

國立交通大學

機械工程學系

碩士論文

多層膜共擠出成形過程數值模擬分析

Numerical simulation of co-extrusion of multi-layer films

研究生：趙彥緯

指導教授：陳仁浩 教授

中華民國九十九年七月

多層膜共擠出成形過程數值模擬分析

Numerical simulation of co-extrusion of multi-layer films

研究生：趙彥緯

Student : Yen-Wei Chao

指導教授：陳仁浩

Advisor : Ren-Haw Chen



A Thesis
Submitted to Department of Mechanical Engineering
College of Engineering
National Chiao Tung University
in partial Fulfillment of the Requirements
for the Degree of Master of Science
in
Mechanical Engineering
July 2010
Hsinchu, Taiwan, Republic of China

中華民國 九十九年 七月

多層膜共擠出成形過程數值模擬分析

研究生：趙彥緯

指導教授：陳仁浩

國立交通大學機械工程學系

摘要

近年來塑膠膜為高分子產業極重要的一項產品，且朝向多功能性多層膜發展。複合型薄膜的鯊魚皮與層間厚度不均勻，為當前共擠出成形所遭遇的最主要困難。在模具內實際的共擠出過程，因模內的高溫高壓力環境，要直接地觀察其流變行為有其困難性。本研究以有限元素法模擬等溫與非等溫共擠出時，非結晶塑料 PC 與 PMMA 的流動現象，以及針對鯊魚皮等缺陷的產生原因進行探討，並嘗試提出解決對策。

模擬的結果得知，模內流動現象及鯊魚皮等缺陷，與匯合角度、材料黏度比、擠出速度比與薄膜厚度比有關。隨著匯合角度越大，支流路模壁位置剪應力會上升，而導致表面鯊魚皮發生，且會加劇出口界面包覆現象；增加支流與主流塑料黏度差異，界面位置會傾向主流路，且其界面剪應力呈不連續，而可能導致界面扭曲，包覆現象亦隨黏度差異增大而加劇；支流路擠出速度越快使得黏度差異降低可改善包覆現象，但可能會產生鯊魚皮與界面不穩定；薄膜厚度比方面，當支流路黏度高而厚度變薄，在擠出時會承受極大剪應力而產生界面不規則分佈情形；在非等溫系統時，支流路因黏度大所產生的黏滯熱較多，使溫度上升較多而導致黏度下降幅度比主流路多，使得包覆現象與等溫流動相比時較不明顯。

Numerical simulation of co-extrusion of multi-layer films

Student : Yen-Wei Chao

Advisor : Ren-Haw Chen

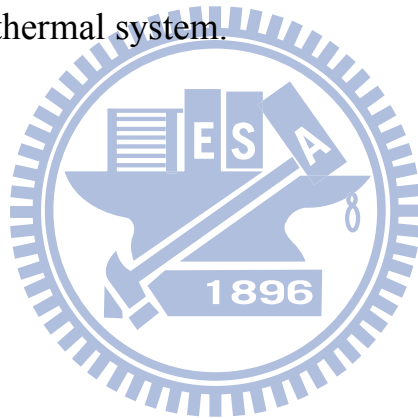
Department of Mechanical Engineering
National Chiao Tung University

Abstract

In recent years, plastic film has become a very important product in the polymer industry, with a particular trend toward the development of multifunctional composite films. The major difficulty in co-extrusion of composite films is sharkskin and non-uniformity in layer thickness. The actual extrusion process or rheological behavior within the mold is difficult to observe directly, due to the high temperature and the high pressure. In this study, we employed Finite Element Method to simulate the isothermal and non-isothermal co-extrusion process, to explore defects such as sharkskin and propose practical solutions.

In this study, we showed how the flow behavior during extrusion and the defects were a result of the relationship between angle of convergence, viscosity of the material, extrusion velocity and layer thickness. When the angle of convergence increased, the shear stress increased at the die wall in the sub-channel, resulting in the occurrence of sharkskin, with the phenomenon of encapsulation becoming critical the interface of the die exit. The greater the viscosity, the more the interfacial position between the polymer layers shifted toward the main-channel. The interfacial shear

stress was discontinuous, resulting in distortion at the interface. Encapsulation increased with an increase in viscosity. A higher extrusion velocity in the sub-channel was able to reduce the viscosity ratio to remedy the encapsulation phenomenon, but it produced sharkskin and interfacial instability. During the extrusion process, certain aspects of the film thickness were under tremendous shear stress, leading to irregular distribution at the interface, as the thickness within the high-viscosity sub-channel became thinner. In the non-isothermal system, viscous heating was greater in the high-viscosity sub-channel, which led to a significant rise in temperature, with a greater decrease in viscosity than in the main-channel. This resulted in a diminished degree of encapsulation compared with the isothermal system.



誌謝

研究所兩年的時光即將接近尾聲，從一開始進入研究室時，接觸到許多未曾學習過的理論知識與實驗儀器，至現在能獨自尋找問題的解決方法，在這段時間要感謝在研究上不斷給予指導與叮嚀的師長，以及研究室的夥伴們和最愛的家人。

在這兩年的研究所生活中，首先要感謝指導教授 陳仁浩教授在研究上的耐心指導，指引我研究上正確的方向，以及碰到實驗瓶頸時適時的給予我建議，提供我許多相關研究領域的知識，讓我在這兩年中學習到做研究及處理事情應有的態度，在此對老師獻上最誠摯的敬意。

同時要感謝聰連學長、亞平學長、偉銘學長、立偉學長、琳瑋學長及國銓學長在碩一時候的照顧，讓我能很快的適應研究室的生活，以及在實驗儀器操作以及論文寫作上的幫助，以及材料系國倫學長在實驗數據的幫助，讓我的研究能順利完成。嘉展、富明在這兩年的研究生活，在課業及研究上能互相的扶持與鼓勵，以及志鴻學弟、孟暉學弟、志偉學弟、學政學弟能幫忙處理研究室的雜務，讓我可以專心於研究上，在此致上由衷感謝。

最後要感謝我最敬愛的雙親多年來的養育及栽培，大哥及兩位姐姐對於家庭的照顧，也感謝女友的體諒、包容與默默的支持，讓我無後顧之憂的專注於學業上。最後要感謝這兩年研究生活中，曾幫助過我的朋友們，謝謝你們的支持與付出。

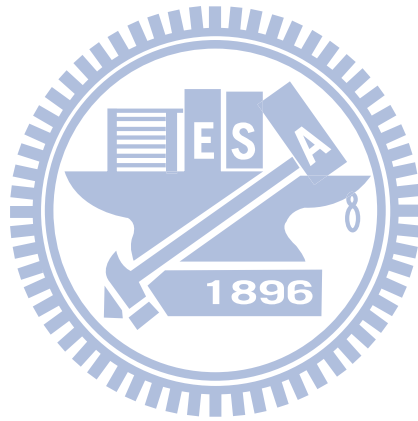
目錄

摘要.....	I
Abstract.....	II
誌謝.....	IV
目錄.....	V
表目錄.....	VII
圖目錄.....	VIII
第一章 序論.....	1
1.1 研究背景	1
1.2 文獻回顧	2
1.3 研究動機與目的	6
1.4 研究方法	7
第二章 理論與基礎	9
2.1 高分子材料簡介	9
2.1.1 高分子材料分類	9
2.1.2 高分子流變性質	11
2.1.3 高分子材料熱學性質	15
2.2 共擠出成形流動分析理論基礎	17
2.2.1 純黏性模型	17
2.2.2 黏彈性模型	18
2.2.3 統御方程式	20
第三章 數值模擬之規劃	28
3.1 電腦輔助工程軟體	28
3.1.1 Gambit	29
3.1.2 Polyflow	29
3.1.3 CFX-Post	30
3.2 數值模擬流程	31

3.2.1 模型建構	31
3.2.2 基本假設	32
3.2.3 邊界條件設定	33
3.2.4 材料種類與物性質之量測與設定	34
3.2.5 材料流變特性之量測	35
3.3 模擬數據擷取與分析	36
第四章 匯合角、擠出速度、黏度等對於共擠特性的影響之初步結果	45
4.1 成型參數設定	45
4.1.1 材料黏度設定	45
4.1.2 成型條件	45
4.2 二維共擠出模擬結果	46
4.2.1 匯合角度之影響	46
4.2.2 入口擠出速度比之影響	47
4.2.3 黏度比之影響	47
4.3 三維共擠出模擬	48
4.3.1 匯合角度之影響	48
4.3.2 入口擠出速度比之影響	49
4.3.3 黏度比之影響	49
4.3.4 薄膜厚度比之影響	50
4.4 非等溫系統之共擠出模擬	52
第五章 結論與建議	116
5.1 結論	116
5.2 未來展望	118
參考文獻	119

表目錄

表 3.1 PC (Lexan*Resin 104R)物性值	37
表 3.2 PMMA (DELPET 80N)物性值	37
表 4.1 Modified Cross Model材料參數表	54



圖目錄

圖 1.1 (a)(b)(c)(d)共擠出成形缺陷	8
圖 2.1 (a)(b)(c)(d)(e)高分子材料流動現象 [26].....	23
圖 2.1 (a)(b)(c)(d)(e)高分子材料流動現象[26].....	24
圖 2.2 非牛頓流體剪應力與剪應變關係圖[26]	24
圖 2.3 (a)(b)高分子材料剪稀薄特性[26]	25
圖 2.4 WLF equation 參數[27]	26
圖 2.5 高分子材料模數與溫度關係圖[26].....	26
圖 2.6 高分子材料應力鬆弛曲線[26].....	26
圖 2.7 (a) (b)四元件黏彈模式[26][28].....	27
圖 2.8 高分子材料PVT圖[28].....	27
圖 3.1 Gambit網格種類[31].....	38
圖 3.2 擠出成形數值模擬流程圖[31].....	38
圖 3.3 二維模擬模型圖(單位：mm)	39
圖 3.4 三維模擬模型圖(單位：mm)	39
圖 3.5 模型幾何邊界設定圖	40
圖 3.6 毛細管流變儀	40
圖 3.7 PC之熱重分析測量曲線	41
圖 3.8 PMMA之熱重分析測量曲線	41
圖 3.9 PC之剪切黏度對剪應變率實驗數據圖	42
圖 3.10 PC之剪應力對剪應變率實驗數據圖	42
圖 3.11 PMMA之剪切黏度對剪應變率實驗數據圖	43
圖 3.12 PMMA之剪應力對剪應變率實驗數據圖	43
圖 3.13 PC黏度曲線配置圖	44
圖 3.14 PMMA黏度曲線配置圖	44
圖 4.1 (a)(b)共擠出匯合區之幾何形狀網格圖	54
圖 4.2 (a)(b)(c)(d)匯合角度對界面分佈位置影響	55

圖 4.2 (a)(b)(c)(d)匯合角度對界面分佈位置影響	56
圖 4.3 (a)(b)(c)(d)不同匯合角度其速度分佈曲線圖	57
圖 4.3 (a)(b)(c)(d)不同匯合角度其速度分佈曲線圖	58
圖 4.4 (a)(b)(c)(d)不同匯合角度其速度等高線圖	59
圖 4.5 (a)(b)(c)(d)不同匯合角度其剪切率分佈曲線圖	60
圖 4.5 (a)(b)(c)(d)不同匯合角度其剪切率分佈曲線圖	61
圖 4.6 (a)(b)(c)(d)不同匯合角度其剪應力分佈曲線圖	62
圖 4.6 (a)(b)(c)(d)不同匯合角度其剪應力分佈曲線圖	63
圖 4.7 $V_1:V_2=2:1$, $\eta_1:\eta_2=3:1$, 不同匯合角度其界面剪應力差曲線圖	64
圖 4.8 (a)(b)(c)不同擠出速度其速度分佈曲線圖	64
圖 4.8 (a)(b)(c)不同擠出速度其速度分佈曲線圖	65
圖 4.9 (a)(b)(c)不同擠出速度其剪切率分佈曲線圖	66
圖 4.9 (a)(b)(c)不同擠出速度其剪切率分佈曲線圖	67
圖 4.10 (a)(b)(c)不同擠出速度其剪應力分佈曲線圖	67
圖 4.10 (a)(b)(c)不同擠出速度其剪應力分佈曲線圖	68
圖 4.11 角度為 20° , 不同擠出速度比其界面剪應力差曲線圖	69
圖 4.12 (a)(b)不同黏度比其速度分佈曲線	69
圖 4.12 (a)(b)不同黏度比其速度分佈曲線圖	70
圖 4.13 (a)(b)不同黏度比其剪切率分佈曲線	70
圖 4.13 (a)(b)不同黏度比其剪切率分佈曲線圖	71
圖 4.14 (a)(b)不同黏度比其剪應力分佈曲線	71
圖 4.14 (a)(b)不同黏度比其剪應力分佈曲線圖	72
圖 4.15 角度為 20° , 不同黏度比其界面剪應力差曲線圖	72
圖 4.16 (a)(b)(c)(d)不同匯合角度其速度分佈曲線圖 (Z=15mm)	73
圖 4.16 (a)(b)(c)(d)不同匯合角度其速度分佈曲線圖 (Z=15mm)	74

圖 4.17 (a)(b)(c)(d)不同匯合角度其剪切率分佈曲線圖 (Z=15mm)	75
圖 4.17 (a)(b)(c)(d)不同匯合角度其剪切率分佈曲線圖 (Z=15mm)	76
圖 4.18 (a)(b)(c)(d)不同匯合角度其剪應力分佈曲線圖 (Z=15mm)	77
圖 4.18 (a)(b)(c)(d)不同匯合角度其剪應力分佈曲線圖 (Z=15mm)	78
圖 4.19 $V_1 : V_2 = 2:1$, $\eta_1 : \eta_2 = 3:1$, 不同匯合角度其界面剪應力 力差曲線圖	79
圖 4.20 二維與三維模擬出口界面之差異	79
圖 4.21 匯合角度對出口界面分佈位置影響	80
圖 4.22 (a)(b)(c)(d)不同擠出速度其速度分佈曲線圖 (Z=15mm)	80
圖 4.22 (a)(b)(c)(d)不同擠出速度其速度分佈曲線圖 (Z=15mm)	81
圖 4.22 (a)(b)(c)(d)不同擠出速度其速度分佈曲線圖 (Z=15mm)	82
圖 4.23 (a)(b)(c)(d)不同擠出速度其剪切率分佈曲線圖 (Z=15mm)	82
圖 4.23 (a)(b)(c)(d)不同擠出速度其剪切率分佈曲線圖 (Z=15mm)	84
圖 4.24 (a)(b)(c)(d)不同擠出速度其剪應力分佈曲線圖 (Z=15mm)	84
圖 4.24 (a)(b)(c)(d)不同擠出速度其剪應力分佈曲線圖 (Z=15mm)	86
圖 4.25 角度為 20° , 不同擠出速度比其界面剪應力差曲線 圖	86
圖 4.26 擠出速度對出口界面分佈位置影響	87

圖 4.27 (a)(b)不同黏度比其擠出速度分佈曲線圖(Z=15mm)	87
圖 4.28 (a)(b)不同黏度比其擠出速度分佈曲線圖(Z=15mm)	88
圖 4.28 (a)(b)不同黏度比其剪切率分佈曲線圖(Z=15mm)	89
圖 4.29 (a)(b)不同黏度比其剪應力分佈曲線圖(Z=15mm)	89
圖 4.29 (a)(b)不同黏度比其剪應力分佈曲線圖(Z=15mm)	90
圖 4.30 角度為 20°，不同黏度比其界面剪應力差曲線圖	90
圖 4.31 黏度比對出口界面分佈位置影響	91
圖 4.32 (a)(b)(c)不同厚度比其剪切率分佈曲線圖(Z=15mm)	91
圖 4.32 (a)(b)(c)不同厚度比其剪切率分佈曲線圖(Z=15mm)	92
圖 4.33 (a)(b)(c)厚度比對出口界面分佈位置影響	93
圖 4.34 (a)(b)(c)不同厚度比其剪應力分佈曲線圖(Z=15mm)	93
圖 4.34 (a)(b)(c)不同厚度比其剪應力分佈曲線圖(Z=15mm)	94
圖 4.35 $V_1 : V_2 = 1:1$ ， $\eta_1 : \eta_2 = 3:1$ ，不同厚度比其界面剪應力 差曲線圖	95
圖 4.36 (a)(b)(c)不同厚度比其剪切率分佈曲線圖(Z=15mm)	95
圖 4.36 (a)(b)(c)不同厚度比其剪切率分佈曲線圖(Z=15mm)	96
圖 4.37 (a)(b)(c)不同厚度比其剪應力分佈曲線圖(Z=15mm)	98
圖 4.38 $V_1 : V_2 = 0.2:1$ ， $\eta_1 : \eta_2 = 3:1$ ，不同厚度比其界面剪應力 力差曲線圖	98
圖 4.39 (a)(b)(c)厚度比對出口界面分佈位置影響	99

圖 4.40 (a)(b)(c)厚度比於擠出速度 0.2:1 時對於包覆位置影響性.....	99
圖 4.40 (a)(b)(c)厚度比於擠出速度 0.2:1 時對於包覆位置影響性.....	100
圖 4.41 (a)(b)(c)支流路速度對不同厚度比出口界面分佈位置影響.....	101
圖 4.42 (a)(b)(c)支流路速度對不同厚度比其剪應力分佈曲線圖(Z=15mm).....	101
圖 4.42 (a)(b)(c)支流路速度對不同厚度比其剪應力分佈曲線圖(Z=15mm).....	102
圖 4.43 支流路速度對不同厚度比其界面剪應力差曲線圖.....	103
圖 4.44 非等溫流動時，流速比 0.2 比 1，厚度比 1 比 1 之出口界面圖.....	103
圖 4.45 非等溫流動時，流速比 0.2 比 1，厚度比 1 比 1 之剪切率曲線圖.....	104
(Z=15mm).....	104
圖 4.46 非等溫流動時，流速比 0.2 比 1，厚度比 1 比 1 之溫度分佈圖.....	104
圖 4.47 非等溫流動時，流速比 1 比 1，厚度比 1 比 1 之出口界面圖.....	105
圖 4.48 非等溫流動時，流速比 1 比 1，厚度比 1 比 1 之剪切率圖(Z=15mm).....	105
圖 4.49 非等溫流動時，流速比 1 比 1，厚度比 1 比 1 之溫度分佈圖.....	106
圖 4.50 (a)(b)(c)(d)厚度 1 比 1 時，等溫與非等溫共擠出之剪應力曲線圖(Z=15mm).....	107
圖 4.50 (a)(b)(c)(d)厚度 1 比 1 時，等溫與非等溫共擠出之剪應力曲線圖(Z=15mm).....	108

圖 4.51 (a)(b)厚度 1 比 1，等溫與非等溫共擠出之剪應力曲線圖(Z=15mm)	108
圖 4.51 (a)(b)厚度 1 比 1，等溫與非等溫共擠出之剪應力曲線圖(Z=15mm)	109
圖 4.52 非等溫流動時，流速比 0.2 比 1，厚度比 0.33 比 1 之出口界面圖	109
圖 4.53 非等溫流動時，流速比 0.2 比 1，厚度比 0.33 比 1 之剪切率曲線圖(Z=15mm)	110
圖 4.54 非等溫流動時，流速比 0.2 比 1，厚度比 0.33 比 1 之溫度分佈圖	110
圖 4.55 非等溫流動時，流速比 1 比 1，厚度比 0.33 比 1 之出口界面圖	111
圖 4.56 非等溫流動時，流速比 1 比 1，厚度比 0.33 比 1 之剪切率曲線圖(Z=15mm)	111
圖 4.57 非等溫流動時，流速比 1 比 1，厚度比 0.33 比 1 之溫度分佈圖	112
圖 4.58 (a)(b)(c)(d) 厚度 0.33 比 1 時，等溫與非等溫共擠出之剪應力曲線圖(Z=15mm)	114
圖 4.59 (a)(b)厚度 0.33 比 1，等溫與非等溫共擠出之剪應力曲線圖(Z=15mm)	114
圖 4.59 (a)(b)厚度 0.33 比 1，等溫與非等溫共擠出之剪應力曲線圖(Z=15mm)	115

第一章 序論

1.1 研究背景

塑膠膜為現今高分子產業中極為重要的一項產品，主要用於食品包裝，近年來則朝向多功能性塑膠膜發展，例如：隔熱、抗紫外線、防潮溼、阻氣性。當塑膠膜欲提高其功能性以及應用性，很難從單一材料或單一塑膠膜得到所需性質，須要從複合膜著手，例如用於食品包裝最常見的聚乙烯(Polyethylene, PE)、聚丙烯(Polypropylene, PP)為吸濕性較低的材料，氧氣透過率高，若單獨使用作為食品包裝膜，易使得氧氣滲入，導致食品腐敗；乙烯/乙烯醇共聚物(EVOH)則有優良的氣體阻隔性，但是因為具有高度親水性與吸濕性，當吸收溼氣以後會使氣體阻隔性降低，所以需要將兩種材料複合在一起使用，製作成多層膜擁有高氣體阻隔性與低吸濕性。

為達到塑膠膜材料複合化，現今製作功能性塑膠膜方法較為常用有三種：塗佈、積層與共擠出(Co-extrusion)：

1. 塗佈技術是將所需的功能性塑膠熔融，結合到基材上，使得產品具有機械、化學、光、電、熱特性，基材可為單層或多層的產品，其中應用於高分子材料為濕式塗佈。
2. 積層技術為將兩種或多種材料，在此兩種材料之間利用黏著劑將其結合在一起。
3. 共擠出成形其優點為只使用一加工步驟程序即可將材料複合化[1][2]，可降低原料消耗以減少成本，設備成本低可連續加工，且其製品可使用範圍廣泛，如食品包裝、藥品包裝、醫療用途、電子產業等，乃至於精密擠出加工方面，如薄膜太陽能電池、抗紫外線隔熱玻璃之需求，其共擠出層數可達數百層以上，對於表面精度的要求就更嚴謹，以免影響成品性質。

1.2 文獻回顧

雖然共擠出成形有其優點，但從研究顯示高分子材料經共擠出成形會產生許多缺陷，影響產品功能，如鯊魚皮(Sharkskin)、界面不穩定、熔液破裂(Melt fracture)、擠出膨脹(Extrudate swell)與包覆(Encapsulation)等，如圖 1.1 所示。

鯊魚皮為融熔液體經由模具擠出過程，表面升成波浪狀(Wave)或山脊狀(Zig-Zag)的不穩定，此現象只會出現於熔液的表面。當鯊魚皮現象更明顯且持續成長，會形成熔液破裂。有關於鯊魚皮或熔液破裂形成的原因，50 多年來尚無共識，一般均認為其原因大致有：模壁與高分子熔液間，超過臨界剪應力(一般聚合物約 0.14Mpa)產生滑動現象、模口拉伸應力、模內不穩定渦流現象(Unsteady vortices)[3][4]。

F. N. Cogswell 在 1977 年首先提出關於不穩定界面產生與成長，主要是由於熔液在模具出口時，其表面層加速度會從靜止急速增加，導致產生材料無法承受拉伸張力，使擠出物表面產生局部熔液破裂，而使得流動條件短暫釋放，一直循環而產生鯊魚皮現象 [5]。W. J. Schrenk 在 1978 年研究中指出，當流動層界面剪應力過高會導致高剪切率，導致界面不穩定現象產生，並且用數學模式指出鯊魚皮或界面不穩定產生，必與以下關鍵參數有關：外層流動層黏度(Skin layer viscosity)、外層與內層厚度比、總擠出率(Total extrusion rate)與模具幾何形狀 [6]；且提出了消除或減少的方法：增加外層厚度、增加流道厚度、減少總擠出率、減低外層黏度等。O. Martin 等人研究界面不穩定現象，靠近模壁的流動層黏度越低，流動穩定性越明顯，但只要當剪應力(Shear stress)太高或者外層與內層厚度差高，則會產生不穩定流動；模具幾何形狀，當流道過於狹窄，則不論流動條件為何，皆會產生不穩定流動 [7]。

C. Combeaud 等人利用毛細管流變儀與透明平板模，研究溫度與進入流道收斂角度對週期性缺陷影響，利用 FIB(Flow induced birefringence)觀察擠出過程流動現象，隨著剪切率增加到極值，在進入流道收斂角度前可觀測等差條紋會顯現出非對稱性，入口流動呈現不穩定態，其可能原因為流道

急據縮小，導致拉伸應力產生；當高剪切率時，流動溫度越高也可以抑制或延遲缺陷產生，但是發生缺陷時的臨界壓力大致類似；另外進入流道收斂角度，當角度越小或呈圓弧狀，可降低拉伸應力影響和減少渦流的產生，則不易出現鯊魚皮現象 [8]。

D. R. Arda與M. R. Mackley認為鯊魚皮成因主要為模具出口應力集中現象。模具口曲率越大相比於出口角度呈 90 度，其應力集中現象與壓力降最低，且擠出物表面鯊魚皮現象大幅降低，但是須注意熔液與模具內壁分離點的不明確性，會產生搖擺流動，而形成不穩定波浪紋；而模具表面越光滑，鯊魚皮現象也較少，其可能的原因為熔液與模壁間會產生部分滑動，而減少應力集中現象；添加含氟聚合物(Fluoropolymer)，可完整消除鯊魚皮，但會影響擠出成品各項性質。另外提出導致鯊魚皮其他因素：熔液強度(Melt strength)、熔液與模壁分離點等 [9]。P. G. Rulande等人研究在模具出口處，其拉伸應力與鯊魚皮關係，在模口處拉伸應力為最大值，可用模具口曲率大及增加模壁表面光滑度，來抑制不穩定流動發生，且可由剪應力或剪切率控制不穩定流動的產生 [10]。E. Miller等人則研究在模具口處，拉伸應力達到極限值會導致不穩定流動，可藉由加熱模具口來抑制鯊魚皮的產生 [11]

M. T. Martyn等人認為在相同材料(LDPE)擠出成形時，亦可能因為各層厚度比與模具形狀產生不穩定流動；模具稜角處和熔液交匯界面，其應力值相對較高，不穩定流動於此處最先發生，熔液彈性增加亦會提高不穩定流動現象 [12]。M. Zatloukal等人在雙層LDPE擠出時，發現當靠近模壁層的厚度降低後，會導致熔液界面會靠近高剪切應力的壁面，而導致界面不穩定發生，且隨厚度降低會先產生波浪狀，當厚度變的極薄後，逐漸轉變為山脊狀，認為在共擠出產生的不穩定界面，主要是波浪狀不穩定為主。[13]

E. Baer等人將多層膜厚度縮小至奈米尺寸時，加熱至融點以上，薄膜會因為Reyleigh instability產生破裂現象，分裂成為液滴狀(Droplet)，且其直徑隨著薄膜厚度增加，而使得薄膜表面呈為不連續態 [14][15]。

擠出膨脹為高分子熔液經模具口流出，其截面積或直徑有增加現象，其主要形成原因為高分子熔液的彈性記憶(Elastic memory)現象；另有研究顯示形成原因為分子結構、溫度、施加負載所引起，一般而言在相同條件下，分子量增加導致熔液彈性變大，使擠出膨脹增加、溫度上升則擠出膨脹下降、擠出負載增加會使膨脹加大。可經增加流道長度使記憶衰退，減低擠出膨脹現象 [3][17] [18]。

L. Wild等人在 1976 年即提出擠出膨脹隨分子大小改變，而分子糾結則無太大影響，隨長分支鏈數目增加，高分子材料平均分子尺寸增加，導致擠出膨脹增加，並由擠出膨脹可測得彈性亦會增加 [16]。L. A. Hamielec*等人在相同擠出溫度下，研究長分支鏈量對擠出膨脹影響，認為擠出膨脹主要也是彈性記憶所致，且隨長分支鏈數目增加，會使得分子互動更頻繁，導致彈性增加，跟分子糾結無關；另外流道變長使擠出膨脹變小，原因為分子互動會減少，使彈性降低所致；擠出膨脹在長流道由分子量與分子量分佈決定，短流道則是以長支鏈含量為最重要因素 [17]。

A. C.-Y. Wong在研究中利用毛細管擠出設備，以分支鏈少的HDPE、長分支鏈多的LDPE與短分支鏈多的LLDPE。認為擠出膨脹與熔液流動率(Melt flow rate, MFR)，亦即熔液流動指數(Melt flow index, MI or MFI)成比例關係，最重要的外在影響因素為依序為L/D ratios、負載與溫度。流道長度相同，分支鏈少的高分子在低負載擠出時，其熔液流動率較不受溫度影響，高負載則對溫度呈指數增加，熔液流動率愈高。而分支鏈多的高分子較不受溫度影響。另外擠出膨脹隨L/D ratio上升而下降，主要原因為流道變長，高分子在流道停留時間變長，導致彈性記憶影響降低，流道變長對剪切抵抗性變大，使得在流道末端，其MFR值下降，亦會影響擠出膨脹。結論為長分支鏈多的高分子，擠出膨脹程度較嚴重，主要原因為高分子之間糾結，同時也會受溫度影響；而分支鏈少的高分子材料，主要受溫度影響擠出膨脹的程度，溫度越高，擠出膨脹程度越低 [18]。

D. G. Kiriakidis等人研究在毛細管與狹縫模擠出過程中，在同樣剪切速率與流道長度，毛細管擠出膨脹會比狹縫模嚴重，但最終都會隨剪切速率或流道長度增加，而增加或減少達到一穩定值 [19]。J. Z. Liang研究擠出條

件對於擠出膨脹影響，認為在溫度固定時，若擠出負載越大，剪應力與剪應變會增加，導致拉伸與剪切變形增加，使儲存彈性能增加，使得擠出膨脹變大；但是當剪應變持續上升，會使高分子鏈重新排列，且平行於流動方向，而儲存彈性能則在融熔時會持續降低，使擠出膨脹最終會趨於緩和。當溫度跟負載固定時，流道長度太短時，將使得高分子熔液在流道停留時間過短，應力不能完全釋放，導致彈性恢復增加，使擠出膨脹現象增大 [20]。

文獻研究上對於包覆產生的原因有兩種：一為各層黏度差(Viscosity ratio)，黏度低的高分子熔液在因流速較快，而漸漸的包覆黏度高流速慢的高分子熔液，包覆程度隨黏度差增加，解決此現象為盡量降低各層黏度差，或使用多歧管式共擠出模具 [2][3]；此外，W. A. GIFFORD在其研究上指出流道的幾何形狀亦會影響包覆程度 [21][22]。

第二個因素為第二正向應力(Second normal stress)，J. L. WHITE等人在1972年以實驗及理論研究兩相融熔流動時，在非線性黏彈性流體時，第二正向應力為影響匯合後界面形狀的主因 [23]。B. Debbaut與J. Dooley則實驗及模擬研究第二正向應力差對於界面的影響，所使用黏彈性模型為Giesekus model，指出第二正向應力差在擠出過程中會產生二次流，此二次流為垂直擠出方向的流場，會造成擠出過程中界面的重新排列，為影響界面包覆形狀的主要因素 [24]，且J. Dooley在其研究上還指出在黏彈性模型使用上，只有能預測第二正向應力的黏彈性模型(Giesekus model與Phan Thien Tanner model)才能分析二次流動對界面包覆影響性 [2]。

K. Funatsu等人使用有限元素法研究共擠製雙流道成形時包覆現象，所使用的模型為黏彈性模型(Phan Thien Tanner model)，認為高分子材料影響包覆現象的因素有第二正向應力、拉伸黏度(Extensional viscosity)、剪切黏度與流率比，當兩流道的第二正向應力越大，則包覆程度會越嚴重，且較低第二正向應力的材料會傾向於包覆較高第二正向應力材料。拉伸黏度部分其影響性則小於第二正向應力與剪黏度比，但在薄膜擠製時則需考慮拉伸黏度的影響性 [25]。

1.3 研究動機與目的

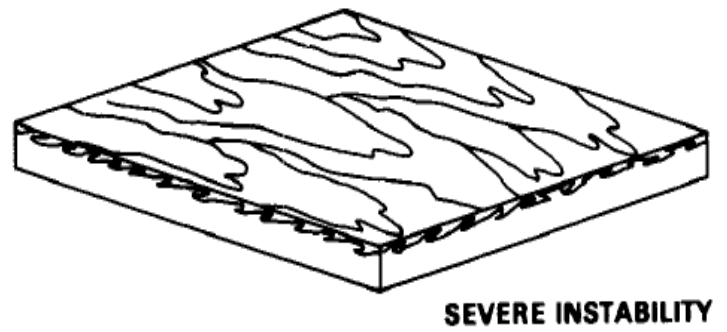
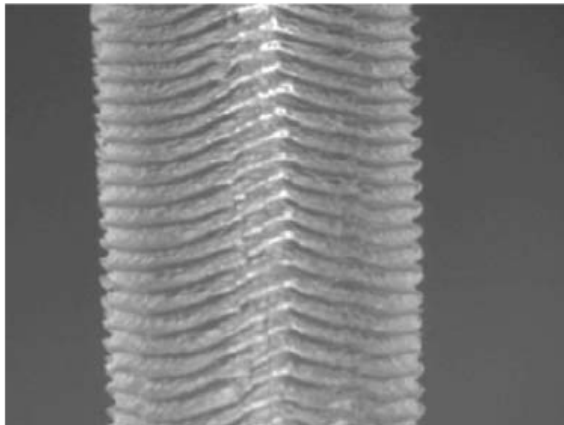
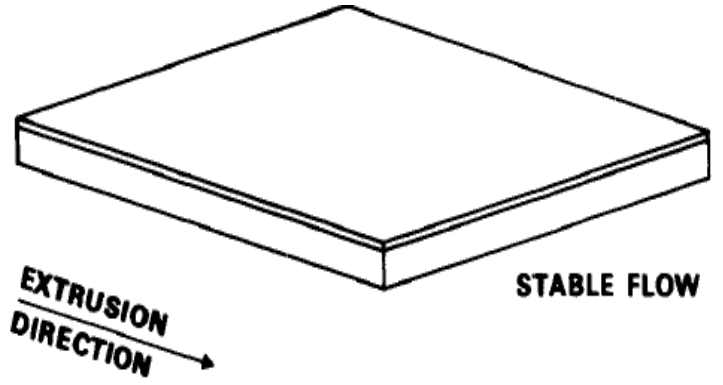
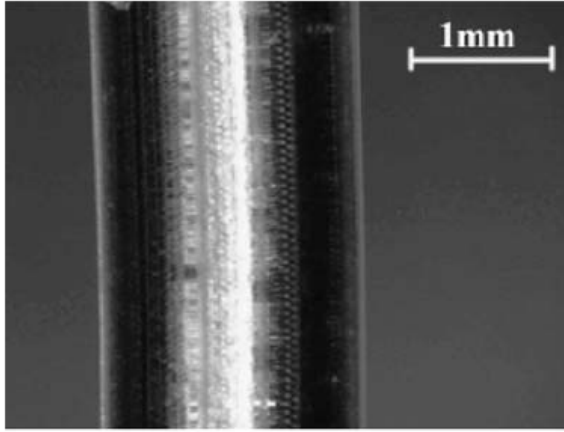
從 1960 年代開始，科學家對於擠出物的缺陷，包括表面鯊魚皮的研究就一直在進行，但過了 50 年，對於鯊魚皮形成原因卻一直沒有共識。然而高分子材料於薄膜上的使用越來越多元化，從民生用途、機械產業、光電產業乃至醫療用途。如何降低或消除複合型薄膜的鯊魚皮等不良現象，使各種高分子薄膜的性能不受影響，為當前共擠出成形所遭遇的最大困難，因此本研究將針對於共擠出成形模具內的流動現象，以及鯊魚皮等缺陷的產生原因進行探討，並嘗試提出解決對策。



1.4 研究方法

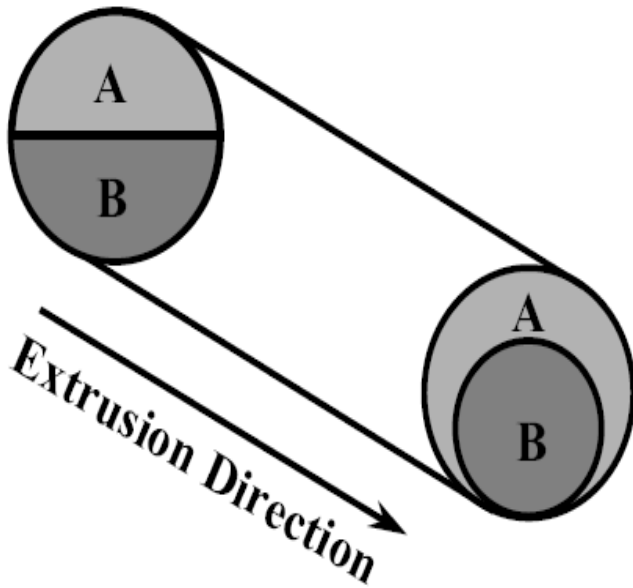
塑膠薄膜擠出成形時，以往都是在模具口才可觀察到產品的缺陷，且缺陷一般都是用試誤法(Trial and error)來加以改善，對於模具內的實際擠出過程，因模內的高溫高壓力環境，要直接觀察其流變行為有其困難性。在之前的文獻中，欲觀察界面不穩定狀況，從早期在擠出過程中停止擠出再冷卻拆模觀察 [6]，亦有使用特殊模具 [9]或模具開缺口 [12]觀察，其缺點為與實際使用情況不同，對於熔液流變行為有其影響性，不能作為產品生產條件的參考；此外，在模具上加裝溫度感測器、壓力感測器觀察 [11][12]，但此方法只能觀測到多層膜表面層，對內層的熔液壓力與溫度分佈情況無法觀測，因此，近年來大多利用電腦輔助工程分析(Computer-aided engineering, CAE)，來預測模具內熔液其流變行為，以得到成品各部位在擠出過程中，壓力、溫度、應力、流場等分佈變化，來探討實際擠出過程可能發生的各種情形。本研究主要將先以數值模擬的方法，來分析共擠出過程中匯合區的熔液狀態與流動行為，未來再配合實驗觀察與量測進行驗證。

研究中之數值模擬係採用商用軟體 Polyflow 來進行，該軟體可進行共擠出模流等之有限元素法三維分析，做各種缺陷之觀察與模擬；此軟體內建有塑膠之各項性質，但其內建資料甚少，必須自行建立所需材料各項參數。材料成形各項參數設定，可經由塑料製造商給的數據設定，其他如黏度特性則需以流變儀量測後，自行建立於軟體資料庫以供使用。初始與邊界條件設定方面，以工業上和文獻記載使用之成形參數，作為參考範圍；在流變模型方面，將以軟體內建適合之非牛頓純黏性模型，來模擬高分子熔液的模內變形流動行為。模型建構方面將先以二維共擠出薄膜為主，經由各種參數設定模擬後，再使用三維共擠出系統，以同樣參數設定逐一模擬，驗證二維共擠出系統所得之結果是否吻合，期望能在擠出過程中，得到最佳化成形條件。



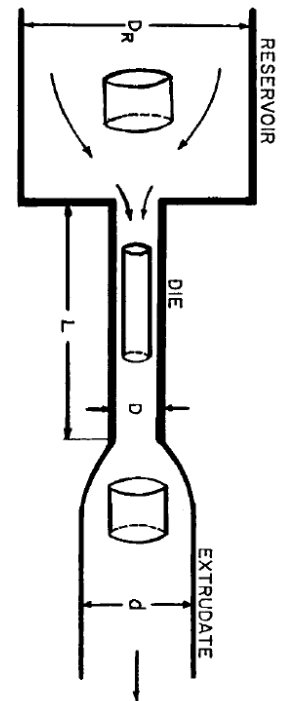
(a) 鯊魚皮缺陷 [2]

(b) 界面不穩定現象 [2]



Viscosity of A < Viscosity of B

(c) 包覆現象 [2]



(d) 擠出膨脹現象 [17]

圖 1.1 (a)(b)(c)(d) 共擠出成形缺陷

第二章 理論與基礎

2.1 高分子材料簡介

高分子(Polymer)包括塑膠與橡膠，為無數的分子(Molecular)以長鏈狀態組成，其材料特性介於液體與固體，流體幾何形變的行為稱為流動，而固體幾何形變稱為變形，而高分子其形變介於兩者，稱黏彈體。描述高分子的材料特性以『流變』描述。高分子有許多特殊的流動現象，例如爬杆效應(Rod climbing)、膨脹現象(Swell)、迴流現象(Re-circulate)、虹吸管無需將管靠近液面即可出現虹吸現象，以及流體高處往下落，若截斷後會產生上端回彈現象，如圖 2.1。

2.1.1 高分子材料分類

高分子分為三類：熱固體(Thermoset)，亦稱熱固性塑膠，這種材料在液狀時分子鏈呈長鏈排列，經加壓加溫使其固化，其分子產生交聯現象(Cross linking)，再加溫也無法恢復原狀；熱塑體(Thermoplastics)，亦稱為熱塑性塑膠，分子無交聯，型態隨溫度上升熔化，溫度下降而凝固，且可反覆升溫降溫改變其型態。此高分子又分為二種：一種為不定形體(Amorphous)與半結晶體(Semi-Crystalline)；彈性體(Elastomer)，最典型的彈性體為橡膠，分子呈現網狀排列，其分子鏈呈長而具高度可彎曲性，使此材料具有高度可恢復性(Recoverability)；前兩項熱塑跟熱固體通稱為塑膠。

高分子依其分子排列方式有結晶(Crystalline)與不定形(Amorphous)兩種狀態，結晶高分子排列呈規則(Ordered)，不定形高分子排列為隨機狀(Random)。對不定形高分子而言，存在一溫度值稱為玻璃轉換溫度 T_g (Glass transition temperature)，低於此溫度呈現出如玻璃堅硬而脆的特性；而結晶形高分子也會有 T_g 點存在，但是相當不明顯，乃因為其結晶結構的關係，導致流動性極差，結晶形高分子的特性為分子形成 3-D 秩序排列，存在熔融溫度 T_m (Melting temperature)，高於此溫度即熔融，強度隨著結晶

性而增加，但透明性會降低，因此結晶性高分子大多為不透明(Opaque)。

除此之外，一般在高分子加工時，供應商所提供的高分子材料，大致上都有塑散指數(Polydispersity index)，其所代表意義為塑散指數越高，高分子在加工時候越不穩定。

$$\text{Polydispersity index} = M_w / M_n$$

其中： M_w 為重量平均分子量

M_n 為數目平均分子量



2.1.2 高分子流變性質

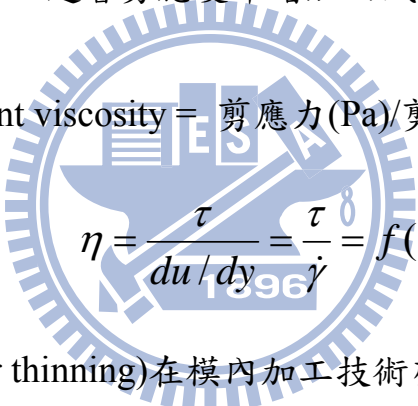
熔液流動指數(Melt flow index, MI or MFI)，為美國量測標準協會 (ASTM)根據美國杜邦公司(DuPont)慣用鑑定塑膠特性的方法，其所代表意義為原料熔液在每 10 分鐘內擠出的重量(克)，即為該塑膠的熔液流動指數，表示方法為 g/10min，例如 MI 值 25 為 10 分鐘內擠出 25g 的意思。MI 值越大，擠出量越大，代表黏度小及分子重量小。

高分子熔液黏度值很大，在低應變率下時趨近於 10^6 泊(Poise)，在一般塑膠加工狀況下，為一層流(Laminar)，屬於非牛頓流體(Non-Newtonian fluids)，即剪應力(Shear stress)與剪應變率(Shear rate)呈非線性關係，如圖 2.2，黏度為一變動值，隨著剪應變率增加而減少，其定義稱為表觀黏度(Apparent viscosity)：

$$\text{Apparent viscosity} = \text{剪應力(Pa)} / \text{剪應變率(1/s)} \quad (2-2)$$

亦即

(2-3)


$$\eta = \frac{\tau}{du/dy} = \frac{\tau}{\dot{\gamma}} = f(\dot{\gamma})$$

剪稀薄特性(Shear thinning)在模內加工技術亦為一重要參數，高分子黏度一般在剪應變率極低狀況下，為一常數。但隨著剪應變率升高，黏度會隨著降低，其形成主因為：高分子是由無數長鏈狀分子組成，在不受外力或剪應變率極低情況下，其分子鏈隨機糾結纏繞在一起，因而使得高分子不易流動且黏度高的特性。當剪應變率持續上升，將分子鏈糾結纏繞解開(Entanglement)，而呈現順向規格的排列方向，由於流動阻力視糾結程度而定，因此流動阻力或黏度皆隨剪應變率增加而降低，如圖 2.3。欲了解高分子黏度與剪應變關係，最簡單的方法為指數律(Power Law) [26]：

$$(2-4) = m\dot{\gamma}^{n-1}$$

其中： m 為一致係數(Consistency coefficient)， m 越大，黏度值越大。

n 為沒單位的係數，主要用途為描述高分子流體非牛頓流程度。

$n=1$ 為牛頓流體， $n<1$ 為剪稀薄特性的高分子流體，其缺點為不能反應出彈性或正常應力效應；溫度對於高分子流體黏度的影響，隨著溫度升高，高分子流體黏度會下降，主要原因為溫度升高時，高分子流體所獲得能量增多，其分子間運動更加活化，使流動阻力減少而呈現黏度低特性。在不同溫度時候，無法使用指數律來觀察其黏度與剪應變關係，因此 Arrhenius 提出了修正模式 [26]：

$$m (2m_0) e^{-b(T-T_0)}$$

其中： T_0 為參考溫度。

m_0 為參考溫度 T_0 時之一致係數。

b 為實驗所得常數，介於 0.01 至 0.02 之間。

在不同溫度下，可由WLF(Williams-Landel-Ferry)方程式得知高分子黏度，適用範圍在 T_g 與 T_g+100 度 [26][27][28]：

$$\log a_T = \log \frac{\eta(T)}{\eta(T_0)} = \frac{-C_1(T-T_0)}{C_2+(T-T_0)} \quad (2-6)$$

當 $T_0 = T_g$ 時，

$$(2-7) \quad \log a_T = \log \frac{\eta(T)}{\eta(T_0)} = \frac{-17.44(T-T_g)}{51.6+(T-T_g)}$$

其中： a_T 為溫度移動因子(Temperature shift factor)

C_1, C_2 為視材料而定參數(如圖 2.4)。

T_0 為參考溫度(Reference temperature)。

T_g 為玻璃轉移溫度。

高分子彈性行為在溫度變化時，其模數 E 亦隨著改變，主要原因為分子鏈可移動性導致。高分子模數隨溫度改變可以將黏彈性分成五區：玻璃狀態區(Glass zone)、玻璃轉移區(Glass transition zone)、橡膠態高原區(Rubbery plateau)、融熔區(Melt zone)、熔液區(Liquid melt)，其中玻璃轉移溫度為一個範圍區域，如圖 2.5 所示。高分子還有一樣特性與時間有關，當施加固定力量於材料上，其長度會隨時間而增加，此特性稱為潛變(Creep)。

模數除了隨溫度改變外，亦會隨時間逐漸縮小，當高分子受一應力作用後，此應力會隨時間而減少，導致模數亦隨時間降低，此特性稱為應力鬆弛 (Stress relaxation)，主要分為四區：彈性區、黏彈性區、橡膠態區、黏性流區，如圖 2.6 所示。

黏彈體流體行為，最簡單表示模式為純彈性體與黏性體，分別以彈簧以及緩衝筒(Dashpot)組合。將兩元件經過並或串聯，可得 Maxwell model、Voigt-Kelvin model，另外將 Maxwell 及 Voigt-Kelvin model 串聯組合後，可得四元件黏彈模式(Four Element Viscoelastic Model)，如圖 2.7 所示。優缺點如下：

1. Maxwell：可模擬高分子應力鬆弛現象，對於潛變及復原特性極差。
2. Voigt-Kelvin：可模擬潛變及復原特性，對於高分子應力鬆弛現象極差。
3. 四元件黏彈模式：可同時模擬高分子之潛變、復原特性及應力鬆弛現象，其解析方程式，可由 Maxwell 及 Voigt-Kelvin model 解析方程式的合而得，即

潛變：

$$\gamma = \underbrace{\frac{\sigma_0}{E_1} + \frac{\sigma_0 t}{\eta_1}}_{\text{Maxwell}} + \underbrace{\frac{\sigma_0}{E_2} \left[1 - \exp\left(\frac{-E_2 t}{\eta_2}\right) \right]}_{\text{Voigt-Kelvin}} \quad (2-8)$$

應力鬆弛：

$$\sigma = \underbrace{E_2 \gamma}_{\text{Maxwell}} + \underbrace{\sigma_0 e^{\frac{-E_1 t}{\eta_1}}}_{\text{Voigt-Kelvin}} \quad (2-9)$$

當時間 t 很小，黏彈性流體受剪力 σ_0 之變形量，主要為彈性元件 E_1 所控制，所以會出現類似彈性固體之行為，移除應力後將回到原本之狀態。當時間逐漸增加，黏性元件作用逐漸加大，流體中之分子間鍵結逐漸受剪切作用而斷裂，直到主要變形由黏性元件控制時，分子間鍵結受力較久而斷裂，未有足夠時間重新組合，分子層間互相滑過，呈現類似牛頓流體之行為，黏度趨於常數。當應力消失後，黏彈性流體形變回復，但有不可復原的黏性部分，主要是由於聚合物鍵或鍵段滑過另一個聚合物鍵或鍵段所致。

高分子流體除了受剪應力會變形外，亦會受到正向應力的影響，任何一個作用於平面的力可分解為正向力 F_n 與剪力 F_s ，力又可依 x 、 y 、 z 分成三個方向之分力，且力的作用面亦分成 x 、 y 、 z 三個作用面；因此有九個應力項，可以寫成矩陣型式，得到應力張量 $\bar{\tau}$ (Stress tensor)，其中對角線項為正向應力，其餘為剪應力；

$$\bar{\tau} = \begin{bmatrix} \tau_{xx} & \tau_{xy} & \tau_{xz} \\ \tau_{yx} & \tau_{yy} & \tau_{yz} \\ \tau_{zx} & \tau_{zy} & \tau_{zz} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \tau_{11} & \tau_{12} & \tau_{13} \\ \tau_{21} & \tau_{22} & \tau_{23} \\ \tau_{31} & \tau_{32} & \tau_{33} \end{bmatrix} \quad (2-10)$$

壓力亦為正向應力，可直接寫入：

$$\bar{\tau} = \begin{bmatrix} -p + \tau_{11} & \tau_{12} & \tau_{13} \\ \tau_{21} & -p + \tau_{22} & \tau_{23} \\ \tau_{31} & \tau_{32} & -p + \tau_{33} \end{bmatrix} = -p\delta_{ij} + \tau_{ij} \quad (2-11)$$

對於等方向性流體(Isotropic)，應力張量中的剪應力呈對稱分佈， $\tau_{12} = \tau_{21}$ 、 $\tau_{13} = \tau_{31}$ 、 $\tau_{23} = \tau_{32}$ ，若只考慮二維單純剪流，在 z 平面的應力為零，上式可簡化為：

$$\bar{\tau} = \begin{bmatrix} -p + \tau_{11} & \tau_{12} & 0 \\ \tau_{21} & -p + \tau_{22} & 0 \\ 0 & 0 & -p + \tau_{33} \end{bmatrix} = -p\delta_{ij} + \tau_{ij} \quad (2-12)$$

在二維單純剪流情況時，流體可用以下三個材料函數來描述：剪應力為 τ_{12} 或 τ_{21} ，第一正向應力差 N_1 為 $\tau_{11} - \tau_{22}$ ，第二正向應力差 N_2 為 $\tau_{22} - \tau_{33}$ 。而第一正向應力差在擠出成形過程中，會導致擠出膨脹、渦流現象以及不穩定流現象，而影響成品外觀與性能，因此更需要重視與探討。

2.1.3 高分子材料熱學性質

高分子熱學性質包含：比容(Specific volume)、熱容量(Heat capacity)、熱傳導率(Thermal conductivity)、熱膨脹(Thermal expansion)、熔化熱(Heat of fusion)與結晶熱(Heat of crystallization)、玻璃轉換溫度(Glass transition temperature)、熔點(Melting point)、熱安定性與感應時間。

1. 比容：與密度呈反比，與密度一樣皆會受壓力和溫度的影響，當溫度上升時，高分子鏈活動較自由，所佔據的自由體積較大，比容也增加；而固態時由於分子鏈聚集較緊密，故比容較小。固液態間之比容差異為塑料加工後產生收縮的原因之一。而當壓力上升時，比容則下降。高分子材料壓力、比容與溫度關係圖稱為 PVT 圖，如圖 2.8，一般而言結晶性高分子在熔點附近，比容會成跳躍式變化，而非結晶或不定形高分子其比容變化則為漸進式。PVT 圖可提供成形過程時體積膨脹率以及冷卻收縮率的參考。
2. 熱容量：熱容定義為加熱單位材料上升一定溫度所需的熱量，若上升一度所需熱量即為比熱容量(Specific heat capacity)，為材料溫度容易改變與否的度量。一般來說，比熱越大，材料溫度越不易變化，而結晶形比不定形塑膠比熱高，單位為 $J/(g\cdot^{\circ}C)$ ，比熱可用於加工時候，計算出到達所需加工溫度，需再加入多少熱量。
3. 熱傳導率：為材料傳導熱的能力，高分子熱傳係數很低，被視為熱的絕緣體，利用傳導來加熱或冷卻高分子是很慢的方式。結晶性高分子比不定形具較高的熱傳導率，結晶形高分子熱傳導隨密度與結晶性增加而上升，而不定形是隨分子量增加。另外，高分子熱傳導率高，可使得加工過程中溫度能均勻分佈，較不易產生不均勻厚點 [29]，也不易產生熱量累積的熱點(Hot spot)[30]。
4. 熱膨脹：高分子材料熱膨脹並不與溫度呈比例增加，熱膨脹並不是一恆數，例如聚苯乙烯熱膨脹會隨溫度上升而不規則變化。高分子熱膨脹會因為添加無機物或金屬後而降低。

5. 熔化熱與結晶熱：均屬於相轉移熱(Heat of phase transition)。熔化熱代表將材料由固態熔化為液態所需的熱量；結晶熱則是指結晶形材料在結晶過程中所釋放的熱量。量測時，結晶形材料由於分子結構較為緊密結實，打斷晶體結構所需能量越多，因此熔化熱較為明顯；而不定形材料則無明顯的熔化熱數據
6. 熔點為結晶融熔的溫度，在不定形高分子並無結晶，因此無熔點，只有玻璃轉移溫度，超過玻璃轉移溫度，即呈融熔狀態；而結晶形高分子其玻璃轉移溫度不明顯，主要是以熔點來判別其固液態區別；彈性模數、熱膨脹係數、熱容量在超過玻璃轉化溫度會產生劇烈變化，因此熔點及玻璃轉移溫度，皆可用來當作高分子材料加工時參考溫度。
7. 熱安定性與感應時間：高分子材料在擠出成形時會劣化，劣化主要變數包括溫度以及高分子材料在高溫停留時間，溫度越高，劣化速度越快，會導致機械和光學性質損失；感應時間為高溫下，高分子材料存在無明顯劣化的時間，感應時間越長，高分子材料安定性越好。



2.2 共擠出成形流動分析理論基礎

非牛頓流體特性，如剪切率依存的剪切黏度，黏度流的正向應力，高抗拉伸張力變形，彈性流體記憶效應等，在擠出模擬過程，最大挑戰為將高分子複雜的流變性質，選用適當的方程式，預測在複雜幾何形狀模具內的流動。本研究現階段將以純黏性非牛頓流體，進行二維與三維等溫共擠出模擬，其次再進行非等溫共擠出模擬，以比較溫度對流變行為的影響性。

2.2.1 純黏性模型

純黏性模型僅能用於低分子量均勻流體，純黏性非牛頓等溫流體模擬上常使用Carreau Model、Cross Law、Power Law與Log-Log Law。其中Power Law在剪應變率很低時，黏度呈無限大的情況；Log-Log Law其缺點則為變數高達六個，在製作剪黏度曲線時相當困難；而在本研究上配合剪切黏度實驗數據，如圖 3.15 至圖 3.16，所選用的模型為Modified Cross Law，用於一般需描述低剪切速率的黏度行為，表示方法如下 [31]：

$$(2-13) \quad \eta = \frac{\eta_0}{1 + (\lambda\dot{\gamma})^m}$$

其中： η_0 為零剪切率時的黏度。

λ 為剪黏度曲線從牛頓區轉向 Power -Law 區的時間常數，為剪應變率的倒數。

m 為 Cross-law index。

相較於 Carreau-Yasuda 模型， $a=1$ ，Carreau-Yasuda 模型即轉變為 Modified Cross Law，兩者不同處在於黏度曲線從 Newtonian plateau 至 power-law region，其曲率不同：

$$(2-14) \quad \eta = \eta_\infty + (\eta_0 - \eta_\infty) \left[1 + (\lambda\dot{\gamma})^a \right]^{\frac{n-1}{a}}$$

a 為控制黏度曲線，從 Newtonian plateau 至 power-law region 的指數， $a < 1$ 會延長轉換， $a > 1$ 則會呈現急速轉換。

2.2.2 黏彈性模型

現階段模擬以純黏性非牛頓流體為主，未來在模擬黏彈性非牛頓等溫流體的流變行為，所參考的微分型黏彈性模型為White-Metzner Model，可代表具有剪稀薄效應及彈性流體的流動行為 [31]，在分子黏彈性流體其總應力張量，為黏彈性部分應力張量 \mathbf{T}_1 與純黏性部分應力張量 \mathbf{T}_2 的總和，其表示方法為黏彈性流體部份應力隨時間改變，以及流體變形率張量所組成：

$$\mathbf{T}_1 + \lambda \overset{\nabla}{\mathbf{T}}_1 = 2\eta_1 \mathbf{D} \quad (2-15)$$

$$\mathbf{T}_2 = 2\eta_2 \mathbf{D} \quad (2-16)$$

其中： λ 為鬆弛時間、 η_1 為黏彈部份黏度係數、 $\mathbf{D} = \nabla V + \nabla V^T$ 為變形率張量(Rate of deformation tensor)、 ∇V 為速度梯度(Velocity gradient)。

在 White-Metzner Model 中，其鬆弛時間與總黏度可以為常數，或者利用 Power-Law 或 Bird-Carreau Model 來表示成剪切率依存性形式：

總黏度(Power-Law)：

$$\eta = K_\eta (\Lambda_\eta \dot{\gamma})^{n_\eta - 1} \quad (2-17)$$

總黏度(Bird-Carreau)：

$$\eta = \eta_\infty + (\eta_0 - \eta_\infty) (1 + \Lambda_\eta^2 \dot{\gamma}^2)^{\frac{n_\eta - 1}{2}} \quad (2-18)$$

鬆弛時間(Power-Law)：

$$\lambda = K_\lambda (\Lambda_\lambda \dot{\gamma})^{n_\lambda - 1} \quad (2-19)$$

鬆弛時間(Bird-Carreau)：

$$\lambda = \lambda_0 (1 + \Lambda_\lambda^2 \dot{\gamma}^2)^{\frac{n_\lambda - 1}{2}} \quad (2-20)$$

黏彈性部分應力張量 \mathbf{T}_1 由以下方程式計算：

$$g(\mathbf{T}_1) \cdot \mathbf{T}_1 + \lambda \frac{\delta \mathbf{T}_1}{\delta t} = 2\eta_1 \mathbf{D} \quad (2-21)$$

$$\frac{\delta \mathbf{T}}{\delta t} = \frac{\xi}{2} \overset{\Delta}{\mathbf{T}} + (1 - \frac{\xi}{2}) \overset{\nabla}{\mathbf{T}} \quad (2-22)$$

其中： ξ 為控制剪黏度參數，當 $0 < \xi < 2$ ：

$\overset{\Delta}{\mathbf{T}}_1$ ：Lower-Convected Time Derivative。

$$\overset{\Delta}{\mathbf{T}}_1 = \frac{D\mathbf{T}_1}{Dt} + \mathbf{T}_1 \cdot \nabla V^T + \nabla V \cdot \mathbf{T}_1 \quad (2-23)$$

$\overset{\nabla}{\mathbf{T}}_1$ ：Upper-Convected Time Derivative。

$$\overset{\nabla}{\mathbf{T}}_1 = \frac{D\mathbf{T}_1}{Dt} - \nabla V^T \cdot \mathbf{T}_1 - \mathbf{T}_1 \cdot \nabla V \quad (2-24)$$

$$\frac{D\mathbf{T}_1}{Dt} = \frac{\partial \mathbf{T}_1}{\partial t} + (\mathbf{V} \cdot \nabla)(\mathbf{T}_1) \quad (2-25)$$



2.2.3 統御方程式

1. 純黏性非牛頓等溫流體 [31]：

動量守恆-動量方程式(Momentum equations)：

$$(2-26) \quad -\nabla p + \nabla \cdot \mathbf{T} + f = \rho a$$

$$(2-27) \quad \mathbf{T} = 2\eta \mathbf{D}$$

其中： p 為壓力、 \mathbf{T} 為應力張量、 f 為體積力(Volume force)、 ρ 為密度、 a 為加速度、 \mathbf{D} 為變形率張量(Rate of deformation tensor)、 η 為黏度係數，由於高分子在融熔狀態時，黏度極大，可以假設為流速極小，由慣性力造成影響可被忽略，重力的影響一般都忽略(因高分子密度小)，而成為壓力與應力平衡結果的方程式：

$$(2-28) \quad -\nabla p + \nabla \cdot \mathbf{T} = 0$$

質量守恆-連續方程式(Continuity equation)：假設為穩流，不可壓縮。

$$\nabla \cdot \mathbf{V} = \frac{\partial V_1}{\partial x_1} + \frac{\partial V_2}{\partial x_2} + \frac{\partial V_3}{\partial x_3} = 0 \quad (2-29)$$

其中： V 為流動速度， $V_1 V_2 V_3$ 為速度分量。

能量守恆-能量方程式(Energy equation)：非等溫純黏性流體

$$\rho c_p \frac{DT}{Dt} = \gamma - \nabla \cdot q + (\sigma \mathbf{D}) \quad (2-30)$$

$$\frac{DT}{Dt} = \frac{\partial T}{\partial t} + \mathbf{V} \cdot \nabla T \quad (2-31)$$

其中： $\frac{DT}{Dt}$ 為溫度的物質導數，代表跟隨流體運動所得溫度隨時間變化量。

σ 為柯西應力張量(Cauchy stress tensor)、 \mathbf{D} 為變形率張量。

$(\sigma \mathbf{D})$ 為 $\sigma \mathbf{D}$ 張量對角線的總和。

c_p 為比熱容(specific heat capacity)。

γ 為外部供應每單位體積的熱量。

V 為流動速度。

q 為熱通量(heat flux)。

2. 黏彈性非牛頓等溫流體 [31]：

動量守恆-動量方程式(Momentum equations)：

$$(2-32) \quad -\nabla p + \nabla \cdot (\mathbf{T}_1 + \mathbf{T}_2) + f = \rho a$$

$$(2-33) \quad \mathbf{T}_2 = 2\eta_2 \mathbf{D}$$

其中： p 為壓力、 \mathbf{T}_1 、 \mathbf{T}_2 分為黏彈性與純黏性應力張量、 f 為體積力(Volume force)、 ρ 為密度、 a 為加速度、 \mathbf{D} 為變形率張量(Rate of deformation tensor)、 η_2 為黏度係數。

質量守恆-連續方程式(Continuity equation)：假設為穩流，不可壓縮。

$$\nabla \cdot \mathbf{V} = \frac{\partial V_1}{\partial x_1} + \frac{\partial V_2}{\partial x_2} + \frac{\partial V_3}{\partial x_3} = 0 \quad (2-34)$$

其中： \mathbf{V} 為流動速度， $V_1 V_2 V_3$ 為速度分量。

能量守恆-能量方程式(Energy equation)：非等溫黏彈性流體

$$\rho c_p \frac{DT}{Dt} = \gamma - \nabla \cdot \mathbf{q} + \mathbf{T} : \nabla \mathbf{V} \quad (2-35)$$

其中：式子左邊為流動時溫度的上升速率，右邊三項分別為外部供應熱源、傳導熱與摩擦熱(黏滯熱)，對於傳導項來說，傅立葉定律(Fourier's Law)如下：

$$\mathbf{q} = -k \nabla T \quad (2-36)$$

即熱通量 \mathbf{q} 與溫度場之分佈關係， k 為熱傳導係數，因物質不同而有所不同，式(2-29)可以修改為以下方程式：

$$\rho c_p \frac{DT}{Dt} = \gamma + \nabla \cdot (k \nabla T) + \mathbf{T} : \nabla \mathbf{V} \quad (2-37)$$

其中： \mathbf{T} 為應力張量。

3. 非等溫流體 [31]：

在非等溫流動時，高分子會受溫度影響而改變其黏度大小，其黏度為溫度與剪切率之函數，表示方法如下：

$$(2-38) \quad \eta = H(T)\eta_0(\dot{\gamma})$$

其中： $\eta_0(\dot{\gamma})$ 為 Modified Cross Law 在參考溫度 T_α 下的黏度。

$H(T)$ 為 Arrhenius law，表示方法如下：

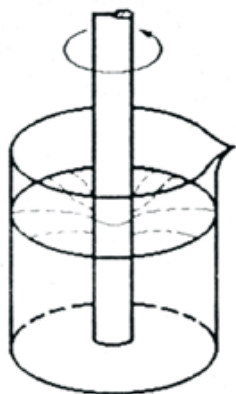
$$(2-39) \quad H(T) = \exp \left[\alpha \left(\frac{1}{T - T_0} - \frac{1}{T_\alpha - T_0} \right) \right]$$

其中： α 為高分子融體之活化能。

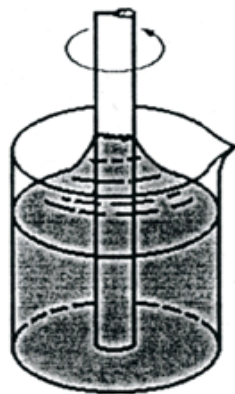
T_α 為 $H(T)=1$ 時之參考溫度，為絕對溫標。

T_0 為絕對溫度，預設值為 0。





牛頓流體



高分子流體

(a)爬竿效應

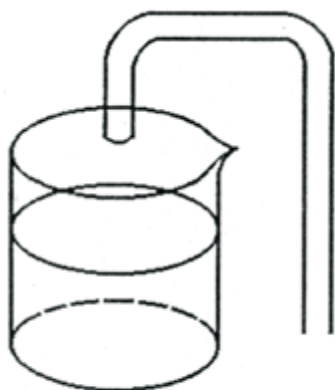


牛頓流體

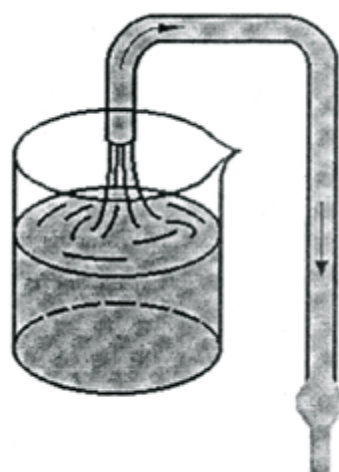


高分子流體

(b)膨脹現象



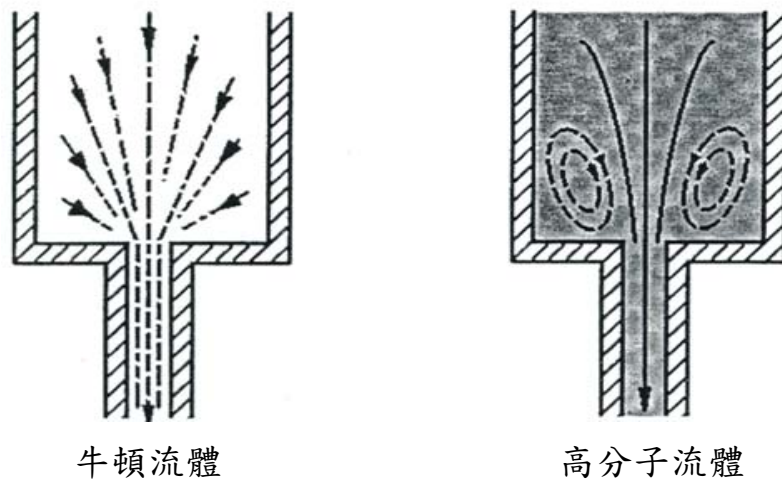
牛頓流體



高分子流體

(c)無接觸虹吸管效應

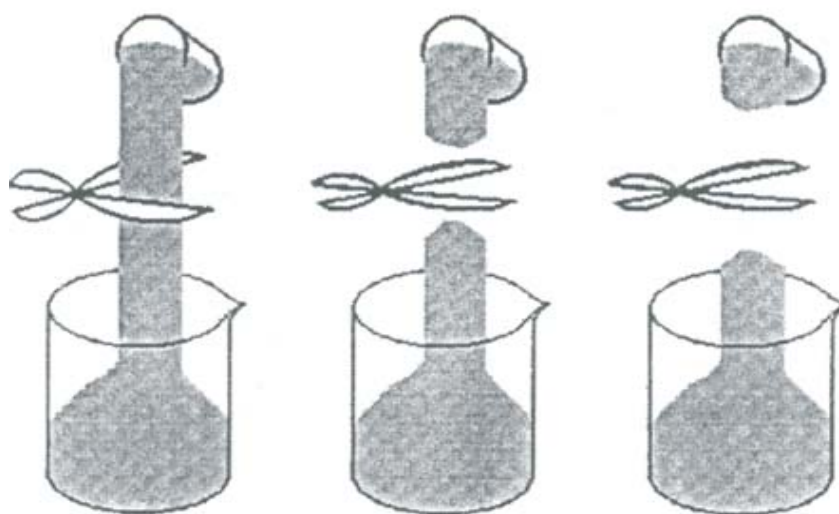
圖 2.1 (a)(b)(c)(d)(e)高分子材料流動現象 [26]



