

DOI: 10.19951/j.cnki.1672-9331.20221209001

文章编号: 1672-9331(2024)02-0068-09

引用格式: 成钢, 唐昆, 刘冠中, 等. 聚合物微针阵列热压印成型仿真与试验研究[J]. 长沙理工大学学报(自然科学版), 2024, 21(2): 68-76.

Citation: CHENG Gang, TANG Kun, LIU Guanzhong, et al. Simulation and experimental research on the hot embossing of polymer microneedle arrays [J]. J Changsha Univ Sci Tech (Nat Sci), 2024, 21(2): 68-76.

聚合物微针阵列热压印成型仿真与试验研究

成钢¹, 唐昆², 刘冠中¹, 刘子聪¹, 袁剑平¹, 胡永乐², 毛聪²

(1. 江麓机电集团有限公司 工艺研究院, 湖南 湘潭 411100;

2. 长沙理工大学 机械装备高性能智能制造关键技术湖南省重点实验室, 湖南 长沙 410114)

摘要:【目的】针对聚合物微针阵列热压印成型过程中充型不完整、脱模后继续变形和应力集中等问题, 将成型仿真与试验相结合, 探究热压印成型参数对残余应力与平均填充深度的影响, 以满足高精度批量制造聚合物微针阵列的需求。【方法】在聚合物材料热-机械性能研究的基础上, 建立微针阵列的有限元模型, 分析热压印温度、热压印速率和下压量等成型参数对残余应力及其分布的影响, 进行热压印成型试验, 探讨相关成型参数对微针成型的影响, 对比分析了平均填充深度仿真与试验值。【结果】随热压印温度的升高, 最大成型应力呈先降后升的趋势; 随热压印速率与下压量的增加, 最大成型应力均呈增大的趋势; 除热压印温度高于 125 °C 之外, 平均填充深度的仿真值与试验值变化趋势一致, 且仿真值均高于试验值。此外, 还获得了适用于聚苯乙烯微针阵列的最佳热压印参数, 即热压印温度 125 °C、热压印速率 10 $\mu\text{m/s}$ 、下压量 2.6 mm。【结论】在一定温度范围内, 该数值仿真结果具有较高的指导意义, 聚苯乙烯微针阵列结构的残余应力与平均填充深度具有较为敏感的温度与时间相关性。

关键词: 聚合物; 微针阵列; 热压印; 有限元仿真; 填充深度

中图分类号: TH128; TH164

文献标志码: A

Simulation and experimental research on the hot embossing of polymer microneedle arrays

CHENG Gang¹, TANG Kun², LIU Guanzhong¹, LIU Zicong¹, YUAN Jianping¹,
HU Yongle², MAO Cong²

(1. Jianglu Electromechanical Group Co., Ltd., Xiangtan 411100, China;

2. Hunan Provincial Key Laboratory of Intelligent Manufacturing Technology for High-performance Mechanical Equipment, Changsha University of Science & Technology, Changsha 410114, China)

Abstract: [Purposes] Aiming at the problems of incomplete filling, continuous deformation, and stress concentration in the hot embossing of polymer microneedle array, the influence of embossing parameters on the residual stress and the average filling depth is explored by the combination of simulation and experiments to meet the demand of high-precision batch manufacturings. [Methods] Based on the study of thermo-mechanical properties of polymer materials, the finite

收稿日期: 2022-12-09; 修回日期: 2023-01-01; 接受日期: 2023-01-02

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(51405034); 江麓机电集团有限公司技术质量攻关类项目(220029); 长沙市自然科学基金资助项目(kq2202200)

通信作者: 唐昆(1980—)(ORCID: 0000-0002-6651-240X), 男, 副教授, 主要从事超精密加工及热压成型方面的研究。

E-mail: tangkun@csust.edu.cn

投稿网址: <http://cslgxbzk.csust.edu.cn/cslgdxxbzk/home>

element model of microneedle array is established, and the effects of embossing temperature, rate and amount on the residual stress and its distribution are analyzed. In addition, hot embossing experiments are carried out. The influence of the above molding parameters on the microneedle filling, and the comparison between the simulation and the experimental values of the average filling depth are also discussed. **[Findings]** The results show that the maximum forming stress decreases first and then increases with the increase of embossing temperature, while the maximum forming stress increases with the rise of embossing rate and amount. The simulation values of the average filling depth are consistent with the experimental ones except when the embossing temperature is higher than 125 °C, and all simulated values are greater than the experimental ones. In addition, the optimal parameters, that is, the embossing temperature of 125 °C, the embossing rate of 10 $\mu\text{m/s}$ and the embossing amount of 2.6 mm, are obtained. **[Conclusions]** The numerical simulation results are highly instructive in a certain temperature range. The residual stress and the average filling depth of the polymer microneedle array structure have some sensitive temperature and time correlations.

