bruchfläche bei a_w -Wert 0,648	135

4.32	Bruchfläche bei a_w -Wert 0,651	135
4.33	Oberfläche bei a_w -Wert 0,179	136
4.34	Oberfläche bei a_w -Wert 0,637	136
4.35	Oberfläche bei a_w -Wert 0,648	137
4.36	Oberfläche bei a_w -Wert 0,651	137
4.37	Kraft-Zeit-Verlauf bei unterschiedlichen a_w -Werten	138
4.38	Kraft-Zeit-Verlauf bei a_w -Werten zwischen 0,155 und 0,297	139
4.39	Kraft-Zeit-Verlauf bei a_w -Werten zwischen 0,381 und 0,584	140
4.40	Kraft-Zeit-Verlauf bei a_w -Werten zwischen 0,611 und 0,651	140
4.41	Ausstoßkräfte in Abhängigkeit vom a_w -Wert	141
4.42	Remanente Wandsignale in Abhängigkeit vom a_w -Wert	143
5.1	Mögliche radiale Spannungsverteilung in einer Tablette	145
5.2	Kalibrierfunktion der Oberstempelkraft mit linearer Regression	146
5.3	Kalibrierfunktion der Unterstempelkraft mit linearer Regression	146
5.4	Regressionsgerade der Korrekturfunktion für die Oberstempelposition	147
5.5	Kalibrierfunktion DMS-Reihe 1 bei einer Wasserhöhe von 2,94 mm	149
5.6	Kalibrierfunktion DMS-Reihe 1 bei einer Wasserhöhe von 15,81 mm	150
5.7	Steigungen der einzelnen DMS-Reihen in Abhängigkeit von der Wasserhöhe .	151
5.8	Steigungen der einzelnen DMS-Reihen in Abhängigkeit von der belasteten DMS-Reihe	152
5.9	Balken auf elastischer Bettung	154
5.10	Unendlich langer Balken durch Einzelkraft belastet	156
5.11	Mathcadberechnung für λ (1)	159
5.12	Mathcadberechnung für λ (2)	160
5.13	Mathcadberechnung zur Bestimmung der Konstanten C	162
5.14	Mathcadberechnung zur Bestimmung der radialen Druckverteilung (1)	163
5.15	Mathcadberechnung zur Bestimmung der radialen Druckverteilung (2)	164
5.16	Mathcadberechnung zur Bestimmung der radialen Druckverteilung (3)	165
5.17	Mathcadberechnung zur Bestimmung der radialen Druckverteilung (4)	166
5.18	Mathcadberechnung zur Bestimmung der radialen Druckverteilung (5)	166
5.19	Mathcadberechnung zur Bestimmung der radialen Druckverteilung (6)	167
5.20	Mathcadberechnung zur Bestimmung der radialen Druckverteilung (7)	168
5.21	Druckverteilung aller berechneten Belastungshöhen	169

Tabellenverzeichnis

3.1	Einstellungen Oberstempelkalibration	75
3.2	Einstellungen Unterstempelkalibration	75
3.3	Technische Daten Messerverstärkermodule	82
3.4	Parameter der Rundläufertablettenpresse Fette 3090	84
3.5	Parameter der Rundläufertablettenpresse Fette 1200i G	85
3.6	a_w -Werte gesättigter Lösungen der verwendeten Salze bei 25°C	88
3.7	Einstellungen Klimaschrank und resultierende a_w -Werte	95
3.8	Einstellungen Unterstempelweg und Pulvermassen	101
4.1	Vergleich Stempelgeschwindigkeiten	104
4.2	Vergleich Gesamtbelastungszeiten	105
4.3	Tg-Werte und a_w -Werte der Versuchsreihe	130
5.1	Kalibrationsergebnisse Ober- und Unterstempel	147
A.1	Steigung DMS-Reihe 1-4 Flächenbelastung	183
A.2	Steigung DMS-Reihe 5-7 Flächenbelastung	184
A.3	Steigung DMS-Reihe 1-2 Einzelbelastung	184
A.4	Steigung DMS-Reihe 3-7 Einzelbelastung	185
B.1	Rohsignale der einzelnen DMS-Reihen	186
B.2	Daten für Berechnung der radialen Druckverteilung	186

1 Einleitung und Zielsetzung

Das Kompaktieren von Pulvern zu Tabletten ist ein klassisches Verfahren der Pharmazie, wird aber auch in vielen anderen Industriebereichen (Lebensmittelindustrie, Chemieindustrie, Metallurgie) zur Erzeugung leicht handhabbarer Produkte angewendet. Vor allem die Lebensmittelindustrie setzt das Tablettieren immer häufiger in Verbindung mit „Functional Food“ ein. In der Praxis treten jedoch durch die Vielzahl an Rezepturen Produktschwankungen auf, die zu Qualitätsverlusten der fertigen Produkte führen. Auch die jahreszeitbedingten klimatischen Schwankungen an den unterschiedlichen Produktionsstandorten bereiten der Lebensmittelindustrie bei der Produktion von Tabletten enorme Schwierigkeiten. Viele der verwendeten Lebensmittelpulver reagieren sehr empfindlich auf Veränderungen der umgebenden Atmosphäre. Diese Schwankungen haben direkten Einfluss auf die produktspezifischen Eigenschaften, die im Zusammenhang mit der Feuchtigkeit der Pulver stehen (a_w -Wert, Glasübergangstemperatur).

Der Prozess des Tablettierens wird im Allgemeinen als die Verdichtung eines losen Haufwerkes von fein dispersen Stoffen zu festen, möglichst gleichförmigen Körpern durch die Anwendung eines äußeren Druckes definiert [Zimmer, 1996]. Eine wesentliche Schwierigkeit bei der Beschreibung des Verdichtungsprozesses liegt darin, dass sich der aufgewendete äußere Druck nicht nach hydrostatischer Gesetzmäßigkeit ausbreitet. Auf Grund der im Schüttgut auftretenden Reibung zwischen Pulverteilchen und Reibung an der Werkzeugwand treten Druck und Zugspannungen auf. Die Beschaffenheit des Pulvers (Partikelgrößenverteilung, Feuchtegehalt, rheologische Eigenschaften, usw.), die Art des verwendeten Werkzeugs und die Tablettengröße und -form nehmen entscheidenden Einfluss auf das Ergebnis der Verdichtung. Weitere entscheidende Einflussfaktoren auf das Resultat einer Kompaktierung sind der aufgewendete Pressdruck, die Stempelgeschwindigkeit und die Dauer der Druckbelastung.

Ein wesentlicher Grund für auftretende Schwierigkeiten bei der Tablettenproduktion ist, dass die Vielzahl von Einflussfaktoren oftmals nicht getrennt voneinander betrachtet werden können und somit wichtige physikalische und wissenschaftliche Grundlagen des Verdichtungsprozesses

weitgehend unbekannt sind. Daher ist es von großer Bedeutung den Verdichtungsprozess systematisch zu untersuchen, um Fehler bei der Tablettenproduktion zu vermeiden.

Die Beschreibung des Verdichtungsprozesses ist für die Optimierung der verschiedenen Prozessparameter wesentlich. Zahlreiche Sensoren an den Tablettenpressen messen die wichtigsten Parameter während der Kompaktierung (z.B. Oberstempelkraft, Unterstempelkraft, Ausstoßkraft, Stempelweg, usw.) und zeichnen eine große Menge an Daten auf. Bei der Auswertung der gewonnenen Daten ist es entscheidend, auch die unterschiedlichen Verfahrensweisen der Tablettenpressen (z.B. Rundläufer- oder Exzenterpressen) zu berücksichtigen, um stimmige Aussagen über den Verdichtungsprozess zu treffen. Die in den letzten Jahren ständige Steigerung der Tablettiergeschwindigkeiten führt zu Qualitätsverlusten der Tabletten. So beeinflusst die Veränderung der Gesamtbelastungszeit an einer Rundläuferpresse zeitgleich auch die Stempelgeschwindigkeit. Aus der Betrachtung der Gesamtbelastungszeit geht nicht eindeutig hervor, in welchem Ausmaß diese beiden Parameter die Eigenschaften der Tabletten beeinflussen. Tabletten müssen, damit sie die Weiterverarbeitungsschritte überstehen und mit einer hohen Qualität beim Endverbraucher ankommen, eine gewisse Festigkeit aufweisen. Die Zeit spielt eine entscheidende Rolle im Kompaktierprozess und gewinnt in Abhängigkeit der plastischen Eigenschaften eines Materials zunehmend an Bedeutung. Die Verknüpfung prozessbedingter Parameter mit produktspezifischen Eigenschaften der verwendeten Materialien erschweren die Beschreibung des Verdichtungsprozesses.

Ein bis heute nicht gelöstes Problem stellt die Beschreibung des radialen Druckverlaufs über die Tablettenhöhe dar. Zur Optimierung der Schmiermittelmenge und zur Vermeidung von Tablettenfehlern (z.B. Deckeln der Tabletten) ist eine Kenntnis über den Druckverlauf an der Matrizenwand zwingend notwendig.

Ziel des ersten Teils dieser Arbeit ist es, den Einfluss von Druck und Zeit auf den Tablettierprozess von Maltodextrin zu untersuchen. Zur Herstellung der Tabletten stehen zwei unterschiedliche Pressentypen zur Verfügung. Zum einen werden Untersuchungen auf Rundläufertablettenpressen durchgeführt und zum anderen dient eine hydraulische Unterstempelmaschine als Versuchsanlage. Die hydraulische Unterstempelmaschine bietet die Möglichkeit, Stempelgeschwindigkeit und Presszeit getrennt voneinander zu variieren und kann die Presscharakteristik einer Rundläuferpresse simulieren. Es soll untersucht werden, wie die Parameter Stempelgeschwindigkeit und Gesamtbelastungszeit die Festigkeit der Tabletten beeinflussen. Neben der Variation der prozessbedingten Parameter soll zeitgleich der Einfluss der Feuchtigkeit auf die Tablettenfestigkeiten bei unterschiedlichen Anlagenparametern untersucht werden. Hier-

bei wird besonderer Augenmerk auf die elastischen und plastischen Eigenschaftsveränderungen des Maltodextrins gelegt.

Im zweiten Teil der Arbeit soll der Einfluss der Feuchtigkeit (a_w -Wert) auf das verwendete Pulver Maltodextrin beim Kompaktieren getrennt von den Anlagenparametern untersucht werden. Hierbei wird die produktspezifische Glasübergangstemperatur als Ausgangspunkt aller Versuchsreihen gewählt, um speziell die Einflüsse der Feuchtigkeit auf die Tablettenfestigkeit in Abhängigkeit der Glasübergangstemperatur zu untersuchen. Der a_w -Wert des Pulvers soll in kleinen Schritten soweit gesteigert werden, bis die Glasübergangstemperatur erreicht bzw. überschritten wird. Die Versuche werden auf der voll instrumentierten hydraulischen Unterstempelpresse durchgeführt. Mit der Beobachtung und Ermittlung zahlreicher Messparameter soll eine Aussage über die Änderungen der Spannungsverteilung in der Tablette in Abhängigkeit der Glasübergangstemperatur getroffen werden.

Die Entwicklung eines Messsystems zur hochauflösenden Erfassung der radialen Druckverteilung während und nach der Kompaktierung, ist Ziel des dritten Teils dieser Arbeit. Mit dem zu entwickelnden Messsystem soll es ermöglicht werden, den Druckverlauf an der Matrizenwand über die Tablettenhöhe aufzuzeichnen. Mit der Entwicklung eines neuen Messsystems ist parallel auch eine Kalibrationsmethode zu entwerfen, die anschließend eine direkte Messung des Druckverlaufs über die Tablettenhöhe ermöglicht. Neben der neuen Messtechnik soll auch ein mathematisches Modell zur Überprüfung der gemessenen Druckverläufe herangezogen werden.

2 Grundlagen

2.1 Der Verdichtungsprozess

2.1.1 Physikalische Vorgänge beim Verpressen

Das Komprimieren oder Verpressen von Pulvern beschreibt die Überführung von pulverförmigen Stoffen in Komprimat. Dabei sind zwei verschiedene, aber gleichzeitig ablaufende Prozesse zu unterscheiden: Die Kompression (Reduktion des Volumens) und die Konsolidierung (Erhöhung der mechanischen Festigkeit des Presslings). Da es sich bei Tabletten nicht um ein Kontinuum handelt und dementsprechend die Druckverteilung im Pressling nicht homogen ist, kommt es bei der Verdichtung von Haufwerken zu einem komplexen Wechselspiel von Umlagerung, elastischer Verformung, Bruch und plastischer Verformung. Das Verhältnis dieser Mechanismen untereinander ist von der Höhe des angewendeten Drucks und oft auch von der Geschwindigkeit der Verdichtung abhängig. Bei der Herstellung von Tabletten ist für die Bildung eines zusammenhängenden, stabilen Komprimates die Größe der Zunahme an interpartikulären Kontaktflächen von entscheidender Bedeutung [Schlack, 2001].

Bei der Volumenreduktion des Schüttgutes in der Matrize finden folgende Vorgänge statt [Ritschel und Bauer-Brandl, 2002]:

- gegenseitiger Platzwechsel und Abrollen der Pulverpartikeln („rearrangement“-Phase, ergibt eine dichtere Packung)
- elastische Deformation der weichen Primärteilchen
- plastische Deformation der weichen Primärteilchen
- Bruch der Granulatkörner in eine Anzahl kleinerer Teilchen von größerer Festigkeit
- elastische Verformung der gebildeten Sekundärteilchen
- Bruch der Sekundärteilchen

Aus materialkundlichen Untersuchungen ist bekannt, dass kleinere Partikeln eine scheinbar höhere Festigkeit aufweisen, d.h. es wird eine höhere Kraft zum Brechen kleinerer Partikeln gleichen Materials benötigt. Dies kann soweit führen, dass Partikel ab einer kritischen Größe (im μm Bereich) unter äußerer Belastung keinen Bruch, sondern nur noch plastisches Fließen zeigen [Lenartz, 1998].

Die oben genannten Vorgänge sind nicht scharf voneinander getrennt, sondern laufen bei der Komprimatbildung gleichzeitig nebeneinander ab. Die dabei stattfindende Partikeldeformation unter Druck wird durch das jeweilige rheologische Verhalten des Schüttgutes unterschieden [Ritschel und Bauer-Brandl, 2002]:

- Die elastische Deformation der Teilchen ist zeitunabhängig, d.h. sie erfolgt spontan nach dem Hooke'schen Gesetz unter Verringerung des Volumens und ist vollkommen reversibel (z.B. Gummi).
- Der Bruch der Partikeln und damit der Zerfall in kleinere individuelle Teilchen setzt ein, wenn elastische Materialien über ihre Belastbarkeitsgrenze hinaus belastet werden.
- Die plastische Deformation, auch als viskose Deformation bezeichnet, beschreibt eine bleibende Verformung der Partikeln. Sie ist sowohl von der angewendeten Kraft als auch von der Zeitdauer der Krafteinwirkung abhängig. Diese Deformation schließt nicht die Volumenverringerng der Partikeln selbst ein und ist irreversibel.

Mit diesen Begriffen hängt die viskoelastische Verformung der Partikeln eng zusammen. Hier handelt es sich um eine zeitabhängige Verformung, die teils reversibel, teils irreversibel ist. Es wird vermutet, dass viskose und elastische Vorgänge gleichzeitig nebeneinander ablaufen. Dieses viskoelastische Verhalten tritt beim Verpressen von Pulver auf [Ritschel und Bauer-Brandl, 2002].

Alle Verformungsmechanismen führen zu einer weiteren Verminderung der Porosität, und damit zu einer Erhöhung der Kontaktpunkte bzw. der Gesamtkontaktfläche. Dabei ist diese Erhöhung bei plastischer Verformung stärker ausgeprägt, als bei elastischer Verformung. Spröder Bruch bewirkt außerdem eine Erhöhung der inneren Oberfläche des Haufwerkes, was eine zusätzlich Ausbildung von Kontaktpunkten ermöglicht. Die Zunahme der Kontaktfläche ist entscheidend für die wirkenden Haftkräfte und somit entscheidend für die Tablettenfestigkeit [Lenartz, 1998].

Wird nach der Verdichtung der Pressdruck entspannt, so dehnen sich die elastisch verformten Partikeln teilweise zurück. Dies wird als elastische Rückdehnung der Tablette bezeichnet.

Ein Teil der elastisch verformten Partikeln wird durch umgebende Partikeln und gebildete Haftkräfte an der Rückdehnung gehindert. Dies führt zu Spannungen in der Tablette, die teilweise durch plastische Verformung abgebaut werden können. Verbleibende Spannungen führen jedoch zu Kräften, die den Bindungskräften entgegenwirken und die Festigkeit des Komprimates vermindern [Lenartz, 1998]. Das Ausmaß der elastischen Rückdehnung kann für die mechanischen Eigenschaften der Tabletten bestimmend sein, wenn hierbei gebildete Bindungen wieder gelöst werden [Neuhaus, 1985].

2.1.2 Temperatur, Produktfeuchte und Glasübergang beim Tablettieren

Während des Tablettierprozesses kommt es durch das Abrollen und die Deformation der Partikeln zu einer Temperaturerhöhung im Inneren der Partikeln und an der Oberfläche. Diese Temperaturentwicklung wurde von Bogs und Lenhardt [1971] unter Verwendung eines mit Kupfer-Konstantan-Elementen instrumentierten Oberstempel untersucht. Hierbei fanden Bogs und Lenhardt [1971] einen Zusammenhang zwischen Druck und Temperaturentwicklung in Abhängigkeit vom zugesetzten Schmiermittel. Wurster u. a. [1995] untersuchten die Temperaturentwicklung während der Kompression mittels der Widerstandsänderung eines Drahtes im Schüttgutelement. Hanus und King [1968] setzten dem zu untersuchenden Schüttgut temperaturempfindliche Farbpigmente mit unterschiedlichem Temperaturansprechverhalten zu und konnten ebenso eine Temperaturerhöhung im Schüttgutelement nachweisen. Die von den oben genannten Autoren angewendeten Messmethoden sind stark von der Wärmeleitung abhängig, d.h. die Sensoren messen die sich durch Temperatúrausgleich einstellende Temperatur. Durch die schnelle Deformation, die hohe Stempelgeschwindigkeit und den hohen Druck beim Tablettierprozess auf Rundläufer- und Exzenterpressen sind wesentlich höhere lokale Temperaturen an der Oberfläche der Partikeln zu erwarten.

Wichtig für das physikalische Verhalten der zu verpressenden Pulver ist ausserdem die Produktfeuchte. Amorphe Lebensmittelinhaltsstoffe weisen bei Temperaturerhöhung, ähnlich wie Kunststoffe, einen Glasübergang auf. Sie gehen dabei vom amorph-festen Glaszustand in einen gummiartig-plastischen Zustand über. Niedermolekulare Substanzen, wie beispielsweise Wasser, können als Plastifizierungsmittel bzw. Weichmacher wirken, indem sie die Beweglichkeit der Molekülketten erhöhen. Dies wiederum führt zu einer niedrigeren Glasübergangstemperatur. Dementsprechend kann die Glasübergangstemperatur alternativ sowohl durch Erhöhen der Temperatur bei konstanter Feuchte als auch durch isotherme Erhöhung der Feuchte überschritten werden [Palzer und Zürcher, 2004a; Steendam u. a., 2001a].

Mit der Erhöhung des spezifischen freien Volumens während des Glasübergangs geht eine deutliche Erniedrigung der Viskosität einher. Gemäß diversen Autoren beträgt die Viskosität im Glaszustand $10^{12} - 10^{14}$ Pas. Beim Glasübergang fällt die Viskosität auf Werte im Bereich von $10^6 - 10^8$ Pas ab. Die elastischen Eigenschaften der Stoffe treten dabei allmählich in den Hintergrund und die plastisch-viskosen Eigenschaften dominieren zunehmend das mechanische Verhalten [Palzer und Zürcher, 2004a] und somit auch das Verhalten bei der Kompaktierung [Steendam u. a., 2001a].

2.1.3 Rheologische Betrachtung des Verdichtungs Vorgangs

Das Eindringen des Oberstempels in die Matrize führt zu einer Kraft als Antwort, was auf eine Beziehung zwischen Kraft und Verdichtung hinweist. Zur Beschreibung des Verdichtungsverhaltens von Haufwerken wurden unterschiedlichste „Pressgleichungen“ vorgeschlagen. Unter den vorgeschlagenen „Pressgleichungen“ finden sich sowohl Hyperbel- als auch Exponentialgleichungen. Die weiteste Verbreitung fand die Heckel-Gleichung. In allen Gleichungen wird allerdings der Einfluss der Zeit vernachlässigt. Neben der sich aus der Stempelposition ergebenden Verdichtung hat auch die Zeit einen entscheidenden Einfluss auf die ausgebildete Kraft am Stempel. Dies lässt sich deutlich an der Abnahme des Druckes bei konstanter Verdichtung erkennen, was als Relaxation bezeichnet wird.

Das elastische und viskose Verhalten von Substanzen kann durch Modelle beschrieben werden, die aus verschiedensten Kombinationen von „Feder“ und „Stoßdämpfer“ bestehen [Konkel, 1995]. Caspar [1983] konnte an die bei der Tablettierung (Exzenterpresse) auftretende Kraft-Zeit-Kurve bis kurz nach dem Kraftmaximum ein Vier-Parameter-Solid-Modell anpassen. Neuhaus [1985] stellte fest, dass der gesamte Presskraftverlauf (Rundläuferpresse) von Tablettiergütern nicht mit einem einzigen viskoelastischen Modell beschrieben werden kann. Bei der Anpassung der Modelle gingen die Charakteristika der Kraft-Zeit-Kurven, wie z.B. die Lage des Presskraftmaximums, verloren. Die Anpassung des terminalen Bereichs der Kurve ab Erreichen von 90% der maximalen Presskraft bis zum Kraftabfall auf 20% der maximalen Presskraft konnte er mit einem Sechs-Parameter-Solid-Modell ausreichend genau durchführen. Das grundsätzliche Problem in der Anwendung von Viskoelastizitätsmodellen zeigt sich in der ständigen Änderung des vorliegenden Systems während der Verdichtung. Weiterhin denkbar sind andere Einflüsse, wie etwa plastisches Fließen bei Überschreitung der Fließgrenze [Neuhaus, 1985].

Die für Viskoelastizität verwendeten Grundmodelle, Maxwell-Körper und Kelvin-Voigt-Körper, sind einfache aus Feder und Dämpfer zusammengesetzte Modelle. Nach Maxwell gilt als Modell für eine viskoelastische Flüssigkeit eine Feder und ein Stoßdämpfer, die in Reihe geschaltet sind (Abbildung 2.1).



Abbildung 2.1: Modellvorstellung Maxwell-Körper

Durch Einwirkung einer äußeren Kraft wird der elastische Anteil (Feder) spontan vorgespannt, während sich der viskose Anteil, der durch einen Dämpfer repräsentiert wird, kontinuierlich verformt, solange die äußere Kraft aufrechterhalten wird. Infolge der Hintereinanderschaltung von Feder und Dämpfer bildet sich bei Rücknahme der äußeren Kraft die reversible, elastische Auslenkung der Feder sprunghaft zurück, während die viskose Verformung des Dämpfers erhalten bleibt. Die bleibende Restdeformation kennzeichnet eine Flüssigkeit. Eine viskoelastische Flüssigkeit bleibt also nach einem Belastungs-Entlastungs-Zyklus teilweise verformt. Die Rückdehnung entspricht dem elastischen Anteil der Probe, die bleibende Verformung entspricht dem viskosen Anteil.

Aufgrund der Reihenschaltung addieren sich die Deformation von Feder F und Dämpfer D zur Gesamtdeformation [Cuntze, 2003; Gross u. a., 1998]:

$$\varepsilon = \varepsilon_D + \varepsilon_F \quad (2.1)$$

Dies gilt ebenso für die Dehnraten.

$$\dot{\varepsilon} = \dot{\varepsilon}_D + \dot{\varepsilon}_F \quad (2.2)$$

Auf Feder und Dämpfer wirken die gleichen Spannungen, also

$$\sigma = \sigma_D = \sigma_F \quad (2.3)$$

Für den Dämpfer gilt das Gesetz von Newton.

$$\dot{\epsilon}_D = \frac{\sigma_D}{\eta} \quad (2.4)$$

Für die Feder gilt das Gesetz nach Hooke.

$$\epsilon_F = \frac{\sigma_F}{E} \quad \text{bzw.} \quad \dot{\epsilon}_F = \frac{\dot{\sigma}_F}{E} \quad (2.5)$$

Die Summe der Dehnraten ergibt die Differentialgleichung nach Maxwell:

$$\dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}_D + \dot{\epsilon}_F = \frac{\dot{\sigma}_D}{\eta} + \frac{\dot{\sigma}_F}{E} = \frac{\dot{\sigma}}{\eta} + \frac{\dot{\sigma}}{E} \quad (2.6)$$

Mit der Randbedingung $\dot{\sigma} = 0$ für $t > 0$ wird die Differentialgleichung zu:

$$\dot{\epsilon} = \frac{\sigma_0}{\eta} \quad (2.7)$$

Durch Integration und Lösung des unbestimmten Integrals (mit der Anfangsbedingung: $\epsilon(0) = \frac{\sigma_0}{E}$) ergibt sich für die Dehnung in Abhängigkeit von der Zeit:

$$\epsilon(t) = \sigma_0 \left(\frac{1}{E} + \frac{t}{\eta} \right) \quad (2.8)$$

Das Verhalten eines viskoelastischen Feststoffes wird durch das Kelvin-Voigt-Modell dargestellt, bei dem Feder und Dämpfer parallel geschaltet sind (Abbildung 2.2).

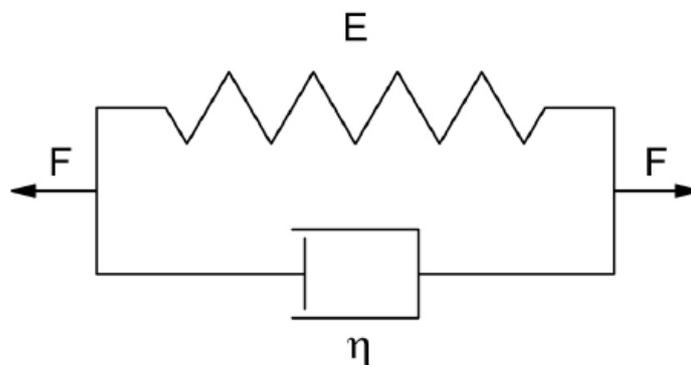


Abbildung 2.2: Modellvorstellung Kelvin-Voigt-Körper

Während der Belastung können sich Feder und Stoßdämpfer nur gemeinsam bewegen. Die Verformung findet statt, solange die Belastung andauert. Wird das System entlastet, ist die Feder bestrebt, sofort in den Ausgangszustand zurückzugehen. Durch den Dämpfer gelingt dies jedoch nur mit zeitlicher Verzögerung. Jedoch weist das Modell am Ende des Belastungs-Entlastungsvorganges keine Deformation auf.

Die Spannungen von Feder und Dämpfer addieren sich zur Gesamtspannung [Cuntze, 2003; Gross u. a., 1998]:

$$\sigma = \sigma_D + \sigma_F \quad (2.9)$$

Die Deformation sowie die Dehnraten der beiden Modellkomponenten sind gleich groß.

$$\varepsilon = \varepsilon_D = \varepsilon_F \quad \text{bzw.} \quad \dot{\varepsilon} = \dot{\varepsilon}_D = \dot{\varepsilon}_F \quad (2.10)$$

Für den Dämpfer gilt das Gesetz von Newton.

$$\sigma_D = \eta \cdot \dot{\varepsilon}_D \quad (2.11)$$

Für die Feder gilt das Gesetz nach Hooke.

$$\sigma_F = E \cdot \varepsilon_F \quad (2.12)$$

Die Summe der Spannungen ergibt die Differentialgleichung nach Kelvin/Voigt:

$$\sigma = \sigma_D + \sigma_F = \eta \cdot \dot{\varepsilon}_D + E \cdot \varepsilon_F = \eta \cdot \dot{\varepsilon} + E \cdot \varepsilon \quad (2.13)$$

Durch Lösen der Differentialgleichung (mit den Anfangsbedingungen: $\sigma(t) = 0$ für $t < 0$ und $\sigma(t) = \sigma_0 = \text{const.}$ für $t \geq 0$) ergibt sich für die Dehnung in Abhängigkeit von der Zeit:

$$\varepsilon(t) = \frac{\sigma_0}{E} (1 - e^{-t \cdot \frac{E}{\eta}}) \quad (2.14)$$

2.1.4 Spannungsverhältnisse

Wird ein Schüttgut kontinuumsmechanisch wie in Abbildung 2.3 durch Druck belastet, so treten neben den Normalspannungen σ_1 und σ_2 gleichzeitig auch entsprechende Schubspannungen (τ) auf. Werden die sich entsprechenden Spannungen τ und σ in ein τ/σ -Diagramm eingetragen, so bilden diese den so genannten Mohr'schen Spannungskreis. Dieser Kreis beschreibt keine Materialeigenschaft, sondern im Produkt vorhandene Spannungen infolge äußerer Belastungen. Das Materialverhalten wird vielmehr durch die Fließkurve (Abbildung 2.4) dargestellt.

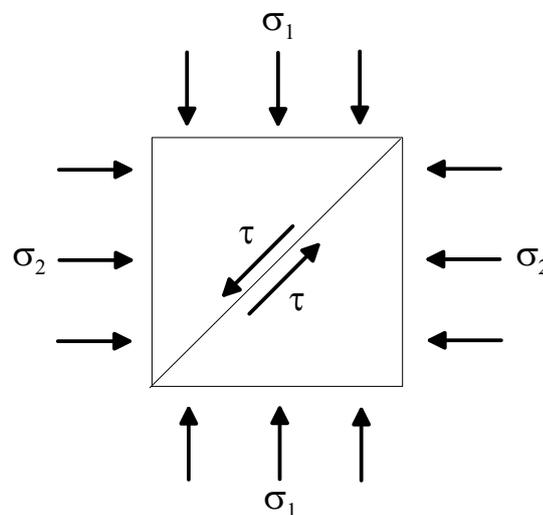


Abbildung 2.3: Belastungsfall durch zweiachsialen Druck mit den Normalspannungen σ_1 , σ_2 und τ [Zimmer, 1996]

Die Fließkurve beschreibt im τ/σ -Diagramm die Grenze, unterhalb dieser das Material der äußeren Belastung noch stand hält. Berührt der Spannungskreis an irgendeinem Punkt die Fließgrenze, dann verändert das Schüttgut seine Porosität. Spannungszustände, die unter der Fließkurve liegen, verursachen keine bleibende Deformation, Spannungszustände über der Kurve sind nicht möglich, da das Produkt der Belastung ausweicht. Schüttgüter weisen beim Fließen, abhängig von der jeweiligen Porosität, Fließkurven wie in Abbildung 2.4 auf [Zimmer, 1996].

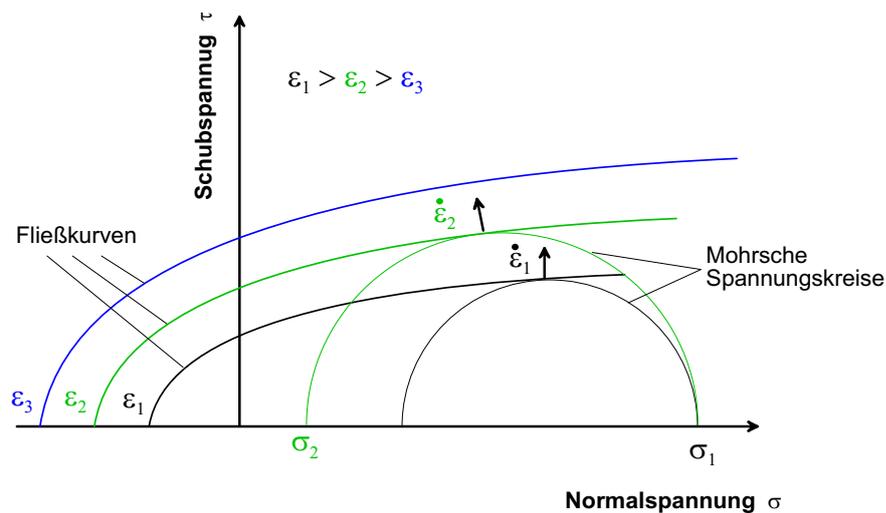


Abbildung 2.4: Fließkurven eines Schüttgutes bei unterschiedlichen Porositäten

Erreicht eine Beanspruchung (Abbildung 2.4, großer Kreis) im Ausgangsgut mit der Porosität ε die zugehörige Fließkurve, dann beginnt das Schüttgut zu fließen. Das Material dehnt sich aus und die Porosität nimmt zu. Diesem Zustand ist eine Fließkurve zugehörig, die mit dem augenblicklichen Mohr-Kreis einen Endzustand erreicht. Hierbei erfolgt das Fließen nur unter Deformation (Schnittpunkt ε_1 /kleiner Mohr-Kreis), also ohne Volumenausdehnung. Dieser Zustand wird als stationäres Fließen bezeichnet. Der Vektor $\dot{\varepsilon}$, der senkrecht auf der Fließkurve steht, gibt im Berührungspunkt einen Hinweis auf die Volumenänderung des Materials. Ein nach links geneigter Vektor bedeutet Volumenausdehnung, zeigt der Vektor nach rechts, so verdichtet sich das Schüttgut. Im Zustand des stationären Fließens zeigt der Vektor senkrecht nach oben [Zimmer, 1996].

Beim Tablettieren, also bei großen Druckspannungen, zeigen Schüttgüter Fließkurven wie in Abbildung 2.5 dargestellt. Auch hier gilt, dass das Material sich zu verändern beginnt, wenn der Spannungskreis die Fließgrenze berührt. Beim Berühren des Mohr-Kreises mit der Fließkurve (schwarze Linie) beginnt das Schüttgut mit der Porosität ε_1 sich zu verdichten und die Porosität verringert sich. Bei einer Beibehaltung des Beanspruchungszustandes (gleicher Mohr-Kreis) wird die Verformung sofort gestoppt. Um weiter zu verdichten, muss die Beanspruchung vergrößert werden, zum Beispiel von (1) nach (2). Hierbei ist zu beachten, dass bei gleicher Normalspannung $\sigma_1 = \sigma'_1$ verschiedene Mohr-Kreise entstehen können und somit unterschiedliche Porositäten bei gleicher Verdichtung vorliegen [Sommer, 1990; Ashton u. a., 1965].

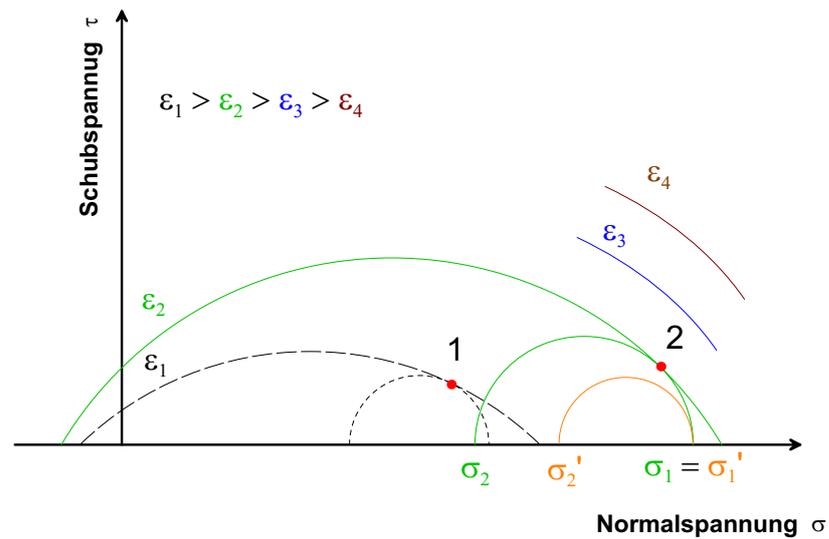


Abbildung 2.5: Fließkurven eines Schüttgutes beim Verdichten

2.1.5 Die Fließfähigkeit von Schüttgütern

Mit dem Begriff „gute Fließfähigkeit“ wird ausgedrückt, dass ein Schüttgut eine hohe Fluidität aufweist. Als „nicht fließend“ werden Produkte bezeichnet, die in Silos zu Auslaufstörungen neigen (z.B. durch Bildung von Schüttgutbrücken oder Schächten) oder sich während Lagerung und Transport verfestigen. Zur Charakterisierung des Fließverhaltens wird das Verhältnis von Verfestigungsspannung σ_1 zu Schüttgutfestigkeit σ_c herangezogen:

$$ff_c = \frac{\sigma_1}{\sigma_c}. \quad (2.15)$$

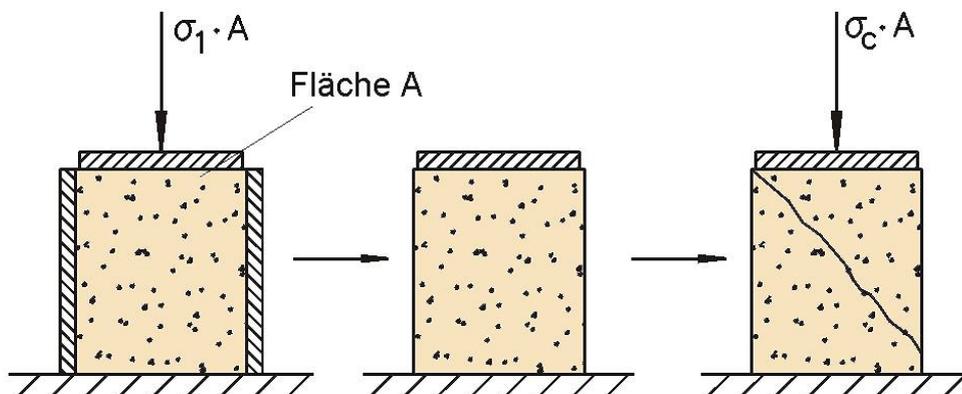


Abbildung 2.6: Einaxialer Modellversuch zur Druckfestigkeit [Schulze, 2003]

Abbildung 2.6 zeigt einen mit einem feinkörnigen, kohäsiven Schüttgut gefüllten Hohlzylinder, dessen Wände als reibungsfrei anzusehen sind. Das Schüttgut wird zuerst durch die Verfestigungsspannung σ_1 in vertikaler Richtung verfestigt. Anschließend wird die zylindrische Schüttgutprobe nach Wegnahme des Hohlzylinders einer zunehmenden vertikalen Druckspannung ausgesetzt. Die Spannung, die zum Bruch bzw. zum Fließen der Schüttgutprobe führt, wird als Schüttgutfestigkeit σ_c bezeichnet. Die Schüttgutfestigkeit σ_c ist abhängig von der vertikalen Verfestigungsspannung σ_1 . Die Fließfähigkeit kann daher nur bei Verwendung der gleichen Verfestigungsspannung σ_1 über den ff_c Wert zum Vergleich verschiedener Schüttgüter dienen. Abbildung 2.7 zeigt die Beziehung zwischen dem ff_c Wert und der Verfestigungsspannung σ_1 . In der Abbildung ist ebenfalls ein typischer Verlauf der Schüttgutfestigkeit σ_c in Abhängigkeit von der Verfestigungsspannung σ_1 dargestellt (Kurve A in Abbildung 2.7).

Hier wird deutlich, dass der ff_c Wert von der Verfestigungsspannung σ_1 abhängt; er wird mit steigendem σ_1 größer. Um so größer die Fließfähigkeit ff_c ist, desto besser fließt das Schüttgut. Folgende Einteilung ist nach Jenike üblich:

$ff_c < 1$	nicht fließend
$1 < ff_c < 2$	sehr kohäsiv (bis nicht fließend)
$2 < ff_c < 4$	kohäsiv
$4 < ff_c < 10$	leicht fließend
$10 < ff_c$	frei fließend

In Abbildung 2.7 sind die Grenzen der Bereiche eingezeichnet, die sich aus der oben angegebenen Einteilung ergeben.

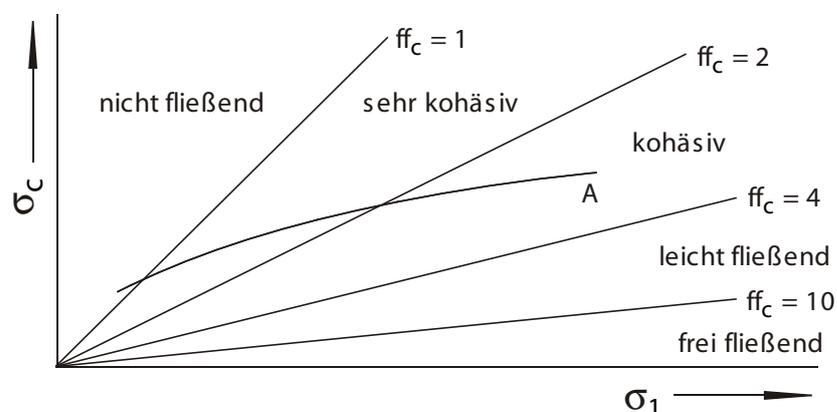


Abbildung 2.7: Schüttgutfestigkeit σ_c in Abhängigkeit von der Verfestigungsspannung σ_1 ; Bereiche unterschiedlicher Fließfähigkeit [Schulze, 2003]

2.2 Glasübergangszustand

2.2.1 Grundlagen

Der Begriff des Glasübergangszustands wird in der Literatur oft im Zusammenhang mit Kunststoffen erwähnt. Als Glasübergangstemperatur wird die Temperatur bezeichnet, bei der ein Kunststoff vom harten, spröden, glasartigen in den weichen gummiartigen Zustand übergeht. Dieses Phänomen ist aber keineswegs auf Kunststoffe beschränkt, sondern tritt bei allen Polymeren auf, die ganz oder teilweise im amorphen Zustand vorliegen. In amorphen Feststoffen befinden sich die Moleküle im Gegensatz zur kristallinen Form nicht in einer regelmäßigen Gitterstruktur, sondern liegen ungeordnet vor. Diesbezüglich besteht der einzige Unterschied zu einer Flüssigkeit darin, dass die Molekülketten sich untereinander nicht bewegen und dass ein Feststoff vorliegt. Bei amorphen Feststoffen wird daher auch von „festen Flüssigkeiten“ oder einem Stadium zwischen fest und flüssig gesprochen.

Die regelmäßige Kristallstruktur stellt die platzsparendste Möglichkeit der Molekülanordnung im Raum dar. Lediglich Radikale oder funktionelle Gruppen auf der äußeren Oberfläche des Kristalls können mit externen Stoffen, wie Wasser, interagieren. Im amorphen Stadium sind die Molekülketten weitaus weniger dicht gepackt, woraus ein größeres spezifisches Volumen resultiert. Darüber hinaus bietet die ungeordnete Struktur eine größere Angriffsfläche für Reaktionspartner, z.B. kann ein Stoff im amorphen Stadium leichter Wasser absorbieren [Bhandari und Howes, 2000].

Es können aber auch nicht polymere Moleküle in den Glaszustand überführt werden. So bildet sich aus Wasser, welches sehr schnell unter -135 °C abgekühlt wird, ein amorpher Feststoff. Da die Bildung von Eiskristallen aus flüssigem Wasser eine Funktion der Zeit ist, haben die Moleküle nicht genügend Zeit, sich in eine regelmäßige Kristallstruktur einzuordnen. So ergibt sich auch für Wasser eine messbare Glasübergangstemperatur [Gastreich, 1996].

Wird nun einem amorphen Festkörper Energie in Form von Wärme zugeführt, erweicht er und tritt in den „gummiartigen“ Zustand über. Dabei nimmt die Viskosität schlagartig von $10^{12} - 10^{14}$ Pas auf $10^6 - 10^8$ Pas ab, und der Stoff weist einen klebrigen Charakter auf [Bhandari und Howes, 2000]. Das freie Volumen, d.h. der Raum in einer Polymermatrix, der nicht von Polymerketten ausgefüllt ist, steigt beim Durchschreiten des Glasübergangs hingegen an. Die Molekülketten im gummiartigen Zustand sind flexibler und können sich mit

steigender Temperatur besser bewegen, wobei der Raum zwischen den Ketten größer wird [Nelson und Labuza, 1992].

Mit weiter zunehmender Temperatur erreichen die Molekülketten schließlich den Punkt, an dem sie sich frei bewegen können. Der Stoff wird immer weicher und elastischer bis er schließlich flüssig wird [Kratzert, 2005]. Der Phasenübergang ist klar vom Schmelzvorgang, der beim Erhitzen kristalliner Feststoffe eintritt, abzugrenzen. Beginnt ein Kristall zu schmelzen, bleibt seine Temperatur konstant, bis er ganz geschmolzen ist. Die in dieser Zeit zugeführte Energie wird ausschließlich zur Zerstörung der Gitterstruktur aufgewendet (=latente Schmelzwärme). Bei amorphen Festkörpern muss kein Kristall aufgelöst werden. Eine konstante Wärmezufuhr führt sowohl zu einer stetigen Temperaturerhöhung als auch zu einer kontinuierlichen Abnahme der Viskosität.

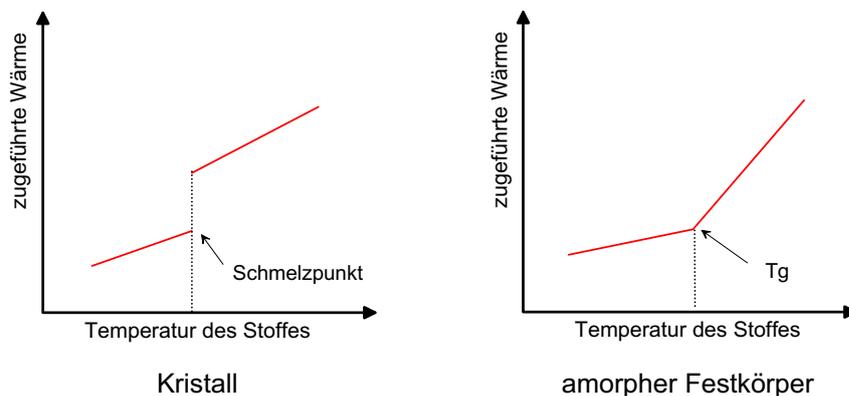
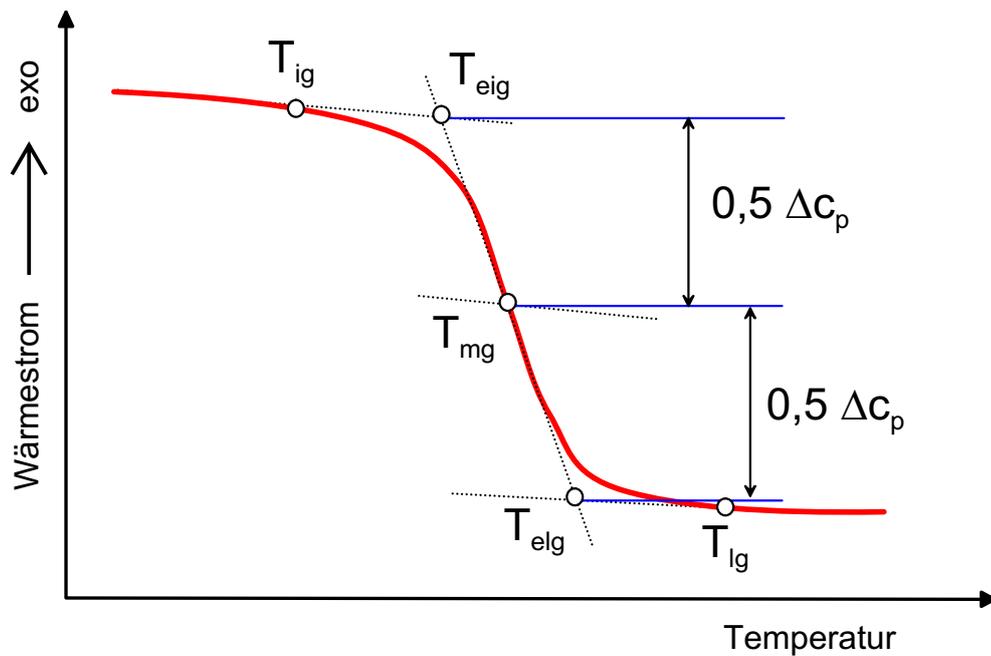


Abbildung 2.8: Temperaturverlauf beim Erhitzen eines Kristalls und eines amorphen Feststoffes [Kratzert, 2005]

Auch andere temperaturabhängige Eigenschaften verändern sich beim Glasübergang. Dazu gehört der Anstieg des thermischen Ausdehnungskoeffizienten, der Dielektrizitätskonstanten und der Wärmekapazität (c_p). Die spezifische Wärmekapazität ändert sich im Bereich des Glasübergangs stufenweise. Als Glasübergangstemperatur T_g wird die Temperatur angegeben, bei der die Hälfte der Änderung der spezifischen Wärmekapazität erreicht ist (Abbildung 2.9) [Ehrenstein u. a., 1998].



T_{ig}	Anfangstemperatur:	Temperatur der ersten nachweisbaren Abweichungen.
T_{eig}	Extrapolierte Anfangstemperatur:	Schnittpunkt der Wendetangente mit der von Temperaturen unterhalb des Glasübergangs extrapolierten Basislinie.
T_{mg}	Mittelpunkttemperatur, Glasübergangstemperatur:	Temperatur, bei der die Hälfte der Änderung der spezifischen Wärmekapazität ($0,5 \Delta c_p$) erreicht ist; die Temperatur des Schnittpunkts der Mittellinie zwischen den extrapolierten Basislinien vor und nach dem Glasübergang mit der Messkurve.
T_{elg}	Extrapolierte Endtemperatur:	Schnittpunkt der Wendetangente mit der von Temperaturen oberhalb des Glasübergangs extrapolierten Basislinie.
T_{lg}	Endtemperatur	Temperatur der letzten nachweisbaren Abweichungen.
Δc_p	Änderung der spez. Wärmekapazität	Stufenhöhe des endothermen Glasübergangs.

Abbildung 2.9: Typischer Glasübergang, der durch eine stufenförmige Änderung des Wärmestroms gekennzeichnet ist [Ehrenstein u. a., 1998]

Da der Anstieg der Wärmekapazität nicht von einer latenten Schmelzwärme begleitet wird, wird der Glasübergang als ein Übergang zweiter Ordnung bezeichnet. Die Änderung der physikalischen Eigenschaften des Polymers werden auch zur Bestimmung der Glasübergangstemperatur herangezogen (siehe Kapitel 2.2.3). Besonders bei vollständig amorphen Polymeren kommt es zu großen, meist stufenförmigen Eigenschaftsänderungen (vgl. Abbildung 2.9). Liegen die Moleküle hingegen in teilkristalliner Form vor, fallen diese Änderungen deutlich geringer aus, was Schwierigkeiten bei der exakten Bestimmung der Glasübergangstemperatur mit sich bringt [Ehrenstein u. a., 1998].

Ein teilkristalliner Feststoff besitzt sowohl einen Schmelzpunkt für den kristallinen Teil, als auch eine Glasübergangstemperatur für den amorphen Bereich (vgl. Abbildung 2.10).

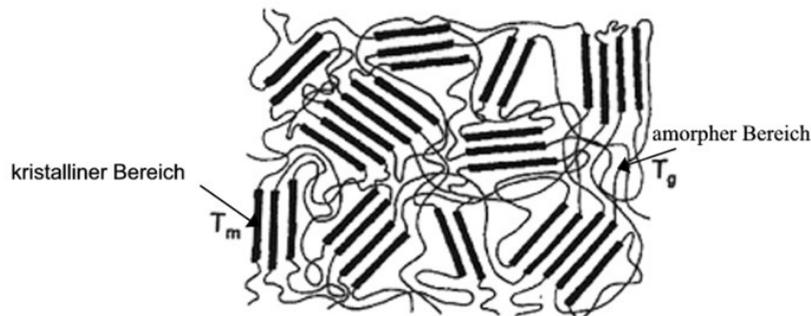


Abbildung 2.10: Schematische Darstellung eines teilkristallinen Polymers [Schenz, 1995]

Amorphe und teilkristalline Strukturen entstehen bei vielen Vorgängen in der Lebensmittelindustrie, so beispielsweise bei Extrusions-, Back- und Trocknungsprozessen. Diese Produkte zeigen daher auch das Glasübergangsphänomen [Kayacier und Singh, 2002].

2.2.2 Einflüsse auf die Glasübergangstemperatur (Lebensmittel)

2.2.2.1 Wassergehalt

Die Glasübergangstemperatur ist zwar charakteristisch für verschiedene Polymere, kann jedoch von mehreren Faktoren beeinflusst werden. Die Glasübergangstemperatur hängt von der Beweglichkeit der Molekülketten untereinander ab. Übersteigt die Temperatur die Glasübergangstemperatur, so erreicht das freie Volumen einen kritischen Wert, die Ketten können sich frei gegeneinander bewegen und der Stoff tritt in den gummiartigen Zustand über. Durch die poröse Oberfläche des amorphen Festkörpers können Wassermoleküle leicht eindringen und sich zwischen den Ketten einlagern. Diese werden durch die kleinen Moleküle weiter auseinander geschoben, so dass der freie Zwischenraum anwächst. Es ist deshalb weniger thermische Energie aufzubringen, damit das freie Volumen den kritischen Wert übersteigt und die Glasumwandlung einsetzt. Die Glasübergangstemperatur sinkt [Khalloufi u. a., 2000].

Da die Polymere bei niedrigerer Temperatur in den gummiartigen Zustand übergehen, spricht man von einem weichmachenden Effekt des Wassers. Dieser ist besonders stark ausgeprägt, weil die niedrige Glasübergangstemperatur des Wassers (-135°C) schon bei geringen Wassergehalten die Glasübergangstemperatur der Mischung aus amorphem Polymer und Wasser

drastisch absenkt. Wird die Glasübergangstemperatur eines Nahrungsmittels durch erhöhten Wassergehalt unter Raumtemperatur abgesenkt, bekommt es eine weiche klebrige Textur, was sich sowohl technologisch als auch sensorisch negativ auswirken kann [Bhandari und Howes, 2000].

Dementsprechend kann die Glasübergangstemperatur alternativ sowohl durch Erhöhen der Temperatur bei konstanter Feuchte als auch durch eine isotherme Erhöhung der Feuchte überschritten werden. Abbildung 2.11 stellt den weichmachenden Effekt des Wassers schematisch dar.

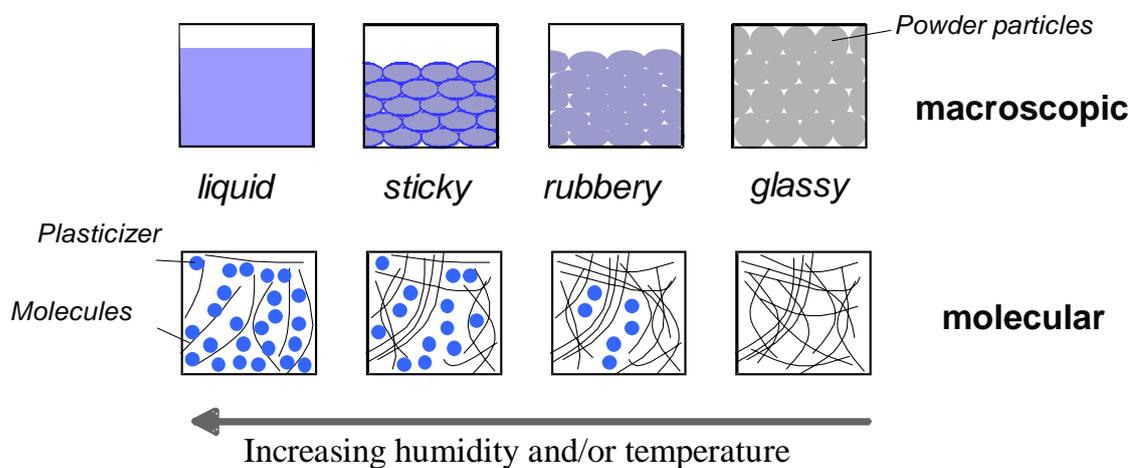


Abbildung 2.11: Weichmachereffekt bei amorphen Substanzen [Palzer und Zürcher, 2004a]

Aus Abbildung 2.12 geht deutlich hervor, dass der durch einen veränderten Wärmestrom (und damit durch eine veränderte spezifische Wärmekapazität) gekennzeichnete Glasübergangsbereich bei der Probe mit $a_w=0.75$ deutlich niedriger ist, als bei der Probe mit $a_w=0$ [Khalloufi u. a., 2000].

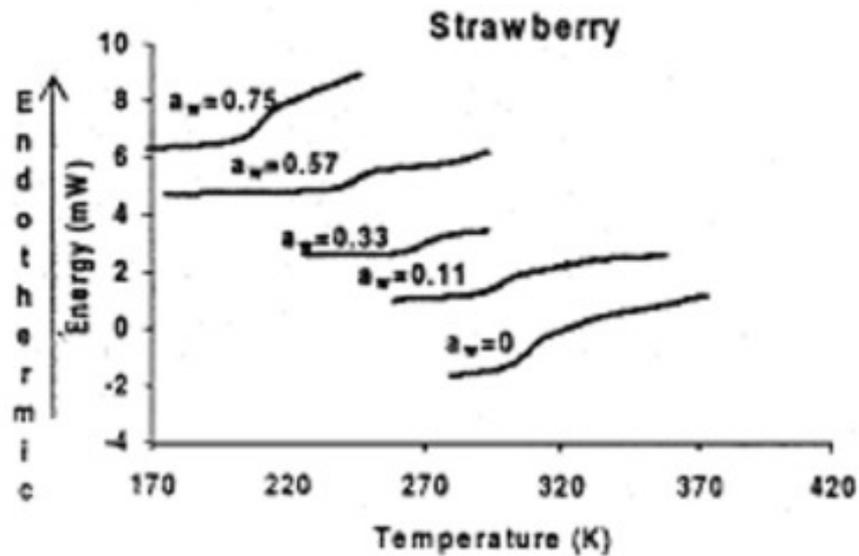


Abbildung 2.12: DSC Thermogramm für gefriergetrocknetes Erdbeerpulver bei Unterschiedlicher relativer Feuchtigkeit [Khalloufi u. a., 2000]

2.2.2.2 Molekülgewicht

Das Molekülgewicht der Polymere selbst beeinflusst allerdings auch die Höhe der Glasübergangstemperatur. Die Glasübergangstemperatur steigt mit zunehmender Molekülmasse stark an. Je länger die Molekülketten werden, desto kleiner wird der freie Raum zwischen den Polymeren und umso höher ist die Glasübergangstemperatur. Nachfolgende Abbildung 2.13 zeigt die Glasübergangstemperaturen von einigen Maltodextrinen mit unterschiedlichen DE-Werten (Dextroseäquivalent) im Bezug zur Feuchtigkeit. Es ist deutlich zu sehen, dass bei einer konstanten Feuchtigkeit der Maltodextrine, die Glasübergangstemperaturen der Maltodextrine mit einem niedrigeren Dextroseäquivalent, welches einer höheren Molekülmasse entspricht, höher liegen.

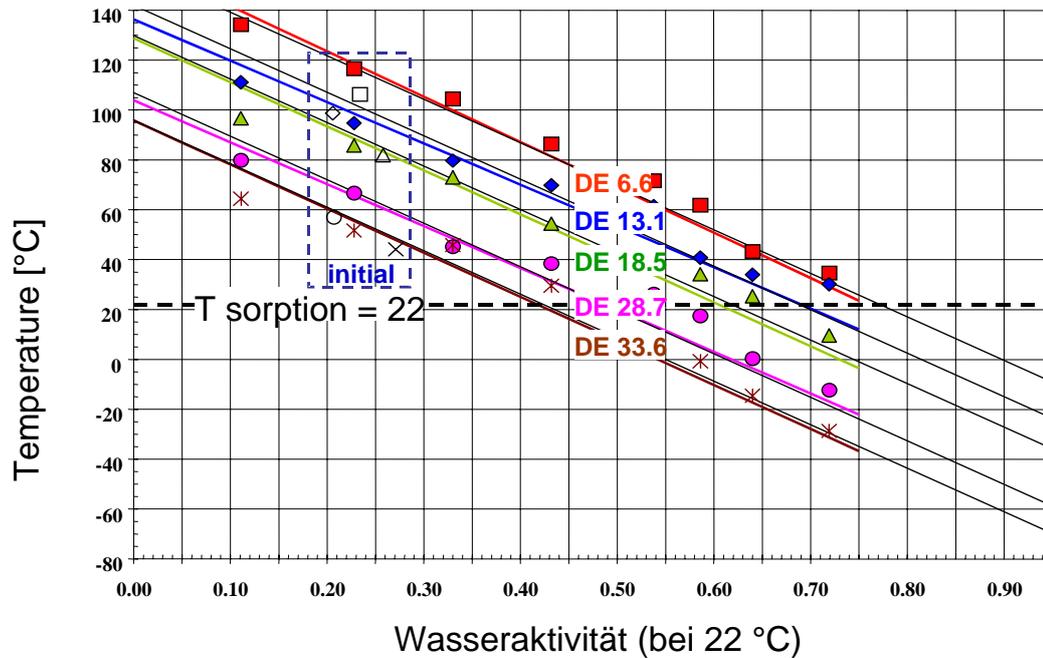


Abbildung 2.13: Einfluss des Molekulgewichtes von Maltodextrinen mit unterschiedlichen DE-Werten auf die Glasübergangstemperatur (bereitgestellt von Palzer, Nestlé PTC Singen)

Übersteigt die Molekülmasse jedoch einen kritischen Wert, bleibt die Glasübergangstemperatur konstant. Oberhalb dieser kritischen Molmasse ist das freie Volumen bereits so klein, dass es durch noch längere Ketten nicht mehr verringert werden kann [Mitsuiki u. a., 1999]. Diese Abhängigkeit wurde von verschiedenen Forschern experimentell bestätigt. So untersuchten bereits Steendam u. a. [2001b] die Glasübergangstemperatur von Poly (DL)-Milchsäure, in Abhängigkeit der Molekülmasse. Nachstehende Abbildung verdeutlicht diese Abhängigkeit. Darüber hinaus kann hier auch der unter Kapitel 2.2.2.1 erläuterte Einfluss des Wassergehaltes auf die Glasübergangstemperatur nachvollzogen werden.

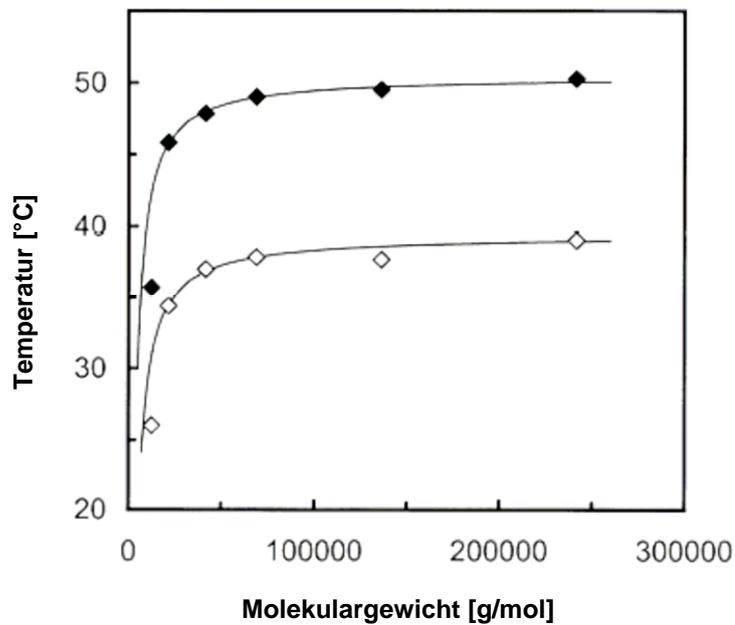


Abbildung 2.14: Einfluss des Molekulgewichtes von Poly (DL Milchsäure) auf die Glasübergangstemperatur einer trockenen(◆) sowie feuchten (◇) Poly (DL Milchsäure) Probe [Steendam u. a., 2001b]

2.2.2.3 Flexibilität der Hauptketten

Ein weiterer wichtiger Faktor für die Höhe der Glasübergangstemperatur stellt neben der Länge der Molekülkette auch die Flexibilität der Hauptkette dar. Ein Polymer hat eine niedrige Glasübergangstemperatur, wenn sich die Molekülketten schon bei geringen Temperaturen gegeneinander bewegen können. Hierbei wirkt sich eine flexible und biegsame Hauptkette positiv aus. Um diesen Sachverhalt zu verdeutlichen, wird hier auf Beispiele aus der Kunststoffindustrie zurückgegriffen.

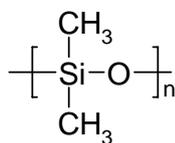


Abbildung 2.15: Strukturformelausschnitt von Polydimethylsiloxan

Beim Polydimethylsiloxan (Abbildung 2.15) ist die Hauptkette, die aus Sauerstoff- und Siliciumatomen besteht, so flexibel, dass die Glasübergangstemperatur bei -127°C liegt. Ein

Kunststoff, der keinen Übergang zum elastischen Zustand hat, ist Polyphenylsulfon (Abbildung 2.16):

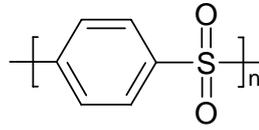


Abbildung 2.16: Strukturformelausschnitt von Polyphenylsulfon

Hier sind die Ketten so steif und unflexibel, dass der Kunststoff nie erweicht. Auch bei zunehmender Temperatur können die Polymerketten sich nicht gegeneinander verschieben; bevor ein gummiartiger Zustand eintreten kann, zersetzt sich das Molekül [Kratzert, 2005].

2.2.2.4 Einfluss von Seitenketten

Die Kettenbeweglichkeit, welche die Höhe der Glasübergangstemperatur bestimmt, wird zudem von den Seitenketten der Polymere beeinflusst. Dabei können einige Substituenten die Glasübergangstemperatur erhöhen, wohingegen andere in der Lage sind, diese zu senken.

