

Comparaison entre les prédictions d'un modèle de résistance de contact polymère/métal et l'évolution de celles-ci en moulage par injection.

Saannibe Ciryle SOME^a, Didier DELAUNAY^{a(*)}, Jalal FARAJ^a, Jean-Luc BAILLEUL^a, Nicolas BOYARD^a, Stéphane QUILLIET^b

(a) : Université de Nantes, Nantes Atlantique Universités, CNRS, Laboratoire de Thermocinétique de Nantes, UMR 6607, La Chantrerie, rue Christian Pauc, BP 50609, 44306 Nantes cedex 3, France

(b) : Roctool, Savoie Technolac - BP 341, 34 Allée du lac d'Aiguebelette 73377 Le Bourget du Lac Cedex, France.

*(auteur correspondant : didier.delaunay@univ-nantes.fr)

Résumé - La prédiction des RTC et de leur évolution aux interfaces polymères/métal dans les procédés de plasturgie est un point-clé qui constitue un grand challenge pour les ingénieurs thermiciens confrontés à la nécessité de simulation de ces procédés. Dans des études récentes [1], les modèles utilisés pour les solides rugueux en contact ont été adaptés pour prédire les résistances d'interface liquide visqueux/solide en état stationnaire avec une pression variable ou en transitoire avec une pression constante. L'étude présentée ici a pour sujet l'application de ces modèles pour prédire l'évolution des RTC à l'interface entre un métal et des polymères amorphes et semi-cristallins dans le procédé d'injection des thermoplastiques. Les températures de surface et les pressions varient puisque le polymère refroidit en se solidifiant alors que le volume de la cavité moulante reste constant. Le modèle a été comparé aux résultats expérimentaux d'études antérieures [2], et on constate que le modèle prédit raisonnablement bien les valeurs expérimentales, pour plusieurs rugosités de paroi de cavité moulante.

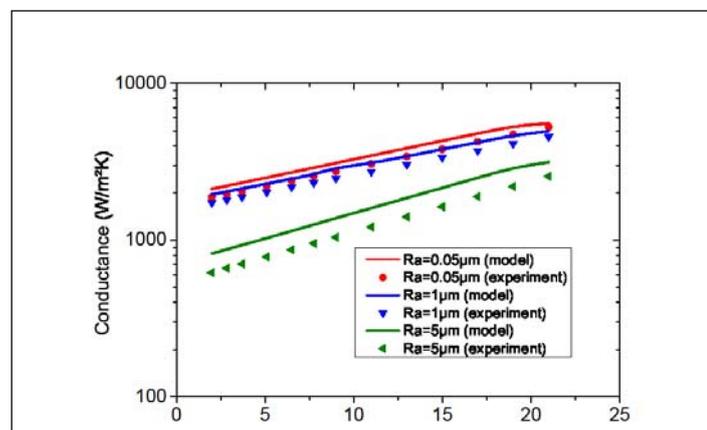


Figure 1 : Conductance ABS/acier pour différentes rugosités de cavité moulante

[1] S. C. Somé , Didier Delaunay, Vincent Gaudefroy, Comparison and validation of thermal contact resistance models at solid-liquid interface taking into account the wettability parameters Applied Thermal Engineering 61 (2013) 531-540.

[2] S. Quilliet, P. Le Bot, D. Delaunay, Y. Jarny, Heat Transfer at the Polymer-Metal Interface: A Method of Analysis and Its Application to Injection Molding, HTD vol 340 ASME Proceedings of the 32nd National Heat Transfer Conference Vol.2 Inverse Problems in Heat Transfer and Fluid Flow (1997)

Nomenclature

a_m	rayon moyen des points de contact, m
h_c	conductance de contact, $Wm^{-2}K^{-1}$
n_m	densité de points de contact, m^{-2}
p	pression appliquée, Pa
Ra	rugosité, μm
R_c	résistance de constriction, Km^2W^{-1}
RTC	résistance thermique de contact, Km^2W^{-1}
$Y(t)$	épaisseur d'air équivalente, m

