

TABLE DES MATIÈRES

	Page
INTRODUCTION	1
CHAPITRE 1 REVUE DE LA LITTÉRATURE	3
1.1 Moulage par injection des poudres métalliques.....	3
1.2 Variantes du procédé à haute et à basse pression	6
1.3 Utilisation du titane en moulage par injection des poudres	8
1.4 Simulation numérique du moulage par injection des poudres	12
1.4.1 Modèles rhéologiques et logiciels utilisés pour simuler la phase d'injection	12
1.4.2 Simulation de la phase d'injection en moulage par injection des poudres.....	15
CHAPITRE 2 PROBLÉMATIQUE ET OBJECTIFS	25
CHAPITRE 3 MÉTHODOLOGIE EXPÉRIMENTALE	27
3.1 Préparation des mélanges.....	27
3.1.1 Poudre métallique	27
3.1.2 Liants polymériques.....	30
3.1.3 Choix du mélange	31
3.2 Caractérisation des mélanges.....	32
3.2.1 Propriétés rhéologiques.....	32
3.2.2 Propriétés thermiques.....	33
3.3 Simulation numérique et validation expérimentale	34
3.3.1 Implémentation des lois de matériaux dans le modèle	35
3.3.2 Équations constitutives du modèle.....	36
3.3.3 Paramètres simulés.....	38
3.3.4 Validation de l'injection simulée	40
3.3.5 Validation de la ségrégation simulée	41
CHAPITRE 4 MOLDING PROPERTIES OF TITANIUM-BASED FEEDSTOCK USED IN LOW-PRESSURE POWDER INJECTION MOLDING	45
4.1 Abstract.....	45
4.2 Introduction.....	46
4.3 Methodology.....	49
4.3.1 Feedstocks preparation.....	49
4.3.2 Feedstocks characterization	50
4.3.3 Numerical simulation and validation of the model.....	51
4.4 Results and discussion	53
4.4.1 Feedstock properties and selection	53
4.4.2 In cavity flow pattern.....	59
4.4.3 In cavity segregation analysis	62

4.5	Conclusion	66
4.6	Acknowledgements.....	67
	CONCLUSION DU PROJET.....	69
	RECOMMANDATIONS DU PROJET	71
	LISTE DE RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....	73

LISTE DES TABLEAUX

		Page
Tableau 1-1	Comparaison des propriétés obtenues par MIM avec celles obtenues par différents procédés de fabrication (D. F. Heaney, 2012).....	4
Tableau 1-2	Comparatif LPIM & HPIM.....	7
Tableau 1-3	Coût du titane par rapport aux autres métaux concurrents (Chikwanda & Benson, 2009)	10
Tableau 1-4	Comparaison des logiciels simulant l'injection du procédé MIM (Raymond, 2012).....	14
Tableau 3-1	Diamètres spécifiques de la poudre de titane	28
Tableau 4-1	Feedstocks properties	50
Tableau 4-2	Density and melting point of feedstock constituents	50
Tableau 4-3	Process parameters used for the numerical simulations and real-scale injections	52
Tableau 4-4	Rheological parameters extracted from the viscosity profiles and used to calculate the moldability indexes	56
Tableau 4-5	Fitting coefficients of the second order viscosity model for the feedstock F1.....	58
Tableau 4-6	Validation of the simulated segregation occurrence	65

LISTE DES FIGURES

	Page
Figure 1.1	Étapes du procédé MIM (Metal Powder Industries Federation, 2019a)5
Figure 1.2	Pièces fabriquées par MIM dans différentes industries6
Figure 1.3	Délamination de métal suite au perçage à un endroit où la ségrégation a eu lieu (D. F. Heaney, 2012)8
Figure 1.4	Densités de quelques matériaux sélectionnés (Leyens & Peters, 2003)8
Figure 1.5	Résistance spécifique en fonction de la température d'utilisation de matériaux sélectionnés par rapport aux alliages de titane9
Figure 1.6	(a) Taux d'absorption d'oxygène pendant le déliantage pour différentes températures de maintien (German, 2012) et (b) variation de la résistance mécanique et de la densité en fonction de la température de frittage (Takekawa & Sakurai, 1999).....11
Figure 1.7	Validation des résultats de simulation du remplissage: (a) vue de dessus et (b) vue de côté pour un mélange à base de céramique en LPIM (M Sardarian et al., 2017b)15
Figure 1.8	Résultats de simulation de remplissage (a) uniforme et (b) avec jet d'une cavité cylindrique (M Sardarian et al., 2017a).....16
Figure 1.9	Distribution de la température à la fin de l'injection (Z. Zheng & Qu, 2006)17
Figure 1.10	Simulation numérique du remplissage (a) rapide et incomplet proche du point d'injection et (b) retardé et complet loin du point d'injection et (c-d) validation expérimentale des résultats du remplissage complet et incomplet (Yin et al., 2011)18
Figure 1.11	Asymétrie de remplissage prédite par la simulation (Ilinca et al., 2002)..19
Figure 1.12	Distributions de taux de cisaillement prédits par ProCast : (a) au point d'injection et (b) dans le corps de la pièce (Bilovol et al., 2006)20
Figure 1.13	Emplacement de la ligne de soudure tel que : (a) prédit par Moldflow et (b) observé expérimentalement (Bilovol et al., 2003).....21
Figure 1.14	Validation des résultats de remplissage (Binet et al., 2005)22

Figure 1.15	Visualisation de l'effet de variation du débit d'injection sur la température, la pression et le taux de cisaillement : (a) Débit = 10 cm ³ /s et (b) Débit = 20 cm ³ /s (Z.-X. Zheng et al., 2008).....	23
Figure 1.16	Comparaison entre la position du front de matière prédit par Moldflow et obtenue par expérimentation (Lin et al., 2018)	24
Figure 3.1	Analyseur de distribution de tailles avec système de poudres sèches.....	27
Figure 3.2	Microscope électronique à balayage	28
Figure 3.3	Observations au MEB de la poudre de titane selon différents grossissements: (a) ×200 et (b) ×2000 et (c) distribution de la poudre et du liant dans le mélange à un grossissement ×200.....	29
Figure 3.4	Équipements de mesure de masse volumique par pycnomètre	29
Figure 3.5	(a) Machine DSC, (b) exemple d'un résultats de chauffage avec DSC pour la détermination des points de fusion des liants utilisés et (c) grossissement pour détecter le point de fusion de l'EVA	31
Figure 3.6	Moule en spirale utilisé pour déterminer les longueurs injectées des mélanges étudiés (Lamarre et al., 2017)	32
Figure 3.7	Système utilisé pour l'obtention des profils rhéologique : (a) rhéomètre rotationnel, (b) schéma en coupe dans la zone de mesure et (c) comportements typiques des fluides à l'état liquide	33
Figure 3.8	Équipements de caractérisation thermique : (a) Système de mesure de propriétés physiques et (b) configuration de transferts thermiques	34
Figure 3.9	Méthodologie suivie pour la constitution du modèle numérique et la validation de ses résultats.....	35
Figure 3.10	Illustration de l'effet de la gravité sur la forme du front de matière dans la section d'un moule cylindrique.....	39
Figure 3.11	Exemple de résultat de ségrégation de poudre obtenu par Moldflow Insight 2017.3 (Autodesk, 2019).....	40
Figure 3.12	(a) Vue éclatée du moule utilisé pour l'injection de la pièce de forme complexe étudiée dans le cadre du projet, (b) emplacement des bandes de mesure de température et (c) presse d'injection à basse pression utilisée	41
Figure 3.13	Étapes d'injection du mélange avec la machine d'injection à basse pression (Lamarre et al., 2017)	41

Figure 3.14	(a) Machine d'analyse thermogravimétrique (TGA) et (b) courbe typique de test d'analyse thermogravimétrique	42
Figure 4.1	Ti-6Al-4V powder (a) SEM micrograph, and (b) particle size distribution showing a D ₁₀ , D ₅₀ , and D ₉₀ at 5.6, 14.9, and 23.9 μm, respectively	49
Figure 4.2	(a-d) Front, side, top, and rear views of a complex shape part (dimensions in mm; cutting plane A-A is used in Figure 4.9 and Figure 4.10 for the segregation analysis), and (e) 3D view of the part and the gate location with the superimposed finite elements meshing	52
Figure 4.3	Viscosity profiles of feedstocks F1, F2, F3, and F4 at (a) 80 °C, (b) 90 °C, and (c) 100 °C	55
Figure 4.4	Moldability results for feedstocks F1 to F4 used to select the feedstock for the numerical simulations	57
Figure 4.5	Thermal and rheological properties of feedstock F1 (a) specific heat, (b) thermal conductivity, and (c) viscosity profiles with superimposed Cross-WLF and second order models	59
Figure 4.6	Comparison of the shape aspect of the simulated and injected parts at different filling stages obtained with feedstock F1: (a-d) horizontal feedstock flow, and (e) vertical feedstock flow (i.e., gravity along the z-axis)	60
Figure 4.7	Effect of gravity (i.e., feedstock flow orientation) on filling defects located in thin wall sections of the mold after a 75% mold filling (a) horizontal feedstock flow produces solidification sink defects, zoom in the area delineated in Figure 4.6c, and (b) vertical feedstock flow produces complete mold filling, zoom in the area delineated in Figure 4.6e	61
Figure 4.8	Experimental and simulated filling time of feedstock F1 at different short shots	62
Figure 4.9	(a) Cross section view of an injected part (cut along the plan A-A in Figure 4.2c) showing a blurred black line in the critical zone, (b) powder segregation predicted by Moldflow in this critical zone, (c) optical stereoscope observation of this critical zone, (d-e) typical SEM observations within two characteristic zones showing segregated (zone A) and non-segregated (zone B) areas	64

Figure 4.10 Simulation results for: (a) shear deformation rate with superimposed
segregated line, and (b) viscosity at different filling times in the thin
wall sections of the mold (cut along the plan A-A in Figure 4.2c).....66

LISTE DES ABRÉVIATIONS, SIGLES ET ACRONYMES

MIM	Moulage par injection des poudres métalliques (<i>Metal Injection Molding</i>)
PIM	Moulage par injection des poudres (<i>Powder Injection Molding</i>)
LPIM	Moulage à basse pression des poudres métalliques (<i>Low-Pressure Metal Injection Molding</i>)
HPIM	Moulage à haute pression des poudres métalliques (<i>High-Pressure Metal Injection Molding</i>)
EVA	Éthylène-vinyle acétate
SBM	Modèle d'équilibre de mélanges hétérogènes (<i>Suspension Balance Model</i>)
SA	Acide stéarique (<i>Stearic Acid</i>)
PW	Cire de paraffine
vol. %	Pourcentage volumique
wt. %	Pourcentage massique
PPMS	Système de mesure de propriétés physiques
TTO	Option de transport thermique (<i>Thermal Transport Option</i>)
MEB/SEM	Microscopie électronique à balayage (<i>Scanning Electron Microscopy</i>)
DSC	Calorimétrie différentielle à balayage (<i>Differential Scanning Calorimetry</i>)
TGA	Analyse thermogravimétrique (<i>Thermogravimetric Analysis</i>)
CFD	Dynamique numérique des fluides (<i>Computational Fluid Dynamics</i>)
FDM	Méthode des volumes finis (<i>Finite Differences Method</i>)
FEM	Méthode des éléments finis (<i>Finite Elements Method</i>)

LISTE DES SYMBOLES ET UNITÉS DE MESURE

α_{STV}	Indice de moulabilité
$\dot{\gamma}$	Taux de cisaillement (s^{-1})
η	Viscosité du mélange ($Pa \cdot s$)
ρ	Densité des particules (g/cm)
T	Température ($^{\circ}C$)
k	Conductivité thermique ($w/m \cdot K$)
D	Tenseur de déformations
n	Degré de sensibilité au cisaillement selon la loi de puissance
R	Constante des gaz parfaits ($J/kg \cdot K$)
E	Énergie d'activation (J/mol)
t	Temps (s)
V	Vecteur de vitesse (mm/s)
τ	Tenseur de contrainte visqueuse
C_p	Chaleur spécifique ($J/g \cdot ^{\circ}C$)
P	Pression (MPa)
g	Accélération de pesanteur (m/s^2)
η_0	Viscosité de référence ($Pa \cdot s$)
a	Diamètre des particules (μm)
\emptyset	Pourcentage volumique initial de poudre (%)
\emptyset_m	Pourcentage volumique critique de poudre (%)

INTRODUCTION

Le présent mémoire constitue une synthèse du travail d'un projet de maîtrise effectué au sein du Laboratoire d'Optimisation des Procédés de Fabrication Avancés (LOPFA) à l'École de Technologie Supérieure (ÉTS) de Montréal (Qc, Canada). Durant deux ans, cette étude s'est intéressée au procédé de moulage par injection des poudres métalliques (MIM) qui ne cesse d'émerger pendant les dernières années. Ses applications touchent pratiquement tous les domaines d'industrie comme l'aéronautique, la biomédicale, l'automobile ainsi que l'industrie de la joaillerie et offre la possibilité de production de pièces de géométries complexes à haut nombre de séries tout en gardant un faible coût de fabrication.

L'application de ce processus industriel (MIM) implique le passage par quatre étapes, qui consistent à la préparation du mélange de poudre et de liants en cires et thermoplastique (selon le comportement souhaité) pour aboutir à un mélange homogène qui, à son tour, sera injecté dans la cavité d'un moule afin de reproduire la forme désirée. Le déliantage qui sert à enlever le liant est suivi de l'étape de frittage qui a pour but la densification du matériau pour atteindre une densité proche de la densité théorique. Cette étude a comme objectif le développement de mélanges à base de titane pour l'application du moulage par injection des poudres à basse pression (LPIM) et la modélisation de leurs propriétés à travers la simulation numérique dans le but de prédire leurs comportements et l'apparition de défauts. La phase de simulation pour ce projet a été précédée par une étape de caractérisation rhéologique de quatre formulations de mélange dans le but de voir l'effet des liants sur l'écoulement et d'en choisir une seule avec laquelle on poursuivra la phase de simulation numérique. Les données de caractérisation recueillies seront utiles dans le fondement du modèle numérique sous le logiciel Autodesk Moldflow Insight 2019 pour simuler numériquement la phase d'injection dans des cavités de géométries complexes. Les résultats obtenus en termes de front d'écoulement, temps d'injection et de séparation entre la poudre et le liant ont été validés expérimentalement.

Une revue de littérature fera l'objet du premier chapitre du présent document, à travers laquelle le procédé de moulage par injection des poudres sera décrit et mis en évidence parmi les procédés de fabrication usuels. La consultation des réalisations existantes en termes

d'utilisation du titane avec ce type de procédé et des travaux en simulation numérique fait également partie de ce chapitre, ce qui a aidé à formuler la problématique et les objectifs de ce projet qui feront l'objet du second chapitre de ce mémoire. Le troisième chapitre vise à détailler la méthodologie suivie durant ce projet tout en exposant les manipulations, les machines utilisées ainsi que le modèle de simulation numérique. Finalement, le quatrième chapitre constitue un article de journal (soumis dans le journal *Powder Technology*) traitant la caractérisation des mélanges à base de titane et la simulation numérique en prédisant le comportement pendant la phase d'injection et l'apparition des défauts suivis par une validation expérimentale. Une conclusion, un résumé ainsi que quelques recommandations de recherche à la même perspective serviront de clôture de ce document.

CHAPITRE 1

REVUE DE LA LITTÉRATURE

Ce premier chapitre présente une revue de la littérature sur le moulage par injection des poudres métalliques, sur les propriétés et l'utilisation des poudres de titane en moulage par injection et l'état de l'art sur la simulation numérique du procédé de moulage par injection des poudres métalliques.

1.1 Moulage par injection des poudres métalliques

L'injection des poudres métalliques (ou en anglais Metal Injection Molding, dénoté par l'acronyme MIM qui sera utilisé pour le reste de ce document) est un procédé de fabrication utilisé depuis quarante ans après le développement de la technique de mise en forme des matières en poudre métallique et céramique inventée en 1930, mais qui n'a été développée que récemment vu le manque de moyens sophistiqués à cette époque (Chang & Zhao, 2013). Ce procédé consiste à échauffer un mélange à base d'une poudre métallique ou céramique, le mettre en forme par injection dans un moule, à une température inférieure à celle de fusion de la poudre et finalement le fritter à haute température afin de souder les poudres, reformer une nouvelle microstructure et ainsi former une pièce solide. Ce procédé permet l'obtention de pièces complexes, précises et de petites tailles qui peuvent être souvent utilisées à l'état brut sans besoin d'usinage ou de traitement de surface. Cette technique se distingue des autres procédés de fabrication (Tableau 1-1) par la production de grandes séries de pièces avec des propriétés intéressantes en termes de précision, densité et résistance spécifique. Le niveau de complexité atteint pour les pièces réalisées est très important, même pour des métaux difficiles à usiner. Malgré cette complexité, les densités des pièces obtenues sont comparables à celles données par la fonderie, mais avec l'avantage d'une meilleure précision au niveau de la géométrie (tolérance géométrique $\pm 0.5\%$) et d'une meilleure microstructure composée de grains et de joints de grains garantissant de meilleures propriétés mécaniques (D. F. Heaney, 2012).

Tableau 1-1 Comparaison des propriétés obtenues par MIM avec celles obtenues par différents procédés de fabrication (D. F. Heaney, 2012)

Critère	MIM	Frittage	Fonderie	Usinage
Masse (g)	0,03–300	0,1–	1 +	0.1 +
Épaisseur de paroi (mm)	0,025–15	2 +	5 +	0,1 +
Densité (%)	95–100	85–90	94–99	100
Pourcentage de la résistance	95–100	75–85	94–97	100
État de surface (µm)	0,3–1	2	3	0,4–2
Volume de production (unité)	2000 +	2000 +	500 +	1 +

Le procédé MIM est divisé en quatre étapes principales qui sont la préparation du mélange, l'injection, le déliantage et le frittage, représentées à la Figure 1.1. Il commence par le mélange des poudres préparées à l'issue de l'atomisation avec des liants à base de cire ou bien de thermoplastiques pour faciliter la cohésion de la poudre. Ce mélange est versé dans un mélangeur et réglé en température provoquant la fusion du liant, mais non de la poudre. L'opération de mélange continue jusqu'à ce que la poudre soit uniformément répartie et recouverte de liant. Après refroidissement, le contenu est versé dans un broyeur pour préparer la matière première du moulage en granules appelée « mélange ». Vient juste après, l'étape de l'injection qui consiste à injecter le mélange préalablement préparé dans un moule à empreinte désirée et qui passe à son tour par quatre étapes qui sont l'injection, le refroidissement de la pièce, l'ouverture du moule et l'éjection de la pièce à vert. L'étape suivante est le déliantage qui consiste à éliminer le liant polymérique. Il peut être réalisé par introduction de la pièce injectée dans une atmosphère contrôlée en pression et en température ou par dissolution du liant dans un solvant. La dernière étape est celle du frittage, dont l'objectif est d'achever l'élimination du liant et de convertir la poudre mise en forme en une structure métallique solidaire grâce au mécanisme de diffusion à l'état solide. Il aide à diminuer l'énergie de surface par la formation de liaisons interparticulaires et de réduction des pores afin d'obtenir des pièces avec un retrait contrôlé et un taux de porosité acceptable (D. F. Heaney, 2012).

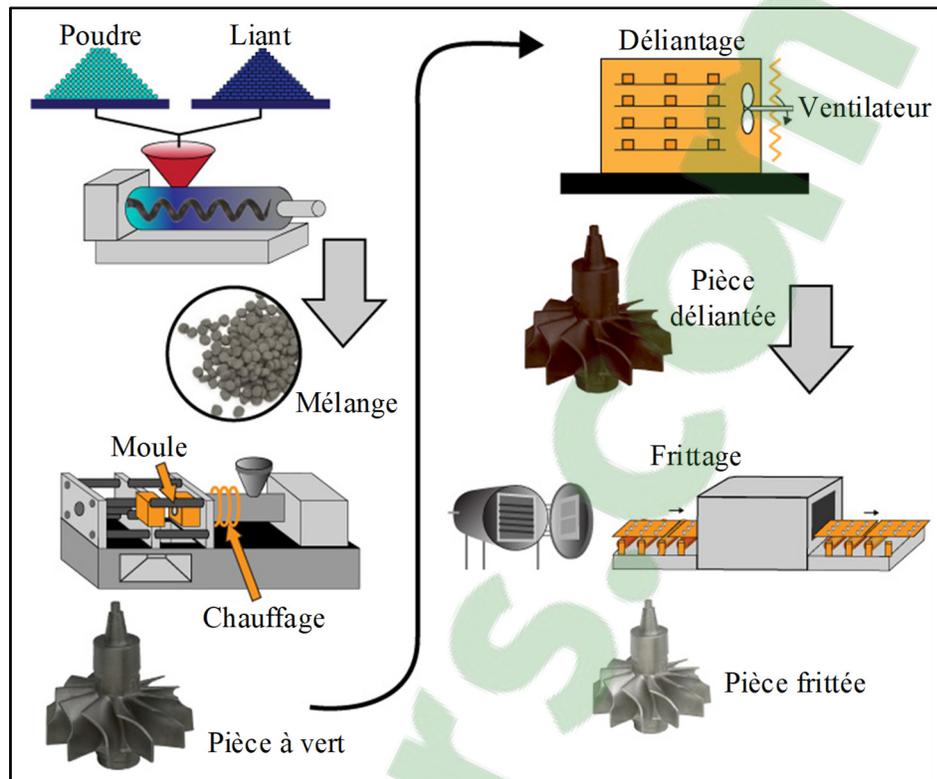


Figure 1.1 Étapes du procédé MIM (Metal Powder Industries Federation, 2019a)

Les caractéristiques prometteuses de ce procédé ont permis de fabriquer des pièces dans diverses industries (Figure 1.2). Il est employé dans le secteur de l'automobile grâce à la possibilité d'obtention de pièces de formes finales et dimensions relativement précises à un coût faible à modéré. Il est pareillement utilisé dans divers domaines tels que le médical, le militaire, la joaillerie, l'électronique et l'aéronautique. À titre indicatif, une augmentation de vente de 10 % pour les poudres a été remarquée entre 2017 et 2018 (Metal Powder Industries Federation, 2019b), ce qui reflète l'intérêt croissant de cette technique.



Figure 1.2 Pièces fabriquées par MIM dans différentes industries
(Sints Precision Technology, 2019)

1.2 Variantes du procédé à haute et à basse pression

Le procédé MIM possède deux variantes qui sont l'injection des poudres métalliques à basse pression (ou en anglais *Low-Pressure Powder Injection Molding*, **LPIM**) et l'injection des poudres métalliques à haute pression (ou en anglais *High-Pressure Powder Injection Molding*, **HPIM**). Pour le LPIM, les pressions d'injection sont généralement inférieures à 1 MPa ce qui permet de produire des pièces de formes complexes avec un coût modéré pour les grandes séries. Pour sa part, le procédé HPIM utilise des pressions qui varient de 50 à 200 MPa limitant ainsi le niveau de complexités géométriques et forçant une rentabilité du procédé seulement pour les hauts volumes de production vu la nécessité de l'utilisation d'équipements coûteux nécessaires pour accommoder les hautes pressions. Le Tableau 1-2 présente une comparaison des avantages et des inconvénients de chacune de ces deux variantes.

