

國立交通大學

應用化學研究所

碩士論文

以三維有限元素法對共押出進料區塊之非  
等溫流動模擬



Non-isothermal Flow Simulation of  
Coextrusion Feedblock with Three-  
dimensional Finite Element

研究生：童柏豪  
指導教授：吳建興

中華民國九十七年七月

以三維有限元素法對共押出進料區塊之非等溫流動模擬  
Non-isothermal Flow Simulation of Coextrusion Feedblock with  
Three-dimensional Finite Element

研究生：童柏豪

Student : Po-Hao T'ung

指導教授：吳建興

Advisor : Jiann-Shing Wu

國立交通大學

應用化學研究所



Submitted to Department of Applied Chemistry

College of Science

National Chiao Tung University

in partial Fulfillment of the Requirements

for the Degree of Master

in

Applied Chemistry

July 2008

Hsinchu, Taiwan, Republic of China

中華民國九十七年七月

# 以三維有限元素法對共押出進料區塊之非等溫 流動模擬

學生：童柏豪

指導教授：吳建興

國立交通大學應用化學系

## 摘 要

本文旨在使用 Bird-Carreau 泛牛頓流體模型進行雙層共押出進料區塊內流動之三維有限元素模擬，探討共押出製程中之界面包覆及界面不穩定現象，並在進料區塊壁面邊界採取滑動邊界設定。由模擬結果可看出在等溫系統下，忽略高分子流體因摩擦所產生之黏滯熱，所以包覆現象與非等溫系統下之模擬結果不同。藉由改變黏度比、流量比、上下層流體入口溫度及壁面溫度來探討對包覆現象之影響。經由與 Giesekus 黏彈模型比較，高分子之二次流動行為才是造成包覆現象之主要因素。

# Non-isothermal Flow Simulation of Coextrusion Feedblock with Three-dimensional Finite Element Method

Student : Po-Hao T'ung

Advisor : Jiann-Shing Wu

Institute of Applied Chemistry  
National Chiao Tung University

## ABSTRACT

In this study, non-isothermal flow simulation of bicomponent coextrusion feedblock with Bird-Carreau model and slip boundary condition imposed at the polymer/polymer/wall contact line were investigated. The simulation results showed that the encapsulation phenomena under non-isothermal condition is different from that under isothermal condition. This is due to the fact that isothermal condition neglects the effect of viscous heating. In the studies, with regards to the bicomponent system, the effect of various viscosity ratio, flow rate ratio, and the respective inlet temperature and the respective contacting wall temperature of each component on the encapsulation phenomena were investigated. Secondary flow phenomena was found to be a major factor for the encapsulation phenomena by comparison of Bird-Carreau model with Giesekus model.

## 誌謝

當書寫到這頁時，代表時間一溜煙的又過了兩年，還記得當初來到交大時，心中充滿無限的期待與喜悅，然而現在即將離開校園的心情卻是充滿無限的感恩。

首先誠摯的感謝指導教授吳建興老師，由於老師無私的奉獻，使我在浩瀚無邊的高分子加工領域略知一二，有老師為我打下深厚的基礎也才有這篇論文的創作，然而讓我獲益匪淺的，還有老師對學問嚴謹的”態度”，是我一輩子學習的典範，老師的教導與照顧，學生我將永遠銘記在心。

本論文能夠順利完成，亦得感謝東海大學化工系的王曄教授大力協助，及清華大學化工系的張榮語教授的支持。因為有你們的體諒及幫忙，使得本論文能夠更完整而嚴謹。

回憶起在實驗室生活的點點滴滴，最令我難忘的是與學長、同學一起創造出來的包台精神，當我研究遇到瓶頸時，因為有這股精神才能使我激發潛能、突破困境，相信帶著此股精神步入社會，必能闖出一番事業。

感謝煥鋁、世豪、東和學長的教導，健超、諭徽的陪伴，順鴻、煜翔、仁棋學弟的幫忙，有大家的陪伴，才能順利走過這兩年，感謝

你們，有你們真好。請容許我補充一句：世豪學長，你在我眼裡真的是”神”。

最後，謹以此文獻給我摯愛的雙親。



# 目 錄

中文摘要 .....	I
英文摘要 .....	II
目錄 .....	III
表目錄 .....	V
圖目錄 .....	VI
第一章 緒論.....	1
1.1 高分子在工業上之應 .....	1
1.2 多層膜製程上之問題.....	6
1.2.1 界面不穩定現象(Interfacial Instability).....	6
1.2.2 層間不均勻性(Layer-To-Layer Non-Uniformity).....	8
1.3 文獻回顧 .....	9
1.4 研究動機與目的 .....	12
第二章 理論及研究方法.....	14
2.1 理論模式.....	14
2.1.1 統御方程式(Governing equation).....	15
2.1.2 邊界條件.....	17
2.1.3 流體自由界面與壁面接觸線(contact line)處理.....	20
2.1.4 包覆現象(Encapsulation phenomena)分析.....	24
2.2 研究方法.....	27
2.2.1 網格處理.....	28
2.2.2 三維非線性系統解.....	28
2.2.3 進程方法(Evolution method).....	29
2.3 計算流程.....	31
第三章 結果與討論.....	33
3.1 操作條件.....	34
3.2 恆溫系統.....	35
3.2.1 不同滑動係數對壁面與流體界面接觸線位置之影響..	35
3.2.2 不同滑動係數對流體界面包覆度之影響.....	38
3.2.3 黏度比對流體界面包覆度之影響.....	40
3.2.4 流量比對流體界面包覆度之影響.....	42
3.3 非恆溫系統.....	48
3.3.1 黏度比對流體界面包覆度之影響.....	48

3.3.2	流量比對流體界面包覆度之影響.....	56
3.3.3	改變上層流體(Flow II)入口溫度與上層壁面溫度對界 面包覆度之影響.....	64
3.3.4	改變下層流體(Flow I)入口溫度與下層壁面溫度對界 面包覆度之影響.....	66
3.3.5	與黏彈模型比較.....	69
第四章	結論	71
參考文獻	.....	75



## 表 目 錄

表 1-1	添加劑的項目與種類.....	1
表 3-1	Bird-Carreau model 材料參數.....	35
表 3-2	為不同滑動係數下之出口界面包覆度比較.....	38
表 3-3	不同黏度比之出口界面包覆度比較.....	40
表 3-4	不同流量比之出口界面包覆度比較.....	43
表 3-5	恆溫與非恆溫系統不同黏度比之出口界面包覆度比較.....	51
表 3-6	恆溫與非恆溫系統不同流量比之出口界面包覆度比較.....	58
表 3-7	不同上層流體入口溫度與模壁溫度對出口界面包覆度之比較.....	65
表 3-8	不同下層流體入口溫度與模壁溫度對出口界面包覆度之比較.....	68
表 3-9	不同模型出口界面包覆度之比較.....	69



## 圖目錄

圖 1-1	多重分歧管模具(Multi-manifold die)示意圖.....	4
圖 1-2	共押出進料區塊/單歧管模具(Feedblock)示意圖.....	5
圖 1-3	鋸齒形(zig-zag)不穩定現象示意圖.....	7
圖 1-4	界面包覆現象.....	8
圖 1-5	界面包覆現象示意圖.....	9
圖 2-1	進料區塊(feedblock)幾何形狀.....	18
圖 2-2	使用不滑動(no-slip)壁面之流體界面.....	20
圖 2-3	使用線性外插法處理壁面接觸線.....	21
圖 2-4	黏彈流體渦流(recirculation)現象.....	25
圖 2-5	包覆度(Degree of encapsulation)定義.....	27
圖 2-6	進料組合區塊網格式示意圖.....	28
圖 2-7	計算流程圖.....	32
圖 3-1	進料區塊幾何形狀網格式圖.....	33
圖 3-2	Polystyrene 之黏度-剪切率關係圖(220°C).....	34
圖 3-3	不同滑動係數下之壁面剪切率比較圖.....	37
圖 3-4	不同滑動係數下之接觸線在出口界面位置比較圖.....	37
圖 3-5	不同滑動係數下流體界面包覆度比較圖.....	39
圖 3-6	不同滑動係數下流體界面出口位置比較圖.....	39
圖 3-7	不同黏度比流體界面包覆度比較圖.....	41
圖 3-8	不同黏度比之出口界面包覆比較.....	41
圖 3-9	不同黏度比之界面出口位置.....	42
圖 3-10	不同流量比流體界面包覆度比較圖.....	43
圖 3-11	流量比 $Q_i/Q_{ii}=1$ 之剪切率圖.....	45
圖 3-12	流量比 $Q_i/Q_{ii}=3$ 之剪切率圖.....	46
圖 3-13	流量比 $Q_i/Q_{ii}=7$ 之剪切率圖.....	47
圖 3-14	流量比 $Q_i/Q_{ii}=1$ 之上層流體黏度變化圖.....	45
圖 3-15	流量比 $Q_i/Q_{ii}=3$ 之上層流體黏度變化圖.....	46
圖 3-16	流量比 $Q_i/Q_{ii}=7$ 之上層流體黏度變化圖.....	47
圖 3-17	不同流量比之界面出口位置.....	48
圖 3-18	非恆溫-不同黏度比流體界面包覆度比較圖.....	49
圖 3-19	黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )=2.6 之溫度分佈圖( $X=1L$ ).....	51
圖 3-20	黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )=2.6 之溫度分佈圖( $X=5L$ ).....	52
圖 3-21	黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )=2.6 之溫度分佈圖( $X=7.9L$ ).....	52
圖 3-22	黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )=4 之溫度分佈圖( $X=1L$ ).....	53
圖 3-23	黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )=4 之溫度分佈圖( $X=5L$ ).....	53

圖 3-24	黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )=4 之溫度分佈圖( $X=7.9L$ ).....	54
圖 3-25	黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )=6 之溫度分佈圖( $X=1L$ ).....	54
圖 3-26	黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )=6 之溫度分佈圖( $X=5L$ ).....	55
圖 3-27	黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )=6 之溫度分佈圖( $X=7.9L$ ).....	55
圖 3-28	非恆溫-不同黏度比之界面出口位置.....	56
圖 3-29	非恆溫-不同流量比流體界面包覆度比較圖.....	58
圖 3-30	流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )=1 之溫度分佈圖( $X=1L$ ).....	59
圖 3-31	流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )=1 之溫度分佈圖( $X=5L$ ).....	59
圖 3-32	流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )=1 之溫度分佈圖( $X=7.9L$ ).....	60
圖 3-33	流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )=3 之溫度分佈圖( $X=1L$ ).....	60
圖 3-34	流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )=3 之溫度分佈圖( $X=5L$ ).....	61
圖 3-35	流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )=3 之溫度分佈圖( $X=7.9L$ ).....	61
圖 3-36	流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )=7 之溫度分佈圖( $X=1L$ ).....	62
圖 3-37	流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )=7 之溫度分佈圖( $X=5L$ ).....	62
圖 3-38	流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )=7 之溫度分佈圖( $X=7.9L$ ).....	63
圖 3-39	非恆溫-不同流量比之界面出口位置.....	63
圖 3-40	不同上層流體入口溫度與模壁溫度對界面包覆度之比較 圖.....	65
圖 3-41	不同上層流體入口溫度與模壁溫度之界面出口位比較置圖.	66
圖 3-42	不同下層流體入口溫度與模壁溫度對界面包覆度之比較 圖.....	67
圖 3-43	不同下層流體入口溫度與模壁溫度之界面出口位比較置圖.	68
圖 3-44	Bird-Carreau model 與 Giesekus model 之包覆度比較圖.....	70

# 一、緒論

## 1.1 高分子在工業上之應用

單體經過聚合反應形成高分子材料，通常在應用上，很少單獨使用，為了發揮高分子材料的特性，必須加入適當的添加劑或其他高分子，經過加熱熔融、固化或硬化反應等加工程序，製造成實用的產品，而此程序稱為高分子加工。應用於高分子加工的添加劑有很多種，主要有性質改質劑、安定劑和填充料或補強物等三大類，而每一項目所涵蓋的種類相當多樣化。添加劑的項目與種類如表 1-1<sup>[1]</sup>所示。



表 1-1 添加劑的項目與種類

項目	種類
性質改質劑	可塑劑、抗靜電劑、色料、 阻燃劑、耐衝擊劑、潤滑 劑……
安定劑	熱安定劑、抗氧化劑、紫外 光吸收劑、抗菌防黴劑……
填充料或補強物	碳酸鈣、雲母、黏土、玻璃 纖維、合成有機纖維……

而不同添加劑有其不同目的，例如增加流動性的加工助劑、提升耐紫外光和耐熱性質的安定劑、五彩繽紛的色母、增強材料機械性質的補強劑和降低成本的填充劑等等，這些都是為了製造出具有最優異物理性質與機械性質的高分子產品。

目前常見的高分子加工方法有押出成型、射出成型、吹壓成型、熱壓成型、發泡成型、壓延加工、塗布等，依照不同的產品需求，選擇適當的加工方法與設備。押出成型是最常用的高分子加工方法，主要是利用押出機把粉狀、粒狀或丸狀的高分子材料與添加劑，加熱熔融後經由螺桿的輸送，再把這熔融物質從定型模頭裡連續不斷地擠出，經過冷卻以後，可以形成連續的產品。這些產品包括膠管、膠片、各種異型剖面製品等。其中薄膜(film)為高分子重要產品之一，在工業上廣泛應用於食品包裝、藥品包裝等包裝薄膜，而各種薄膜產品依用途要求需具有阻水性(water barrier)、阻氧性(oxygen barrier)、抗紫外線(UV barrier)、高機械強度(high mechanical strength)、光澤或透明性等多種功能。但單一高分子塑料製作之單層薄膜無法同時滿足上述要求，共押出製程則改善了此種狀況。

共押出製程(coextrusion)以單一模具同時押出兩種或兩種以上高分子塑料成為層狀結構(lamellar structure)之板材、薄膜或管材等產品，經由同時押出多種高分子塑料可得到獨特之產品特性以及減少成

本花費，在 高分子加工業上極受重視。共押出薄膜可由吹模製程 (blown film) 或平模製程 (flat die) 得到。本論文中僅探討平模製程之共押出流動問題，而平模製程製造多層板、膜時，大致上可分為兩種方法：

#### 1. 多歧管模具 (Multi-manifold)：

高分子熔膠分別流過各自歧管模具 (manifold die) 並形成所要求之形狀，之後匯流成層狀離開模口成形，如圖 1-1。此方法可針對不同高分子之流變性質及操作溫度分別設計其分歧管通道，避免不同層之高分子熔膠有較大之流體性質差異時，產生界面不穩定等問題。此

方法有以下優缺點：

優點：

- (1) 可精準調整各層膜之厚度。
- (2) 適用流動特性差異極大之高分子塑料，因此可成形之材料範圍較廣。

缺點：

- (1) 各歧管間之絕熱設計不易克服。
- (2) 構造複雜且昂貴。特別是要製造超過 5 層以上之多層膜時，使用下述之進料區塊較為有利。



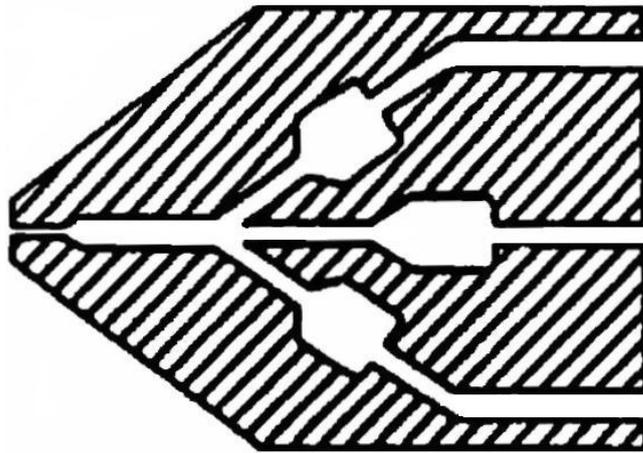


圖 1-1 多重分歧管模具(Multi-manifold die)示意圖

## 2. 進料區塊(Feedblock)/單歧管模具[2, 3]：

不同於前述方法，此方法將多層高分子熔膠預先經由進料區塊組合為層狀再進入歧管模具，如圖 1-2。此方法為使用舊有之傳統模具在前端接一進料區塊整合來自不同押出機之塑料再進入模具內成為多層共押出物，此進料區塊之作用在整合(combine)與分配(arrange)不同之高分子使之以均勻厚度通過模口，以提供多元共押出加工(coextrusion)生產多層板、膜時之調整彈性，如各層厚度等。此方法有以下優缺點：

優點：

- (1) 構造簡單且可沿用舊有之押出機及模具。
- (2) 極易增加層數。

缺點：

不同層高分子熔膠之流動特性不可相差太多(如黏度及剪切率等)，否則極易在多層板、膜之界面產生流動不穩定現象及失去厚度分佈均勻性(uniformity)。

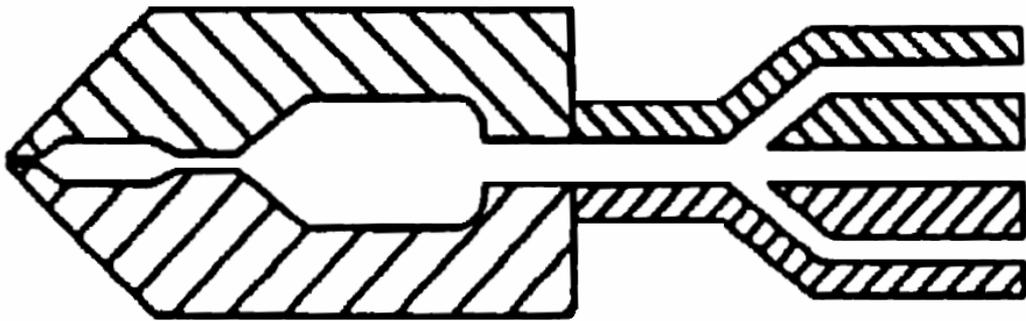


圖 1-2 共押出進料區塊/單歧管模具(Feedblock)示意圖

近年來，奈米技術發展迅速，把奈米技術和高分子材料的加工結合，製備具特殊功能或高性能的高分子複合材料，已成為新的趨勢。材料的尺度由微米縮小到奈米，並不只是尺寸的縮小，通常嶄新而獨特的物質特性也會因為材料的奈米化而出現。如何把奈米技術應用到日常生活中的高分子材料，包括紡織品、汽車零件、保特瓶、運動鞋上的彈性體、甚至是電子材料或生醫材料等，都是未來所面臨的挑戰。但是目前許多人工合成的高分子材料，在大自然的環境中不容易分解，漸漸地造成全球環境保護的一大隱憂。因此，如何合成出對環境友善的高分子材料，也就是可以被大自然的環境所分解，或是開發

一套完善的高分子材料回收技術，把高分子材料對環境的不良影響降到最低，甚至達到無污染的終極目標，也是我們未來繼續努力的方向。

## 1.2 多層膜製程上之問題

多層膜在共押出製程上之缺陷可分為兩類：

(1) 界面不穩定現象(Interfacial Instability)

(2) 層間不均勻性(Layer-To-Layer Non-Uniformity)

多層膜之界面缺陷會大幅影響產品性質，如透明度(transparency)、層間接著力(layer adhesion)等，塑料之基本流變性質及流動行為是決定界面缺陷產生之關鍵，因此高分子流變性質對於設計共押出模具及進料區塊極為重要，且當選擇共押出產品之材料時必須考慮到塑料之流動行為，以減少界面缺陷之產生。

### 1.2.1 界面不穩定現象(Interfacial Instability)

非牛頓流體之黏度為押出溫度及剪切率之函數，而押出溫度及剪切率之函數在模具內會不斷改變，特別是當塑料為靠近壁面處之外層塑料更會有極大之剪切率，因此也造成流動不穩定(flow instability)現象發生。流動不穩定會造成流體界面扭曲，甚至於不同層塑料之內部混合(intermixing)。界面不穩定現象包括高度不規律之鋸齒形不穩定(zig-zag instability)及較規律之波浪形不穩定(wave instability)。最常見

之界面不穩定現象為鋸齒形不穩定，Schrenk<sub>[4]</sub>指出押出多層膜之鋸齒型不穩定是由界面間過大的剪切應力造成，鋸齒形(zig-zag)不穩定現象示意圖如圖1-3所示，(A)為當流速極低時，界面相當平穩，無任何流動不穩定現象，(B)為當流速增加，界面逐漸開始出現波浪般之震幅，但仍不明顯且可能不至於影響薄膜性質，(C)為當流速極大時，界面扭曲現象明顯變得極為嚴重。當愈多波浪形震幅發生，模具內之速度梯度會將波峰往前推擠成為似摺痕之狀況，愈多摺痕使流體界面愈雜亂甚至出現不同層塑料之內部混合，此現象稱為鋸齒形不穩定現象。

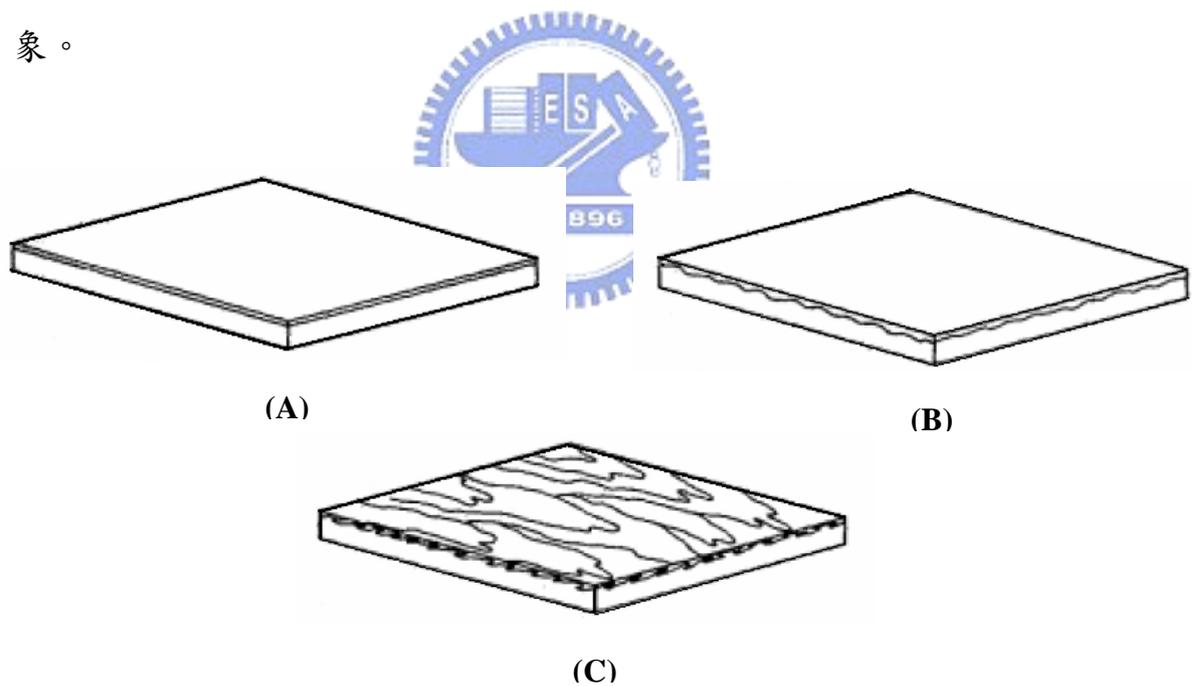


圖 1-3 鋸齒形(zig-zag)不穩定現象示意圖<sub>[4]</sub>

## 1.2.2 層間不均勻性(Layer-To-Layer Non-Uniformity)

由於不同高分子塑料擁有不同之流變參數，故其流動特性也不相同，當以兩種或兩種以上不同之高分子塑料同時押出時，流體界面會因上下層流體之流動特性差異而產生包覆現象，如圖 1-4<sub>[5]</sub>所示。

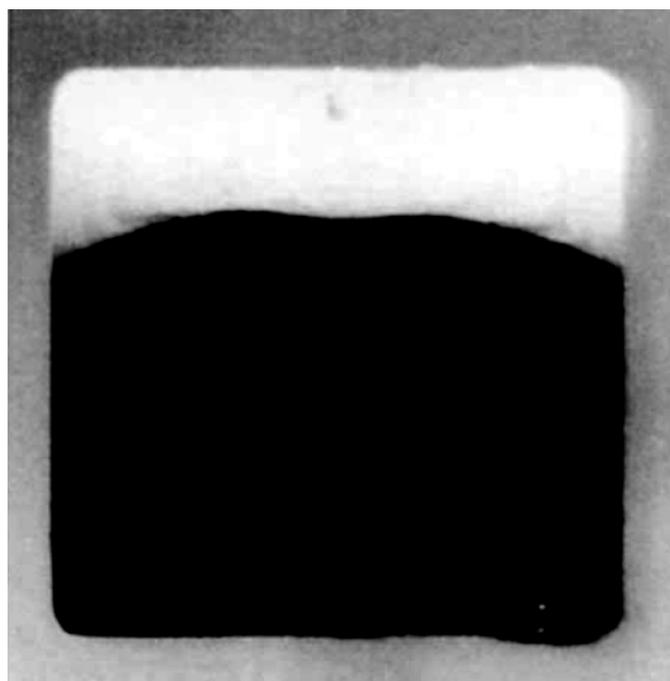


圖 1-4 界面包覆現象<sub>[6]</sub>

黏度已被認為是影響包覆現象之主要因素，黏度低之流體會包覆黏度高之流體，形成一彎曲之流體界面，高分子彈性對於界面包覆現象之影響亦相當重要<sub>[7-10]</sub>，彈性性質明顯之高分子塑料會產生垂直於押出方向之二次流動(secondary flow)，進而使流體界面產生包覆現象，且流動路徑愈長包覆程度愈加明顯至完全包覆，如圖 1-5<sub>[11]</sub>所示。

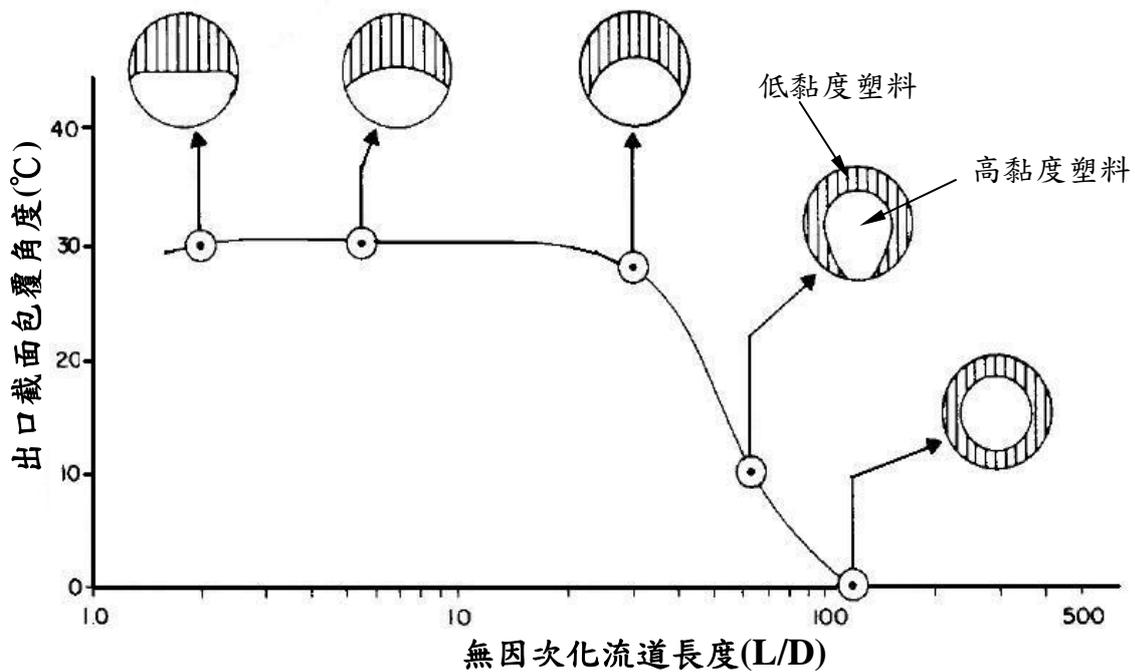


圖1-5、界面包覆現象示意圖<sup>[12]</sup>

### 1.3 文獻回顧

過去文獻中已有許多研究人員針對高分子之兩相流做研究，主要研究模具內兩相流體可能造成界面不均勻及製程成本之界面變化現象<sup>[13-15]</sup>，以及會嚴重影響產品性質及價值之界面不穩定現象<sup>[13, 16]</sup>，這些研究皆著重在影響界面形狀變化及界面不穩定之兩相流體流動機制。

在界面不穩定文獻中，Schrenk<sup>[16]</sup>曾提出界面不穩定之發生與界面剪切應力之臨界值有關，當超過此臨界值即發生界面不穩定現象，藉由減少界面剪切應力可有效避免界面不穩定現象發生，而此研究所指為鋸齒形不穩定現象。Schrenk<sup>[4]</sup>並提出可採取以下措施減少界面剪

