

Développement d'un dispositif expérimental de surmoulage permettant la mesure de la résistance thermique de contact pièce polymère/pièce polymère en conditions industrielles.

Pierre LE MOUËLLIC^{1,2,*}, Nicolas BOYARD², Jean-Luc BAILLEUL², Nicolas LEFEVRE², Thierry GAUDRY¹, Jean-Marc VEILLE¹

¹Cooper Standard, Route des Eaux, 35503 Vitré, France

²Nantes Université, CNRS, Laboratoire de thermique et énergie de Nantes, LTeN, UMR 6607, F-44000 Nantes, France

*(auteur correspondant : pierre.le-mouellic1@etu.univ-nantes.fr)

Résumé - Dans l'industrie automobile, les joints d'étanchéité sont fabriqués par surmoulage de profils en élastomères extrudés. Les élastomères thermoplastiques vulcanisés (TPV) constituent un des types d'élastomères utilisés. Lors du procédé de surmoulage, la qualité du contact thermique est essentielle pour développer la résistance mécanique de l'assemblage. Cet article vise à évaluer, pour la première fois, la qualité du contact thermique entre le TPV extrudé et le TPV injecté pendant les phases de maintien et de refroidissement en conditions procédé. A cette fin, un moule expérimental instrumenté a été conçu, permettant de mesurer les champs de température dans chaque polymère pendant le cycle de surmoulage. Les relevés de température ainsi que les positions des thermocouples servent alors de données d'entrée à la méthode séquentielle inverse de Beck. Les informations quantitatives non intrusives de température de surface et de flux de chaleur ainsi obtenues, permettent d'identifier la Résistance Thermique de Contact (RTC) sur le cycle d'élaboration complet. Il a été observé que les variations de la RTC à l'interface polymère semblent être liées au déséquilibre thermique engendré lors du procédé qui génère un champ de transformation hétérogène.

Nomenclature

T	température, °C	<i>Symboles grecs</i>	
X	position, m	λ	conductivité thermique, W/(m.K)
V	vitesse, m.s ⁻¹	φ	densité surfacique de flux, W/m ²
c_p	chaleur spécifique, J/(kg.K)	ρ	masse volumique, kg/m ³

1. Introduction

Le marché automobile utilise des élastomères thermoplastiques vulcanisés (TPV) pour produire des solutions d'étanchéité statiques. Ceux-ci sont produits par un procédé de vulcanisation dynamique, dont la morphologie résultante est constituée d'une phase élastomère dispersée dans une matrice thermoplastique. La phase élastomère est généralement composée d'éthylène-propylène-diène-monomère (EPDM), et la phase thermoplastique est composée de polypropylène semi-cristallin (PP). Ces matériaux présentent un grand intérêt car ils combinent les caractéristiques des élastomères et la facilité de mise en œuvre des thermoplastiques, réduisant ainsi les temps de cycle et augmentant donc la productivité. Les solutions d'étanchéité statiques sont produites par surmoulage d'un TPV fondu sur un brin de TPV préalablement extrudé. Le cycle de surmoulage est divisé en trois étapes. Au cours de l'étape de remplissage, d'une durée inférieure à une seconde, le TPV fondu est injecté dans une cavité régulée en température, sous de forts taux de cisaillement. Le choc thermique résultant du contact entre le

TPV fondu et le moule induit une densité flux de chaleur conductif élevée, typiquement de l'ordre de 10^5 W/m^2 . Une pression de maintien est ensuite appliquée pour compenser les retraits thermiques et de cristallisation jusqu'au gel du seuil d'injection. Pendant le refroidissement par conduction, le polymère est soumis à des vitesses de refroidissement élevées, typiquement de l'ordre de 200°C/min , et subit la cristallisation de la phase PP. Dans certains cas, le décollement de la pièce du moule métallique ou de l'insert TPV entraîne une chute de la pression dans l'empreinte. Ce phénomène est également responsable d'une modification locale du transfert de chaleur en raison de la lame d'air ainsi formée à l'interface.