Key words: polymer; microneedle array; hot embossing; finite element simulation; filling depth

Foundation items: Project (51405034) supported by the National Natural Science Foundation of China; Project (220029) supported by Technological Breakthrough Program of Jianglu Electromechanical Group Co., Ltd.; Project (kq2202200) supported by Natural Science Foundation of Changsha

Corresponding author: TANG Kun (1980—) (ORCID: 0000-0002-6651-240X), male, associate professor, research interest: ultra-precision machining and hot pressing. E-mail: tangkun@csust.edu.cn

0 引言

近年来,用于皮肤表面处理的微针阵列具有对皮肤渗透性大、无痛微创、针刺风险低等优点,已逐渐成为透皮与经皮给药的新方式,并在药物注射、局部麻醉及美容整形领域得到广泛应用,且市场需求与日俱增^[1]。在微针阵列的取材方面,聚合物材料因其在生物相容性、力学性能、成本及可加工性等方面的优势,拥有广阔的应用前景^[2]。同时,热压印成型是高质量批量生产聚合物微纳结构的关键技术,已成为业界研究的热点^[3]。

针对聚合物材料的热压印成型机理,国内外学者已开展了相关研究并取得了一系列成果。RABHI等^[4]基于双层黏弹塑性模型对聚合物热压印过程进行了仿真模拟,探讨并分析了聚合物的黏性、弹性及塑性行为对聚合物填充率的影响。YUN等^[5]基于有限元方法和任意拉格朗日-欧拉重新网格化技术对聚甲基丙烯酸甲酯(polymethyl methacrylate, PMMA)薄膜的热压印工艺过程进行数值模拟,并开发出一种综合考虑柔性薄膜的应变、应变率、温度相关应力和软化等多因素的本构

模型。MACÍAS等^[6]采用光弹法测量透明聚合物的残余应力分布,发现该方法有助于减小残余应力和提高装置性能。LAN等^[7]通过试验获得聚碳酸酯在不同温度下的松弛模量曲线,采用Maxwell模型表征聚碳酸酯材料的黏弹性行为,并对试验结果进行了仿真模拟验证。

此外,热压印成型工艺的不断革新与发展是实现热压微纳制造产业化的关键。HU等^[8]提出了非等温热压印工艺,对成型精度和成型效率的研究结果表明,非等温微热压印可以在1~3 s内对纳米级表面粗糙度的微棱镜阵列进行成型。CHANG^[9]提出一种非均匀加热方法,即采用具有非均匀加热功能的薄石墨烯加热器和适当工艺一步实现多种微结构的高质量成型。QI等^[10]提出一种超声辅助热压印成型技术,利用超声振动的快速加热特性实现塑胶微透镜阵列的快速成型。江冲等^[11]提出一种成型后不需要冷却即可直接脱模的等温准热压印工艺,使用该工艺成型聚合物微结构的质量与传统工艺的质量相当。

现阶段,微针阵列结构微小且微针的大长径比的特点导致成型后的聚合物微针仍存在充型不完整、脱模后继续变形和应力集中等问题。本文

在聚合物材料热-机械性能研究的基础上建立关于聚合物微针阵列热压印成型的有限元模型,分析热压印温度、热压印速率、下压量等工艺参数对微针阵列的残余应力及其分布的影响,开展热压印成型试验,探讨相关工艺参数对微针成型的影响,对比并分析平均填充深度的仿真与试验结果。本研究对于实现聚合物微针阵列的低成本、高效率、高精度批量制造具有一定的理论及工程应用价值。

1 聚合物微针阵列的热压印成型

聚合物微针阵列热压印成型包括加热、压印、退火与冷却脱模4个阶段,如图1所示。本文对聚合物成型进行仿真模拟,并通过分析热黏弹性、结构松弛特性、热传递模型及时温等效性以建立准确的有限元模型。

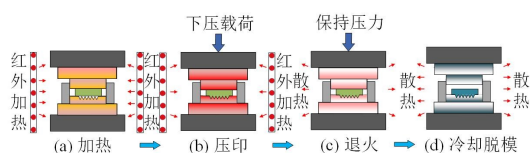


图1 聚合物热压印成型过程

Fig. 1 Polymer hot embossing process

1.1 聚合物的热黏弹性

在热压印过程中,因高分子聚合物属于黏弹性体,须构建聚合物材料的热黏弹性模型以表征聚合物材料在热黏弹性阶段的蠕变特性与应力松弛特性。该模型可视为弹性与黏性单元组合而成的复合模型。

本文采用六分量广义 Maxwell 模型来表征聚合物材料的热黏弹性,其 Prony 级数形式的剪切松弛模量 $G(t)$ 方程^[12]如式(1)所示。

$$G(t) = G_{\infty} + \sum_{i=1}^5 G_i e^{-t/\tau_i} \quad (1)$$

式中: t 为时间; G_{∞} 为聚合物的长期剪切模量; G_i 、 τ_i 分别为第*i*个广义 Maxwell 模型分量的剪切模量和剪切松弛时间。

1.2 聚合物的结构松弛特性

结构松弛是聚合物在热压印成型工艺转变温度范围内出现体积与内部结构的变化滞后于外界温度变化的行为^[13]。相关的结构松弛响应函数如

式(2)所示。

$$M_v(t) = \frac{V(t) - V_2(\infty)}{V_2(0) - V_2(\infty)} = \frac{T_f(t) - T_2}{T_1 - T_2} \quad (2)$$

式中: T_1 、 T_2 为聚合物转变温度内的两个温度点; $V(t)$ 为聚合物在*t*时刻的体积特性; $V_2(0)$ 和 $V_2(\infty)$ 分别为温度为 T_2 时聚合物体积的瞬时值和稳态值; $T_f(t)$ 为*t*时刻的假想温度;结构松弛响应函数 $M_v(t)$ 在时间*t*为0和 ∞ 时,可分别归一化为1和0。