Tableau 1-2 Comparatif LPIM & HPIM

Avantages	Inconvénients
LPIM	
<ul style="list-style-type: none"> - Faible viscosité des mélanges ce qui rend leur manipulation facile et offre la possibilité de produire des pièces complexes - Simplicité d'outillage et donc coûts de production faibles - Bons finis de surface - Minimisation de la déformation des moules (Lamarre, Demers, & Chatelain, 2017) - Déliantage thermique suffisant généralement, ce qui conserve l'environnement (Novak, Dakskobler, & Ribitsch, 2000) - Évite le problème de concentration de poudre au point d'injection 	<ul style="list-style-type: none"> - Nécessité d'intervention humaine ce qui rend le cycle un peu lent - Possibilité d'avoir de la ségrégation vu la faible viscosité et le faible pourcentage de poudre dans les mélanges - Limitations en termes de dimensions des pièces : les pièces volumineuses ne peuvent pas être injectées
HPIM	
<ul style="list-style-type: none"> - Possibilité d'opter à des pourcentages de poudre dépassant 70% - Possibilité de produire des pièces avec des surfaces de faibles rugosités (D. Heaney, 2012) - Production en série de petites pièces complexes - Reproduction dimensionnelle 	<ul style="list-style-type: none"> - Déliantage chimique nuisible à l'environnement - Vitesses et pressions d'injection élevées - Outillages couteux

L'inconvénient principal du procédé HPIM réside dans l'importante viscosité des mélanges et les hautes pressions requises pour l'injection. Ce problème a été résolu à travers l'utilisation de mélanges à faible viscosité ($< 20 \text{ Pa}\cdot\text{s}$) et à basse température ($< 120^\circ\text{C}$) en LPIM. Toutefois, cette technologie reste relativement sensible à la ségrégation, qui correspond à la séparation de la poudre du liant à cause des gradients de cisaillement auxquels le mélange est exposé durant la phase d'injection vu la faible viscosité. Des zones pauvres en poudre peuvent donc avoir lieu dans la pièce injectée, ce qui cause des déformations de pièces lors du frittage ou des délaminations de couches minces de métal lors des opérations post-frittage comme le perçage montré à la Figure 1.3.

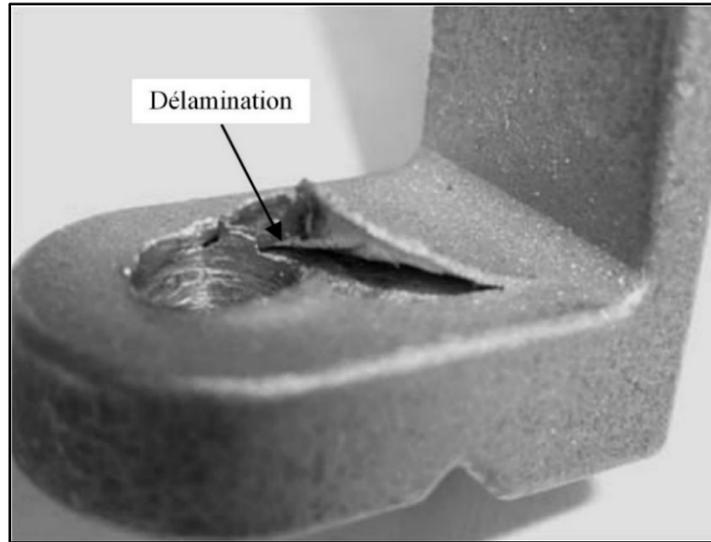


Figure 1.3 Délamination de métal suite au perçage à un endroit où la ségrégation a eu lieu (D. F. Heaney, 2012)

1.3 Utilisation du titane en moulage par injection des poudres

Le titane est considéré comme un matériau à haute valeur ajoutée due à son excellente biocompatibilité et ses propriétés chimiques et physiques supérieures à plusieurs autres métaux (Leyens & Peters, 2003). Sa densité de $4,5 \text{ g/cm}^3$ semble intéressante par rapport à d'autres métaux comme le montre la Figure 1.4, ce qui explique son utilisation préférentielle dans les secteurs qui misent sur le rapport résistance/poids élevé.

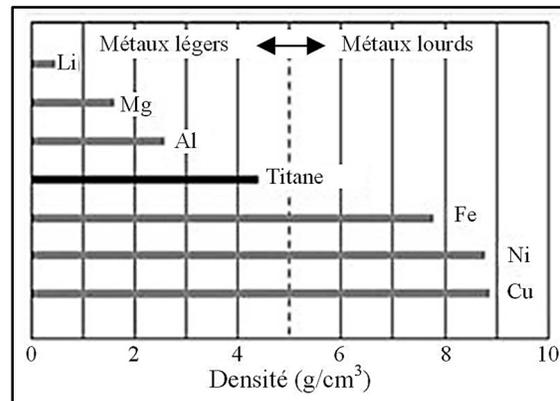


Figure 1.4 Densités de quelques matériaux sélectionnés (Leyens & Peters, 2003)

À cet égard, la Figure 1.5 montre que ce n'est qu'à des températures inférieures à 300 K que les plastiques renforcés de fibres de carbone ont une résistance spécifique supérieure à celle des alliages de titane. À des températures plus élevées, la résistance spécifique des alliages de titane est particulièrement intéressante.

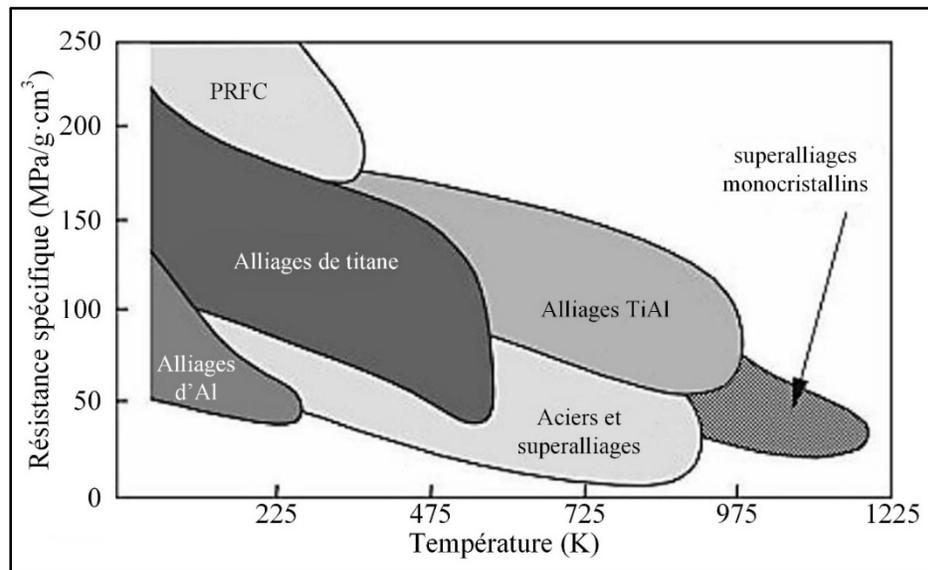


Figure 1.5 Résistance spécifique en fonction de la température d'utilisation de matériaux sélectionnés par rapport aux alliages de titane (Peters, Hemptenmacher, Kumpfert, & Leyens, 2003)

En plus de leurs grandes résistances mécaniques (limites d'écoulement variant de 480 à 1100 MPa), les alliages de titane ont une résistance à la fatigue bien meilleure que les autres alliages légers comme l'aluminium et le magnésium. L'alliage Ti-6Al-4V est celui qui est le plus utilisé dans diverses applications en médecine pour sa biocompatibilité exceptionnelle, en particulier lorsqu'il est nécessaire d'avoir un contact direct avec un tissu ou un os (Zherebtsov, Salishchev, Galeyev, & Maekawa, 2005).

Certaines limitations sont, cependant, liées au titane. Il est un matériau relativement difficile à mettre en forme comparativement aux autres types de métaux. Son utilisation a été sévèrement limitée par la capacité de lui conférer des formes de pièces complexes aux qualités demandées générant ainsi son utilisation très souvent à un coût élevé de production. En ce sens, le coût du

titane à différents stades de la production est comparé à ceux d'autres matériaux comme illustré dans le Tableau 1-3 où l'on remarque un coût pouvant atteindre 5 à 10 fois supérieur à d'autres alliages métalliques.

Tableau 1-3 Coût du titane par rapport aux autres métaux concurrents (Chikwanda & Benson, 2009)

	Coût (\$/lb)			
	Acier	Aluminium	Magnésium	Titane
Minerai	0,02	0,1	0,01	0,3
Métal	0,10	0,68	0,54	2,0
Lingot	0,15	0,7	0,6	4,5
Feuille	0,3-0,6	1.0-5,0	4,0-9,0	8,0-50,0

Le titane se trouve donc à être un métal difficile à mettre en forme avec un coût modéré. C'est pour cela que le procédé de moulage des poudres a été proposé comme procédé palliant ces limitations, vu sa capacité à produire en grandes ou petites séries de pièces de complexités géométriques assez élevées par rapport aux techniques conventionnelles de fabrication. Jusqu'à présent, l'injection des mélanges à base de titane a été uniquement démontrée avec la variante HPIM. La production de composants en titane par moulage par injection est stabilisée par une bonne compréhension de l'impact de chaque variable du processus sur la densité et le niveau de contamination en éléments interstitiels créés pendant les phases de déliantage et de frittage. Une grande partie des progrès attendus nécessite le développement des particules requises présentant des caractéristiques spécifiques en termes de taille, forme et pureté. Des recherches récentes ont distingué les quatre facteurs de succès critiques du moulage par injection de titane qui doivent être simultanément satisfaits : densité, pureté, alliage et microstructure (Randall M German, 2013). Guo et al. (Guo, Duan, He, & Qu, 2009) ont prouvé que les produits en titane fabriqués par HPIM ont une bonne rétention de forme. Chen et al. (Chen, Ting, Li, Hao, & Hu, 2009) ont montré que le MIM est une méthode prometteuse pour produire du titane pour des applications biomédicales en mettant l'accent sur le niveau de porosité atteint après le frittage. Bien que les modèles expérimentaux puissent être utilisés pour développer la formulation des mélanges, celles-ci restent longues et coûteuses, en particulier pour les mélanges à haute valeur ajoutée tels que ceux à base de poudres de titane. À cet égard, la simulation numérique devient

une alternative pour surmonter ces limitations et prédire l'apparition des défauts, surtout pendant la phase d'injection.

En moulage par injection des poudres, le matériau métallique est sous la forme « pulvérulent ». L'un des problèmes majeurs de la manipulation des poudres de titane est sa réactivité envers les éléments interstitiels tels que le carbone, l'oxygène, l'azote et l'hydrogène lors des phases de déliantage et de frittage. Ce comportement est considéré comme une contamination du métal et joue un rôle très important dans la dégradation des propriétés mécaniques des pièces en titane produites à partir des poudres. La Figure 1.6 montre qu'une augmentation de 100 °C provoque une augmentation significative du pourcentage d'oxygène dans la pièce déliantée. L'effet de cette augmentation est plus accentué lors de la phase de frittage. En effet, l'augmentation de la température est bénéfique pour avoir une bonne densité, mais en contrepartie, ça génère une chute de la résistance à la traction, expliquée par la contamination en oxygène.

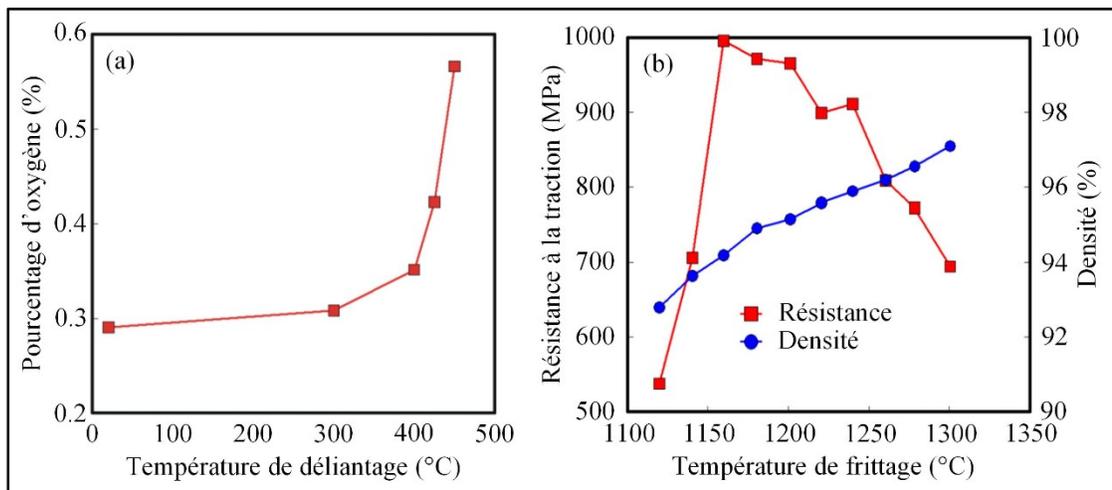


Figure 1.6 (a) Taux d'absorption d'oxygène pendant le déliantage pour différentes températures de maintien (German, 2012) et (b) variation de la résistance mécanique et de la densité en fonction de la température de frittage (Takekawa & Sakurai, 1999)

1.4 Simulation numérique du moulage par injection des poudres

Lors du remplissage de la cavité d'un moule, le comportement du mélange est régi principalement par sa viscosité qui varie avec le taux de cisaillement, la température et d'autres caractéristiques intrinsèques à la poudre elle-même. Ainsi, la maîtrise du comportement rhéologique est très importante pour bâtir un modèle de simulation numérique qui peut décrire le comportement réel d'une pièce pendant la phase d'injection et donc, d'être capable au final de prédire les défauts de remplissage et de ségrégation.

1.4.1 Modèles rhéologiques et logiciels utilisés pour simuler la phase d'injection

Plusieurs modèles de viscosité peuvent décrire le comportement rhéologique des mélanges de poudre-liant. Le modèle donné par l'équation (1.1) présente celui de la loi de puissance. Il a l'avantage d'être simple, mais son utilisation demeure limitée en ce qui concerne la plage de taux de cisaillement vu son incapacité à décrire les comportements ayant des plateaux newtoniens précédant ou suivant un comportement rhéofluidifiant, observés fréquemment pour ce type de mélanges aux taux de cisaillement élevés et bas.

$$\eta(\dot{\gamma}) = m \cdot \dot{\gamma}^{n-1} \quad (1.1)$$

où $\dot{\gamma}$ est le taux de cisaillement, m est l'indice de cohérence exprimé en (m^2/s) et n est l'indice d'écoulement, déterminés par ajustement de données expérimentales au modèle. Selon la valeur de n , la nature du comportement peut être déduite. Si $n > 1$, le comportement est dit rhéoépaississant. Si $n < 1$, il est dit rhéofluidifiant. Le modèle de Carreau-Yasuda donné par l'équation (1.2) décrit le comportement rhéologique mieux que la loi de puissance, tout en tenant compte des plateaux newtoniens.

$$\eta(\dot{\gamma}) = \eta_{\infty} + \frac{\eta_0 - \eta_{\infty}}{\left[1 + (\lambda \dot{\gamma})^a\right]^{\frac{1-n}{a}}} \quad (1.2)$$

où η_{∞} et η_0 sont respectivement les viscosités à taux de cisaillements infini et nul, λ est un temps caractéristique et n et a déterminés par ajustement de données au modèle et pour une

valeur de a égale à 2, on revient au modèle simple de Carreau. Le modèle de Cross de base donné par l'équation (1.3) est aussi utilisé dans la littérature pour modéliser la viscosité et il peut être présenté sous plusieurs expressions selon le comportement.

$$\eta(\dot{\gamma}) = \eta_{\infty} + \frac{\eta_0 - \eta_{\infty}}{1 + (\lambda\dot{\gamma})^{1-n}} \quad (1.3)$$

où les variables de ce modèle sont les mêmes que celles décrites ; ci-haut. L'inconvénient majeur des modèles cités plus haut est l'omission de l'effet de la température, ce qui ne convient pas aux mélanges utilisés en MIM et en mise en forme de polymères. Pour résoudre ce problème, ce modèle a été reconstruit (équation (1.4)) de façon à imposer une dépendance à la température (T) en modélisant la viscosité η_0 avec le modèle William-Landel-Ferry (WLF) donné par l'équation (1.5) ou celui d'Arrhenius à l'équation (1.6).

$$\eta(\dot{\gamma}) = \frac{\eta_0}{1 + \left(\frac{\lambda\dot{\gamma}}{\tau^*}\right)^{1-n}} \quad (1.4)$$

$$\eta_0 = D_1 \exp\left(-\frac{A_1 \cdot (T - T^*)}{A_2 + (T - T^*)}\right) \quad (1.5)$$

$$\eta_0 = B \cdot \exp\left(\frac{T^*}{T}\right) \quad (1.6)$$

où η_0 est encore la viscosité à un taux de cisaillement nul exprimée en fonction de A_1 , A_2 , B et D_1 qui sont des coefficients ajustés, T est la température et T^* est la température de transition vitreuse. Le modèle de Cross et ses dérivés servent à modéliser des comportements rhéologiques dont la viscosité est quasiment stable aux bas taux de cisaillements et qui chute de manière considérable aux hauts taux de cisaillement. Ce qui est le cas contraire du modèle de second ordre donné par l'équation (1.7) dont les constantes de A à F sont aussi déterminées par ajustement de données expérimentales à la même équation.

$$\ln(\eta) = A + B \ln(\dot{\gamma}) + CT + D[\ln(\dot{\gamma})]^2 + E \ln(\dot{\gamma})T + FT^2 \quad (1.7)$$

Le choix du logiciel qui sera utilisé par la suite pour modéliser le comportement et simuler la phase d'injection du procédé MIM est donc basé sur sa capacité à implémenter ces modèles rhéologiques afin de prédire les défauts d'injection. De nombreux logiciels ont été utilisés pour la simulation du procédé MIM où leurs différences principales résident dans la méthode numérique utilisée pour résoudre les équations régissant l'écoulement du fluide. Les méthodes les plus courantes sont notamment la méthode des différences finies (FDM), la méthode des éléments finis (FEM) et la méthode des volumes finis (FVM) (Raymond, 2012). Le Tableau 1-4 résume la liste des logiciels qui ont été utilisés dans la littérature pour simuler la phase d'injection en MIM. En particulier, le logiciel Autodesk Moldflow Insight dans ses versions récentes est capable de simuler la phase d'injection tout en tenant compte de la ségrégation et offrant le maximum de flexibilité pour introduire les données du comportement rhéologique des mélanges. En effet, il tient compte du modèle Cross-WLF, celui de second ordre et l'introduction de la viscosité en fonction du taux de cisaillement et de la température sans besoin de l'ajuster à un modèle précis. Ces avantages permettent de définir ce logiciel comme étant un bon choix pour la simulation numérique de la phase d'injection du MIM.

Tableau 1-4 Comparaison des logiciels simulant l'injection du procédé MIM
(Raymond, 2012)

Logiciel	Méthode de résolution	Étude de la ségrégation	Commercialisé
ANSYS (Fluent, CFX)	FVM/FEM	Non	Oui
Moldex3D	FVM	Non	Oui
Autodesk Moldflow Insight	FEM	Oui	Oui
PIMSolver	FEM/FDM	Non	Oui
Plasview3D	FEM	Oui	Non
Pohang University	FEM	Non	Non
ProCast	FEM	Non	Oui
FEAPIM	FEM	Oui	Non

1.4.2 Simulation de la phase d'injection en moulage par injection des poudres

Moulage à basse pression (LPIM)

Pour la variante LPIM, la phase d'injection a été simulée seulement pour des mélanges à base de céramiques à basse viscosité (ex. : < 100 Pa·s). Deux travaux ont été publiés jusqu'à maintenant et tous les deux utilisaient le logiciel Autodesk Moldflow Insight. Sardarian et al. (M. Sardarian, O. Mirzaee, & A. Habibolahzadeh, 2017a) s'intéressaient au remplissage du moule tout en comparant la forme du front de matière obtenue par simulation à celle obtenue par les injections réelles où cette équipe de recherche concluait que la simulation correspondait bien aux injections à l'échelle réelle tel que montré à la Figure 1.7. De plus, la même étude a servi à étudier les effets de la température et de la pression sur le temps de remplissage pour une pression maintenue constante.

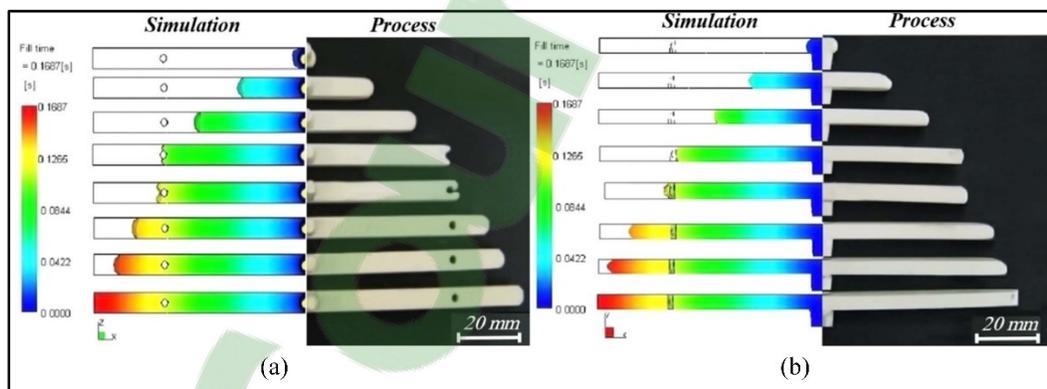


Figure 1.7 Validation des résultats de simulation du remplissage: (a) vue de dessus et (b) vue de côté pour un mélange à base de céramique en LPIM (M Sardarian et al., 2017b)

Les mêmes auteurs ont utilisé le même logiciel avec une géométrie cylindrique pour étudier le phénomène de jet de mélange, ou *jetting* en anglais qui survient lors du dépassement d'une vitesse critique d'injection d'un mélange de basse viscosité (Figure 1.8). Il a été conclu que ce phénomène s'intensifie avec l'augmentation de la température et de la pression.

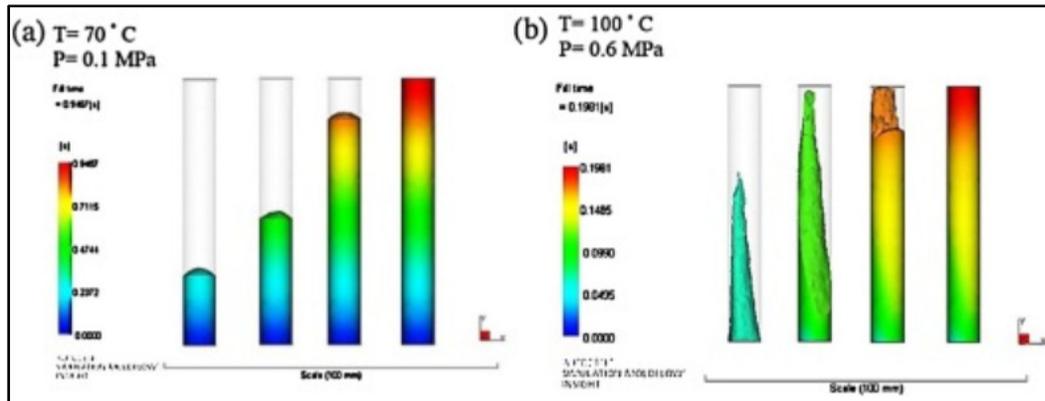


Figure 1.8 Résultats de simulation de remplissage (a) uniforme et (b) avec jet d'une cavité cylindrique (M Sardarian et al., 2017a)

La revue de la littérature a donc montré que la simulation numérique de la phase de remplissage du moulage en LPIM reste très limitée en ce qui concerne la prédiction de défauts et où rien n'a été encore démontré pour le moulage des mélanges à base de métaux (incluant la poudre de titane). Ce manque de connaissance au niveau du procédé LPIM force donc un regard vers la technologie HPIM ou quelques travaux réalisés entre 1990 et 2019 nous permettent d'apprécier l'état de l'art au niveau de la simulation numérique du moulage des poudres.

Moulage à haute pression (HPIM)

Contrairement au procédé LPIM, la littérature montre un bon intérêt des travaux de recherche à la simulation de la phase d'injection en HPIM à l'aide de mélange à viscosité élevée (ex. : $> 100 \text{ Pa}\cdot\text{s}$). Une modélisation 2D par éléments finis du remplissage a été réalisée par Zheng et Qu sous le logiciel ANSYS (Z. Zheng & Qu, 2006). Leurs résultats numériques ont montré une région où la température du mélange était supérieure à la température initiale (Figure 1.9). Ce phénomène a été attribué au frottement visqueux et l'écoulement a permis de prédire la formation des lignes de soudure. Cependant, aucune donnée expérimentale ne valide leurs résultats.