Besitzt ein Polymer keine Seitenketten, so können sich die Hauptketten leicht gegeneinander verschieben. Dabei ergibt sich eine niedrige Glasübergangstemperatur. Hängen hingegen mittel- oder langkettige Substituenten an der Hauptkette, so können sich diese ineinander verhaken und so die Beweglichkeit der Polymere einschränken. Die Folge ist eine erhöhte Glasübergangstemperatur. Die Stärke dieses Einflusses hängt neben der Länge auch von der Art der Seitenketten ab.

Die Seitenketten können auch direkt das freie Volumen zwischen den Polymerketten verändern. Ähnlich wie beim Einsatz von Weichmachern (z.B. Wasser) werden die Molekülketten auseinander gedrückt, so dass der freie Zwischenraum wächst. Dabei halten längere Seitenketten einen größeren Abstand als kürzerkettige Substituenten [Kratzert, 2005].

Nachfolgende Abbildung 2.17 veranschaulicht diesen Effekt anhand von zwei Strukturformeln mit zugehörigen Glasübergangstemperaturen:

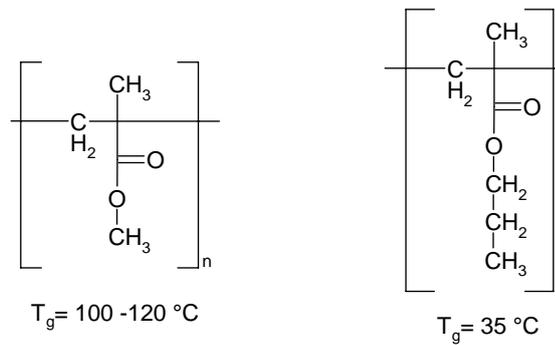


Abbildung 2.17: Strukturformel von Polymethylmethacrylat (links) und Polypropylmethacrylat (rechts) mit zugehörigen Glasübergangstemperaturen [Polymer-Science-Department, 2005]

2.2.3 Messmethoden zur Bestimmung der Glasübergangstemperatur

2.2.3.1 Dynamische Differenzkalorimetrie (DSC)

Mit Hilfe der Kalorimetrie wird die Wärmemenge bestimmt, die bei einer physikalischen oder chemischen Umwandlung eines Stoffes entsteht oder aufgebracht werden muss. Sowohl endotherme als auch exotherme Reaktionen bewirken eine Änderung der Enthalpie und können mit der Kalorimetrie untersucht werden [Ehrenstein u. a., 1998].

Wie in Kapitel 2.2.1 bereits erwähnt, verändert sich beim Glasübergang die spezifische Wärmekapazität. Da die direkte Messung dieser Änderung sich als schwierig erweist, wird bei der DSC der Wärmestrom ermittelt. Dieser ist direkt proportional zur Wärmekapazität, wobei der Proportionalitätsfaktor die Heizrate v ist:

$$\frac{\dot{Q}}{m} = v \cdot c_p \quad (2.16)$$

Verändert sich bei der Glasumwandlung die spezifische Wärmekapazität, so steigt oder sinkt auch der Wärmestrom [Ehrenstein u. a., 1998].

Da nur die Messung der Änderung des Wärmestroms von Interesse ist, besteht das DSC aus zwei Messzellen. Die sogenannte Referenzzelle ist leer, die andere enthält die Probe (siehe Abbildung 2.18).

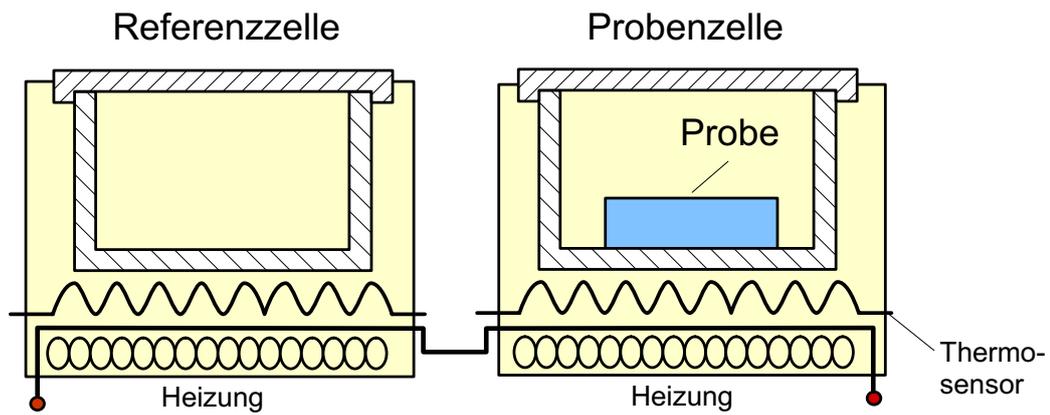


Abbildung 2.18: Prinzip der Dynamischen Differenzkalorimetrie (DSC)

Gemessen wird die Temperaturerhöhung, welche sich bei einem vorgegebenen Wärmefluss in einer Blindprobe und in der eigentlichen Probe ergibt. Da sich am Glasübergang die Wärmekapazität und somit auch der Wärmestrom ändert, lässt sich anhand dieser Änderung die Glasübergangstemperatur bestimmen (siehe Abbildung 2.19).

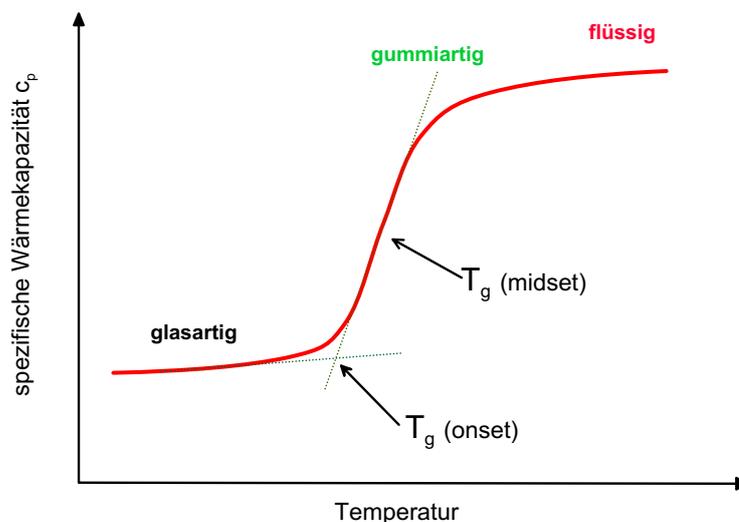


Abbildung 2.19: Messkurve eines DSC Gerätes bei Erreichen der Glasübergangstemperatur

Als „Onset“ des Glasübergangs wird diejenige Temperatur bezeichnet, ab welcher die zu beobachtende Änderung der Wärmekapazität einsetzt. Analog dazu wird die mittlere Temperatur der Änderung der Wärmekapazität „Midset“ genannt. Je nach Literaturquelle wird eine der beiden Temperaturen als Glasübergangstemperatur T_g definiert. In der Regel beträgt die Differenz zwischen beiden Werten 5-10°C. Zu beachten ist, dass das Ergebnis einer DSC-Messung vom gewählten Temperatur/Zeit-Gradienten abhängt. Wegen der Trägheit des mo-

lekularen Systems, ergeben sich höhere Glasübergangstemperaturen für höhere Aufheizraten [Palzer und Zürcher, 2004b].

Handelt es sich bei der Probe um einen teilkristallinen Feststoff, so kann der kristalline Teil sowohl kristallisieren als auch schmelzen. Da beide Übergänge eine Änderung des Wärmestromes mit sich bringen, sind bei den entsprechenden Temperaturen im DSC Thermogramm Peaks zu sehen (vgl. Abbildung 2.20).

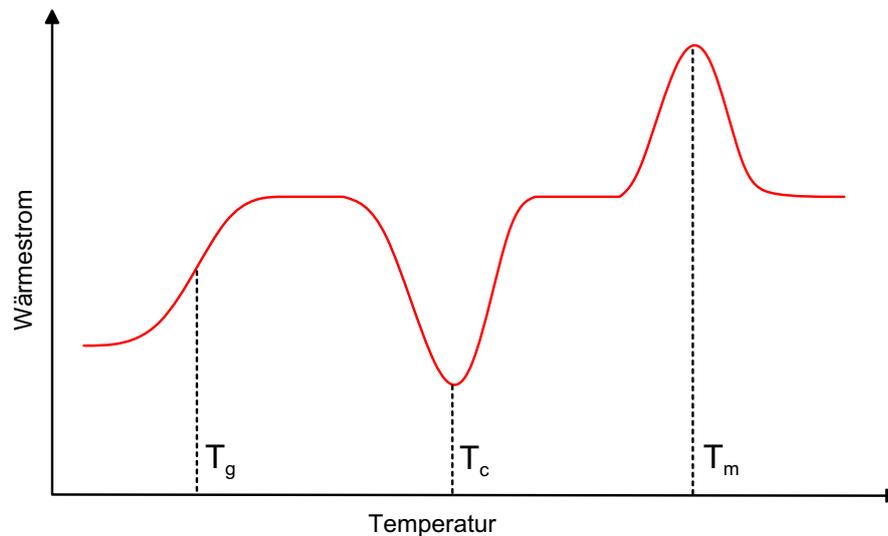


Abbildung 2.20: Thermogramm bei der Messung einer teilkristallinen Struktur

Die Peaks, die bei der Kristallisation (T_c) und beim Schmelzvorgang (T_m) auftreten, unterscheiden sich deutlich vom Kurvenanstieg im Bereich des Glasübergangs. Dies bestätigt die Annahme, dass es sich sowohl bei der Kristallisation als auch beim Schmelzen um einen Phasenübergang erster Ordnung handelt. Er wird von einer latenten Schmelz- bzw. Kristallisationsenthalpie begleitet. Die Fläche zwischen der Kurve und der extrapolierten Basislinie entspricht dieser Enthalpie [Polymer-Science-Department, 2005].

Temperaturmodulierte DSC (MDSC)

Ein spezielles Verfahren der Dynamischen Differenzkalorimetrie stellt die temperaturmodulierte DSC dar. Das Temperaturprogramm der DSC stellt entweder eine konstante Temperatur zur Verfügung oder heizt die Proben mit konstanter Geschwindigkeit auf. Bei der temperaturmodulierten DSC bleibt die Heizrate nicht konstant, sondern ändert sich sinusförmig mit der Zeit [Verdonck u. a., 1999]. Daraus folgt, dass die Temperatur in den Messzellen nicht

linear mit der Zeit steigt, sondern entsprechend einer sinus-modulierten Funktion verläuft. Der mittlere Temperaturanstieg bleibt hingegen linear und entspricht in Abbildung 2.21 der des herkömmlichen DSC Experimentes.

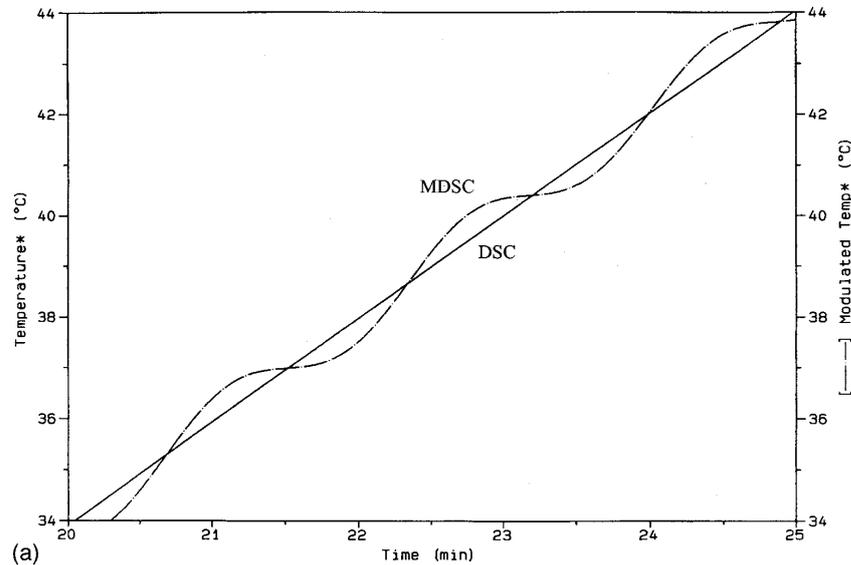


Abbildung 2.21: Temperatur als Funktion der Zeit bei einem typischen DSC und MDSC Experiment

Neben der mittleren linearen Heizrate wird der Temperaturverlauf im MDSC Experiment im Wesentlichen von der Amplitude und der Frequenz der modulierten Temperatur beeinflusst. Mathematisch besteht zwischen den genannten Größen folgender Zusammenhang:

$$A(t) = v_L + A_{mod} \cdot \frac{2\pi}{P} \cdot \cos\left(\frac{2\pi}{P} \cdot t\right) \quad (2.17)$$

$A(t)$ = Heizratenamplitude (zeitabhängig)

v_L = lineare Heizrate

A_{mod} = Modulationsamplitude

P = Periode

t = Zeit

Zur Messung des Glasübergangs eignet sich eine höhere, für die Betrachtung von Schmelzvorgängen eine kleinere Modulationsamplitude. Die Frequenz sollte so gewählt werden, dass während des Glasumwandlungsvorganges mindestens vier Perioden ablaufen.

2.2.3.2 Dynamisch-Mechanische Analyse (DMA)

Mit der dynamisch-mechanischen Analyse, auch dynamisch-mechanisch-thermische Analyse (DMTA) genannt, werden die mechanischen Eigenschaften der Probe in Abhängigkeit von der Temperatur bestimmt. Dabei wird der Elastizitätsmodul bestimmt, welcher sich mit steigender Temperatur und insbesondere bei der Glasumwandlung verändert. Die Änderung mit der Temperatur erlaubt die Bestimmung der Glasübergangstemperatur T_g .

Zur Messung wird eine dynamische, meist sinusförmige Kraft auf die Probe ausgeübt. Das resultierende Antwortsignal ist hinsichtlich der Phasenlage verschoben und besitzt eine niedrigere Amplitude als die ursprüngliche Kraft (siehe Abbildung 2.22).

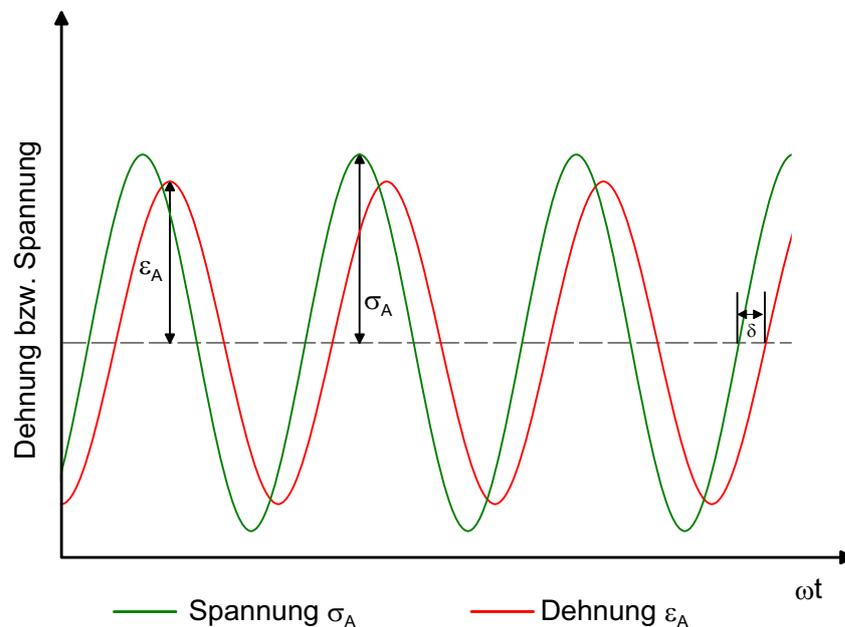


Abbildung 2.22: Messkurve eines DMA Gerätes

Das Verhältnis aus der dynamischen Deformationskomponente zu der elastischen Spannung beinhaltet eine komplexe Größe E^* (komplexe Modul). Je nach Verformungsart wird der komplexe Modul auch mit G^* , K^* oder L^* bezeichnet und ist ein Maß für die Materialsteifigkeit der Probe. Der komplexe Modul setzt sich aus dem Speichermodul E' (Realteil) und dem Verlustmodul E'' (Imaginärteil) zusammen. Der Speichermodul beschreibt das Vermögen des Materials, Energie zu speichern, und steht in Beziehung mit seiner Steifigkeit. Er ist direkt proportional zur maximal während einer Belastungsperiode elastisch gespeicherten Energie, wohingegen der Verlustmodul den Anteil der mechanisch zugeführten Energie beschreibt, den

die Probe in Wärme umwandelt. Beide Größen hängen neben den Messbedingungen (Temperatur, Luftfeuchtigkeit) und der Vorgeschichte des Materials im Wesentlichen von der Frequenz der ausgeübten Kraft ab [Ehrenstein u. a., 1998].

Somit stellen die Amplituden der Spannung und der Verformung sowie die Zeitverschiebung δ/ω die Messgrößen dar, die bei der DMA ermittelt werden müssen. Der Verlustfaktor $\tan \delta$ ist ein Maß für die Energieverluste und kennzeichnet die mechanische Dämpfung eines viskoelastischen Systems. Mit dem Speicher- und Verlustmodul steht er in folgendem mathematischen Zusammenhang:

$$\tan \delta = \frac{E''(\omega)}{E'(\omega)} \quad (2.18)$$

Besitzt das Material einen hohen nichtelastischen Verformungsanteil, so resultiert daraus ein hoher Verlustfaktor. Ein elastischeres Material wird bei einer Messung zu einem geringeren $\tan \delta$ -Wert führen [Ehrenstein u. a., 1998].

Befindet sich ein amorphes Polymer im Glaszustand, sind die Molekülketten unbeweglich und steif und können den schwingend einwirkenden Belastungen nicht folgen. Hieraus resultiert ein erhöhter Speichermodul E' . Tritt das Polymer beim Durchschreiten der Glasübergangstemperatur in den gummi- oder entropieelastischen Zustandsbereich ein, können die Moleküle den schwingenden Belastungen gerade folgen und es wird das Maximum an Energie in innere Reibung umgesetzt. Der Verlustmodul, als Maß für die dissipierte Energie, durchläuft hier ein Maximum und der Speichermodul fällt auf ein tausendstel bis zehntausendstel seines ursprünglichen Wertes ab [Ehrenstein u. a., 1998]. Im Bereich des Glasübergangs können daher folgende DMA-Kurven in Abhängigkeit von der Temperatur ermittelt werden:

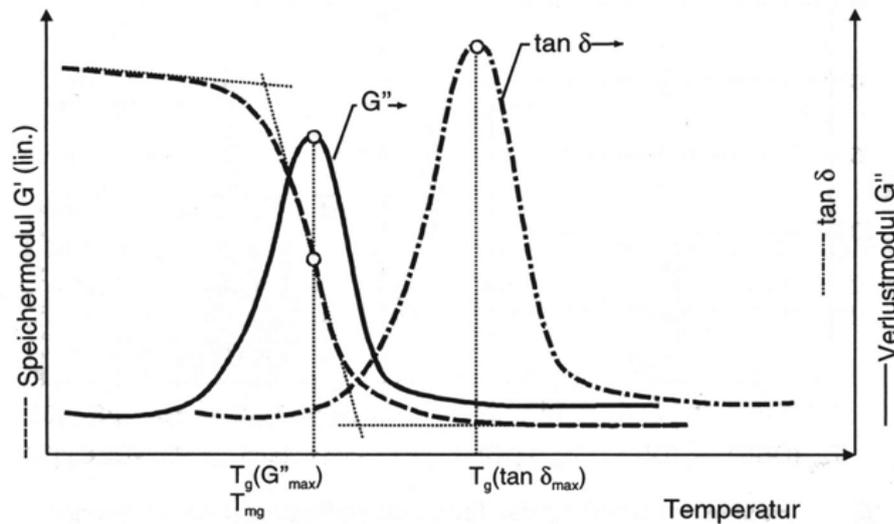


Abbildung 2.23: Glasübergang als Maximum des Verlustmoduls G''_{max} und des Verlustfaktors $\tan \delta_{max}$ im Vergleich zur Mittelpunktstemperatur des stufenförmigen Speichermodulabfalls [Ehrenstein u. a., 1998]

Zur Bestimmung der Glasübergangstemperatur kann prinzipiell jede der drei Kurven herangezogen werden. Der stufenförmige Abfall des Speichermoduls wird analog zur DSC-Messung ausgewertet. Es wird hierbei oberhalb und unterhalb der Glasübergangsstufe eine Tangente an die Kurve angelegt. Die Wendetangente im Stufenabfall schneidet die beiden anderen Tangenten in der extrapolierten Anfangs- bzw. Endtemperatur. Aus der halben Stufenhöhe wird die Mittelpunktstemperatur T_{mg} bestimmt. Häufig wird die Temperatur, die beim Maximum des Verlustmoduls oder des Verlustfaktors herrscht, als Glasübergangstemperatur angesehen. Die Auswertung der Kurvenmaxima sind im Gegensatz zur Stufenauswertung einfacher durchzuführen. Aus Abbildung 2.23 wird ersichtlich, dass die Bestimmung der Glasübergangstemperatur aus dem Verlustmodulmaximum relativ gut mit der Stufenauswertung der DMA übereinstimmt. Darüber hinaus zeigt sich, dass das Maximum der $\tan \delta$ -Kurve bei einer höheren Temperatur auftritt als das der Verlustmodulkurve [Ehrenstein u. a., 1998].

Im Allgemeinen stimmt die Temperatur von G''_{max} relativ gut mit der in der DSC ermittelten Glasübergangstemperatur überein. Dennoch herrscht bei der Wahl der Auswertungsmethode in der Praxis Uneinigkeit, was auf verschiedene Herstellerangaben und unterschiedliche Normenvorschläge zurückzuführen ist. Es ist daher bei der Angabe der Glasübergangstemperatur unbedingt erforderlich, neben den Messparametern auch auf die Wahl der Bestimmungsmethode hinzuweisen [Ehrenstein u. a., 1998].

Die Messung mit einem DMA-Gerät erfordert eine einheitliche Probengeometrie. Die Probe muss daher auf eine definierte Korngröße vermahlen werden und unter einem bestimmten

Druck zu Tabletten gepresst werden. Hierzu werden, je nach Probenmaterial, Drücke von 94-300 MPa eingesetzt. Ein derart hoher Druck ist erforderlich, um ein Zerfallen der Probe während der Messung zu vermeiden. Anschließend muss die Probe bis zur Massenkonstanz getrocknet werden, um Problemen, die durch die Verdampfung von Wasser bei der DMA-Messung auftreten können, vorzubeugen [Kayacier und Singh, 2002; Kalichevsky u. a., 1992].

Auf Grund der unterschiedlichen Bauweise sind zwei Grundtypen von DMA-Messgeräten zu unterscheiden. Beim Torsionsschwinggerät (Abbildung 2.24) wird die Probe zwischen zwei Halterungen eingespannt und einer Torsionsbelastung unterzogen.

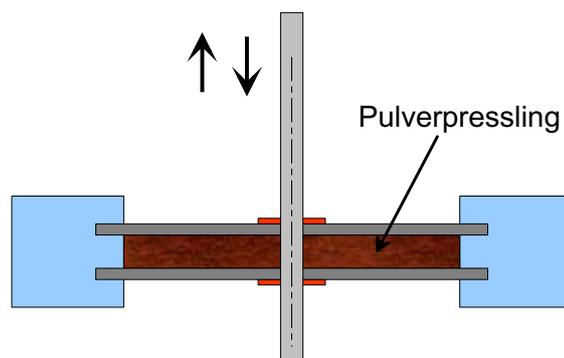


Abbildung 2.24: Prinzip Torsionsschwinggerät

Während einer Messung können mehrere Frequenzen gewählt und die Temperatur je nach erwarteter Glasübergangstemperatur geregelt werden. Die eingespannte Probe wird mit definierter Auslenkung und Frequenz in sinusförmige Schwingung versetzt. Auf Grund der Dämpfungseigenschaft des Probenmaterials bleibt das Drehmoment um den Phasenwinkel δ hinter der Verformung zurück (vgl. Abbildung 2.22). Mit gemessenen Werten für das Drehmoment, dem Phasenwinkel und die Geometriekonstanten der Probe, lassen sich der komplexe Modul, der Speichermodul, der Verlustmodul sowie der Verlustfaktor berechnen. Werden diese Werte in Abhängigkeit von der Temperatur ermittelt, kann die Glasübergangstemperatur gemessen werden [Ehrenstein u. a., 1998].

Anstelle der Torsionsbelastung kann die Probe zur Messung auch mit einer Biege-, Zug-, Druck- oder Scherkraft beaufschlagt werden. Die meisten dieser Geräte üben auf die Probe eine vertikale Belastung aus und besitzen daher die gleiche Grundbauweise. Die unterschiedlichen Belastungen werden meist in ein und demselben Gerät durch den Austausch der Einspannvorrichtung realisiert [Ehrenstein u. a., 1998].

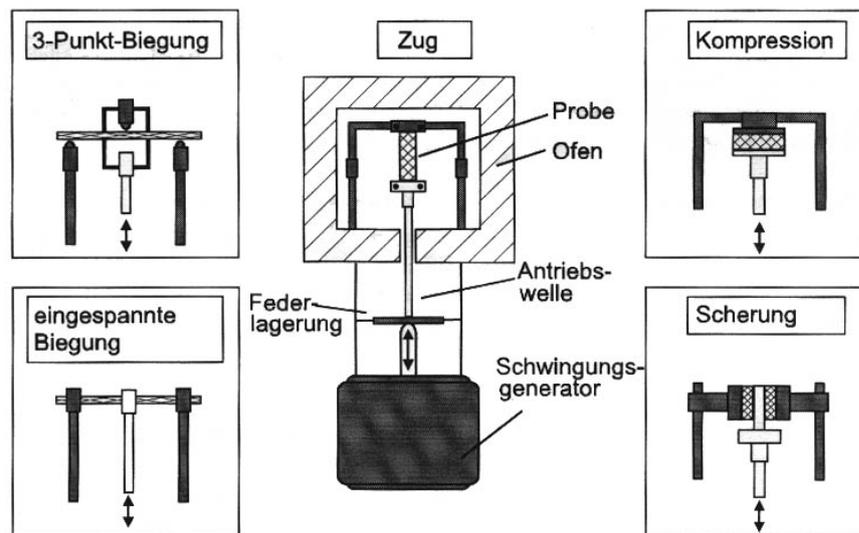


Abbildung 2.25: Schematischer Aufbau eines DMA Gerätes unter vertikaler Belastung mit den möglichen Einspannvorrichtungen [Ehrenstein u. a., 1998]

Die Auswahl des geeigneten Messkopfes sollte unter Berücksichtigung der Geometrie der Probe sowie ihres Elastizitätsmoduls und ihrer Konsistenz erfolgen. So eignen sich Zugmessungen besonders für die Untersuchung dünner Proben, wohingegen für weiche Materialien die Belastung unter axialer Scherung sowie der Druckversuch Verwendung findet. Die Ermittlung und Auswertung der Messparameter erfolgt analog zur Messung mit einem Torsionsschwinggerät [Ehrenstein u. a., 1998].

2.2.3.3 Thermomechanische Analyse (TMA)

Mit Hilfe eines Dilatometers kann die lineare Ausdehnung eines Festkörpers in Abhängigkeit von der Temperatur gemessen und damit der thermische Längenausdehnungskoeffizient $\alpha(T)$ berechnet werden. Im Glasübergangsbereich ändert sich in amorphen Polymeren neben einer Reihe anderer physikalischer Eigenschaften auch der thermische Längenausdehnungskoeffizient. Im Gegensatz zu einem herkömmlichen Dilatometer, wird bei der Thermomechanischen Analyse die Probe mit einer konstanten, meist geringen Kraft belastet [Ehrenstein u. a., 1998].

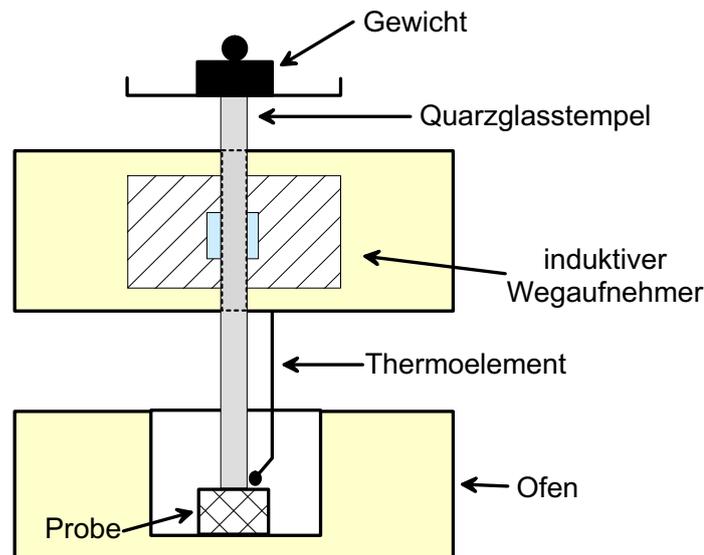


Abbildung 2.26: Schematischer Aufbau einer TMA-Apparatur

Zur Messung wird die Probe in einen Probenhalter aus Quarzglas eingesetzt. Der Quarzglasstempel steht in Kontakt mit der Probe und ist mit einem Gewicht von ca. 0,1 bis 5 g belastet. Die Temperatur wird entsprechend einem Programm kontinuierlich verändert. Dehnt sich die Probe aus oder zieht sie sich zusammen, verschiebt sich der Stempel, der in einen induktiven Wegaufnehmer integriert ist. Somit kann die Position des Stempels und damit die Längenausdehnung der Probe in Abhängigkeit von der Temperatur aufgezeichnet werden.

Um eine gleichmäßige Ausdehnung der Probe zu gewährleisten, muss sie homogen sein und insbesondere in Messrichtung planparallele Flächen aufweisen. So wird die Probe meist gemahlen und in zylindrische oder quaderförmige Form gepresst. Je nach Probengeometrie und Fragestellung (Bestimmung der Glasübergangstemperatur oder Untersuchung des Ausdehnungsverhalten) kommen unterschiedliche Stempelformen zum Einsatz (vgl. Abbildung 2.27). Auf Grund der großen Auswahl an Messsonden können daher neben festen Proben auch Fasern, Filme und pulverförmige Materialien untersucht werden [Ehrenstein u. a., 1998].

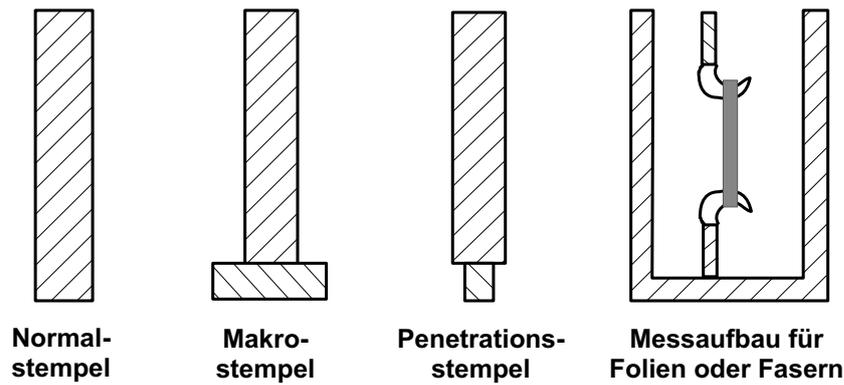


Abbildung 2.27: Unterschiedliche Stempelformen der TMA

Der Penetrationsstempel mit seiner geringen Auflagefläche von nur ca. $0,8 \text{ mm}^2$ eignet sich zur Bestimmung der Glasübergangstemperatur, da durch das Eindringen des Stempels beim Erweichen der Probe ein gut auswertbares Signal entsteht. Soll hingegen der thermische Längenausdehnungskoeffizient außerhalb des Glasübergangsbereiches bestimmt werden, ist ein Messkopf mit Normal- oder Makrostempel zu bevorzugen.

Je nachdem, ob die Messung im Zug- oder Schubmodus und mit welcher Stempelform durchgeführt wird, unterscheiden sich die aufgezeichneten Diagramme. Zur Ermittlung der Glasübergangstemperatur aus den Diagrammen (vgl. Abbildung 2.28) kann sowohl die Längenänderungskurve als auch die Funktion des Längenausdehnungskoeffizienten α ausgewertet werden.

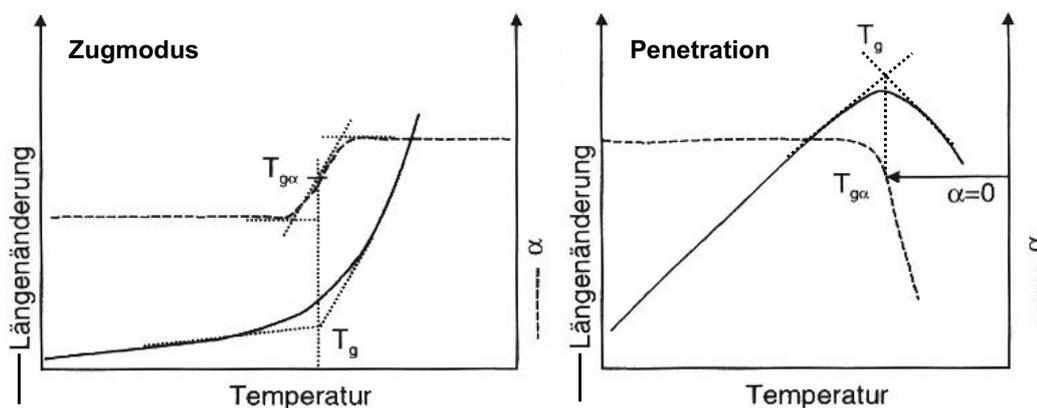


Abbildung 2.28: Ausdehnungsverhalten im Bereich des Glasübergangs (links: Zugmodus, rechts: Penetration) [Ehrenstein u. a., 1998]

Die Bestimmung der Glasübergangstemperatur erfolgt anhand der Längenänderungskurve durch Ermittlung des Schnittpunktes der extrapolierten Tangenten vor und nach dem Glasüber-

gang. Um aus der α -Kurve die Glasübergangstemperatur zu ermitteln, muss für eine Messeinrichtung im Zugmodus (vgl. Abbildung 2.28, links) die Temperatur am Wendepunkt der Kurve abgelesen werden. Bei Verwendung eines Penetrationsstempels (vgl. Abbildung 2.28, rechts) kann die Temperatur, bei der $\alpha=0 \mu\text{m}/\text{m}^\circ\text{C}$ beträgt, als Glasübergangstemperatur betrachtet werden [Ehrenstein u. a., 1998].

2.2.3.4 Phase Transition Analyzer (PTA)

Eine weitere Möglichkeit zur Bestimmung der Glasübergangstemperatur besteht in der Verwendung eines Phase Transition Analyzer (PTA). Hierbei wird, ähnlich wie bei einem TMA-Gerät, die Längenausdehnung einer Probe in Abhängigkeit von der Temperatur gemessen und so die Glasübergangstemperatur bestimmt.

Der PTA stellt ein Kapillarrheometer dar, welches das Untersuchungsmaterial unter typischen Extrusionsbedingungen (Temperatur über 100°C , Druck über 12 bar und Wassergehalt über 15%) misst. Im Gegensatz zu Rheometern aus der Kunststoffindustrie wird die Probe nicht in die Umgebung, sondern in eine zweite geschlossene Kammer extrudiert, wodurch Feuchtigkeitsverlust vermieden wird und Analysen oberhalb von 100°C durchgeführt werden können. Das Messgerät nutzt eine Kombination aus Zeit, Temperatur, Druck und Feuchtigkeit, um die Glasübergangstemperatur eines Biopolymers zu bestimmen.

Wie aus Abbildung 2.29 ersichtlich, sind die zwei Bereiche des Probenraumes eines PTA durch einen austauschbaren Einsatz (Capillary Die) voneinander getrennt und können durch den Betrieb der Heiz- und Kühlelemente auf die gewünschte Temperatur gebracht werden. Die beiden Kolben werden nach dem Einbringen des Probenmaterials fixiert und halten somit das Volumen des gesamten Probenraumes konstant. Die Druckluftzylinder am Boden des PTA üben einen konstanten Druck von 100 bis 160 bar auf die Probe aus, und ein linearer Stellungsgeber misst die Deformation der Probe relativ zu seiner Ausgangshöhe [Strahm und Plattner, 2001].

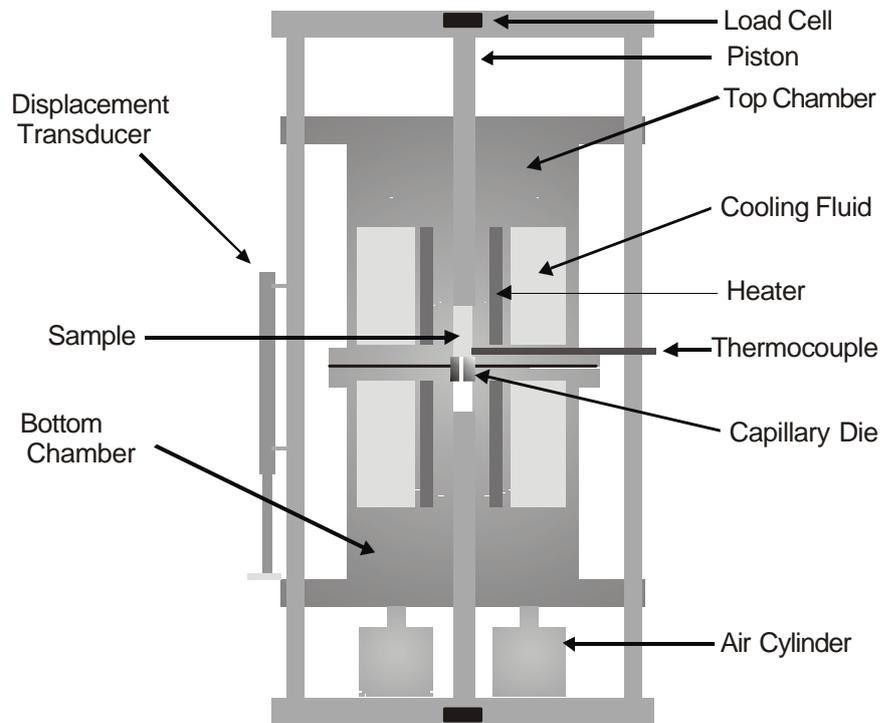


Abbildung 2.29: Schematische Darstellung eines Phase Transition Analyser [Strahm und Plattner, 2001]

Durchschreitet ein Polymer bei einer bestimmten Temperatur den Glasübergang, erweicht das Material und wird durch den konstanten Druck kompaktiert. Dabei verschiebt sich die gesamte Kammer und die Probe wird zwischen dem feststehenden Kolben und dem mit der Kammer beweglichen Einsatz zusammengepresst. Der lineare Stellungsgeber registriert diese Verschiebung und ein Computer zeichnet diese in Abhängigkeit von der Temperatur auf (vgl. Abbildung 2.30).

Soll neben der Glasübergangstemperatur noch die Schmelztemperatur der Probe bestimmt werden, wird nach vollständiger Kompaktierung des Materials der konstante Druck gelöst und der Einsatz durch einen zweiten, mit einer Öffnung versehenen Einsatz, ersetzt. Anschließend wird erneut ein konstanter Druck aufgebaut und die Probe entsprechend einer bestimmten Heizrate erwärmt. Beginnt die Probe zu schmelzen, fließt sie durch die Öffnung, und der Stellungsgeber detektiert die durch den Schmelzvorgang hervorgerufene Verschiebung (vgl. Abbildung 2.30).

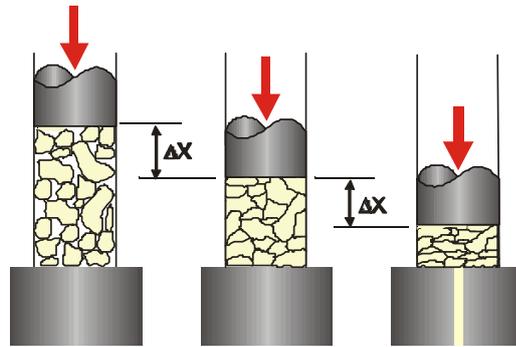


Abbildung 2.30: Schematische Darstellung einer Messung mittels PTA [Strahm und Plattner, 2001]

Die Verschiebung der Probenkammer wird in Abhängigkeit von der Temperatur aufgezeichnet, so dass aus dem entstehenden Diagramm sowohl die Glasübergangstemperatur (T_g) als auch der Schmelzpunkt (T_m) der Probe ermittelt werden können (vgl. Abbildung 2.31). Hierbei ist zu beachten, dass die durch den Glasübergang hervorgerufene Probenerweichung und damit die Verschiebung der Messkammer über einen Temperaturbereich erfolgt, da die verschiedenen Biopolymere, aus denen das zu untersuchende Material meist besteht, unterschiedliche Glasübergangstemperaturen besitzen. Es wird daher aus der Temperatur, die zu Beginn der Kammerverschiebung vorliegt, und der Temperatur am Ende der Kompaktierung ein Mittelwert berechnet und als Glasübergangstemperatur betrachtet. Die Temperatur, bei der die Probe durch die Öffnung zu fließen beginnt, stellt die Schmelztemperatur dar. Der Abfall der Kurve nach Beendigung der Kompaktierung ist dadurch bedingt, dass der Einsatz ausgewechselt und dazu die Kammer geöffnet werden muss. Er beruht also nicht auf einer Veränderung des Probenmaterials [Strahm und Plattner, 2001].

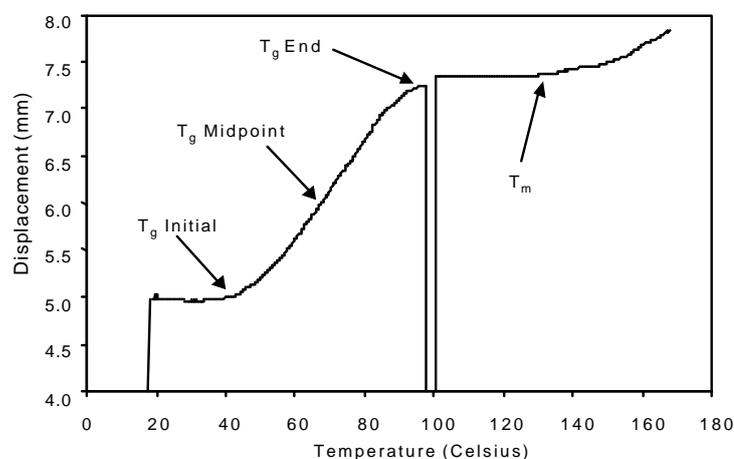


Abbildung 2.31: Aufzeichnung der Verschiebung der Probenkammer während einer PTA-Messung [Strahm und Plattner, 2001]

Der Phase Transition Analyzer wird in der Lebensmittelindustrie häufig zur Messung der Glasübergangstemperatur von Lebensmitteln eingesetzt, die durch Extrusionsprozesse hergestellt werden. Die meisten dieser Lebensmittel stellen eine komplexe Mischung aus Biopolymeren mit verschiedenen Glasübergangstemperaturen dar. Bei einer PTA-Messung wird im Gegensatz zu einer DSC- oder DMA-Messung nicht jede dieser Temperaturen ermittelt, sondern die Temperatur bestimmt, bei der eine ausreichende Menge der Probe erweicht und eine Kompaktierung der Partikeln ermöglicht. Bei der mittels PTA bestimmten Schmelztemperatur handelt es sich ebenfalls um die Temperatur, bei der eine ausreichende Menge der Probe schmilzt, damit sie durch die Öffnung fließt. Es ist daher denkbar, dass eine Hauptkomponente schmilzt und die Probe zu fließen beginnt, ohne dass andere Komponenten ihren Schmelzpunkt erreichen [Strahm und Plattner, 2001].

2.2.3.5 Kernresonanzspektroskopie (NMR)

Die Kernresonanzspektroskopie nutzt die magnetische Wirksamkeit von Atomkernen, die einen Kernspin von $1/2$ besitzen (z.B. 1H , 2H , ^{13}C , ^{17}O , ^{31}P). Befinden sich diese Kerne in einem homogenen Magnetfeld, können sie durch einen elektromagnetischen Impuls in Resonanz versetzt werden. Die Zeit, in der sie wieder in den Grundzustand übergehen, wird als Relaxationszeit bezeichnet. Diese gibt einerseits Aufschluss über die Bindungsverhältnisse in den Molekülen (strukturaufklärende NMR), andererseits liefern sie aber auch Erkenntnisse über die Beweglichkeit der Molekülketten. Da die Beweglichkeit der Molekülketten eines Polymers beim Übergang vom glasartigen in den viskoelastischen Zustand deutlich zunimmt, kann eine veränderte Relaxationszeit beobachtet werden. Um die Glasübergangstemperatur einer Probe zu bestimmen, wird daher die Relaxationszeit in Abhängigkeit von der Temperatur gemessen [Kalichevsky u. a., 1992].

Der auf die Probe ausgeübte NMR-Impuls bewirkt zwei Arten von Relaxationen, die Spin-Spin-Relaxation und die Spin-Gitter-Relaxation, wobei beide sich im Bereich des Glasübergangs charakteristisch ändern. Unterhalb der Glasübergangstemperatur ist die Spin-Spin-Relaxationszeit (T_{2S}) annähernd unabhängig von der Temperatur, die Kurve besitzt lediglich eine Steigung von $0,0113 \mu s/^\circ C$ (vgl. Abbildung 2.32). Wird die Glasübergangstemperatur überschritten, steigt die T_{2S} deutlich steiler mit der Temperatur an (Steigung der Kurve: $0,0903 \mu s/^\circ C$). Die Spin-Spin-Relaxationszeit ist ein Maß für die Beweglichkeit der Protonen, die mit der Kohlenstoffkette verbunden sind. Tritt das Polymer in den gummiartigen Zustand ein, steigt die Beweglichkeit der Kette und damit auch die der Protonen. Dies resultiert in einer erhöhten

Spin-Spin-Relaxationszeit und damit in einem Anstieg der T_{2S} -Kurve aus Abbildung 2.32. Der Punkt, bei der die Temperaturabhängigkeit von T_{2S} beginnt, wird auch als Festgittergrenze RLL (Rigid Lattice Limit) bezeichnet. Die Temperatur am RLL entspricht weitestgehend der Glasübergangstemperatur aus einer DSC-Messung.

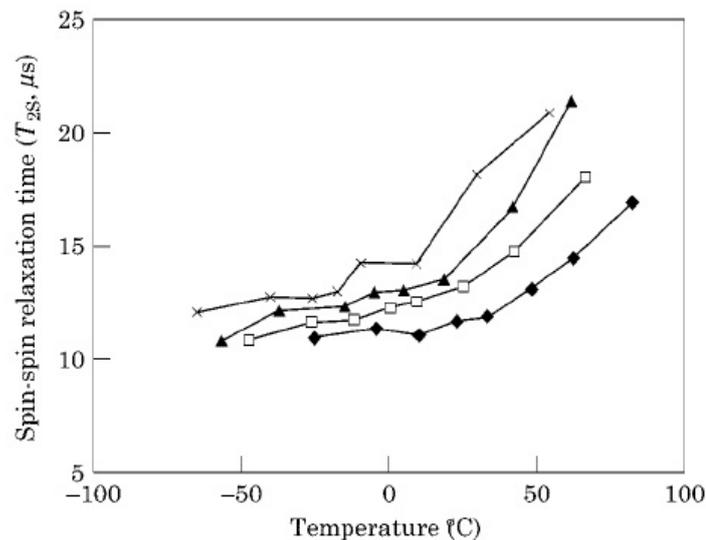


Abbildung 2.32: Spin-Spin-Relaxationszeit von Maltodextrin in Abhängigkeit von der Temperatur bei unterschiedlichem Wassergehalt (◆ = 91g/kg; □ = 120g/kg; ▲ = 147g/kg; × = 183g/kg) [Ruan und Long, 1998]

Die Spin-Gitter-Relaxationszeit (T_1) in Abhängigkeit von der Temperatur (vgl. Abbildung 2.33) verläuft annähernd spiegelverkehrt zur T_{2S} -Kurve. Unterhalb der Glasübergangstemperatur fällt die Kurve mit $-2,373 \text{ ms}/^\circ\text{C}$ und verändert sich nach dem Eintritt in den gummiartigen Zustand kaum noch mit zunehmender Temperatur (Steigung: $0,105 \text{ ms}/^\circ\text{C}$). Befindet sich das Polymer im glasartigen Zustand, besitzen die Molekülketten eine geringe Beweglichkeit und die Protonen schwingen mit einer Frequenz, die weit unter der Resonanzfrequenz liegt. Die Zeit, die im Glaszustand benötigt wird, um die Spin-Energie an die Umgebung (=Gitter) abzugeben, ist vergleichsweise lang, da bei geringerer Frequenz nur ein kleinerer Energiebetrag pro Schwingung übertragen werden kann. Dies resultiert in einer langen Spin-Gitter-Relaxationszeit. Im viskoelastischen Bereich können auf Grund erhöhter Beweglichkeit mehr Protonen mit ihrer Resonanzfrequenz schwingen. Die Protonen geben ihre Spin-Energie in kürzerer Zeit an das Gitter ab, daraus ergibt sich eine verminderte Spin-Gitter-Relaxationszeit. Die Temperatur, bei der die Temperaturabhängigkeit der Spin-Gitter-Relaxationszeit endet, bezeichnet den Wendepunkt der T_1 -Kurve und stellt einen Wert für die Glasübergangstemperatur dar. Der Wende-

punkt wird durch ein computergestütztes Auswertungsprogramm ermittelt [Ruan und Long, 1998].

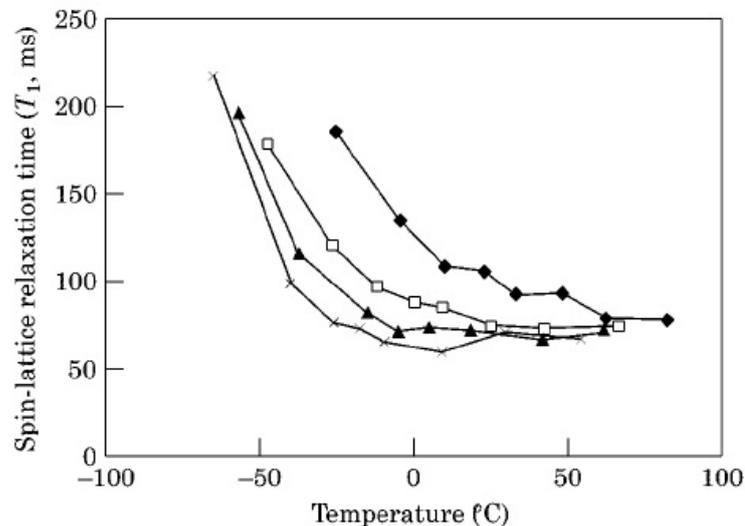


Abbildung 2.33: Spin-Gitter-Relaxationszeit von Maltodextrin in Abhängigkeit von der Temperatur bei unterschiedlichem Wassergehalt (◆ = 91g/kg; □ = 120g/kg; ▲ = 147g/kg; × = 183g/kg) [Ruan und Long, 1998]

2.2.4 Mathematische Modelle zur Vorhersage der Glasübergangstemperatur

Für Praxis und Wissenschaft spielt es eine wichtige Rolle, die Glasübergangstemperatur von Stoffgemischen nicht nur experimentell zu bestimmen, sondern auch durch mathematische Gleichungen zu erfassen. Hierdurch wird ermöglicht, schon vor der eigentlichen Messung die Glasübergangstemperatur einer Mischung aus Polymeren näherungsweise zu bestimmen und somit den zu untersuchenden Temperaturbereich einzuschränken. Da die Glasübergangstemperatur einer Mischung aus Polymeren im Wesentlichen von den Glasübergangstemperaturen der einzelnen Komponenten bestimmt wird, zielen alle mathematischen Modelle darauf ab, die Glasübergangstemperatur der Mischung aus denen der einzelnen Komponenten zu ermitteln. Wasser ($T_g = -135^\circ\text{C}$), als eine mögliche Komponente, besitzt schon bei vergleichsweise geringen Konzentrationen die Fähigkeit, die Glasübergangstemperatur deutlich abzusenken. Es kann daher bei zu hoher Luftfeuchtigkeit die Glasübergangstemperatur einer Pulvermischung unter die Lagertemperatur abgesenkt werden, was zu einem Verkleben des Pulvers sowie verminderter Fließfähigkeit führt [Bhandari und Howes, 2000]. Auf Grund dieser Tatsache wurden

die meisten Modelle entwickelt, um die Glasübergangstemperatur in Abhängigkeit vom Wassergehalt (Zweikomponentengemisch) mathematisch erfassen zu können. Sie sind daher nur begrenzt auf Mehrstoffgemische übertragbar.

2.2.4.1 Lineare Abhängigkeit und Modell von Fox

Die Modelle zur Vorhersage der Glasübergangstemperatur stammen weitgehend aus der Kunststoffindustrie und wurden auf Nahrungsmittel übertragen, welche eine komplexe Mischung aus Biopolymeren darstellen. Um einen groben Überblick über den Verlauf der Glasübergangstemperatur in Abhängigkeit des Wassergehaltes zu gewinnen, eignet sich das lineare Modell:

$$T_g = T_{g1} \cdot w_1 + T_{g2} \cdot w_2 \quad (2.19)$$

Eine bessere Approximation an die gemessenen Glasübergangstemperaturen bietet die Gleichung von Fox:

$$\frac{1}{T_g} = \frac{w_1}{T_{g1}} + \frac{w_2}{T_{g2}} \quad (2.20)$$

In beiden mathematischen Beziehungen ist zur Berechnung der Glasübergangstemperatur der Mischung lediglich die Glasübergangstemperatur der einzelnen Komponenten (T_{g1} und T_{g2}) sowie ihre Massenanteile (w_1 und w_2) erforderlich. Wie aus Abbildung 2.34 ersichtlich, bietet die lineare Abhängigkeit nur im Bereich niedriger Wassergehalte ($<0,05$) eine brauchbare Annäherung an die gemessenen Werte. Die Verwendung der Gleichung von Fox, für die keine weiteren praktischen Messungen erforderlich sind, liefert in einem deutlich größeren Bereich sinnvolle Ergebnisse und nähert sich auch in ihrem Verlauf besser an die praktisch ermittelten Glasübergangstemperaturen an. Die beste Approximation liefert die Formel von Gordon und Taylor, auf die im Weiteren genauer eingegangen wird. Für ihre Verwendung ist jedoch ein zusätzlicher Parameter erforderlich, dessen Bestimmung praktisch oder durch eine Näherungsformel erfolgt.

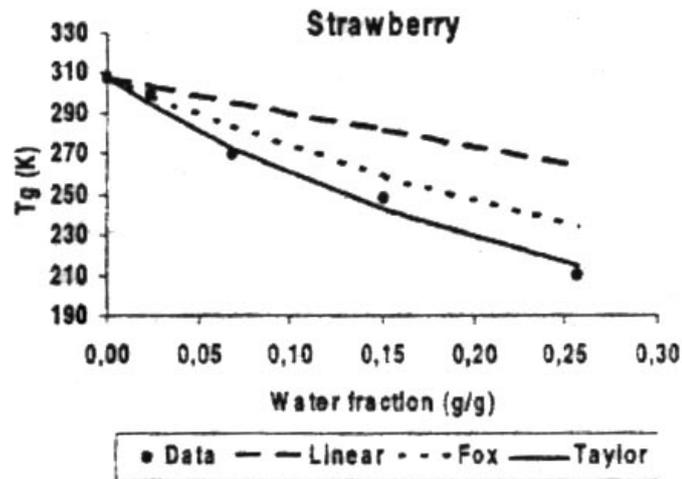


Abbildung 2.34: Vergleich verschiedener Modelle zur Vorhersage der Glasübergangstemperatur von Erdbeerpulver; T_g als Funktion des Wassergehaltes [Khalloufi u. a., 2000]

2.2.4.2 Gordon-Taylor & Couchman-Karasz Gleichung

Das am häufigsten eingesetzte mathematische Modell zur Bestimmung der Glasübergangstemperatur eines Stoffgemisches ist die Gleichung von Gordon und Taylor (Gleichung 2.21). Sie beschreibt die Glasübergangstemperatur eines Zweistoffgemisches als nichtlineare Funktion der Glasübergangstemperaturen der einzelnen Komponenten.

$$T_{gm} = \frac{w_1 \cdot T_{g1} + k \cdot w_2 \cdot T_{g2}}{w_1 + k \cdot w_2} \quad (2.21)$$

T_{gm} = Glasübergangstemperatur der Mischung

T_g = Glasübergangstemperatur einer Komponente

w = Massenanteil der einzelnen Komponente

k = $\Delta c_{p2} / \Delta c_{p1}$

Ist eine der beiden Komponenten Wasser, wird dessen Glasübergangstemperatur für T_{g2} bzw. T_{g1} eingesetzt. Zur Ermittlung der Glasübergangstemperatur der Feststoffkomponente muss die Probe erst vollständig getrocknet und mit einem geeigneten Gerät seine Glasübergangstemperatur gemessen werden. Der Parameter k aus der Gleichung von Gordon und Taylor wird durch das Verhältnis zwischen Änderung der Wärmekapazität von Wasser (Δc_{pw}) und trockenem Feststoff (Δc_{ps}) beim Durchschreiten des Glasübergangs beschrieben:

$$k = \frac{\Delta c_{pw}}{\Delta c_{ps}} \quad (2.22)$$

Die experimentelle Bestimmung der Δc_p -Werte stellt sich als schwierig dar, da besonders bei kleinen Molekülen wie Wasser die Messergebnisse erheblich voneinander abweichen (von 0,11 bis 1,94 J/gK). Die Forschergruppe um Roos berichtet allerdings, dass für ein Gemisch aus Wasser und Kohlenhydraten der Parameter k , ohne die Ermittlung der Δc_p -Werte, näherungsweise bestimmt werden kann. Es ist lediglich die Glasübergangstemperatur der getrockneten Probe erforderlich, um den Parameter k zu bestimmen [Khalloufi u. a., 2000].

$$k = 0,0293 \cdot T_{gs}(\text{°C}) + 3,61 \quad (2.23)$$

Couchman und Karasz erweiterten das Modell einer binären Mischung von Gordon und Taylor auf n -Komponenten, indem sie die Gleichung 2.21 wie folgt modifiziert haben:

$$T_{gm} = \frac{\sum_{i=1}^n w_i \cdot \Delta c_{pi} \cdot T_{gi}}{\sum_{i=1}^n w_i \cdot \Delta c_{pi}} \quad (2.24)$$

Hierbei stellt w_i den Massenanteil, Δc_{pi} die Änderung der Wärmekapazität zwischen Glas- und Gummizustand und T_{gi} die Glasübergangstemperatur der i -ten Komponente dar [Bhandari und Howes, 2000].

In Abbildung 2.35 ist eine Vielzahl von Berechnungsmodellen zur Vorhersage der Glasübergangstemperatur dargestellt. Die meisten dieser Modelle sind von der Gordon-Taylor Gleichung abgeleitet [Roos, 2000].

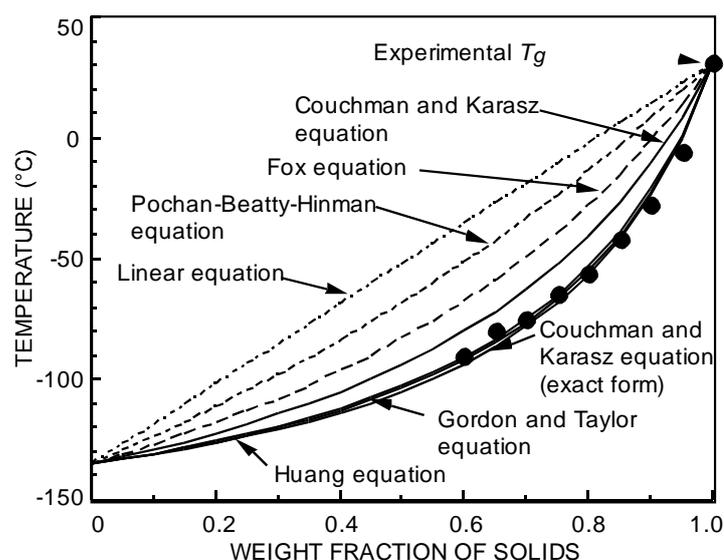


Abbildung 2.35: Verschiedene Berechnungsmodelle zur Vorhersage der Glasübergangstemperatur angewendet am Beispiel amorphen Wassers [Roos, 2000]

2.2.4.3 Glasübergangstemperatur als Funktion der Wasseraktivität (a_w -Wert)

Der a_w -Wert spielt in der Lebensmitteltechnologie eine besondere Rolle, da er den Gehalt an freiem Wasser, welches für chemische und physikalische Reaktionen zur Verfügung steht, beschreibt. Aufgrund dieser Tatsache existieren unterschiedliche mathematische Modelle, die die Glasübergangstemperatur als Funktion des a_w -Wertes darstellen.

Verschiedene Wissenschaftler schlagen eine lineare Abhängigkeit der Glasübergangstemperatur von der Wasseraktivität (bei 25°C) vor, die sich wie folgt darstellen lässt:

$$T_g = T_{gs} + (T_{gw} - T_{gs}) \cdot a_w \quad (2.25)$$

Hierbei sind T_{gs} und T_{gw} die Glasübergangstemperaturen des trockenen Feststoffs und des Wassers. Es ist lediglich die Glasübergangstemperatur des Feststoffs zu bestimmen, um die Glasübergangstemperatur der Probe in Abhängigkeit vom a_w -Wert anzugeben. Da die Sorptionsisotherme (Wassergehalt über a_w -Wert) eine sigmoide Kurve darstellt, ist für die Glasübergangstemperatur als Funktion des a_w -Wertes ein ähnlicher Verlauf zu erwarten. Die Forschergruppe um Khalloufi versuchte die Gleichung von Gordon und Taylor so weit zu modifizieren, dass sie eine Funktion des a_w -Wertes und nicht des absoluten Wassergehaltes darstellt. Unter Zuhilfenahme der Guggenheim-Anderson-deBoer (GAB) Gleichung (Gleichung 2.26) kann der Wassergehalt durch den a_w -Wert und einigen temperaturabhängigen Parametern ausgedrückt werden.

$$X = \frac{C \cdot K \cdot X_m \cdot a_w}{(1 - K \cdot a_w)(1 - K \cdot a_w + K \cdot C \cdot a_w)} \quad (2.26)$$

X = Wassergehalt der Probe

a_w = Wasseraktivität

X_m, K, C = temperaturabhängige Parameter

Durch Kombination der Gleichung 2.26 mit dem Modell von Gordon und Taylor (Gleichung 2.21) ergibt sich ein Ausdruck, der die Abhängigkeit der Glasübergangstemperatur von der Wasseraktivität beschreibt:

$$T_g = \frac{A \cdot a_w^2 + B \cdot a_w + T_{gs}}{\alpha \cdot a_w^2 + \beta \cdot a_w + 1} \quad (2.27)$$

A = $T_{gs} \cdot K^2 \cdot (1 - T_{gs})$

B = $K \cdot [T_{gs} \cdot (T_{gs} - 2) + T_{gs} \cdot X_m \cdot T_{gw} \cdot k]$

α = $K^2 \cdot (1 - T_{gs})$

β = $K \cdot (T_{gs} - 2 + T_{gs} \cdot W_m \cdot k)$

k = Parameter aus der Gordon und Taylor Gleichung

W_m = Massenanteil der Feststoffkomponente

Der Parameter k aus dem Modell von Gordon und Taylor kann experimentell (vgl. Gleichung 2.22) oder rechnerisch in Näherung durch Gleichung 2.23 bestimmt werden. Die Parameter K , X_m und C aus der GAB-Gleichung können durch nichtlineare Regression mit Hilfe eines Algorithmus (z.B. Levenberg-Marquardt Algorithmus) ermittelt werden. Die Glasübergangstemperatur der getrockneten Probe und der Massenanteil der Feststoffkomponente sind die Größen, die experimentell bestimmt werden müssen.

Palzer und Zürcher [2004a] bestimmten die 22°C-Sorptionsisotherme und die darauf basierenden Parameter mittels der GAB-Gleichung für drei unterschiedliche Pulver. Anhand dieser Parameter, einer Gordon-Taylor-Konstante von 5,5 und Gleichung 2.27 berechneten sie die Abhängigkeit der Glasübergangstemperatur von der Wasseraktivität. Die berechneten Werte, verglichen mit gemessenen Werten mittels Differenzkalorimetrie, sind in Abbildung 2.36 dargestellt.