Symboles grecs

ϕ	loi de distribution des aspérités
λ	conductivité thermique, $Wm^{-1}K^{-1}$

Indices et exposants

s	solide
l	liquide

1. Introduction

La connaissance de l'évolution des conditions d'interface entre un polymère et une paroi métallique est essentielle pour prédire le refroidissement des pièces en plasturgie. En effet, celles-ci sont généralement minces car les polymères sont mauvais conducteurs et de faibles épaisseurs sont alors imposées par des impératifs de productivité. Les temps de cycle sont de quelques dizaines de secondes dans le procédé d'injection par exemple, et on vise une minute pour les composites thermoplastiques. Les résistances thermiques de contact polymère moule sont alors des paramètres de premier ordre pour le temps de refroidissement. Dans les procédés de plasturgie, et notamment l'injection, les pressions varient fortement pendant le refroidissement, et induisent des variations de résistances. Les travaux antérieurs ont clairement montré qu'il y a un très fort couplage entre les transferts de chaleur et le comportement thermomécanique du polymère [1]. Son évolution est liée au retrait qui provoque la diminution de la pression dans la cavité de la cavité moulante. Des expériences d'injection [2-5] montrent qu'entre l'injection et l'éjection de la pièce, la RTC à l'interface varie de $2.10^{-4} Km^2W^{-1}$ à $2.10^{-3} Km^2W^{-1}$. Cependant, à notre connaissance, il n'y a aucun résultat récent sur la prédiction des RTC dans les conditions d'injection. Plusieurs études [6-8] proposent des extensions des modèles de résistance solide-solide aux contacts solides-liquides à pression constante imposée prenant en compte les paramètres de mouillage. Un modèle récent [9] a été développé et il prévoit bien l'évolution des RTC dans le cas du couple bitume fondu granulat. Cet article concerne l'extension de ce modèle à l'injection des thermoplastiques, pour décrire les résistances à l'interface entre le moule métallique et un polymère amorphe ou semi-cristallin en cours de solidification, la pression appliquée et la température à l'interface variant alors au cours du temps. Des résultats expérimentaux sur cette évolution existent dans la littérature [10,11], et ils serviront de base à l'évaluation du modèle. Ils sont reportés dans les figures (5) et (6). Le problème à résoudre fait appel au couplage de trois thématiques :

- les transferts de chaleur dans le matériau en cours de transformation, qui peut être semi-cristallin, et dont les propriétés varient en fonction de la température et de l'état. Ces variations auront notamment une influence sur les constriction au voisinage de l'interface.

- Les aspects mécaniques dans la cavité moulante, liés au retrait qui conditionne la pression à la paroi, celle-ci déterminant les caractéristiques de l'espace interstitiel créé par l'air emprisonné dans les rugosités. En phase fondue, l'angle de contact du polymère avec la paroi métallique et la tension de surface seront impliqués dans l'équilibre des forces au niveau de l'interface triple air, polymère, métal.

- la modélisation des constriction qui suppose une description de la topographie de la surface.

Après un bref rappel des résultats expérimentaux, chacun de ces aspects va être décrit, ainsi que leur couplage pour construire le modèle de résistance.

2. Rappel des résultats expérimentaux de l'évolution des RTC.

Dans les travaux de S. Quilliet [10,11] auxquels le lecteur pourra se référer, les polymères fondus (ABS amorphe et PP semi-cristallin) ont été injectés à 240 °C dans une cavité moulante d'épaisseur 3mm. dont la surface est à 65 °C au moment de l'arrivée du polymère fondu. La pression dans la cavité moulante après la fin du remplissage présente l'allure caractéristique montrée sur la figure 1.

