

Rhéologie des Bulk Moulding Compounds (BMC) lors de leur injection

Thai-Hung Le¹, Laurent Orgéas¹, Denis Favier¹, Pierre Dumont² & Cécile Venet³

¹Laboratoire Sols-Solides-Structures (3S), CNRS – Universités de Grenoble (INPG – UJF),
BP 53, 38 041 Grenoble cedex 9.

²Laboratoire de Génie des Procédés Papetiers (LGP2), CNRS – INPG,
BP 65, 46, 38402 Saint-Martin-d'Hères cedex 9.

³Schneider Electric Industries SAS, Science and Technology Division – Materials Research,
37 Quai P.L. Merlin, 38 000 Grenoble.
E-mail: Laurent.Orgéas@hmg.inpg.fr

Résumé:

Dans ce travail, on caractérise expérimentalement et on modélise le comportement rhéologique des BMC lors de leur injection. Pour cela, des BMC élaborés avec trois taux de fibres ont été étudiés. Des échantillons cylindriques BMC ont été déformés en compression simple à vitesses de déformation constantes. Les données de compression ont été corrigées pour tenir compte des frottements moule-échantillons. Les résultats expérimentaux soulignent l'influence de la vitesse de déformation, de l'histoire de chargement, du taux de fibres sur la rhéologie des BMC. Un modèle visco-élastique monodimensionnel simple est proposé pour décrire ces résultats.

Abstract:

In this work, we have characterised and modelled the rheology of BMC during their injection. For that purpose, BMC processed with three fibre contents were studied. Cylindrical BMC samples were deformed under simple compression deformation mode at constant axial strain rates. Compression data were corrected in order to account for friction between the mould and the samples. Experimental results emphasize the influence of the imposed strain rate, the loading path, the fibre content on the BMC rheology. An elementary 1D visco-elastic model is then proposed in order to reproduce the observed experimental trends.

Mots-clefs : Rhéologie, Bulk Moulding Compounds, Fibres de verre

1 Introduction

Les Bulk Moulding Compounds (BMC) sont des composites constitués de résine polyester thermodurcissable chargée de poudres minérales (CaCO_3 , Al_2O_3 ...) et contenant des fibres de verre courtes que l'on injecte dans un moule pour fabriquer des pièces en grande série. Les BMC présentent de nombreux avantages tels que la résistance à la corrosion, une mise en œuvre aisée permettant une grande liberté de forme, des possibilités d'intégration de fonctions, un coût de production faible ... Les BMC sont très utilisés par l'industrie automobile, ou par l'industrie des composants électriques pour fabriquer des pièces d'aspect, mais aussi des pièces semi-structurelles.

Si la rhéologie des polymères thermoplastiques chargés a déjà été assez largement analysée, celles matériaux à matrice thermodurcissable tels que les BMC n'est en revanche que rarement étudiée, et plutôt dans des situations de chargement très hétérogènes proches des conditions de mise en forme (Blanc *et al.* 1992, Ménio *et al.* 2000, Lafranche *et al.* 2002). Ainsi, il n'existe pas ou très peu de résultats expérimentaux d'essais homogènes dédiés strictement à l'étude de la rhéologie des BMC. Cette méconnaissance de la rhéologie induit une mauvaise conception des moules servant à fabriquer les pièces. La conséquence directe est une maîtrise hasardeuse des propriétés mécaniques finales des pièces, entachées d'une très forte variabilité.

Aussi, l'objectif de cet article est de caractériser expérimentalement, sous sollicitations quasi-homogènes de compression simple à vitesses de déformation constantes, la rhéologie de BMC dans des conditions plutôt proches de celles correspondants à leur mise en forme (§2). Ces essais sont réalisés sur des BMC présentant différents taux de fibres. On caractérise dans un

premier temps l'influence de l'histoire du chargement, de la vitesse de déformation, du taux de fibres sur la réponse des BMC (§3). Puis, dans un second temps, un modèle rhéologique simple et monodimensionnel permettant de décrire leur comportement est présenté et ses prévisions sont comparées aux résultats expérimentaux (§4).