La surface réelle de contact entre les TPV est ponctuelle, formant une zone hétérogène où les transferts de chaleur sont multidirectionnels. Les flux de chaleur traversent alors l'interface par deux chemins distincts. Le premier sont les points de contact générant la constriction des tubes de flux [1]. Le second est lié au flux de chaleur à travers le milieu interstitiel. Ce dernier est composé d'un fluide piégé, dont le volume évolue avec le retrait du polymère. En considérant les deux contributions, on définit la résistance thermique de contact globale :

$$RTC = \frac{T_{inj,s} - T_{ex,s}}{\varphi} \quad (1)$$

Où $T_{inj,s}$ et $T_{ex,s}$ sont les températures de surface de chaque TPV et φ est la densité du flux de chaleur traversant l'interface.

La résistance thermique de contact joue un rôle très important dans l'analyse des transferts de chaleur pour de nombreux processus. Pour le moulage par injection, les travaux de recherche se concentrent sur la modélisation et la détermination expérimentale de la RTC à l'interface moule/pièce. Somé *et al.* [2] ont établi un modèle prédictif pour le calcul de la RTC à l'interface polypropylène/moule en acier. Les auteurs ont rapporté une RTC à l'interface variant entre $1.10^{-4} \text{ m}^2.\text{K}.\text{W}^{-1}$ et $1.10^{-3} \text{ m}^2.\text{K}.\text{W}^{-1}$, en fonction de la rugosité du moule. Levy *et al.* [3] ont établi une relation analytique entre le degré de contact intime (le rapport de la surface de contact réelle sur la surface totale de contact) et la RTC. Les auteurs ont montré que la RTC est liée à la surface réelle de contact par les paramètres géométriques de surface ainsi que par la conductivité du gaz interstitiel à l'interface polymère/moule. Une diminution de la RTC a été montrée avec l'augmentation du degré de contact intime : la valeur de RTC chute de $4.10^{-4} \text{ m}^2.\text{K}.\text{W}^{-1}$ à $1.10^{-4} \text{ m}^2.\text{K}.\text{W}^{-1}$ lorsque le degré de contact intime passe de 0.65 à 0.95. Ces études ont montré que la RTC n'est pas constante au cours du cycle d'injection. La détermination de la RTC requiert le calcul des températures de surface des deux milieux en contact ainsi que la densité de flux traversant l'interface. La principale difficulté réside dans la détermination de la température de surface du polymère en raison de l'intrusivité des capteurs. C'est la raison pour laquelle des méthodes inverses ont été utilisées pour calculer la température du moule et le flux thermique traversant l'interface polymère/moule [4].

Bien que la modélisation de la RTC et que des valeurs expérimentales à l'interface polymère/moule soient rapportées dans la littérature, la RTC à l'interface polymère/polymère, n'a jamais été considérée à notre connaissance, ce qui fait le principal caractère innovant de la présente étude. Pour ce faire, un dispositif original de surmoulage instrumenté a été développé afin de calculer, de façon non intrusive les températures de surface et les densités flux thermiques échangées aux interfaces. Les données obtenues permettront, dans de futurs travaux, d'obtenir des conditions aux limites fiables pour la modélisation du procédé de surmoulage.

2. Matériaux et méthodes

2.1. Matériaux

Les matériaux considérés sont deux TPV à base de polypropylène-éthylène propylène diène monomère (PP-EPDM) appelés TPV_{inj} et TPV_{ex}. Le TPV_{inj} est un grade pour le moulage par injection et le TPV_{ex} est un grade pour l'extrusion. Ces deux TPV sont mis en forme dans un moule en acier 40CMD8. La chaleur spécifique de chaque TPV a été déterminée par DSC, leur conductivité au moyen d'une plaque chaude gardée et le volume spécifique au moyen d'un appareil PVT. Les propriétés thermophysiques sont considérées constantes et présentées dans le tableau 1.