牛頓流體

高分子流體

(d)迴流現象



(e)截斷回彈現象

圖 2.1 (a)(b)(c)(d)(e) 高分子材料流動現象 [26]

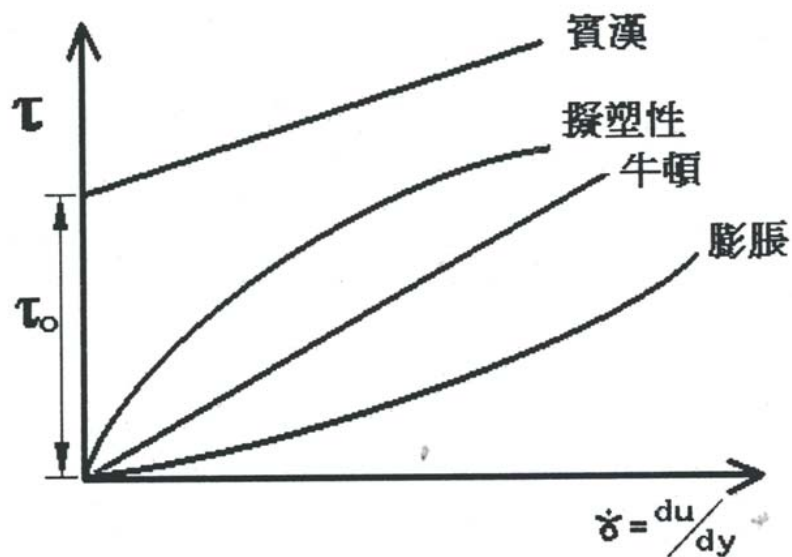
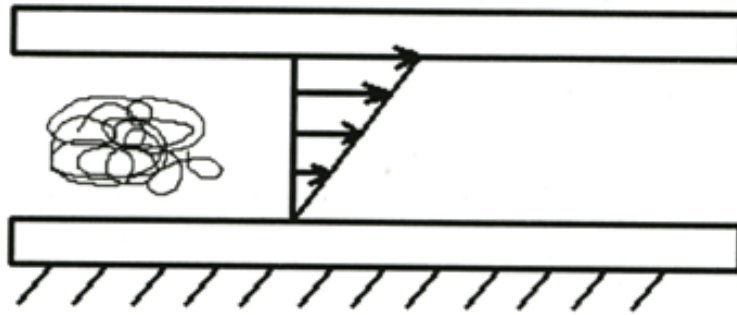
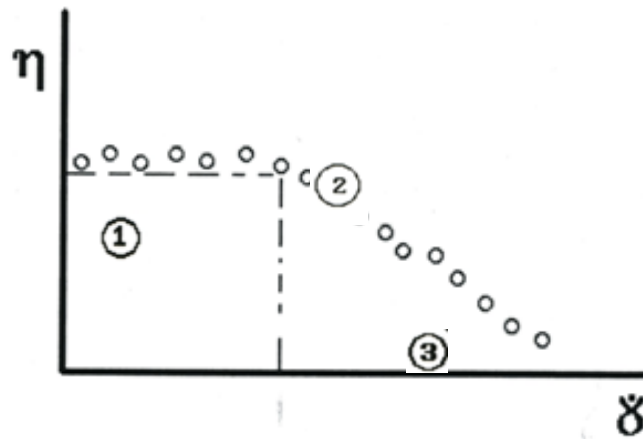


圖 2.2 非牛頓流體剪應力與剪應變關係圖 [26]



(a) 高分子材料由許多長鏈糾結形成



(b) 隨剪應變增加，分子鏈排列情形及黏度值變化

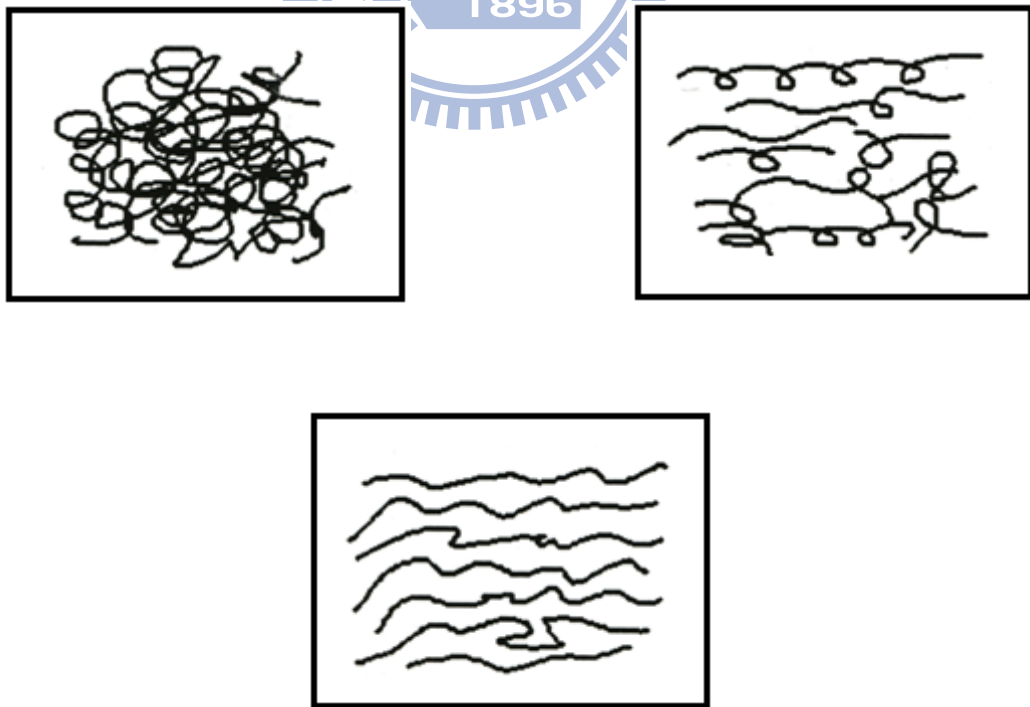


圖 2.3 (a)(b) 高分子材料剪稀特性 [26]

聚合物	C_1	C_2	T_g (°K)
聚異丁烯	16.6	104	202
天然橡膠 (Hevea)	16.7	53.6	200
聚氨基甲酸酯	15.6	32.6	238
聚苯乙烯 ²	14.5	50.4	373
聚甲基丙烯酸乙酯	17.6	65.5	335
“通用常數”	17.4	51.6	

圖 2.4 WLF equation 參數 [27]

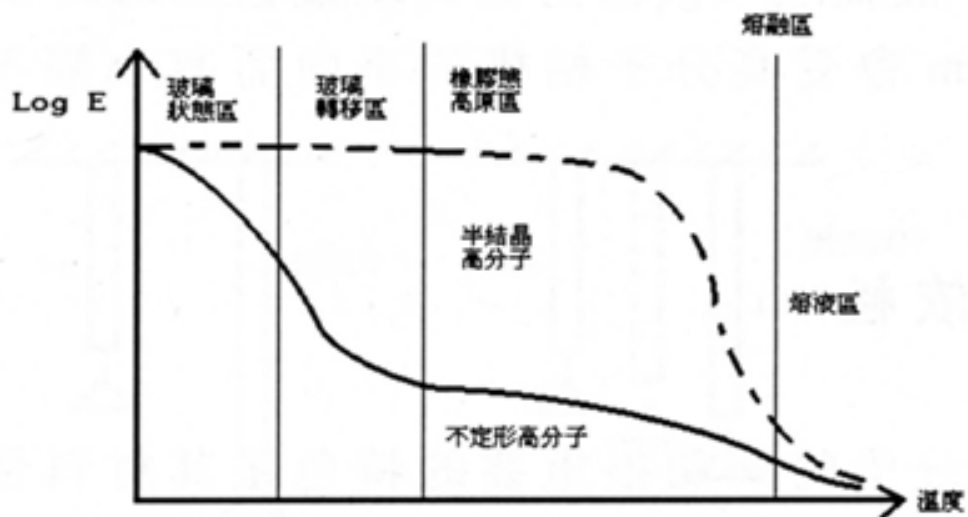


圖 2.5 高分子材料模數與溫度關係圖 [26]

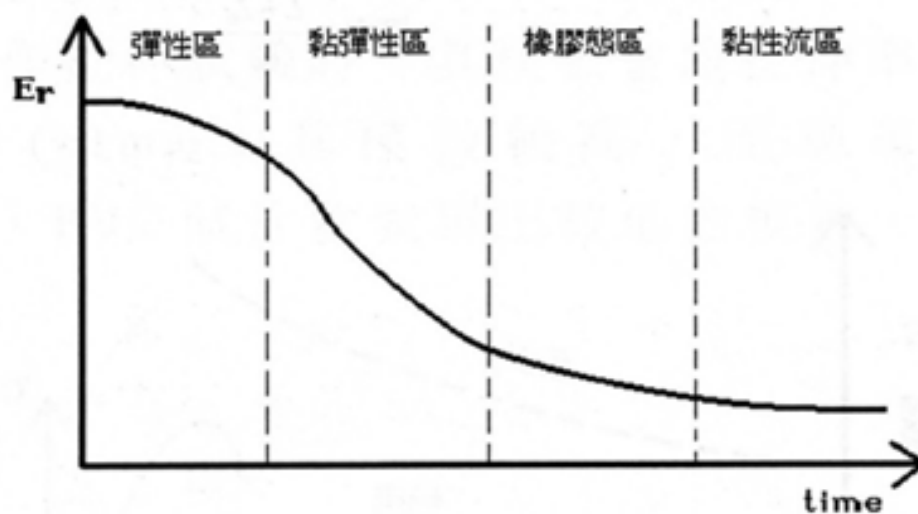


圖 2.6 高分子材料應力鬆弛曲線 [26]

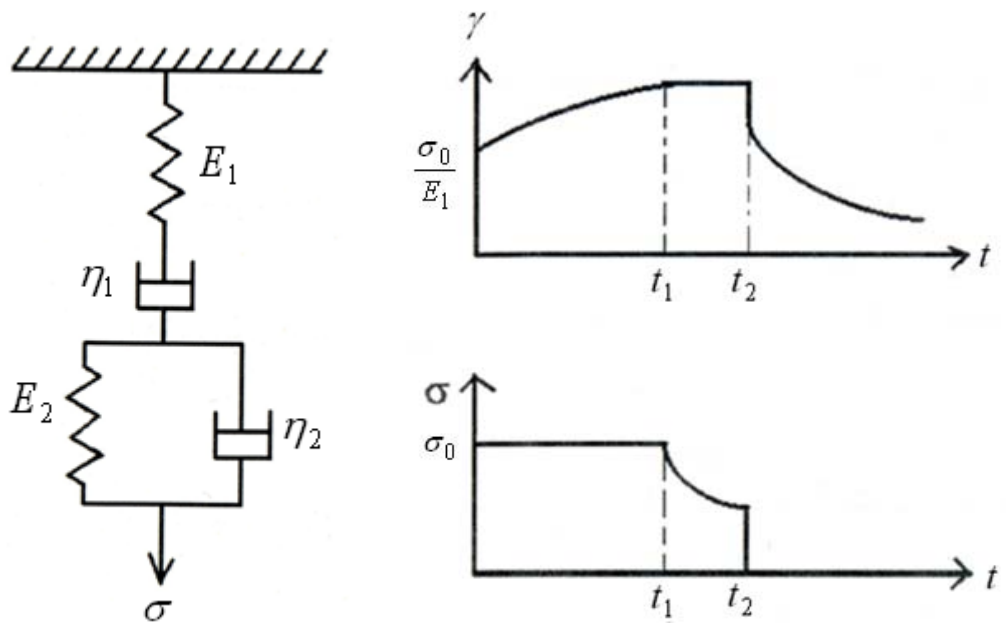


圖 2.7 (a) (b) 四元件黏彈模式 [26][28]

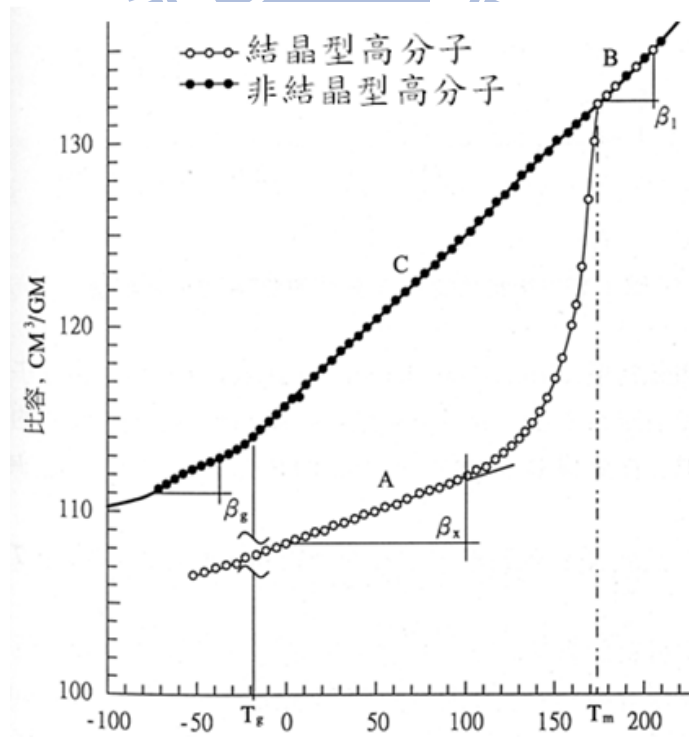


圖 2.8 高分子材料PVT圖 [28]

第三章 數值模擬之規劃

3.1 電腦輔助工程軟體

傳統工業缺陷改善都是以試誤法重複嘗試，此種方法費時且成本高，隨著電腦科技的進步，將電腦軟體運用於產品開發、分析與製造已成為近代工業生產的主要方法。國內最早引進的電腦輔助軟體是 CAD，然後是 CAM，最晚的則是 CAE。電腦輔助設計(Computer-aided design, CAD)使用電腦軟體運用於圖形的繪製與結構體的設計。電腦輔助製造(Computer-aided manufacturing, CAM)則是用電腦輔助操縱各種精密工具機器製造零組件。電腦輔助工程(Computer-aided engineering, CAE)是將工程上分析過程及計算方法來輔助設計後分析，其有限元素法(Finite element method, FEM)隨著電腦運算速度提升，也運用於計算流體力學(Computational fluid dynamics, CFD)上，且計算分析範圍也從一維計算提升到二維與三維計算。



3.1.1 Gambit

Gambit 為標準的 Polyflow 模型與網格產生器，設計過程為：建構模型，劃分網格，設定邊界條件；其使用介面的設定也是以此種模式為主，在設計所需要的簡單模型，其使用方法較一般 CAD 更為簡單也較快速。

網格建構順序：先在一條邊上劃分，輸入在該邊上設置的網格間隔的實際數目： $M = N + 1$ ， M 為邊上的網格節點總數，包括兩個端點。例如，設定間隔數 N 為 9，GAMBIT 將經由 10 個節點劃分網格，因此在該邊上產生 9 個間隔；網格方面，在二維有三角型與四邊型網格，三維方面有四面體、六面體、楔形與金字塔型，如圖 3.1 所示。運用於圖形簡單模型時，以四邊型和六面體，於複雜模型時，難以使用四邊型和六面體網格時，則以三角型與四面體取代。

在本研究中所使用的為四邊型和六面體結構性網格，適用於簡單結構的流體分析，結構性網格優缺點為：

優點：

1. 網格建立較容易。
2. 計算容易，速度較快且結果相對於非結構網格較準確。
3. 對於曲面亦可使用結構性網格，與實際模型計算結果較接近。

缺點：

1. 使用範圍較窄，僅適用於結構規則的圖形。

3.1.2 Polyflow

Polyflow 是由美國的 ANSYS 公司所開發，為計算流體力學 (CFD)，主要用於模擬非線性黏性和黏彈性流動的數值分析軟體，可模擬二維與三維、Isothermal 或 Non-Isothermal、Steady State 或 Time Dependent，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，廣泛運用於流動與成形分析研究，例如：聚合物、橡膠、玻璃、纖維製程中，可應用於螺桿擠出、擠出成形、熱成形、吹模 (Blowing molding) 等模擬過程。

3.1.3 CFX-Post

後處理部份則選用 ANSYS CFX-Post，其設計上以方便的可視化顯示，和定量分析結果計算流體力學模擬，可自行定義純量與向量等變量，且提供豐富的圖形輸出、動畫輸出與數據歸納等功能，圖形或動畫輸出方式包含：等位面(Isosurfaces)、切片(Slices)、向量(Vector)、流線(Streamlines)等。支援瞬態資料，包括移動網格顯示，並且其可視化(Visualization)能力，使得流場等分析結果可以在電腦螢幕上呈現，網格部分亦可視化，且經由計算檢查網格量的範圍值，可顯示出問題所在地。



3.2 數值模擬流程

共擠出數值模擬重點，在於各流道匯合區域流動情形、界面的分佈以及各參數對於流動的影響。本研究首先將以二維模型進行模擬，探討模內材料的狀態與流動行為；隨後再以三維模型來模擬與分析，在真正共擠出成形時，各流道匯合時的流動行為變化以及界面分佈情形。

模擬流程將以 Gambit 軟體建立模穴模型，設定好所需的網格類型，並將求解器設定為 Polyflow 專用模式，建立完後再輸出為 Polyflow 可以使用的圖檔格式。在 PolyData 中設定所需之物理模型(非牛頓黏性或黏彈性模型)、邊界條件及材料特性後，模擬擠出過程中流動實際情形，逐一分析模擬後的結果。分析過程如圖 3.2 所示。

3.2.1 模型建構

圖 3.3 至圖 3.4 所示為本研究中模擬所用的模型圖，合流角度 θ 有 20 度、30 度、45 度及 60 度，在模型部分先使用相同薄膜厚度比($d1:d2$)，模擬匯合角度對於流變行為的影響，其次為改變薄膜厚度模擬最適合的成形幾何形狀。

3.2.2 基本假設

1. 層流：雷諾數可視為慣性力和黏滯力之比。雷諾數較小時，黏滯力對流場的影響大於慣性力，流場中流速的擾動會因黏滯力而衰減，流體流動穩定，為層流；反之，若雷諾數較大時，慣性力對流場的影響大於黏滯力，流體流動較不穩定，流速的微小變化容易發展、增強，形成紊亂、不規則的紊流流場。高分子流體黏度高，一般均為層流，可用雷諾數(Reynolds number)表示：

$$R_e = \frac{\rho V_{avg} D}{u} \quad (3-1)$$

其中： ρ 為流體密度、 V_{avg} 為流體平均速度、 D 為管徑、 u 為流體黏度。

2. 假設流動區域為穩態流場：時間導數為零，即空間一固定點的流體物理參數保持不變，流動特性不隨時間變化。在穩流中，流體之特性可在流場中處處不同，但在任何一點上，必保持不變。
3. 不可壓縮流體：密度不隨壓力而改變。但現實情況中，密度是會隨著壓力或溫度而改變，然而，在許多情況下，高分子熔液其壓力或溫度改變，對於密度的影響相當微小，是可被忽略的。對不可壓縮流而言，必滿足 $\nabla \cdot V = 0$
4. 高分子熔液黏度大：可忽略重力與表面張力效應。
5. 當模擬高分子熔液為純黏性流動時，不考慮其彈性效應。
6. 研究範圍為流道匯合區域，假設不考慮出口及入口效應。
7. 等溫流動：在模具週遭假設為絕熱情況，不受室溫影響；內部流道部份，其料溫從入口處至出口處都保持定值

3.2.3 邊界條件設定

本研究中模擬區域為共擠出成形時流道匯合處，其模型幾何邊界設定，如圖 3.5 所示：

1. A1、A2 與 A3 為入口邊界處：假設為全展流(Fully developed)速度場，以體積流率(Volumetric flow rate)來控制擠出速度與剪切率，且入口處的熔液溫度為給定值。
2. B1 為出口邊界處：純黏性非牛頓流體其正向應力(包括壓力)與切線速度為零，用以取代至出口的長流道；黏彈性非牛頓流體，其切線速度為零，正向應力則從入口邊界條件，以全展流 (Fully developed flow) 正向速度分佈取代，用以分別表示剪切力與非零正向力。
3. C1 至 C6 為模壁邊界：假設模壁與熔液間摩擦力為無限大，熔液流過模壁時，因黏滯力之影響，使得熔液緊鄰模壁之速度為零，亦即無滑動。
4. D1 與 D2 為熔液與熔液之間的移動界面：在界面上為連續速度場和固定應力作用，法線應力(大小相等，方向相反)與切線應力(大小與方向相等)平衡。此界面在穩態流及不相容的兩流體狀況下必為流線，要滿足此條件則其運動學條件為($v \cdot n = 0$)，即法線速度為零，且熔液流動不穿過界面。一般高分子熔液黏度大，表面張力效應和黏滯力效應相比較之下可忽略，在熔液間的移動界面忽略表面張力的影響。

3.2.4 材料種類與物性質之量測與設定

本研究使用的材料有：美國奇異公司(General Electric)生產的聚碳酸酯(Polycarbonate, PC)，以及日本旭化成公司(AsahiKASEI)生產的聚甲基丙烯酸甲酯(Polymethylmethacrylate, PMMA)，其物性值如表 3.1 與表 3.2 所示。

聚碳酸酯為不定形高分子，其玻璃轉移溫度為 140°C，黏度對剪應變速率依存性小，近似牛頓流體的特性，尤其在低剪應變速率範圍內幾乎是牛頓流體；黏度對溫度依存性高，黏度因分子量多寡而定，約為 $10^4 \sim 10^5$ poise，屬於高黏度塑膠材料。常用於民生用品：光碟片，相機，鏡片、汽機車用品：儀表板，防彈玻璃、電機用品：照明器具，信號機透鏡、建築用品；採光板，裝飾條。可利用射出、擠出、吹氣、熱壓、澆注、塗佈等成形加工方法。

優點為：耐衝擊性高，耐熱及耐寒性佳，吸水性小，透光率高，尺寸安定性高，具自熄性，無毒性、耐水、弱酸，機械強度及抗潛變性高。

缺點為：耐疲勞性不佳，抗紫外線弱，抗強鹼弱

聚甲基丙烯酸甲酯，俗稱壓克力，為不定形高分子，玻璃轉移溫度為 100°C，經常用來當作玻璃的替代品，常用於代替玻璃、照明設備、光學設備、汽車零件、電機零件、日用品、醫學用品等，可利用射出、擠出、熱壓、澆注、塗佈等成形加工方法。

優點為：透光性為所有高分子最優良，達 92%，硬度高，表面光澤佳，耐候性佳，耐水、鹽、弱酸、強鹼，成形性良好，電及機械性質佳。

缺點為：耐衝擊性劣，不耐磨耗，耐強酸性弱，可溶於溶劑

3.2.5 材料流變特性之量測

流變特性主要測量方法為使用毛細管流變儀，如圖 3.6 所示。

1. 實驗前需先將材料先預烘乾去除水分，以免影響量測時的精度，PC 方面預烘乾溫度為 120 度，烘乾 4 小時；而 PMMA 烘乾溫度為 90 度，時間為 5 小時。
2. TGA 熱重分析儀：本實驗委託本校材料系分析，所使用的分析機台為 TA Instruments 所製造，型號為 TGA Q500，可分析溫度上升時，材料重量變化的狀況，可用來確定材料之分解溫度、分解速度和熱穩定性，進而決定流變特性量測時的臨界溫度，如圖 3.7 與圖 3.8 所示。
3. 毛細管流變儀：美國 Dynisco 的子公司 KAYENESS 製造，型號為 D6052M-115，使用電壓為 115Volts，可量測材料的剪切黏度及剪應力對剪應變率關係。測量程序：在料筒下安裝毛細管口模，規格為 X400-15(內徑為 1.106 mm，長度 15.24 mm，圓錐角為 120 度)，將材料添加到料筒加熱至所須溫度時，溫度穩定後，料筒上方活塞桿在驅動馬達帶動下，以一定速度(0.1-600 mm/min，相當於 $1.16-6958 s^{-1}$)，將材料從毛細管口模擠製出來。擠製過程中，可量測出下壓的壓力，並結合已知的速度參數、口模規格、溫度參數以及流變學模型，進而計算出在不同剪應變率下，融體的剪切黏度及剪應力。圖 3.9 至圖 3.12，為 PC 與 PMMA 之剪切黏度對剪應變率，以及剪應力對剪應變率的關係圖。
4. 曲線擬合(Curve Fitting)：經由毛細管流變儀測量之剪切黏度曲線數據，用來進行數值模擬前，需進行曲線擬合，以利於模擬真實情況之流變行為。圖 3.13 與圖 3.14 為使用 Modified Cross Law 所配製的曲線圖。

3.3 模擬數據擷取與分析

模擬結束後的數據資料，如壓力場、速度場、黏度與剪切率等，可在模型上做等位面、切片、向量、流線等觀察，由以上的數值分析結果，探討共擠出成形其流變參數，對於共擠出成形流道匯合區域流動影響，以及界面的分佈情況，進一步分析對於薄膜缺陷影響的原因，並設法改善解決缺陷的形成。



表 3.1 PC (Lexan*Resin 104R)物性值

項目	試驗規格	試驗條件	單位	測試數值
密度	ISO 1183	23°C	g/cm ³	1.2
融熔流動指數	ISO 1133	Load : 1.2Kg Temp : 300°C	cm ³ /10min	6.0
熱傳導係數	ISO 8302		W/m-°C	0.2
比熱	ASTM C351		J/g-°C	1.25
線膨脹係數	ISO 11359-2	Temp : 23°C-80°C	m/m-°C	7.E-05

表 3.2 PMMA (DELPET 80N)物性值

項目	試驗規格	試驗條件	單位	測試數值
密度	ASTM D792	23°C	g/cm ³	1.19
融熔流動指數	ASTM D1238(I)	Load : 3.8Kg Temp : 230°C	g/10min	2.0
熱傳導係數	ASTM C177		W/m-°C	0.21
比熱	ASTM C351		J/g-°C	1.46
線膨脹係數	ASTM D257	Temp : 20°C	m/m-°C	6.E-05

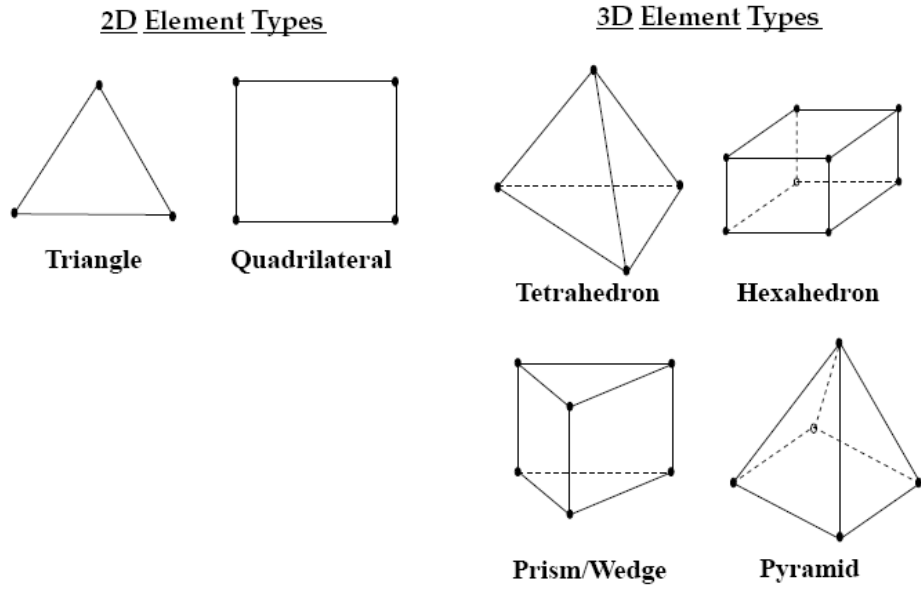


圖 3.1 Gambit網格種類 [31]

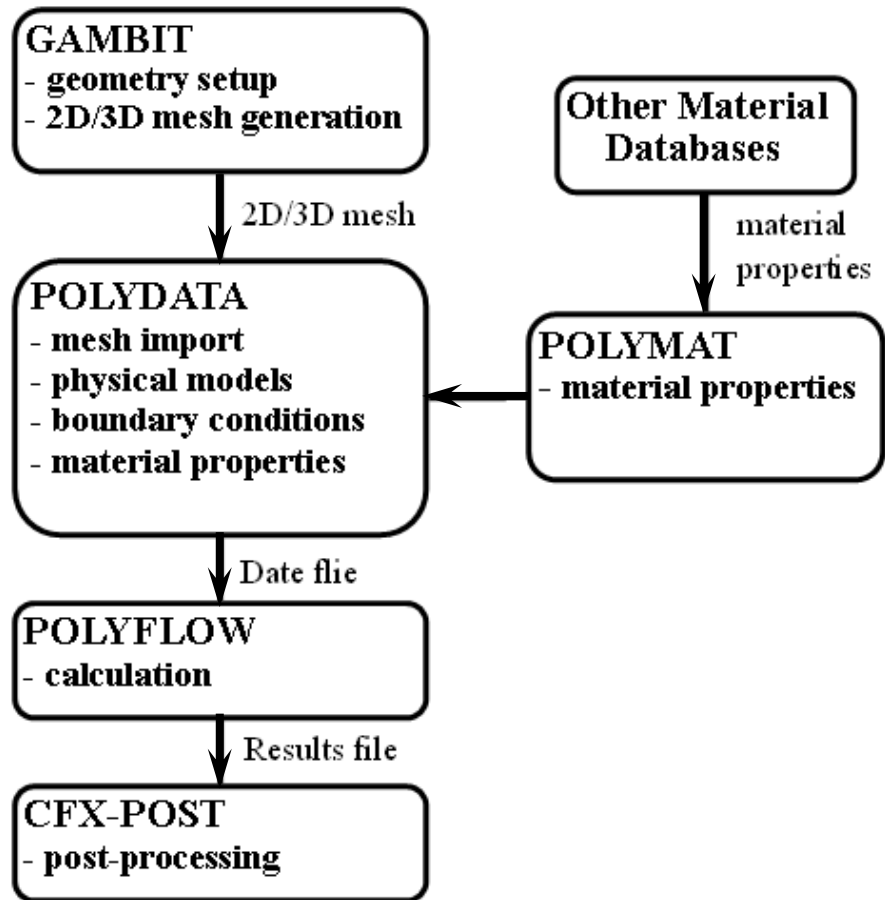


圖 3.2 擠出成形數值模擬流程圖 [31]

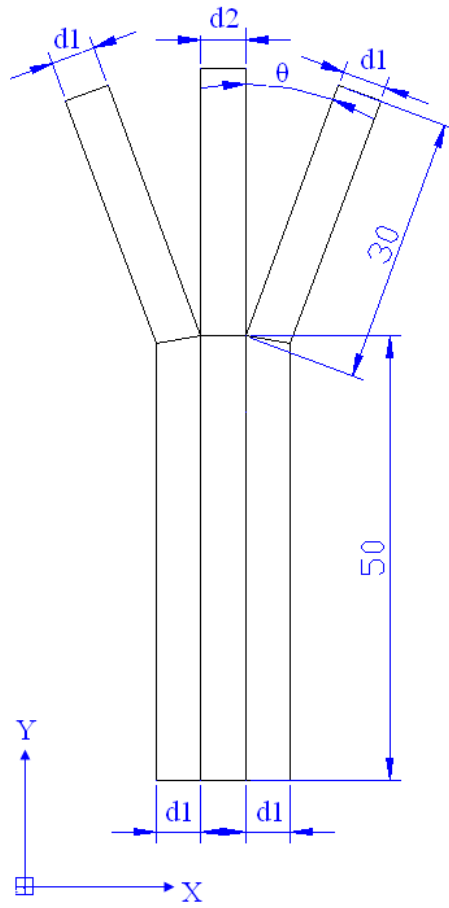


圖 3.3 二維模擬模型圖(單位：mm)

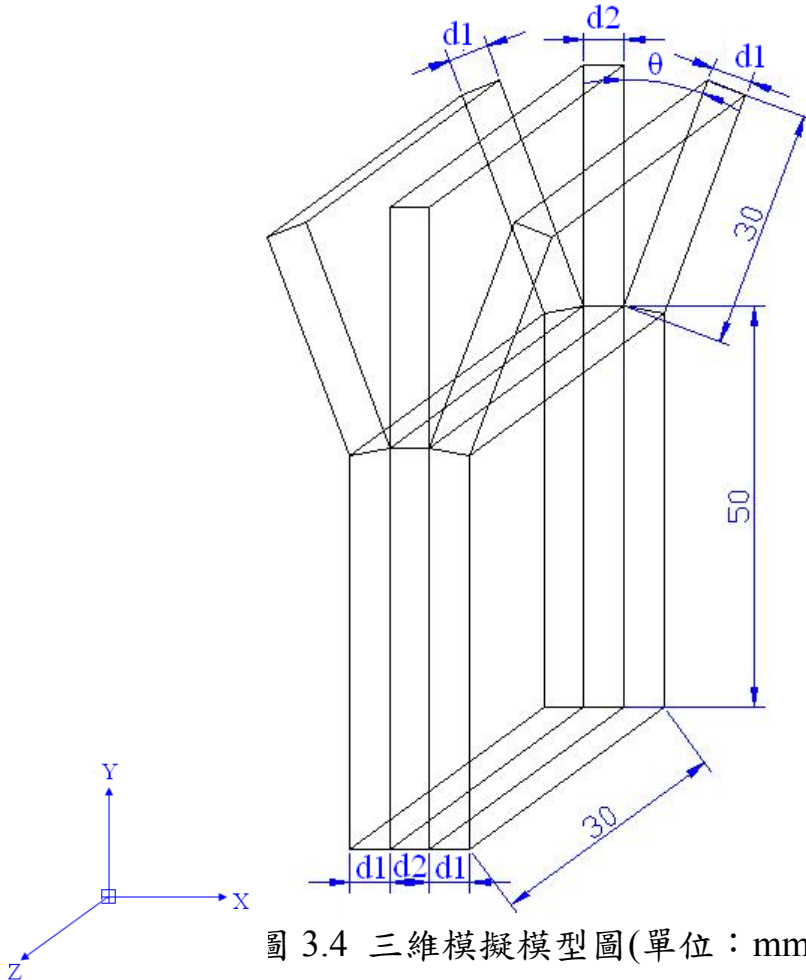


圖 3.4 三維模擬模型圖(單位：mm)

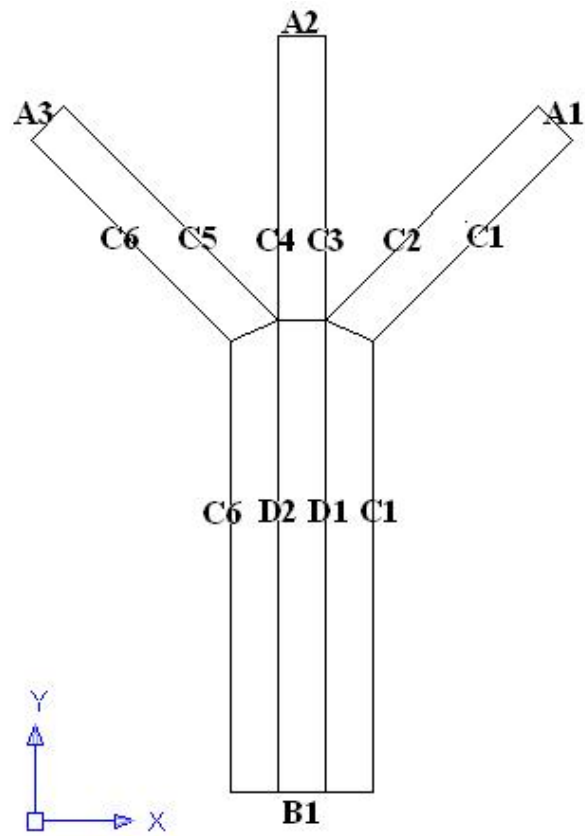


圖 3.5 模型幾何邊界設定圖



圖 3.6 毛細管流變儀

Sample: PC
Size: 14.3780 mg

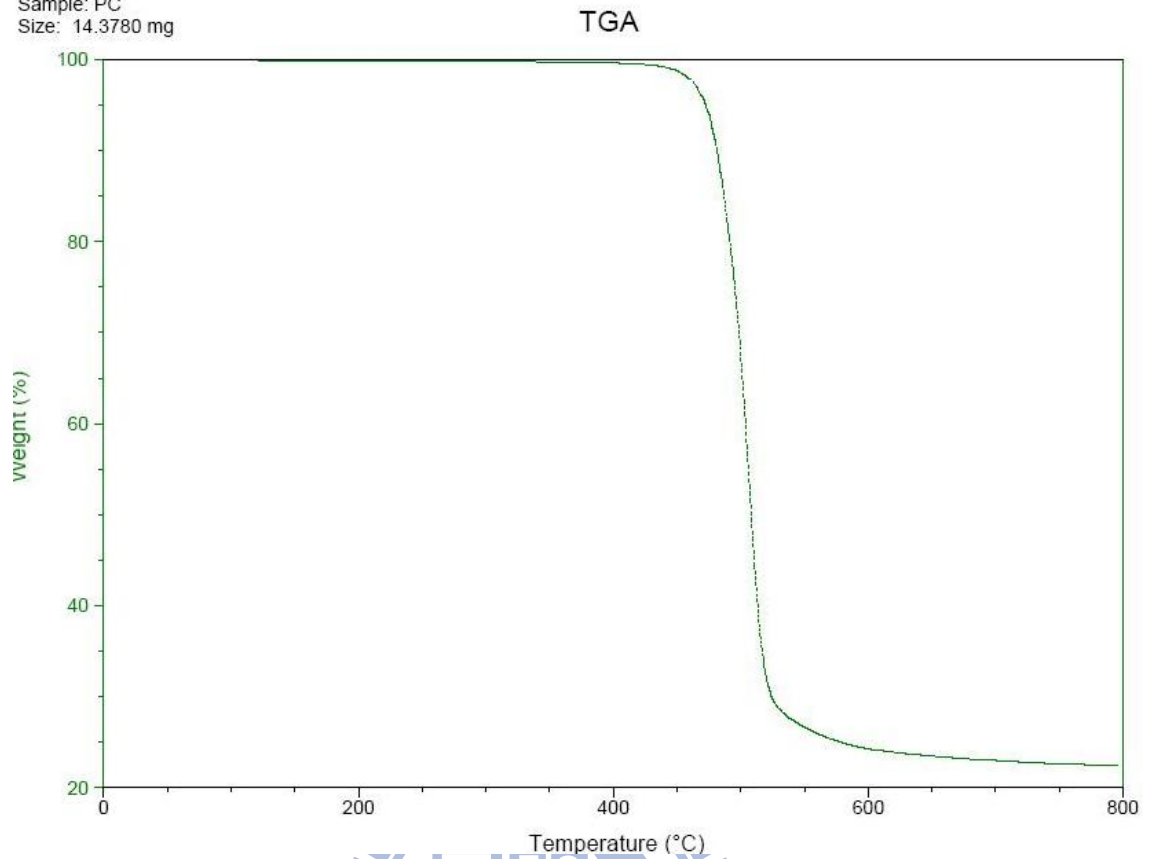


圖 3.7 PC 之熱重分析測量曲線

Sample: PMMA
Size: 19.2640 mg

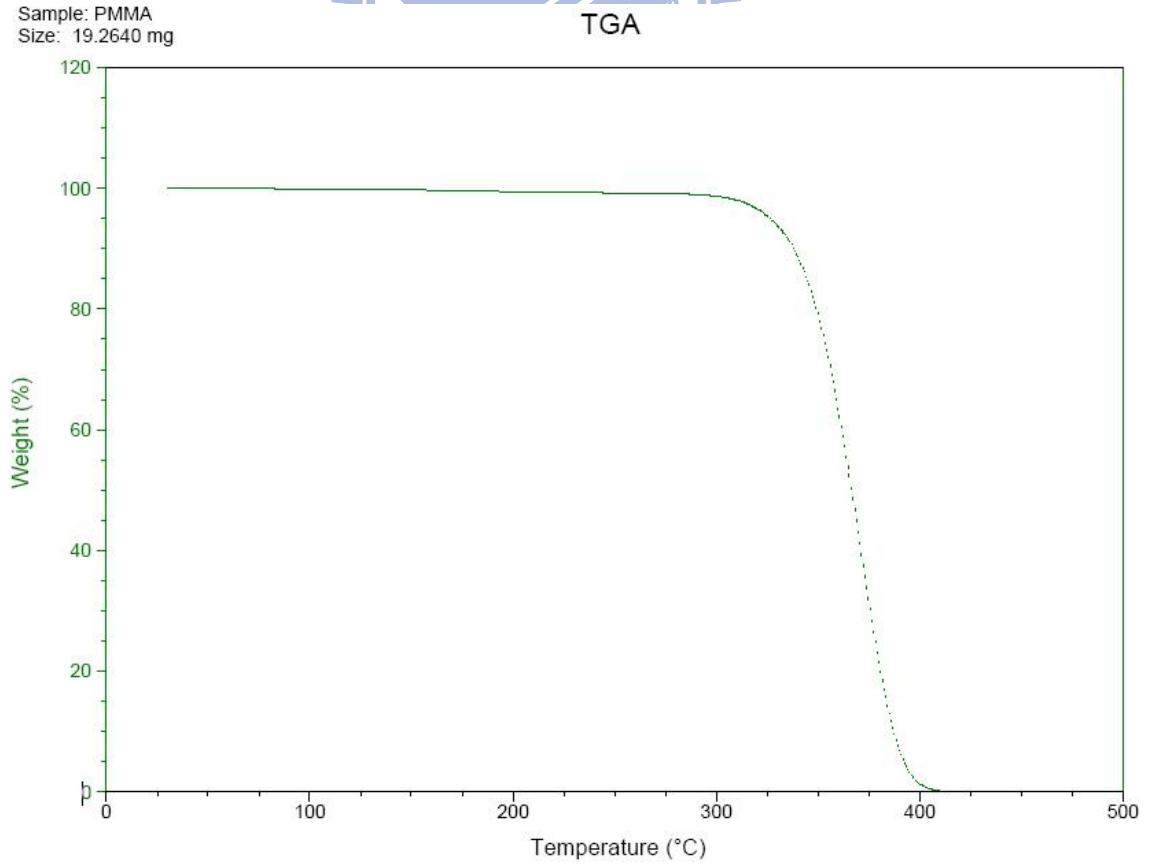


圖 3.8 PMMA 之熱重分析測量曲線

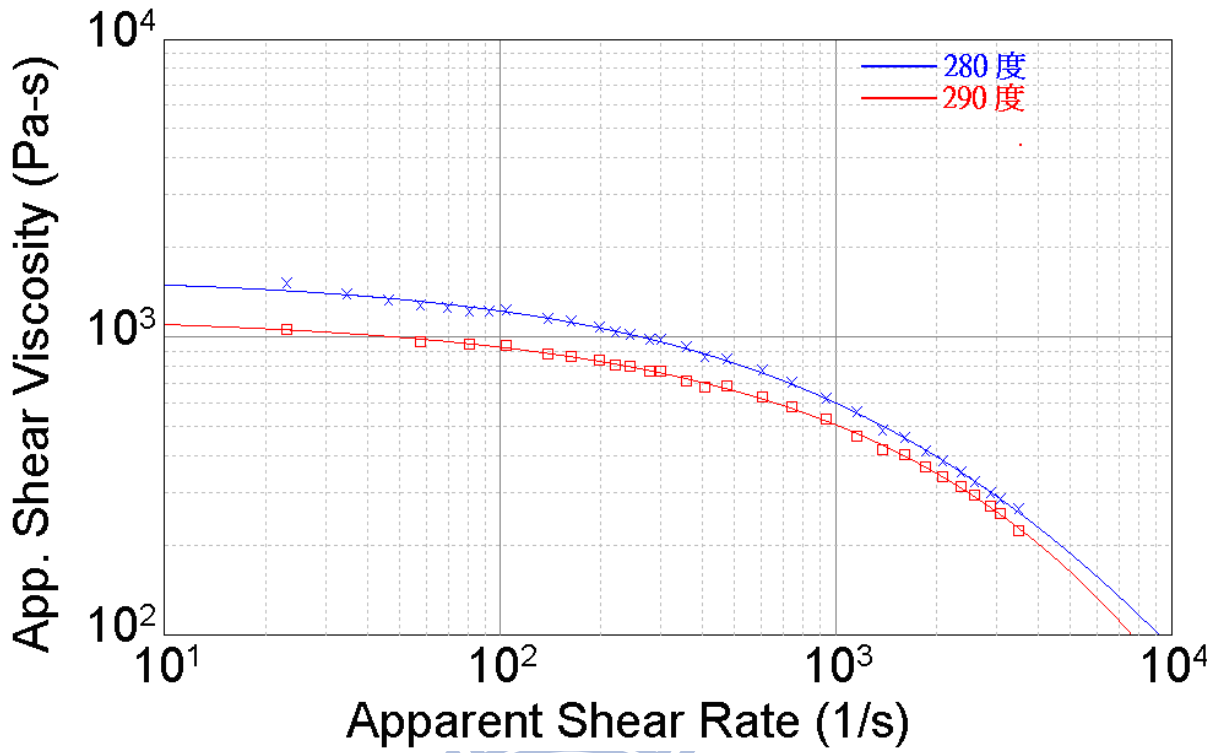


圖 3.9 PC 之剪切黏度對剪應變率實驗數據圖

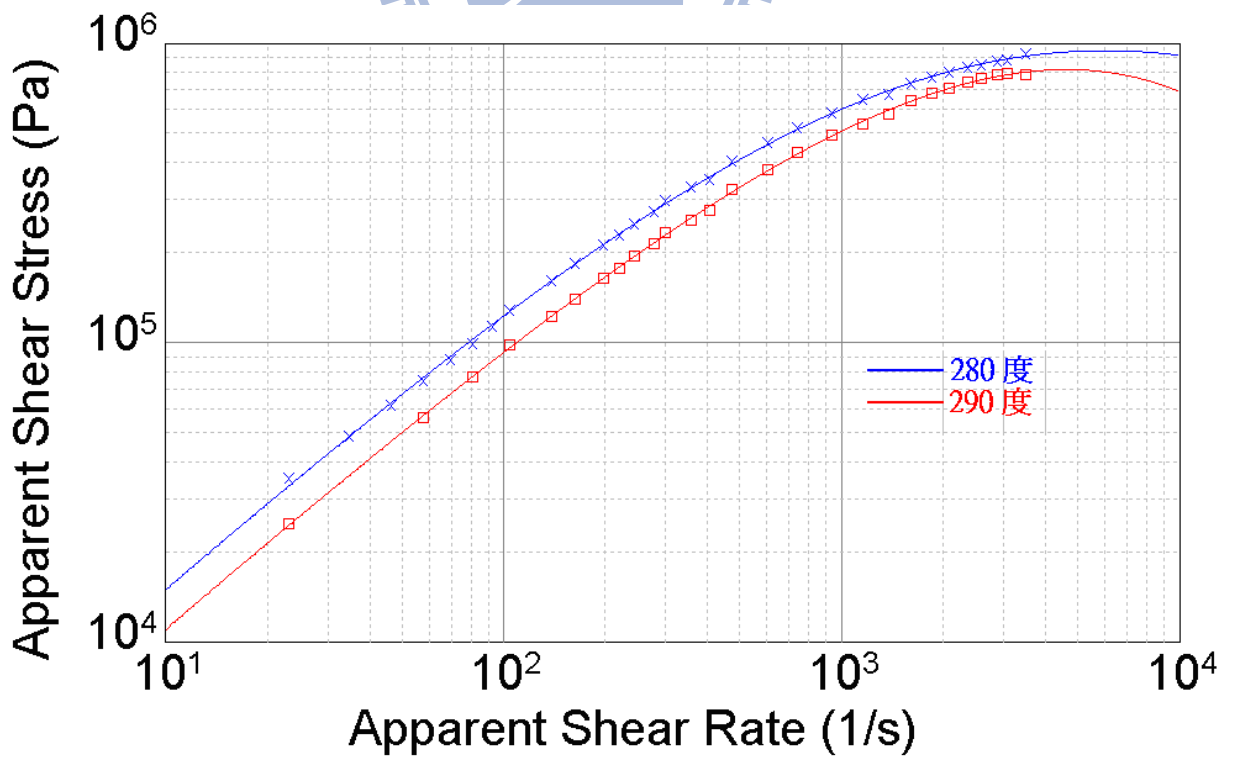


圖 3.10 PC 之剪應力對剪應變率實驗數據圖

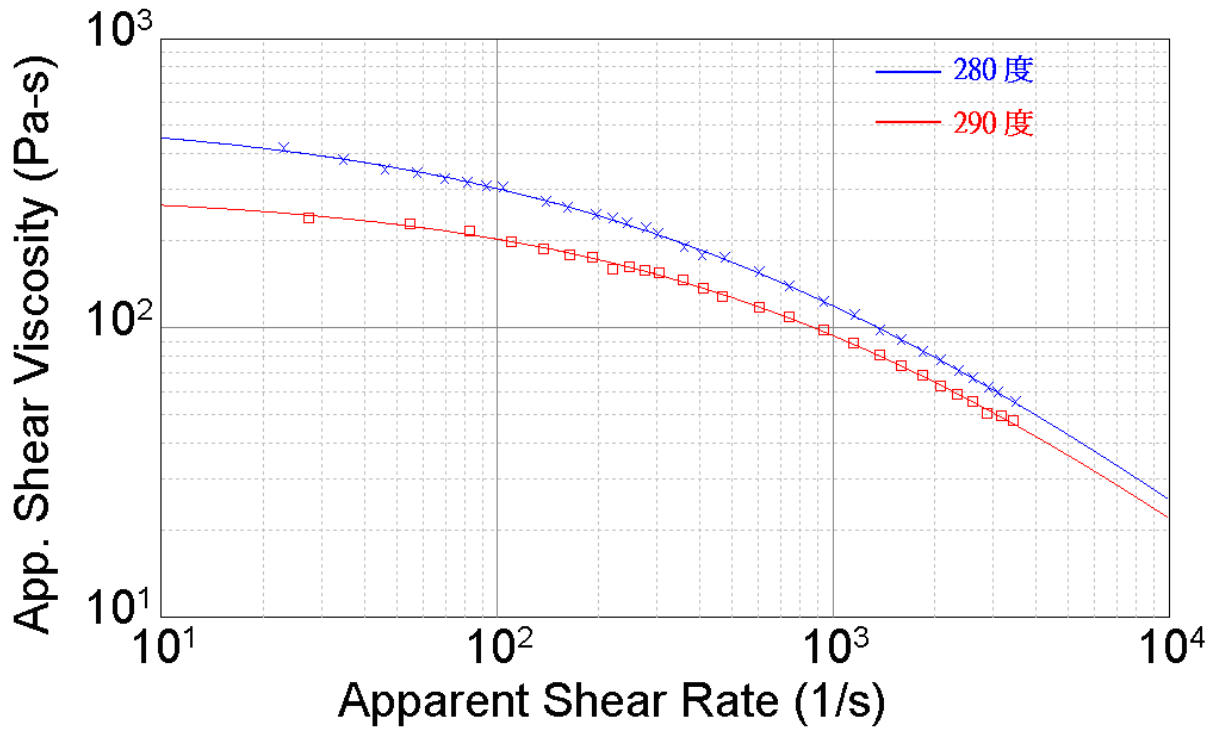


圖 3.11 PMMA 之剪切黏度對剪應變率實驗數據圖

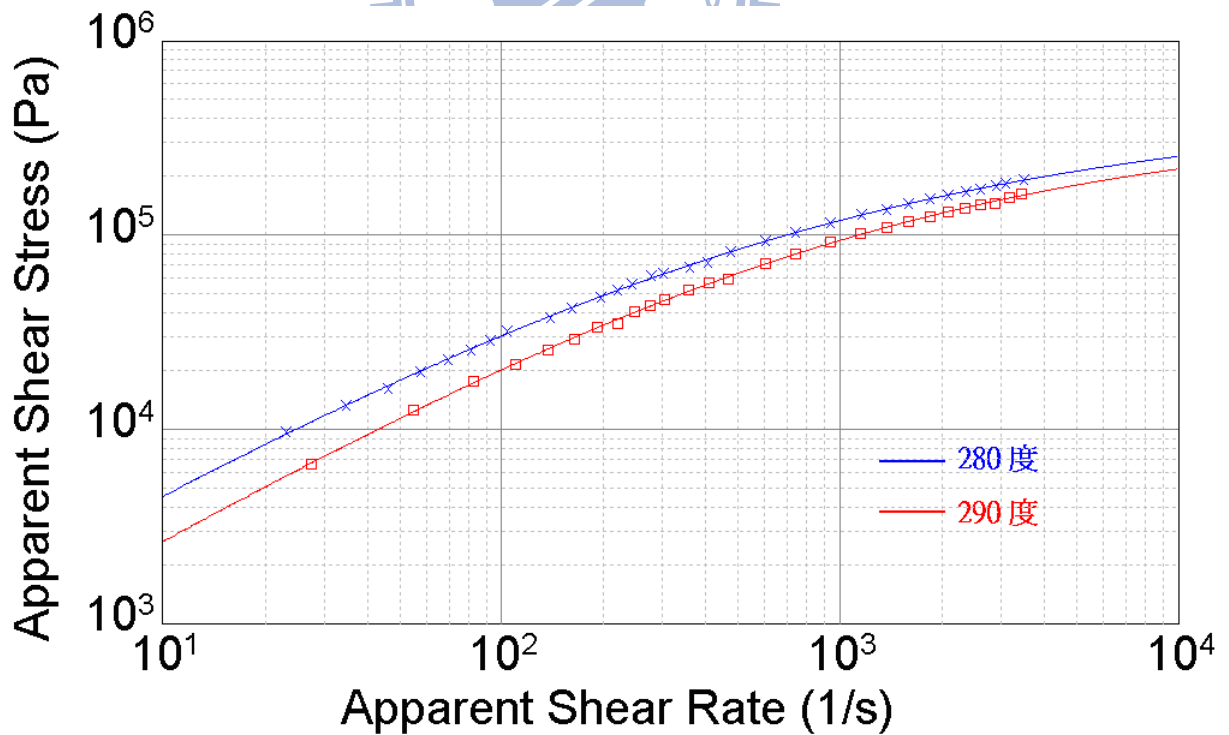


圖 3.12 PMMA 之剪應力對剪應變率實驗數據圖

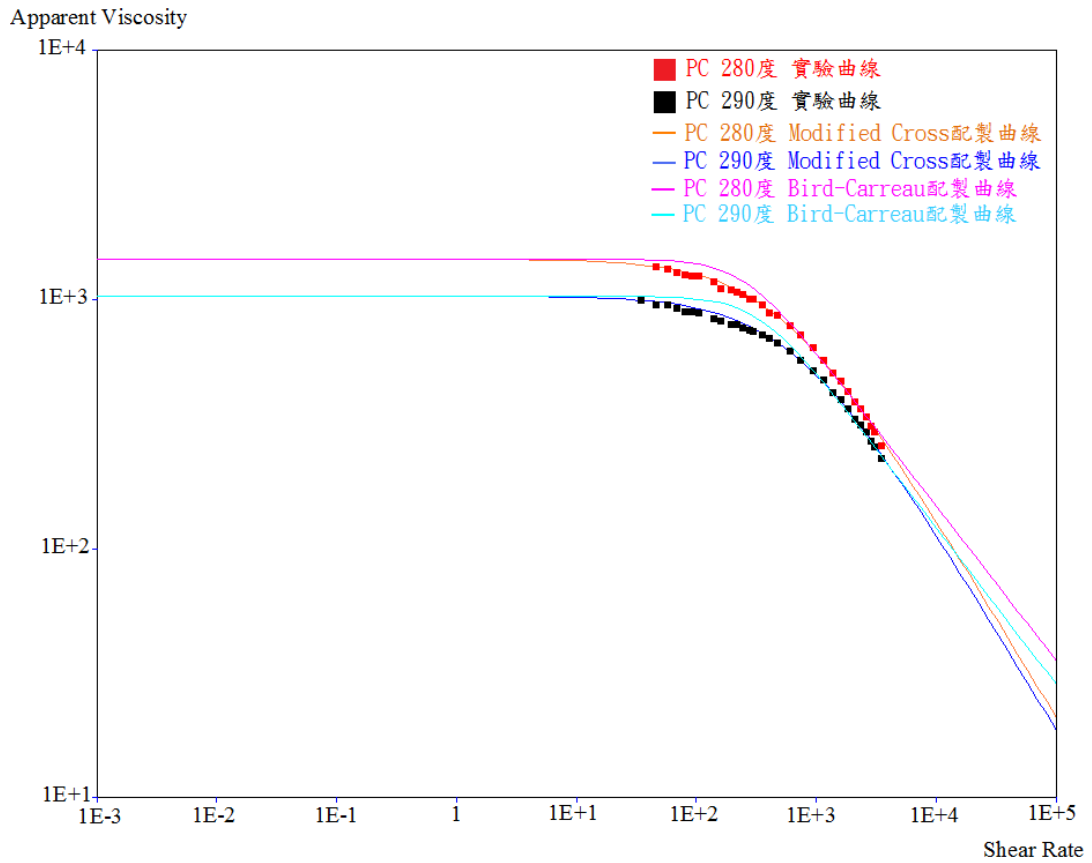


圖 3.13 PC 黏度曲線配置圖

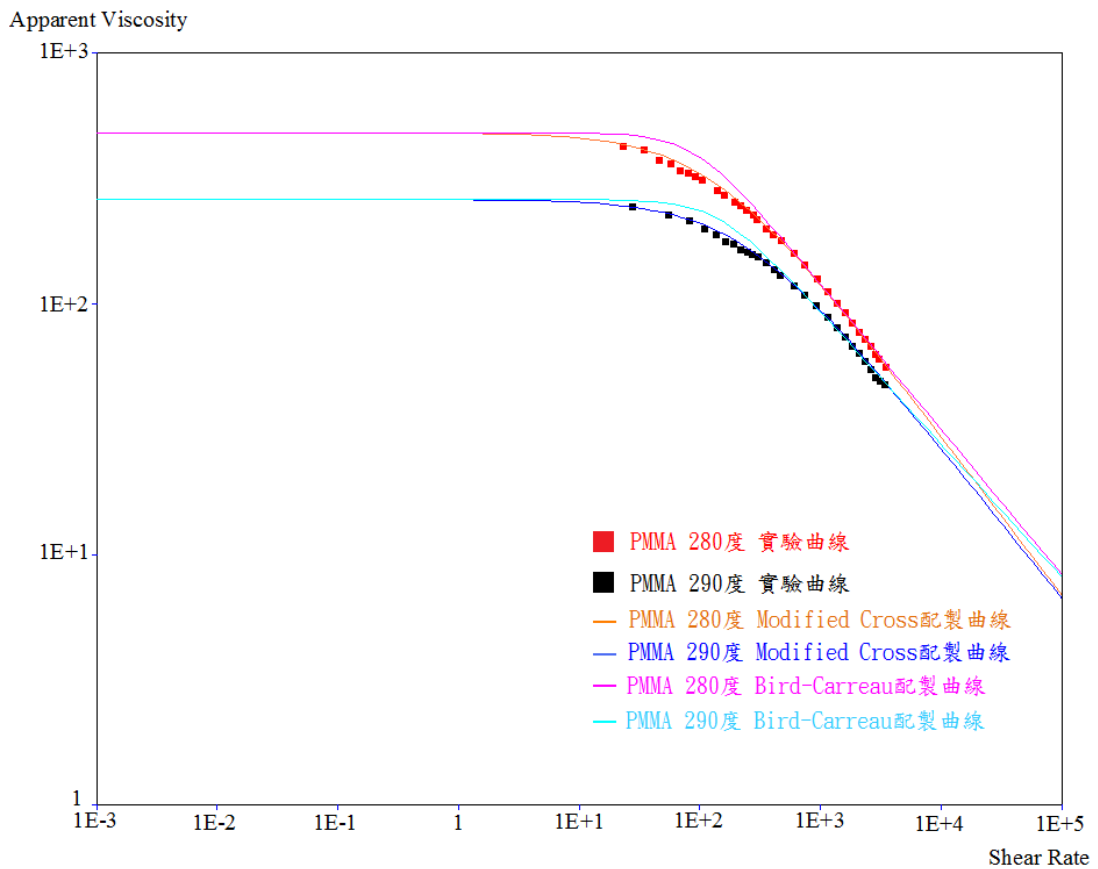


圖 3.14 PMMA 黏度曲線配置圖

第四章 匯合角、擠出速度、黏度等對於共擠特性的影響之初步結果

本研究的數值模擬重點，在於各流道匯合區域流動情形、界面分佈狀況及各參數對於流動行為的影響，採用 Modified Cross Law 進行三層共擠出模擬分析。本研究首先將以二維模型進行模擬，探討流道匯合角度、材料黏度比、擠出速度比以及薄膜厚度比，對於共擠出成型之流動行為影響性；隨後再以三維模型來模擬與分析，在真正共擠出成形時，各流道匯合時的流動行為變化以及界面分佈情形。

4.1 成型參數設定

4.1.1 材料黏度設定

如圖 4.1，模擬將先以相同材料剪切黏度，再以支流路(Sub-channel, Fluid 1)為聚碳酸酯(Polycarbonate, PC)、主流路部分(Main-channel, Fluid 2)為聚甲基丙烯酸甲酯(Polymethylmethacrylate, PMMA)之剪切黏度比(約為 3:1)進行模擬，探討黏度比值對於共擠出薄膜其流動行為變化以及界面分佈情形的影響。圖 3.13 及 3.14 分別為其黏度對剪切率於 280°C 及 290°C 量測關係圖。表 4.1 為使用 Modified Cross Model 所配製的材料參數表。

4.1.2 成型條件

共擠出成形時，入口處溫度及模溫皆為 280°C，模具周遭設定為絕熱的情形，亦不會受到室溫的影響。

合流角度 θ ：20°、30°、45° 及 60°。

入口速度將以支流路(Fluid 1)與主流路(Fluid 2)擠出速度比($V_1:V_2$)進行模擬。

薄膜厚度比：支流路與主流路厚度比($d_1:d_2=1、1/3、1/5$)。

4.2 二維共擠出模擬結果

本節討論三層共擠出二維數值模擬，如圖 4.1 為其匯合區之二維網格圖，共 6000 個四邊型結構性(Quadrilateral)網格與 12792 個節點(node)，除匯合角度 θ 不同外，其流道總長度 80mm，入口處厚度(d1、d2 為可調整)為 5mm，出口處厚度為 15mm，流體於 30mm 處接觸，再經由 50mm 流至出口，先探討匯合角度、擠出速度比與黏度比，可能造成鯊魚皮等缺陷的原因，其次，再改變薄膜厚度的影響性。

4.2.1 匯合角度之影響

探討匯合角度在流道匯合時，對流場變化以及界面分佈情形的影響，使用四組不同匯合角度，分別為 20° 、 30° 、 45° 及 60° ，相同的擠出速度比(V_1 與 V_2 各為 6、3cm/s)和黏度比。

如圖 4.2 所示為匯合角度對薄膜界面分佈位置影響性，可觀察到以相同擠出速度比和黏度比進行二維模擬時，由於界面位置在二維模擬時，其表現方式為一維座標，故無法有效呈現其實際分佈位置，顯現出來結果為匯合角對於界面分佈位置並無太大影響，需從三維模擬才可觀察真實的分布狀況。

由圖 4.3 速度分佈曲線圖，與圖 4.4 的速度等高線分佈圖觀察，在進入匯合區域時，主流與支流的速度場都會重新分配，支流路的塑料由於流道幾何限制，在進入匯合區時會隨著角度變大，其速度梯度分佈中心會往外偏向支流路模壁處，導致在匯合角週遭的速度梯度呈現較緩慢分佈，使其在匯合角的剪切率會較小；但在支流路模壁轉角處隨著匯合角度越大，速度梯度中心會越偏向支流路模壁轉角處，使模壁與熔液間剪切率變大，如圖 4.5 為其匯合後剪切率的分佈曲線圖。由之前的文獻得知當模壁與熔液間的臨界剪應力超過 0.14Mpa 時，薄膜表面可能會產生鯊魚皮現象，圖 4.6 為匯合後剪應力的分佈曲線圖，得知當匯合角度越大時，模壁剪應力會越來越大，在擠製薄膜時應縮小匯合角度，以避免模壁產生過大臨界剪應力。圖 4.7 為其界面剪應力差曲線圖。

4.2.2 入口擠出速度比之影響

參數設定方面將以相同匯合角度、黏度比，在擠出速度方面，改變支流路的擠出速度，從 3cm/s、6cm/s 至 15cm/s，而主流路則以固定擠出速度 3cm/s 來進行共擠出模擬。

由圖 4.8 可觀察到當支流路截面積保持定值，而擠出速度逐漸增加後，其匯合角週遭與支流路模壁的剪切率會逐漸上升，另外，如圖 4.8(c)所示在高擠出速度比時，熔液匯合後的速度分佈曲線，需經由較長的擠出距離才會呈現較均勻分佈，使得薄膜界面都在高剪切率過程中擠出。在圖 4.9 剪切率分佈圖上，可明顯的觀察到開始匯合時，當擠出速度上升，模壁面與熔液間界面剪切率都明顯上升，另外在匯合後的分佈曲線上(B-B 至 G-G 線段)，可觀察到熔液間界面因支流路擠出速度變大，而使得界面週遭速度差增大，其剪切作用隨之增大，而產生更大的剪切率。圖 4.10 為匯合後之剪應力分佈曲線圖，得知當支流路擠出速度越快，對於模壁與界面的剪應力都超過臨界剪應力，可能導致鯊魚皮與界面不穩定產生。圖 4.11 為其界面剪應力差曲線圖。

4.2.3 黏度比之影響

參數方面將以相同接觸角度、擠出速度，在黏度方面將先以預設的 1:1 黏度比，而後再以實際量測的 3:1 黏度比，來比較黏度對於共擠出過程中，對於薄膜界面、模壁面與出口處界面分佈情形的影響。

在共擠出製程中，若材料黏度有差異時，界面位置將會從黏度高的材料逼近黏度低的材料，支流路黏度較高將造成主流路截面積縮小，而導致主流路在匯合後的速度會明顯高於支流路的擠出速度，而造成剪切率明顯上升的情形，直到出口處時，界面的剪切率都會明顯高於黏度比相同的材料，如圖 4.12 與圖 4.13。當主流與支流路黏度有差異會使得其剪應力分佈不連續，可能會導致界面扭曲產生，如圖 4.14 與圖 4.15 所示。

另外，黏度差異過大、總擠出速度增大與角度差異，也會導致薄膜包覆情況變嚴重，此情況須在三維模擬時才可觀察到，將於下一節討論。

4.3 三維共擠出模擬

在三維共擠出模擬方面，為了簡化計算過程與避免計算結果發散，在模型方面採用對稱型模型，如圖 4.1 所示之三維網格圖，共 10800 個四邊型結構性(Quadrilateral)網格與 13536 個節點(node)，除匯合角度 θ 不同外，其流道總長度 80mm，入口處厚度(d_1 、 d_2 為可調整)為 5mm，出口處厚度為 15mm，薄膜寬度為 30mm($Z=30\text{mm}$)，流體於模具入口下游 30mm 處接觸，再經由 50mm 流至出口，同樣先探討匯合角度、擠出速度比與黏度比，可能造成鯊魚皮與包覆現象的原因，其次，再探討薄膜厚度在擠出過程中的影響性。

4.3.1 匯合角度之影響

探討匯合角度在流道匯合時，對流場變化以及界面分佈情形的影響，使用四組不同匯合角度，分別為 20° 、 30° 、 45° 及 60° ，相同的擠出速度比 (V_1 與 V_2 各為 6、3cm/s) 和黏度比。