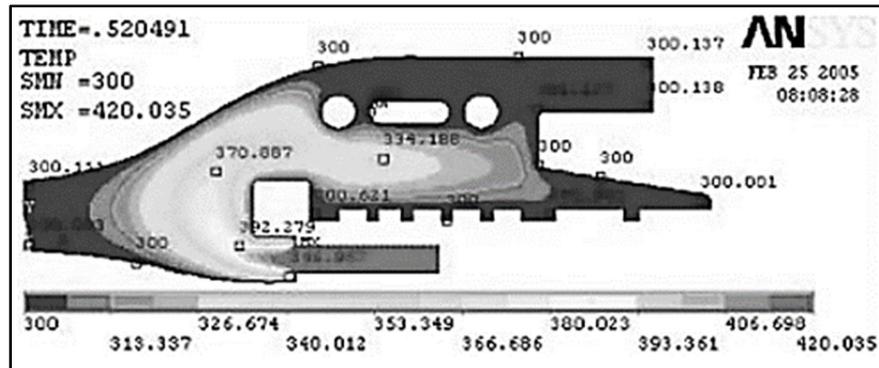


Figure 1.9 Distribution de la température à la fin de l'injection
 (Z. Zheng & Qu, 2006)

Plus tard, Yin et al. (Yin, Wang, Qu, Jia, & Johnson, 2011) ont utilisé le logiciel ANSYS CFX pour simuler numériquement le remplissage d'une cavité à plusieurs empreintes avec un mélange à base de fer. Ils ont constaté que la distance qui sépare l'empreinte du point d'injection affecte la qualité du remplissage. En effet, un remplissage incomplet a été observé sur quelques dents de l'empreinte proche du point d'injection, contrairement aux empreintes éloignées (Figure 1.10). Les résultats d'injection à l'échelle réelle ont montré un bon accord avec ce qui a été prédit par le modèle de simulation numérique.

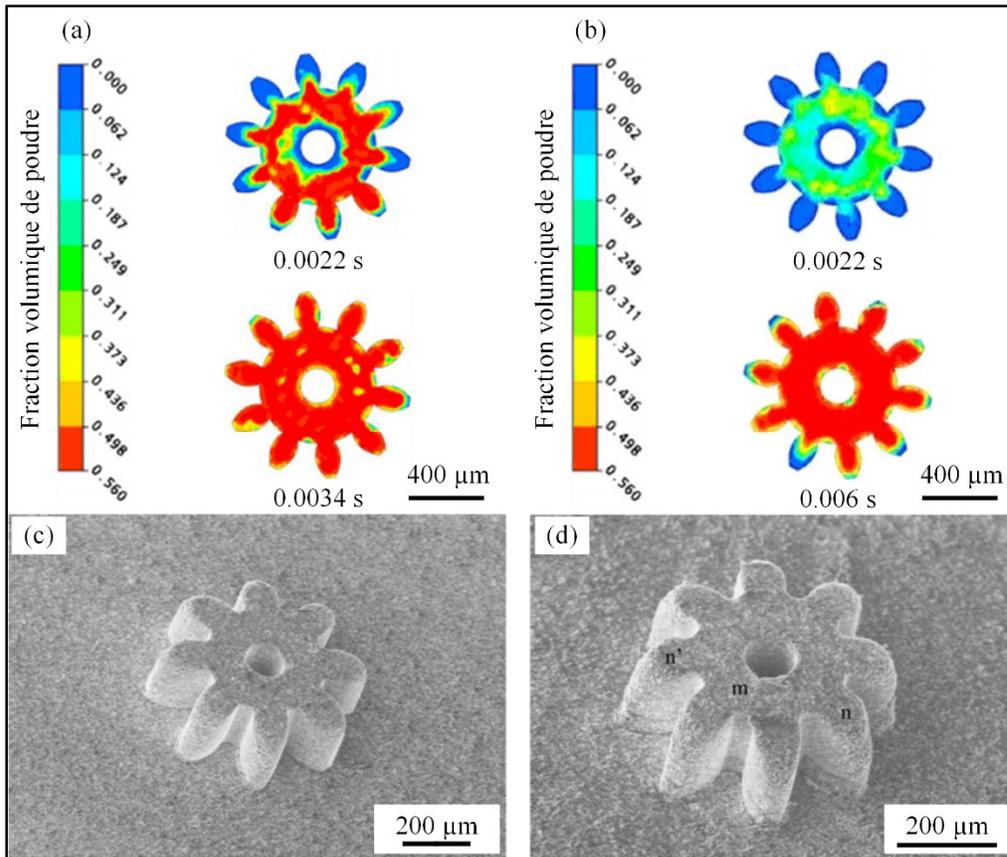


Figure 1.10 Simulation numérique du remplissage (a) rapide et incomplet proche du point d'injection et (b) retardé et complet loin du point d'injection et (c-d) validation expérimentale des résultats du remplissage complet et incomplet (Yin et al., 2011)

Andrews et al. (Andrews, Nishiyabu, & Tanaka, 2009) ont utilisé le logiciel Moldex3D pour modéliser le comportement d'un mélange typique de MIM pendant la phase d'injection. L'optimisation de l'emplacement du point d'injection pour réduire le taux de cisaillement était l'un des objectifs de l'étude. Bien que certaines erreurs dans certaines zones non prises en considération pour le calcul aient été soulignées par leurs résultats, aucune validation expérimentale n'a été effectuée dans cette étude. Un travail réalisé par Ilinca et al. (Ilinca, Héту, Derdouri, & Stevenson, 2002) a signalé un succès de simulation de l'injection avec le logiciel Plasview3D où les résultats d'écoulements simulés étaient en accord avec ceux obtenues expérimentalement. De plus, l'asymétrie du remplissage a été correctement prévue (Figure 1.11) et expliquée par la sensibilité de la viscosité à la variation de la température, ce

qui affecte la vitesse d'écoulement et par la suite le temps de remplissage des différentes zones. Il convient à noter que les auteurs ont conclu que les meilleurs résultats ont été obtenus lors de la prise en considération de l'inertie du mélange et de la condition de non-glissement sur les parois du moule.

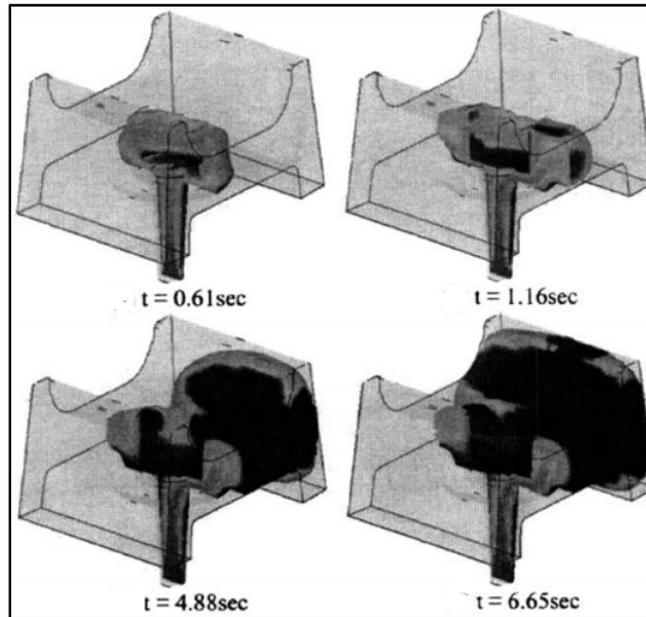


Figure 1.11 Asymétrie de remplissage prédite par la simulation (Ilinca et al., 2002)

PIMSolver, un logiciel commercial conçu spécialement pour le procédé MIM, a été utilisé par Atre et al. (Atre, Park, Zauner, & German, 2007) pour développer une analyse de sensibilité de la qualité des pièces injectées aux paramètres d'injection en termes de propriétés physiques de mélanges, d'épaisseur de la pièce et de dimension du point d'injection. Cette analyse a permis de développer un outil numérique servant aux prochains travaux d'optimisation des paramètres du procédé MIM.

L'impact de la variation de la viscosité des mélanges sur l'exactitude des résultats simulés a été étudié par Bilovol et al (Bilovol, Kowalski, Duszczyk, & Katgerman, 2006) en utilisant le logiciel ProCast. La validation était faite en comparant les pressions déterminées numériquement pour chaque mélange introduit à la pression mesurée au point d'injection tout

en visualisant les gradients de taux de cisaillement dans le corps de la pièce ainsi que dans les zones critiques telles que le point d'injection (Figure 1.12). Ce résultat montre une augmentation importante du taux de cisaillement juste avant l'entrée du mélange dans la cavité du moule vu la réduction de section du canal d'alimentation, ce qui doit être minimisé afin d'éviter la ségrégation.

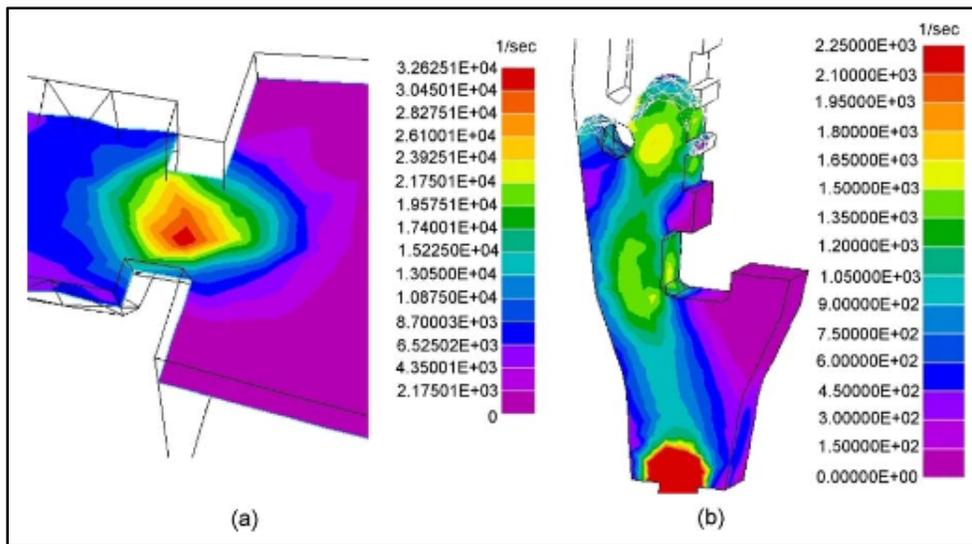


Figure 1.12 Distributions de taux de cisaillement prédits par ProCast : (a) au point d'injection et (b) dans le corps de la pièce (Bilovol et al., 2006)

Quant à Autodesk Moldflow Insight, sa première utilisation pour le procédé MIM date de 1997 où le gradient de températures ainsi que les contraintes de cisaillement pendant et à la fin de la phase d'injection ont été visualisés (Petzoldt et al., 1997). Depuis cette première étude, l'utilisation de ce progiciel en MIM ne cesse de croître. Bilovol et al. (Bilovol, Kowalski, Duszczyk, & Katgerman, 2003) ont utilisé un moule instrumenté pour mesurer les températures et les pressions pendant la phase d'injection et valider les résultats de simulations numériques. Le calcul de Moldflow était en bon accord avec l'expérimentation pour la prédiction des remplissages incomplets et des lignes de soudure comme montré à la Figure 1.13.

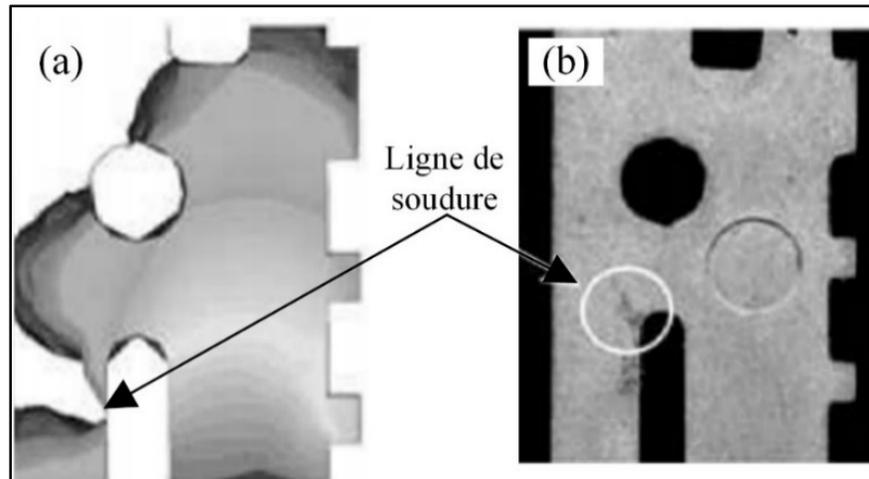


Figure 1.13 Emplacement de la ligne de soudure tel que : (a) prédit par Moldflow et (b) observé expérimentalement (Bilovol et al., 2003)

Pour sa part, Binet et al. (Binet, Heaney, Spina, & Tricarico, 2005) se sont intéressés à l'étude expérimentale et numérique de l'injection d'une pièce avec un mélange à 65 vol. % de poudre d'acier inoxydable 316L. Les propriétés rhéologiques, thermiques et la variation de la densité en fonction de la température et de la pression (PVT) ont été expérimentalement déterminées. Ces données ont été traitées de façon à adapter la viscosité au modèle de Cross-WLF et PVT au modèle de Tait à deux domaines pour établir le modèle de simulation numérique. La progression du remplissage tel que simulé par Moldflow a été comparée aux résultats expérimentaux (Figure 1.14) qui montre une légère différence du front d'écoulement de matière, ce qui a été expliqué par une faible variation de vitesse au début de l'injection. Un bon accord entre les résultats de simulation et les données expérimentales a été conclu à des phases avancées du remplissage.

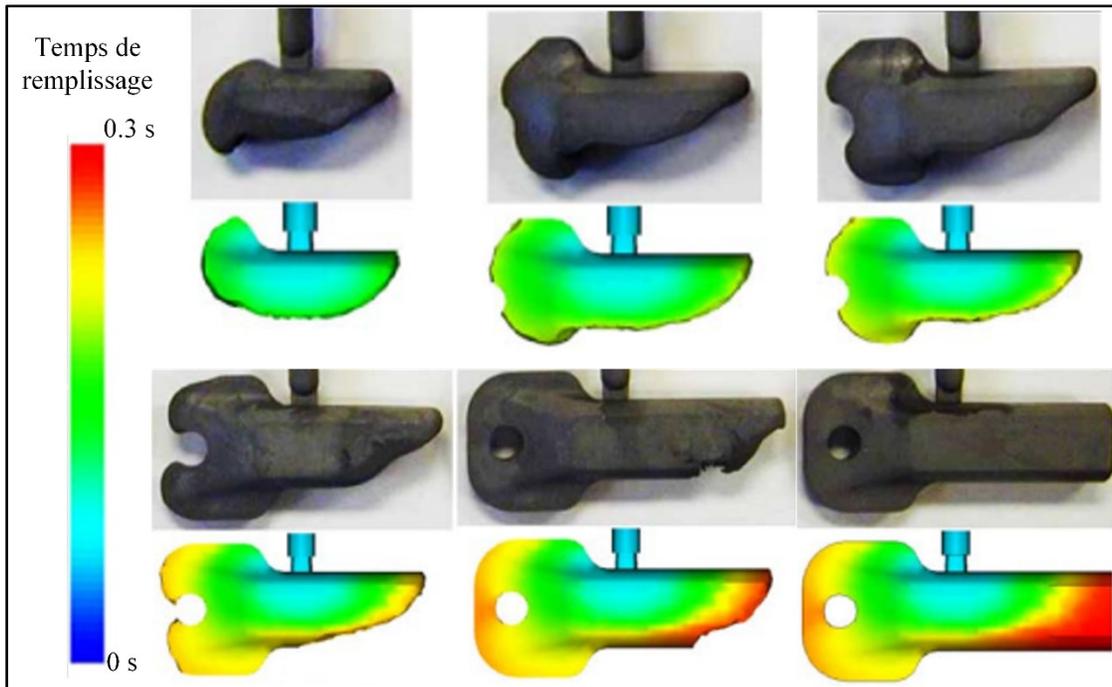


Figure 1.14 Validation des résultats de remplissage (Binet et al., 2005)

Moldflow a également été utilisé par Zheng et al (Z.-X. Zheng, Wei, Zhou, & Zhu, 2008) dans le but d'investiguer l'impact du débit d'injection sur des paramètres simulés tels que le gradient de température, le taux de cisaillement et la pression dans différentes régions de la géométrie étudiée. La Figure 1.15 montre une légère diminution du gradient de la température ce qui signifie un refroidissement et un retrait uniformes, mais avec une augmentation remarquable de la pression et du taux de cisaillement. Cette étude a aussi permis d'optimiser les dimensions du point d'injection en se basant sur les résultats de simulations numériques afin de réduire la pression subie par le mélange ainsi que le gradient du taux de cisaillement qui ont déjà augmenté suite à un débit d'injection plus important.

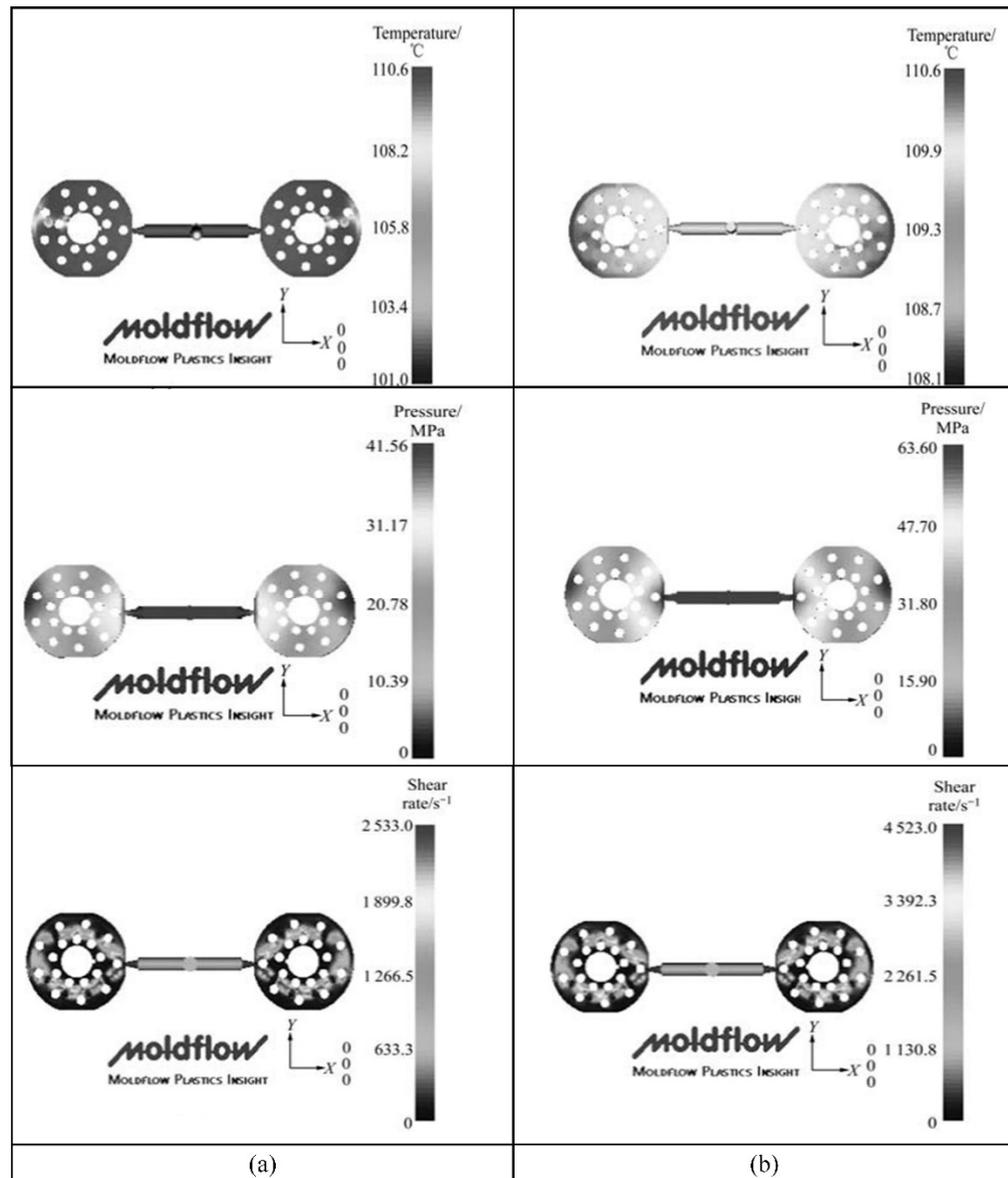


Figure 1.15 Visualisation de l'effet de variation du débit d'injection sur la température, la pression et le taux de cisaillement : (a) Débit = 10 cm³/s et (b) Débit = 20 cm³/s (Z.-X. Zheng et al., 2008)

La prédiction du comportement de l'écoulement pour les mélanges à base de titane n'a suscité qu'une attention limitée de la part d'un seul travail récent réalisé par Lin et al. (Lin et al., 2018) pour un mélange de haute viscosité utilisé en HPIM. En s'appuyant sur la simulation numérique à l'aide du logiciel Autodesk Moldflow Insight, cette équipe a optimisé la position du point d'injection de façon à éviter l'apparition de défauts dans la zone de test d'un

échantillon de traction tout en validant expérimentalement des résultats de cette simulation. La comparaison des résultats des remplissages prédits par le logiciel aux vraies injections (Figure 1.16) montre une légère différence de la forme du front et un bon accord pour le temps de remplissage.

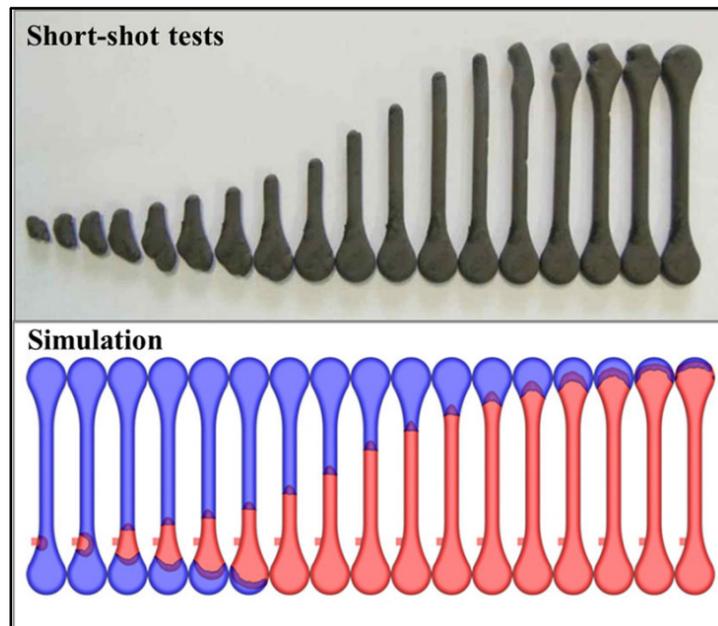


Figure 1.16 Comparaison entre la position du front de matière prédit par Moldflow et obtenue par expérimentation (Lin et al., 2018)

CHAPITRE 2

PROBLÉMATIQUE ET OBJECTIFS

Problématique

La revue de la littérature a révélé le fort potentiel du titane vu ses excellentes propriétés mécaniques et sa biocompatibilité justifiant l'intérêt de son utilisation dans plusieurs applications. Néanmoins, le recours à ce matériau reste encore timide à cause de contraintes de coût et de difficulté de mise en forme par usinage et par déformation plastique, d'où la nécessité d'un procédé qui permet de faire contrepoids à ces limitations. Des travaux avaient comme objectif l'étude de son utilisation avec le procédé de moulage par injection des poudres à haute pression (HPIM) incluant des mélanges de haute viscosité et aucun travail ne s'intéressait à la variante de basse pression (LPIM) qui, avec le haut degré de complexité possible à achever, pourra compenser l'aversion qu'il subit à cause du problème de sensibilité du titane au frittage à haute température. De plus, la majorité des travaux publiés se sont reposés sur la méthode essai et erreur pour optimiser les paramètres du procédé et détecter l'apparition des défauts, ce qui nécessite du temps et coûte cher aux industriels, qui à leur tour développent généralement la technique de façon discrète. Le chapitre précédent a aussi montré que la simulation numérique de l'injection des mélanges à base de titane n'a été faite qu'avec des mélanges utilisés en HPIM et ce, dans une seule étude qui s'est intéressée uniquement à la validation de l'écoulement sans recours à l'analyse de défauts de ségrégation. Il a aussi été montré que la simulation numérique des mélanges à basse viscosité utilisés dans le procédé LPIM a été réalisée seulement pour des mélanges à base de céramique par un seul groupe de recherche. Il y a donc un manque de connaissances au niveau de la simulation numérique de la phase d'injection du moulage par injection LPIM pour les mélanges à base de métaux incluant les poudres de titane.