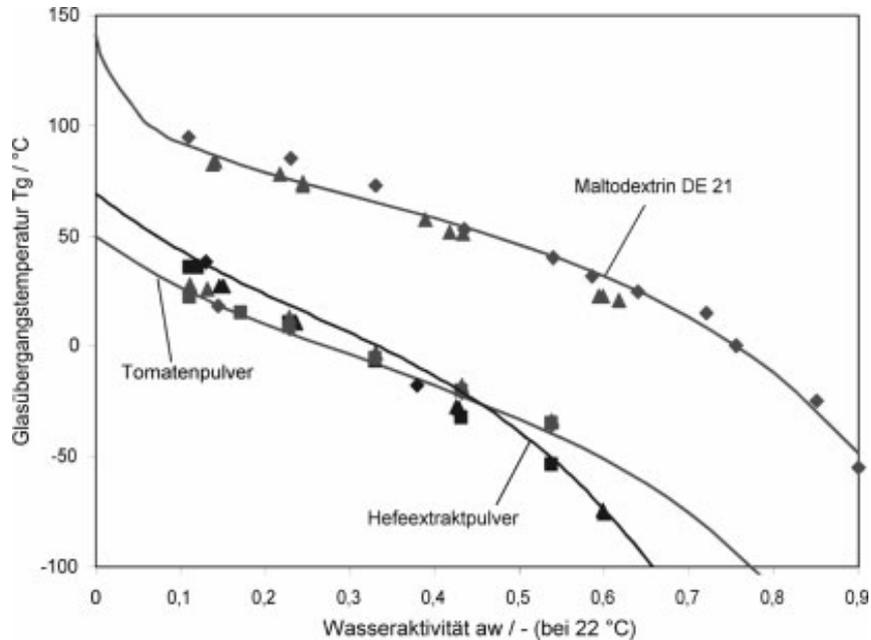


Abbildung 2.36: Vergleich gemessener und berechneter Glasübergangstemperaturen in Abhängigkeit der Wasseraktivität [Palzer und Zürcher, 2004a]

2.3 Messtechnische Erfassung des Verdichtungsverlaufes und ableitbare Parameter

Mit Einführung instrumentierter Tablettenpressen wurde es möglich, den Verdichtungsverlauf zu beschreiben und zu quantifizieren. Ableitbare Parameter aus den gewonnenen Pressdaten wurden schon früh dazu verwendet, um vergleichbare Untersuchungen verschiedener Materialien durchzuführen oder den Einfluss verschiedener Prozessparameter zu untersuchen. So gelang es Higuchi u. a. [1952, 1953] erstmalig, einen Presskraft/Zeitverlauf beim Tablettieren aufzunehmen. Infolgedessen wurden viele Parameter zur Charakterisierung des Verdichtungsverlaufes vorgestellt und in Übersichtsarbeiten von Jones [1978] und Krycer u. a. [1982b], deren Informationsgehalt und die Anwendbarkeit aller für die Praxis wichtigen Größen, aufgezählt und kritisch beurteilt.

2.3.1 Kraft-Weg-Kurven

Bei der Verdichtung einer Substanz ist mechanische Energie erforderlich. Diese Energie wird von Führer und Schmidt [1981] in zwei Komponenten aufgeteilt: Zum einen in die Energie, die während der Kompression für die Verformung und Reibung aufgewendet werden muss (vgl. E_1 in Abbildung 2.37) und zum anderen in die Energie, die vom Pressling wieder an den Stempel abgegeben wird (vgl. E_2 in Abbildung 2.37). Hierzu zählen die elastischen Eigenschaften des zu verpressenden Materials, aber auch die elastische Verformung von Stempel und Maschinenteilen. Die Energie, die zur Tablettierung einer Substanz erforderlich ist (E_1+E_2), hängt sowohl von der eingesetzten Pulvermenge, als auch vom maximalen Pressdruck ab.

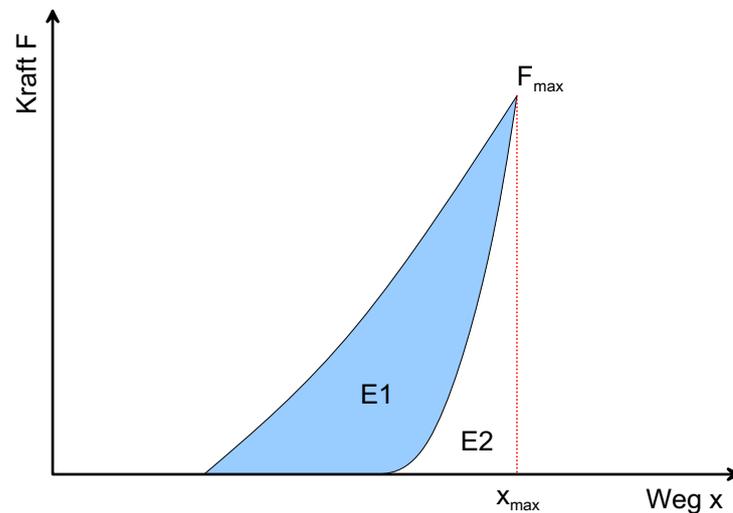


Abbildung 2.37: Schematische Darstellung eines Kraft-Weg-Diagramms

Zur Auswertung wird die am bewegten Stempel gemessene Kraft gegen den vom Stempel zurückgelegten Weg aufgetragen. Die Integration der Flächen E1 und E2 liefert die gesuchten Energiewerte. Es treten verschiedene Kurvenverläufe je nach Art des verwendeten Pulvers auf. Stark plastisch verformbare Substanzen liefern einen großen Flächenanteil E1, stark elastisch verformbare Substanzen hingegen sind an einer großen Fläche E2 zu erkennen.

In der Literatur gibt es verschiedene Auswertungen zu den Flächen unter der jeweiligen Kraft/Weg-Kurve. Die Flächen werden in Prozent der theoretischen Fläche angegeben. Allerdings ist die Fläche E2 so stark von den Pressbedingungen wie z.B. der Tablettiergeschwindigkeit abhängig, dass kein direkter Vergleich der Literaturdaten untereinander herangezogen werden kann.

Die Plastizität (*PI*) beschreibt die plastische Verformung. Sie liefert einen Hinweis auf die Tablettierbarkeit von Pulvern und kann zum Vergleich verschiedener Pulver bei gleichen Pressbedingungen herangezogen werden [Ritschel und Bauer-Brandl, 2002]:

$$PI = \frac{E1}{E1 + E2}. \quad (2.28)$$

2.3.2 Kraft-Zeit-Kurven

Bei Betrachtung des Kraft-Zeit-Verlaufes eines Verdichtungs Vorgangs muss darauf geachtet werden, welcher Pressentyp verwendet wird. Der Unterschied des Kraft-Zeit-Verlaufes bei einer Exzenterpresse im Vergleich zu einer Rundläuferpresse liegt im wesentlichen an den verschiedenen Druckhaltezeiten, welche aus den verschiedenen Bauweisen der beiden Pressentypen

resultieren. Im Weiteren wird nur der Kraft-Zeit-Verlauf einer Rundläufertablettenpresse näher beschrieben, da festgestellt wurde, dass dieser mit der einer hydraulischen Einzelstempelpresse vergleichbar ist.

Der Pressvorgang einer Rundläufertablettenpresse der in Abbildung 2.38 schematisch dargestellt ist, kann in unterschiedliche Phasen eingeteilt werden. A1 ist durch das Erreichen des Wegmaximums begrenzt, d.h. der plane Teil des Stempels erreicht gerade den höchsten Punkt der Druckrolle. Die rechte Begrenzung der Fläche A3 beschreibt das Ende der „dwell time“ (Zeitdauer des planen Teils auf der Druckrolle). Die Fläche A2 + A3 wird genau in der Mitte geteilt, d.h. der Stempelmittelpunkt befindet sich zentral über dem Druckrollenmittelpunkt. Dadurch ergeben sich im oberen Teil die Flächen A5 und A6. Der Quotient $A6/A5$ ist ein Maß für die Relaxation bei konstantem Weg („dwell time“). Es wurde festgestellt, dass während der „dwell time“ für ideal elastische Substanzen keine, für plastische Substanzen aber eine erhebliche Relaxation zu beobachten ist. A4 beschreibt den Prozess bis zum Kontaktverlust des Stempels mit der Tablette [Ritschel und Bauer-Brandl, 2002; Filbry, 1986; Konkel, 1995]. Bei elastischem Verhalten tritt dieser Punkt deutlich später auf als bei plastischem Verhalten (geringere elastische Rückdehnung).

Auf Grund der planen Stempelkopffläche gibt es bei Rundlauf-Tablettiermaschinen im Gegensatz zu Exzenter-Tablettiermaschinen während eines Presszyklus ein längeres Zeitintervall, in dem sich der Abstand der beiden Stempel zueinander im Prinzip nicht ändert (elastische Verformung der Maschine nicht berücksichtigt). Dieses Zeitintervall entspricht der Weghaltezeit („dwell time“) und ist ausschließlich von der Maschinendrehzahl und der Stempelkopfgeometrie abhängig. Für dieses Zeitintervall findet sich auch häufig der Begriff der Druckhaltezeit. Der Begriff der Druckhaltezeit ist allerdings nicht korrekt, da in dem bereits genannten Zeitintervall der Druck, z.B. bei manchen Substanzen durch plastisches Fließen, abnehmen kann und damit einzig der Abstand zwischen den beiden Stempeln konstant bleibt [Schlack, 2001].

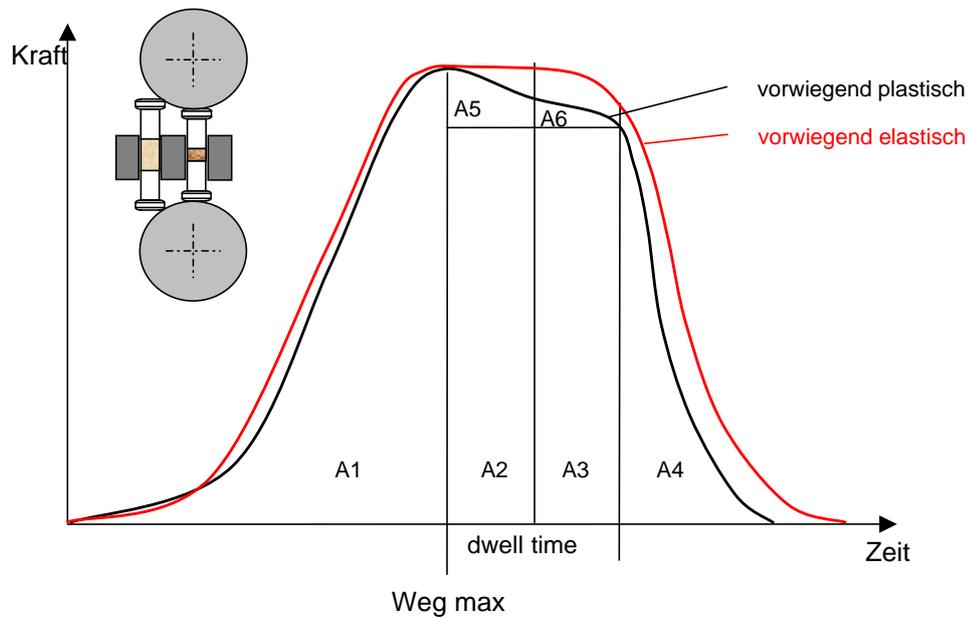


Abbildung 2.38: Schematische Darstellung eines Kraft-Zeit-Diagramms einer Rundläufer-Tablettenpresse

Bei viskoelastischen Körpern, die sowohl plastisch als auch elastisch verformbar sind, erfolgt die plastische Deformation zeitlich verzögert. Eine solche zeitlich verzögerte Deformation zeigt sich bei konstanter Verdichtung (konstante Steghöhe während der „dwell time“) in einer Abnahme des Drucks. Besonders starke Relaxation zeigen polymere Substanzen wie Stärke [Schlack, 2001].

Die in Abbildung 2.38 rot gefärbte Kurve stellt den Verlauf eines vorwiegend elastischen Materials dar. Während der Druckhaltezeit kommt es im ideal elastischen Zustand zu keinem Abfall des Pressdrucks. Plastische und viskoelastische Substanzen (schwarze Kurve) weisen eine deutliche Abnahme des Pressdrucks während der Druckhaltezeit auf [Ritschel und Bauer-Brandl, 2002; Filbry, 1986; Konkel, 1995; Schlack, 2001].

Bei vergleichbarer Presskraft und Kontaktzeit ist die Zeit der maximalen Verdichtung bei Rundlauf-Tablettiermaschinen deutlich länger als bei Exzenter-Tablettiermaschinen. Zeitabhängige Deformationsprozesse wie das plastische Fließen sind damit von der bei Rundlauf-Tablettiermaschinen auftretenden längeren Weghaltezeit begünstigt und können damit stabilere Komprimata bilden. Im Gegensatz dazu bleibt bei zeitunabhängigen Deformationsprozessen wie dem spröden Bruch eine Änderung in der Weghaltezeit ohne größeren Einfluss auf die Komprimateneigenschaften. Für diese Substanzen ist die maximale Presskraft entscheidend. Der Kraftverlauf, über den dieses Presskraftmaximum erreicht wird, ist dabei nahezu ohne Bedeutung [Schlack, 2001].

Im Gegensatz zum Kraft-Zeit-Verlauf einer Rundläufertablettenpresse, zeigt eine hydraulische Unterstempelpresse am Kraftmaximum erst einen Peak und fällt dann auf einen konstanten Wert (bei vorwiegend elastischem Verhalten der Pulver) ab (Abbildung 2.39). Dieser Peak ist auf den Mechanismus der hydraulischen Presse zurückzuführen. Der Kraftaufbau mittels Hydraulik erzeugt im Vergleich zum Rundläufer (Kraftaufbau über Druckrollen) einen Impuls auf das Pulver und wird erst nach Schließen des Druckregelventils konstant gehalten. Der weitere Verlauf der Kraft-Zeit-Kurve ist qualitativ nicht von der einer Rundläufertablettenpresse zu unterscheiden.

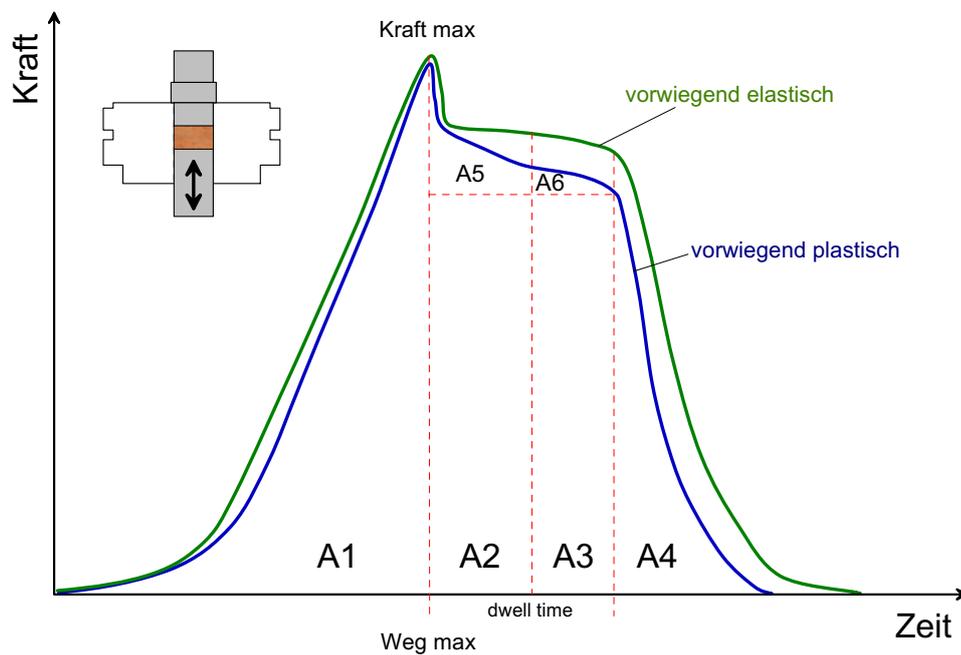


Abbildung 2.39: Schematische Darstellung eines Kraft-Zeit-Diagramms einer hydraulischen Unterstempelpresse

2.3.3 Auswertung mittels Dichte- und Höhenwerten

Beim Verpressen treten plastische und elastische Verformungen auf. Dies führt dazu, dass die Tablette sich auf Grund ihrer elastischen Fähigkeiten nach dem Ausstoß zurückdehnt. Das Ausmaß der elastischen Rückdehnung kann für die mechanischen Eigenschaften der Tabletten bestimmend sein, wenn hierbei gebildete Bindungen wieder gelöst werden [Neuhaus, 1985]. Die Tablettenhöhe nach dem Ausstoß aus der Matrize ($h_{\text{Ausstoß}}$) ist demnach größer als die

beim Verpressen minimal gemessene Höhe (h_{min}). Über diese beiden Höhen kann die elastische Rückdehnung nach folgender Formel berechnet werden:

$$\text{Elastische Rückdehnung [\%]} = \frac{h_{Aussto\beta} - h_{min}}{h_{min}} \cdot 100. \quad (2.29)$$

Eine weitere Möglichkeit, Pulver zu vergleichen, besteht in der Berechnung der maximalen Komprimierbarkeit. Unter Komprimierbarkeit wird die Fähigkeit des Pulverbetts verstanden, unter dem Pressdruck oder einer anderen Kraftereinwirkung sein Volumen zu reduzieren [Ritschel und Bauer-Brandl, 2002]. Die Komprimierbarkeit wird aus der Schüttgutdichte ρ_s und der wahren Tablettendichte ρ_w (Dichte bei minimaler Höhe während des Verdichtens) nach Gleichung 2.30 bestimmt:

$$\text{Maximale Komprimierbarkeit [\%]} = \rho_s \cdot \left(\frac{1}{\rho_s} - \frac{1}{\rho_w} \right) \cdot 100. \quad (2.30)$$

Diese Kennzahl gibt an, wie stark ein Granulat verdichtet werden kann. Die Verdichtung kann nur soweit erfolgen, bis die Dichte des Presslings der Feststoffdichte des Tablettiergemisches entspricht. Jeder weitere Versuch einer Verdichtung über die maximale Dichte des Presslings hinaus, führt zu einer nutzlosen und den Verschleiß fördernden Belastung der Maschine [Ritschel und Bauer-Brandl, 2002].

2.3.4 Festigkeit von Tabletten

Die Festigkeit von Tabletten wird wesentlich von den Haftkräften zwischen den Partikeln bestimmt. Zusätzlich spielen die Porosität, die Teilchengröße und die Anzahl der Kontaktstellen zwischen den Partikeln im Querschnitt eine wichtige Rolle. All diese Größen sind zum einen von den Pressbedingungen und zum anderen von den Stoffeigenschaften abhängig [Zimmer, 1996]. Zu den Pressbedingungen zählen:

- die Pressgeschwindigkeit (Stempelgeschwindigkeit, Druckhaltezeit)
- der Pressdruck
- die Geometrie der Presswerkzeuge und der Antriebsmechanik der Presse

Zu den Stoffeigenschaften gehören:

- die Ausgangsteilchengröße
- die Partikelform

- die Partikelgrößenverteilung
- die Verformungseigenschaften
- der Sorptionszustand

Die Haftkräfte können unterteilt werden in solche, die keine Materialbrücken bilden (van der Waals-Kräfte, elektrostatische Anziehungskräfte) und solche, die durch Materialbrücken zustande kommen (Flüssigkeitsbrücken, Festkörperbrücken und Wasserstoffbrückenbindungen).

Zur Bestimmung der Festigkeit einer Tablette kann der diametrale Druckversuch herangezogen werden. Dabei wird diejenige Kraft F bestimmt, bei der eine Tablette zwischen zwei Flächen gerade zerbricht. Die Tablette wird hierbei ihrem Durchmesser nach zwischen die beiden Flächen gelegt (vgl. Abbildung 2.40).

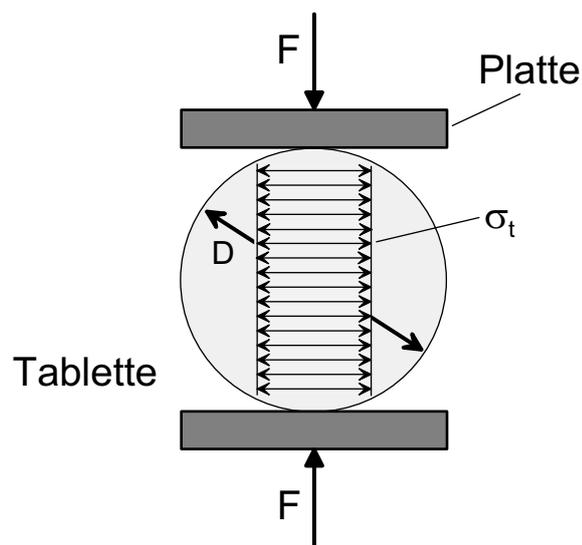


Abbildung 2.40: Zugfestigkeitsmessung mittels diametralem Druckversuch

Zum direkten Vergleich verschiedener Tabletten untereinander ist es notwendig, die Bruchkraft F zu normieren. Dazu wird sie auf den Durchmesser D und die Dicke der Tablette t (Querschnittsfläche des Bruchs) bezogen. Dieser neue Wert wird als „tensile strength“ (Zugfestigkeit) σ_t bezeichnet:

$$\sigma_t = \frac{2F}{\pi D t}. \quad (2.31)$$

Diese Gleichung gilt allerdings nur bei idealem Bruchverlauf, dessen Voraussetzungen sind:

- Homogenität der Presslinge

- Verformung nach dem Hooke'schen Gesetz in gleicher Weise für Zug und Druck
- nur elastisches und sprödes Verhalten
- nur punktförmige Auflageflächen

Um in der Praxis die Gültigkeit der Gleichung 2.31 zu überprüfen, reicht es aus, die Tablette beim Bruch zu beobachten. Bricht sie durch einen scharfen Bruch in etwa zwei gleich große Teile, so gibt es keine Probleme. Der Bruch der Tablette erfolgt dabei entsprechend ihrem Spannungsprofil etwa senkrecht zu den beiden Flächen.

2.4 Die radiale Kraft auf die Matrizenwand

2.4.1 Das Horizontallastverhältnis

Ein Schüttgutelement, das sich in einem unendlich tiefen Behälter mit reibungsfreien Innenwänden befindet, wird in vertikaler Richtung mit der Spannung σ_y belastet. Aufgrund dieser vertikalen Spannung stellt sich im Schüttgutelement nach Abbildung 2.41 eine horizontale Spannung σ_r ein.

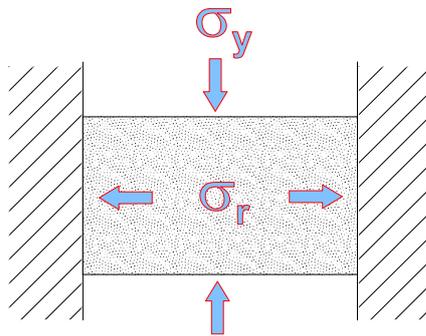


Abbildung 2.41: Vertikal belastetes Schüttgutelement in einem Behälter mit unendlicher Tiefe und reibungsfreier Innenwand

Das Verhältnis der beiden Spannungen σ_r und σ_y wird als Horizontallastverhältnis λ definiert:

$$\lambda = \frac{\sigma_r}{\sigma_y}. \quad (2.32)$$

Eine Flüssigkeit verhält sich hydrostatisch, wenn der Druck in alle Richtungen gleich ist. Daraus resultiert ein λ von eins. Ein ideal steifer Festkörper gibt keine Kraft in die radiale Richtung ab, hier ist das Horizontallastverhältnis null. Bei einem Schüttgut, das sowohl in fluidisierter Form als auch in Form eines Festkörpers, wie z. B. einer Tablette, vorliegen kann, sind theoretisch Werte zwischen null und eins denkbar. Für die Berechnung des Horizontallastverhältnisses wird ein Schüttgutscheibenelement nach Abbildung 2.42 betrachtet das sich in einem geschlossenen Presskanal mit kreisförmiger Querschnittsfläche befindet.

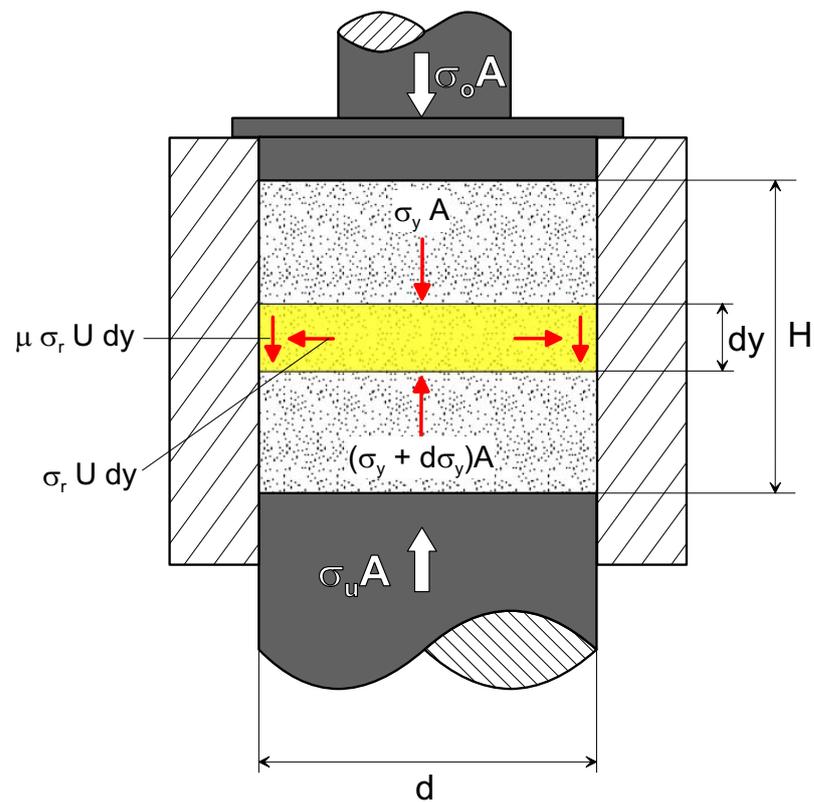


Abbildung 2.42: Kräftegleichgewicht an einem Schüttgutelement bei der Verdichtung

σ_u = Unterstempelspannung

σ_o = Oberstempelspannung

σ_y = Axialspannung

σ_r = Radialspannung

A = Querschnittsfläche des Presskanals

U = Umfang des Presskanals

d = Presskanaldurchmesser

H = Höhe des Verdichtungsereiches

μ = Wandreibungskoeffizient zwischen dem Schüttgut und der Wand des Presskanals

Wird an diesem Schüttgutscheibenelement das Kräftegleichgewicht unter Vernachlässigung der Gewichtskraft aufgestellt, so folgt die Gleichung 2.33:

$$-d\sigma_y \cdot \frac{d^2\pi}{4} + \mu \cdot \sigma_r \cdot d \cdot \pi \cdot dy = 0. \quad (2.33)$$

Mit Annahme eines konstanten Horizontallastverhältnisses über die Tablettenhöhe folgt mit Einsetzen der Gleichung 2.32 in Gleichung 2.33 und den Randbedingungen $\sigma_y = \sigma_u$ für $y = 0$ [Klasen, 1990]:

$$\sigma_y(y) = \sigma_u \exp\left(-4\lambda \cdot \frac{\mu}{d} y\right). \quad (2.34)$$

Mit $\sigma_y = \sigma_o$ für $y = H$ folgt der Zusammenhang zwischen der Oberstempelspannung σ_o und der Spannung des Unterstempels σ_u :

$$\sigma_u = \sigma_o \exp\left(4\lambda\mu \frac{H}{d}\right). \quad (2.35)$$

Mit dem Auflösen von Gleichung 2.35 nach λ lässt sich das Horizontallastverhältnis berechnen:

$$\lambda = \frac{d}{4H\mu} \ln\left(\frac{\sigma_u}{\sigma_o}\right). \quad (2.36)$$

Die Spannungen σ_o und σ_u aus Gleichung 2.36 können durch die Kräfte $F_o = \sigma_o \cdot A$ und $F_u = \sigma_u \cdot A$ ersetzt werden. Da die Flächen A wegen des zylindrischen Presskanals gleich sind, folgt:

$$\lambda = \frac{d}{4H\mu} \ln\left(\frac{F_u}{F_o}\right). \quad (2.37)$$

Voraussetzung für die Verwendung dieser Formel ist ein isotropes Verhalten des Materials, Unabhängigkeit vom Wandreibungskoeffizient μ und vom Horizontallastverhältnis λ , das von den angreifenden Spannungen abhängt. Allerdings wurde festgestellt, dass der Reibungswinkel im Inneren des Schüttgutes und an der Wand des Presskanals die Verdichtung und somit das Horizontallastverhältnis wesentlich beeinflusst. Mit zunehmender Reibung wächst das Horizontallastverhältnis an [Klasen, 1990]. Somit ist auch die Annahme eines konstanten Horizontallastverhältnisses über die Tablettenhöhe nicht mehr haltbar, wobei bisher keine genaueren Untersuchungen veröffentlicht worden sind. Es wurden nur Durchschnittswerte veröffentlicht, wie beispielsweise durch Nelson [1955], der ein durchschnittliches Horizontallastverhältnis von 30 % beim Verpressen von Granulat aus Schwefelsulfat und Natriumbicarbonat feststellte. Generell ist zu sagen, dass weiche Materialien ein hohes Horizontallastverhältnis besitzen, harte, bzw. spröde Materialien hingegen ein niedriges λ .

2.4.2 Bisherige Applikationen zur Erfassung der Matrizenwandkraft

Es wurden bereits viele Versuche unternommen, um die radiale Kraft auf die Matrizenwand zu messen. Higuchi u. a. [1965], Hölzer und Sjögren [1979], Windheuser u. a. [1963]

und Kikuta und Kitamori [1983] verwendeten Dehnungsmessstreifen, um diese Kraft aufzunehmen. Nelson [1955] arbeitete mit einem dritten Stempel und einer Aussparung in der Matrize, Profitlich [1990] stattete die Matrizenwand mit einer piezoelektrischen Folie aus und Ridgway [1966] zog den photoelastischen Effekt zur Ermittlung der Wandkraft heran.

Nelson [1955] stellte einen linearen Zusammenhang zwischen der Matrizenwandkraft und der Stempelkraft beim Verpressen von Sulfathiazol und Natriumbicarbonat fest. Windheuser u. a. [1963] und ebenso auch Hölzer und Sjögren [1979] verwendeten gummiähnliches Material, um die Matrizenwandkraft zu kalibrieren. Laut ihnen verhält sich Gummi unter Druck wie Wasser, d.h. der Druck ist in alle Richtungen gleich. Bei einer Kalibrierung mit dieser gummiartigen Substanz stellten sie ebenfalls einen linearen Zusammenhang zwischen der Stempelkraft und dem Rohsignal an den Dehnungsmessstreifen an der Matrizenwand fest. Windheuser u. a. [1963] arbeiteten mit einer konstanten Tablettentiefe von 5 mm, um den Einfluß der Tablettentiefe auf die Wandkraft auszuschließen. Beim Verpressen von Pulvern erhielten Windheuser u. a. [1963] in Abhängigkeit vom verwendeten Pulver unterschiedliche Axial-Radial-Diagramme (Kapitel 2.4.5). Bei einigen Pulvern stieg die radiale Kraft auf die Matrizenwand linear mit der Unterstempelkraft an (Kaliumcarbonat, Sulfathiazol), bei anderen Pulvern (Kaliumchlorid, Natriumchlorid, Kaliumiodid, Laktose,...) hingegen zeigte sich in nur manchen Bereichen ein linearer Zusammenhang. Um die Einflüsse der Tablettendicke und der Tablettentiefe in der Matrize zu beseitigen, verwendete Profitlich [1990] eine piezoelektrische Folie zur Messung der Matrizenwandkraft. Auch er verwendete für die Kalibrierung eine gummiartige Substanz unter der Annahme, dass sich der Gummi unter Druck hydrostatisch verhält. Er stellte ebenfalls einen linearen Zusammenhang zwischen der Matrizenwandkraft und der Stempelkraft fest.

2.4.3 Die remanente Radialspannung

Während der Verdichtung in einer zylindrischen Pressform nimmt die Radialspannung auf die Wand mit steigender Axialspannung im Schüttgut zu. Bereits Higuchi u. a. [1965] stellten fest, dass ein Teil der radialen Kraft auf die Matrizenwand auch nach Beendigung des Pressvorgangs (Axialspannung am Stempel ist null) erhalten bleibt. Durch diese Spannung verbleibt die Tablette in der Matrize und fällt nicht durch ihr Eigengewicht heraus. Diese Radialspannung, die auch nach Wegnahme der axialen Spannung erhalten bleibt, wird als remanente Radialspannung $\sigma_{r,r}$ bezeichnet. Higuchi u. a. [1965] teilten diese Energie in verschiedene Anteile auf:

1. Eine elastische Komponente, welche schnell nach Entfernen des Stempels abgebaut wird,
2. einer Energie, die relativ langsam durch einen rheologischen Prozess abgebaut wird,
3. einer bestehenden elastischen Energie, die durch den Ausstoß weggenommen wird und
4. einer Energie, die bedingt durch die Spannung während dem Verpressen entsteht und in der fertigen Tablette bestehen bleibt.

Diese Spannung, die die Tablette in der Matrize hält, ist dafür verantwortlich, dass eine Kraft zum Ausstoß der Tablette aus der Matrize erforderlich ist. Die Ausstoßkraft hängt von der Reibung zwischen Tablettensteg und Matrizenwand ab. Dabei spielen die Haft- und die Gleitreibung eine Rolle. Die Haftreibung errechnet sich zu

$$F_H = F_n \mu_0 \quad (2.38)$$

und die Gleitreibung zu

$$F_G = F_n \mu_g. \quad (2.39)$$

Dabei ist μ_0 der Haftreibungskoeffizient, μ_g der Gleitreibungskoeffizient und F_n die Normalkraft. Die Reibung wird beim Tablettieren nach Ritschel und Bauer-Brandl [2002] von folgenden Faktoren beeinflusst:

- Reibungskoeffizient
- Partikelgröße und -gestalt
- Partikeloberflächenbeschaffung
- spezifische Oberfläche
- umgebende Atmosphäre
- Temperatur
- Glasübergangstemperatur
- Kräfte (z.B. Fliehkraft in der laufenden Presse, Kohäsion, elektrostatische Kräfte)
- Presskräfte

Die Ausstoßkraft hängt hauptsächlich von der Haftreibung und der Gleitreibung ab. Wird die Tablette ausgestoßen, so ist erst eine Kraft notwendig, um diese von der Matrizenwand zu

lösen (Haftreibung) und dann ist eine Kraft notwendig, um sie über die komplette Matrixhöhe zu befördern (Gleitreibung). Durch Einsetzen eines Schmiermittels (meist Fettstoffschmiermittel) kann die Reibung verringert werden, wodurch weniger Kraft notwendig ist, um die Tablette aus der Matrize zu stoßen.

Je größer der Stempeldruck beim Verpressen ist, umso höher ist die Kraft, die zum Ausstoß des Presslings benötigt wird. Dies liegt an der steigenden irreversiblen Deformation der Partikeln. Ist die irreversible Deformation groß, so kann die Tablette sich bei geringem elastischen Anteil nur wenig zurückdehnen und die remanente Radialspannung ist groß. Die remanente Radialspannung gibt Auskunft über den Anteil der irreversiblen Deformation. Zur Auswertung der elastischen Verformung trägt Krycer u. a. [1982a] die remanente Radialspannung über den maximalen Stempeldruck auf.

Nach Kikuta und Kitamori [1983] nimmt die remanente Radialspannung bei steigendem Stempeldruck zu. Daher wird ein Zusammenhang zwischen der Ausstoßkraft und der remanenten Radialspannung vermutet. Kikuta und Kitamori [1983] stellten bei gleich bleibender Tablettenmasse einen linearen Zusammenhang fest. Higuchi u. a. [1965] dagegen stellten diesen linearen Zusammenhang bei gleich bleibender Tablettenhöhe bei dem Ausstoß der Tabletten fest, die fünf mal aufeinanderfolgend verpresst wurden.

Laut Ritschel und Bauer-Brandl [2002] gibt die Matrizenwandkraft einen Hinweis auf mögliche Tendenzen zum Deckeln beim Auswurf der Tablette: Ist sie niedrig, so relaxiert die Tablette bei nachlassender Presskraft hauptsächlich in axialer Richtung (elastisch). Eine hohe Restkraft lässt hauptsächlich auf plastische Verformung und damit im Allgemeinen (bei ausreichender Schmierung) auf eine geringe Tendenz zum Deckeln schließen.

2.4.4 Axiale und radiale Druckverläufe in der Tablette

In den vorherigen Kapiteln wurde bereits einiges über die Matrizenwandkraft und deren Einflussgrößen geschrieben. Es bleibt die Frage über die radiale Druckverteilung in der Tablette offen.

Die größten Reibungskräfte greifen am Umfang der Tablette in der Matrize an, da hier der Anteil der Haft- und Gleitreibung am größten ist. Dadurch ergibt sich ein Spannungsprofil nach Abbildung 2.43.

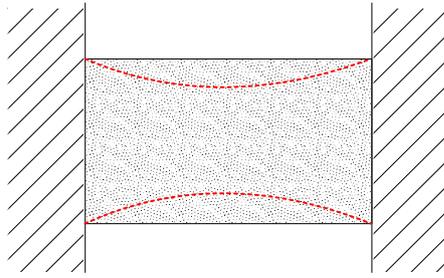


Abbildung 2.43: Spannungsprofil in der Tablette während des Verdichtens [Long, 1960]

Bedingt durch dieses Spannungsprofil fängt die Tablette bei zu großen Spannungen und sprödem Material am Rand an zu brechen. Dieser Bruch breitet sich nach dem sogenannten „capping“-Profil zur Tablettenmitte hin aus. Während der Pressung können nur Brüche an der Ober- und Unterseite der Tablette auftreten. Beim Ausstoß der Tablette aus der Matrize hingegen können Brüche, bedingt durch eine neue Spannkonzentration, auch über die komplette Tablettenhöhe entstehen (Abbildung 2.44).

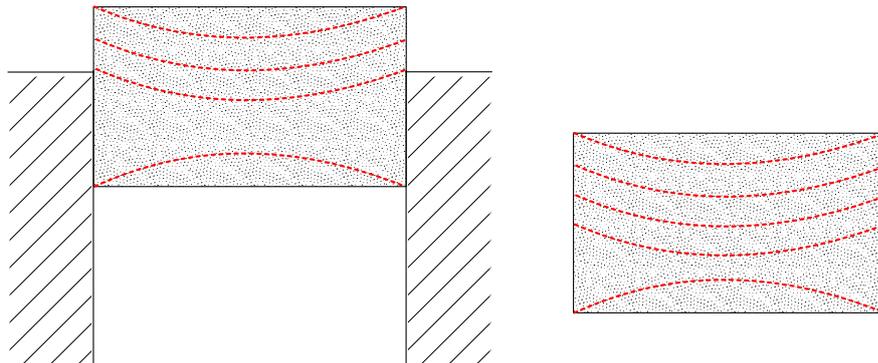


Abbildung 2.44: Spannungsprofil in der Tablette während und nach dem Ausstoßen [Long, 1960]

Abbildung 2.45 zeigt eine gedeckelte Tablette. Hier ist deutlich das Spannungsprofil wiederzuerkennen. Diese Tablette ist in der Mitte gebrochen, d.h. der Bruch wurde durch den Ausstoß hervorgerufen.



Abbildung 2.45: Bild einer gedeckelnden Tablette

Filbry [1986] führt unterschiedlichste Untersuchungsmethoden verschiedener Autoren zur Druckverteilung in einem Pressling an. Zur Untersuchung der Druckverteilung im Pressling wurden folgende indirekte Methoden verwendet [Filbry, 1986]:

- die Verschiebung verschieden gefärbter Schichten
- die Brinell-Härte auf der Oberfläche
- die Vickers-Härte
- die Verteilung radioaktiver Substanzen
- der Verlust von Enzymaktivitäten
- die Steghöhe zur Berechnung der Porosität von Tabletten
- die Änderung von Kristallinitätsgraden
- die Farbintensität druckempfindlicher Farbstoffschichten
- die Dichte von Ausbohrungen über die gesamte Dicke im Zentrum und nahe am Rand

Filbry [1986] selbst verwendete die indirekte Bestimmung der Druckverteilung mittels Aktivitätsverlust des druckempfindlichen Enzyms α -Chymotrypsin. Die Tabletten wurden mit einer Exzenterpresse hergestellt. Durch Probenahme an unterschiedlichen Stellen des Presslings (Zentrum, Rand, Oberseite, Unterseite) konnte er für eine plane Tablette folgende Aktivitätsverluste feststellen (Abbildung 2.46).

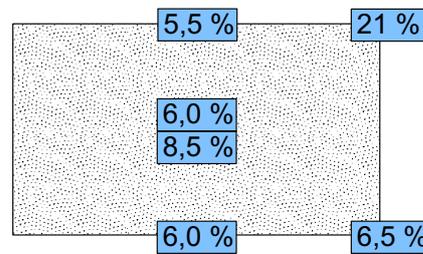


Abbildung 2.46: Druckverteilung über den Querschnitt einer planen Tablette [Filbry, 1986]

2.4.5 Axial-Radial-Diagramme

Eine weitere Möglichkeit, zur Vorhersage des Deckelns der Tabletten besteht in der Auswertung der Axial-Radial-Diagramme (Abbildung 2.47). Diese Diagramme werden in der Literatur oft auch als „cycle plots“ bezeichnet.

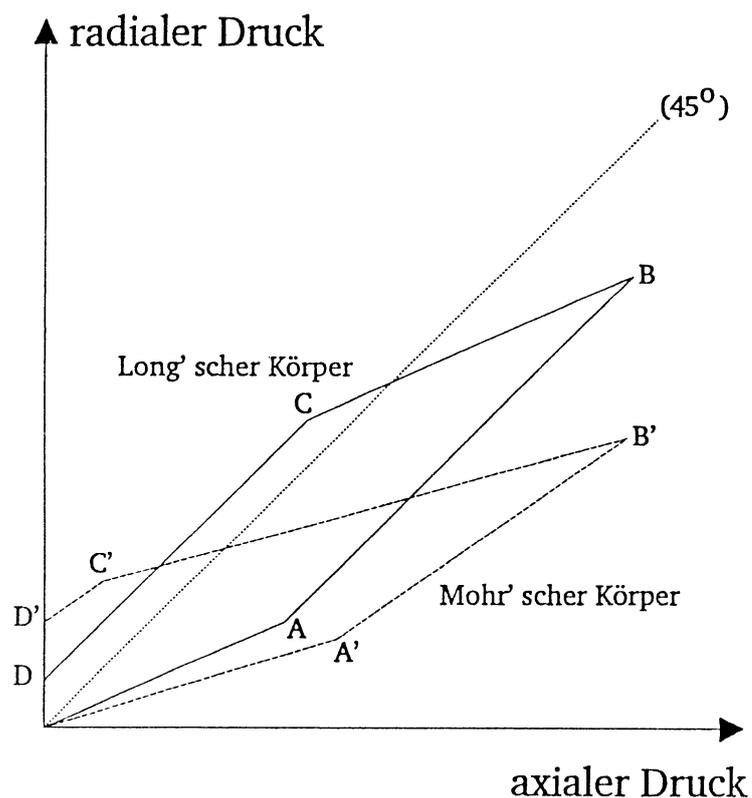


Abbildung 2.47: Schematisches Axial-Radial-Diagramm [Ritschel und Bauer-Brandl, 2002]

Long [1960] beschreibt erste Ansätze zur Interpretation. Er geht bei seinen Annahmen allerdings von einer homogenen, porenlosen Probe, keinem Auftreten einer Wandreibung und einer starren Matrizenwand aus. Er unterscheidet grundlegend zwei verschiedene Schüttgüter:

Zum einen Schüttgüter, die einen Fließort mit konstanter Schubspannung besitzen (Long'sche Körper) und zum anderen Schüttgüter, die einen linearen Fließort haben (Mohr'sche Körper). Long [1960] teilt den Kurvenzug in vier Abschnitte ein.

Im ersten Abschnitt ($0 \rightarrow A$, $0 \rightarrow A'$) wird der Probenkörper elastisch verformt, wobei bei idealelastischer Belastung die Steigung der Geraden dem Horizontallastverhältnis λ entspricht. Nach Überschreiten der Fließgrenze im Punkt A weist ein Long'scher Körper eine plastische Verformung auf, wobei der komplette axiale Druck auf die Matrizenwand übertragen wird (Steigung = 1). Ist die Differenz von axialem und radialem Druck nach dem Überschreiten der Fließgrenze (A') nicht konstant, d.h. die Steigung $A' \rightarrow B'$ ist kleiner eins, so handelt es sich um einen Mohr'schen Körper. Typisch hierfür sind sprödebrüchige Materialien, wie beispielsweise Lithiumcarbonat [Profitlich, 1990]. Bei Druckentlastung (Punkt B, B') werden zuerst die elastischen Spannungen abgebaut, wodurch die Steigung der Geraden $B \rightarrow C$, bzw. von $B' \rightarrow C'$ der selben entspricht, wie der von $0 \rightarrow A$, bzw. der von $0 \rightarrow A'$, also dem Horizontallastverhältnis λ . Am Punkt D (D') hat der Stempel den Kontakt mit dem Pressling verloren. Wie bereits in Kapitel 2.4.3 besprochen, bleibt eine remanente Radialspannung auch nach Wegnahme der axialen Spannung erhalten ($0 \rightarrow D$, $0 \rightarrow D'$). Deckelnde Tabletten verhalten sich eher wie Mohr'sche Körper, wohingegen nicht deckelnde Tablette ein Verhalten von Long'schen Körpern aufweisen [Ritschel und Bauer-Brandl, 2002].

Diese Modellvorstellungen Longs werden allerdings von mehreren Autoren kritisiert. Die Unterteilung in plastische und elastische Verformungsbereiche basieren auf idealisierten Vorstellungen, was bereits die idealisierten Annahmen Longs zeigen. Wäre der Probenkörper porenlos, so wäre ein Verdichten nicht mehr möglich. Auch die Wandreibung und die Aufweitung der Matrize müssen in die Überlegung miteinbezogen werden [Profitlich, 1990]. Des weiteren ist anzumerken, dass Long [1960] seine Theorie mit Messungen belegt, die unter 30 Messpunkte aufweisen.

2.5 Vergleich unterschiedlicher Pressentypen

2.5.1 Rundläuferpresse

Bei Rundläuferpressen können grundsätzlich zwei verschiedene Bauarten unterschieden werden. Zum einen kann der Gegendruck durch eine rotierende Gegendruckplatte (counter-pressure-plate) erzeugt werden, zum anderen kann die Rundläuferpresse als sogenanntes „double-punch“ System ausgeführt sein, d.h. der Gegendruck wird durch den Oberstempel erzeugt. Im Weiteren wird näher auf die „double-punch“ Ausführung eingegangen. Die Bezeichnung Presstation beinhaltet bei Rundläufertablettenpressen die Füll-, Dosier-, Komprimier- und Auswurfstelle, da die ablaufenden Arbeitsvorgänge an bestimmte Stellen der Maschine gebunden, d.h. stationär sind. Der einfache Rundläufer hat eine Presstation, der Doppelrundläufer zwei Presstationen. Als Anzahl der Werkzeugsätze wird die Gesamtzahl der auf dem Rotor befindlichen Matrizen mit dem zugehörigen Ober- und Unterstempel (bei Gegendruckplatte nur Unterstempel) bezeichnet. Ein Werkzeugsatz kann einstempelig oder mehrstempelig ausgeführt sein.

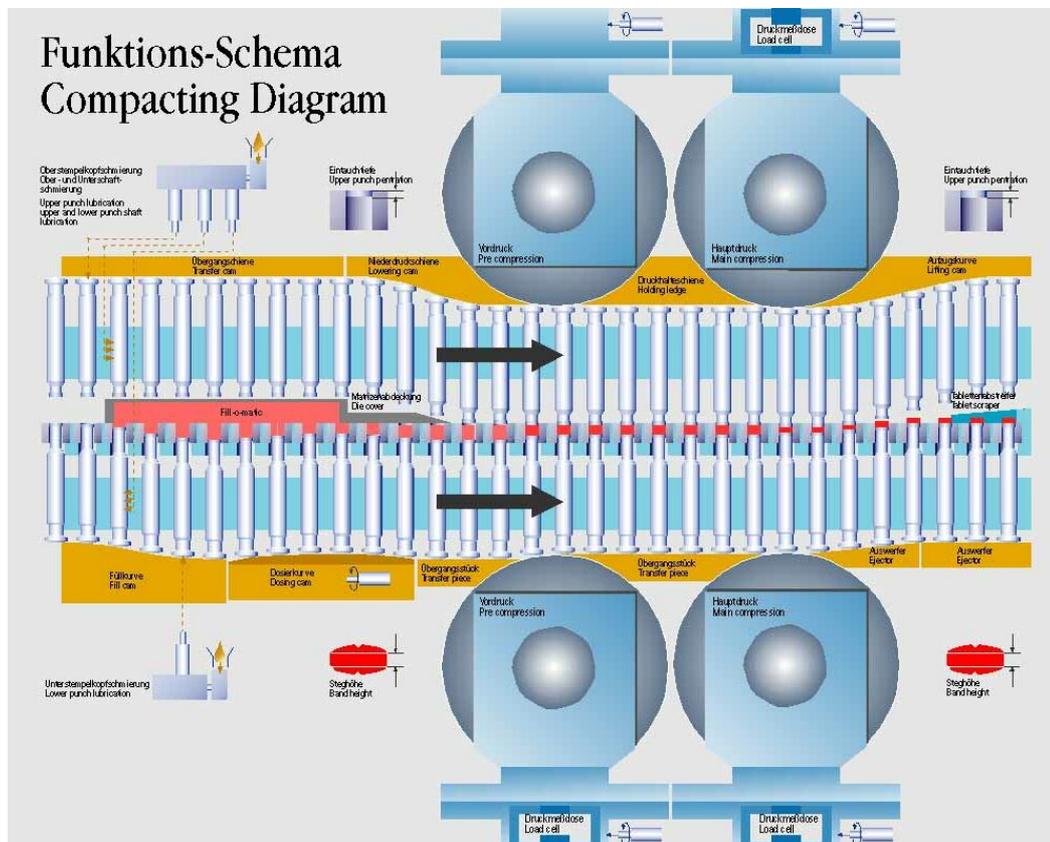


Abbildung 2.48: Prozessablauf Rundläufertablettenpresse (Fette GmbH)

Der Kompressionsablauf wird aus Abbildung 2.48 ersichtlich. Die durch Schnecke oder Zahnrad angetriebene Matrizenscheibe (Rotor) dreht sich in der Horizontalebene um ihre Achse. Die Ober- und Unterstempel sitzen in den Führungen der Matrizenscheibe und werden durch die feststehende Oberstempel-Führungsschiene sowie die Niederzugsschiene auf- und abwärts bewegt.

Der Unterstempel gleitet auf der Unterstempelgleitbahn bis zum Füllschuh, wo er nach unten gezogen und der freie Raum der Matrize mit Material befüllt wird. Beim Weiterdrehen der Matrizenscheibe wird der Unterstempel durch das verstellbare Dosierstück gehoben (daraus resultiert die Fülltiefe) und überflüssiges Material nach oben gedrückt und abgestreift. Der Unterstempel wird anschließend heruntergezogen. Zur Einstellung der gewünschten Füllmasse, muss je nach Matrizentischgeschwindigkeit, Schüttdichte und Fließfähigkeit des Schüttgutes, die Drehzahl der Füllräder in der Füllstation und die Fülltiefe variiert werden.

Während der Füllung schwebt der Oberstempel über dem Füllschuh und gleitet entsprechend der Oberstempelkurve abwärts bzw. wird von dem Niederdruckstück heruntergedrückt. Dann taucht er in die Matrize ein. Beide Stempel werden anschließend unter die Druckrollen gefahren, wobei die des Unterstempels zur Einstellung des Druckes über die Steghöhe verstellbar ist. Wird die Steghöhe verkleinert, so wird bei gleicher Füllmenge und gleichem Material der Druck erhöht. Nun pressen beide Stempel gemeinsam die Tablette. Der Oberstempel wird durch die Kurve wieder gehoben und hebt sich von der fertig gepressten Tablette ab. Der Unterstempel wird durch die Aushebebahn gehoben und stößt die Tablette nach oben aus. Diese wird durch den Tablettenabstreifer abgestreift und rutscht über eine Rinne von der Matrizenscheibe.

Berechnung der Ausstoßmenge:

- Rundläufer einstempeliger Werkzeugsatz, 24 Werkzeugsätze = 24 Tabletten pro Matrizenscheibenumdrehung
- Rundläufer fünfstempeliger Werkzeugsatz, 24 Werkzeugsätze = 120 Tabletten pro Matrizenscheibenumdrehung

Die Ausstoßmenge pro Minute ergibt sich aus der Drehzahl der Matrizenscheibe [Ritschel und Bauer-Brandl, 2002].

2.5.2 Exzenterpresse

Exzenterpressen haben eine Matrize, die in der Matrizenplatte auf dem feststehenden Matrizenstisch ruht. In der Matrizenbohrung bewegt sich im Rhythmus der Exzentrerscheibe ein aus Ober- und Unterstempel bestehendes Stempelpaar (Werkzeugsatz). Ein Werkzeugsatz kann einstempelig oder mehrstempelig ausgeführt sein. Der Unterstempel sitzt immer in der Matrizenbohrung und bestimmt durch seinen Tiefstpunkt das Matrizenfüllvolumen (Dosierung). Der Oberstempel ist exzentrisch am Schwungrad gelagert und führt daher gegen die Zeit eine Sinusbewegung durch, taucht dabei periodisch in die Matrizenbohrung ein und verdichtet das zu verpressende Material. Der Füllschuh gleitet über die Matrizenbohrung und befüllt dadurch die Matrize mit Material.

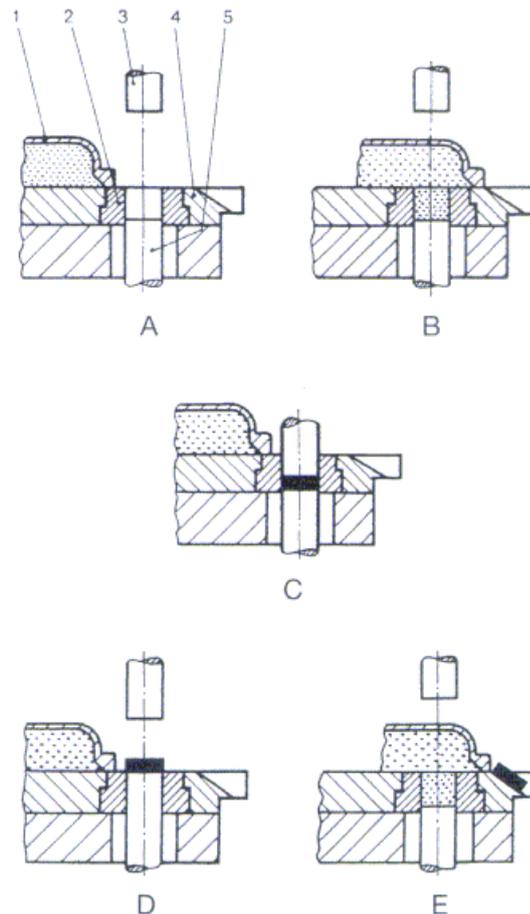


Abbildung 2.49: Schematische Darstellung des Kompressionsverlaufs bei der Exzenterpresse. 1 = Füllschuh, 2 = Matrize, 3 = Oberstempel, 4 = Matrizenplatte, 5 = Unterstempel [Ritschel und Bauer-Brandl, 2002]

Der Kompressionsverlauf wird aus Abbildung 2.49 ersichtlich. Ober- und Unterstempel befinden sich in der Ausgangsposition in Höchst- und Tiefststellung (A). Der Füllschuh gleitet über die Matrize, wobei das Füllgut in die Matrizenbohrung gelangt (B). Beim Zurückgleiten des Füllschuhes bewegt sich der Oberstempel abwärts und verdichtet das Füllgut zur Tablette (C). Der Oberstempel bewegt sich nach der Kompression aufwärts. Etwas verzögert hebt sich der Unterstempel und stößt die gepresste Tablette hoch (D). Während nun die Vorderkante des Füllschuhes die Tablette von der Matrize schiebt, senkt sich bereits der Unterstempel bis zu seinem Tiefpunkt und die Matrizenbohrung wird neu gefüllt (E). Daraus ergibt sich bei einstampeligen Werkzeugen eine Tablette pro Exzenterumdrehung.

Berechnung der Ausstoßmenge:

- Exzenter einstampeliger Werkzeugsatz = 1 Tablette pro Exzenterumdrehung
- Exzenter fünfstampeliger Werkzeugsatz = 5 Tabletten pro Exzenterumdrehung

Die Ausstoßmenge pro Minute ergibt sich aus der Drehzahl des Exzenters [Ritschel und Bauer-Brandl, 2002].

2.5.3 Hydraulische Unterstempelpresse

Die am Lehrstuhl für Maschinen- und Apparatekunde befindliche hydraulische Unterstempelpresse wurde speziell angefertigt, um den Tablettierprozess genauer zu untersuchen. Die Matrize muss von Hand befüllt werden. Ist die Matrize befüllt, wird der Oberstempel mittels Handrad in die Matrize eingetaucht. Anschließend erfolgt die Kompaktierung durch den beweglichen Unterstempel. Hierbei wird die Kraft aktiv durch ein Hydrauliksystem aufgebracht. Mit dieser Presse ist es möglich, alle im Tablettierprozeß auftretenden Kräfte sowie Zeit und Weg exakt und mit einer hohen Messrate zu erfassen. Der genaue Aufbau der Tablettenpresse und der Prozessablauf werden in Kapitel 3.1 beschrieben.

3 Material und Methoden

3.1 Versuchsanlagen zur Tablettierung

Die Versuchsreihen werden auf unterschiedlichen Pressen (Rundläufertablettenpresse und hydraulische Unterstempelpresse) angefertigt, um eine Vielzahl an Prozessparametern untersuchen zu können. Desweiteren soll überprüft werden, inwieweit die Anlagenparameter der lehrstuhleigenen hydraulischen Unterstempelpresse, denen handelsüblicher Rundläufertablettenpressen der Lebensmittelindustrie, entsprechen.

Im nächsten Abschnitt, wird der Aufbau und die messtechnische Ausstattung der hydraulischen Unterstempelpresse im Detail beschrieben. Anschließend werden die beiden verwendeten Rundläufertablettenpressen vorgestellt.

3.1.1 Aufbau der hydraulischen Unterstempelpresse

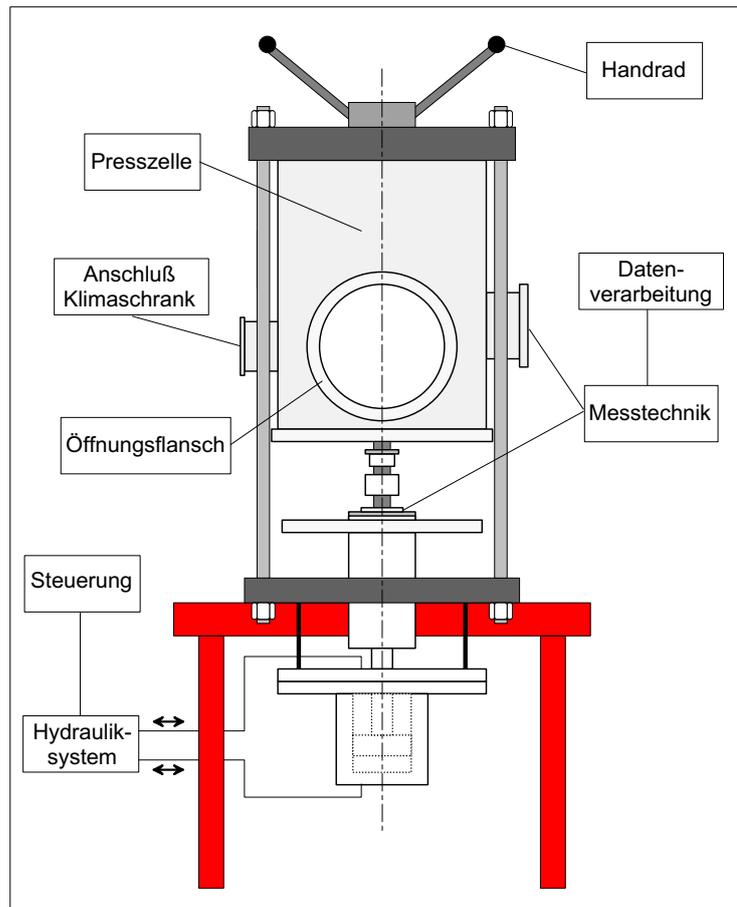


Abbildung 3.1: Aufbau der Tablettenpresse

Der Aufbau der Versuchsanlage ist in Abbildung 3.1 schematisch dargestellt. Der Versuchstand besteht aus drei funktionalen Einheiten: Der Presszelle, der Hydraulik und der Messtechnik. Abbildung 3.2 zeigt ein Foto der gesamten Versuchsanlage.



Abbildung 3.2: Versuchsanlage im Technikum des Lehrstuhls für Maschinen- und Apparatekunde

Presszelle:

Die Presszelle wurde 1978 am Lehrstuhl für Mechanische Verfahrenstechnik der Technischen Hochschule Karlsruhe hergestellt und am Lehrstuhl für Maschinen- und Apparatekunde, der Technischen Universität München, durch zahlreiche Umbaumaßnahmen an die jeweiligen Projekte angepasst.

Die klimatisierbare Presszelle, in der alle Presswerkzeuge eingebaut sind, ist von außen über den Öffnungsflansch zugänglich. Am seitlichen Anschlussflansch kann zur Klimatisierung des Presseninnenraums ein Klimaschrank angeschlossen werden. Unter der Presszelle ist der Arbeitszylinder der Hydraulikanlage angebracht, der den Vorschub beim Tablettieren und das Ausstoßen der Tabletten bewirkt. Der Oberstempel dient als starres Widerlager und wird vor und nach dem Kompaktiervorgang mittels Handrad manuell auf- bzw. abgefahren.

Abbildung 3.3 zeigt eine stark vereinfachte schematische Zeichnung der Presszelle. Die zylindrische Presszelle (1) hat einen Außendurchmesser von 300 mm und eine Höhe von 310 mm. Der Zelleninnenraum zwischen Grundplatte (2) und dem Flansch (3), der hochgefahrenen Gegenlagerspindel (4), hat einen Durchmesser von 270 mm und eine maximale Höhe von 150 mm. Die Matrize (7) ist aus Stahl 1.4122 gefertigt und auf eine Härte von 40 HRC vakuumvergütet. Sie ist in die Grundplatte (2) eingepasst und hat einen mittleren Innendurchmesser (Presskanal) von 20,3 mm und ist konisch mit einem Neigungswinkel von $0,35^\circ$ nach oben aufgeweitet. Der Außendurchmesser der Matrize beträgt 90 mm. Ober- und Unterstempel sind aus Werkzeugstahl 1.2826 hergestellt und auf 58 HRC vakuumvergütet.

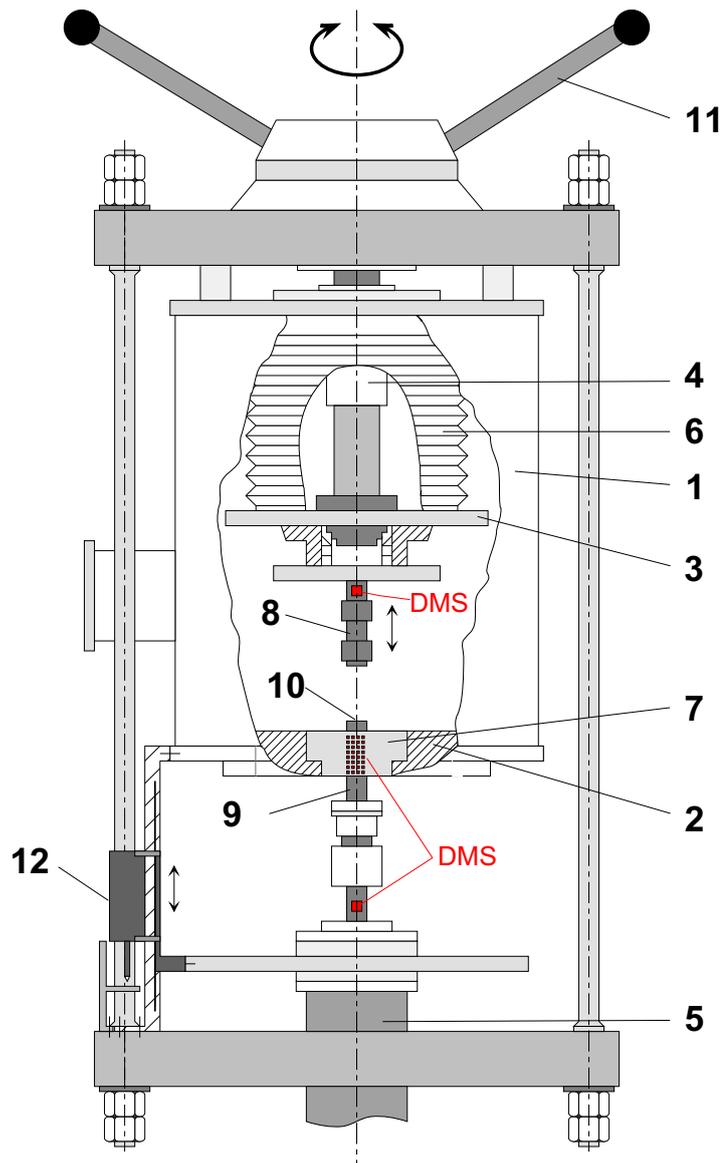


Abbildung 3.3: Schematische Darstellung der Presszelle: (1)Presszelle, (2)Grundplatte, (3)Flansch, (4)Gegenlagerspindel, (5)Schubstange, (6)Tombakbalg, (7)Matrize, (8)Oberstempel, (9)Unterstempel, (10)Tablette, (11)Handrad, (12)Wegmesser

Hydraulik

Das Hydrauliksystem [HY-A-08-976, Meinburk Bosch Hydraulik, Unterschleißheim] arbeitet mit einer Druckregelung und einer Volumenstromsteuerung. An der Schalttafel (Abbildung 3.4) kann im Handmodus der maximale Druck eingestellt werden. Im Automatikmodus kann neben dem maximalen Druck auch die Druckhaltezeit und die Stempelgeschwindigkeit geregelt werden. Der maximale Pressdruck liegt bei 240 bar. Der Drucksensor hat einen Messbereich von 0 bis 350 bar, die Druckregelung an der Regelkarte hat einen Spannungsbereich von 0 bis 10 V, daher ist der maximale Betriebsdruck der Hydraulik bereits bei einer Potentiometereinstellung

von 69% (maximal mögliche Ausgangsspannung des Drucksensors im eingebauten System 6,9 V) erreicht.