切應力之影響：

1. 增加多層膜外層厚度(使界面位置離開有較高剪切應力之模壁面)。
2. 加大模唇(die lip)出口尺寸(使模具內各處剪切應力下降)。
3. 降低押出率(使模具內各處剪切應力下降)。
4. 降低外層塑料黏度(使模具內各處剪切應力下降)。

上述之最後一項雖可降低剪切應力，但會造成不同高分子塑料之黏度差異並產生包覆現象而失去多層膜之界面均勻性。

然而在 Han<sup>[17]</sup>之研究中指出 Schrenk 之臨界剪切應力理論會受層間重整(layer rearrangement)及厚度影響，其實驗並指出各層流體之黏度比及彈性比與界面不穩定現象有關。Mavridis 及 Shroff<sup>[18]</sup>在其 1994 年之研究中提出藉由減少界面剪切應力及鄰近層間高分子彈性差異以緩和界面不穩定現象。Ramanathan<sup>[19]</sup>等人在 1996 年首先將界面不穩定現象分為鋸齒形及波浪形，1996 年前則皆稱為“界面不穩定”或不規則(irregularity)現象。隨後在 Zatloukal<sup>[20-22]</sup>及 Martyn<sup>[23-25]</sup>等人之研究中，指出波浪形不穩定與高分子塑料拉伸性質及流體匯流處(merging area)之流體形變有關，並以 TNSD(total normal stress difference)作為探討第一正向應力差對於波浪不穩定現象之指標。除上述主要之研究之外，另有其他許多關於黏度差<sup>[26-28]</sup>、表面張力<sup>[29]</sup>、

臨界剪切應力 [4, 30]、流動模型之黏度參數 [31-33] 以及彈性 [6, 34-41] 等對於界面不穩定影響之研究。

除了探討界面不穩定因素外，也有許多文獻從事研究雙層高分子流體之包覆現象(encapsulation phenomena)。Everage<sub>[11]</sub>提出包覆現象可分為兩個部份：第一部分為靠近流體匯流處發生快速之流體重整(rapid fluid rearrangement)現象，第二部份則為逐漸增加之包覆現象，但在其研究中並未合理解釋包覆現象逐漸增加之原因。相對於黏度差異之影響，White<sub>[42]</sub>指出擁有較高二次正向應力差(second normal stress difference)之流體會形成突起形狀(即是被另一流體包覆)，但其研究中並未考慮到黏度之影響。然而在 Lee 及 White<sub>[43]</sub>隨後之實驗研究中證實低黏度流體包覆高黏度流體之現象，但包覆現象與流體間之彈性差異無關，因此指出黏度差異為影響界面形狀之主要因素。Southern<sub>[44]</sub>及 Khan<sub>[45]</sub>之研究中提出黏度比對於包覆現象之影響更甚彈性比，但在其研究中使用了極多之假設，與實際共押出情況可能有差異。Gifford<sub>[46]</sub>則針對雙層共押出牛頓流體通過矩形流道時，兩流體間之黏度比、流量比、模口形狀與分界面(separation plane)對三維共押出流體界面扭曲度(Degree of Distortion)之影響進行探討。

除了上述黏度對包覆現象之影響外，近年來許多研究著重於二次流動對包覆現象之影響。Debbaut 及 Dooley<sub>[5, 9, 47]</sub>等人之研究中使用

不同染色之相同高分子塑料討論第二正向應力差對於流動之影響，指出流體界面扭曲現象是因黏彈流體之二次流動所造成，而二次流動是由第二正向應力差造成，並以數值解與實驗結果對照。Uwaji 及 Legat<sup>[48]</sup>使用黏彈模型進行三維分析，指出第二正向應力差可能影響界面形狀之發展。Takase<sup>[49]</sup>等人使用三維黏彈數值模擬進料區塊之流動，並指出包覆現象不僅受流體黏性影響，亦受流體彈性及系統非線性影響。

#### 1.4 研究動機與目的

共押出製程中之高分子流體界面為一未知自由界面，對於數值計算及模擬而言相當複雜。Mitsoulis<sup>[50]</sup>、Mavridis<sup>[51]</sup>、Binding<sup>[52]</sup>、Dheur<sup>[53]</sup>以及 Karagiannis<sup>[54]</sup>在其研究中皆使用有限元素法模擬分析共押出製程流動問題及以迭代法求解流體界面位置變化。以上研究中皆可看出低黏度流體會包覆高黏度流體，但僅能觀察到極小之包覆現象。Karagiannis<sup>[54]</sup>認為應是不適當之邊界設定及流道長度過短導致無法觀察到逐漸增加之包覆現象。實際上高分子塑料為具黏彈性之流體，因此本質方程式(constitutive equation)對於高分子塑料之流動描述及精確之模擬數值解相當重要。因此本論文利用泛牛頓流體進行界面包覆現象之探討，並且與楊世豪學長所採用之黏彈流體對界面包覆現象做比較，此外，由於過去文獻大多為在恆溫系統下進行模擬，因會忽

略高分子因流動摩擦所產生黏滯熱之影響，固本論文將探討黏滯熱對界面包覆現象之影響。



## 二、理論模式及研究方法

### 2.1 理論模式

本論文將使用Polyflow<sup>®</sup>有限元素軟體模擬分析雙層共押出高分子塑料於進料區塊(feedblock)中之流動，由於Polyflow<sup>®</sup>是針對非牛頓流體、流變及黏彈性流體的數值分析軟體，且具擁有強大的求解核心，能使用有限元素法處理複雜的流動問題，其求解器中利用先進的變形網格技術處理複雜的固體移動及偵測自由表面與模具接觸情形，模擬流變及黏彈性現象可獲得精確的模擬結果。相較於牛頓型流體(Newtonian fluid)，本論文將採用泛牛頓型流體(Generalized newtonian fluid)進行三維泛牛頓流動模型(3D Generalized Newtonian model)模擬探討雙層流體中之界面包覆現象(encapsulation phenomena)，並探討在恆溫系統與非恆溫系統下對流體之界面包覆現象(encapsulation phenomena)的影響。本論文對於高分子塑料之流動做以下基本假設：

1. 不可壓縮(incompressible)和不互溶(immiscible)之泛牛頓型流體(Generalized newtonian fluid)。
2. 等溫系統(isothermal system)、非等溫(isothermal system)及穩態(steady state)流動。

3. 因高分子塑料黏度極大，相較之下可忽略重力、慣性力及界面張力之影響。

### 2.1.1 統御方程式(Governing equation)

雙層共押出高分子塑料在進料區塊(feedblock)中之流動情形，包含了流體通過各自流道之後匯流以及匯流後在矩形流道內之流動。對於各層泛牛頓型流體(I：下層，II：上層)之流動行為，在恆溫系統使用連續方程式及運動方程式描述，而在非恆溫系統除了使用連續方程式及運動方程式外，還需能量方程式加以描述。假設流動為穩態流動並且忽略物體力(body force)：

連續方程式(equation of continuity)：

$$\nabla \cdot v_k = 0, \quad k = I, II \quad (2-1)$$

運動方程式(equation of motion)：

$$-\nabla p + \nabla \cdot \tau_k = 0, \quad k = I, II \quad (2-2)$$

其中 $v_k$ 為各層之速度向量， $\tau_k$ 為各層之應力張量(extra stress tensor)， $p$ 為壓力。

能量方程式(equation of energy)

$$\rho C_p \frac{dT}{dt} = (k \nabla^2 T) + (\tau : \nabla V) \quad (2-3)$$

其中 $T$ 為溫度， $\rho$ 為密度， $\kappa$ 為熱傳導係數， $C_p$ 為定壓熱容量。

在非恆溫條件下，黏度為剪切率與溫度之函數， $\eta(\dot{\gamma})$ 與 $\eta(T)$ 分別用 Bird-Carreau 模型與 Arrhenius law 加以描述。

$$\eta = \eta(\dot{\gamma}) \eta(T) \quad (2-4)$$

其中 $\dot{\gamma}$ 為剪切率。

Bird-Carreau模型定義如下 [54]:

$$\eta(\dot{\gamma}) = \eta_0 [1 + (\lambda \dot{\gamma})^2]^{\frac{n-1}{2}} \quad (2-5)$$

其中 $\eta_0$ 為零剪切率黏度(zero-shear-rate viscosity)， $\lambda$ 為滯留時間(retardation time)， $n$ 為Power-law index。

Arrhenius law 定義如下 [54]:

$$\ln \eta(T) = \alpha \left( \frac{1}{T} - \frac{1}{T_\alpha} \right) \quad (2-6)$$

其中 $\alpha$ 為流體之活化能， $T_\alpha$ 為參考溫度。

對於描述高分子流體之本質方程式模型繁多，其模型之好壞視模擬對象不同而有所差異。欲評價一模型之好壞可由兩方面著手：一為模式描述流變行為之正確，一為此模式再求解時之難易性。要精確的描述高分子之本質方程式其數學結式勢必相當複雜，會使得求解性降低；而愈簡單之本質方程式在求解上較容易，但所預測之流變行為不免較差，然而如何在模型正確性及求解性方面作一選擇，需視所處理之問題特性而定。由於本論文主要在探討恆溫系統與非恆溫系統對於

雙層高分子流體中之界面包覆現象(encapsulation phenomena)之影響，因此本論文之本質方程式(constitutive equation)選擇使用Bird-Carreau model進行模擬分析，相對於較複雜之黏彈模型則其在求解上將較為容易。

### 2.1.2 邊界條件

本論文使用之進料區塊(feedblock)幾何形狀及邊界條件如圖2-1所示。I、II分別為下層及上層流體，高分子塑料出押出機後分別從不同流道(channel)進入進料區塊，隨後匯流產生一流體界面。由於系統為對稱流場，故只取一半流場做分析，以減少計算量及縮減模擬時間。幾何邊界條件設定如圖2-1<sup>[55]</sup>

(1)  $\Gamma_{in}$ (面ABCD及面EFGH)：入口邊界給一入口流量 $Q_{in}$ ，假設其為全展流狀態(fully-developed flow)。

(2)  $\Gamma_{exit}$ (面NOPQ)：出口邊界亦假設為全展流狀態，忽略出口效應影響。

(3)  $\Gamma_{Symmetry\ plane}$ (面BIOPJGFM)：幾何對稱面。

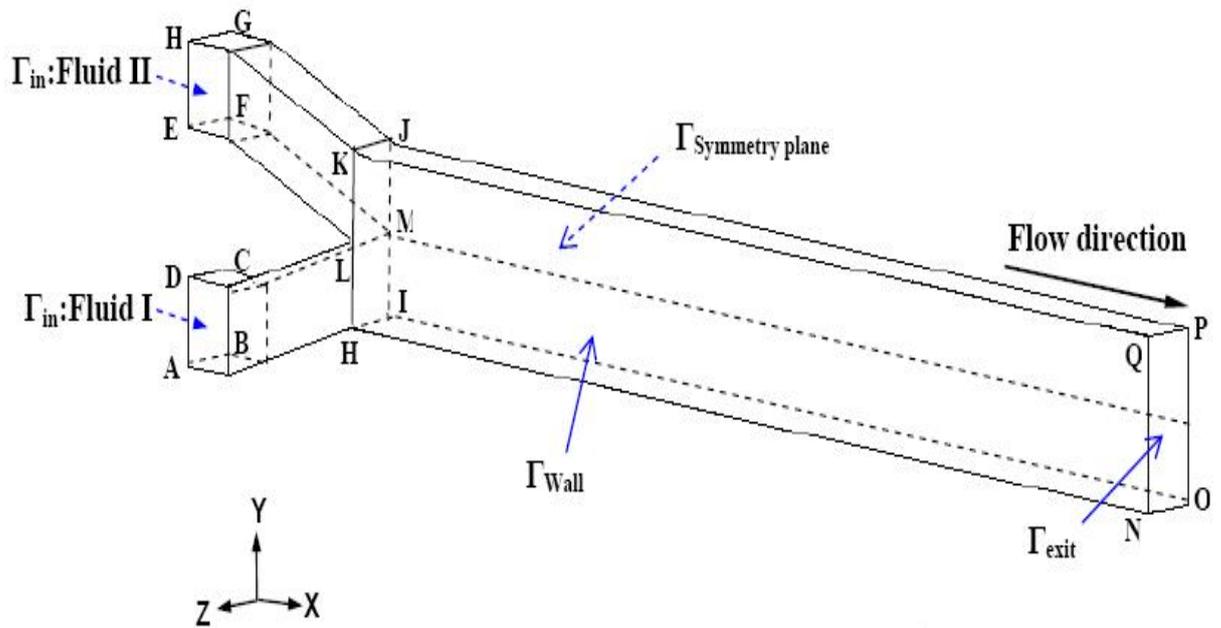


圖2-1 進料區塊(feedblock)幾何形狀<sup>[55]</sup>

(4)  $\Gamma_{Wall}$ (面AHL D、面ELKH及面HNQK)：為有效觀察流體界面彎曲情況，在雙層流體匯流後之矩形流道壁面假設為滑動邊界(slip boundary)，使流體界面與壁面之接觸線(contact line)不會固定在壁面上，流體匯流前之壁面則使用不滑動邊界。

除了上述幾何區域之邊界條件外，雙層流體於HIJK平面匯流後形成一流體自由界面，對此界面做以下假設：

(1) 運動學狀態(Kinematic condition)：運動學狀態用來描述流體自由界面之運動狀態。假設流體切線速度(tangential velocities)在界面上為連續，即為假設雙層流體在界面上無相對滑動(relative slip)；另外流體不穿透界面，故流體在界面上之法線速度(normal velocities)為零。

$$t_1 \cdot V^I = t_1 \cdot V^{II}$$

$$t_2 \cdot V^I = t_2 \cdot V^{II}$$

$$n \cdot V^I = n \cdot V^{II} = 0$$

其中 $V^I$ 及 $V^{II}$ 分別為下層及上層流體在界面位置之速度， $t$ 為界面上之單位切線向量(unit tangential vector)， $n$ 為界面上之單位法線向量(unit normal vector)。

- (2) 動力學狀態(Dynamic condition)：由於高分子塑料黏度極大，故忽略界面之表面張力(surface tension)效應；且在界面上流體之法向應力(normal stress)及切向應力(tangential stress)為平衡狀態，其表示法向應力及切向應力在界面上為連續。



$$n \cdot \sigma^I = n \cdot \sigma^{II}$$

$$t_1 \cdot \sigma^I = t_1 \cdot \sigma^{II}$$

$$t_2 \cdot \sigma^I = t_2 \cdot \sigma^{II}$$

$$\sigma_k = -p_k + \tau_k, \quad k = I, II$$

其中 $\sigma^I$ 及 $\sigma^{II}$ 分別為下層及上層流體之總應力張量(total stress tensor)， $n$ 為界面上之單位法線向量(unit normal vector)， $t$ 為界面上之單位切線向量(unit tangential vector)。

### 2.1.3 流體自由界面與壁面接觸線(contact line)處理

在雙層共押出高分子塑料模擬中，最大的難處之一是壁面接觸線之邊界設定。接觸線定義為雙層流體界面與壁面之交叉線。一般在壁面使用不滑動(no-slip)邊界，會造成在壁面形成無限大之剪切應力，流體在壁面速度消失，使得運動學狀態(kinematic condition)也隨之消失，無法正確預測出界面在壁面處之變形及彎曲情形，更影響三維界面包覆現象之觀察。如圖2-2<sup>[55]</sup>，界面與壁面接觸線(流體/流體/壁面邊界)在不滑動(no-slip)邊界條件下將無法移動，造成流體界面在壁面附近產生摺疊現象(bending)。

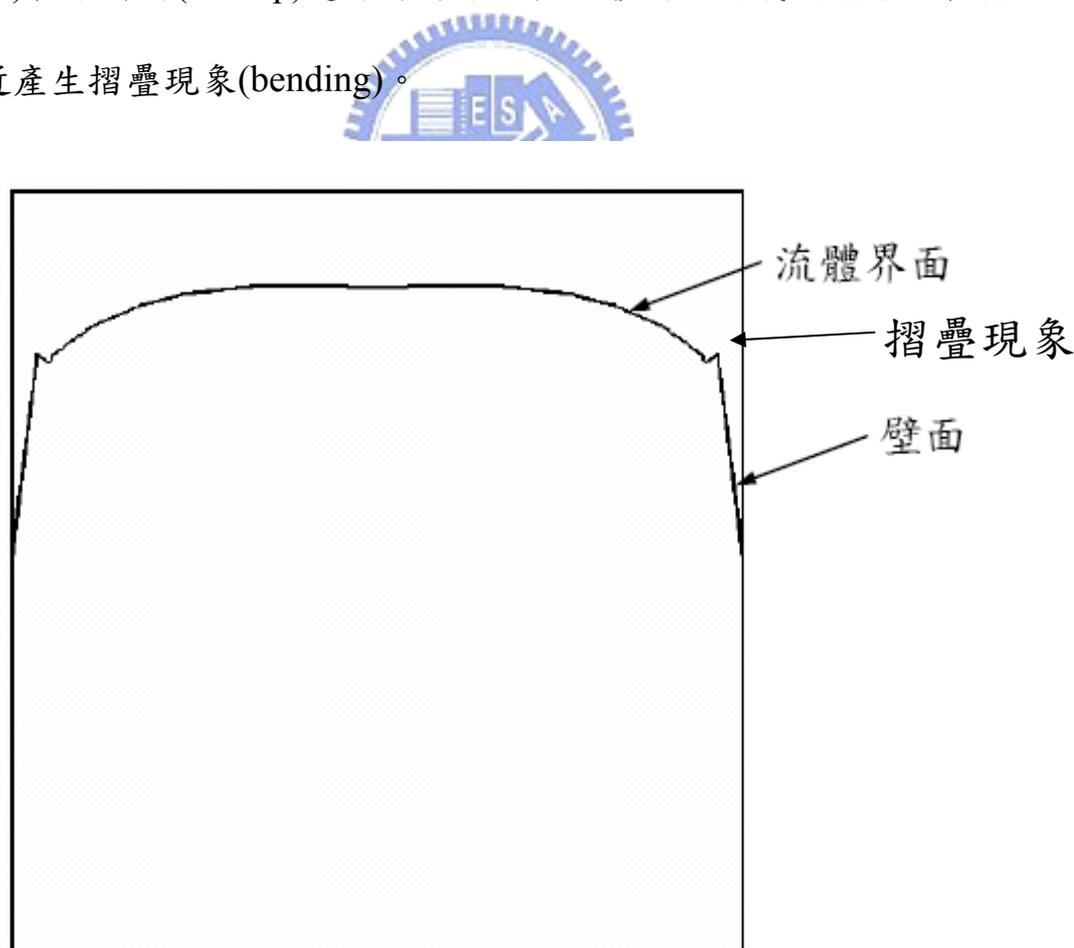


圖2-2 使用不滑動(no-slip)壁面之流體界面<sup>[55]</sup>

由於使用不滑動(no-slip)壁面之假設無法得知界面與壁面接觸位置，因此在過去文獻之研究中，提出幾個方法以處理接觸線之問題，包括外插法及滑動邊界。Dheur<sub>[56]</sub>、Karagiannis<sub>[57]</sub>、Gifford<sub>[46]</sub>等人使用外插法(extrapolation method)預測接觸線位置，此方法是預測界面接觸線最簡單快速的方法，但卻忽略了壁面(wall effects)造成的界面扭曲及其對接觸線附近流體流動情形之影響。如圖2-3<sub>[57]</sub>，A為真實接觸點位置，A'為使用外插法得到之接觸點位置。

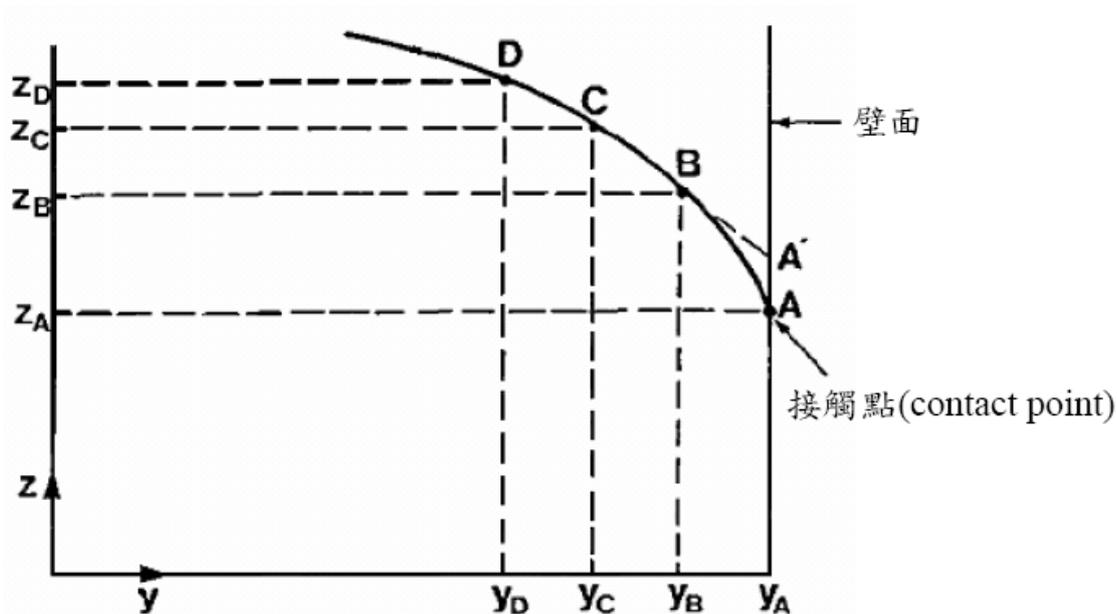


圖2-3 使用線性外插法處理壁面接觸線<sub>[57]</sub>

線性外插法如下：

$$z_c - z_A = (z_B - z_A)(y_c - y_A)/(y_B - y_A) \quad (2-7)$$

由於線性外插法僅用 B、C 兩點作外插求取流體界面在模壁面之接觸點，因此相對於二階外插法其準確度較低。

二階外插法如下：

$$z_A = ay_A^2 + by_A + c \quad (2-8)$$

二階外插法可由 B、C、D 三點得到 a、b、c 係數後，進而求取流體界面在模壁面之接觸點  $z_A$ 。在數學觀點上，二階外插法應能得到較準確的接觸點位置。由此可以觀察到靠近壁面之網格疏密會影響到界面與壁面之接觸點位置，但 Karagiannis<sup>[57]</sup> 等指出若壁面附近網格過密會影響到收斂性之問題，亦指出可用更多的點做外插，但所得之結果並無太大差異，而且所花費的時間也越多。

由於外插法會忽略模壁對流動系統之影響(wall effect)，因此本論文將使用滑動邊界來處理界面與壁面接觸位置之問題，其滑動模型本論文使用 generalized Navier's law<sup>[58]</sup> 來加以描述，而 generalized Navier's law<sup>[58]</sup> 表示式如下：

$$f_t = F_{slip} (v_{wall} - v_t) |v_t - v_{wall}|^{\epsilon_{slip} - 1} \quad (2-9)$$

其中  $f_t$  為熔膠接觸模壁面產生之摩擦力； $F_{slip}$  及  $\epsilon_{slip}$  為滑動參數(slip parameter)；當  $F_{slip} = 0$  時流體在模壁面產生完全滑動(full slip)，亦即

無壁面摩擦力；當 $F_{slip} \rightarrow \infty$ 時模壁面邊界趨近於不滑動(no slip)狀態，亦即壁面摩擦力趨近無限大； $\epsilon_{slip}=1$ 時，(2-9)式為線性式， $0 < \epsilon_{slip} < 1$ 時，(2-9)式為冪次模式(power law model)； $v_t$  為流體在壁面之切線速度，其速度值假設為極小； $v_{wall}$  為壁面切線速度(壁面速度 $v_{wall}$  設定為零)。

由於在過去文獻中並無有關滑動係數之量測值，因此在決定滑動係數上本論文將做以下幾項假設來求取適當之滑動係數<sup>[55]</sup>：

- (1) 假設模壁面摩擦力極大，造成極大之流體剪切應力，且流體在靠近模壁面之速度約為平均速度  $\langle v \rangle$  的1%~2%，以逼近真實流動狀態。
- (2) 由於(1)之假設，故只需求出流體在靠近模壁面之速度即可得到所求之滑動係數，因此將流體界面固定以縮減計算量，並避免由於自由界面迭代的影響造成發散。

由於不同的滑動係數會影響流體在壁面之摩差力大小，因此流體在靠近壁面之速度也會有所差異，本論文取上述假設(流體在靠近模壁面之速度為1%~2%之平均速度)所得到之多個滑動係數 $F_{slip}$ 來探討不同滑動係數值設定對於流體在壁面所產生之剪切應力對壁面與界面接觸位置之影響，並且探討不同滑動係數對界面包覆現象(encapsulation phenomena)之影響。

## 2.1.4 包覆現象(Encapsulation phenomena)分析

在過去之研究中，包覆現象的產生可有下列兩種原因：一為雙層高分子塑料其本身因黏度的不同所造成之包覆現象，已被認為是影響包覆現象之主要因素，黏度低之流體會包覆黏度高之流體，形成一彎曲之流體界面，因此本論文亦將探討有關黏度對包覆現象之影響；另一為二次流動的產生(secondary flow)所造成之包覆現象，二次流動現象可解釋為雙層高分子熔膠在各自流道模壁面之剪切應力極大，造成流體產生極大的拉伸，而後進入截面積較大之矩型流道，雙層高分子熔膠因應力釋放會試圖產生膨脹(swell)，而產生二次流動(secondary flow)，此時流體會呈逆時鐘旋轉將流體界面中央頂起而界面兩端凹下，形成一流體包覆另一流體之包覆現象，且隨著流道長度增加，模壁面剪切應力上升，流體拉伸程度增加，造成包覆程度也隨之增加。

過去的文獻中，也有許多對二次流動所產生之包覆現象做探討，其中Everage<sup>[11]</sup>之研究指出包覆現象可分為兩個步驟，第一步驟是發生在流體匯流處因流體重整(fluid rearrangement)產生之初始界面包覆現象；第二步驟則是隨著流道增長而逐漸增加之包覆度。其中，流體重整是因雙層高分子塑料在各自流道壁面產生極大拉伸變形後，進入較寬廣之進料區塊雙層流道匯流處，使得雙層高分子塑料因應力釋放而如彈性固體般試圖恢復原形。此黏彈性行為是因高分子塑

料在熔融狀態時，分子鏈呈現雜亂捲曲型態，當受到外力作用時，將允許分子鏈移動或滑動。然而，相互糾纏之分子鏈當施加外力或解除外力時會表現出彈性固體般的行為。在應力釋放後，分子鏈會承受一恢復應力，使分子鏈回到雜亂捲曲之平衡狀態。流體重整現象使得流體產生顯著之正向應力，其中第一正向應力差( $N_1$ )即為造成波浪形不穩定之原因，而因第二正向應力差( $N_2$ )之影響，流體產生二次流動(secondary flow)之迴流現象，此時擁有較低第二正向應力差之流體會趨向包覆擁有較高第二正向應力差之流體，如圖2-4<sup>[55]</sup>。而隨著流道長度增加，二次流動對流體界面之影響越大，使得包覆程度亦隨之增加，如圖2-4。在White及Debbaut<sup>[59, 42]</sup>研究中亦指出第二正向應力差可能是造成界面包覆增加之原因。