Objectifs

Ainsi, l'objectif de ce projet de recherche est de développer des mélanges poudre-liant à base de titane, les caractériser expérimentalement et implémenter ces lois de matériaux dans un modèle de simulation numérique de la phase d'injection (Autodesk Moldflow Insight).

Spécifiquement, les propriétés à introduire au modèle numérique incluant la viscosité, la densité et les propriétés thermiques telles que la chaleur spécifique, la conductivité thermique et le point de fusion seront obtenues expérimentalement. Les résultats de simulation numérique en termes de temps d'injection, de forme du front d'écoulement et d'apparition de la ségrégation au cœur de la pièce injectée seront comparés aux données expérimentales à travers l'analyse de pièces injectées à partir d'un mélange à base de titane utilisé dans le procédé LPIM.

CHAPITRE 3

MÉTHODOLOGIE EXPÉRIMENTALE

Ce chapitre présente la méthodologie proposée pour atteindre les objectifs du projet. Les équipements utilisés pour la caractérisation des mélanges ainsi que les conditions et les étapes des manipulations seront détaillés. Par la suite, le fondement du modèle numérique suivi par la méthodologie développée pour la validation expérimentale seront révélés.

3.1 Préparation des mélanges

3.1.1 Poudre métallique

Une poudre de Ti-6Al-4V atomisée au plasma de forme sphérique possédant une taille moyenne de 15 μm a été achetée chez AP&C (Boisbriand, Canada). La distribution de tailles et la forme des grains de la poudre sont deux propriétés déterminantes pour le comportement des mélanges aux différentes phases du procédé LPIM. La Figure 3.1 montre l'analyseur de tailles de particules par diffraction de laser (Beckman Coulter LS 13-320) avec un système de poudres sèches et un module optique de Fraunhofer utilisé dans ce projet. Cet appareil permet de déterminer de la distribution des tailles de particules de poudre de titane utilisées ainsi que leur surface spécifique par unité de masse.



Figure 3.1 Analyseur de distribution de tailles avec système de poudres sèches

Les diamètres spécifiques de la distribution de tailles de la poudre utilisée sont données par le Tableau 3-1.

Tableau 3-1 Diamètres spécifiques de la poudre de titane

D₁₀ (µm)	D₅₀ (µm)	D₉₀ (µm)
5,6	14,9	23,9

La morphologie des particules a été observée à l'aide d'un microscope électronique à balayage MEB Hitachi S-3600N (Figure 3.2) avec une configuration de détection d'électrons secondaires.

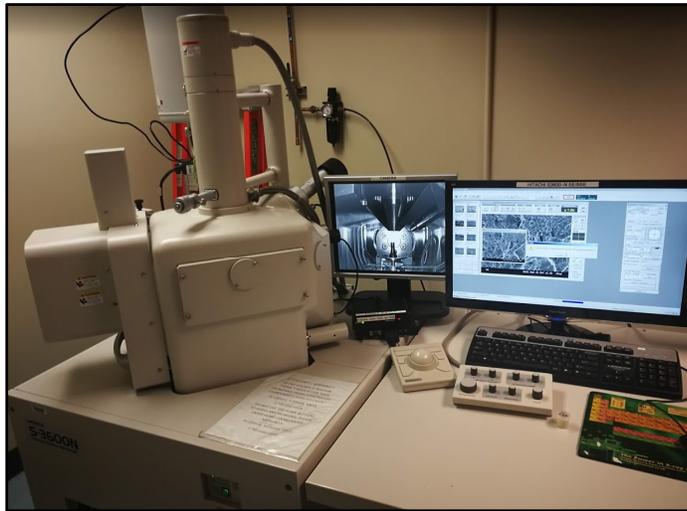


Figure 3.2 Microscope électronique à balayage

Les images MEB présentées à la Figure 3.3 montrent une sphéricité élevée qui est généralement obtenue avec ce type de procédé d'atomisation par plasma. Il a aussi été utilisé en mode électrons rétrodiffusés (pression partielle) pour observer la répartition de la poudre dans le liant polymérique (Figure 3.3c) ainsi que pour visualiser les bandes de ségrégation dans les pièces injectées.

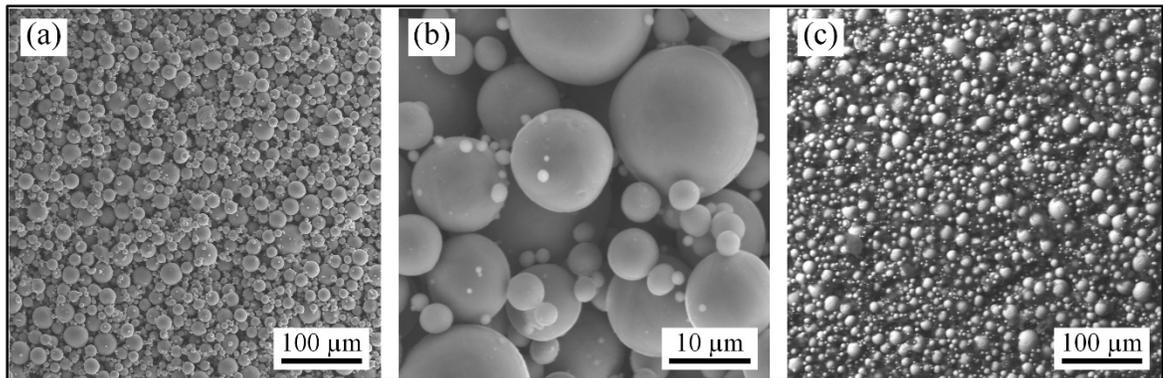


Figure 3.3 Observations au MEB de la poudre de titane selon différents grossissements: (a) $\times 200$ et (b) $\times 2000$ et (c) distribution de la poudre et du liant dans le mélange à un grossissement $\times 200$

Bien que les proportions de poudres soient généralement exprimées en termes de fraction volumique (vol. %), la mesure des proportions de chaque constituant est réalisée en mesurant la masse et les valeurs de masse volumique de chacun. Ces valeurs ont été réalisées à l'aide d'un pycnomètre et d'une balance de précision en utilisant le dispositif montré à la Figure 3.4 conformément au standard ASTM B923-16 (ASTM, 2016).

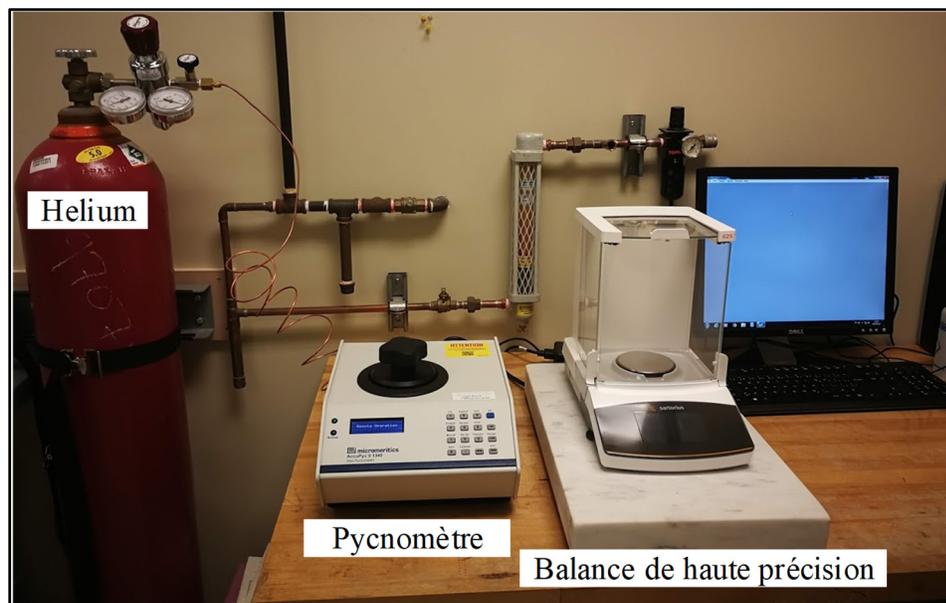


Figure 3.4 Équipements de mesure de masse volumique par pycnomètre

3.1.2 Liants polymériques

Le système de liants procure la fluidité du mélange pour faciliter le transport de la poudre de la presse à injection vers la cavité du moule tout en assurant une dispersion homogène des particules de poudre à travers la pièce. Après l'étape d'injection, le liant se solidifie et assure la préservation de la forme de la pièce. Pendant la phase de déliantage, le liant se dégrade totalement pour ainsi obtenir une pièce métallique dense avec les propriétés mécaniques souhaitées après la phase de frittage. Le liant polymérique est donc choisi pour conférer une faible viscosité à chaud (pendant l'injection) et une résistance suffisante à froid (après l'injection). La combinaison d'une cire comme élément majoritaire avec des agents surfactants et épaississants a été jugée optimale selon les anciens travaux réalisés au sein du laboratoire (Fouad Fareh, 2016). Pour cela, la cire de paraffine (PW) a été identifiée comme élément majoritaire du système de liants vu sa bonne fluidité dans la plage de température normale d'injection. L'éthylène-vinyle acétate (EVA) est ajoutée comme agent épaississant pour empêcher le phénomène de ségrégation, tandis que l'acide stéarique joue le rôle d'un surfactant favorisant ainsi le contact physico-chimique entre le liant majoritaire et les particules de poudre métallique. Notons que l'effet de la variation de chacun des liants sera étudié (détails présentés au chapitre 4).

La technique de calorimétrie différentielle à balayage (DSC) montrée à la Figure 3.5a a été utilisée pour déterminer les points de fusion de chacun des liants à travers les diagrammes (flux de chaleur-température) montrés à la Figure 3.5b-c. Les valeurs des températures de fusion des liants et des mélanges sont données au chapitre 4 pour éviter la répétition. La machine utilisée était une Perkin Elmer Pyris 1.

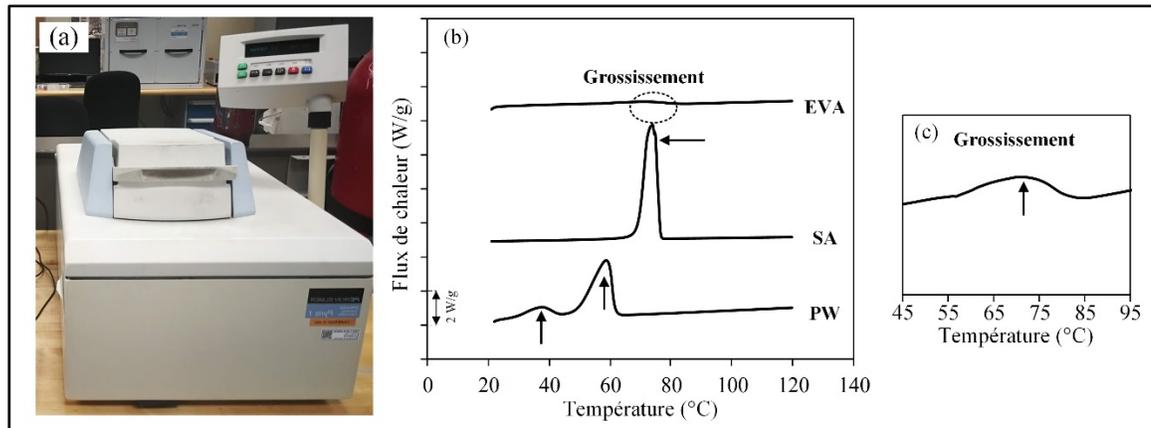


Figure 3.5 (a) Machine DSC, (b) exemple d'un résultats de chauffage avec DSC pour la détermination des points de fusion des liants utilisés et (c) grossissement pour détecter le point de fusion de l'EVA

3.1.3 Choix du mélange

Des tests d'injection ont été réalisés à deux reprises durant ce projet. La première étape a permis de valider le choix du mélange à adopter pour l'étape de simulation numérique en confirmant les résultats obtenus par le modèle expérimental de Weir d'indice de moulabilité (cette étape est décrite en détail dans le chapitre 4). Pour ce faire, un moule en spirale illustré à la Figure 3.6 a été monté sur une presse d'injection à basse pression disponible dans les laboratoires de l'ÉTS puis différents mélanges ont été injectés dans cette cavité de moule.

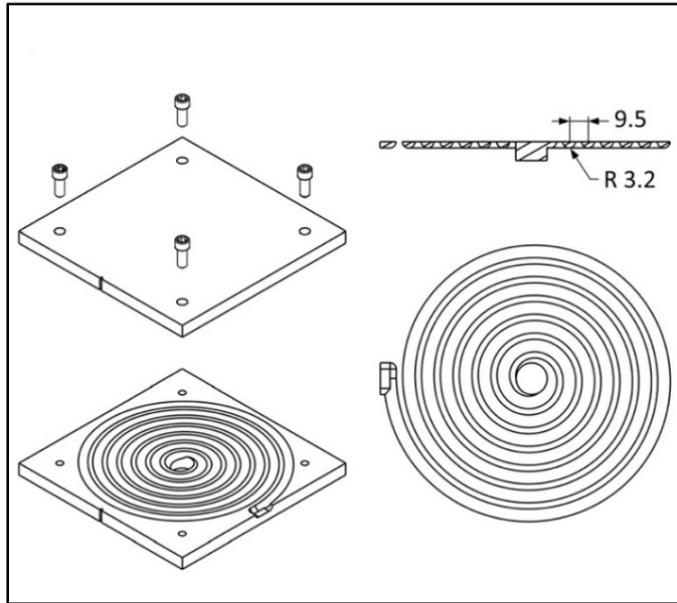


Figure 3.6 Moule en spirale utilisé pour déterminer les longueurs injectées des mélanges étudiés (Lamarre et al., 2017)

La longueur injectée avec le moule spiral (Figure 3.6) a été ensuite calculée avec l'équation de spirale d'Archimède donnée par :

$$L = \int_0^{c \times 2\pi} \sqrt{(a + b\theta)^2 + b^2} d\theta \quad (3.1)$$

où L est la longueur injectée, a est le point de départ de la spirale ($a = 4,7$ mm dans ce projet), b est l'incrément de la spirale divisé par 2π ($b = 1,516$ mm dans ce projet), c est le nombre de tours effectués par le mélange injecté et θ est l'angle indiqué par le front solidifié, en radians.

3.2 Caractérisation des mélanges

3.2.1 Propriétés rhéologiques

Les tests de rhéologie sur les mélanges étudiés ont pour but la caractérisation de leur résistance à l'écoulement afin de quantifier leur capacité à remplir la cavité d'un moule et reproduire sa forme. Pour ce faire, un rhéomètre rotationnel Anton Paar MCR302 avec un système de mesure constitué d'un bob et d'un réservoir en cylindre logé dans une cavité C-PTD 200 régulée

thermiquement à l'aide d'un module Peltier (Figure 3.7a) a été utilisé. La Figure 3.7b illustre la zone de mesure et le mouvement imposé à la tête de mesure du rhéomètre pour déterminer la viscosité. Cette technique permet d'obtenir le profil rhéologique correspondant au type de comportement tel que montré à la Figure 3.7c qui peut être Newtonien, rhéofluidifiant ou rhéoépaississant. Dans cette étude, un programme appliquant un taux de cisaillement variant selon une rampe logarithmique de $0,5$ à 665 s^{-1} a été appliqué sur les mélanges à trois différentes températures de 80°C , 90°C et 100°C . Ce type de mélanges poudre-liant se comporte généralement comme un fluide rhéofluidifiant où la viscosité diminue à mesure que le taux de déformation en cisaillement augmente.

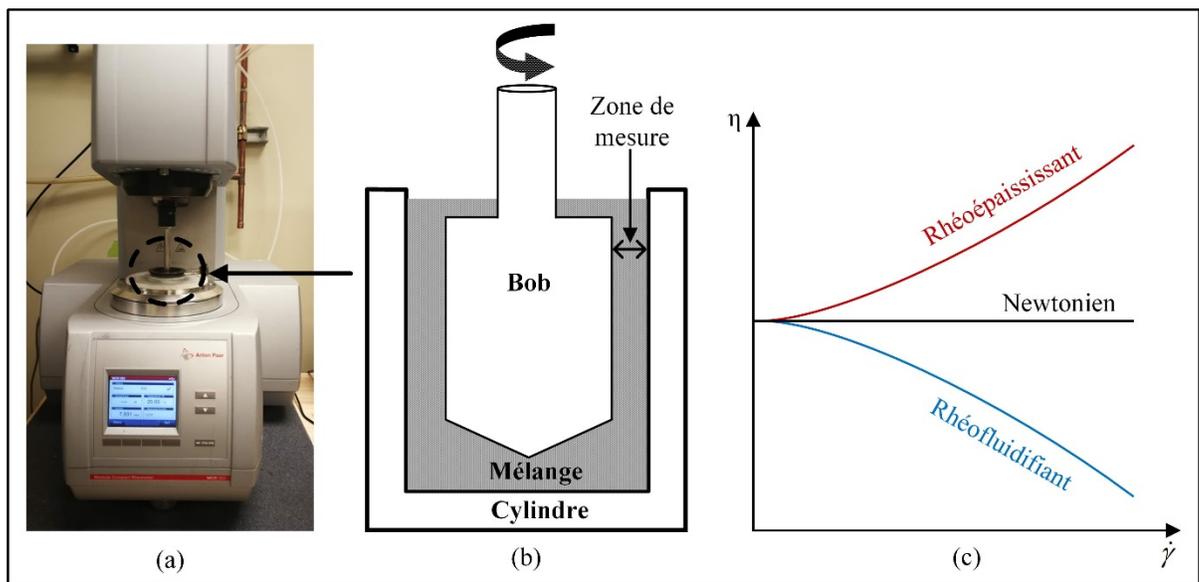


Figure 3.7 Système utilisé pour l'obtention des profils rhéologique : (a) rhéomètre rotationnel, (b) schéma en coupe dans la zone de mesure et (c) comportements typiques des fluides à l'état liquide

3.2.2 Propriétés thermiques

Les propriétés thermiques sont aussi indispensables pour bâtir un modèle de simulation numérique afin de prédire correctement les échanges de chaleur avec les parois du moule lors du remplissage. Les variations de la chaleur spécifique C_p du mélange étudié ont été obtenues grâce à la technique d'analyse par calorimétrie différentielle à balayage (DSC) montré à la

Figure 3.5a. La conductivité thermique a été obtenue à l'aide d'un système de mesure de propriétés physiques (ou en anglais *Physical Property Measurement System* PPMS) avec une configuration de transferts thermiques TTO-P670 (Figure 3.8a-b).



Figure 3.8 Équipements de caractérisation thermique : (a) Système de mesure de propriétés physiques et (b) configuration de transferts thermiques

3.3 Simulation numérique et validation expérimentale

La revue de la littérature nous a permis de conclure que le logiciel Autodesk Moldflow Insight 2019 était un bon candidat pour simuler l'injection des mélanges à base de titane en LPIM. En effet, ce logiciel a prouvé une capacité de simulation de l'injection des procédé HPIM (mélange à base de céramiques ou métaux) et LPIM (mélange à base de céramiques). De plus, il offre une bonne flexibilité au niveau de l'implémentation des caractéristiques de matériaux ainsi que la visualisation de la concentration volumique de la poudre en tout endroit de la pièce pour quantifier le phénomène de ségrégation. La démarche suivie pour aboutir aux résultats souhaités avec Moldflow est illustrée par la Figure 3.9.

L'étape d'introduction des paramètres revient à implémenter les lois descriptives et les propriétés du matériau utilisé sous Moldflow, suivie de l'exécution du calcul, visualisation des résultats et finalement par une comparaison avec les données expérimentales en vue de les valider.

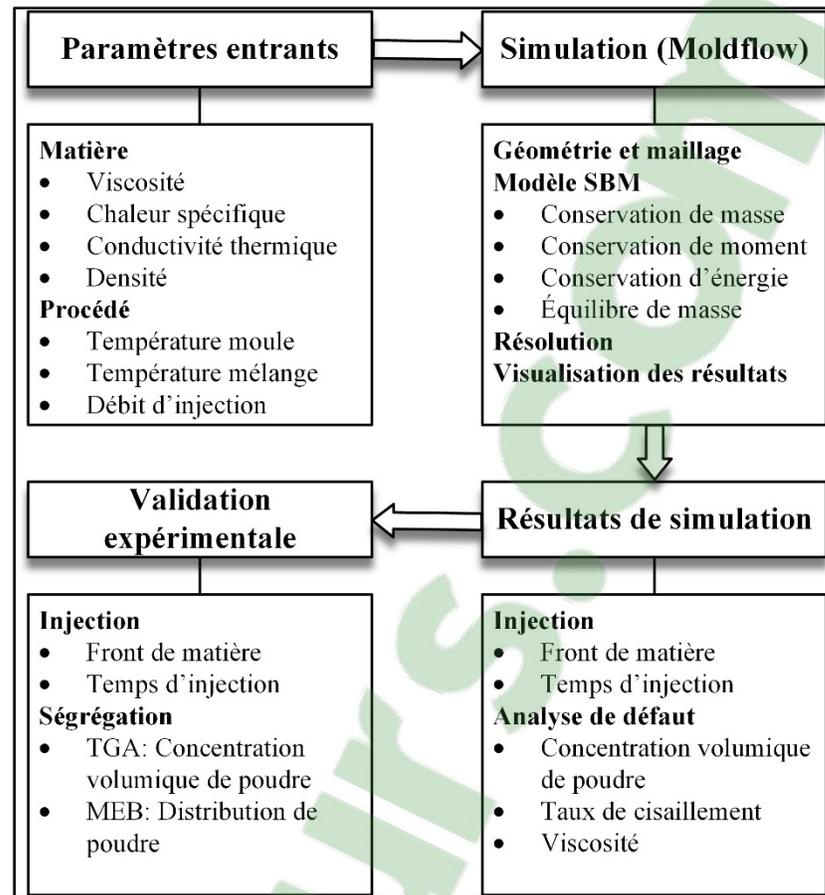


Figure 3.9 Méthodologie suivie pour la constitution du modèle numérique et la validation de ses résultats

3.3.1 Implémentation des lois de matériaux dans le modèle

Pour garantir de bons résultats de simulation avec Autodesk Moldflow Insight, différentes données doivent être introduites par l'utilisateur. Ces données peuvent être classées en propriétés liées au mélange utilisé et des paramètres indiquant les conditions expérimentales du procédé. Parmi les propriétés du mélange, on trouve la densité, la température de fusion et le diamètre moyen (D_{50}) des particules ainsi que les concentrations volumiques initiale et maximale en poudre. La conductivité thermique et la chaleur spécifique doivent être introduites sous forme matricielle indiquant leurs variations en fonction de la température ainsi que les vitesses de chauffage utilisées lors de la mesure. La viscosité est définie à travers les coefficients du modèle rhéologique le plus adéquat pour le comportement observé et les

données relatives à la compressibilité régie par l'équation d'état PVT (Dans notre cas, ces données ne sont pas nécessaires vu que l'injection est réalisée à basse pression, ce qui est confirmé par d'anciens travaux). Les paramètres du procédé sont à leur tour à définir à travers l'interface du logiciel et on parle des températures du mélange fondu, des parois du moule et du type de contrôle de remplissage (machine asservie en vitesse et/ou en pression).