如圖 4.16、圖 4.17 與圖 4.18 所示，速度、剪切率與剪應力分佈圖，取樣位置在薄膜寬度為 15mm 處 ($Z=15\text{mm}$)，與二維共擠出模擬所得到的結果一致，當匯合的角度越大時，其速度梯度分佈中心會往外偏向支流路模壁處，導致在匯合角週遭的速度梯度呈現較緩慢分佈，使其在匯合角的剪切率會較小；但在支流路轉角處隨著匯合角度越大，速度梯度中心會越偏向支流路模壁轉角處，使剪切率變大而可能導致鯊魚皮或不穩定流動的產生。模壁剪應力亦隨著匯合角而增大，在擠製薄膜時應縮小匯合角度，以避免模壁產生過大臨界剪應力。圖 4.19 為界面剪應力差曲線圖。

在二維共擠出時，只可觀察到出口處其界面的平均位置，而無法得知界面處實際的分佈情形，但可在三維模擬觀測到其實際的包覆情況，如圖 4.20 所示。另外在越靠近模壁的界面處 ($Z=0\text{mm}$ 與 $Z=30\text{mm}$)，剪切率亦隨著匯合角度而增大，使得剪稀薄效應越明顯，導致材料的黏度差異越大，界面變形也越嚴重，即包覆的情形越嚴重，如圖 4.21 所示。

4.3.2 入口擠出速度比之影響

參數設定方面將以相同匯合觸角度、黏度比，在擠出速度方面，改變支流路的擠出速度，從 3cm/s、3.6cm/s、4.5cm/s 至 6cm/s，而主流路則以固定擠出速度 3cm/s 來進行共擠出模擬。

當主流道速度維持不變，支流路的擠出速度則逐漸增加，對支流路材料的剪切率會增加，材料因剪稀薄效應而導致黏度快速降低，使得內外流道黏度差異降低，可減少包覆的嚴重性，且界面的位置會隨擠出速度增加而往低黏度趨近，原因為高擠出速度融體在匯合後，受到低速度融體影響而降低速度，而低擠出速度融體則在匯合後其速度會上升，如圖 4.22 所示，從體積流率推導可得知在同樣體積流率時，若匯合後擠出速度降低則融體所流動的截面積必然會上升，反之則截面積下降；但隨著擠出速度的增加，對整個流場而言，匯合區與支流路模壁的剪切率與剪應力會隨著擠出速度而上升，其結果可能會導致鯊魚皮現象的發生，如圖 4.23、4.24、圖 4.25 與 4.26 所示。

4.3.3 黏度比之影響

在先前文獻探討中，有關包覆現象最主要的形成原因為低黏度流體包覆高黏度的流體，形成一個圓滑的界面。參數方面將以相同匯合角度、擠出速度，在黏度方面將先以預設的黏度比 1:1，而後再以實際材料量測的黏度比 3:1，來比較黏度對於共擠出過程中，對於薄膜界面、模壁面的流動行為與出口處界面分佈情形的影響。

高黏度塑料在擠出過程中，會將界面推向低黏度塑料，使其流動截面積縮小而導致速度突然增加，使界面剪切率上升，另外界面的剪應力亦呈不連續分佈，可能導致界面產生扭曲現象；而在模壁處($Z=0$ mm 與 $Z=30$ mm 處)流動時，可明顯的看出隨黏度差異越大，界面包覆情形越嚴重。主要是高黏度塑料在模壁處所受摩擦力較大而不易流動，而低黏度塑料所受摩擦力小且流動速度較快，導致在擠出過程中，模壁周圍低黏度流速快的塑料，會產生包覆高黏度塑料的現象，如圖 4.27、圖 4.28、圖 4.29、圖 4.30 圖與 4.31 所示。

4.3.4 薄膜厚度比之影響

在之前的模擬結果得知，在相同的薄膜厚度擠出時，塑料與模壁接觸面之剪應力，會隨著流道匯合角度從 20° 至 60° 而增加，可能因此而產生鯊魚皮現象，且出口處界面的包覆情形亦會隨角度而變嚴重。主流與支流黏度差過大，則會造成流體界面的剪應力不連續而可能導致界面扭曲，且包覆亦會變嚴重。另外，總擠出速度過大對支流路塑料造成黏度降低，可減少包覆情形，但要注意到剪應力會急速上升而導致鯊魚皮產生現象。

本小節主要討論的部份為改變薄膜厚度比，其次為探討擠出速度比的大小，對於流動行為的影響，以及如何去改善產生鯊魚皮或包覆的產生，模具其流道總長度 80mm，薄膜寬度為 30mm，流體於模具入口下游 30mm 處接觸，再經由 50mm 流至出口，模具的主流路的間隙高度 $d_2 = 3.0 \text{ mm}$ 為固定值，支流路的間隙高度 $d_1 = 0.3 \sim 3.0 \text{ mm}$ 為可調，合流角度 θ 則以 20° 主要模擬角度，材料方面則是支流以 PC 為擠出材料，主流路以 PMMA 為擠出材料。

首先探討支流路薄膜厚度降低對於共擠出成型的影響，在擠出速度為 1 比 1 時，可明顯的看到當支流路的厚度比減少時，在共擠出過程中因流動截面積減少，會導致流路剪切率大幅度的上升，支流路模壁外側轉角附近切率從厚度比 1:1 時約 $70(s^{-1})$ 、厚度比 0.33:1 時約 $193(s^{-1})$ 增加至厚度比 0.2:1 時約 $300(s^{-1})$ ，如圖 4.32 所示。在厚度 1 比 1 時可以觀察到一般低黏度包覆高黏度的現象，但是當支流路厚度降低時，會導致支流路的剪切率快速上升而在匯合前即產生不穩定流動，而產生高黏度融體包覆低黏度融體的現象，如圖 4.33 所示。由圖 4.34 與圖 4.35 剪應力與剪應力差分佈曲線觀察到，在薄膜厚度 1 比 3 與 1 比 5 時，匯合時其界面與模壁的剪應力都明顯超過 0.14Mpa ，且其剪應力差也明顯高於厚度 1 比 1 時，而可能發生鯊魚皮或不穩定流動現象。

為了降低支流路因薄膜厚度減少，導致在匯合前即產生過大剪切率，而發生鯊魚皮或不穩定流動現象，在此探討擠出速度比對於流動行為影響，擠出速度分別：支流路為 $V_1 = 0.6\text{cm/s}$ 、 1.2cm/s 、 1.8cm/s 、 2.4cm/s 、 3cm/s 、

3.6cm/s、4.5cm/s 與 6cm/s，而主流路為 $V_2=3\text{cm/s}$ 。首先在擠出速度比 $V_1:V_2=0.6:3$ 時，可觀察到隨支流路的擠出速度降低後，支流路模壁外測轉角附近剪切率雖然會大幅降低，如圖 4.36 在厚度比 1:1 時約 $13(s^{-1})$ 、厚度比 0.33:1 時約 $35(s^{-1})$ 、厚度比 0.2:1 時約 $57(s^{-1})$ ，且其剪應力都未超過 0.14Mpa，如圖 4.37 與圖 4.38。但剪切率降低會減少剪稀薄效應而導致黏度差異增加，使得在出口處的包覆情況變的更嚴重，如圖 4.39。另外薄膜厚度減少使得支流路部份的剪切率大幅增加，會導致匯合時內外流道黏度差異變小而無包覆現象產生，需經由一段擠出距離其黏度差異上升後，接近出口處才可觀察到明顯的包覆現象產生；而支流路截面積越大其剪切率越小，使得匯合時黏度差異過大，而提早從匯合後即產生包覆現象，如圖 4.40 所示。

由此可得知在共擠出過程中，若高黏度塑料擠出速度遠低於低黏度塑料，在擠出過程中由於黏度差異無法降低，會導致包覆現象於匯合區提早產生，若要改善此現象則須降低融體的黏度差異，在此藉提升支流路的速度來改善包覆提早產生問題，如圖 4.41 所示，支流路擠出速度提升可改善包覆現象提早產生，在厚度比 1:1 時其擠出速度比約 1.3:1、厚度比 0.33:1 時其擠出速度比約 0.7:1、厚度比 0.2:1 時其擠出速度比約 0.68:1，但對於整體界面無法達到完全均勻性分佈，其原因為提升支流路速度雖然會增加流動時的剪切率，藉此達到改善包覆提早產生現象，但增加支流路的擠出速度，反而會迫使界面位置從高黏度融體往低黏度融體方向移動，且會產生高黏度融體包覆低黏度融體的反包覆現象，觀察圖 4.42 與圖 4.43 之剪應力與剪應力差分佈圖，在厚度比 0.33:1 與厚度比 0.2:1 時，模壁與界面皆以超過文獻記載之臨界剪應力 0.14Mpa，若再提昇擠出速度比則不穩定流動現象可能加劇，而導致界面邊緣處呈現不規則的分佈情形。

4.4 非等溫系統之共擠出模擬

上一節裡討論到對於擠出速度過慢，可能會導致包覆現象提早於匯合區即產生，提升擠出速度雖可解決此問題，但卻會造成高黏度包覆低黏度融體的反包覆現象，且其剪切率也會過高，而可能導致界面不穩定流動或鯊魚皮產生。

另外，高分子由於黏度甚大，各層間在共擠出過程中由於剪切作用產生的剪切熱，會使高分子融體溫度上升而使得黏度下降，黏度與剪切率越大其所產生剪切熱越大，因此本節將探討高分子融體流動時，其產生的剪切熱對於成形流動影響性。參數方面將以接觸角度 20° ，支流與主流入口以均勻分佈的料溫為 280°C ，模壁處溫度亦為 280°C 、黏度比為 3:1、厚度比為 0.33:1 與 1:1 進行探討。

首先在厚度比 1:1，擠出速度比 $V_1:V_2 = 0.2:1$ 時，如圖 4.44 所示，非等溫出口界面位置與等溫共擠出比較，其界面會偏往主流路位置，且在出口的包覆情形較等溫擠出時嚴重。從圖 4.45 與 4.46 剪切率分佈圖與溫度分佈等高線圖可觀察到匯合時，主流路由於其擠出速度較快，高分子塑料因剪切作用產生的剪切熱較多，使主流路的黏度因溫度上升較大而導致下降幅度較多，而導致擠出過程中塑料黏度比上升；而在擠出速度比 $V_1:V_2 = 1:1$ 時，如圖 4.47 所示，則可觀察到其界面反而是偏向支流路位置，其原因為當支流路擠出速度上升後，在支流路流道因剪切作用而產生的剪切熱較多，溫度大幅上升而使得黏度會大幅度下降，而導致在擠出過程中塑料的黏度比下降，如圖 4.48 與 4.49 剪切率分佈圖與溫度分佈等高線圖，另外，當黏度隨溫度上升後而下降，也會導致擠出過程中剪應力下降，如圖 4.50 與 4.51 之剪應力與剪應力差分佈曲線圖。

而在厚度比 0.33:1，擠出速度比 $V_1:V_2 = 0.2:1$ 時，如圖 4.52 所示，非等溫出口界面位置與等溫共擠出比較，其界面亦會偏往主流路位置，且在出口的包覆情形較等溫擠出時嚴重。從圖 4.53 與 4.54 剪切率分佈圖與溫度分佈等高線圖可觀察到匯合時，主流路其擠出速度較快，高分子塑料因剪切作用產生的剪切熱較多，使主流路黏度因溫度上升較大而導致下降幅度

較多，使擠出過程中塑料黏度比上升；而在擠出速度比 $V_1:V_2=1:1$ 時，界面位置並未如預期的因黏度比下降而偏向支流路，如圖 4.55 所示，其原因為當支流路擠出速度上升後，在支流路流道因剪切作用而產生的剪切熱較多，溫度大幅上升而使得黏度會大幅度下降，在擠出過程中塑料的黏度比會下降，如圖 4.56 與 4.57 剪切率分佈圖與溫度分佈等高線圖，但由於剪應力已超過 0.14MPa，如圖 4.58(d)，而導致無法預測的界面位置產生。圖 4.59 為界面之剪應力差分佈曲線圖。



表 4.1 Modified Cross Model 材料參數表

	支流路流體(PC)	內層流體(PMMA)
Zero shear viscosity(η_0) at 280°C	1450 Pa-s	480 Pa-s
Cross-law index(m)	0.8	0.635
Natural time (λ)	0.002	0.081

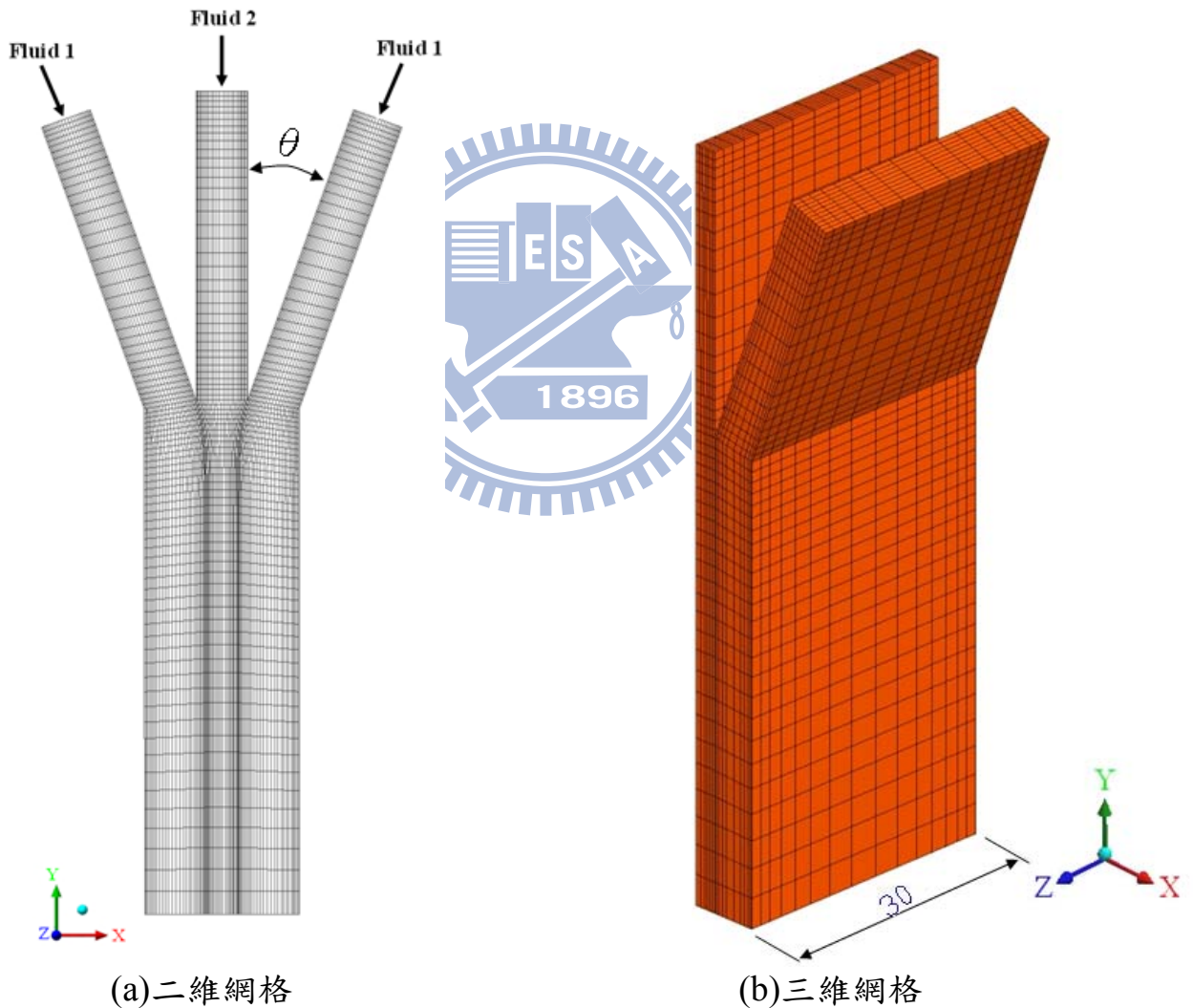
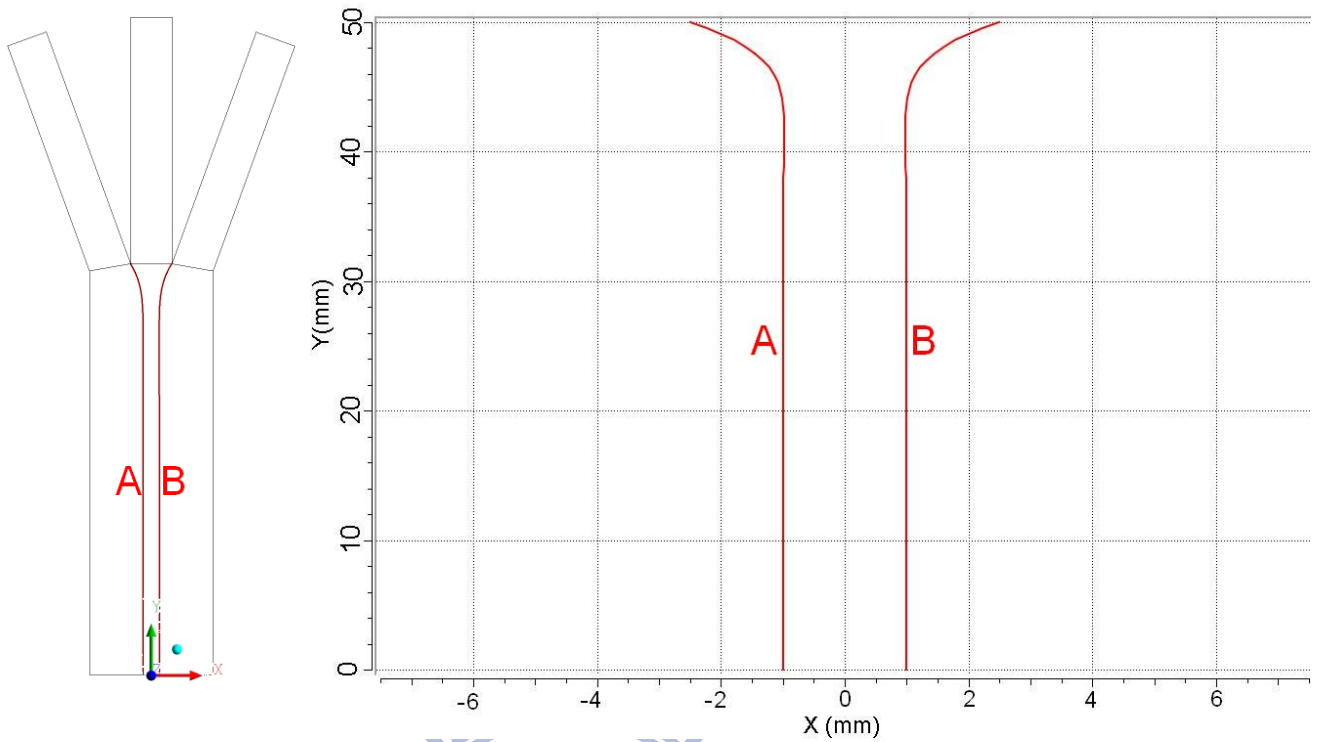
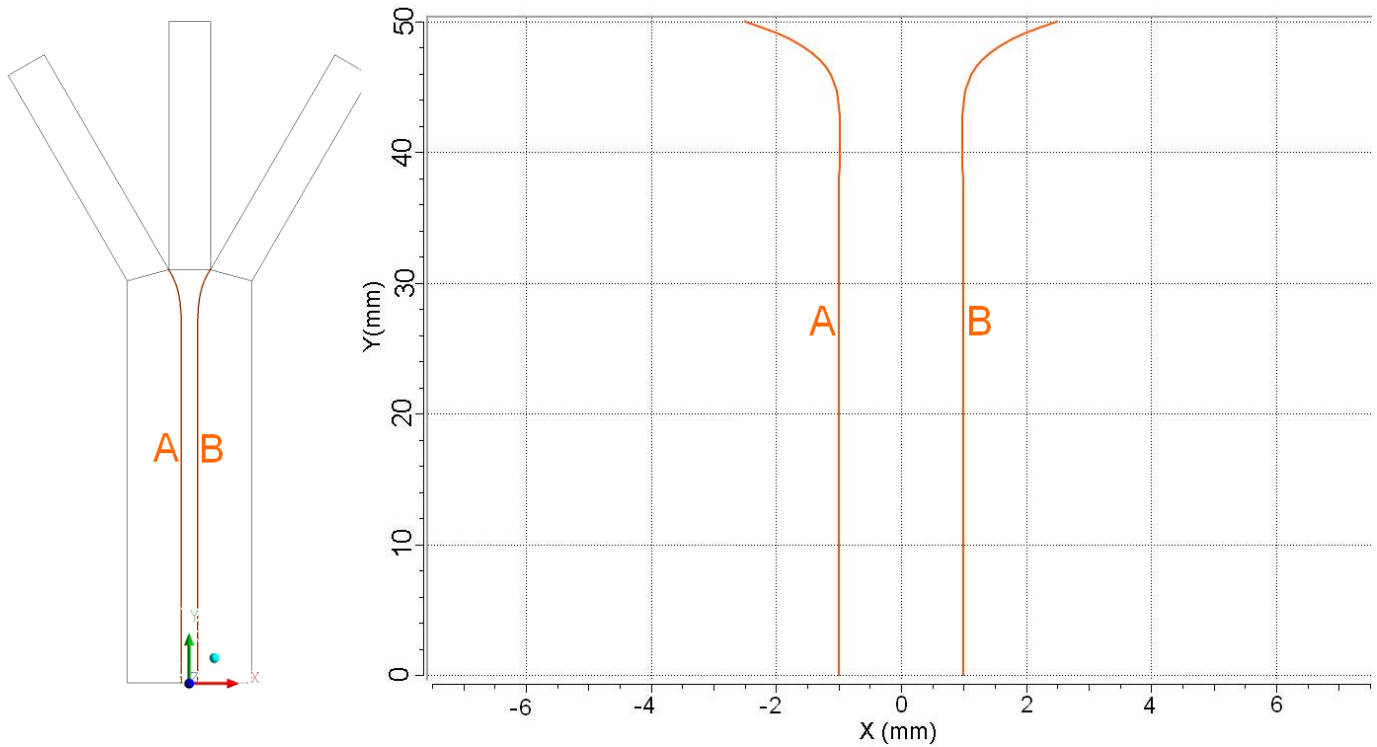


圖 4.1 (a)(b)共擠出匯合區之幾何形狀網格式圖

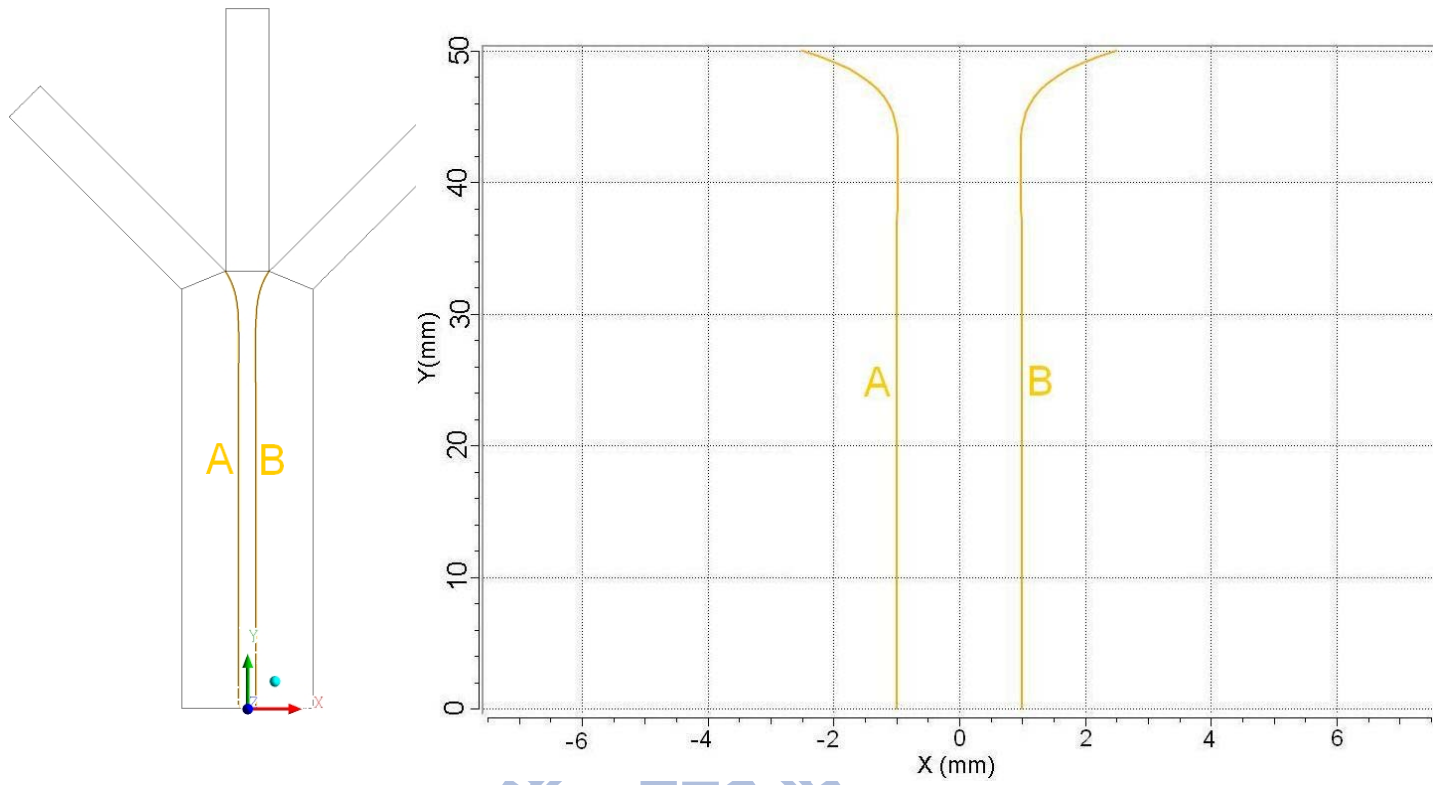


(a) 角度 20 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

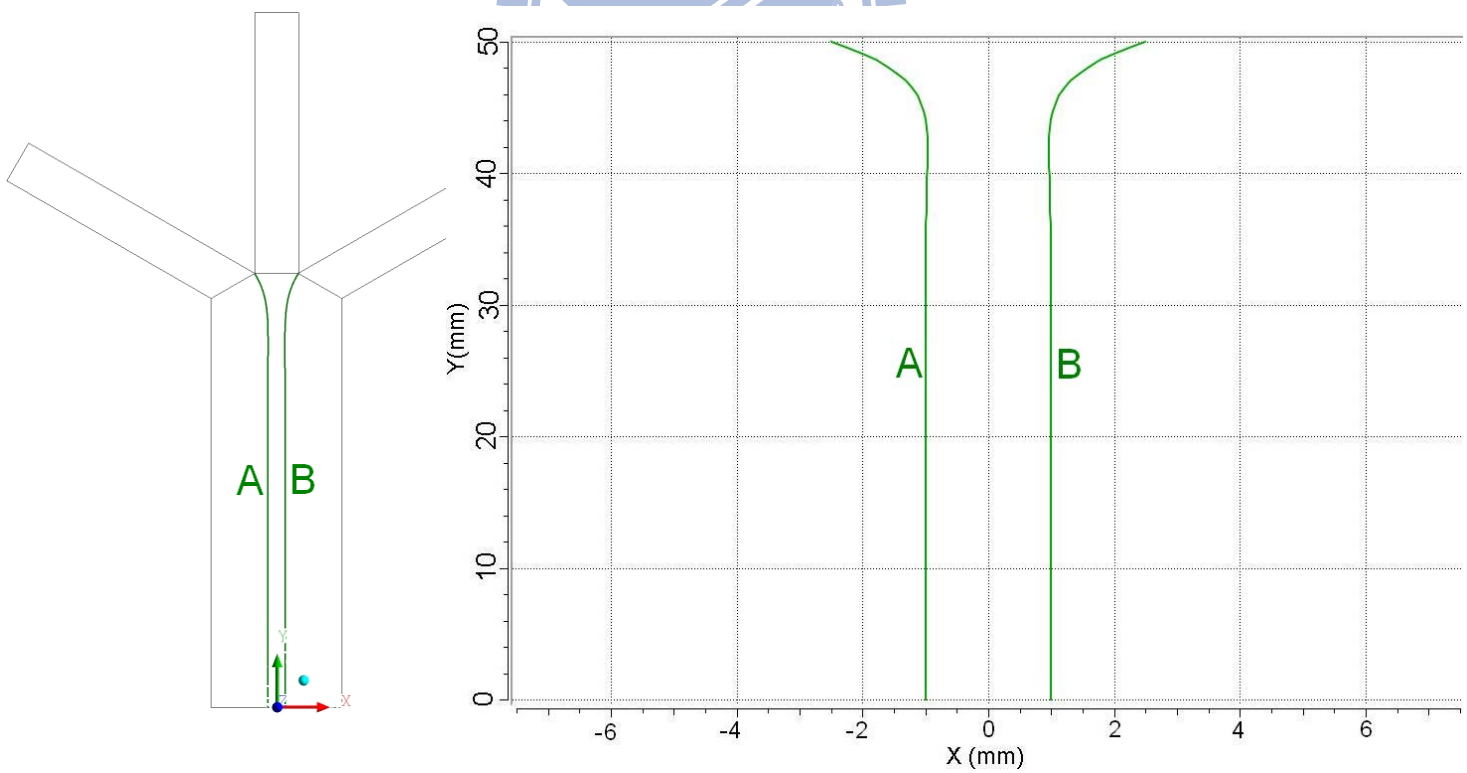


(b) 角度 30 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.2 (a)(b)(c)(d) 匯合角度對界面分佈位置影響

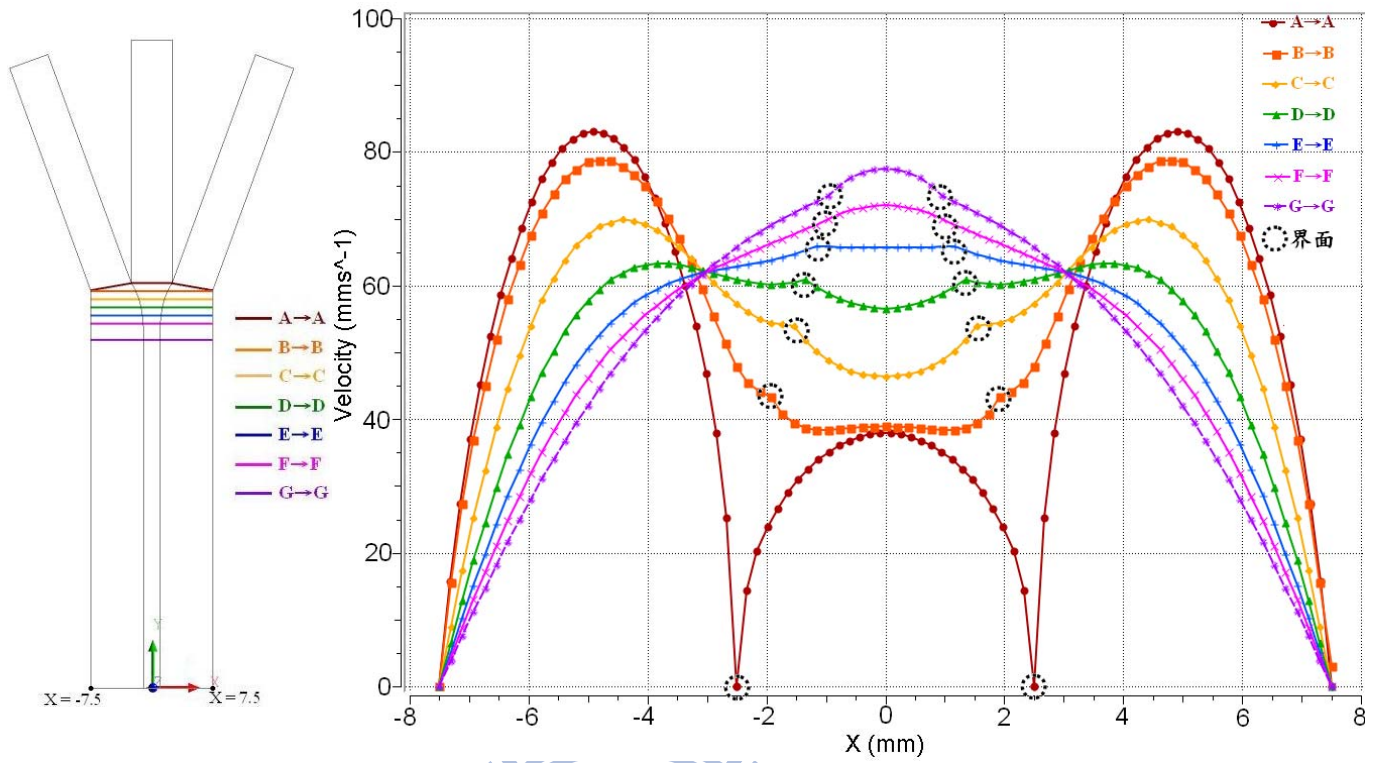


(c) 角度 45 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

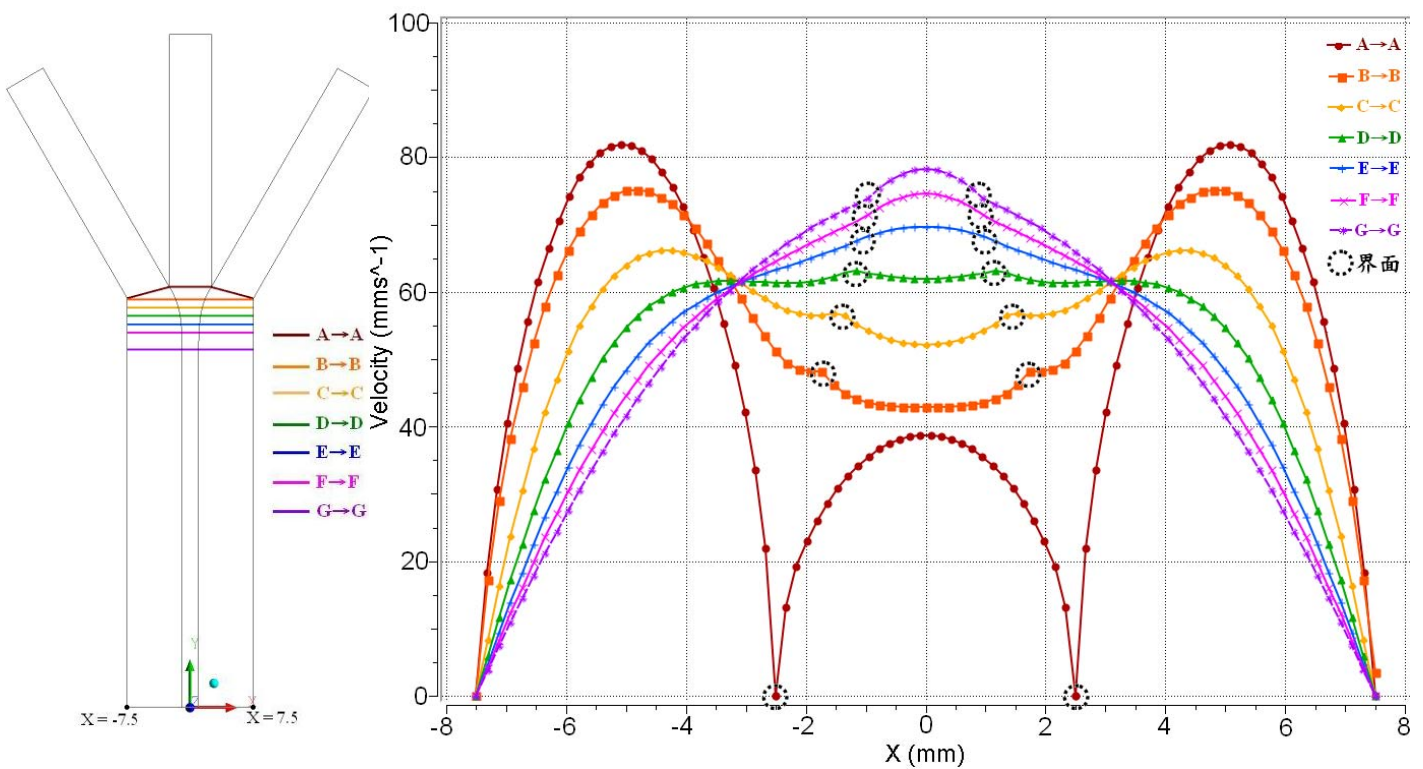


(d) 角度 60 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.2 (a)(b)(c)(d) 匯合角度對界面分佈位置影響

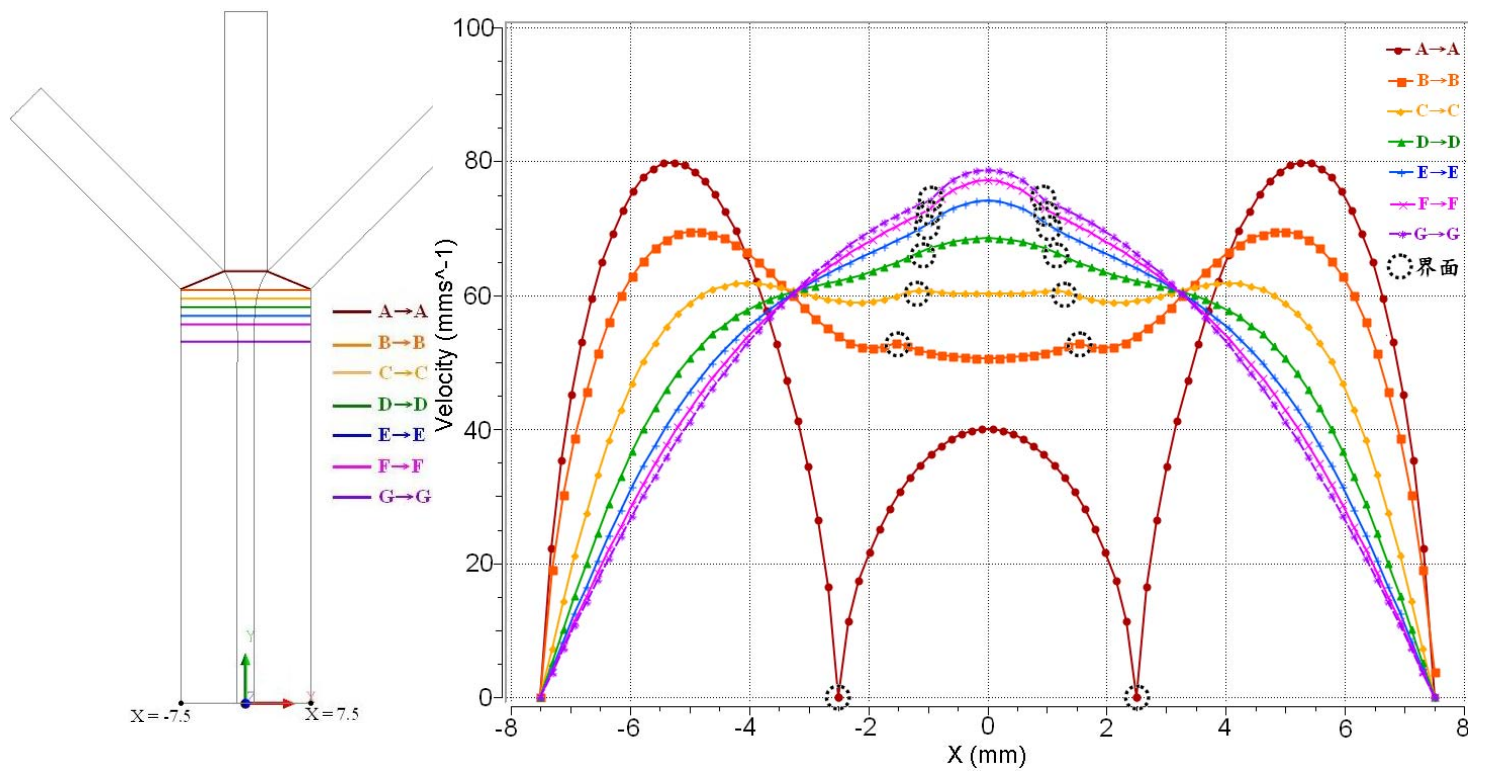


(a) 角度 20 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

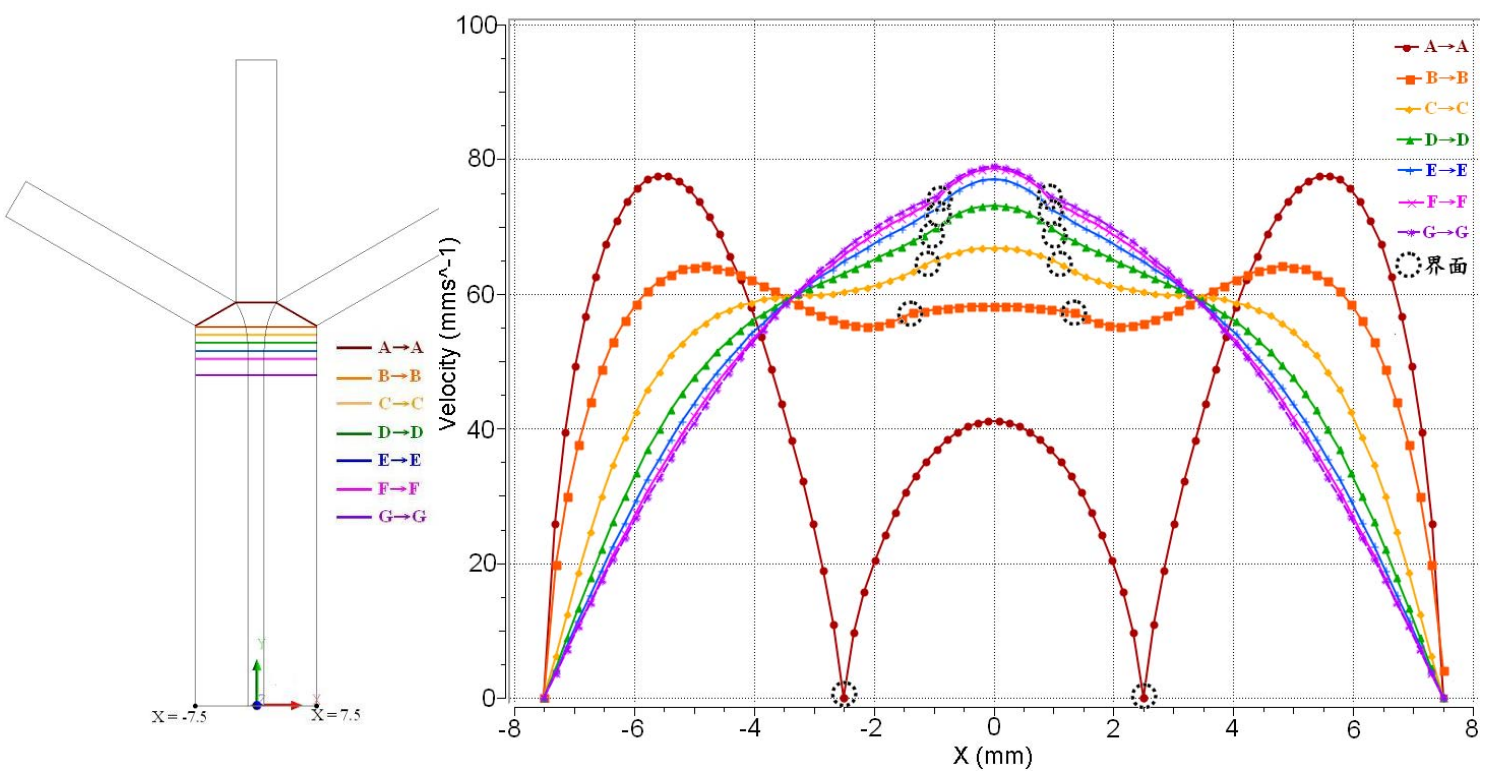


(b) 角度 30 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.3 (a)(b)(c)(d) 不同匯合角度其速度分佈曲線圖

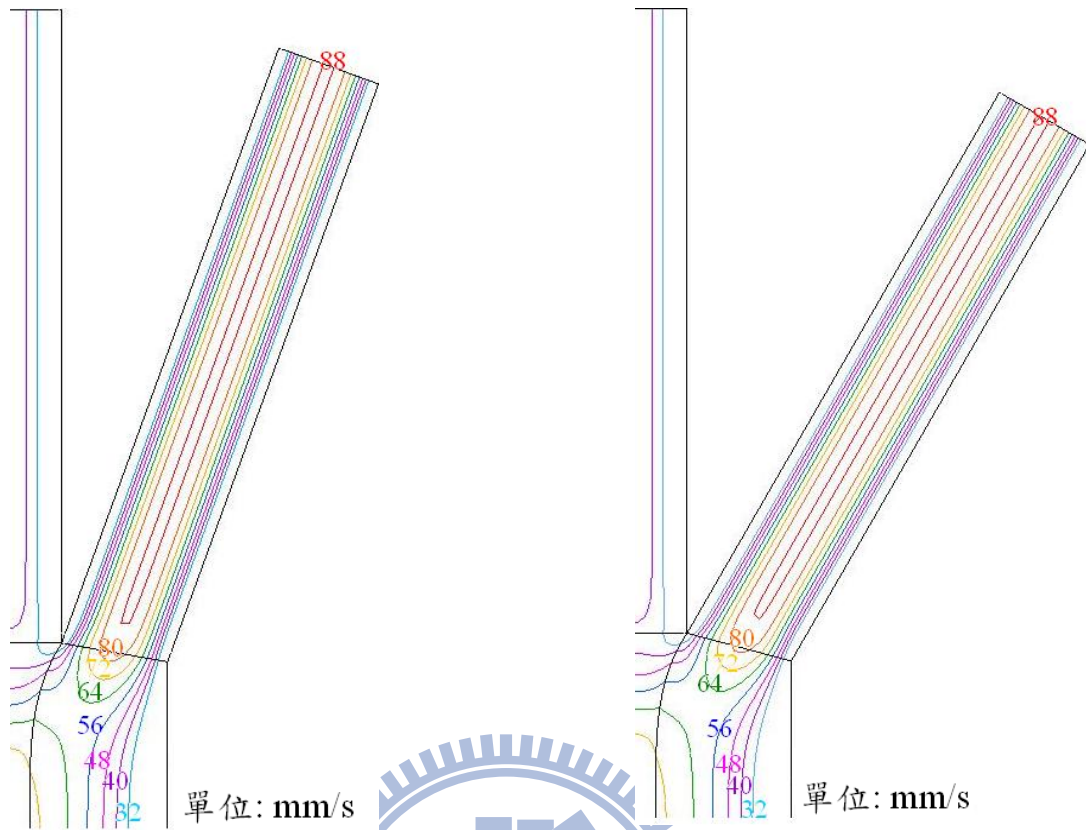


(c) 角度 45 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

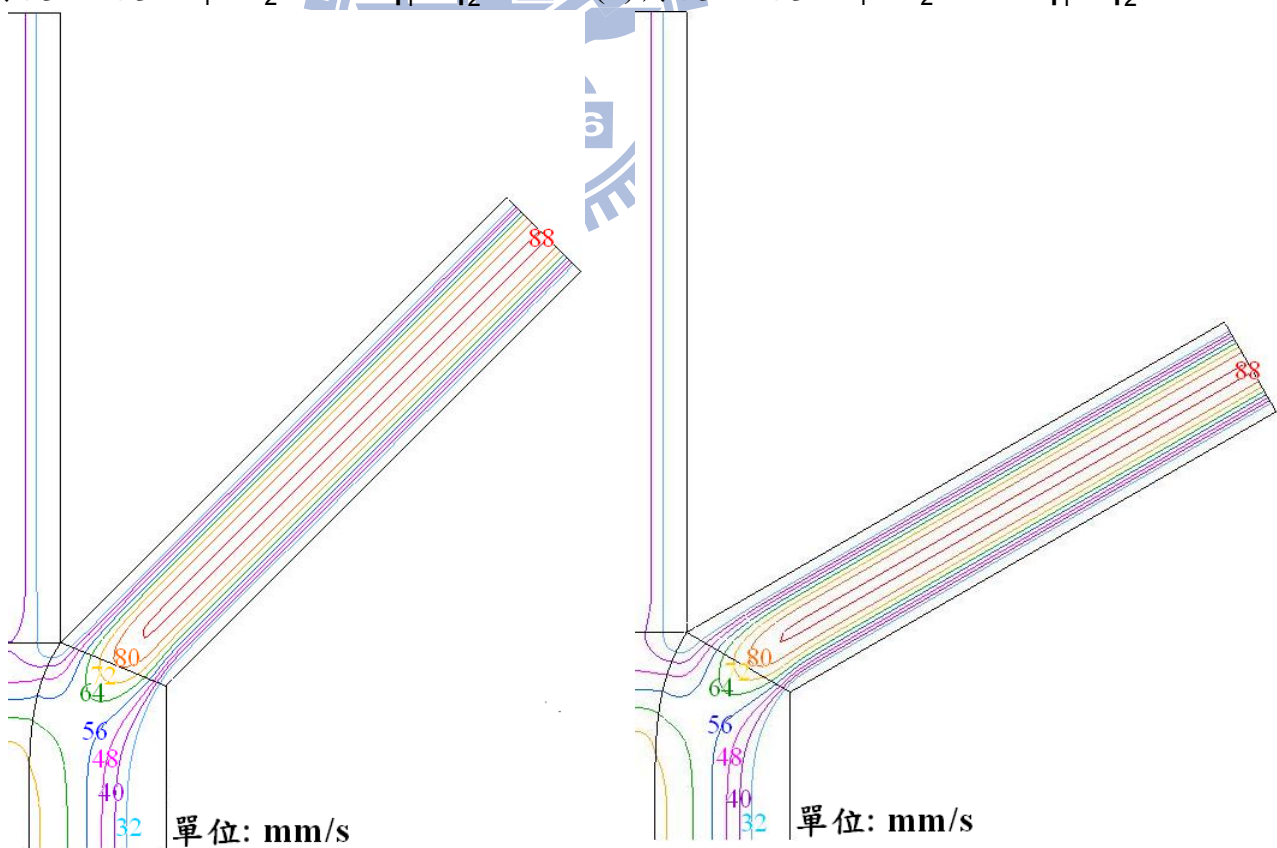


(d) 角度 60 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.3 (a)(b)(c)(d) 不同匯合角度其速度分佈曲線圖

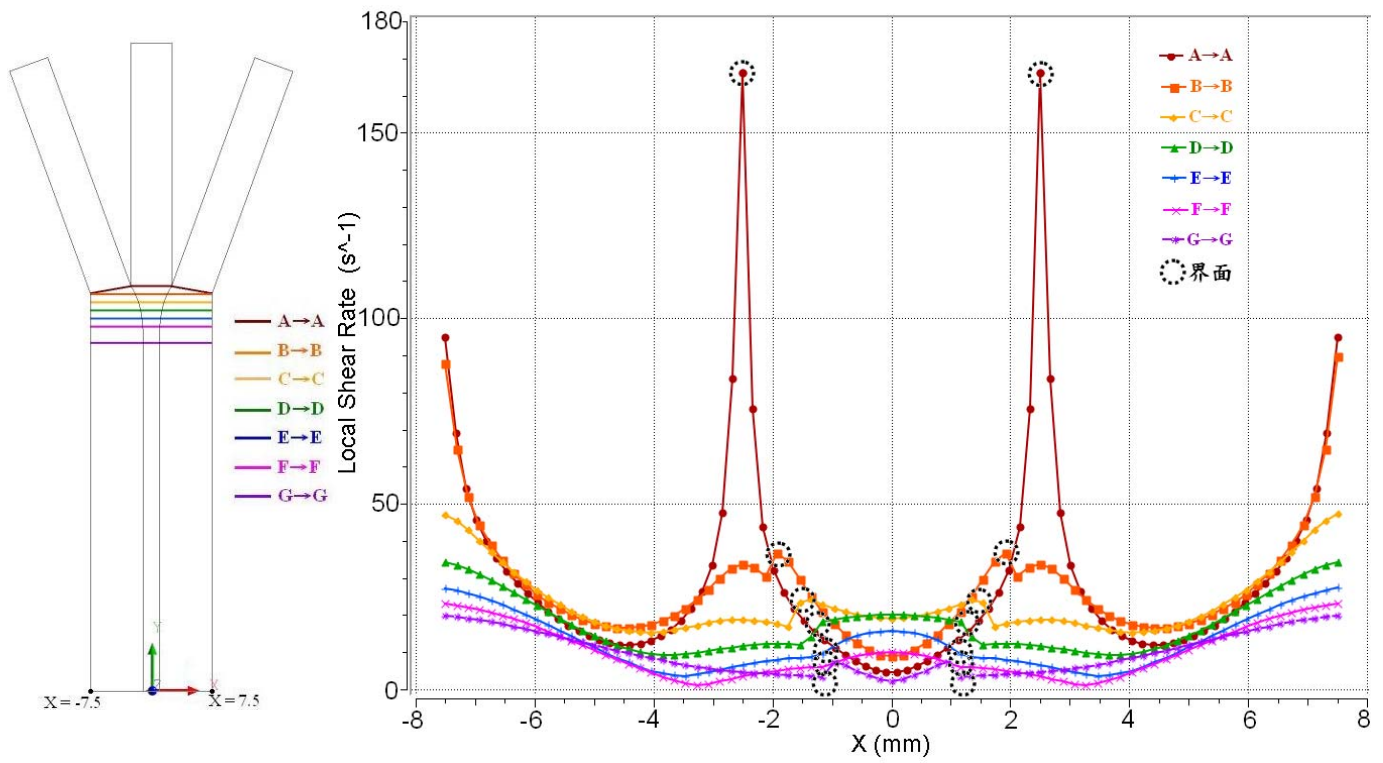


(a) 角度 20 度, $V_1:V_2=2:1$, $\eta_1:\eta_2=3:1$ (b) 角度 30 度, $V_1:V_2=2:1$, $\eta_1:\eta_2=3:1$

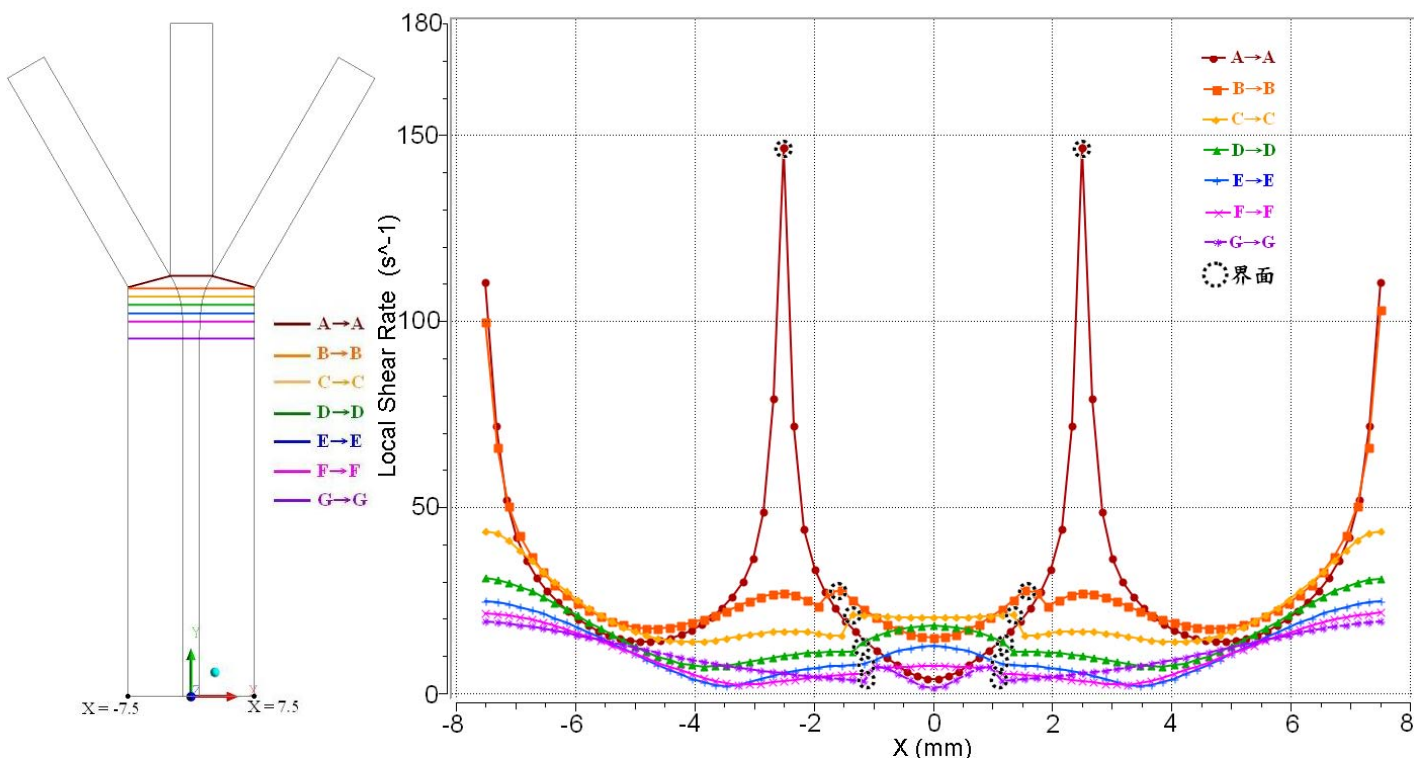


(c) 角度 45 度, $V_1:V_2=2:1$, $\eta_1:\eta_2=3:1$ (d) 角度 60 度, $V_1:V_2=2:1$, $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.4 (a)(b)(c)(d) 不同匯合角度其速度等高線圖

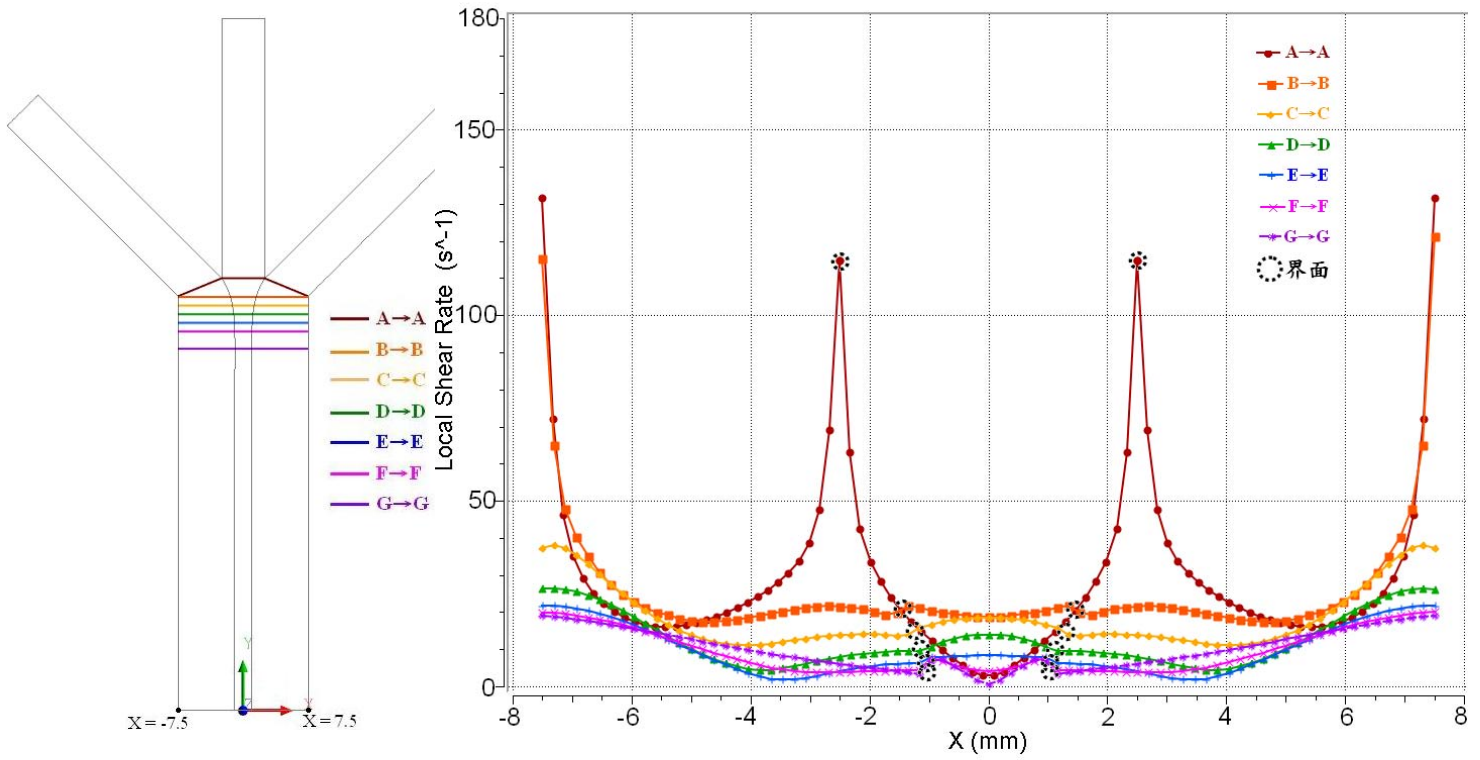


(a) 角度 20 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

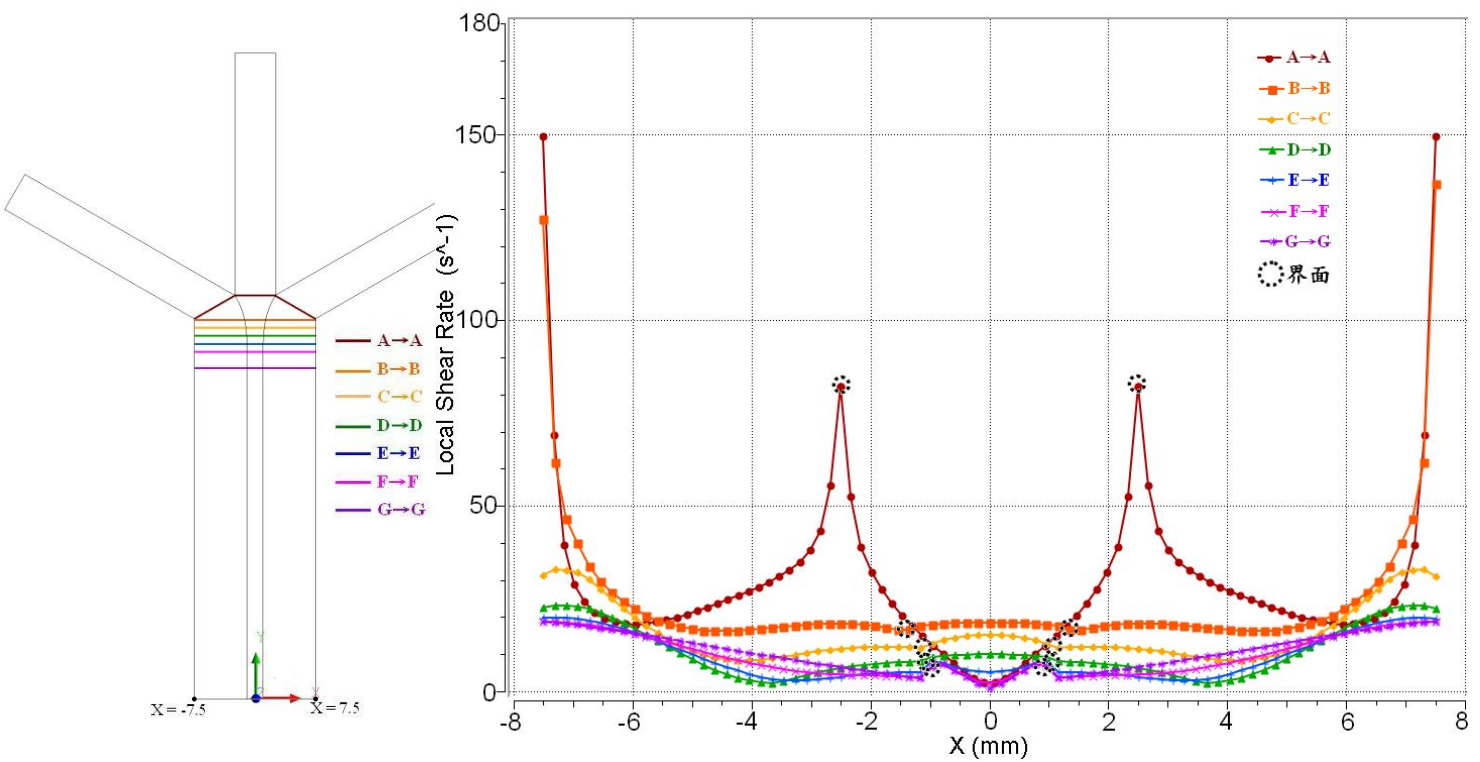


(b) 角度 30 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.5 (a)(b)(c)(d) 不同匯合角度其剪切率分佈曲線圖

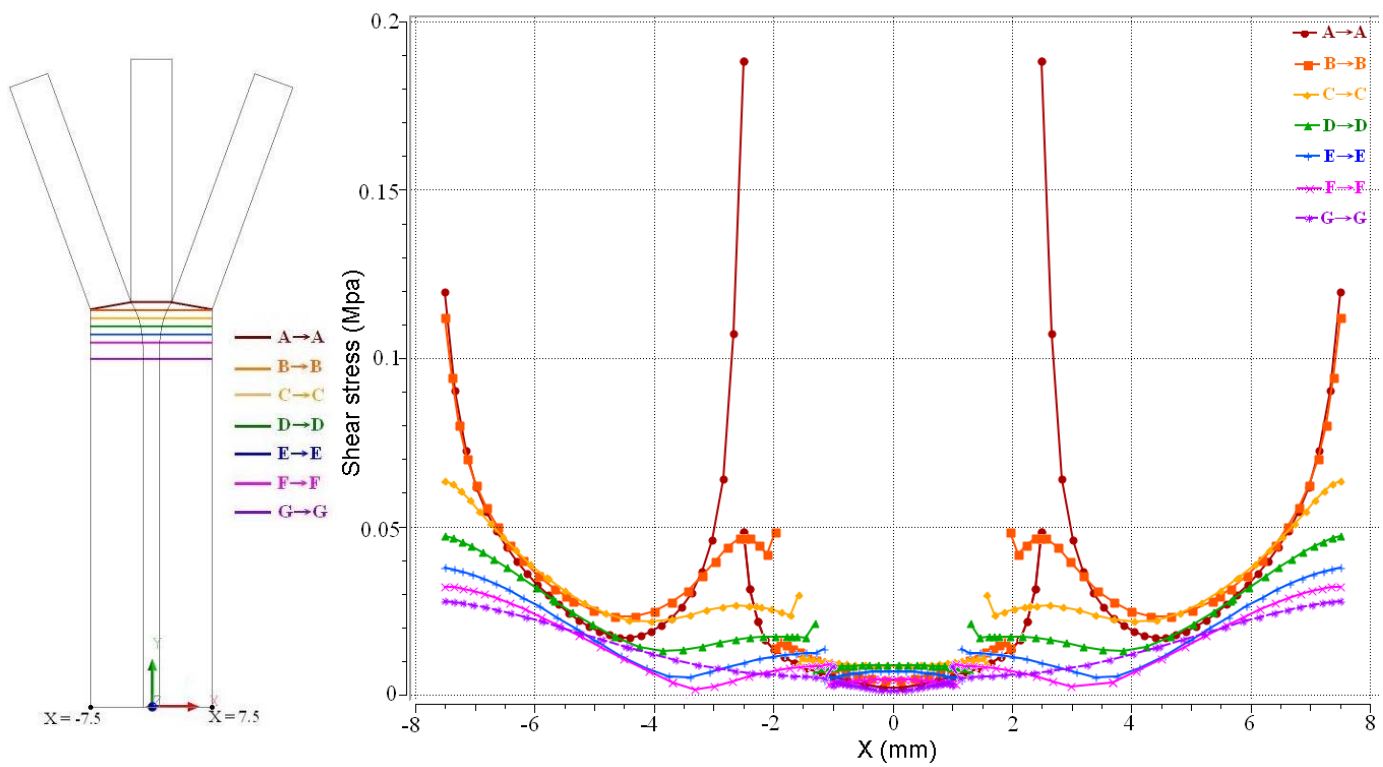


(c) 角度 45 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

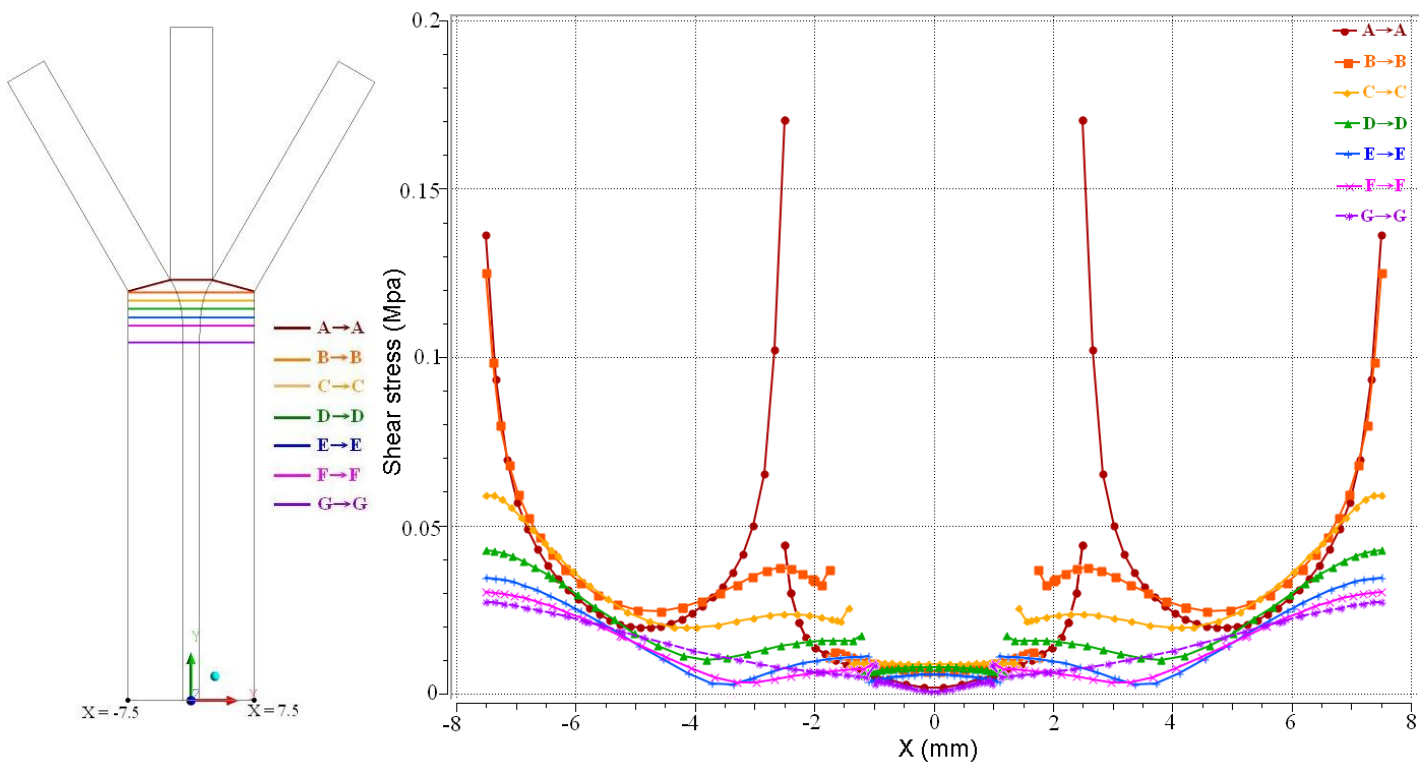


(d) 角度 60 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.5 (a)(b)(c)(d) 不同匯合角度其剪切率分佈曲線圖