Die Regelung erfolgt im Automatikmodus über eine SPS-Steuerung. Die Steuerung vergleicht den eingestellten Druck-Soll-Wert mit dem Druck-Ist-Wert. Beim Erreichen des Druck-Soll-Wertes wird das Hydraulikregelventil geschlossen und der Stempel verweilt in seiner Position. Das Ventil wird erst nach Ablauf der Druckhaltezeit geöffnet und der Stempel bewegt sich wieder nach unten. Die prozentuale Öffnung des Hydraulikregelventils (Ölmenge die gefördert wird) regelt die Stempelgeschwindigkeit, welche getrennt für die Belastung (d.h. Stempel bewegt sich nach oben) und Entlastung (d.h. Stempel bewegt sich nach unten) am jeweiligen Potentiometer eingestellt werden kann.

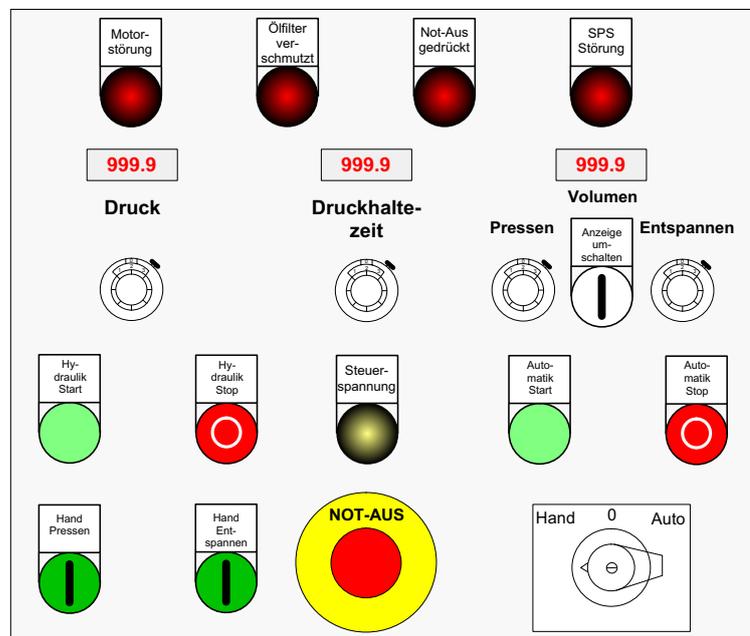


Abbildung 3.4: Schalttafel der Hydraulikanlage

Messtechnik

Die Messtechnik der Versuchsanlage wird im nachfolgenden Kapitel ausführlich beschrieben.

3.1.2 Messtechnische Ausstattung der hydraulischen Unterstempelpresse

3.1.2.1 Instrumentierung und Kalibrierung der Stempel

Die Instrumentierung der Ober- und Unterstempel erfolgt durch Dehnmessstreifen [HJM Messtechnik GmbH, Kastl]. Diese sind zur Kraftmessung mit 90° T-Rosetten (FAET-A6259L-35-SXE) der Firma Thermo BLH GmbH, Heilbronn, bestückt.

Es sind je zwei DMS-Streifen quer und zwei DMS-Streifen längs an Ober- und Unterstempel angeklebt. Die vier aktiven 350 Ω T-Rosetten sind zu einer Vollbrücke geschaltet. In Abbildung 3.5 wird die Platzierung der Dehnmessstreifen an den Stempeln und die Anordnung am Umfang gezeigt. Die Verwendung der T-Rosetten in Verbindung mit einer Vollbrückenschaltung verhindern verfälschte Messergebnisse durch nicht zentrische Belastung (Knickbelastung).

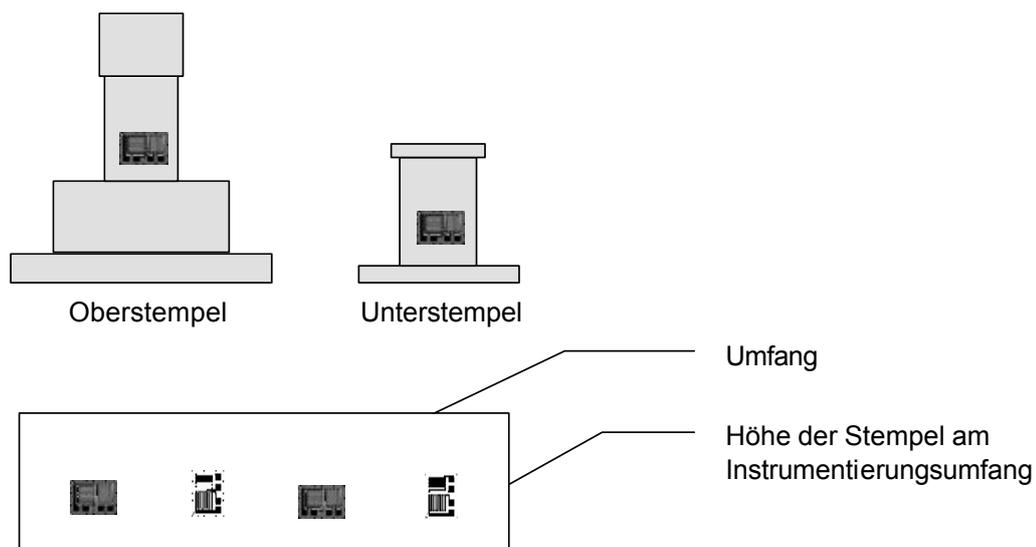


Abbildung 3.5: Anordnung der DMS-Streifen an Ober- und Unterstempel

Die Kalibrierung von Ober- und Unterstempel erfolgt statisch mit Hilfe der Kraftmessdose C9B/50kN [HBM, Darmstadt]. Hierzu wird die Kraftmessdose zwischen Ober- und Unterstempel gelegt und statisch mit steigender Presskraft belastet. Der genaue Kalibrationsaufbau innerhalb der Presse ist in Abbildung 3.6 dargestellt.

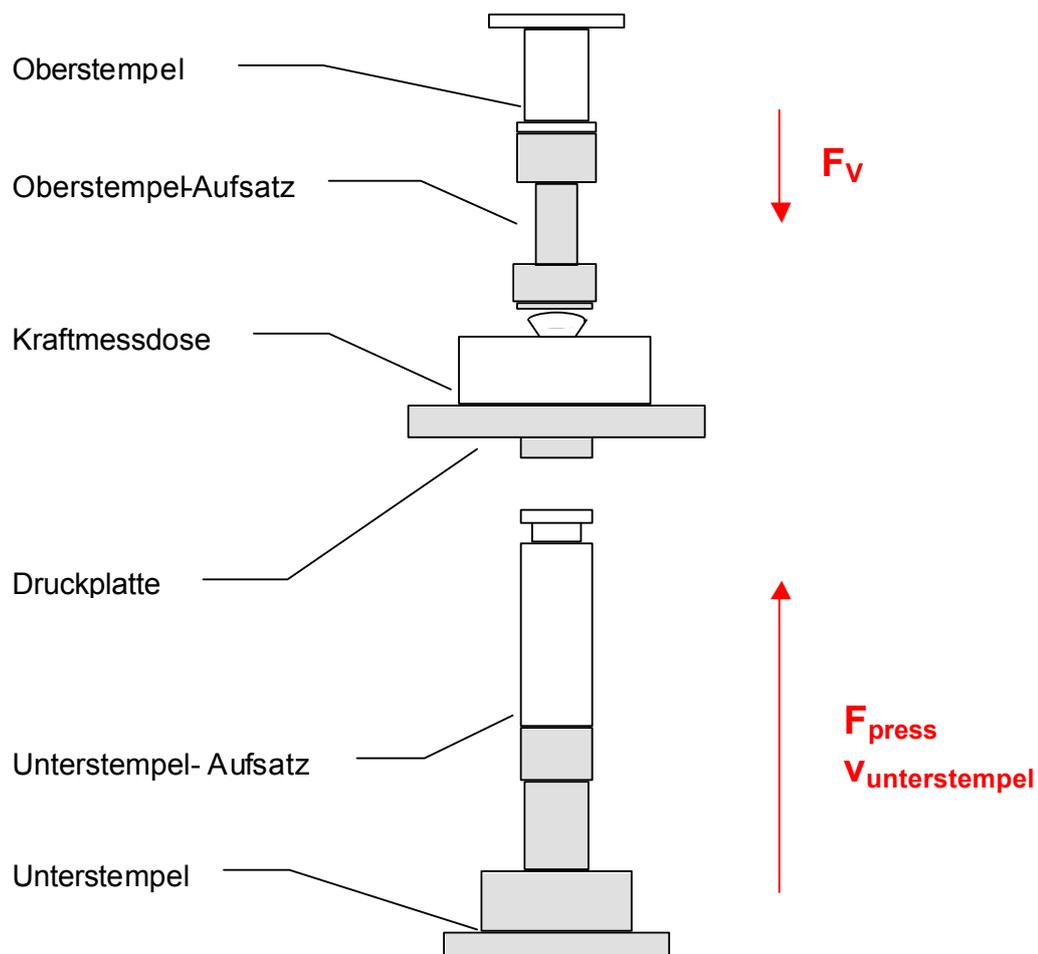


Abbildung 3.6: Schematischer Aufbau der Kalibrierung in der Presse

Auf Grund der geometrischen Abmessungen und der Positionierung der Kraftmessdose in der Presszelle wird zunächst der Oberstempel direkt über die Kraftmessdose geeicht. Anschließend wird der Unterstempel über den bereits kalibrierten Oberstempel geeicht.

Vor Beginn der Messung müssen spezielle Einstellungen am Messverstärker vorgenommen werden und ein Nullpunktgleich erfolgen. Für die Kalibrierung des Oberstempels wird die Kraftmessdose am Messverstärker an Kanal 1 angeschlossen. Tabelle 3.1 zeigt die wichtigsten Einstellungen, die im Gerätesetup des MGCplus Assistenten vorgenommen werden müssen.

Tabelle 3.1: Einstellungen Oberstempelkalibration

	Kraftmessdose	Oberstempel
Speisespannung:	2,5 V	5,0 V
Brückenart:	Vollbrücke	Vollbrücke
Messen 0%:	unbelastet messen	-
Messen 100%:	2 mV/V	-
Einheit:	V	-

Die Einstellung der Empfindlichkeit 2 mV/V für die Kraftmessdose ergibt bei einem gemessenen Signal von 0,500 V einen Kraftwert von 5,00 kN. Somit ist das gemessene Signal auch direkt als gemessene Kraft ablesbar. Die Kalibrierung erfolgt über die Aufnahme der Rohsignale (mV/V) am Oberstempel in der Einstellung „Handbetrieb“. Die Platzierung der Kraftmessdose unter dem Oberstempel erfolgt so, dass gerade keine Vorspannung anliegt. Nach erfolgtem Pressen der Kraftmessdose an den Oberstempel werden die jeweiligen Signale des Oberstempels unter „MESS“ im Gerätesetup gemessen. Die Messwertaufnahme erfolgt von 0 kN bis 50 kN in ca. 7 kN Schritten. Die Kalibrierfunktion wird aus 5 Messreihen berechnet und statistisch ausgewertet.

Die Prozedur für die Kalibrierung des Unterstempels erfolgt nach dem gleichem Prinzip, lediglich die Kraftmessdose wird durch den Oberstempel ersetzt. Tabelle 3.2 zeigt die für diese Kalibrierung notwendigen Verstärkereinstellungen im Gerätesetup.

Tabelle 3.2: Einstellungen Unterstempelkalibration

	Oberstempel	Unterstempel
Speisespannung:	5,0 V	5,0 V
Brückenart:	Vollbrücke	Vollbrücke
Messen 0%:	Daten aus Oberstempel-Kalibrierung	-
Messen 100%:	Daten aus Oberstempel-Kalibrierung	-
Einheit:	kN	-

Die Ergebnisse der Kalibrierung sind in Kapitel 5.1.1 dargestellt.

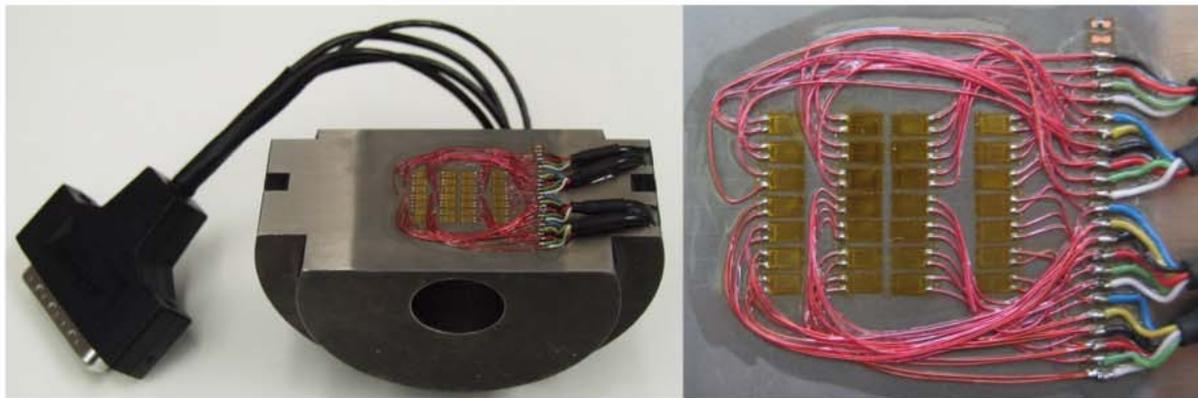


Abbildung 3.8: Applikation der Dehnungsmesstreifen auf der Matrize

Für die Kalibrierung der Matrize wird als Druckübertragungsmedium Wasser gewählt. Durch die hydrostatischen Eigenschaften von Wasser wird eine Kalibrierung der einzelnen DMS-Ketten ermöglicht. Zunächst muss sichergestellt werden, dass die für die Kalibrierung verwendeten Dichtungsscheiben (Abbildung 3.9), exakt in der Matrize positioniert werden können. Hierfür muss der inkrementelle Wegaufnehmer in der richtigen Position auf Null gesetzt werden. Als Nullpunkt wird eine Oberstempelleindringtiefe von 13,2 mm festgelegt. Durch Vorspannen des Oberstempels mit einer Kraft von 1 kN und einem Unterstempeldruck von 1 kN werden die Stempel aufeinander gepresst und der Weg auf Null gesetzt.

Durch den fehlenden Gegendruck und den Gewindegang der Oberstempelführung kann diese Position bei steigendem Pressdruck nicht exakt eingehalten werden. Aus diesem Grund wird zunächst eine Korrekturfunktion für den Oberstempelversatz erstellt. Hierfür wird wie oben beschrieben der Weg genullt und drei Kalibrierungen durchgeführt.

Die gefertigten Dichtscheiben sollen eine Kalibrierung der Matrize bis zu einer Unterstempelpkraft von 30 kN ermöglichen. Besondere Anforderungen an die Dichtscheiben sind: Kein Wasseraustritt während der Kalibration, Möglichkeit des Befüllens ohne Gasblasen und Einstellung kleiner Wasserhöhen. Abbildung 3.9 zeigt die verwendeten Dichtscheiben.

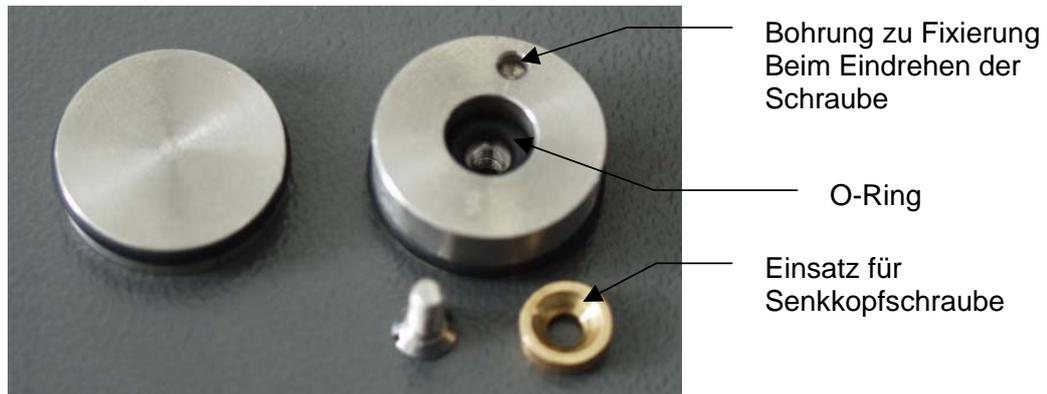


Abbildung 3.9: Dichtscheiben zur Wasserkalibrierung

Für die exakte Positionierung der Dichtscheiben in den entsprechenden Höhen in der Matrize wurde eine Positioniervorrichtung (Abbildung 3.10) angefertigt. Damit ist es möglich, die Dichtscheiben in definierten Höhen zu positionieren, um so die gewünschten Kalibrationshöhen zu erreichen.



Abbildung 3.10: Positioniervorrichtung zum Einbringen der unteren Dichtscheibe

Zunächst wird die untere Dichtscheibe (ohne Bohrung) mit der Positioniervorrichtung in die gewünschte Position gebracht. Anschließend wird die Matrize mit Wasser überfüllt und die obere Dichtscheibe (mit Bohrung) durch Eindrücken des Kalibrieroberstempels (bei Einzelbelastung der DMS-Reihen zusätzlich Einlagscheibe) bis zum Aufliegen auf der Matrize in Position gebracht. Dabei ist darauf zu achten, dass das austretende Wasser entfernt werden muss und sich die untere Dichtscheibe nicht durch einen Druckaufbau verschiebt. Sind beide Dichtscheiben in der gewünschten Position, wird die mit Teflon umwickelte Schraube in die obere Dichtscheibe eingeschraubt.

Abbildung 3.11 verdeutlicht den schematischen Aufbau der Dichtscheiben in der Matrize. Die resultierende Wasserhöhe ergibt sich aus den wasserseitigen Dichtungskanten der oberen und unteren Dichtungsscheibe.

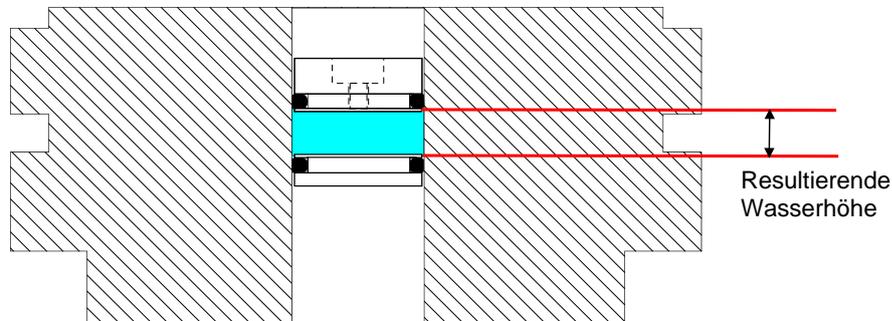


Abbildung 3.11: Schematische Darstellung der Wasserkalibrierung

Nach erfolgter Positionierung der Dichtscheiben in der Matrize wird die Matrize in die Presse eingesetzt, mit dem Messverstärker verbunden und alle DMS-Vollbrücken genullt. Anschließend wird der Oberstempel mit 1 kN vorgespannt und die Dichtscheiben mit dem Unterstempel bei der kleinst möglichen Potentiometereinstellung mit Druck beaufschlagt. Die Messwerte werden mit einer Messrate von 10 Werten/s aufgezeichnet, um eine ausreichende Anzahl an Messwerten aufzuzeichnen und die Dateigröße möglichst klein zu halten. Ist die Kalibrieranordnung statisch mit Druck beaufschlagt, wird die Messung manuell gestartet und die Unterstempelkraft über das Potentiometer an der Schalttafel bis zu einer Kraft von 30 kN gesteigert.

Die Kalibrierung der Matrize wird in zwei Schritten durchgeführt. Zunächst wird die Anzahl der belasteten DMS-Brücken schrittweise erhöht. Bei einer Wasserhöhe von 2,2 mm ist somit nur die oberste DMS-Reihe mit einer Last beaufschlagt. Durch Einstellen der Wasserhöhe auf 15,4 mm werden alle sieben applizierten DMS-Reihen belastet.

Im zweiten Schritt werden alle DMS-Reihen einzeln kalibriert, um eine Punktbelastung der einzelnen DMS-Vollbrücken zu erzielen. Dazu werden die Dichtscheiben so positioniert, dass mit der resultierenden Wasserhöhe (≈ 3 mm) sichergestellt wird, dass das gesamte Messgitter (2,2 mm) der DMS-Streifen trotz Oberstempelversatz belastet ist.

Die Ergebnisse der Kalibrierung sind in Kapitel 5.1.2 dargestellt.

3.1.2.3 Wegmessung

Zur Messung des Unterstempelweges wird ein inkrementaler Wegaufnehmer vom Typ MT2501 der Firma Heidenhain, Traunreut, verwendet (Abbildung 3.12).

Der Wegaufnehmer ist mit einer Halterung direkt mit dem bewegtem Unterstempel verbunden. Zur Messung des Unterstempelweges ist ein horizontaler Steg an einer vertikal verstellbaren Halterung am Pressentisch angebracht. Die vertikal verstellbare Halterung ermöglicht über ein Feingewinde die genaue Positionierung der Sensorspitze, die den horizontalen Steg berührt (vgl. Abbildung 3.3 und Abbildung 3.12). Durch diese Konstruktion ist eine exakte Messung des Unterstempelweges über den gesamten Messbereich des Wegaufnehmers möglich. Die Auflösung des Weggebers beträgt $0,4 \mu\text{m}$. Der inkrementale Weggeber wurde werksseitig kalibriert und bedarf keiner weiteren Kalibrierung. Vor den Messungen muss lediglich der Nullpunkt, wie in Kapitel 3.1.2.2 beschrieben, definiert werden.

Das Ausgangssignal des Wegaufnehmers stellt ein sinusförmiges Strom-Inkrementalsignal dar. Der Messverstärker kann jedoch nur Rechteckimpulsfolgen in Form von Spannungssignalen (TTL Signalen) aufnehmen. Aus diesem Grund wurde ein externer Strom/Spannungswandler, der über eine externe Spannungsquelle von 5 V versorgt wird, zwischen den Wegaufnehmer und den Messverstärker geschaltet [EXE 602 E, Heidenain, Traunreut]. Nach erfolgter Wandlung des Ausgangssignals des Wegaufnehmers in der EXE-Box, kann der Messverstärker das Signal aufnehmen und zur weiteren Verarbeitung speichern.

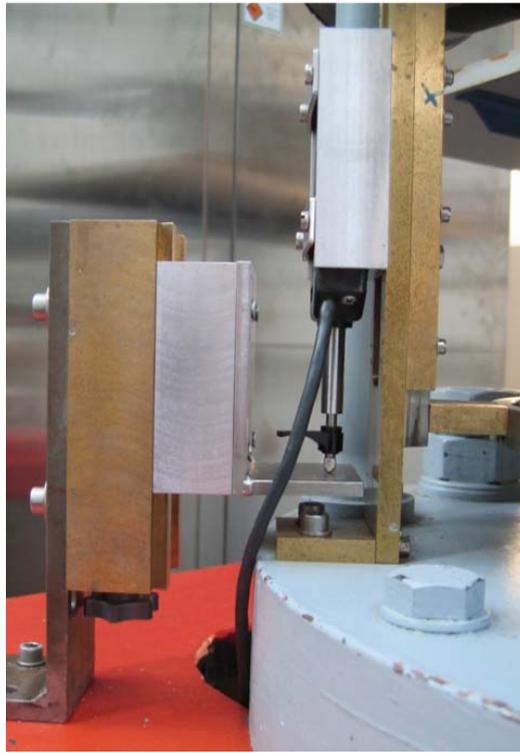


Abbildung 3.12: Inkrementaler Wegaufnehmer

3.1.2.4 Aufbau der Messkette

Abbildung 3.13 zeigt schematisch den Aufbau der Messkette. Alle Sensoren sind über Verstärkermodule an den Messverstärker MGCplus [HBM, Darmstadt] angeschlossen. Die gesamte Datenerfassung sowie -visualisierung, -analyse und -dokumentation aller Kanäle erfolgt über die Software Catman [HBM, Darmstadt] am Messrechner (AMD Athlon (TM) XP 2000+, 256 MB RAM).

Der Messverstärker MGCplus stellt zusammen mit der Software Catman ein Messsystem zur parallelen Echtzeit-Datenerfassung für statistische und dynamische Anwendung bei den Versuchsdurchführungen dar. Die Vielzahl an wählbaren Datenerfassungsraten und modularen Systemkonfigurationen erlauben eine optimale Anpassung des Messsystems an die jeweiligen Prozessparameter. Der Messverstärker ermöglicht eine simultane und parallele Datenerfassung (mit 24-Bit-Konvertern) in allen Kanälen. Jeder Kanal ist mit einem eigenen A/D-Prozessor ausgestattet.

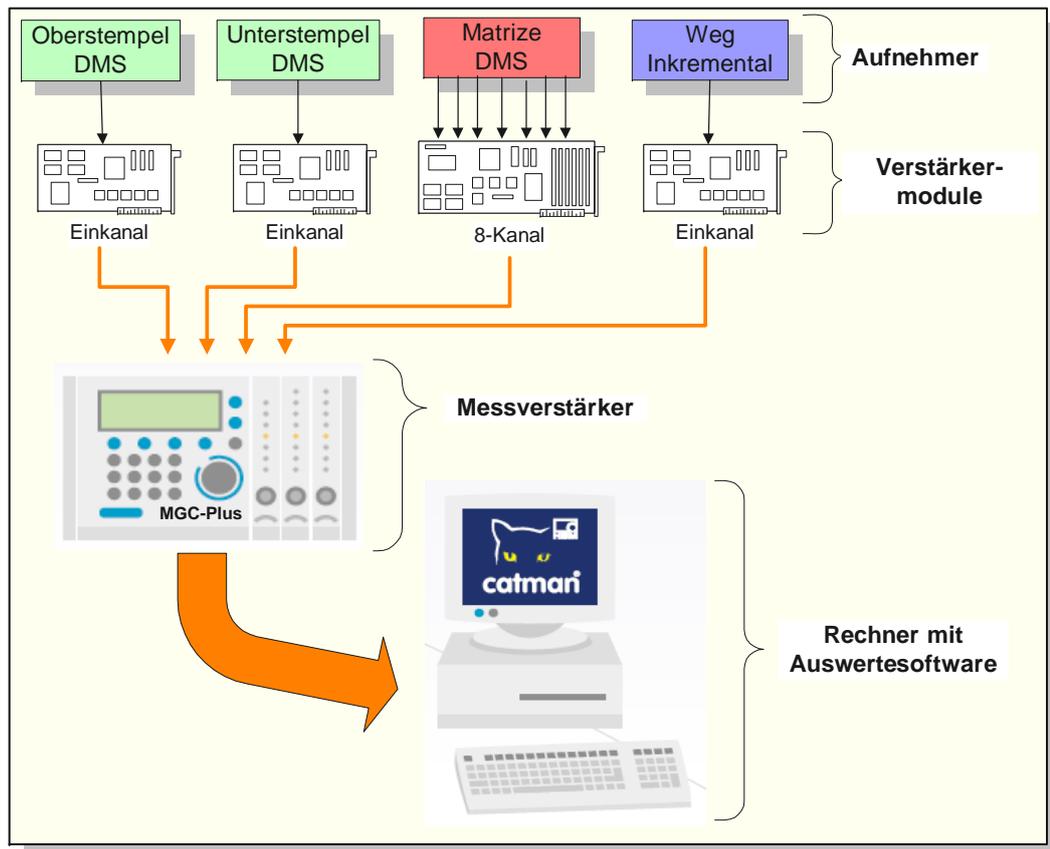


Abbildung 3.13: Aufbau der Messkette

In nachfolgender Tabelle 3.3 sind die wichtigsten technischen Daten der Messverstärkermodule zusammengefasst dargestellt.

Tabelle 3.3: Technische Daten Messverstärkermodule

Sensor	Oberstempel	Unterstempel	Matrize	Weg
Verstärkermodul	Einkanal	Einkanal	Mehrkanal	Einkanal
Verstärkereinschub	ML55B	ML55B	ML801	ML60B
Anschlußplatte	AP01	AP01	AP815	AP01
Aufnehmeranschluß	Sub-D 15 polig	Sub-D 15 polig	2 x Sub-D 25 polig	Sub-D 15 polig
max. Messrate 1/s	19.200	19.200	2.400	19.200
Speisung	5 V	5 V	5 V	5 V Eingangspegel
Messgrößenaufnehmer	DMS Vollbrücke	DMS Vollbrücke	7 DMS Vollbrücken	Inkrementalgeber

Die Software Catman ist ein sehr komplexes, modular aufgebautes Programm zur Messwerterfassung. Die Verarbeitung der Messwerte kann entweder direkt während der Erfassung (Echtzeit) erfolgen, oder nach einer Messung (Post-Process). Die Daten können beliebig ex- und

importiert, erneut dargestellt und berechnet werden. Abbildung 3.14 zeigt die Grundbausteine der Software Catman.

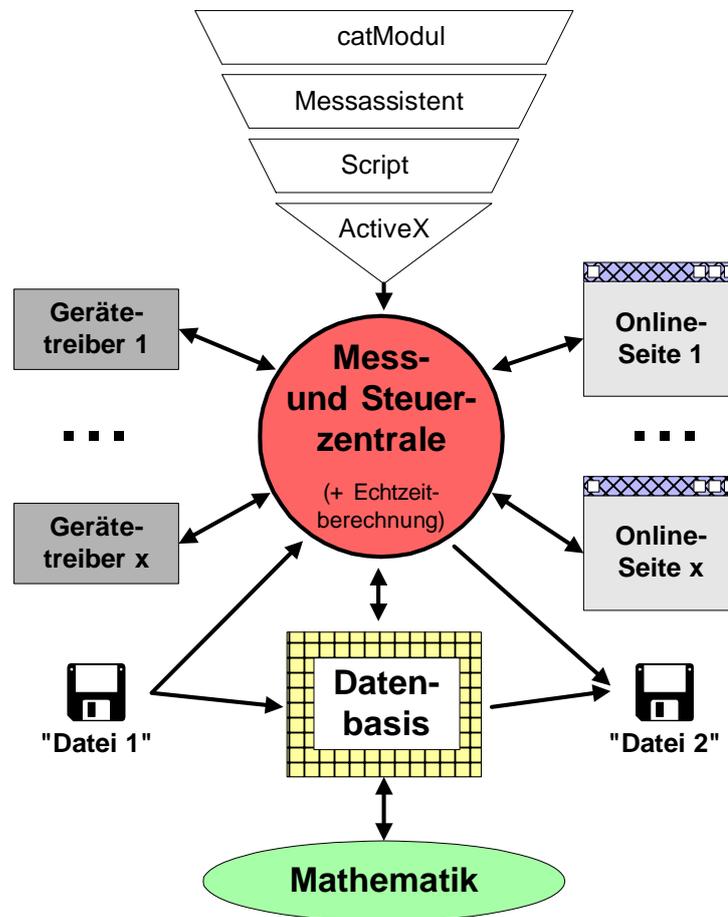


Abbildung 3.14: Catman-Bausteine

Gerätetreiber

Die Gerätetreiber sind spezifisch für jedes angeschlossene Gerät (Unter- / Oberstempel, Matrize, Weg) und werden je nach Bedarf eingerichtet. Über die Gerätetreiber läuft die Kommunikation bzw. die Übertragung der Messwerte. Die Kommunikation der Gerätetreiber mit dem Messverstärkersystem erfolgt über eine Ethernet-Schnittstelle.

Mess- und Steuerzentrale

Die Mess- und Steuerzentrale von Catman überwacht das Zusammenspiel der einzelnen Bausteine und lädt die erforderlichen Gerätetreiber von der Festplatte. Diese Schaltzentrale verfügt über alle Informationen (verwendete Geräte, Schnittstellen) die zum Erfassen der Messdaten notwendig sind.

Online-Dokument

Das Online-Dokument ist zum einen für die Visualisierung der Ergebnisse zuständig und zum anderen finden alle Benutzereingaben durch Schaltflächen, Eingabefelder, Listen etc. über diese Seite statt.

Datenbasis

In der Datenbasis werden alle Messwerte gespeichert, die zur Weiterverarbeitung nötig sind. Die Datenbasis wird beim Start von Catman auf der Festplatte angelegt. Dabei können die Datenbasislänge und das Datenformat (numerisch oder Text) zugewiesen werden. Die Datenbasis wird nach Beendigung von Catman wieder gelöscht.

Die genauen Anschlußbelegungen sowie alle Einstellungen in der Software sind in der Arbeit von Pauli [2003] genau beschrieben.

3.1.3 Rundläufertablettenpresse Fette 3090

Die Rundläuferpresse Fette 3090 der Firma Fette GmbH (Schwarzenbek, Deutschland) arbeitet nach dem double-punch-Prinzip, d.h. der Pressdruck wird durch bewegliche Ober- und Unterstempel erzeugt. Beide Stempel laufen an der Vordruckstation und der Hauptdruckstation über Druckrollen. Die Rundläuferpresse Fette 3090 arbeitet mit zwei Füllstationen und zwei Presstationen (Outlet), d.h. pro Umlauf einer Matrize werden zwei Tabletten erzeugt. Aus Tabelle 3.4 sind die wichtigsten Parameter zu entnehmen.

Tabelle 3.4: Parameter der Rundläufertablettenpresse Fette 3090

Pressprinzip:	double-punch
Teilkreisdurchmesser:	680 mm
Druckrollendurchmesser:	250 mm
Stempelkopfdurchmesser:	20 mm
Matrizenanzahl:	27
Matrizengrundfläche:	31 mm x 20 mm
Presstationen (Outlet):	2
Kraftmessung Druckstation:	ja

Die Druckrollen der Druckstationen sind mittels Servomotoren unabhängig voneinander vertikal verschiebbar gelagert. Die Einstellung der Steghöhe an der Vordruck- und Hauptdruck-

station erfolgt über die vertikale Verstellung der oberen Druckrolle (Oberstempelleindringtiefe) und die vertikale Verschiebung der unteren Druckrolle.

3.1.4 Rundläufertablettenpresse Fette 1200i G

Die Rundläuferpresse Fette 1200i G der Firma Fette GmbH (Schwarzenbek, Deutschland) arbeitet wie die Fette 3090 nach dem double-punch-Prinzip. Zusätzlich ist die Tablettenpresse mit einem „Galenik-Package“ (Mess- und Auswertungssoftware) ausgestattet. Die wichtigsten Parameter der Fette 1200i G sind in nachfolgender Tabelle 3.5 dargestellt.

Tabelle 3.5: Parameter der Rundläufertablettenpresse Fette 1200i G

Pressprinzip:	double-punch
Teilkreisdurchmesser:	280 mm
Druckrollendurchmesser:	250 mm
Stempelkopfdurchmesser:	24 mm
Matrizenanzahl:	20
Matrizendurchmesser:	25 mm
Presstationen (Outlet):	1
Kraftmessung Druckstation:	ja

3.2 Diametraler Bruchfestigkeitstest

Die diametrale Bruchfestigkeit wird mit einem portablen Bruchfestigstester TBH 1000 [ERWEKA, Heusenstamm] mit integrierter elektronischer Kraftmessdose und LC-Anzeige gemessen. Der TBH 1000 ist werkseitig kalibriert und bedarf keiner weiteren Überprüfung.



Abbildung 3.15: Bruchtester TBH 1000

Der Messbereich des Bruchfestigkeitstesters liegt zwischen 0 und 1000 N. Das Prinzip des diametralen Bruchtests beruht auf der Erzeugung eines Spannungszustandes senkrecht zur angreifenden Punktbelastung in der Tablette (vgl. Kapitel 2.3.4). Die Tabletten werden nach dem Pressen aus der Tablettenpresse genommen und zwischen den zwei ebenen Platten eingespannt, von der eine beweglich gelagert ist. Die bewegliche Platte wird bis zum Bruch der Tablette mittels Handrad in Richtung der fixierten Platte bewegt. Der Druck beim Bruch stellt ein Maß für die Bruchfestigkeit der Tablette dar und wird als maximaler Druck im Display angezeigt.

3.3 Messung der Wasseraktivität (a_w -Wert)

Die Wasseraktivität (a_w -Wert) wird definiert als Verhältnis vom spezifischen Dampfdruck des zu analysierten Materials (p) zum Dampfdruck von reinem Wasser (p_0). Beide Drücke werden bei gleicher Temperatur gemessen. Die relative Feuchtigkeit der Luft wird durch das Verhältnis des spezifischen Dampfdrucks der Luft zum gesättigten Dampfdruck beschrieben. In einem abgedichteten Raum ist die Wasseraktivität einer Probe gleichgestellt zur relativen Feuchtigkeit der Luft, die die Probe umgibt. Der Dampf und die Temperatur werden demzufolge abgeglichen.

$$a_w = \frac{p}{p_0} = \frac{RGF(\%)}{100} \quad (3.1)$$

Die Wasseraktivität zeigt den Zustand an, in dem das Wasser in der Probe eingeschlossen ist. Einige Interaktionen von aufgelösten Substanzen beeinflussen diese Bindung des Wassers in der Probe. Es gibt drei unterschiedliche Zustände des Wassers, die hervorzuheben sind:

1. Das Wasser wird fest als monomolekulare Schicht gebunden.
2. Das Wasser bildet einen Hydratationsfilm.
3. Das Wasser ist völlig frei.

Die Menge des freien Wassers beeinflusst direkt die mikrobiologische Lagerbeständigkeit von Lebensmitteln. Die Wasseraktivität kann daher verwendet werden, um mikrobiellen Verderb sowie andere negative Phänomene wie Verdichtung, Zusammenbacken oder Klebrigkeit vorauszusagen.

Die a_w -Werte der Pulver werden mit einem Rotronic HygroLab 2 [Rotronic Messgeräte GmbH, Ettlingen] in einem klimatisierten Raum bei 23°C ermittelt.

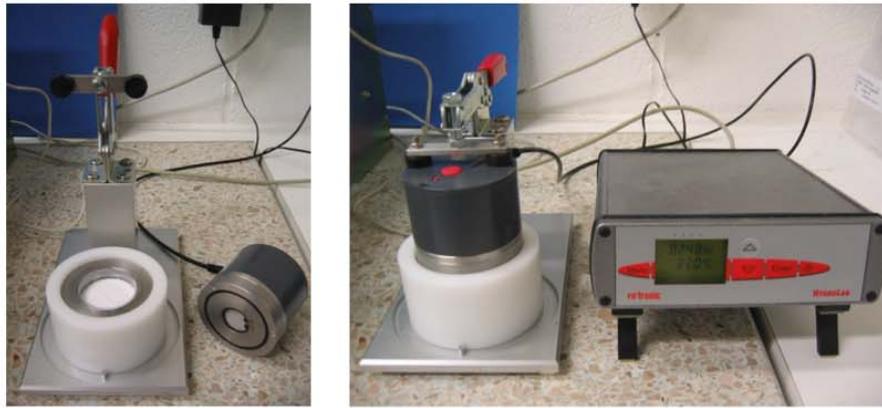


Abbildung 3.16: Rotronic HygroLab 2

Die Kalibrierung des Gerätes wurde mit Hilfe mehrerer gesättigter Salzlösungen mit bekannten a_w -Wert durchgeführt. Tabelle 3.6 zeigt die verwendeten Salzlösungen mit entsprechenden a_w -Werten bei 25°C.

Tabelle 3.6: a_w -Werte gesättigter Lösungen der verwendeten Salze bei 25°C

Nr.	Name	Chemische Formel	a_w -Wert bei 25°C
1	Lithiumchlorid	$LiCl$	0,113
2	Kaliumacetat	KCH_3CO_2	0,255
3	Magnesiumchlorid	$MgCl_2$	0,328
4	Kaliumcarbonat	K_2CO_3	0,432
5	Natriumchlorid	$NaCl$	0,753

Abbildung 3.17 zeigt die ermittelte Kalibriergerade mit einem Vertrauensbereich von 95%.

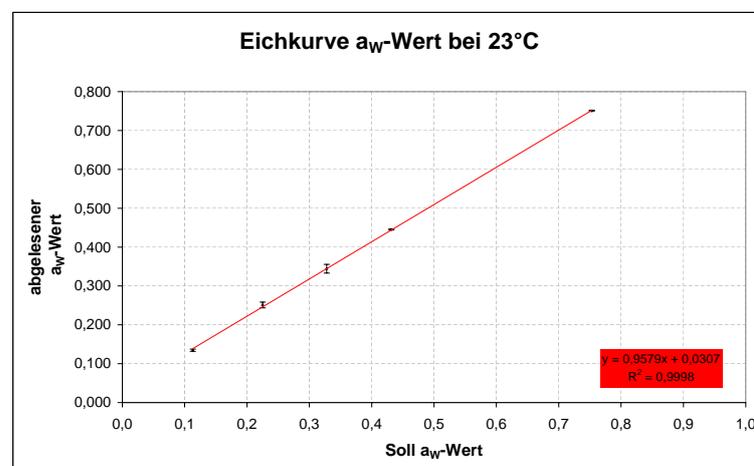


Abbildung 3.17: Kalibriergerade a_w -Wert-Messung

Zur Messung wird eine repräsentative Probe in ein spezielles Probengefäß gefüllt, das sofort in die Messapparatur gestellt wird. Die Messung wird über die Digitalanzeige im Display des Tischgerätes und über die zugehörige Software mittels Computer überwacht. Der Endwert stellt sich erfahrungsgemäß nach einer Zeit von etwa 30min ein. Nachdem ein konstanter Wert erreicht ist, wird dieser über die Eichkurve korrigiert und als der entsprechende a_w -Wert angenommen. Schwankungen treten durch die minimal variierenden Temperaturen ($23 \pm 1^\circ\text{C}$) im klimatisierten Raum auf.

3.4 Verwendete Rohstoffe

3.4.1 Maltodextrin

Als Rohstoff für die Untersuchungen wird Maltodextrin verwendet. Maltodextrine finden als Binde- und Füllsubstanzen eine weite Anwendung in der Lebensmittelindustrie. Sie stellen eine nicht süß schmeckende Mischung von amorphen Polymeren dar, die bei der kontrollierten Stärkehydrolyse durch Enzyme entstehen. Beim Kompaktieren fördern Maltodextrine das Verbinden von Partikeln. Weiterhin sind Maltodextrine hinsichtlich der Glasübergangstemperatur bereits in vielen Untersuchungen erforscht worden.

Alle Untersuchungen werden mit Glucidex 21 W [ROQUETTE, Lestrem / Frankreich], einem Maltodextrin aus Weizenstärke mit einem Dextroseäquivalent (DE) von 21, durchgeführt. Das Dextroseäquivalent ist ein Maß für den Verzuckerungsgrad und stellt die Summe der reduzierenden Zucker, berechnet als Glucose, dar (DE-Wert: Glucose = 100; Stärke = 0).

Das Maltodextrin mit dem Dextroseäquivalent von 21 wurde gewählt, da die Glasübergangstemperatur für dieses Maltodextrin, für einen a_w -Wert-Bereich von 0,35 bis 0,65, zwischen 20°C und 60°C liegt. Dieser Bereich stellt günstige Parameter für die durchzuführenden Untersuchungen dar und wird in vielen Prozessen der Lebensmittelindustrie erreicht. Abbildung 3.18 zeigt die Glasübergangstemperatur in Abhängigkeit der Wasseraktivität von Glucidex 21 W mit einem Vertrauensbereich von 95%.

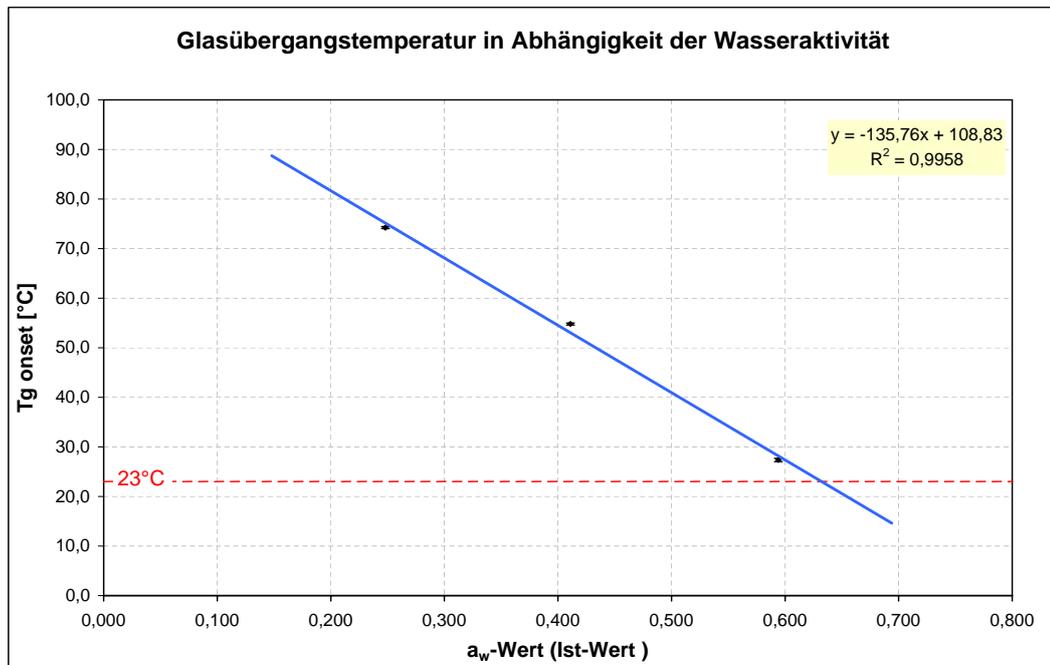


Abbildung 3.18: Glasübergangstemperatur in Abhängigkeit der Wasseraktivität von Glucidex 21 W (bereitgestellt von Zürcher, Nestlé PTC Singen)

Abbildung 3.19 zeigt die Sorptionsisotherme von Glucidex 21 W, gemessen bei 23°C.

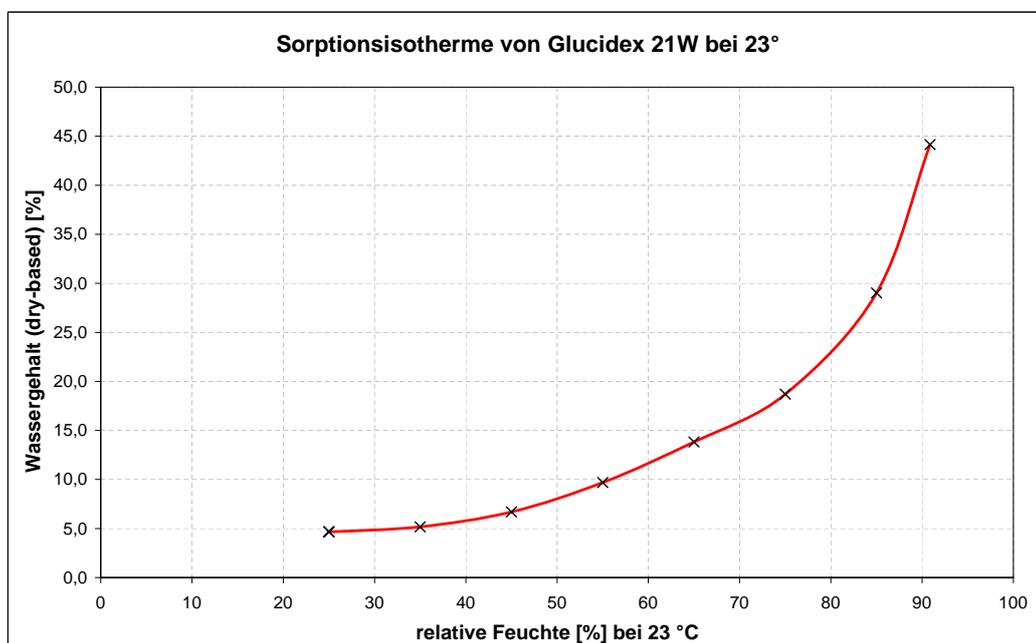


Abbildung 3.19: Sorptionsisotherme von Glucidex 21 W (bereitgestellt von Zürcher, Nestlé PTC Singen)

In Abbildung 3.20 ist die Partikelgrößenverteilung von Glu 21 W dargestellt.

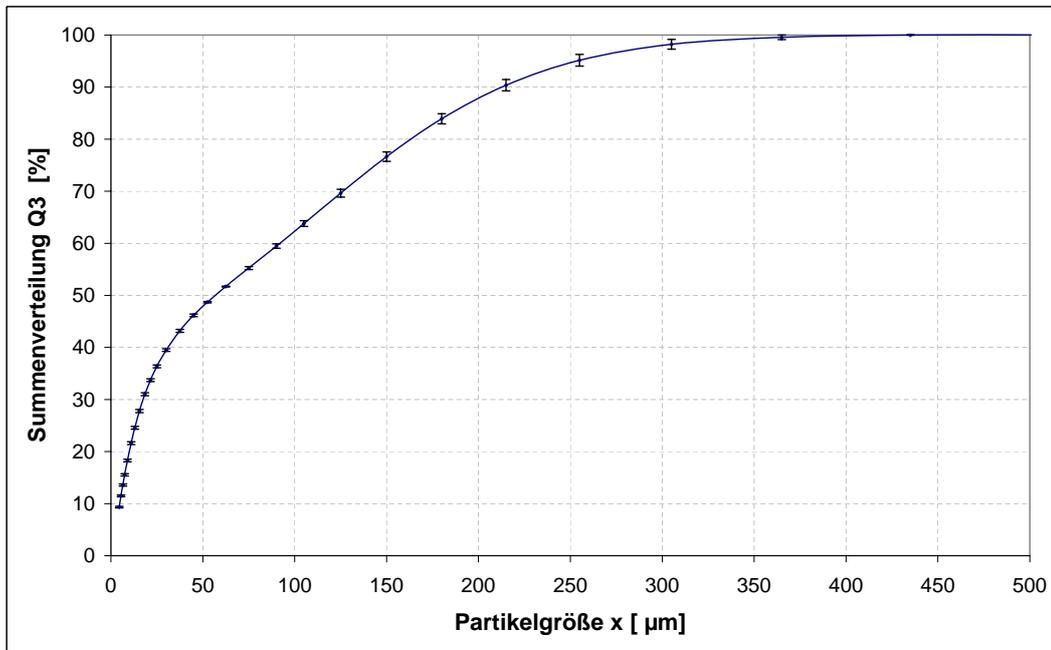


Abbildung 3.20: Partikelgrößenverteilung von Glucidex 21 W

Abbildung 3.21 zeigt die Fließfunktion von Glu 21 W, gemessen mit dem Ringschergerät RST-01.pc [SCHULZE, Wolfenbüttel].

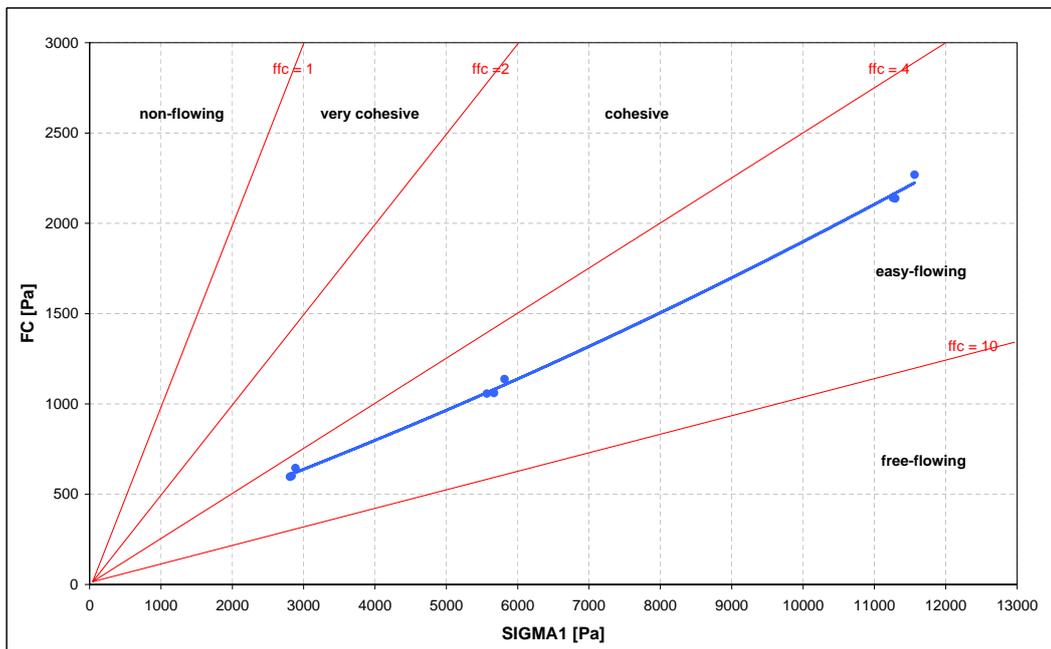


Abbildung 3.21: Fließfunktion von Glucidex 21 W

3.4.2 Tablettenschmiermittel

Als Tablettenschmiermittel wird Magnesiumstearat [SIGMA-ALDRICH Laborchemikalien, Seelze] verwendet. Die Pressmatrize sowie Ober- und Unterstempel werden jeweils vor dem Pressen mit Hilfe eines Pinsels leicht mit Magnesiumstearat bestäubt. Überschüssiges Magnesiumstearat wird vor dem Befüllen der Matrize mit Glucidex 21 W entfernt.

Abbildung 3.22 zeigt die Partikelgrößenverteilung vom Magnesiumstearat.

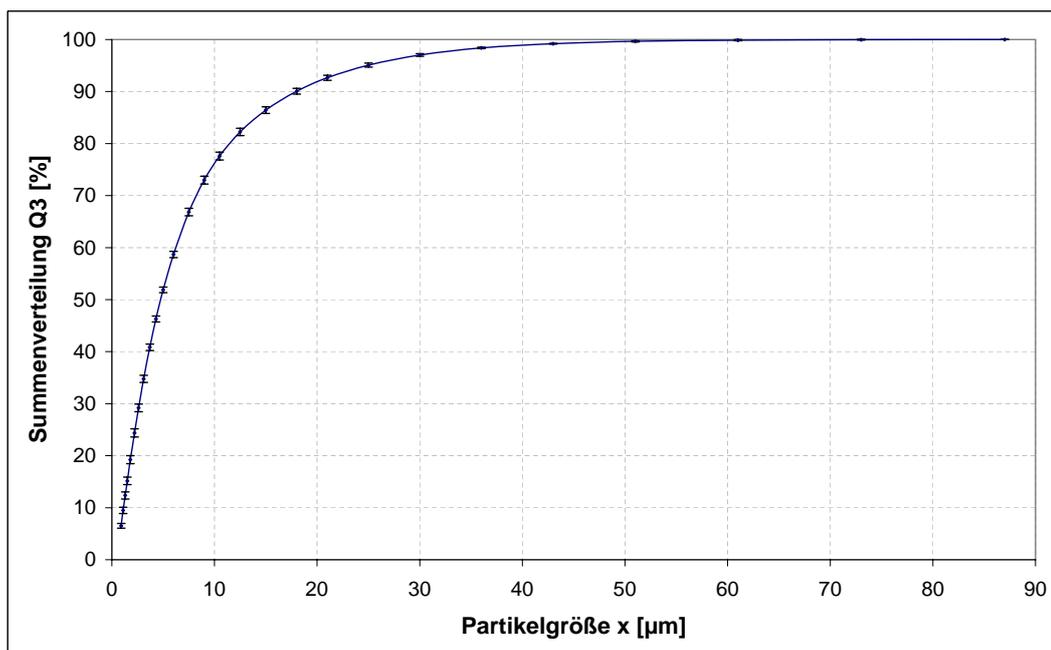


Abbildung 3.22: Partikelgrößenverteilung von Magnesiumstearat

3.5 Vorbereitung der Substanzen

Für die Untersuchungen zum Einfluss der Feuchtigkeit (a_w -Wert) auf den Kompaktierprozess, wird das Maltodextrin vor den Pressversuchen auf verschiedene a_w -Werte konditioniert.

Das Pulver wird in einer ca. 1 cm hohen Schicht auf einem Blech ausgebreitet und in einen Klimaschrank vom Typ ESPEC-PR-4ST [THERMO TEC, Weilburg] gestellt. Die Temperatur wird über den gesamten Zeitraum der Konditionierung konstant bei 23°C gehalten, da alle anschließenden Untersuchungen (a_w -Wert-Messung und Tablettierversuche) bei der selben Temperatur durchgeführt werden. Das Pulver wird mehrmals täglich durchmischt, um einen gleichmäßigen Konditioniereffekt zu erzielen. Die Luftfeuchtigkeit des Klimaschranks wird wie in Tabelle 3.7 gezeigt alle 1-2 Tage nach oben geregelt.

Vor dem Verpressen wird das Pulver aus dem Klimaschrank entnommen und durch ein Sieb mit einer Maschenweite von 2,5 mm und anschließend durch ein 1,0 mm Sieb gesiebt, damit keine Klumpen im zu verpressenden Pulver vorliegen. Anschließend wird das gesiebte Pulver mehrmals durchmischt. Für die Pressversuche sowie die a_w -Wert-Messung wird eine ausreichende Menge an Pulver entnommen. Die verbleibende Probenmenge wird wieder in einer dünnen Schicht auf dem Blech verteilt und zurück in den Klimaschrank gestellt.

Tabelle 3.7 zeigt neben den vorgenommenen Einstellungen am Klimaschrank auch die resultierenden a_w -Werte der einzelnen Konditionierungsschritte.

Tabelle 3.7: Einstellungen Klimaschrank und resultierende a_w -Werte

Nr.	Einstellungen Klimaschrank		aw-Wert bei 23°C
	Temperatur [°C]	rel. Luftfeuchtigkeit [%]	
1	23,0	18,0	0,155
2	23,0	20,0	0,187
3	23,0	22,0	0,219
4	23,0	25,0	0,247
5	23,0	30,0	0,297
6	23,0	35,0	0,336
7	23,0	40,0	0,381
8	23,0	45,0	0,422
9	23,0	50,0	0,457
10	23,0	55,0	0,523
11	23,0	60,0	0,584
12	23,0	63,0	0,611
13	23,0	65,0	0,637
14	23,0	68,0	0,648
15	23,0	70,0	0,651

Eine Konditionierung auf einen höheren a_w -Wert als 0,651 ist nicht möglich, da das Pulver zu stark verklumpt (siehe Abbildung 3.23). Dieses kann selbst durch mehrmaliges Durchmischen nicht verhindert werden.

**Abbildung 3.23: Klumpenbildung von Glucidex 21 W**

3.6 Tablettierung

Die grundlegende Bedienung und der Umgang mit dem MGCplus Messverstärkersystem und der zugehörigen Software „Catman“ ist in der Arbeit von Pauli [2003] ausführlich beschrieben.

Mit der hydraulischen Unterstempel­presse können zwei verschiedene Arten von Pressvorgängen realisiert werden. Zum einen kann mit der Presse eine **maximale Kompression** über die Druckregelung erfolgen und zum anderen kann eine **definierte Kompression** über eine Anschlagbegrenzung erreicht werden.

Bei der maximalen Kompression wird der Unterstempelweg maximal eingestellt und nicht durch einen Anschlag begrenzt. Das bedeutet, dass der eingestellte Unterstempeldruck auf das Pulver übertragen wird. Erst nach Erreichen des gewählten Drucks bleibt der Druck entweder für eine bestimmte Druckhaltezeit konstant, oder entlastet das Pulver sofort nach Erreichen des gewählten Drucks.

Soll jedoch mit einer definierten Kompression gepresst werden, muss der Unterstempelweg mittels Anschlag begrenzt werden. Der erforderliche Pressdruck wird bei dieser Variante nur über die gewählte Pulvermenge und durch die eingestellte Steghöhe (Unterstempelbegrenzung) bestimmt. Wird die Steghöhe verkleinert, so resultiert bei gleicher Füllmenge und gleichem Material ein höherer Druck. Für sämtliche Untersuchungen wird diese Variante des Pressens gewählt, da vergleichende Untersuchungen auf Rundläufertablettenpressen vorgenommen werden und diese nach dem gleichen Prinzip arbeiten (vgl. Kapitel 2.5.1).

Vor den Versuchsdurchführungen müssen einige grundlegende Einstellungen an der Tabletten­presse und an der Software vorgenommen werden:

Zunächst müssen im Setup-Assistenten der Software Catman alle Sensoren genullt werden. Durch Anklicken der einzelnen Sensoren und Aktivierung des „0“-Symbols werden die einzelnen DMS-Brücken abgeglichen und zeigen den Wert Null an. Abbildung 3.24 zeigt das entsprechende Vorgehen im Catman Setup Assistenten. Anschließend wird der Oberstempel mit 1 kN vorgespannt und der Unterstempel langsam (Potentiometer langsam von 0 nach oben geregelt) gegen den Oberstempel gefahren, bis dieser ebenfalls 1 kN anzeigt. Zeigen beide Stempel eine Kraft von 1 kN, wird der Wegsensor (Weg Einkanal) genullt. Dieses Vorgehen erlaubt bei den späteren Versuchen ein exaktes Einstellen der Steghöhe und zeigt die minimale Tablettenhöhe sofort nach den Messungen direkt an.

Slot	Name	Typ	Meßwert	Einheit	Signal	AP	Sensor	Aufnehmertyp	Speisung
HBM MGCplus - Gerät 1 UNM (HBM,CP22,0,P4.13)									
	AB22 Anzeige- und Bedieneinheit	HBM,AB22A,0,P4.10,'801027							
	CP32 Harddisk nicht bestückt								
1	!! Unterstempel	ML55	0.000	kN	Brutto	AP 01		DMS Vollbrücke	5V
2	!! Oberstempel	ML55	-0.004	kN	Brutto	AP 01		DMS Vollbrücke	5V
3	!! Piezo	ML01	0.013	%	Brutto	AP 08		Ladungsverstärker (100 nC)	Kurze Entladezeit
4	!! Mehrkanal Einschul ML801			mV/V	Brutto	AP 815		DMS Vollbrücke	5 V
4.1	!! Wand 1	ML801	0.000	mV/V	Brutto	AP 815		DMS Vollbrücke	
4.2	!! Wand 2	ML801	0.000	mV/V	Brutto	AP 815		DMS Vollbrücke	
4.3	!! Wand 3	ML801	0.000	mV/V	Brutto	AP 815		DMS Vollbrücke	
4.4	!! Wand 4	ML801	0.000	mV/V	Brutto	AP 815		DMS Vollbrücke	
4.5	!! Wand 5	ML801	0.000	mV/V	Brutto	AP 815		DMS Vollbrücke	
4.6	!! Wand 6	ML801	0.000	mV/V	Brutto	AP 815		DMS Vollbrücke	
4.7	!! Wand 7	ML801	0.000	mV/V	Brutto	AP 815		DMS Vollbrücke	
4.8	!! Bruchtest	ML801	13962.590	N	Brutto	AP 815		DMS Vollbrücke	
6	!! Weg Einkanal	ML60	-19.596	mm	Brutto	AP 01		Impulszählung	5V Eingangsampl

Abbildung 3.24: Nullstellen der Sensoren

Wurden diese Einstellungen im Setup-Assistenten vorgenommen, müssen zur Aufzeichnung der Messwerte im Online-Dokument (Abbildung 3.25) noch einige Angaben zur Messrate und Triggereinstellung vorgenommen werden.

Über den Button „Zauberstab“, wird der Messassistent (Abbildung 3.26) aufgerufen. Hier können Einstellungen zur periodischen Messung vorgenommen werden. Die Periodendauer kann entweder in Messwerte pro Periode und Periodenanzahl oder über Periodendauer in Sekunden angegeben werden. Für die Untersuchungen wird eine Periodendauer von 1,4 Sekunden gewählt. Diese Periodendauer ist reicht aus, um den gesamten Kompaktierprozess zu erfassen.

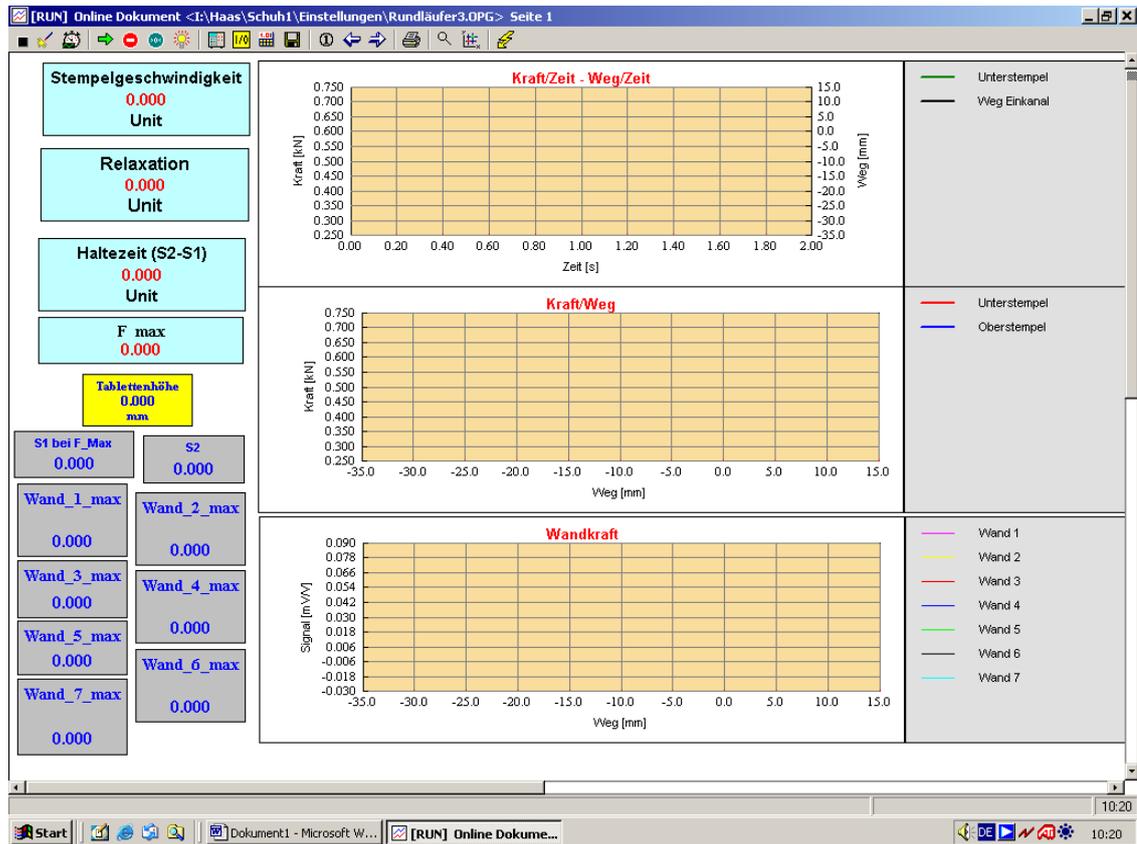


Abbildung 3.25: Online-Dokument

The screenshot shows the "Meßassistent konfigurieren" dialog box. The "Periodische Messung" tab is selected. The "Art der Messung" dropdown is set to "Periodische Messung".