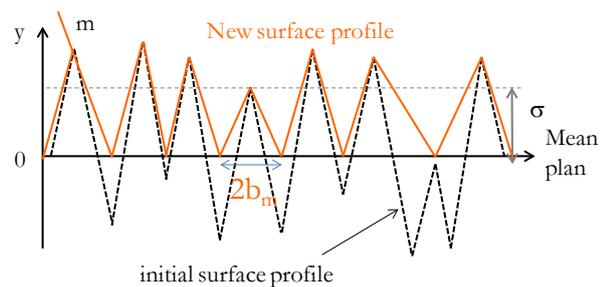
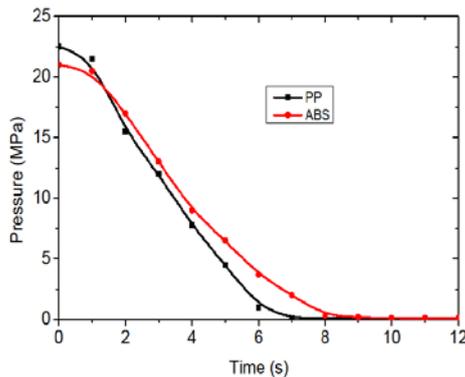


Figure 1 : Evolution de la pression de contact pendant un cycle d'injection. Figure 2 : image des surfaces initiale et modifiée.

La pression décroît de la pression de compactage imposée à la fin du remplissage pour compenser les retraits, jusqu'à la pression atmosphérique. En effet, le seuil d'entrée en pièce se solidifiant très rapidement, le refroidissement se fait de manière isochore, et la pression diminue en suivant le volume spécifique qui décroît à cause des retraits thermiques et de cristallisation (pour le PP). Le moule en acier était muni d'une cavité moulante présentant plusieurs rugosités ($Ra=0.05, 1$ et $5 \mu m$), ainsi que des surfaces chromées et téflonnées. La figure 5 présente les résultats pour l'ABS et le PP respectivement. La figure 6 présente les résultats de conductance d'interface (l'inverse des résistances) pour l'ABS et les différents revêtements de surface. Ces figures sont reconstituées à partir des résultats de Quilliet [10]. La variable temps n'apparaît plus, mais elle est présente au travers de la pression qui évolue au fur et à mesure du refroidissement. On constate que les conductances sont d'autant plus grandes que les surfaces sont faiblement rugueuses ($Ra=0.05 \mu m$ correspond au poli miroir). Pour le polymère amorphe, on observe une évolution linéaire du logarithme de la conductance en fonction de la pression. Ce n'est pas le cas pour le PP qui présente un retrait de cristallisation qui s'ajoute au retrait thermique seul présent pour l'ABS. On constate sur la figure (6) que les surfaces chromées et en acier conduisent à des conductances plus élevées que celle recouverte de téflon (PTFE). Ceci est dû au caractère hydrophobe du téflon qui assure un moins bon mouillage et une pénétration moins importante du polymère dans les rugosités.

3. Modélisation de l'évolution des résistances thermiques de contact.

3.1. Description de la topographie de surface

Dans les calculs suivants, les surfaces sont supposées Gaussiennes, c'est-à-dire présentent des aspérités dont la hauteur y ont une distribution $\phi_{init}(y)$ donnée par l'équation (1) (voir figure 2).

$$\phi_{init}(y) = \frac{1}{\sigma_{init} \sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_{init}^2}\right) \quad y \in]-\infty, +\infty[\quad (1)$$

σ_{init} est l'écart type des hauteurs des aspérités du profil "initial". On montre [7] que l'équation (1) est identique à l'équation (2), quand la surface initiale est transformée en une nouvelle surface représentée sur la figure (3).

$$\phi(y) = \frac{2}{\sigma \sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma^2}\right) \quad y \in [0, +\infty[\quad (2)$$

où $\sigma^2 = \sigma_{init}^2 (1 - 2/\pi)$.