2 Description de l'étude expérimentale

2.1 Matériaux utilisés

Les BMC étudiés ont été élaborés par Compositec (Le Bourget du Lac, Savoie). Leur matrice ou pâte, préparée sur une turbine pneumatique, est constitué de 35.25% de résine polyester orthophtalique, de 2.65% de stéarate de Zinc, de 8.8% d'agent anti-retrait et de 53.30% de poudre d'Alumine (distribution de 0 à 100 μm centrée sur 8 μm). Trois taux massiques de fibres de verre f ont été testés (diamètre 13.7 μm), i.e. 0%, 10% et 20%. Pour tenir compte de l'influence de la vis et de la buse d'injection sur la microstructure du BMC à l'entrée du moule d'injection, les BMC ainsi élaborés sont introduits dans une presse d'injection (Compositec) et sont récupérés en sortie de buse. A ce stade, les fibres de verre ont une longueur comprise entre 2 et 13 mm et forment une microstructure très complexe, dont il est difficile de donner une orientation privilégiée.

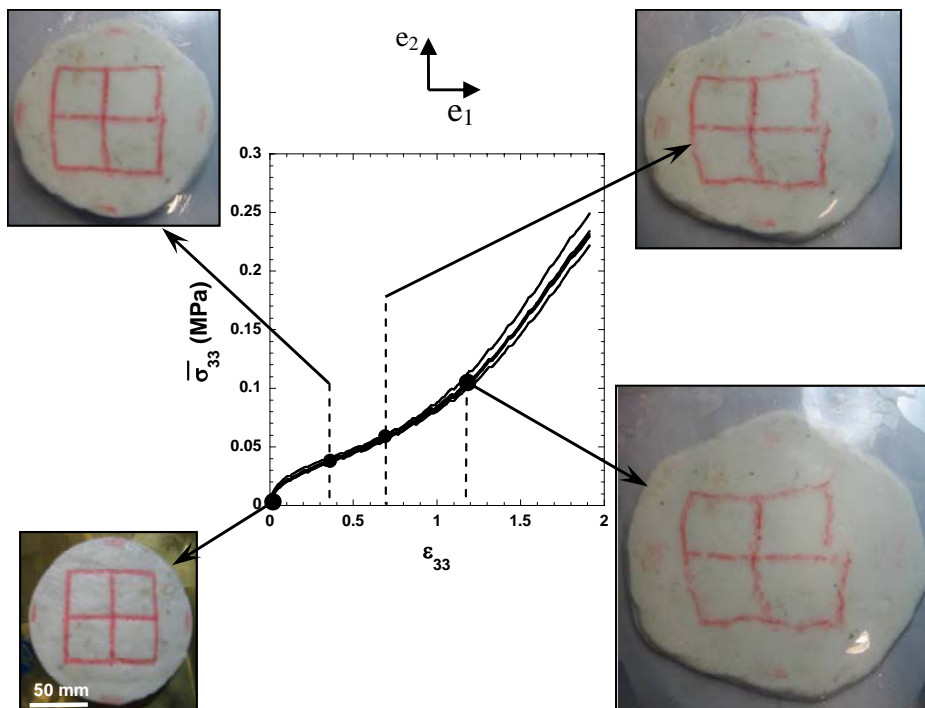


Figure 1: Allure générale des courbes et des échantillons obtenus lors de la compression simple: courbes $\bar{\sigma}_{33} - \varepsilon_{33}$ pour $f = 20\%$, $D_{33} = 10^{-1} \text{ s}^{-1}$; $D_0 = 110 \text{ mm}$; $h_0 = 25 \text{ mm}$.

2.2 Protocole expérimental

Un rhéomètre conçu initialement pour caractériser des Sheet Moulding Compounds (SMC) a été utilisé pour effectuer des essais de compression simple sur des échantillons de BMC (Dumont *et al.* 2003). Il a été monté sur une presse mécanique MTS de 20kN, dont la traverse peut atteindre une vitesse maximale de 8 mm.s^{-1} . Les essais ont été effectués à des vitesses de déformation axiale D_{33} constantes et comprises entre 10^{-3} et 10^{-1} s^{-1} , à température ambiante ($\approx 23^\circ\text{C}$), et avec des échantillons cylindriques de hauteur initiale $h_0 = 25 \text{ mm}$ et de diamètre initial $D_0 = 70$ ou 110 mm . Les faces supérieures et inférieures des échantillons sont au préalable

recouvertes d'une fine couche de graisse silicone pour limiter les frottements moule-échantillon et assurer une cinématique de compression simple. Au cours de ces essais, force axiale F_3 et hauteur de l'échantillon h sont enregistrées. Cela permet l'estimation de la déformation axiale logarithmique de compression $\varepsilon_{33} = \ln(h/h_0)$, et de la contrainte axiale moyenne $\bar{\sigma}_{33} = 4F_3 h / \pi D_0^2 h_0$, en supposant l'incompressibilité des BMC.