Periodische Messung:

- 1024 Meßwerte pro Periode
- 1.4 Periodendauer (s)
- 1 Anzahl Perioden
- I/O-Kanäle vor Messung initialisieren (Trigger... button)
- Echtzeitobjekte während Periode aktualisieren

Periodenstart:

- automatisch
- manuell mit <RETURN>
- DIO IN auf I/O Kanal 1

Periodenablage in Datenbasis:

- Nicht speichern
- I/O Kanal = Datenbasiskanal
- Blockablage beginnend bei Kanal 1
- Die letzten 1 Perioden aufheben
- Perioden in Datenbasiskanälen anhängen

vor jeder Periode:

- 0 s warten
- Nullstellen
- Kalibrieren
- Spitzenwertspeicher löschen
- Zeitbasis rücksetzen
- DIO OUT Kanal 1 (50 ms)

nach jeder Periode:

- Online Seite drucken
- Daten exportieren
- alle 1 Perioden
- Export Optionen... button
- DIO OUT Kanal 1 (50 ms)

Online Datenexport:

- Nicht exportieren
- I/O Kanal ZIEL
- Alle Kanäle exportieren
- Export Optionen... button

Online Dokument: I:\Haas\Schuh1\Einstellungen\Rundläufer3.OPG

Buttons at the bottom: Hilfe, Einstellungen speichern, Einstellungen laden, Meßassistent starten, OK, Abbrechen.

Abbildung 3.26: Einstellung Periodendauer

Als letzte Software-Einstellung wird der Trigger definiert. Über den Button „Trigger“ wird vom Messassistenten das Konfigurationsmenü für den Trigger (Abbildung 3.27) aufgerufen. Hier besteht die Möglichkeit, einen oder mehrere Trigger zu konfigurieren, die eine Messwertaufnahme starten und / oder stoppen. Für die Untersuchungen wird der Unterstempelweg als Starttrigger gewählt. Sobald der Wegsensor einen Weg größer gleich 20 mm registriert, startet die Aufzeichnung der Messwerte und wird nach 1,4 Sekunden gestoppt.

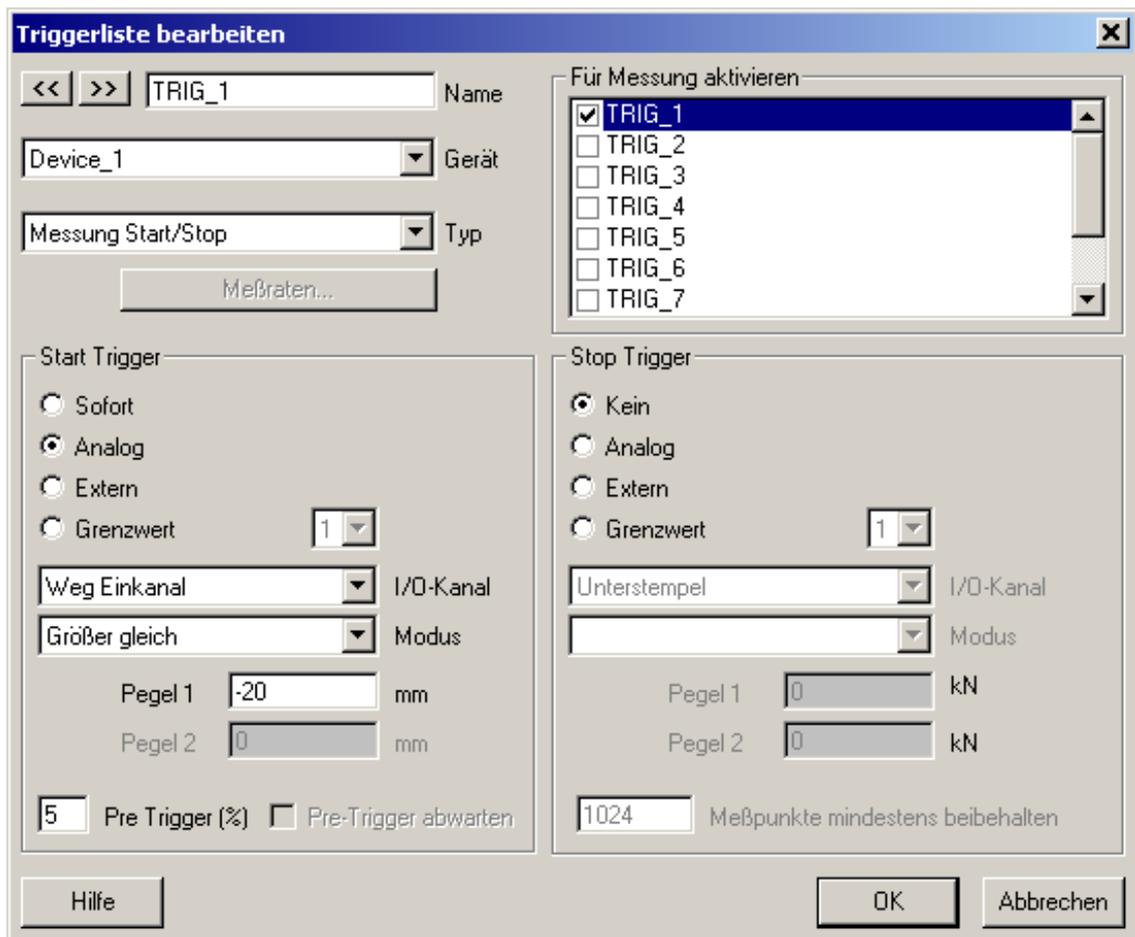


Abbildung 3.27: Einstellung Trigger

Nachdem alle Einstellungen in der Software ausgeführt wurden, muss als abschließende Vorbereitung die richtige Kombination von Steghöhe und Pulvermasse ermittelt werden. Für die Untersuchungen wurde vorab festgelegt, dass die Tabletten bei einer maximalen Presskraft von 7 kN eine Steghöhe von 10 mm nach dem Verpressen aufweisen sollen.

Der Unterstempelweg wird folglich mittels Einstellrad und Anschlag auf einen Wert kleiner 10 mm eingestellt, da die Tabletten nach dem Pressen eine elastische Rückdehnung aufweisen.

Abbildung 3.28 zeigt den Einstellring zur Begrenzung des Unterstempelwegs. Das Gewinde des Einstellrings hat eine sehr geringe Steigung und erlaubt daher eine exakte Einstellung des Unterstempelwegs.

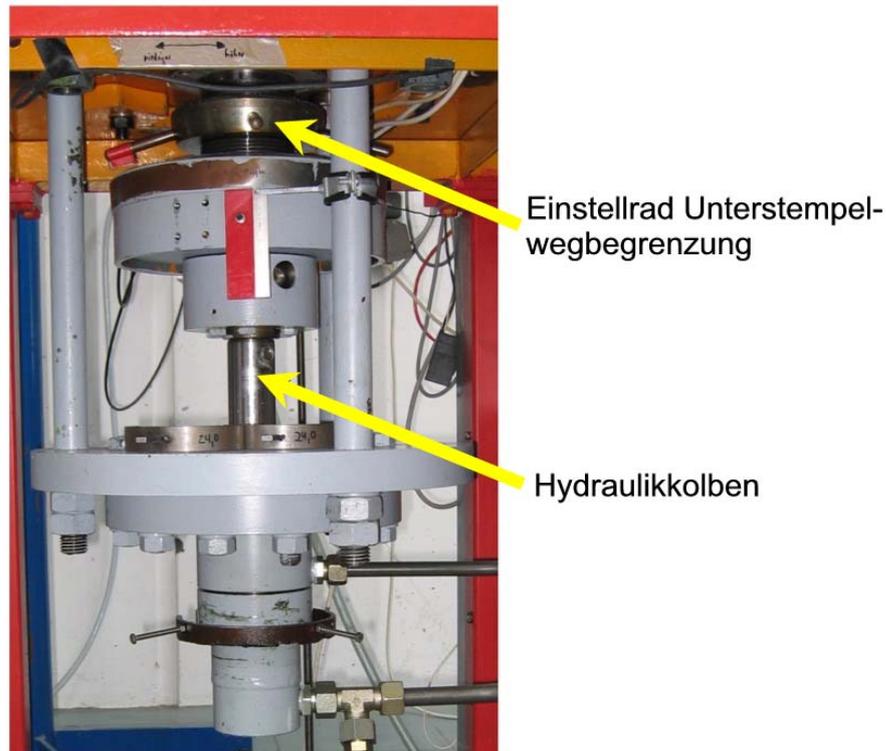


Abbildung 3.28: Einstellung Unterstempelweg

Um den Einstellring nicht nach jeder gefertigten Tablette neu positionieren zu müssen, werden aus Gründen der leichteren Handhabung zusätzliche Anschläge von 24,0 mm Höhe auf den Einstellring gelegt (vgl. Abbildung 3.29). Durch diesen Aufbau ist es möglich, einen definierten Unterstempelweg einzustellen und zugleich nach Wegnahme der Anschläge die Tabletten aus der Matrize ausstoßen. Demzufolge müssen vor einer erneuten Messung keine Veränderungen am Einstellring vorgenommen werden. Die Anschläge werden nach dem Ausstoß wieder auf den Einstellring gelegt und eine neue Messung kann gestartet werden.



ohne Anschlagbegrenzung

mit Anschlagbegrenzung
24.0 mm**Abbildung 3.29: Einstellung mit und ohne Anschlag**

In Tabelle 3.8 sind alle Kombinationen der Unterstempelwegeinstellungen und Pulvermassen aufgelistet. Für diese Kombinationen wird eine Tablettenhöhe von 10 mm bei einer maximalen Presskraft von 7 kN bei den verschiedenen a_w -Werten erreicht.

Tabelle 3.8: Einstellungen Unterstempelweg und Pulvermassen

Nr.	Unterstempelweg [mm]	Pulvermenge [g]
1	9,600	2,95
2	9,600	2,95
3	9,600	2,95
4	9,650	3,02
5	9,650	3,03
6	9,675	3,05
7	9,700	3,07
8	9,700	3,13
9	9,700	3,17
10	9,800	3,22
11	9,800	3,25
12	9,800	3,29
13	9,800	3,31
14	9,800	3,32
15	9,800	3,33

Alle Tablettierversuche werden im Automatikmodus mit konstanter Stempelgeschwindigkeit von 100 mm/s (Potentiometereinstellung: 40, für Pressen und Entspannen) durchgeführt. Die Druckhaltezeit wird so kurz wie möglich gewählt (Potentiometereinstellung: 0). Als Pressma-

trize wird die instrumentierte Matrize in Verbindung mit einem Oberstempel der Eindringtiefe 13,2 mm verwendet. Das gewährleistet eine optimale Positionierung der fertigen Tablette bezüglich der ersten DMS-Reihe der Matrize.

4 Ergebnisse und Diskussion der Pressversuche

4.1 Einfluss von Druck und Zeit bei der Kompaktierung

4.1.1 Rundläufertablettenpresse versus hydraulische Unterstempelpresse

Die Presszeit an einer Rundläuferpresse ist abhängig von der Rotordrehzahl und der Steghöhe sowie den elastischen Eigenschaften des Pressmaterials. Die Presszeit verkürzt sich dabei mit zunehmender Rotordrehzahl, während sich zeitgleich die Vertikalgeschwindigkeit der Stempel erhöht. Da die Presszeit und die Stempelgeschwindigkeit direkt aneinander gekoppelt sind, ist es nicht möglich, eine Aussage darüber zu treffen, inwieweit diese beiden Parameter die Tabletteneigenschaften beeinflussen. Um den Einfluss dieser beiden Parameter getrennt voneinander zu untersuchen, wurde an der hydraulischen Unterstempelpresse (MAK-Pressen) die Presscharakteristik einer Rundläuferpresse simuliert. Die hydraulische Unterstempelpresse bietet die Möglichkeit, Stempelgeschwindigkeit und Presszeit getrennt voneinander zu variieren.

Nachfolgende Untersuchungen wurden auf zwei Rundläufertablettenpressen Fette 3090 (eckige Matrize) und Fette 1200i G (runde Matrize); beide Systeme: „double punch“) und einer hydraulischen Unterstempelpresse durchgeführt. Vorab sind die minimalen und maximalen Anlagenparameter, Stempelgeschwindigkeit und Gesamtbelastungszeit der Fette 3090 und der hydraulischen Unterstempelpresse gegenübergestellt, um die Arbeitsbereiche beider Tablettenpressen besser vergleichen zu können. Eine exakte Berechnung der Stempelgeschwindigkeit konnte für die Fette 1200i G auf Grund fehlender Maschinendaten nicht durchgeführt werden und ist daher in den Diagrammen nicht dargestellt. Es kann jedoch davon ausgegangen werden, dass die Stempelgeschwindigkeiten und Gesamtbelastungszeiten vergleichbar mit denen der Fette 3090 sind. Die unten abgebildeten Diagramme sollen den Arbeitsbereich der

hydraulischen Unterstempelpresse einer Rundläufertablettenpresse am Beispiel der Fette 3090 gegenüberstellen.

Tabelle 4.1 und Abbildung 4.1 stellen die minimalen und maximalen Stempelgeschwindigkeiten der Fette 3090 der MAK-Presse gegenüber.

Tabelle 4.1: Vergleich Stempelgeschwindigkeiten

Presskraft [kN]	Stempelgeschwindigkeit [m/s]			
	Fette 3090		MAK-Presse	
	min	max	min	max
5	0,008	0,100	0,025	0,180
10	0,012	0,149	0,025	0,180
15	0,014	0,168	0,025	0,180

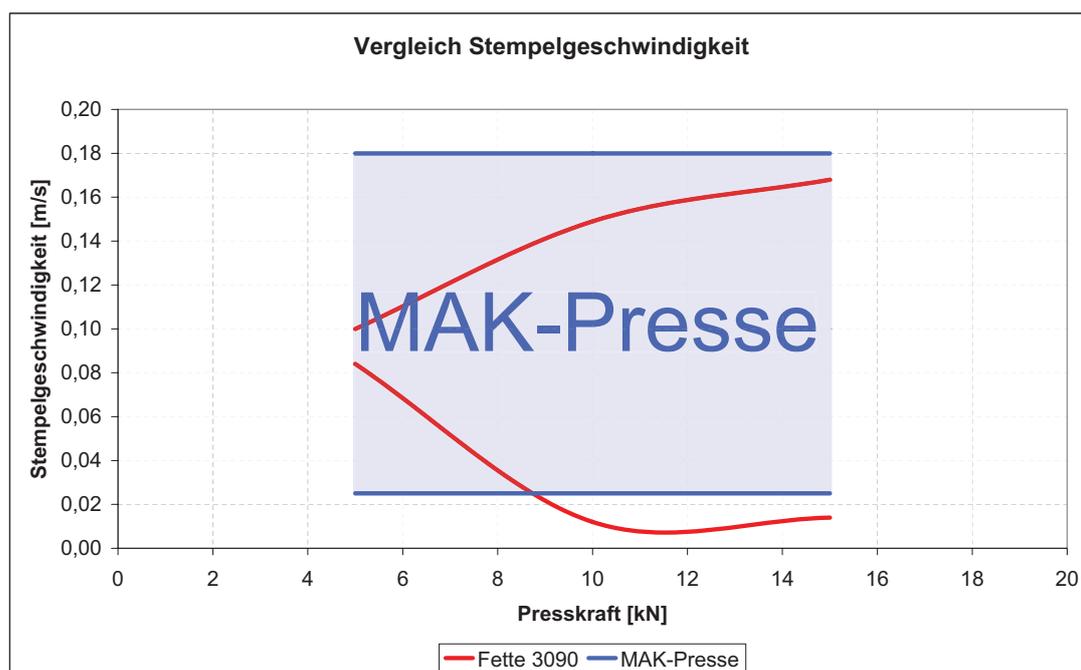


Abbildung 4.1: Vergleich Stempelgeschwindigkeiten

Die Abbildung zeigt deutlich, dass die hydraulische Unterstempelpresse fast den gesamten Geschwindigkeitsbereich unabhängig von der jeweiligen Presskraft der Rundläufertablettenpresse abdeckt. Auf Grund der Verfahrensweise von Rundläufertablettenpressen ist sowohl der mini-

male als auch der maximale Geschwindigkeitsverlauf bei diesem Pressentyp zusätzlich von der Presskraft abhängig.

Tabelle 4.2 und Abbildung 4.2 zeigen die minimalen und maximalen Gesamtbelastungszeiten, die mit den beiden unterschiedlichen Pressentypen erreicht werden können.

Tabelle 4.2: Vergleich Gesamtbelastungszeiten

Presskraft [kN]	Gesamtbelastungszeit [ms]			
	Fette 3090		MAK-Pressse	
	min	max	min	max
5	29	349	120	550
10	35	424	120	550
15	43	518	120	550

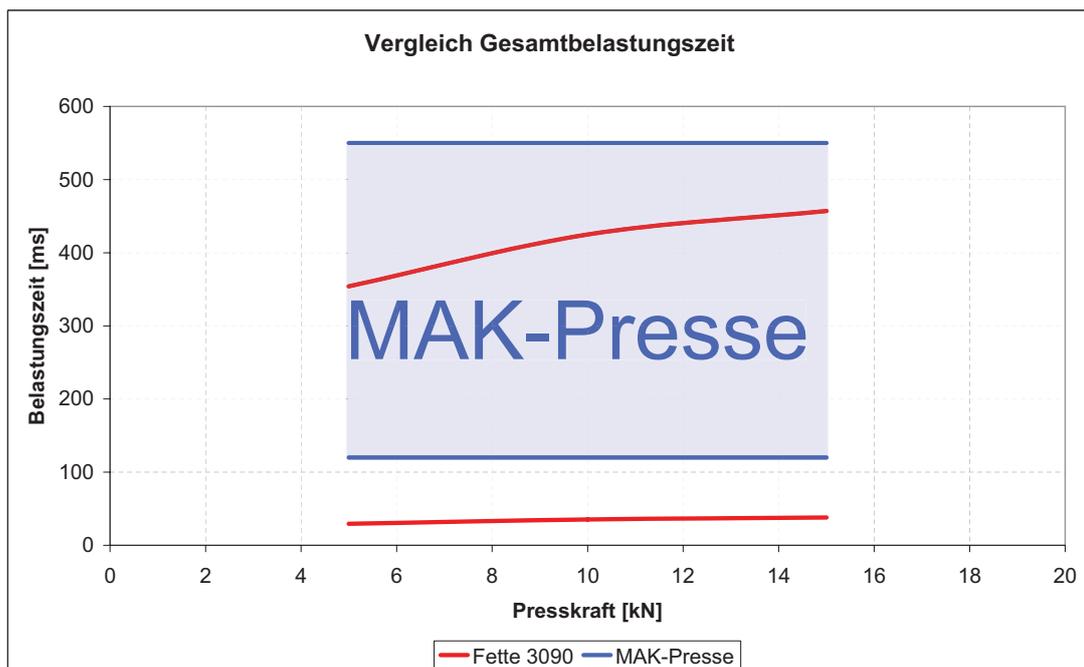


Abbildung 4.2: Vergleich Gesamtbelastungszeiten

In Abbildung 4.2 ist zu erkennen, dass die Gesamtbelastungszeiten bei den Rundläufertablettenpressen von der jeweiligen Presskraft abhängen. Weiterhin ist verdeutlicht, dass die hydraulische Unterstempelpresse nicht, wie bei der Stempelgeschwindigkeit, den gesamten Zeitbereich der Rundlauftablettenpresse abdecken kann. Infolge der hydraulischen Druckerzeugung

und nicht wie bei Rundläufern mechanisch über Druckrollen, liegt die minimale Gesamtbelastungszeit im Mittel 85 ms höher, als bei der Fette 3090. Diese zeitliche Verzögerung ist mit den Schaltvorgängen der Magnetventile an der Hydraulik zu erklären, die eine gewisse Zeit benötigen, um ihre Ventilstellung zu ändern. Demzufolge können mit der hydraulischen Unterstempel­presse nicht die minimalen Gesamtbelastungszeiten einer Rundläufertabletten­presse erreicht werden.

Entscheidend bei Rundlauftabletten­pressen ist, dass die Gesamtbelastungszeit auch von der Stempelgeschwindigkeit abhängt. Abbildung 4.3 zeigt die Korrelation zwischen Gesamtbelastungszeit und Stempelgeschwindigkeit der Fette 3090 bei drei unterschiedlichen Steghöhen ($\hat{=}$ unterschiedliche Presskraft) im Vergleich zur hydraulischen Unterstempel­presse. Die Variation der Stempelgeschwindigkeit und der Presszeit kann dabei nur entlang der aufgezeigten Kurven verlaufen, so dass eine Verkürzung der Presszeit direkt mit einer Erhöhung der Stempelgeschwindigkeit verbunden ist. Mit zunehmender Steghöhe verringern sich sowohl die Presszeit als auch die Stempelgeschwindigkeit, da der Stempel bei konstanter Rotordrehzahl einen geringeren vertikalen Weg zurücklegt, wodurch zeitgleich auch die Kontaktzeit zwischen Stempel und Pressling verkürzt wird. So kann bei hohen Steghöhen die minimale Belastungszeit bereits bei einer Stempelgeschwindigkeit von ca. 0,100 m/s erreicht werden. Weiterhin sind in Abbildung 4.3 die möglichen Stempelgeschwindigkeiten und Gesamtbelastungszeiten der hydraulischen Unterstempel­presse aufgezeigt. Durch die getrennte Regelung von Stempelgeschwindigkeit und Druckhaltezeit ist es mittels der Unterstempel­presse möglich, den gesamten in Abbildung 4.3 dargestellten Bereich abzudecken.

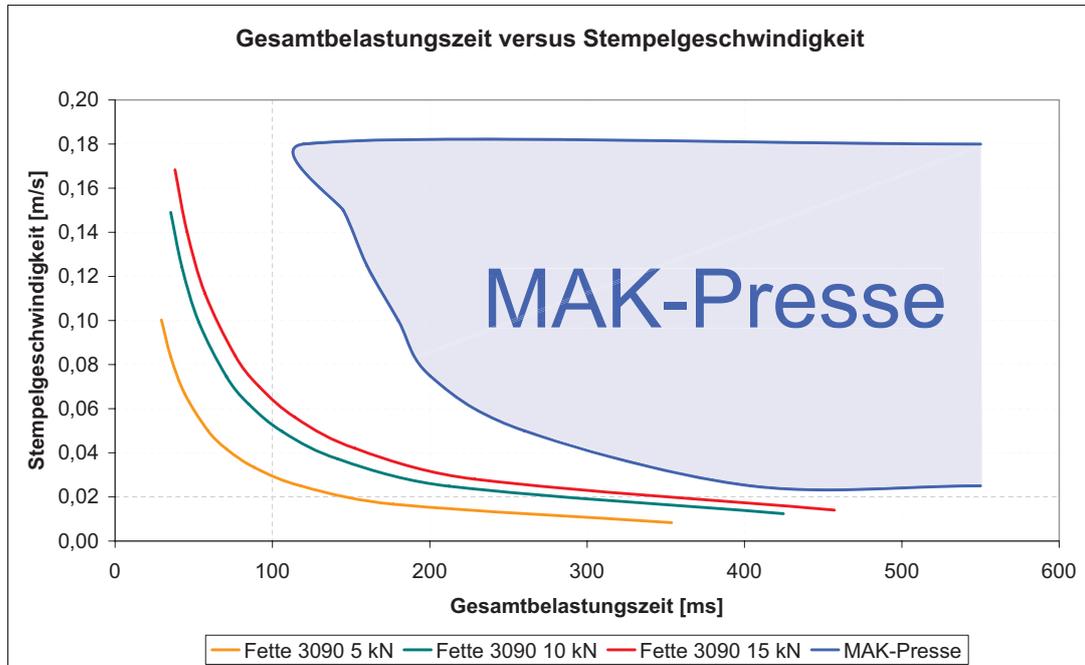


Abbildung 4.3: Gesamtbelastungszeit versus Stempelgeschwindigkeit

Die gezeigte Gegenüberstellung in Abbildung 4.3 zeigt deutlich, dass es zu keinen Überschneidungen in den Geschwindigkeit- / Zeit-Profilen der beiden Pressen kommt. Es ist nicht möglich, die Pressbedingungen der Rundläuferpresse, mittels der hydraulischen Unterstempel- presse exakt zu simulieren. Dies ist vor allem darauf zurückzuführen, dass selbst bei maximaler Stempelgeschwindigkeit lediglich eine minimale Gesamtbelastungszeit von ca. 120 ms bei der MAK-Press erreicht werden kann. Dennoch bleibt der Vorteil bestehen, die Einflüsse der Gesamtbelastungszeit und der Stempelgeschwindigkeit getrennt voneinander untersuchen zu können. Besonders in Bezug auf die Stempelgeschwindigkeit können durch Versuche auf der hydraulischen Unterstempel- presse Rückschlüsse darauf gewonnen werden, wie die Tabletten- festigkeit von einer Verkürzung der Gesamtbelastungszeit oder einer Erhöhung der Stempel- geschwindigkeit abhängt. Ein weiterer Vorteil besteht darin, dass die reine Druckhaltezeit bei konstanter Stempelgeschwindigkeit variiert werden kann.

4.1.2 Pressversuche mit der hydraulischen Unterstempel- presse

Für die Untersuchungen zur getrennten Beobachtung von Stempelgeschwindigkeit und Ge- samtbelastungszeit wurden auf der hydraulischen Unterstempel- presse mehrere Versuchsreihen durchgeführt.

Als Probenmaterial wurde ein Maltodextrin (Glucidex 21 W) mit einem a_w -Wert von 0,3 verwendet. Die erste Versuchsreihe wurde mit vier unterschiedlichen Stempelgeschwindigkeiten (0,025; 0,050; 0,075 und 0,100 m/s) bei zwei verschiedenen Presskräften (10 kN und 20 kN) durchgeführt. Die Druckhaltezeiten wurden bei jeder Stempelgeschwindigkeit variiert. Bei der Einstellung 0,100 m/s wurde mit vier unterschiedlichen Druckhaltezeiten gepresst, bei allen übrigen Stempelgeschwindigkeiten mit drei. Zur Auswertung wurden die Festigkeiten der Tabletten, ausgedrückt in Form der „tensile strength“ und die elastischen Rückdehnungen betrachtet.

Abbildung 4.4 zeigt den Tablettenfestigkeitsverlauf von Glucidex 21 W bei unterschiedlichen Stempelgeschwindigkeiten in Abhängigkeit von der Gesamtbelastungszeit bei Presskräften von 10 kN ($\hat{=}$ 31,8 MPa) und 20 kN ($\hat{=}$ 63,7 MPa) mit einem Vertrauensintervall von 95%.

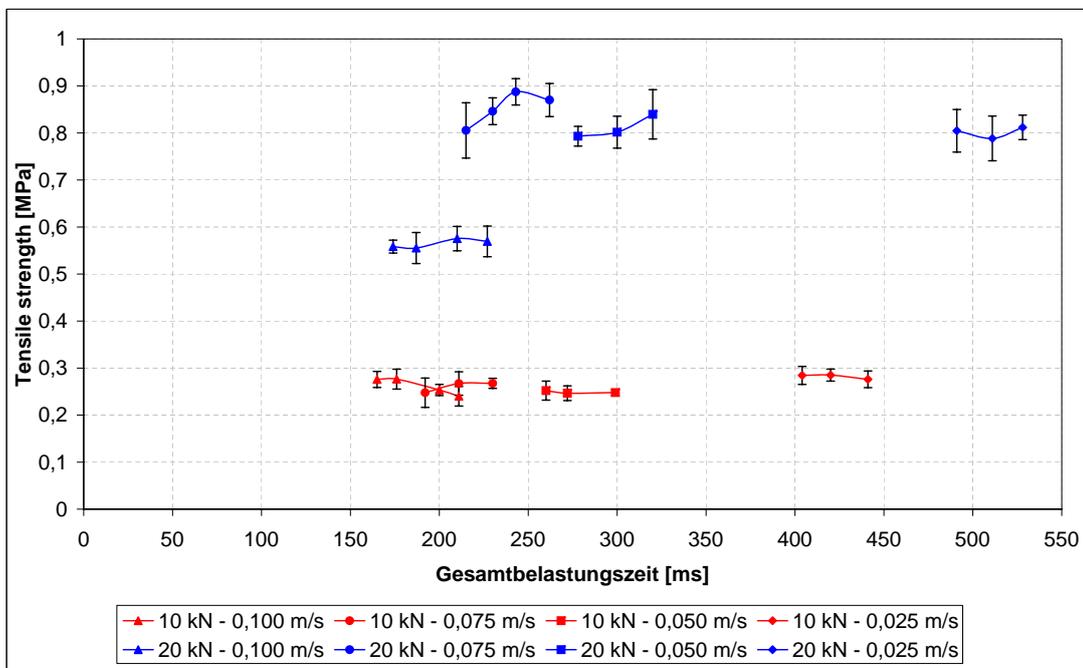


Abbildung 4.4: Tensile strength bei unterschiedlichen Stempelgeschwindigkeiten in Abhängigkeit von der Gesamtbelastungszeit (Maltodextrin)

Die Tablettenfestigkeit bleibt bei der Messreihe 10 kN unabhängig von der Stempelgeschwindigkeit und der Gesamtbelastungszeit konstant. Es konnten keine signifikanten Unterschiede innerhalb der Messreihen mit konstanter Stempelgeschwindigkeit und bei variierender Stempelgeschwindigkeit festgestellt werden. Besonders deutlich wird dies in Bereichen, in denen sich die Gesamtbelastungszeiten bei unterschiedlichen Stempelgeschwindigkeiten überschnei-

den. Die Messreihe 20 kN zeigt bis auf die Ergebnisse bei einer Stempelgeschwindigkeit von 0,100 m/s ebenfalls eine Unabhängigkeit der Tablettenfestigkeit von der Stempelgeschwindigkeit und der Gesamtbelastungszeit. Es sind keine signifikanten Unterschiede innerhalb der Messreihen mit konstanter Stempelgeschwindigkeit und mit steigender Stempelgeschwindigkeit festzustellen. Die deutlich niedriger liegenden Festigkeitswerte bei der Versuchsreihe mit einer Stempelgeschwindigkeit von 0,100 m/s, sind nur durch Veränderungen des a_w -Wertes der Pulver zu erklären. Eine Änderung des a_w -Wertes zu größeren Werten kann, bedingt durch eine Funktionsstörung des Klimaschranks, zu höheren Festigkeitswerten der Tabletten geführt haben. Somit war das Ausgangsmaterial nicht für alle Versuchsreihen gleich konditioniert.

Abbildung 4.4 zeigt deutlich, dass eine höhere Festigkeit der Tabletten nur durch die Erhöhung der Presskraft erzielt werden kann. Eine Steigerung der Presskraft bedeutet gleichzeitig eine größere Verdichtung des Pulvers beim Kompaktieren, resultierend in höheren Dichten der Presslinge. Der durch die höhere Dichte bedingte engere Kontakt der einzelnen Partikeln untereinander erhöht somit auch die interpartikulären Kontaktflächen und Bindungskräfte.

Die Tablettendichte sowie die Festigkeit der Tabletten stehen in unmittelbarem Zusammenhang mit der elastischen Rückdehnung der Tabletten. Diese bestimmt die Tablettenhöhe nach Ausstoß aus der Matrize. Je größer die elastische Rückdehnung ist, desto größer ist auch die resultierende Tablettenhöhe und umso kleiner ist die Tablettendichte. Des Weiteren können infolge der elastischen Rückdehnung während des Kompaktierprozesses gebildete interpartikuläre Bindungen wieder gelöst werden.

Abbildung 4.5 zeigt die elastischen Rückdehnungen für die oben genannten Versuchsreihen, berechnet aus der minimalen Tablettenhöhe beim Verpressen und der Tablettenhöhe nach dem Ausstoß.

Das Ergebnis der elastischen Rückdehnung zeigt wie bei der Tablettenfestigkeit keine signifikanten Unterschiede innerhalb der Versuchsreihen mit konstanter Stempelgeschwindigkeit und bei variierender Stempelgeschwindigkeit. Die größere elastische Rückdehnung bei den Versuchsreihen mit einer Presskraft von 20 kN ist auf eine zunehmende elastische Verformung der Partikeln bei höheren Presskräften zurückzuführen. Die großen Konfidenzintervalle sowie die geringfügigen Abweichungen sind bedingt durch die unzureichende Messgenauigkeit bei der Bestimmung der Tablettenhöhe nach dem Ausstoß. Diese wurde mittels eines Messschiebers (Genauigkeit: $\pm 0,025$ cm) bestimmt.

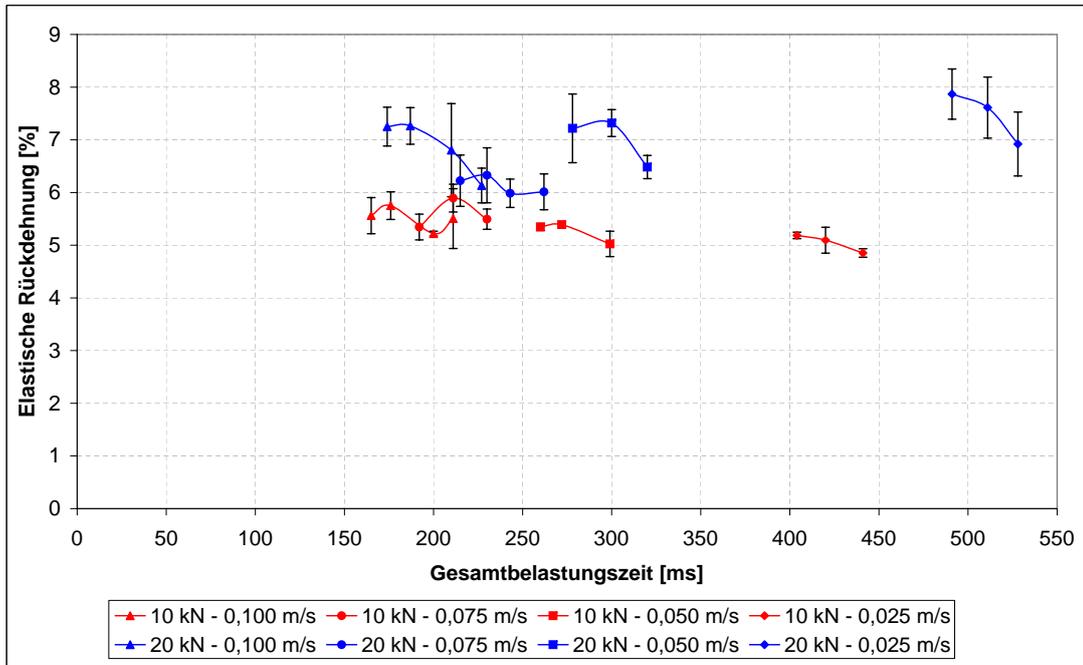


Abbildung 4.5: Elastische Rückdehnung bei unterschiedlichen Stempelgeschwindigkeiten in Abhängigkeit von der Gesamtbelastungszeit (Maltodextrin)

Die erzielten Ergebnisse bestätigen das stark elastische und damit zeitunabhängige Kompaktierverhalten von Maltodextrin bei einem a_w -Wert von 0,3. Die Variation der Stempelgeschwindigkeit und Druckhaltezeit zeigte weder eine signifikante Veränderung der Tablettenfestigkeit noch der elastischen Rückdehnung. Die minimalen Gesamtbelastungszeiten, die mit der hydraulischen Unterstempelpresse erreicht werden konnten, liegen jedoch deutlich oberhalb der Gesamtbelastungszeiten, die mit Rundläufertablettenpressen erzielt werden.

Aus diesem Grund wurde in einer zweiten Versuchsreihe die Stempelgeschwindigkeit in drei Schritten (0,125 m/s; 0,150 m/s; 0,180 m/s) bei drei verschiedenen Presskräften (5, 10 und 20 kN) bis zum Maximum erhöht, um die geringstmögliche Belastungszeit ($T1 \hat{=} 173$ ms; $T2 \hat{=} 156$ ms; $T3 \hat{=} 136$ ms) zu erreichen.

Abbildung 4.6 zeigt deutlich, dass auch bei einer maximalen Stempelgeschwindigkeit von ca. 0,180 m/s ($\hat{=}$ der Gesamtbelastungszeit $T3$) kein signifikanter Unterschied der Tablettenfestigkeit feststellbar ist. Entscheidender Faktor ist auch hier die Presskraft, die unter diesen Versuchsbedingungen den einzigen Einfluss auf die Festigkeit der Tabletten hat.

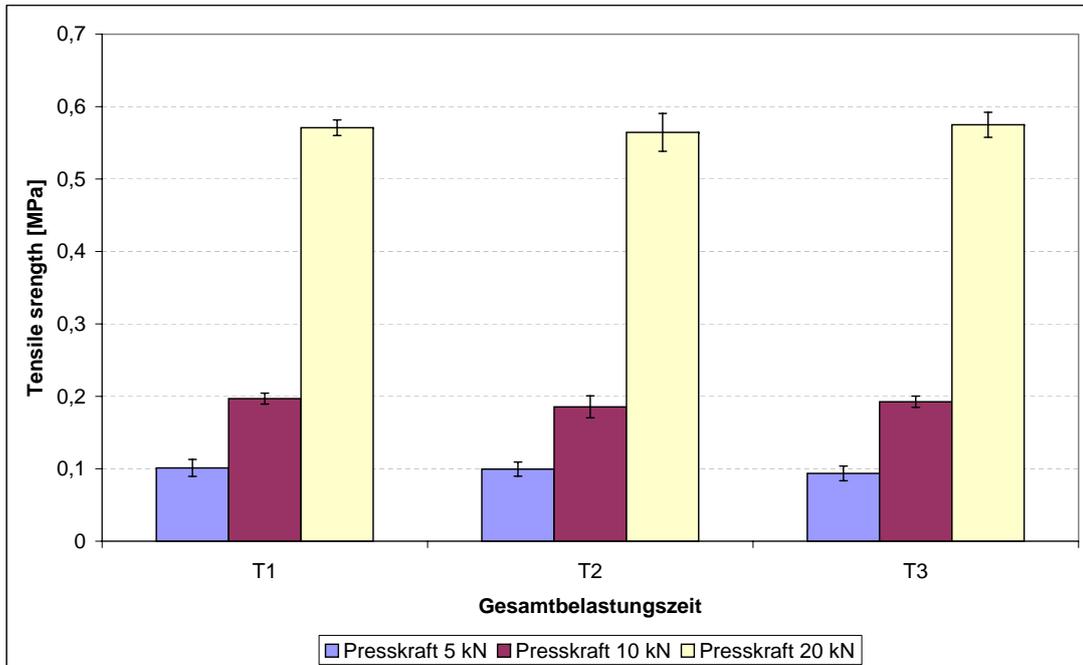


Abbildung 4.6: Tensile strength bei unterschiedlichen Gesamtbelastungszeiten mit maximaler Stempelgeschwindigkeit (Maltodextrin)

Ein ähnliches Verhalten zeigt auch die elastische Rückdehnung, wie aus Abbildung 4.7 ersichtlich wird. Erst bei der maximalen Stempelgeschwindigkeit bzw. der minimalen Belastungszeit T3 ist eine geringfügige Zunahme der elastischen Rückdehnung im Vergleich zu T1 bei den Presskräften 5 kN und 10 kN zu erkennen.

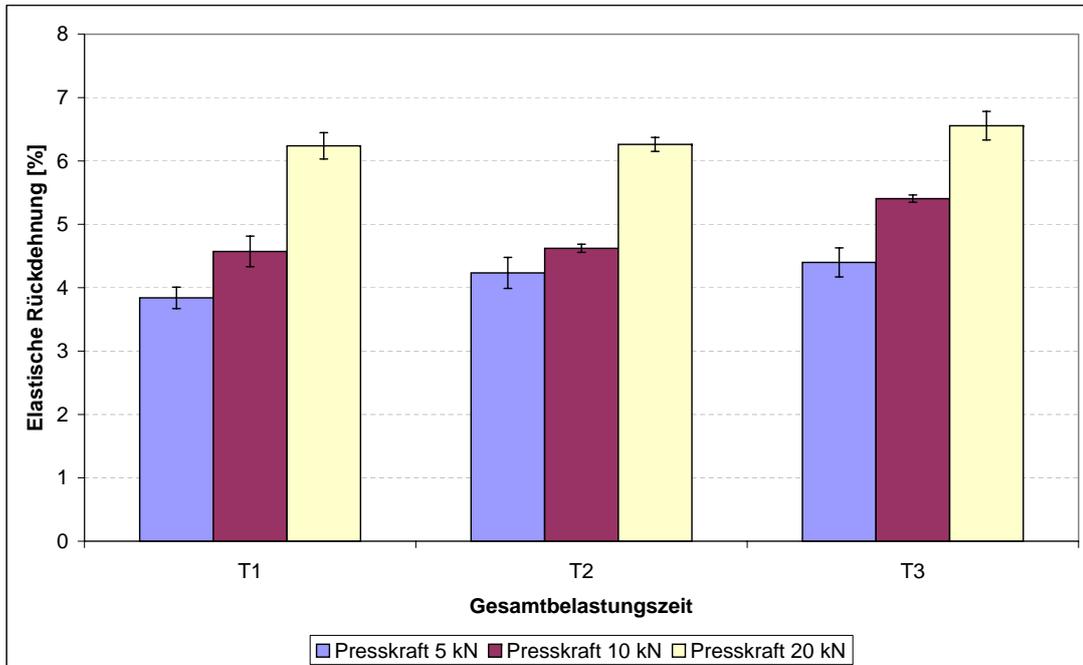


Abbildung 4.7: Elastische Rückdehnung bei unterschiedlichen Gesamtbelastungszeiten mit maximaler Stempelgeschwindigkeit (Maltodextrin)

Die Ergebnisse zeigen, dass die Tablettenfestigkeit nicht von der Stempelgeschwindigkeit abhängt. Die mit der hydraulischen Unterstempelpresse untersuchten Geschwindigkeitsprofile decken die der Rundläufertablettenpressen im vollen Umfang ab. Die minimalen Gesamtbelastungszeiten einer Rundläufertablettenpresse konnten nicht erreicht werden. Es ist davon auszugehen, dass die Gesamtbelastungszeiten unabhängig von den Stempelgeschwindigkeiten einen entscheidenden Einfluss auf die Tablettenfestigkeiten ausüben.

4.1.3 Pressversuche mit der Fette 3090 (eckige Tabletten)

4.1.3.1 Tablettenfestigkeit und elastische Rückdehnung

Mit der MAK-Presse konnten keine Kompaktierprozesse mit Gesamtbelastungszeiten kleiner 136 ms untersucht werden. Die Rundläufertablettenpresse Fette 3090 erlaubt die Betrachtung sehr kleiner Gesamtbelastungszeiten.

Das viskoelastische Verhalten von Maltodextrin zeichnet sich dadurch aus, dass sowohl elastische als auch plastische Deformationsprozesse beim Kompaktieren nebeneinander stattfinden. Welcher der beiden Deformationsmechanismen überwiegt, hängt entscheidend vom Feuchtegehalt des Pulvers ab. Bei geringen Feuchtegehalten weist das Pulver eine hohe Viskosität

auf, so dass elastische Deformationsprozesse überwiegen und das Kompaktierverhalten damit weitestgehend zeitunabhängig ist. Mit zunehmendem Feuchtegehalt des Pulvers kommt es zu einer Abnahme der Viskosität, wodurch zunehmend plastische Deformationsprozesse stattfinden und damit auch der Faktor Zeit an Bedeutung gewinnt.

Diese Eigenschaften des Maltodextrins sollten in den Versuchsreihen neben der Betrachtung der Gesamtbelastungszeit auch Beachtung finden. Es wurden zwei Versuchsreihen mit Pulvern unterschiedlicher a_w -Werte (0,19 und 0,48) durchgeführt. Zusätzlich wurde die Gesamtbelastungszeit in sechs Schritten bei drei unterschiedlichen Presskräften (5 kN, 10 kN und 20 kN) gesteigert. Bei der Versuchsdurchführung wurde darauf geachtet, so viele Parameter wie möglich konstant zu halten. Im Vordergrund stand dabei die Presskraft. Wenn es innerhalb einer Versuchsreihe zu Abweichungen in der angestrebten Presskraft kam, erfolgte die Nachregulierung immer bei konstanter Steghöhe unter Variation der Tablettenmasse. Zur Auswertung wurden die Bruchfestigkeit und die elastische Rückdehnung der Tabletten bestimmt.

Die nachfolgenden Abbildungen 4.8 und 4.9 zeigen die Verläufe der Bruchfestigkeit bei unterschiedlichen Presskräften in Abhängigkeit von der Gesamtbelastungszeit. Abbildung 4.8 zeigt den Verlauf bei geringem Feuchtegehalt (a_w -Wert = 0,19), Abbildung 4.9 den Verlauf bei hohem Feuchtegehalt (a_w -Wert = 0,48).

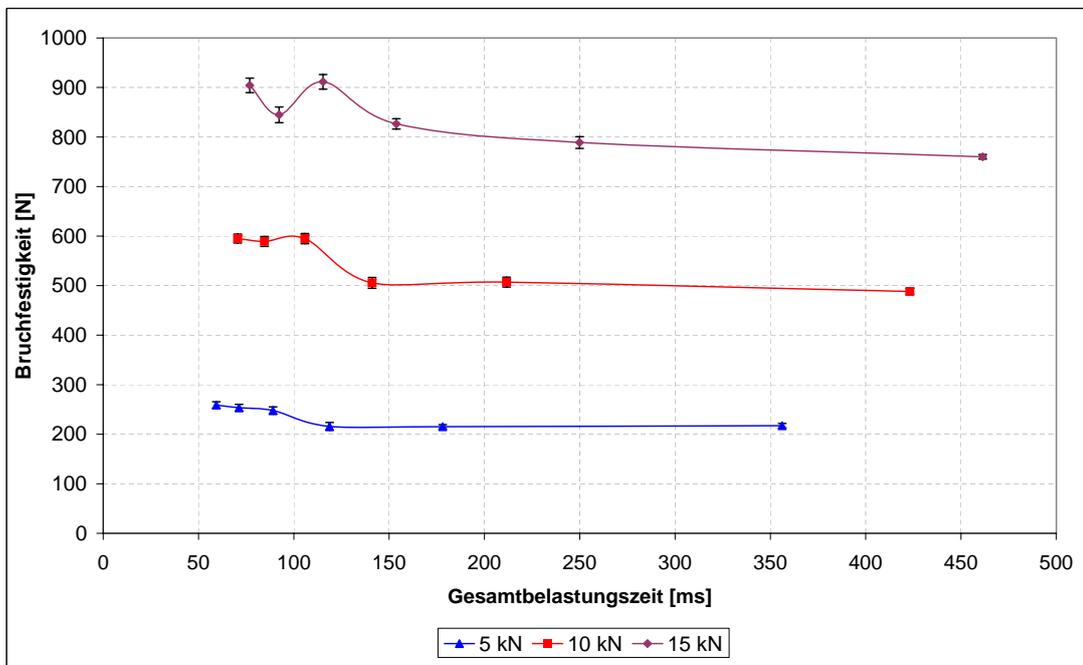


Abbildung 4.8: Bruchfestigkeit bei unterschiedlichen Presskräften in Abhängigkeit von der Gesamtbelastungszeit (a_w -Wert = 0,19)

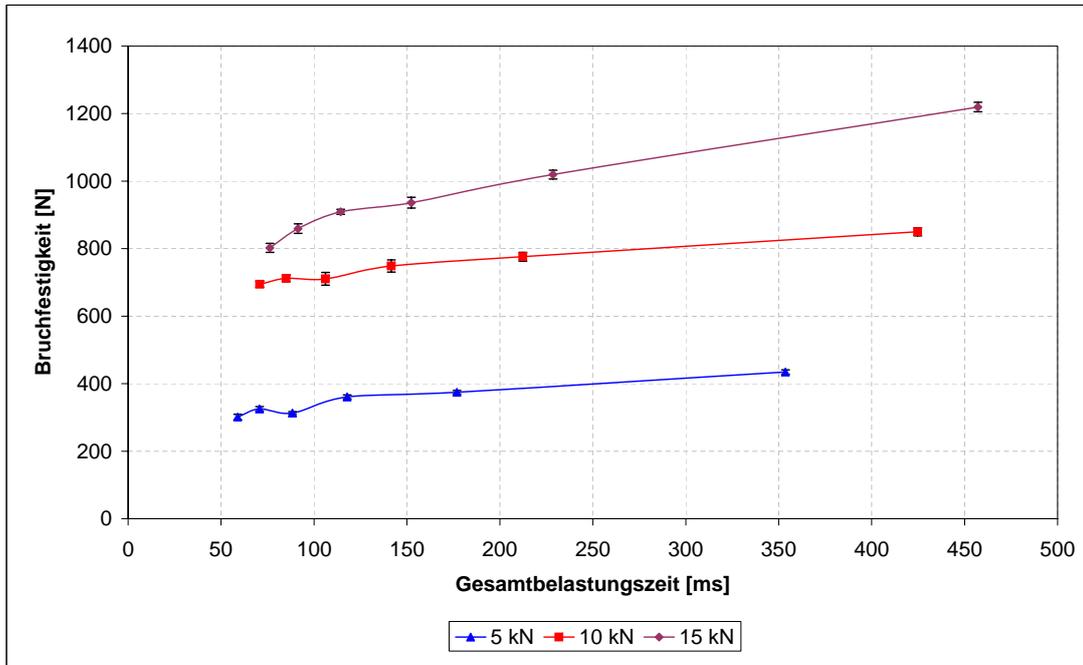


Abbildung 4.9: Bruchfestigkeit bei unterschiedlichen Presskräften in Abhängigkeit von der Gesamtbelastungszeit (a_w -Wert = 0,48)

Bei niedrigen Feuchtegehalten ist im Bereich mittlerer bis langer Belastungszeiten keine Zunahme der Bruchfestigkeit zu erkennen, was darauf hindeutet, dass unabhängig von der Presskraft keine zeitabhängigen Deformationsprozesse stattfinden. Die unerwartete Zunahme der Bruchfestigkeit bei abnehmender Belastungszeit lässt sich auf zwei unterschiedliche Ursachen zurückführen. Zum einen ist bei höheren Maschinengeschwindigkeiten (kurze Belastungszeiten) auf Grund von Reibung eine stärkere Temperaturzunahme sowohl innerhalb der Tablette als auch an den Maschinenteilen zu erwarten, was zu einer Veränderung der Pulvereigenschaften führen kann. Zum anderen können sich auf Grund der hohen Maschinengeschwindigkeit die Partikeln zu Beginn des Kompaktierprozesses („Umordnungsphase“) nicht so günstig anordnen, wie bei langsamen Maschinengeschwindigkeiten. Dadurch kann es im weiteren Kompaktierprozess zu lokal höheren Druckbelastungen zwischen einzelnen Partikeln kommen, was eine stärkere Fragmentierung und damit eine festere Tablette zur Folge hat.

Im Gegensatz zu dem weitestgehend zeitunabhängigen Verhalten bei niedrigen Feuchten, zeigt sich bei hohem Feuchtegehalt eine signifikante Zunahme der Bruchfestigkeit mit zunehmender Gesamtbelastungszeit. Die Tabletten mit höherem a_w -Wert weisen eine größere Festigkeit auf als Tabletten mit niedrigem a_w -Wert, was sich auf die besseren Kompaktiereigenschaften des Pulvers mit höherem Feuchtegehalt zurückführen lässt. Unter diesen Bedingungen wird das Pulver bei gleicher Presskraft zu einer höheren Dichte verpresst.

Die elastischen Rückdehnungen der Tabletten mit einem a_w -Wert von 0,19 sind in Abbildung 4.10, für einen a_w -Wert von 0,48 in Abbildung 4.11 dargestellt.

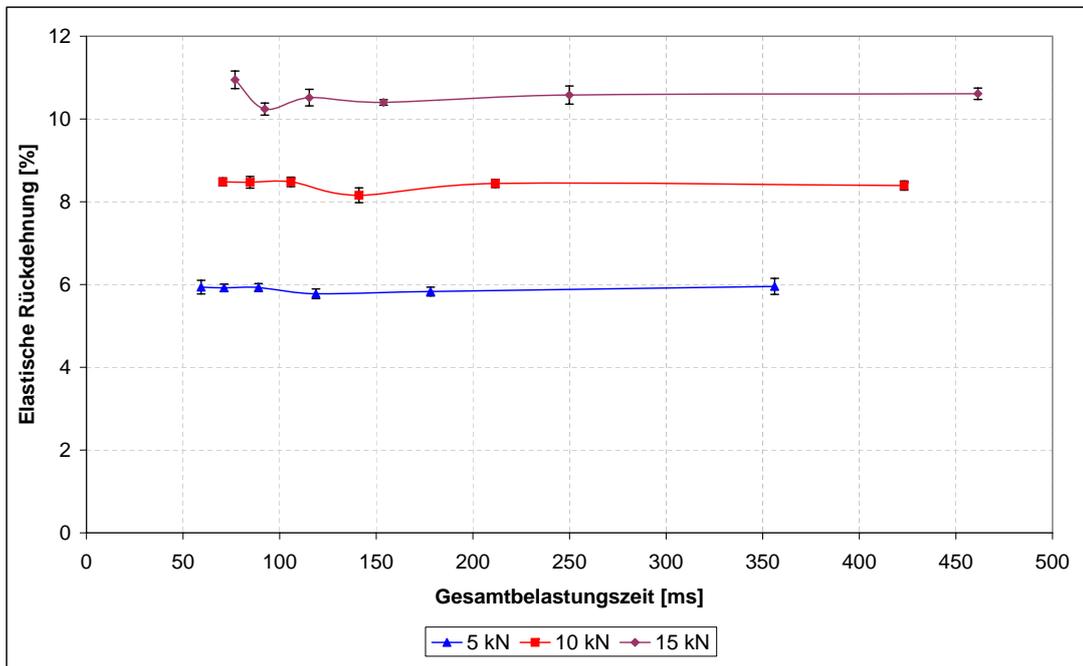


Abbildung 4.10: Elastische Rückdehnung bei unterschiedlichen Presskräften in Abhängigkeit von der Gesamtbelastungszeit (a_w -Wert = 0,19)

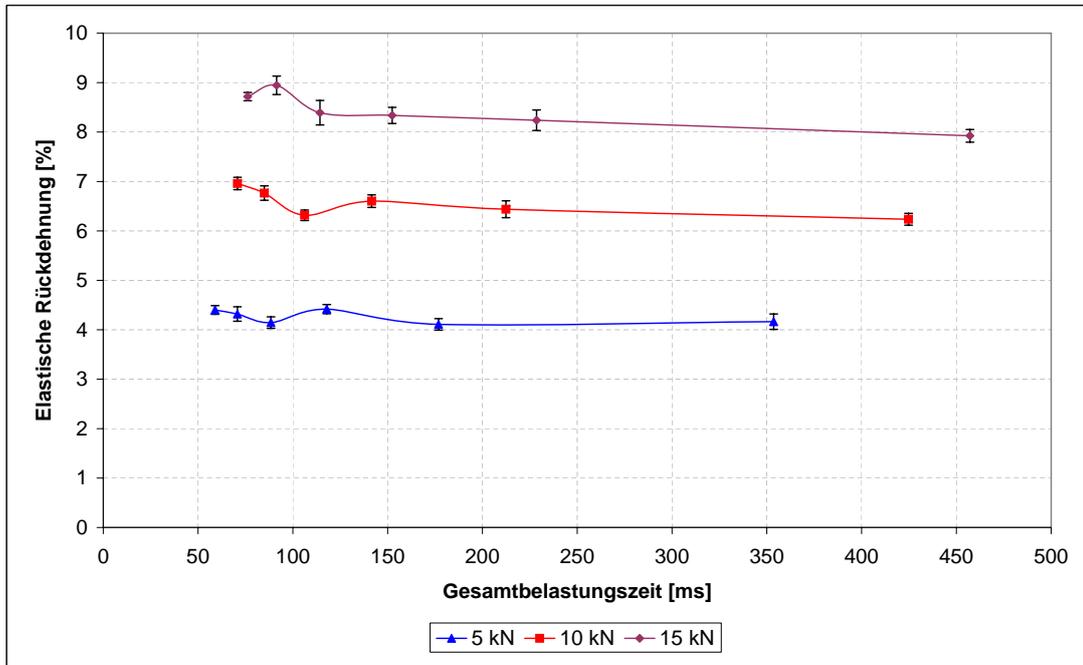


Abbildung 4.11: Elastische Rückdehnung bei unterschiedlichen Presskräften in Abhängigkeit von der Gesamtbelastungszeit (a_w -Wert = 0,48)

Aus den Abbildungen 4.10 und 4.11 ist zu erkennen, dass bei geringem Feuchtegehalt die elastische Rückdehnung über den gesamten Belastungszeitraum konstant bleibt (vgl. Ergebnisse hydraulische Unterstempel- presse), während bei hohem Feuchtegehalt die elastische Rückdehnung mit zunehmender Belastungszeit für eine Presskraft von 10 kN und 20 kN abnimmt. Die Werte für die elastischen Rückdehnungen sind für das trockene Pulver tendenziell höher als für das feuchte Pulver.

Die gezeigten Ergebnisse bestätigen das viskoelastische Verhalten von Maltodextrin in Abhängigkeit vom Feuchtegehalt. Das bei niedrigem a_w -Wert verpresste Pulver zeigte sich in seinen Kompaktiereigenschaften als zeitunabhängig. Die Viskosität ist unter den gegebenen Bedingungen so hoch, dass während des gesamten Belastungszeitraumes keine plastischen Deformationsprozesse stattfinden. Vielmehr dominieren hier elastische Deformationsprozesse und Fragmentierung das Kompaktierverhalten. Beide Prozesse gelten als zeitunabhängig, somit kommt es unter diesen Bedingungen zu keiner Zunahme der Bruchfestigkeit mit zunehmender Belastungszeit. Belegt wird dieses Verhalten zusätzlich durch die über den gesamten Belastungszeitraum konstant bleibende elastische Rückdehnung.

Im Gegensatz dazu steht das Kompaktierverhalten bei hohem Feuchtegehalt. Unter diesen Bedingungen hat sich gezeigt, dass es zu einer Zunahme der Bruchfestigkeit mit zunehmender Belastungszeit kommt. Zurückzuführen ist dies auf eine Abnahme der Viskosität mit stei-

gendem Feuchtegehalt. Dadurch finden neben der elastischen Deformation auch plastische Deformationsprozesse statt. Das Ausmaß der plastischen Deformation ist dabei neben der wirkenden Spannung auch abhängig von der Dauer der Krafteinwirkung. So bewirkt eine zunehmende Belastungszeit eine stärkere plastische Deformation der Partikeln und damit eine verstärkte Kontaktflächenausbildung in Abhängigkeit von der Zeit. Das zunehmend plastische Verhalten bei hohem Feuchtegehalt zeigt sich auch deutlich bei einem Vergleich der elastischen Rückdehnung zwischen feuchtem und trockenem Pulver. Allgemein weisen die Tabletten bei hoher Feuchte eine kleinere elastische Rückdehnung auf, welche zusätzlich mit zunehmender Belastungszeit abnimmt. Die angewendete Kraft bewirkt zunächst die Deformation der elastischen Komponente. Während der Dauer der Krafteinwirkung kann die plastische Komponente reagieren und durch Verformung vorhandene Spannungen abbauen. Wird die Kraft wieder weggenommen, bleibt die Verformung der plastischen Komponente bestehen, während sich die elastische Komponente wieder zurückdehnt. Je länger die Krafteinwirkung andauert, desto mehr Spannungen können abgebaut werden und desto kleiner fällt die Rückdehnung der elastischen Komponente aus.

4.1.3.2 REM-Aufnahmen der hergestellten Tabletten

Die Erhöhung des Feuchtegehalts im Pulver bewirkt eine Abnahme der Viskosität. Dies wirft die Frage auf, ob während des Tablettierens auch Sinterprozesse stattfinden. Sinterprozesse sind neben der Viskosität und den geometrischen Parametern v.a. abhängig von der Zeit und der wirkenden Kraft bzw. Spannung.

In der Regel ist die Presszeit zu kurz, als dass bei der wirkenden Kraft Sinterprozesse zu erwarten sind. Auf Grund der unregelmäßig geformten Partikeln ist es denkbar, dass zwei spitze Partikeln aufeinandertreffen. Dadurch würde sich der wirkende Druck lokal stark erhöhen, womit sich die kritische Zeit für Sinterprozesse verkürzen würde. Um zu untersuchen, ob es während des Tablettierens tatsächlich auch zu Sinterprozessen gekommen ist, wurden von den hergestellten Tabletten REM-Aufnahmen angefertigt. Mit Hilfe der REM-Aufnahmen soll weiterhin auch untersucht werden, inwieweit sich die Tabletten in Abhängigkeit der Pressbedingungen unterscheiden.

In den folgenden Abbildungen sind REM-Aufnahmen von Tablettenbruchflächen der hergestellten Tabletten dargestellt.

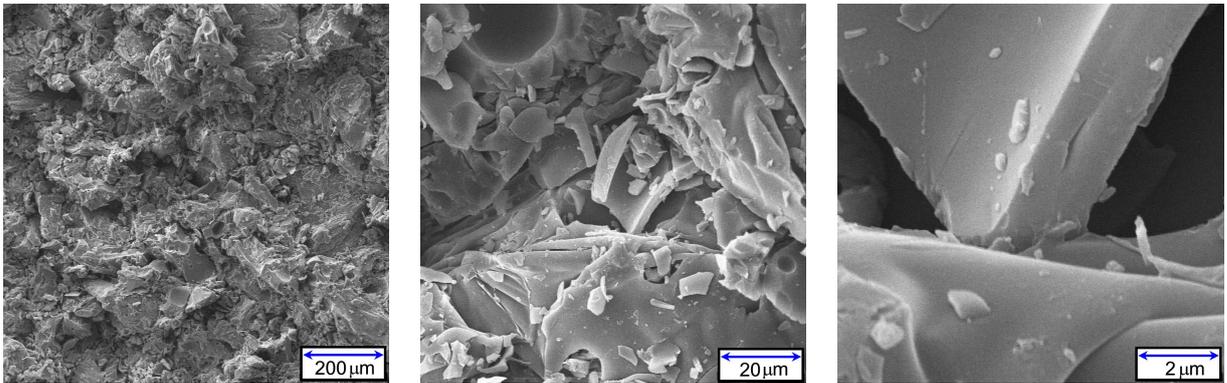


Abbildung 4.12: Bruchfläche bei a_w -Wert 0,19; Gesamtbelastungszeit 76 ms; Presskraft 15 kN

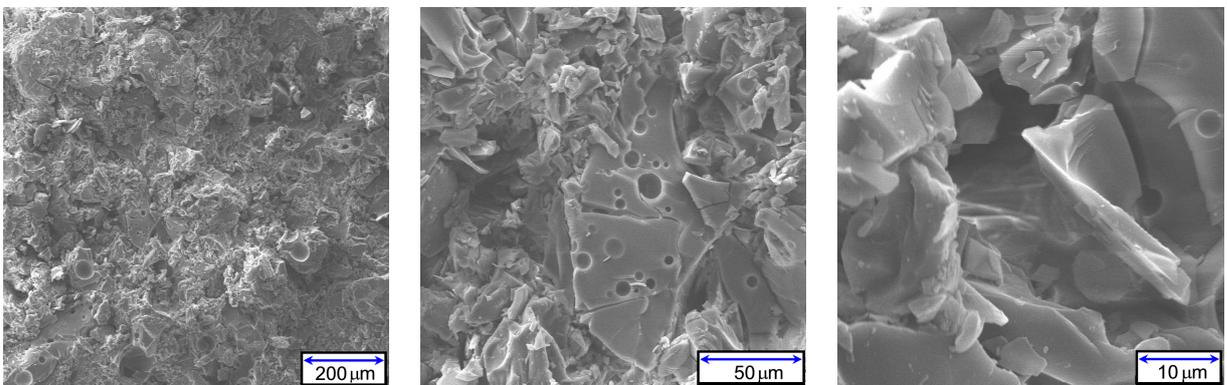


Abbildung 4.13: Bruchfläche bei a_w -Wert 0,48; Gesamtbelastungszeit 76 ms; Presskraft 15 kN

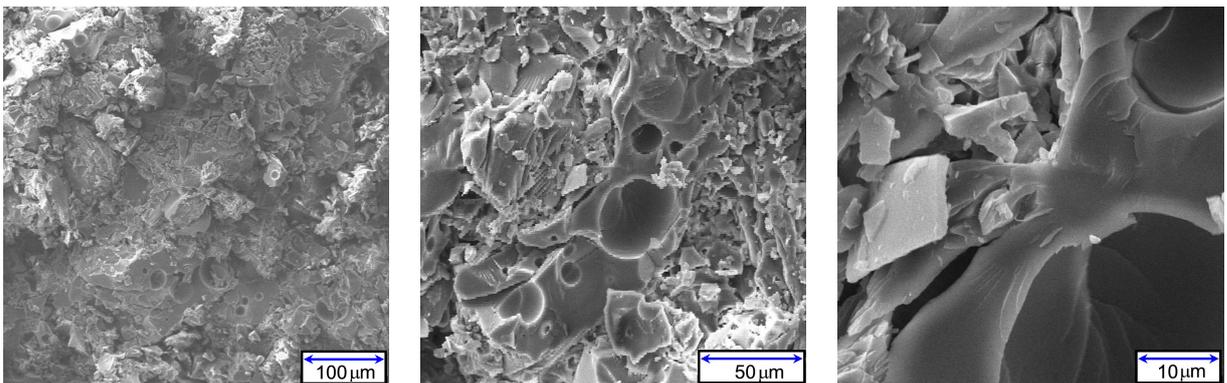


Abbildung 4.14: Bruchfläche bei a_w -Wert 0,48; Gesamtbelastungszeit 457 ms; Presskraft 15 kN

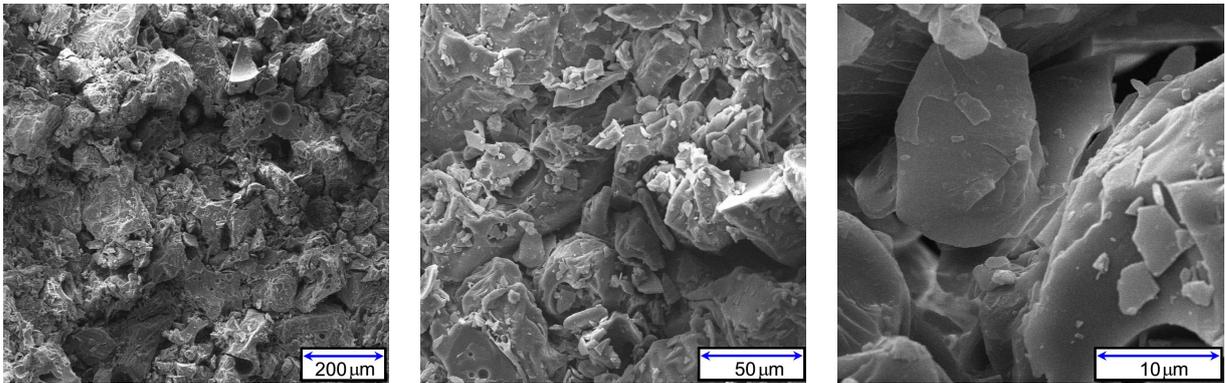


Abbildung 4.15: Bruchfläche bei a_w -Wert 0,48; Gesamtbelastungszeit 354 ms; Presskraft 5 kN

In den Abbildungen 4.12 bis 4.15 sind unabhängig von den Pressbedingungen keine Sinterprozesse erkennbar. Selbst bei der höchsten Presskraft und der längsten Belastungsdauer (vgl. Abbildung 4.14) konnte kein Sintern festgestellt werden. Es ist keine plastische Deformation innerhalb der Bruchflächen der Tabletten zu erkennen. Auf allen REM-Aufnahmen sind keine Unterschiede ersichtlich, die eine Zuordnung oder Abhängigkeit der verschiedenen Pressbedingungen nachweisen können.