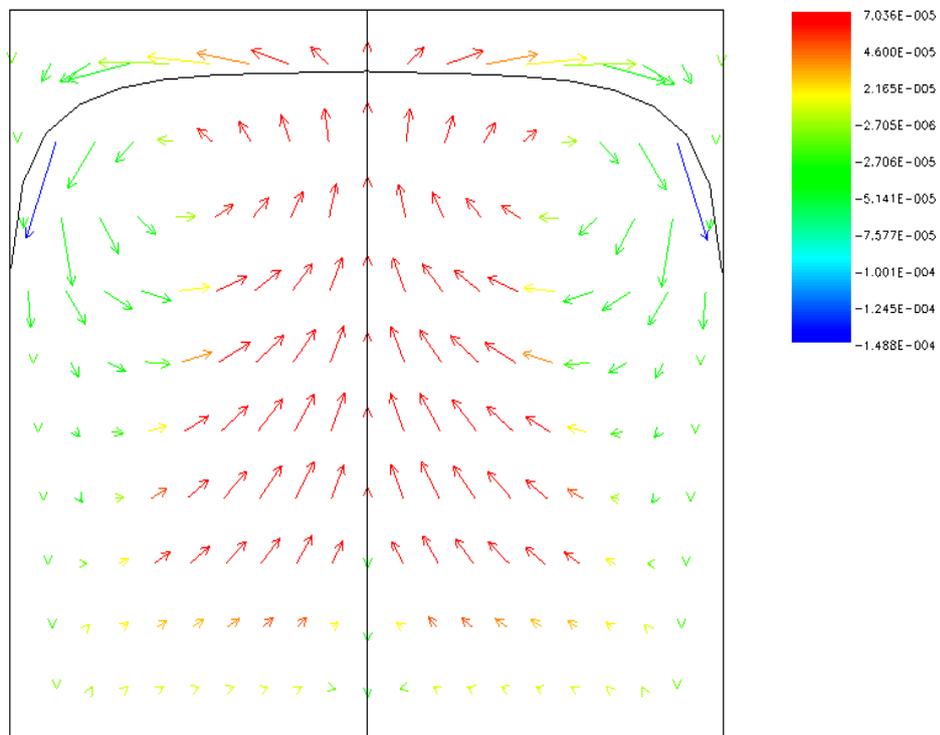


圖 2-4 黏彈流體渦流(recirculation)現象<sup>[55]</sup>

高分子塑料剛離開各自流道之後發生流體重整現象，隨後界面即達平衡穩定之形狀，若僅使用簡單的牛頓流體或泛牛頓流體模型描述，界面包覆即不會再繼續增加，然而若使用黏彈模型模擬共押出進料區塊之流動，由於黏彈模型能對高分子流體彈性質加以描述，其第二正向應力差不為零，並配合滑動邊界設定使計算不會忽略壁面之影響(wall effect)，因此可有效模擬流體之二次流動現象以及可明顯觀察到流體界面包覆之增加。本論文將比較泛牛頓流體模型與黏彈流體模型包覆度之差異，藉此可以驗證是否二次流動(secondary flow)為包覆現象產生之主因。



由於上述所提會影響包覆度之因素，在過去的文獻中，大多都是在等溫條件下所進行之模擬，因此會忽略黏滯熱(viscous heating)之影響，因高分子塑料黏度極大，高黏度的高分子流體在高剪切率(high shear rate)時會因流體層間的速度差造成摩擦生熱，並導致流體溫度的明顯上升，此現象稱為黏性消散效性(viscous dissipation effect)，而黏度較高之流體其所產生之黏滯熱較大，流體內部溫度上升較為明顯，高分子流體黏度也隨著溫度的上升將會有所改變，因此包覆現象也將因黏滯熱(viscous heating)的產生有所變化。本論文利用恆溫系統與非恆溫系統對包覆現象進行探討。

為了有效並定量的觀察包覆程度，本論文使用包覆度(Degree of

encapsulation)來觀察包覆現象，包覆度定義如下:

$$\text{Degree of Encapsulation}(DE) = \frac{y_c - y_w}{L} \times 100\% \quad (2-10)$$

其中  $y_w$  為流體界面在模壁面的高度，即為界面之最低點； $y_c$  為流體界面在幾何對稱面的高度，即為界面之最高點； $L$  為特徵長度，即為進料組合區塊之矩形流道高度，如圖 2-5<sup>[55]</sup>。

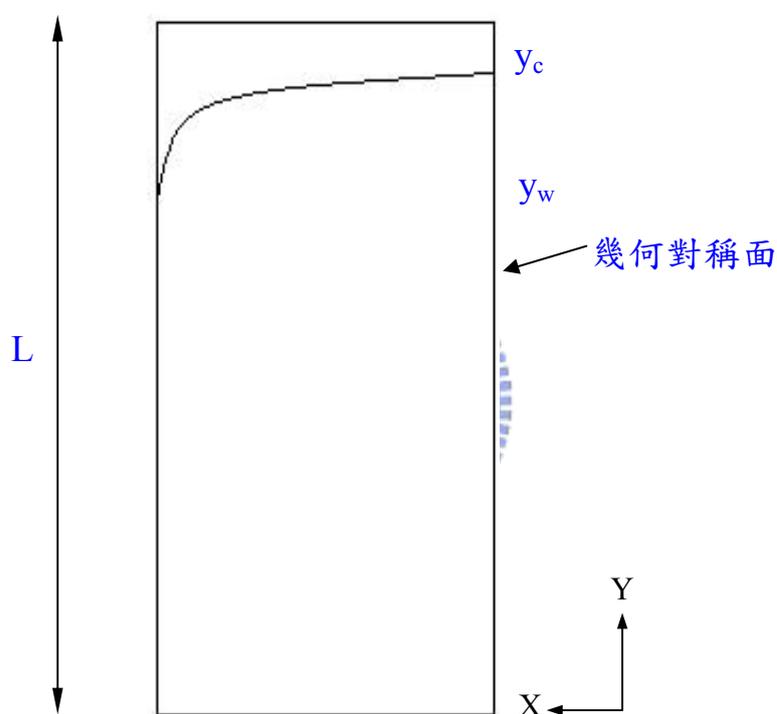


圖 2-5 包覆度(Degree of encapsulation)定義<sup>[55]</sup>

## 2.2 研究方法

本論文使用Polyflow<sup>®</sup>有限元素軟體分析雙層共押出高分子塑料在進料區塊(feedblock)中之流動情形，再將有限元素法計算結果做界面不穩定及三維包覆現象分析，以下簡介Polyflow<sup>®</sup>中所使用之有限元

素離散法及非線性系統解法。

### 2.2.1 網格處理

網格在有限元素法中佔極重要的地位，包含計算準確度、計算時間、計算收斂性等皆受到網格極大之影響。本論文使用Gambit進行網格前處理，並使用矩形網格(quadrilateral mesh)分析進料區塊之流動情形、界面不穩定及界面包覆現象。為了準確預測界面位置及彎曲變形狀況，本論文加密界面位置處之網格，如圖2-6<sup>[55]</sup>。

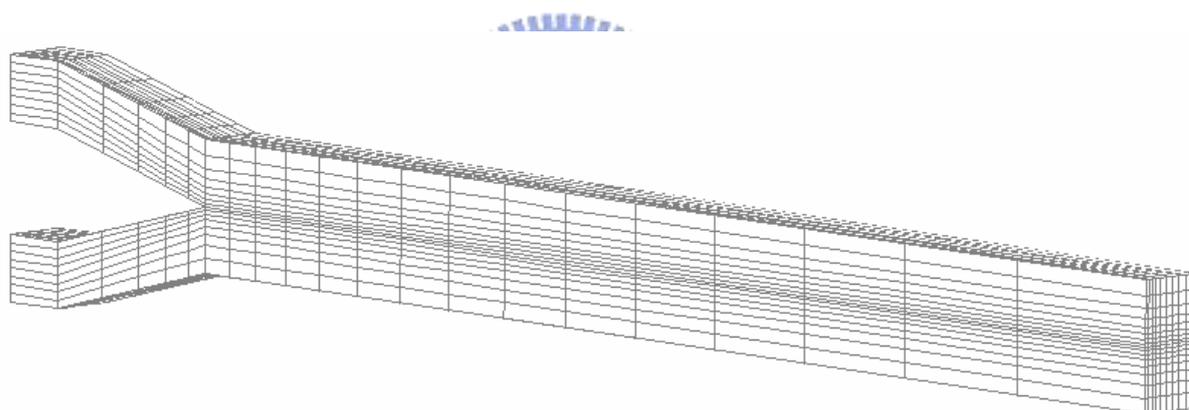


圖 2-6 進料組合區塊網格示意圖<sup>[55]</sup>

### 2.2.2 三維非線性系統解

大型三維有限元素系統分析需耗費相當多時間及電腦資源，包括矩陣建立(construction)、組裝(assembly)、非線性系統迭代(nonlinear system iteration)以及求解(solve)最後之大型矩陣。因此，為了得到良

好的模擬效率，必須在解之正確性及求解效率下做選擇。

為求解經由有限元素法離散化後得到之非線性方程組，本論文使用耦合法(couple method)同時求解全部的變數，並利用Picard迭代法來求解非線性系統。相對於Newton-Raphson迭代法，雖然Newton-Raphson迭代法只需較少迭代次數即可達到收斂值，但此法方並不適合用在Power-law index  $n$  小於0.7，本論文所用之Bird-Carreau model其Power-law index  $n$  接近小於0.7，所以本論文使用Picard迭代法來求解非線性系統。本論文收斂誤差值(包括流體自由界面座標、速度、壓力及應力張量等)設定在 $10^{-4}$ 。

### 2.2.3 進程方法(Evolution method)<sup>[60]</sup>

由於求解過程中非線性項極易造成流場計算發散，故初始值設定對於迭代計算相當重要，本論文將從 $\lambda_k(\text{relaxation time})=0$  (即為牛頓流體)，逐漸增加至流體實際流變參數值 $\lambda_1$ ，其流程如圖2-7所示。進程方法乃將前一步所算出之有限元素近似值作為下一步之初始值以進行迭代，可藉此得到較佳之初始值以避免計算發散，整個流程至 $\lambda_k=\lambda_1$ 時完成計算。其鬆弛時間 $\lambda_1$ 增加之方式如下：

$$\lambda_k = \lambda_1 S_k = \lambda_1 (S_{k-1} + dS) \quad (2-11)$$

其中 $\lambda_k$ 為每次迭代所使用之鬆弛時間； $S_k$ 為每次迭代使用之進程參數

值(evolution parameter),  $0 \leq S_k \leq 1$ ;  $S_{k-1}$  為前次迭代之進程參數值;  $dS$  為每次迭代之進程參數增加值。當前次迭代( $\lambda_{k-1} = \lambda_1 S_{k-1}$ )收斂時,  $dS$  值會小量增加以減少計算時間( $dS_{next} = 1.5dS$ ), 接著以新的鬆弛時間值  $\lambda_k = \lambda_1(S_{k-1} + dS)$  進行新的計算, 但若  $dS$  值過大使  $\lambda_k$  過大造成計算發散, 則小量減少  $dS$  值( $dS_{next} = 0.5dS$ )得到較小之  $\lambda_k$  再重新計算, 直至收斂為止。

#### 2.2.4 流體自由界面位置計算

共押出系統中之流體界面為一未知自由界面, 因此流體界面位置亦必須藉由迭代計算得到。其計算是經由自由界面之動力學狀態(dynamic condition)得到界面上之速度及應力值後, 再以運動學狀態(kinematic condition)可得到新界面位置座標。界面位置座標與速度、壓力及應力張量在每次流場計算時皆以 Picard 迭代法同時求解, 而此流體自由界面也以進程法(evolution method)逐漸增加運動學狀態之影響, 至界面位置收斂為止。

在流場迭代計算前需假設一初始界面座標值(一般使用一開始之幾何形狀界面), 計算完成後可得到新流體界面位置座標, 若此新流體界面位置座標與初始假設相同且系統速度、壓力及應力值場亦收斂, 則以此新流體界面位置座標作為初始值進行下一步之進程計算。

若新流體界面位置座標與初始界面位置座標不同，表示自由界面迭代發散，須以上一節之方法減少進程參數值  $S_k$  並重新計算，其流程如圖 2-7 所示。

## 2.3 計算流程

為了求得本質方程式之非線性解，必須使用迭代計算以防止解之發散，包括進程方法(evolution method)及 Picard 迭代法，計算流程如圖 2-7 所示。主要計算流程如下：

- (a) 幾何形狀之建立及網格劃分。
- (b) 設定材料之流變參數、流場邊界條件及初始之幾何界面位置。
- (c) 以 Galerkin 有限元素法計算流體統御方程式。
- (d) 以 Picard 迭代法進行流場及界面位置之迭代計算。
- (e) 檢視流場及界面位置是否收斂於設定之誤差值內(如  $10^{-4}$ )，若收斂則進行下一步計算，否則減少鬆弛時間  $\lambda$ ，回(b)步驟重新計算流程。
- (f) 檢視鬆弛時間  $\lambda_k$  是否等於設定之塑料鬆弛時間值，若相同則完成計算，否則增加  $\lambda_k$  回(b)步驟重新計算流程。

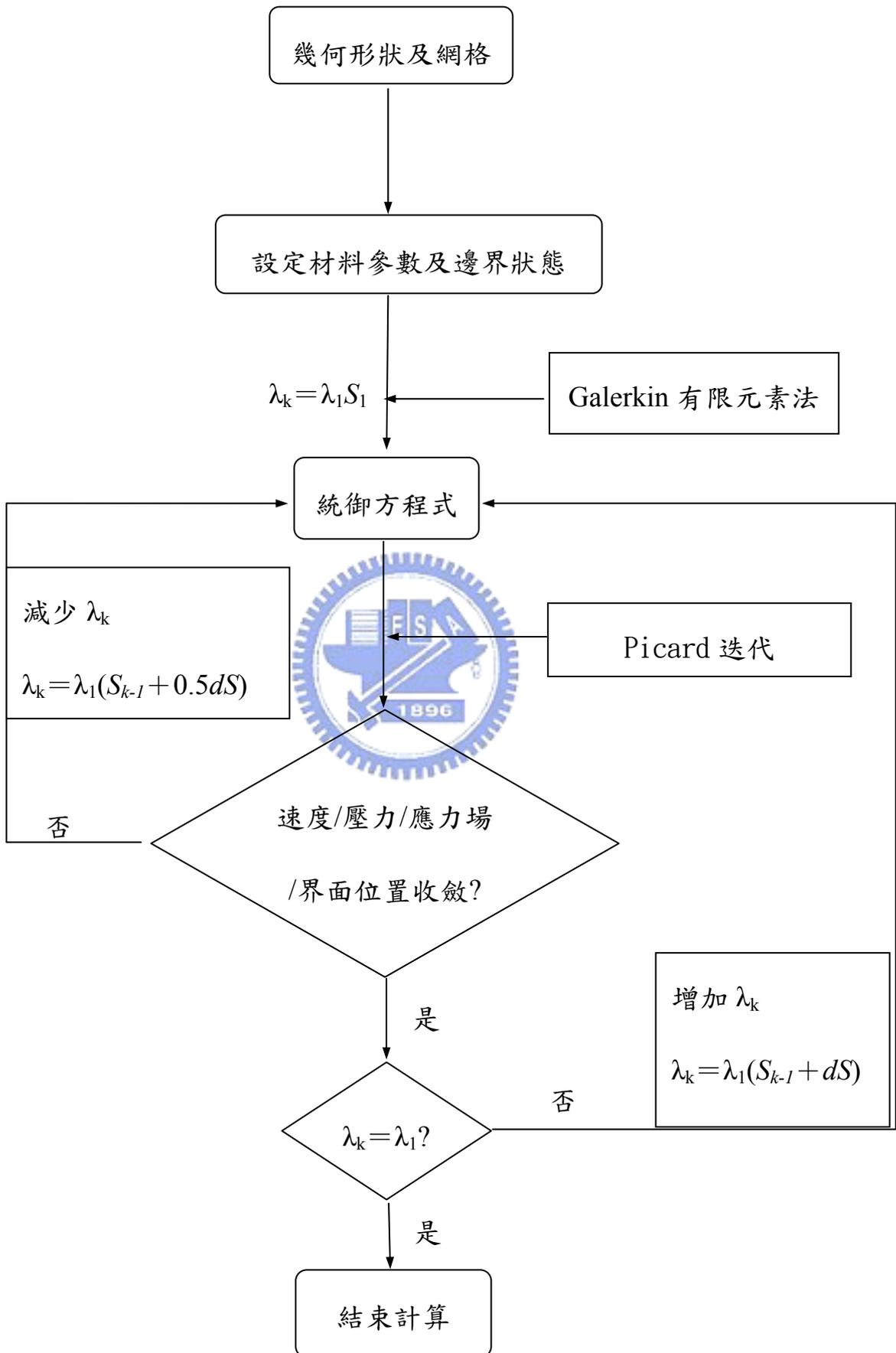


圖 2-7 計算流程圖

### 三、結果與討論

為了模擬雙層共押出高分子塑料在進料區塊(feedblock)中之流動行為，因此本論文採用泛牛頓型流體 Bird-Carreau model 進行雙層共押出高分子塑料之三維有限元素流動模擬分析。因 Bird-Carreau model 可有效描述高分子黏度對剪切率之關係，且在非恆溫系統下又比黏彈模型(viscoelastic model)容易計算，固採用此模型有利於本論文對流體界面包覆現象之研究。圖 3-1 為本論文模擬採用之進料區塊幾何形狀網格圖<sup>[55]</sup>，由於系統為對稱流場，故只取半邊幾何形狀進行分析。

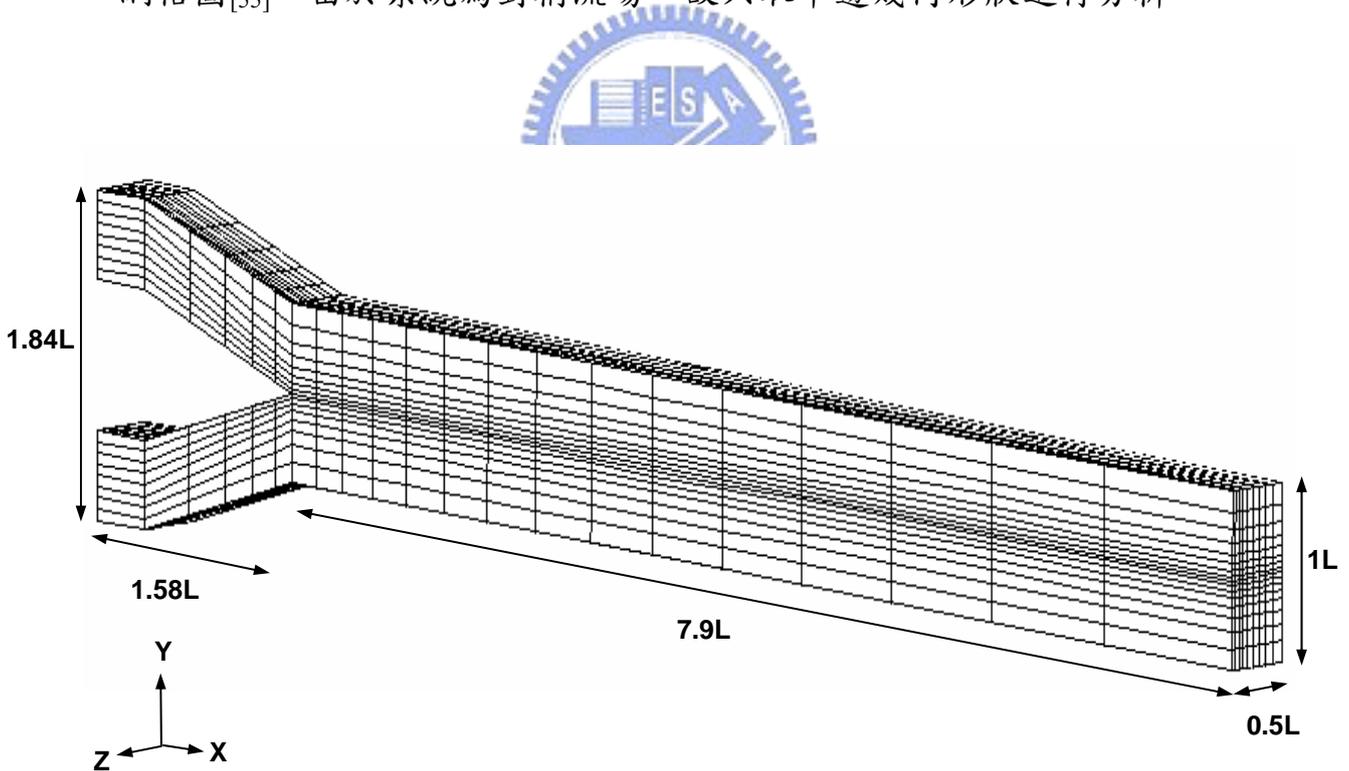


圖 3-1 進料區塊幾何形狀網格圖<sup>[55]</sup>

### 3.1 操作條件

(1) 進料區塊幾何形狀:

本論文採用 Karagiannis<sup>[57]</sup> 文獻中之進料區塊以做模擬之幾何形狀。如圖 3-1，進料區塊幾何形狀網格圖<sup>[55]</sup>。

(2) 高分子塑料:

本論文使用之下層 (Fluid I) 高分子塑料為 polystyrene (Dow Styron 678E)，而上層 (Fluid II) 高分子塑料為 polystyrene (Dow Styron 472)，圖 3-2 為其黏度 (viscosity) 對剪切率 (shear rate) 於 220°C 量測之關係圖<sup>[51]</sup>。表 3-1 為 Bird-Carreau 模型之材料參數值<sup>[54]</sup>。

(3) 溫度設定:

高分子塑料之入口溫度及模具壁面溫度均設為 220°C

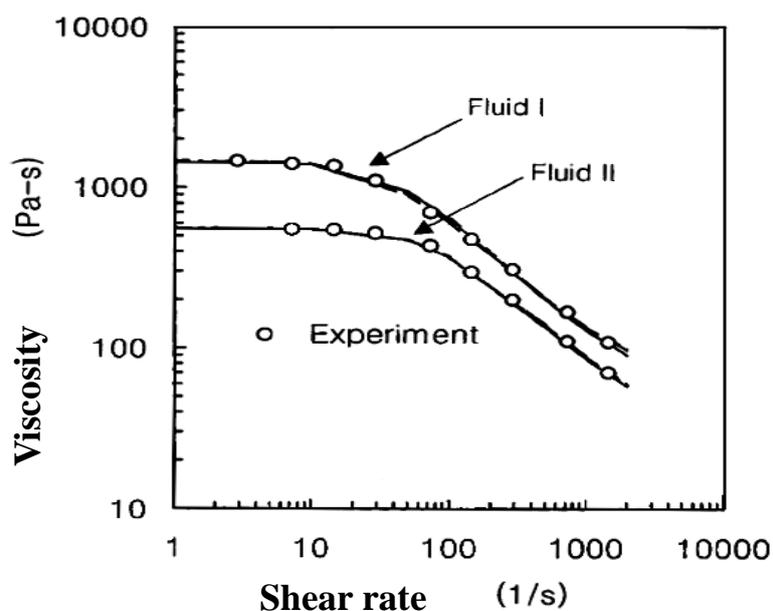


圖 3-2 Polystyrene 之黏度-剪切率關係圖(220°C)<sup>[51]</sup>

表 3-1 Bird-Carreau model 材料參數<sup>[54]</sup>

	下層流體(Dow Styron 678E)	上層流體(Dow Styron 472)
Zero shear viscosity ( $K$ ) at 220°C	1461 Pa-s	553 Pa-s
Relaxation time ( $\lambda$ )	0.040 sec	0.015 sec
Power index ( $n$ )	0.36	0.31
Constant $\beta$ in Arrhenius type equation		12236 K
Density ( $\rho$ )		997 kg/m <sup>3</sup>
Thermal conductivity ( $\kappa$ )		0.167W/m-K
Specific heat capacity ( $C_p$ )		2040 J/kg-K

## 3.2 恆溫系統

### 3.2.1 不同滑動係數對壁面與流體界面接觸線位置之影響

在共押出製程模擬中，流體界面在模壁面接觸線(contact line)之邊界設定極為重要。為解決模壁面接觸線問題，本論文使用滑動邊界設定流體自由界面於模壁面之邊界狀態，觀察不同滑動係數對壁面與界面接觸線位置之影響，而滑動係數值亦成為影響壁面接觸線移動之

重要因素。

此節將以不同滑動係數進行有限元素分析，觀察不同滑動係數對於壁面之剪切率與流體界面在模壁面接觸線(contact line)之位置有何影響。滑動係數之設定，本論文使用冪次式滑動模型設定模壁面( $\Gamma_{wall}$ )之滑動邊界，冪次式滑動模型generalized Navier's law表示式如下：

$$f_t = F_{slip} (v_{wall} - v_t) |v_t - v_{wall}|^{\epsilon_{slip} - 1} \quad (3-1)$$

其中，上下層塑料之  $\epsilon_{slip}$  皆設定為 0.6<sup>[55]</sup>。

由圖 3-3 可以看出當壁面使用不滑動(no-slip)邊界設定下，因壁面摩擦力比使用滑動邊界設定大，所以在接觸線(contact line)附近之剪切率會比滑動邊界設定大，然而在使用滑動邊界設定下，當滑動係數逐漸增加時，其接觸線(contact line)附近之剪切率也逐漸增加，因此在不同滑動係數下，進料區塊(feedblock)之出口界面包覆度也會不同，此部份將在下節加以探討。

圖 3-4 為不同滑動係數下接觸線(contact line)在出口界面位置比較，隨著滑動係數的增加，其接觸線(contact line)位置越低，在使用不滑動(no-slip)邊界設定下，其接觸線(contact line)位置無法移動，然而在實際共押出製程中存在不同程度的滑動，若壁面為不滑動(no-slip)邊界會忽略壁面之影響(wall effect)，本論文採用的滑動邊界

不會忽略壁面影響(wall effect)，可較有效預測界面接觸線位置。

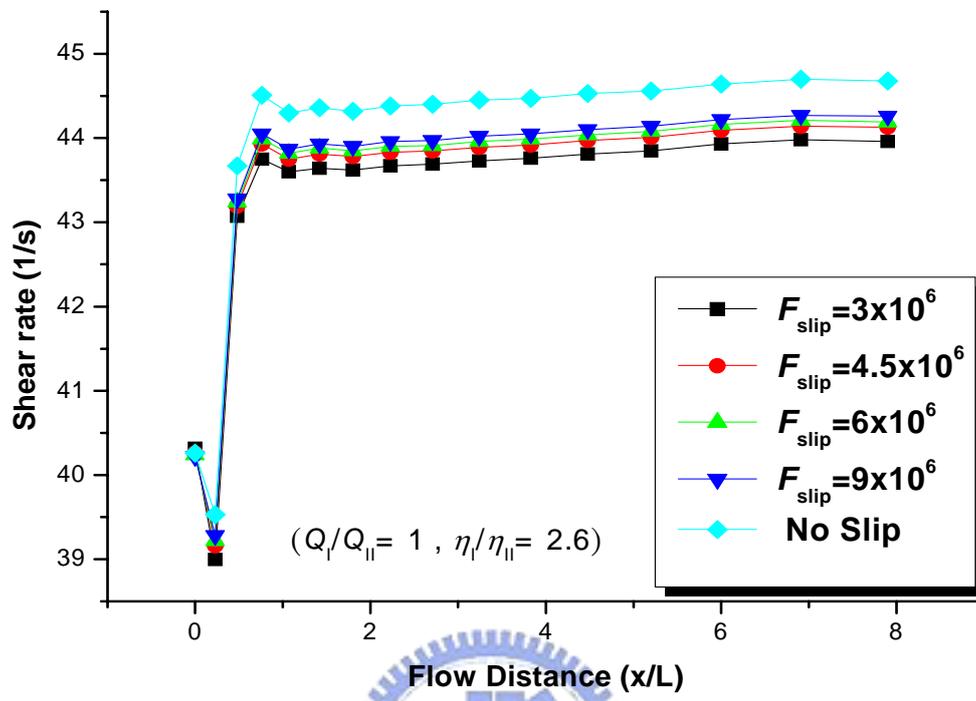


圖 3-3 不同滑動係數下之壁面剪切率比較圖

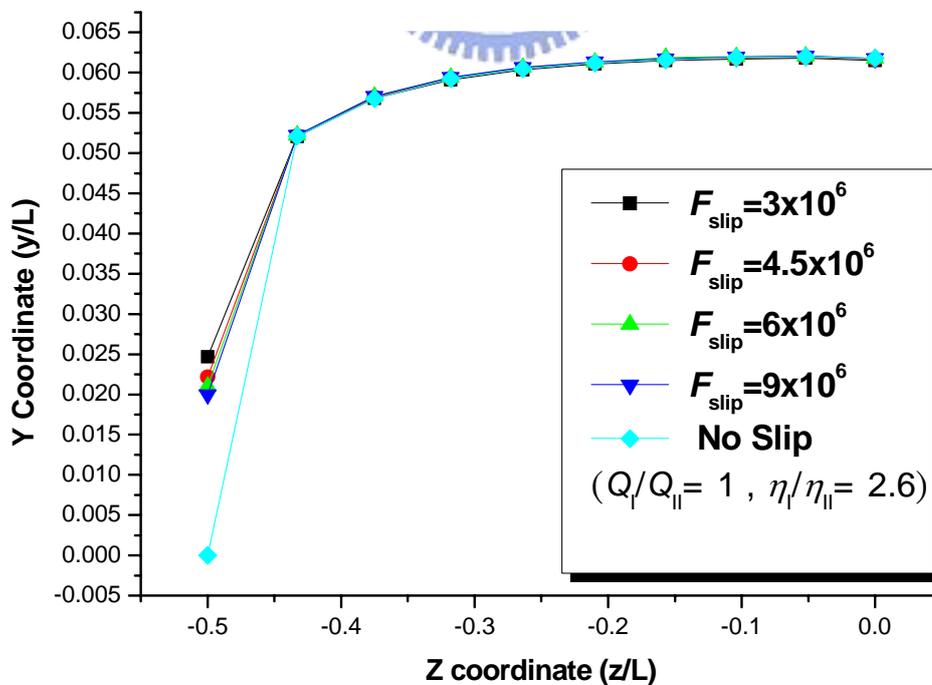


圖 3-4 不同滑動係數下之接觸線在出口界面位置比較圖

### 3.2.2 不同滑動係數對流體界面包覆度之影響

由上節之模擬結果可知不同滑動係數對壁面與流體界面接觸線位置會有影響，也因此會影響流體界面包覆度，其包覆度定義如下：

$$\text{Degree of Encapsulation}(DE) = \frac{y_c - y_w}{L} \times 100\% \quad (3-1)$$

