

CAVITATION DANS LES ADHESIFS MOUS

Kelly Brown et Costantino Creton

Laboratoire de Physico-Chimie Structurale et Macromoléculaire – 10, Rue Vauquelin, 75231 Paris Cedex 05

Dans cette étude, la caractérisation des étapes initiales de la croissance des cavités dans les adhésifs PSA est utilisée pour déterminer la relation entre la vitesse de croissance des cavités, leur forme, et la capacité des films à dissiper de l'énergie. La croissance des cavités est observée in-situ en utilisant un test de probe-tack plan-plan, et les conditions expérimentales sont modifiées pour observer les effets de la vitesse de décollement du poinçon, de la température, et de la composition des adhésifs.

Introduction

Les performances d'un film adhésif sont communément caractérisées par l'énergie dissipée pendant le décollement de l'adhésif d'un substrat. La conception des adhésifs (au niveau de la structure chimique des composants et de la formulation) dépend de la compréhension des mécanismes contrôlant cette dissipation. Les adhésifs auxquels on s'intéresse sont auto-adhésifs (PSA) : leur performance adhésive doit être suffisante pour un temps de contact court. Dans des études récentes utilisant la technique du probe tack^[1], il a été montré que le décollement d'un film polymère très confiné commence par la formation de cavités à l'interface film-adhérend. Ces cavités vont interagir entre elles et former finalement une structure fibrillaire. Cette succession d'évènements est responsable de la différence entre le travail d'adhésion thermodynamique et l'énergie de création des surfaces^[2, 3]. En effet, l'élongation des fibrilles représenterait 80% de l'énergie dissipée^[1].

Le but d'un grand nombre d'applications industrielles des adhésifs étant d'optimiser l'énergie dissipée pendant le décollement, il est important de comprendre les conditions de formation des fibrilles. Comme cette formation est fonction de l'interaction entre les cavités, cette étude a été basée sur l'évolution de ces cavités pour différentes conditions telles que la vitesse de décollement, la température, et la composition des adhésifs. L'objectif de cette étude est de caractériser les étapes initiales de la croissance des cavités afin de dégager les informations sur le taux de croissance et de changement de forme de ces cavités qui pourront être utilisées pour prédire s'il y aura formation de fibrilles ou non.

Partie Expérimentale

Un copolymère tribloc de styrène-isoprène-styrène (SIS), de masse moléculaire 114kg/mole, contenant 30% de styrène et avec une polydispersité de 1.06 (Vector 4211D, Exxon), et une résine hydrocarbonée de faible masse moléculaire, Regalite R101 (Hercules), sont utilisés dans cette étude. Les films du mélange sont appliqués sur des lames de verre à partir de solutions de 17.7% de polymère dans du toluène. Les pourcentages en masse respectifs pour le polymère tribloc et la résine dans le mélange ont été de 40%-60%, 50%-50%, et 60%-60% Vector-Regalite. Les films ont été séchés pendant 3 à 5 jours à l'air et puis sous vide à 45°C pendant 2 jours. L'épaisseur obtenue des films est de 150 μm \pm 30 μm .

Les expériences ont été effectuées en utilisant un test de probe tack avec un poinçon plat et cylindrique de 10 mm. Les échantillons ont été placés sur un dispositif propre au laboratoire

conçu pour être aussi rigide que possible afin de minimiser la complaisance du système et d'avoir la possibilité d'aligner le film pour qu'il soit parallèle avec le poinçon cylindrique. Ce dispositif se trouve dans une enceinte permettant le contrôle de la température et la visualisation du film par le haut pendant que le poinçon approche par le bas. Le film et la lame de verre étant transparents, cette observation est rendue possible par un miroir placé au-dessus du film à 45° et sur lequel est focalisée une caméra placée en dehors de l'enceinte : ceci permet un agrandissement du phénomène de décollement.

Dans tous ces tests, les paramètres imposés ont été la rugosité du poinçon (la rugosité de la surface étant moins de 50 nm), le temps de contact (1 sec), et la contrainte maximum de contact (1Mpa). Les paramètres variables ont été la vitesse de décollement, la température, et comme mentionné auparavant, la composition. Les vitesses de décollement ont varié de 1 à 100 $\mu\text{m/s}$ et les températures d'environ 20°C à 80°C maximum pour quelques compositions.