3.3.2 Équations constitutives du modèle

La résolution du problème d'écoulement des mélanges poudre-liant sous Moldflow est basée sur le modèle d'équilibre de mélanges hétérogènes en modélisant le liant et la poudre comme deux phases (ou en anglais *Suspension Balance Model*, SBM) pour la prédiction de l'effet de ségrégation. Dans ce modèle, le gradient de contraintes normales des particules est considéré comme générateur de forces à l'origine de migration des particules. Par conséquent, la ségrégation est à la fois due au cisaillement et à la convection éprouvée par particules de poudre. Le logiciel Moldflow se distingue des autres logiciels de simulation numérique car il prend en compte une équation supplémentaire d'équilibre de masse lors de la résolution du problème. Le modèle SBM est, ainsi, défini par quatre équations, notamment celle de la conservation de la masse, du moment, de l'énergie ainsi que l'équilibre de masse de particules, données par les équations (3.2), (3.3), (3.4) et (3.5) respectivement.

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho V) = 0 \quad (3.2)$$

où ρ est la densité mélange, t est le temps et V est le vecteur de vitesse.

$$\rho \frac{DV}{Dt} = -\nabla P + \nabla \cdot \tau + \rho g \quad (3.3)$$

où τ est le tenseur de contrainte visqueuse, P est la pression et g est l'accélération gravitationnelle.

$$\rho C_p \frac{DT}{Dt} = \nabla \cdot (k \nabla T) + \tau : \nabla V + \beta T \frac{DP}{Dt} \quad (3.4)$$

où k est la conductivité thermique, C_p est la chaleur spécifique et β est l'expansivité définie par

$$\beta = - \frac{1}{\rho} \cdot \frac{\partial \rho}{\partial T}$$

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + V \cdot \nabla \phi = -\nabla \cdot j_{\perp} \quad (3.5)$$

où ϕ est la fraction volumique de poudre et j_{\perp} est le flux de particules de poudre tel que :

$$j_{\perp} = \frac{2a^2}{9\eta_0} f(\phi) \nabla \cdot \Sigma_p \quad (3.6)$$

où $f(\phi)$ est la fonction de sédimentation, η_0 est la viscosité du liant, a est le diamètre des particules et Σ_p est la contrainte normale de particule donnée par :

$$\Sigma_p = -\eta_n \eta_n \dot{Q} \quad (3.7)$$

où η_n est la contrainte normale de viscosité et Q est le tenseur d'anisotropie de contraintes normales, définis respectivement par les équations (3.8) et (3.9), ϕ_m est le chargement critique en poudre, K_n est un paramètre ajusté

$$\eta_n = K_n \left(\frac{\phi}{\phi_m} \right)^2 \left(1 - \frac{\phi}{\phi_m} \right)^{-2} \quad (3.8)$$

$$Q = \begin{pmatrix} \lambda_1 & 0 & 0 \\ 0 & \lambda_2 & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_3 \end{pmatrix} \quad (3.9)$$

où les λ_i sont les contraintes normales suivant les directions d'écoulement et $\dot{\gamma}$ est le taux de cisaillement donné par l'équation (3.10) où D est le tenseur de déformations

$$\dot{\gamma} = \sqrt[2]{2D:D} \quad (3.10)$$

La résolution des équations s'effectue par la méthode des éléments finis. Pour résoudre un problème par un modèle numérique, on doit passer, impérativement, par la préparation de la géométrie avec CAO et l'exécution du maillage de son domaine avec des éléments tétraédriques, ce qui est imposé par le module PIM de Moldflow. La mise en données de la simulation passe par le choix des modèles physiques et des conditions aux limites sans oublier les hypothèses adaptées pour la résolution. Vient juste après, la résolution numérique des équations constitutives par un algorithme itératif jusqu'à la convergence, suivie par la visualisation des résultats d'analyse.

Certaines limitations ont été imposées par le logiciel choisi pour la simulation numérique, ce qui a conduit à l'adoption de certaines hypothèses. En effet, un seul liant équivalent au système de liants utilisés réellement est à considérer. De plus, lors de la phase d'injection, la viscosité n'est pas affectée par la ségrégation, autrement dit par la variation de concentration de poudre. Finalement, la distribution de tailles de particules de poudre de titane est définie uniquement par le diamètre moyen D_{50} , ce qui demeure à considérer lors de l'interprétation des résultats.

3.3.3 Paramètres simulés

Moldflow offre la possibilité de décrire le comportement du mélange lors de son entrée dans la cavité du moule. Ceci revient à déterminer la position du front de matière en fonction du temps, ainsi que sa forme. En effet, pour le procédé LPIM, le régime laminaire est envisagé pour assurer un remplissage complet à de faibles vitesses évitant les zones non remplies. Par contre, cette faible vitesse rend le système d'écoulement sensible à l'effet de la gravité sur la forme du front, dont Moldflow permet la prise en considération. La Figure 3.10 illustre la différence de formes des fronts de matière dans la section d'un cylindre avec et sans prise en considération de l'effet de gravité. Si l'effet de la gravité est négligé ou non sensible, une forme

symétrique du front sera observée (Figure 3.10a) où un gradient de vitesse engendré par le non-glissement du mélange sur les parois du moule est généralement observé. Ce gradient de vitesse engendre un gradient de cisaillement pouvant causer le phénomène de ségrégation. Si l'effet de la gravité n'est pas négligée, le front d'écoulement pourrait se déformer (Figure 3.10b). Dans ce projet, la visualisation de la forme du front de matière sera envisagée pour le cas d'une géométrie complexe.

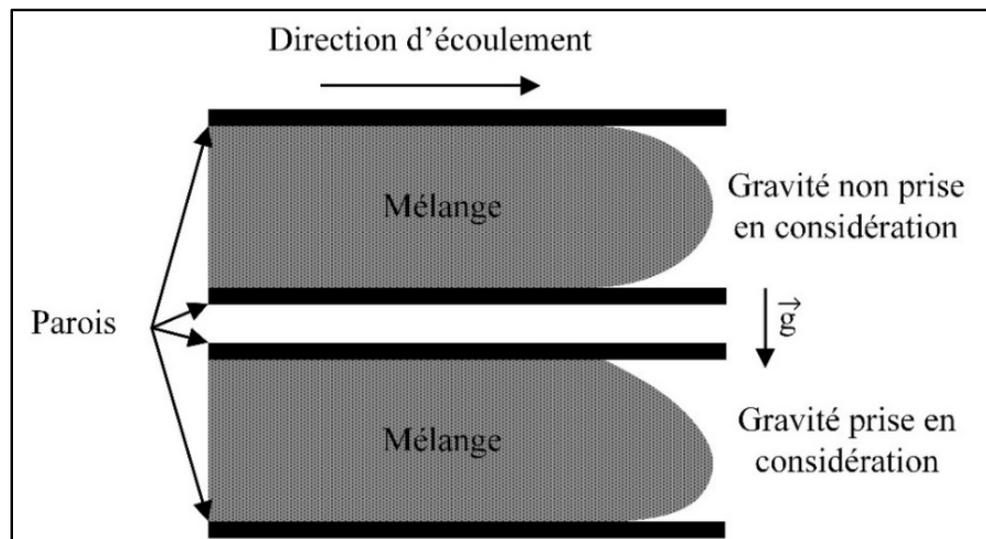


Figure 3.10 Illustration de l'effet de la gravité sur la forme du front de matière dans la section d'un moule cylindrique

Les résultats recensés dans la littérature confirment que la plupart des logiciels (sauf Autodesk Moldflow Insight) ne sont pas en mesure de prédire des défauts de distribution de poudre dans les pièces à haut pourcentage de poudre. La Figure 3.11 montre un résultat de concentration volumique de poudre en HPIM obtenu par le progiciel Moldflow où une distribution non uniforme a été obtenue à cause de l'effet du gradient du taux cisaillement que le mélange subit suite à la variation brusque des section de la pièce injectée.

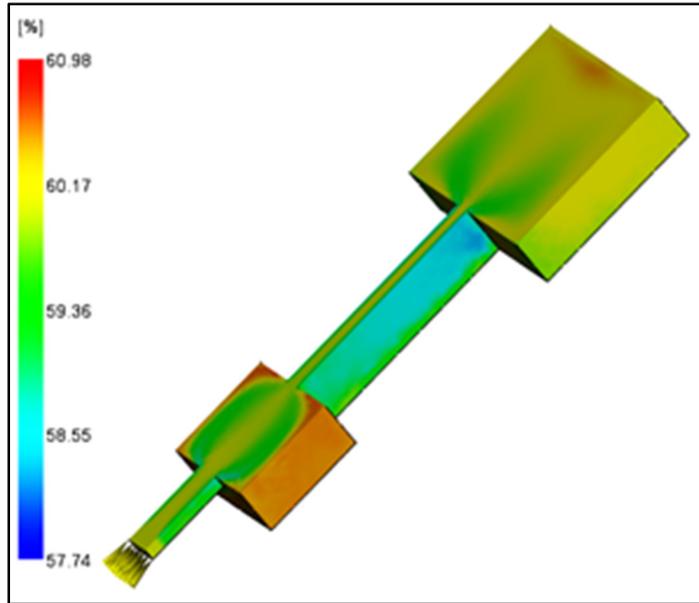


Figure 3.11 Exemple de résultat de ségrégation de poudre obtenu par Moldflow Insight 2017.3 (Autodesk, 2019)

3.3.4 Validation de l'injection simulée

La validation de l'injection obtenue par simulations numériques a été effectuée à l'aide d'injections à l'échelle réelle. Le moule montré en à la Figure 3.12a a été monté sur la presse à injection disponible à l'ÉTS (Figure 3.12c) pour produire une pièce de forme complexe conçue dans le but de démontrer le potentiel de la technologie LPIM à produire une pièce à vert avec un taraudage et des trous croisés et de formes différentes. La température à la surface du moule a été déterminée à l'aide des bandes de mesures de température (Figure 3.12b). L'interface de commande de la presse montrée a permis d'interrompre la séquence d'injection à différents volumes déterminés afin de comparer les formes du front de matière ainsi que les temps d'injection aux résultats de simulation numérique pour différents pourcentages de remplissage.

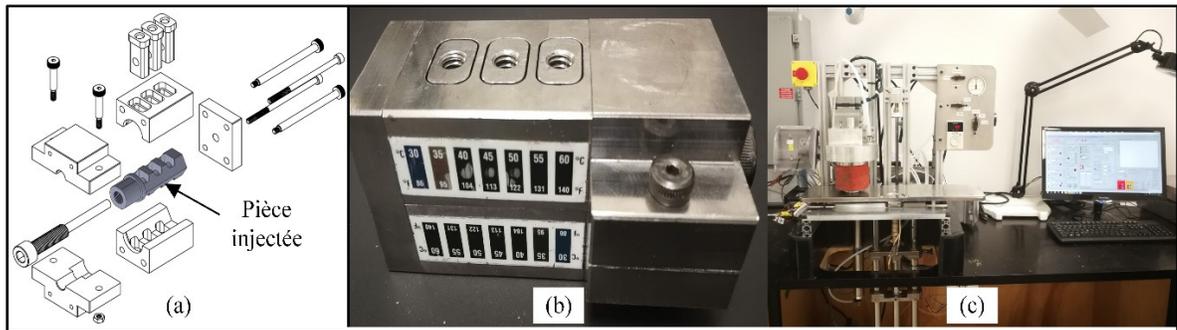


Figure 3.12 (a) Vue éclatée du moule utilisé pour l'injection de la pièce de forme complexe étudiée dans le cadre du projet, (b) emplacement des bandes de mesure de température et (c) presse d'injection à basse pression utilisée

Le principe de l'injection consiste à remplir le réservoir cylindrique chauffé à la température désirée à travers la descente du piston qui entraîne l'écoulement du mélange dans ce cylindre. Par la suite, le glissement de la table permet d'aligner le cylindre avec la buse du moule, suivi de la montée du piston pour acheminer le mélange dans la cavité du moule (Figure 3.13).

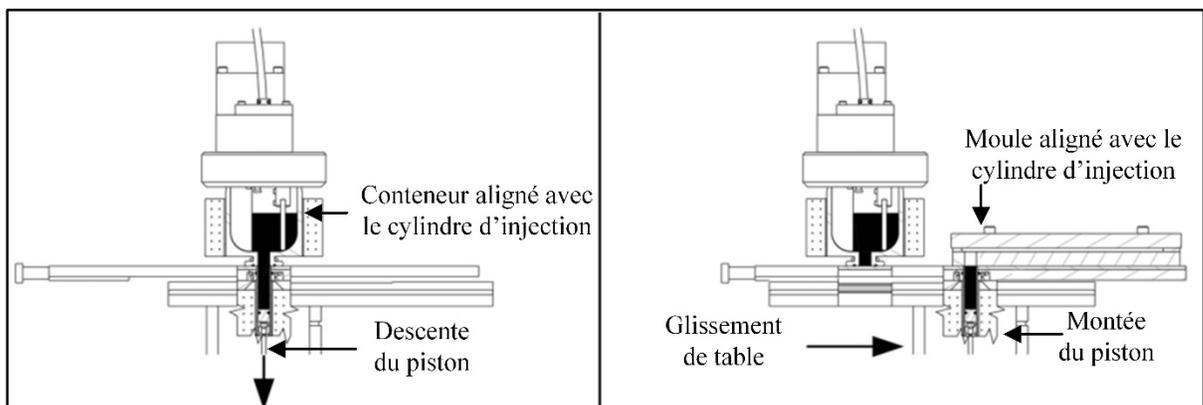


Figure 3.13 Étapes d'injection du mélange avec la machine d'injection à basse pression (Lamarre et al., 2017)

3.3.5 Validation de la ségrégation simulée

L'analyse de la séparation de phases entre la poudre et le liant a été effectuée en utilisant une machine d'analyse thermogravimétrique Pyris Diamond Perkin Elmer (Figure 3.14a). Le principe consiste à chauffer un échantillon de mélange jusqu'à la dégradation totale du liant,

tout en enregistrant le profil de variation de masse en fonction de la température. La masse finale est reconvertie en pourcentage volumique de poudre et est ensuite comparée à la fraction volumique de poudre nominale. Un profil typique d'analyse thermogravimétrique est donné à la Figure 3.14b. La courbe est marquée par une température de début de dégradation du liant polymérique, une température de fin de dégradation et d'une augmentation de la masse à haute température due à l'oxydation de la poudre métallique à chaud. Le pourcentage massique final (wt. %_{poudre}) obtenu correspond au minimum de la courbe.

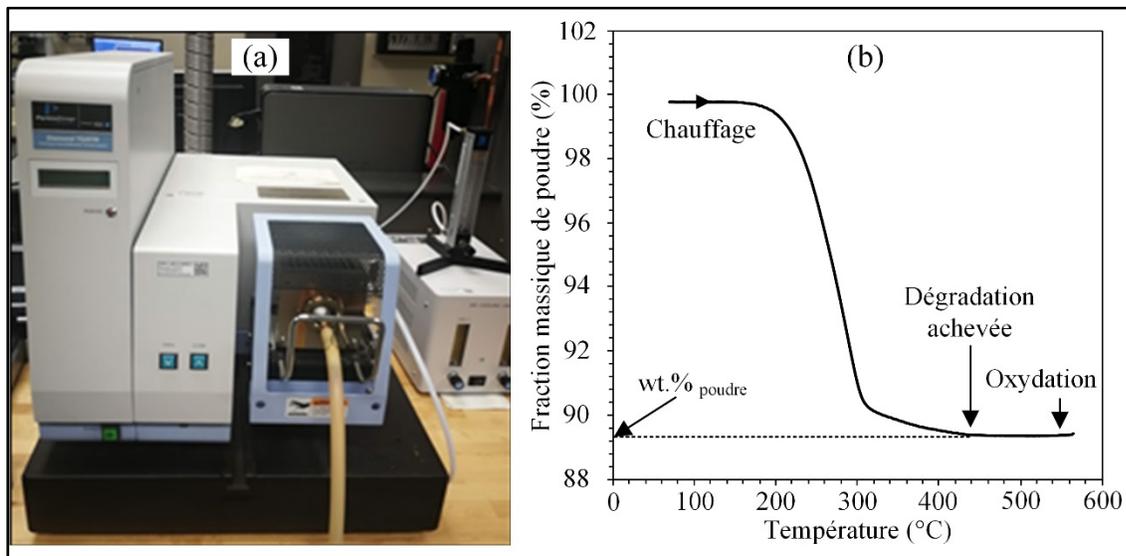


Figure 3.14 (a) Machine d'analyse thermogravimétrique (TGA) et (b) courbe typique de test d'analyse thermogravimétrique

La valeur du pourcentage massique de la poudre restante après la dégradation totale du liant indiquée à la Figure 3.14b est ensuite introduite dans l'équation 3.11 afin de convertir cette valeur en fraction volumique de poudre.

$$vol.\% = \left[1 + \left(\frac{\rho_{poudre}}{\rho_{liant}} \right) \times \left(\frac{1}{wt.\%_{poudre}} - 1 \right) \right]^{-1} \quad (3.11)$$

Avec ρ_{poudre} et ρ_{liant} sont les masses volumiques de la poudre et du système de liant respectivement (en g/cm^3) et $vol. \%$ et $wt. \%_{poudre}$ sont respectivement les fractions volumique et massique restantes de poudre après dégradation totale de liants.

CHAPITRE 4

MOLDING PROPERTIES OF TITANIUM-BASED FEEDSTOCK USED IN LOW-PRESSURE POWDER INJECTION MOLDING

Oussema Ghanmi¹, Vincent Demers¹

¹ École de technologie supérieure, 1100 Notre-Dame West, Montreal, QC H3C 1K3, Canada

Article soumis pour publication, novembre 2019

Les résultats recueillis lors de ce projet de recherche ont été compilés pour rédiger un article constituant le présent chapitre. Cet article a été soumis au journal « Powder Technology » qui porte sur les applications et la caractérisation des poudres par voie sèche et humide. Il portera sur l'étude de l'impact de la formulation sur le comportement rhéologique, le choix d'un mélange à simuler parmi ceux étudiés et sa caractérisation pour bâtir le modèle numérique. Les résultats de ce dernier en termes d'injectabilité et de défauts de ségrégation seront ensuite validés.

4.1 Abstract

The moldability of titanium-based feedstocks used in low-pressure powder injection molding process was investigated using numerical simulation and real-scale injections. Feedstock characterization and injection were conducted using a feedstock formulated from a Ti-6Al-4V powder and a low-viscosity binder system. The thermal characteristics of the feedstock, including the specific heat capacity and the thermal conductivity, were measured over a 20-120 °C temperature range, while rheological profiles were experimentally measured at 80, 90, and 100 °C to establish the constitutive equations to be implemented in the model. The mold filling stage of a complex shape part was numerically simulated using Autodesk Moldflow Synergy 2019. The predicted filling time and magnitude of powder segregation after an injection were validated using a laboratory injection press and thermogravimetric analysis. The melt front location and filling completion predicted by the numerical model at different short shots were in good agreement with the experimental observations, with relative differences below 9%. Moldflow was also used to identify the high shear rate zones experienced by the

feedstock, in which a predicted segregation of 2 vol. % was validated by experimental tests. A halo shape segregation pattern was determined as resulting from a solidified skin and/or a segregation band passing near the interface of the shear rate gradient.

Key words: Low-pressure powder injection molding, Titanium powder, Moldability, Numerical simulation, Injection

4.2 Introduction

Titanium alloys are used in several areas, such as the chemical, aerospace, transportation, and medical fields, due to their combination of low density, high mechanical properties, high specific strength, high corrosion resistance, and good biocompatibility (Cotton et al., 2015; Niinomi et al., 2002; Veiga, Davim, & Loureiro, 2012). However, some limitations related to their high cost, low machinability, and low forgeability direct hamper massive production of intricate parts with these materials. During the last 30 years, powder injection molding (PIM) has therefore been used to produce titanium parts with higher shape complexity at lower cost (German, 2010; R. M. German, 2013; Zak Fang, 2010). The PIM process involves four main stages, namely, the mixing of powder with molten binder, the injection molding of the feedstock into a mold cavity, the debinding stage to remove the binder, and the sintering stage to obtain a metallic component exhibiting a theoretical density close to the wrought material (D. F. Heaney, 2012). This manufacturing technology is divided into two branches according to feedstock viscosity. The first branch is the conventional high-pressure powder injection molding (HPIM) using high-viscosity feedstocks (e.g., $10^2 < \eta < 10^3$ Pa·s) injected at pressures ranging from 50 to 200 MPa. The second branch is the low-pressure powder injection molding (LPIM), which takes advantage of low-viscosity feedstocks (e.g., < 20 Pa·s) to achieve higher moldability during an injection performed generally at a pressure lower than 1 MPa. To date, the molding potential of titanium-based feedstocks has mostly been demonstrated using the HPIM approach (Chen et al., 2009; Nyberg, Miller, Simmons, & Weil, 2005).

The moldability of a feedstock is directly linked with its rheological properties, where a decrease in viscosity promotes the mold filling of a higher shape-complexity cavity (Lamarre et al., 2017). The rheological behavior of a feedstock is generally governed by the binder system (Demers, Turenne, & Scalzo, 2015; Raza, Sulong, Muhamad, Akhtar, & Rajabi, 2015);

powder characteristics such as shape, size, and surface roughness (Hausnerova, Mukund, & Sanetnik, 2017; Oh, Lee, & Park, 2017), and process parameters, such as temperature, pressure, filling rate, and shear deformation rate (Seokyoung Ahn, Park, Lee, Atre, & German, 2009; Panahi, Mianajiy, Miandoabchi, & Fareed, 2013). The influence of these parameters on injection capacity can be experimentally assessed using Weir's moldability index, which combines three rheological parameters, such as the reference viscosity (η_0), the shear rate sensitivity index (n), and the activation energy for viscous flow (E), for a given feedstock (Aslam et al., 2016; Ghanbari, Alizadeh, Ghasemi, Rad, & Ghaffari, 2015). Initially developed for polymers (Weir, Doyle, & Norton, 1963), this experimental model has been successfully used to quantify the moldability of several metallic-based feedstocks (Aggarwal, Park, & Smid, 2006; Gholami & Demers, 2018; Ibrahim, Muhamad, & Sulong, 2009; Park et al., 2009), including titanium-based feedstocks for the HPIM process (Ibrahim et al., 2009; Li, Huang, & Qu, 1999; Park et al., 2009). Although this model can be substituted for the trial and error method in order to accelerate feedstock formulation development, this experimental approach remains time-consuming and relatively expensive, particularly for high-added value alloys such as titanium powders. In this respect, numerical simulation becomes an alternative to overcome these limitations; it also has the added benefit of proposing other physical quantities usually required for the optimization of the process, such as the filling pattern, the melt front velocity, the filling times, and the pressure through the mold cavity (Thornagel, 2010). For metallic-based feedstocks, the simulation of the filling stage has successfully been realized only for high-viscosity powder-binder mixtures used in HPIM. Shang et al. (Shang et al., 2019) used FLUENT software to predict the effect of injection parameters on the phase segregation of a 316L stainless steel-based mixture. They found that a higher injection speed and temperature lead to a higher powder-binder separation, especially at the weld line location. Ahn et al. (S Ahn, Chung, Atre, Park, & German, 2008) predicted the pressure variation occurring during the mold filling and the solidification behavior during the mold cool down for a 316L stainless steel-based feedstock using the PIMsolver package. Bilovol et al. (Bilovol et al., 2006) highlighted that the viscosity change (i.e., different viscosity profiles implemented in the simulations) is one of the most important parameters during an injection. They used the ProCAST package to simulate the mold filling of a stainless steel-based feedstock and found

that an overestimated viscosity leads to erroneous pressure prediction through the mold cavity during the filling stage. The same research team proposed to use three simulation packages (C-Mold, Moldflow, and ProCAST) to predict the melt flow front, the weld lines position, the temperature, and the pressure, before concluding that all these packages can simulate the HPIM process; in their effort, Moldflow software was highlighted as the most promising commercial package for a high-viscosity feedstock (Bilovol et al., 2003). Additionally, Moldflow was used to predict the appearance of defects, such as two-phase separation and surface wrinkle, by simulating the bulk stress and temperature distribution for a carbonyl iron-based feedstock (Mohamad, Muhamad, Jamaludin, Ahmad, & Ibrahim, 2009). A few years earlier, Binet et al. (Binet et al., 2005) used the same package to simulate the injection behavior of a 316L-based feedstock, focusing their interest on the filling progression and the pressure near the gate location. Moldflow software was used to simulate the mold filling of an intricate tungsten-based feedstock, and confirmed that the shape and size of the gate affect the shear rate, temperature, and pressure distributions over the mold cavity (Z.-X. Zheng et al., 2008). To the best of the authors' knowledge, the prediction of the flow behavior for titanium-based feedstocks using a numerical simulation approach has received only limited attention in one recent work by Lin et al. (Lin et al., 2018). In that work, the gate location and the filling time were optimized using the Moldflow package for a high-viscosity feedstock used in HPIM. For the LPIM process, the simulation of mold filling, including the filling time, jetting, and pressure distribution, was performed only for ceramic-based feedstocks (M. Sardarian, O. Mirzaee, & A. Habibolahzadeh, 2017b; M Sardarian, O Mirzaee, & A Habibolahzadeh, 2017; Zhang & Lin, 2007). Although the potential to predict the flow behavior of ceramic-based LPIM feedstocks has been demonstrated, numerical models describing the injection stage using metallic-based LPIM feedstocks (including titanium-based ones) were not found in the literature. The aim of this study is to investigate the impact of low-viscosity binder constituents on the moldability of LPIM titanium-based feedstocks and predict the appearance of defects using numerical simulations.