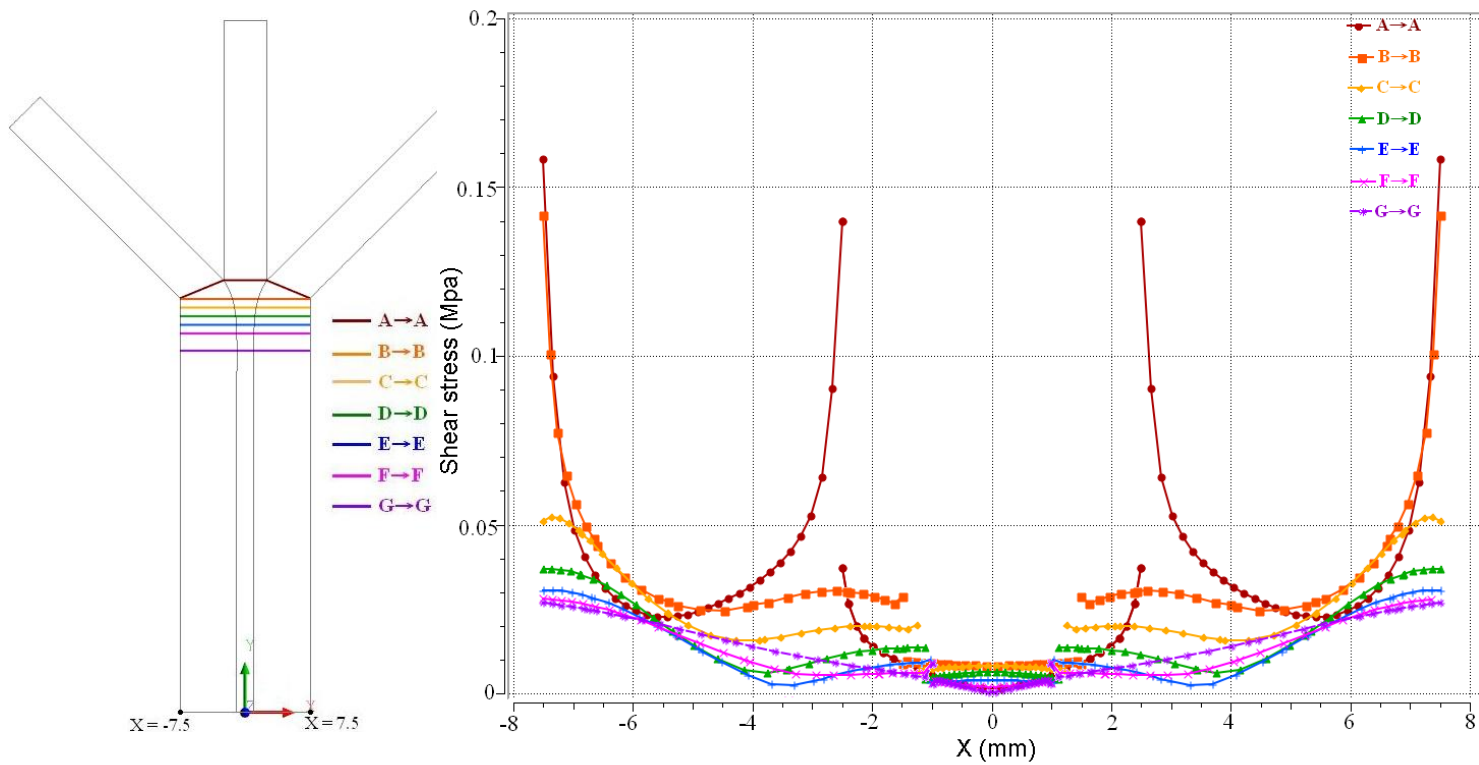


(a) 角度 20 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

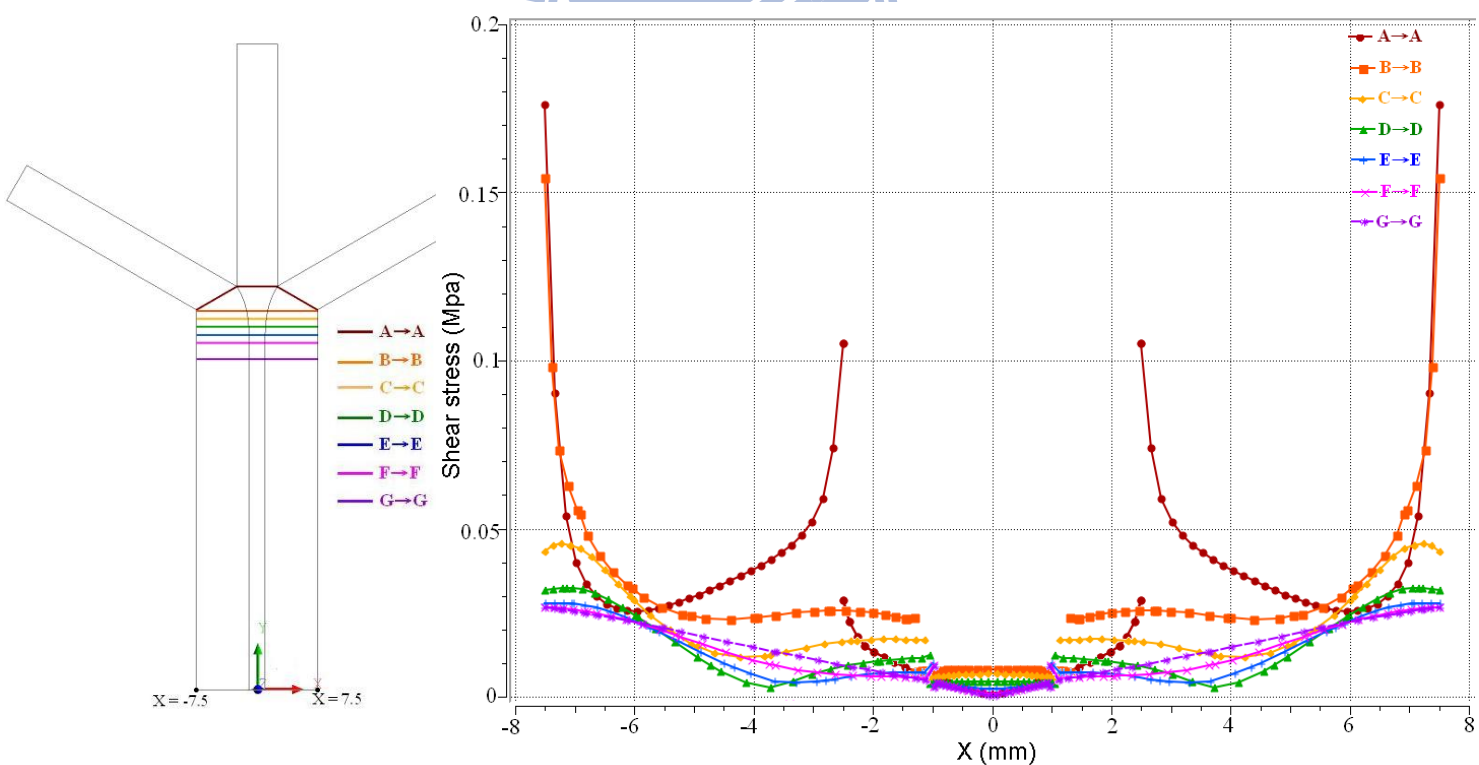


(b) 角度 30 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.6 (a)(b)(c)(d) 不同匯合角度其剪應力分佈曲線圖



(c) 角度 45 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$



(d) 角度 60 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.6 (a)(b)(c)(d) 不同匯合角度其剪應力分佈曲線圖

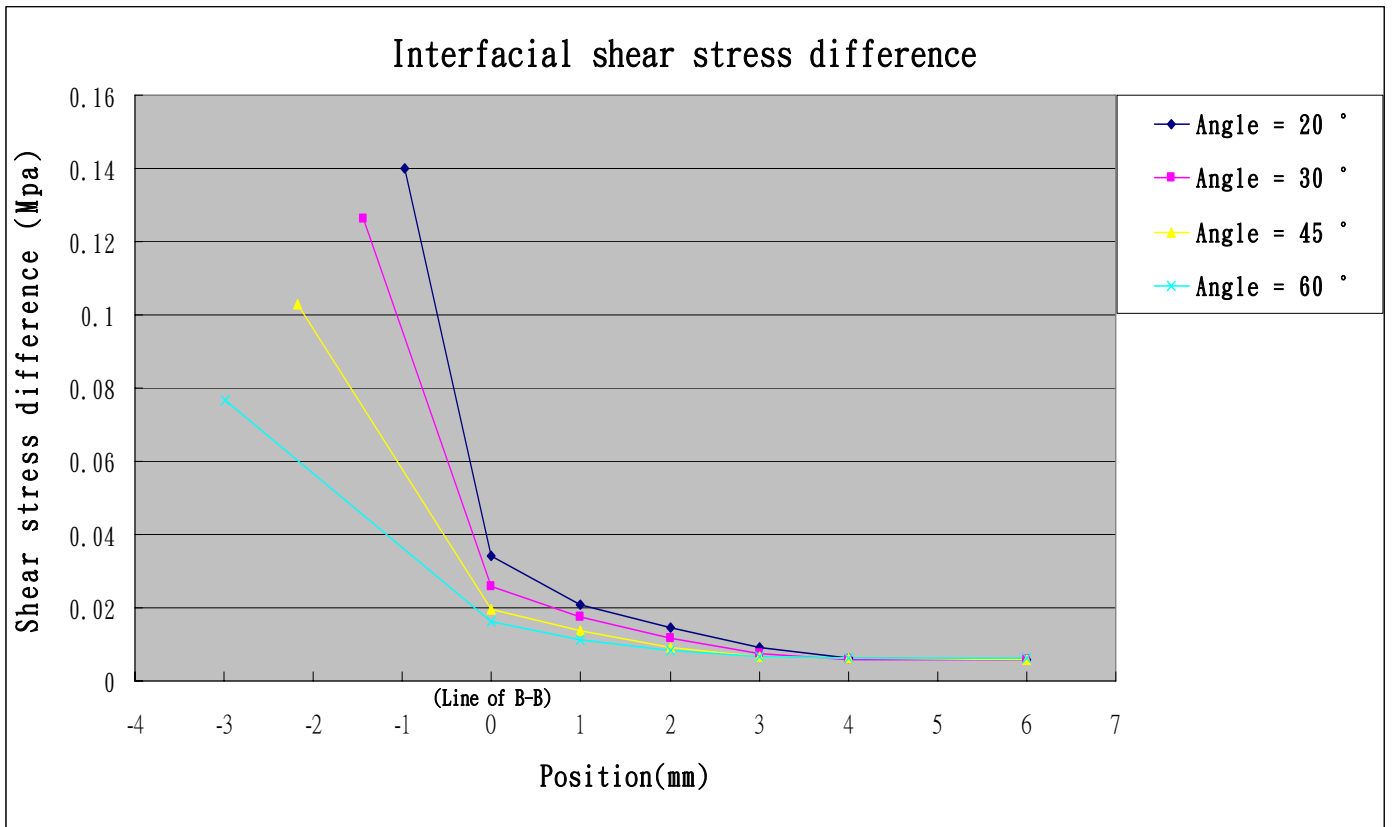


圖 4.7 $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$ ，不同匯合角度其界面剪應力差曲線圖

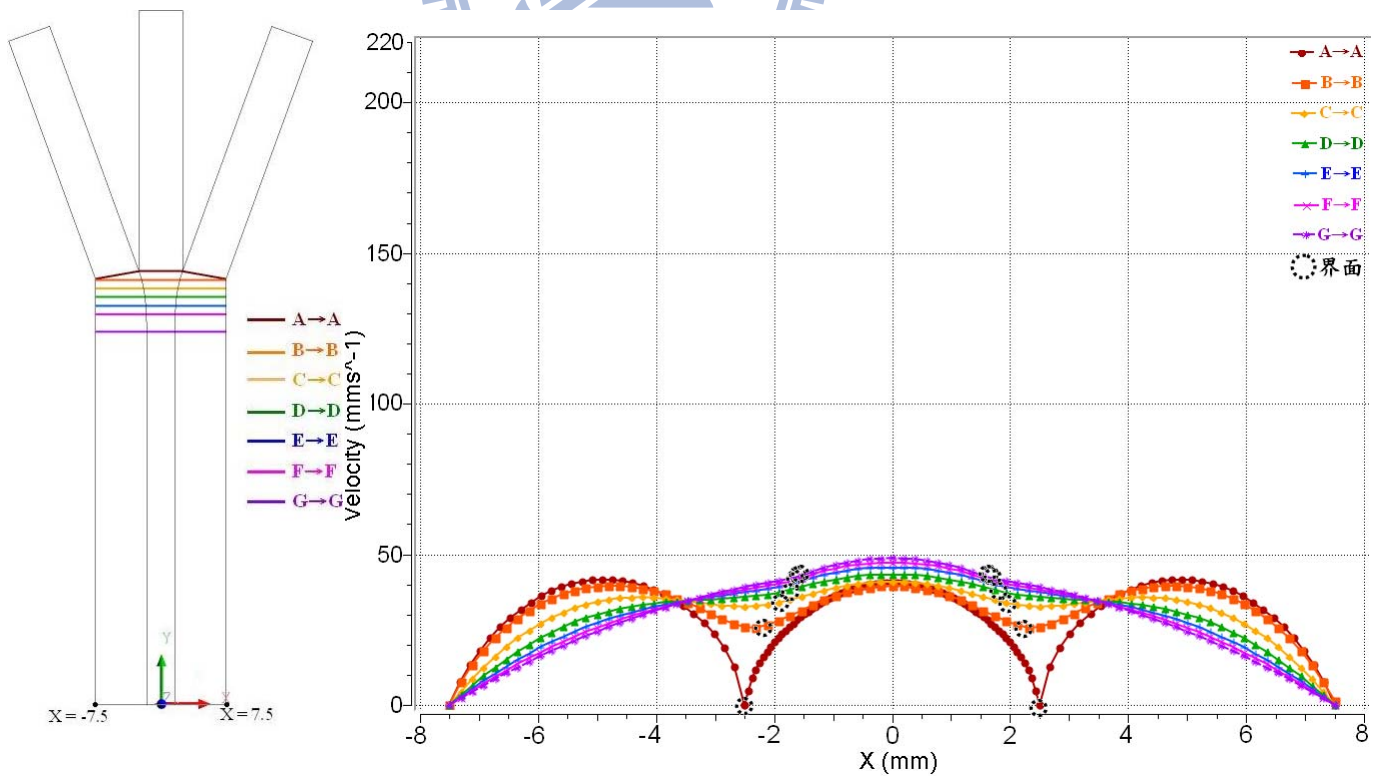
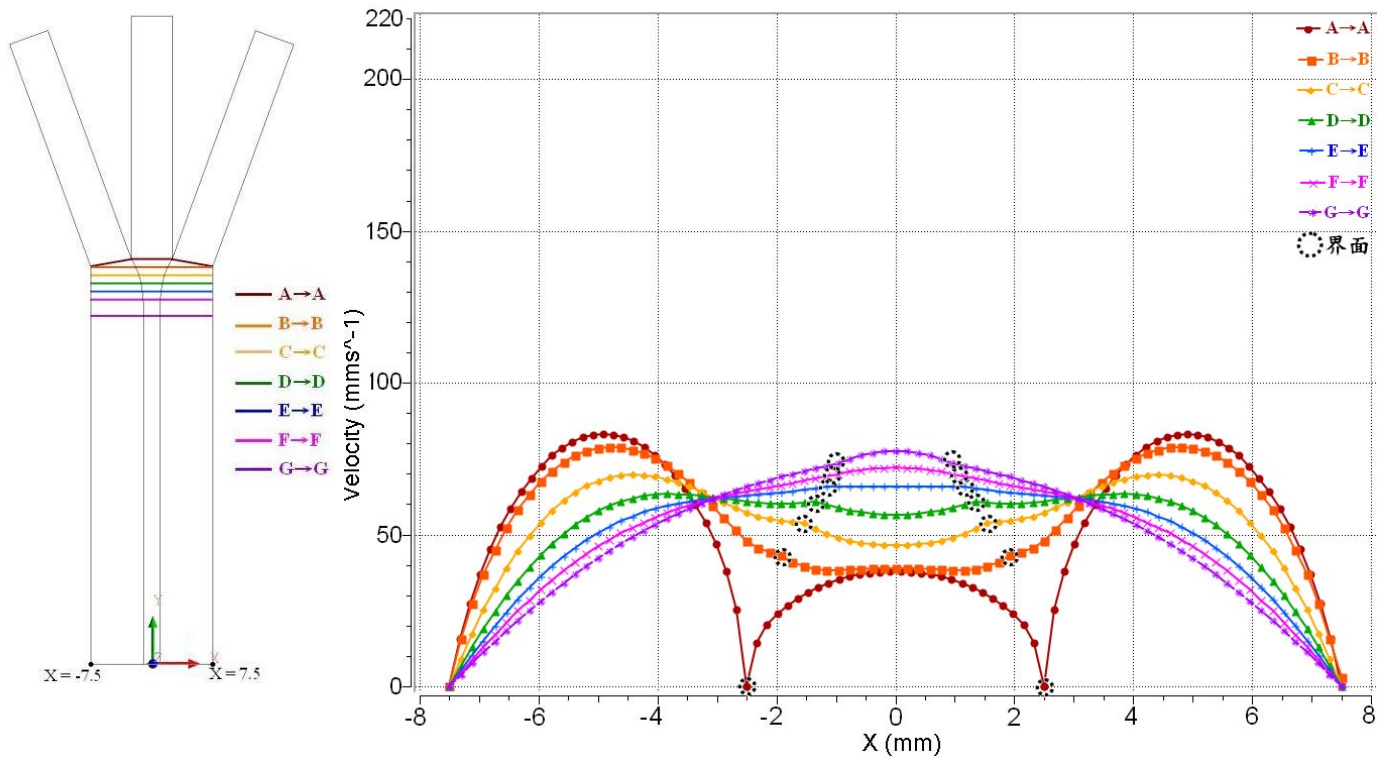
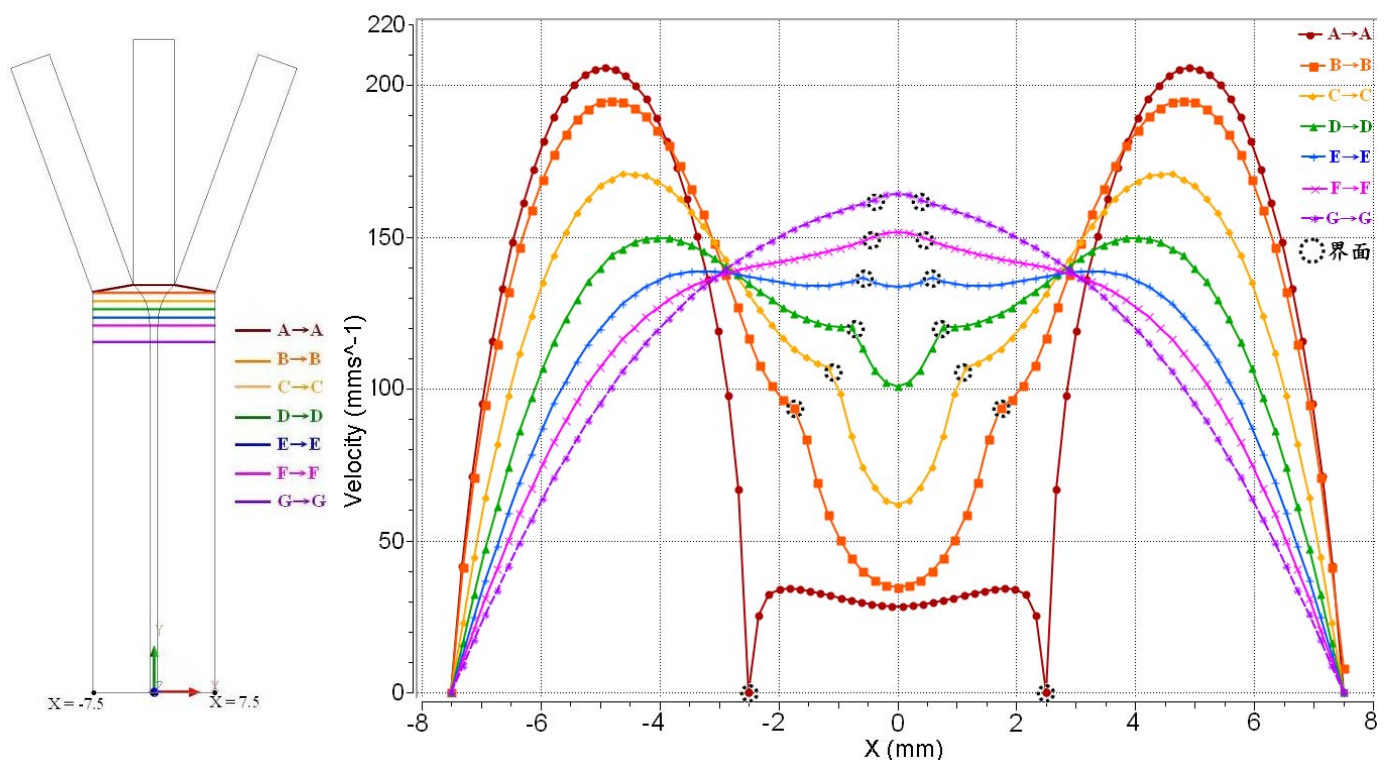


圖 4.8 (a)(b)(c) 不同擠出速度其速度分佈曲線圖

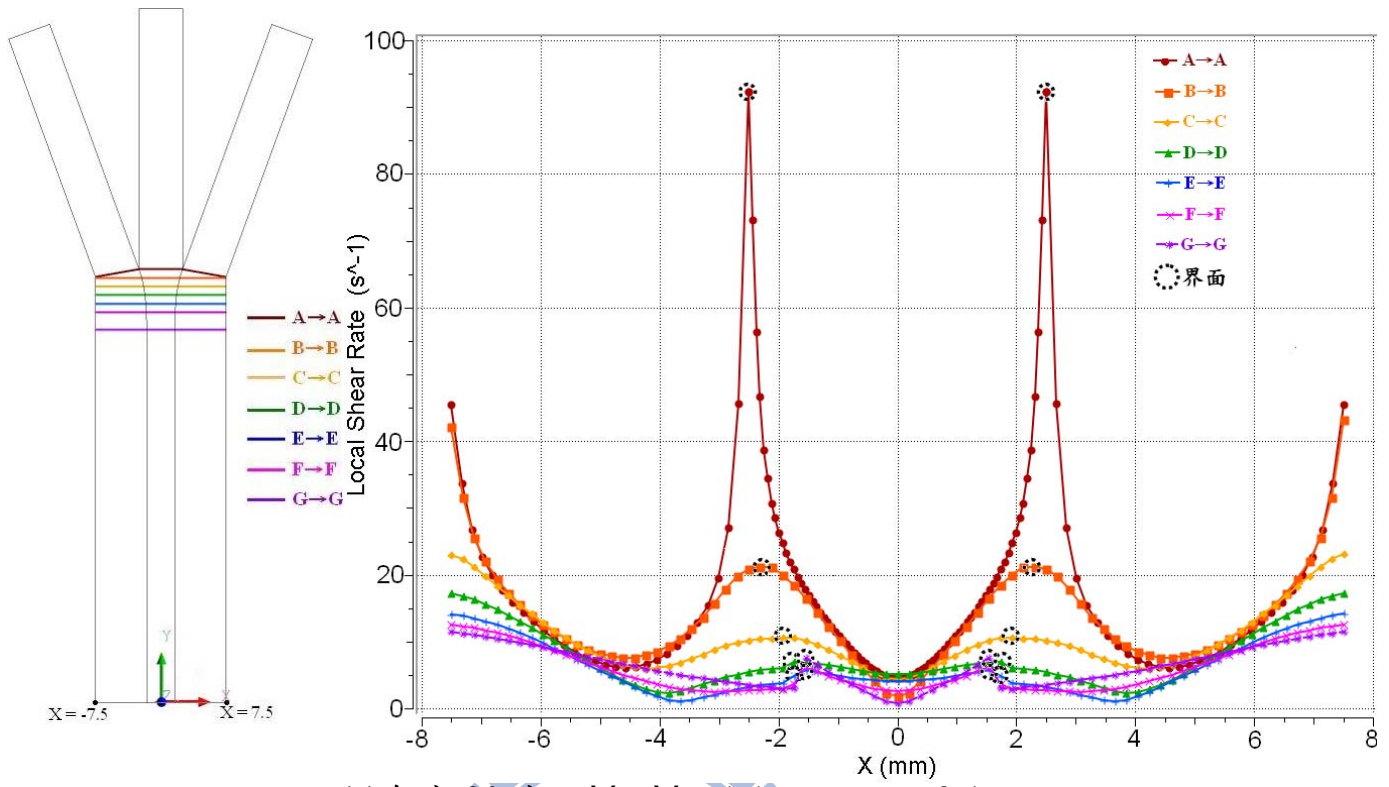


(b) 角度 20 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

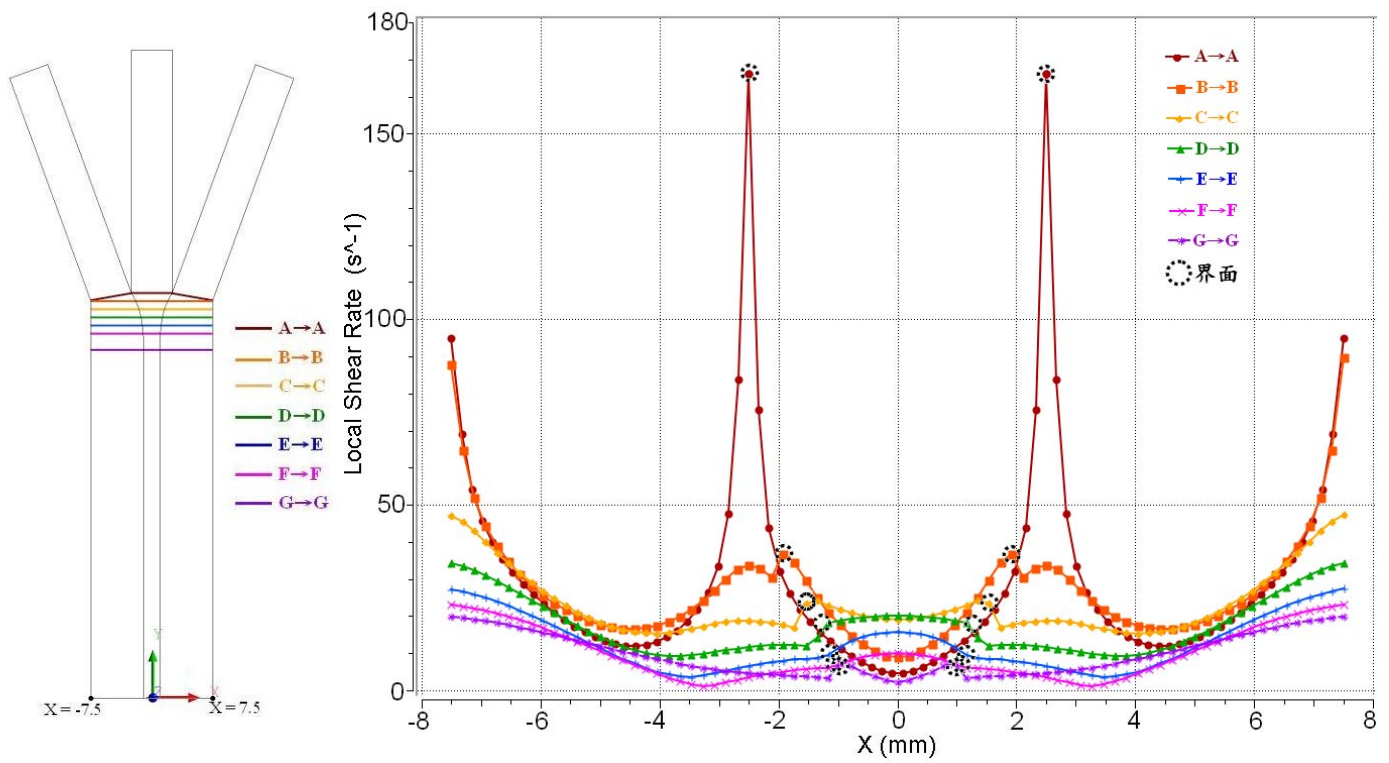


(c) 角度 20 度， $V_1:V_2=5:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.8 (a)(b)(c) 不同擠出速度其速度分佈曲線圖

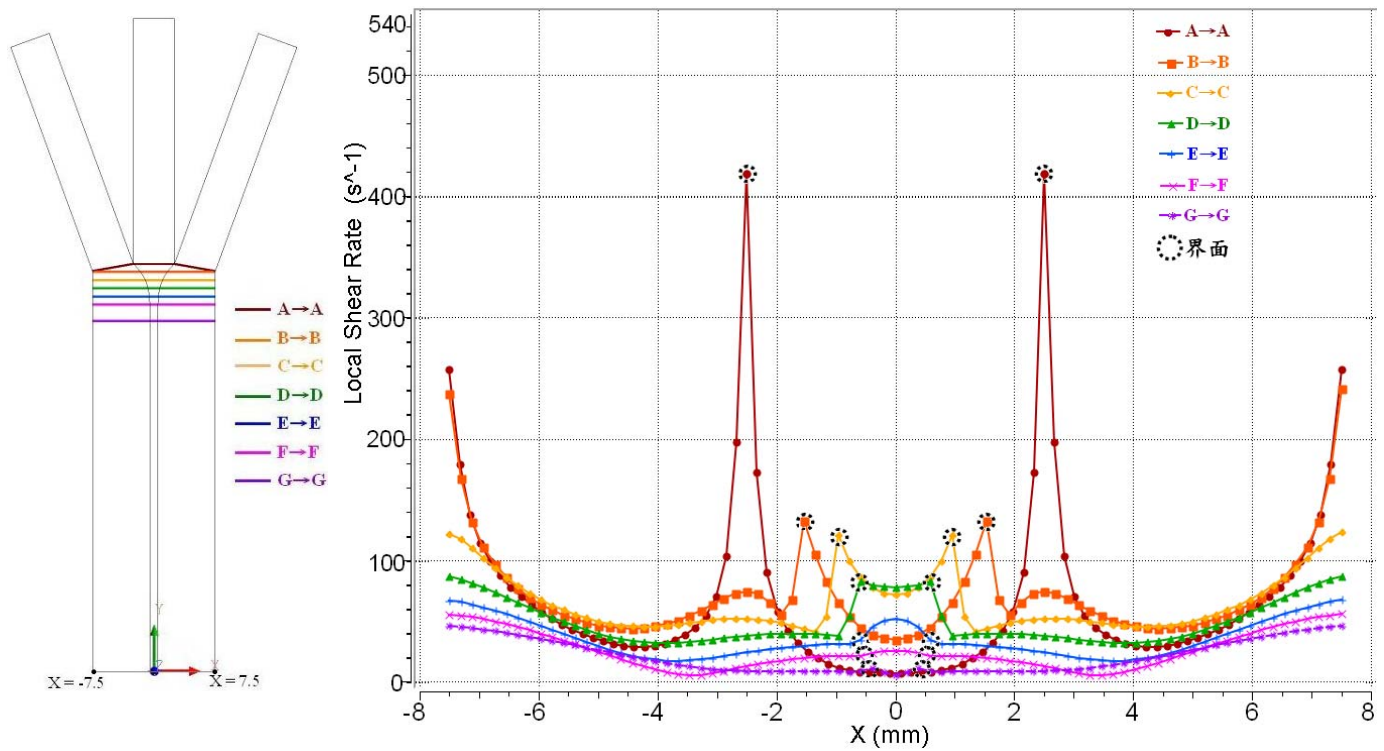


(a) 角度 20 度， $V_1:V_2=1:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$



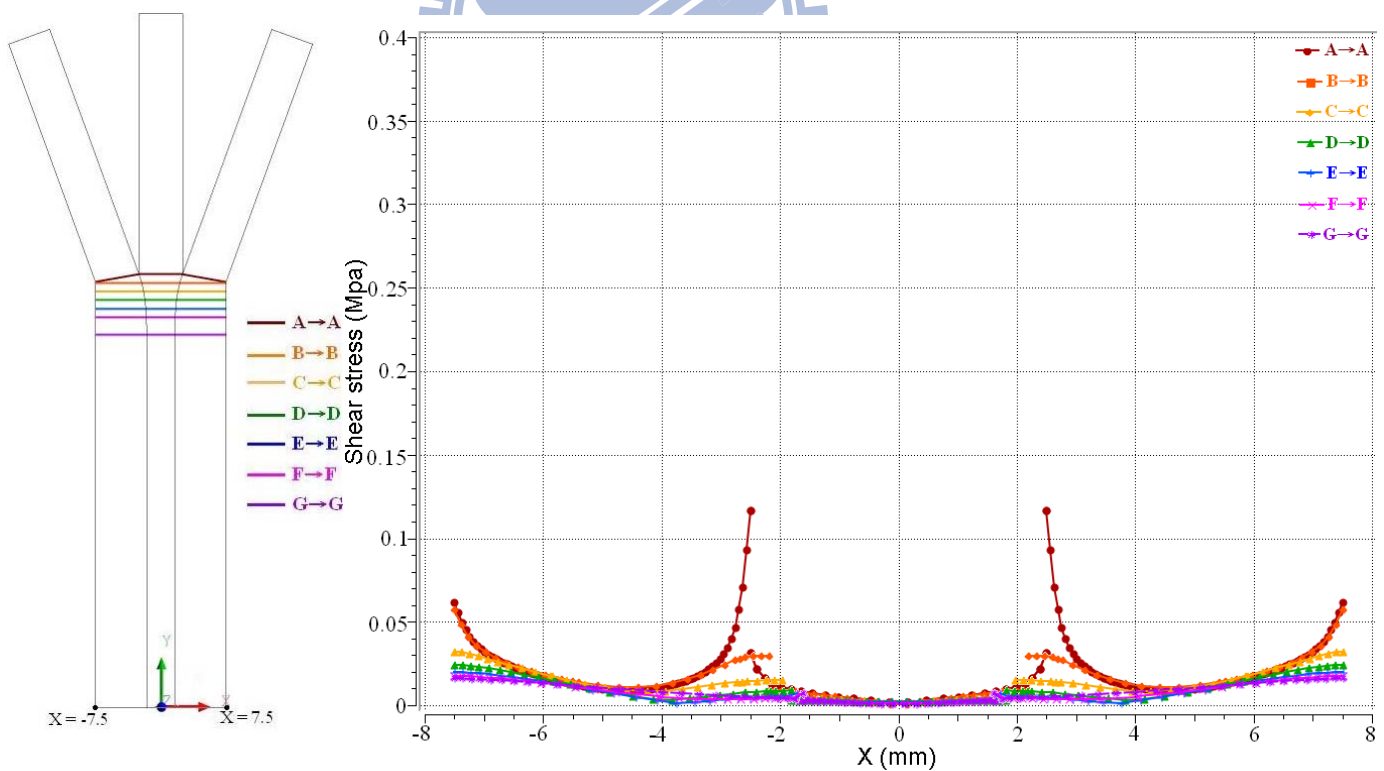
(b) 角度 20 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.9 (a)(b)(c) 不同擠出速度其剪切率分佈曲線圖



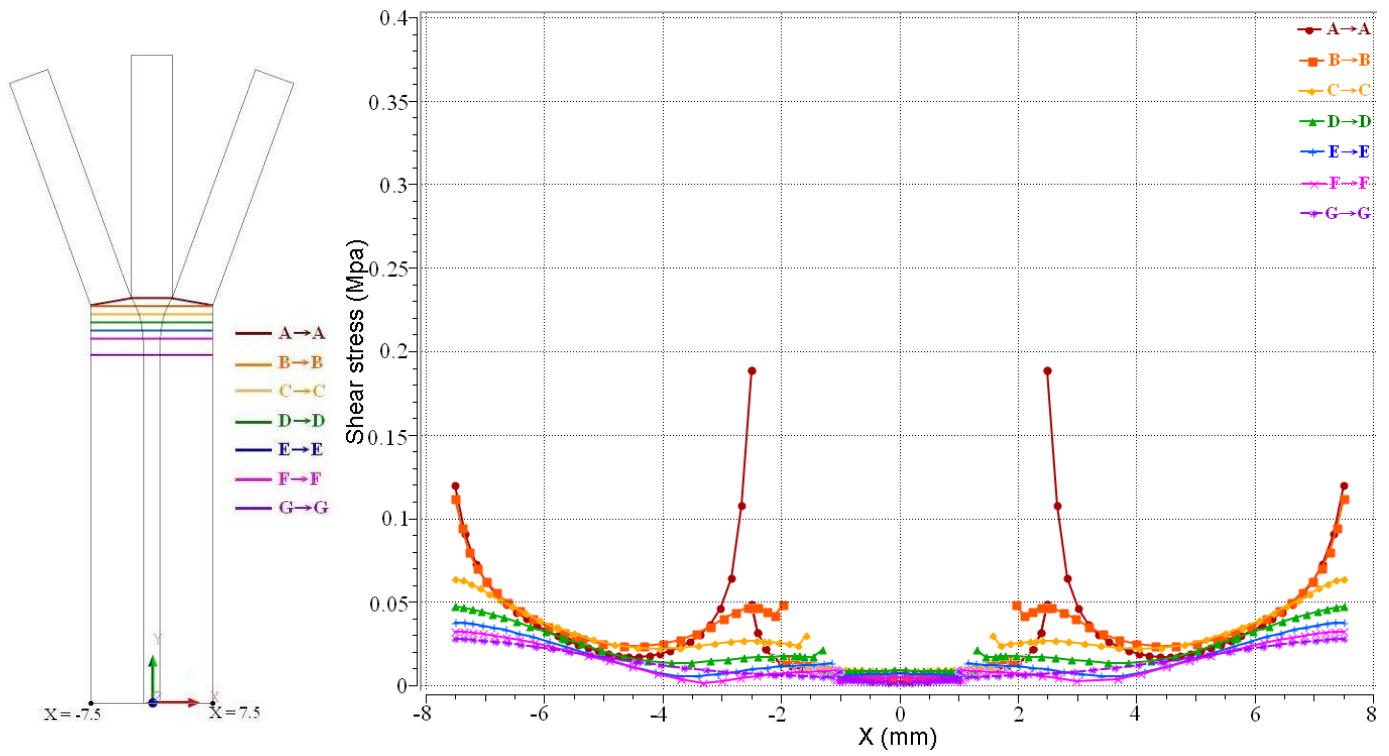
(c) 角度 20 度， $V_1:V_2=5:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.9 (a)(b)(c) 不同擠出速度其剪切率分佈曲線圖

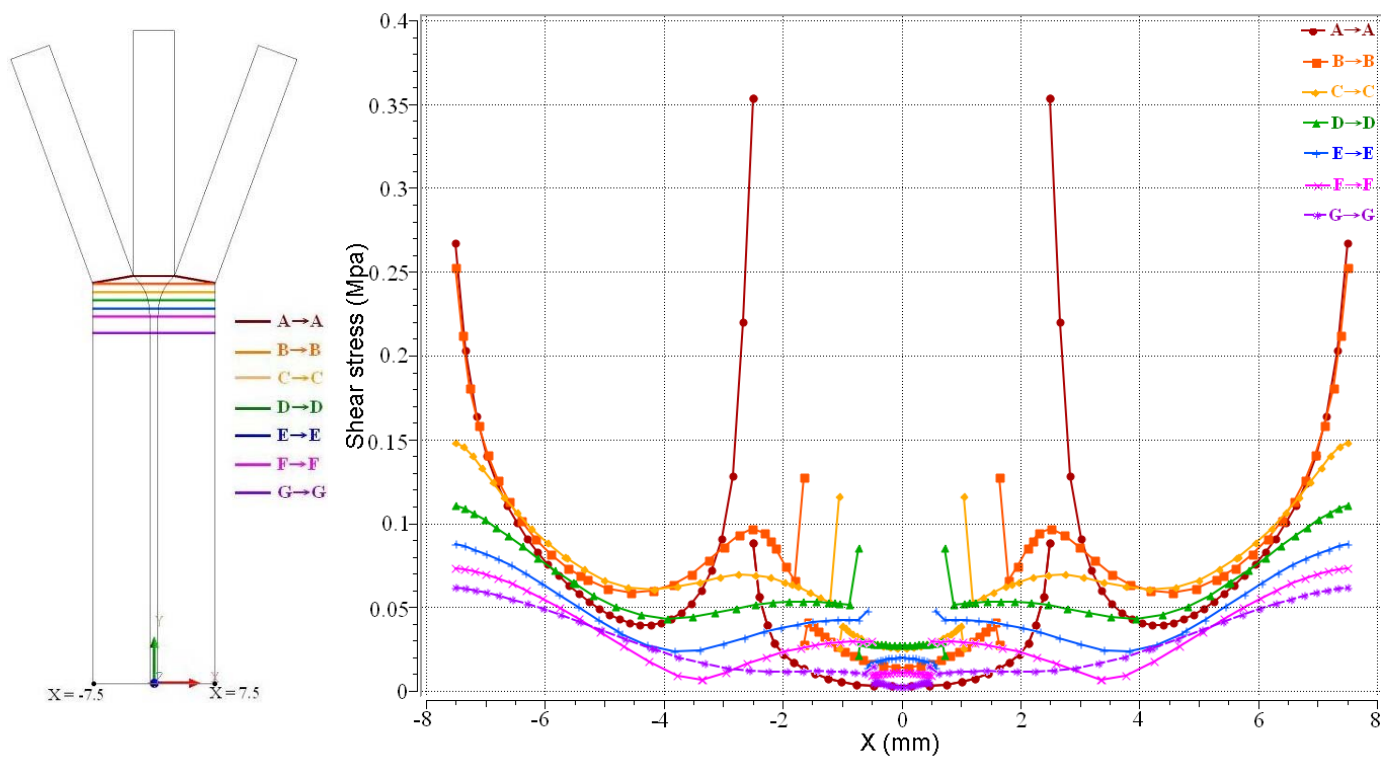


(a) 角度 20 度， $V_1:V_2=1:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.10 (a)(b)(c) 不同擠出速度其剪應力分佈曲線圖



(b) 角度 20 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$



(c) 角度 20 度， $V_1:V_2=5:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.10 (a)(b)(c) 不同擠出速度其剪應力分佈曲線圖

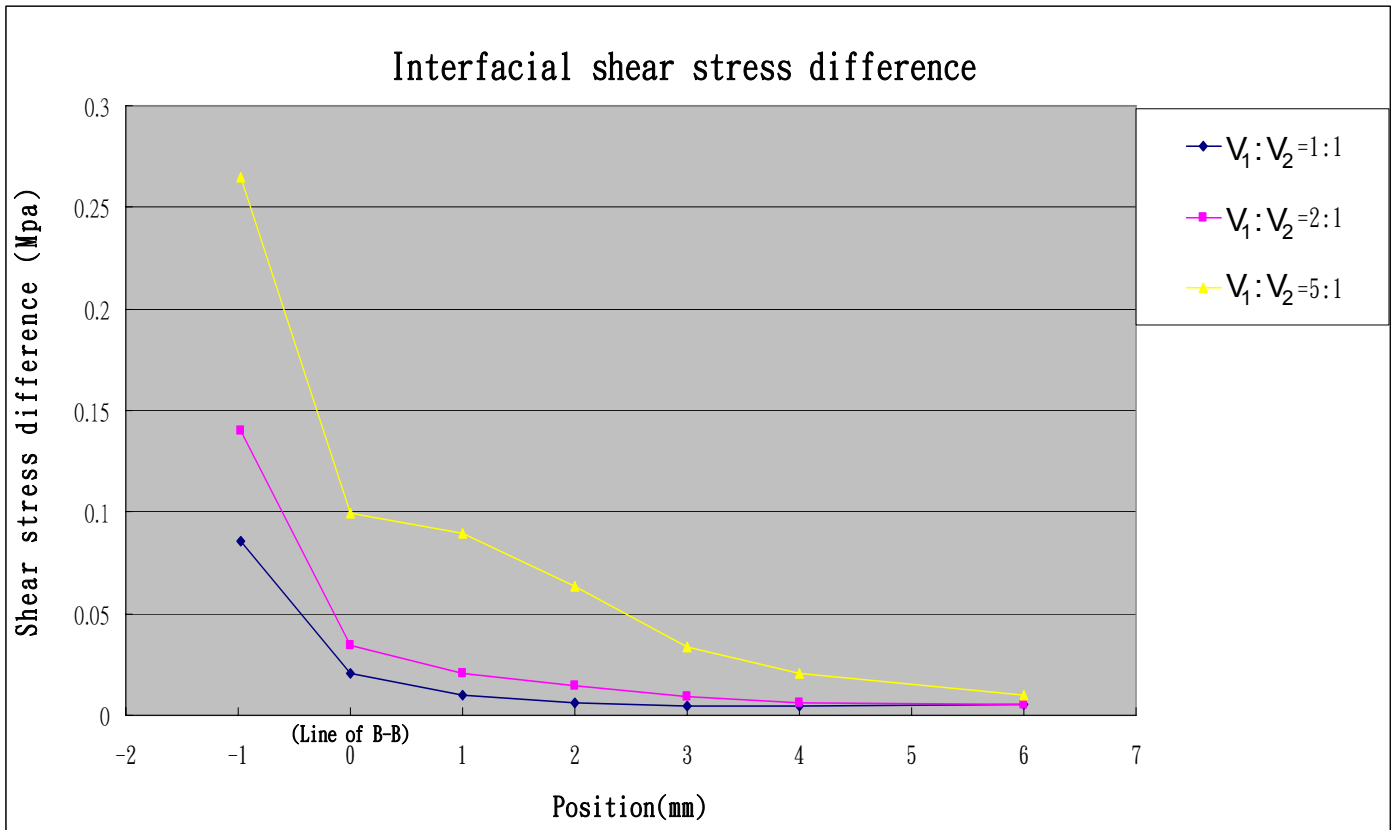
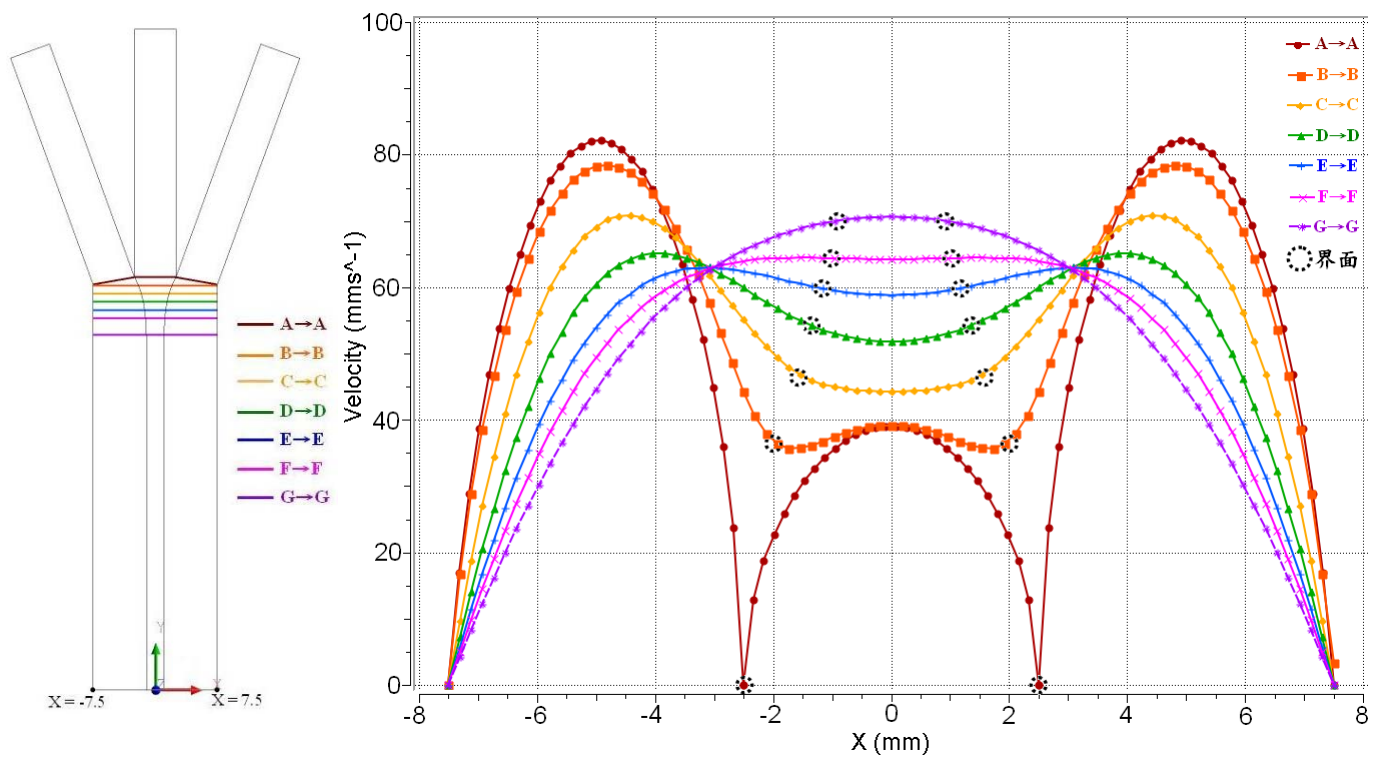
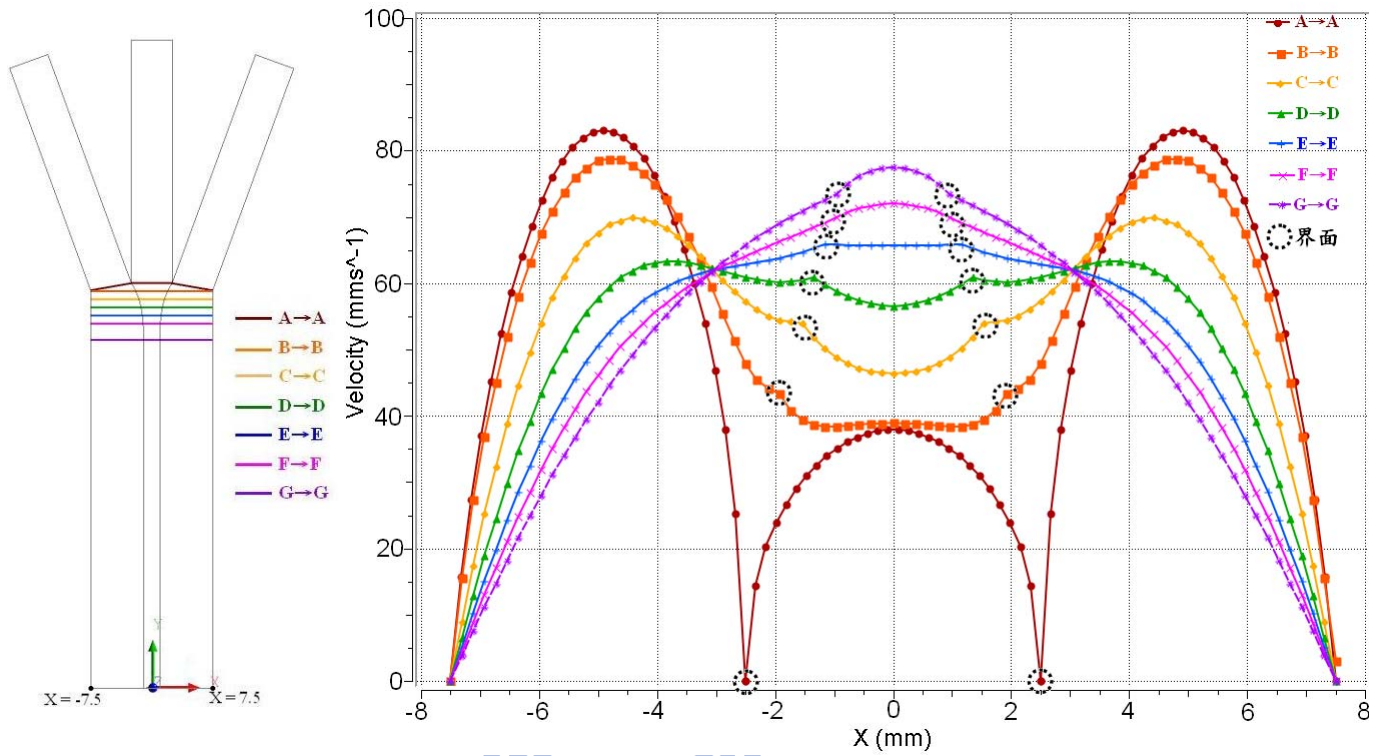


圖 4.11 角度為 20° ，不同擠出速度比其界面剪應力差曲線圖



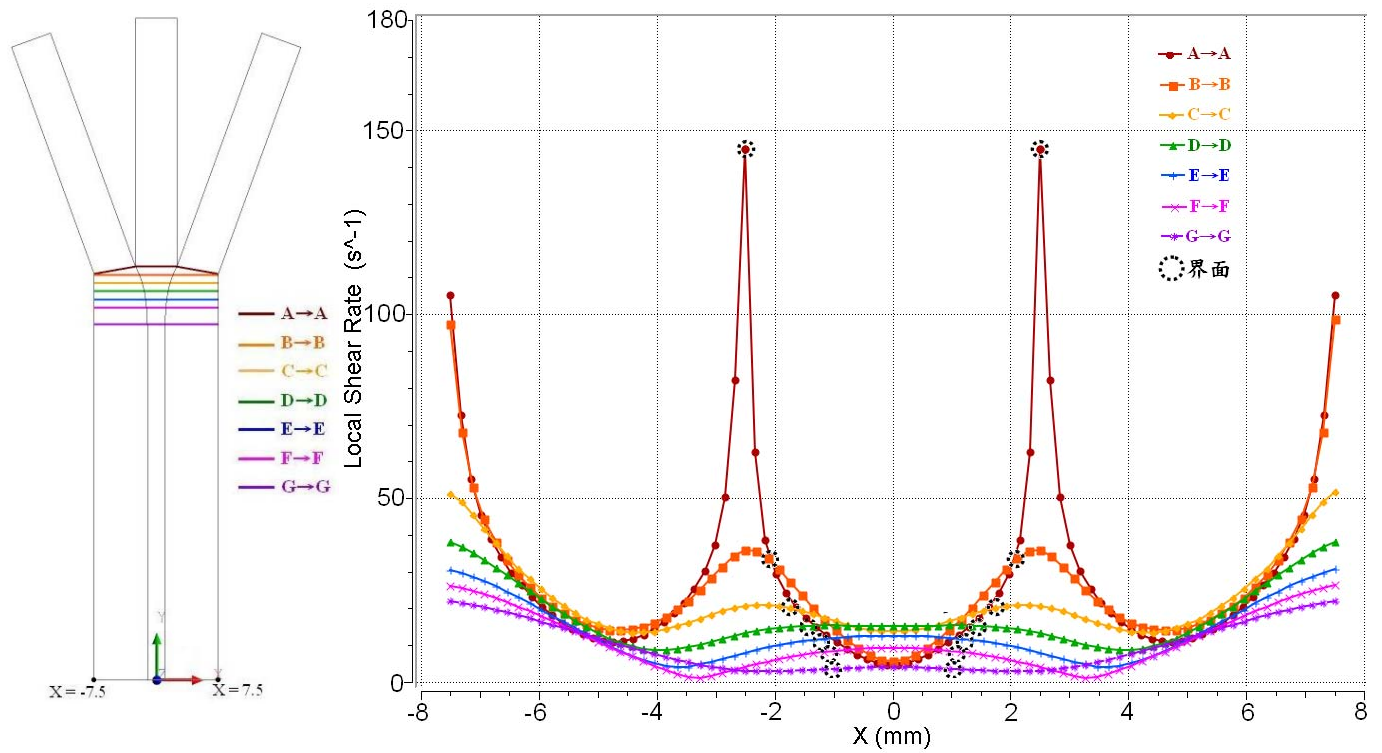
(a) 角度 20° ， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=1:1$

圖 4.12 (a)(b) 不同黏度比其速度分佈曲線



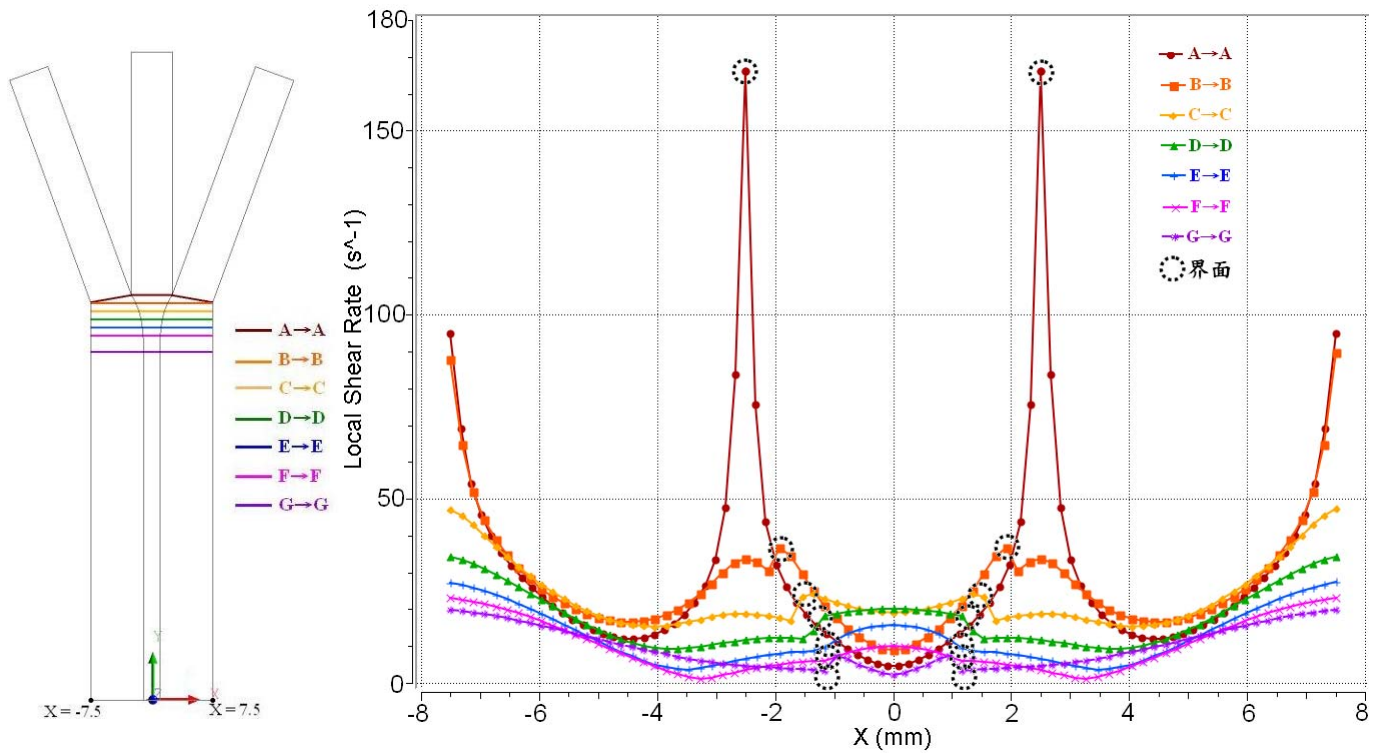
(b) 角度 20 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.12 (a)(b) 不同黏度比其速度分佈曲線圖



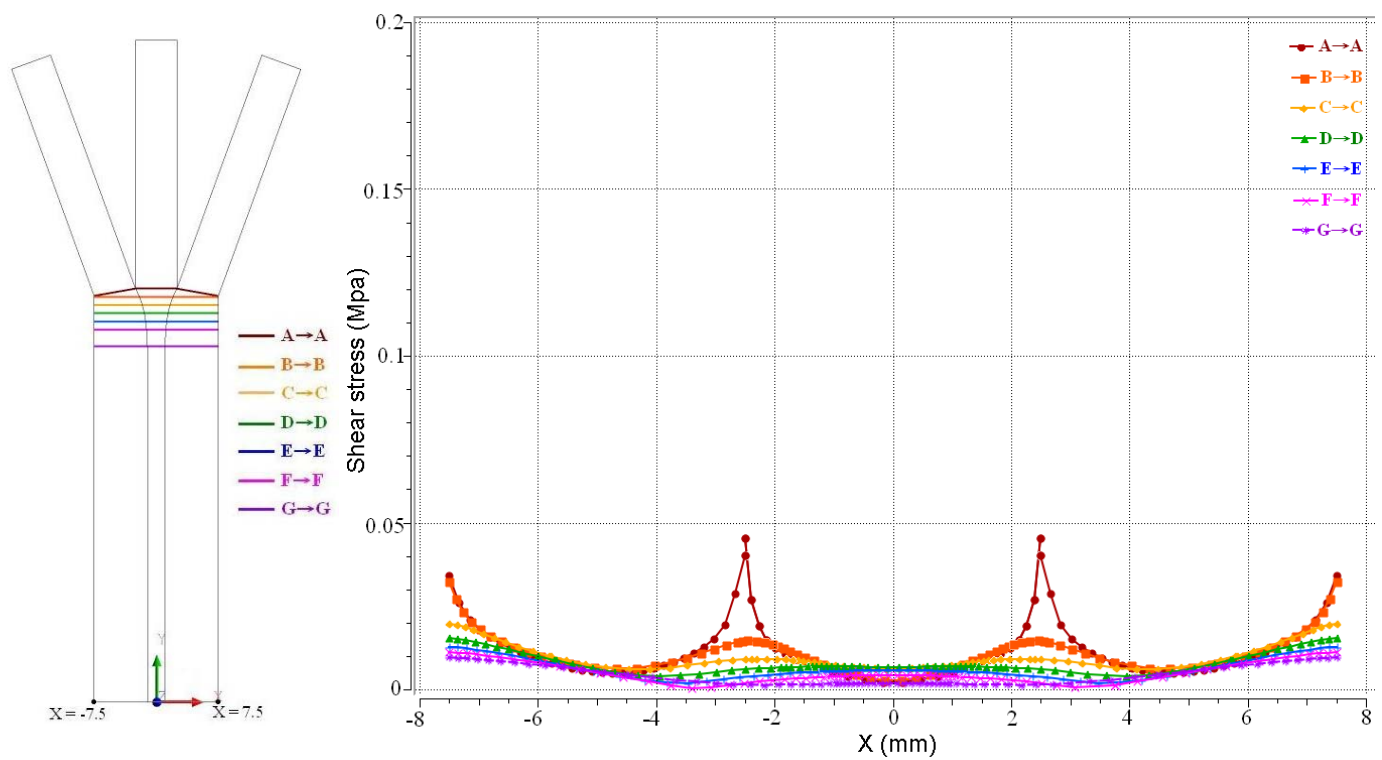
(a) 角度 20 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=1:1$

圖 4.13 (a)(b) 不同黏度比其剪切率分佈曲線



(b) 角度 20 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.13 (a)(b) 不同黏度比其剪切率分佈曲線圖