	λ	C_p	ρ
	W/(m.K)	J/(m.K)	kg/m ³
TPV _{inj}	0,2	2804	911
TPV _{ex}	0,2	2525	970
Mould 40CMD8	36	475	7850

Tableau 1 : Propriétés mécaniques et thermiques du TPV_{inj}, TPV_{ex} et du moule.

2.2. Méthodes

Cette partie s'attache à présenter le dispositif de surmoulage développé permettant d'obtenir de façon non intrusive les températures de surface ainsi que les densités de flux de chaleur aux interfaces TPV_{inj}/TPV_{ex} et TPV_{inj}/moule. Ces données permettent le calcul de la RTC par l'équation 1.

2.2.1. Validation des transferts de chaleur unidirectionnels

La première étape de développement a consisté à définir une géométrie assurant des transferts de chaleur unidirectionnels à l'interface TPV_{inj}/TPV_{ex}. La géométrie retenue est formée de deux parallélépipèdes de dimensions respectives (80x50x4)mm³ avec une zone de recouvrement de (50x50)mm² (Figure 1). La géométrie du moule est présentée en détail dans la section suivante. La validation des transferts de chaleur unidirectionnels a été effectuée en comparant deux configurations. La première est un schéma tridimensionnel où une condition à la limite de troisième espèce a été appliquée sur toute la surface en contact avec le moule. La seconde est un schéma unidirectionnel où la même condition limite a été appliquée sur les parties supérieure et inférieure de la zone de recouvrement mais avec une condition adiabatique sur les faces latérales (condition de seconde espèce). Les simulations de température pour les deux configurations ont été effectuées le long d'un profil vertical au centre de la zone de recouvrement. La Figure 2 présente les profils de température obtenus pour la configuration 3D (lignes continues) et pour la configuration 1D (symboles) pour des durées comprises entre 0,5s et 50s. Les niveaux de température calculés par le schéma 3D semblent être bien reproduits par le schéma 1D. Cette hypothèse est confirmée par l'analyse des résidus présentés sur la Figure 3, où l'on constate que les écarts maximaux sont de l'ordre de 10°C. Pour la suite, les transferts de chaleur seront considérés comme unidirectionnels à travers l'épaisseur des deux TPV, au centre de la zone de recouvrement pour une durée maximale de 50s.

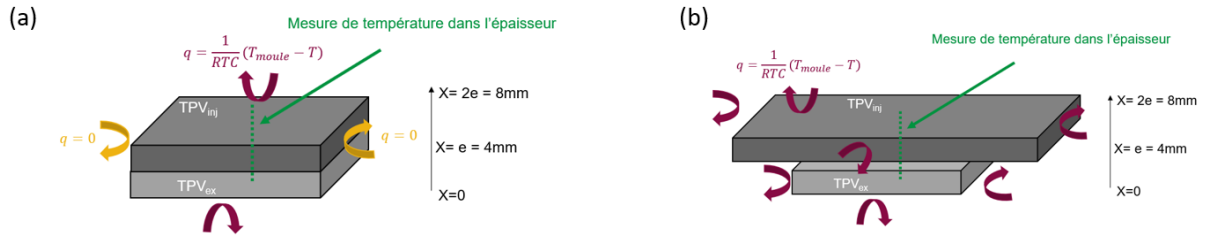


Figure 1: Validation des transferts de chaleur unidirectionnels. (a) Cas 1D. (b) Cas 3D.

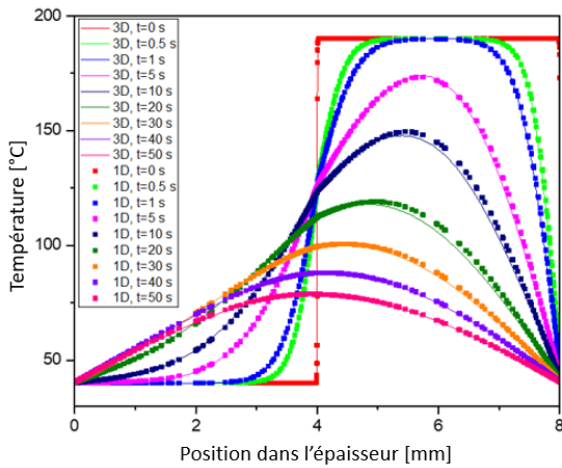


Figure 2 : Comparaison des profils de température selon l'épaisseur et pour différents temps entre le schéma 3D et 1D.