在时间和温度均已知时,结构松弛时间 τ_v 的计算公式如式(3)所示。

$$\tau_v = \tau_{v,ref} \exp \left\{ -\frac{H}{R} \left[\frac{1}{T_{ref}} - \frac{x_v}{T(t)} - \frac{(1-x_v)}{T_f} \right] \right\} \quad (3)$$

式中: H 为结构松弛过程的表现活化能; R 为理想气体常数; T_{ref} 为结构松弛参考温度; $T(t)$ 为实际温度; $\tau_{v,ref}$ 为参考温度下的等效结构松弛时间; x_v 为拟合参数,介于0到1之间。

1.3 聚合物的热传递模型

热压印过程中的传热机制主要分为热传导、热对流和热辐射,如图2所示。由于聚苯乙烯(polystyrene, PS)聚合物材料具有透明度较高、阵列尺寸较小的特点,热辐射对其温度改变影响很小,故本文忽略热辐射的影响。

热传导及热对流的热边界条件如式(4)~(5)所示^[14]:

$$-k \frac{\partial T_s}{\partial d} = h_m (T_s - T_m) \quad (4)$$

$$-k \frac{\partial T_s}{\partial d} = h_N (T_s - T_N) \quad (5)$$

式中: k 为聚合物的热导率; T_s 、 T_m 和 T_N 分别为工件表面、模具和氮气的温度; d 为接触边界垂直方向上的单位距离; h_m 为聚合物和模具间的导热系数; h_N 为聚合物和氮气间的对流传热系数。

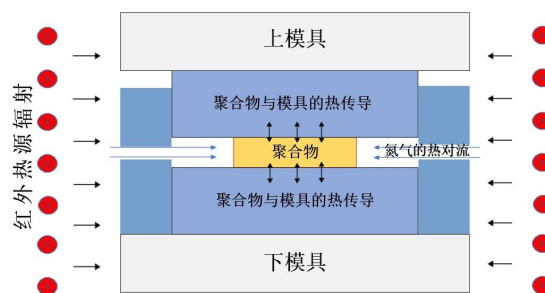


图2 聚合物热压印过程中的热传递

Fig. 2 Heat transfer mechanism of polymer hot embossing

1.4 聚合物的时温等效性

聚合物材料通常具有时间与温度依赖性,升高温度与延长对聚合物的黏弹性行为的影响是等效的。通常可通过 WLF (Williams-Landel-Ferry) 方程将不同温度下得到的模量-时间曲线经过水平位移叠合成一条主曲线。其中, WLF 方程的经典表达式^[15]如式(6)所示。

$$\log_{10} \alpha_T = \frac{-C_1(T - T_r)}{C_2 + (T - T_r)} \quad (6)$$

式中: T 、 T_r 分别为目标温度与时温等效性参考温度; α_T 为平移因子; C_1 、 C_2 为取决于 T_r 的经验参数,且满足 $C_1 \cdot C_2 \approx 900$ 。

2 仿真及试验准备

2.1 聚合物微针阵列结构

本文拟成型 3×3 的微针阵列,微针之间的间距为 $1\,500\,\mu\text{m}$,单个微针呈圆台形,其顶径、底径及高度分别为 60 、 400 、 $700\,\mu\text{m}$,如图 3 所示。

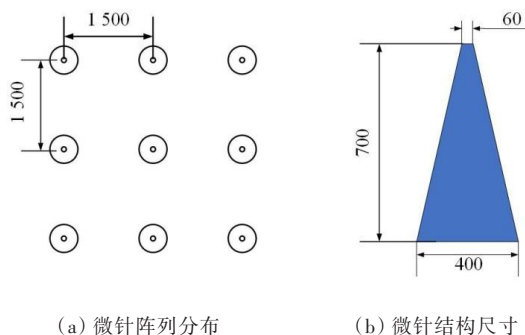


图 3 微针阵列尺寸(单位: μm)

Fig. 3 Geometric model parameters of microneedle array (unit: μm)

2.2 材料参数

本研究中的聚合物采用 PS,模具材料采用铍铜合金 C17200,两者的热力学参数如表 1 所示。同时,为更好地反映 PS 在热压印仿真过程中的黏弹性行为,本文采用单轴圆柱压缩蠕变试验装置对 $110\,^{\circ}\text{C}$ 时的材料蠕变柔量等参数进行测定,并通过一系列的复杂转化与拟合得到不同剪切松弛时间对应的剪切松弛模量,具体数值见表 2。

2.3 试验设备及模具

高温热压印成型试验装置(参见图 4)内置 PID (proportion integration differentiation) 控制红外加热系统,其温控范围为 $0\sim 700\,^{\circ}\text{C}$,最大载荷为 $10\,\text{kN}$,

伺服电缸的控制精度为 $\pm 0.01\,\text{kN}$ 。本研究使用超景深显微镜(日本基恩士公司 VHX-7000N,参见图 5)检测模具微孔内部轮廓。微针阵列的成型模具及模腔微结构的三维轮廓图形如图 6 所示。