(a) 角度 20 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=1:1$

圖 4.14 (a)(b) 不同黏度比其剪應力分佈曲線

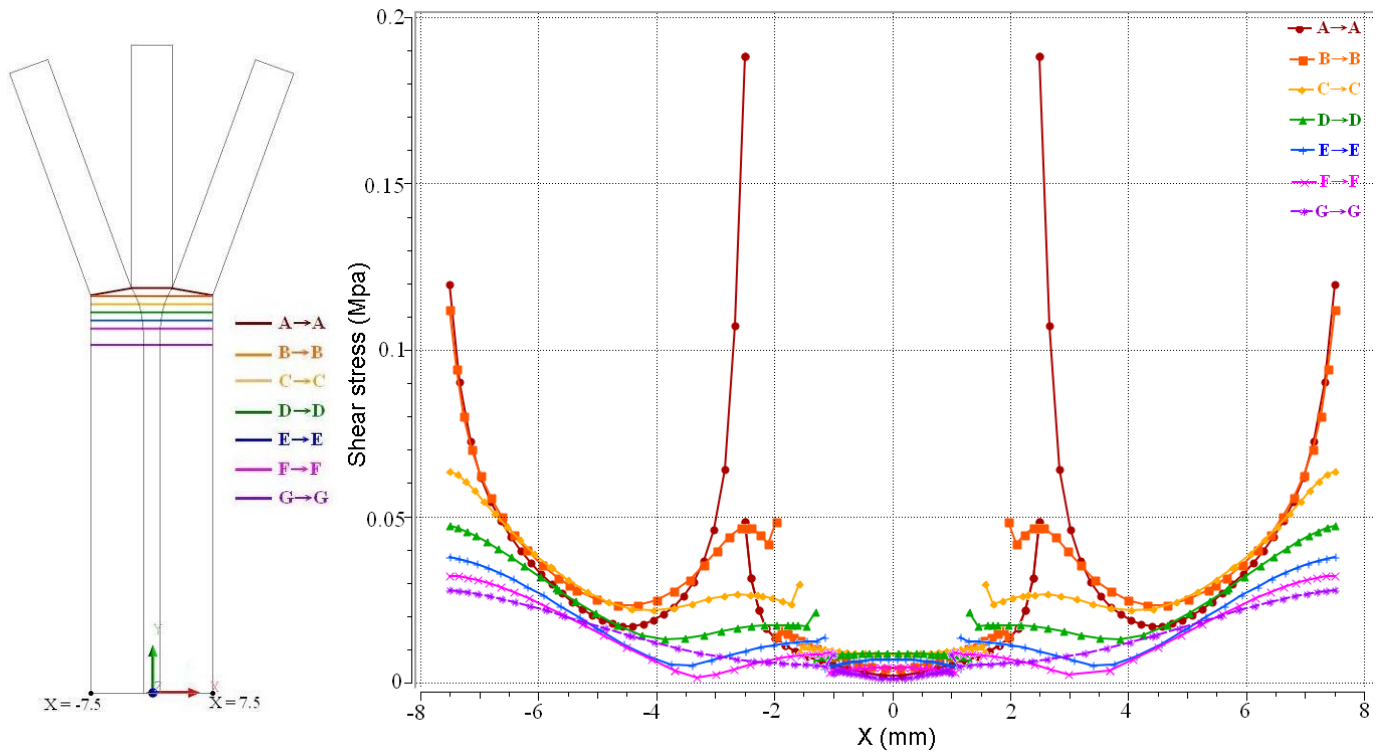


圖 4.14 (a)(b) 不同黏度比其剪應力分佈曲線圖

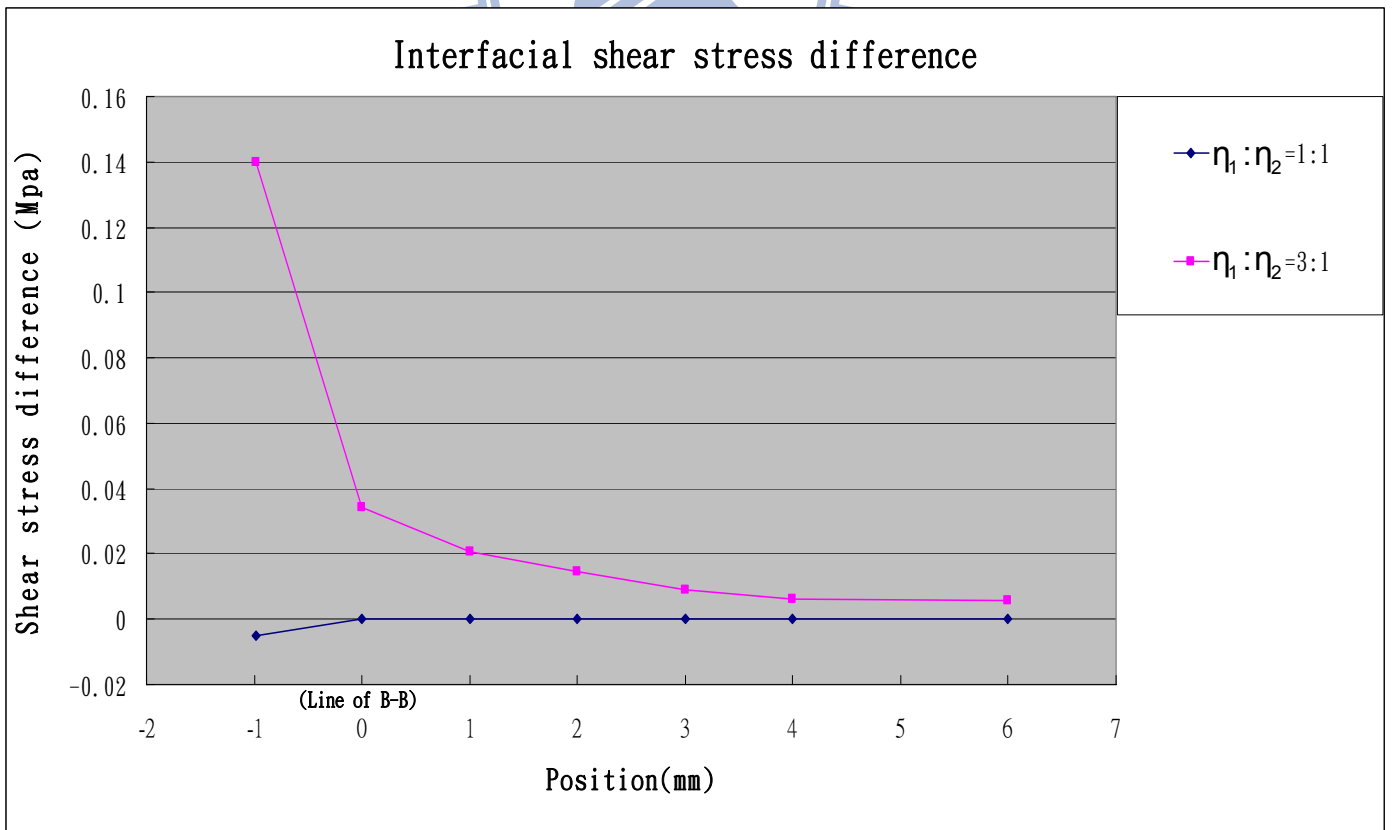
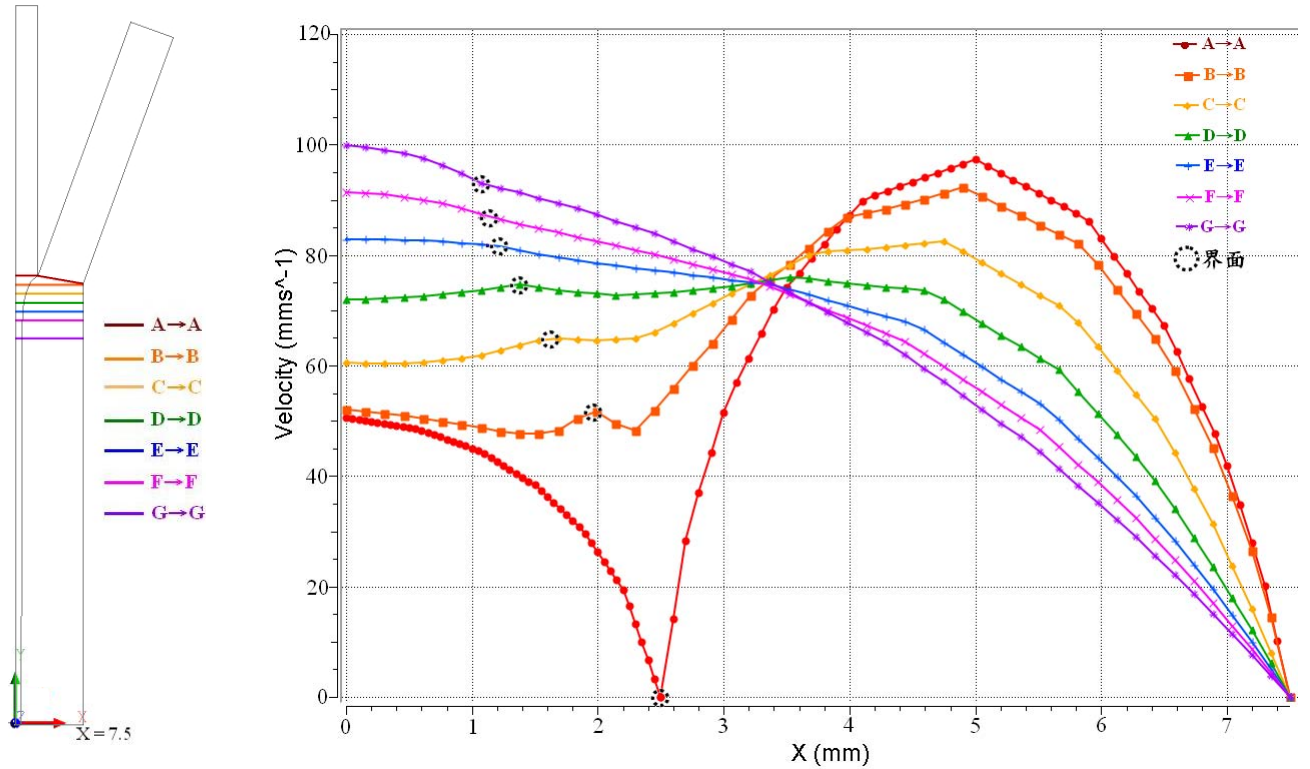
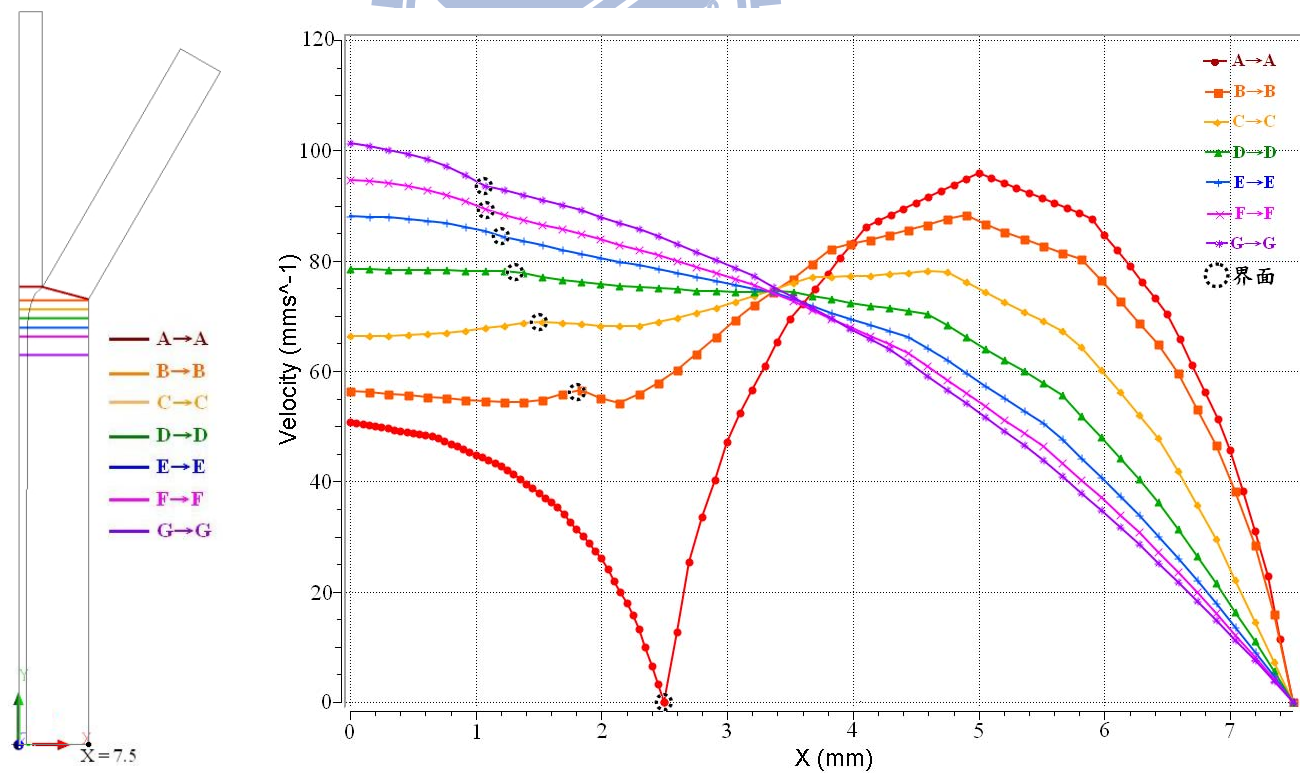


圖 4.15 角度為 20°，不同黏度比其界面剪應力差曲線圖

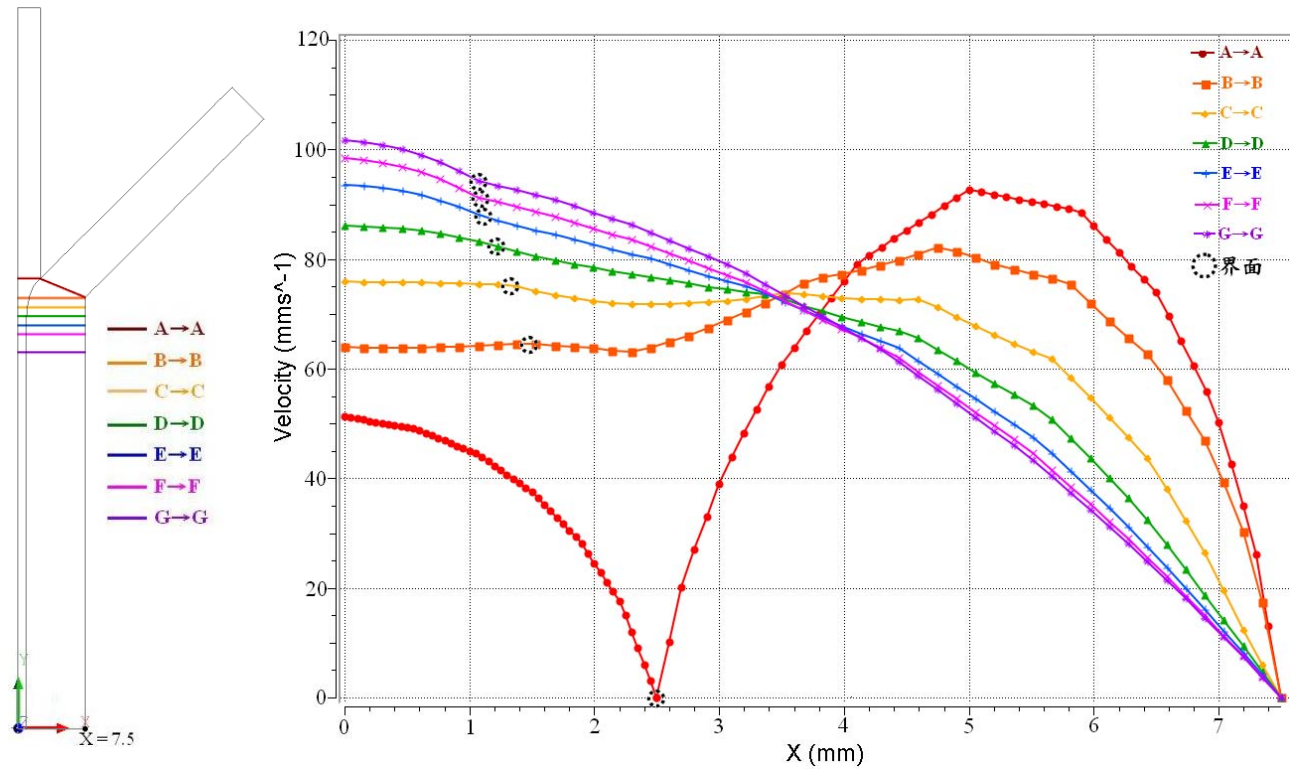


(a) 角度 20 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

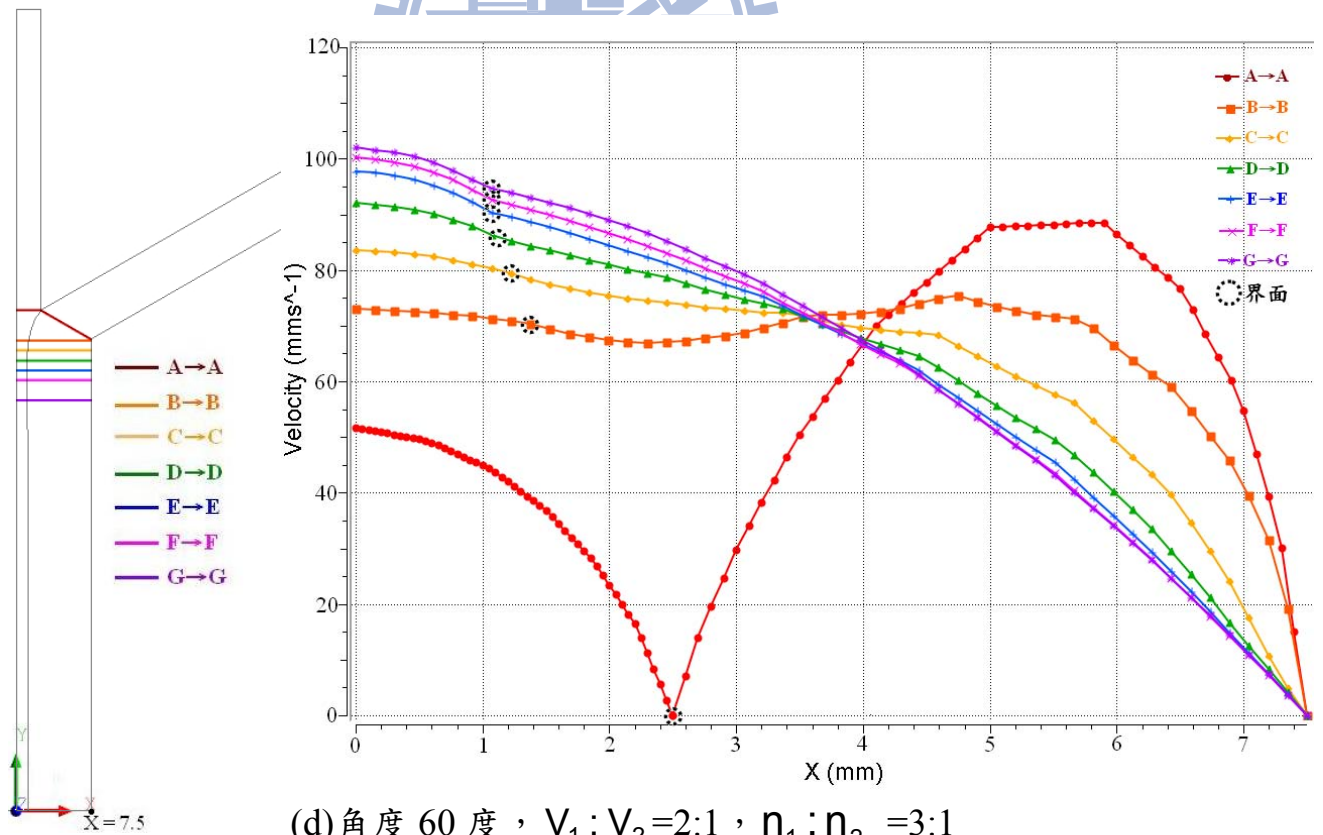


(b) 角度 30 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.16 (a)(b)(c)(d) 不同匯合角度其速度分佈曲線圖 (Z=15mm)

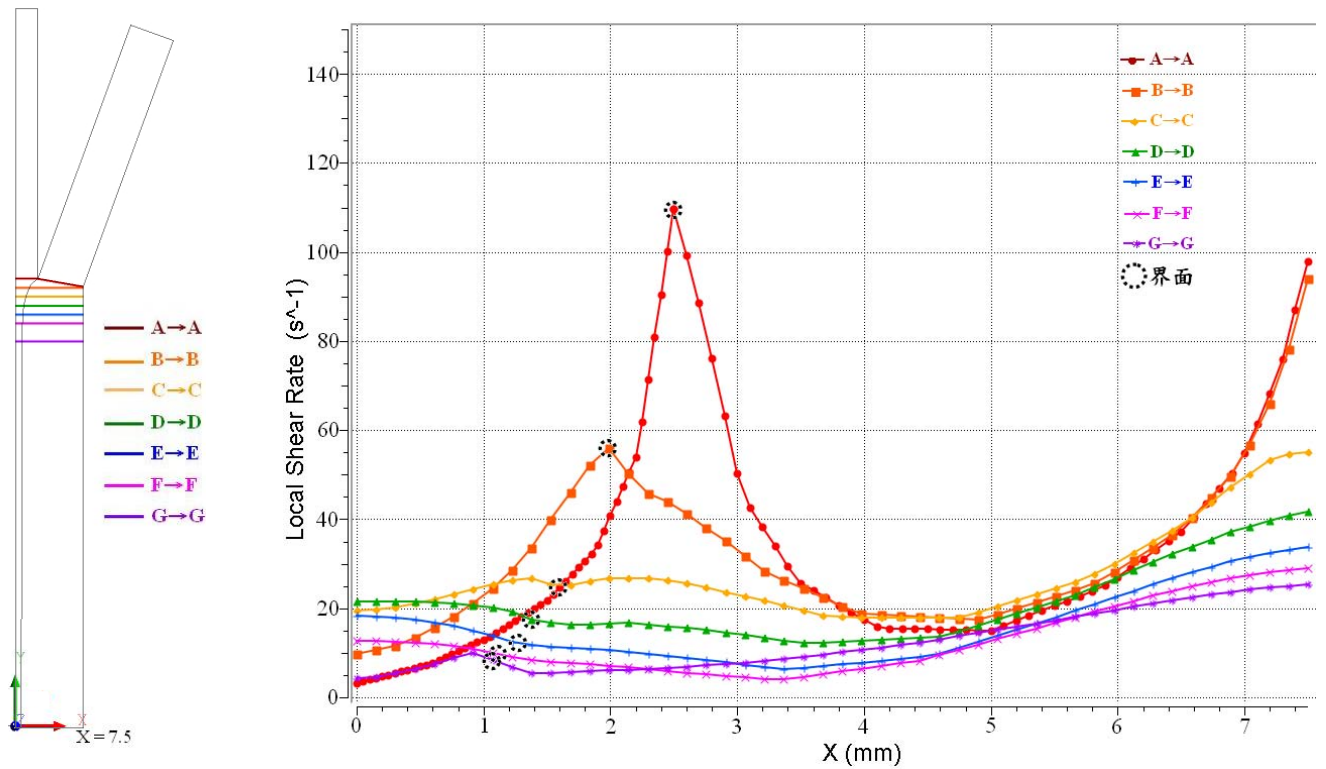


(c) 角度 45 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

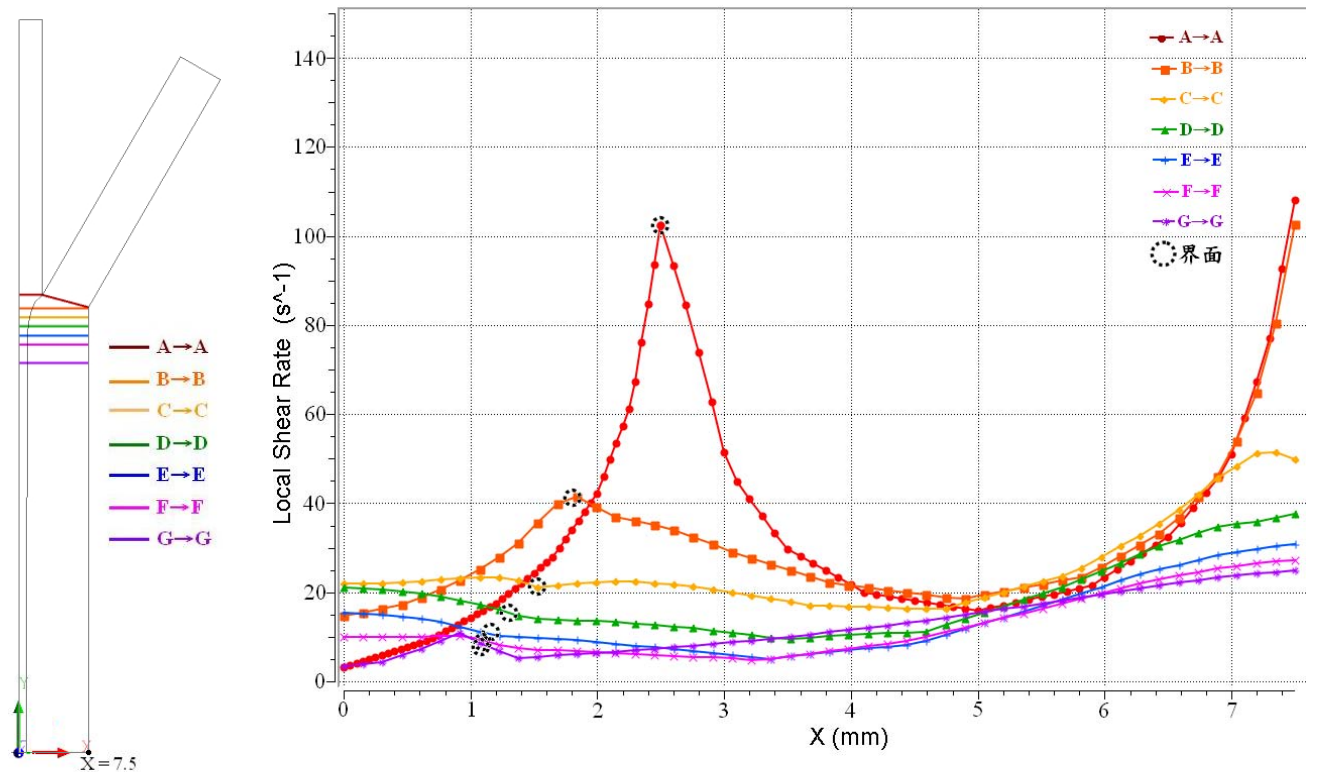


(d) 角度 60 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.16 (a)(b)(c)(d) 不同匯合角度其速度分佈曲線圖 (Z=15mm)

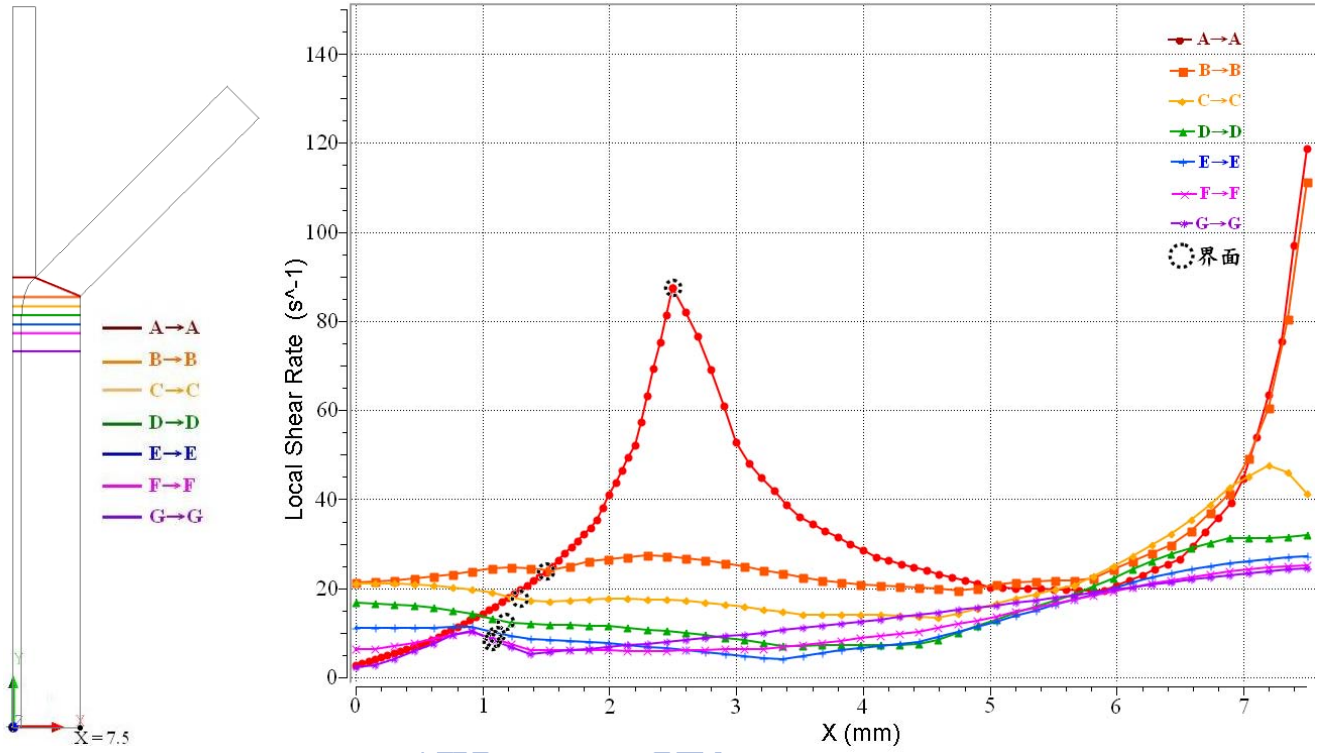


(a) 角度 20 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

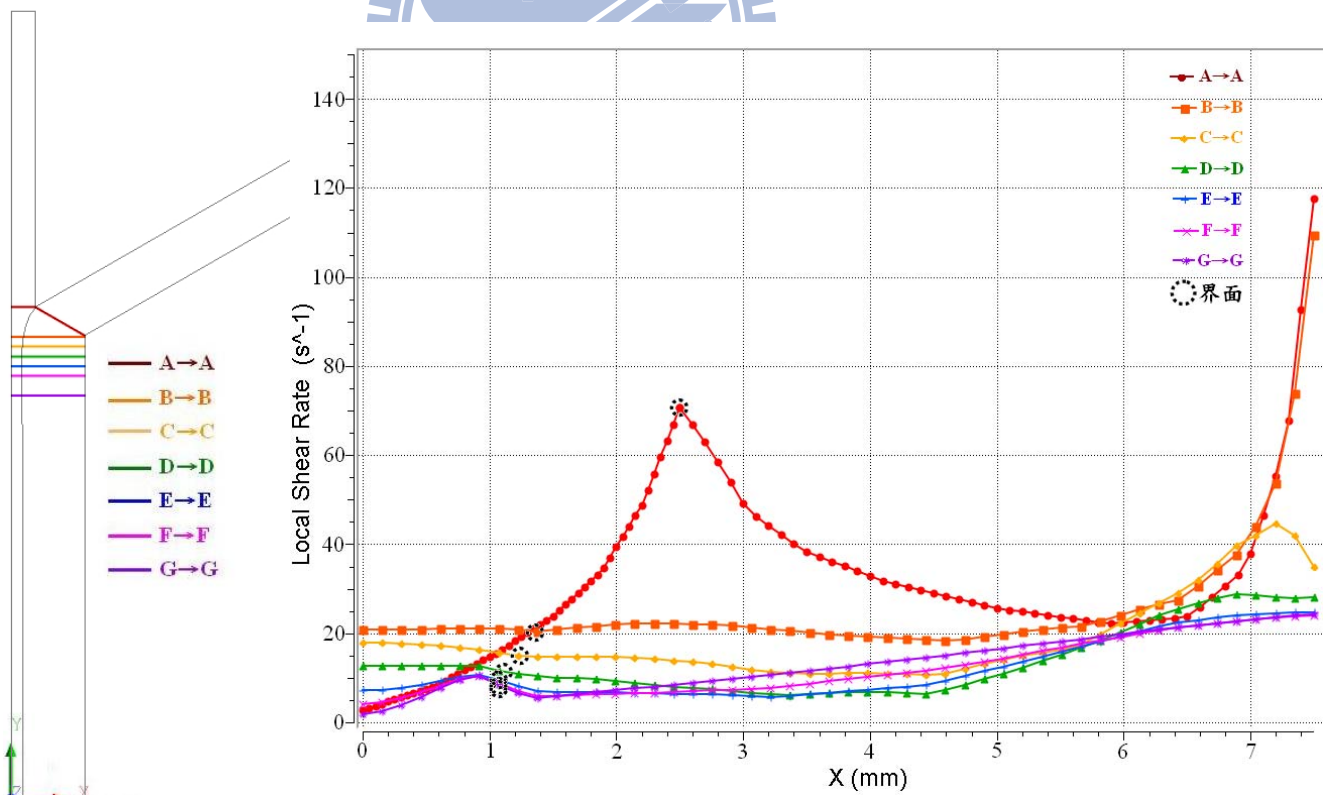


(b) 角度 30 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.17 (a)(b)(c)(d) 不同匯合角度其剪切率分佈曲線圖($Z=15\text{mm}$)

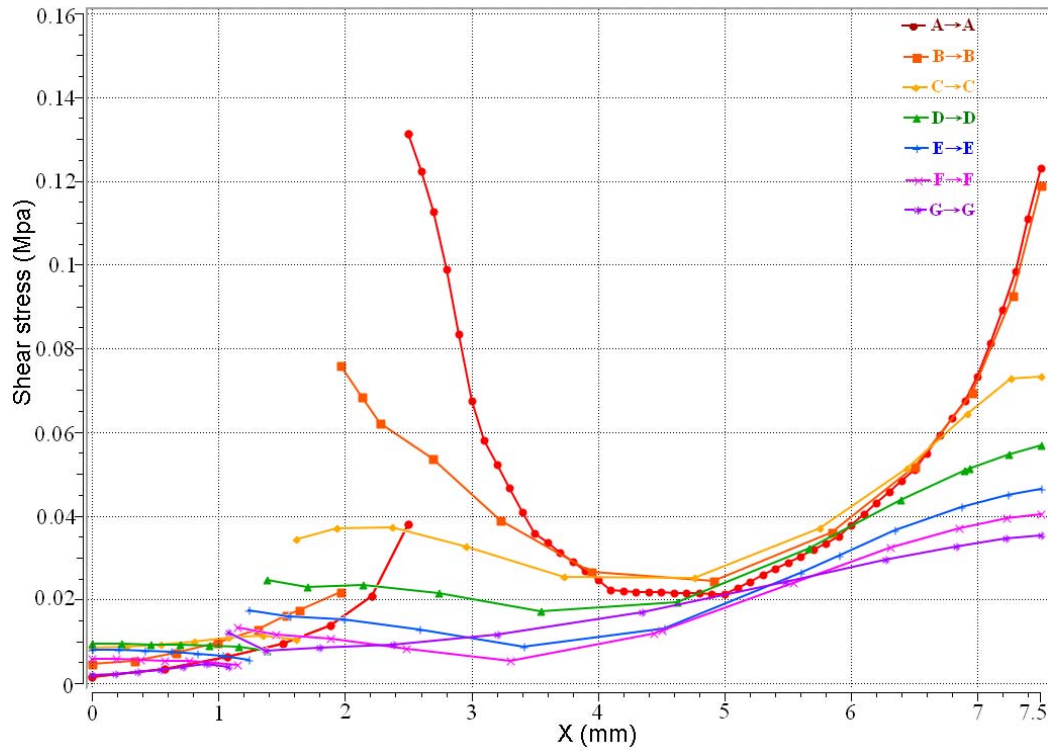
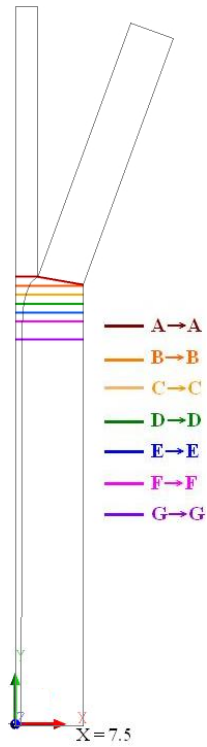


(c) 角度 45 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

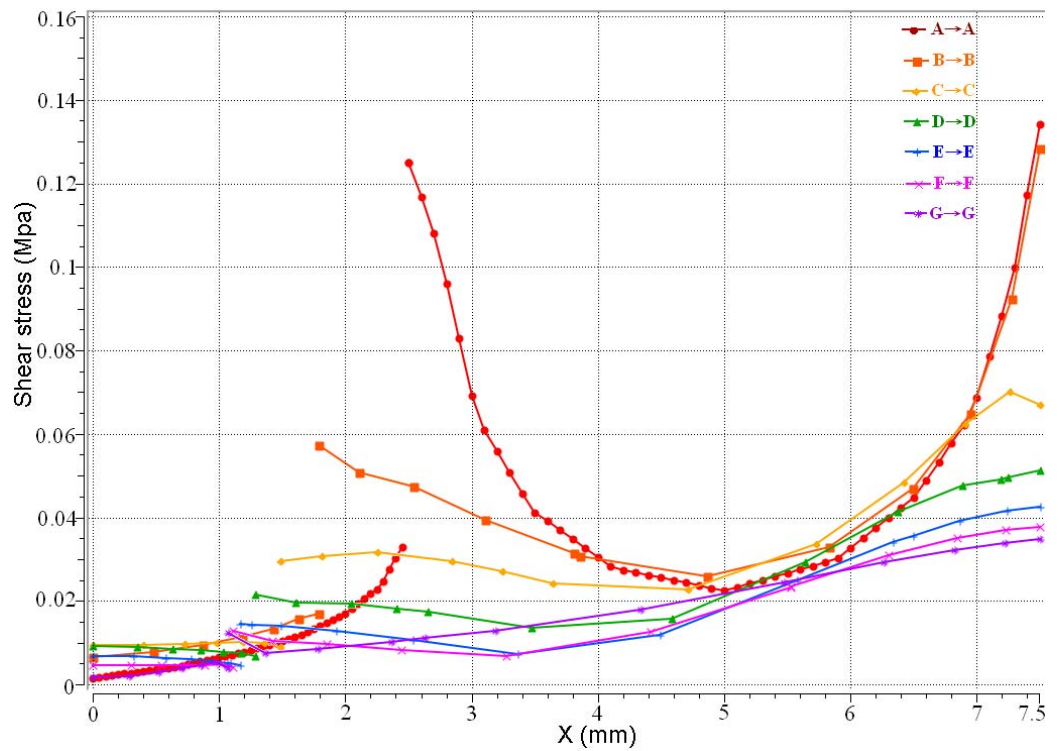
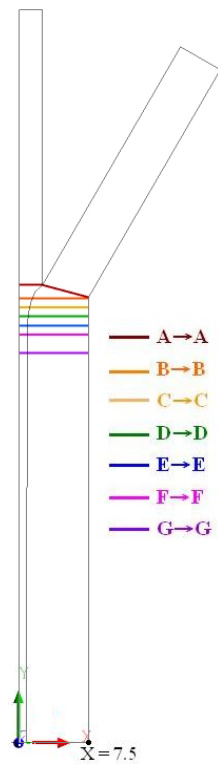


(d) 角度 60 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.17 (a)(b)(c)(d) 不同匯合角度其剪切率分佈曲線圖(Z=15mm)

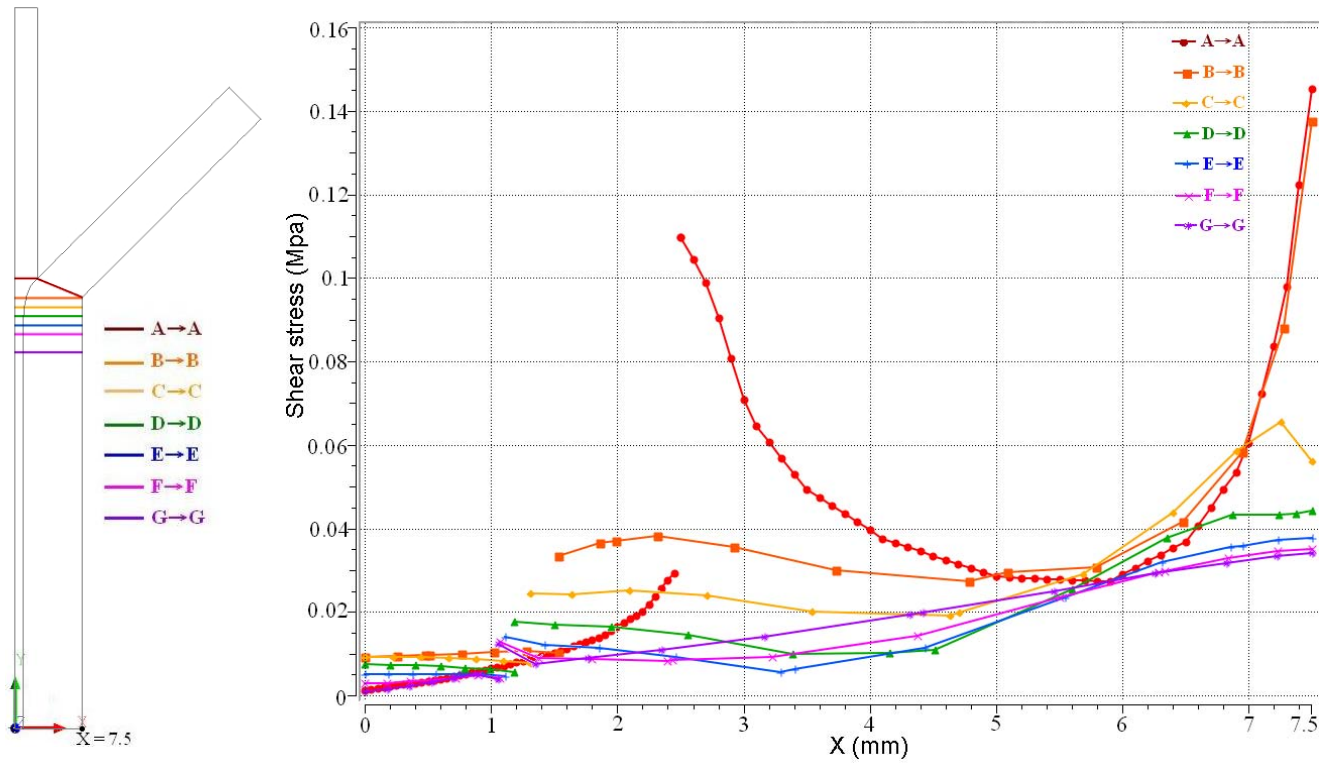


(a) 角度 20 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

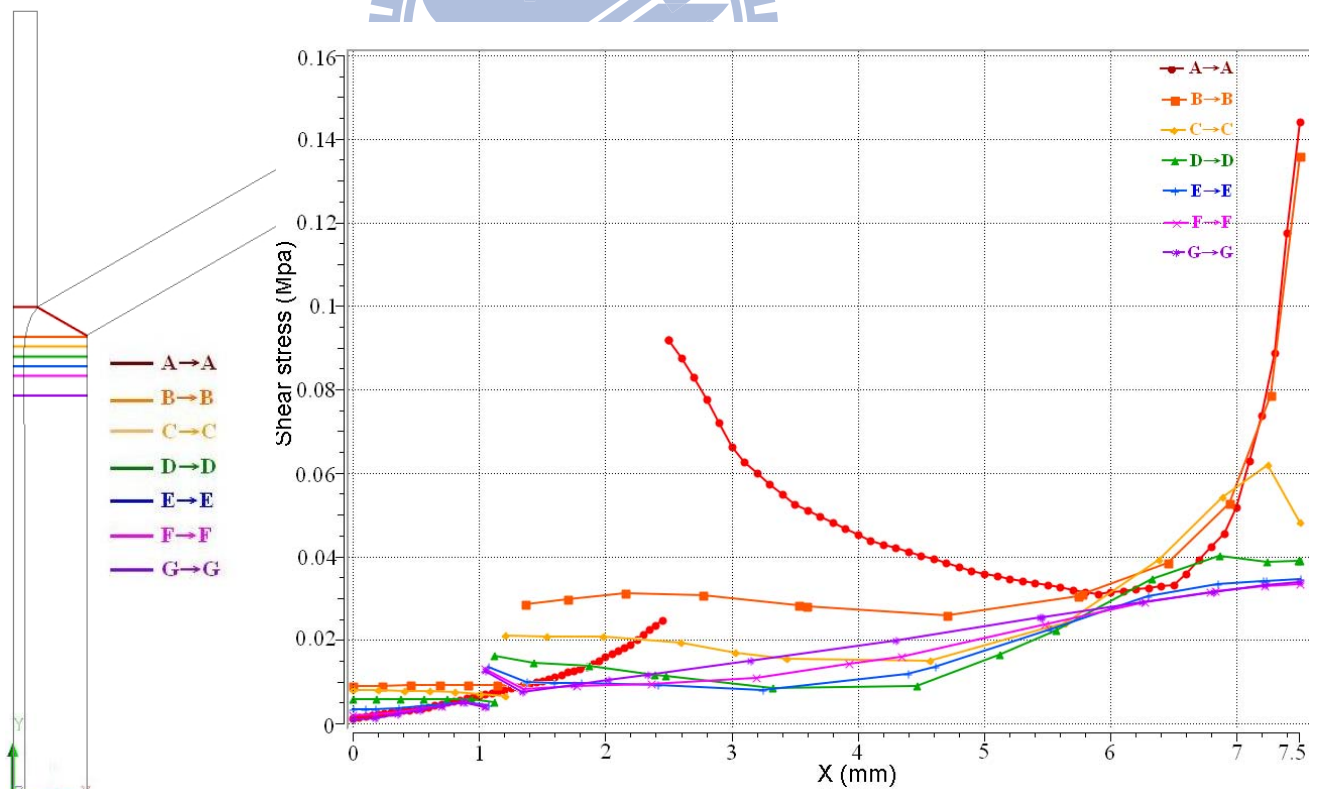


(b) 角度 30 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.18 (a)(b)(c)(d) 不同匯合角度其剪應力分佈曲線圖($Z=15\text{mm}$)



(c) 角度 45 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$



(d) 角度 60 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.18 (a)(b)(c)(d) 不同匯合角度其剪應力分佈曲線圖($Z=15\text{mm}$)

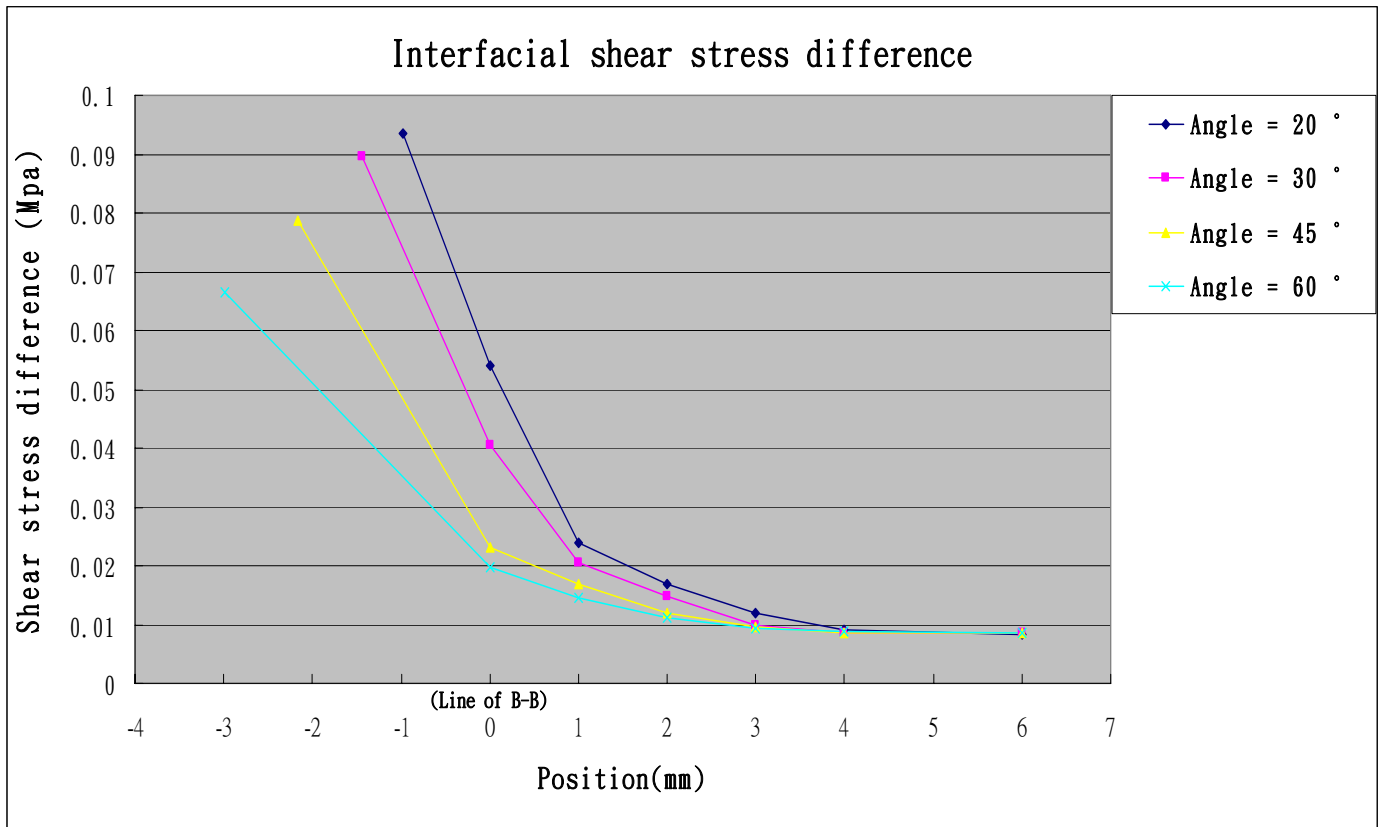


圖 4.19 $V_1:V_2=2:1$, $\eta_1:\eta_2=3:1$, 不同匯合角度其界面剪應力差曲線圖
 角度 20 度, 黏度比為 3, 擠出速度比為 1.5

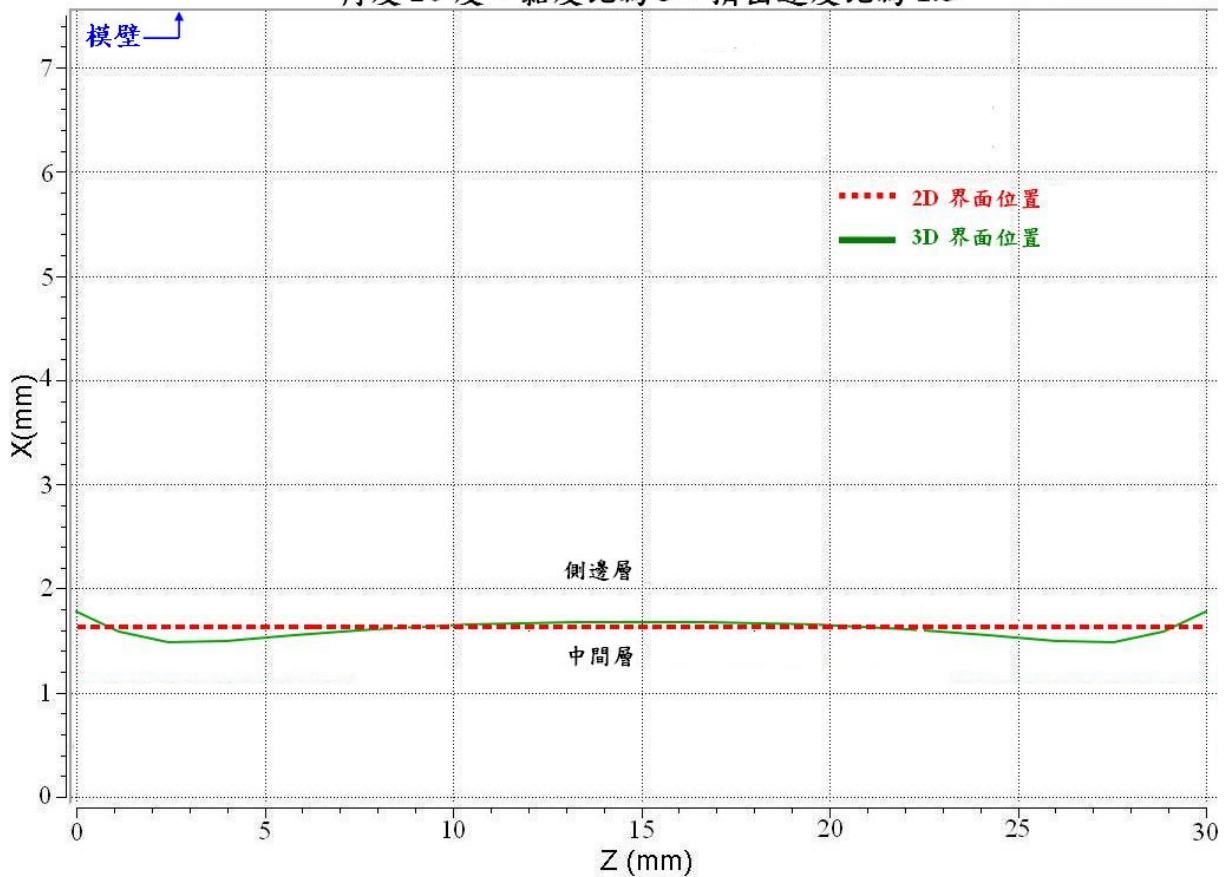


圖 4.20 二維與三維模擬出口界面之差異

黏度比為 3 比 1，速度比皆為 1.5 比 1

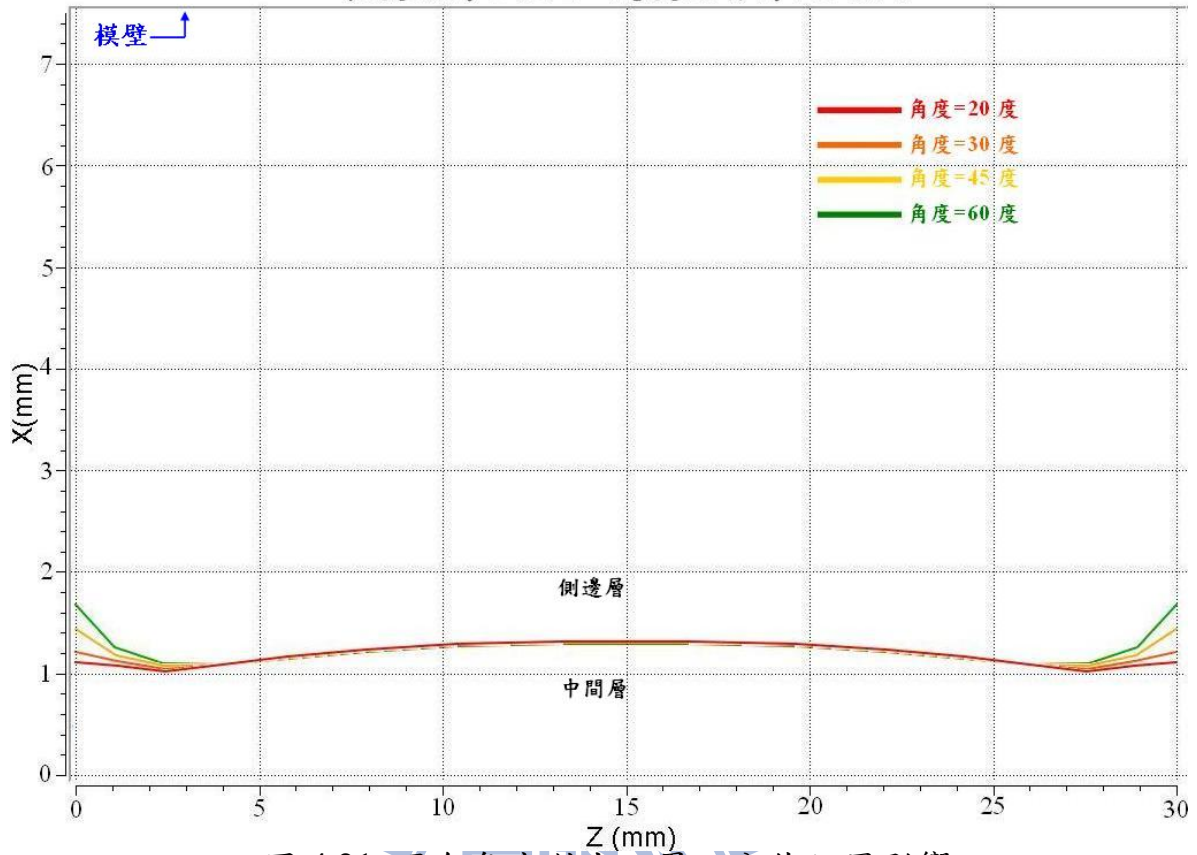
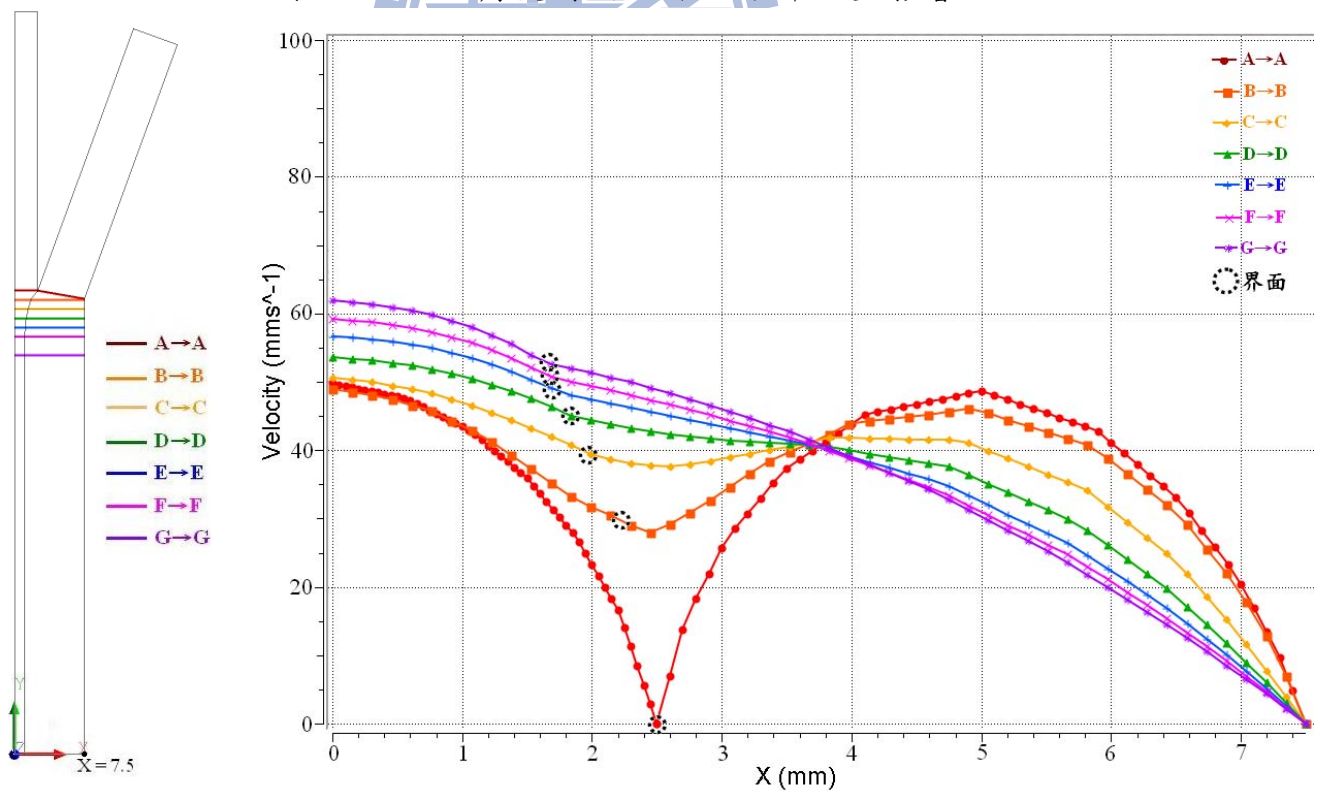
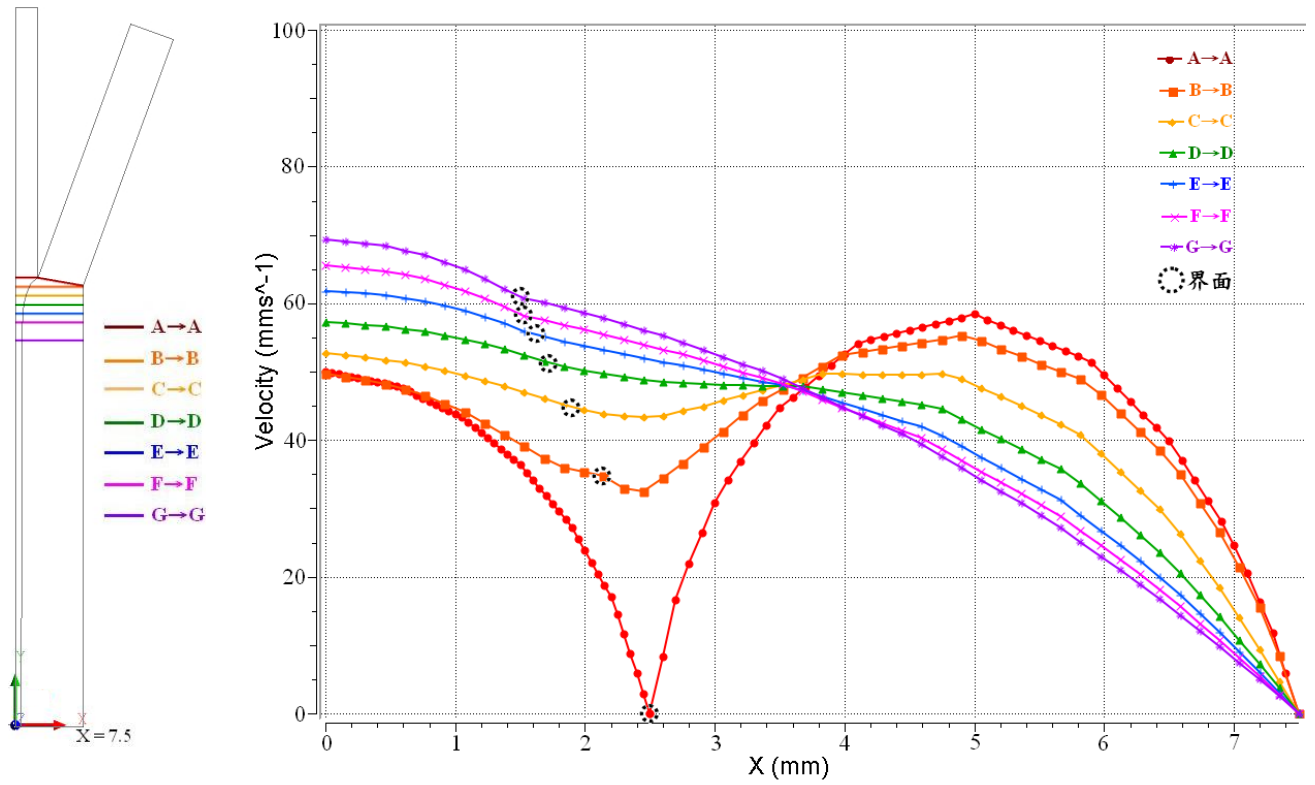


圖 4.21 匯合角度對出口界面分佈位置影響

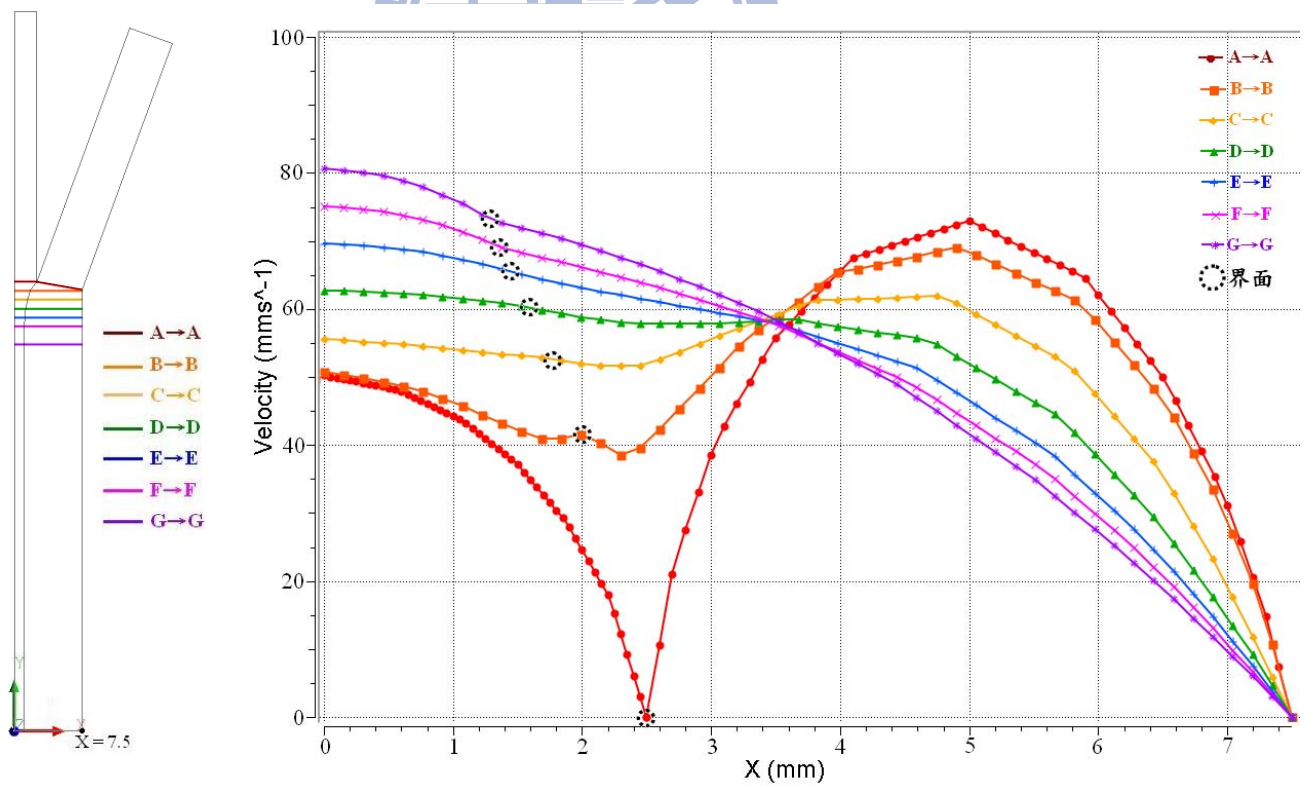


(a) 角度 20 度， $V_1:V_2=1:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.22 (a)(b)(c)(d) 不同擠出速度其速度分佈曲線圖 (Z=15mm)

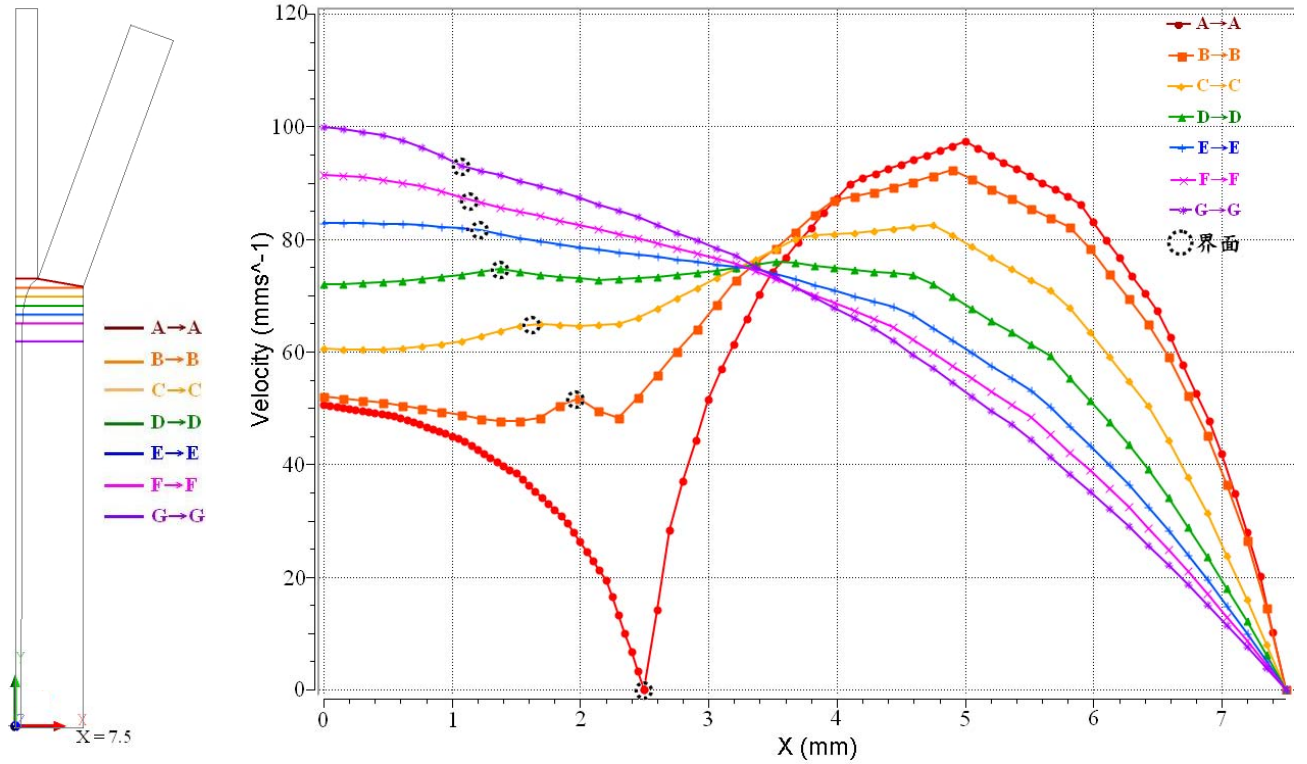


(b) 角度 20 度， $V_1:V_2=1.2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$



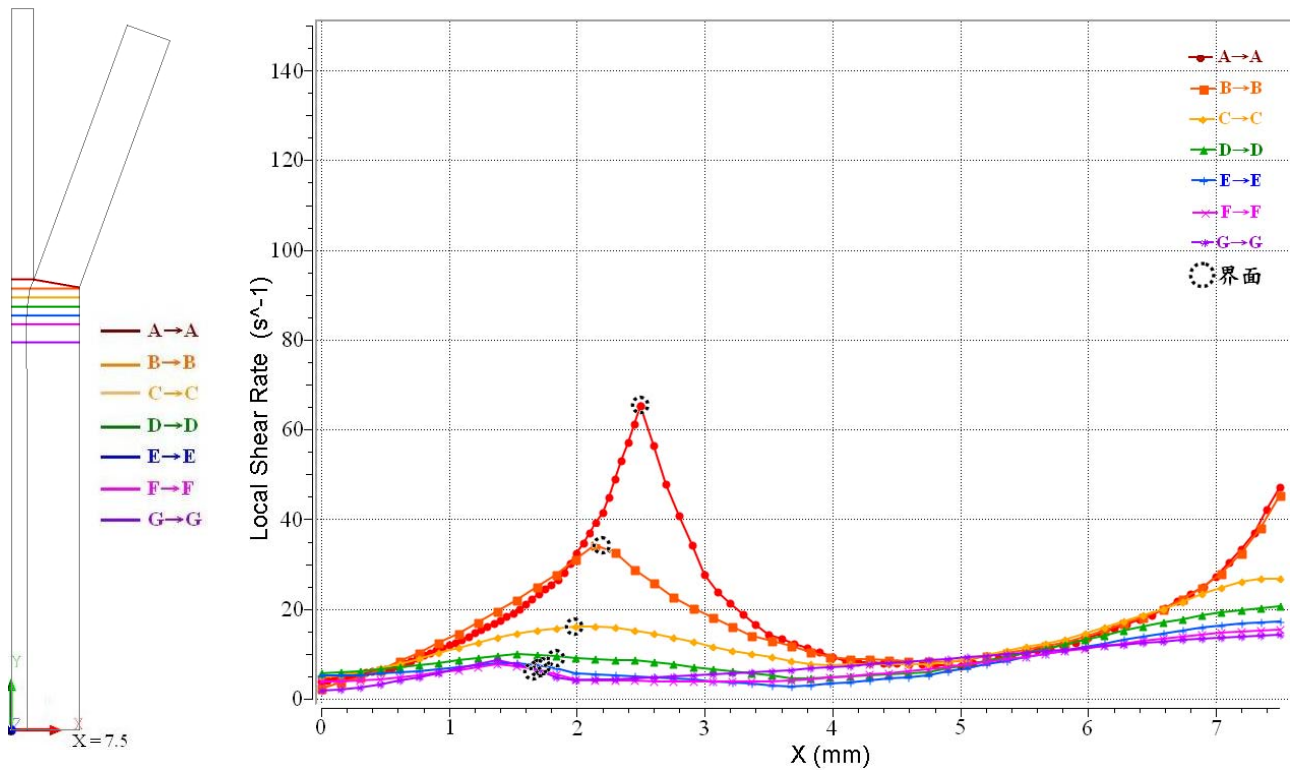
(c) 角度 20 度， $V_1:V_2=1.5:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.22 (a)(b)(c)(d) 不同擠出速度其速度分佈曲線圖 ($Z=15\text{mm}$)