Les avantages de cette nouvelle représentation sont que toutes les "vallées" sont remises au même niveau $y=0$, permettant de définir une profondeur de pénétration quand le fluide mouille les aspérités.

On suppose de plus que les aspérités sont réparties de manière uniforme sur la surface de contact apparente, que le gaz piégé dans les vallées des rugosités suit la loi des gaz parfaits, que les aspérités sont des cônes dont le diamètre de base moyen b_m est issu de mesures profilométriques ($b_m = R_{sm}/2 = Ra/m$). Les paramètres ainsi mesurés sont: Ra , $Rq (= \sigma_{init}$ pour une surface gaussienne) et R_{sm} , respectivement les rugosités arithmétiques, quadratiques et l'espace moyen entre pics. m est la pente moyenne du profil déduit de ces mesures. Les paramètres de rugosité des surfaces testées sont les suivants, allant du poli miroir à la surface rugueuse dite « toucher soft » : surface 1: $Ra=0.05 \mu m$, $Rq=0.06 \mu m$, $m=0.018$, surface 2: $Ra=1 \mu m$, $Rq=01.25 \mu m$, $m=0.085$, surface 3: $Ra=5 \mu m$, $Rq=6.25 \mu m$, $m=0.1897$.

3.2. Modèle thermomécanique du polymère fondu en contact avec le moule.

La figure 3 représente, à l'échelle microscopique l'interface de contact entre le polymère et le moule.

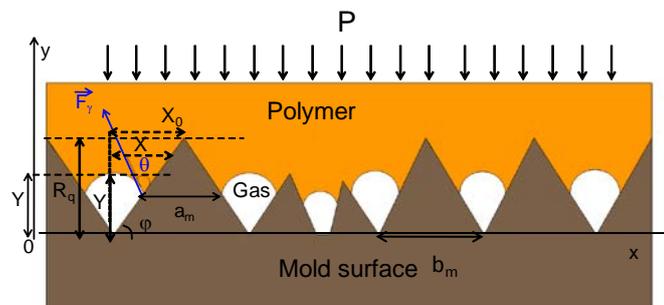


Figure 3 : configuration microscopique de la surface mouillée

Les transferts de chaleur à l'interface ont lieu par les points de contact et au travers du gaz interstitiel. Nous supposons que les transferts radiatifs sont négligeables. Par rapport aux modèles classiques de contact solide-solide, les liquides n'obéissent pas aux lois de l'élasticité ou de la plasticité utilisées pour prédire les déformations de l'interface, car le liquide pénètre dans les vallées de la rugosité du solide sans les déformer. Partant de l'expression établie par Cooper et alii [12] pour la résistance de constriction r_c pour une aspérité unique, on montre que pour N aspérités identiques uniformément réparties sur la surface de contact, la densité de points de contacts n_m est $n_m = N/A_a$. La résistance globale de constriction s'exprime alors par :

$$\frac{1}{R_c} = h_c = \sum \frac{1}{r_{c,i}} = 2\lambda_m n_m \frac{a_m}{\psi} \quad (3)$$

λ_m ($\lambda_m = 2\lambda_{\text{polymère}} \lambda_{\text{moule}} / (\lambda_{\text{polymère}} + \lambda_{\text{moule}})$) est la conductivité harmonique moyenne des matériaux en contact, a_m est le rayon moyen des points de contact, ψ le coefficient de constriction moyen et h_c la conductance de constriction. La valeur proposée par Cooper et alii [12] est $\Psi = (1 - a_m/b_m)^{1.5}$. On obtient donc la résistance de constriction moyenne, en supposant que les microcontacts sont identiques (cette hypothèse peut s'avérer une cause d'écart entre les mesures et le modèle) :

$$\frac{1}{R_c} = h_c = 2\lambda_m n_m \frac{a_m}{\left(1 - \frac{a_m}{b_m}\right)^{1.5}} \quad (4)$$