4.1.4 Pressversuche mit der Fette 1200i G (runde Tabletten)

4.1.4.1 Tablettenfestigkeit und elastische Rückdehnung

Die in Kapitel 4.1.3.1 dargestellten Ergebnisse zeigen, dass mit zunehmendem a_w -Wert die Gesamtbelastungszeit einen Einfluss auf das Kompaktierverhalten von Maltodextrin hat. Die dabei hergestellten eckigen Tabletten konnten lediglich bis zu einer Presskraft von 15 kN ($\hat{=}$ 24,2 MPa bei einer eckigen Tablette) verpresst werden, da die resultierende Festigkeit der Tabletten bereits hier die Messgrenze des Hardness-Testers erreicht hat. Bei runden Tabletten hingegen kann mit höheren Pressdrücken gearbeitet werden, da diese eine geringere Bruchfestigkeit aufweisen. In einer weiteren Versuchsreihe wurde zunächst untersucht, ob durch Erhöhung des Pressdrucks auch bei geringen Feuchtegehalten plastische Deformation auftritt. Es sollte überprüft werden, ob sich bei hohen Feuchtegehalten ebenfalls ein ähnlicher Zusammenhang zwischen Bruchfestigkeit und Gesamtbelastungszeit ergibt, wie in Kapitel 4.1.3.1. Die verwendete Rundläufertablettenpresse Fette 1200i G ist mit einem „Galenik-Package“ (spezielle Mess- und Auswertungssoftware) ausgestattet und ermöglicht damit eine zusätzliche Auswertung der Kraft-Zeit-Verläufe bei unterschiedlichen Pressbedingungen.

Abbildung 4.16 und 4.17 zeigen den Verlauf der Tablettenfestigkeit in Abhängigkeit von der Gesamtbelastungszeit für einen a_w -Wert von 0,19 und einen a_w -Wert von 0,52, bei zwei unterschiedlichen Presskräften von 10 kN ($\hat{=}$ 20,37 MPa) und 20 kN ($\hat{=}$ 40,74 MPa).

Im Gegensatz zu den bisher gewonnenen Ergebnissen ist in Abbildung 4.16 eine Abnahme der Bruchfestigkeit mit abnehmender Gesamtbelastungszeit bei niedrigem a_w -Wert zu erkennen. Hierbei muss jedoch berücksichtigt werden, dass der Pressdruck bei den runden Tabletten bei 10 kN 20,37 MPa entspricht. Bei den eckigen Tabletten entspricht die Presskraft von 15 kN einem Pressdruck von 24,19 MPa. Die Tablettenfestigkeit bei einem höheren a_w -Wert zeigt einen ähnlichen linearen Zusammenhang, wie er auch bei den eckigen Tabletten für niedrigere Pressdrücke erhalten wurde.

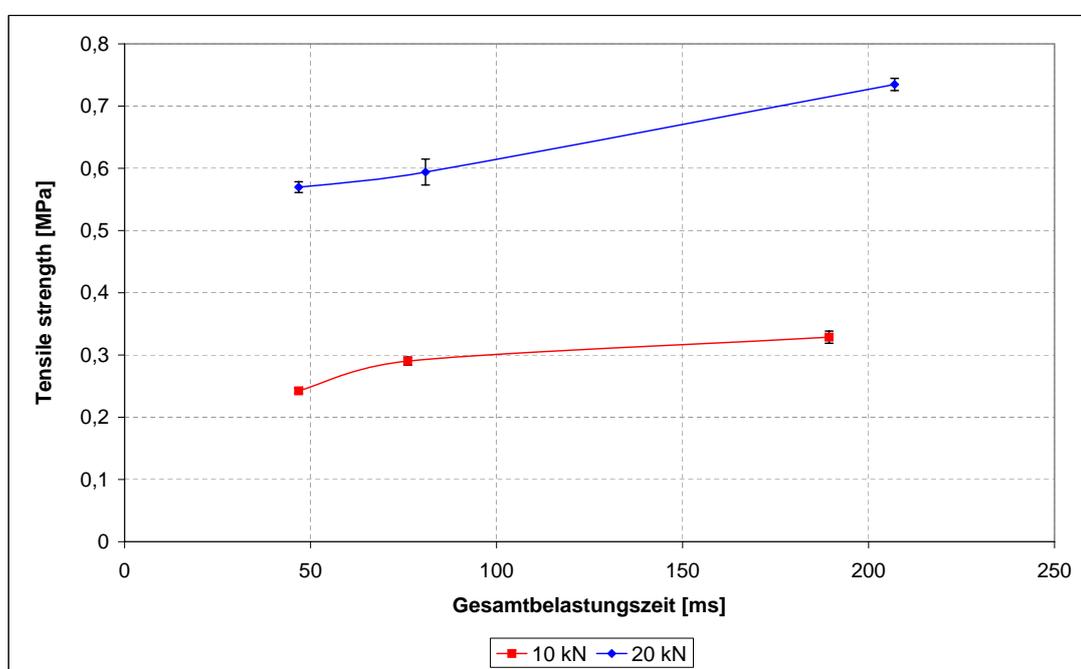


Abbildung 4.16: Tensile strength bei unterschiedlichen Presskräften in Abhängigkeit von der Gesamtbelastungszeit (a_w -Wert = 0,19)

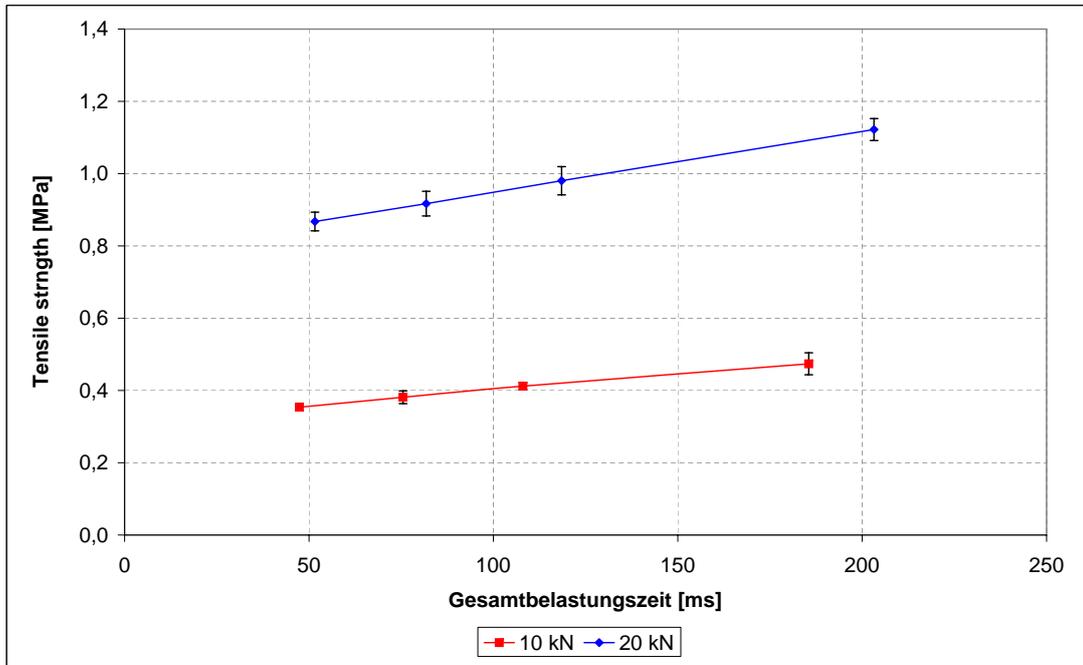


Abbildung 4.17: Tensile strength bei unterschiedlichen Presskräften in Abhängigkeit von der Gesamtbelastungszeit (a_w -Wert = 0,52)

Werden die elastischen Rückdehnungen (Abbildung 4.18 und 4.19) für einen niedrigen a_w -Wert und einen höheren a_w -Wert betrachtet, so ist ersichtlich, dass die Abnahme der elastischen Rückdehnung bei den Tabletten mit einem a_w -Wert von 0,19 mit steigender Gesamtbelastungszeit größer ausfällt, als bei den Tabletten mit einem a_w -Wert von 0,52. Die tendenziell höher liegenden elastischen Rückdehnungen für die Tabletten mit dem niedrigeren Feuchtegehalt bestätigen die Ergebnisse aus Kapitel 4.1.3.1.

Die Pulvermasse der Tabletten mit einem a_w -Wert von 0,19 war bei allen Gesamtbelastungszeiten gleich, demzufolge hat nur die elastische Rückdehnung sowie die daraus resultierende steigende Tablettendichte mit steigender Gesamtbelastungszeit einen Einfluss auf die Tablettenfestigkeit. Dies hat zur Folge, dass die einzelnen Partikeln dichter gepackt sind und die Tablette dadurch eine höhere Festigkeit aufweist. Das dieses Verhalten bei den hergestellten eckigen Tabletten nicht auftritt, ist darauf zurückzuführen, dass Versuche mit längeren Gesamtbelastungszeiten durchgeführt wurden. Außerdem lagen die bereits angesprochenen Pressdrücke bei runden Tabletten höher.

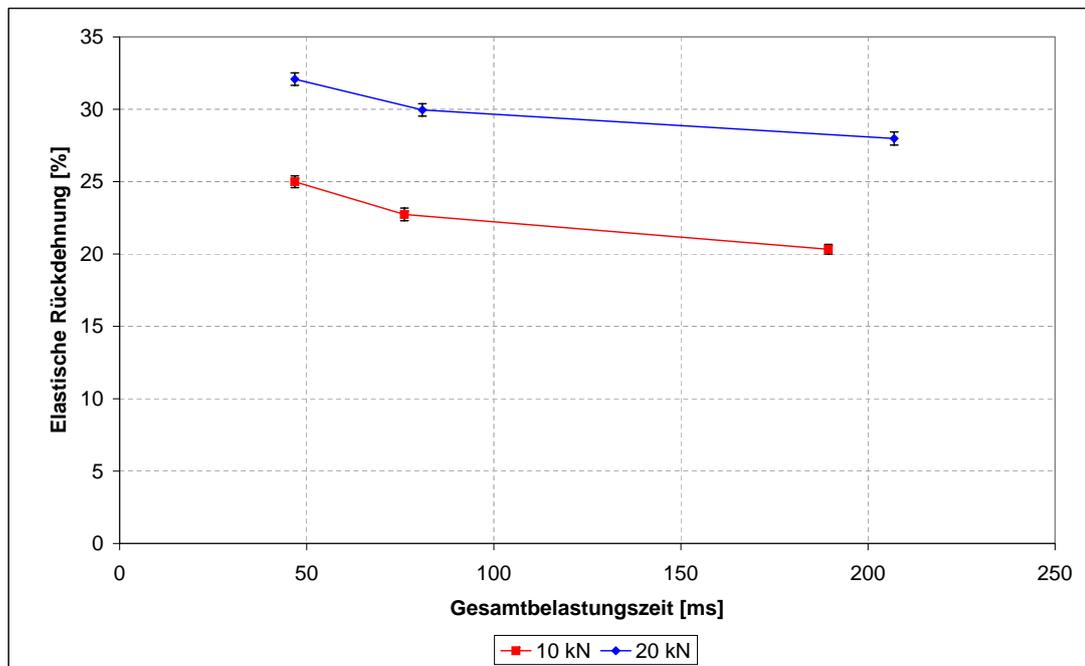


Abbildung 4.18: Elastische Rückdehnungen bei unterschiedlichen Presskräften in Abhängigkeit von der Gesamtbelastungszeit (a_w -Wert = 0,19)

Bei den Tabletten mit einem a_w -Wert von 0,52 zeigt sich ein ähnliches viskoelastisches Verhalten wie bei den eckigen Tabletten. Mit zunehmender Belastungszeit nimmt die Bruchfestigkeit zu, wohingegen die elastische Rückdehnung abnimmt. Zusätzlich wurde mit längerer Belastungszeit auch die Pulvermasse erhöht, um eine konstante Presskraft zu erreichen. Das bedeutet, dass das Pulver unabhängig von der abnehmenden Rückdehnung zu einer höheren Dichte verpresst wurde, was darauf hinweist, dass eine plastische Deformation in zunehmendem Maße auftritt.

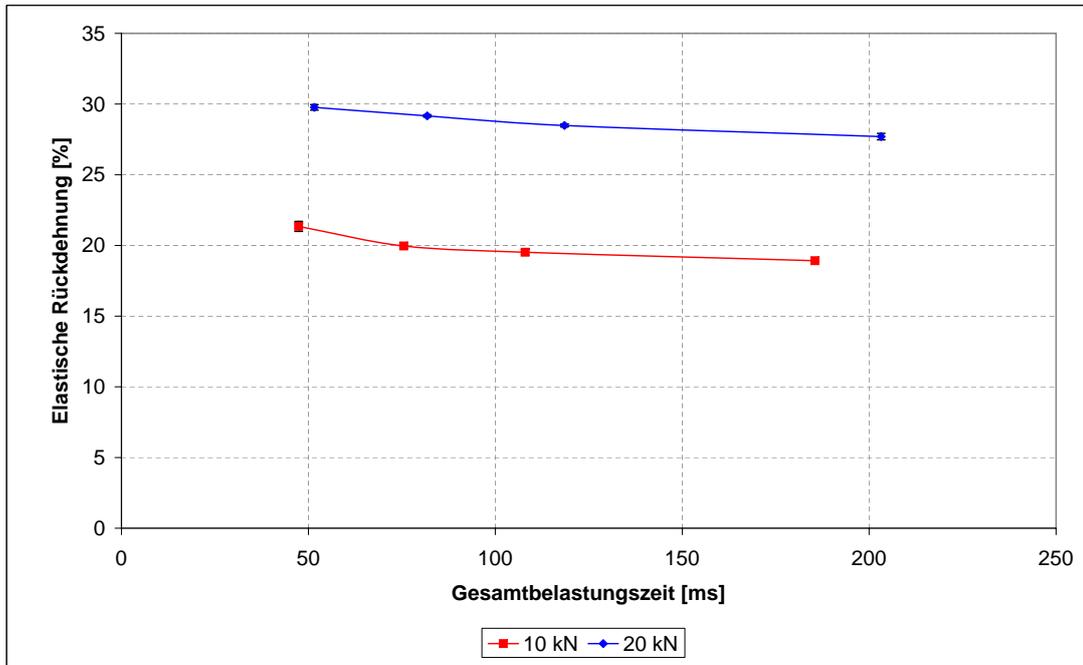


Abbildung 4.19: Elastische Rückdehnungen bei unterschiedlichen Presskräften in Abhängigkeit von der Gesamtbelastungszeit (a_w -Wert = 0,52)

Die Werte für die in Abbildung 4.18 und 4.19 dargestellten elastischen Rückdehnungen sind nur qualitativ zu betrachten. Elastische Rückdehnungen von 20% und mehr sind sehr unwahrscheinlich für die hergestellten Tabletten. Dies bestätigen auch die Ergebnisse aus Kapitel 4.1.3.1 (eckige Tabletten mit Fette 3090) und Kapitel 4.1.2 (runde Tabletten mit MAK-Presse). Hier lagen die elastischen Rückdehnungen zwischen 3% und 9%. Die hohen Werte für die elastischen Rückdehnungen, die mit der „Galenik-Software“ berechnet wurden, sind auf eine fehlerhafte Bestimmung der minimalen Tablettenhöhe zurückzuführen.

4.1.4.2 Kraft-Zeit-Verläufe bei unterschiedlichen Pressbedingungen

Die zeitabhängige Zunahme der Bruchfestigkeit deutet darauf hin, dass während des Tabletierens plastische Deformationsprozesse stattfinden. Diese sind jedoch nicht in den angefertigten REM-Aufnahmen der eckigen Tabletten zu erkennen. Im Kraft-Zeit-Verlauf einer Rundläuferpresse zeigt sich die plastische Deformation durch einen Kraftabfall während der Druckhaltezeit (vgl. Abbildung 2.38 „dwell-time“ in Kapitel 2.3.2). Die verwendete Rundläuferpresse Fette 1200i G verfügt über das „Galenik-Package“ und kann somit den Kraft-Zeit-Verlauf während eines Pressvorganges aufzeichnen. In den nachfolgenden Abbildungen sind bei-

spielhaft einige Kraft-Zeit-Verläufe bei unterschiedlichen Versuchsbedingungen (unterschiedliche Gesamtbelastungszeiten) dargestellt.

Abbildung 4.20 und 4.21 zeigen die Kraft-Zeit-Verläufe bei einem a_w -Wert von 0,19. Es ist deutlich zu erkennen, dass während der Druckhaltezeit kein Kraftabfall und demzufolge keine plastische Deformation auftritt. Dies bestätigt das überwiegend elastische Verhalten von Maltodextrin bei geringen Feuchtegehalten.

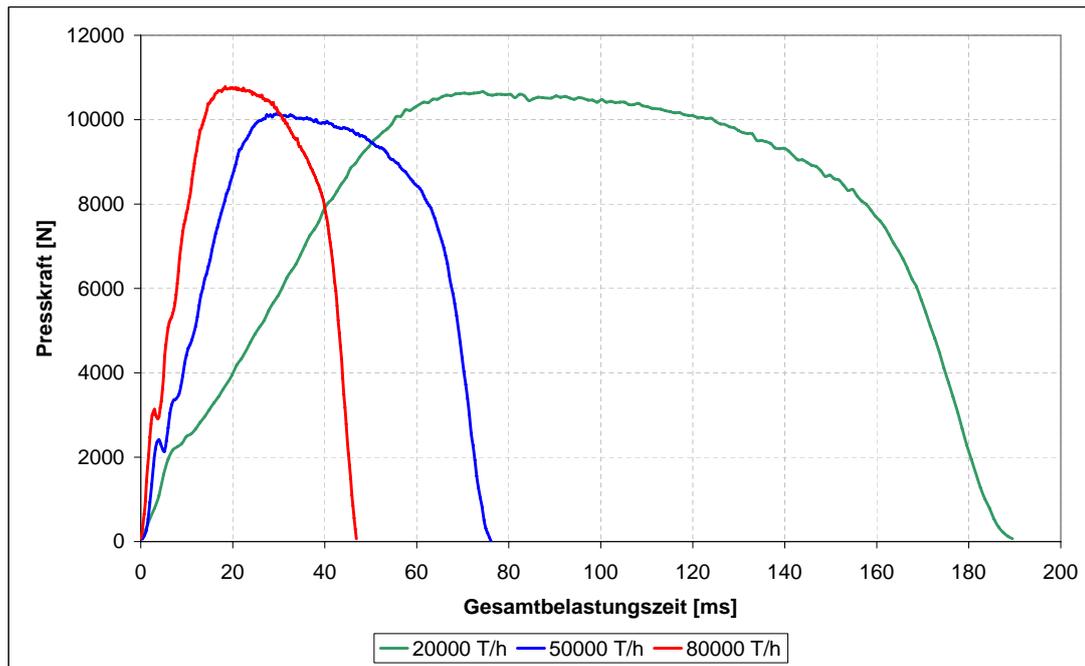


Abbildung 4.20: Kraft-Zeit-Verlauf bei unterschiedlichen Gesamtbelastungszeiten (Presskraft = 10 kN, a_w -Wert = 0,19)

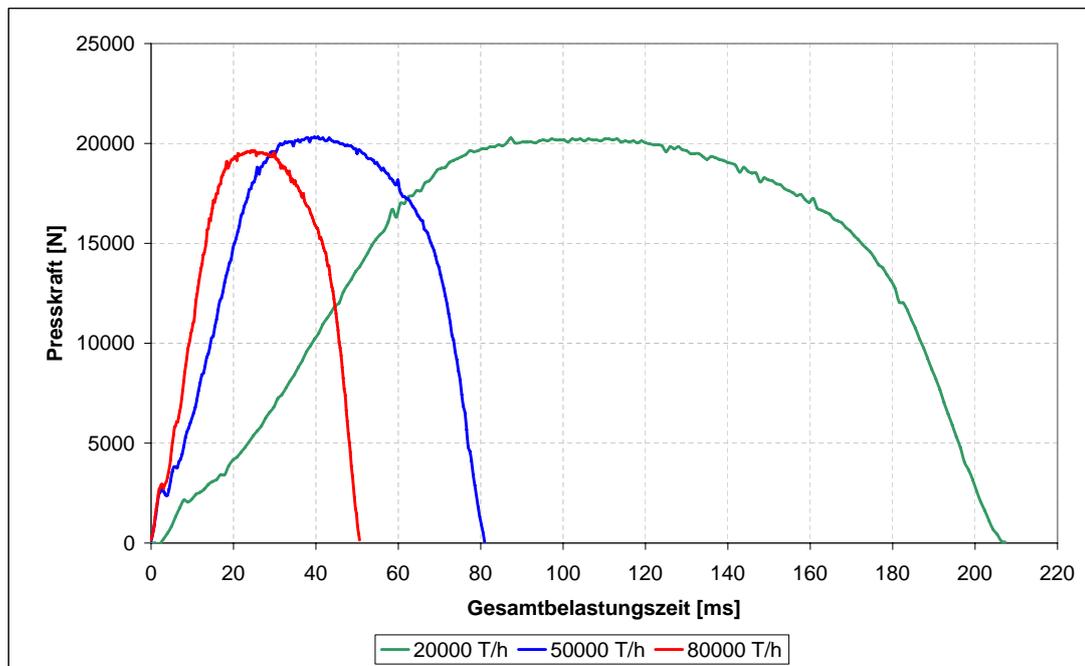


Abbildung 4.21: Kraft-Zeit-Verlauf bei unterschiedlichen Gesamtbelastungszeiten (Presskraft = 20 kN, a_w -Wert = 0,19)

Die Kraft-Zeit-Verläufe in Abbildung 4.22 zeigen bei einem a_w -Wert von 0,52 hingegen einen Kraftabfall während der Druckhaltezeit. Die Abnahme der Kraft ist dabei umso größer, je länger die Gesamtbelastungszeit bzw. die Druckhaltezeit ist. Mit zunehmender Presskraft (siehe Abbildung 4.23) kann kein Kraftabfall während der Druckhaltezeit festgestellt werden. Dies ist darauf zurückzuführen, dass die Tabletten bei der Presskraft von 20 kN zu solch hohen Tablettendichten verpresst wurden, dass keine plastische Deformation mehr stattfinden konnte. Die Zeitabhängigkeit des Kompaktiervorgangs ergibt sich daraus, dass bereits während der anfänglichen Verdichtungsphase (Umordnungsphase) plastische Deformationsprozesse ablaufen.

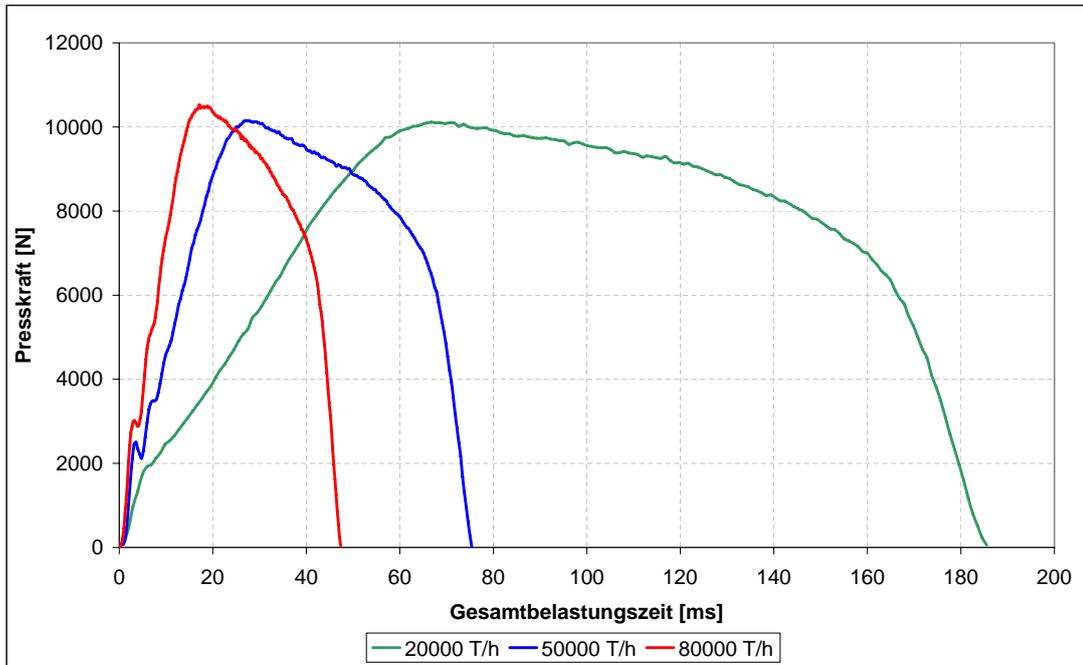


Abbildung 4.22: Kraft-Zeit-Verlauf bei unterschiedlichen Gesamtbelastungszeiten (Presskraft = 10 kN, a_w -Wert = 0,52)

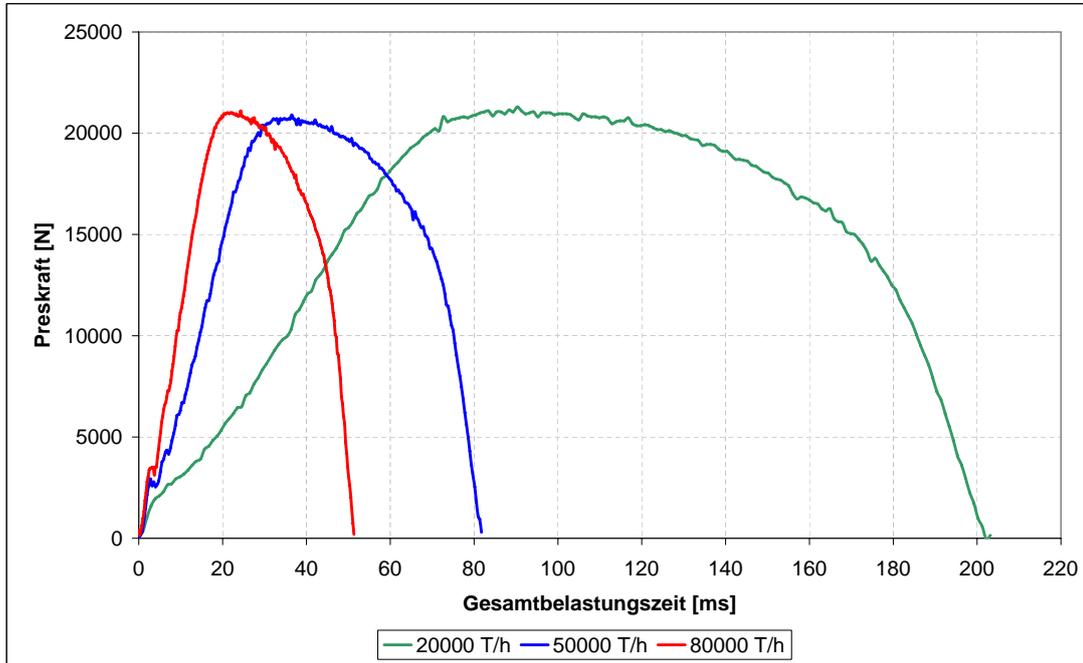


Abbildung 4.23: Kraft-Zeit-Verlauf bei unterschiedlichen Gesamtbelastungszeiten (Presskraft = 20 kN, a_w -Wert = 0,52)

Die dargestellten Kraft-Zeit-Verläufe verdeutlichen, dass mit zunehmendem Feuchtegehalt des Pulvers verstärkt plastische Deformationsprozesse auftreten. Damit ist auch der Faktor Zeit entscheidend für den Kompaktierprozess. Ab einer bestimmten kritischen Presskraft wird eine maximale Tablettendichte erreicht, bei der es weder durch Erhöhung der Presskraft noch durch Verlängerung der Belastungszeit möglich ist, eine höhere Tablettfestigkeit zu erzielen.

4.1.4.3 Festigkeit von Tabletten gleicher Dichte

Die in den vorangehenden Kapiteln gezeigten Ergebnisse, zeigen beim verwendeten Pulver Maltodextrin in Abhängigkeit vom Feuchtegehalt ein unterschiedliches Kompaktierverhalten. Das Pulver mit hohem a_w -Wert musste bei einer geringeren Steghöhe verpresst werden, um die gleiche resultierende Presskraft zu erzielen. Dadurch haben die Tabletten eine höhere Dichte und weisen eine höhere Festigkeit auf. Aus diesem Grund werden in einer weiteren Versuchsreihe mit feuchtem Pulver (a_w -Wert = 0,52) Tabletten hergestellt, die unabhängig von der Presskraft die gleiche Dichte aufweisen, wie Tabletten aus Pulver mit einem a_w -Wert von 0,19 bei einer Presskraft von 10 kN.

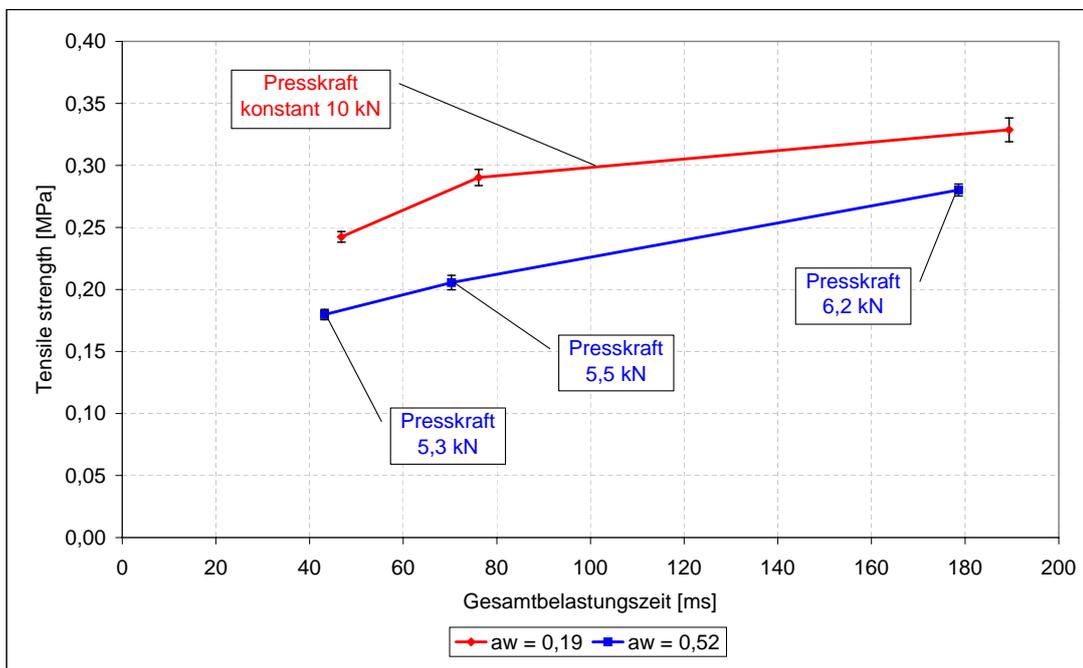


Abbildung 4.24: Festigkeit von Tabletten gleicher Dichte

Abbildung 4.24 stellt die Festigkeitsverläufe der Tabletten gleicher Dichte dar. Um Tabletten gleicher Dichte herzustellen, waren beim Pulver mit einem a_w -Wert von 0,52 deutlich geringere

Presskräfte notwendig. Die Ergebnisse zeigen, dass es durch Verlängerung der Belastungszeit möglich ist, aus Pulvern mit einer höheren Feuchtigkeit bei geringerer Presskraft festere Tabletten herzustellen, als aus trockenem Pulver bei kurzer Belastungszeit. Hier kommt der bereits erläuterte Effekt der plastischen Deformation und der damit verbundenen Kontaktflächenvergrößerung zum Tragen.

Dass die Tabletten dennoch trotz gleicher Dichte unterschiedliche Festigkeiten aufweisen, lässt sich darauf zurückführen, dass die Dichten mit der Pulvermasse und nicht mit der Trockensubstanzmasse berechnet wurden.

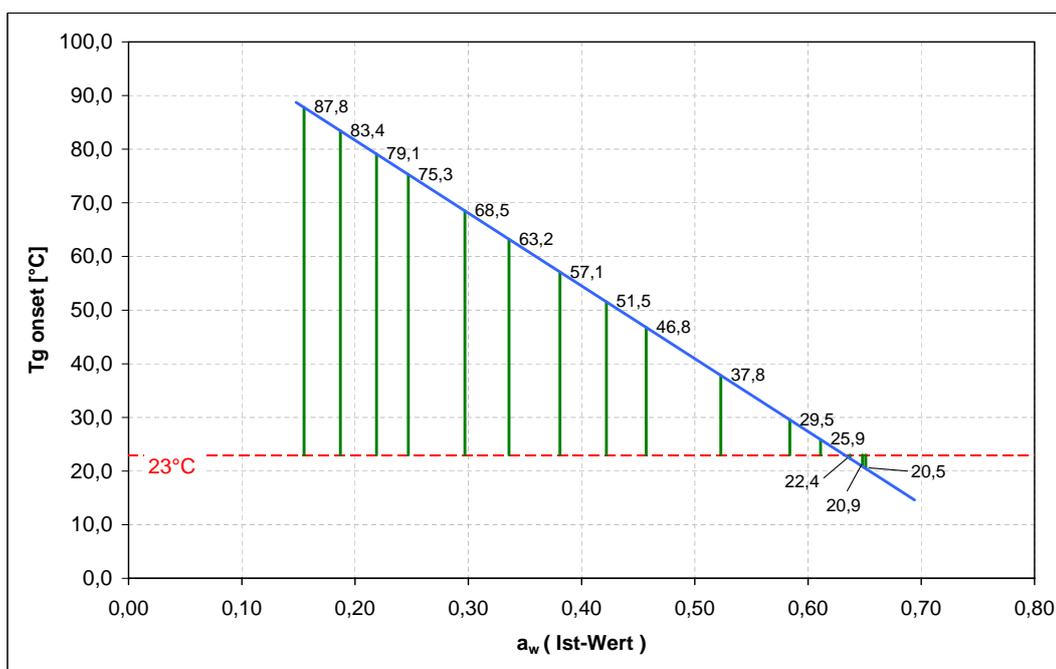
4.2 Einfluss der Feuchtigkeit (a_w -Wert) bei der Kompaktierung

Im Kapitel 4.1 wurde der Einfluss von Druck und Zeit bei der Kompaktierung beschrieben. Dabei wurde auch in einigen Versuchsreihen der Feuchtigkeitsgehalt der Pulver variiert. Die Ergebnisse zeigten, dass die Tablettenfestigkeit mit steigendem a_w -Wert zunimmt. Maltodextrin als amorphes Pulver weist einen Glasübergang auf und verändert sein viskoelastisches Verhalten mit steigender Feuchte. In den nachfolgenden Untersuchungen sollte der Einfluss der Feuchtigkeit in Abhängigkeit von der Glasübergangstemperatur beim Kompaktieren von Pulver näher betrachtet werden. Der a_w -Wert des Maltodextrins wurde in kleinen Schritten erhöht und das Pulver mit der hydraulischen Unterstempelpresse zu Tabletten verpresst. Die Erkenntnisse aus den vorangegangenen Untersuchungen wurden dabei berücksichtigt. So wurden alle Versuchsreihen mit einer konstanten Presskraft von 7 kN durchgeführt, was einem Pressdruck von 22,28 MPa auf der hydraulischen Unterstempelpresse entspricht, um keine zu hohe Tablettendichte zu erreichen wie in Kapitel 4.1.4.2 gezeigt. Desweiteren wurde die Stempelgeschwindigkeit ($\approx 0,100$ m/s) und die Gesamtbelastungszeit (≈ 180 ms) bei allen Versuchen konstant gehalten. Somit wurde sichergestellt, dass der einzige variierende Parameter innerhalb der Versuchsreihen der a_w -Wert der Pulver war.

Tabelle 4.3 und Abbildung 4.25 stellen die 15 einzelnen Versuchsreihen der Untersuchungen zum Einfluss der Feuchtigkeit in Abhängigkeit von der Glasübergangstemperatur dar. Die Temperaturdifferenz ΔT wurde dabei in kleinen, möglichst gleichmäßigen Schritten erniedrigt.

Tabelle 4.3: Tg-Werte und a_w -Werte der Versuchsreihe

Nr.	a_w -Wert bei 23°C	Temperatur T [°C]	Glasübergangstemperatur Tg [°C]	Δa_w -Wert	ΔT (Tg - T) [°C]
1	0,155	23,0	87,8	0	64,8
2	0,187	23,0	83,4	0,032	60,4
3	0,219	23,0	79,1	0,032	56,1
4	0,247	23,0	75,3	0,028	52,3
5	0,297	23,0	68,5	0,050	45,5
6	0,336	23,0	63,2	0,039	40,2
7	0,381	23,0	57,1	0,045	34,1
8	0,422	23,0	51,5	0,041	28,5
9	0,457	23,0	46,8	0,035	23,8
10	0,523	23,0	37,8	0,066	14,8
11	0,584	23,0	29,5	0,061	6,5
12	0,611	23,0	25,9	0,027	2,9
13	0,637	23,0	22,4	0,026	-0,6
14	0,648	23,0	20,9	0,011	-2,1
15	0,651	23,0	20,5	0,003	-2,5

**Abbildung 4.25: Tg- a_w -Diagramm für die Versuchsreihe**

4.2.1 Tablettenfestigkeit und elastische Rückdehnung

Abbildung 4.26 zeigt die aus zehn Tabletten gemittelten Tablettenfestigkeitswerte mit einem Vertrauensbereich von 95% für jede Versuchsreihe. Es ist deutlich ersichtlich, dass mit steigendem Feuchtegehalt bis zu einem a_w -Wert von 0,422 die Tablettenfestigkeit zunimmt. Ab einem a_w -Wert von 0,457 nimmt die Festigkeit der Tabletten signifikant ab und steigt mit höher werdenden a_w -Werten wieder an. Die Tablettenfestigkeiten der Tabletten, die mit einem a_w -Wert oberhalb der Glasübergangstemperatur (vgl. Abbildung 4.25) gepresst wurden, liegen signifikant höher als die Tabletten, die mit einem a_w -Wert unterhalb der Glasübergangstemperatur hergestellt wurden.

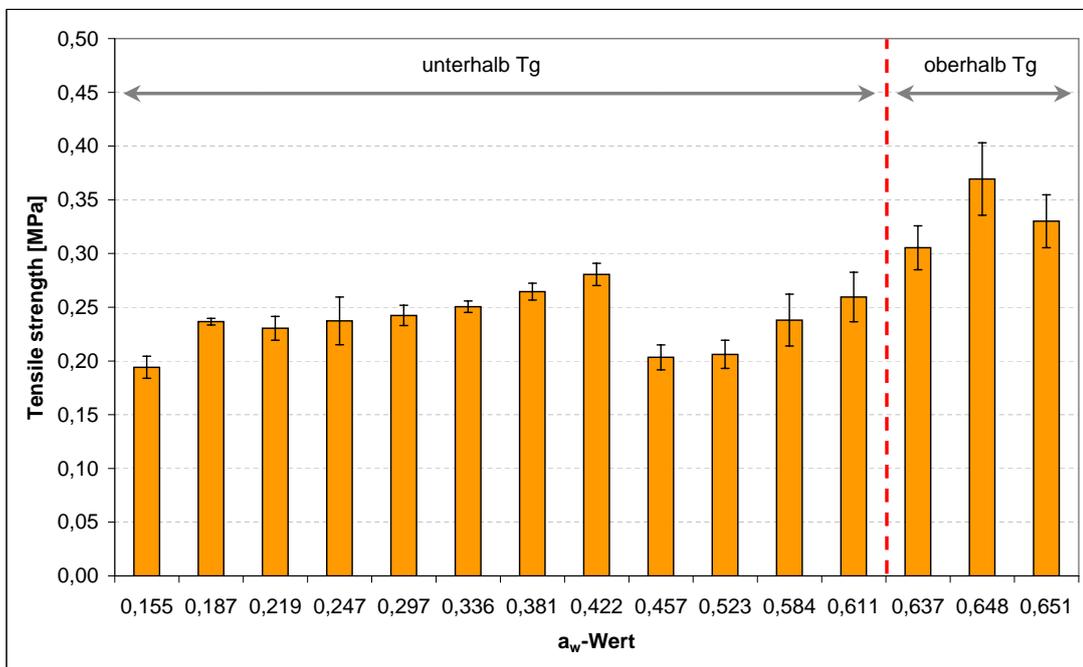


Abbildung 4.26: Tensile strength in Abhängigkeit vom a_w -Wert

Werden die elastischen Rückdehnungen in Abbildung 4.27 betrachtet, so zeigt sich, dass diese mit steigendem a_w -Wert unterhalb der Glasübergangstemperatur abnehmen (vgl. Ergebnisse aus Kapitel 4.1.3.1 und 4.1.4.1). Die Abnahme der Viskosität mit steigendem Feuchtegehalt bewirkt, dass neben den elastischen Deformationsprozessen vermehrt plastische Deformationsprozesse stattfinden. Ab einem a_w -Wert von 0,523 ist trotz steigender Tablettendichte (siehe Abbildung 4.28), keine Verringerung der elastischen Rückdehnung mehr ersichtlich. Vielmehr wird ein konstanter Wert für die elastische Rückdehnung erreicht, was darauf hindeutet, dass die plastische Deformation der Partikeln den elastischen Deformationen überlegen ist.

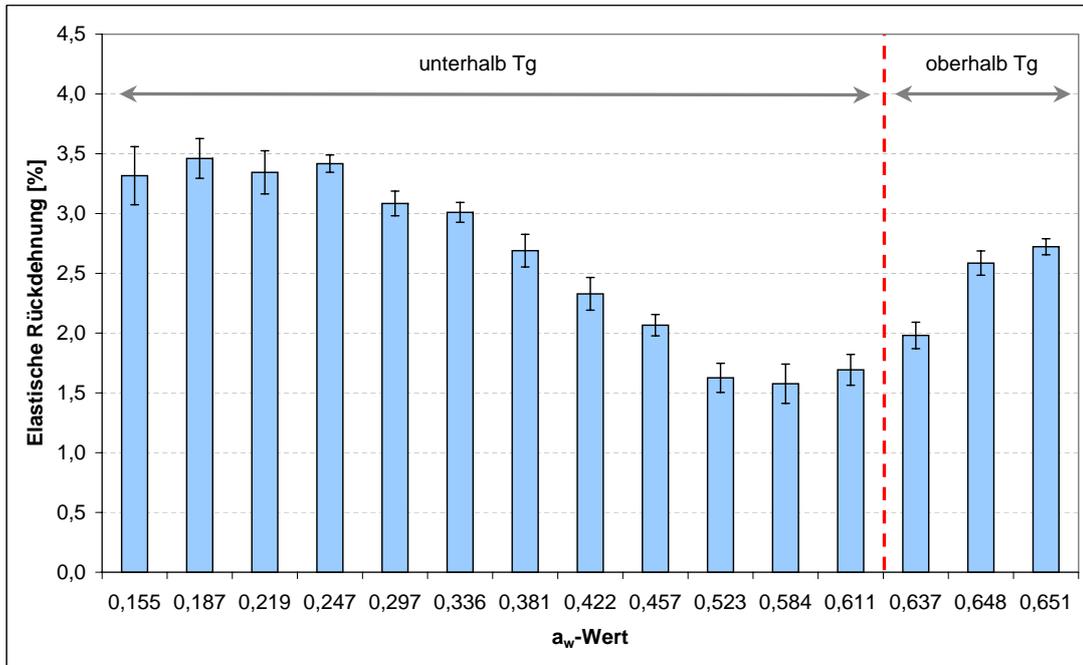


Abbildung 4.27: Elastische Rückdehnung in Abhängigkeit vom a_w -Wert

Ein konträrer Verlauf zeigt sich bei den Versuchsreihen, die oberhalb der Glasübergangstemperatur durchgeführt wurden. Hier scheint die elastische Komponente wieder mehr an Bedeutung zu gewinnen. Trotz gleichbleibender Tablettendichte (siehe Abbildung 4.28) erhöht sich die elastische Rückdehnung signifikant.

Der Einbruch der Tablettenfestigkeit bei einem a_w -Wert von 0,457 ist damit zu erklären, dass die vermehrt stattfindenden plastischen Deformationen (gezeigt durch die Abnahme der elastischen Rückdehnung) zunächst zu einer Verringerung der Tablettenfestigkeit führen. Bei niedrigen a_w -Werten (hohe Viskosität) liegen überwiegend spröde-brüchige Partikeln vor, die bei der Kompaktierung zusätzlich fragmentiert werden. Dadurch entstehen viele kleine Partikeln die wiederum viele interpartikuläre Bindungen eingehen können. Bei einem a_w -Wert von 0,457 scheint eine Grenze erreicht zu werden. Die abnehmende Viskosität bewirkt eine vermehrt auftretende plastische Verformung der Partikeln sowie eine Abnahme der Fragmentierung der Partikeln beim Kompaktieren. Es entstehen weniger interpartikuläre Bindungen was zu einer Reduzierung der Tablettenfestigkeit führt. Der Einfluß der plastischen Verformung kompensiert bei diesem a_w -Wert nicht die Fragmentierung, die bei niedrigeren a_w -Werten auftritt und führt nicht zu größeren Kontaktflächen, resultierend in größeren Bindungskräften. Mit steigendem a_w -Wert nimmt der plastische Effekt weiter zu, was in einer steigenden Tablettenfestigkeit in Abbildung 4.26 zu sehen ist. Diese Erklärung ist jedoch nur eine Hypothese, der in weiterführenden Untersuchungen näher nachgegangen werden müsste.

Frühere Untersuchungen von Beulshausen [2004] zur Charakterisierung der Tablettenfestigkeit mit steigendem a_w -Wert zeigen, dass die Tablettenfestigkeit stetig zunimmt und kein Einbruch nachgewiesen werden kann. Beulshausen untersuchte ebenfalls Maltodextrin 21 W bei drei unterschiedlichen a_w -Werten (0,08, 0,36 und 0,48). Die Untersuchungen bei nur drei verschiedenen a_w -Werten lassen keine allgemeingültige Aussage zu. Unberücksichtigt davon wurden die Untersuchungen bei einem Stempeldruck von 52 MPa und einer Gesamtbelastungszeit von 250 ms auf einer Rundläufertablettenpresse (Fette 1200i G) durchgeführt. Der mehr als doppelt so hohe Pressdruck sowie die längere Gesamtbelastungszeit haben auf die plastische Deformation einen entscheidenden Einfluss, wodurch die Ergebnisse auch nicht direkt miteinander verglichen werden können.

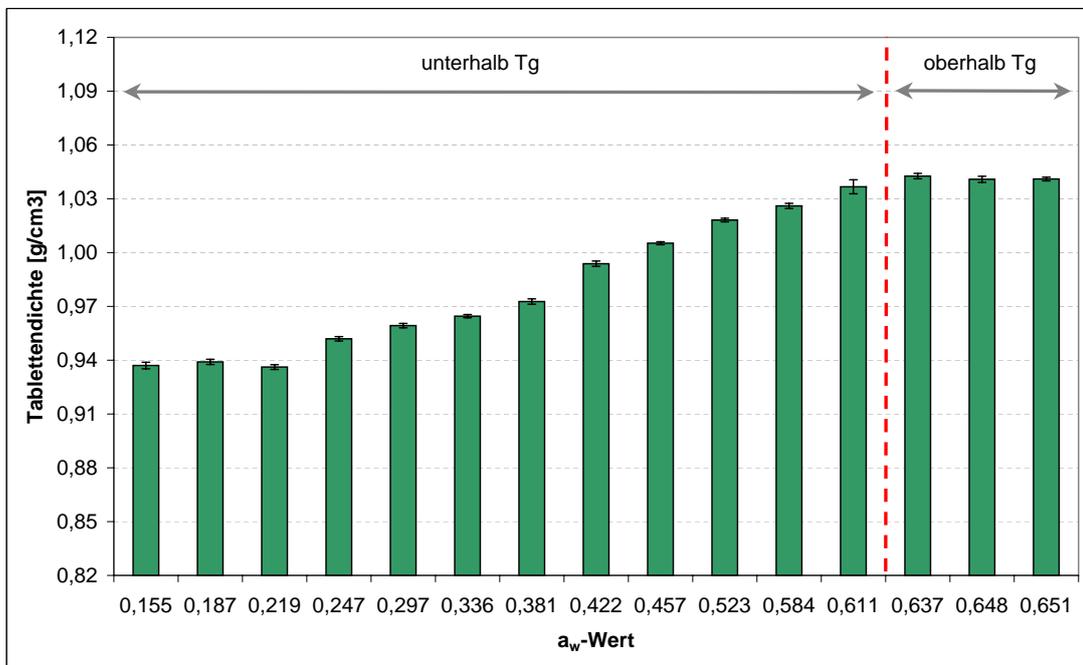


Abbildung 4.28: Tablettendichte in Abhängigkeit vom a_w -Wert

Die Änderungen der Tablettenfestigkeit und der elastischen Rückdehnung für die Versuchsreihen mit einem a_w -Wert oberhalb der Glasübergangstemperatur werden anhand nachfolgender REM-Aufnahmen erläutert.

4.2.2 REM-Aufnahmen von Bruch- und Oberflächen der hergestellten Tabletten

Abbildung 4.29 zeigt die Bruchfläche einer Tablette mit einem a_w -Wert von 0,179. Im Vergleich dazu zeigen Abbildungen 4.30, 4.31 und 4.32 die Bruchflächen der Tabletten, die oberhalb der Glasübergangstemperatur hergestellt wurden.

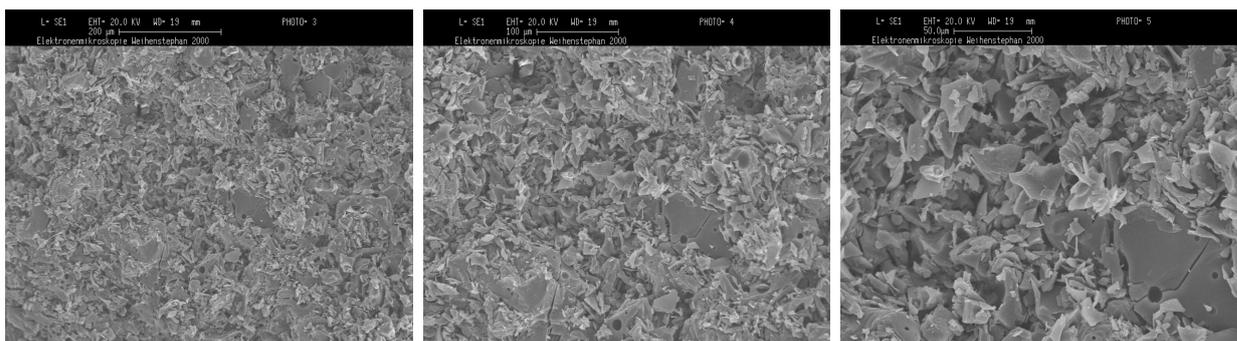


Abbildung 4.29: Bruchfläche bei a_w -Wert 0,179

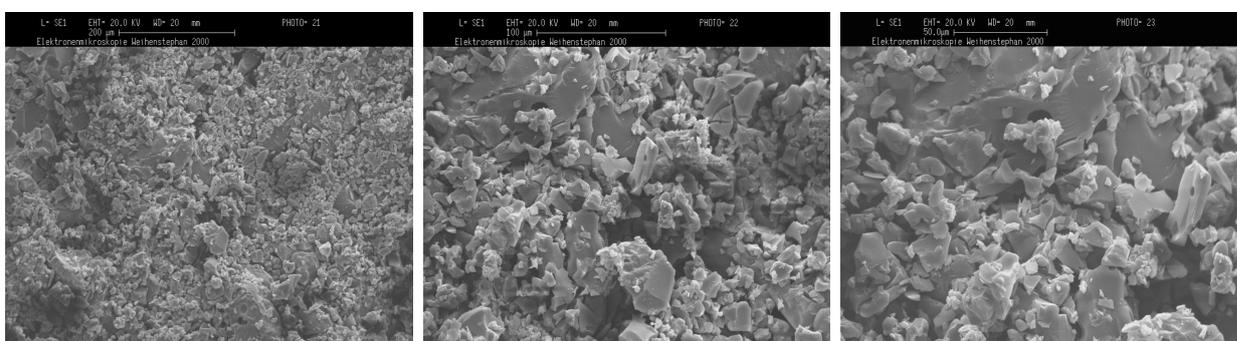


Abbildung 4.30: Bruchfläche bei a_w -Wert 0,637

Werden die Aufnahmen aus Abbildung 4.29 mit den Aufnahmen aus Abbildung 4.30 verglichen, so ist festzustellen, dass trotz der großen Differenz bezüglich des a_w -Wertes keine starken Veränderungen der Partikeln ersichtlich sind. Dies bestätigen die im vorausgegangen Kapitel getroffenen Aussagen, dass keine plastischen Deformationen innerhalb der Tablette stattfinden. Bei genauer Betrachtung der Aufnahmen ist zu erkennen, dass sich einige Partikeln bei einem a_w -Wert von 0,637 aneinanderlagern und nicht so scharfe Kanten aufweisen wie die Partikeln bei einem a_w -Wert von 0,179. Dies erhöht die Anzahl der Kontaktflächen, was sich in einer höheren Tablettenfestigkeit widerspiegelt (vgl. Abbildung 4.26).

Erste deutliche Unterschiede sind in Abbildung 4.31 zu sehen. Die Bruchfläche der Tablette mit einem a_w -Wert von 0,648 zeigt eine deutliche Abweichung von den zuvor gezeigten Bruchflächen. Die einzelnen kleinen Partikeln sind zu größeren Partikeln verschmolzen und weisen keine scharfen Kanten mehr auf. Vielmehr ist die Partikelform gekennzeichnet durch runde bzw. ovale Gestalt.

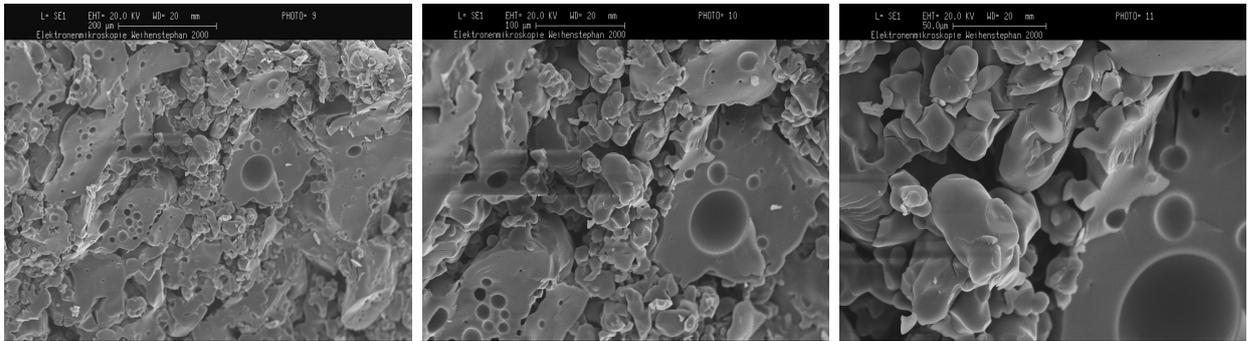


Abbildung 4.31: Bruchfläche bei a_w -Wert 0,648

Die in Abbildung 4.26 gezeigte weitere Erhöhung der Tablettenfestigkeit lässt sich in den Aufnahmen deutlich erkennen. Bei den Tabletten, die unterhalb der Glasübergangstemperatur gepresst wurden, zeigte sich in den Aufnahmen der Bruchflächen, dass nur die interpartikulären Bindungen gebrochen wurden. Die Aufnahmen in Abbildung 4.31 sowie in Abbildung 4.32 für Tabletten die ca. 2°C über der Glasübergangstemperatur lagen zeigen, dass sowohl interpartikuläre Bindungen als auch die entstandenen größeren Partikeln gebrochen wurden. Es sind deutlich halbierte Partikeln zu sehen, wodurch sich die Kontaktfläche in der Bruchzone entscheidend erhöht hat.

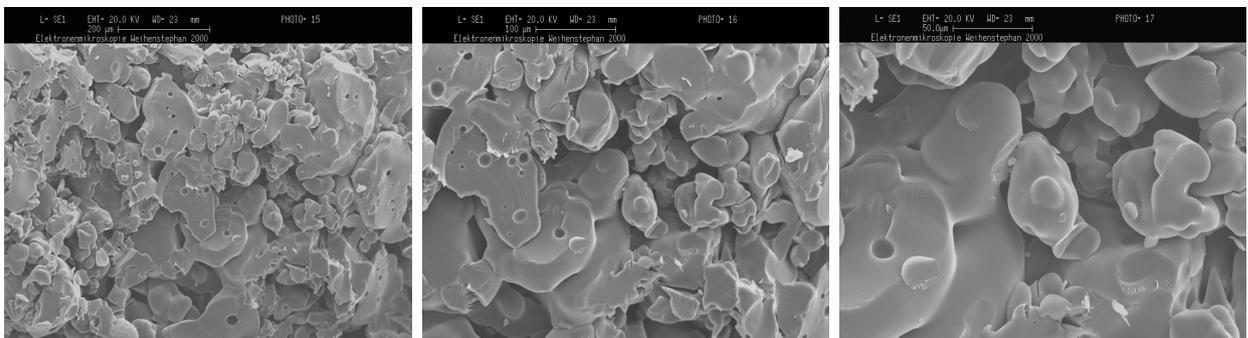


Abbildung 4.32: Bruchfläche bei a_w -Wert 0,651

Auch die Erhöhung der elastischen Rückdehnung (vgl. Abbildung 4.27) der Tabletten, die oberhalb der Glasübergangstemperatur hergestellt wurden, ist mit Hilfe der REM-Aufnahmen

zu erklären. Auf Grund der größeren Partikeln entstanden mehr Zwischenräume ($\hat{=}$ größere Porosität) als bei den Pulvern, die unterhalb der Glasübergangstemperatur verpresst wurden. Diese Zwischenräume bewirken die größere elastische Rückdehnung der Tabletten. Eine plastische Deformation der Partikeln innerhalb der Tabletten konnte auch bei den Bruchflächen in Abbildung 4.31 und 4.32 nicht festgestellt werden.

Abbildung 4.33, 4.34, 4.35 und 4.36 zeigen die zu den Tablettenbruchflächen (Abbildung 4.29 - 4.32) dazugehörigen REM-Aufnahmen der Tablettenoberflächen.

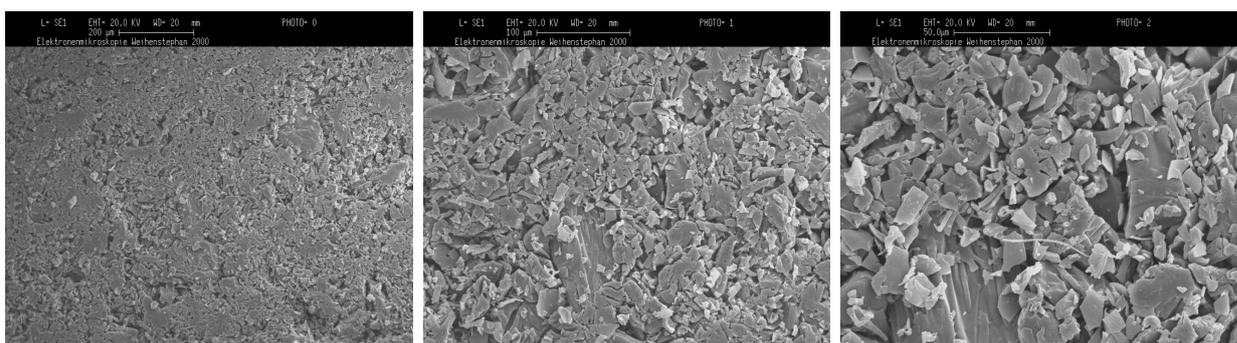


Abbildung 4.33: Oberfläche bei a_w -Wert 0,179

Die in Abbildung 4.33 dargestellte Oberfläche einer Tablette mit einem a_w -Wert von 0,179 zeigt keine plastische Deformation der Partikeln. Abbildung 4.34 zeigt verstärkt eine Abplattung sowie Verschmelzung einzelner Partikeln.

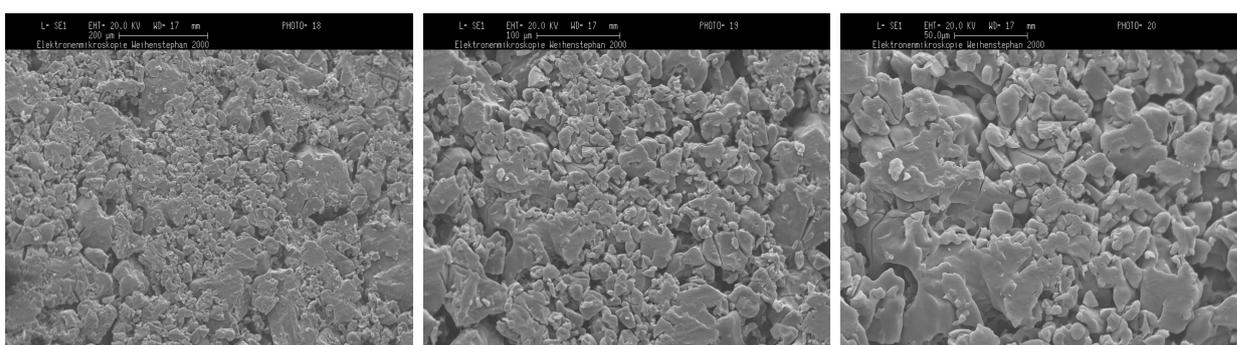


Abbildung 4.34: Oberfläche bei a_w -Wert 0,637

Die Vergrößerung sowie die Formänderung der Partikeln und die vermehrt auftretende plastische Deformation an der Tablettenoberfläche ist in Abbildung 4.35 und 4.36 für Tabletten mit einem a_w -Wert von 0,648 und 0,651 deutlich zu erkennen.