表 1 铍铜合金 C17200 和 PS 的热力学参数

Table 1 Thermodynamic parameters of C17200 and PS

材料	密度 $\rho/(\text{g}\cdot\text{cm}^{-3})$	比热容 $c_p/(\text{J}\cdot\text{g}^{-1}\cdot^{\circ}\text{C}^{-1})$	泊松比 λ	杨氏模量 E/GPa	热膨胀系数 $\alpha/(10^{-6}\,^{\circ}\text{C}^{-1})$	转变温度 $T_g/^{\circ}\text{C}$
C17200	8.30	418.7	0.35	128.0	17	—
PS	1.05	1.3	0.32	3.1	80	105

表 2 PS 的黏弹性参数

Table 2 Viscoelastic property parameters of PS

剪切松弛时间/s		剪切松弛模量/MPa	
τ_1	16.274 5	G_1	3.108 2
τ_2	0.010 9	G_2	1 138.722 6
τ_3	441.046 9	G_3	0.675 7
τ_4	67.963 3	G_4	0.943 9
τ_5	3.127 0	G_5	11.098 2
τ_{∞}	—	G_{∞}	1.305 1

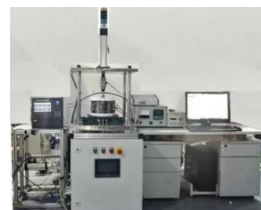


图 4 热压印成型装置

Fig. 4 Hot embossing apparatus

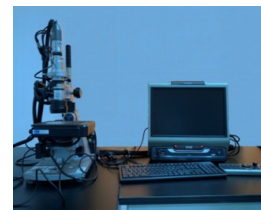
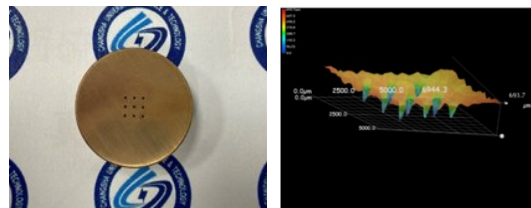


图 5 超景深三维显微镜

Fig. 5 Ultra-depth of field 3D microscope



(a) 成型模具 (b) 模腔结构三维轮廓

图 6 微针阵列成型模具

Fig. 6 Microneedle array molding mold

2.4 试验方案

热压印温度 T_p 、热压印速率 V_p 及下压量 S 均用于分析对微针阵列的残余应力与平均填充深度的

影响。热压印成型仿真及试验采用的工艺参数如表3所示。

表3 T_p 、 V_p 、 S 的取值
Table 3 The values of T_p 、 V_p 、 S

$T_p/^\circ\text{C}$	$V_p/(\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1})$	S/mm
115	10	1.4
120	20	1.7
125	30	2.0
130	40	2.3
135	50	2.6

3 热压印成型的仿真结果及分析

本文采用 MSC.MARC 软件建立关于 PS 微针阵列热压印成型的轴对称有限元模型 (finite element model, FEM), 将网格数量降为原始模型的 1/4, 完整地表达了整体成型过程, 并极大地缩短了仿真周期, 如图7所示。

本文基于四面体网格单元的类型对模型进行网格划分, 其中上模单元数为 822, 下模单元数为 38 086。为保证仿真计算的顺利进行, 对 PS 预形体采用网格重划分, 其单元数最终为 497 534。热压印仿真主要探讨 T_p 、 V_p 、 S 对微针阵列的残余应力及平均填充深度的影响。

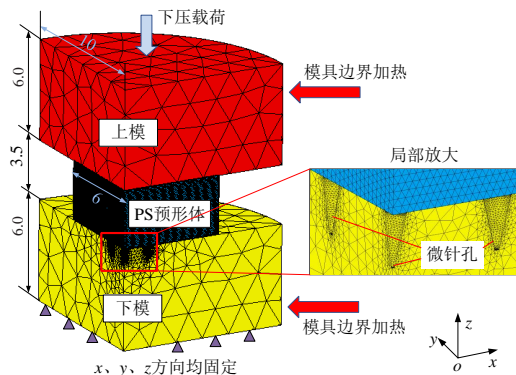


图7 微针阵列热压印成型的 1/4 有限元模型 (单位: mm)

Fig. 7 The 1/4 FEM of microneedle array hot embossing (unit: mm)

3.1 热压印温度

无定形聚合物通常具有较高的温度敏感性, 其黏度、黏弹性、热膨胀等热-机械性能随温度变化明显, 且在温度越接近玻璃化转变温度时的各项性能对温度敏感性越大。本研究中的热压印过程在接近玻璃化转变温度时进行, 其中固定 V_p 为

30 $\mu\text{m/s}$ 、 S 为 2.0 mm, 采用 T_p 分别为 115、120、125、130、135 $^\circ\text{C}$ 以比较不同 T_p 时的试验结果。

图8为聚苯乙烯微针阵列在不同 T_p 时的成型应力分布云图。由图8可以看出, 随 T_p 的升高, 微针的最大成型应力呈先下降后上升的趋势。预形体在 115 $^\circ\text{C}$ 时还未完全表现出高弹态特性, 在下压 1.4 mm 时由于过度变形而发生终止; 当温度升至 130 $^\circ\text{C}$ 时, 最大成型应力最小, 为 5.69 MPa; 当温度为 135 $^\circ\text{C}$ 时, 最大应力值略有上升, 为 5.77 MPa。经分析: 随着 T_p 升高, 材料流动性提升; 当 T_p 继续升至 135 $^\circ\text{C}$ 时, 流动性提升较为缓慢, 但热膨胀却随之持续增大, 导致此时的最大应力值在 130 $^\circ\text{C}$ 的基础上略有增大^[16]。