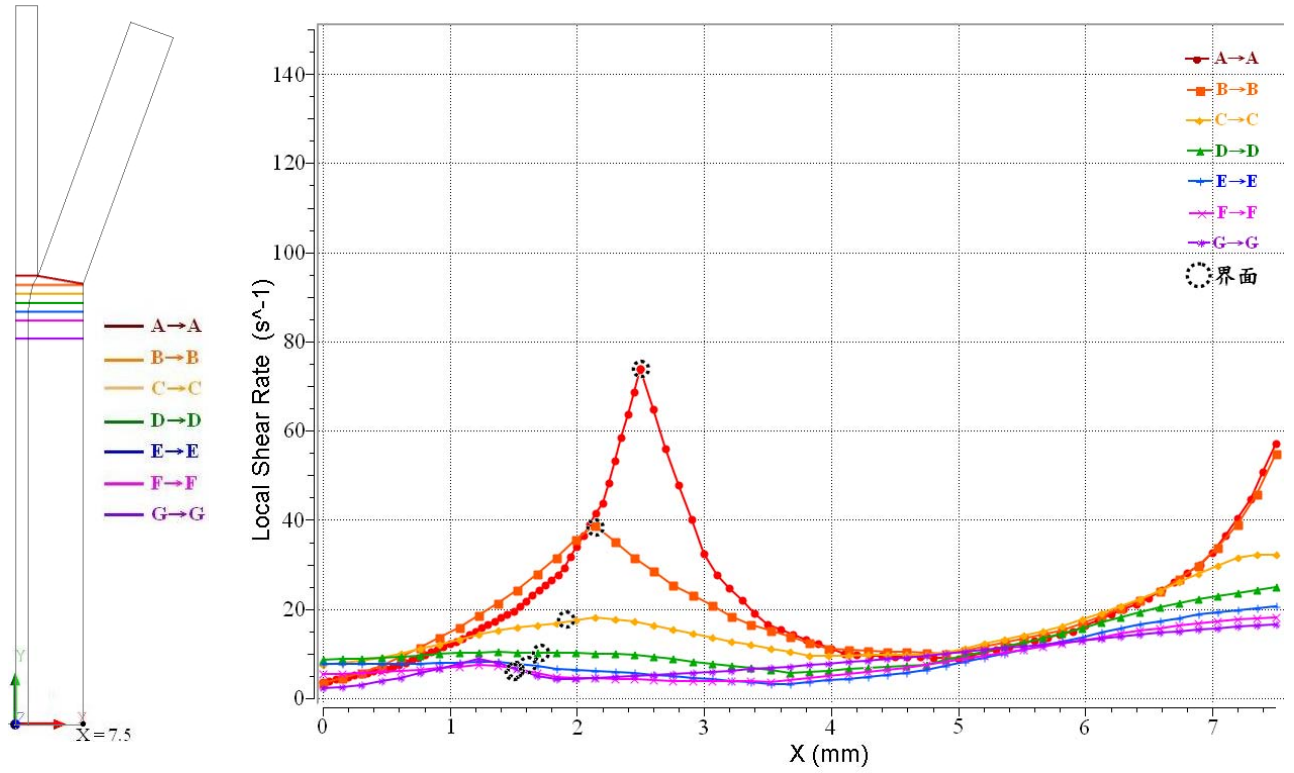
(d) 角度 20 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2 =3:1$

圖 4.22 (a)(b)(c)(d) 不同擠出速度其速度分佈曲線圖(Z=15mm)

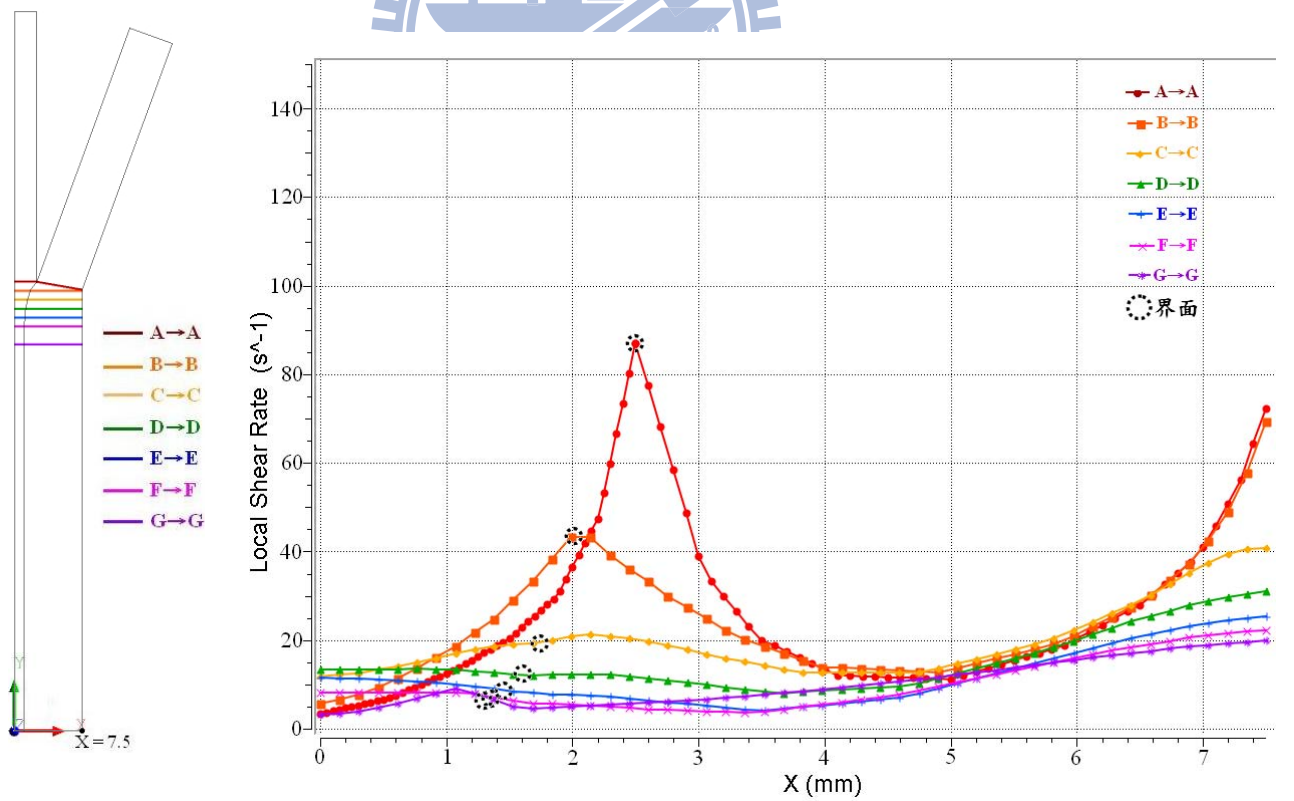


(a) 角度 20 度， $V_1:V_2=1:1$ ， $\eta_1:\eta_2 =3:1$

圖 4.23 (a)(b)(c)(d) 不同擠出速度其剪切率分佈曲線圖(Z=15mm)

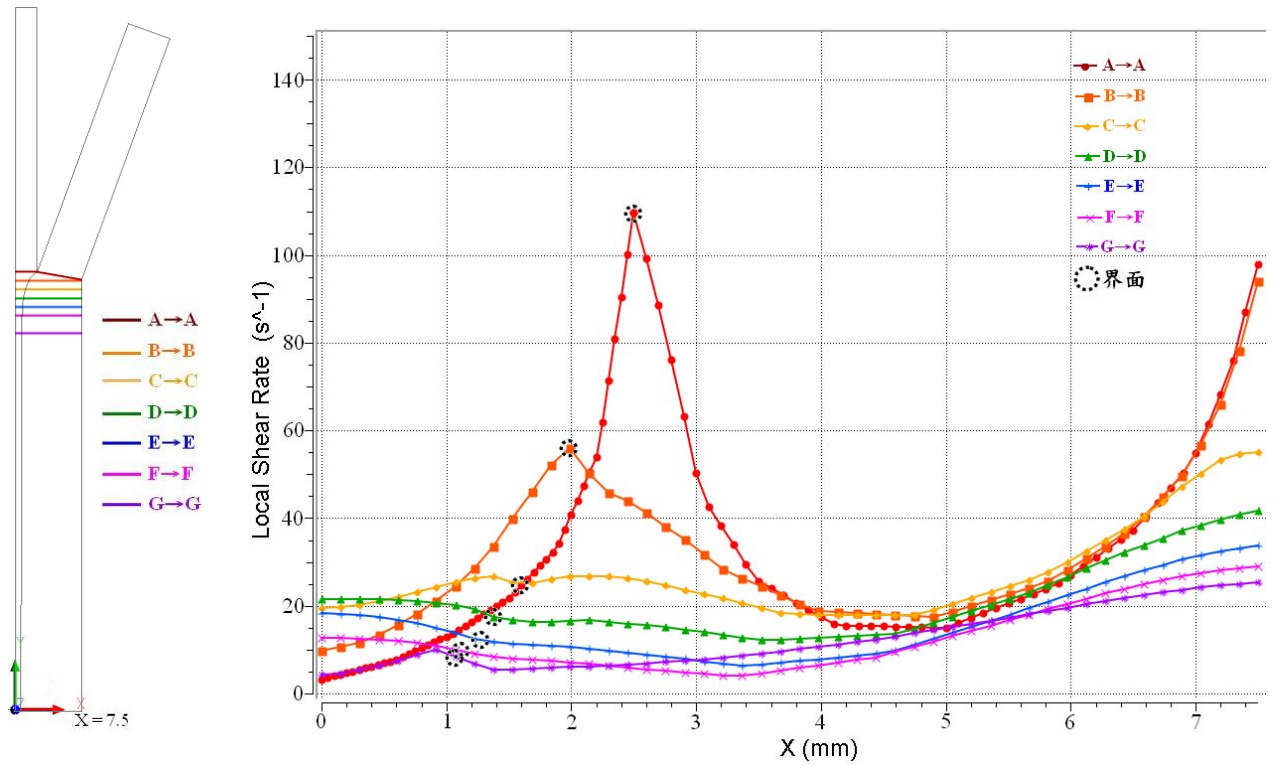


(b) 角度 20 度， $V_1:V_2=1.2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$



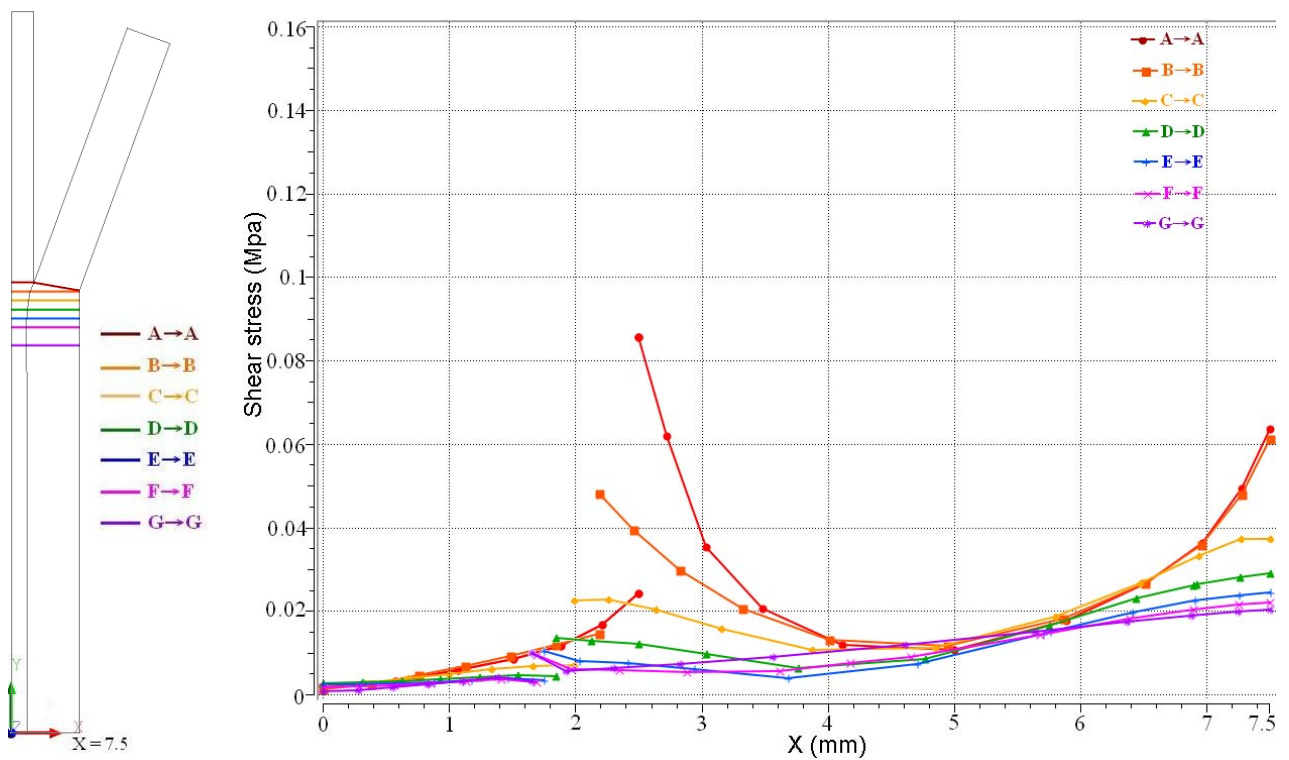
(c) 角度 20 度， $V_1:V_2=1.5:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.23 (a)(b)(c)(d) 不同擠出速度其剪切率分佈曲線圖 ($Z=15\text{mm}$)



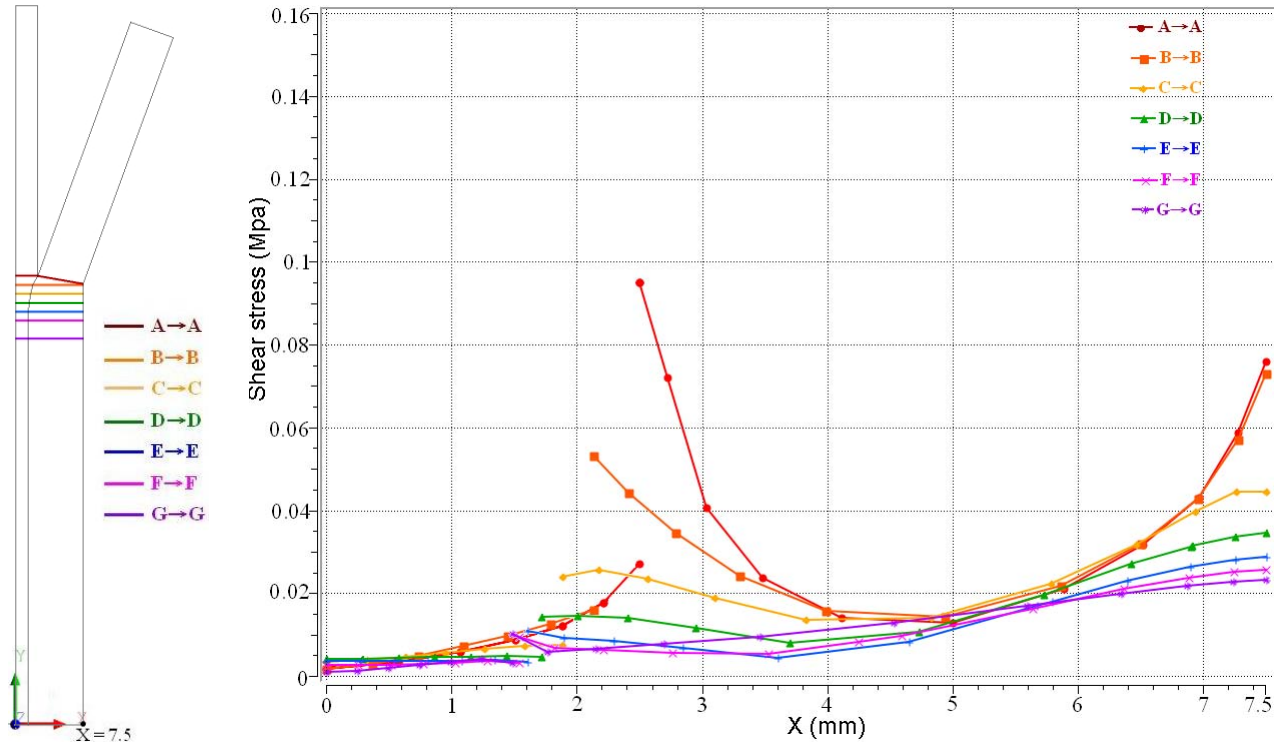
(d) 角度 20 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.23 (a)(b)(c)(d) 不同擠出速度其剪切率分佈曲線圖(Z=15mm)

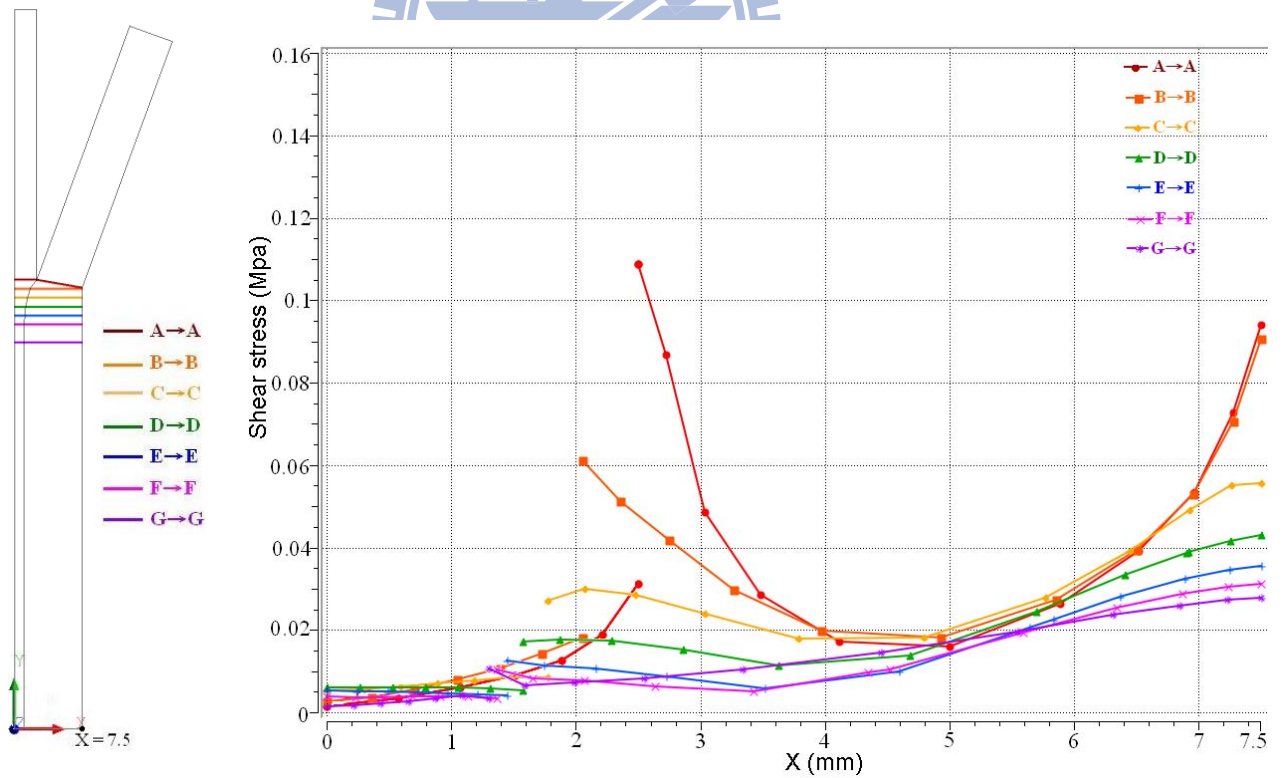
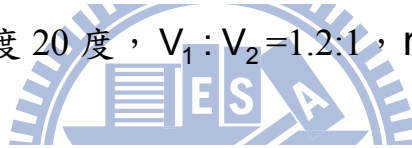


(a) 角度 20 度， $V_1:V_2=1:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.24 (a)(b)(c)(d) 不同擠出速度其剪應力分佈曲線圖(Z=15mm)

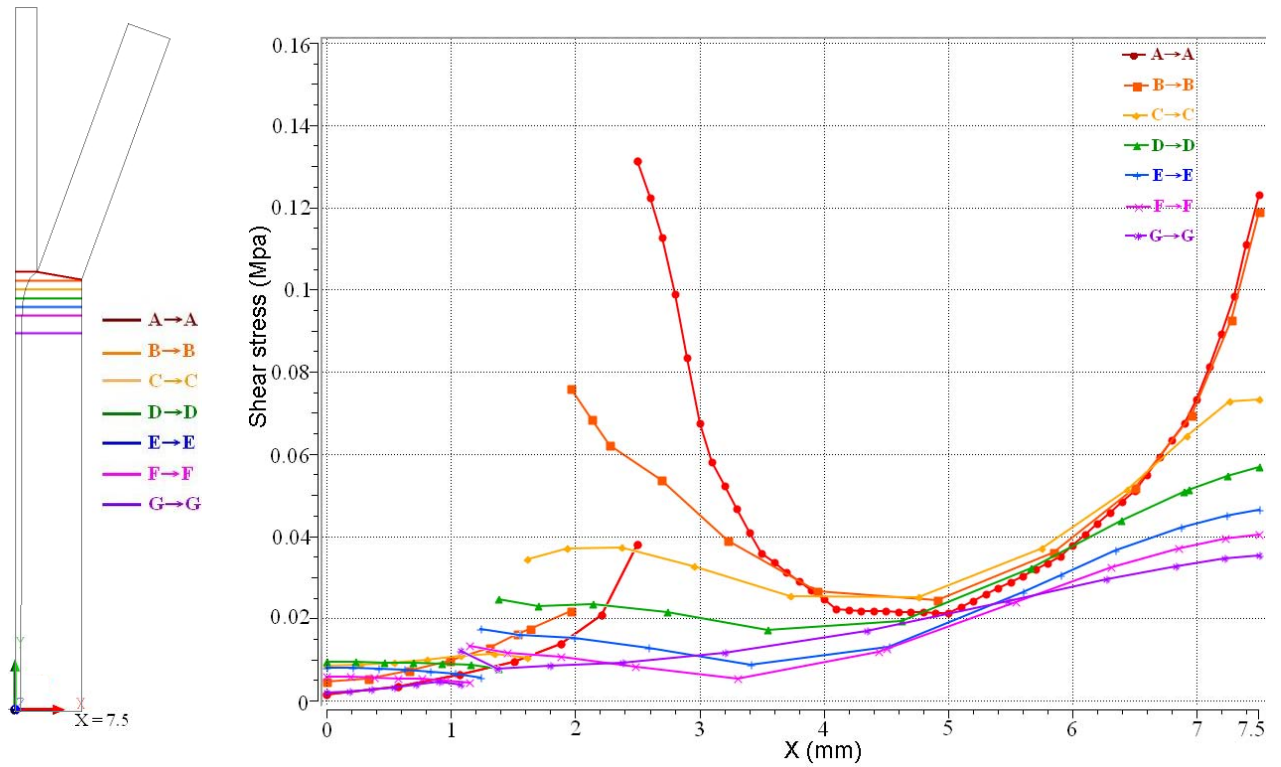


(b) 角度 20 度， $V_1:V_2=1.2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$



(c) 角度 20 度， $V_1:V_2=1.5:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.24 (a)(b)(c)(d) 不同擠出速度其剪應力分佈曲線圖 ($Z=15\text{mm}$)



(d) 角度 20 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.24 (a)(b)(c)(d) 不同擠出速度其剪應力分佈曲線圖 ($Z=15\text{mm}$)

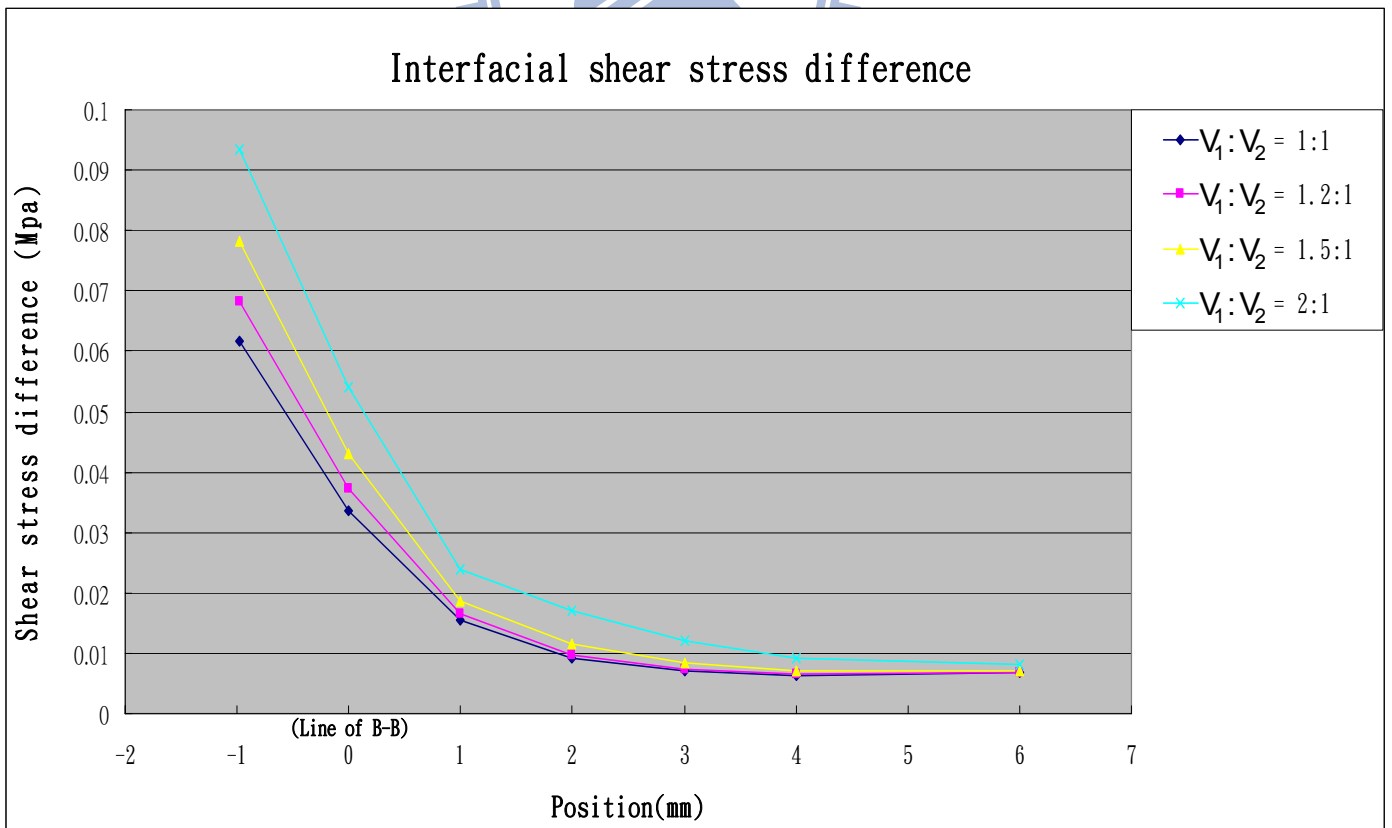


圖 4.25 角度為 20° ，不同擠出速度比其界面剪應力差曲線圖

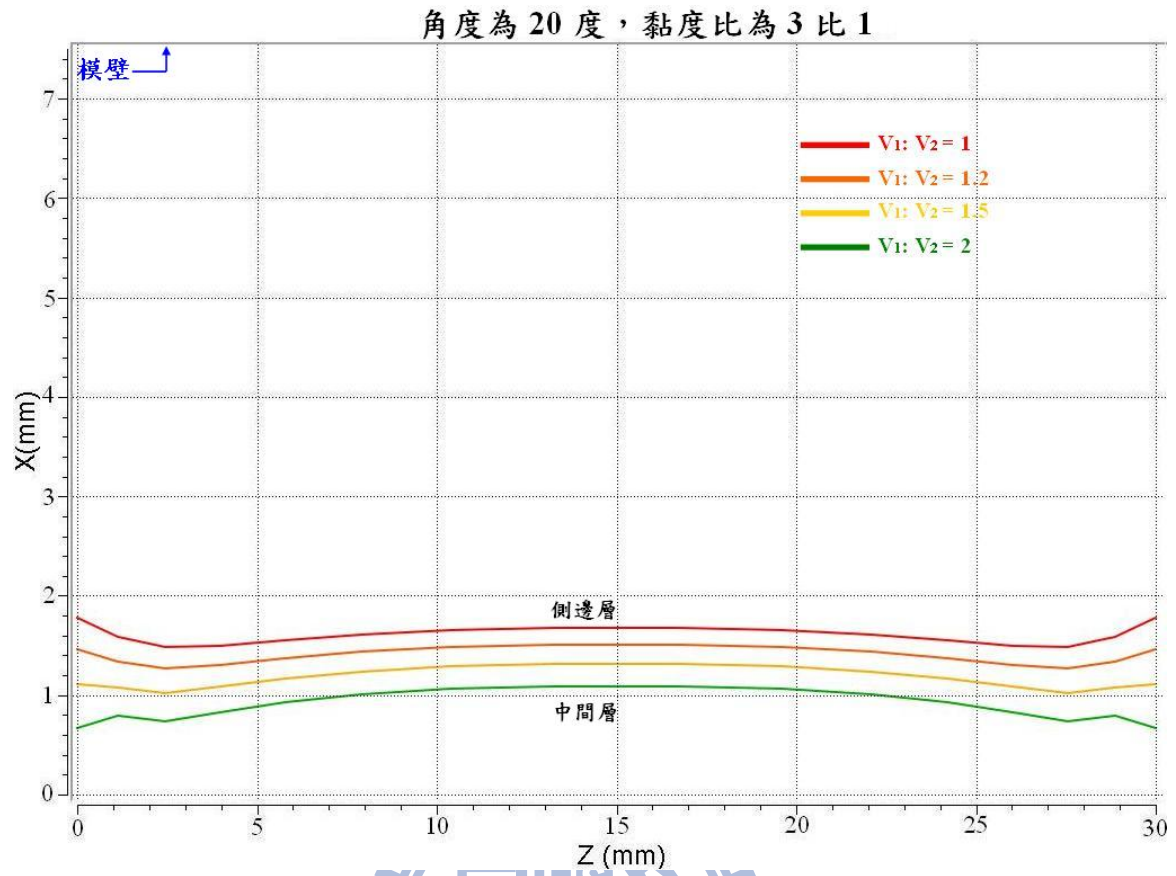
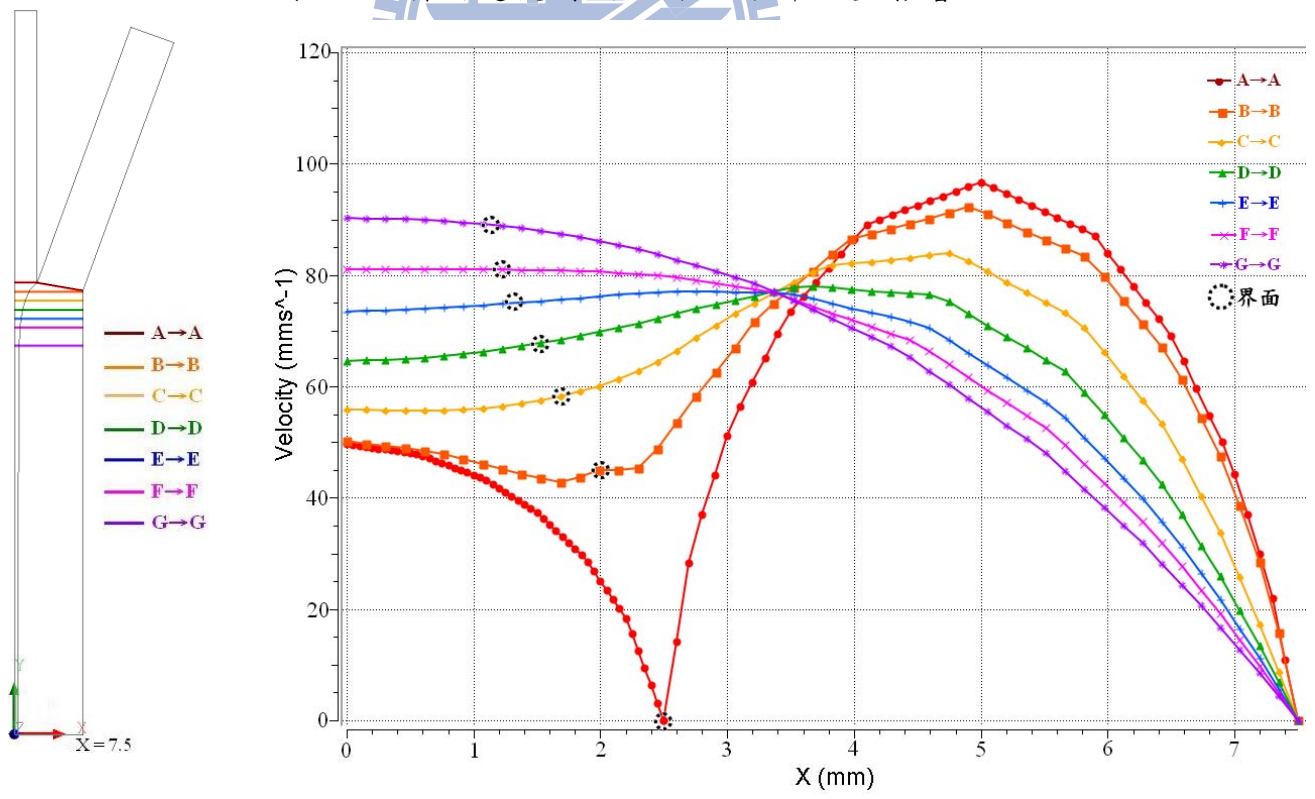
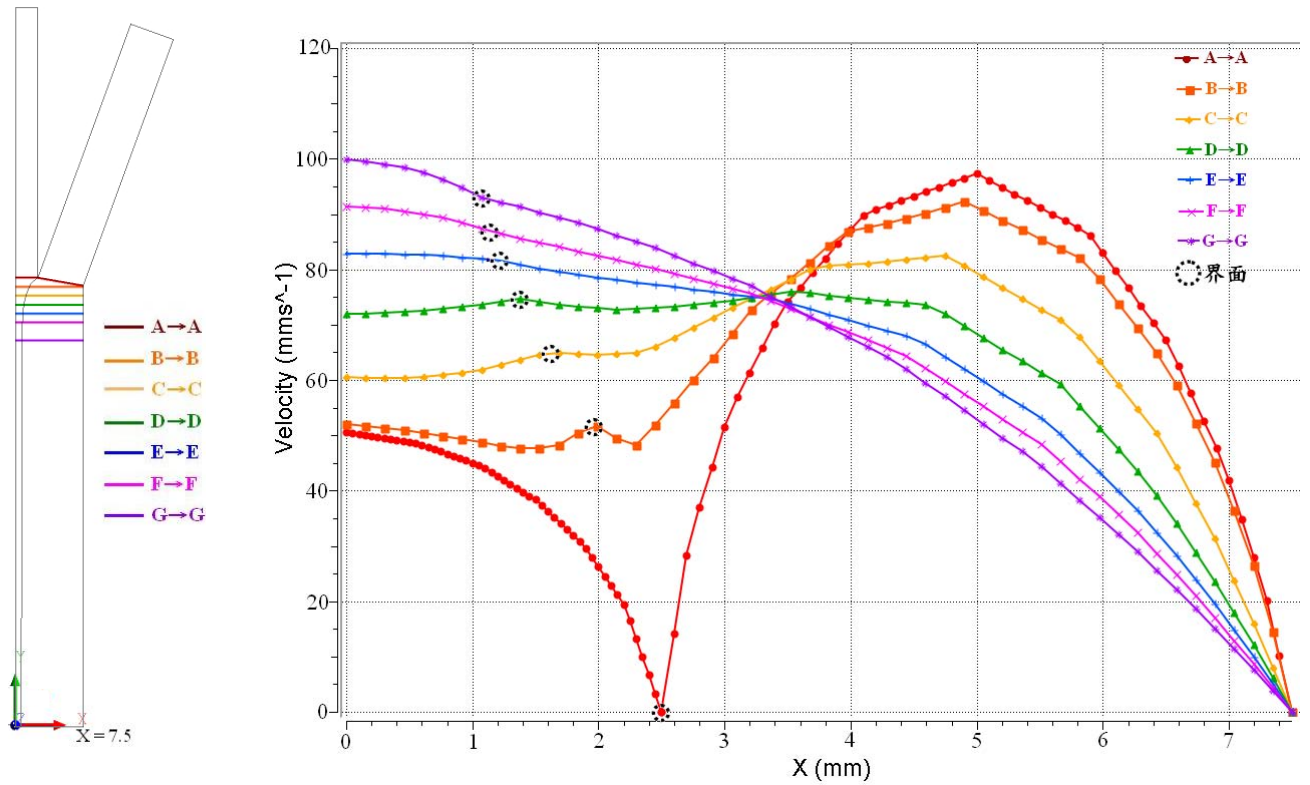


圖 4.26 擠出速度對出口界面分佈位置影響



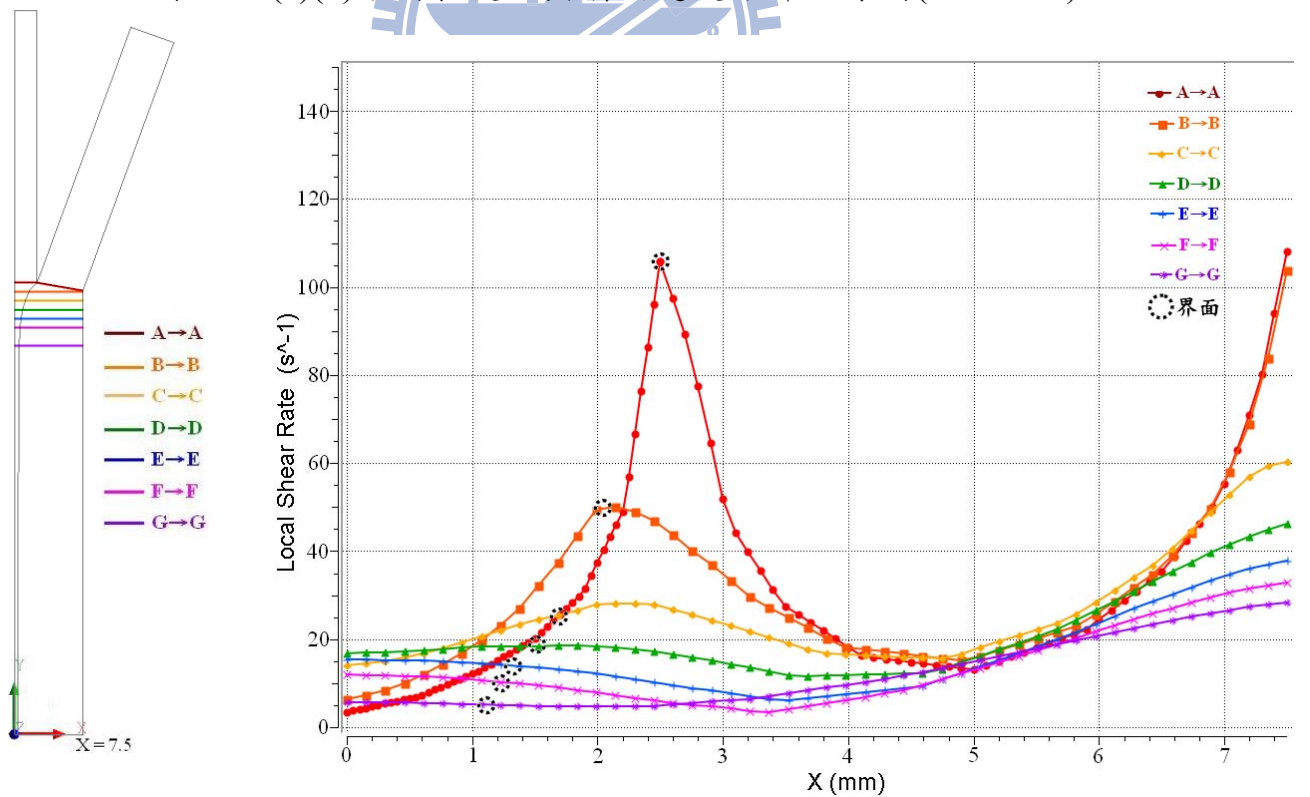
(a) 角度 20 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=1:1$

圖 4.27 (a)(b) 不同黏度比其擠出速度分佈曲線圖 (Z=15mm)



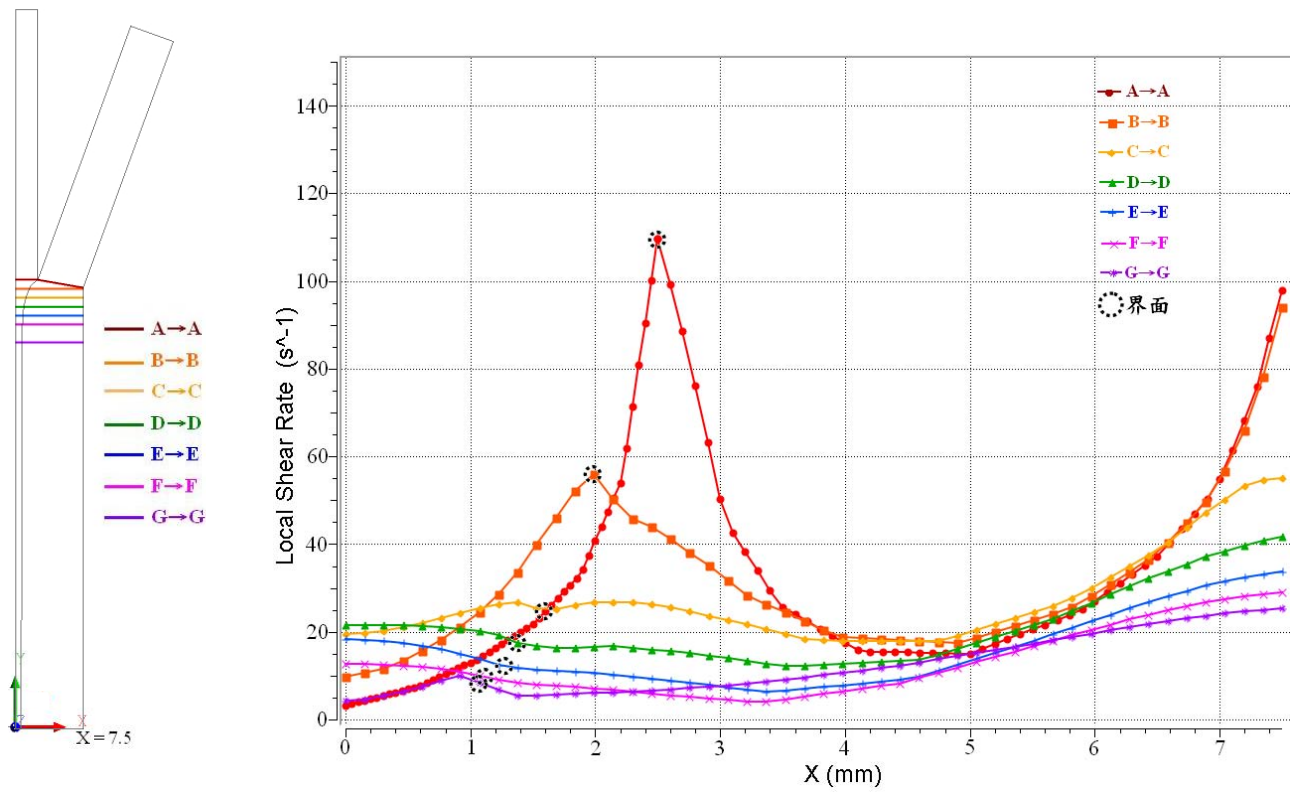
(b) 角度 20 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.27 (a)(b) 不同黏度比其擠出速度分佈曲線圖 ($Z=15\text{mm}$)



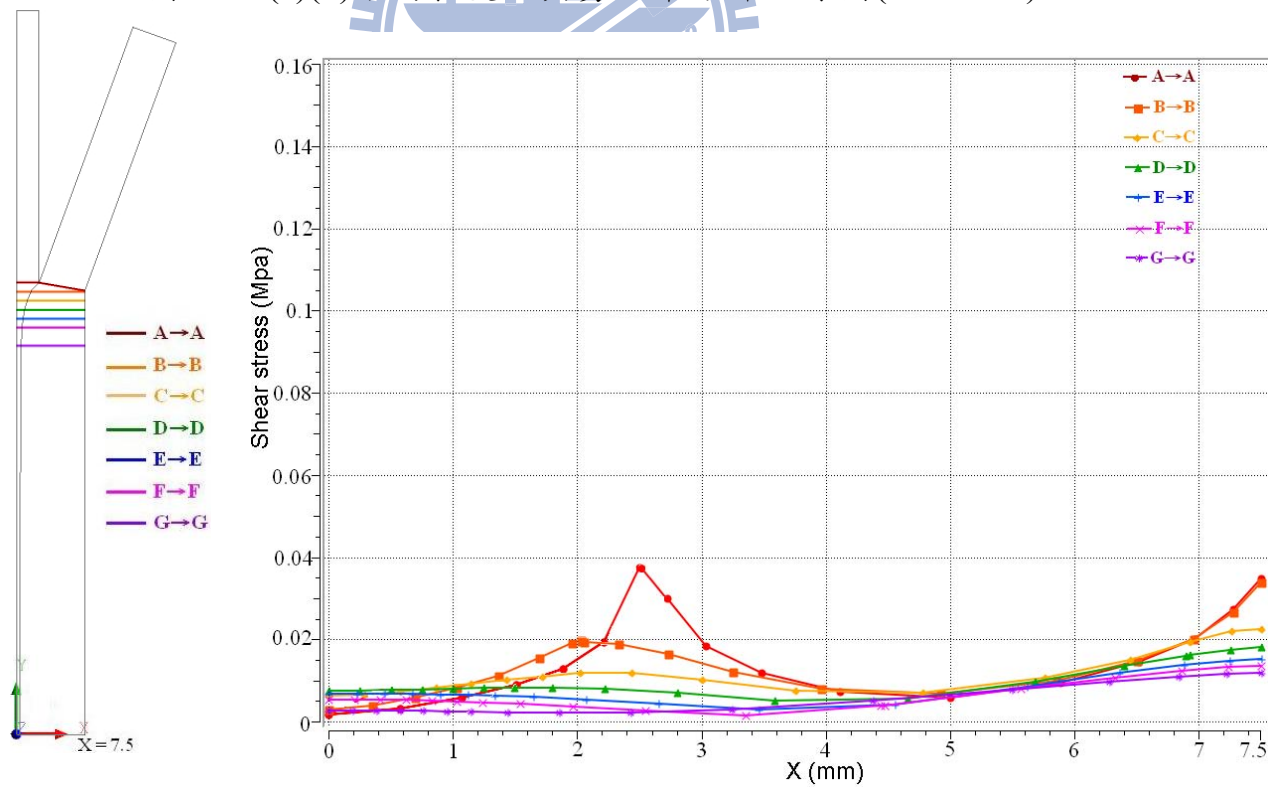
(a) 角度 20 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=1:1$

圖 4.28 (a)(b) 不同黏度比其擠出速度分佈曲線圖 ($Z=15\text{mm}$)



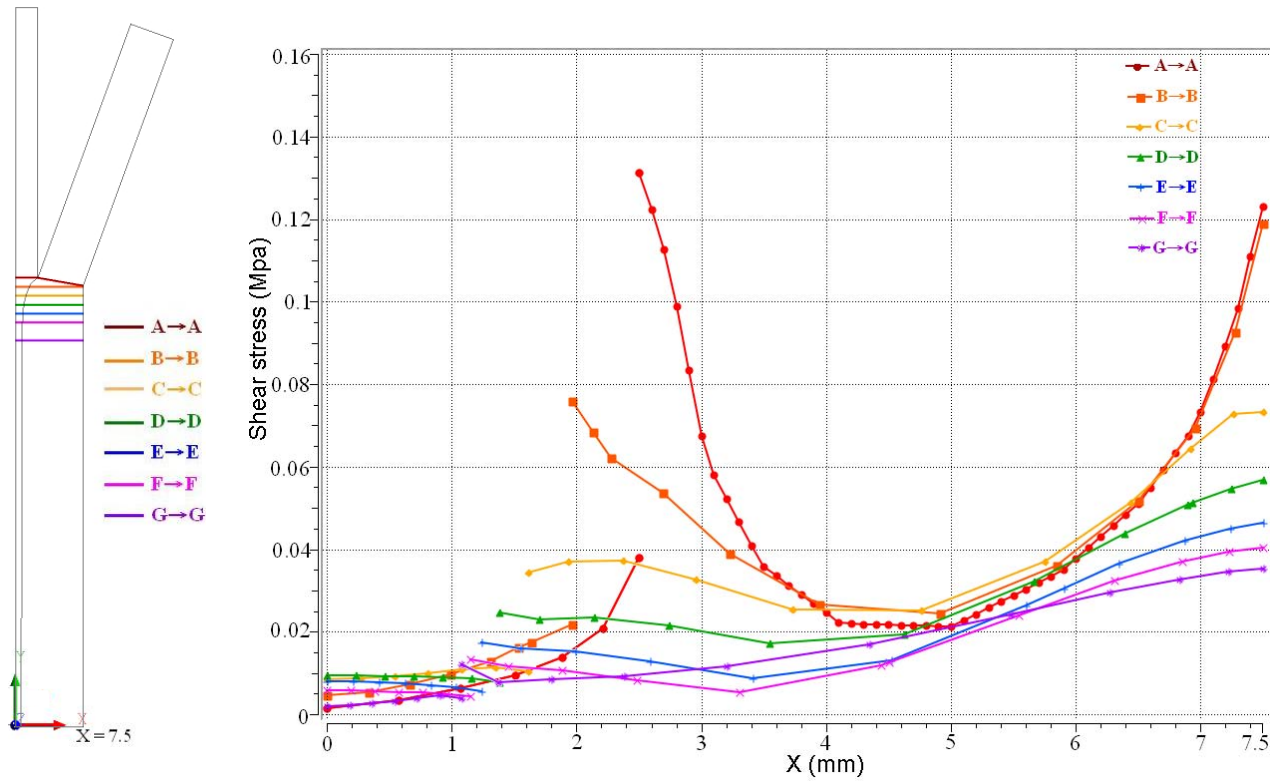
(b) 角度 20 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.28 (a)(b) 不同黏度比其剪切率分佈曲線圖(Z=15mm)



(a) 角度 20 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=1:1$

圖 4.29 (a)(b) 不同黏度比其剪應力分佈曲線圖(Z=15mm)



(b)角度 20 度， $V_1:V_2=2:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$

圖 4.29 (a)(b)不同黏度比其剪應力分佈曲線圖($Z=15\text{mm}$)

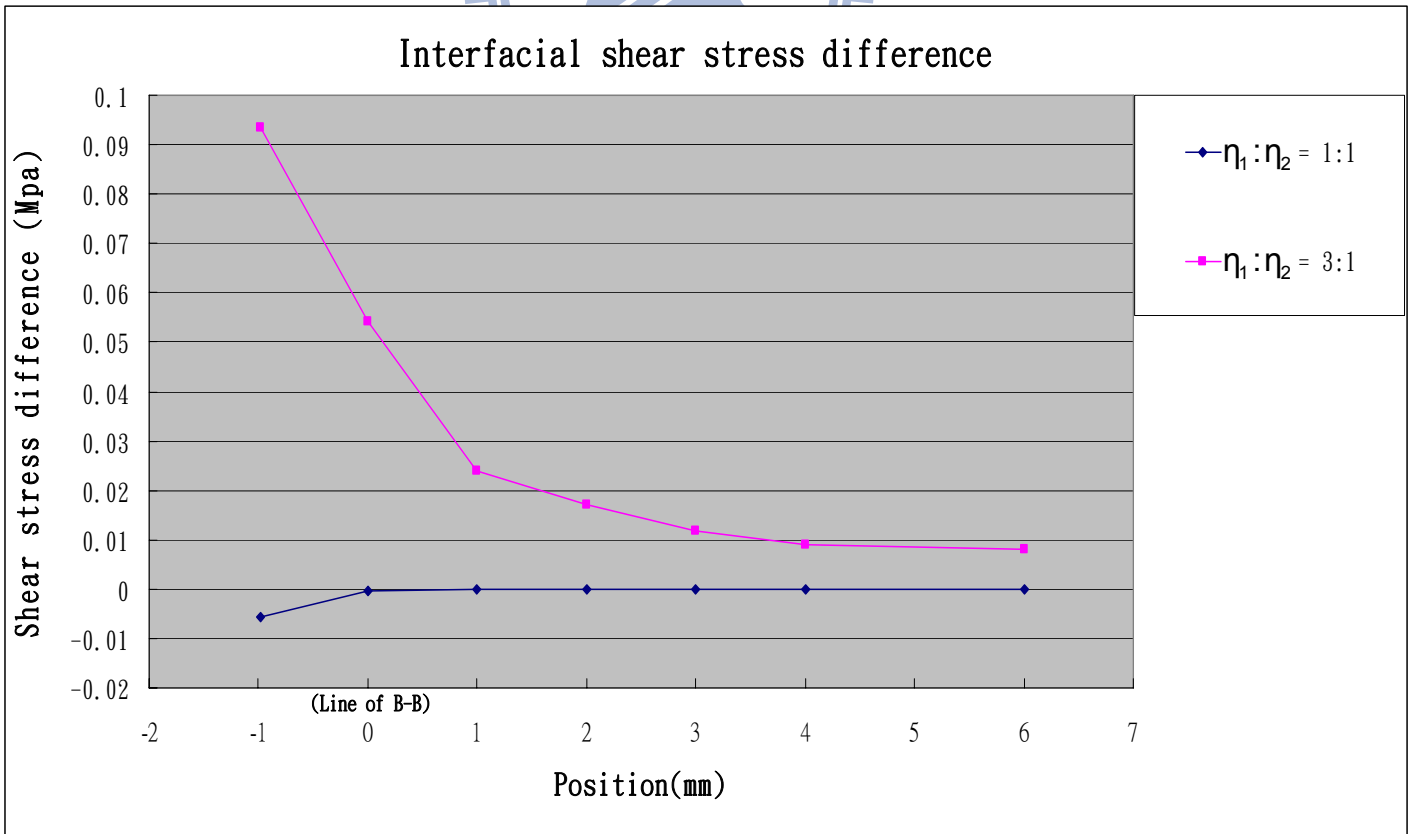


圖 4.30 角度為 20° ，不同黏度比其界面剪應力差曲線圖

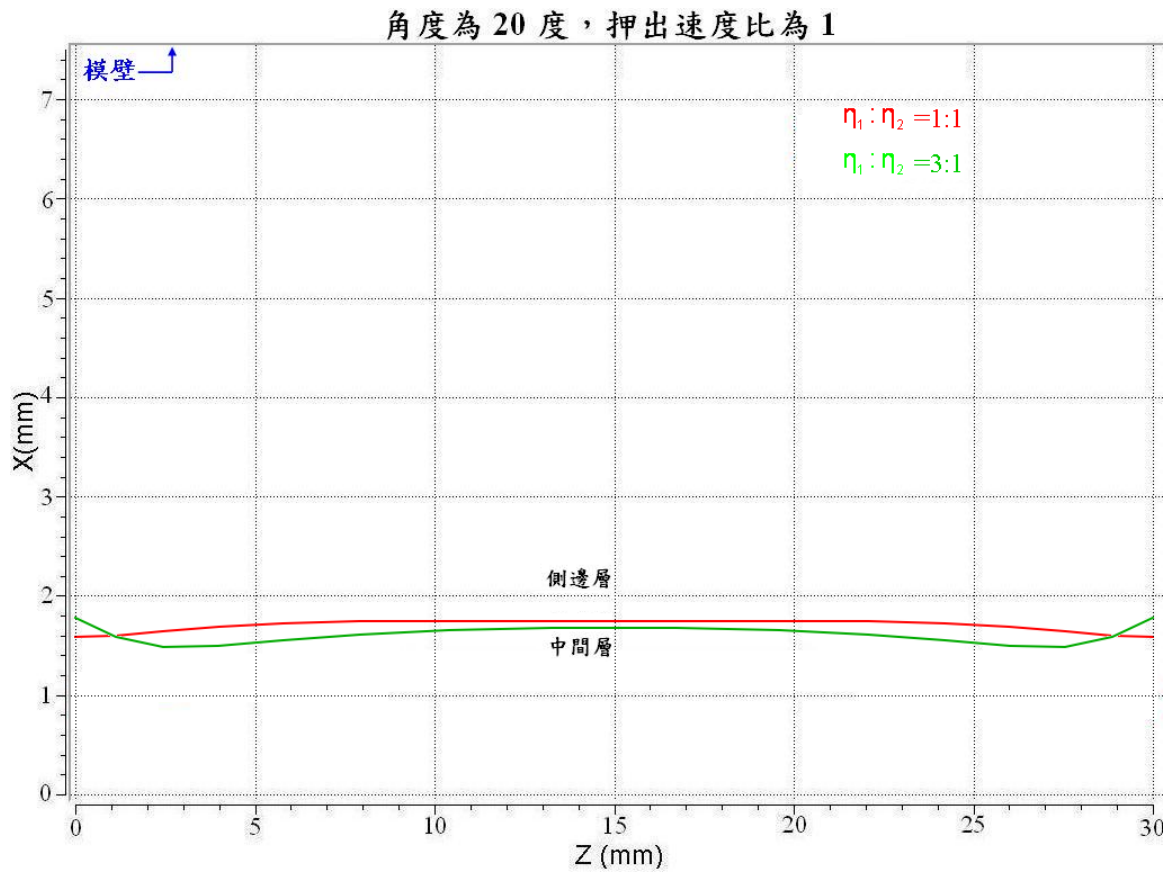
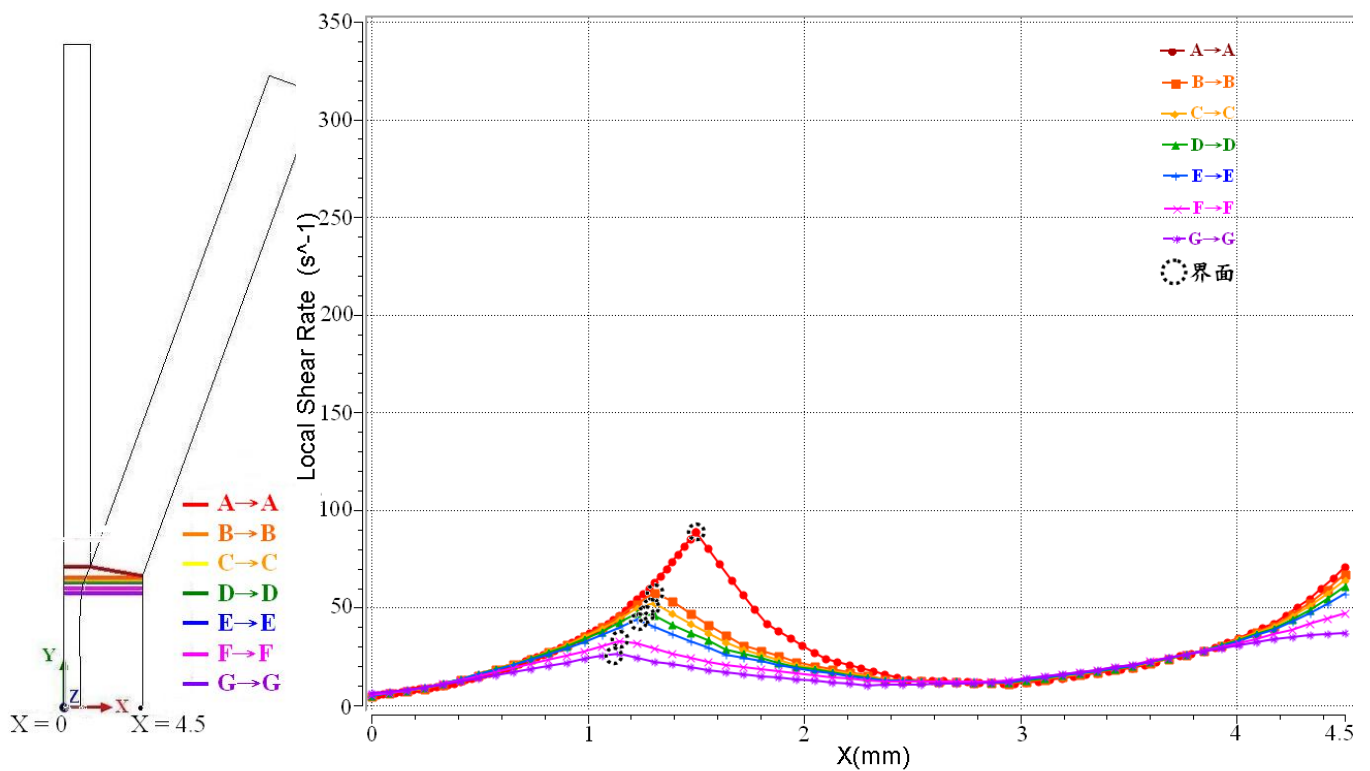
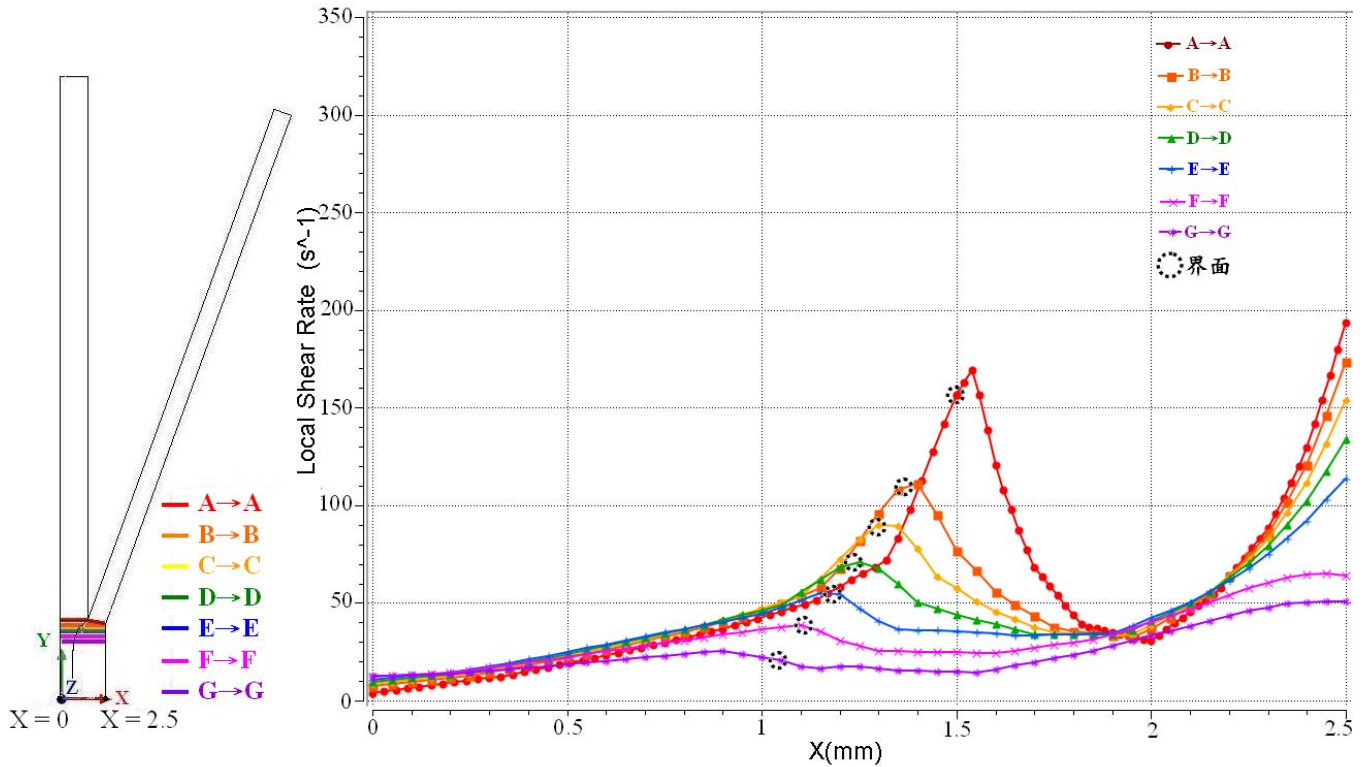


圖 4.31 黏度比對出口界面分佈位置影響

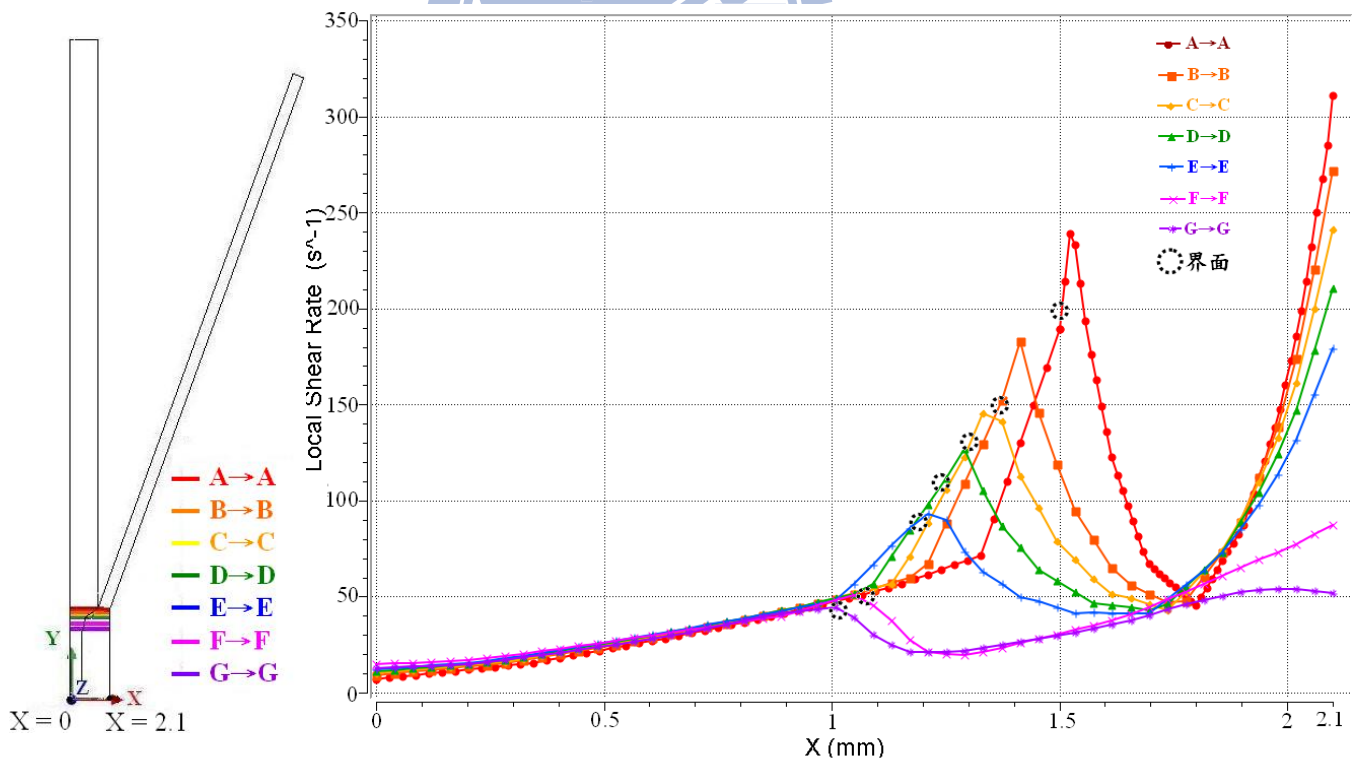


(a) $V_1 : V_2 = 1:1$, $d_1 : d_2 = 1:1$

圖 4.32 (a)(b)(c)不同厚度比其剪切率分佈曲線圖(Z=15mm)