4.3 Methodology

4.3.1 Feedstocks preparation

Plasma-atomized Ti-6Al-4V powder with a spherical shape and a nominal particle size of 15 μm was provided by AP&C (Boisbriand, Canada). A Hitachi 3600 scanning electron microscope (with secondary electrons or backscattered electron detectors) was used to examine the particle shape of the dry powder (Figure 4.1a) and powder distribution within the feedstock (Figure 4.9d, e). The particle size distribution was measured using an LS 13320 Beckman Coulter laser diffraction particle analyzer, and the frequency curve and cumulative particle size distribution are plotted in Figure 4.1b.

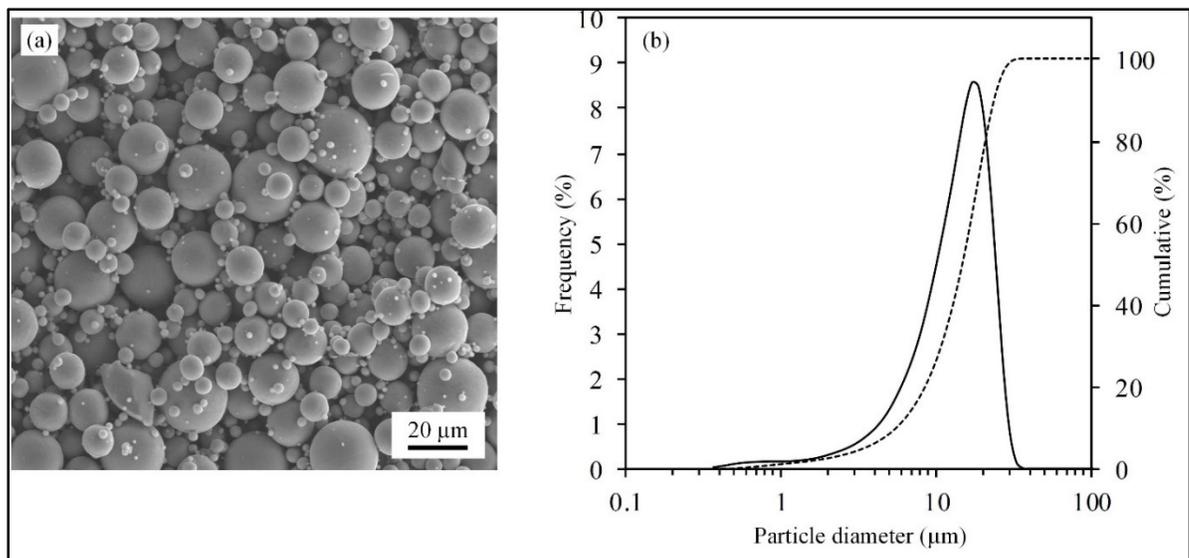


Figure 4.1 Ti-6Al-4V powder (a) SEM micrograph, and (b) particle size distribution showing a D_{10} , D_{50} , and D_{90} at 5.6, 14.9, and 23.9 μm , respectively

Titanium powder was mixed with different wax-based binders to formulate the four feedstocks reported in Tableau 4-1. The solid loading, representing a typical value for obtaining homogeneous powder-binder mixtures, was set at 63 vol. % of powder for all feedstocks. Paraffin wax, ethylene-vinyl acetate and stearic acid were selected due to their extensive use in LPIM. These binder constituents have been chosen to ensure the fluidity of the feedstocks

and promote the thickening and the surfactant effects in order to minimize segregation and enhance the chemical links between the powder and binder (Seokyoung Ahn et al., 2009; Leverkusen, Coronel-Hernandez, Dirscherl, Gorlov, & Janssen, 2001). The density of the metallic powder, binders, and feedstocks was measured using an AccuPyc II 1340 helium gas pycnometer according to the ASTM B923-16 standard method (ASTM, 2016), while the melting point of each binder constituent and feedstock was evaluated using a Perkin Elmer Pyris 1 DSC according to the ASTM D3418-15 standard (ASTM, 2018b) Tableau 4-1 and Tableau 4-2).

Tableau 4-1 Feedstocks properties

Feedstock	Vol. %				Pycnometer density (g/cm^3)	Melting Point ($^{\circ}\text{C}$)
	Metallic powder	Paraffin wax	Stearic acid	Ethylene-vinyl acetate		
F1	63	33	1	3	3.124	58.5
F2	63	29	5	3	3.128	58.2
F3	63	24	10	3	3.136	60.1
F4	63	30	1	6	3.127	62.3

Tableau 4-2 Density and melting point of feedstock constituents

Constituent	Pycnometer density (g/cm^3)	Melting point ($^{\circ}\text{C}$)
Metallic powder	4.430	1660
Paraffin wax	0.906	58.8
Ethylene-vinyl acetate	0.960	70.9
Stearic acid	0.997	73.9

4.3.2 Feedstocks characterization

The feedstock properties were characterized using melt rheology, calorimetry, and thermal conductivity, and then implemented into the numerical model for simulating the mold filling stage. The rheological behavior of the molten feedstock was characterized using an Anton Paar MCR 302 rotational rheometer with a measuring cylinder and cup configuration (CC-17) placed into a temperature-controlled measuring system (C-PTD 200). The feedstock, the cylinder, and the container were preheated according to the method developed in (F. Fareh,

Demers, Demarquette, Turenne, & Scalzo, 2017) to avoid segregation that may occur during testing. Molten feedstock was poured into the rheometer and then tested at shear rates ranging from 0.5 to 665 s⁻¹ at three different temperatures (80 °C, 90 °C and 100 °C). Each condition was repeated three times, and the viscosity profiles were plotted using the average value of the viscosity. For DSC testing, feedstock or single-binder specimens with a mass of about 10 mg were encapsulated in standard aluminum hermetic pans and tested over temperatures ranging from 20 to 120 °C using a heating rate of 10 °C/min under dry nitrogen gas flow of 50 ml/min. The DSC thermograms were recorded from the second heating cycle to minimize the thermal history and maximize the thermal contact between the pan and the specimen. The evolution of the specific heat according to temperature was obtained using the standard ASTM-E1269 test method (ASTM, 2018a), and the DSC thermograms for the specific heat capacity of the specimen holder and sapphire standard were repeated twice. A Quantum Design Physical Property Measurement System (PPMS P670) with a Thermal Transport Option (TTO) was used to measure the thermal conductivity of the feedstock according to the test method given in (Borup et al., 2015). A disk-shaped sample (Ø5 mm and 3 mm thick) was installed in the TTO tool operating in high vacuum to receive a thermal pulse, and finally measure the thermal conductivity over a 0 to 120 °C temperature range.

4.3.3 Numerical simulation and validation of the model

Numerical simulations were performed using Moldflow Synergy 2019 (Autodesk Inc.) to predict the filling pattern and segregation occurrence through the part illustrated in Figure 4.2a-d. This geometry demonstrates the ability of the LPIM process to produce complex shapes with different features, including internal threads, recesses, thin walls, and holes. The mold cavity was meshed using 3D tetrahedral-elements containing 1,103,620 elements, with an edge length of 0.5 mm, as illustrated in Figure 4.2e.

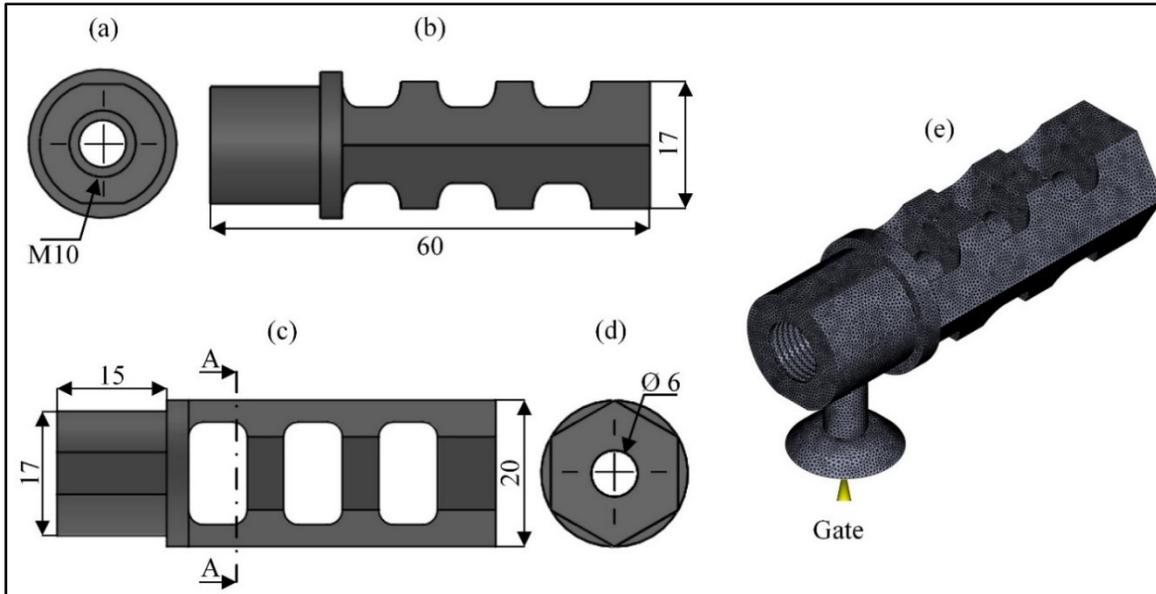


Figure 4.2 (a-d) Front, side, top, and rear views of a complex shape part (dimensions in mm; cutting plane A-A is used in Figure 4.9 and Figure 4.10 for the segregation analysis), and (e) 3D view of the part and the gate location with the superimposed finite elements meshing

The process parameters used for the numerical simulations, as well as for the real-scale injections, are reported in Tableau 4-3. The injection of the four feedstocks reported in Tableau 4-1 was performed into the spiral mold to validate the moldability index model (complete procedure is available in a previous work (Lamarre et al., 2017)), while the injection of the complex shape mold cavity reported in Figure 4.2 was conducted only with the feedstock F1 to validate the simulation results. All feedstocks were heated up to 80 °C, blended using a planetary mixer at 10 rpm for 30 minutes under vacuum, and then injected into the mold cavities to produce different short shot conditions.

Tableau 4-3 Process parameters used for the numerical simulations and real-scale injections

Mold temperature (°C)	35
Feedstock temperature (°C)	80
Piston speed (mm/s)	11.3
Volume flow rate (cm ³ /s)	2.2

Segregation was characterized using a PerkinElmer Diamond TG/DTA thermogravimetric analyzer (TGA) according to a method recently developed and refined in a previous study (Demers, Fareh, Turenne, Demarquette, & Scalzo, 2018). The powder concentration after binder burnout was measured at two different locations within a critical zone of the injected part, and then converted in terms of vol. % using Eq. (4.1).

$$Powder \text{ vol. \%} = \left(1 + \frac{\rho_{powder}}{\rho_{binder}} \times \left(\frac{1}{Powder \text{ wt. \%}} - 1 \right) \right)^{-1} \quad (4.1)$$

where, Powder vol. % is the volume fraction of powder, Powder wt. % is the remaining weight percentage of powder after binder burnout, and ρ powder and ρ binder are the density of the powder and binder, both given in Tableau 4-2.

4.4 Results and discussion

4.4.1 Feedstock properties and selection

As reported in Figure 4.3, a shear thinning behavior was observed for all feedstocks in which the viscosity decreased rapidly from a low to a moderate shear rate (i.e., 0.5-50 s⁻¹), and followed by a near-Newtonian plateau visible from a moderate to a high shear rate (i.e., 50-665 s⁻¹). As expected, the lowest viscosity value was obtained at high temperature with the feedstock containing a small proportion of thickening agent (i.e., feedstock F1), and conversely, the highest viscosity value was obtained at low temperature with the feedstock containing a large proportion of thickening agent (i.e., feedstock F4).

During this study, an intricate phenomenon involving an increase in viscosity when stearic acid is increased was highlighted. This unexpected trend was observed with feedstocks F1, F2, and F3, where adding 1, 5, and 10 vol. % of the surfactant agent into a feedstock containing a constant proportion of thickening agent (i.e., 3 vol. % of EVA) produced an increase of about 40% in viscosity. As a first hypothesis, this feedstock behavior could be explained by a change in the ratio of paraffin wax to ethylene-vinyl acetate ($\beta = \text{vol. \% of EVA} / \text{vol. \% of PW}$) since the paraffin wax is replaced by stearic acid, as reported in Tableau 4-1. For feedstocks F1 and

F3, the ratio β increases from 0.09 to 0.13, indicating that although the proportion of EVA remains constant, the thickening effect could be emphasized as the relative proportion of EVA to PW increases in feedstocks, and leading finally to an increase in feedstock viscosity. This first approach considers a homogeneous distribution of the powder within the feedstock (i.e., no agglomeration), and that a threshold proportion of stearic acid exists, above which any further addition should not induce a surfactant effect. In this respect, the fluidity of paraffin wax could be vanished by the thickening effect of EVA as the β ratio increases. As a second hypothesis, this increase in viscosity between feedstocks F1 and F3 could indicate a better dispersion of the particles within the binder with a higher proportion of stearic acid. This second approach considers an initial heterogeneous distribution of the powder within the feedstock, where agglomerations are unstable due to the high content of surfactant (i.e., no threshold proportion of stearic acid exists), leading to a final homogeneous distribution of the powder within the binder. Therefore, this dispersed particle network affects the values of viscosities since the feedstock exhibiting lower agglomeration (i.e., feedstock F3) produces higher viscosity due to the higher interparticular friction present. Note that this intricate phenomenon was also observed at different solid loadings for similar titanium-based feedstocks (not shown in this study), and with stainless steel-based feedstocks, in a previous study (Ali, Demers, Côté, & Demarquette, 2019).

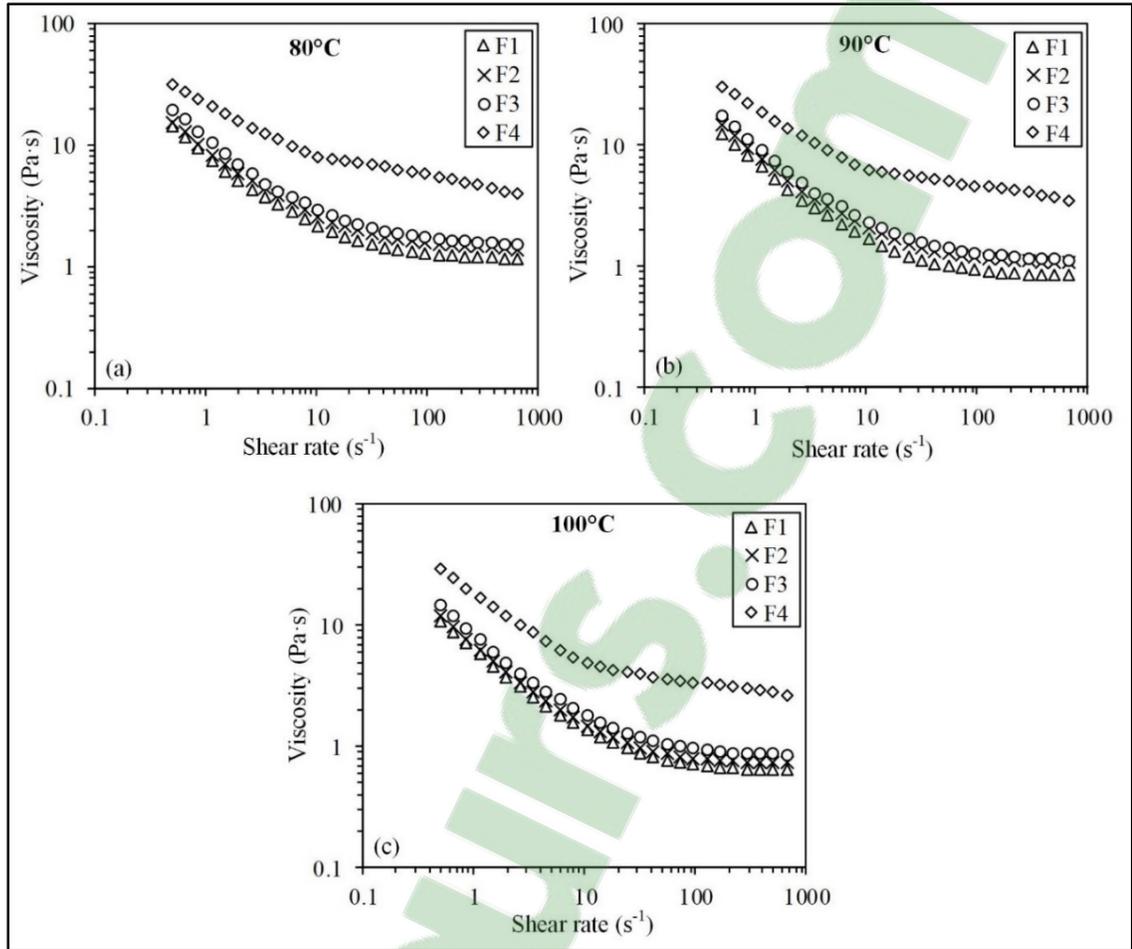


Figure 4.3 Viscosity profiles of feedstocks F1, F2, F3, and F4 at (a) 80 °C, (b) 90 °C, and (c) 100 °C

Three rheological parameters were then extracted from the viscosity profiles reported in Figure 4.3 to calculate the moldability index for the four feedstocks according to Eq. (4.2) and the methodology summarized in (Fouad Fareh, Demers, Demarquette, Turenne, & Scalzo, 2016).

$$\alpha_{STV} = \frac{|n - 1|}{\eta_0 \times E/R} \quad (4.2)$$

where α_{STV} is the moldability index, η_0 is the viscosity at a reference shear rate representing the molding process (in this project, the reference viscosities were taken at a shear rate of 25 s⁻¹, representing an average value calculated from all nodes in Moldflow), n is the flow behavior index quantifying the slope of the shear thinning behavior, E is the activation energy

for viscous flow quantifying the degree of the temperature sensitivity to the feedstock viscosity, and R is the gas constant. The three rheological parameters are reported in Tableau 4-4, while the moldability index and injected length for all feedstocks are plotted in Figure 4.4. Although feedstocks F2 and F3 demonstrated similar molding capabilities, the Weir model was able to capture the moldability differences seen at low, moderate, and high feedstock viscosities. Due to its high moldability potential, feedstock F1 was then selected for the next characterization stage and for numerical simulations.

Tableau 4-4 Rheological parameters extracted from the viscosity profiles and used to calculate the moldability indexes

Feedstock	Temperature (°C)	η_0 (Pa·s)	n	E (kJ/mol)
F1	80	2.1	0.40	24.7
	90	1.6	0.49	
	100	1.3	0.50	
F2	80	2.5	0.44	29.4
	90	2.0	0.48	
	100	1.5	0.53	
F3	80	2.9	0.41	25.9
	90	2.3	0.46	
	100	1.8	0.49	
F4	80	7.9	0.58	26.5
	90	6.2	0.63	
	100	4.8	0.64	

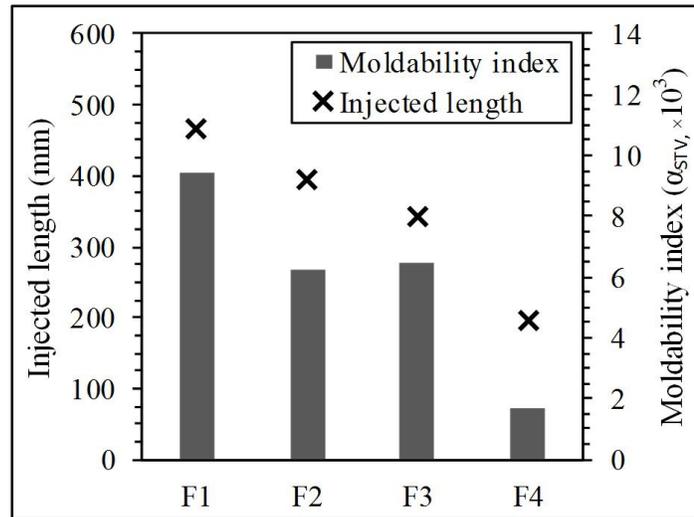


Figure 4.4 Moldability results for feedstocks F1 to F4 used to select the feedstock for the numerical simulations

Thermal properties, such as specific heat (C_p) and thermal conductivity (k), of feedstock F1 reported in Figure 4.5a-b were implemented into Moldflow as a material law matrix. The feedstock melting point was determined from the last peak obtained during the second heating cycle, as indicated by an arrow at 58.5 °C in Figure 4.5a. The viscosity models available in Moldflow for describing the evolution of viscosity at different temperatures and shear rates include the Cross-WLF or second-order models. The choice of one or the other of these models depends on the shape of the viscosity profile (Binet et al., 2005; Jiang, Wang, Xie, & Huang, 2005). In general, the Cross-WLF model is used when the viscosity remains constant at low shear rates and shows a significant decrease at medium and high shear rates, while the second-order model is used when the viscosity quickly decreases at low shear rates and shows a Newtonian plateau at high shear rates (Binet et al., 2005; Z.-X. Zheng et al., 2008). In this project, the shear thinning behavior preceding the quasi-Newtonian plateau observed for all testing temperatures in Figure 4.5c-d was better captured by the second-order model given by the following Eq. (4.3).

$$\ln \eta = A + B \ln \dot{\gamma} + C T + D (\ln \dot{\gamma})^2 + E \ln \dot{\gamma} + F T^2 \quad (4.3)$$

where η is the viscosity, $\dot{\gamma}$ is the shear rate, T is the corresponding temperature, and $A, B, C, D, E,$ and F are the fitting coefficients. The experimental viscosity profiles obtained at different temperatures (Figure 4.5d) were fitted using the Matlab Curve Fitting Toolbox to determine the fitting coefficients reported in Tableau 4-5, and finally implemented into Moldflow as the viscosity model for the feedstock F1.