Pour déterminer n_m , λ_m and a_m , on suppose que le gaz piégé dans les aspérités suit la loi des gaz parfaits : $p_v/T = p_0 v_0/T_0$. p_0 est la pression atmosphérique et p est donné par $p = p_{\text{appl}} - (p_\gamma + p_0)$. p_{appl} est la pression appliquée et p_γ la pression capillaire due au phénomène de mouillage. Elle peut s'exprimer en fonction de la tension de surface du polymère fondu γ_1 et des angles θ et φ de la figure (3) par :

$$p_\gamma = \frac{2\gamma_1 \sin(\theta + \varphi)}{Y \cot \varphi} \quad (5)$$

Les volumes v and v_0 sont calculés en utilisant la distribution donnée par la relation (2). L'épaisseur d'air équivalente Y peut alors être obtenue itérativement en couplant la loi des gaz parfaits et la relation (5). On obtient alors l'expression (6):

$$Y = \sigma \left(\frac{2}{\pi}\right)^{\frac{1}{6}} \cdot \left(2 \frac{p_0}{p_{\text{appl}} - (p_0 + p_\gamma)} \cdot \frac{T}{T_0}\right)^{\frac{1}{3}} \quad (6)$$

La densité de micro-contacts n_m , le rayon moyen des points de contact a_m et le diamètre moyen de la base des aspérités coniques b_m peuvent s'exprimer à partir de la loi gaussienne de distribution des aspérités, conduisant à l'expression de la résistance de constriction R_c :

$$\frac{1}{R_c(t)} = h_c(t) = \frac{2}{\pi} \lambda_m \cdot \left(\frac{m}{\sigma}\right)^2 \cdot \frac{\frac{1}{m} \left\{ \frac{2\sigma}{\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{Y^2(t)}{2\sigma^2}\right) - Y(t) \cdot \text{erfc}\left(\frac{Y(t)}{\sigma\sqrt{2}}\right) \right\}}{\left(\frac{R_a}{m} - \frac{1}{m} \left\{ \frac{2\sigma}{\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{Y^2(t)}{2\sigma^2}\right) - Y(t) \cdot \text{erfc}\left(\frac{Y(t)}{\sigma\sqrt{2}}\right) \right\}\right)^{1.5}} \quad (7)$$

Si λ_f est la conductivité du gaz d'épaisseur $Y(t)$, on obtient in -fine la résistance de contact en mettant en parallèle les deux chemins de transfert: $1/R_{TC} = 1/R_c + \frac{\lambda_f}{Y(t)}$.

Pour simuler le procédé d'injection, les équations thermomécaniques (6) et (7) peuvent être implémentées dans le code pour calculer les conditions aux limites de la pièce en fonction des températures et pressions. La conductivité harmonique λ_m est alors calculée à la température classique de contact. On suppose de plus que les constriction sont à chaque instant

pleinement développées, alors que les aires de contact évoluent avec la pression. L'influence de cette hypothèse devra être testée par simulation numérique.

La tension de surface des polymères a été calculée à partir des composantes polaires et dispersive issues des références [13] et [14]. Leurs évolutions seront approximées par des droites (figure 4).