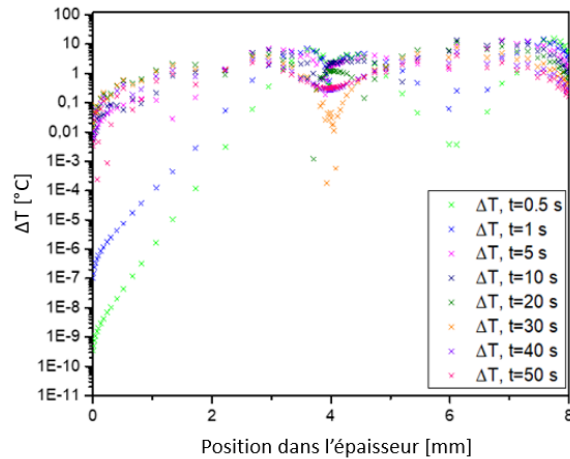


Figure 3 : Résidus entre les schémas 3D et 1D.

2.2.2. Description du moule de surmoulage

Le moule développé a été monté sur une presse à injecter SANDRETTO (950kN). La partie fixe est la cavité moulante. Deux capteurs de pression Kistler © (type 6157B, diamètre 4mm) sont implantés dans le moule, placés respectivement à 10mm de l'entrée ("Pression entrée") et à 70mm de l'entrée ("Pression sortie"). Le moule est équipé d'un capteur de flux thermique KAYME© placé à 35 mm de l'entrée. Il est composé de trois thermocouples de type K implantés respectivement à 0.388mm, 1.759mm et 3.157mm de la surface de la cavité. Pour rendre la mesure non intrusive, le moule et la cellule de flux thermique sont réalisés avec le même acier (40CMD8). Deux cavités de 6mm de diamètre permettent de placer des cylindres en silicone (ALC 990/D) dans la cavité. Ces cylindres permettent de tendre dans la cavité trois thermocouples de type K de 125 μm de diamètre (T_{inj1} , T_{inj2} et T_{inj3}). Deux seuils d'injection sous-marins sont placés dans la cavité de manière que les deux flux de TPV se recouvrent sur les thermocouples, limitant au minimum les mouvements relatifs lors du moulage. Une pièce imprimée par stéréolithographie (SLA) est insérée entre eux et permet de maintenir leurs positions relatives lors du surmoulage. La partie fixe du moule est composée d'une cavité à double usage. La Figure 4 (a) présente la première fonction, qui est de placer un insert de rugosité maîtrisée ($R_a=0.1, 0.8, 2.54, 5.10$ et $15.8\mu\text{m}$) permettant de conférer une rugosité de surface au TPV_{ex}. La Figure 4 (b) présente la deuxième fonction, qui est de placer l'insert TPV_{ex} instrumenté avec trois thermocouples T_{ex1} , T_{ex2} et T_{ex3} lors du surmoulage du TPV_{inj}.

2.2.3. Protocole de surmoulage

Le processus de surmoulage se déroule en deux étapes. La première étape est illustrée à la Figure 4 (a) et consiste à mouler l'insert en TPV_{ex}. Un insert métallique avec une rugosité de surface est fixé dans la partie fixe. Trois thermocouples de type K (T_{ex1} , T_{ex2} et T_{ex3}) sont tendus dans la partie mobile grâce à des cylindres en silicone avec le positionneur de thermocouples SLA. Le TPV_{ex} est ensuite injecté. Après le refroidissement, l'insert métallique avec la rugosité est retiré de la partie fixe et l'insert TPV_{ex} produit y est placé. Trois thermocouples, T_{inj1} , T_{inj2} et T_{inj3} , sont alors tendus dans la partie mobile. Cette étape est suivie de l'injection du TPV_{inj}, comme le montre la Figure 4 (b). Pendant tout le cycle de surmoulage, les niveaux de température sont enregistrés dans les deux TPV, qui servent alors de fluxmètre. Les niveaux de pression et les températures dans le capteur de flux thermique sont également enregistrés.