Tableau 4-5 Fitting coefficients of the second order viscosity model for the feedstock F1

Fitted coefficient	Value
A	4.198
B	-0.5021
C	-0.03549
D	0.06875
E	-0.002917
F	0.0001182

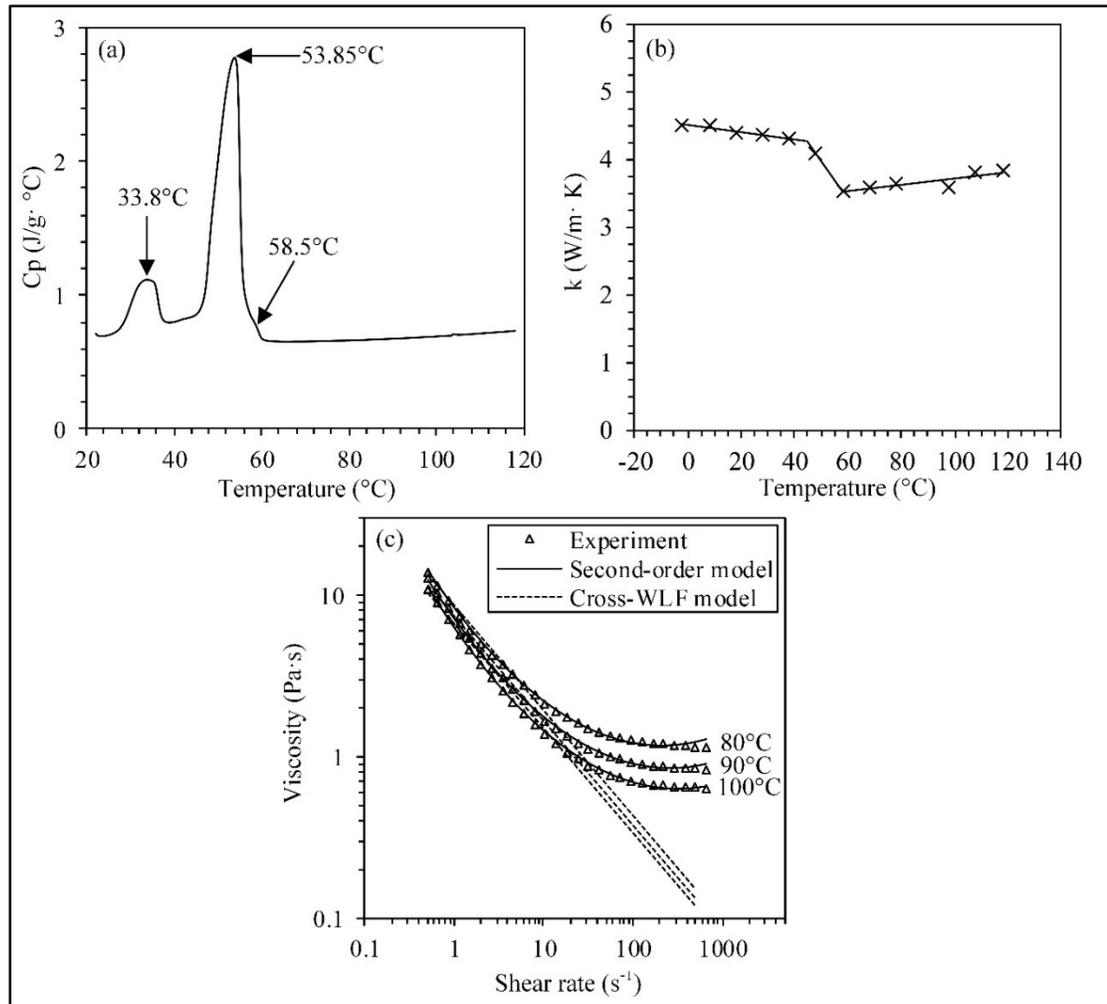


Figure 4.5 Thermal and rheological properties of feedstock F1 (a) specific heat, (b) thermal conductivity, and (c) viscosity profiles with superimposed Cross-WLF and second order models

4.4.2 In cavity flow pattern

The shape aspect of the simulated and injected parts for different short shot conditions is illustrated in Figure 4.6. The flow pattern and the location of the melt front predicted by the numerical model at different filling stages were in good agreement with the experimental observations. The low injection velocity used in this study (piston of about 11 mm/s at the gate) favors a laminar mold filling in which the effect of the gravity is visible both in simulations and in experiments. Since the gravity acts along the z-axis in Figure 4.6, Moldflow

correctly predicted a non-planar melt front over a horizontal feedstock flow during the mold filling (Figure 4.6a-d). After a horizontal injection, several incomplete mold filling defects were visible on thin wall sections at the top of the mold, as shown in Figure 4.6c. A zoom-in of this area of interest (Figure 4.7a) indicates a V-shape filling defect. This defect could be due to solidification shrinkage producing sinks on the top of the part or to the non-planar melt flow leading to an early solidification on the top of the part near the defect zone, and difficulty for the feedstock reaching these thin zones. In this respect, a change in the mold orientation for aligning the feedstock flow direction with the gravity produces a planar melt front, leading to a symmetric mold filling producing a defect free short shot filling, as illustrated in Figure 4.6e. Indeed, a zoom-in of the thin wall section of the vertically injected part (Figure 4.7b) confirms that the solidification sinks disappear.

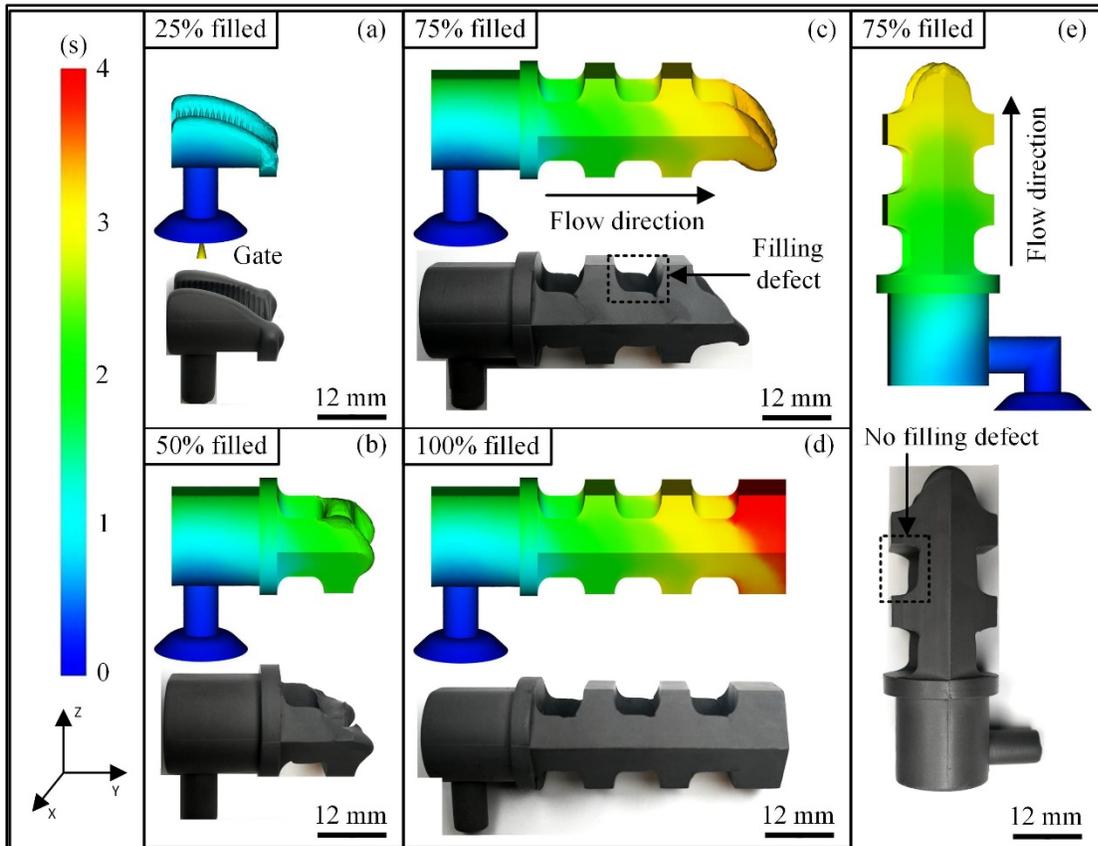


Figure 4.6 Comparison of the shape aspect of the simulated and injected parts at different filling stages obtained with feedstock F1: (a-d) horizontal feedstock flow, and (e) vertical feedstock flow (i.e., gravity along the z-axis)

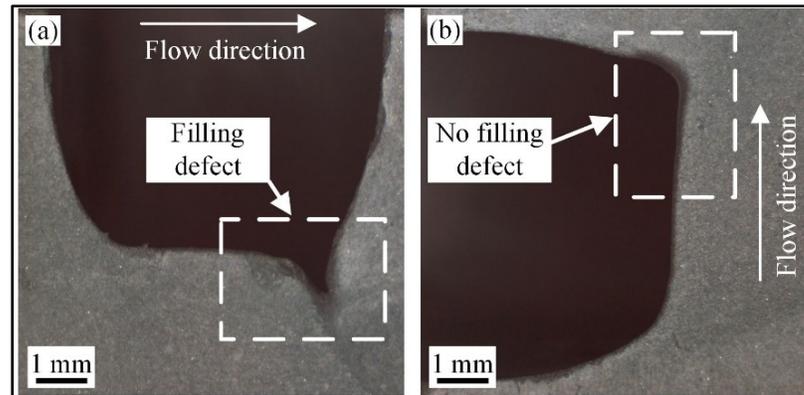


Figure 4.7 Effect of gravity (i.e., feedstock flow orientation) on filling defects located in thin wall sections of the mold after a 75% mold filling (a) horizontal feedstock flow produces solidification sink defects, zoom in the area delineated in Figure 4.6c, and (b) vertical feedstock flow produces complete mold filling, zoom in the area delineated in Figure 4.6e

During the filling stage, the volumetric filling percentage increases proportionally with the filling time since the injection is performed at a constant volumetric flow. Indeed, if the cavity is completely filled after 4 s, the mold is supposed to be filled at 25, 50, and 75% after 1, 2, and 3 s, respectively (Figure 4.8). Although real-scale short shot injections are relatively sensitive to process control, the filling times predicted by the numerical model were in good agreement with the experimental observations (a maximum relative difference of 8.5%), especially at the mold filling completion stage, showing a relative difference lower than 1.5%. This result confirms that a Moldflow model, which takes into account the measured thermal and rheological feedstock properties (Figure 4.5) can be used to simulate the injection stage and develop complex shape parts produced by the LPIM process.

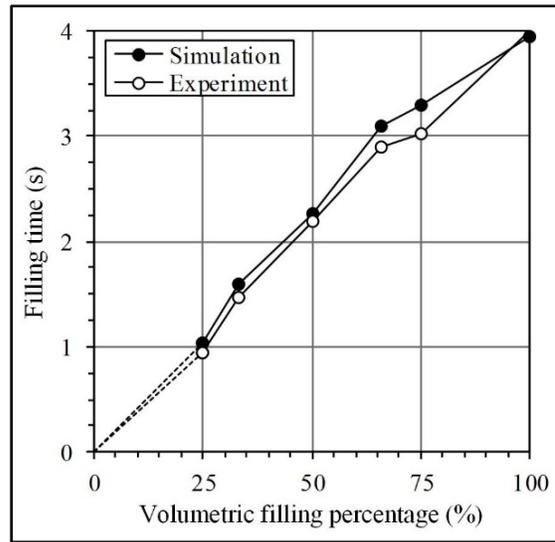


Figure 4.8 Experimental and simulated filling time of feedstock F1 at different short shots

4.4.3 In cavity segregation analysis

Segregation occurring during the injection phase can be seen as an inhomogeneous local powder distribution in an injected part. This phenomenon may lead to anisotropic shrinkage during sintering, and in turn produce defects such as cracks, voids, and distortions. Segregation is generally an unwanted phenomenon occurring before or during injection due to high shear rates, improper mixing, or gravity (Shivashankar, Enneti, Park, German, & Atre, 2013). Figure 4.9a shows the cross-section view of a typical injected part used to investigate segregation through the thin wall section (i.e., cut along the plan A-A depicted in Figure 4.2c). In terms of injection difficulty and segregation occurrence, this area was considered as a critical zone due to its geometry containing two thin tapered features. In this respect, the numerical simulation results obtained in this specific area predicted a slight gradient in powder volume fraction varying from 61 to 63 vol. %, as reported in Figure 4.9b. However, these segregated areas close to the mold wall and highlighted in green by the simulation, were not directly correlated with the optical observations, where a continuous blurred black line was somewhat visible (Figure 4.9c). High-magnification SEM observations of segregated and non-segregated zones (i.e., zones A & B in Figure 4.9c) are presented in Figure 4.9d-e. The blurred black line observed

by optical stereoscope (Figure 4.9c) and naked eyes (Figure 4.9a) seems to be a feedstock area containing no coarse particle. Indeed, the central area delimited by two dashed lines in Figure 4.9d corresponds to the blurry black line observed in Figure 4.9c, and contains a maximum powder size of about 15 μm (instead of 33 μm). Figure 4.9d also shows that the peripheral zones corresponding to the light area observed from either side of the black line in Figure 4.9c contain the complete particle size distribution varying from 0 to 33 μm . Finally, the powder size distribution observed in these peripheral zones of the black line is similar to that observed far from this artifact area, as illustrated in Figure 4.9e. These results confirm that the blurry black line is not due to the well-known powder-binder separation phenomenon producing a binder-rich zone, but rather, appears to be attributable to the segregation of coarse powder along a thin band probably due to the high shear rate gradient experienced by the feedstock during the injection stage. As well-summarized by Thornagel (Thornagel, 2010), the particles tend to change their flow direction to escape this high shear rate zone, which leads to phase separation and/or difficulty for coarse particles flowing within these specific zones. Although a higher shear deformation rate is expected at the mold wall, the location of this segregation zone could be explained by a rapid solidification of a skin of about 300 μm due to the high thermal gradient generally experienced by the feedstock at the mold wall (illustrated in Figure 4.9c but not captured by Moldflow in Figure 4.9b). Following this solidification skin, the high shear rate zone is simply moved to this liquid/solid interface, which explains the presence of a constant black line all around the triangle shape (this solidification skin hypothesis is discussed below). Although the segregated band was not clearly predicted by Moldflow (i.e., two colored zones instead of one thin band in Figure 4.9b), the numerical simulation could be used to highlight the areas of the part exhibiting a segregation potential requiring further investigations.

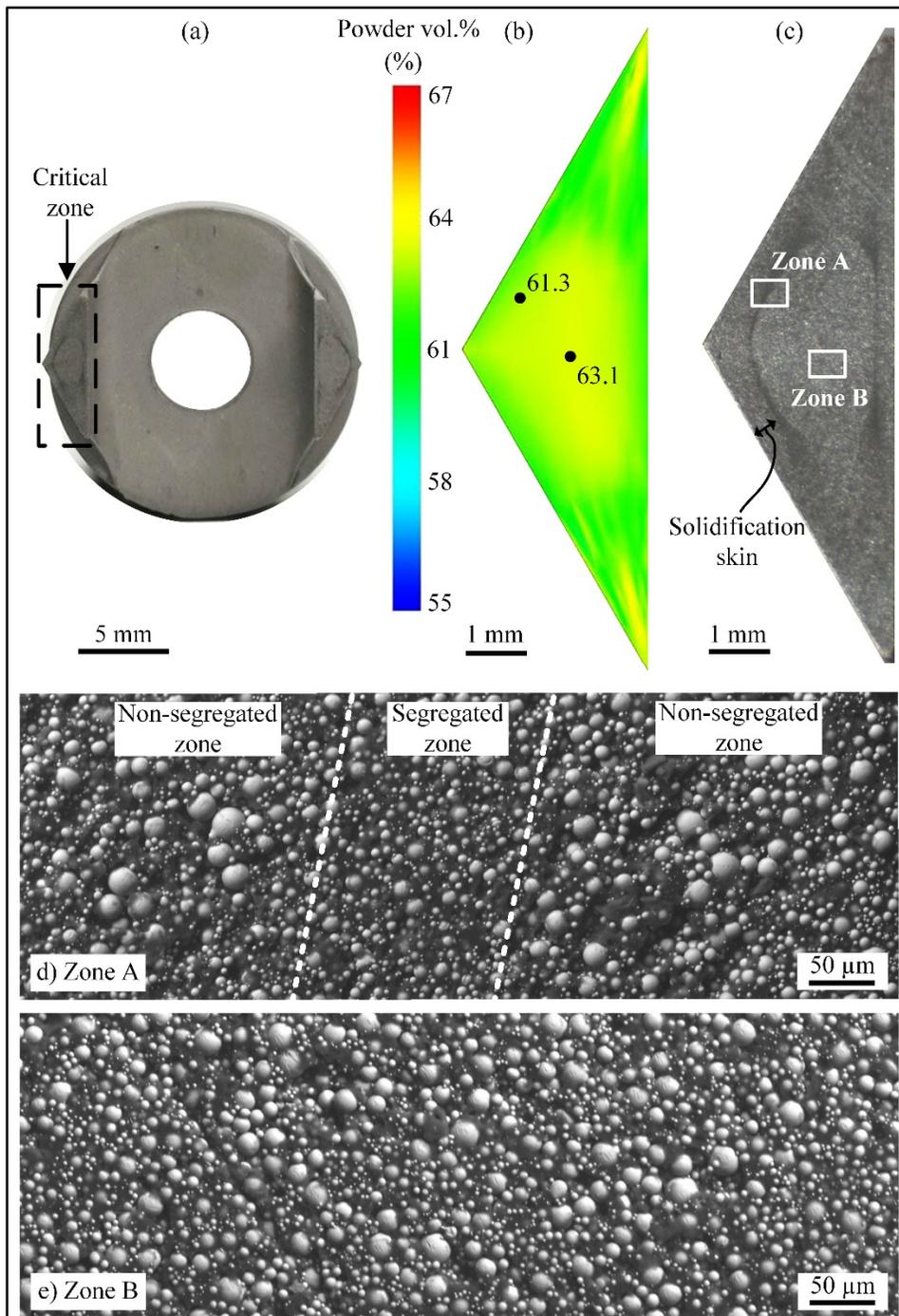


Figure 4.9 (a) Cross section view of an injected part (cut along the plan A-A in Figure 4.2c) showing a blurred black line in the critical zone, (b) powder segregation predicted by Moldflow in this critical zone, (c) optical stereoscope observation of this critical zone, (d-e) typical SEM observations within two characteristic zones showing segregated (zone A) and non-segregated (zone B) areas

Segregation occurrence in the zones A & B shown in Figure 4.9c was validated using TGA analysis. The first specimen representing the central area of the Figure 4.9d was carefully extracted from the black line region ($\sim 0.150 \times 1 \times 1$ mm), while the second specimen was taken off from the center of this thin wall section, as illustrated in Figure 4.9c. The results of the thermogravimetric analysis reported in Tableau 4-6 confirm that the black line corresponds to a segregated band with a solid loading of about 61 vol. % (i.e., 2 percentage points lower than the nominal solid loading), while the volume fraction of powder far from this artifact area is at the nominal value. Although the shape of the segregated band was not perfectly predicted by Moldflow, the local values extracted from the simulation (i.e., two black points illustrated in Figure 4.9b) are in good agreement with those obtained experimentally, with a relative difference below 0.3 %. Since a lower difference in particle size generally leads to an increase in interparticular friction, and consequently, to a decrease in packing density (D. F. Heaney, 2012), this local decrease in solid loading may be due to the absence of coarse particles within this black line area (Sotomayor, Várez, & Levenfeld, 2010).

Tableau 4-6 Validation of the simulated segregation occurrence

Zone	Volume fraction of powder (vol. %)			Relative difference (%)
	Simulated	Experiment	Nominal	
A	61.3	61.1	63.0	0.33
B	63.1	63.2	63.0	0.16

The simulated shear deformation rate experienced by the feedstock and viscosity developed in the mold cavity during the injection are presented in Figure 4.10 for different filling times (note that results at 1 s were omitted because the thin wall section of the mold is empty at that filling time (see Figure 4.6)). During the mold filling, a shear rate gradient visible in Figure 4.10a is typically around zero at the center, top, and bottom of the cross-section, and varies from 150 to 300 s^{-1} elsewhere. The viscosity results presented in Figure 4.10b confirm that the zero shear rates at the top and bottom areas are associated with a solidified feedstock (i.e., very high viscosity), while the low shear rate within the central region corresponds to a liquid state mixture (i.e., very low viscosity) experiencing almost no shear deformation rate. As expected, the highest shear rate is found near the mold walls, where the progressive reduction of the

running section associated with the filling progress (i.e., the liquid state zone decreases from 2 to 4 s) induces a local increase in feedstock velocity, since the injection is performed at a constant flow rate. Furthermore, the viscosity patterns reported in Figure 4.10b predict no solidification skin around the cross-section, except at the top and bottom areas of the part. Therefore, and as a second hypothesis aimed at explaining the segregation pattern obtained experimentally, the halo-shape segregation pattern seen in Figure 4.9c was superimposed in Figure 4.10a just before the mold filling completion at 4s. It is interesting to note that the experimental segregation path roughly connects all different shear rate gradient interfaces. Based on previous results obtained by Thornagel (Thornagel, 2010) and the simulated shear rate patterns reported in Figure 4.10a, the location of the segregation band passing near the interface of the shear rate gradient seems to be the most plausible explanation.

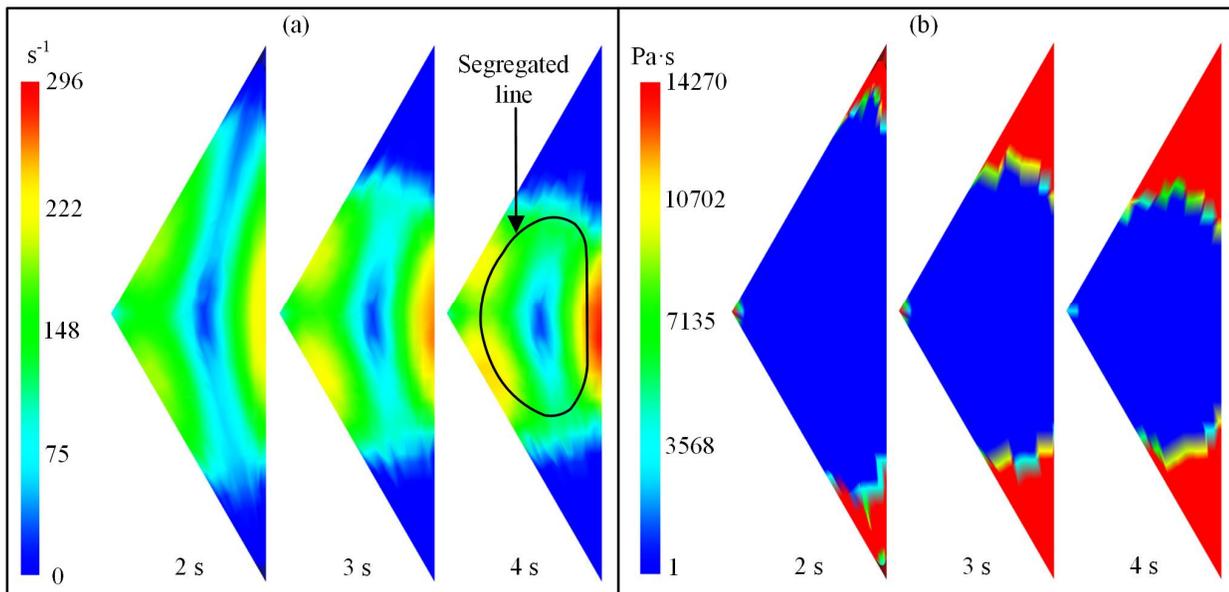


Figure 4.10 Simulation results for: (a) shear deformation rate with superimposed segregated line, and (b) viscosity at different filling times in the thin wall sections of the mold (cut along the plan A-A in Figure 4.2c)

4.5 Conclusion

The moldability potential of a complex-shape part using a titanium-based feedstock was obtained by numerical simulation (Autodesk Moldflow Synergy 2019) and experiments. The

effect of the binder system on the rheological behavior was investigated using four different feedstock formulations. Weir's model and spiral mold were used to define the feedstock being used in numerical simulations. The feedstock properties, such as the viscosity, melting point, thermal conductivity, and specific heat capacity, were experimentally characterized and then implemented into Moldflow as a material law matrix. The predicted filling time and magnitude of powder segregation after injections were validated using a laboratory injection press and thermogravimetric analysis. The conclusions are summarized as follows:

- The melt front location and filling completion predicted by Moldflow at different short shots were in good agreement with the experimental observations, with a maximum relative difference below 9 % and a relative difference as low as 1.5 % at the end of the filling stage.
- Moldflow was used to identify the high shear rate zones experienced by the feedstock in which a predicted segregation of 2 vol. % was validated by experimental tests. However, the halo-shape segregation pattern visible within the cross-section of the injected parts was not clearly predicted by numerical simulations.
- High-magnification SEM observations confirmed that the segregation bands were due to the segregation of coarse powder along a thin band, probably due to high shear rate gradient experienced by the feedstock during the injection stage. Although a higher shear deformation rate was expected at the mold wall, the halo-shape segregation location shifting from the mold wall was attributed to a solidified skin and/or a segregation band passing near the interface of the shear rate gradient.