2.3 Allure générale des courbes

La figure 1 représente l'évolution de la contrainte axiale $\bar{\sigma}_{33}$ en fonction de la déformation logarithmique ε_{33} obtenue pour cinq essais réalisés dans les mêmes conditions, i.e. à une vitesse de déformation constante $D_{33}=10^{-1} \text{s}^{-1}$ et pour $f=20\%$. On observe trois stades lors de la réalisation des essais: dans un premier temps, la contrainte augmente rapidement jusqu'à un "seuil", puis le matériau s'écoule plus facilement, enfin pour de grandes déformations, la contrainte augmente rapidement. On constate aussi que pour des déformations inférieures à 1.2 la dispersion sur les contraintes mesurées est relativement faible et inférieure à 10%. Enfin, cette figure montre, par les photos prises à différentes déformations d'un échantillon soumis à des chargements interrompus (cf. §3.1), que la déformation peut être considérée comme macroscopiquement "homogène".

2.4 Influence du diamètre des échantillons

La figure 2(a) représente les contraintes moyennes $\bar{\sigma}_{33}$ obtenues à $\varepsilon_{33} = 0.7$ sur des échantillons de BMC à $f=20\%$, $D_{33} = 10^{-1} \text{s}^{-1}$, pour des diamètres initiaux D_0 de 70 et 110 mm. Cinq essais réalisés dans les mêmes conditions ont été effectués pour chaque diamètre. La figure 2(b) représente quant à elle deux courbes $\bar{\sigma}_{33} - \varepsilon_{33}$ correspondant respectivement à la moyenne des essais réalisés avec $D_0=70$ mm et $D_0=110$ mm.

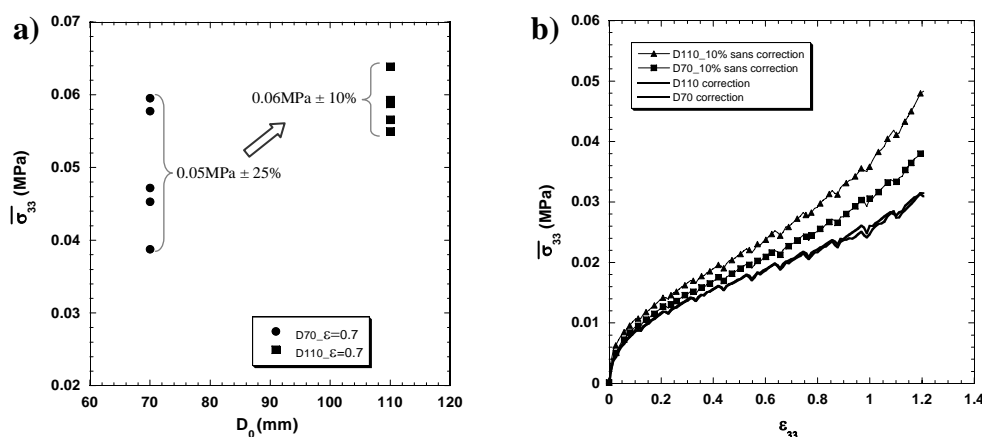


Figure 2: Influence du diamètre initial des échantillons D_0 (a) sur les contraintes $\bar{\sigma}_{33}$ à $\varepsilon_{33} = 0.7$ ($f=20\%$, $D_{33}=10^{-1} \text{s}^{-1}$) (b) sur les courbes $\bar{\sigma}_{33} - \varepsilon_{33}$.

D'une part, on remarque que la dispersion des résultats est plus importante sur les petits échantillons ($\approx 25\%$) que sur les gros ($\approx 10\%$). Cette tendance peut en partie s'expliquer par l'incertitude systématique du protocole d'élaboration des échantillons.

D'autre part, la figure 2(b) montre clairement que les niveaux de contraintes moyennes $\bar{\sigma}_{33}$ sont plus élevés pour le gros diamètre. Ceci peut être induit par le cisaillement de la graisse silicone lubrifiante au cours des essais (cf. §2.5).