Résultats et Discussion

Les résultats préliminaires sur les échantillons avec une composition de 50% Vector et 50% Regalite nous ont renseigné sur l'évolution de la forme de la cavité ainsi que sur sa position par rapport à l'interface film-poinçon en fonction de la température. A partir des vidéos de décollement à 1 $\mu\text{m/s}$, nous observons que les cavités nucléées à 20°C semblent conserver une forme circulaire en projection pour un degré de déformation beaucoup plus élevé que les cavités qui sont nucléées à 60°C. Les images des cavités aux deux températures à 11% de déformation sont montrées sur la Figure 1. On peut voir non seulement que le nombre de sites de nucléation diminue lorsque la température augmente, mais aussi que la forme de la cavité change de circulaire à non-circulaire. Sur les courbes contrainte-déformation, on peut voir qu'il y a des mécanismes de dissipation d'énergie présents à 20°C, indiqués par le plateau, qui sont absents à 60°C. Concernant ces deux observations, il est raisonnable de suggérer que le changement dans la forme de la cavité accompagne, ou est indicatif, d'un changement dans le mécanisme de décollement.

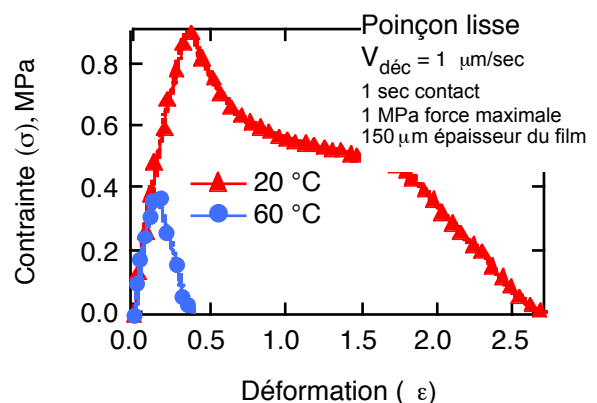
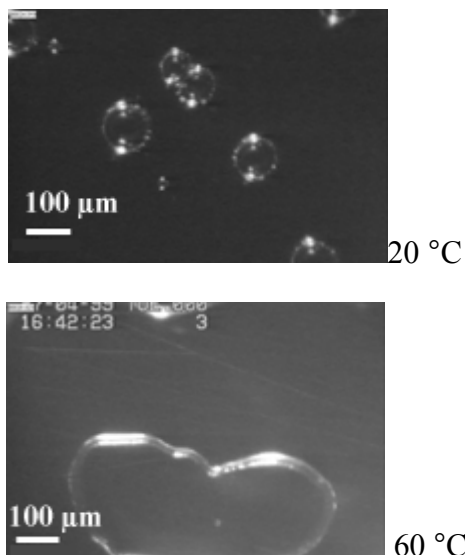


Figure 1: Cavités présentes à 11% de déformation à 20°C et 60°C. Courbe contrainte déformation correspondantes.

Il est également intéressant de noter la position de la cavité par rapport à l'interface pour les deux extrêmes en température. Les vidéos révèlent en effet que les cavités nucléées en premier à 20°C ne sont pas les cavités responsables du détachement du film du poinçon en acier. En fait, cette série de cavités reste dans le film après le détachement, indiquant que le décollement du film du poinçon doit être le résultat de la coalescence d'une deuxième série de cavités qui se forment à l'interface de façon analogue au mécanisme prédit par Gay et Leibler[2]. Cette deuxième série de cavités a effectivement été observée sur les échantillons à 20°C mais pas à 60°C (après la rupture finale, les cavités ont disparu). Ceci indique qu'il y a seulement une série de cavités qui sont créées à l'interface. Donc, il est raisonnable de suggérer que la position initiale de la cavité joue un rôle dans le changement du mécanisme de décollement.

En passant de 20°C à 60°C, il y a donc apparemment un changement dans le mécanisme de décollement également observable par la vidéo et plus quantitativement par les changements dans les courbes contrainte-déformation. Dans les deux cas, on peut définir une vitesse de croissance verticale de la cavité dans le film et une vitesse de croissance horizontale à l'interface. Il est intéressant de nous pencher sur:

- la valeur relative des vitesses de croissance d'une cavité avec les changements des conditions expérimentales telles que la vitesse de décollement, la température, et la composition,
- l'existence d'une transition entre ces deux mécanismes (la croissance verticale et la croissance horizontale) par rapport aux changements de ces mêmes conditions.

Les résultats préliminaires de l'observation du rayon moyen de la cavité projeté dans le plan du film en fonction du temps indiquent que la croissance de ce rayon n'est pas simplement une fonction linéaire du temps comme illustré sur la Figure 2. On peut noter le comportement aux étapes initiales de croissance des cavités, essentiellement linéaire avec t , correspondant à la période où il n'y a pas d'interactions avec les autres cavités. Lorsque la vitesse de décollement augmente, la vitesse de croissance des cavités dans cette région augmente aussi.