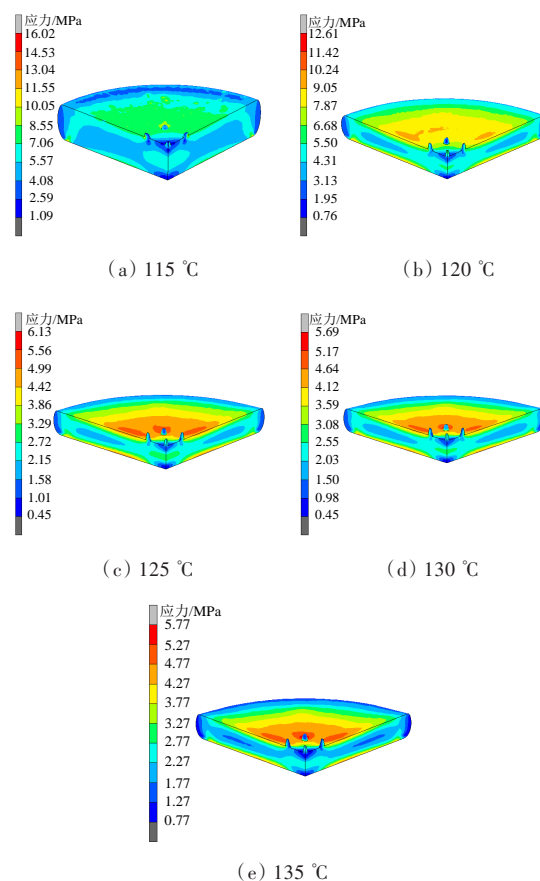


图8 不同热压印温度对成型应力的影响

Fig. 8 Stress distribution of microneedle array molding at different hot embossing temperature

3.2 热压印速率

在热压印成型阶段, 改变热压印速率 V_p 意味着聚合物形变的时间发生改变。由于聚合物具有较强的时间依赖性, 故在成型仿真中固定 T_p 为 125 $^\circ\text{C}$ 、 S 为 2.0 mm, 采用 V_p 分别为 10、20、30、40、

50 $\mu\text{m/s}$ 以比较不同 V_p 时的实验结果。

图9为聚苯乙烯微针阵列在不同压印速率下的成型应力分布云图。由图9可以看出,成型应力随 V_p 的增加而增大,当 V_p 增大至 40 $\mu\text{m/s}$ 时的最大成型应力达 8.59 MPa,当 V_p 继续增大至 50 $\mu\text{m/s}$ 时,出现材料因变形率和载荷均过大而无法收敛,导致仿真无法继续。同时,在过大的热压印速率下,聚合物无法良好地进行应力松弛过程,无法及时释放内部的应力^[17]。

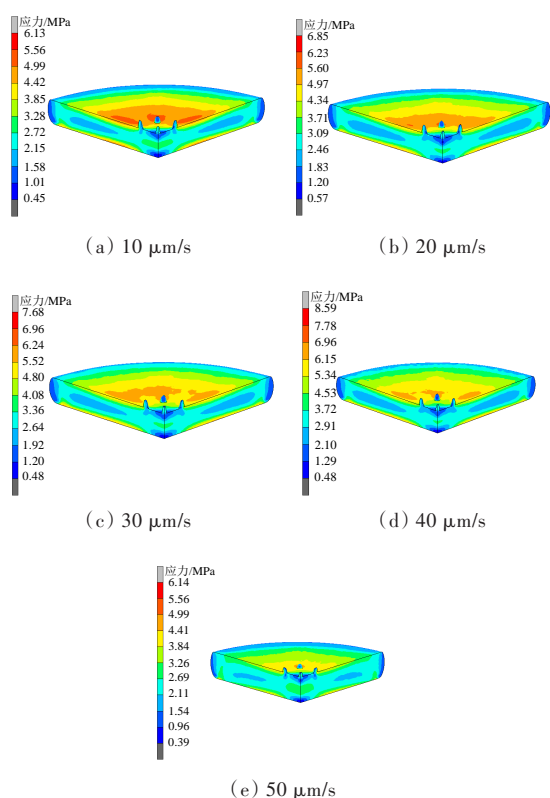


图9 不同热压印速率对成型应力的影响

Fig. 9 Stress distribution of microneedle array molding at different hot embossing rates

3.3 下压量

随着下压量 S 的改变,预形体受到的载荷发生改变,同时预形体的变形程度也发生改变,从而对聚苯乙烯微针阵列的成型造成影响。在本试验中,固定 T_p 为 125 $^{\circ}\text{C}$ 、 V_p 为 30 $\mu\text{m/s}$,采用 S 分别为 1.4、1.7、2.0、2.3、2.6 mm 以比较不同 S 时的结果。

图10为聚苯乙烯微针阵列在不同 S 时的成型应力分布云图。微针的最大成型应力随着 S 的增加而增大,当 S 为 2.6 mm 时,最大成型应力达到 10.62 MPa。这是因为随着 S 增大,预形体的变形随之增大,与此同时,在恒定 V_p 下,预形体也将受