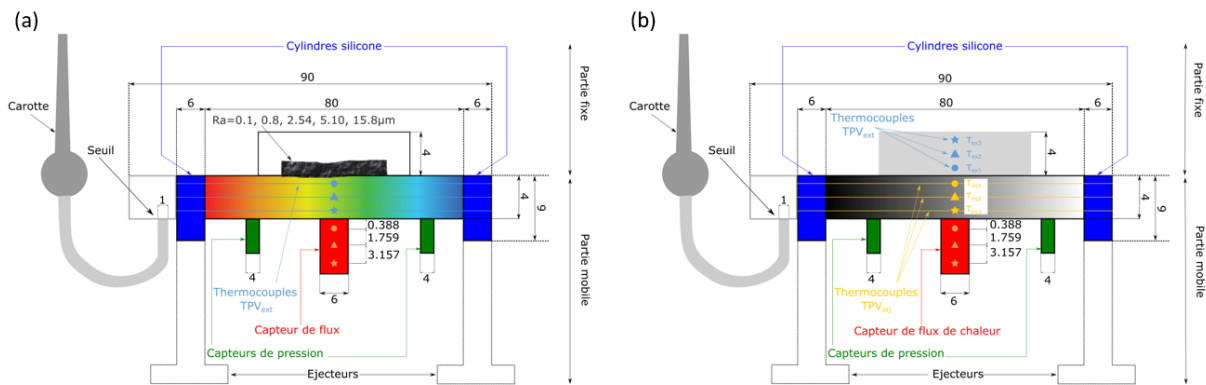


Figure 4 : Moule développé. (a) Injection de l'insert TPV_{ex} instrumenté avec une rugosité contrôlée. (b) Injection du TPV_{inj} instrumenté sur l'insert TPV_{ex}

La Figure 4 (b) présente la configuration finale de la pièce surmoulée. Le TPV_{inj} est en dessous et le TPV_{ex} au-dessus. Les mesures sont effectuées au centre de la zone de recouvrement de (50 x 50)mm². Les paramètres d'injection utilisés pour le moulage du TPV_{ex} et du TPV_{inj} sont présentés dans le tableau 2. La température d'injection est plus élevée pour le TPV_{ex} que pour le TPV_{inj} afin d'avoir une viscosité plus faible. Le TPV_{ex} est moulé avec une rugosité de surface de 5.10µm.

	Température injection	Température de moule	Pression de maintien hydraulique
	°C	°C	bar
TPV _{inj}	190	20	30-30-30
TPV _{ex}	230	20	45-45-45

Tableau 2 : Paramètres d'injection.

3. Résultats

Lors du surmoulage du TPV_{inj} sur le TPV_{ex}, les champs de température sont mesurés par les thermocouples T_{inj1} , T_{inj2} et T_{inj3} dans le TPV_{inj} et T_{ex1} , T_{ex2} et T_{ex3} dans le TPV_{ex}, et sont présentés sur la Figure 6.