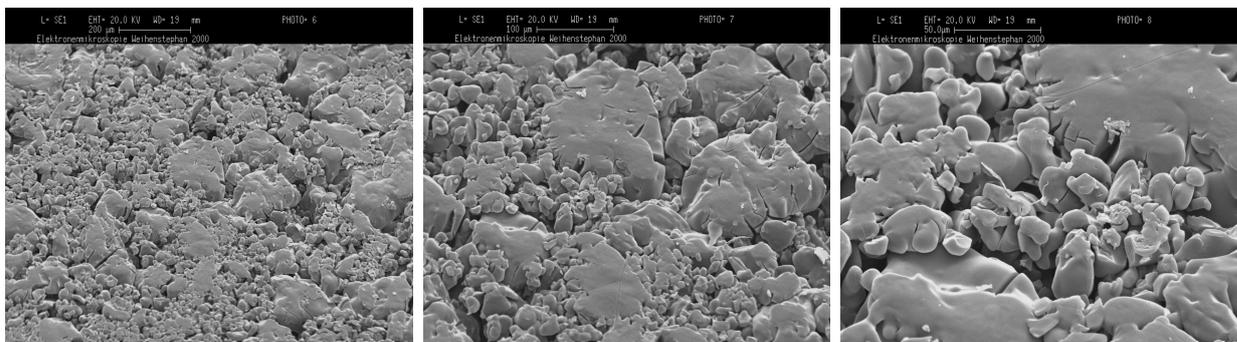


Abbildung 4.35: Oberfläche bei a_w -Wert 0,648

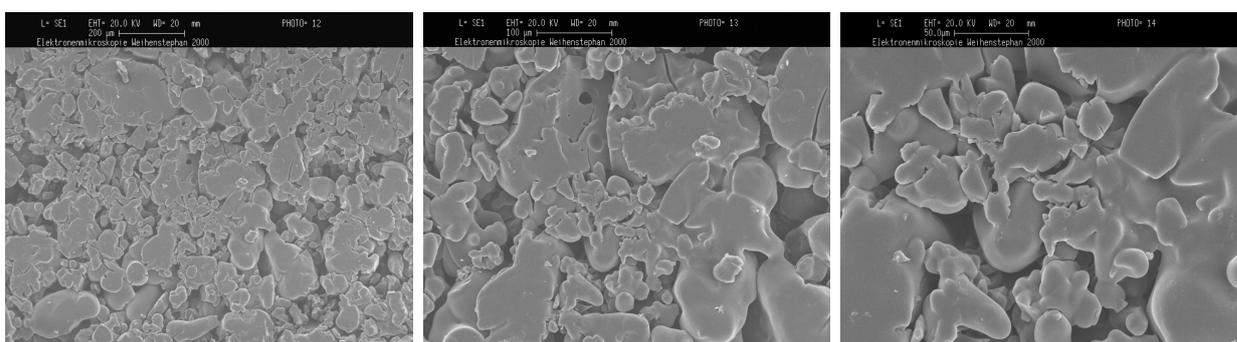


Abbildung 4.36: Oberfläche bei a_w -Wert 0,651

4.2.3 Kraft-Zeit-Verläufe in Abhängigkeit vom a_w -Wert

In Kapitel 4.1.4.2 wurden bereits Kraft-Zeit-Verläufe der Rundläufertablettenpresse Fette 1200i G dargestellt. Die Ergebnisse zeigen bei Pulvern höherer Feuchtigkeit einen Kraftabfall während der Druckhaltezeit und lassen auf vermehrt auftretende plastische Deformation schließen. Die messtechnische Ausstattung der hydraulischen Unterstempel- und Matrizenwandensensoren ermöglicht sowohl für den Unterstempel als auch für die einzelnen Matrizenwandensensoren ebenfalls die Auswertung der Kraft-Zeit-Verläufe.

Abbildung 4.37 zeigt die Kraft-Zeit-Verläufe aller 15 Versuchsreihen in Abhängigkeit vom a_w -Wert. Die Kurvenverläufe der einzelnen a_w -Werte stellen den mittleren Kurvenverlauf aus jeweils zehn Messreihen dar. Bereits in der Übersichtsdarstellung ist deutlich zu erkennen, dass mit steigendem a_w -Wert ein stärkerer Kräfteabfall während der Druckhaltezeit stattfindet (vgl. Abbildung 2.39 in Kapitel 2.3.2).

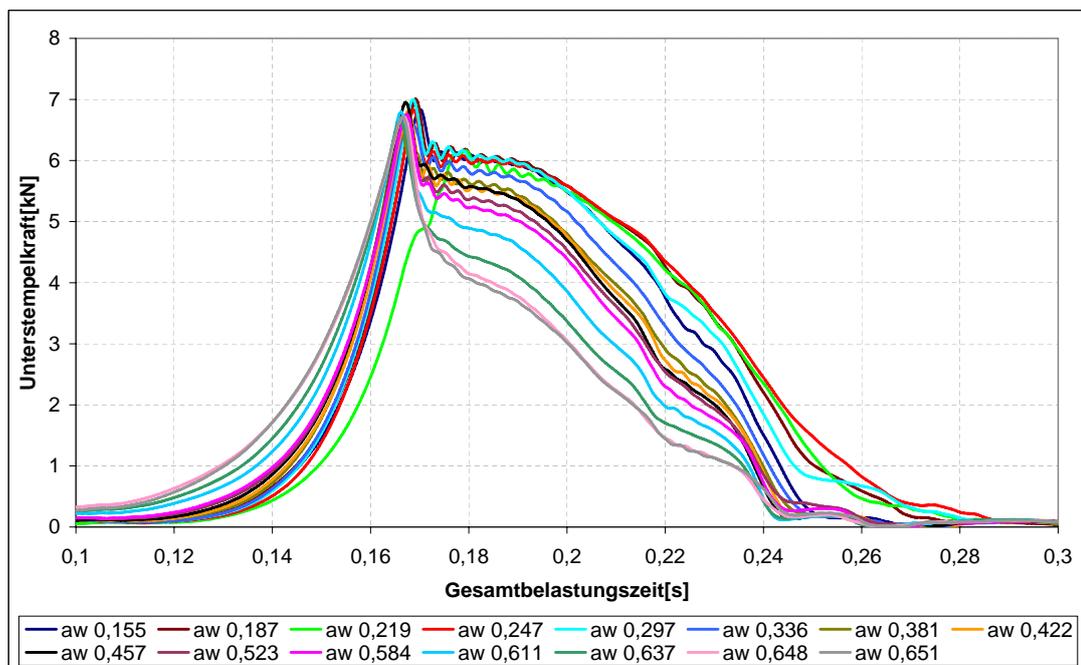


Abbildung 4.37: Kraft-Zeit-Verlauf bei unterschiedlichen a_w -Werten

Zur Verdeutlichung der in Abbildung 4.37 gezeigten Ergebnisse werden in den Abbildungen 4.38, 4.39 und 4.40 bestimmte a_w -Wert-Bereiche getrennt voneinander abgebildet.

Abbildung 4.38 zeigt die Kraft-Zeit-Verläufe für einen a_w -Wert-Bereich von 0,155 bis 0,257. Es ist sehr deutlich zu erkennen, dass bei diesen niedrigen Feuchtegehalten kein Kräfteabfall während der Druckhaltezeit auftritt. Dies bestätigt, wie schon in Abbildung 4.20 und 4.21 gezeigt, dass sich das Maltodextrin bei geringen Feuchtegehalten überwiegend elastisch verhält. Bestätigt wird dies auch durch die gleichbleibend hohe elastische Rückdehnung der Tabletten in diesem a_w -Wert-Bereich (vgl. Abbildung 4.27).

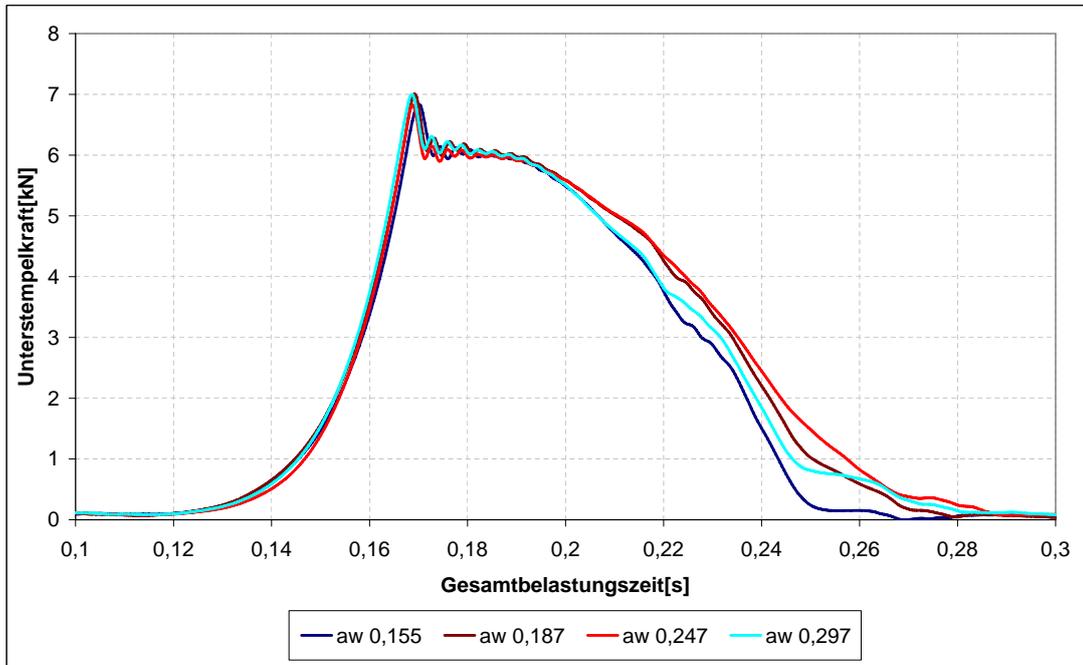


Abbildung 4.38: Kraft-Zeit-Verlauf bei a_w -Werten zwischen 0,155 und 0,297

Die Kraft-Zeit-Verläufe in Abbildung 4.39 für a_w -Werte zwischen 0,381 und 0,584 zeigen hingegen einen Kräfteabfall während der Druckhaltezeit. Die Abnahme der Kraft ist dabei umso größer, je höher der a_w -Wert ist. Die Kurvenverläufe verdeutlichen, dass mit zunehmendem Feuchtegehalt des Pulvers verstärkt plastische Deformationsprozesse auftreten und das Maltodextrin sein elastisches Verhalten verringert. Die fallenden Werte für die elastische Rückdehnung (vgl. Abbildung 4.27) in diesem a_w -Wert-Bereich bestätigen das Ergebnis.

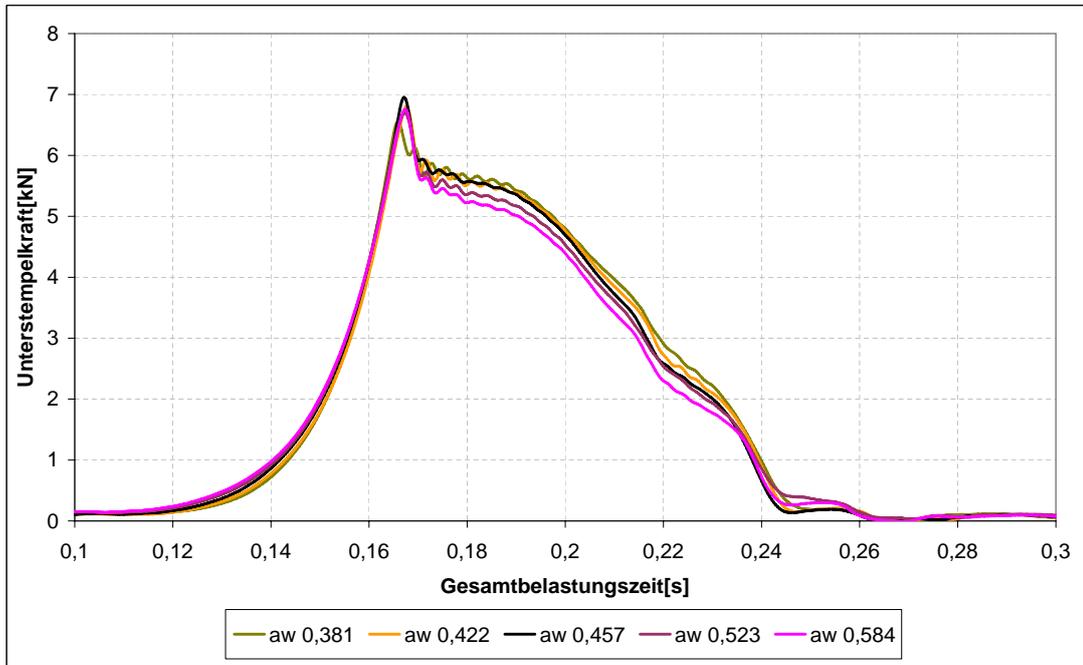


Abbildung 4.39: Kraft-Zeit-Verlauf bei a_w -Werten zwischen 0,381 und 0,584

Mit weiter zunehmendem a_w -Wert wird der Kräfteabfall während der Druckhaltezeit noch deutlicher wie Abbildung 4.40 für einen a_w -Wert-Bereich von 0,611 bis 0,651 zeigt.

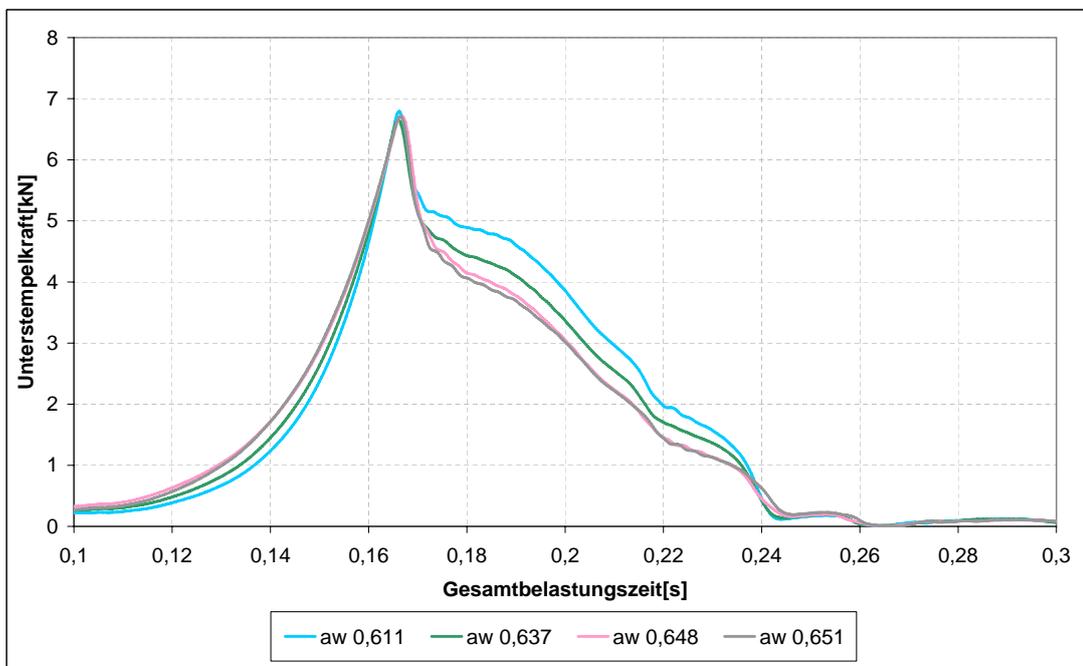


Abbildung 4.40: Kraft-Zeit-Verlauf bei a_w -Werten zwischen 0,611 und 0,651

Besonders stark fällt der Kräfteabfall bei den Versuchsreihen aus, die sehr nah an der Glasübergangstemperatur (a_w -Wert = 0,637) oder bereits darüber liegen (a_w -Wert = 0,648 und a_w -Wert = 0,651). Ein Vergleich mit den Werten der elastischen Rückdehnung kann hier nicht angestellt werden, da sich die Pulvereigenschaften zu stark verändert haben. Dies zeigen auch die REM-Aufnahmen im vorangehenden Kapitel.

4.2.4 Ausstoßkräfte und remanente Radialspannungen der hergestellten Tabletten

Das elastische bzw. plastische Verhalten der Tabletten oberhalb des Glasübergangs ist grundlegend anders als das Verhalten der Tabletten, die unterhalb der Glasübergangstemperatur hergestellt wurden. Die Auswertung der aufgezeichneten Ausstoßkräfte und remanenten Radialspannungen sollen dazu beitragen, die ablaufenden Vorgänge beim Kompaktieren oberhalb der Glasübergangstemperatur näher zu beschreiben.

Abbildung 4.41 zeigt die mittleren Ausstoßkräfte aller Versuchsreihen mit einem Vertrauensbereich von 95%.

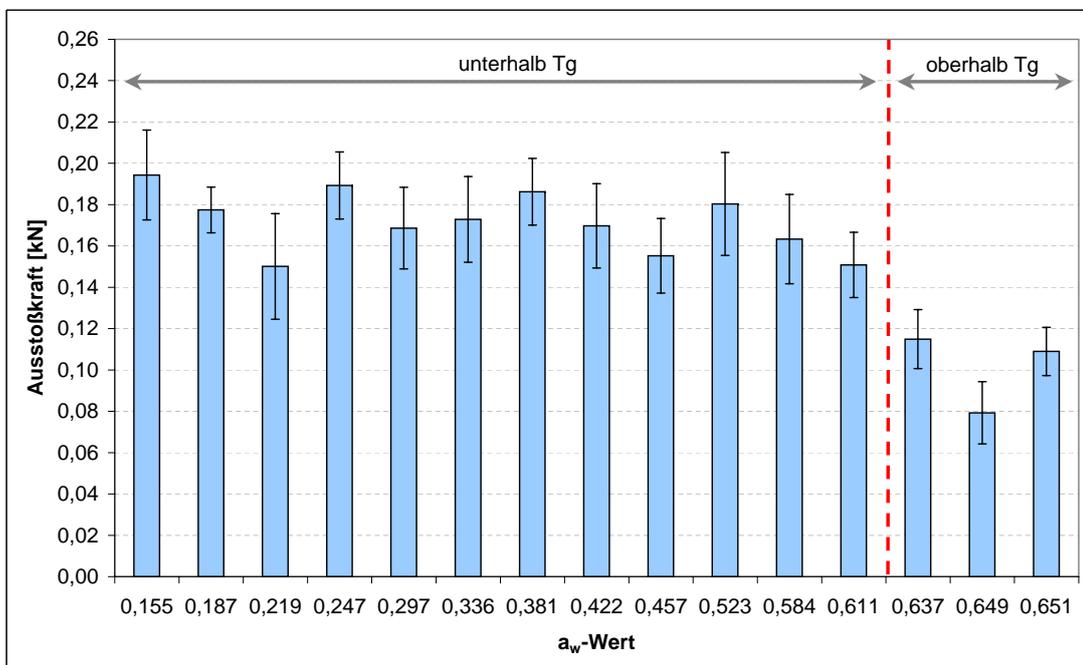


Abbildung 4.41: Ausstoßkräfte in Abhängigkeit vom a_w -Wert

Die Höhe der Ausstoßkraft hängt neben den remanenten Radialspannungen entscheidend von der Matrizenschmierung ab. Während der gesamten Versuchsreihe wurde darauf geachtet, eine gleichmäßige Schmierung der Matrizenwand zu gewährleisten. Sobald die Ausstoßkraft einen Wert von 200 N überschritten hat, wird die Matrize neu geschmiert, spätestens nach jeder 4. gepressten Tablette. Die Schmierung erfolgt mittels Bestäuben der Matrizenwand mit Magnesiumstearat durch einen Pinsel. Überschüssiges Schmiermittel wird vor dem Befüllen der Matrize mit Maltodextrin entfernt. Somit soll annähernd gewährleistet werden, dass die Ausstoßkraft nicht von der Schmiermittelmenge abhängt, was jedoch nicht sicher bestätigt werden kann.

Die Versuchsreihen unterhalb der Glasübergangstemperatur zeigen keine signifikanten Unterschiede in der Ausstoßkraft über den gesamten Bereich. Hier scheint die Problematik der Matrizenschmierung einen größeren Einfluss zu haben. Jedoch ist in Abbildung 4.41 auch deutlich zu erkennen, dass die Ausstoßkräfte der Tabletten, die oberhalb der Glasübergangstemperatur hergestellt wurden, signifikant niedriger sind, als die Tabletten mit einem niedrigeren a_w -Wert. Dieses Ergebnis deutet darauf hin, dass die remanenten Radialspannungen bei Tabletten, die oberhalb des Glasübergangs hergestellt wurden, deutlich niedriger sind, als bei Tabletten, die unterhalb der Glasübergangstemperatur hergestellt wurden, was wiederum eine Änderung des viskoelastischen Verhaltens bestätigen würde.

Die Instrumentierung der hydraulischen Unterstempelpresse ermöglicht neben den Betrachtungen der axialen Kräfte beim Kompaktieren auch die Aufnahme der radialen Spannungen während des Kompaktierprozesses, sowie vor und während des Ausstoßes. Abbildung 4.42 zeigt die mit dem Matrizensensor aufgenommenen Signale unmittelbar vor dem Ausstoß der Tabletten aus der Matrize. Die Balken im Diagramm stellen den Mittelwert aus zehn Versuchsreihen mit einem Vertrauensbereich von 95% dar.

Die „Wand 4“-Signale der DMS-Kette 4 sind im a_w -Wert-Bereich bis 0,457 zu vernachlässigen. Eine fehlerhafte Nullstellung der DMS Kette 4 führte hier zu falschen Ergebnissen. Auf Grund der Tablettenhöhe von ca. 10 mm waren nur die DMS-Ketten 1-4 direkt belastet. Alle übrigen gemessenen Signale der DMS-Ketten 5, 6 und 7 resultieren aus der Durchbiegung der Matrize.

Die remanenten Radialspannungen der Versuchsreihen unterhalb der Glasübergangstemperatur zeigen einen ähnlichen Verlauf wie die elastischen Rückdehnungen in Abbildung 4.27. Bis zu einem a_w -Wert von 0,247 bleiben die remanenten Radialspannungen konstant und nehmen im weiteren Verlauf bis zu einem a_w -Wert von 0,584 linear ab. Bei einem a_w -Wert von 0,611 ist

ein sehr deutlicher Einbruch der remanenten Radialspannung zu erkennen. Ab diesem Wert zeigen die Signale des Matrizensensors signifikant niedrigere Werte, als bei den Versuchsreihen mit niedrigeren Feuchtegehalten. Die verbleibende Radialspannung nimmt bei den Tabletten oberhalb des Glasübergangs im Vergleich zu den übrigen Versuchsreihen weiter signifikant ab.

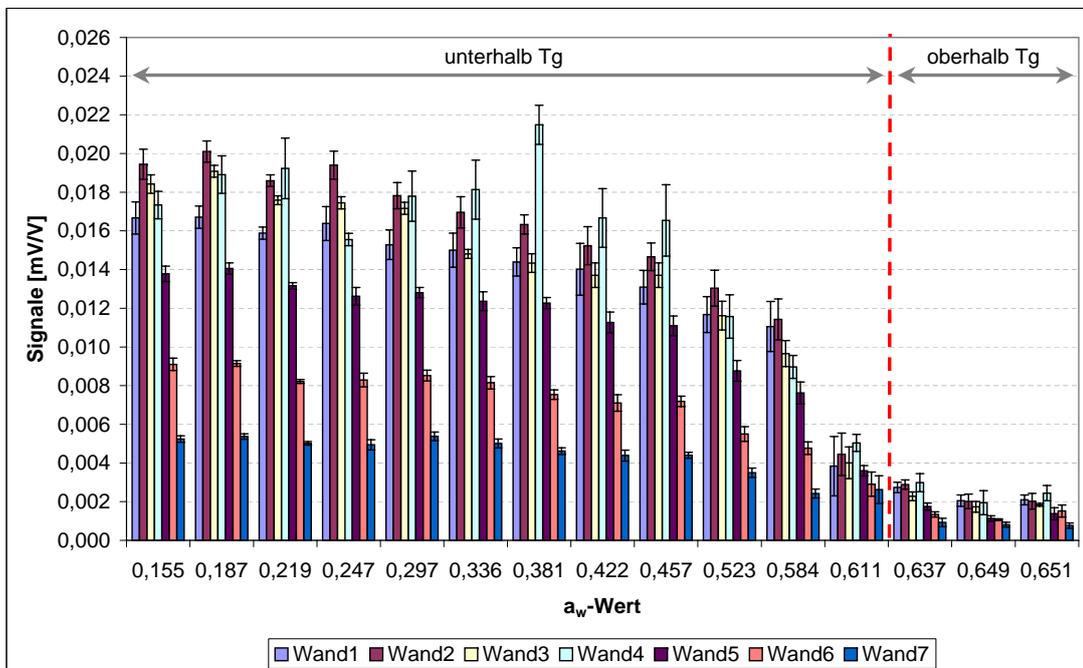


Abbildung 4.42: Remanente Wandsignale in Abhängigkeit vom a_w -Wert

Die kaum messbaren Wandsignale der Tabletten mit einem a_w -Wert größer 0,611 bestätigen die Ergebnisse der niedrigeren Ausstoßkraft aus Abbildung 4.41. Die steigende elastische Rückdehnung der Tabletten oberhalb des Glasübergangs ist nach Betrachtung aller gezeigten Ergebnisse damit zu erklären, dass die in der Tablette gespeicherten Energien direkt nach der Kompaktierung komplett in axialer Richtung abgebaut werden. Daraus resultieren höhere Steghöhen der Tabletten, was zu einer größeren elastischen Rückdehnung führt. In der Tablette bleiben minimale Spannungen vorhanden, die verhindern, dass die Tablette aus dem Presskanal fällt.

5 Kalibrierung der Sensoren und Modellierung der Matrizendurchbiegung

5.1 Kalibrierung der Sensoren

Eine Kalibrierung der Kraftsensoren an Unter- und Oberstempel sowie an der Matrize ist essentiell, um die aufgezeichneten Ergebnisse nicht nur qualitativ darstellen zu können.

Für jeden Sensor wurden Kalibriermethoden entwickelt und überprüft, die in Kapitel 3.1.2.1 für Unter- und Oberstempel sowie in Kapitel 3.1.2.2 für die Matrize genau beschrieben und näher erläutert sind. Die Ergebnisse der Kalibrierung wurden anschließend mit statistischen Methoden ausgewertet und jeweils eine Kalibrierfunktion erstellt. Hiermit wurde ermöglicht unabhängige Messungen miteinander zu vergleichen.

Die Kalibrierung des Unter- und Oberstempels nach der in Kapitel 3.1.2.1 beschriebenen Methode stellt auf Grund der direkten Krafteinleitung senkrecht zur Stempelfläche keine Schwierigkeit dar und ist eine einfach durchzuführende Standardmethode. Die Ergebnisse sind im nachfolgenden Kapitel 5.1.1 dargestellt.

Der Grundgedanke einen Matrizensensor zu entwickeln war, die Spannungsverteilung in einer Tablette direkt messen zu können. Der Sensor sollte ermöglichen radiale Kräfte in unterschiedlichen Höhen zu messen. Mit den gewonnenen Ergebnissen können anschließend weitere wichtige Parameter (z.B. Horizontallastverhältnis über die Tablettenhöhe) berechnet werden. Möglichkeiten zur Messung des mittleren Matrizenwanddruckes wurden bereits von mehreren Wissenschaftlern mit verschiedenen Methoden erfolgreich ausgearbeitet (vgl. Kapitel 2.4.2).

Abbildung 5.1 stellt den Grundgedanken skizziert dar.

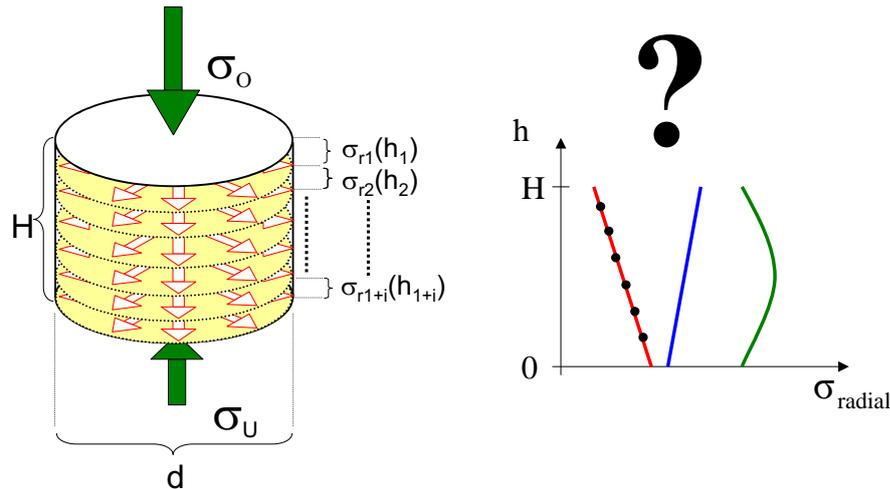


Abbildung 5.1: Mögliche radiale Spannungsverteilung in einer Tablette

Die in Kapitel 3.1.2.2 dargestellte Kalibriermethode des Matrizensensors sollte ermöglichen, die bisher summarisch ermittelten Gesamtkräfte durch direkt gemessene Einzelkräfte in unterschiedlichen Höhen zu ersetzen. Eine Schwierigkeit bei dieser Kalibriermethode ist, dass die senkrecht aufgebrachte Kraft über ein Übertragungsmedium auf die Wand übertragen werden muss. Die Kalibriermethode konnte jedoch soweit entwickelt werden, dass reproduzierbare Kalibrierungen durchgeführt werden konnten. Kapitel 5.1.2 zeigt die Kalibrationsergebnisse.

5.1.1 Kalibrierung der Unter- und Oberstempelkraft

Die Ergebnisse der Kalibrierung für die Ober- und Unterstempelkraft sind in Abbildung 5.2 und Abbildung 5.3 dargestellt. Beide Diagramme bestätigen den linearen Zusammenhang zwischen Messsignal und Ausgangsgröße. Das Bestimmtheitsmaß von eins und der sehr enge Vertrauensbereich, berechnet mit einer Irrtumswahrscheinlichkeit von 0,1%, zeigen die sehr gute Qualität der Kalibrierung.

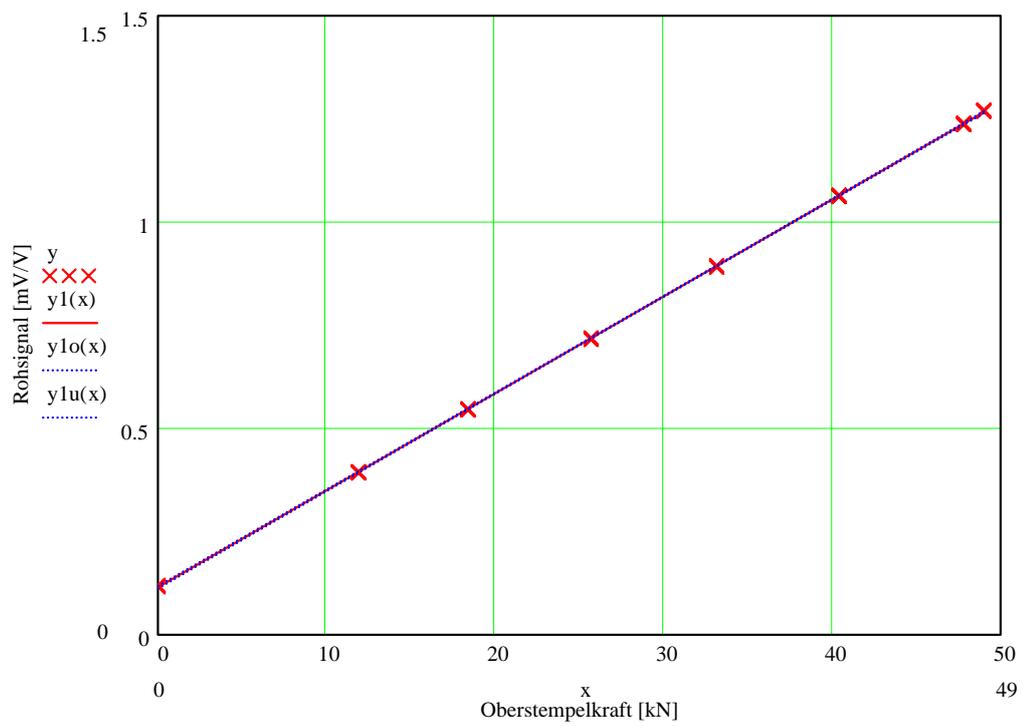


Abbildung 5.2: Kalibrierfunktion der Oberstempelkraft mit linearer Regression

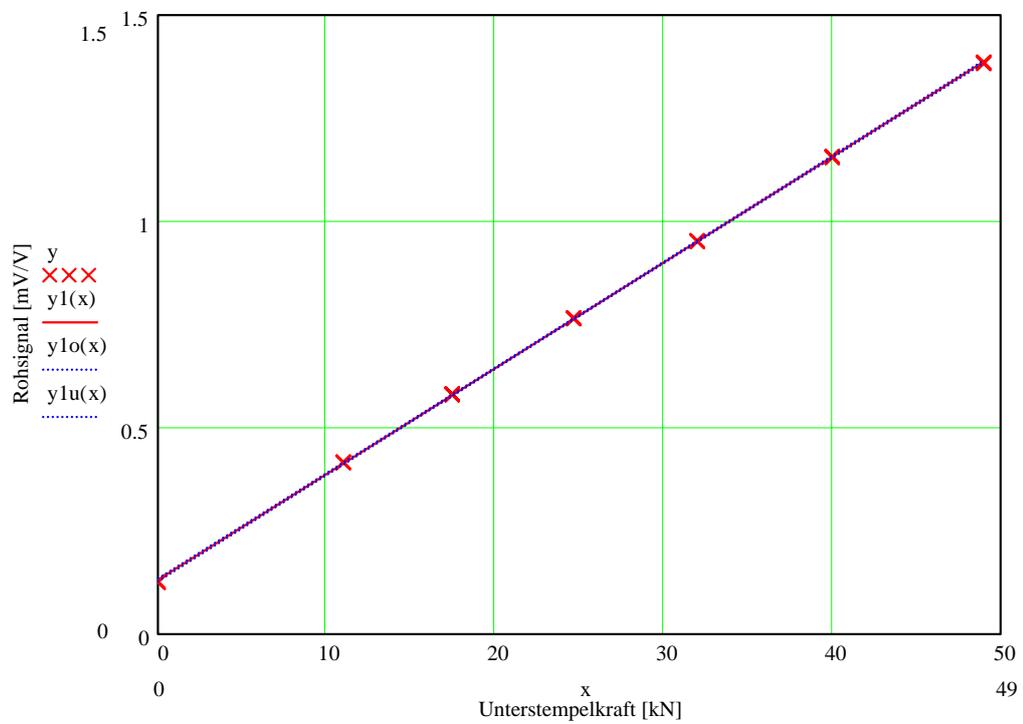


Abbildung 5.3: Kalibrierfunktion der Unterstempelkraft mit linearer Regression

Tabelle 5.1 zeigt die Kalibrierfunktion und Analysenfunktion der linearen Regression von Ober- und Unterstempel.

Tabelle 5.1: Kalibrierungsergebnisse Ober- und Unterstempel

	Oberstempel	Unterstempel
Kalibrierfunktion	$y_K(x) = 0,02349x + 0,11504$	$y_K(x) = 0,02562x + 0,13134$
Analysefunktion	$y_A(x) = 42,575x - 4,898$	$y_A(x) = 39,026x - 5,126$
Bestimmtheitsmaß	$B = 1,000$	$B = 1,000$

5.1.2 Kalibrierung der Matrizenwandkraft

5.1.2.1 Korrekturfunktion Oberstempelversatz

Vor der Kalibrierung der einzelnen DMS-Ketten auf der Matrizenwand wurde auf Grund der notwendigen exakten Bestimmung der Oberstempelposition eine Korrekturfunktion für diese bestimmt. Die Korrekturfunktion für den Oberstempelversatz, der durch die angreifende Kraft am Oberstempel während einer Pressung hervorgerufen wird, ist in Abbildung 5.4 dargestellt. Die Regressionsgerade wurde mit einem Vertrauensbereich von 99,9% ermittelt.

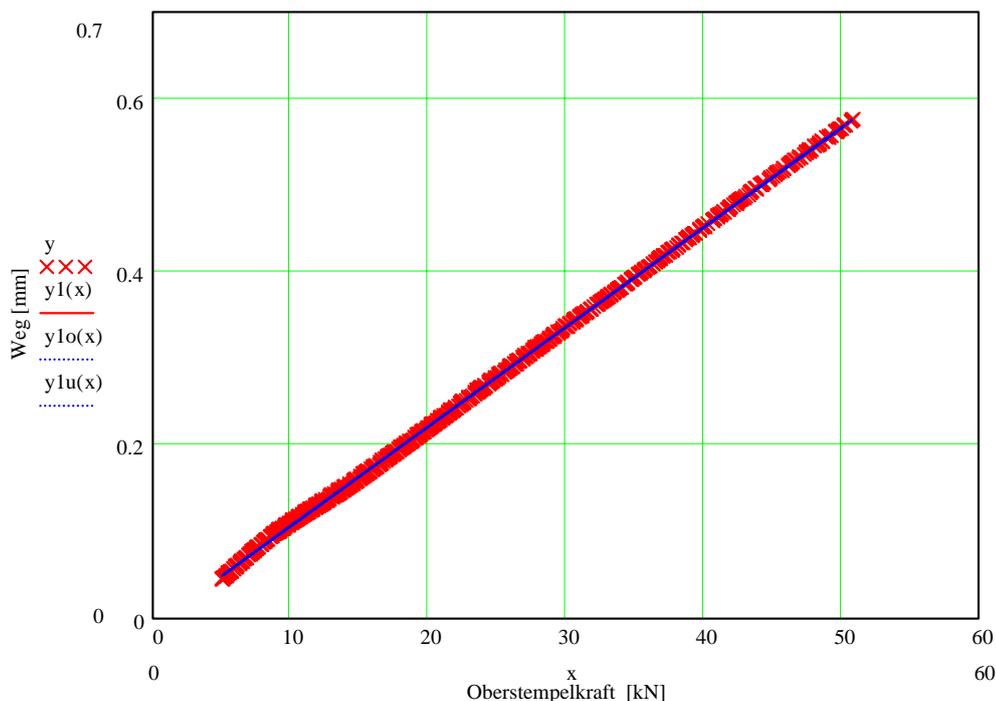


Abbildung 5.4: Regressionsgerade der Korrekturfunktion für die Oberstempelposition

Angaben zur Kalibrierung:

Steigung: $b = 0,0114852 \text{ mm/KN}$

Achsenabschnitt: $k = 8,276049 \text{ E-3 mm}$

Bestimmtheitsmaß: $B = 0,9998$

Vertrauensbereich: $p = 0,999$

Die positiv aufgezeichneten Messwerte des inkrementellen Wegsensors in Abhängigkeit von der Oberstempelkraft (rot dargestellte Kreuze) ergeben die Kalibrierfunktion, mit der die Oberstempelposition korrigiert werden muss. Daraus ergeben sich bei der weiteren Auswertung exakte Werte für die Oberstempelposition, den Stempelweg, die Stempelgeschwindigkeit und die Tablettenhöhe. Die Kalibriergerade zeigt einen engen Vertrauensbereich von 99,9% (blaue Kurve) und Linearität ($B = 0,9998$).

5.1.2.2 Kalibrierung mittels Flächenlast

Die Kalibrierung mittels Flächenlast stellt den ersten Schritt der Matrizenkalibrierung dar. Die Anzahl der belasteten DMS-Brücken wurde schrittweise erhöht, bis alle sieben applizierten DMS-Brücken belastet waren. Für jede Wasserhöhe wurde in 3 Kalibrierdurchgängen die jeweilige Kalibriergerade ermittelt und mittels linearer Regression ausgewertet. Auf Grund der großen Anzahl von Kalibrierfunktionen zeigen Abbildung 5.5 und Abbildung 5.6 beispielhaft die aus der linearen Regression ermittelten Kalibrierfunktionen zweier Wasserhöhen. Die Daten der statistischen Auswertung wurden für jede Wasserhöhe in 3 Kalibrierdurchgängen ermittelt.

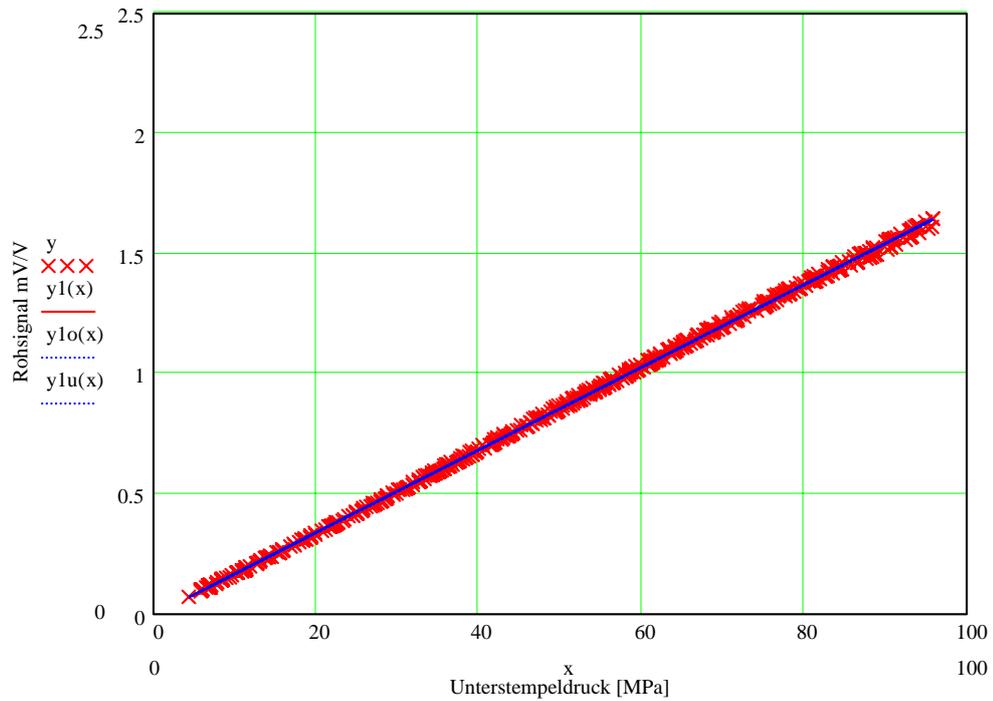


Abbildung 5.5: Kalibrierfunktion DMS-Reihe 1 bei einer Wasserhöhe von 2,94 mm

Angaben zur Kalibrierung:

Steigung: $b = 0,0171988 \text{ mV}/(\text{V}\cdot\text{MPa})$

Achsenabschnitt: $k = -4,169 \text{ E-}3 \text{ mV}/\text{V}$

Bestimmtheitsmaß: $B = 0,9996$

Vertrauensbereich: $p = 0,999$

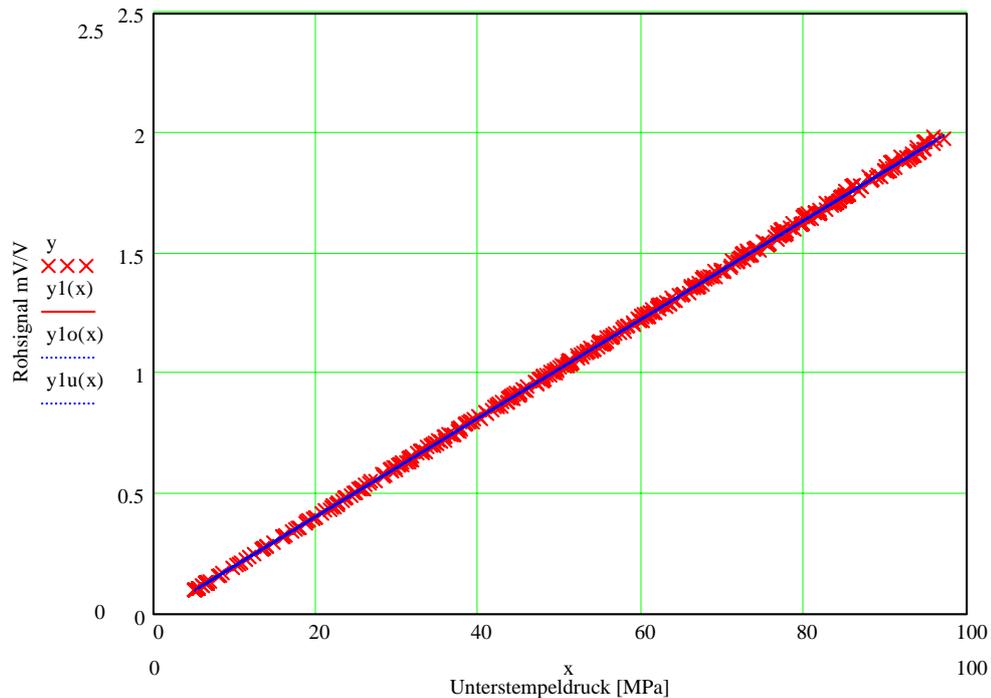


Abbildung 5.6: Kalibrierfunktion DMS-Reihe 1 bei einer Wasserhöhe von 15,81 mm

Angaben zur Kalibrierung:

Steigung: $b = 0,0205501 \text{ mV}/(\text{V} \cdot \text{MPa})$

Achsenabschnitt: $k = -4,083 \text{ E-}3 \text{ mV}/\text{V}$

Bestimmtheitsmaß: $B = 0,9998$

Vertrauensbereich: $p = 0,999$

Die aus den Messwerten ermittelten Kalibrierfunktionen aller Kalibrierhöhen zeigen ebenso wie die beispielhaft dargestellten Kalibrierfunktionen (Abbildung 5.5 und 5.6) einen geringen Nullpunktversatz, Linearität (Bestimmtheitsmaß $B > 0,99$) und einen sehr engen Vertrauensbereich bei einem Vertrauensintervall von 99,9%. Die Nullpunktverschiebung der Geraden bleibt unberücksichtigt, da eine Kalibrierung durchgeführt wurde und nicht die absoluten Werte für die reale Messung beim Pressen von Tabletten verwendet werden. Durch einen Brückenabgleich vor jeder Messung ist nur die relative Signaländerung von Bedeutung.

Abbildung 5.7 zeigt die Steigungen der einzelnen DMS-Reihen bei unterschiedlichen Belastungshöhen im Überblick. Die exakten Werte für die Steigungen der einzelnen DMS-Reihen bei unterschiedlichen Belastungshöhen können aus den im Anhang A.1 dargestellten Tabellen entnommen werden.

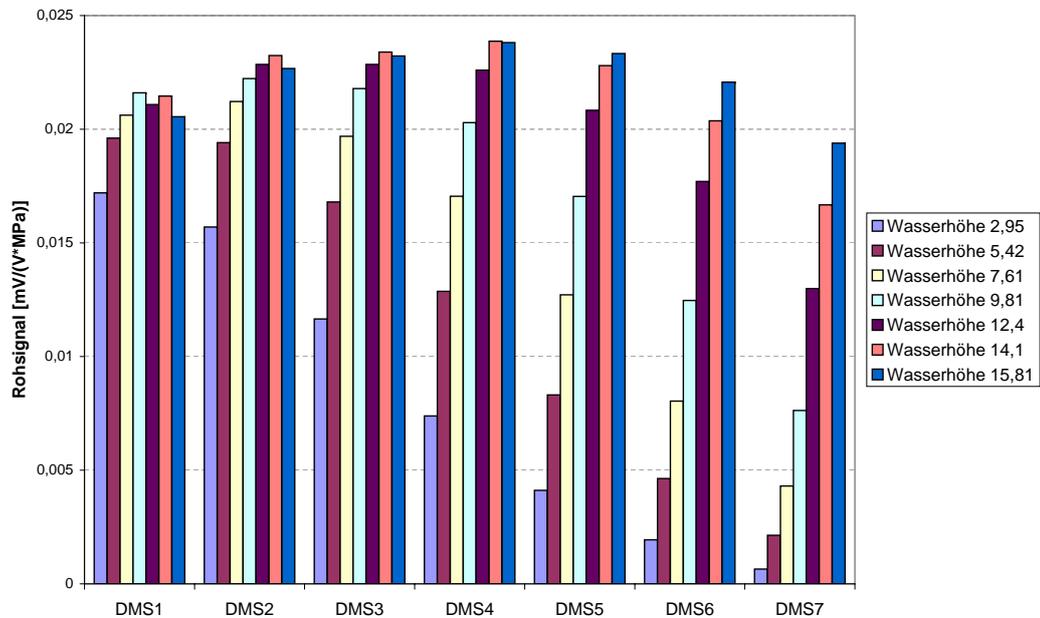


Abbildung 5.7: Steigungen der einzelnen DMS-Reihen in Abhängigkeit von der Wasserhöhe

5.1.2.3 Kalibrierung mittels Einzelbelastung

Zur Untersuchung der gegenseitigen Beeinflussung der DMS-Reihen und der aus der Überlagerung mehrerer Lastfälle resultierenden Biegelinie muss jede DMS-Reihe einzeln belastet werden. Die jeweilige Belastungshöhe wurde einerseits möglichst gering gehalten, um eine näherungsweise Punktbelastung der belasteten DMS-Reihe zu erreichen und andererseits ausreichend groß, um eine Belastung des DMS-Gitters gewährleisten zu können. Abbildung 5.8 stellt die gegenseitige Beeinflussung der DMS-Reihen und die dadurch resultierende Biegelinie in Abhängigkeit von der belasteten DMS-Reihe dar.

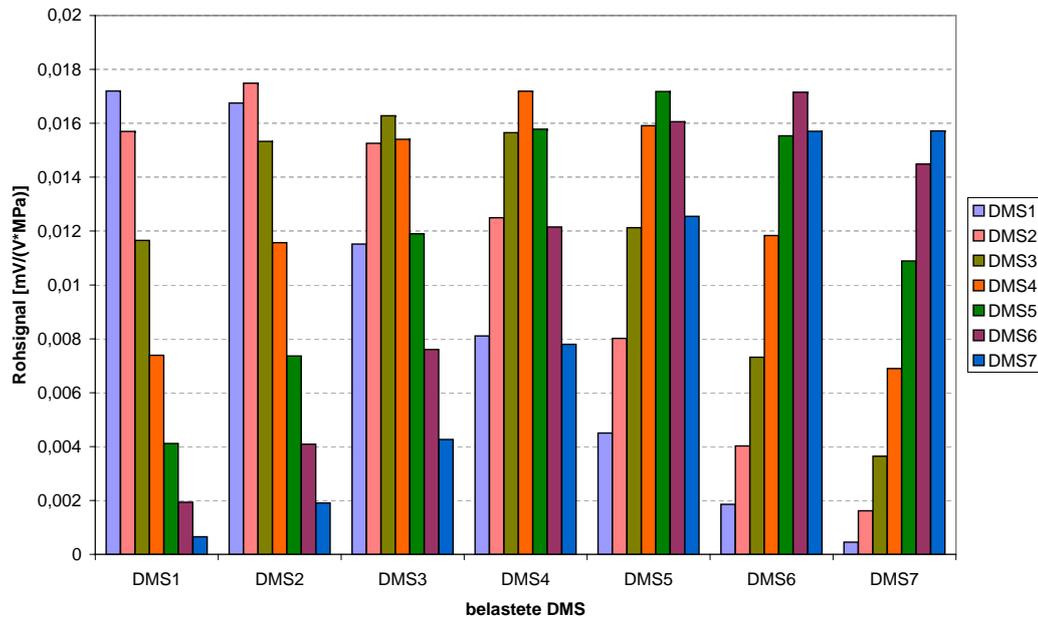


Abbildung 5.8: Steigungen der einzelnen DMS-Reihen in Abhängigkeit von der belasteten DMS-Reihe

Aus Abbildung 5.8 lassen sich deutlich die resultierenden Biegelinien erkennen. Bei Betrachtung der Signalverläufe (DMS1 bis DMS7) bei einer Einzelbelastung von DMS 1 und einer Einzelbelastung von DMS 7 zeigt sich ein vergleichbarer qualitativer Verlauf der Biegelinien. Der symmetrische Verlauf lässt sich aus der symmetrischen Anordnung der DMS-Reihen relativ zur Matrizenmitte erklären. Die quantitativen Unterschiede ergeben sich aus dem unterschiedlichen Ansprechverhalten der applizierten DMS-Reihen. Beim Vergleich der qualitativen Verläufe der belasteten DMS-Reihen 2 / 6, 3 / 5 und 4 zeigen sich ebenfalls symmetrische Verläufe der Biegelinie relativ zur Matrizenmitte.

In den Tabellen A.3 und A.4 im Anhang sind die exakten Werte für die Steigungen der einzelnen DMS-Reihen bei variierender Einzelbelastung dargestellt.

5.2 Modellierung der Matrizendurchbiegung

Im vorangegangenen Kapitel 5.1.2.3 sind die Kalibrierergebnisse des Matrizensensors dargestellt. Es zeigt sich, dass die einzelnen DMS-Ketten sich gegenseitig beeinflussen und nicht direkt den radialen Druckverlauf widerspiegeln, sondern die Biegelinie der Matrize aufzeigen. Eine direkte Bestimmung der radialen Spannungen über die Tablettenhöhe ist mittels des Matrizensensors demzufolge nicht möglich. Der Einfluss der Biegelinie auf die gemessenen Signale muss in Abhängigkeit der radialen Druckverteilung berücksichtigt werden.

Auf Grund des linearen Verhaltens der aufgezeichneten Rohsignale des Matrizensensors und den daraus resultierenden Biegelinien ist es möglich, die an den unterschiedlichen DMS-Positionen anliegenden Kräfte mathematisch durch Superposition (Überlagerung) einfacher Lastfälle zu bestimmen. Nachfolgend wird das Berechnungsmodell vorgestellt, dass die Berechnung der radialen Spannungsverteilung aus den gemessenen Biegelinien für eine DMS-Einzelbelastung ermöglicht.

5.2.1 Theorie zum Berechnungsmodell

Als Berechnungsgrundlage wird das Modell der „Winkler-Bettung“ (Balken auf elastischer (nachgiebiger) Bettung) herangezogen [Hayashi, 1921; Szabó, 1963; Hütte, 1989]. Abbildung 5.9 stellt einen elastisch gebetteten Balken schematisch dar.

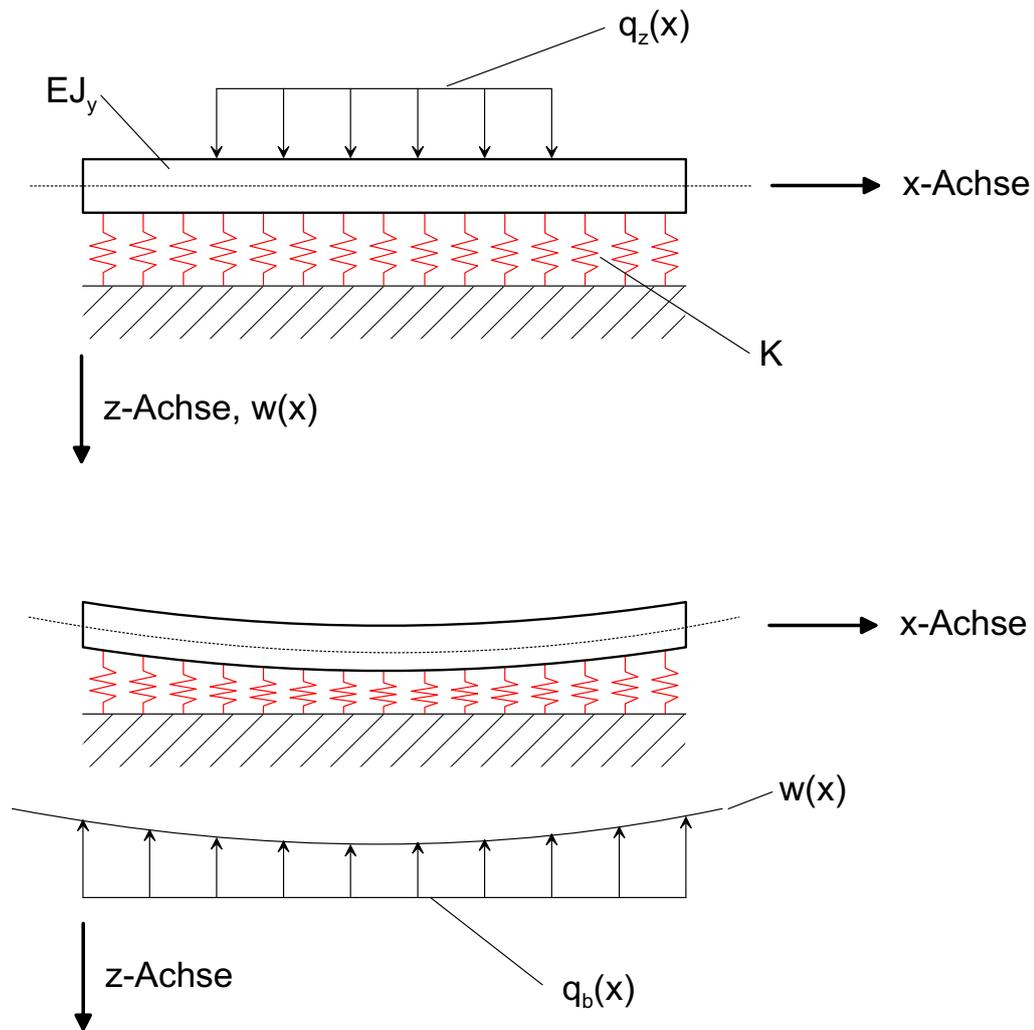


Abbildung 5.9: Balken auf elastischer Bettung

$q_z(x)$:	Streckenlast
$q_b(x)$:	Streckenlast der Bettung
E :	Elastizitätsmodul
J_y :	Flächenträgheitsmodul
K	Bettungsziffer (Elastizitätskoeffizient der Unterlage)
$w(x)$	örtliche Durchbiegung (Einsenkungslinie)

Das Modell besagt, dass bei einem elastisch gebetteten Balken die von der Bettung ausgeübte Streckenlast $q_b(x)$ als proportional zur örtlichen Durchbiegung $w(x)$ angenommen werden kann:

$$q_b(x) = -Kw(x) \quad (5.1)$$

Zu Gleichung 5.1 ist grundsätzlich zu bemerken, dass diese Formel, im Gegensatz zum Hooke'schen Gesetz, eine Proportionalität zwischen Druck und Verschiebung ausspricht. Aus diesem Grund ist es zutreffender, eine solche Unterlage statt „elastisch“ (im Sinne des Hooke'schen Gesetzes) „nachgiebig“ zu nennen [Szabó, 1963].

Unter einer äußeren eingepprägten Streckenlast $q_z(x)$ ergibt sich für die Einsenkungslinie $w(x)$ die Differentialgleichung:

$$\frac{d^4 w(x)}{dx^4} = \frac{q_z(x) - K \cdot w(x)}{E J_y}, \quad (5.2)$$

und im Fall $E J_y = \text{const.}$ die Gleichung:

$$\frac{d^4 w(x)}{dx^4} + \frac{K}{E J_y} \cdot w(x) = \frac{q_z(x)}{E J_y}, \quad (5.3)$$

mit der Abkürzung:

$$4\lambda^4 = \frac{K}{E J_y}, \quad (5.4)$$

folgt:

$$\frac{d^4 w(x)}{dx^4} + 4\lambda^4 \cdot w(x) = \frac{q_z(x)}{E J_y}. \quad (5.5)$$

Gleichung 5.5 stellt eine lineare, gewöhnliche Differentialgleichung vierter Ordnung mit konstanten Koeffizienten für die gesuchte Funktion $w(x)$ dar.

Die allgemeine Lösung ist die Summe aus der Lösung der homogenen Gleichung,

$$w(x) = (c_1 \cos \lambda x + c_2 \sin \lambda x) e^{(-\lambda x)} + (c_3 \cos \lambda x + c_4 \sin \lambda x) e^{(\lambda x)} \quad (5.6)$$

und der partikulären Lösung der inhomogenen Gleichung. Es gilt das Superpositionsprinzip. Die Integrationskonstanten c_1, \dots, c_4 werden aus Randbedingungen für w, w', w'' (Biegemoment) und w''' (Querkraft) bestimmt.

Eine spezielle Lösung der Differentialgleichung ergibt sich für die Annahme eines unendlich langen Balkens mit der Einzelkraft F an der Stelle $x = 0$ (Abbildung 5.10).

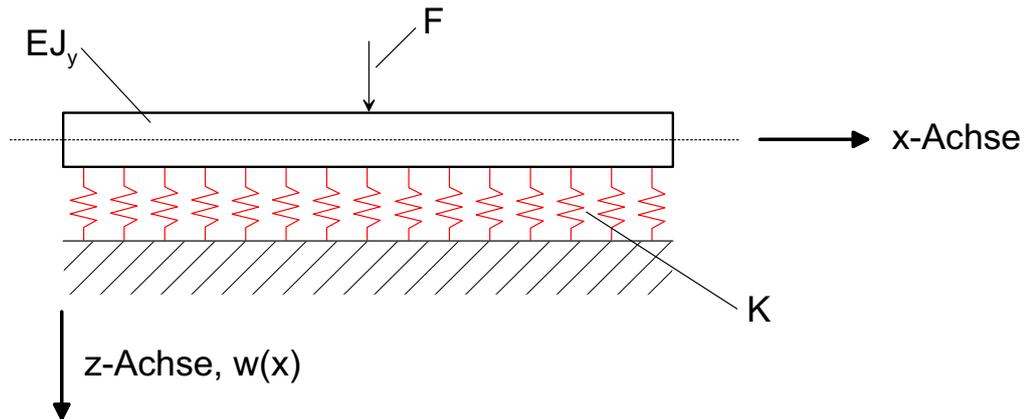


Abbildung 5.10: Unendlich langer Balken durch Einzelkraft belastet

Aus Symmetriegründen genügt es, eine Hälfte $x > 0$ mit $F/2$ zu betrachten. Da $w(x)$ für $x \rightarrow \infty$ endlich bleiben muss, wird $c_3 = c_4 = 0$ und Gleichung 5.6 wird zu:

$$w(x) = (c_1 \cos \lambda x + c_2 \sin \lambda x) e^{-\lambda x}. \quad (5.7)$$

Aus Gleichung 5.7 wird durch einmalige Differenzierung:

$$w'(x) = e^{-\lambda x} \cdot \lambda [(c_2 - c_1) \cos \lambda x - (c_2 + c_1) \sin \lambda x]. \quad (5.8)$$

Bei $x = 0$ liegt die tiefste Einsenkung vor, damit ist $w'(0) = 0$ zu fordern, woraus sich $c_1 = c_2$ ergibt und somit aus Gleichung 5.7

$$w(x) = c_1 e^{-\lambda x} (\cos \lambda x + \sin \lambda x) = c_1 \sqrt{2} e^{-\lambda x} \sin \left(\lambda x + \frac{\pi}{4} \right) \quad (5.9)$$

folgt. Die noch unbekannte Konstante c_1 wird aus der Gleichgewichtsbedingung zwischen $F/2$ und der Querkraft an der Stelle $x = 0$ ermittelt:

$$Q(0) = \left[\frac{dM_y(x)}{dx} \right]_{x=0} = EJ_y w'''(0) = -\frac{F}{2}. \quad (5.10)$$

Für c_1 wird

$$c_1 = c_2 = -\frac{F\lambda}{2K} \quad (5.11)$$

erhalten und es folgt die Formel zur Berechnung der örtlichen Durchbiegung $w(x)$:

$$w(x) = \frac{F\lambda}{K\sqrt{2}} e^{(-\lambda x)} \cdot \sin\left(\lambda x + \frac{\pi}{4}\right). \quad (5.12)$$

Für mehrere Einzellasten F_j ($j = 1, 2, \dots, n$) ist analog zu Gleichung 5.12:

$$w_j(x) = \frac{F_j\lambda}{K\sqrt{2}} e^{(-\lambda(x-x_j))} \cdot \sin\left(\lambda(x-x_j) + \frac{\pi}{4}\right), \quad x_j \leq x \leq \infty \quad (5.13)$$

zu setzen und anschließend zu superpositionieren:

$$w(x) = \sum_{j=1}^n w_j(x). \quad (5.14)$$

Zahlreiche andere spezielle Lösungen sind in der Literatur von Hayashi [1921]; Hetényi [1952] und Wölfer [1978] dargestellt.

5.2.2 Modellierung mittels Berechnungssoftware „Mathcad“

Für die Berechnung der radialen Druckverteilung wird die oben gezeigte spezielle Lösung (Gleichung 5.12) der allgemeinen Differentialgleichung für einen Balken auf nachgiebiger Unterlage verwendet. Mit der gemessenen Durchbiegung $w(x)$ (Biegelinie) wird zunächst die Einzelkraft

F (betrachtet als Diracstoß) berechnet und anschließend durch Superpositionierung der einzelnen Diracstöße auf die Streckenlast $q_z(x)$ geschlossen.

5.2.2.1 Bestimmung der Konstanten λ und K

Für die Bestimmung der Konstanten λ und K des Matrizensensors wird der Fall betrachtet, dass ein Diracstoß (Einzelkraft F) an der Stelle $x = 0$ eine maximale Durchbiegung des Balkens hervorruft. Aus der gemessenen Biegelinie $w(x)$ und der gemessenen maximalen Durchbiegung $w(x)_{max}$ wird über eine Anpassungsfunktion λ bestimmt.

Aus Gleichung 5.12 wird für $w(x) = w(x)_{max}$ an der Stelle $x = 0$:

$$w(x)_{max} = \frac{F\lambda}{K\sqrt{2}} \cdot \sin \frac{\pi}{4} = \frac{F\lambda}{K\sqrt{2}} \cdot \frac{1}{2} \sqrt{2}. \quad (5.15)$$

Daraus folgt:

$$\frac{F\lambda}{K\sqrt{2}} = \frac{w(x)_{max}}{\frac{1}{2}\sqrt{2}}. \quad (5.16)$$

Durch Einsetzen von Gleichung 5.16 in Gleichung 5.12 wird

$$w(x) = \frac{w(x)_{max}}{\frac{1}{2}\sqrt{2}} e^{(-\lambda x)} \cdot \sin \left(\lambda x + \frac{\pi}{4} \right). \quad (5.17)$$

Die gemessene Biegelinie, maximale Durchbiegung bei $x = 0$ sowie Gleichung 5.17 werden in die Berechnungssoftware Mathcad eingegeben. Aus den gegebenen Daten berechnet Mathcad über einen bestimmten Lösungsalgorithmus einen optimalen Wert für λ .

Abbildung 5.11 und 5.12 zeigt die Berechnungen mit Mathcad exemplarisch für die DMS-Kette 1. Alle notwendigen Daten für die Berechnungen aller übrigen DMS-Ketten können aus der Tabelle B.2 im Anhang entnommen werden.