到更大的载荷,这均会导致成型应力显著增大。

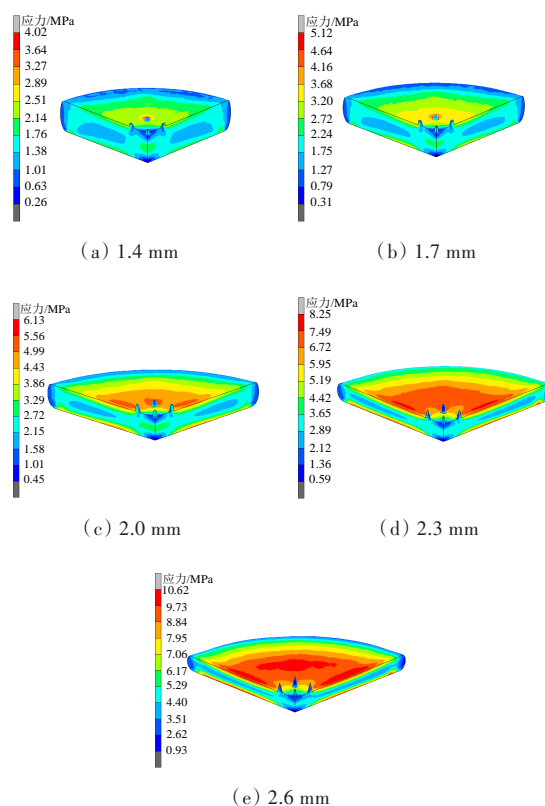


图10 不同下压量对成型应力的影响

Fig. 10 Stress distribution of microneedle array molding under different pressing amounts

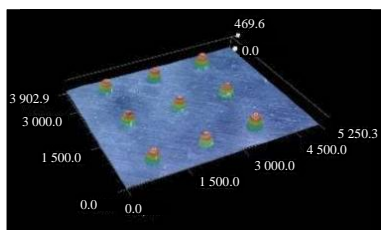
4 热压印成型试验结果分析

热压印成型试验采用圆柱形 PS 预形体(参见图11),其直径、高度分别为 12、5 mm。在压印过程中,采用材料为铍铜合金 C17200 的微针阵列模具,而上下模具及预形体均置于 45 号钢制成的套筒中,以便限制模具在压印过程中向 X 或 Y 方向移动。热压印后,采用超景深三维显微镜对已成型微针阵列的轮廓进行三维成像,进而获得并分析填充后的质量情况。



图11 聚苯乙烯预形体

Fig. 11 PS preform

图12 微针阵列三维轮廓(单位: μm)Fig. 12 3D profile of microneedle array(unit: μm)

4.1 热压印温度

图13为PS微针阵列在不同热压印温度 T_p 时成型的平均填充深度的仿真与试验结果对比图,其中固定 V_p 为 $30\text{ }\mu\text{m/s}$, S 为 2.0 mm 。由图13可知,在 $115\sim 125\text{ }^\circ\text{C}$ 时,仿真与试验值均随温度的升高而增大。这表明PS的流动性随着温度的适当升高得到一定提升,且平均填充深度试验值在 $125\text{ }^\circ\text{C}$ 时达到最大值 $523.87\text{ }\mu\text{m}$ 。

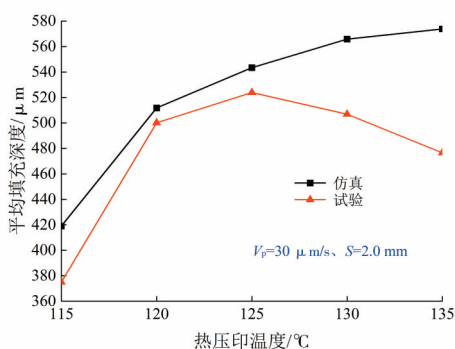


图13 不同热压印温度时的平均填充深度

Fig. 13 Average filling depth at different hot embossing temperature

但是,当温度超过 $125\text{ }^\circ\text{C}$ 后,聚苯乙烯的流动性提升缓慢且热膨胀程度不断增大,导致微针在成型冷却过程中的收缩变形随之增大,平均填充深度的试验值呈下降趋势。而仿真过程因未完全考虑聚合物材料与模具在高温下的黏附行为及微针在冷却过程中的收缩行为,仅考虑流动性随温度升高而继续增大,导致仿真与试验曲线呈相反的变化趋势。

4.2 热压印速率

图14为PS微针阵列在不同热压印速率 V_p 下成型的平均填充深度的仿真与试验结果对比图,其中固定 T_p 为 $125\text{ }^\circ\text{C}$, S 为 2.0 mm 。在试验区间内,试验和仿真值均与 V_p 成反相关关系,当 V_p 从 $10\text{ }\mu\text{m/s}$ 增加至 $50\text{ }\mu\text{m/s}$ 时,PS微针阵列的平均填充深度试验值由 $523.87\text{ }\mu\text{m}$ 降至 $310.64\text{ }\mu\text{m}$ 。

分析原因如后:一方面,较短的充型时间不利于填充行为在微结构中进行,在较大的应变率下,聚合物变形体向四周平板的流变行为远大于对微槽的填充行为^[18]。另一方面,较大的压印速率导致聚合物变形中的剪切速率变得更大,会促进聚合物的高分子链更容易向剪切方向流动。然而,由于仿真中未对材料的剪切变稀行为及模型进行定义及深入研究,故图14中的仿真值下降平缓,而试验值在 $10\sim 20\text{ }\mu\text{m/s}$ 及 $40\sim 50\text{ }\mu\text{m/s}$ 时明显变小。