2.5 Dépouillement des essais

Pour tenir compte des efforts pouvant être générés par le cisaillement de la fine couche de graisse silicone placée entre le composite et les faces du moule, une correction est affectée aux courbes brutes, en adoptant des hypothèses suivantes (Barone et Caulk 1986, Dumont *et al.*

2007) : le comportement de la graisse est Newtonien, le BMC est supposée incompressible et considéré comme un milieu continu monophasique, son champ de vitesse \underline{v} est axisymétrique et de la forme

$$\underline{v} = v_r \underline{e}_r + v_z \underline{e}_z = v_r(r) \underline{e}_r + \dot{h}/h x_3 \underline{e}_z, \quad (1)$$

Les contraintes tangentielles T_{r3} exercées par la graisse silicone sur les BMC sont de la forme (Barone et Caulk 1986, Dumont *et al.* 2007):

$$T_{r3}(h) = -T_{r3}(0) = -\lambda v_r, \quad (2)$$

où λ est un coefficient de frottement hydrodynamique à déterminer. On peut alors montrer que la contrainte axiale dans le BMC, notée σ_{33} , peut être déterminée à partir de la contrainte axiale moyenne mesurée $\bar{\sigma}_{33}$, à laquelle on retranche la contribution de la graisse silicone:

$$\sigma_{33} = \bar{\sigma}_{33} - \frac{\lambda \dot{h} h_0}{8 h^3} R_0^2 \quad (3)$$

Les essais réalisés sur les BMC et la pâte à différents diamètres d'échantillon ont permis de déterminer le coefficient de frottement λ : 2.10^{-4} , 10^{-3} et 2.10^{-3} N s mm⁻³ pour des taux de fibres f respectivement égaux à 0, 10 et 20%. Comme le montre l'exemple des courbes corrigées sur la figure 2(b), cette correction permet de plutôt bien soustraire les effets de la graisse silicone et de n'obtenir qu'une courbe caractérisant la rhéologie propre du BMC. Tous les résultats présentés par la suite seront corrigés à l'aide de la relation (3).

3 Résultats

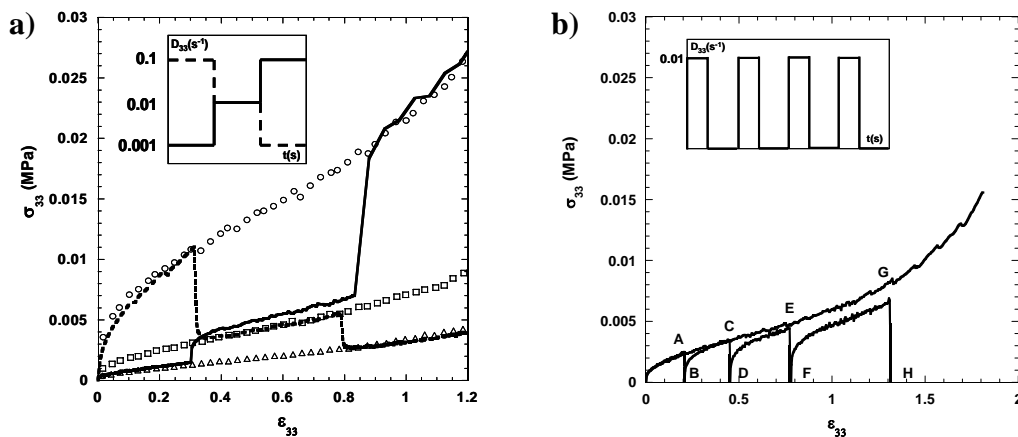


Figure 3: Courbes contrainte-déformation d'un BMC ($f = 10\%$) en réponses à des sollicitations à vitesse de déformation constante ou en créneaux.