圖3-5為不同滑動係數下流體界面包覆度比較圖，可看出隨著滑動係數越小，流體界面包覆度亦越小。此現象可解釋為因當滑動係數越小會使得壁面摩擦力越低及壁面剪切率亦下降，而在共押出製程中，低黏度塑料會趨向有較高剪切率之壁面，故在此流體黏度差異之影響降低，使得流體界面包覆度變小。表3-2為不同滑動係數下之出口界面包覆度比較。圖3-6為不同滑動係數下流體界面出口位置比較圖，可明顯看出流體界面因滑動係數影響而造成不同程度之界面彎曲包覆程度，當滑動係數越高則界面包覆程度越高，且壁面接觸點(contact point)位置越低。

表 3-2 為不同滑動係數下之出口界面包覆度比較

	壁面邊界設定(Slip coeff.)				
	$3 \times 10^6$	$4.5 \times 10^6$	$6 \times 10^6$	$9 \times 10^6$	No-slip
Outlet Encapsulation(%)	3.68	3.95	4.07	4.21	6.18

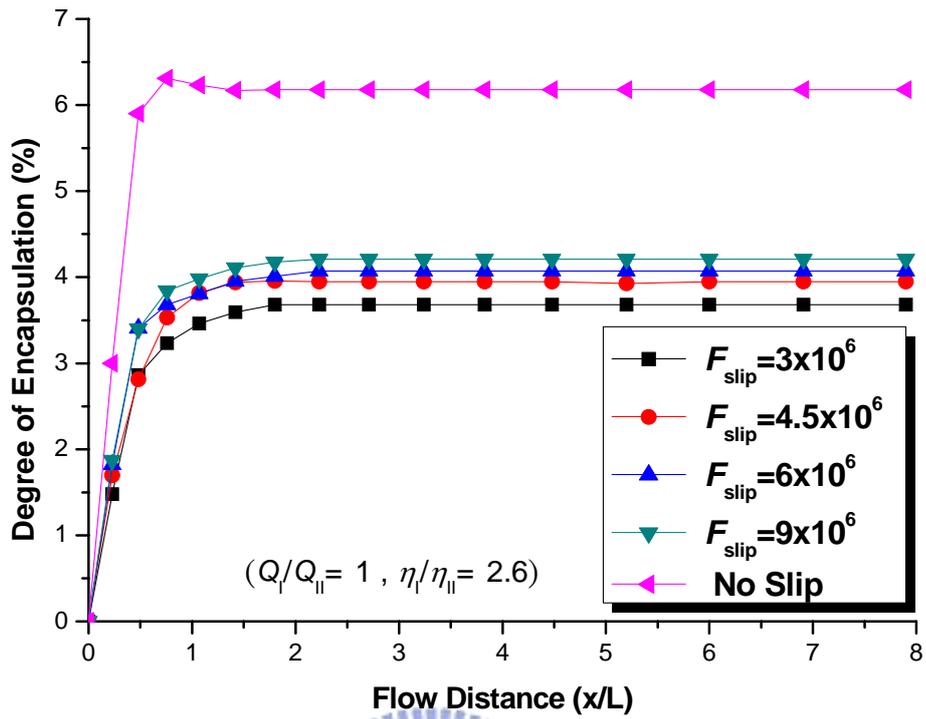


圖 3-5 不同滑動係數下流體界面包覆度比較圖

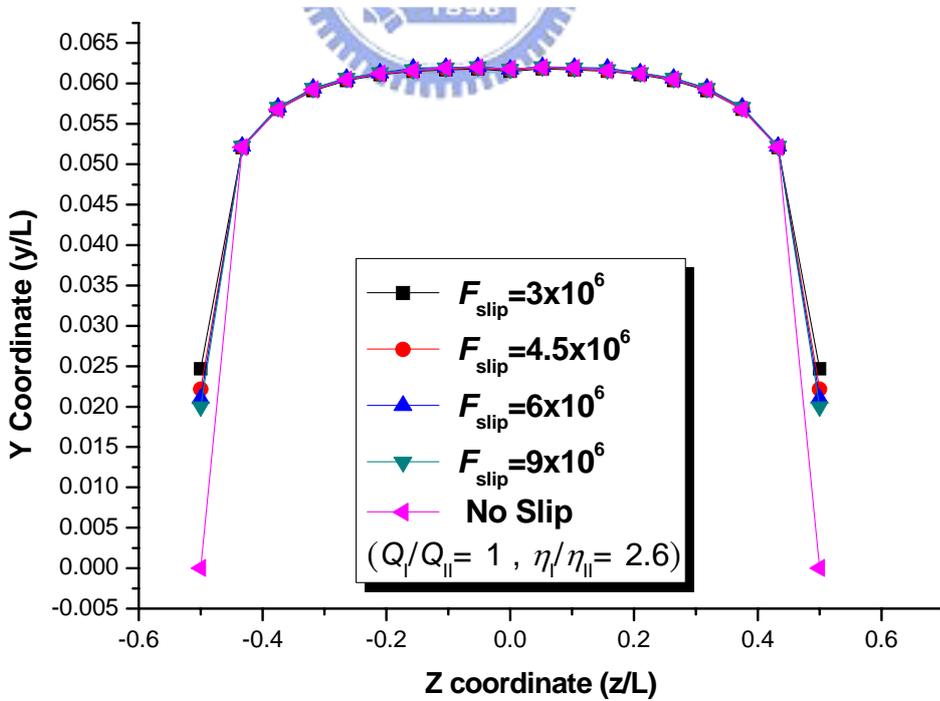


圖 3-6 不同滑動係數下流體界面出口位置比較圖

### 3.2.3 黏度比對流體界面包覆度之影響

在過去之研究中，黏度低之流體會趨向包覆黏度高之流體，形成一彎曲之流體界面，已被認為是影響包覆現象之主要因素，此小節將探討有關黏度對包覆現象之影響。圖 3-7 為上下層高分子塑料不同黏度比對界面包覆度之影響，由模擬結果可看出隨著上下層黏度差異越大，其界面包覆度亦越大，此結果亦與 Gifford<sub>[46]</sub>等人之研究相符合。表 3-3 為不同黏度比之出口界面包覆度比較。為方便觀察不同黏度比之界面出口位置，將黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )為 2.6、4 及 6 之出口界面接觸線置於同一水平，如圖 3-8，由圖 3-8 可以明顯看出其界面包覆度隨著黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )增加而變大。圖 3-9 則為實際界面出口位置圖，由圖 3-9 可知不僅界面包覆度隨著黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )增加而變大，其界面位置也隨黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )增加而變高。由此節可以清楚了解有關黏度對包覆現象之影響，其模擬結果亦與 Gifford<sub>[46]</sub>等人之模擬結果相符。

表 3-3 不同黏度比之出口界面包覆度比較

$Q_i/Q_{ii}=1$ ， $F_{slip}=4.5 \times 10^6$	黏度比 $\eta_i/\eta_{ii}$ (下層/上層)		
	2.6	4	6
Outlet Encapsulation(%)	3.95	5.27	5.91

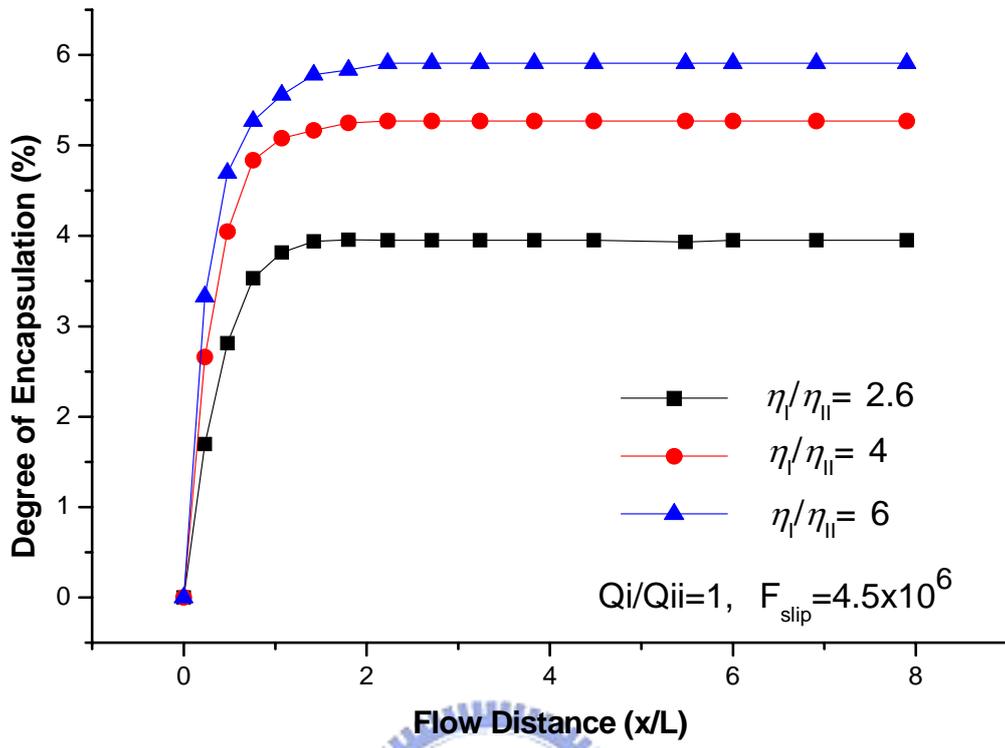


圖 3-7 不同黏度比流體界面包覆度比較圖

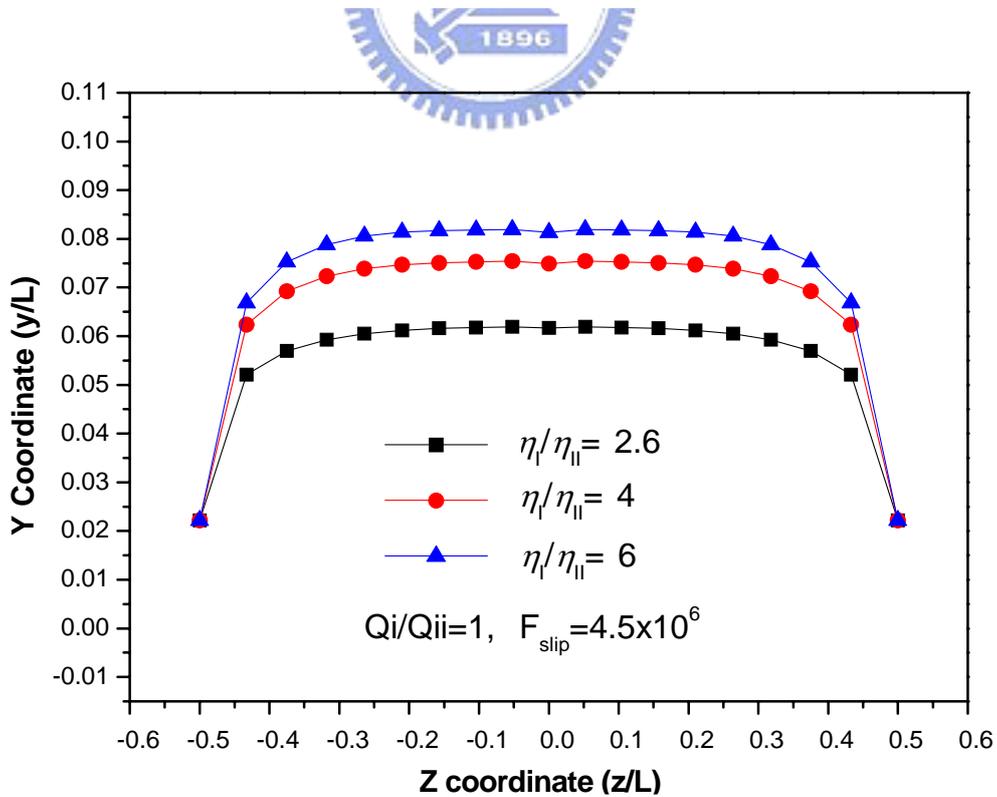


圖 3-8 不同黏度比之出口界面包覆比較

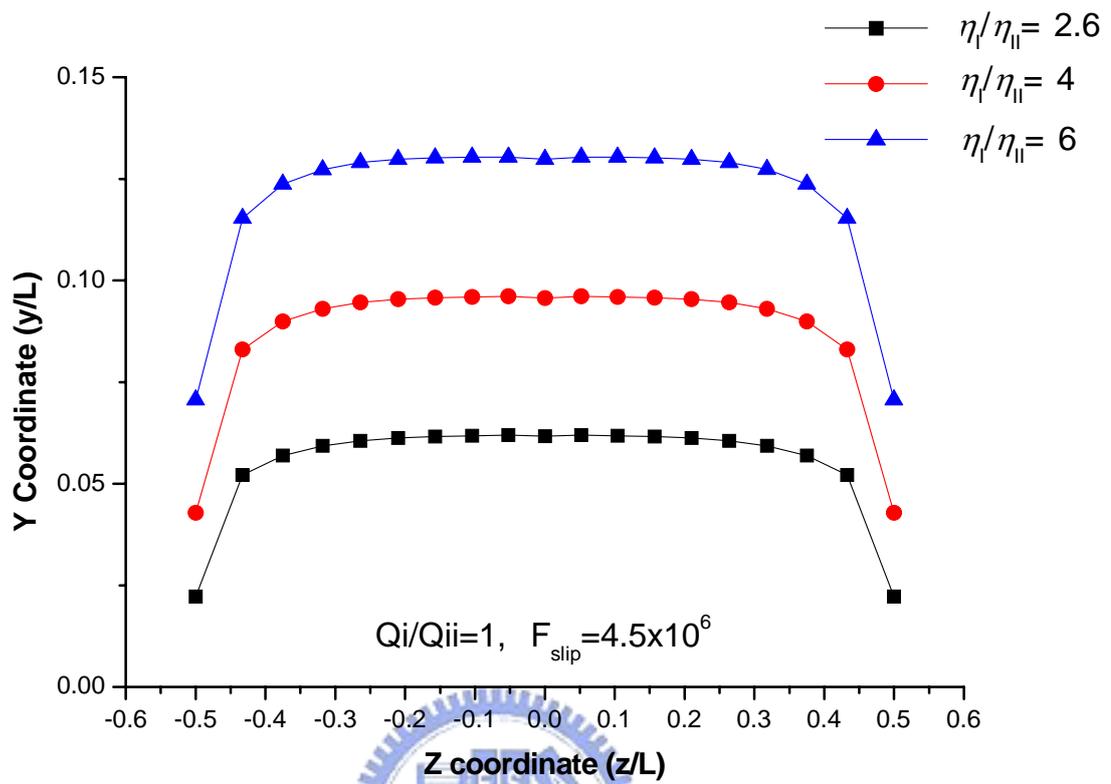


圖 3-9 不同黏度比之界面出口位置

### 3.2.4 流量比對流體界面包覆度之影響

此節將討論流量比對雙層高分子塑料在共押出製程中包覆現象之影響。為探討量比對界面包覆度之影響，將下層流體(Flow I)之流量  $Q_i$  固定，藉由改變上層流體(Flow II)之流量  $Q_{ii}$ ，其模擬結果如表 3-4。圖 3-10 為不同流量比對界面包覆度之影響，由圖可以看出隨著流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )降低，界面包覆度反而增加，即當上層流體之流量變大時，界面包覆度反而增加。其原因為當上層流體之流量增加時，剪切率也隨之變大，因此上層流體之黏度變小，此現象則為高分子之剪薄效應 (Shear Thinning Effect)，如圖 3-2 黏度對剪切率關係圖所示。

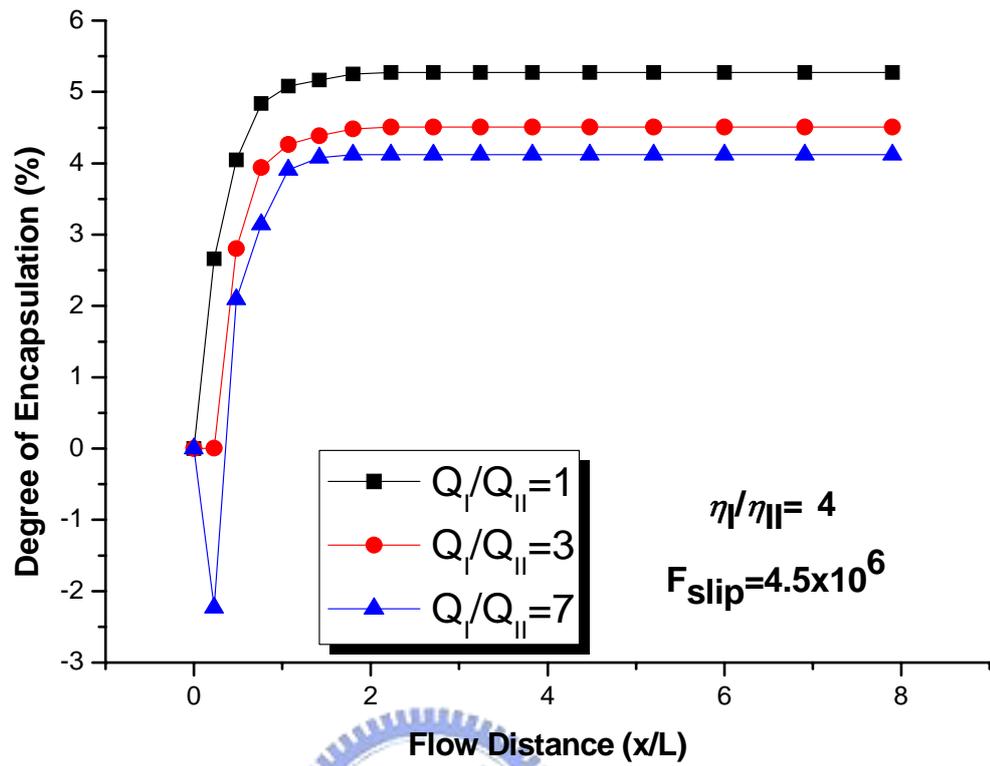


圖 3-10 不同流量比流體界面包覆度比較圖

表 3-4 不同流量比之出口界面包覆度比較

$\eta_i/\eta_{ii}=4$ , $F_{slip}=4.5 \times 10^6$	流量比 ( $Q_i/Q_{ii}$ ) (下層/上層)		
	1	3	7
Outlet Encapsulation(%)	5.27	4.51	4.12

由於上層流體因流量增加導致其黏度變低，因此上下層流體之黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )增加，包覆度也隨之變大。相反地，隨著流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )增加，界面包覆度反而減少，即當上層流體之流量變小時，界面包覆

度反而減少。因上層流體之流量降低，剪切率變小，其黏度較高流量時大，所以上下層流體之黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )降低，包覆度也隨之變小。此外，由圖 3-10 可觀察到在雙層流體匯流處(merging area)出現高流量比時包覆度小於零之現象，推測應是由於上下層流量差異極大，造成流體在匯流處互相激烈推擠，使界面產生極大的不穩定，而使得界面暫時呈現高黏度包覆低黏度之現象，但隨著流道長度逐漸增加，包覆現象則趨向低黏度包覆高黏度。由圖 3-11、3-12、3-13 可看出不同流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )之剪切率變化圖，圖 3-14、3-15、3-16 為不同流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )之上層流體黏度變化圖。隨著流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )增加，下層流體流量比上層流體流量大，因此流體界面受到下層流體擠壓而上偏移，如圖 3-17。