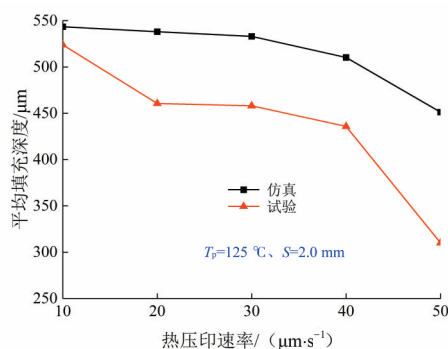


图14 不同热压印速率下的平均填充深度

Fig. 14 Average filling depth at different hot embossing rates

4.3 下压量

图15为PS微针阵列在不同下压量 S 时成型的平均填充深度仿真与试验值,其中固定 T_p 为 $125\text{ }^\circ\text{C}$, V_p 为 $30\text{ }\mu\text{m/s}$ 。由图15可知,试验与仿真值均随 S 的增加呈近线性增大趋势,且仿真与试验值相差较小,当 S 从 1.4 mm 增大至 2.6 mm 时,微针阵列的平均填充深度试验值从 $316.47\text{ }\mu\text{m}$ 增加至 $617.8\text{ }\mu\text{m}$ 。

S 的增大直接影响聚合物的整体形变量,填充深度也相应增加。由于温度与速率等其他关键参数均未发生改变,聚合物材料的热-机械性能并未发生非线性的变化,因此仿真与试验曲线的整体变

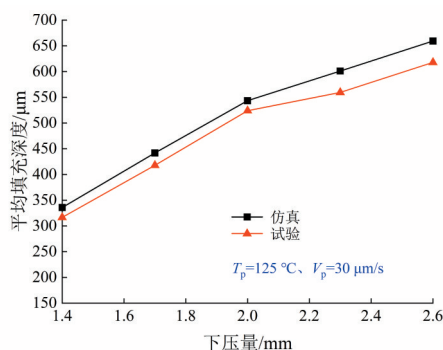


图15 不同下压量时的平均填充深度

Fig. 15 Average filling depth under different pressing amounts

化趋势均比较接近线性。而随着下压过程继续进行,聚合物材料流体与模具之间的接触面积、摩擦力均增大,从而限制了聚合物的流变行为,导致填充深度的增速在 S 为2.0 mm时开始变缓。

由图15还可以看出,平均填充深度的仿真值往往大于试验值。这主要是由于热压印仿真是在理想状态下进行,而试验过程中则存在环境扰动、设备误差及人为操作等不可避免的外部因素。同时,在仿真过程中的模具表面及微孔内部均采用相同摩擦系数,而在试验过程中,由于微孔加工的困难性造成微孔内部的加工质量比模具表面的差,进而导致聚合物在模具微孔内部的流动性较差。此外,试验值是在退火冷却及微针收缩之后测得,而仿真值则未考虑聚合物材料与模具在高温下的黏附及微针在冷却过程中的收缩行为。

5 结论

本文研究了聚合物材料在热压印成型过程中的热黏弹性、结构松弛特性、热传递模型和时温等效性等热-机械性能,建立了聚苯乙烯微针阵列的有限元仿真模型,并结合仿真与试验从内部残余应力、外部形貌(填充深度)两方面分析了热压印温度、热压印速率和下压量等成型参数对成型质量的影响。主要结论如下:

1) 随着热压印温度的升高,成型应力呈先减后增的变化趋势;随着热压印速率的增大,成型应力逐渐增大;随着下压量的增加,成型应力逐渐增大。

2) 通过聚合物微针阵列的热压印成型试验发现:热压印温度以125℃为转折点,平均填充深度的试验值在试验温度范围内呈先增后减的变化趋势,而仿真值则一直增大;随着热压印速率的增大,平均填充深度的仿真与试验值均呈下降趋势,后者的下降幅度较大;随着下压量的增大,平均填充深度的仿真与试验值均呈增大趋势,且两者相差较小;在上述结果中,所有的仿真值均大于试验值。

3) 基于仿真与试验结果,并综合考虑成型质量(填充深度)、工艺周期(成型时间)及成型缺陷(成型应力),本研究在同时符合115~135℃的热压印温度、10~50 $\mu\text{m/s}$ 的热压印速率和1.4~2.6 mm的下压量条件时,确定聚苯乙烯微针阵列成型工艺的最

佳热压印参数为 $T_p=125\text{ }^\circ\text{C}$ 、 $V_p=10\text{ }\mu\text{m/s}$ 、 $S=2.6\text{ mm}$ 。

[参考文献]