Vorgaben : $\lambda := 1$ Matrizendurchmesser : $d := 20.2\text{mm}$

Kraft eingeben in kN: $F := 1\text{ kN}$ $p := \frac{F}{\left(\frac{d}{2}\right)^2 \cdot \pi}$ $p = 3.12 \times 10^6 \text{ Pa}$

DMS Position auf Matrizze:

Signale für DMS-Kette1

$$\mathbf{X1} := \begin{pmatrix} -0.857 \\ -0.571 \\ -0.286 \\ 0 \\ 0.286 \\ 0.571 \\ 0.857 \end{pmatrix} + 0.857 \qquad \mathbf{Y1} := \begin{pmatrix} 0.0171988 \\ 0.0156985 \\ 0.0116549 \\ 0.0073875 \\ 0.0041122 \\ 0.0019373 \\ 0.0006509 \end{pmatrix} \cdot \frac{\text{mV}}{\text{MPa} \cdot \text{V}} p$$

Wert für maximale Durchbiegung: $\max(\mathbf{Y1}) = 5.367 \times 10^{-5}$

$$w_{\max 1} := \max(\mathbf{Y1})$$

Gleichung 5.17:

$$w_1(\xi, \lambda) := \begin{cases} \left(\frac{w_{\max 1}}{\frac{1}{2} \cdot \sqrt{2}} \cdot e^{\lambda \cdot \xi} \cdot \sin\left(-\lambda \cdot \xi + \frac{\pi}{4}\right) \right) & \text{if } \xi < 0 \\ \left(\frac{w_{\max 1}}{\frac{1}{2} \cdot \sqrt{2}} \cdot e^{-\lambda \cdot \xi} \cdot \sin\left(\lambda \cdot \xi + \frac{\pi}{4}\right) \right) & \text{if } \xi \geq 0 \end{cases}$$

Abbildung 5.11: Mathcadberechnung für λ (1)

Anpassungsfunktion für λ :

$$F_1(x, \lambda) := w_1(x, \lambda) \quad dF\lambda_1(x, \lambda) := \frac{d}{d\lambda} w_1(x, \lambda)$$

$$F11(z, u) := \begin{pmatrix} F_1(z, u) \\ dF\lambda_1(z, u) \end{pmatrix}$$

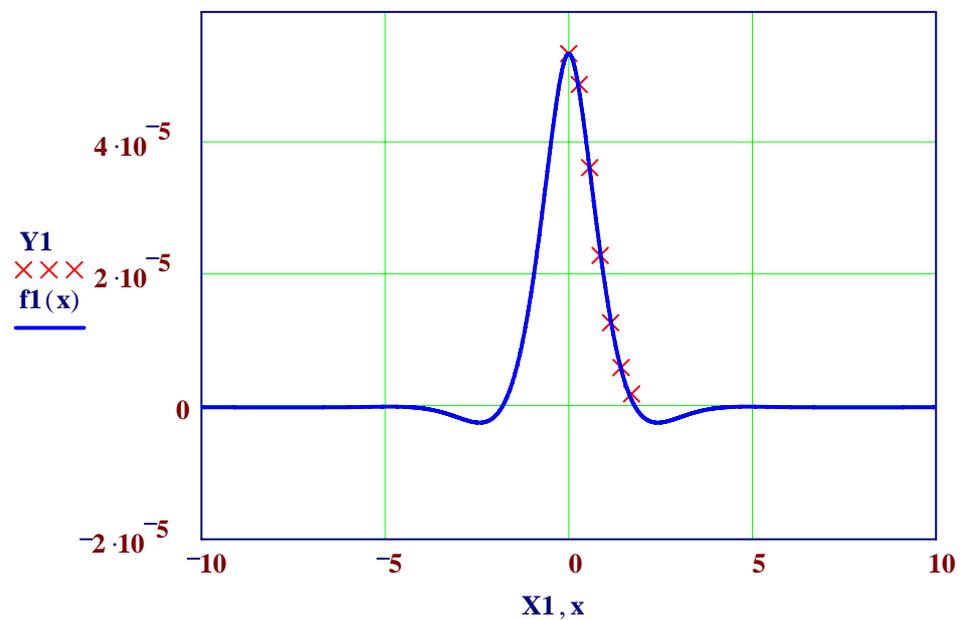
$$u := \lambda$$

$$P1 := \text{genanp}(X1, Y1, u, F11) \cdot \frac{1}{m}$$

Berechneter Wert für λ :

$$P1 = 1.294 \frac{1}{m}$$

$$f1(x) := F_1(x, P1)$$

Messwerte und mit λ angepasste Funktion:Abbildung 5.12: Mathcadberechnung für λ (2)

Nach erfolgter Berechnung von λ kann die Konstante K anhand folgender Gleichung bestimmt werden:

$$K = \frac{F\lambda}{2w(x)_{max}}. \quad (5.18)$$

Um die Berechnungen mit Mathcad einheitenkonform durchzuführen, muss Gleichung 5.18 umgestellt werden. Ausgehend von Gleichung 5.12 und dem bereits ermittelten Wert für λ mit der Einheit $[1/m]$ werden folgende Umstellungen vorgenommen, um den Wert der Konstanten K in der richtigen Einheit zu berechnen.

Mit $x^* = \lambda \cdot x$ und $w^* = \lambda \cdot w$ folgt aus Gleichung 5.12:

$$w^*(x) = \frac{F\lambda^2}{K\sqrt{2}} e^{-x^*} \sin\left(x^* + \frac{\pi}{4}\right). \quad (5.19)$$

Die Einzelkraft F wird durch eine Streckenlast $q[N/m]$, multipliziert mit einer Länge $l[m]$, ersetzt:

$$w^*(x) = \frac{q \cdot l \cdot \lambda^2}{K\sqrt{2}} e^{-x^*} \sin\left(x^* + \frac{\pi}{4}\right). \quad (5.20)$$

Die Streckenlast q kann durch den Druck $p[N/m^2]$, multipliziert mit dem Umfang $U[m]$, ausgedrückt werden. Für eine dimensionslose Darstellung der Länge l , wird $l^* = l \cdot \lambda$ gesetzt.

Aus

$$w^*(x) = \frac{p \cdot U \cdot l^* \cdot \lambda}{K\sqrt{2}} e^{-x^*} \sin\left(x^* + \frac{\pi}{4}\right) \quad \text{mit} \quad U^* = U \cdot \lambda \quad (5.21)$$

folgt:

$$w^*(x) = \frac{p \cdot U^* \cdot l^*}{K\sqrt{2}} e^{-x^*} \sin\left(x^* + \frac{\pi}{4}\right). \quad (5.22)$$

Die wahre Durchbiegung der Matrize $w^*(x)$ in der richtigen Einheit ist ein prozentualer Anteil der gemessenen Durchbiegung $w_v(x)$ in $[mV/V]$, ausgedrückt mit einem unbekanntem Proportionalitätsfaktor k_s . Mit $w^*(x) = k_s/100 * w_v(x)$ folgt aus Gleichung 5.22:

$$w_v(x) \cdot \frac{k_s}{100} = \frac{p \cdot U^* \cdot l^*}{K \sqrt{2}} e^{-x^*} \sin\left(x^* + \frac{\pi}{4}\right). \quad (5.23)$$

Für die Annahme der maximalen Durchbiegung an der Stelle $x = 0$ wird für Gleichung 5.23 folgende Beziehung erhalten:

$$w_{v(max)}(x) \cdot k_s = \frac{p \cdot U^* \cdot l^*}{K \sqrt{2}} \cdot \frac{1}{2} \sqrt{2} \cdot 100. \quad (5.24)$$

Gleichung 5.24 kann nun nach der Konstanten K und dem Proportionalitätsfaktor k_s aufgelöst werden. Mit $C = K \cdot k_s$ folgt letztendlich Gleichung 5.25, die in Mathcad für die weitere Berechnung eingegeben wird.

$$C = \frac{p \cdot U^* \cdot l^*}{2 \cdot w_{v(max)}} \cdot 100 \quad (5.25)$$

Abbildung 5.13 zeigt exemplarisch die in Mathcad eingegebenen Formeln zur Bestimmung von C für die DMS-Kette 1. Die Berechnungen für alle übrigen DMS-Ketten sind im Anhang aufgeführt.

Bestimmung von C:

$$\lambda_1 := P1 \quad U := d \cdot \pi \quad l_1 := 2.94657 \text{ mm}$$

$$U_{s1} := U \cdot \lambda_1 \quad l_{s1} := l_1 \cdot \lambda_1$$

$$C1 := \frac{p \cdot U_{s1} \cdot l_{s1}}{2 \cdot w_{max1}} \cdot 100$$

berechneter Wert für C:

$$C1 = 9.109 \times 10^8 \text{ Pa}$$

Abbildung 5.13: Mathcadberechnung zur Bestimmung der Konstanten C

5.2.2.2 Bestimmung der radialen Druckverteilung

Das Berechnungsmodell wird mit den ermittelten Werten für λ und C zunächst auf die Kalibrierung der Einzelbelastung der DMS-Ketten angewendet. In nachfolgenden Abbildungen wird gezeigt, dass die Berechnung der radialen Druckverteilung aus den gemessenen Biegelinien möglich ist.

Abbildung 5.14 zeigt die in Mathcad eingegebenen Angaben für DMS-Kette 1, die zur Berechnung der Druckverteilung notwendig sind. Dabei entsprechen λ_1 und K_1 den zuvor bestimmten Werten von λ und C aus Kapitel 5.2.2.1. Die Werte der Matrix „X“ stellen die exakte Positionierung der Messstellen auf der Matrize dar, normiert über den Bereich -1 bis 1. Die dazugehörigen Messwerte der Biegelinie sind in der Matrix „Y1“ eingegeben. Die Höhe (Belastungshöhe) des Kalibrationsmediums Wasser ist mit „h1“ bezeichnet.

Vorgaben :

$$\xi := -10, -9.9 .. 10 \quad \xi_1 := -1, -0.99 .. 1 \quad a := 0 \quad d := 20.2\text{mm} \quad U := d \cdot \pi$$

$$\lambda_1 := 1.294 \cdot \frac{1}{\text{m}} \quad K_1 := 9.109 \cdot 10^8 \cdot \text{Pa} \quad c := 0 \quad r := \frac{d}{2}$$

Kraft eingeben in kN:

$$F := 1 \text{ kN} \quad p := \frac{F}{r \cdot \pi} \quad p = 3.12 \times 10^6 \text{ Pa}$$

DMS Positionierung auf der Matrize:

$$X := \begin{pmatrix} -0.819 \\ -0.548 \\ -0.277 \\ 0 \\ 0.264 \\ 0.535 \\ 0.805 \end{pmatrix}$$

Kalibrationsergebnis (Steigungen DMS1):

$$Y1 := \begin{pmatrix} 0.0171988 \\ 0.0156985 \\ 0.0116549 \\ 0.0073875 \\ 0.0041122 \\ 0.0019373 \\ 0.0006509 \end{pmatrix} \cdot \frac{\text{mV}}{\text{MPa} \cdot \text{V}} \cdot p$$

Normierung der linken und rechten Grenze:

Wasserhöhe eingeben: $h1 := 2.94657 \text{ mm}$

DMS Mitte eingeben: $MP1 := \frac{h1}{2}$

Abbildung 5.14: Mathcadberechnung zur Bestimmung der radialen Druckverteilung (1)

In Abbildung 5.15 sind neben der Normierung der Belastungshöhe sowie der Berechnung der linken „L1“ und rechten „R1“ Belastungsgrenzen aus der Belastungshöhe auch die Gleichun-

gen zur Berechnung der Belastung (Druckverteilung) aus der gemessenen Biegelinie dargestellt.

Die Belastung wird in den Belastungsgrenzen als Parabelfunktion $q(x) = a \cdot (x - c)^2 + b$ angenommen und ist für die Wasserkalibration nur von der Variablen „b“ abhängig (Gleichung: „ $q_1(x, b)$ “ in Abbildung 5.15). Diese Annahme der Belastung wird in die bekannte Gleichung zur Berechnung der Biegelinie (vgl. Gleichung 5.12) an Stelle der Einzelkraft F eingegeben (Gleichung: „ $w_{1x}(\zeta, x, b)$ “) und differenziell betrachtet. Die Biegelinie für die ermittelten Belastungsgrenzen „ L_1 “ und „ R_1 “ berechnet sich anschließend nach dem Superpositionsprinzip aus der Summe der einzelnen Biegelinien über den gesamten Belastungsbereich (Gleichung: „ $w_1(\zeta, b)$ “).

Mittelpunkt Belastungsbereich:	$\alpha := \frac{MP7 - MP1 + \frac{1}{2} \cdot (h7 + h1)}{2}$	Belastungsgrenzen auf der Matrice:
$L1 := \frac{-\alpha + \left(MP1 - \frac{h1}{2}\right)}{\alpha}$	$R1 := \frac{-\alpha + \left(MP1 + \frac{h1}{2}\right)}{\alpha}$	$\theta_{1l} := MP1 - \frac{h1}{2} \quad \theta_{1r} := MP1 + \frac{h1}{2}$
		$\theta_{1l} = 0 \text{ m} \quad \theta_{1r} = 2.947 \times 10^{-3} \text{ m}$
linke Grenze:	rechte Grenze:	
$L1 = -1$	$R1 = -0.637$	$D := \frac{-\alpha + (MP7)}{\alpha} \quad D = 0.805$
Belastung:	$q_1(x, b) := \begin{cases} 0 & \\ a \cdot (x - c)^2 + b & \text{if } L1 \leq x \leq R1 \end{cases}$	
Biegelinie:	$w_{1x}(\xi, x, b) := \begin{cases} \left[\frac{q_1(x, b)}{\sqrt{2}} \cdot \frac{\lambda 1}{K1} \cdot e^{\lambda 1 \cdot (\xi - x)} \cdot \sin \left[-\lambda 1 \cdot (\xi - x) + \frac{\pi}{4} \right] \right] & \text{if } \xi - x < 0 \\ \left[\frac{q_1(x, b)}{\sqrt{2}} \cdot \frac{\lambda 1}{K1} \cdot e^{-\lambda 1 \cdot (\xi - x)} \cdot \sin \left[\lambda 1 \cdot (\xi - x) + \frac{\pi}{4} \right] \right] & \text{if } \xi - x \geq 0 \end{cases}$	
Biegelinie in den Belastungsgrenzen:	$w_1(\xi, b) := \int_{L1}^{R1} w_{1x}(\xi, x, b) dx$	

Abbildung 5.15: Mathcadberechnung zur Bestimmung der radialen Druckverteilung (2)

Abbildung 5.16 zeigt die gemessene Biegelinie (blau dargestellter Kurvenverlauf) und die nach oben genannten Gleichungen berechnete Biegelinie für den Belastungsbereich (roter Kurvenverlauf). Es ist deutlich erkennbar, dass die Annahme der Belastung mit einer Parabelfunktion die richtige Wahl ist und den tatsächlich gemessenen Verlauf der Biegelinie sehr gut widerspiegelt.

Für die weitere Berechnung mit Mathcad muss für die Variable „b“ der Parabelgleichung ein Schätzwert „b1“ angegeben werden, der die berechnete Biegelinie mit der gemessenen Biegelinie annähernd zur Deckung bringt.

Anpassen Parameter b:

$$b1 := 230 \cdot F \cdot \frac{1}{N}$$

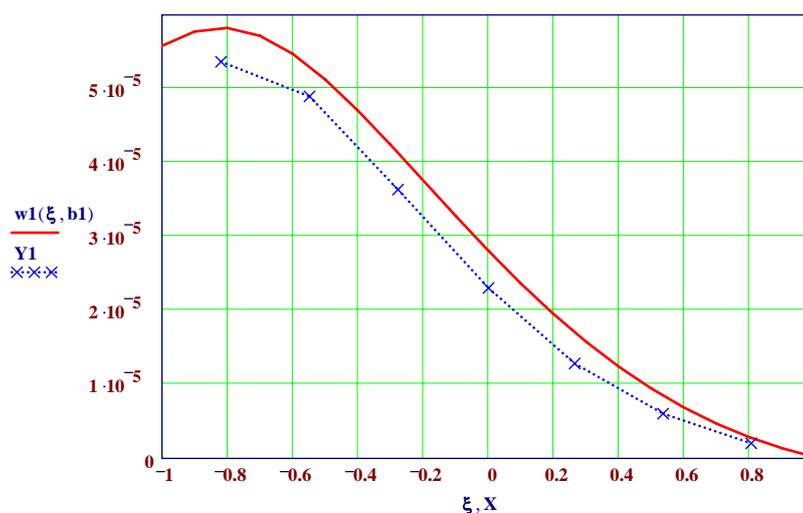


Abbildung 5.16: Mathcadberechnung zur Bestimmung der radialen Druckverteilung (3)

Abbildung 5.17 zeigt, wie Mathcad mit dem gewählten Schätzwert, der gemessenen Biegelinie und der berechneten Biegelinie eine Anpassung durchführt. Dabei wird die berechnete Biegelinie den gemessenen Werten nach einem bestimmten Lösungsalgorithmus bestmöglich angepasst und ein optimaler Wert für die Variable „b“ berechnet.

Die berechnete Anpassungsfunktion (grüner Kurvenverlauf) ist den gemessenen Punkten (rote Kreuze) der Biegelinie in Abbildung 5.18 gegenübergestellt. Es zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung der berechneten Anpassungsfunktion mit den gemessenen Werten.

Anpassungsfunktion:

$$F1(\xi, b1) := w1(\xi, b1)$$

$$dF1b(\xi, b1) := \frac{d}{db1} w1(\xi, b1)$$

$$F11(z, u) := \begin{pmatrix} F1(z, u) \\ dF1b(z, u) \end{pmatrix}$$

$$B1 := b1$$

$$B1 = 2.3 \times 10^{-5}$$

$$u1 := B1$$

$$P1 := \text{genanp}(X, Y1, u1, F11) \cdot \frac{N}{m}$$

$$P1 = 2.066 \times 10^{-5} \frac{\text{kg}}{\text{s}^2}$$

$$x := -1, -0.99..1$$

$$f1(x) := F1(x, P1)$$

$$b1 := P1$$

Abbildung 5.17: Mathcadberechnung zur Bestimmung der radialen Druckverteilung (4)

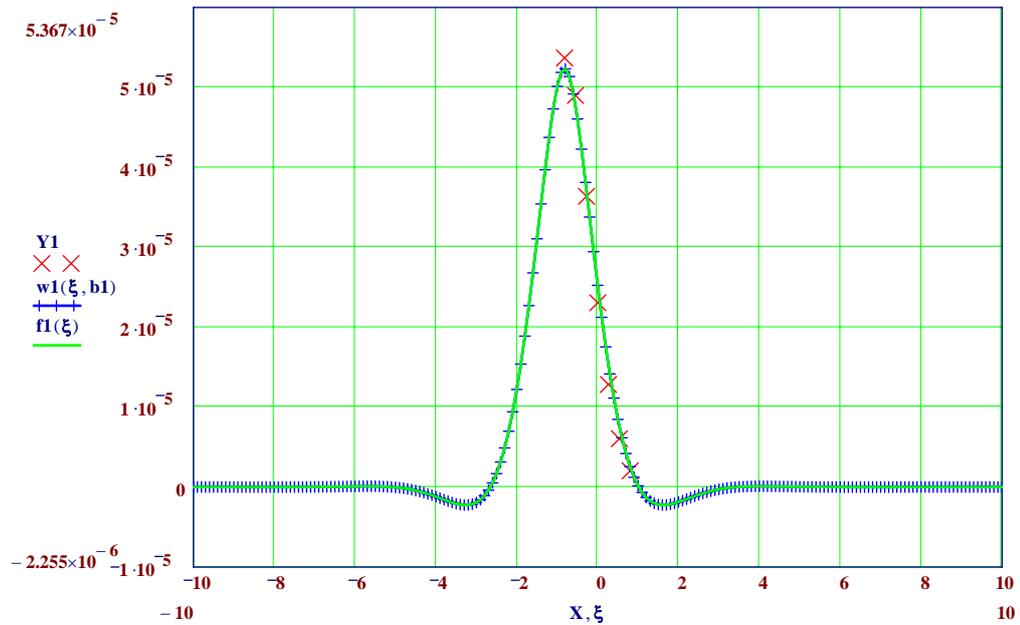


Abbildung 5.18: Mathcadberechnung zur Bestimmung der radialen Druckverteilung (5)

Mit der berechneten Anpassungsfunktion für die gemessenen Werte kann Mathcad im nächsten Schritt die Belastung für den gewählten Bereich berechnen und in einem Diagramm (Abbildung 5.19) darstellen.

Ausgehend von der Kalibrierung mittels Wasser und den getroffenen Annahmen für die Mathcad-Berechnungen zeigt Abbildung 5.19 eine konstante Belastung über den gesamten Belastungsbereich. Die dargestellte Rechteckfunktion $q_1(\xi_1, b_1)$ verdeutlicht die Streckenlast in den Grenzen „L1“ bis „R1“.

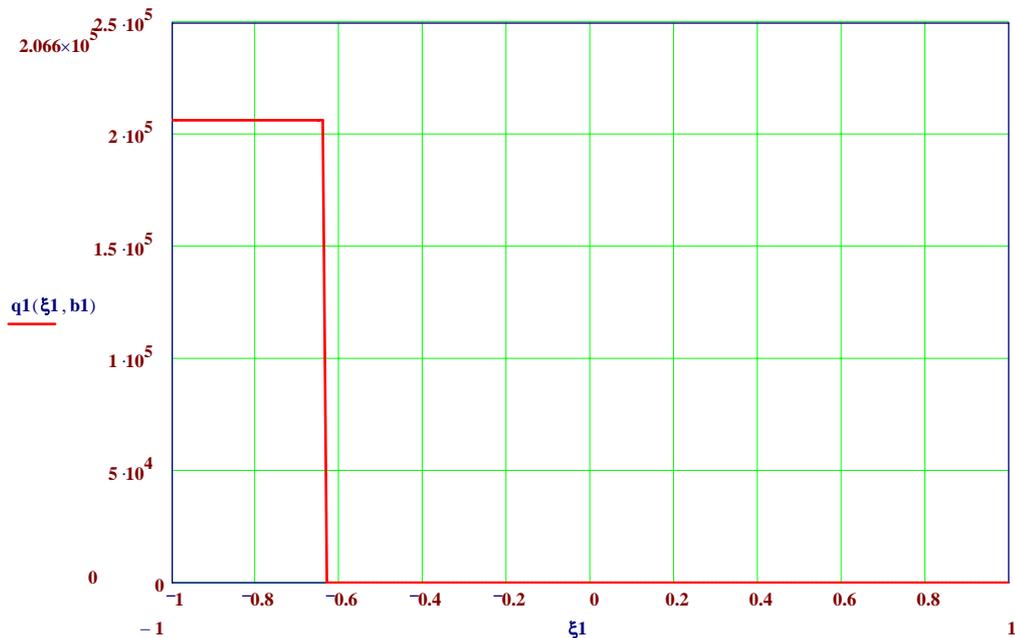


Abbildung 5.19: Mathcadberechnung zur Bestimmung der radialen Druckverteilung (6)

Zur Überprüfung der Richtigkeit der Berechnungen mit Mathcad wird die berechnete Streckenlast durch den Umfang des Presskanals dividiert, um direkt die Druckverteilung des Belastungsbereichs zu erhalten. Abbildung 5.20 zeigt die berechnete Druckverteilung für den angenommenen Belastungsbereich.

Auf Grund der hydrostatischen Eigenschaften des Kalibrationsmediums Wasser ist der Druck im Belastungsraum in allen Richtungen gleich. Mit der anliegenden Presskraft von 1 kN ergibt sich ein gemessener Druck am Unterstempel von 3,12 MPa. Die berechnete Druckverteilung für den Belastungsbereich ergibt einen konstanten Wert von 3,26 MPa. Dies zeigt eine sehr gute Übereinstimmung und weist die Richtigkeit des Berechnungsmodells nach.

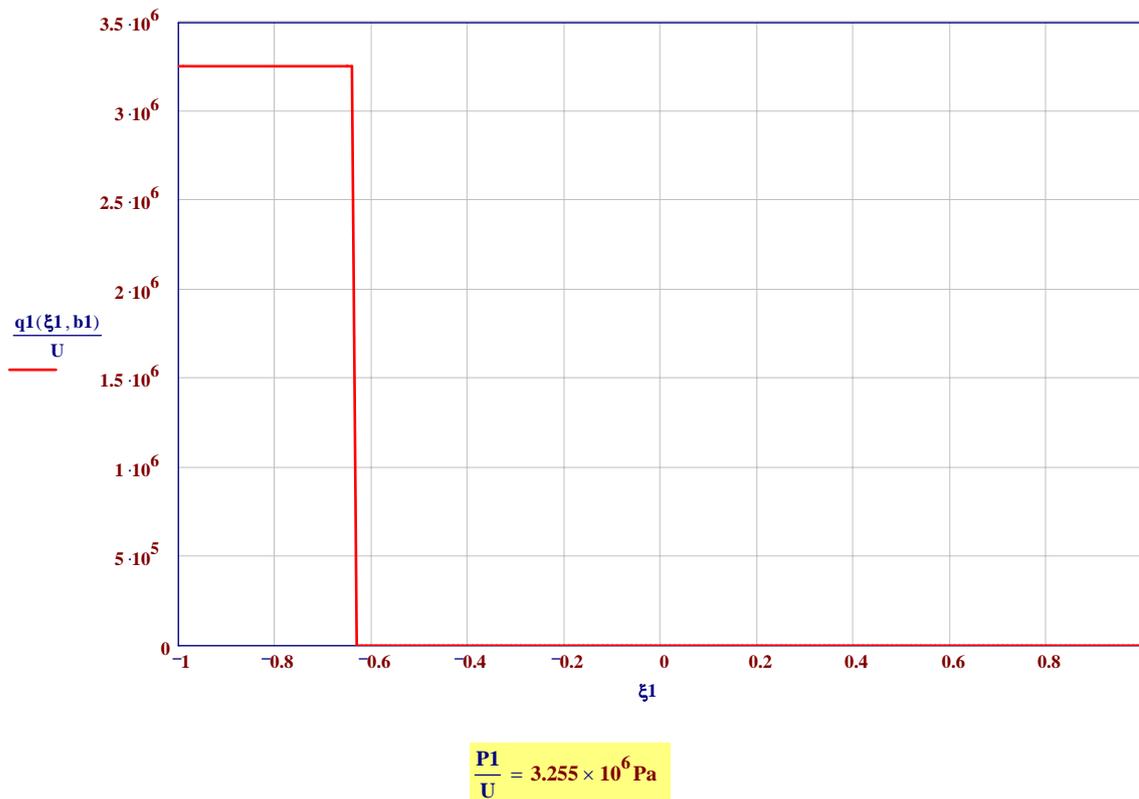


Abbildung 5.20: Mathcadberechnung zur Bestimmung der radialen Druckverteilung (7)

Abbildung 5.21 zeigt die berechneten Druckverteilungen aller Belastungshöhen. Es ist zu erkennen, dass die Ergebnisse für die Belastungshöhen 3; 4 und 5 den gemessenen Druck am Unterstempel von 3,12 MPa am Nächsten kommen. Die leichte Steigerung der Druckverteilung auf beiden Seiten des Matrizensensors deutet darauf hin, dass die Annahme eines unendlich langen Balkens beim Berechnungsmodell für die äußeren Bereiche des Matrizensensors einen Einfluß hat. Wird die Kalibrierung und die Berechnung gesamt betrachtet, so zeigt die mittlere berechnete Druckverteilung aller Belastungshöhen von 3,21 MPa eine sehr gute Übereinstimmung mit dem gemessenen Wert für den Unterstempeldruck.

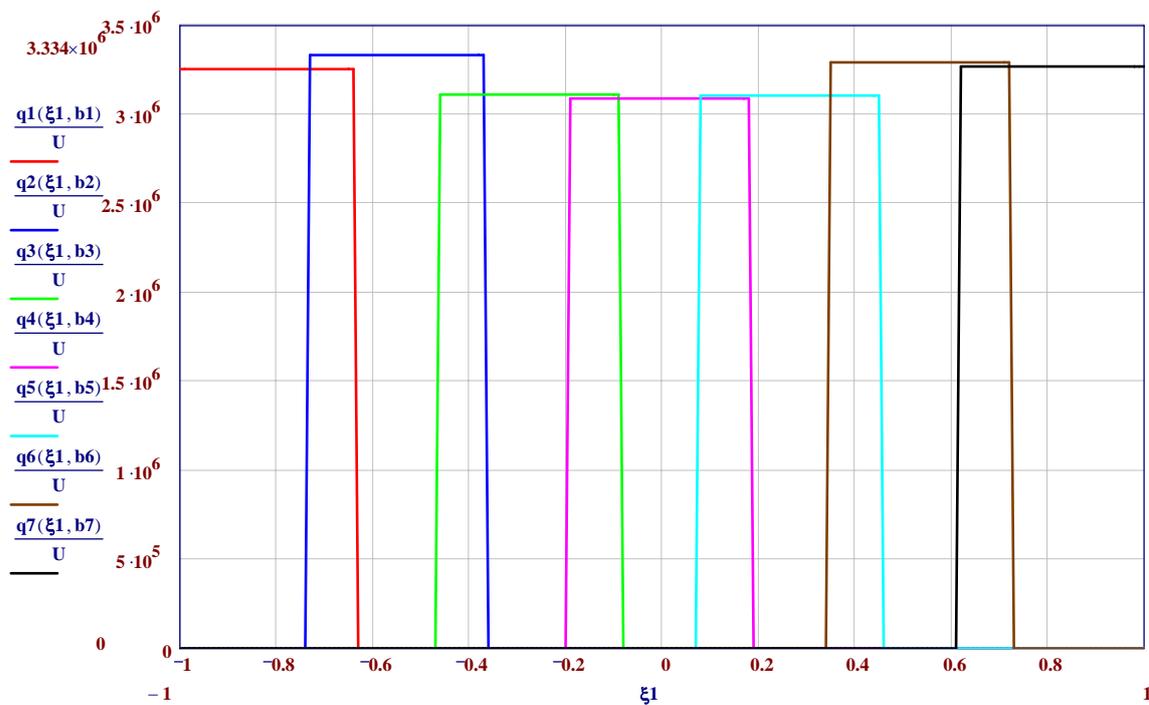


Abbildung 5.21: Druckverteilung aller berechneten Belastungshöhen

6 Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit sollte zunächst der Einfluss von Druck und Zeit bei der Tabletierung untersucht werden. Dazu wurden vergleichbare Untersuchungen auf unterschiedlichen Pressentypen (Rundläuferpresse und hydraulische Unterstempelpresse) durchgeführt. Die Problematik bei einer Rundläufertablettenpresse besteht darin, dass die Presszeit nicht von der Stempelgeschwindigkeit entkoppelt werden kann. Dadurch ist eine getrennte Betrachtung der Anlagenparameter nicht möglich. Im Gegensatz dazu erlaubt die hydraulische Unterstempelpresse die Stempelgeschwindigkeit unabhängig von der Belastungszeit zu verändern. Die Gegenüberstellung beider Pressentypen zeigte, dass die Geschwindigkeitsprofile der hydraulischen Unterstempelpresse die der Rundläufertablettenpresse im vollen Umfang abdeckt. Jedoch konnten die minimalen Gesamtbelastungszeiten einer Rundläufertablettenpresse nicht erreicht werden.

Die Ergebnisse zur getrennten Betrachtung von Stempelgeschwindigkeit und Gesamtbelastungszeit auf der hydraulischen Unterstempelpresse machten deutlich, dass bei einem a_w -Wert von 0,3 weder die untersuchten Stempelgeschwindigkeiten noch die betrachteten Gesamtbelastungszeiten einen Einfluss auf die Tablettenfestigkeit hatten. Diese Beobachtung hat ein stark elastisches und somit zeitunabhängiges Kompaktierverhalten von Maltodextrin beim untersuchten a_w -Wert von 0,3 bestätigt. Eine höhere Festigkeit der Tabletten konnte nur durch eine höhere Presskraft erzielt werden.

Die Untersuchungen mit der Tablettenpresse Fette 3090 haben unterschiedliches Kompaktierverhalten von Pulvern niedriger Feuchte (a_w -Wert 0,19) und Pulvern hoher Feuchte (a_w -Wert 0,48) gezeigt. Dabei bestätigten die Ergebnisse das viskoelastische Verhalten von Maltodextrin in Abhängigkeit vom Feuchtegehalt. Das bei niedrigem a_w -Wert verpresste Pulver zeigte sich in seinen Kompaktiereigenschaften als zeitunabhängig. Mit zunehmender Belastungszeit konnte keine Erhöhung der Bruchfestigkeit erreicht werden. Im Gegensatz dazu zeigte das Pulver mit hohem a_w -Wert eine Zunahme der Bruchfestigkeit mit steigender Gesamtbelastungszeit. Die zunehmende Belastungszeit und niedrigere Viskosität der Partikeln bei Maltodextrin mit

höherem Feuchtegehalt, bewirkte eine stärkere plastische Deformation der Partikeln und damit eine verstärkte Kontaktflächenausbildung in Abhängigkeit von der Dauer der Krafteinwirkung. In den angefertigten REM-Aufnahmen der Bruchflächen der Tabletten konnten keine Unterschiede festgestellt werden. Die Annahme, dass bei der Kompaktierung mit Pulvern höherer Feuchtegehalte Sinterprozesse auftreten, konnte nicht bestätigt werden.

Die Ergebnisse der Tablettenpresse Fette 1200i G zeigten für die Tabletten mit hohen a_w -Werten die gleichen Ergebnisse wie die mit der Rundläuferpresse Fette 3090 hergestellten Tabletten. Mit steigender Gesamtbelastungszeit wurde eine höhere Tablettenfestigkeit erreicht. Der Übergang vom elastischen zum plastischen Materialverhalten von Maltodextrin konnte in den aufgenommenen Kraft-Zeit-Verläufen für niedrige Pressdrücke nachgewiesen werden. Bei hohen Pressdrücken von über 40 MPa zeigten die Kraft-Zeitverläufe keinen Kraftabfall während der Druckhaltezeit und konnten somit keine plastische Deformation des Maltodextrins während der Druckhaltezeit nachweisen. Die steigende Tablettenfestigkeit ist auf die plastische Deformation in der anfänglichen Verdichtungsphase zurückzuführen. Die Zunahme der Tablettenfestigkeit bei Tabletten mit niedrigem Feuchtegehalt ist im Gegensatz zu den Tabletten, die mit der Fette 3090 hergestellt wurden, mit den höheren Pressdrücken zu begründen.

Alle Versuchsreihen zur Untersuchung des Einflusses von Druck und Zeit bei der Kompaktierung haben gezeigt, dass die Gesamtbelastungszeit ein wichtiger Prozessparameter bei der Kompaktierung ist. Die Steigerung der Tablettiergeschwindigkeit beim Rundläufer führt zu Gesamtbelastungszeiten unter 50 ms. Bei allen Versuchen wurde für Pulver mit einem erhöhten a_w -Wert eine verminderte Tablettenfestigkeit mit abnehmender Gesamtbelastungszeit nachgewiesen. Damit ist bei diesen Pulvern die Gesamtbelastungszeit auf Grund der zeitlich stattfindenden plastischen Deformation der Partikeln der entscheidende Prozessparameter. Bei niedrigen Feuchtegehalten der Pulver ist der Einfluss der Gesamtbelastungszeit abhängig vom angewendeten Pressdruck. Die plastische Deformation der Partikeln spielt hier keine Rolle. Entscheidend ist die durch den steigenden Pressdruck vermehrt auftretende Fragmentierung der Partikeln.

Die Untersuchungen zum Einfluss der Feuchtigkeit bei der Kompaktierung sollten die Tablettenfestigkeit in Abhängigkeit von der Glasübergangstemperatur zeigen. Dazu wurde in mehreren Versuchsreihen der a_w -Wert schrittweise erhöht und somit die Differenz von Glasübergangstemperatur und Umgebungstemperatur schrittweise erniedrigt. Die Prozessparameter Pressdruck, Stempelgeschwindigkeit und Gesamtbelastungszeit wurden bei allen Versuchsrei-

hen konstant gehalten. Die Ergebnisse unterhalb der Glasübergangstemperatur zeigten bis zu einem a_w -Wert von 0,422 (ΔT von 28,5°C) eine Erhöhung der Tablettenfestigkeit. Bei einem a_w -Wert von 0,457 nahm die Tablettenfestigkeit signifikant ab und erhöhte sich mit steigendem Feuchtegehalt wieder. Die Tablettenfestigkeiten der Tabletten, die oberhalb der Glasübergangstemperatur hergestellt wurden, lagen signifikant höher als die Tablettenfestigkeit der Tabletten unterhalb der Glasübergangstemperatur. Aufschluss über das viskoelastische Verhalten des Maltodextrins gaben die gemessenen Kraft-Zeit-Verläufe. Sie zeigten mit zunehmendem Feuchtegehalt einen immer größeren Kraftabfall während der Druckhaltezeit bis hin zu einem fast linearen Kraftabfall bei den Tabletten oberhalb des Glasübergangs. Die deutlichen Unterschiede der Tabletten unter- und oberhalb des Glasübergangs konnten auch anhand der REM-Aufnahmen nachgewiesen werden. Hier zeigte sich bei Maltodextrin bis zum Glasübergang (a_w -Wert 0,637) fast keine Veränderung der Partikeln in der Bruchfläche der Tabletten. Aber schon ab einem ΔT von 2,1°C (a_w -Wert 0,648) oberhalb der Glasübergangstemperatur zeigten sich deutlich größere Partikeln. Die Verschmelzung der Partikeln und die starke plastische Deformation oberhalb des Glasübergangs führte zu höheren Tablettenfestigkeiten. Bei Betrachtung der REM-Aufnahmen von der Tablettenoberfläche wurde mit steigendem Feuchtegehalt eine stärker auftretende plastische Deformation an der Tablettenoberfläche festgestellt. Die Ergebnisse der Ausstoßkraft und der remanenten Radialspannung zeigten den Einfluss der Spannungsverteilung in der Tablette in Abhängigkeit von der Glasübergangstemperatur. Unterhalb der Glasübergangstemperatur besitzen die Tabletten eine gespeicherte elastische Komponente, was sich in den hohen remanenten Radialspannungen zeigen ließ. Am Glasübergang bzw. kurz davor nehmen diese Spannungen schlagartig ab und führten zu niedrigeren Ausstoßkräften. Auch die erhöhte elastische Rückdehnung der Tabletten oberhalb der Glasübergangstemperatur beweist, dass die elastischen Komponenten der Tablette direkt nach der Kompaktierung abgebaut und nicht in der Tablette gespeichert werden. Die Tabletten haben in Abhängigkeit von der Glasübergangstemperatur ein unterschiedliches Verhalten gezeigt. Es ist nicht möglich, mit den gewonnenen Ergebnissen eine generelle Aussage darüber zu treffen, welche Temperaturdifferenz ΔT besonders günstig für die Tablettenproduktion ist. Beim Vergleich mit früheren Untersuchungen hat sich gezeigt, dass auch der Pressdruck einen entscheidenden Einfluss auf den Verlauf der Tablettenfestigkeit in Abhängigkeit der Glasübergangstemperatur hat.

Die Entwicklung eines Messsystems zur hochauflösenden Erfassung der radialen Druckverteilung während und nach der Kompaktierung war Ziel des dritten Teils dieser Arbeit. Der entwickelte Matrizensensor zeigte bei der Kalibrierung sehr gute Ergebnisse. Alle gemessenen

Signale der sieben DMS-Ketten hatten in Abhängigkeit des Drucks einen linearen Verlauf und eine hohe Empfindlichkeit. Bei der Kalibrierung zeigte sich eine gegenseitige Beeinflussung der DMS-Ketten. Somit konnte keine direkte Messung der radialen Druckverläufe über die Matrizenwand erfolgen. Der Matrizensensor misst in Abhängigkeit der Belastungshöhe die Durchbiegung der Matrizenwand. Die verwendete Modellierung der Matrizendurchbiegung für die durchgeführten Kalibrationsbelastungen zeigte, dass aus den gemessenen Biegelinien der Druckverlauf über die Belastungshöhe berechnet werden kann. Die berechneten Werte des radialen Drucks stimmen mit den gemessenen Werten für den Unterstempeldruck für das Kalibrationsmedium Wasser überein.

7 Summary

The influence of compaction pressure and pressure dwell time during the production of tablets were investigated in the first part of this thesis. Therefore, comparable investigations were made on different types of compaction machines (rotary tablet press and hydraulic tablet press). The problem of a rotary tablet press is that the pressure dwell time is dependent on the punch velocity and cannot be investigated separately from each other. In contrast to the rotary tablet press, the hydraulic tablet press enables a variation of the punch velocity independent of the pressure dwell time. It could be seen, in comparison of both types of tablet presses, that the hydraulic tablet press can also achieve as high a velocity as the rotary tablet press. The minimal (very short) pressure dwell time of the rotary tablet press cannot be reached by the hydraulic press.

The results of the separate investigations of the pressure dwell time and punch velocity with the hydraulic tablet press showed clearly neither the punch velocity nor the pressure dwell time have an influence on the tablet hardness if the powder has a water activity of 0,3. The compaction behavior of the maltodextrin at this a_w -value was very elastic and independent of the pressure dwell time. Harder tablets could only be achieved at higher compaction forces.

The investigations with the rotary tablet press „Fette 3090“ showed different compaction behavior for powders with low moisture (a_w -value 0,19) and powders with high moisture (a_w -value 0,48). The results confirmed the visco-elastic behavior of the maltodextrin depending on the moisture content. The powder with a low water activity showed a compaction behavior independent of the pressure dwell time. No increase of the tensile strength could be achieved by increasing the pressure dwell time. For the powder with a high water activity level an increase of the tensile strength could be observed with increasing pressure dwell time. The increasing pressure dwell time and the low viscosity of the Maltodextrin particles at a higher water activity level leads to a higher plastic deformation of the particles. The contact areas between the particles increases, depending on the time of the force effect to the particles. No differences between the tablets (a_w -value 0,19 and a_w -value 0,48) could be seen in the

SEM (scanning electron microscopy) photos of the fractured surfaces of the tablets. The assumption that compaction of powders with higher moisture level leads to sinter-processes could not be corroborated.

The results achieved with the rotary tablet press „Fette 1200i G“ are the same for tablets with a high a_w -value, as the results achieved with the tablet press „Fette 3090“. An increasing dwell time led to higher tensile strengths of the tablets. The force-time-curves for low forming pressures have proven the change from elastic to plastic material-behavior of the Maltodextrin. At high forming pressures (more than 40 MPa) the force-time-curves showed no significant decrease in the force during the dwell time. The Maltodextrin showed no plastic material-behavior during the dwell time. The increasing tablet hardness is due to the plastic deformation in the initial phase of the compaction process. The increasing tablet hardness of the tablets with a low moisture-level is a reason for the higher forming pressure of the tablet press „Fette 1200i G“.

All test series showed the importance of the process parameter pressure dwell time. An increase of the production speed on a rotary tablet press leads to dwell times lower than 50ms. All results showed lower tablet hardness with decreasing dwell time for tablets with a higher a_w -value. The most important process parameter for the plastic deformation of the particles of these powders is therefore the dwell time. The influence of the dwell time for tablets with a low a_w -value is dependent on the pressure applied during forming. The plastic deformation is in this case irrelevant. More important is the increasing fragmentation of the particles with increasing forming pressure.

The influence of the powder moisture during compaction was investigated in the second part of the thesis. The water activity of the used powders is varied and discussed depending on the glass transition temperature. During all test series the process parameters forming pressure, punch velocity and dwell time were kept constant. An increase in the tablet hardness could be seen for tablets up to an a_w -value of 0,422. A significant decrease of the tablet hardness was visible at an a_w -value of 0,457. Tablets with higher a_w -values showed again an increase in the tablet hardness. The tablet hardness of tablets produced above the glass transition temperature is significantly higher than all the others. The visco-elastic behavior of the Maltodextrin could be seen in the measured force-time-curves. The decrease of the force during the dwell time was increased with an increasing moisture-level of the powders. Also the SEM photos demonstrated the clear differences between the tablets produced below the glass transition temperature and the tablets produced above the glass transition temperature.

The photos from the tablet fractured surfaces showed nearly no difference for tablets with an a_w -value between 0,179 and 0,637 (i.e. below the glass transition temperature). But the photos from the fractured surface of a tablet with an a_w -value of 0,648 (2,1°C above the glass transition temperature) showed clearly bigger particles. The fusion of the particles and the highly plastic deformation occurring above the glass transition temperature leads to higher tensile strengths of the tablets. The SEM photos of the tablet surfaces showed an increase of the plastic deformation on the tablet surface with an increasing moisture-level of the tablets. The influence of the stress distribution in a tablet depending on the glass transition temperature could be seen in the results of the ejection force and the remanent radial stress. The tablets below the glass transition temperature have a stored elastic component, visible in the high values for the remanent radial stresses. The remanent radial stresses are decreased suddenly at the glass transition temperature or narrowly below the glass transition temperature and led to low ejection forces. Also the higher elastic expansion of the tablets produced above the glass transition temperature showed that the elastic component is not stored in the tablet. Depending on the glass transition temperature the tablets showed a different behavior. It is still not possible to make a general statement which temperature difference to the glass transition temperature is more favorable than an other. Earlier investigations showed, that besides the moisture level of the powder the forming pressure is as well an important process parameter and has an important influence on the tablet hardness depending on the glass transition temperature.

The development of a die sensor, which enables the measurement of the radial stress distributions in the tablet during and after the compaction process, was achieved during the third part of the thesis work. The die sensor developed during this work showed very good calibration results. All measured signals showed a linear run of the curve and a very high sensitivity. But the applied strain gauges were influencing each other and could not measure directly the acting radial stresses on the die wall. The die sensor measures the deflection (bending line) of the die wall depending on the height of the load. The modelling of the measured die deflection showed that the stress distribution can be calculated over a defined load height.

Literaturverzeichnis

- [Ashton u. a. 1965] Ashton, M.D. ; Cheng, D.C.-H. ; Farley, R. ; Valentin, F.H.H.: Some investigations into the strength and flow properties of powders. In: *Rheol. Acta.* 4 (1965), S. 206–218
- [Beulshausen 2004] Beulshausen, S.: *Agglomeration of maltodextrin considering the glass transition temperatur.* Technische Universität München, Lehrstuhl für Maschinen- und Apparatekunde, Diplomarbeit, 2004
- [Bhandari und Howes 2000] Bhandari, B.R. ; Howes, T.: *Glass transition in processing and stability of food.* 2000. – URL www.fst.uq.edu.au/staff/bbhandari/Teaching/Food3002AdvancedFoodTECH/Tgpaper.doc
- [Bogs und Lenhardt 1971] Bogs, U. ; Lenhardt, E.: Zur Kenntnis thermischer Vorgänge beim Tablettenpressen. In: *Pharmazeutische Industrie* 33 (1971), S. 850–854
- [Caspar 1983] Caspar, U.: *Viskoelastische Phänomene während der Tablettierung.* Universität Bonn, Pharmazeutische Technologie, Dissertation, 1983
- [Cuntze 2003] Cuntze, C.: *Untersuchungen zur Viskoelastizität von Tabletten mittels dynamisch-mechanischer Analyse.* Universität Bonn, Pharmazeutische Technologie, Dissertation, 2003
- [Ehrenstein u. a. 1998] Ehrenstein, G.W. ; Riedel, G. ; Trawiel, P.: *Praxis der Thermischen Analyse von Kunststoffen.* München, Wien : Karl Hanser Verlag, 1998
- [Führer und Schmidt 1981] Führer, C. ; Schmidt, M.: Mechanischer Energieumsatz beim Verpressen isotroper Pulvermischungen. In: *Acta Pharmaceutica Technologica* 27 (1981), Nr. 4, S. 215–221

- [Filbry 1986] Filbry, A.: *Homogenität des Druckes in Tabletten verschiedener Wölbung und ihr Einfluss auf errechnete und gemessene Parameter der Verdichtung verschiedener Substanzen*. Universität Hamburg, Abteilung Pharmazeutische Technologie, Dissertation, 1986
- [Gastreich 1996] Gastreich, M.: *Quantenchemische Untersuchung von Strukturelementen Si/B/N-haltiger Keramiken*. Rheinische Friedrich-Wilhelm-Universität Bonn, Institut für Physikalische und Theoretische Chemie, Diplomarbeit, 1996
- [Gross u. a. 1998] Gross, D. ; Hauger, W. ; Schnell, W.: *Technische Mechanik 2: Elastostatik*. 6. Auflage. Berlin Heidelberg New York : Springer Verlag, 1998
- [Hanus und King 1968] Hanus, E.J. ; King, L.D.: Thermodynamic Effects in the Compression of Solids. In: *Journal of Pharmaceutical Sciences* 57 (1968), Nr. 4, S. 677–684
- [Hayashi 1921] Hayashi, K.: *Theorie des Trägers auf elastischer Unterlage*. Berlin : Springer Verlag, 1921
- [Hetényi 1952] Hetényi, M.: *Beams on elastic foundation*. 3. Auflage. Berlin, Göttingen, Heidelberg : Ann Arbor: Univ. of Michigan Press, 1952
- [Higuchi u. a. 1952] Higuchi, T. ; Arnold, R.D. ; Tucker, S.J. ; Busse, L.W.: The Physics of Tablet Compression. I. A Preliminary Report. In: *Journal of the American Pharmaceutical Association* 41 (1952), Nr. 2, S. 93–96
- [Higuchi u. a. 1953] Higuchi, T. ; Narsimha Rao, A. ; Busse, L.W. ; Swintosky, J.V.: The Physics of Tablet Compression. II. The Influence of Degree of Compression on Properties of Tablets. In: *Journal of the American Pharmaceutical Association* 42 (1953), Nr. 4, S. 194–200
- [Higuchi u. a. 1965] Higuchi, T. ; Shimamoto, T. ; Eriksen, S. ; Yashiki, T.: Physics of Tablet Compression XIV: Lateral Die Wall Pressure During and After Compression. In: *Journal of Pharmaceutical Science* 54 (1965), Nr. 1, S. 111–118
- [Hölzer und Sjögren 1979] Hölzer, A. ; Sjögren, J.: Instrumentation and calibration of a single-punch press for measuring the radial force during tableting. In: *International Journal of Pharmaceutics* 3 (1979), S. 221–230
- [Hütte 1989] Hütte, e.V.: *Die Grundlagen der Ingenieurwissenschaften*. 29. Auflage. Berlin, Heidelberg, New York, London, Paris, Tokyo, HongKong : Springer Verlag, 1989

- [Jones 1978] Jones, T.M.: Preformulation studies to predict the compaction properties of materials used in tablets and capsules. In: *Acta Pharm. Technol.* 6 (1978), S. 141–159
- [Kalichevsky u. a. 1992] Kalichevsky, M.T. ; Jaroszkiewicz, E.M. ; Ablett, S.: The glass transition of amylopectin measured by DSC, DMTA and NMR. In: *Carbohydrate Polymers* 18 (1992), S. 77–88
- [Kayacier und Singh 2002] Kayacier, A. ; Singh, R.K.: Glass Transition Studies of Baked Tortilla Chips Using Dynamic Mechanical Thermal Analysis. In: *Lebensmittel-Wissenschaft und Technologie* 35 (2002), S. 34–37
- [Khalloufi u. a. 2000] Khalloufi, S. ; El-Maslouhi, Y. ; Ratti, C.: Mathematical Model for Prediction of Glass Transition Temperature of Fruit Powders. In: *Journal of Food Science* 65 (2000), Nr. 5, S. 842–848
- [Kikuta und Kitamori 1983] Kikuta, J. ; Kitamori, N.: Evaluation of the Die Wall Friction during Tablet Ejection. In: *Powder Technology* 35 (1983), S. 195–200
- [Klasen 1990] Klasen, C.-J.: *Die Agglomeration partikelförmiger Feststoffe in Matrizenpressen*. Hannover, Fortschrittberichte VDI, Dissertation, 1990. – Reihe 3
- [Konkel 1995] Konkel, P.: *Untersuchungen zur Vergleichbarkeit von Parametern der Tablettierbarkeit Pharmazeutischer Haufwerke an Exzenter- und Rundlauf-Tablettiermaschinen*. Universität Hamburg, Abteilung Pharmazeutische Technologie, Dissertation, 1995
- [Kratzert 2005] Kratzert, M.: *Eigenschaften von Kunststoffen: Die Glasübergangstemperatur*. 2005. – URL www.chemie.fu-berlin.de/fb/fachdid/kunststoffe/glas.htm
- [Krycer u. a. 1982a] Krycer, I. ; Pope, D. ; Hersey, J.: An evaluation of the techniques employed to investigate powder compaction behavior. In: *International Journal of Pharmaceutics* 12 (1982), S. 113–134
- [Krycer u. a. 1982b] Krycer, I. ; Pope, D.G. ; Hersey, J.A.: The interpretation of powder compaction data - a critical review. In: *Drug Dev. Ind. Pharm.* 8 (1982), S. 307–342
- [Lenartz 1998] Lenartz, P.: *Untersuchungen zu speziellen Eigenschaften und zur inneren Struktur von Minitabletten aus Paracetamol und sprühgetrockneter Laktose*. Universität Hamburg, Abteilung Pharmazeutische Technologie, Dissertation, 1998
- [Long 1960] Long, W.M.: Radial Pressures in Powder Compaction. In: *Powder Metallurgy* (1960), Nr. 6, S. 73–86

- [Mitsuiki u. a. 1999] Mitsuiki, M. ; Mizuno, A. ; Motoki, M.: Determination of Molecular Weight of Agars and Effect of the Molecular Weight on the Glass Transition. In: *Journal of Agricultural and Food Chemistry* 47 (1999), S. 473–478
- [Nelson 1955] Nelson, E.: The Physics of Tablet Compression VIII: Some Preliminary Measurements of Die Wall Pressure During Tablet Compression. In: *Journal of the American Pharmaceutical Association* 44 (1955), Nr. 8, S. 494–497
- [Nelson und Labuza 1992] Nelson, K.A. ; Labuza, T.P.: Relationship Between Water and Lipid Oxidation Rates. In: *American Chemical Society, Lipid Oxidation in Food* 6 (1992), S. 93–104
- [Neuhaus 1985] Neuhaus, J.: *Phänomene beim Tablettieren auf Rundläufertablettenpressen*. Universität Bonn, Pharmazeutische Technologie, Dissertation, 1985
- [Palzer und Zürcher 2004a] Palzer, S. ; Zürcher, U.: Kinetik unerwünschter Agglomerationseffekte bei der Lagerung und Verarbeitung amorpher Lebensmittelpulver. In: *Chemie Ingenieur Technik* 76 (2004), Nr. 10, S. 1594–1599
- [Palzer und Zürcher 2004b] Palzer, S. ; Zürcher, U.: Verfestigung im Griff (Teil 1). In: *Lebensmittel Technick* 7-8 (2004), S. 61–63
- [Pauli 2003] Pauli, T.: *Das Horizontallastverhältnis beim Kompaktieren von Pulver. Überprüfung und Inbetriebnahme zweier Sensoren zur Ermittlung der Radialspannung*. Technische Universität München, Lehrstuhl für Maschinen- und Apparatekunde, Diplomarbeit, 2003
- [Polymer-Science-Department 2005] Polymer-Science-Department: *Differential Scanning Calorimetry*. University of Southern Mississippi: , 2005. – URL www.psrc.usm.edu/macrog/dsc.htm.
- [Profitlich 1990] Profitlich, T.: *Messung und Bedeutung von Matrizenwandkräften bei der Tablettierung*. Universität Tübingen, Lehrstuhl für Pharmazeutische Technologie, Dissertation, 1990
- [Ridgway 1966] Ridgway, K.: The use of photoelastic techniques in the measurement of die-wall stress in tableting. In: *J. Pharm. Pharmac.* 18 (1966), S. 176S–181S
- [Ritschel und Bauer-Brandl 2002] Ritschel, W.A. ; Bauer-Brandl, A.: *Die Tablette*. 2. Auflage. Aulendorf : Editio cantor Verlag, 2002

- [Roos 2000] Roos, Y.H.: State Diagram. University College Cork : Department of Food and Nutritional Sciences, 2000. – Lecture 4
- [Ruan und Long 1998] Ruan, R.R. ; Long, Z.: Determination of the Glass Transition Temperature of Food Polymers Using Low Field NMR. In: *Lebensmittel-Wissenschaft und -Technologie* 31 (1998), S. 516–521
- [Schenz 1995] Schenz, T.W.: Glass Transitions and product stability - an overview. In: *Food Hydrocolloids* 9 (1995), Nr. 4, S. 307–315
- [Schlack 2001] Schlack, H.: *Kompressibilität und Kompaktibilität von Hilfsstoffen bei der Tablettierung: Diskriminanzanalytische Bewertung verschiedener Deformationsparameter*. Universität Freiburg, Fakultät für Chemie und Pharmazie, Dissertation, 2001
- [Schulze 2003] Schulze, D.: *Fließeigenschaften von Schüttgütern und verfahrenstechnische Siloauslegung*. 2003. – URL www.dietmar-schulze.de/fr.html
- [Sommer 1990] Sommer, K.: *Verdichtungsmodelle beim Tablettieren*, 1990. – APV-Kurs
- [Steendam u. a. 2001a] Steendam, R. ; Frijlink, H.W. ; Lerk, C.F.: Plasticisation of amylopectin by moisture. Consequences for compaction behaviour and tablet properties. In: *European Journal of Pharmaceutical Sciences* 14 (2001), S. 245–254
- [Steendam u. a. 2001b] Steendam, R. ; Steenberghe, M.J. van ; Hennink, W.E. ; Frijlink, H.W. ; Lerk, C.F.: Effect of molecular weight and glass transition on relaxation and release behavior of poly (DL-lactic acid) tablets. In: *Journal of Controlled Release* 70 (2001), S. 71–82
- [Strahm und Plattner 2001] Strahm, B. ; Plattner, B.: *The Phase Transition Analyzer and its Impact on Extrusion Processing of Foodstuffs*. Presented at the North American Thermal Analysis Society (NATAS) : St. Louis, MO, 2001
- [Szabó 1963] Szabó, I.: *Einführung in die Technische Mechanik*. 6. Auflage. Berlin, Göttingen, Heidelberg : Springer Verlag, 1963
- [Verdonck u. a. 1999] Verdonck, E. ; Schaap, K. ; Thomas, L.C.: A Discussion of the principles and applications of Modulated Temperature DSC (MTDSC). In: *International Journal of Pharmaceutics* 192 (1999), S. 3–20

- [Windheuser u. a. 1963] Windheuser, J. ; Misra, J. ; Eriksen, S. ; Higuchi, T.: Development of Die-Wall Pressure During Compression of Various Materials. In: *Journal of Pharmaceutical Science* 52 (1963), Nr. 8, S. 767–772
- [Wölfer 1978] Wölfer, K.H.: *Elastisch gebettete Balken und Platten. Zylinderschalen*. 4. Auflage. Wiesbaden, Berlin : Bauverlag, 1978
- [Wurster u. a. 1995] Wurster, D.E. ; Rowlings, C.E. ; Creekmore, J.E.: Calorimetric analysis of powder compression: I. Design and development of a compression calorimeter. In: *International Journal of Pharmaceutics* 116 (1995), S. 677–684
- [Zimmer 1996] Zimmer, J.: *Einfluss der Press- und Lageratmosphäre auf die physikalischen Eigenschaften von Tabletten*. Freising, Fortschrittberichte VDI, Dissertation, 1996

A Kalibrierung der Matrizenwandkraft

A.1 Steigungen der DMS-Reihen bei variierender Flächenbelastung

Tabelle A.1: Steigung DMS-Reihe 1-4 Flächenbelastung

DMS1 Position 14,3 mm	
Wasserhöhe [mm]	Steigung [mV/V*MPa]
2,9441	0,0171988
5,4190	0,0196106
7,6115	0,0206189
9,8098	0,0216014
12,412	0,0210847
14,099	0,0214611
15,814	0,0205501

DMS2 Position 16,5 mm	
Wasserhöhe [mm]	Steigung [mV/V*MPa]
2,9441	0,0156985
5,4190	0,0194100
7,6115	0,0212200
9,8098	0,0222300
12,412	0,0228522
14,099	0,0232395
15,814	0,0226700

DMS 3 Position 18,7 mm	
Wasserhöhe [mm]	Steigung [mV/V*MPa]
2,9441	0,0116549
5,4190	0,0168004
7,6115	0,0196900
9,8098	0,0217900
12,412	0,0228528
14,099	0,0233939
15,814	0,0232212

DMS4 Position 20,9 mm	
Wasserhöhe [mm]	Steigung [mV/V*MPa]
2,9441	0,0073875
5,4190	0,0128694
7,6115	0,0170516
9,8098	0,0202900
12,412	0,0225999
14,099	0,0238730
15,814	0,0238100

Tabelle A.2: Steigung DMS-Reihe 5-7 Flächenbelastung

DMS5 Position 23,1 mm	
Wasserhöhe [mm]	Steigung [mV/V*MPa]
2,9441	0,0041122
5,4190	0,0083108
7,6115	0,0127148
9,8098	0,0170433
12,412	0,0208339
14,099	0,0227961
15,814	0,0233300

DMS6 Position 25,3 mm	
Wasserhöhe [mm]	Steigung [mV/V*MPa]
2,9441	0,0019373
5,4190	0,0046337
7,6115	0,0080413
9,8098	0,0124679
12,412	0,0176997
14,099	0,0203702
15,814	0,0220700

DMS7 Position 27,5 mm	
Wasserhöhe [mm]	Steigung [mV/V*MPa]
2,9441	0,0006509
5,4190	0,0021372
7,6115	0,0043057
9,8098	0,0076271
12,412	0,0129910
14,099	0,0166742
15,814	0,0193869

A.2 Steigungen der DMS-Reihen bei variierender Einzelbelastung

Tabelle A.3: Steigung DMS-Reihe 1-2 Einzelbelastung

DMS1 Position 14,3 mm	
Belastung	Steigung [mV/V*Mpa]
DMS 1 solo	0,0171988
DMS 2 solo	0,0167548
DMS 3 solo	0,0115181
DMS 4 solo	0,0081103
DMS 5 solo	0,0045015
DMS 6 solo	0,0018548
DMS 7 solo	0,0004531

DMS2 Position 16,5 mm	
Belastung	Steigung [mV/V*Mpa]
DMS 1 solo	0,0156985
DMS 2 solo	0,0174882
DMS 3 solo	0,0152594
DMS 4 solo	0,0124918
DMS 5 solo	0,0080175
DMS 6 solo	0,0040237
DMS 7 solo	0,0016156

Tabelle A.4: Steigung DMS-Reihe 3-7 Einzelbelastung

DMS3 Position 18,7 mm	
Belastung	Steigung [mV/V*Mpa]
DMS 1 solo	0,0116549
DMS 2 solo	0,0153266
DMS 3 solo	0,0162793
DMS 4 solo	0,0156533
DMS 5 solo	0,0121239
DMS 6 solo	0,0073187
DMS 7 solo	0,0036404

DMS4 Position 20,9 mm	
Belastung	Steigung [mV/V*Mpa]
DMS 1 solo	0,0073875
DMS 2 solo	0,0115712
DMS 3 solo	0,0154059
DMS 4 solo	0,0171895
DMS 5 solo	0,0159112
DMS 6 solo	0,0118348
DMS 7 solo	0,0069003

DMS5 Position 23,1 mm	
Belastung	Steigung [mV/V*Mpa]
DMS 1 solo	0,0041122
DMS 2 solo	0,0073616
DMS 3 solo	0,0119017
DMS 4 solo	0,0157845
DMS 5 solo	0,0171794
DMS 6 solo	0,0155363
DMS 7 solo	0,0108877

DMS6 Position 25,3 mm	
Belastung	Steigung [mV/V*Mpa]
DMS 1 solo	0,0019373
DMS 2 solo	0,0040887
DMS 3 solo	0,0076020
DMS 4 solo	0,0121493
DMS 5 solo	0,0160606
DMS 6 solo	0,0171543
DMS 7 solo	0,0144863

DMS7 Position 27,5 mm	
Belastung	Steigung [mV/V*Mpa]
DMS 1 solo	0,0006509
DMS 2 solo	0,0019074
DMS 3 solo	0,0042629
DMS 4 solo	0,0077992
DMS 5 solo	0,0125441
DMS 6 solo	0,0157008
DMS 7 solo	0,0157181

B Daten für Mathcadberechnungen

B.1 Daten für λ -Berechnung

Tabelle B.1: Rohsignale der einzelnen DMS-Reihen

Rohsignal [mV/V*MPa]	belastete DMS-Reihe [mV/V*MPa]						
	1	2	3	4	5	6	7
DMS 1	0,0171988	0,0167548	0,0115181	0,0081103	0,0045015	0,0018548	0,0004531
DMS 2	0,0156985	0,0174882	0,0152594	0,0124918	0,0080175	0,0040237	0,0016156
DMS 3	0,0116549	0,0157120	0,0162793	0,0156533	0,0121239	0,0073187	0,0036404
DMS 4	0,0073875	0,0115712	0,0154059	0,0171895	0,0159112	0,0118348	0,0069003
DMS 5	0,0041220	0,0073616	0,0119017	0,0157845	0,0171794	0,0155363	0,0108877
DMS 6	0,0019373	0,0040887	0,0076020	0,0121493	0,0160606	0,0171543	0,0144863
DMS 7	0,0006509	0,0019074	0,0042629	0,0077992	0,0125441	0,0157008	0,0157181

B.2 Daten für Berechnung der radialen Druckverteilung

Tabelle B.2: Daten für Berechnung der radialen Druckverteilung

DMS-Reihe	λ	K	Wasserhöhe	Anpassungsparameter b
	[1/m]	Pa	[mm]	[1/N]
1	1,294	9,109E+08	2,94657	230
2	1,312	9,439E+08	3,02018	250
3	1,218	9,014E+08	3,11830	210
4	1,225	8,565E+08	3,08994	210
5	1,222	8,604E+08	3,11738	210
6	1,299	9,825E+08	3,14777	230
7	1,294	1,069E+09	3,16552	230