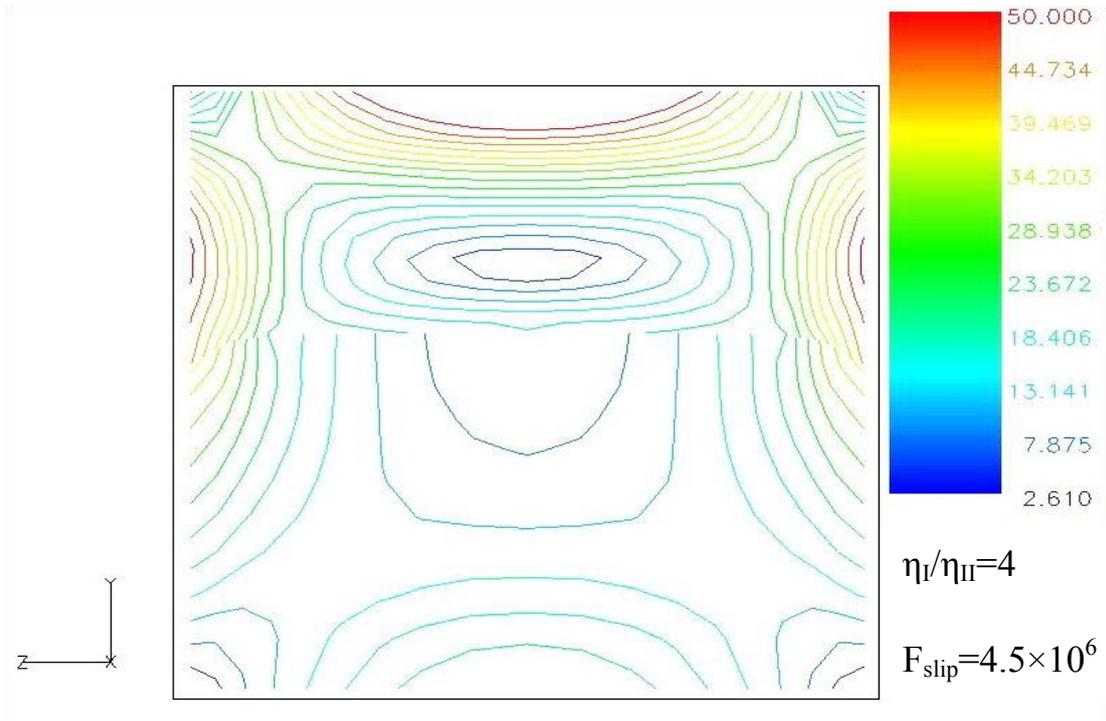


圖 3-11 流量比  $Q_i/Q_{ii}=1$  之剪切率圖

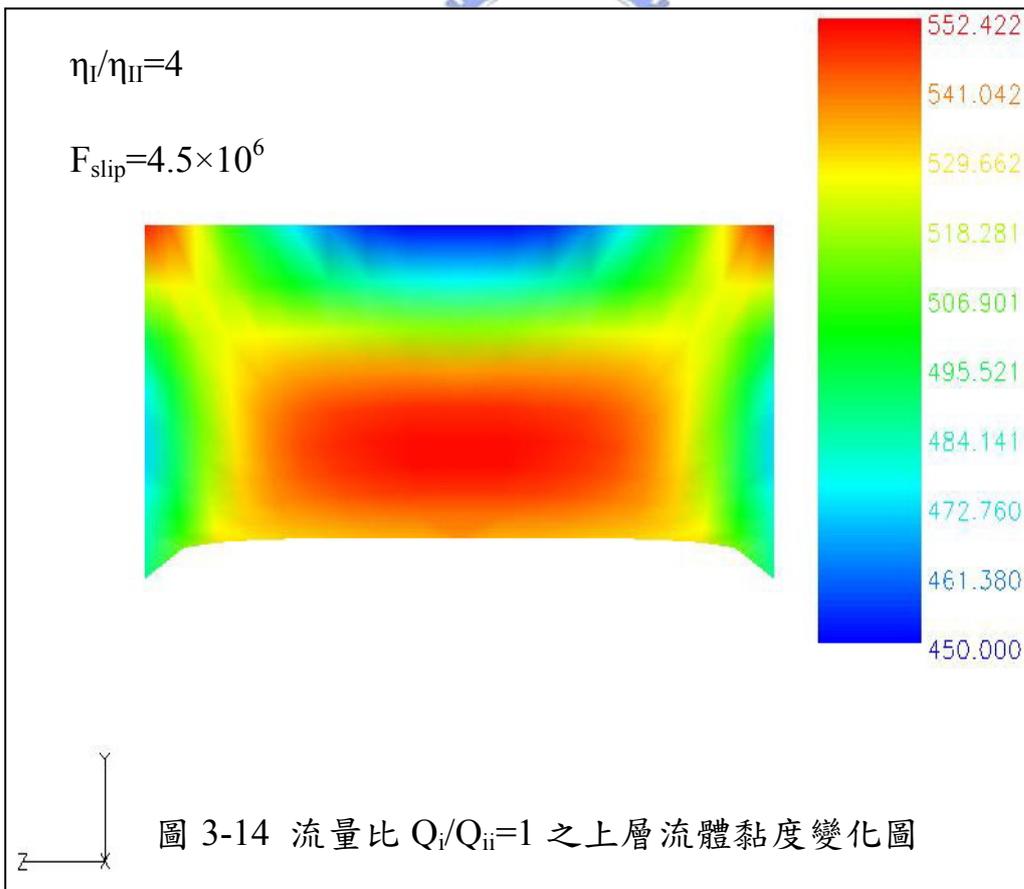


圖 3-14 流量比  $Q_i/Q_{ii}=1$  之上層流體黏度變化圖

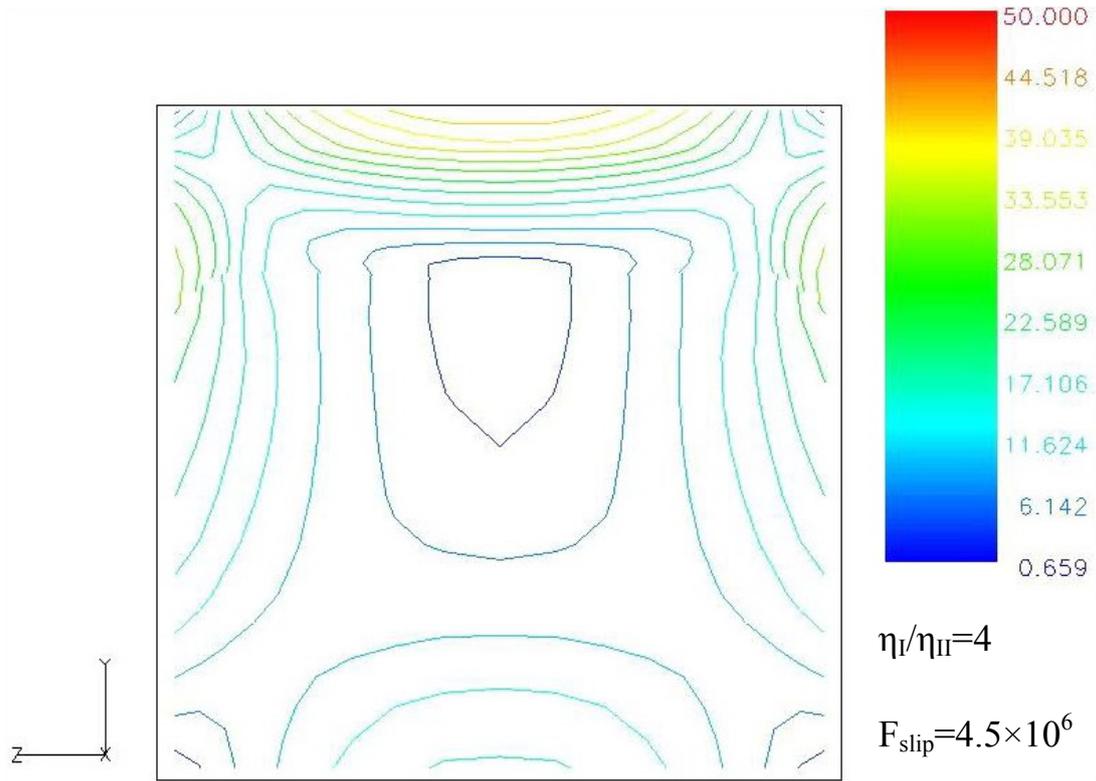


圖 3-12 流量比  $Q_i/Q_{ii}=3$  之剪切率圖

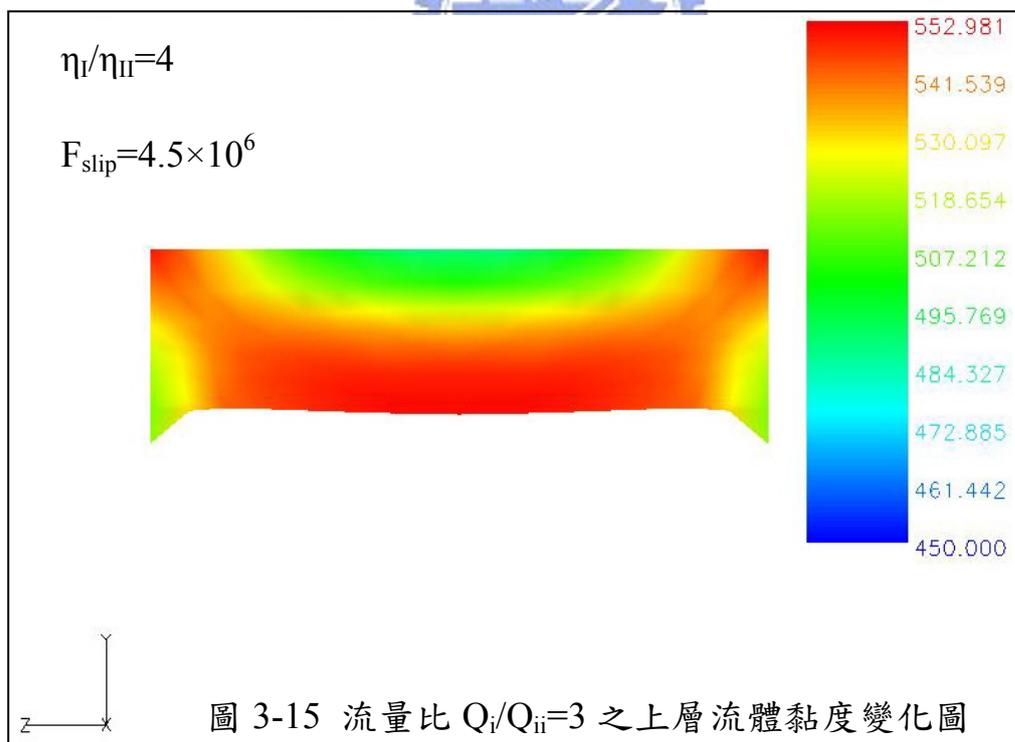


圖 3-15 流量比  $Q_i/Q_{ii}=3$  之上層流體黏度變化圖

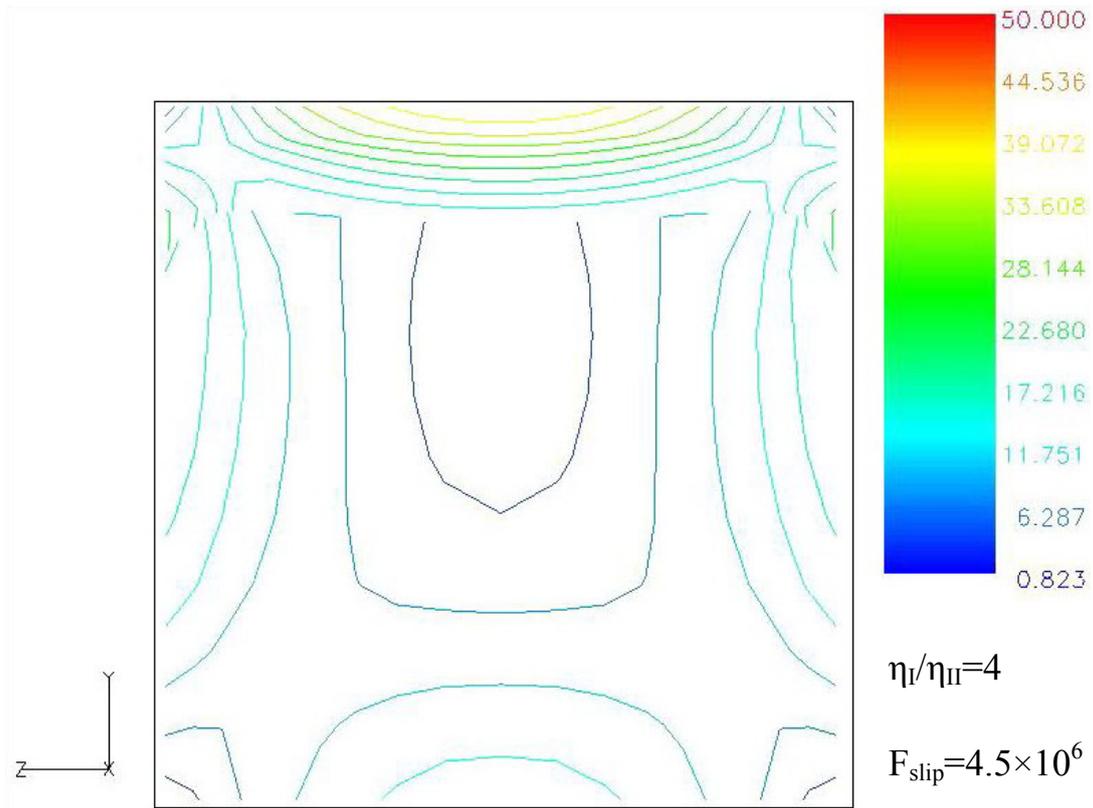


圖 3-13 流量比  $Q_i/Q_{ii}=7$  之剪切率圖

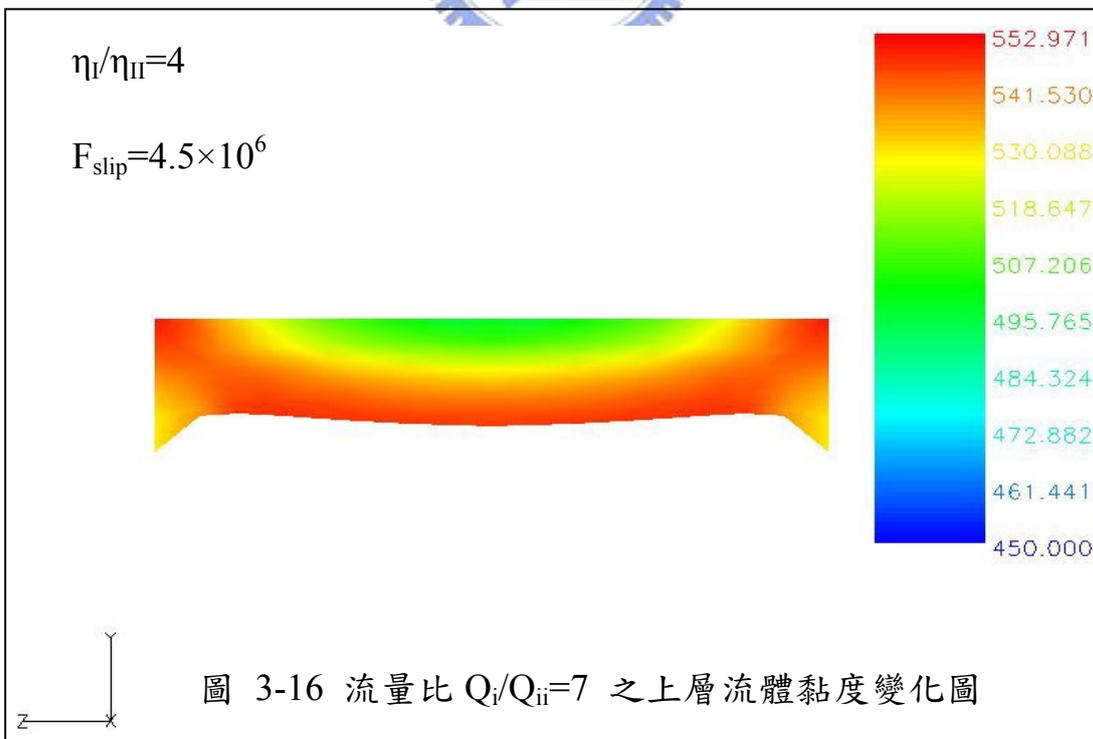


圖 3-16 流量比  $Q_i/Q_{ii}=7$  之上層流體黏度變化圖

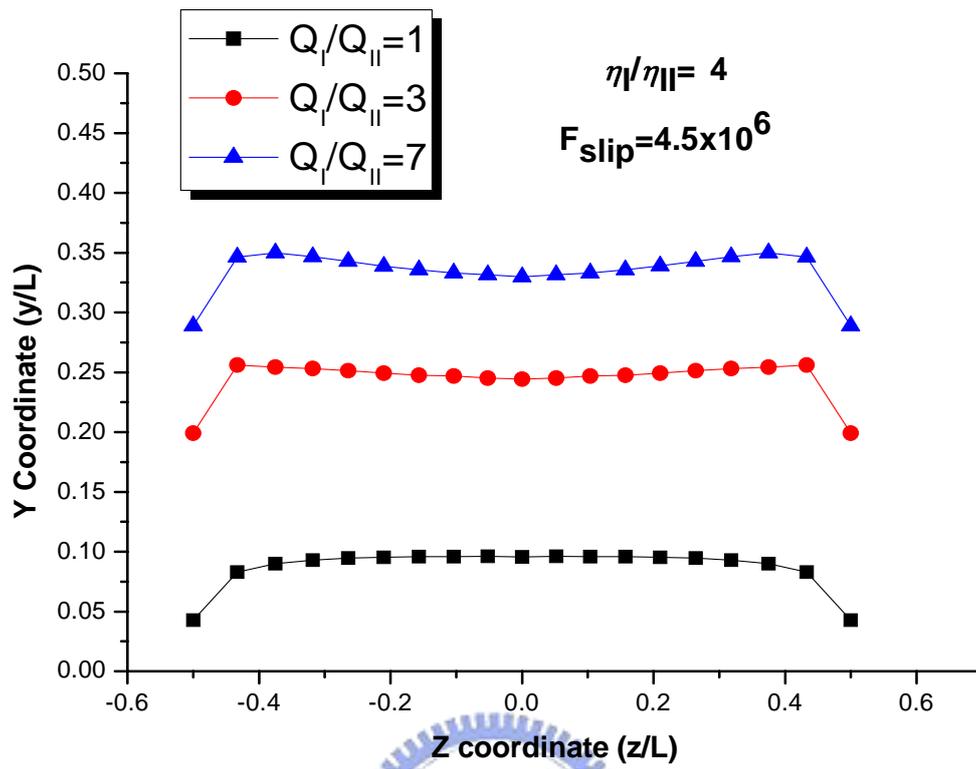


圖 3-17 不同流量比之界面出口位置

### 3.3 非恆溫系統

#### 3.3.1 黏度比對流體界面包覆度之影響

由於高分子塑料黏度極大，高黏度的高分子流體在高剪切率(high shear rate)時會因流體層間的速度差造成摩擦生熱，並導致流體溫度的明顯上升，而黏度較高之流體其所產生之黏滯熱較大，流體內部溫度上升較為明顯，高分子流體黏度也隨著溫度的上升將會有所改變，因此包覆現象也將因黏滯熱(viscous heating)的產生有所變化。圖3-18為非恆溫下，不同黏度比對界面包覆度之比較圖。由模擬結果可看出界面包覆度隨著黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )變大而增加，此結果亦與恆溫系統下之

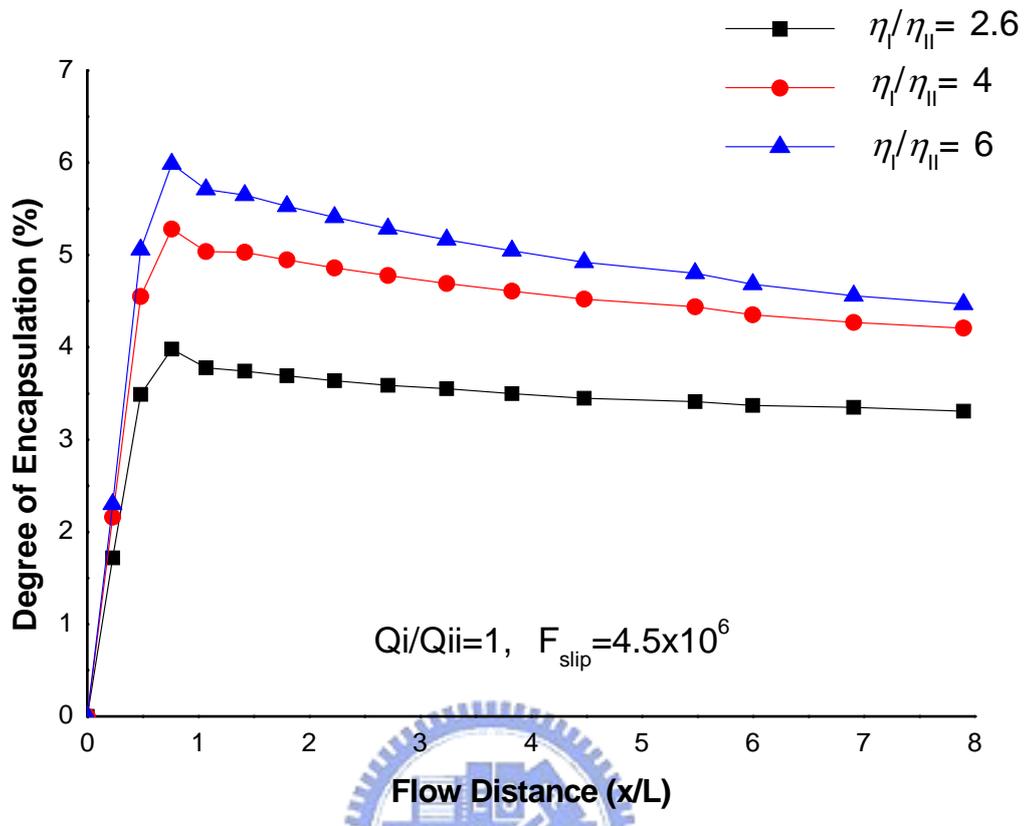


圖 3-18 非恆溫-不同黏度比流體界面包覆度比較圖

模擬結果相同，但由於恆溫系統下，高分子塑料不會產生黏滯熱 (viscous heating)，因此其界面包覆度隨著流道長度增加而達到一穩定狀態，然而在非恆溫系統下，其界面包覆度隨著流道長度增加而變小，此現象可解釋為隨著流道長度增加，高分子塑料因流動摩擦所產生之黏滯熱(viscous heating)越來越大，且下層流體(Flow I)黏度比上層流體(Flow II)黏度大，其所產生之黏滯熱(viscous heating)隨著流道增加而明顯比上層流體(Flow II)大，導致下層流體(Flow I)黏度因溫度上升而減少，相對於黏度較低之上層流體(Flow II)，其所產生之黏滯

熱(viscous heating)比下層流體(Flow I)少，黏度因溫度上升而減少之現象沒有下層流體(Flow I)明顯，因此黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )會隨著流道增加而下降，界面包覆度亦隨著流道增加而減少。而溫度分佈隨著出口方向變化如圖 3-19 至 3-27 所示。

表3-5為不同黏度比在恆溫系統與非恆溫系統下之出口界面包覆度比較，由表3-5可看出在非恆溫系統下之出口界面包覆度比在恆溫系統下低，其原因為在恆溫系統下，忽略高分子塑料所產黏滯熱之影響，由上述可知，黏滯熱的產生，會使得黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )下降，故在非恆溫系統下，其界面包覆度會比在恆溫系統下低。此外，亦可觀察出在非恆溫系統下，包覆度隨著黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )增加之變化量比在恆溫系統下少，因在非恆溫系統下，下層流體(Flow I)黏滯熱(viscous heating)隨黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )增加而變大，導致因黏滯熱(viscous heating)使得包覆度減少之效應增加，故在非恆溫系統下，因黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )增加而影響界面包覆度之現象較恆溫系統不明顯。圖3-28為不同黏度比之界面出口位置，由圖可看出界面位置隨著包覆度之增加，而往上偏移。

表 3-5 恆溫與非恆溫系統不同黏度比之出口界面包覆度比較

$Q_i/Q_{ii}=1$ , $F_{slip}=4.5 \times 10^6$	黏度比 $\eta_i/\eta_{ii}$ (下層/上層)		
	2.6	4	6
恆溫系統 Outlet Encapsulation(%)	3.95	5.27	5.91
非恆溫系統 Outlet Encapsulation(%)	3.31	4.21	4.47

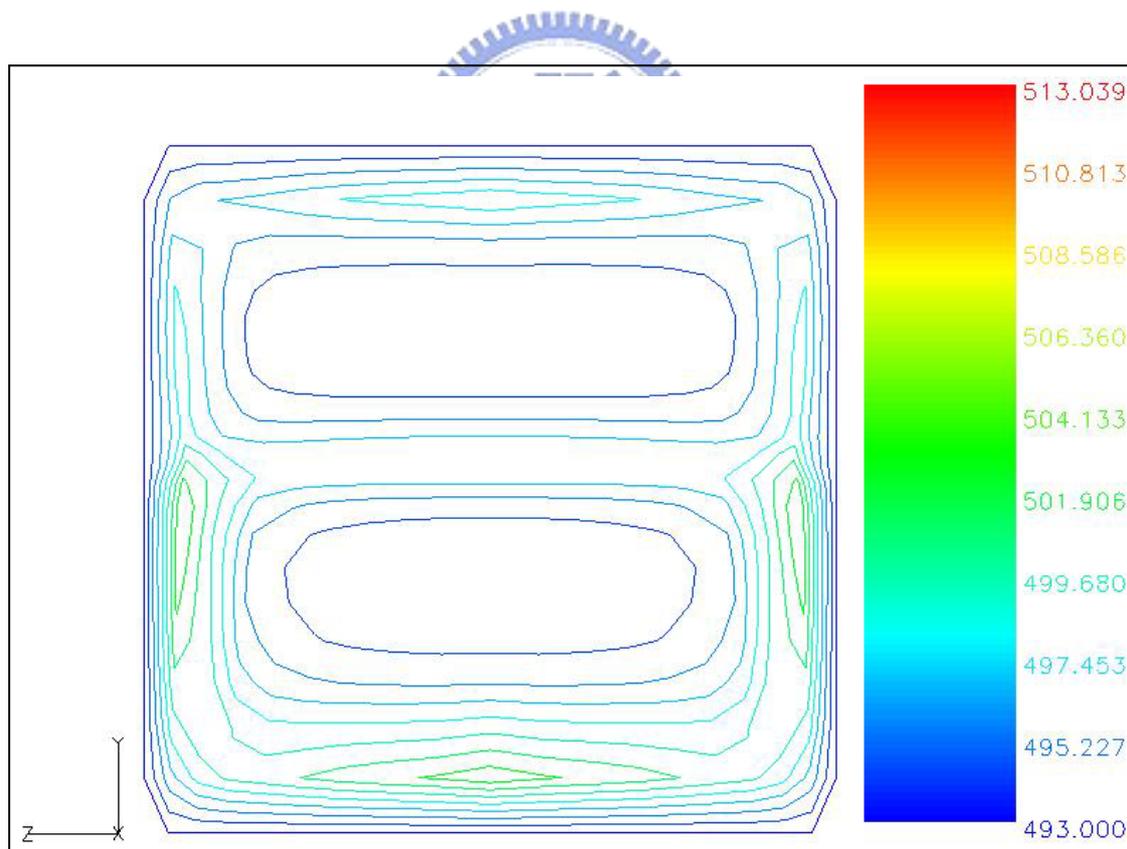


圖 3-19 黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )=2.6 之溫度分佈圖(X=1L)

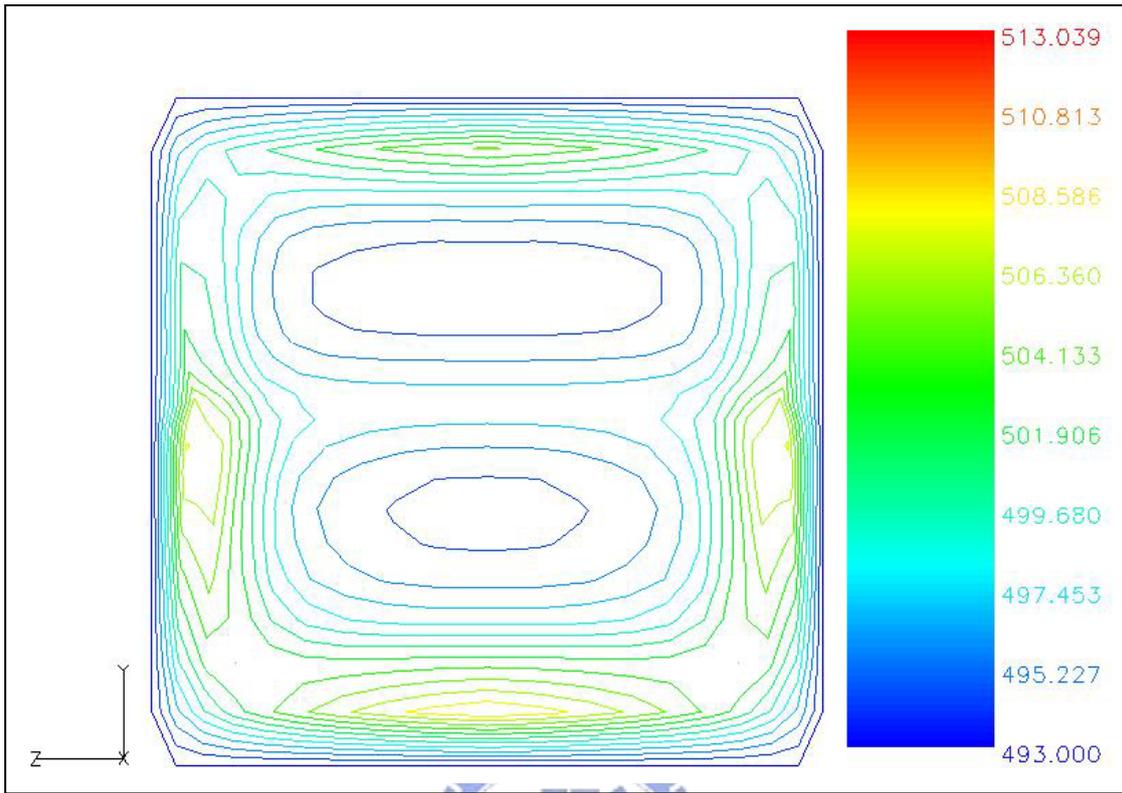


圖 3-20 黏度比 $(\eta_i/\eta_{ii})=2.6$ 之溫度分佈圖( $X=5L$ )

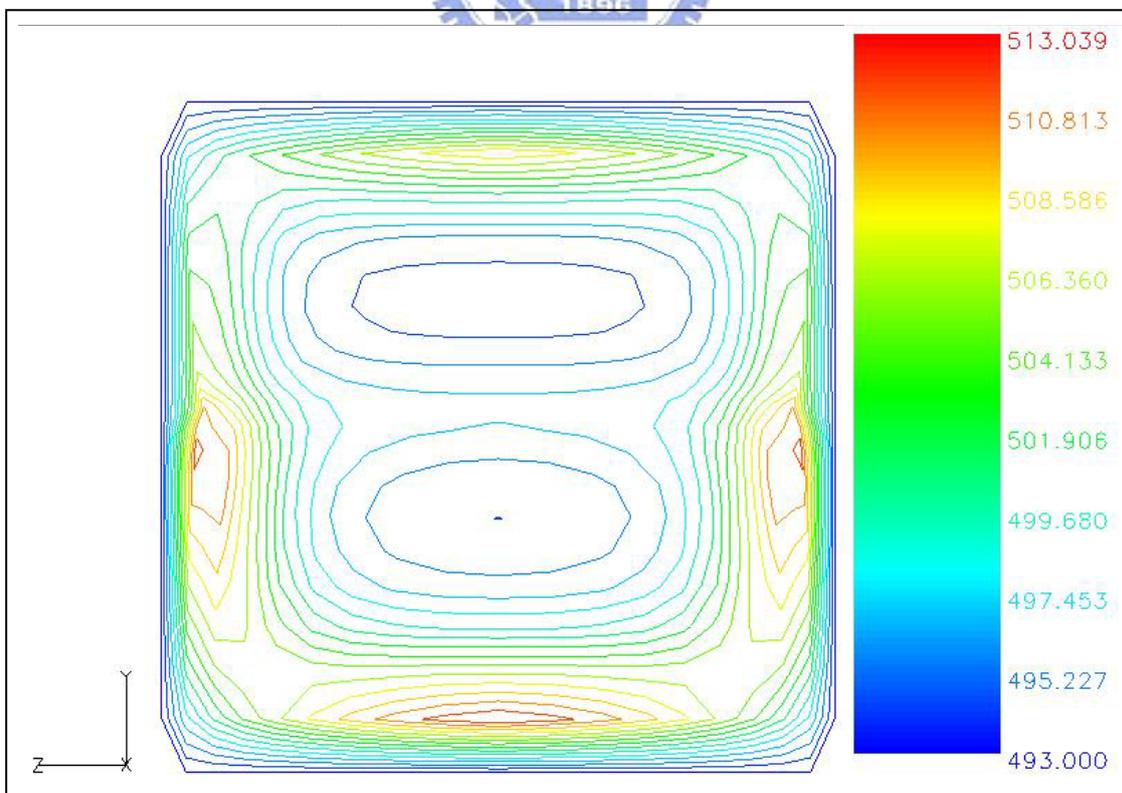


圖 3-21 黏度比 $(\eta_i/\eta_{ii})=2.6$ 之溫度分佈圖( $X=7.9L$ )

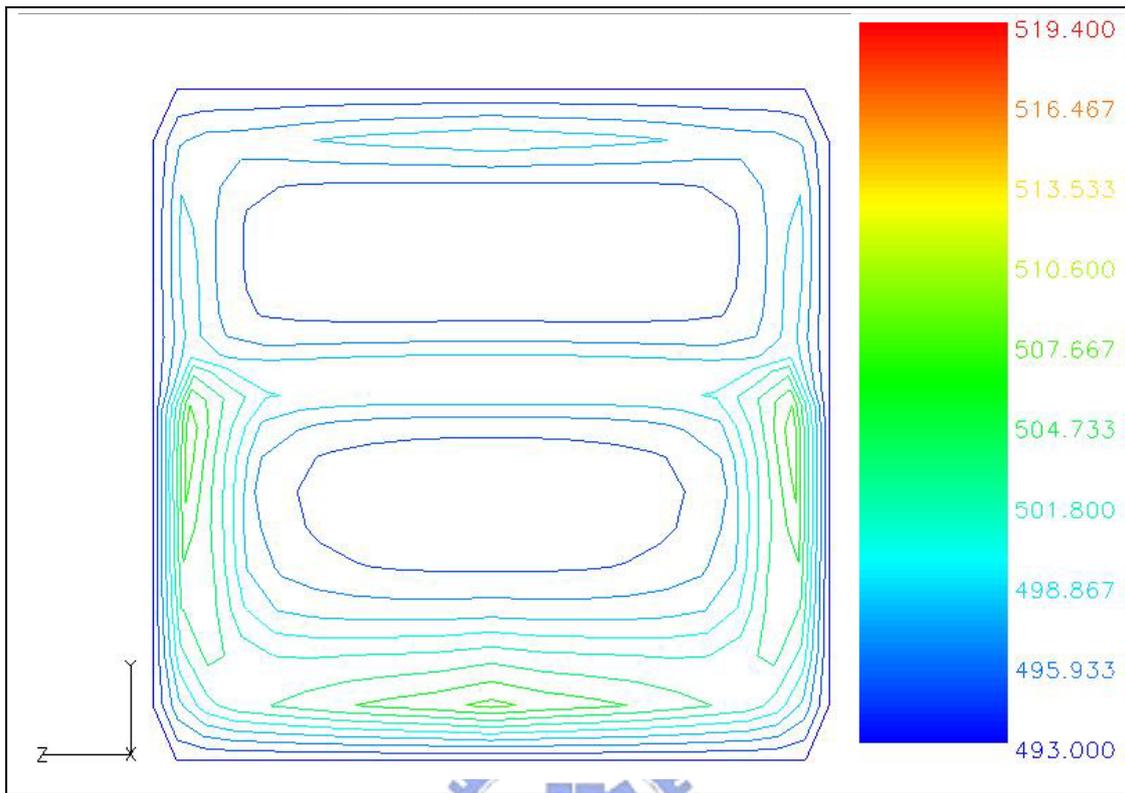


圖 3-22 黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )=4 之溫度分佈圖( $X=1L$ )