(b) $V_1:V_2=1:1$, $d_1:d_2=0.33:1$



(c) $V_1:V_2=1:1$, $d_1:d_2=0.2:1$

圖 4.32 (a)(b)(c)不同厚度比其剪切率分佈曲線圖($Z=15mm$)

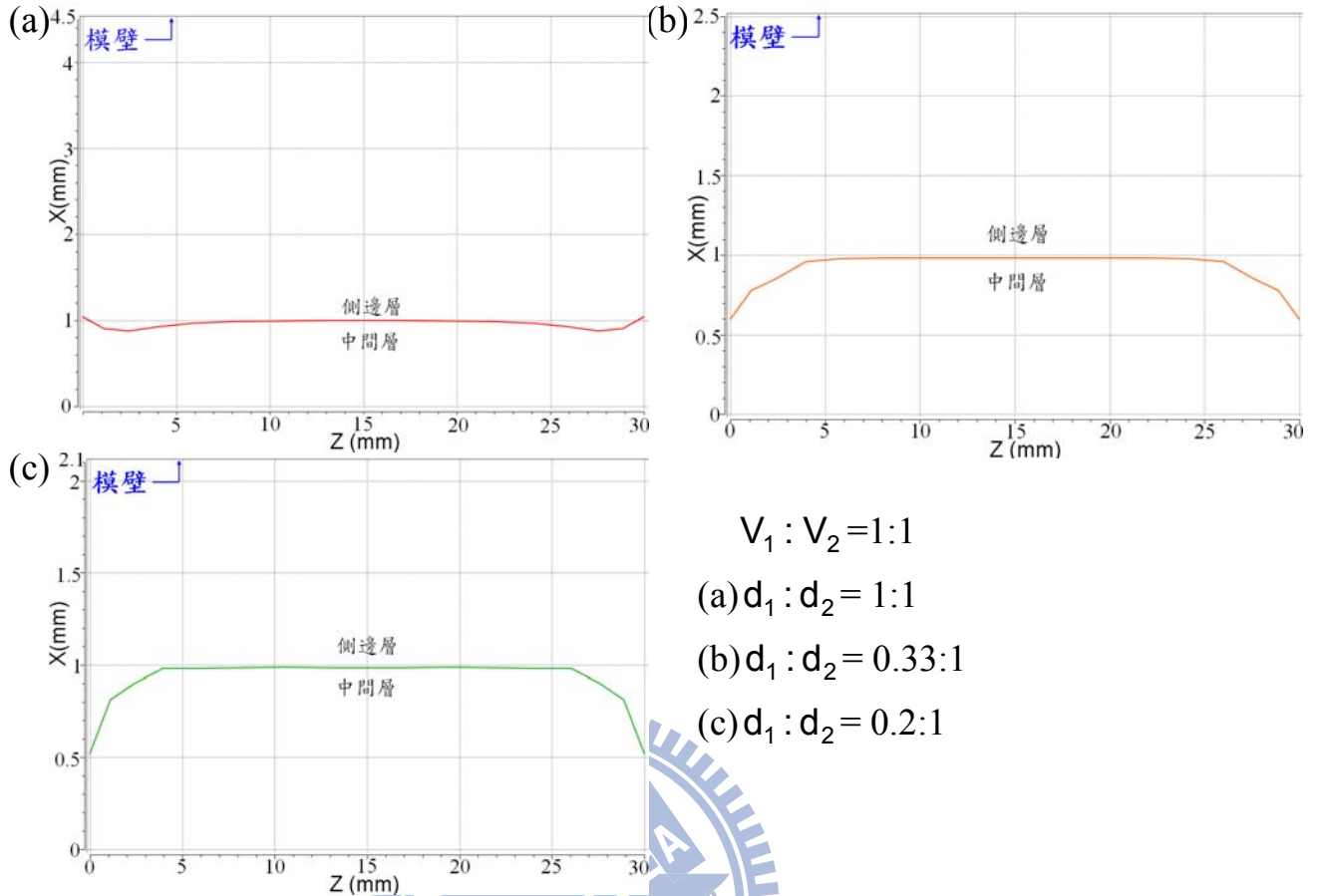


圖 4.33 (a)(b)(c)厚度比對出口界面分佈位置影響

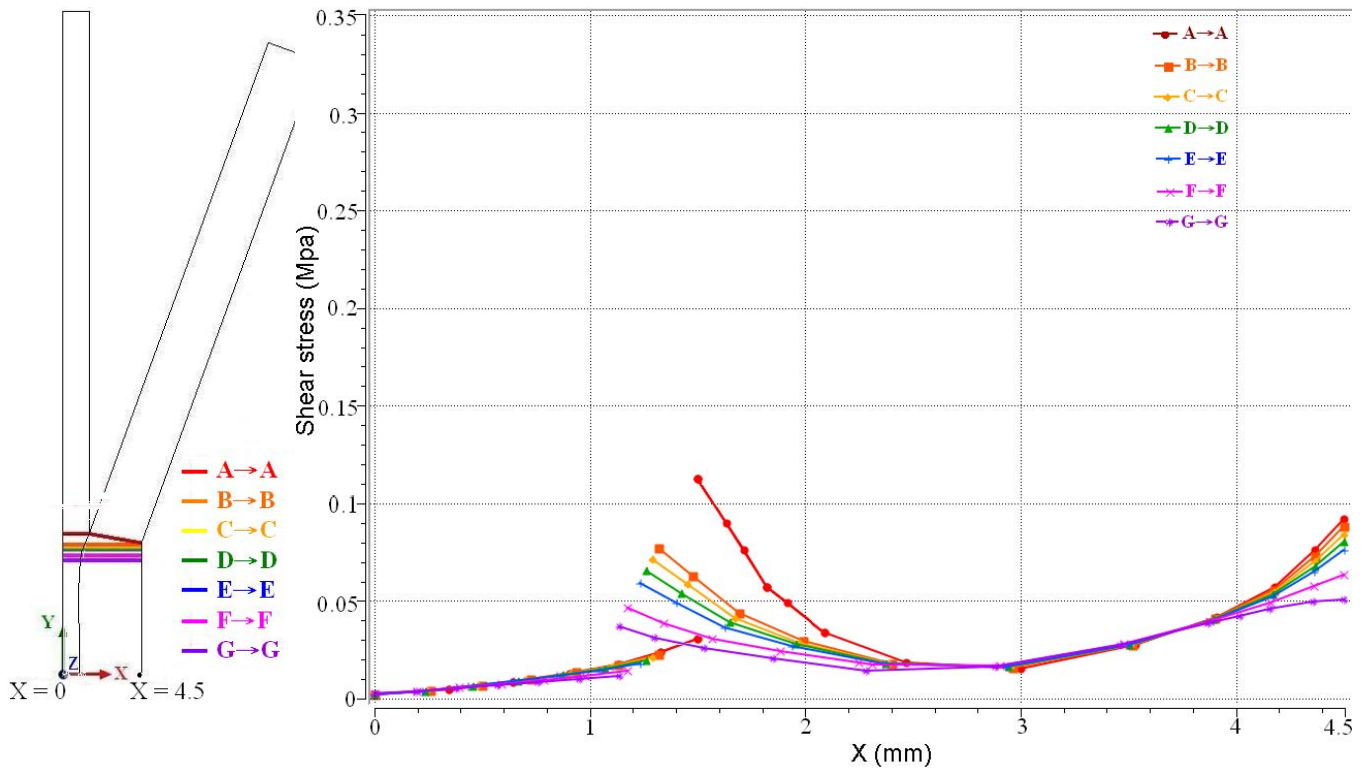
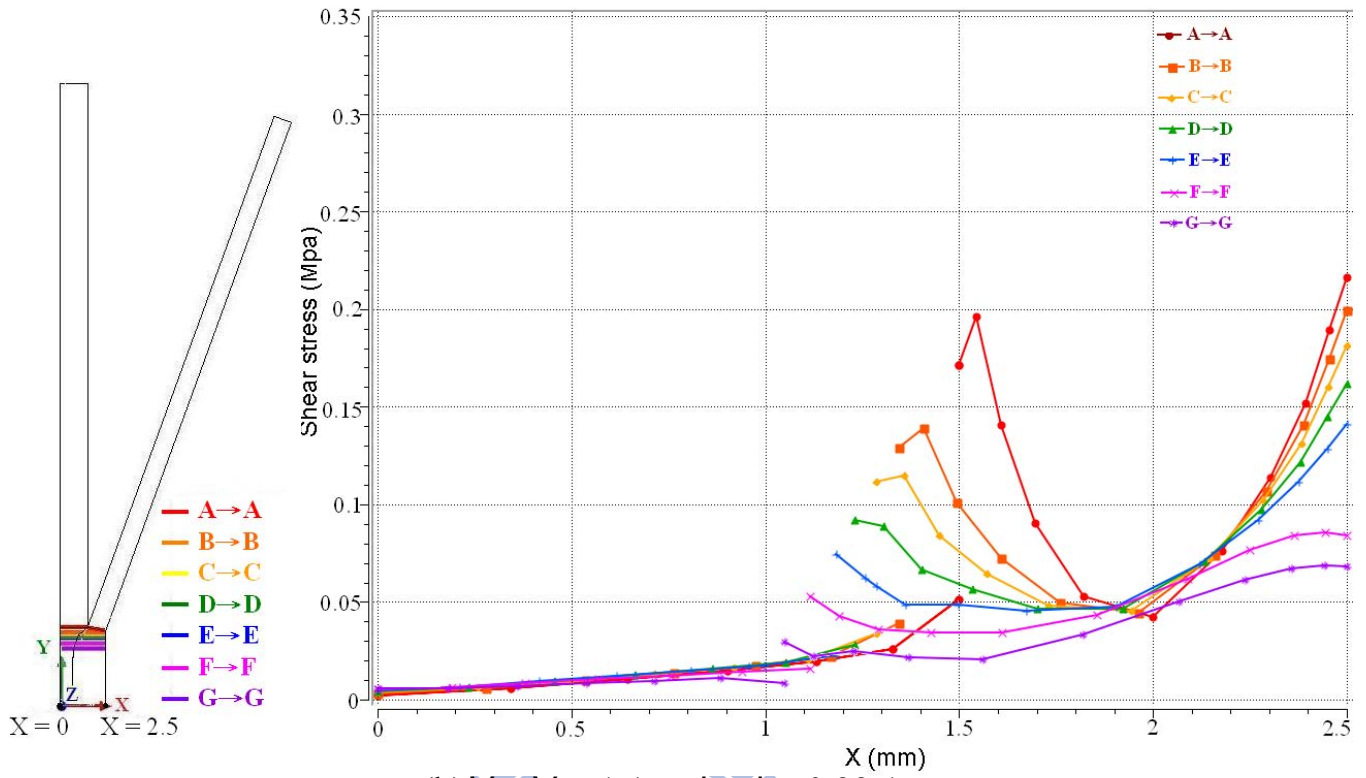
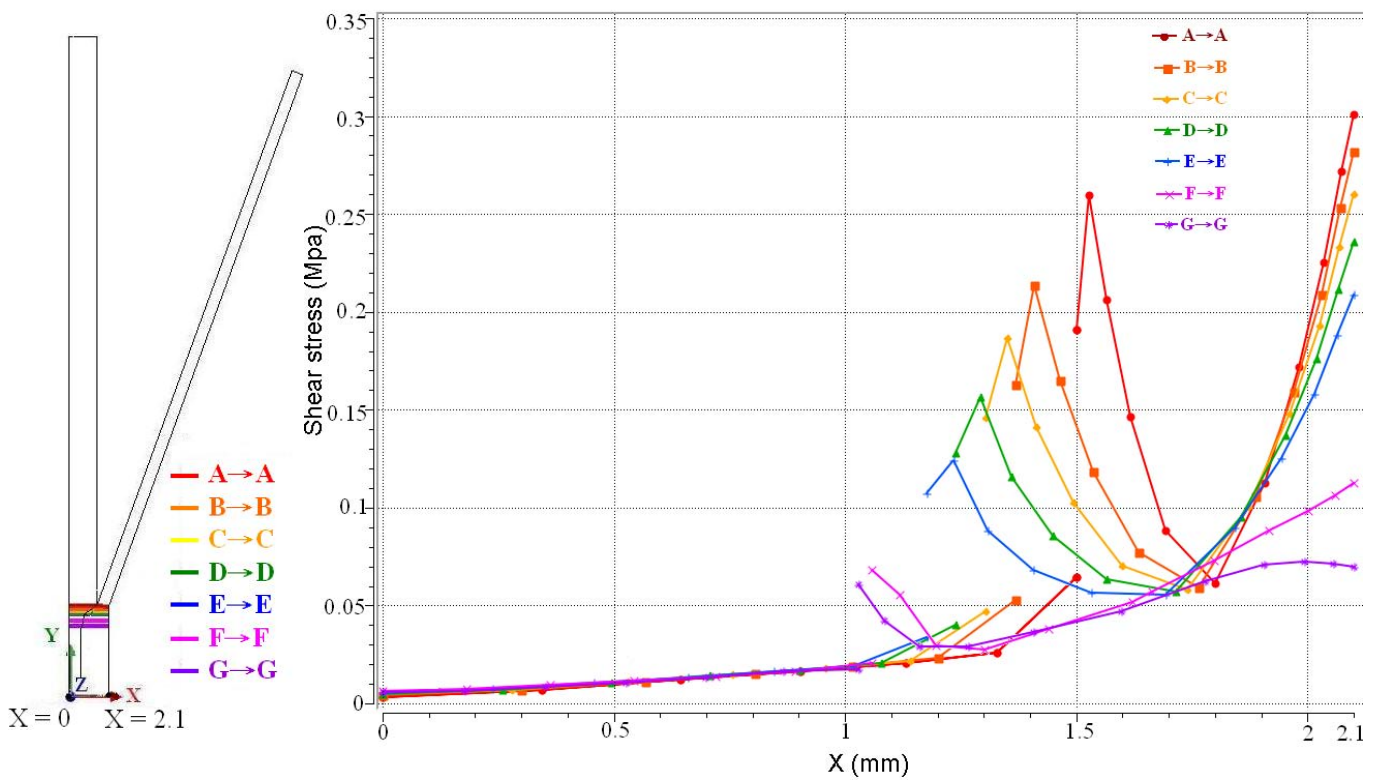


圖 4.34 (a)(b)(c)不同厚度比其剪應力分佈曲線圖($Z=15\text{mm}$)



(b) $V_1:V_2=1:1$, $d_1:d_2=0.33:1$



(c) $V_1:V_2=1:1$, $d_1:d_2=0.2:1$

圖 4.34 (a)(b)(c)不同厚度比其剪應力分佈曲線圖($Z=15\text{mm}$)

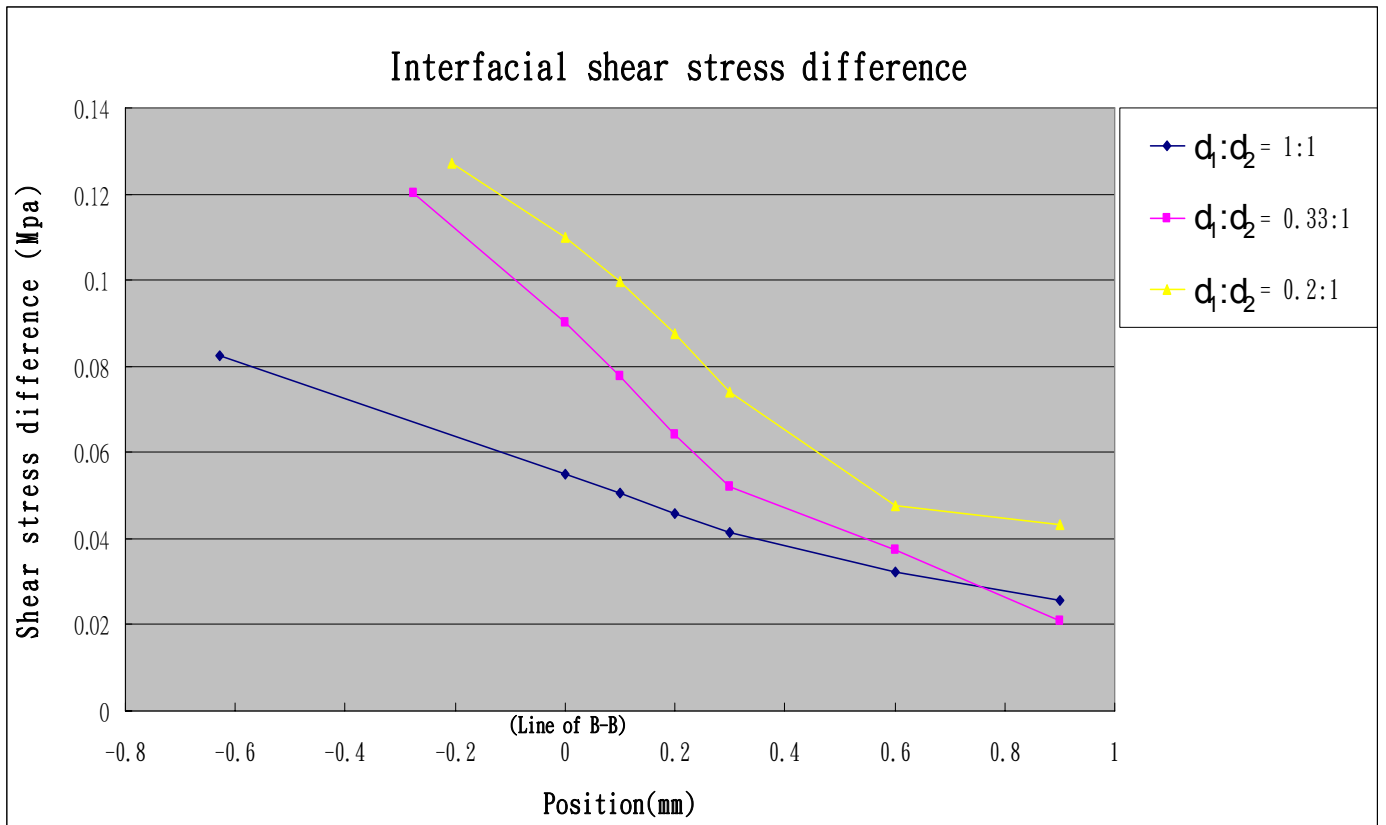
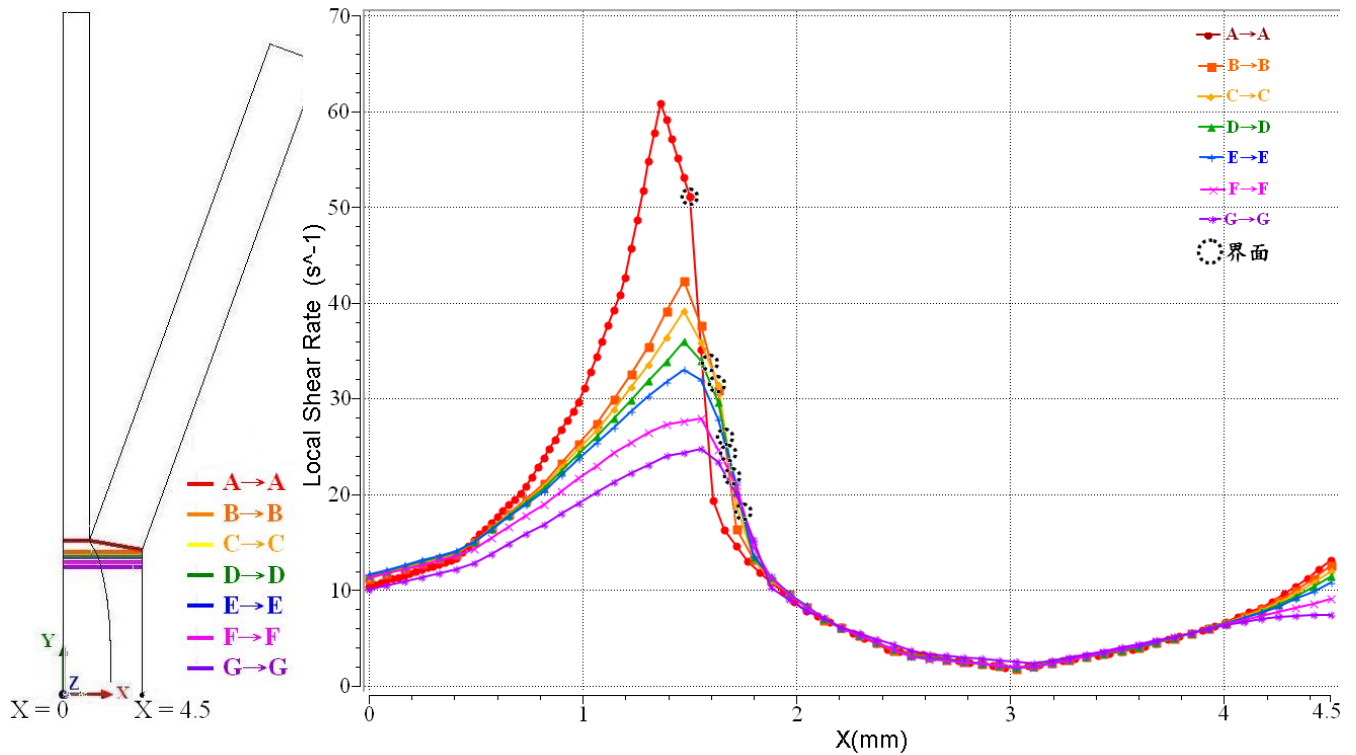


圖 4.35 $V_1:V_2=1:1$ ， $\eta_1:\eta_2=3:1$ ，不同厚度比其界面剪應力差曲線圖



(a) $V_1:V_2=0.2:1$ ， $d_1:d_2=1:1$

圖 4.36 (a)(b)(c)不同厚度比其剪切率分佈曲線圖($Z=15\text{mm}$)

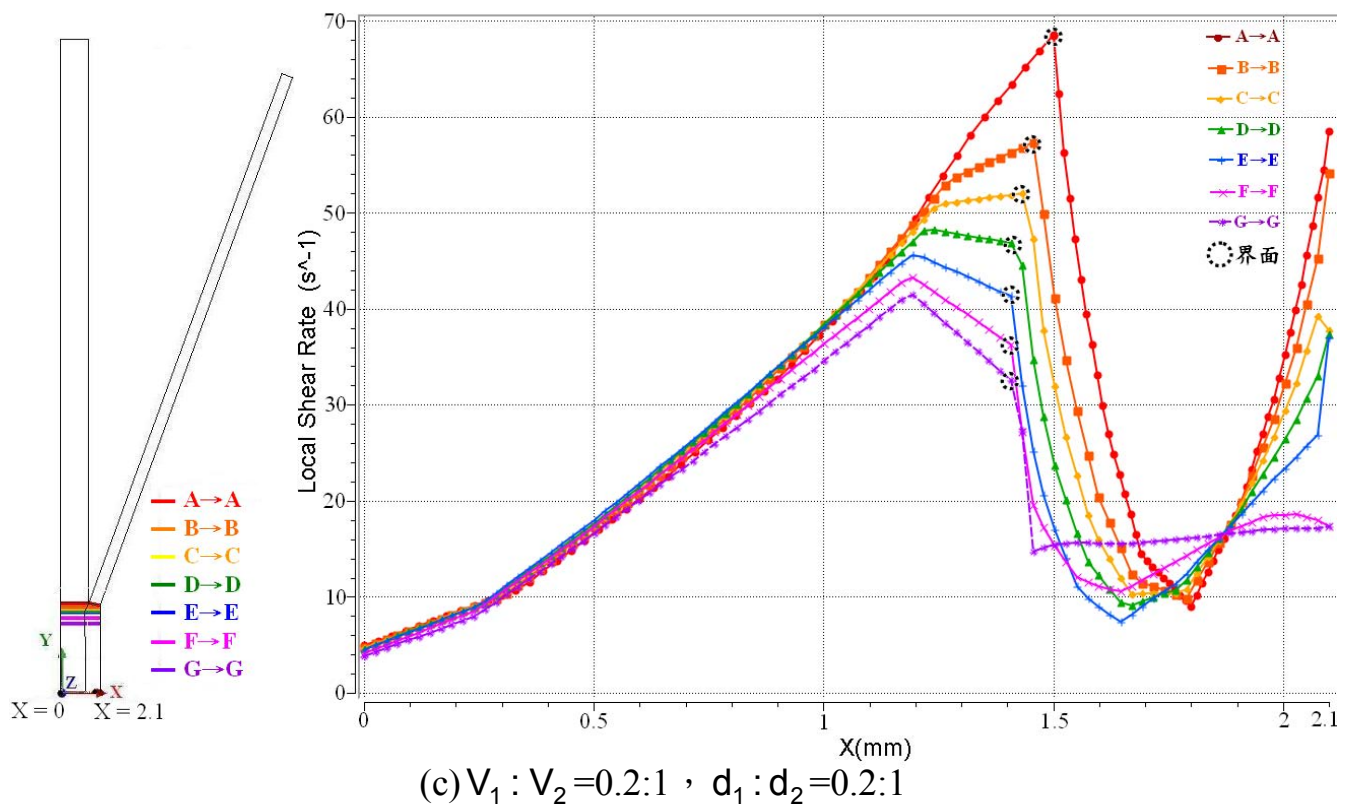
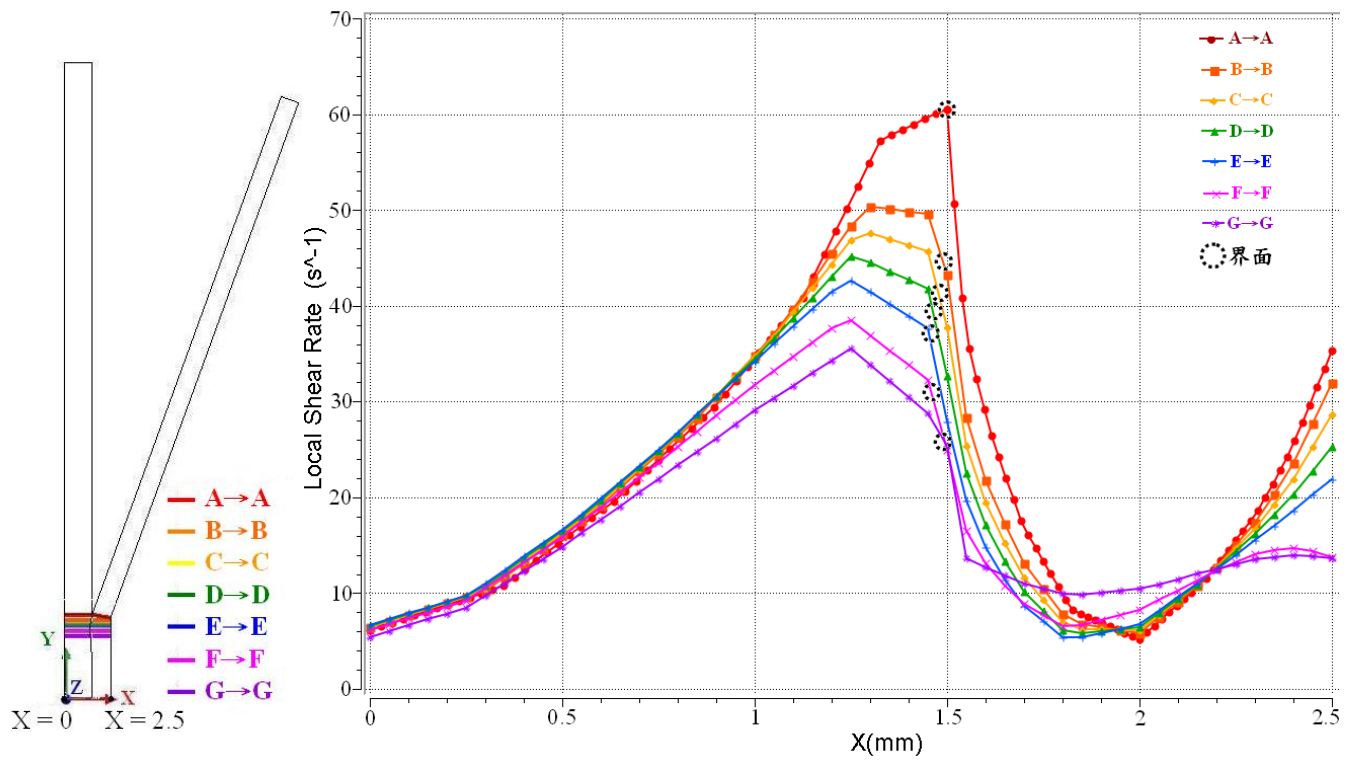
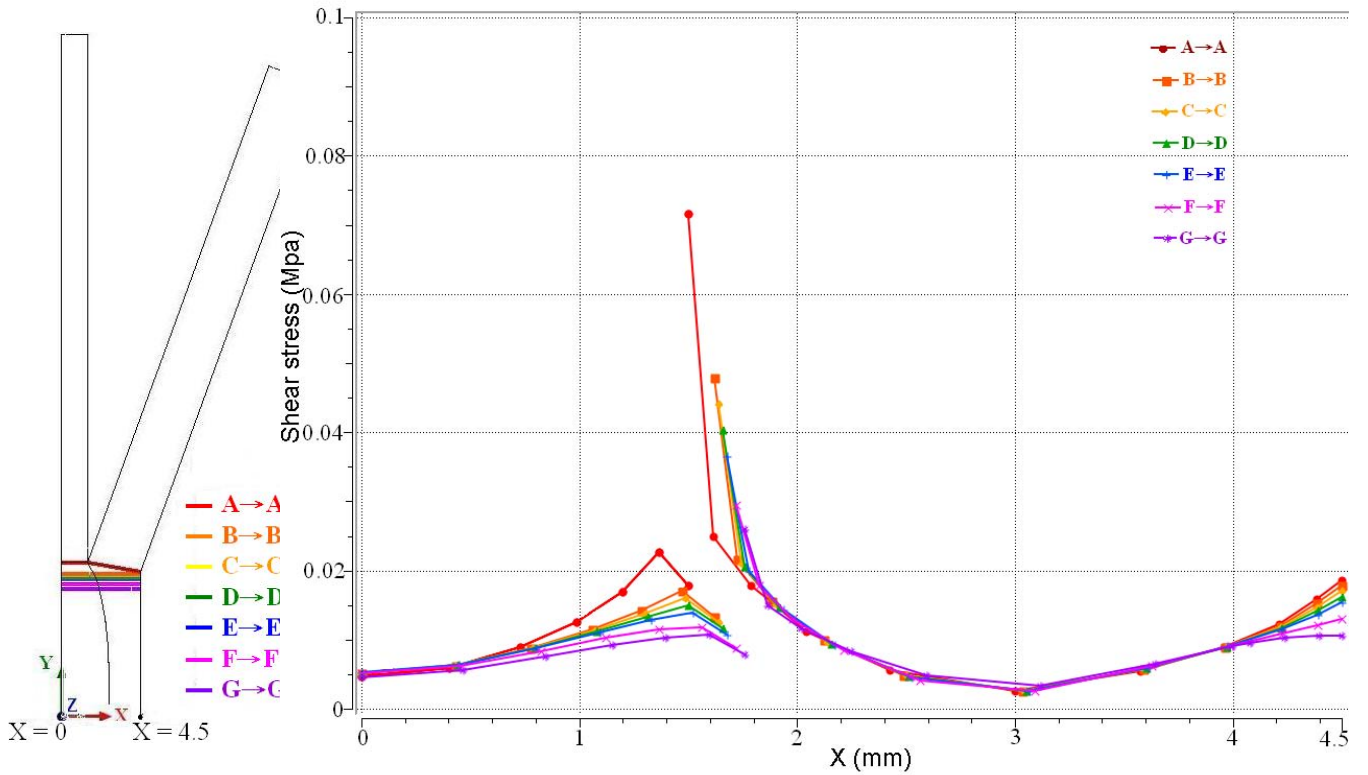
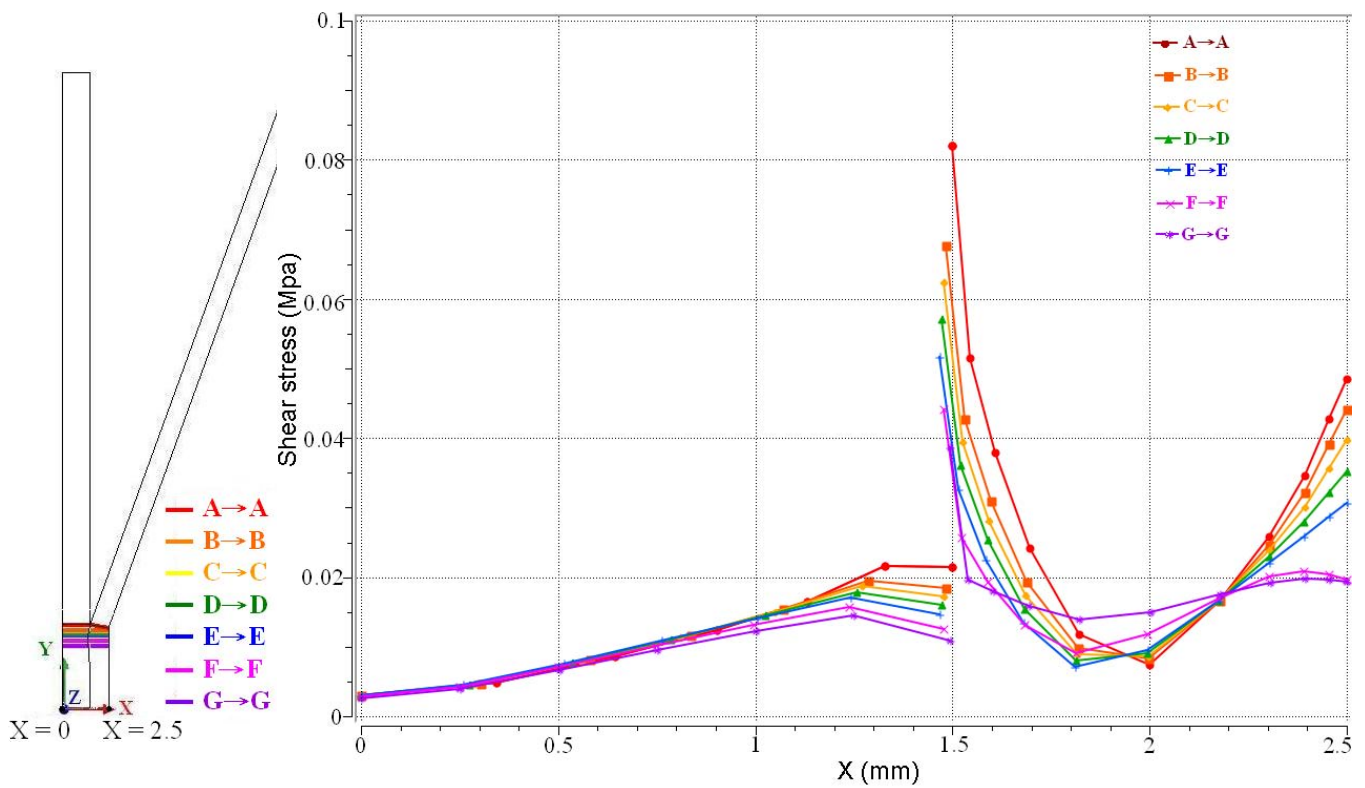


圖 4.36 (a)(b)(c)不同厚度比其剪切率分佈曲線圖($Z=15\text{mm}$)

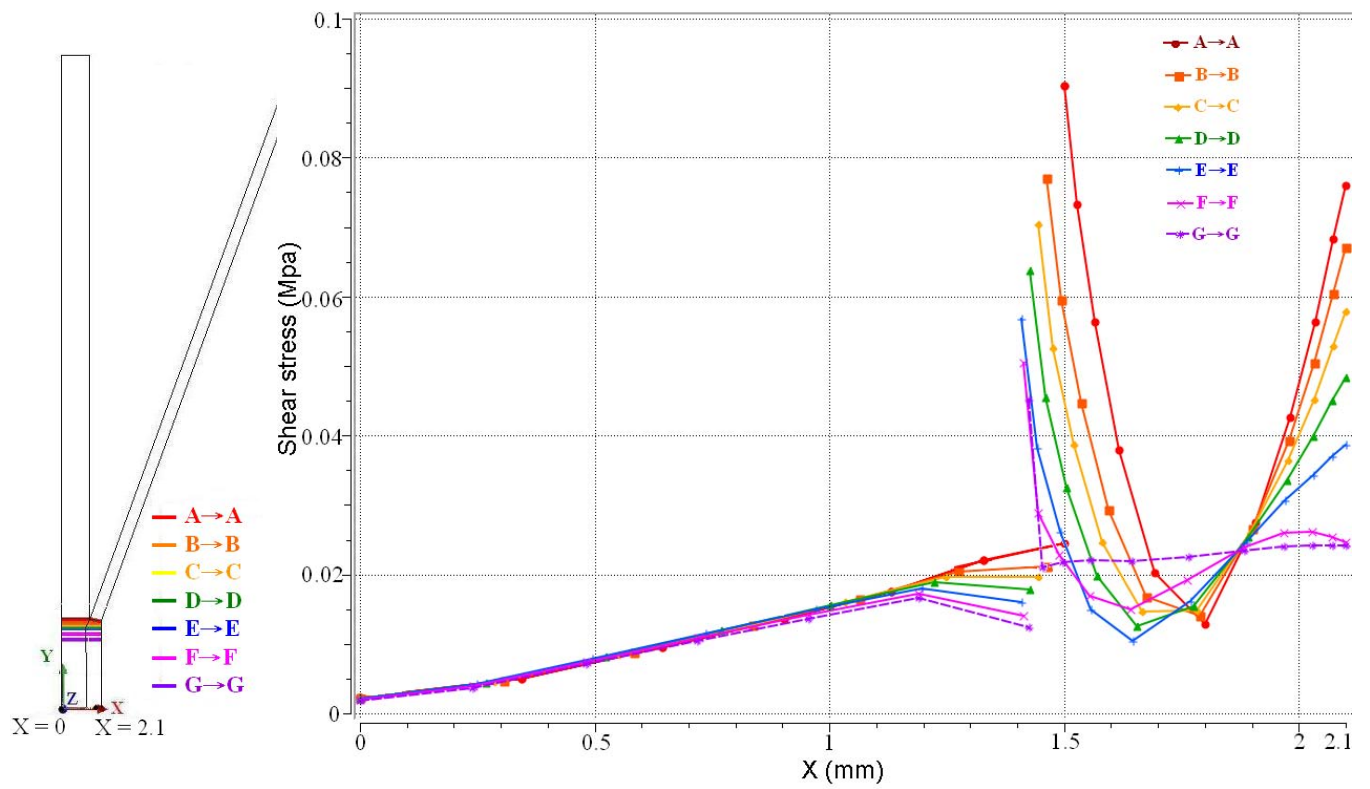


(a) $V_1:V_2=0.2:1$, $d_1:d_2=1:1$



(b) $V_1:V_2=0.2:1$, $d_1:d_2=0.33:1$

圖 4.37 (a)(b)(c)不同厚度比其剪應力分佈曲線圖($Z=15\text{mm}$)



(c) $V_1:V_2=0.2:1$, $d_1:d_2=0.2:1$

圖 4.37 (a)(b)(c)不同厚度比其剪應力分佈曲線圖($Z=15\text{mm}$)

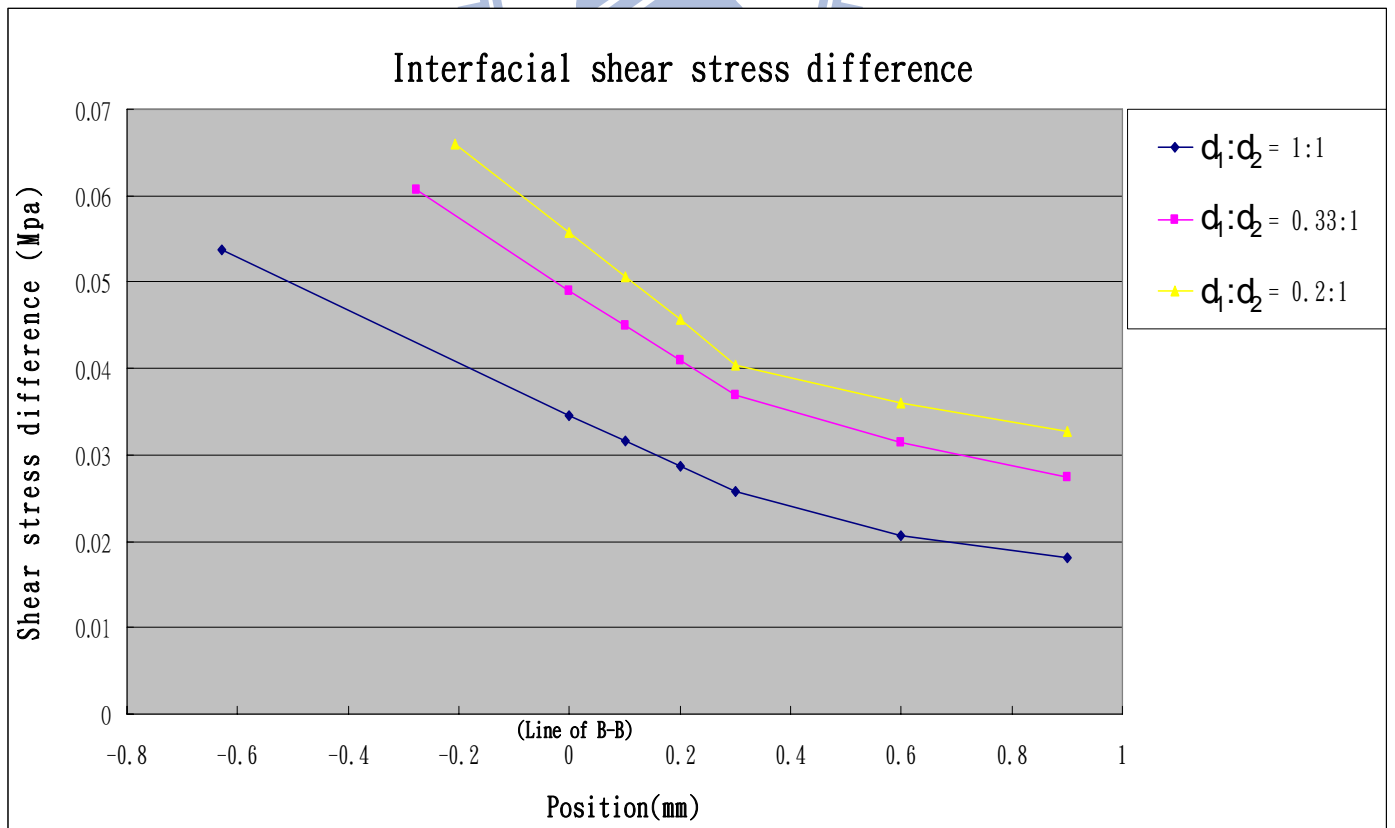


圖 4.38 $V_1:V_2=0.2:1$, $\eta_1:\eta_2=3:1$, 不同厚度比其界面剪應力差曲線圖

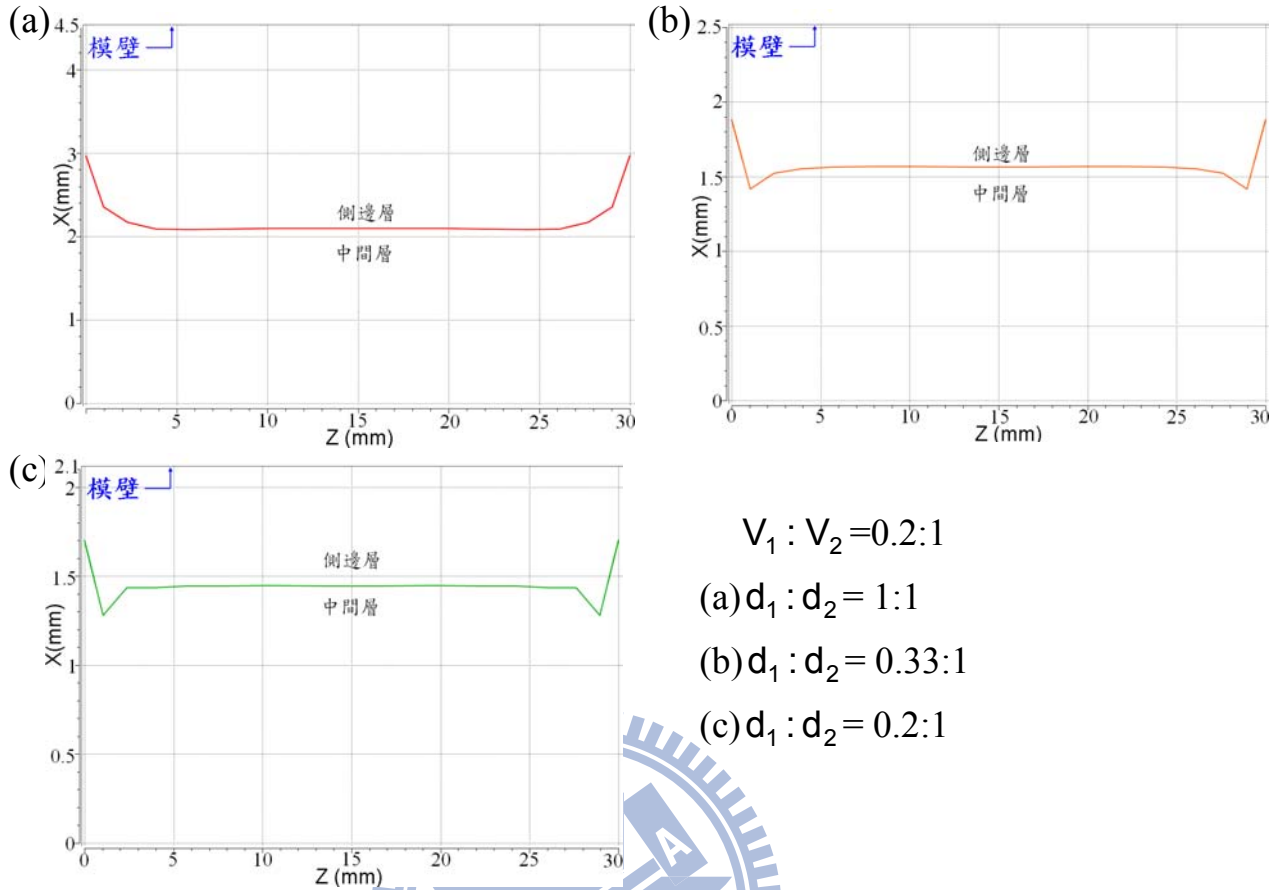


圖 4.39 (a)(b)(c)厚度比對出口界面分佈位置影響

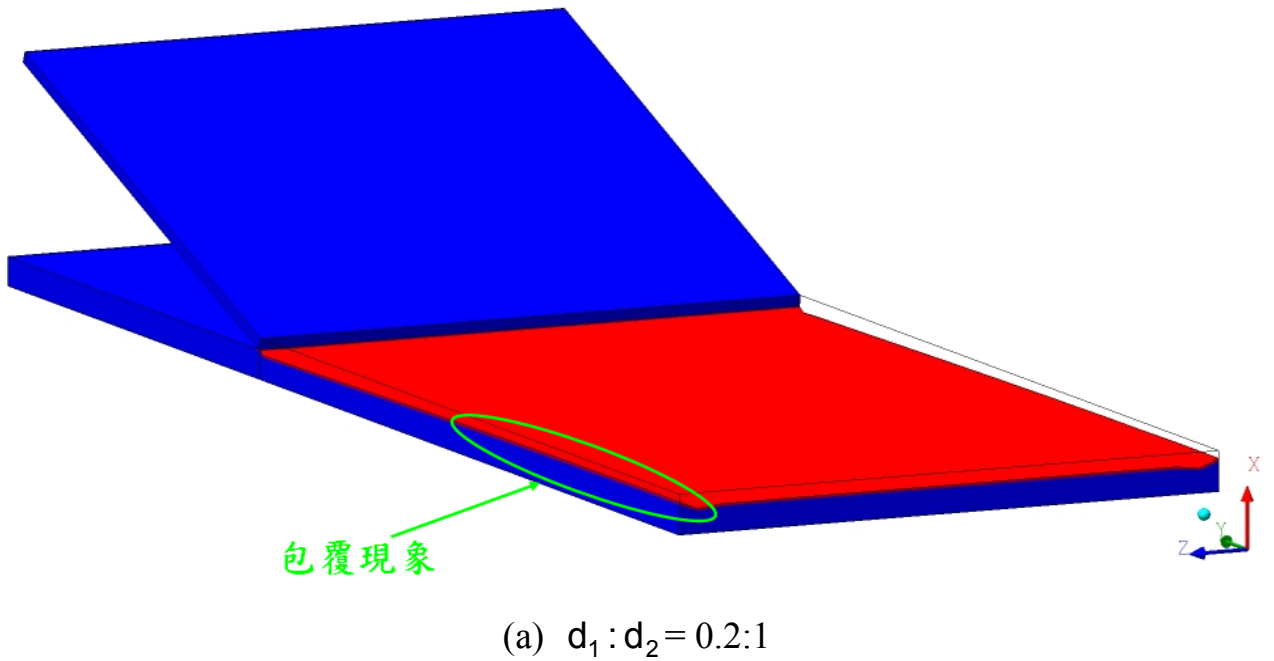
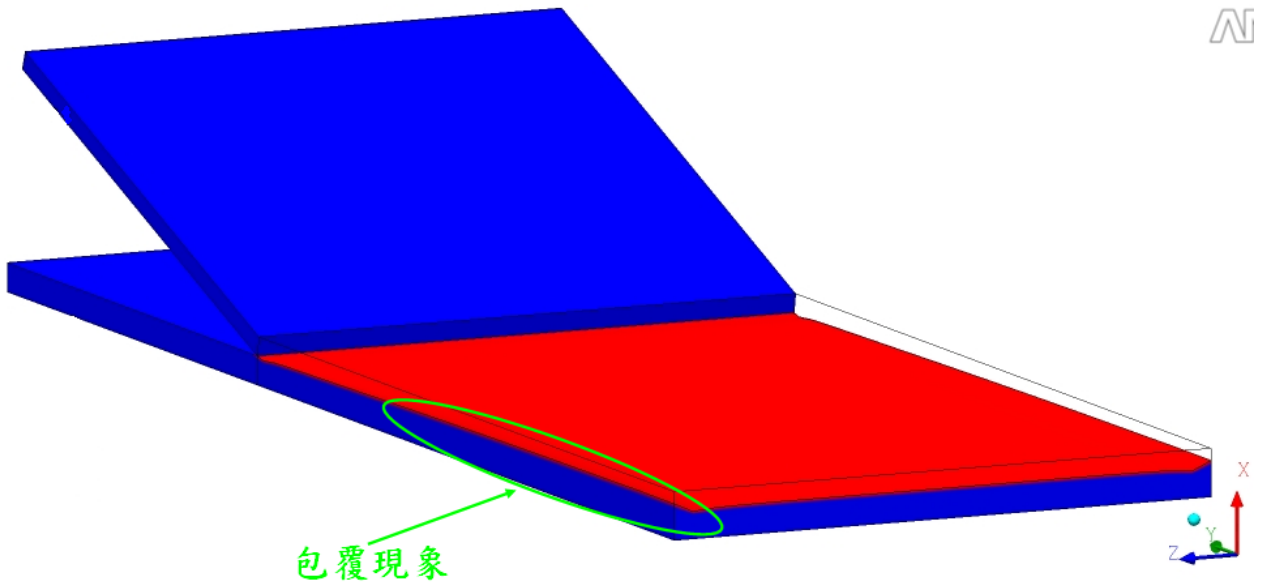
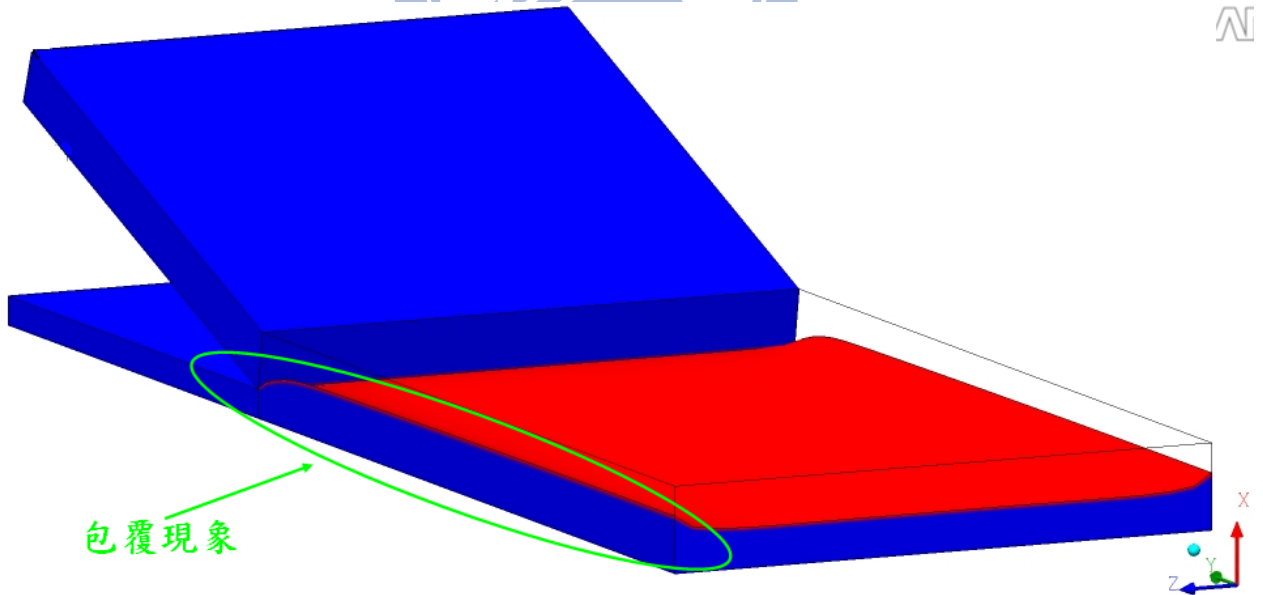


圖 4.40 (a)(b)(c)厚度比於擠出速度 0.2:1 時對於包覆位置影響性

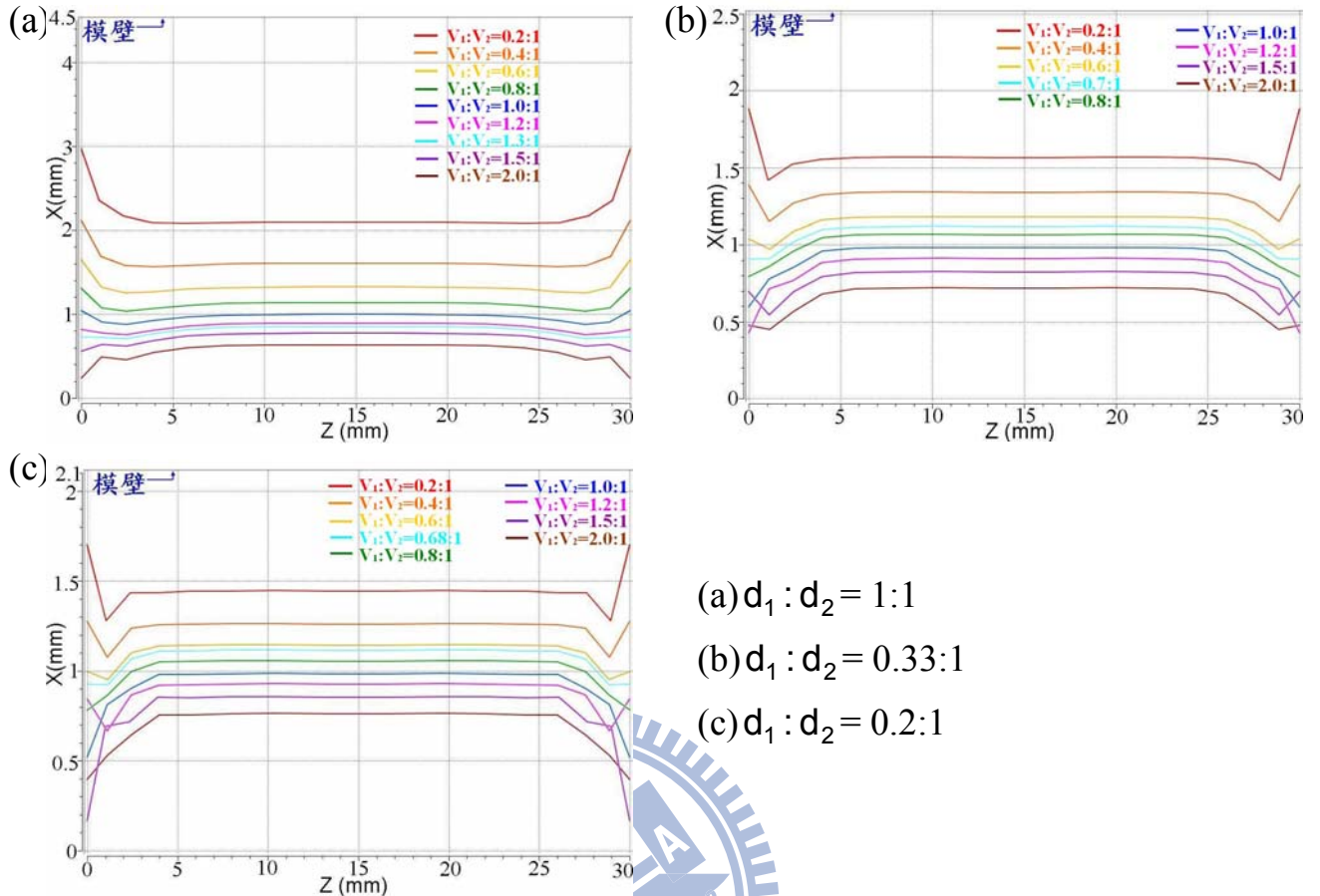


(b) $d_1:d_2=0.33:1$



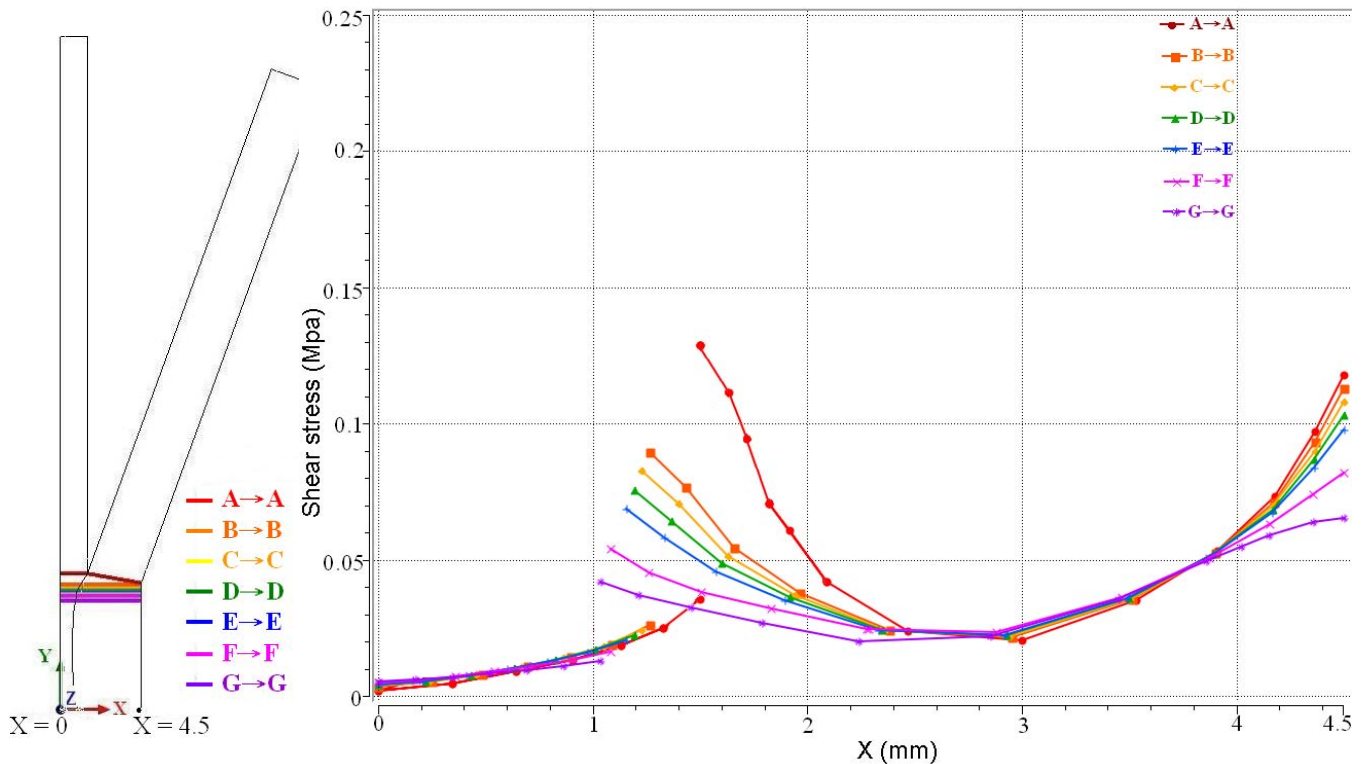
(c) $d_1:d_2=1:1$

圖 4.40 (a)(b)(c)厚度比於擠出速度 0.2:1 時對於包覆位置影響性



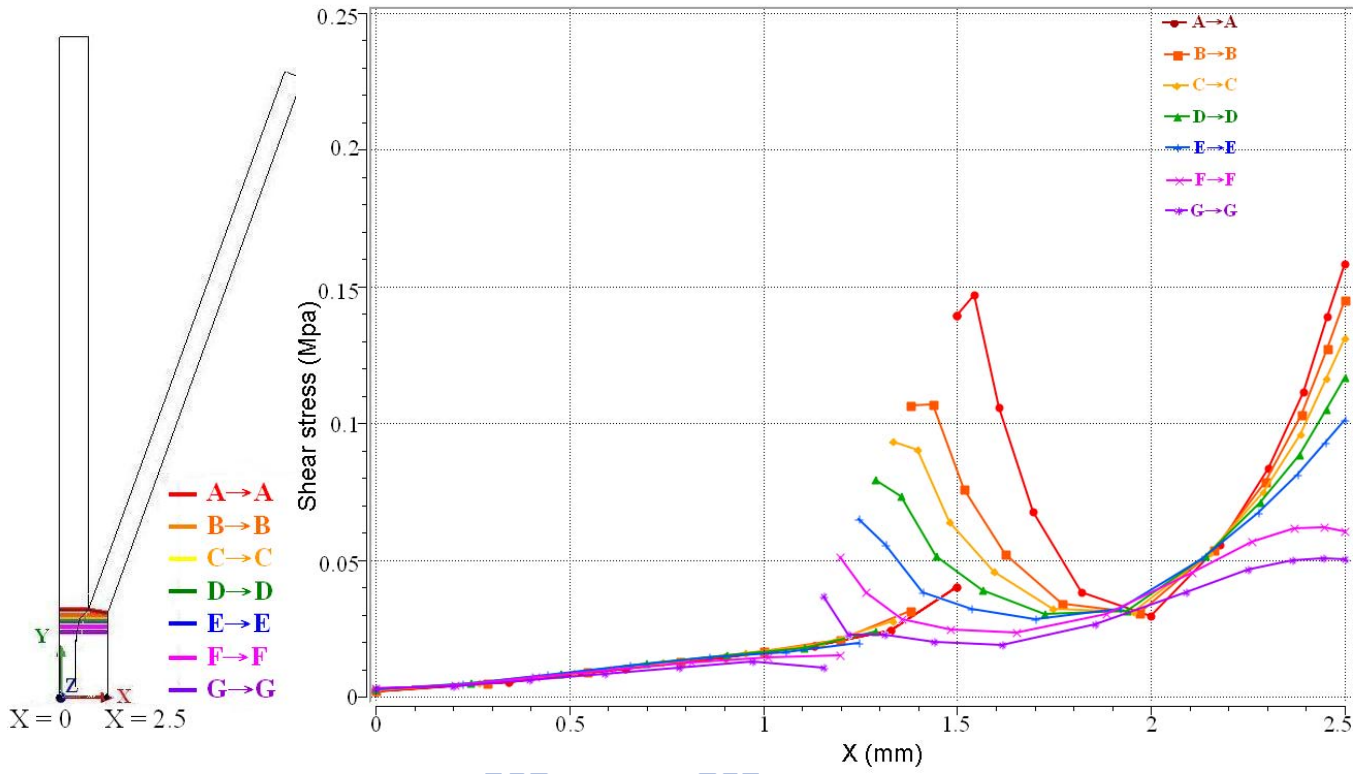
(a) $d_1:d_2 = 1:1$
 (b) $d_1:d_2 = 0.33:1$
 (c) $d_1:d_2 = 0.2:1$

圖 4.41 (a)(b)(c) 支流路速度對不同厚度比出口界面分佈位置影響

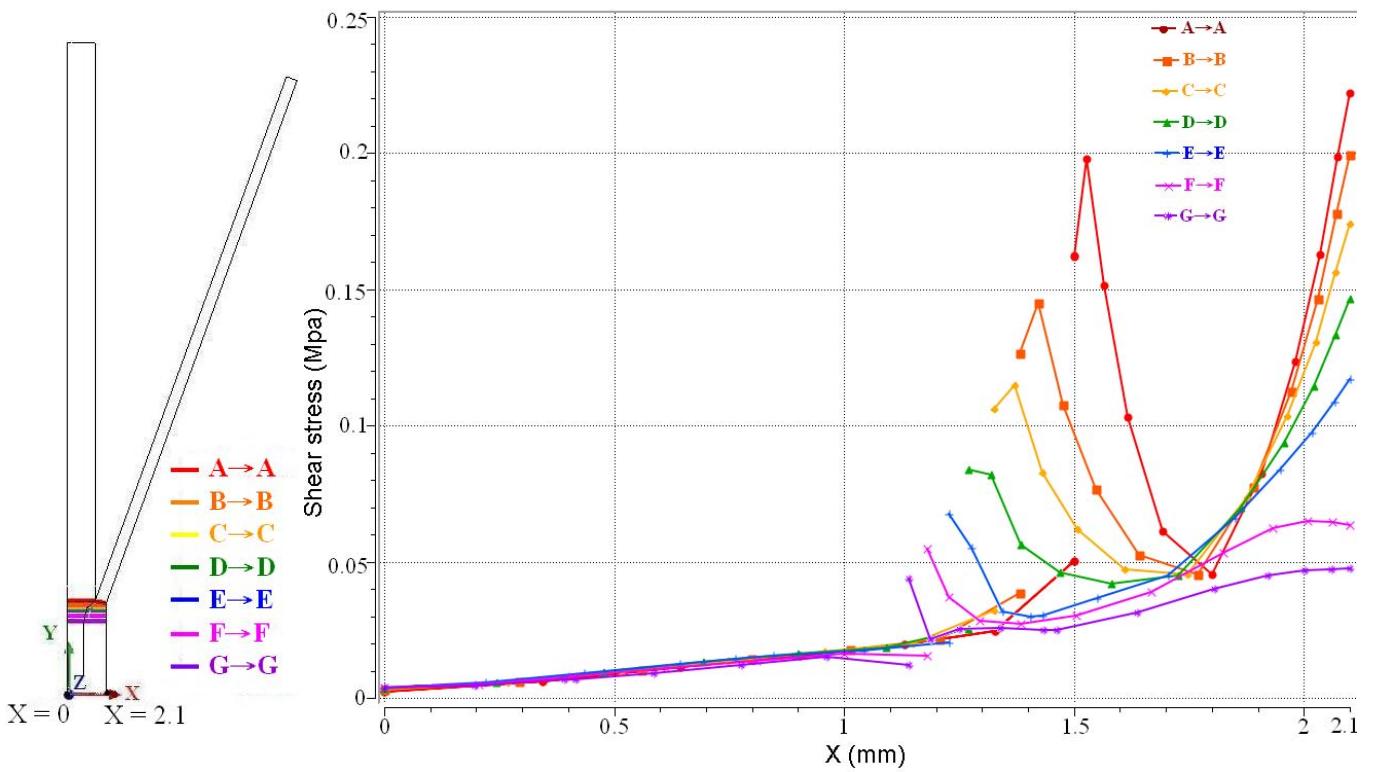


(a) $V_1:V_2 = 1.3:1$, $d_1:d_2 = 1:1$

圖 4.42 (a)(b)(c) 支流路速度對不同厚度比其剪應力分佈曲線圖 ($Z=15\text{mm}$)