- [1] PITAKJAKPIPOP H, RAJAN R, TANTISANTISOM K, et al. Facile photolithographic fabrication of zwitterionic polymer microneedles with protein aggregation inhibition for transdermal drug delivery[J]. *Biomacromolecules*, 2022, 23 (1): 365–376. DOI: 10.1021/acs.biomac.1c01325.
- [2] 刘红燕. 塑料加工成型技术现状及研究进展[J]. *合成树脂及塑料*, 2017, 34(6): 93–96. DOI: 10.3969/j.issn.1002-1396.2017.06.022.
LIU Hongyan. Situation and research development of plastics processing technology [J]. *China Synthetic Resin and Plastics*, 2017, 34 (6): 93–96. DOI: 10.3969/j.issn.1002-1396.2017.06.022.
- [3] MENON I, BAGWE P, GOMES K B, et al. Microneedles: a new generation vaccine delivery system [J]. *Micromachines*, 2021, 12 (4): 435. DOI: 10.3390/mi12040435.
- [4] RABHI F, CHENG G, BARRIERE T, et al. Influence of elastic-viscoplastic behaviour on the filling efficiency of amorphous thermoplastic polymer during the micro hot embossing process [J]. *Journal of Manufacturing Processes*, 2020, 59: 487–499. DOI: 10.1016/j.jmapro.2020.09.032.
- [5] YUN D, KIM J B. Material modeling of PMMA film for hot embossing process [J]. *Polymers*, 2021, 13 (19): 3398. DOI: 10.3390/polym13193398.
- [6] MACÍAS C, MEZA O, PÉREZ E. Relaxation of residual stresses in plastic cover lenses with applications in the injection molding process [J]. *Engineering Failure Analysis*, 2015, 57: 490–498. DOI: 10.1016/j.engfailanal.2015.07.026.
- [7] LAN S H, LEE H J, LEE S H, et al. Experimental and numerical study on the viscoelastic property of polycarbonate near glass transition temperature for micro thermal imprint process [J]. *Materials & Design*, 2009, 30 (9): 3879–3884. DOI: 10.1016/j.matdes.2009.03.045.
- [8] HU M F, XIE J, LI W Z, et al. Study on non-isothermal hot-embossing of polymer micro-prism array with efficiency and accuracy [J]. *Journal of Materials Processing Technology*, 2019, 266: 675–686. DOI: 10.1016/j.jmatprotec.2018.11.041.
- [9] CHANG C Y. Nonuniform heating method for hot embossing of polymers with multiscale microstructures [J]. *Polymers*, 2021, 13 (3): 337. DOI: 10.3390/polym13030337.
- [10] QI N, LUO Y, WANG X D, et al. Local thermal-assisted ultrasonic embossing for the fabrication of

- polymer microstructures [J]. *Microsystem Technologies*, 2015, 21 (5): 1101–1110. DOI: 10.1007/s00542-014-2306-5.
- [11] 江冲, 吴大鸣, 刘颖, 等. 等温准热压印中聚合物微结构成型分析[J]. *高分子材料科学与工程*, 2016, 32(10): 105–111. DOI: 10.16865/j.cnki.1000-7555.2016.10.019.
- JIANG Chong, WU Daming, LIU Ying, et al. Forming analysis of microstructure in isothermal quasi-embossing conditions [J]. *Polymer Materials Science & Engineering*, 2016, 32 (10): 105–111. DOI: 10.16865/j.cnki.1000-7555.2016.10.019.
- [12] 傅志红, 易琪, 刘卫, 等. 微流控芯片热压成型仿真研究[J]. *工程塑料应用*, 2017, 45(2): 60–63. DOI: 10.3969/j.issn.1001-3539.2017.02.013.
- FU Zhihong, YI Qi, LIU Wei, et al. Numerical simulation of hot embossing of microfluidic chip [J]. *Engineering Plastics Application*, 2017, 45 (2): 60–63. DOI: 10.3969/j.issn.1001-3539.2017.02.013.
- [13] SARHADI A, HATTEL J H, HANSEN H N. Evaluation of the viscoelastic behaviour and glass/mould interface friction coefficient in the wafer based precision glass moulding [J]. *Journal of Materials Processing Technology*, 2014, 214 (7): 1427–1435. DOI: 10.1016/j.jmatprotec.2014.02.008.
- [14] YAN J W, ZHOU T F, MASUDA J, et al. Modeling high-temperature glass molding process by coupling heat transfer and viscous deformation analysis [J]. *Precision Engineering*, 2009, 33 (2): 150–159. DOI: 10.1016/j.precisioneng.2008.05.005.
- [15] SATO T, MATSUMIYA Y, WATANABE H. Experimental study of phase separation in dynamically asymmetric unentangled polymer blend [J]. *The Journal of Chemical Physics*, 2022, 157 (22): 224908. DOI: 10.1063/5.0124087.
- [16] 唐昆, 乐江南, 胡永乐, 等. 非球面磷酸盐玻璃镜片精密热压仿真与试验[J]. *长沙理工大学学报(自然科学版)*, 2022, 19 (4): 19–31. DOI: 10.19951/j.cnki.1672-9331.2022.04.003.
- TANG Kun, YUE Jiangnan, HU Yongle, et al. Simulation and experiment of precision hot pressing of aspheric phosphate glass lenses [J]. *Journal of Changsha University of Science & Technology (Natural Science)*, 2022, 19 (4): 19–31. DOI: 10.19951/j.cnki.1672-9331.2022.04.003.
- [17] AMNACHE A, NEUMANN J, FRÉCHETTE L G. Capabilities and limits to form high aspect-ratio microstructures by molding of borosilicate glass [J]. *Journal of Microelectromechanical Systems*, 2019, 28 (3): 432–440. DOI: 10.1109/JMEMS.2019.2902066.
- [18] ROWLAND H D, KING W P, PETHICA J B, et al. Molecular confinement accelerates deformation of entangled polymers during squeeze flow [J]. *Science*, 2008, 322 (5902): 720–724. DOI: 10.1126/science.1157945.

(责任编辑:彭三军;校对:赵冰 刘平;英文编辑:栗淼)