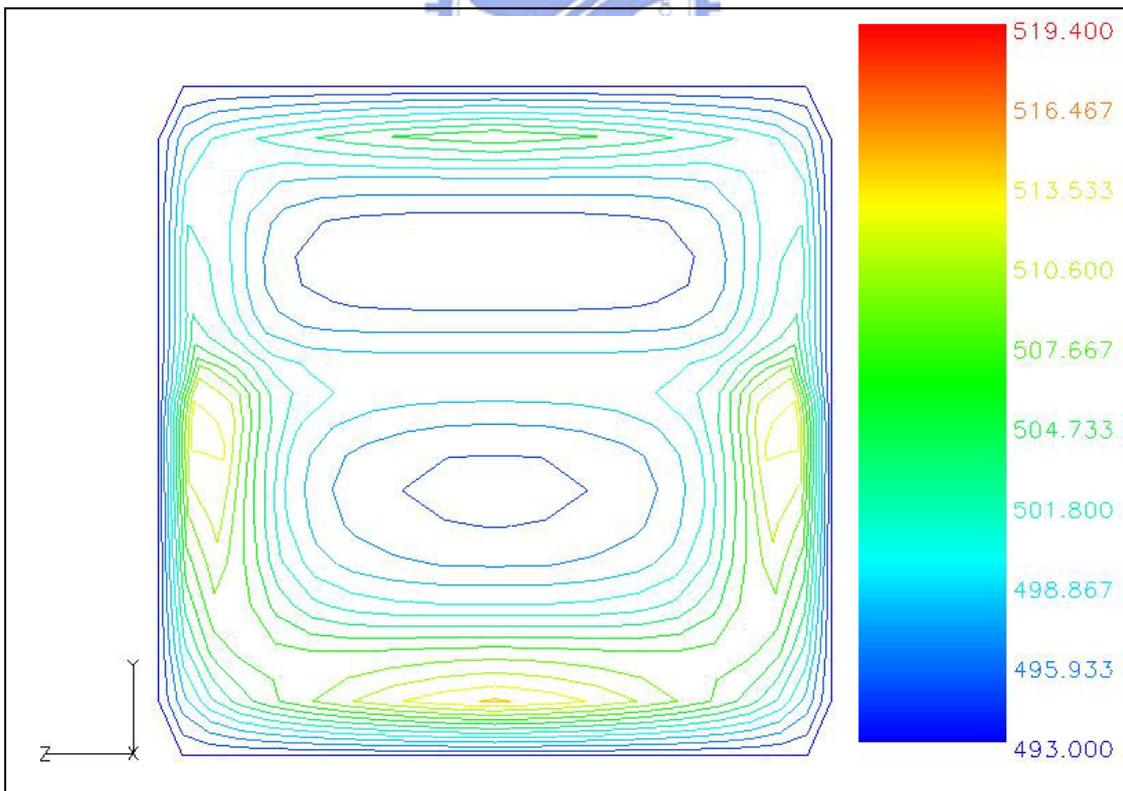


圖 3-23 黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )=4 之溫度分佈圖( $X=5L$ )

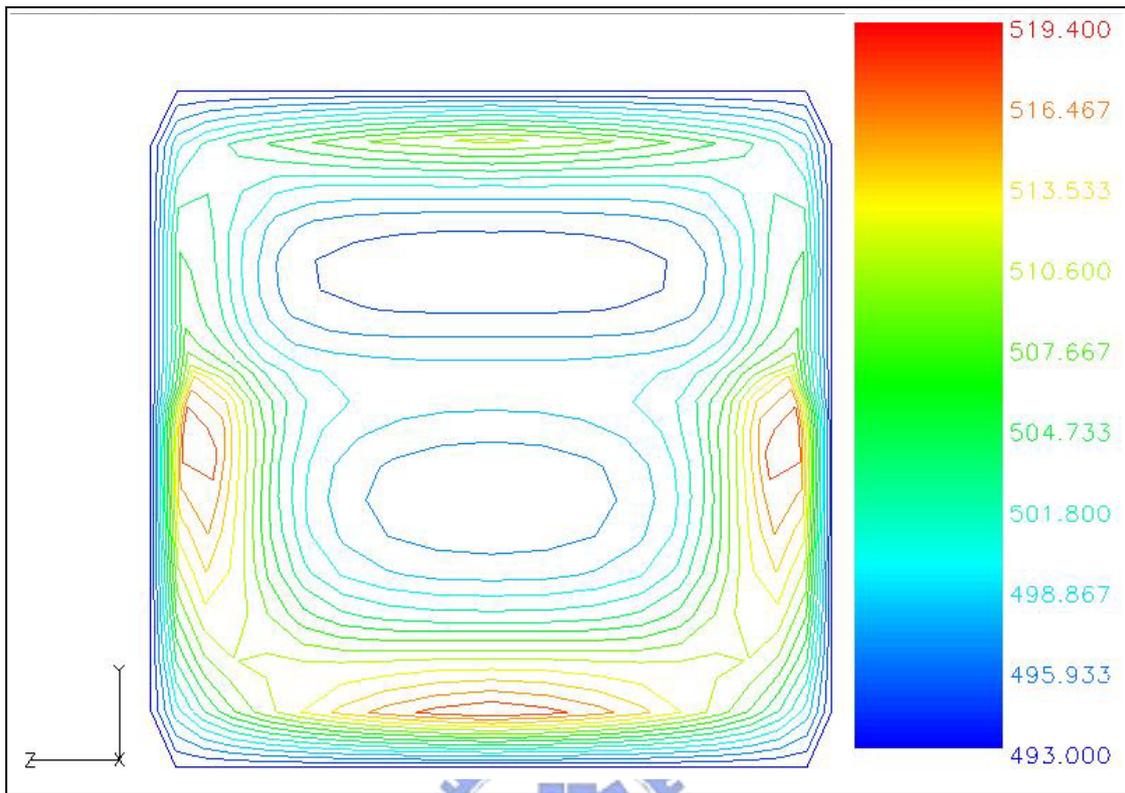


圖 3-24 黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )=4 之溫度分佈圖( $X=7.9L$ )

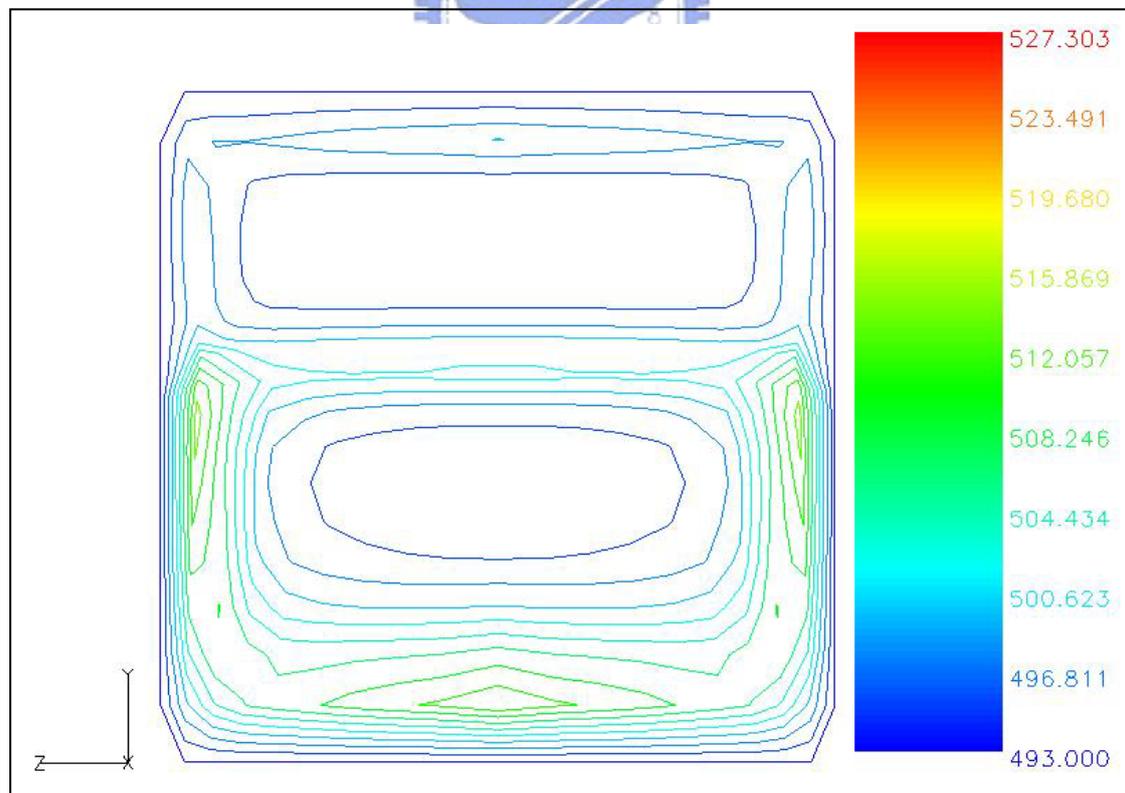


圖 3-25 黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )=6 之溫度分佈圖( $X=1L$ )

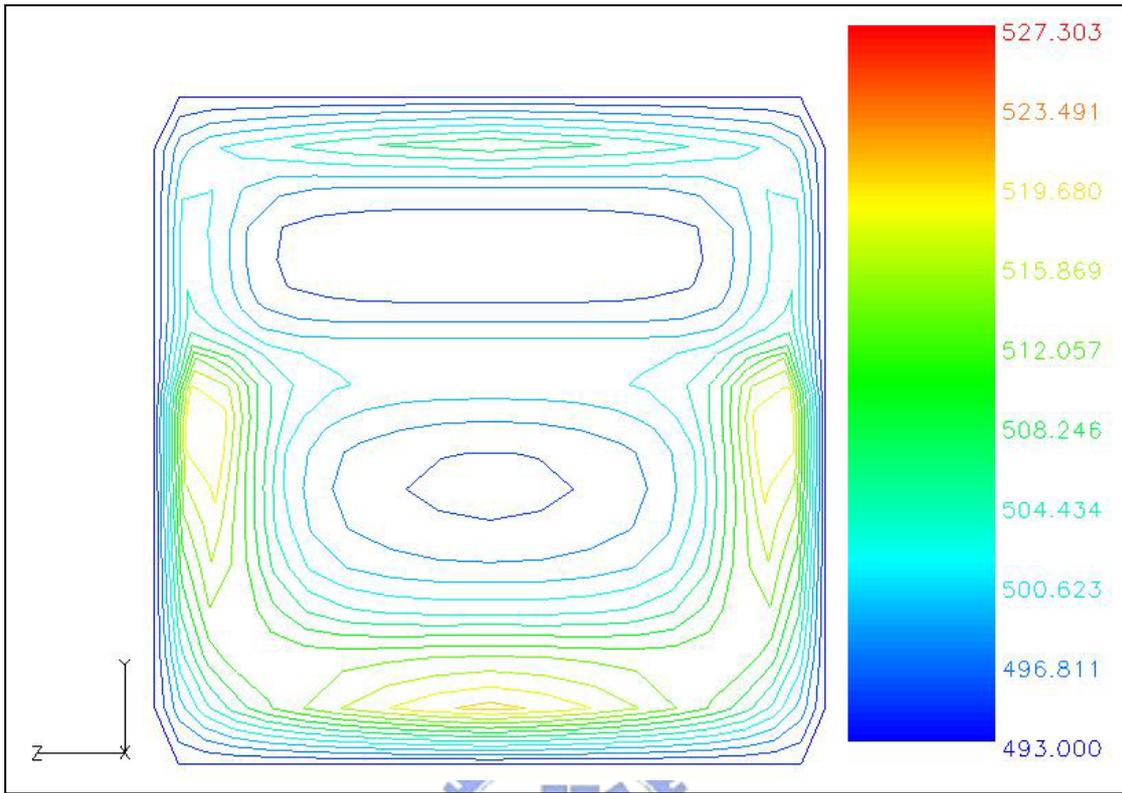


圖 3-26 黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )=6 之溫度分佈圖( $X=5L$ )

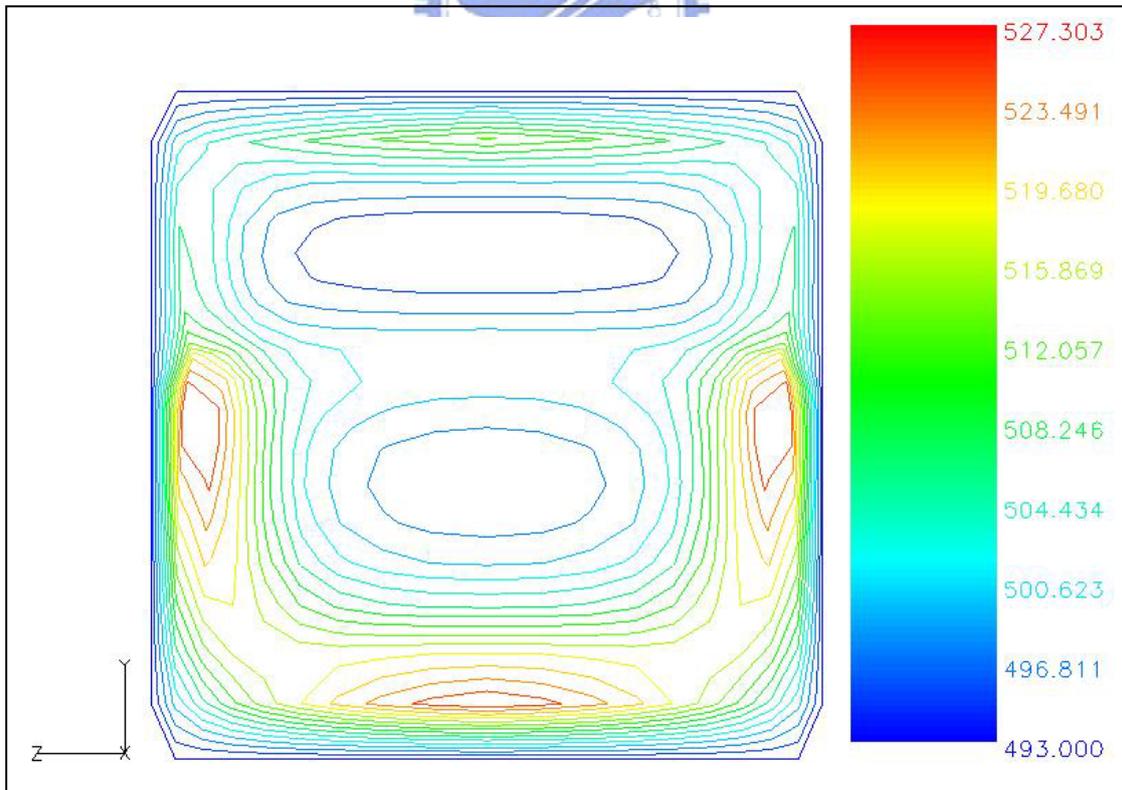


圖 3-27 黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )=6 之溫度分佈圖( $X=7.9L$ )

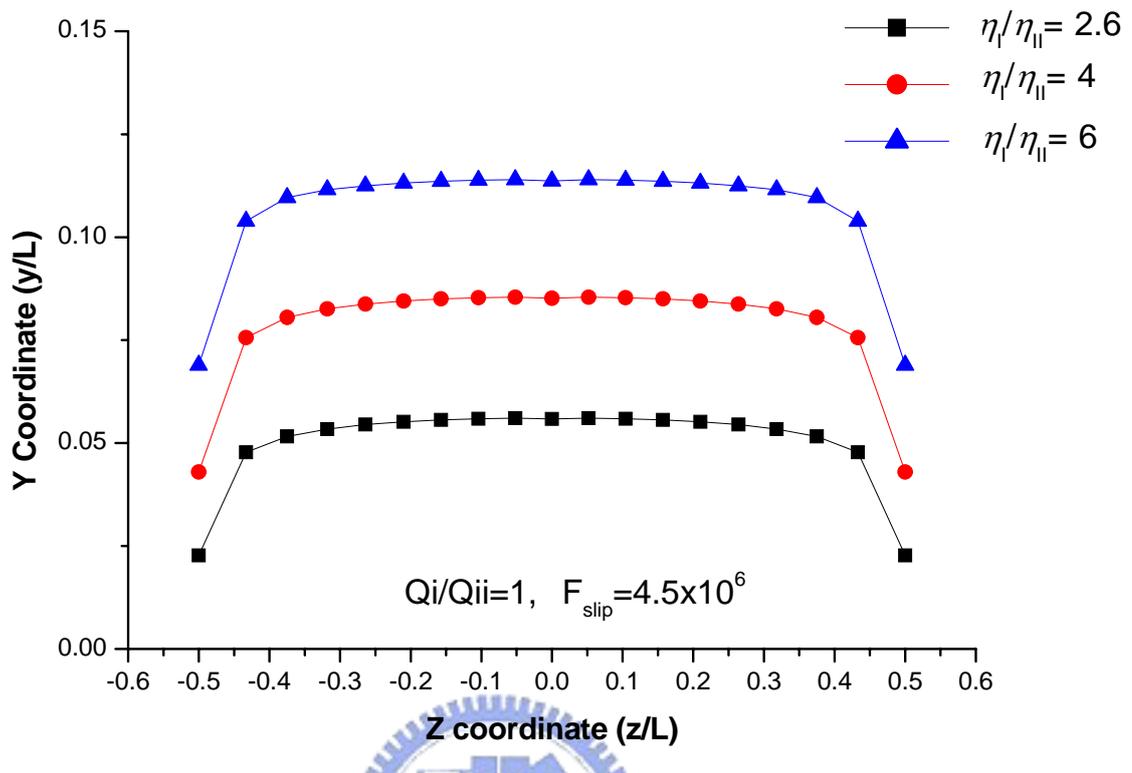


圖 3-28 非恆溫-不同黏度比之界面出口位置

### 3.3.2 流量比對流體界面包覆度之影響

經由上述恆溫系統流量比對界面包覆度之影響，其模擬結果可知當流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )較大時，因剪切率之影響使得黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )減少，導致界面包覆度變小，然而在非恆溫系統下，除了剪切率之影響外，還需考慮黏滯熱(viscous heating)之影響，其模擬結果如圖 3-29 所示。由圖可以看出隨著流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )增加，其界面包覆度減少，此結果與恆溫系統下相同，但因恆溫系統忽略黏滯熱(viscous heating)之影響，所以在恆溫系統界面包覆度不會隨著流道增加而改變，但在非恆溫系統，黏滯熱(viscous heating)隨著流道增加而變大，因此溫度隨著流道增加

而上升，界面包覆度隨之減少。表 3-6 為恆溫與非恆溫系統不同流量比之出口界面包覆度比較，由表可知在恆溫系統下之包覆度比在非恆溫系統下大，因黏滯熱(viscous heating)的產生使得流體溫度上升，黏度下降，而下層流體(Flow I)因黏度較大，此效應之影響比上層流體(Flow II)大，因此導致黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )變小，界面包覆度減少。圖 3-30 至 3-38 為不同流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )之溫度分佈圖。由圖可以看出當流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )較大時(上層流體(Flow II)流量變小)，由於上層流體(Flow II)流量變小，因此因摩擦而產生之黏滯熱(viscous heating)變小，相對於流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )較低時(上層流體(Flow II)流量變大)，溫度上升較不明顯，導致下層流體(Flow I)受到上層流體(Flow II)之影響，溫度上升也較不明顯，固因溫度上升導致黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )減少之效應相對變小，所以在( $Q_i/Q_{ii}$ )較大時(上層流體(Flow II)流量變小)，隨著流道增加包覆度變化量相對變小。圖 3-39 為不同流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )之界面出口位置圖。

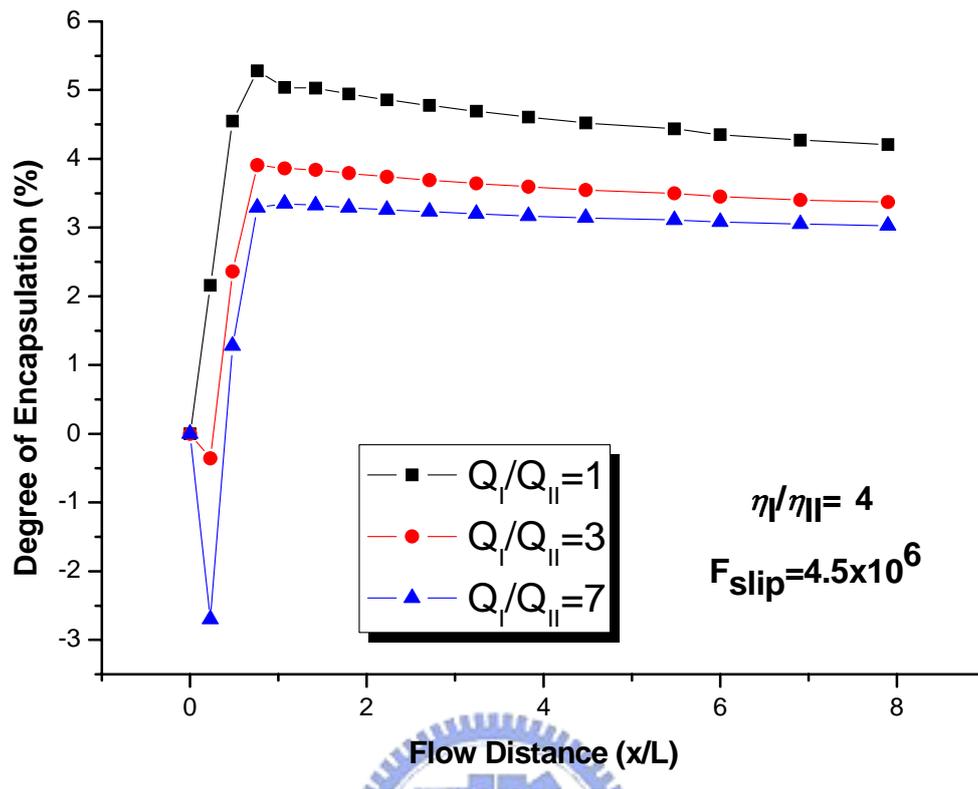


圖 3-29 非恆溫-不同流量比流體界面包覆度比較圖

表 3-6 恆溫與非恆溫系統不同流量比之出口界面包覆度比較

$(\eta_I/\eta_{II})=4$ $F_{slip}=4.5 \times 10^6$	流量比 ( $Q_i/Q_{ii}$ ) (下層/上層)		
	1	3	7
恆溫系統 Outlet Encapsulation(%)	5.27	4.51	4.12
非恆溫系統 Outlet Encapsulation(%)	4.47	4.21	3.31

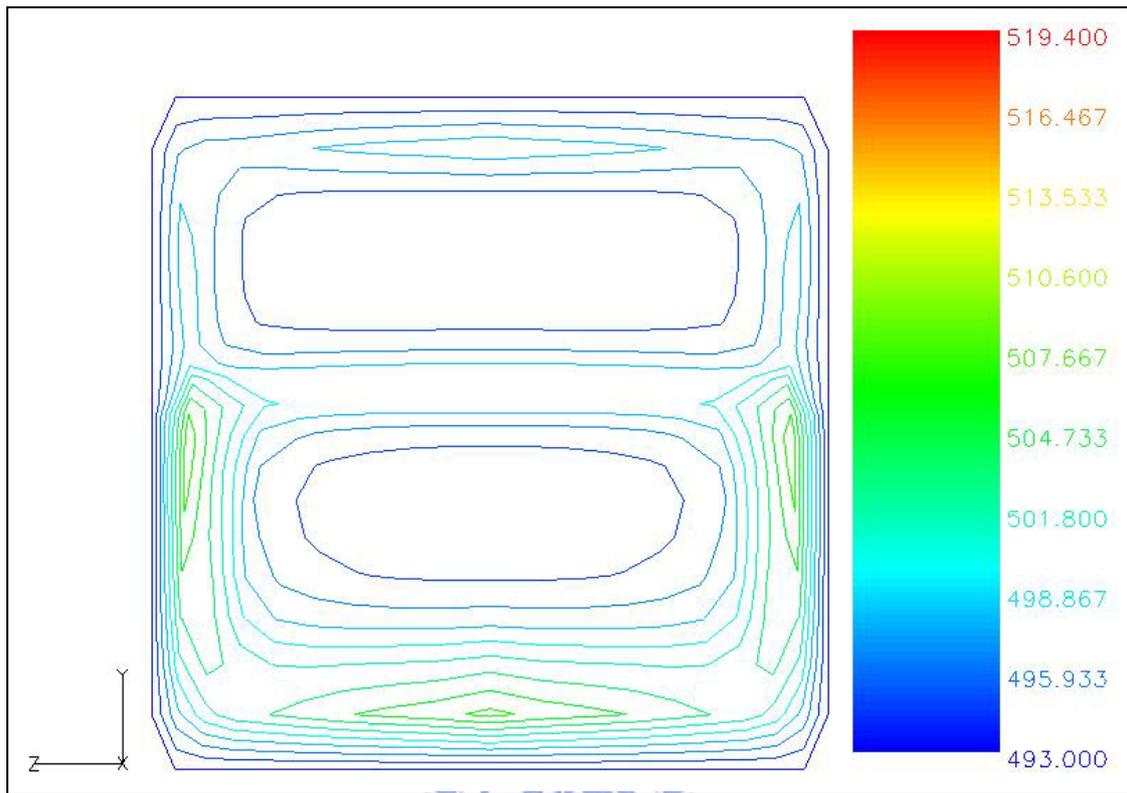


圖 3-30 流量比 $(Q_i/Q_{ii})=1$  之溫度分佈圖( $X=1L$ )

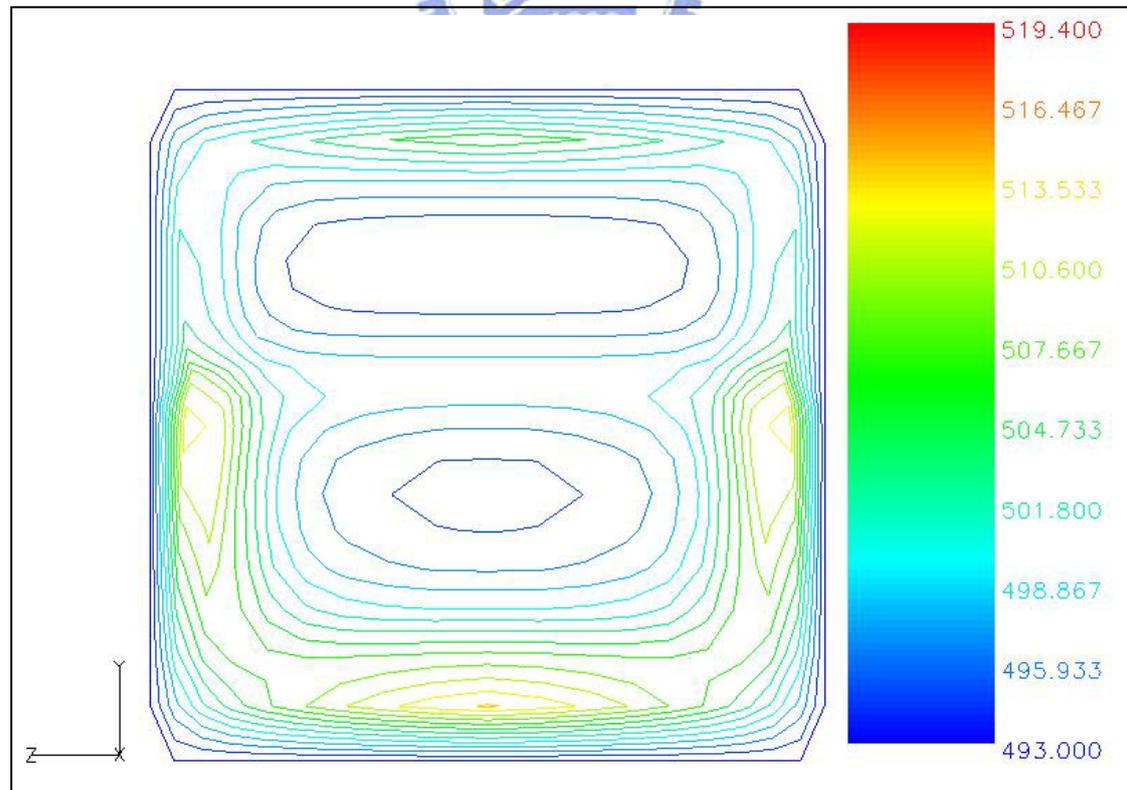


圖 3-31 流量比 $(Q_i/Q_{ii})=1$  之溫度分佈圖( $X=5L$ )