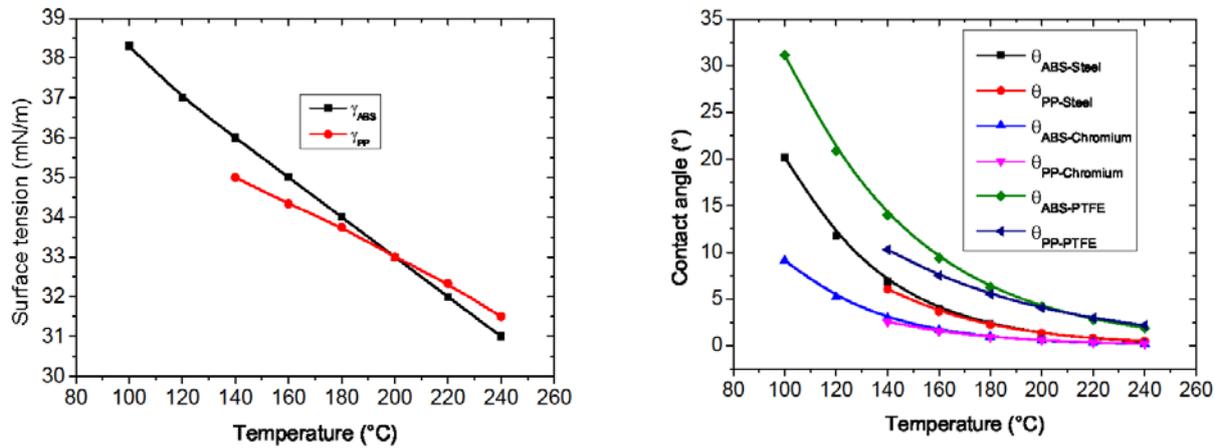


Figure 4 : pour l'ABS et le PP ; tension de surface et angle de contact

Les énergies de surface des cavités moulantes et les tensions de surface des thermoplastiques permettent de calculer les angles de contact à partir de la relation d' Owens-Wendt's équation (8) donnée par la référence [15] :

$$\gamma_l(1 + \cos(\theta)) = 2\sqrt{\gamma_s^D \gamma_l^D} + 2\sqrt{\gamma_s^P \gamma_l^P} \quad (8)$$

Les indices s et l se réfèrent au solide et au liquide. Les exposants D et P se réfèrent aux composantes polaires et dispersives. L'évolution des angles de contact ainsi obtenus est représenté sur la figure (4) jusqu'aux températures de changement d'état.

3.3. Modèle thermique changement de phase.

Pendant la solidification du polymère, quand il est à l'état cristallin, la cinétique de cristallisation doit être prise en compte pour calculer l'évolution des constrictions dues à la modification des conductivités thermiques dans la peau au contact de la paroi. On utilise des modèles développés dans des travaux antérieurs [3] pour coupler les transferts thermiques et la cristallisation.

4. Comparaison du modèle avec les résultats expérimentaux.

La figure (5) présente la comparaison entre les résultats expérimentaux et le modèle pour différentes rugosités de surface de cavité moulante dont les paramètres de rugosité sont donnés au paragraphe 3.1, et les évolutions de pression montrées figure (1). Le modèle reproduit très bien les allures des évolutions. L'accord est excellent pour le fondu pour toutes les rugosités. Le modèle décrit bien la décroissance de la conductance pendant le refroidissement (dans le sens des pressions décroissantes) et il confirme pour le PP la faible variation de la résistance pour la surface ayant la plus faible rugosité (poli miroir). La description est moins bonne pour le PP. On doit cependant noter que les résultats expérimentaux [10] sont obtenus en calculant la température de surface du polymère par un modèle direct, en utilisant comme condition à la limite le flux mesuré à l'interface polymère-

moule. Le modèle mettait en œuvre une méthode enthalpique, Nous avons montré [16] que la cinétique impacte le calcul de la température de surface, et donc celui de la RTC.

Le modèle a été utilisé pour prédire les résistances pour plusieurs natures de surface de rugosités identiques égales à $1\mu\text{m}$. La surface d'acier a été comparée à deux parois, une chromée et l'autre recouverte de téflon. Les résultats sont présentés figure (6). La conductivité et la pression capillaire sont modifiées. L'influence est négligeable en passant de l'acier au chrome, ce que le modèle confirme. Elle est particulièrement marquée pour le téflon, à cause de son caractère hydrophobe. Les résultats sont en bon accord avec les mesures, notamment pour les parois métalliques.