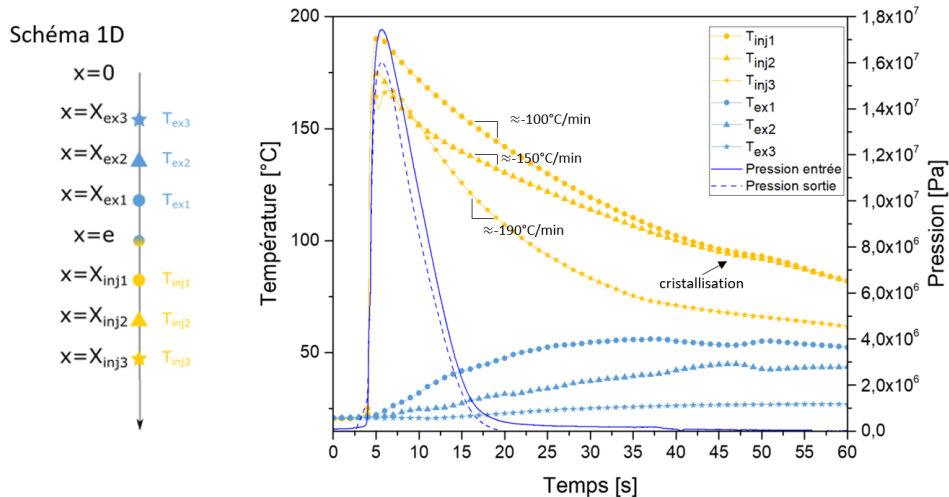


Figure 6 : Températures relevées dans le TPV_{inj} et dans le TPV_{ex} et pression lors du surmoulage.

Avant l'injection, le TPV_{ex} est à la température du moule. À $t=3,8s$, le choc thermique résultant de la rencontre du TPV_{inj} avec le TPV_{ex} induit une augmentation de la température de l'insert jusqu'à atteindre au maximum environ $56^{\circ}C$ à $t=37s$. Les capteurs de pression présentent un décalage d'environ $0,4s$ ainsi qu'une perte de charge d'environ $14bars$. La distance entre les capteurs permet de calculer la vitesse de remplissage $V=0.15 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. Cette valeur est cohérente avec la vitesse d'injection calculée pour du polypropylène par Le Bot [5] en utilisant des capteurs de flux thermique. La phase de refroidissement suit la phase de remplissage. Lorsque le TPV_{inj} refroidit, une inflexion est observée sur le profil de refroidissement à environ $t=40s$. Celle-ci correspond à la libération de la chaleur latente de cristallisation [6]. Cette dernière n'est observée que sur les thermocouples T_{inj1} et T_{inj2} , puisque T_{inj3} est proche de la surface du moule, où la chaleur est évacuée très rapidement. Le calcul des flux de chaleur et des températures de surface pour les deux interfaces considérées a été effectué à l'aide de l'algorithme séquentiel inverse de Beck [7]. L'échelle de temps est décalée de telle sorte que le début du processus, c'est-à-dire $t=0s$, correspond au moment où le TPV_{inj} atteint les thermocouples. La position des thermocouples dans chacun des TPV est une donnée d'entrée pour l'algorithme et a été obtenue par microscopie optique (Keyence VHX-700F). Les températures de surface et les flux de chaleur calculés sont présentés Figure 7.

Le flux de chaleur calculé à la surface du TPV_{inj} est représenté en valeur absolue puisque ce dernier transmet la chaleur au TPV_{ex} qui est initialement à la température du moule. Considérons le choc thermique provoqué par l'injection du TPV_{inj} . D'après la Figure 7, le flux thermique échangé à l'interface TPV_{inj}/TPV_{ex} atteint son maximum $1,76\cdot 10^4 \text{ W}/\text{m}^2$ pour TPV_{inj} et $1,71\cdot 10^4 \text{ W}/\text{m}^2$ pour TPV_{ex} lors du remplissage et diminue fortement jusqu'à $1,5\cdot 10^3 \text{ W}/\text{m}^2$ pour TPV_{inj} et $1,2\cdot 10^3 \text{ W}/\text{m}^2$ pour TPV_{ex} à la fin du refroidissement. Cette évolution des flux thermiques est caractéristique du processus d'injection et leurs ordres de grandeur sont en bon accord avec la littérature pour des contacts polymère/moule [4, 5, 9, 10, 11]. La continuité des flux de chaleur semble également vérifiée expérimentalement à l'interface à l'erreur de mesure prêt.