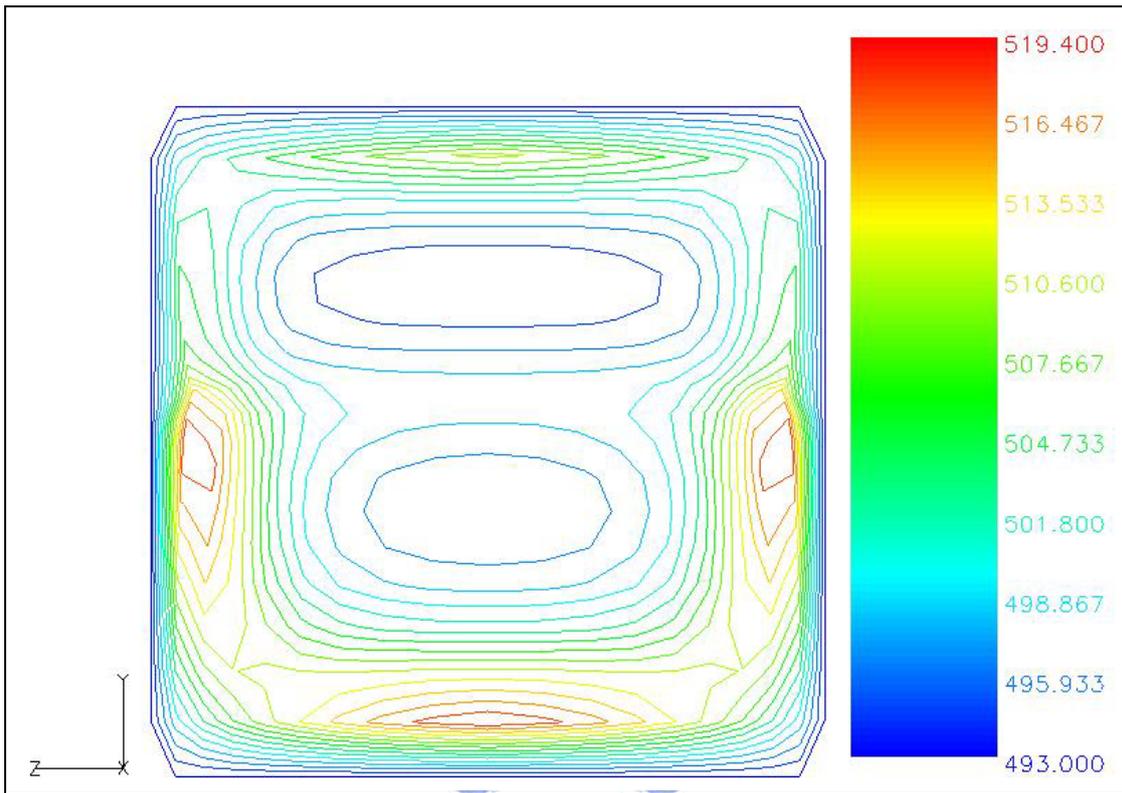


圖 3-32 流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )=1 之溫度分佈圖( $X=7.9L$ )

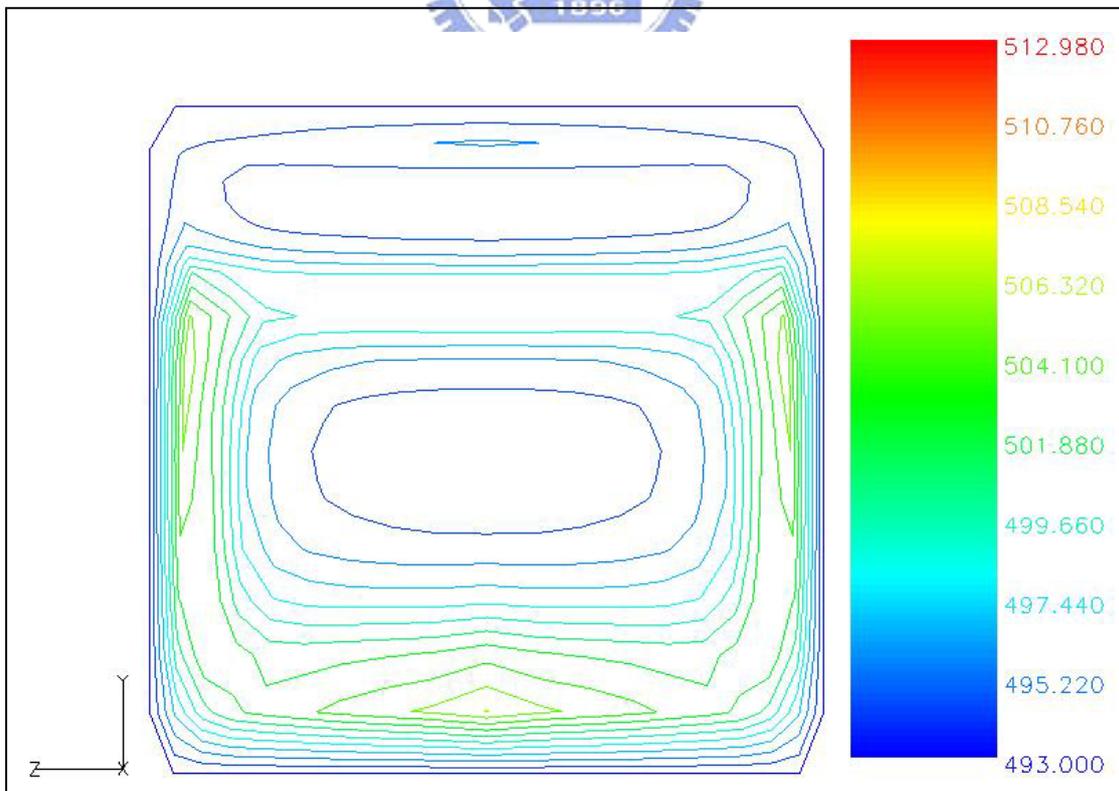


圖 3-33 流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )=3 之溫度分佈圖( $X=1L$ )

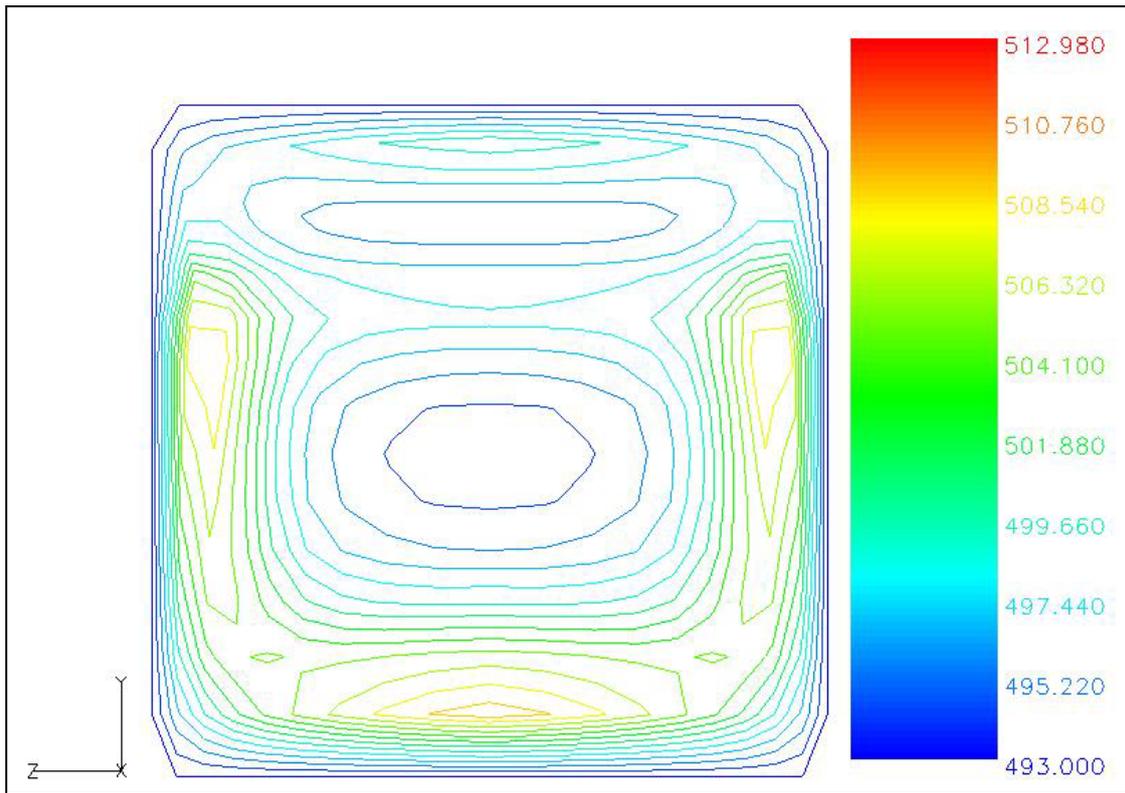


圖 3-34 流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )=3 之溫度分佈圖( $X=5L$ )

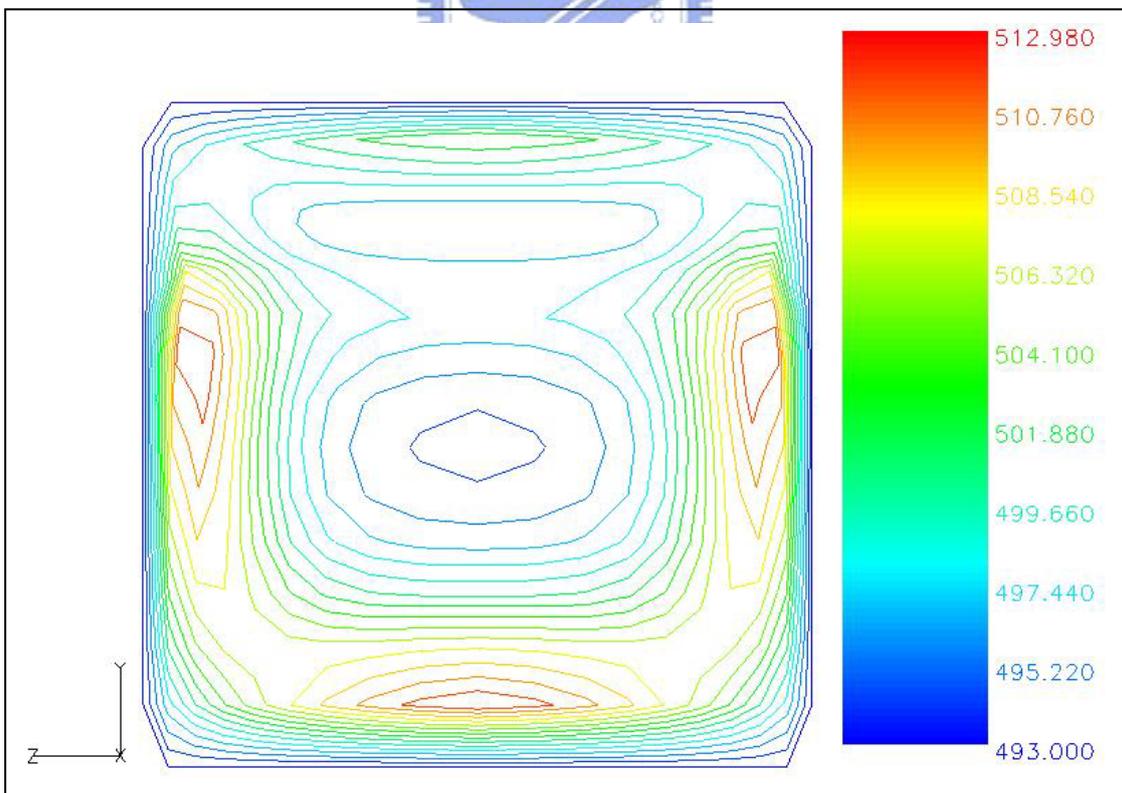


圖 3-35 流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )=3 之溫度分佈圖( $X=7.9L$ )

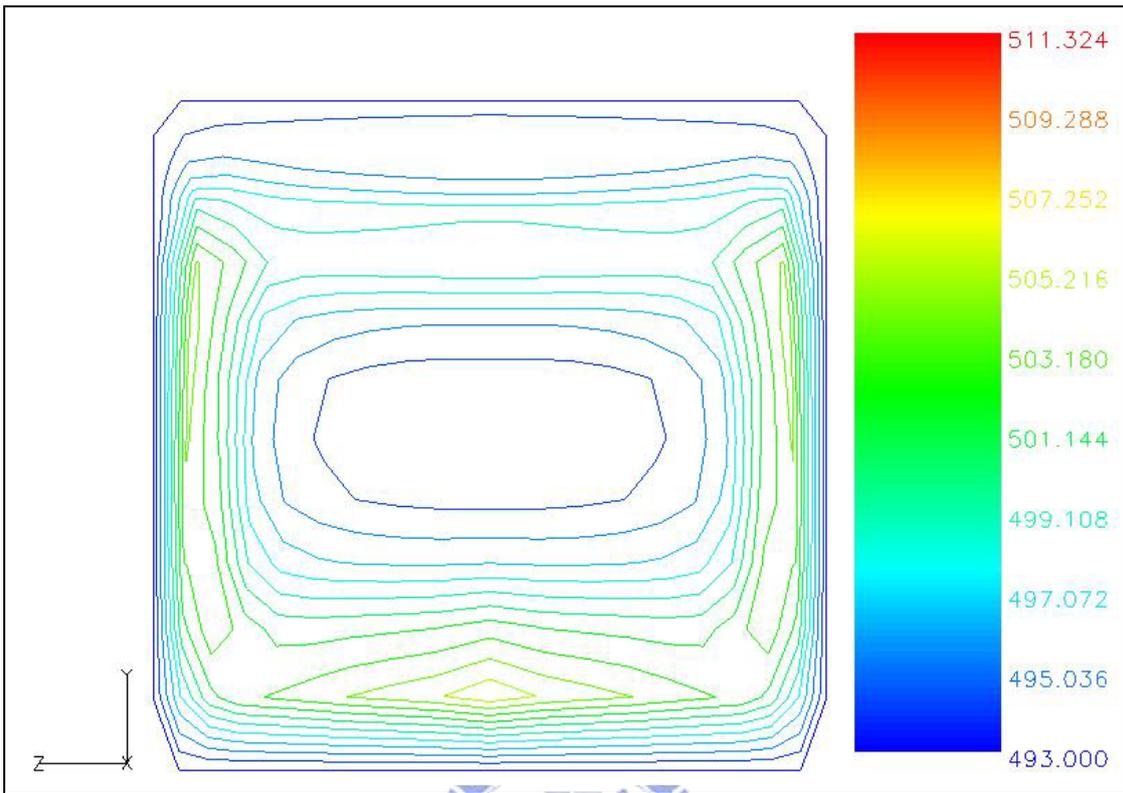


圖 3-36 流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )=7 之溫度分佈圖( $X=1L$ )

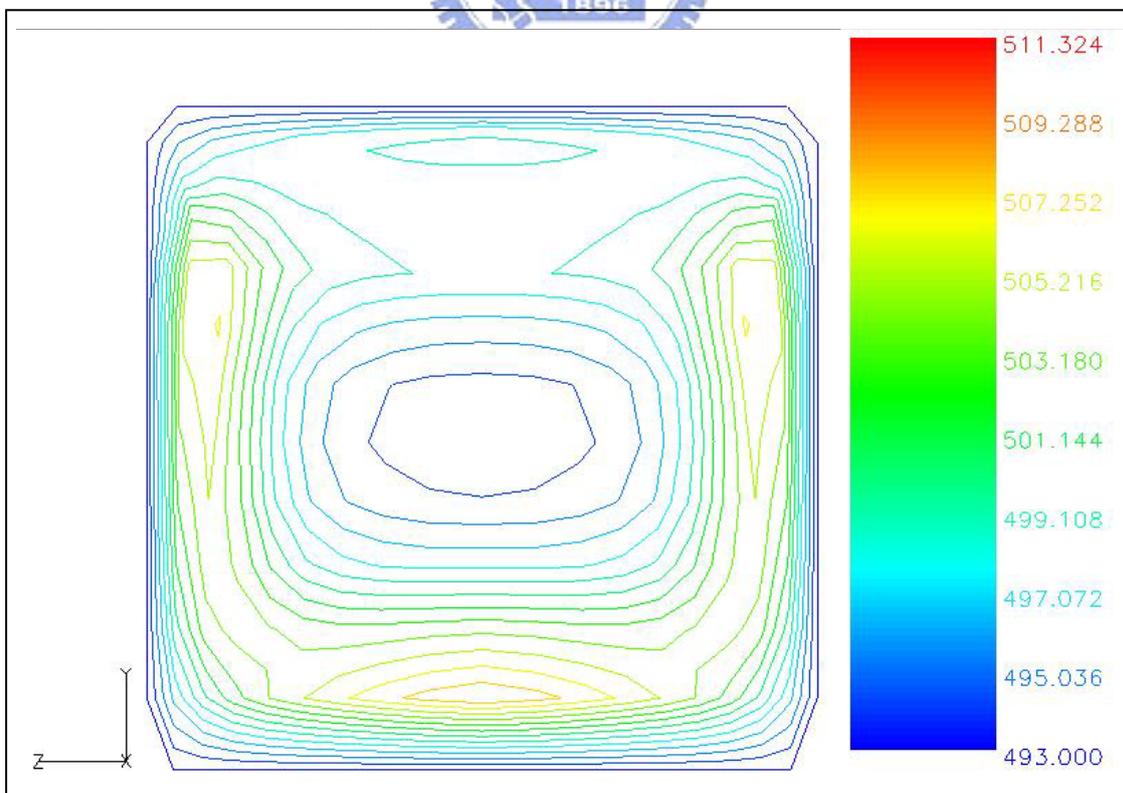


圖 3-37 流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )=7 之溫度分佈圖( $X=5L$ )

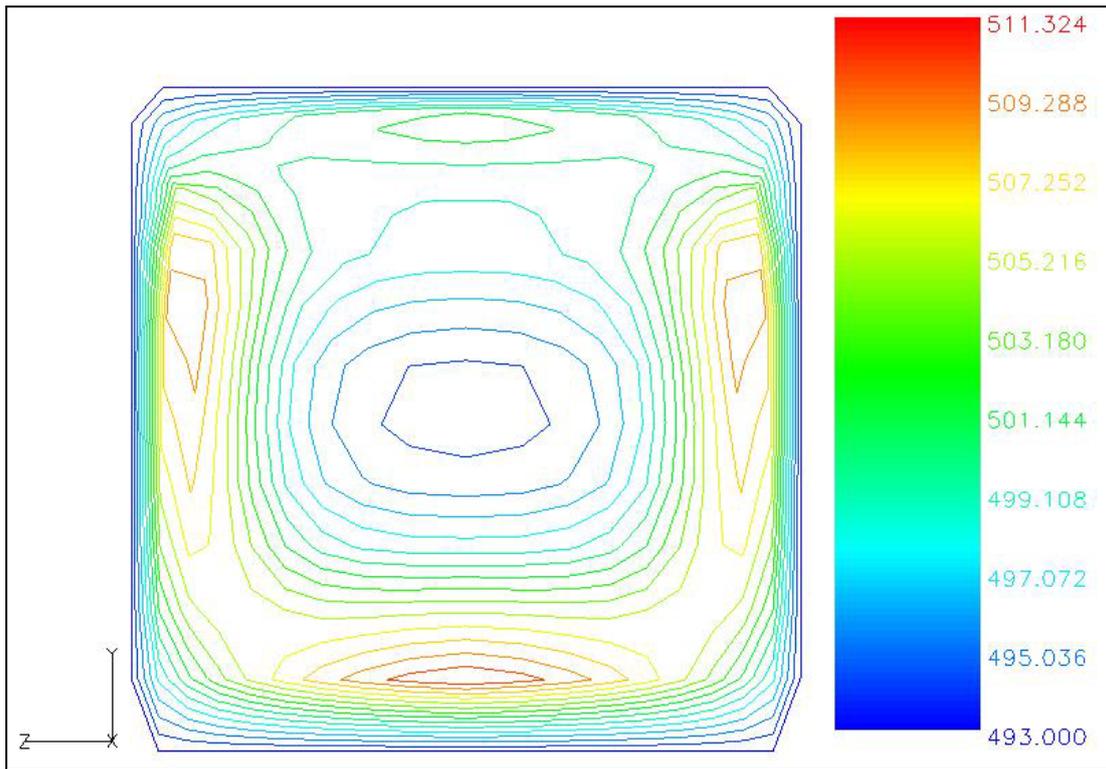


圖 3-38 流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )=7 之溫度分佈圖( $X=7.9L$ )

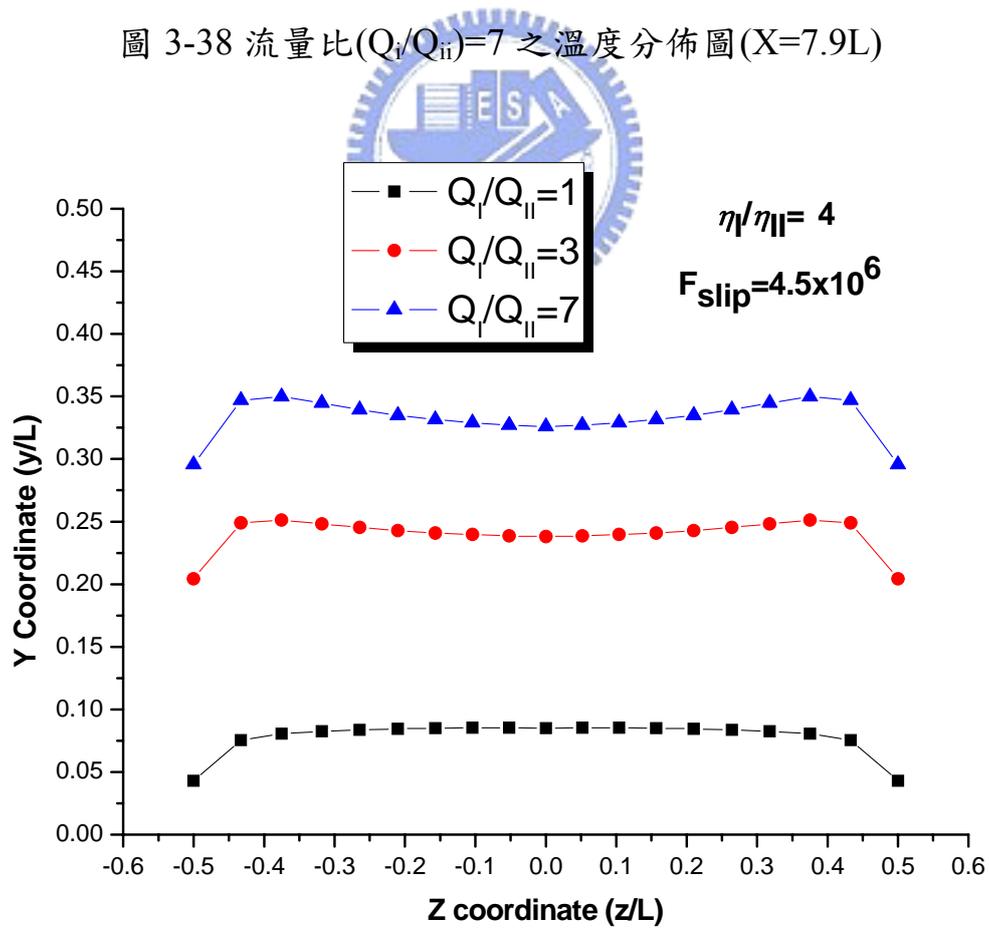


圖 3-39 非恆溫-不同流量比之界面出口位置

### 3.3.3 改變上層流體(Flow II)入口溫度與上層壁面溫度對界面包覆度之影響

經由上述模擬結果可知溫度對界面包覆度有很大的影響，此節將再進一步探討當流體入口溫度及模壁溫度改變時，對界面包覆度有何影響。將上層流體(Flow II)入口溫度及上層模壁溫度均改為 235°C，而下層流體(Flow I)入口溫度及下層模壁溫度設定為 220°C 進行模擬，再將上層流體(Flow II)入口溫度及上層模壁溫度均改為 250°C，而下層流體(Flow I)入口溫度及下層模壁溫度與先前一樣設定為 220°C 進行模擬，其模擬結果如圖 3-40 所示。經由先前之模擬結果可知因黏滯熱(viscous heating)之產生，造成流體溫度升高，而黏度較大者因產生之黏滯熱(viscous heating)較大，所以溫度升高比黏度較低之流體多，因此造成黏度比減少，進而影響界面之包覆度。當上層流體(Flow II)入口溫度及上層模壁溫度升高時，由於下層流體(Flow I)與下層模壁溫度保持與之前設定一樣為 220°C，因此上層流體(Flow II)因溫度升高而黏度下降之變化量比先前溫度為 220°C 時來的多，導致上下層流體黏度( $\eta_i/\eta_{ii}$ )比增加，而上層流體(Flow II)入口溫度及模壁溫度越高，此效應更為明顯。因此由圖 3-40 模擬結果所示，上層流體(Flow II)入口溫度及模壁溫度越高時，其界面包覆度亦越大。表 3-7 為不同上層流體入口溫度與模壁溫度對出口界面包覆度之比較。

表 3-7 不同上層流體入口溫度與模壁溫度對出口界面包覆度之比較

下層流體(Flow I)入口溫度與壁面溫度(220°C)			
$Q_i/Q_{ii}=1$ $(\eta_i/\eta_{ii})=2.6$ $F_{slip}=4.5 \times 10^6$	上層流體(Flow II)入口溫度與壁面溫度		
	220°C	235°C	250°C
Outlet Encapsulation(%)	3.31	3.53	3.84

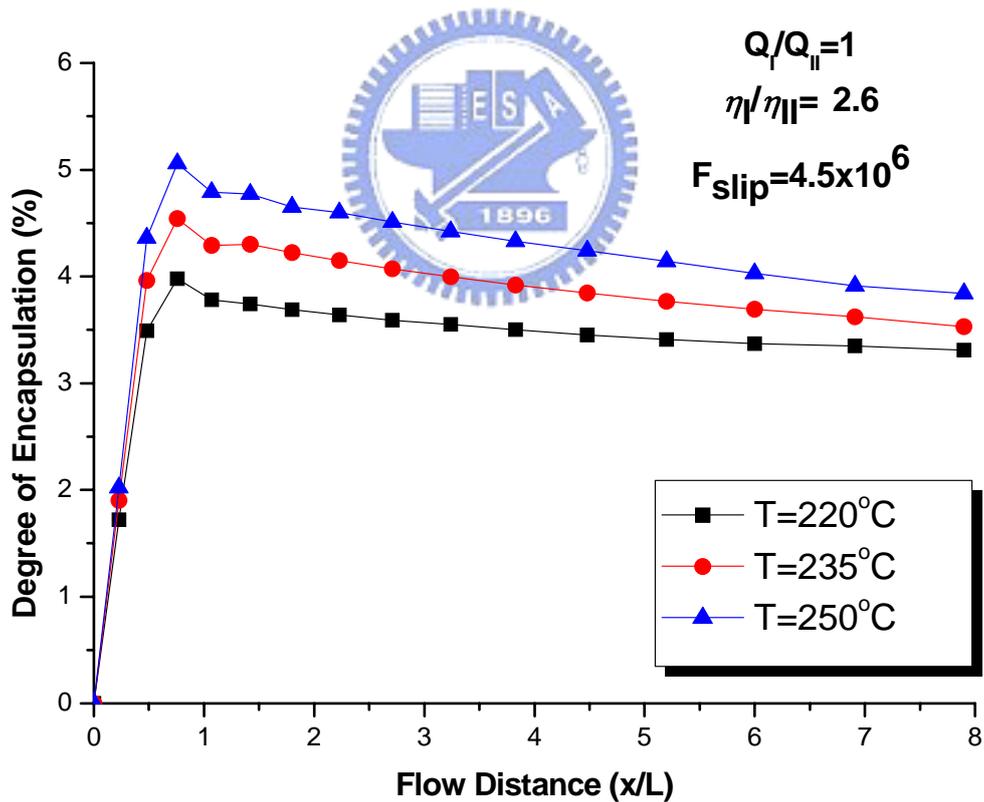


圖 3-40 不同上層流體入口溫度與模壁溫度對界面包覆度之比較圖

圖 3-41 為不同上層流體入口溫度與模壁溫度之界面出口位置圖，由圖可知隨著包覆度之增加，出口界面位置往上偏移。

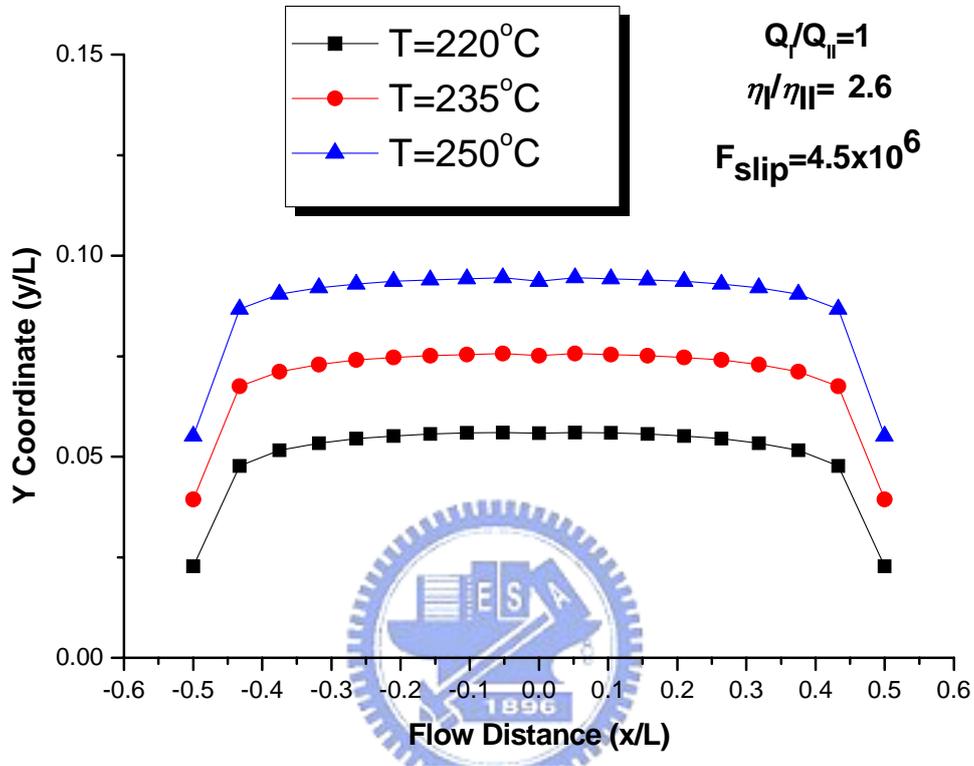


圖 3-41 不同上層流體入口溫度與模壁溫度之界面出口位比較置圖

### 3.3.4 改變下層流體(Flow I)入口溫度與下層壁面溫度對界面包覆度之影響

此節將探討當下層流體(Flow I)入口溫度及下層模壁溫度改變時，對界面包覆度有何影響。經由上述之結果可知，界面包覆度會隨著上下層流體之黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )而變，黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )越大，則界面包覆度越大，反之亦然。因此經由預測可知，當下層流體(Flow I)因溫度升高而黏度下降，且上層流體(Flow II)溫度與上層模壁溫度保持與原