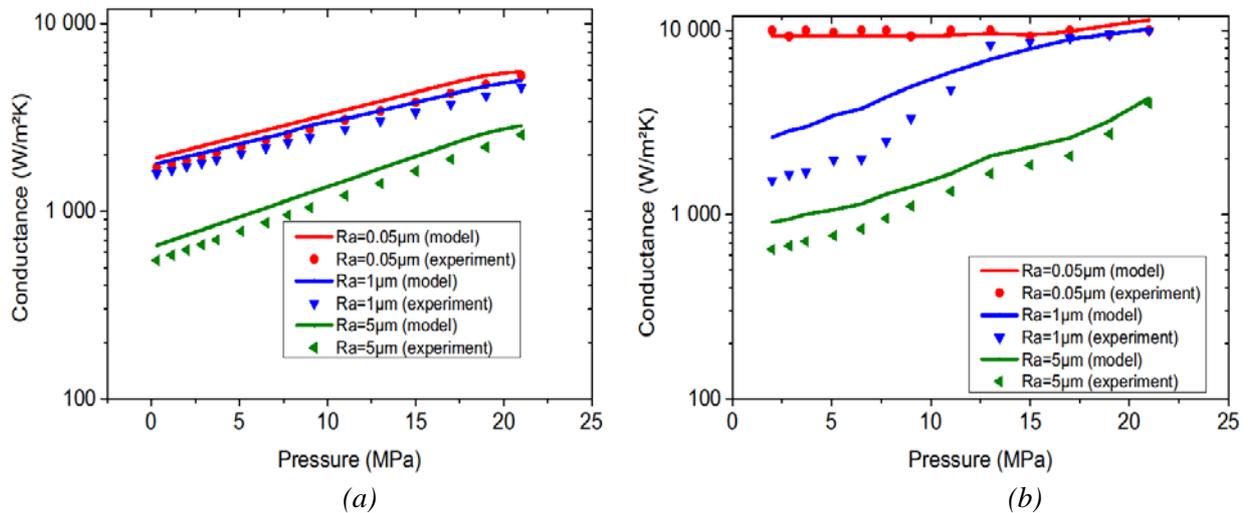


Figure 5 : conductance pour plusieurs rugosités de moule en acier ; (a): ABS, (b) : PP

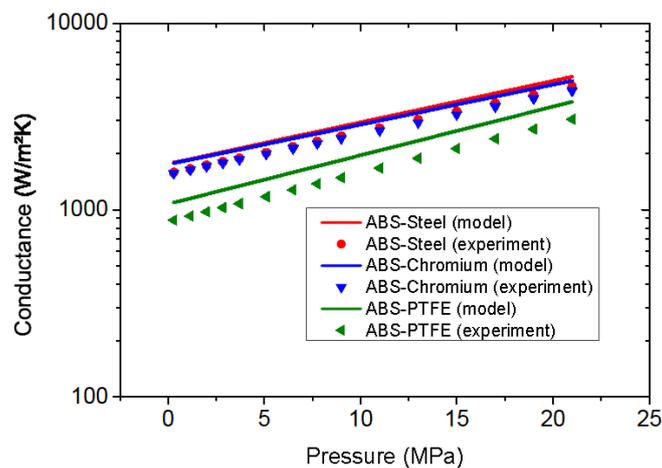


Figure 6 : conductance ABS-acier, ABS-téflon, ABS-chrome

5. Conclusion

La capacité du modèle proposé à prévoir l'évolution temporelle de la résistance polymère-métal en fonction des conditions de pression et de la nature des surfaces en contact, ainsi que de leur rugosité est avérée. Nous avons montré que les modèles de prédiction pour des contacts solide-liquide visqueux à pression et température constantes peuvent être étendus à des cas où ces deux paramètres varient dans le temps. Il faut noter que ce modèle n'est plus valide quand le polymère se décolle de la paroi puisqu'il ne pénètre plus dans les rugosités.