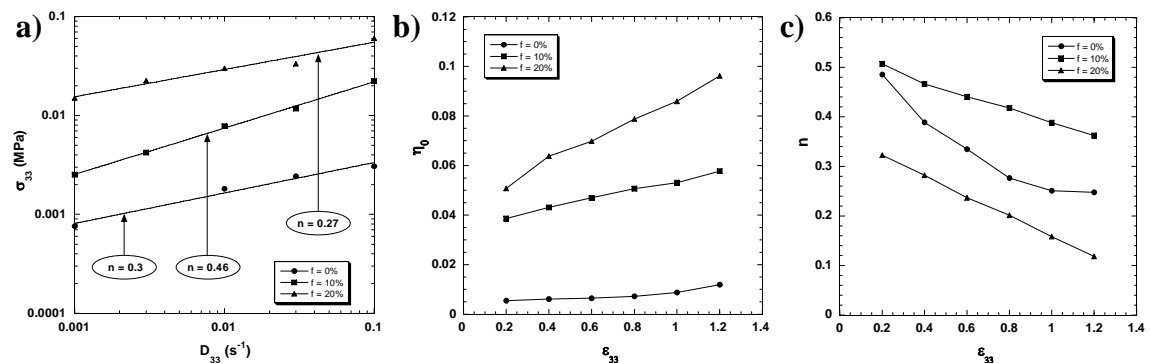


Figure 4: Evolutions (a) de la contrainte σ_{33} en fonction de la vitesse de déformation à $\epsilon_{33} = 0.7$, (b) de la consistance η_0 , (c) de l'indice de sensibilité n en fonction de ϵ_{33} .

3.1 Influence de l'histoire du chargement

Pour étudier d'éventuels effets dus à l'histoire du chargement, nous avons imposé aux BMC des créneaux de vitesse de déformation croissants et décroissants. Les résultats de ces essais ainsi que ceux obtenus dans le cas d'essais monotones, i.e. à vitesse de déformation constante, sont représentés sur la figure 3. D'une part, ces courbes montrent que les BMC présentent un comportement visqueux prononcé: les niveaux de contraintes sont très sensibles à la vitesse de déformation imposée. D'autre part, la figure 3 montre que des régimes transitoires existent au cours des sauts de vitesses, bien qu'étant assez courts, et que les niveaux de contraintes après ces régimes transitoires rattrapent quasiment les niveaux obtenus à vitesses de déformation constantes: ce type de réponse caractérise la présence d'effets visqueux couplés à des effets élastiques, tout du moins dans les gammes de déformation et de vitesses de déformation testées.

3.2 Influence de la vitesse de déformation

Pour illustrer d'avantage le rôle majeur joué par la vitesse de déformation sur la réponse des BMC testés, nous avons reporté sur la figure 4(a) les contraintes σ_{33} relevées à des déformations $\varepsilon_{33} = 0.7$, en fonction de la vitesse de déformation D_{33} , et ce, pour les trois taux de fibres testés. Les points représentent les données expérimentales et les traits pleins des fonctions puissances utilisées pour fitter ces dernières :

$$\sigma_{33} = \eta_0(\varepsilon_{33}) D_{33}^{n(\varepsilon_{33})}, \quad (4)$$

où $\eta_0(\varepsilon_{33})$ et $n(\varepsilon_{33})$ représentent respectivement la consistance du fluide et l'indice de sensibilité à la vitesse de déformation. La figure 4(a) montre que quel que soit le taux de fibres, les BMC présentent un comportement fortement rhéofluidifiant. La figure 4(b) donne quant à elle l'évolution de la consistance, visiblement fonction croissante de compression ε_{33} . Par contre, l'évolution de l'indice de sensibilité à la vitesse de déformation décroît lorsqu'on augmente la compression ε_{33} , comme l'illustre la figure 4(c).

3.4 Influence du taux de fibres

La figure 4(a) montre que la sensibilité à la vitesse dépend légèrement du taux de fibres étudié, avec une évolution qu'il est difficile d'expliquer. En outre, une très forte augmentation de la consistance en fonction du taux de fibres est observée, comme l'illustre la figure 4(b): elle est environ dix fois plus grande pour le BMC à $f = 20\%$ que pour le BMC sans fibre. Notons que des tendances similaires ont déjà été observées sur des SMC, aux formulations très proches de celles des BMC (Dumont *et al.* 2003).

4 Un modèle monodimensionnel

Pour représenter la rhéologie des BMC telle qu'elle a été observée en compression, nous proposons d'employer un modèle monodimensionnel simple viscoélastique non linéaire, en combinant en série un amortisseur non Newtonien de viscosité η et un ressort Hookéen de module élastique E . Ainsi, la vitesse de déformation totale D_{33} est décomposée selon:

$$D_{33} = D_{33}^{el} + D_{33}^v, \quad (5)$$

où $D_{33}^{el} = \dot{\sigma} / E$ représente la vitesse de déformation élastique et où D_{33}^v est la vitesse de déformation visqueuse. On suppose que cette dernière est liée à la contrainte axiale σ_{33} par :

$$\sigma_{33} = \eta_{pâte} (1 + \alpha f^2) D_{33}^{v,n} \exp(k\varepsilon_{33}), \quad (6)$$

où α , k , n et $\eta_{pâte}$ sont des coefficients supposés constants et à déterminer. Le modèle monodimensionnel s'écrit finalement:

$$D_{33} = \frac{\dot{\sigma}}{E} + \left(\frac{\sigma_{33}}{\eta_{pâte} (1 + \alpha f^2) \exp(k \varepsilon_{33})} \right)^{\frac{1}{n}} \quad (7)$$

Les coefficients du modèle ont été déterminés à partir des résultats expérimentaux et sont donnés dans le tableau 1.