先設定相同，因此會造成黏度比( $\eta_I/\eta_{II}$ )下降，界面包覆度則會減少。上下層溫度設定為下層流體(Flow I)入口溫度及下層模壁溫度均改為 235°C，而上層流體(Flow II)入口溫度及上層模壁溫度設定為 220°C 進行模擬，再將下層流體(Flow I)入口溫度及下層模壁溫度均改為 250°C，而上層流體(Flow II)入口溫度及上層模壁溫度與先前一樣設定為 220°C 進行模擬，其模擬結果與預測之結果相同，當下層流體(Flow I)入口溫度及下層模壁溫度升高時，會導致黏度比( $\eta_I/\eta_{II}$ )下降，界面包覆度減少，如圖 3-42 所示。表 3-8 為不同下層流體入口溫度與下層模壁溫度對出口界面包覆度之比較。

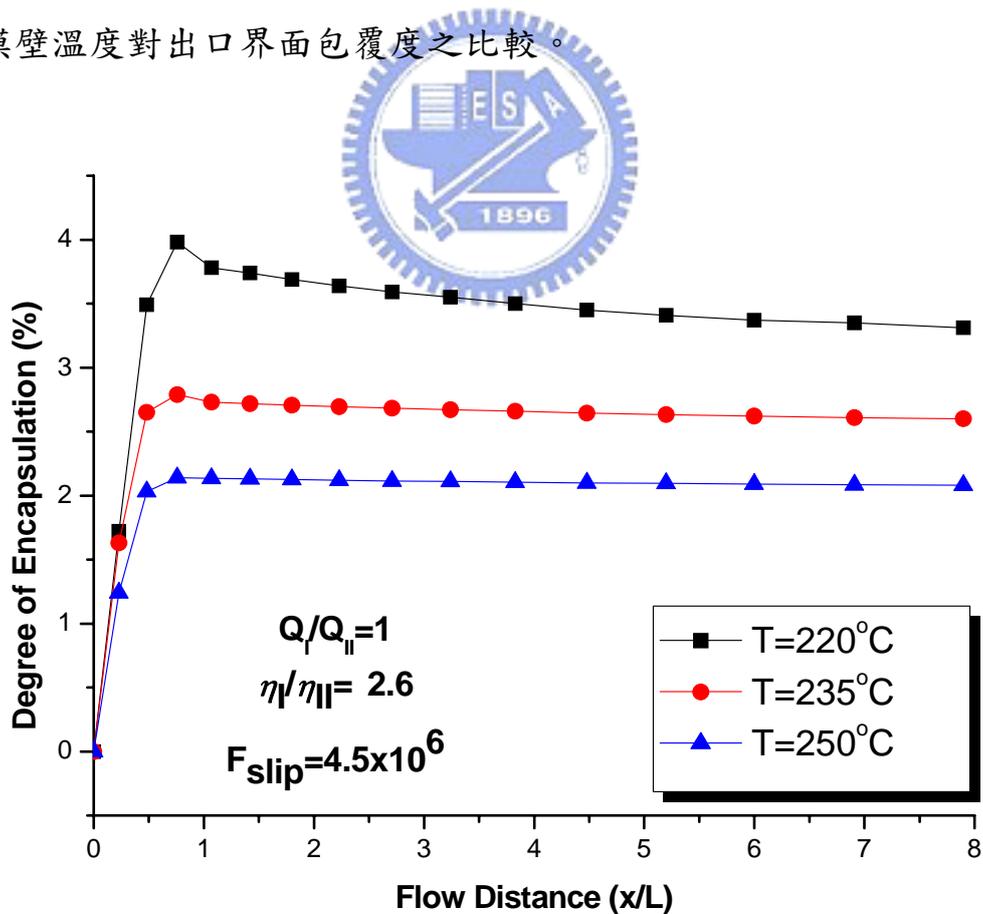


圖 3-42 不同下層流體入口溫度與模壁溫度對界面包覆度之比較圖

表 3-8 不同下層流體入口溫度與模壁溫度對出口界面覆蓋度之比較

上層流體(FlowII)入口溫度與壁面溫度(220°C)			
$Q_i/Q_{ii}=1$ $(\eta_i/\eta_{ii})=2.6$ $F_{slip}=4.5 \times 10^6$	下層流體(Flow II)入口溫度與壁面溫度		
	220°C	235°C	250°C
Outlet Encapsulation(%)	3.31	2.6	2.08

圖 3-43 為不同下層流體入口溫度與模壁溫度之界面出口位置圖，由圖可知隨著包覆度之減少，出口界面位置往下偏移。

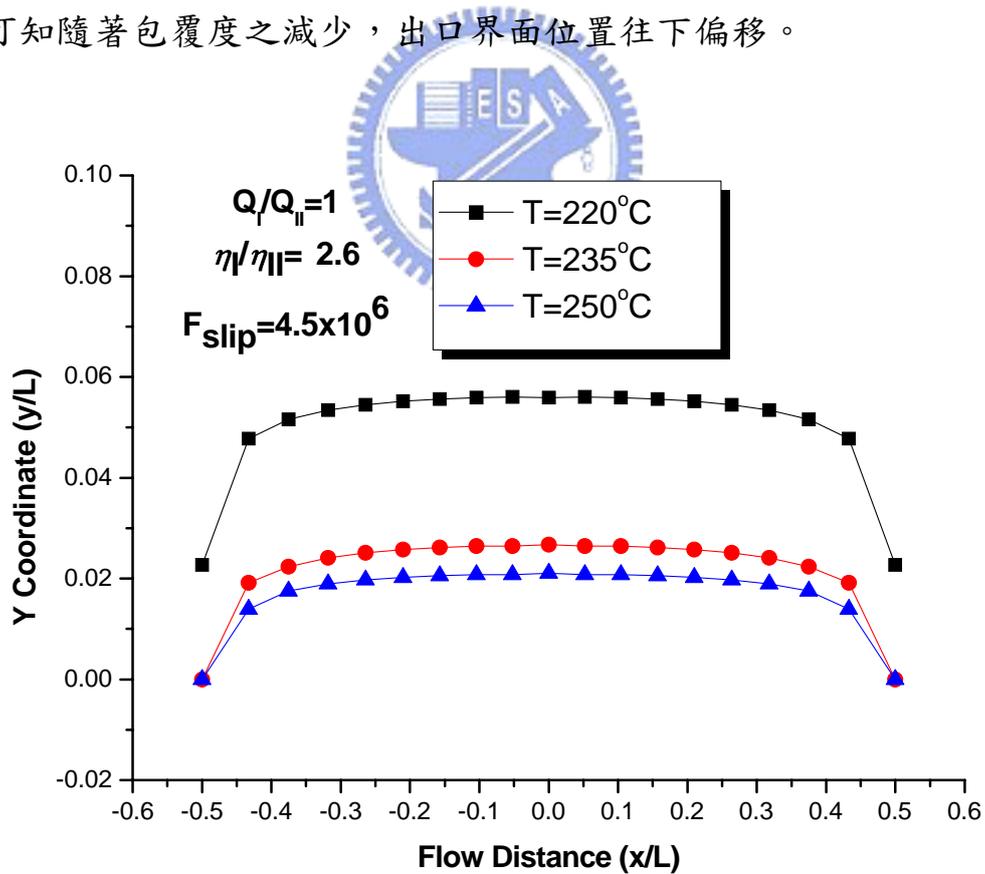


圖 3-43 不同下層流體入口溫度與模壁溫度之界面出口位比較置圖

### 3.3.5 與黏彈模型比較

由過去之文獻可之影響界面包覆度之因素只要有兩種原因，一為雙層高分子塑料其本身因黏度的不同所造成之包覆現象，另一為二次流動的產生(secondary flow)所造成之包覆現象。本論文所採用之模型為 Bird-Carreau model，因此模型非黏彈型模型，所以沒辦法描述高分子二次流動(secondary flow)之行為，而相對於文獻中所使用之模型為 Giesekus 黏彈模型 [55]，此模型能有效描述高分子二次流動(secondary flow)之行為，因此與 Giesekus model 比較後可以了解二次流動(secondary flow)對界面包覆度之影響。圖 3-44 為恆溫下 Bird-Carreau model 與 Giesekus model 之包覆度比較圖。由圖可以看出因二次流動(secondary flow)之產生，對界面包覆度之影響極為重要，由此可見高分子之二次流動(secondary flow)行為是影響界面包覆度主因，此結果也證實了過去文獻所提出二次流動(secondary flow)行為才是影響界面包覆現象主因。表 3-9 為不同模型出口界面包覆度之比較。

表 3-9 不同模型出口界面包覆度之比較

$Q_i/Q_{ii}=3$ $\eta_i/\eta_{ii}=4$ $F_{slip}=4.5 \times 10^6$	Bird-Carreau model	Giesekus model
Outlet Encapsulation(%)	2.96	51.5

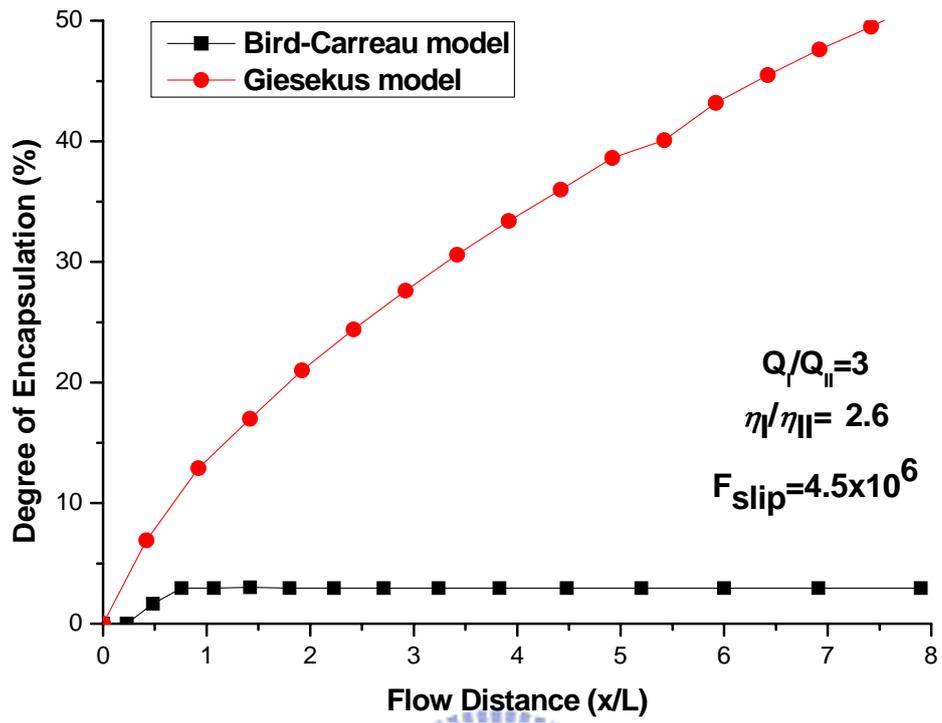


圖 3-44 Bird-Carreau model 與 Giesekus model 之包覆度比較圖



## 四、結論

本論文探討雙層高分子塑料在進料區塊(feedblock)內流動之三維有限元素模擬，相對於過去文獻在壁面邊界設定採用非滑動(No slip)之設定，本論文則採用滑動邊界之設定，因壁面在非滑動(No slip)設定下，壁面與流體界面之接觸線(contact line)無法移動，會忽略壁面影響(wall effect)，不符合實際上之流動行為，而在決定滑動邊界之設定參數上，由於並無有關滑動係數之量測值，所以本論文採用過去楊世豪學長對滑動邊界設定之研究結果，所使用之滑動模型為冪次式滑動模型(power law slip model) [55]，希望能藉此了解高分子流體在進料區塊中之流動機制，並探討共押出製程上所產生之包覆現象(encapsulation phenomena)問題。

在過去之研究中，包覆現象的產生可有下列兩種原因：一為雙層高分子塑料其本身因黏度的不同所造成之包覆現象，已被認為是影響包覆現象之主要因素，黏度低之流體會包覆黏度高之流體，形成一彎曲之流體界面，因此本論文亦將探討有關黏度對包覆現象之影響；另一為二次流動的產生(secondary flow)所造成之包覆現象，二次流動現象可解釋為雙層高分子熔膠在各自流道模壁面之剪切應力極大，造成流體產生極大的拉伸，而後進入截面積較大之矩型流道，雙層高分子熔膠因應力釋放會試圖產生膨脹(swell)，而產生二次流動(secondary

flow)，此時流體會呈逆時鐘旋轉將流體界面中央頂起而界面兩端凹下，形成一流體包覆另一流體之包覆現象，且隨著流道長度增加，模壁面剪切應力上升，流體拉伸程度增加，造成包覆程度也隨之增加。

由於本論文主要在探討在非恆溫下，經由改變上下層流體之黏度比、流量比、上層流體入口溫度與上層模壁溫度及下流體層入口溫度與下層模壁溫度等對界面包覆度之影響，並與黏彈模型模擬結果做比較，探討二次流動(secondary flow)對界面包覆度之影響。故本論文所採用之模型為 Bird-Carreau model，此模型無法描述高分子之黏彈行為，因此無二次流動(secondary flow)之產生，但相對於牛頓型流體模型，Bird-Carreau model 能有效描述高分子因剪切率不同所產生之剪薄效應(Shear Thinning Effect)，因此本論文選擇 Bird-Carreau model 進行模擬研究。

由模擬結果可知，界面包覆度隨著上下層流體之黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )變大而增加，反之亦然。此結果不管在恆溫系統或非恆溫系統均相同，但由於恆溫系統只考慮剪切率效應之影響，因此界面包覆度因黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )變大而增加之結果比非恆溫系統更明顯，此結果乃因非恆溫系統下，除了要考慮剪切率對黏度比之影響外，還要考慮由於黏滯熱的產生造成高分子流體溫度上升，進而對黏度比產生影響。然而黏度較大之流體所產生的黏滯熱相對較大，因此溫度上升較多，故黏度因溫

度升高而減少之影響較大，導致黏度比( $\eta_i/\eta_{ii}$ )變小，界面包覆度相對於恆溫系統因黏度比變大而增加之結果較不顯著。

在改變流量比方面，由模擬結果可知，藉由流量比( $Q_i/Q_{ii}$ )之增加，可以減少界面包覆之情況，此結果在恆溫系統與非恆溫系統均相同，因此可以藉由改變流量比來降低界面之包覆度，但值得注意的是隨著流量比增加，界面出口位置經由下層流體擠壓而往上偏移，此結果導致流體界面靠近具有較高剪切應力之壁面，造成界面不穩定，此乃形成界面之鋸齒形不穩定現象主因。

在改變上層流體與上層模壁溫度方面，當上層流體入口溫度及上層模壁溫度升高時，由於下層流體與下層模壁溫度保持與之前設定一樣，因此上層流體因溫度升高而黏度下降之變化量比先前溫度為220°C時來的多，導致上下層流體黏度( $\eta_i/\eta_{ii}$ )比上升，界面包覆度增加，而上層流體入口溫度及上層模壁溫度越高，此效應更為明顯。反之，在改變下層流體與下層模壁溫度方面，其結果剛好相反。因此，除了改變流量比外，藉由流體入口溫度及模壁溫度的改變，亦可以影響界面包覆度之大小。

此外，本論文亦與楊世豪學長之研究結果做比較，在過去文獻上，曾指出高分子之二次流動行為才是導致界面包覆現象之主因，經由比較之結果，可以看出因黏度差異與二次流動行為所引起的包覆現

象其結果明顯不同，因此證實了高分子之二次流動行為才是造成界面  
包覆現象之主因。



## 參考文獻

1. 《科學發展》2005年5月，389期，58~63頁
2. Chisholm, D.S. and Schrenk, W.J., Method of Extruding Laminates, U.S. Patent, 1971.
3. Schrenk, W.J., Multilayer Film From a Single Die, *Plastics Engineering*, 30, 65-68, 1974.
4. Schrenk, W.J., Bradley, N.L., Alfrey, T.J., and Maack, H., Interfacial Flow Instability in Multilayer Coextrusion, *Polymer Engineering & Science*, 18, 620-623, 1978.
5. Dooley, J., Hyun, K.S., and Hughes, K., An Experimental Study on the Effect of Polymer Viscoelasticity on Layer Rearrangement in Coextruded Structures, *Polymer Engineering and Science*, 38, 1060-1071, 1998.
6. Su, Y.Y. and Khomami, B., Interfacial Stability of Multilayer Viscoelastic Fluids in Slit and Converging Channel Die Geometries, *Journal of Rheology*, 36, 357-387, 1992.
7. Dooley, J., Hyun, K.S., and Hughes, K., An Experimental Study on the Effect of Polymer Viscoelasticity on Layer Rearrangement in Coextruded Structures, *Polymer Engineering and Science*, 38, 1060-1071, 1998.
8. Dooley, J. and Hilton, B.T., Layer Rearrangement in Coextrusion, *Plastics Engineering*, 50, 25-27, 1994.
9. Dooley, J. and Dietsche, L., Numerical Simulation of Viscoelastic Polymer Flow - Effects of Secondary Flows on Multilayer Coextrusion, *Plastics Engineering*, 52, 37-&, 1996.
10. Debbaut, B. and Dooley, J., Secondary Motions in Straight and Tapered Channels: Experiments and Three-Dimensional Finite Element Simulation with a Multimode Differential Viscoelastic Model, *Journal of Rheology*, 43, 1525-1545, 1999.
11. Everage, A.E., Jr., Theory of Stratified Bicomponent Flow of

Polymer Melts. II. Interface Motion in Transient Flow, Transactions of the Society of Rheology, 19, 509-522, 1975.

12. Debbaut, B. and Dooley, J., Secondary Motions in Straight and Tapered Channels: Experiments and Three-Dimensional Finite Element Simulation with a Multimode Differential Viscoelastic Model, Journal of Rheology, 43, 1525-1545, 1999.
13. Everage, A.E., Jr., Theory of Stratified Bicomponent Flow of Polymer Melts. II. Interface Motion in Transient Flow, Transactions of the Society of Rheology, 19, 509-522, 1975.
14. Han, C.D., Multiphase Flow in Polymer Processing, Academic Press, 1981.
15. Southern, J.H. and Ballman, R.L.i., Stratified Bicomponent Flow of Polymer Melts in a Tube, Applied Polymer Science, 20, 175-189, 1973.
16. Schrenk, W.J. and Alfrey, T., Coextruded Multilayer Polymer Films and Sheets, Polymer Blends, Academic Press, New York, 1978.
17. Han, C.D., Kim, Y.J., and Chin, H.B., Rheological Investigation of Interfacial Instability in Two-Layer Flat-Film Coextrusion, Polymer engineering reviews, 4, 177-200, 1984.
18. Mavridis, H. and Shroff, R.N., Multilayer Extrusion - Experiments and Computer-Simulation, Polymer Engineering and Science, 34, 559-569, 1994.
19. Tzoganakis, C. and Perdikoulis, J., Interfacial Instabilities in Coextrusion Flows of Low-Density Polyethylenes: Experimental Studies, Polymer Engineering and Science, 40, 1056-1064, 2000.
20. Zatloukal, M., Tzoganakis, C., Vlcek, J., and Saha, P., Numerical Simulation of Polymer Coextrusion Flows - A Criterion for Detection of "Wave" Interfacial Instability Onset, International Polymer Processing, 16, 198-207, 2001.
21. Zatloukal, M., Vlcek, J., Tzoganakis, C., and Saha, P., Viscoelastic Stress Calculation in Multi-Layer Coextrusion Dies: Die Design and

Extensional Viscosity Effects on the Onset of 'Wave' Interfacial Instabilities, *Polymer Engineering and Science*, 42, 1520-1533, 2002.

22. Zatloukal, M., Martyn, M.T., Coates, P.D., and Saha, P., Wave Interfacial Instabilities at Coextrusion in Flat Dies: Simulation and Experimental Results, Annual Technical Conference - ANTEC, Conference Proceedings, 1, 295-299, 2003.
23. Martyn, M.T., et al., Experimental Observations and Analysis of LDPE Melt Flow in Coextrusion Geometries, Annual Technical Conference - ANTEC, Conference Proceedings, 1, 300-304, 2003.
24. Martyn, M.T., et al., Experimental Observations of LDPE Melt Flow in Coextrusion Geometries, Annual Technical Conference - ANTEC, Conference Proceedings, 1, 205-209, 2004.
25. Martyn, M.T., Spares, R., Coates, P.D., and Zatloukal, M., Visualisation and Analysis of Interfacial Instability in Coextrusion of LDPE Melt, *Plastics, Rubber and Composites*, 33, 27-35, 2004.
26. Yih, C.S., Instability Due to Viscosity Stratification, *Journal of Fluid Mechanics*, 27, 337, 1967.
27. Hickox, C.E., Instability Due to Viscosity and Density Stratification in Axisymmetric Pipe Flow, *Physics of Fluids*, 14, 251, 1971.
28. Khan, A.A. and Han, C.D., Study on Interfacial Instability in Stratified Flow of Two Viscoelastic Fluids through a Rectangular Duct, *Transactions of the Society of Rheology*, 21, 101-131, 1977.
29. Hooper, A.P. and Boyd, W.G.C., Shear-Flow Instability at the Interface between Two Viscous Fluids, *Journal of Fluid Mechanics*, 128, 507-528, 1983.
30. Han, C.D. and Rao, D.A., Studies on Wire Coating Extrusion. II. The Rheology of Wire Coating Coextrusion, *Polymer Engineering and Science*, 20, 128-139, 1980.
31. Khomami, B., Interfacial Stability and Deformation of Two Stratified Power Law Fluids in Plane Poiseuille Flow. Part I. Stability Analysis, *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 36, 289-303, 1990.

32. Khomami, B., Interfacial Stability and Deformation of Two Stratified Power Law Fluids in Plane Poiseuille Flow. Part II. Interface deformation, *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 37, 19-36, 1990.
33. Waters, N.D., The Stability of Two Stratified "Power-Law" Liquids in Couette Flow, *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 12, 85-94, 1983.
34. Wilson, G.M. and Khomami, B., An Experimental Investigation of Interfacial Instabilities in Multilayer Flow of Viscoelastic Fluids : Part I. Incompatible Polymer Systems, *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 45, 355-384, 1992.
35. Su, Y.Y. and Khomami, B., Purely Elastic Interfacial Instabilities in Superposed Flow of Polymeric Fluids, *Rheologica Acta*, 31, 413-420, 1992.
36. Wilson, G.M. and Khomami, B., An Experimental Investigation of Interfacial Instabilities in Multilayer Flow of Viscoelastic Fluids .2. Elastic and Nonlinear Effects in Incompatible Polymer Systems, *Journal of Rheology*, 37, 315-339, 1993.
37. Wilson, G.M. and Khomami, B., An Experimental Investigation of Interfacial Instabilities in Multilayer Flow of Viscoelastic Fluids .3. Compatible Polymer Systems, *Journal of Rheology*, 37, 341-354, 1993.
38. Khomami, B. and Ranjbaran, M.M., Experimental Studies of Interfacial Instabilities in Multilayer Pressure-Driven Flow of Polymeric Melts, *Rheologica Acta*, 36, 345-366, 1997.
39. Ganpule, H.K. and Khomami, B., An Investigation of Interfacial Instabilities in the Superposed Channel Flow of Viscoelastic Fluids, *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 81, 27-69, 1999.
40. Khomami, B., Renardy, Y., Su, K.C., and Clarke, M.A., An Experimental/Theoretical Investigation of Interfacial Instabilities in Superposed Pressure-Driven Channel Flow of Newtonian and Well

Characterized Viscoelastic Fluids Part II: Nonlinear Stability, *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 91, 85-104, 2000.

41. Khomami, B. and Su, K.C., An Experimental/Theoretical Investigation of Interfacial Instabilities in Superposed Pressure-Driven Channel Flow of Newtonian and Well Characterized Viscoelastic Fluids Part I: Linear Stability and Encapsulation Effects, *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 91, 59-84, 2000.
42. White, J.L., Ufford, R.C., Dharod, K.R., and Price, R.L., Experimental and Theoretical Study of the Extrusion of Two-Phase Molten Polymer Systems, *Journal of Applied Polymer Science*, 16, 1313-1330, 1972.
43. Lee, B.-L. and White, J.L., An Experimental Study of Rheological Properties of Polymer Melts in Laminar Shear Flow and of Interface Deformation and Its Mechanisms in Two-Phase Stratified Flow, *Transactions of the Society of Rheology*, 18, 467-492, 1974.
44. Southern, J.H. and Ballman, R.L., Additional Observations on Stratified Bicomponent Flow of Polymer Melts in a Tube, *Journal of Polymer Science: Polymer Physics Edition*, 13, 863-869, 1975.
45. Khan, A.A. and Han, C.D., On the Interface Deformation in the Stratified Two-Phase Flow of Viscoelastic Fluids, *Transactions of the Society of Rheology*, 20, 595-621, 1976.
46. Gifford, W.A., A Three-Dimensional Analysis of Coextrusion, *Polymer Engineering and Science*, 37, 315-320, 1997.
47. Dooley, J. and Rudolph, L., Viscous and Elastic Effects in Polymer Coextrusion, *Journal of Plastic Film & Sheeting*, 19, 111-122, 2003.
48. Debbaut, B., Avalosse, T., Dooley, J., and Hughes, K., On the Development of Secondary Motions in Straight Channels Induced by the Second Normal Stress Difference: Experiments and Simulations, *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 69, 255-271, 1997.
49. Uwaji, T. and Legat, V., Numerical Analysis on Wrap Around Phenomena of Stratified Two Phase Flow, *JSP'97 Symp Papers*, 1997.

- Mitsoulis, E., Extrudate Swell in Double-Layer Flows, *Journal of Rheology*, 30, S23-S44, 1986.
50. Mavridis, H., Hrymak, A.N., and Vlachopoulos, J., Finite-Element Simulation of Stratified Multiphase Flows, *AIChE Journal*, 33, 410-422, 1987.
51. Binding, D.M., Walters, K., Dheur, J., and Crochet, M.J., Interfacial Effects in the Flow of Viscous and Elastoviscous Liquids, *Philosophical Transactions of the Royal Society of London Series a-Mathematical Physical and Engineering Sciences*, 323, 449-&, 1987.
52. Dheur, J. and Crochet, M.J., Newtonian Stratified Flow through an Abrupt Expansion, *Rheologica Acta*, 26, 401-413, 1987.
53. Karagiannis, A., Hrymak, A.N., and Vlachopoulos, J., Three-Dimensional Studies on Bicomponent Extrusion, *Rheologica Acta*, 29, 71-87, 1990.
54. Zhang, M., Jia, Y., Sun, S., and Zhao, G., Three-dimensional nonisothermal simulation of multi-layer extrusion processes of polymer melts, *Polymer - Plastics Technology and Engineering*, **45**, 1257-1262, 2006
55. 楊世豪, 共押出進料區塊之三維有限元素法模擬, 應用化學系, 2007, 國立交通大學
56. Dheur, J. and Crochet, M.J., Newtonian Stratified Flow through an Abrupt Expansion, *Rheologica Acta*, 26, 401-413, 1987.
57. Karagiannis, A., Hrymak, A.N., and Vlachopoulos, J., Three-Dimensional Studies on Bicomponent Extrusion, *Rheologica Acta*, 29, 71-87, 1990.
58. Ramamurthy, A.V., Wall Slip in Viscous Fluids and Influence of Materials of Construction, *Journal of Rheology*, 30, 337-357, 1986.
59. Debbaut, B. and Dooley, J., Secondary Motions in Straight and Tapered Channels: Experiments and Three-Dimensional Finite

Element Simulation with a Multimode Differential Viscoelastic Model,  
Journal of Rheology, 43, 1525-1545, 1999.