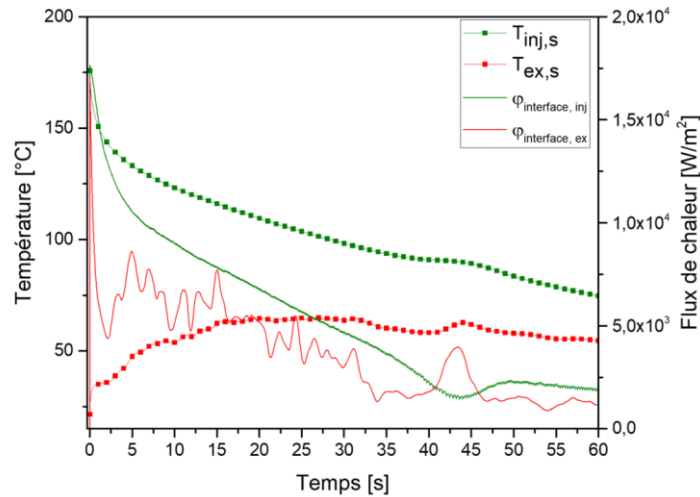


Figure 7 : Températures de surface pour le TPV_{inj} et le TPV_{ex} et flux de chaleur entre le TPV_{inj} et le TPV_{ex} .

La température de surface du TPV_{inj} n'atteint jamais la température de surface du TPV_{ex} . Ceci est la conséquence du contact imparfait entre le TPV_{inj} et le TPV_{ex} , quantifié par la résistance thermique de contact. La Figure 8 présente l'évolution de la résistance thermique de contact à l'interface TPV_{inj}/TPV_{ex} et de la cristallinité relative calculée aux interfaces TPV_{inj}/TPV_{ex} et $TPV_{inj}/moule$ par un modèle unidirectionnel de conduction thermique couplé à la cristallisation. Pour plus de précisions, le lecteur pourra se référer à Delaunay *et al.* [6]. Lorsque la pression diminue (gel des seuils et retrait volumique) vers une valeur nulle ($t=25s$), le refroidissement devient isochore et la RTC augmente soudainement puis diminue avant d'augmenter à nouveau. La variation de la RTC semble être fortement liée à la transformation dans l'épaisseur du TPV_{inj} . En effet, son augmentation entre $t=25s$ et $t=37s$ semble correspondre à la cristallisation du TPV_{inj} proche du moule, et son augmentation entre $t=42s$ et $t=50s$, à la cristallisation du TPV_{inj} à l'interface TPV_{inj}/TPV_{ex} . La diminution de la RTC entre $t=37s$ et $t=42s$ peut être interprété comme la conséquence du décollement du TPV_{inj} de la paroi du moule, gauchissant la pièce du côté moule, et la plaquant sur le TPV_{ex} . Ce mouvement diminuerait alors la lame d'air entre le TPV_{inj} et le TPV_{ex} , impliquant alors une diminution de la RTC à l'interface entre les TPV. Des travaux d'approfondissement de cette hypothèse sont en cours sur la base [8]

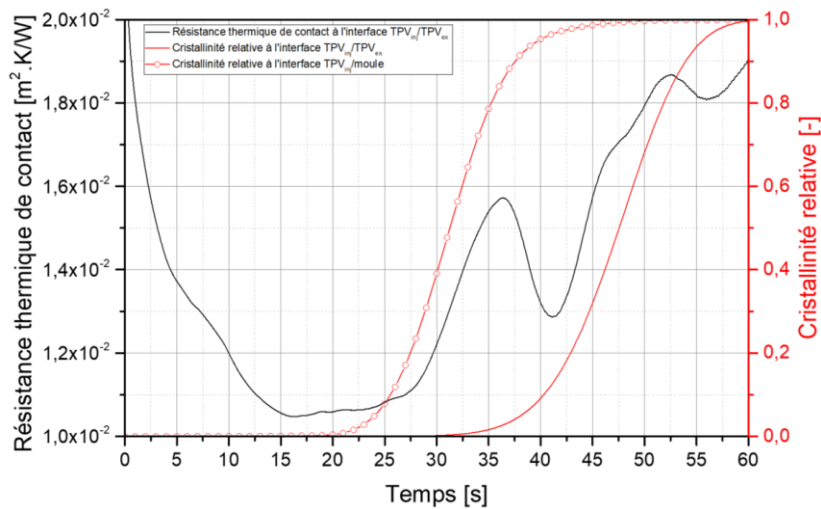


Figure 8 : Résistance thermique de contact à l'interface TPV_{inj}/TPV_{ex} durant le cycle de mise en oeuvre