4.6 Acknowledgements

This work was carried out with the financial support of the Natural Science and Engineering Research Council (NSERC) of Canada and the MITACS Globalink Graduate Fellowship. The authors wish to thank Mr. Sarthak Kapoor for his collaboration in injection tests

CONCLUSION DU PROJET

Le présent projet avait comme objectif l'étude de l'impact des liants à basse viscosité sur le comportement rhéologique des mélanges à base de titane et de prédire l'apparition de la ségrégation dans les mélanges utilisés en moulage par injection à basse pression. Une poudre de titane atomisée par plasma a été utilisée et a démontré une excellente fluidité expliquée par l'aspect très sphérique de ses poudres comparées aux autres procédés d'atomisation. Quatre différentes formulations ont été préparées en faisant varier les proportions des liants tout en gardant un chargement solide fixe de 63 vol. %. À cause de son effet surfactant, l'ajout de plus d'acide stéarique a engendré un effet inattendu par une augmentation de la viscosité des mélanges. Ce phénomène peut s'expliquer par deux hypothèses où une augmentation de l'acide stéarique favorise d'une part l'augmentation du ratio d'éthylène-acétate de vinyle par rapport à la cire de paraffine et/ou d'autre part l'uniformité de la distribution des poudres dans le mélange par la destruction des agglomérations de poudre. Le mélange ayant la formulation contenant 33 vol. % de PW, 1 vol. % de SA et 3 vol. % d'EVA a été choisi comme formulation optimale due à son excellente injectabilité prédite analytiquement par le modèle de Weir et validée expérimentalement par détermination de la longueur injectée dans la cavité d'un moule en forme de spirale.

Le meilleur candidat parmi les mélanges a été utilisé pour simuler numériquement la phase d'injection avec le logiciel Autodesk Moldflow Insight 2019. Pour ce faire, les propriétés thermiques (température de fusion, conductivité thermique et chaleur spécifique) et rhéologiques ont été expérimentalement mesurées et puis implémentées dans le modèle. La comparaison des résultats de simulations numériques et les observations expérimentales ont montré une bonne cohérence en termes d'emplacement du front de matière à différents instants avec une erreur relative maximale de 9 % et de 1,5 % à la fin de remplissage. Un défaut de remplissage dans une zone mince de la pièce a été observé expérimentalement, sans être prédit par le logiciel de simulation numérique. Ceci peut être dû à une température de moule non-atteinte à la surface intérieure, ce qui a été considérée comme constante lors de son introduction comme paramètre d'injection dans le logiciel Moldflow.

Des observations au microscope électronique à balayage ont confirmé que la bande visible à l'œil nu était en fait une zone de ségrégation de la poudre survenue durant l'injection qui était caractérisée par un appauvrissement de poudre de taille grossière. Bien qu'attendu à la paroi du moule, l'emplacement de cette zone de ségrégation de la poudre était décalé des parois du moule. Ceci s'explique possiblement par la formation d'une zone de peau solidifiée due au premier passage du mélange à travers cette section et/ou un gradient de vitesses conduisant des gradients de taux de cisaillements dans la même zone. Bien que les résultats de ségrégation prédite par le logiciel de simulation ont été validés expérimentalement à l'aide d'essais thermogravimétriques (i.e., confirmant une ségrégation d'environ 2 vol. % dans cette zone), la forme de la bande mince n'a pas été clairement prédite par le modèle numérique.

RECOMMANDATIONS DU PROJET

Les résultats obtenus dans ce projet de mémoire de maîtrise ont démontré la capacité du procédé de moulage par injection des poudres à basse pression à produire des pièces de formes complexes à partir des mélanges à base de titane. Il sera donc intéressant de poursuivre dans ce volet de recherche. On recommande:

- **La continuité vers les étapes suivantes du procédé LPIM :** La présente étude s'est intéressée uniquement aux phases de préparation et d'injection des mélanges. Il sera important d'étudier le déliantage et le frittage des mêmes formulations ou d'autres à plus hauts chargements solides et géométries de même ordre de complexité, surtout vu la haute réactivité du titane et trouver les traitements thermiques adéquats pour l'obtention de pièces brunes et finales de haute qualité.
- **L'amélioration du modèle numérique :** La ségrégation observée dans ce projet a été expliquée par l'absence des particules de grosses tailles de la zone à haut gradient de taux de cisaillement, alors que le logiciel utilisé tient compte uniquement de la valeur de diamètre moyen D_{50} . Il sera donc intéressant d'adapter le logiciel à prendre en considération toute la distribution de tailles de particules. De plus, tel que pris comme hypothèse au début, la viscosité n'était pas impactée par la variation de concentration de poudre due à la ségrégation. Une telle amélioration est aussi recommandée pour raffiner les résultats.
- **L'étude des propriétés thermiques des mélanges:** La chaleur spécifique et la conductivité thermique sont indispensables pour étudier adéquatement l'injectabilité et l'apparition des défauts vu qu'elles agissent directement sur la solidification des mélanges lors de la phase d'injection. La multitude des constituants et les réactions chimiques entre eux rendent l'utilisation des modèles théoriques (comme celui de Maxwell pour la conductivité thermique) pour l'estimation et la validation des résultats expérimentaux impossible. Il sera donc important de pousser la recherche dans le sens de l'étude approfondie du comportement thermique des mélanges à plusieurs constituants à différentes températures et pressions.

LISTE DE RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Chang, I., & Zhao, Y. (2013). *Advances in powder metallurgy: Properties, processing and applications*. Elsevier.
- Giguère, N. (2010). Développement de nouvelles formulations de poudres métalliques pour la fabrication de composantes de haute performance.
- Heaney, D. (2012). Powders for metal injection molding (MIM). Dans *Handbook of Metal Injection Molding* (pp. 50-63). Elsevier.
- Heaney, D. F. (2012). *Handbook of metal injection molding*. Woodhead Publishing.
- Lamarre, S. G., Demers, V., & Chatelain, J.-F. (2017). Low-pressure powder injection molding using an innovative injection press concept. *The International Journal of Advanced Manufacturing Technology*, 91(5), 2595–2605. doi: 10.1007/s00170-016-9889-1. Repéré à <https://doi.org/10.1007/s00170-016-9889-1>
- Peters, M., Kumpfert, J., Ward, C. H., & Leyens, C. (2003). Titanium alloys for aerospace applications. *Advanced Engineering Materials*, 5(6), 419–427.
- Aggarwal, G., Park, S. J., & Smid, I. (2006). Development of niobium powder injection molding: Part I. Feedstock and injection molding. *International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*, 24(3), 253-262.
- Ahn, S., Chung, S., Atre, S., Park, S., & German, R. (2008). Integrated filling, packing and cooling CAE analysis of powder injection moulding parts. *Powder Metallurgy*, 51(4), 318-326.
- Ahn, S., Park, S. J., Lee, S., Atre, S. V., & German, R. M. (2009). Effect of powders and binders on material properties and molding parameters in iron and stainless steel powder injection molding process. *Powder Technology*, 193(2), 162-169. doi: <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2009.03.010>
- Ali, G., Demers, V., Côté, R., & Demarquette, N. R. (2019). Threshold concentration of surfactant agent in feedstocks used for low-pressure powder injection molding. *Materials Performance and Characterization*, Article in press.
- Andrews, I., Nishiyabu, K., & Tanaka, S. (2009). A Case Study on Computational Fluid Dynamics Analysis of Micro-MIM Products.
- Aslam, M., Ahmad, F., Yusoff, P. S. M. B. M., Altaf, K., Omar, M. A., Abdul Khalil, H. P. S., & Raza, M. R. (2016). Investigation of Rheological Behavior of Low Pressure Injection

Molded Stainless Steel Feedstocks. *Advances in Materials Science and Engineering*, 2016, 9. Repéré à <http://dx.doi.org/10.1155/2016/5347150>

ASTM International. (2016). *Standard Test Method for Metal Powder Skeletal Density by Helium or Nitrogen Pycnometry*. Norme ASTM B923-16. West Conshohocken, PA: ASTM International. doi: 10.1520/B0923-16

ASTM International. (2018a). *Standard Test Method for Determining Specific Heat Capacity by Differential Scanning Calorimetry*. Norme ASTM-E1269-11(2018). West Conshohocken, PA: ASTM International. doi: 10.1520/E1269-11R18

ASTM International. (2018b). *Standard Test Method for Melting And Crystallization Temperatures By Thermal Analysis*. Norme ASTM E794-06(2018). West Conshohocken, PA: ASTM International. doi: 10.1520/E0794-06R18

Atre, S., Park, S.-J., Zauner, R., & German, R. M. (2007). Process simulation of powder injection moulding: identification of significant parameters during mould filling phase. *Powder Metallurgy*, 50(1), 76-85.

Autodesk. (2019). Powder injection molding process. Repéré le 09 octobre 2019 à <https://help.autodesk.com/view/MFIA/2018/ENU/?guid=GUID-A31D504B-B2BC-4718-B0CE-33A42CD0EA6A>

Bilovol, V., Kowalski, L., Duszczuk, J., & Katgerman, L. (2003). Comparison of numerical codes for simulation of powder injection moulding. *Powder Metallurgy*, 46(1), 55-60.

Bilovol, V., Kowalski, L., Duszczuk, J., & Katgerman, L. (2006). The effect of constitutive description of PIM feedstock viscosity in numerical analysis of the powder injection moulding process. *Journal of Materials Processing Technology*, 178(1-3), 194-199.

Binet, C., Heaney, D. F., Spina, R., & Tricarico, L. (2005). Experimental and numerical analysis of metal injection molded products. *Journal of Materials Processing Technology*, 164-165, 1160-1166. doi: doi.org/10.1016/j.jmatprotec.2005.02.128

Borup, K. A., De Boor, J., Wang, H., Drymiotis, F., Gascoin, F., Shi, X., . . . Iversen, B. B. (2015). Measuring thermoelectric transport properties of materials. *Energy & Environmental Science*, 8(2), 423-435.

Chang, I., & Zhao, Y. (2013). *Advances in powder metallurgy: Properties, processing and applications*. Elsevier.

Chen, L.-j., Ting, L., Li, Y.-m., Hao, H., & Hu, Y.-h. (2009). Porous titanium implants fabricated by metal injection molding. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*, 19(5), 1174-1179.

- Chikwanda, H., & Benson, J. (2009). The challenges of titanium metal injection moulding. *Journal for New Generation Sciences*, 7(3), 1-14.
- Cotton, J. D., Briggs, R. D., Boyer, R. R., Tamirisakandala, S., Russo, P., Shchetnikov, N., & Fanning, J. C. (2015). State of the Art in Beta Titanium Alloys for Airframe Applications. *JOM*, 67(6), 1281-1303. doi: 10.1007/s11837-015-1442-4. Repéré à <https://doi.org/10.1007/s11837-015-1442-4>
- Demers, V., Fareh, F., Turenne, S., Demarquette, N. R., & Scalzo, O. (2018). Experimental study on moldability and segregation of Inconel 718 feedstocks used in low-pressure powder injection molding. *Advanced Powder Technology*, 29(1), 180-190. Repéré à <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0921883117304211>
- Demers, V., Turenne, S., & Scalzo, O. (2015). Impact of binders on viscosity of low-pressure powder injection molded Inconel 718 superalloy. *Journal of Materials Science*, 50(7), 2893-2902. Repéré à <https://doi.org/10.1007/s10853-015-8853-z>
- Fareh, F. (2016). *Caractérisation des mélanges développés pour le moulage basse pression des poudres métalliques (LPIM)* (École de technologie supérieure).
- Fareh, F., Demers, V., Demarquette, N. R., Turenne, S., & Scalzo, O. (2016). Molding Properties of Inconel 718 Feedstocks Used in Low-Pressure Powder Injection Molding. *Advances in Materials Science and Engineering*, 2016, 7. doi: 10.1155/2016/7078045. Repéré à <http://dx.doi.org/10.1155/2016/7078045>
- Fareh, F., Demers, V., Demarquette, N. R., Turenne, S., & Scalzo, O. (2017). Influence of segregation on rheological properties of wax-based feedstocks. *Powder Technology*, 320, 273-284. doi: 10.1016/j.powtec.2017.07.056
- German, R. M. (2010). Status of metal powder injection molding of titanium. *International Journal of Powder Metallurgy*, 46(5).
- German, R. M. (2012). Infrastructure emergence for metal injection molded titanium medical device. *International Journal of Powder Metallurgy*, 48(2).
- German, R. M. (2013). Progress in titanium metal powder injection molding. *Materials*, 6(8), 3641-3662.
- German, R. M. (2013). Progress in Titanium Metal Powder Injection Molding. *Materials (Basel)*, 6(8), 3641-3662. doi: 10.3390/ma6083641
- Ghanbari, A., Alizadeh, M., Ghasemi, E., Rad, R. Y., & Ghaffari, S. (2015). Preparation of optimal feedstock for low-pressure injection molding of Al/SiC nanocomposite. *Science and Engineering of Composite Materials*, 22(5), 549-554.

- Gholami, E., & Demers, V. (2018). Molding properties of cobalt-chrome-based feedstocks used in low-pressure powder injection molding. *International Journal of Mechanical and Production Engineering*, 6(10), 33-38.
- Guo, S., Duan, B., He, X., & Qu, X. (2009). Powder injection molding of pure titanium. *Rare Metals*, 28(3), 261-265.
- Hausnerova, B., Mukund, B. N., & Sanetnik, D. (2017). Rheological properties of gas and water atomized 17-4PH stainless steel MIM feedstocks: Effect of powder shape and size. *Powder Technology*, 312, 152-158.
- Heaney, D. (2012). Powders for metal injection molding (MIM). Dans *Handbook of Metal Injection Molding* (pp. 50-63). Elsevier.
- Heaney, D. F. (2012). *Handbook of metal injection molding*. Woodhead Publishing, .
- Ibrahim, M., Muhamad, N., & Sulong, A. B. (2009). Rheological investigation of water atomised stainless steel powder for micro metal injection molding. *International Journal of Mechanical and Materials Engineering*, 4(1), 1-8.
- Ilinca, F., Héту, J. F., Derdouri, A., & Stevenson, J. (2002). Metal injection molding: 3D modeling of nonisothermal filling. *Polymer Engineering & Science*, 42(4), 760-770.
- Jiang, B.-Y., Wang, L., Xie, L., & Huang, B.-Y. (2005). Viscosity model parameters fitting of feedstock in MIM simulation and analysis. *Chinese Journal of Nonferrous Metals*, 15(3), 429-434.
- Lamarre, S. G., Demers, V., & Chatelain, J.-F. (2017). Low-pressure powder injection molding using an innovative injection press concept. *The International Journal of Advanced Manufacturing Technology*, 91(5), 2595-2605. doi: 10.1007/s00170-016-9889-1. Repéré à <https://doi.org/10.1007/s00170-016-9889-1>
- Leverkoehne, M., Coronel-Hernandez, J., Dirscherl, R., Gorlov, I., & Janssen, R. (2001). Novel binder system based on paraffin-wax for low-pressure injection molding of metal-ceramic powder mixtures. *Advanced Engineering Materials*, 3(12), 995-998.
- Leyens, C., & Peters, M. (2003). *Titanium and titanium alloys: fundamentals and applications*. John Wiley & Sons.
- Li, Y., Huang, B., & Qu, X. (1999). Viscosity and melt rheology of metal injection moulding feedstocks. *Powder Metallurgy*, 42(1), 86-90.
- Lin, D., Kang, T. G., Han, J. S., Park, S. J., Chung, S. T., & Kwon, Y.-S. (2018). Experimental and Numerical Analysis of Injection Molding of Ti-6Al-4V Powders for High-Performance Titanium Parts. *JOM*, 70(5), 621-625.

- Metal Powder Industries Federation. (2019a). Metal Injection Molding. Repéré le 19-09-2019 à <https://www.mpif.org/IntrotoPM/Processes/MetalInjectionMolding.aspx>
- Metal Powder Industries Federation. (2019b). State of the PM Industry in North America—2018. Repéré le 30 juin 2019 à <https://www.mpif.org/News/PressReleases/TabId/166/ArtMID/1129/ArticleID/105/StateofthePMIndustryinNorthAmerica2018.aspx>
- Mohamad, N. N., Muhamad, N., Jamaludin, K., Ahmad, S., & Ibrahim, M. (2009). Flow behaviour to determine the defects of green part in metal injection molding. *International Journal of Mechanical and Materials Engineering*, 4(1), 70-75.
- Niinomi, M., Hattori, T., Morikawa, K., Kasuga, T., Suzuki, A., Fukui, H., & Niwa, S. (2002). Development of low rigidity β -type titanium alloy for biomedical applications. *Materials transactions*, 43(12), 2970-2977.
- Novak, S., Dakskobler, A., & Ribitsch, V. (2000). The effect of water on the behaviour of alumina-paraffin suspensions for low-pressure injection moulding (LPIM). *Journal of the European Ceramic Society*, 20(12), 2175-2181. doi: [https://doi.org/10.1016/S0955-2219\(00\)00083-2](https://doi.org/10.1016/S0955-2219(00)00083-2)
- Nyberg, E., Miller, M., Simmons, K., & Weil, K. S. (2005). Microstructure and mechanical properties of titanium components fabricated by a new powder injection molding technique. *Materials Science and Engineering: C*, 25(3), 336-342.
- Oh, J. W., Lee, W. S., & Park, S. J. (2017). Influence of nano powder on rheological behavior of bimodal feedstock in powder injection molding. *Powder Technology*, 311, 18-24.
- Panahi, A. K., Mianajiy, H., Miandoabchi, E., & Fareed, M. H. (2013). Optimization of the Powder Injection Molding Process Parameters Using the Sequential Simplex Algorithm and Sensitivity Analysis. *Journal of Manufacturing Science and Engineering*, 135(1), 011006.
- Park, S.-J., Wu, Y., Heaney, D. F., Zou, X., Gai, G., & German, R. M. (2009). Rheological and Thermal Debinding Behaviors in Titanium Powder Injection Molding. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 40(1), 215-222. doi: 10.1007/s11661-008-9690-3. Repéré à <https://doi.org/10.1007/s11661-008-9690-3>
- Peters, M., Hemptenmacher, J., Kumpfert, J., & Leyens, C. (2003). Structure and properties of titanium and titanium alloys. *Titanium and titanium alloys: fundamentals and applications*, 1-36.
- Petzoldt, F., Eifert, H., Wig, T. H., Kramer, L., Veltl, G., & Pest, A. (1997). Broadening the Scope of MIM. *Material and Manufacturing Process*, 12(4), 691-711.

- Raymond, V. (2012). *Metal injection molding development: modeling and numerical simulation of injection with experimental validation* (École Polytechnique de Montréal).
- Raza, M. R., Sulong, A. B., Muhamad, N., Akhtar, M. N., & Rajabi, J. (2015). Effects of binder system and processing parameters on formability of porous Ti/HA composite through powder injection molding. *Materials & Design*, *87*, 386-392.
- Sardarian, M., Mirzaee, O., & Habibolahzadeh, A. (2017a). Influence of injection temperature and pressure on the properties of alumina parts fabricated by low pressure injection molding (LPIM). *Ceramics International*, *43*(6), 4785-4793. doi: 10.1016/j.ceramint.2016.11.208
- Sardarian, M., Mirzaee, O., & Habibolahzadeh, A. (2017b). Mold filling simulation of low pressure injection molding (LPIM) of alumina: Effect of temperature and pressure. *Ceramics International*, *43*(1), 28-34. doi: 10.1016/j.ceramint.2016.07.224
- Sardarian, M., Mirzaee, O., & Habibolahzadeh, A. (2017). Numerical simulation and experimental investigation on jetting phenomenon in low pressure injection molding (LPIM) of alumina. *Journal of Materials Processing Technology*, *243*, 374-380.
- Shang, F., Bin, Q., Dong, Y.-f., Cao, Z.-w., Wei, S., & He, Y.-q. (2019). Simulation on the Two-phase Separation of Powder Injection Molding 316L Stainless Steel. *Materials Science*, *25*(3), 246-251.
- Shivashankar, T. S., Enneti, R. K., Park, S.-J., German, R. M., & Atre, S. V. (2013). The effects of material attributes on powder–binder separation phenomena in powder injection molding. *Powder Technology*, *243*, 79-84.
- Sints Precision Technology. (2019). Metal injection molding. Repéré le 07 oseptembre à <https://sints.wordpress.com/2014/09/01/metal-powder-injection-molding-technology/>
- Sotomayor, M., Várez, A., & Levenfeld, B. (2010). Influence of powder particle size distribution on rheological properties of 316 L powder injection moulding feedstocks. *Powder Technology*, *200*(1-2), 30-36.
- Takekawa, J., & Sakurai, N. (1999). Effect of the processing conditions on density, strength and microstructure of Ti-12Mo alloy fabricated by PIM process. *Journal of the Japan Society of Powder and Powder Metallurgy*, *46*(8), 877-881.
- Thornagel, M. (2010). Simulating flow can help avoid mould mistakes. *Metal Powder Report*, *65*(3), 26-29.

- Veiga, C., Davim, J., & Loureiro, A. (2012). Properties and applications of titanium alloys: a brief review. *Rev. Adv. Mater. Sci*, 32(2), 133-148.
- Weir, F. E., Doyle, M. E., & Norton, D. G. (1963). Moldability of plastics based on melt rheology. *SPE Transactions*, 3(1), 32-41.
- Yin, H., Wang, Q., Qu, X., Jia, C., & Johnson, J. L. (2011). Computational simulation and experimental analysis of the mold-filling process in μ PIM. *Journal of Micromechanics and Microengineering*, 21(4), 045023.
- Zak Fang, Z. (2010). Powder metallurgy titanium-challenges and opportunities. *International Journal of Powder Metallurgy*, 46(5), 9-10.
- Zhang, M. M., & Lin, B. (2007). Simulation of Ceramic Injection Molding for Zirconia Optical Ferrule. *Key Engineering Materials*, 336-338, 997-1000. Repéré à <https://www.scientific.net/KEM.336-338.997>
- Zheng, Z.-X., Wei, X., Zhou, Z.-Y., & Zhu, Q.-L. (2008). Numerical simulation of tungsten alloy in powder injection molding process. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*, 18(5), 1209-1215.
- Zheng, Z., & Qu, X. (2006). Numerical simulation of powder injection moulding filling process for intricate parts. *Powder Metallurgy*, 49(2), 167-172.
- Zherebtsov, S., Salishchev, G., Galejev, R., & Maekawa, K. (2005). Mechanical properties of Ti-6Al-4V titanium alloy with submicrocrystalline structure produced by severe plastic deformation. *Materials transactions*, 46(9), 2020-2025.