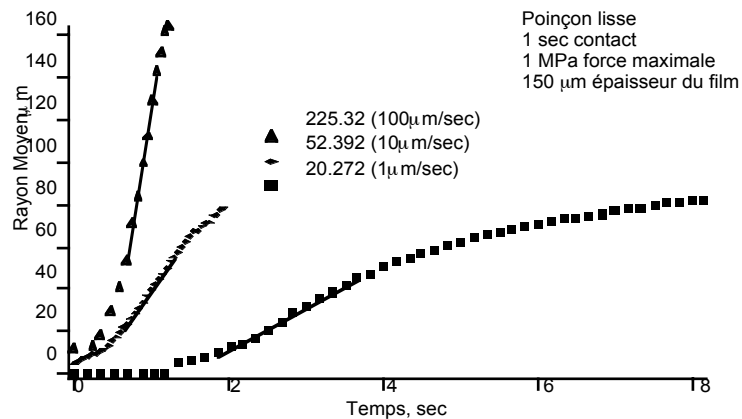


Figure 2: Rayon moyen en projection d'une bulle en fonction du temps pour trois vitesses de décollement. Le chiffre à côté de la légende correspond à la pente dans le domaine linéaire et est directement comparable à la vitesse de décollement

Toutefois le rapport entre dr/dt et V_{dec} diminue fortement lorsque V_{dec} augmente. Ceci dénote d'une part une évolution entre une croissance horizontale de la cavité (fissure interfaciale) et une croissance verticale (cavité sphérique), d'autre part, une taille moyenne des cavités plus élevée pour les faibles vitesses de décollement. Afin d'étudier cette évolution entre croissance verticale et horizontale, il serait intéressant de mesurer la hauteur des cavités. Cependant, puisque le décollement est observé en projection, il n'est pas possible de faire une mesure directe de cette grandeur. Donc, l'information du rapport hauteur/rayon de la cavité s'effectue en utilisant une comparaison entre l'aire décollée ΔA , estimée en utilisant le rayon moyen, et l'augmentation de volume entre le poinçon et la lame ΔV , directement proportionnelle au temps de décollement. On fait ici l'hypothèse que le polymère est incompressible et occupe un volume constant. On s'attendrait à ce que, pour un ΔV donnant le même nombre de cavités, un rayon moyen plus petit signifie une croissance plus verticale, tandis qu'un rayon moyen plus grand signifie une croissance horizontale. Ce comportement est illustré sur la figure 3 avec les données préliminaires prises à 20°C et à 60°C.

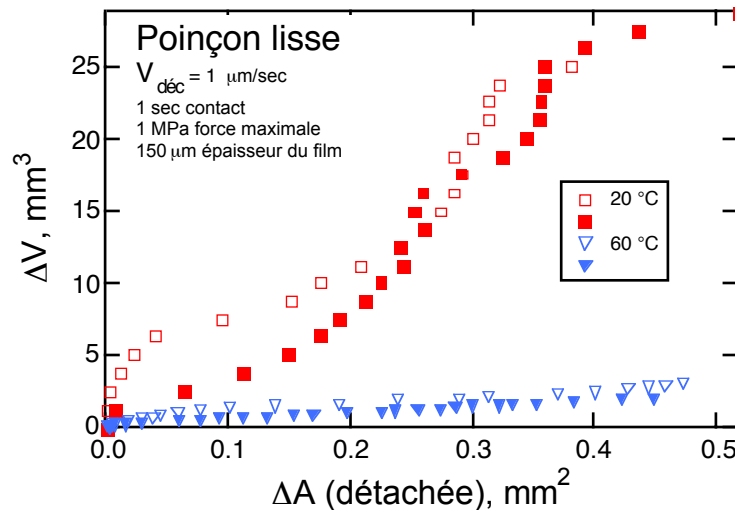


Figure 3: Variation de volume ΔV entre le poinçon et le substrat en fonction de l'aire décollée. Une valeur élevée de ΔV dénote une croissance plutôt verticale des cavités.

Les expériences en cours consistent à mieux comprendre les effets de la vitesse de décollement, de la température et de la composition sur la cinétique de croissance des cavités et sur la forme de la cavité et à les interpréter en termes d'interactions entre cavités et de mécanismes de dissipation, interfaciaux et volumiques[3].

References

- [1] H. Lakrout, P. Sergot, C. Creton, *J. Adh.* 69 (1999) 307-359.
- [2] C. Gay, Leibler.L., *Phys. Rev. Lett.* 82 (1999) 936-939.
- [3] C. Creton, H. Lakrout, soumis à *J. Polym. Sci.: Part B: Polym. Phys.*.