4. Conclusion

Ce document présente la première étude expérimentale des transferts thermiques à l'interface polymère d'une pièce surmoulée en TPV. Pour cela, un dispositif expérimental original a été conçu pour calculer, de manière non intrusive, la résistance thermique de contact à l'interface TPV/TPV. Les mesures de température ont mis en évidence la cristallisation du TPV pendant le surmoulage. Les températures de surface ainsi que les flux de chaleur aux interfaces TPV_{inj}/TPV_{ex} et TPV_{inj}/moule ont été déterminés par des méthodes inverses de conduction thermique. Ces valeurs ont ensuite été utilisées pour calculer la RTC à l'interface. Son évolution semble être liée au déséquilibre thermique engendré lors du surmoulage qui aura une forte influence sur la répartition des contraintes dans la pièce. Ce point fait l'objet de travaux complémentaires.

Références

- [1] Loulou, T., & Bardon, J. P. (1997). Premiers instants du refroidissement d'une goutte métallique après son impact sur une paroi. *Revue générale de thermique*, 36(9), 682-689.
- [2] Somé, S. C., Delaunay, D., Faraj, J., Bailleul, J. L., Boyard, N., & Quilliet, S. (2015). Modeling of the thermal contact resistance time evolution at polymer–mold interface during injection molding: Effect of polymers' solidification. *Applied Thermal Engineering*, 84, 150-157.
- [3] Levy, A., Heider, D., Tierney, J., & Gillespie, J. W. (2014). Inter-layer thermal contact resistance evolution with the degree of intimate contact in the processing of thermoplastic composite laminates. *Journal of Composite Materials*, 48(4), 491-503.
- [4] Bendada, A., Dourdour, A., Lamontagne, M., & Simard, Y. (2004). Analysis of thermal contact resistance between polymer and mold in injection molding. *Applied Thermal Engineering*, 24(14-15), 2029-2040.
- [5] Le Bot, P. (1998). Comportement thermique des semi-cristallins injectés. Application à la prédiction des retraits (Doctoral dissertation, Nantes).
- [6] Delaunay, D., Le Bot, P., Fulchiron, R., Luye, J. F., & Regnier, G. (2000). Nature of contact between polymer and mold in injection molding. Part I: Influence of a non-perfect thermal contact. *Polymer Engineering & Science*, 40(7), 1682-1691.
- [7] Beck, J. V., Blackwell, B., & Clair Jr, C. R. S. (1985). *Inverse heat conduction: Ill-posed problems*. James Beck.
- [8] Péron, M., Jacquemin, F., Casari, P., Orange, G., Bikard, J., Bailleul, J. L., & Boyard, N. (2020). Measurement and prediction of residual strains and stresses during the cooling of a glass fibre reinforced PA66 matrix composite. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 137, 106039.
- [9] Yu, C. J., Sunderland, J. E., & Poli, C. (1990). Thermal contact resistance in injection molding. *Polymer Engineering & Science*, 30(24), 1599-1606.
- [10] Rhee, B. O., Hieber, C. A., & Wang, K. K. (1994). Experimental investigation of thermal contact resistance in injection molding. In *ANTEC Conference, San Francisco* (pp. 496-500).
- [11] Kamal, M. R., Mutel, A. T., Salloum, G., & Garcia-Rejon, A. (1991). Heat transfer measurement at the mold surface during injection molding of thermoplastic melts. *McGill University and National Research Council Canada. Antec*, 91, 483-486.