α	$\eta_{pâte}$ (MPa.s)	n	k	E (MPa)
400	0.004	0.4	1	0.2

Tableau 1 : Coefficients du modèle

Les trois graphes reportés sur la figure 5 permettent de comparer les résultats expérimentaux obtenus avec les prédictions du modèle. Les traits pleins représentent les résultats du modèle alors que les points correspondent aux essais. Malgré la simplicité du modèle mis en œuvre, on constate une assez bonne adéquation du modèle avec les essais que ce soit par rapport à l'influence du taux de fibres ou à celle de la vitesse de déformation.

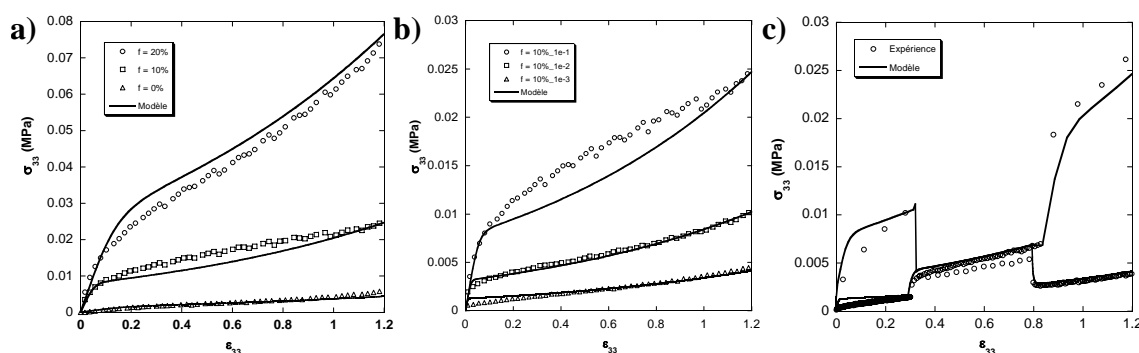


Fig. 5: Comparaison du modèle et de l'expérience

5 Conclusion

Cette étude préliminaire a permis de montrer l'influence de paramètres tels que les vitesses de déformation, l'histoire du chargement et le taux de fibres sur le comportement rhéologique des BMC, sous sollicitation de compression simple. Un modèle simple et 1D de comportement a été proposé, il permet de décrire convenablement les essais qui ont été réalisés sur les BMC à température ambiante. Les travaux en cours doivent permettre de caractériser les influences de la température et du type de sollicitation mécanique (compression plane, cisaillement) sur la rhéologie des BMC.

Références

- Barone, M.R, Caulk, D.A. 1986 A model for the flow of a chopped fibre reinforced polymer compound in compression moulding, *J. Appl. Mech.*, **53**(191), pp361-371.
- Blanc, R., Agassant, J.F., Vincent, M. 1992 Injection moulding of unsaturated Polyester Compounds, *Polym. Eng. Sci.*, **32**, pp. 1440-1450.
- Dumont, P., Orgéas, L., Le Corre, S., Favier, D. 2003 Anisotropic viscous behaviour of Sheet Molding Compounds during compression moulding, *Int. J. Plasticity*, **19**, pp. 625-646.
- Dumont, P., Orgéas, L., Favier, D., Pizette, P., Venet, C. 2007 Compression moulding of SMC: in situ experiments, modelling and simulation, *Composites Part A*, **38**, pp. 353-368.
- Lafrache, E., Menio, S., Guegan, M.L., Krawczak, P. 2002 Etude expérimentale des mécanismes d'écoulement dans le moulage par injection des BMC, *Rev. Compos. Mater. Avancés* **12**, pp.461-475.
- Menio, S., Lafranche, E., Pabiot, J., Ollive, C. 2000 Structure/process/part quality relationship for BMC injection molding, *J. Inj. Molding Technol.*, **4** (3) pp.107-113.