Des mesures directes de la température de surface du polymère par exemple en utilisant une fibre optique et un détecteur idoine constitueraient une avancée notable en améliorant la précision des mesures, car les valeurs obtenues le sont de manière indirecte faisant appel à une modélisation perfectible pour les semi-cristallins.

Références

- [1] H. Massé, E. Arquis, D. Delaunay, S. Quilliet, P.H. Le Bot, Heat transfer with mechanically driven thermal contact resistance at the polymer-mold interface in injection molding of polymers, *International Journal of Heat and Mass Transfer* 47 (2004) 2015-2027.
- [2] A. Bendada, A. Derdouri, M. Lamontagne, Y. Simard, Analysis of thermal contact resistance between polymer and mold in injection molding, *Applied Thermal Engineering* 24 (2004) 2029–2040.
- [3] R. Le Goff, G. Poutot, D. Delaunay, R. Fulchiron, E. Koscher, Study and modeling of heat transfer during the solidification of semi-crystalline polymers *International Journal of Heat and Mass Transfer* 48 (2005) 5417-5430.
- [4] D. Delaunay, P. Le Bot, R. Fulchiron, J.F. Luyé, G. Régnier, Nature of contact between polymer and mold in injection molding. Part I: Influence of a non-perfect thermal contact, *Polymer Engineering Science*, Vol. 40 N°7 July (2000), 1682-1691.
- [5] Chi J. Yu, J. E. Sunderland, C. Poli, Thermal contact resistance in injection molding, *Polymer engineering and Science*, Vol. 30, Issue 24, December (1990) 1599–1606.
- [6] R. S. Prasher, Surface Chemistry and Characteristics Based Model for the Thermal Contact Resistance of Fluidic Interstitial Thermal Interface Materials, *AMSE Journal of Heat Transfer*, Vol. 123 (2001) 969-975.
- [7] A. Hamasaid, G. Dour, T. Loulou, M.S. Dargusch, A predictive model for the evolution of the thermal conductance at the casting-die interfaces in high pressure die casting, *International Journal of Thermal Sciences* 49 (2010) 365-372.
- [8] C. Yuan, B. Duan, L. Li, B. Shang, X. Lu. An improved model for predicting thermal contact resistance at liquid-solid interface, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol. 80, (2015) 398-406
- [9] S. C. Somé, D. Delaunay, V. Gaudefroy, Comparison and validation of thermal contact resistance models at solid-liquid interface taking into account the wettability parameters *Applied Thermal Engineering* 61 (2013) 531-540.
- [10] S. Quilliet, Transfert thermiques à l'interface polymère-métal dans le procédé d'injection des thermoplastiques, Thèse de doctorat, Université de Nantes 1998. (In French).
- [11] S. Quilliet, P. Le Bot, D. Delaunay, Y. Jarny, Heat Transfer at the Polymer-Metal Interface: A Method of Analysis and Its Application to Injection Molding, *HTD vol 340 ASME Proceedings of the 32nd National Heat Transfer Conference Vol.2 Inverse Problems in Heat Transfer and Fluid Flow* (1997).
- [12] M.G. Cooper, B.B. Mikic, M.M. Yovanovich, Thermal contact conductance *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 12, (1969) 279-300.
- [13] D. Dillard, *Advances in structural adhesive bonding*, Woodhead Publishing (2010).
- [14] J.C. Slattery, L. Sagis, E-S. Oh, *Interfacial transport phenomena*, 2nd Edition Springer Science+Business Media, LLC (2007).
- [15] D.K. Owens, R.C. Wendt, Estimation of the surface free energy of polymers, *J.Appl. Polym. Sci.* 13 (1969) 1741-1747.
- [16] R. Le Goff, D. Delaunay, Effect of crystallisation on the surface temperature of a polymer during injection molding, *Journal of Physics Conference series*, Vol 907, (2007) 1239-1245.