(b) $V_1:V_2=0.7:1$, $d_1:d_2=0.33:1$



(c) $V_1:V_2=0.68:1$, $d_1:d_2=0.2:1$

圖 4.42 (a)(b)(c) 支流路速度對不同厚度比其剪應力分佈曲線圖 ($Z=15\text{mm}$)

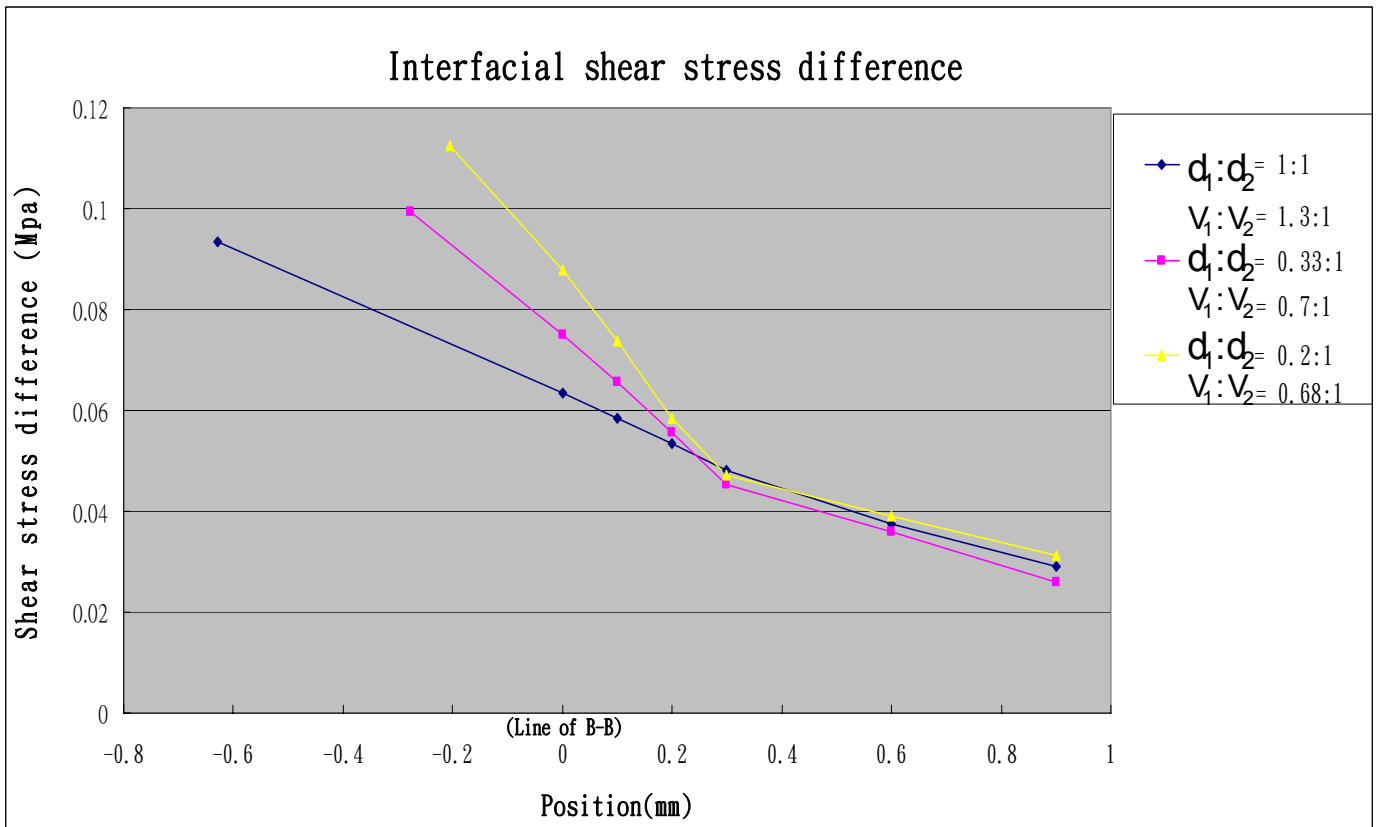


圖 4.43 支流路速度對不同厚度比其界面剪應力差曲線圖

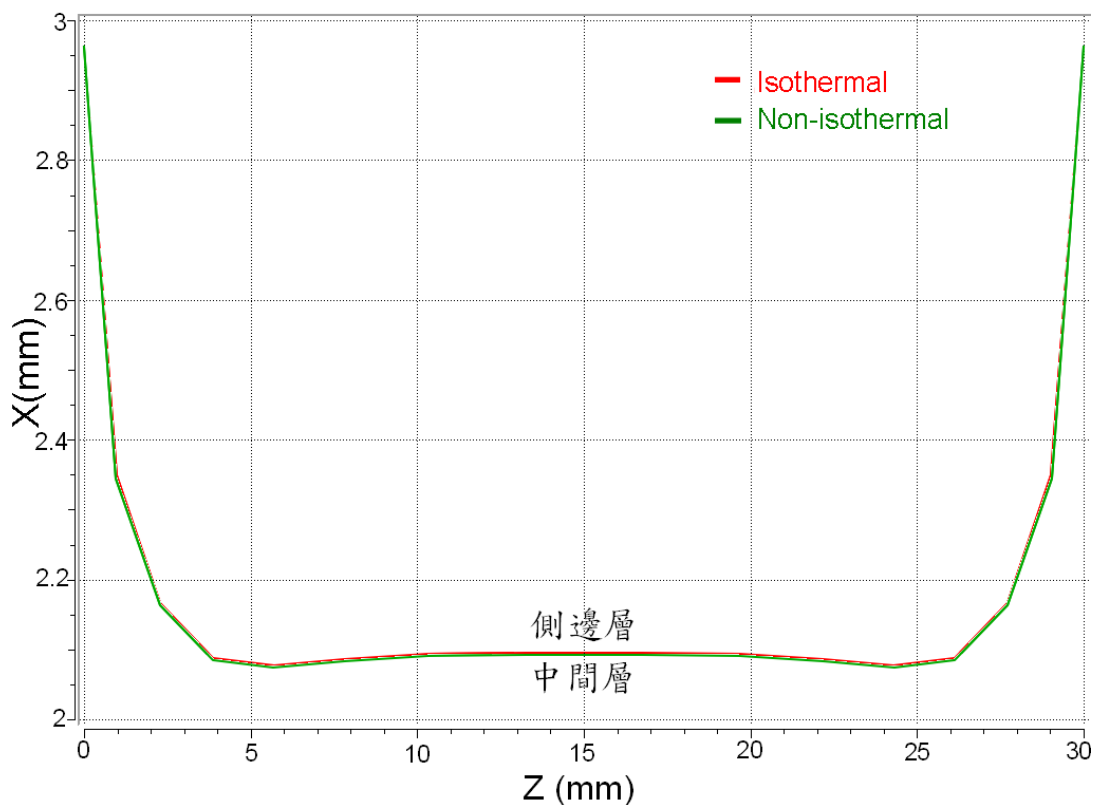


圖 4.44 非等溫流動時，流速比 0.2 比 1，厚度比 1 比 1 之出口界面圖

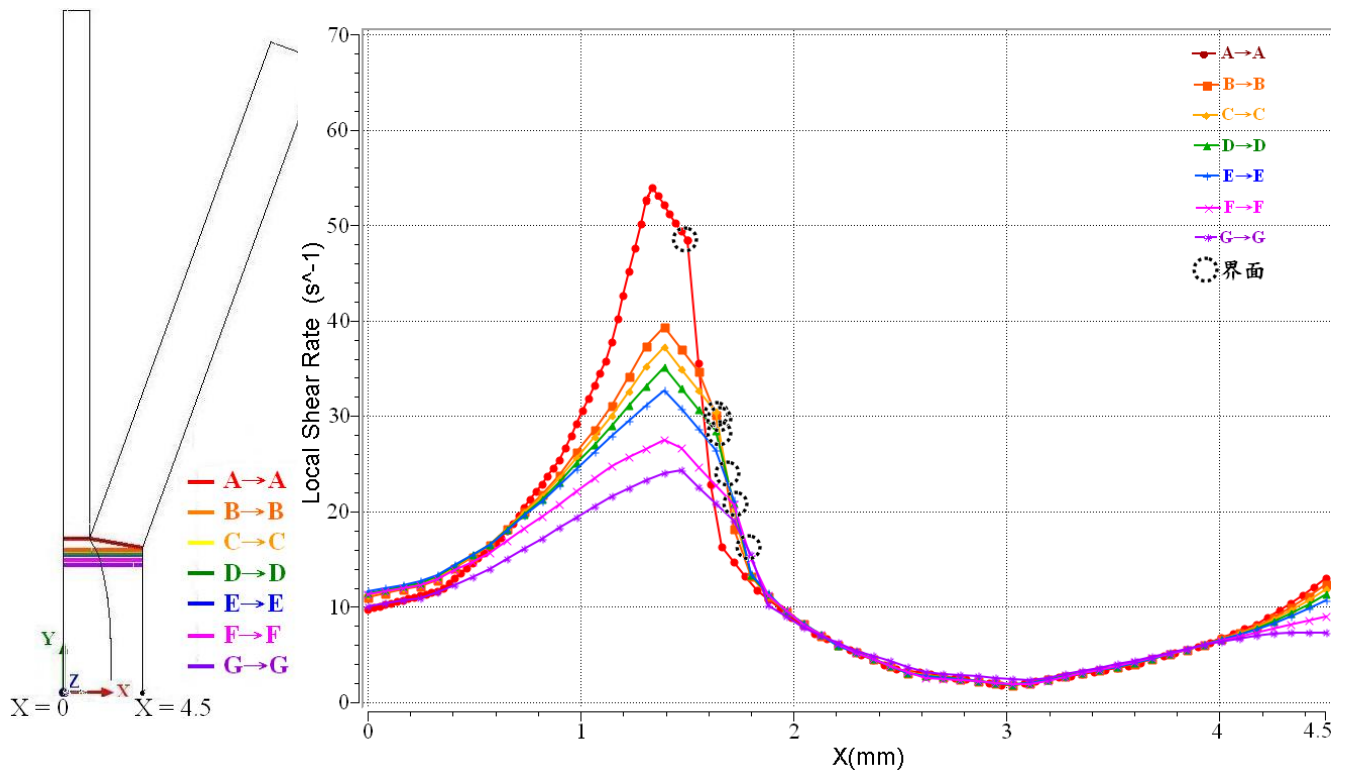
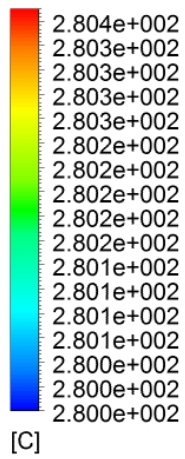


圖 4.45 非等溫流動時，流速比 0.2 比 1，厚度比 1 比 1 之剪切率曲線圖
(Z=15mm)

TEMPERATURE



[C]

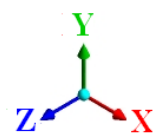
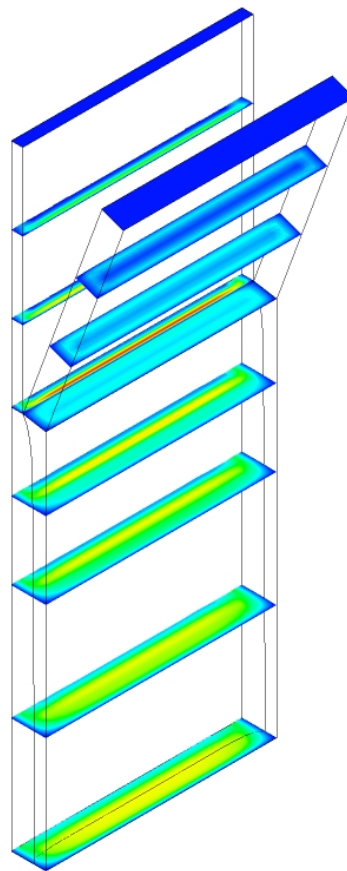


圖 4.46 非等溫流動時，流速比 0.2 比 1，厚度比 1 比 1 之溫度分佈圖

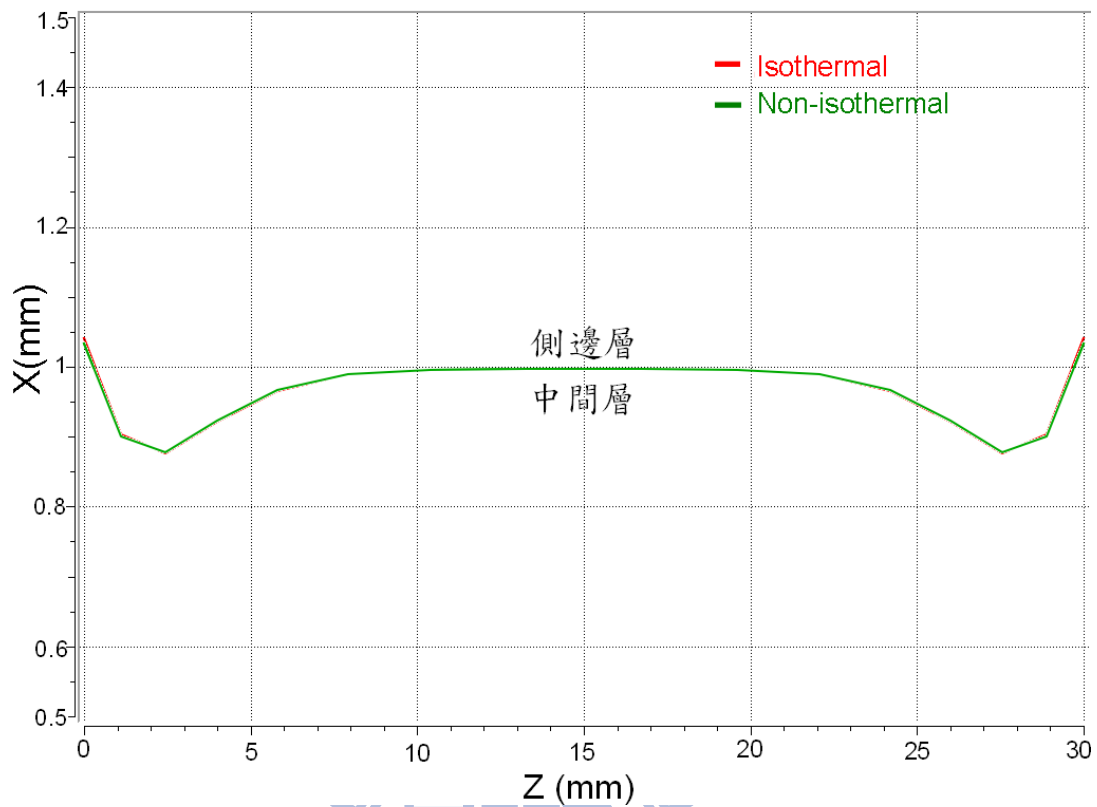


圖 4.47 非等溫流動時，流速比 1 比 1，厚度比 1 比 1 之出口界面圖

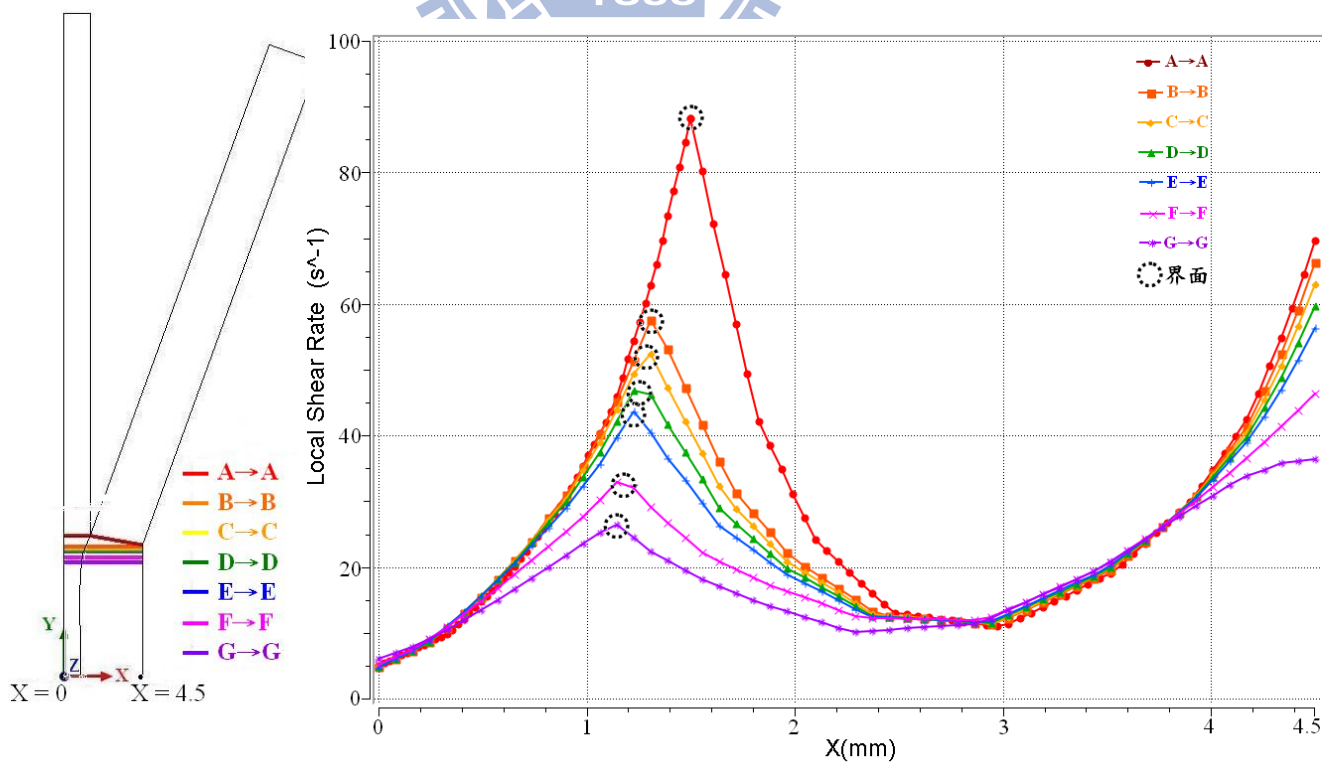
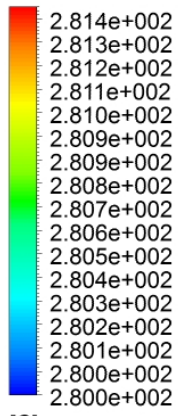


圖 4.48 非等溫流動時，流速比 1 比 1，厚度比 1 比 1 之剪切率圖(Z=15mm)

TEMPERATURE



[C]

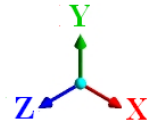
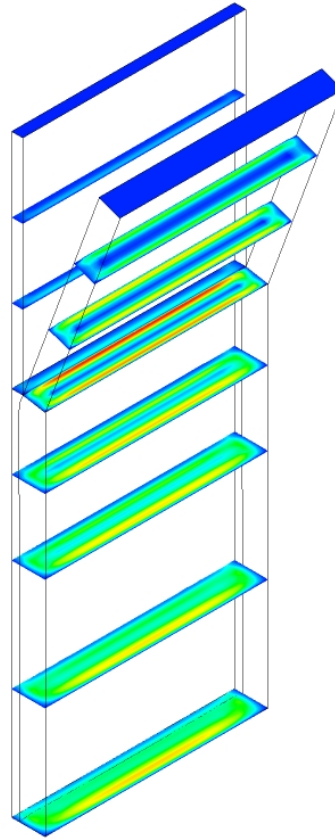
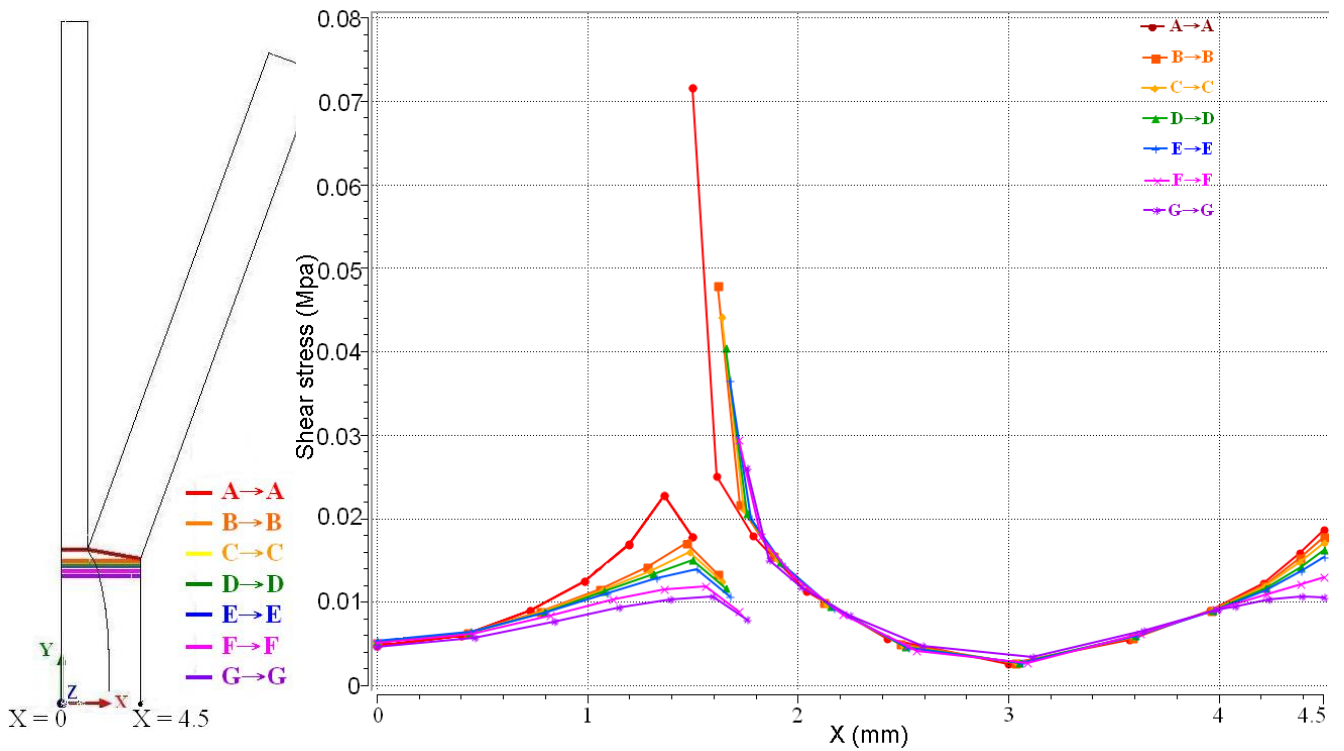
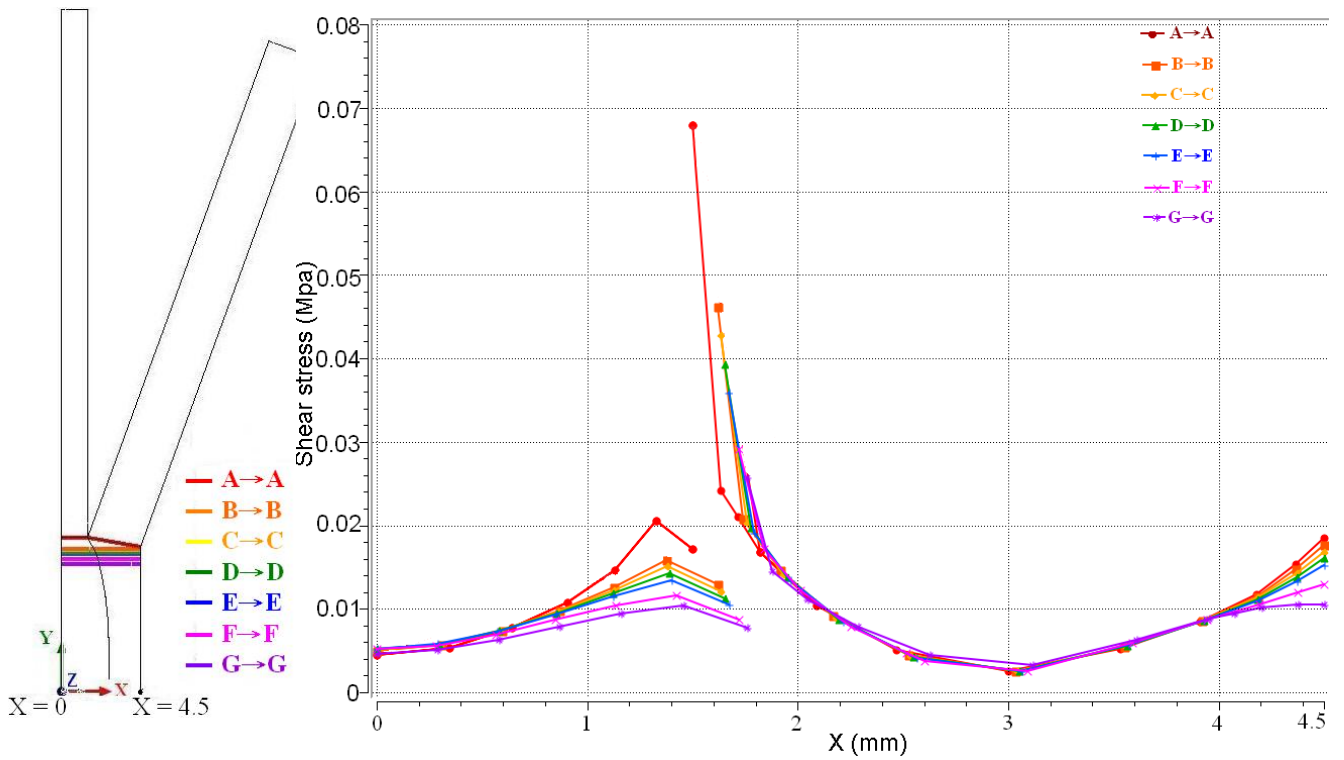


圖 4.49 非等溫流動時，流速比 1 比 1，厚度比 1 比 1 之溫度分佈圖

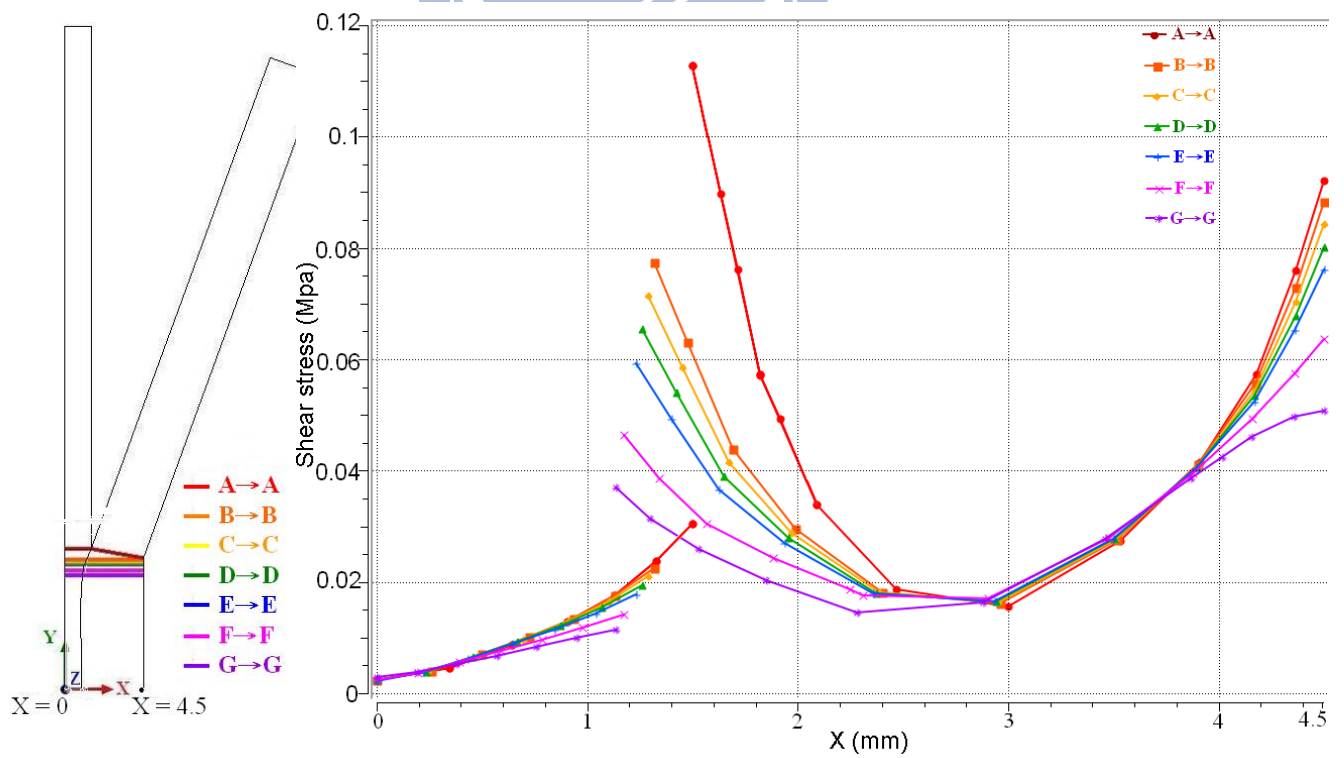


(a) $V_1 : V_2 = 0.2 : 1$ (等溫)

圖 4.50 (a)(b)(c)(d) 厚度 1 比 1 時，等溫與非等溫共擠出之剪應力曲線圖
(Z=15mm)

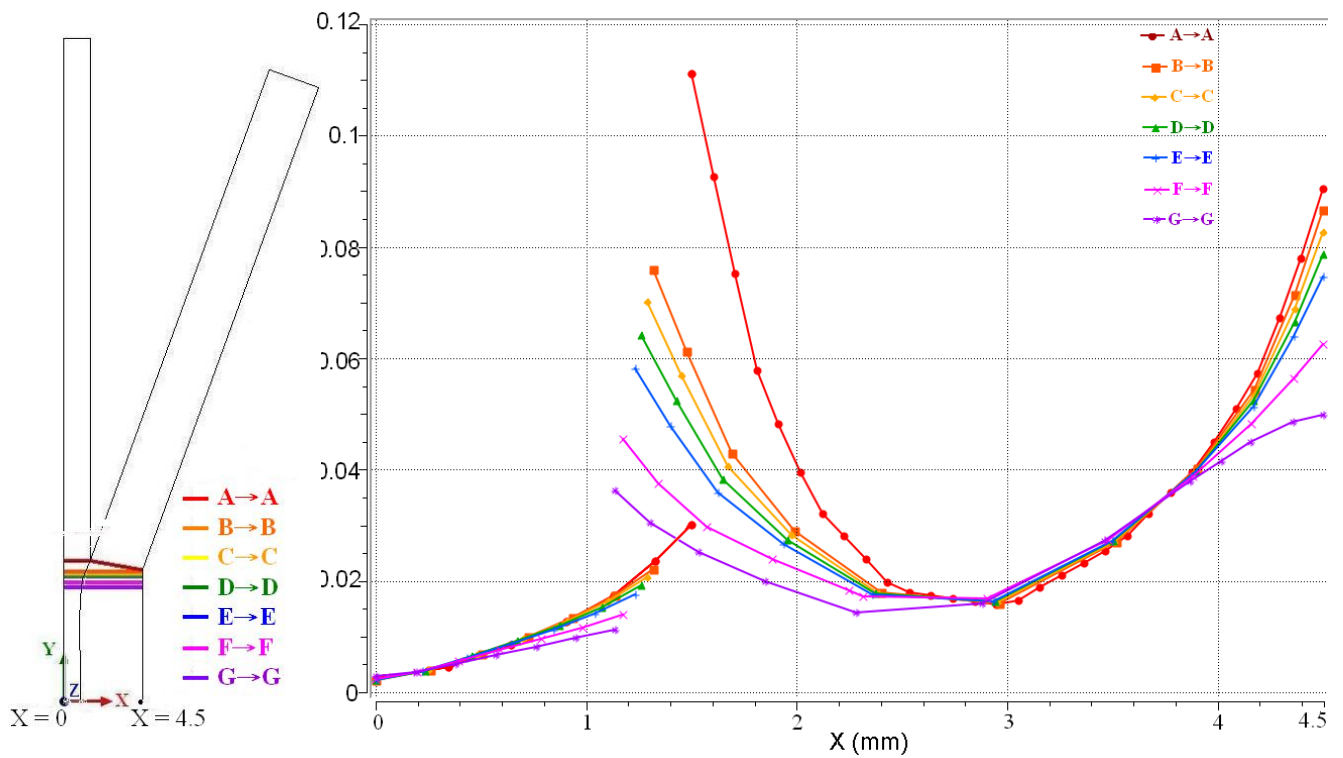


(b) $V_1:V_2=0.2:1$ (非等溫)



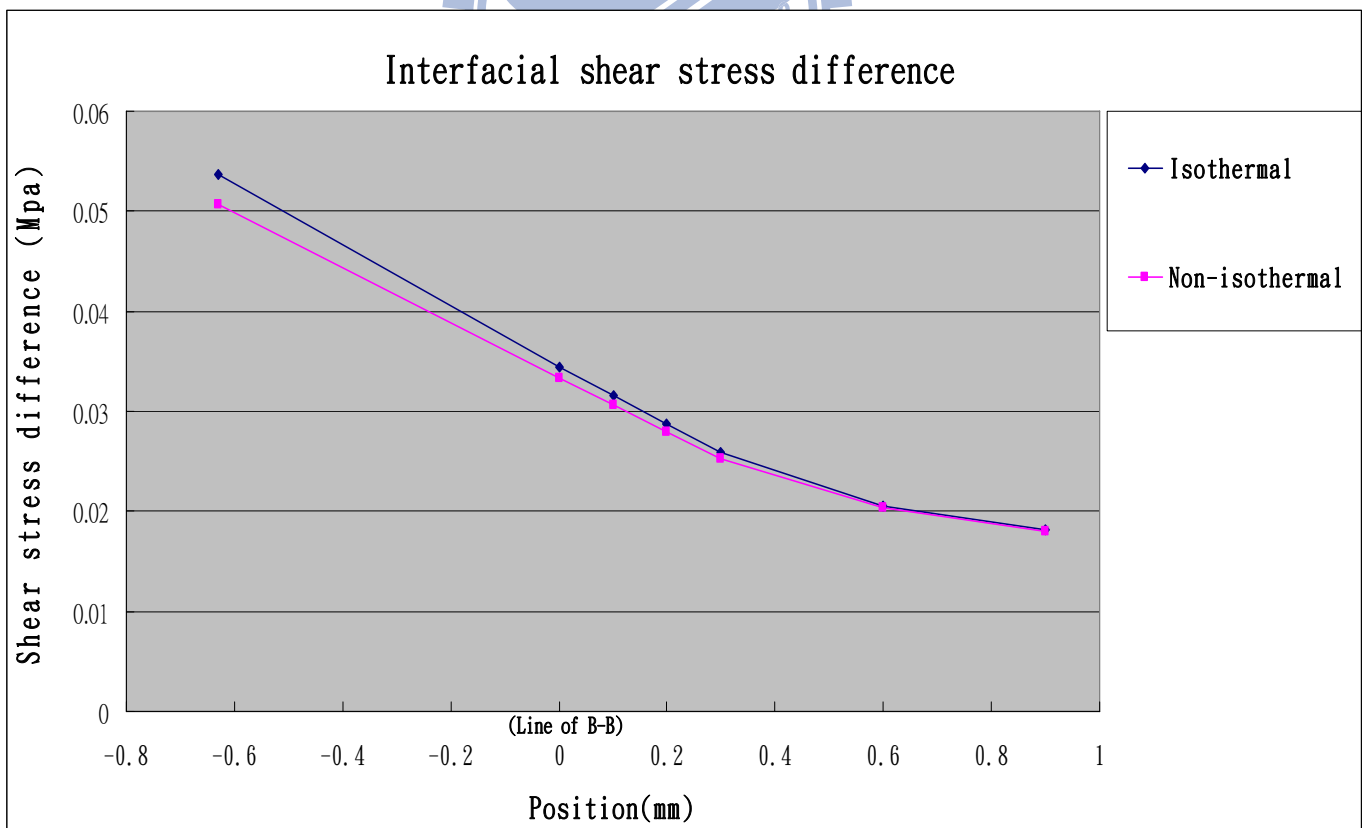
(c) $V_1:V_2=1:1$ (等溫)

圖 4.50 (a)(b)(c)(d) 厚度 1 比 1 時，等溫與非等溫共擠出之剪應力曲線圖
($Z=15\text{mm}$)



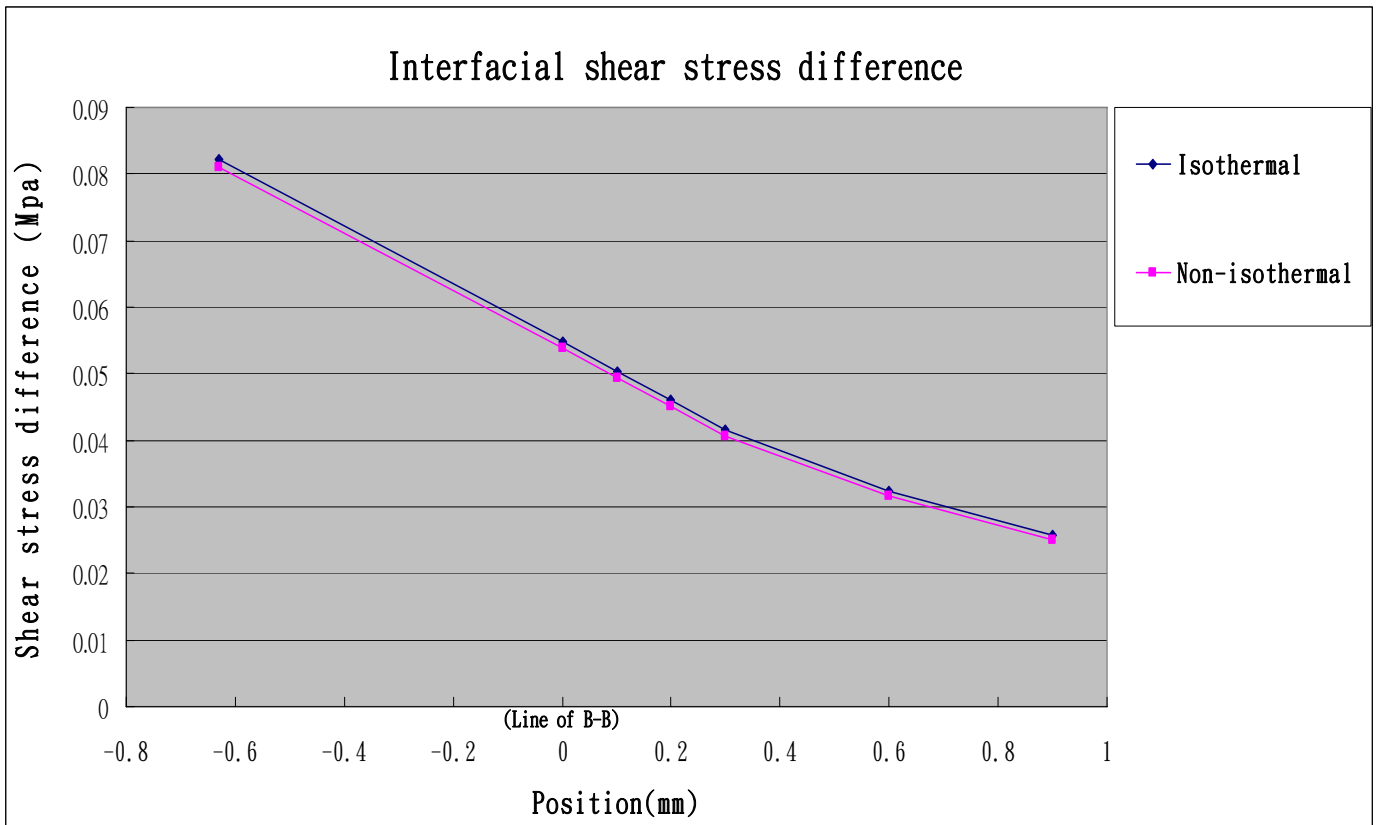
(d) $V_1:V_2=1:1$ (非等溫)

圖 4.50 (a)(b)(c)(d) 厚度 1 比 1 時，等溫與非等溫共擠出之剪應力曲線圖
($Z=15\text{mm}$)



(a) $V_1:V_2=0.2:1$

圖 4.51 (a)(b) 厚度 1 比 1，等溫與非等溫共擠出之剪應力曲線圖 ($Z=15\text{mm}$)



(b) $V_1 : V_2 = 1:1$

圖 4.51 (a)(b)厚度 1 比 1，等溫與非等溫共擠出之剪應力曲線圖(Z=15mm)

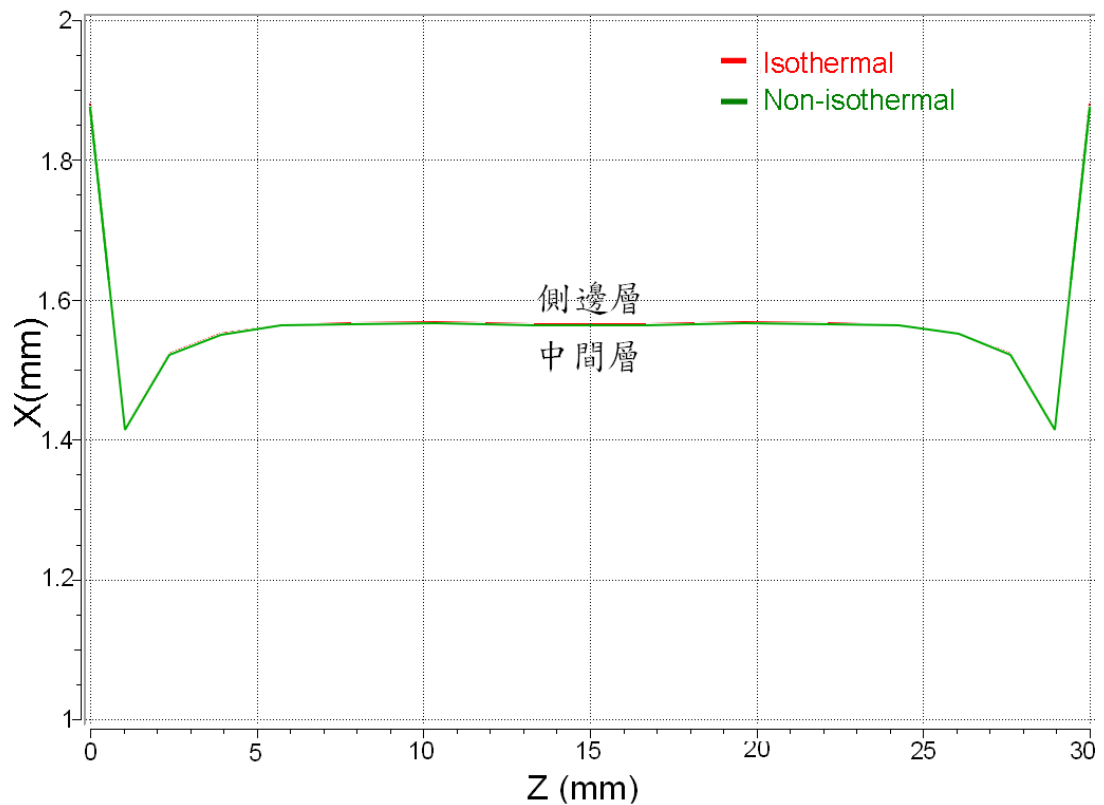


圖 4.52 非等溫流動時，流速比 0.2 比 1，厚度比 0.33 比 1 之出口界面圖

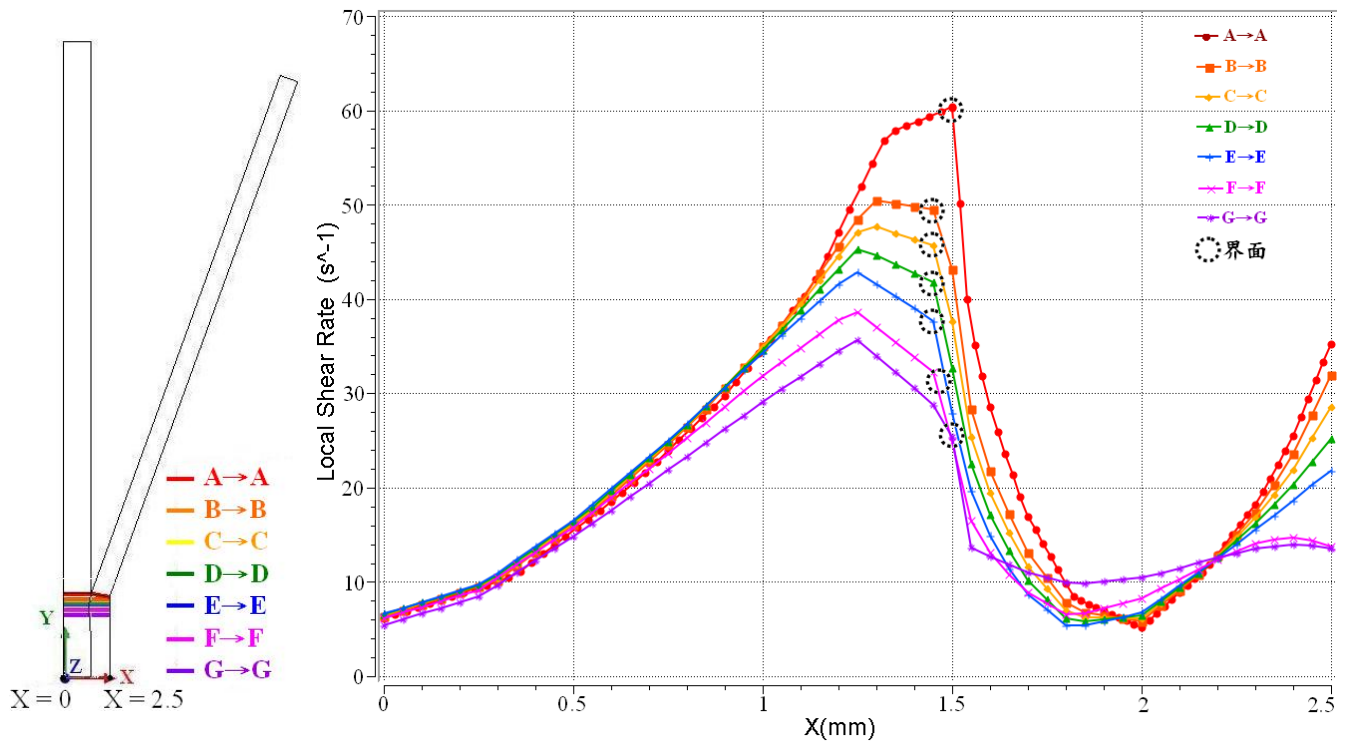


圖 4.53 非等溫流動時，流速比 0.2 比 1，厚度比 0.33 比 1 之剪切率曲線圖
(Z=15mm)

TEMPERATURE

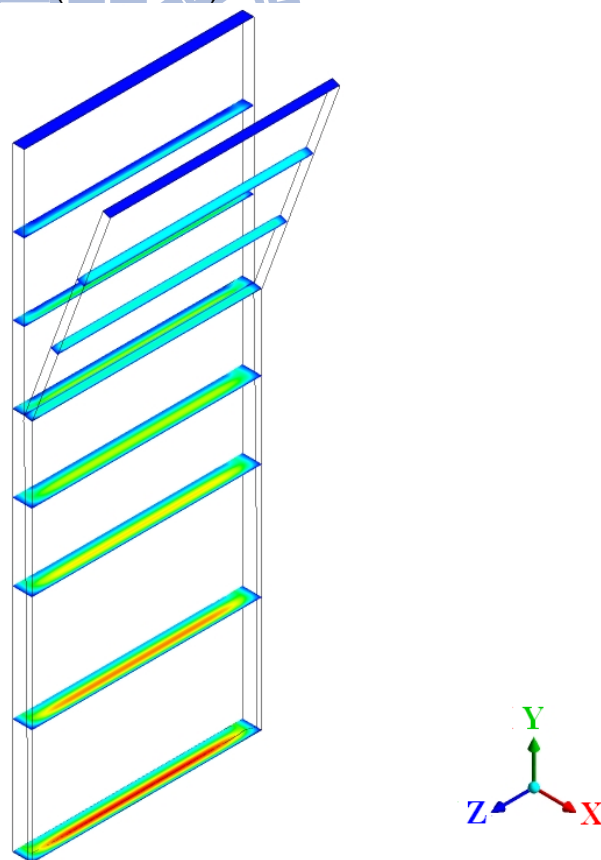
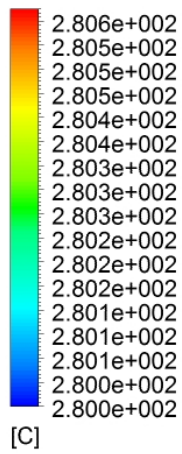


圖 4.54 非等溫流動時，流速比 0.2 比 1，厚度比 0.33 比 1 之溫度分佈圖

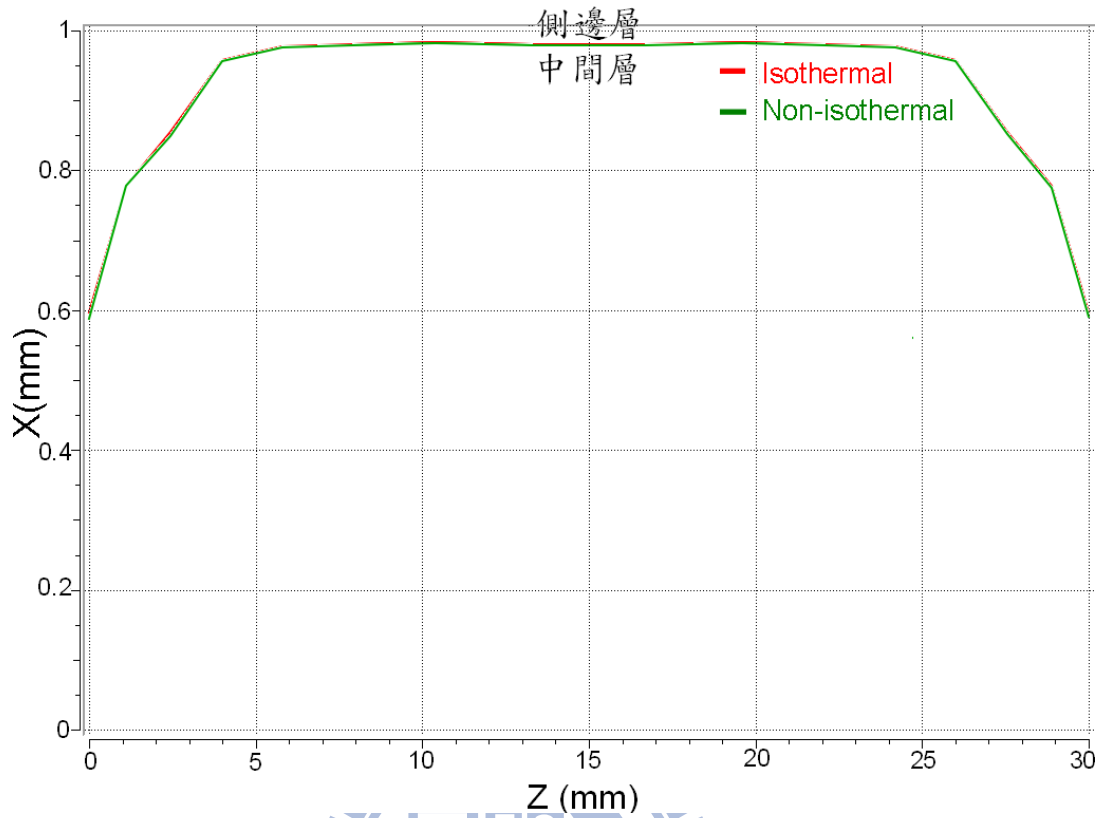


圖 4.55 非等溫流動時，流速比 1 比 1，厚度比 0.33 比 1 之出口界面圖

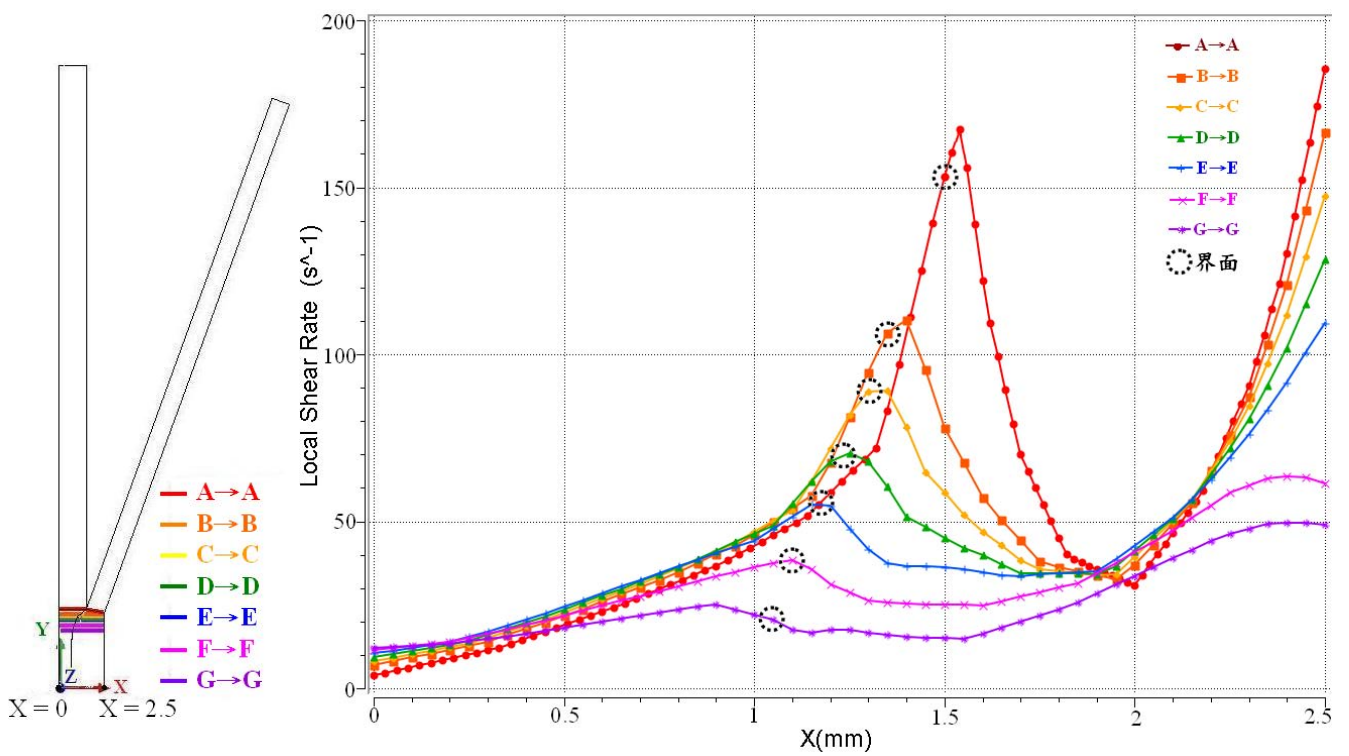


圖 4.56 非等溫流動時，流速比 1 比 1，厚度比 0.33 比 1 之剪切率曲線圖
(Z=15mm)

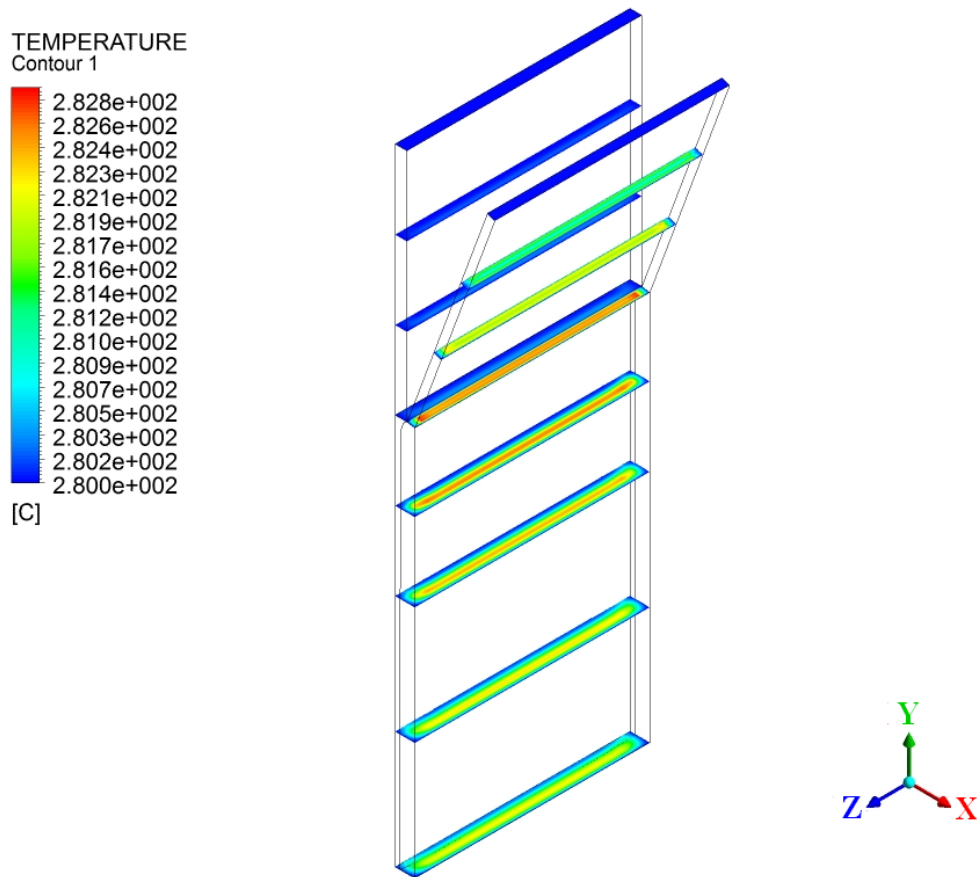
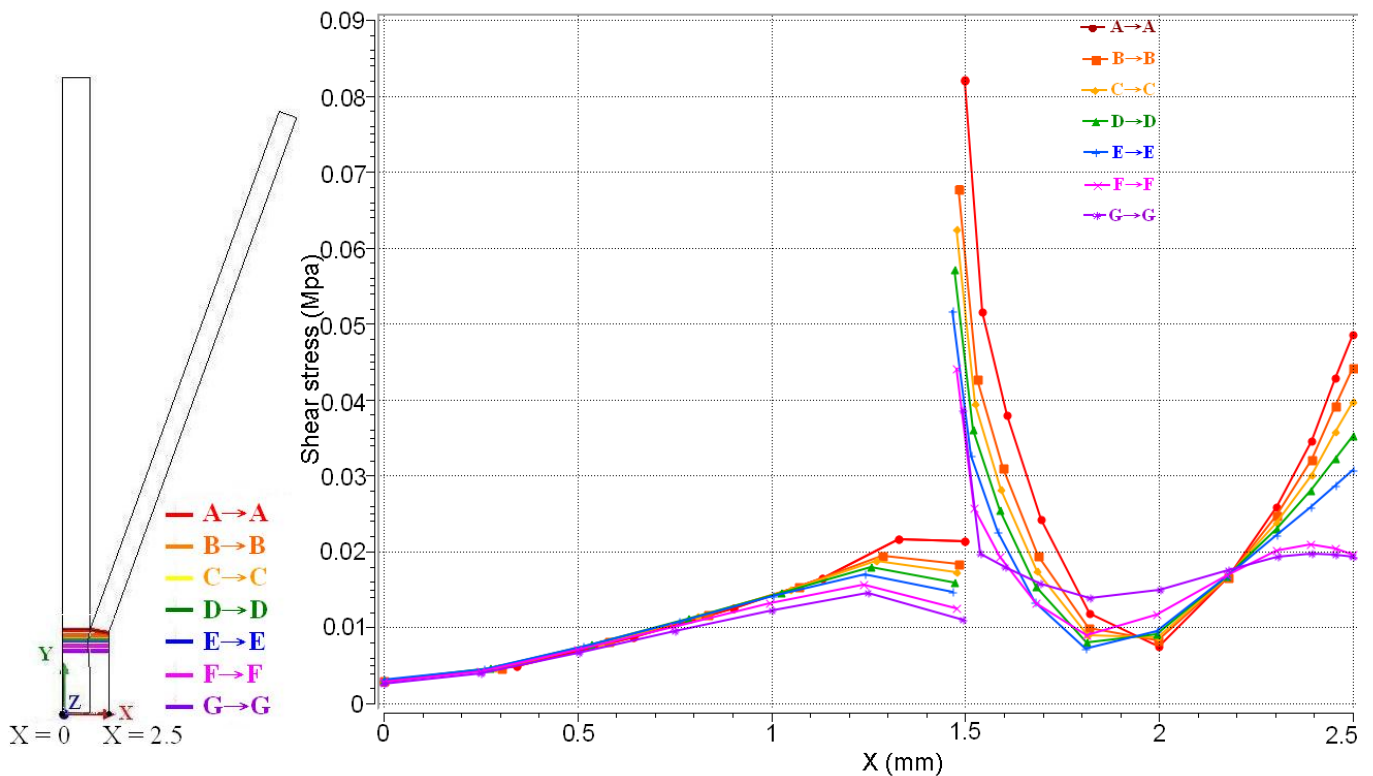
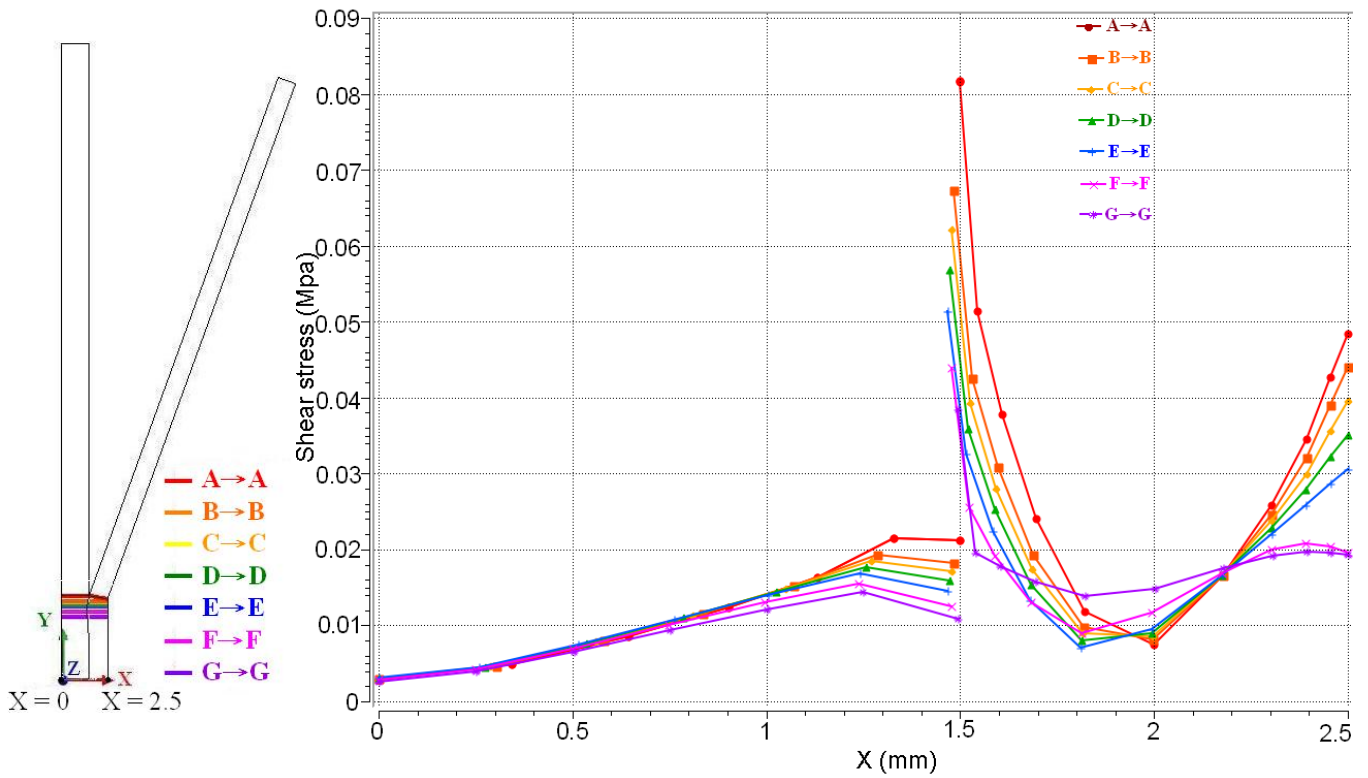


圖 4.57 非等溫流動時，流速比 1 比 1，厚度比 0.33 比 1 之溫度分佈圖

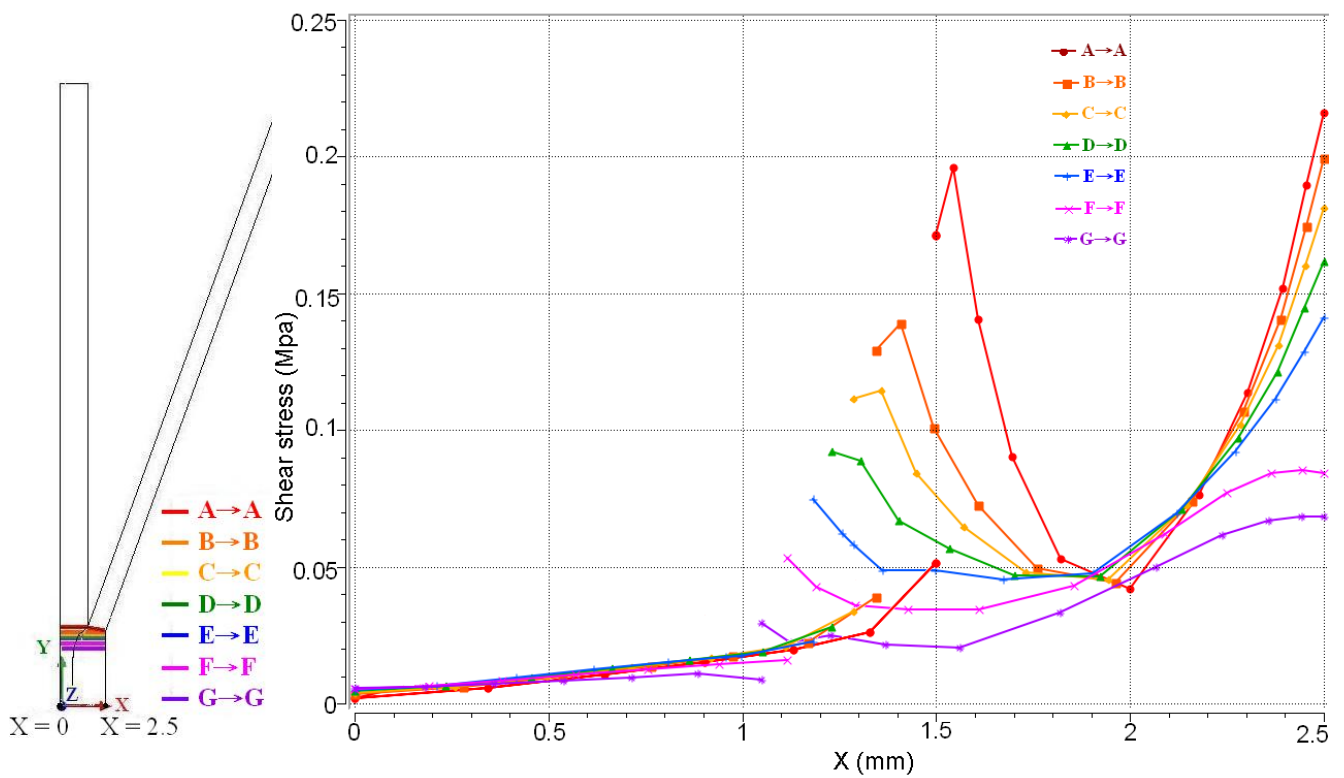


(a) $V_1:V_2=0.2:1$ (等溫)

圖 4.58 (a)(b)(c)(d) 厚度 0.33 比 1 時，等溫與非等溫共擠出之剪應力曲線圖
(Z=15mm)



(b) $V_1:V_2=0.2:1$ (非等溫)



(c) $V_1:V_2=1:1$ (等溫)

圖 4.58 (a)(b)(c)(d) 厚度 0.33 比 1 時，等溫與非等溫共擠出之剪應力曲線圖
($Z=15\text{mm}$)

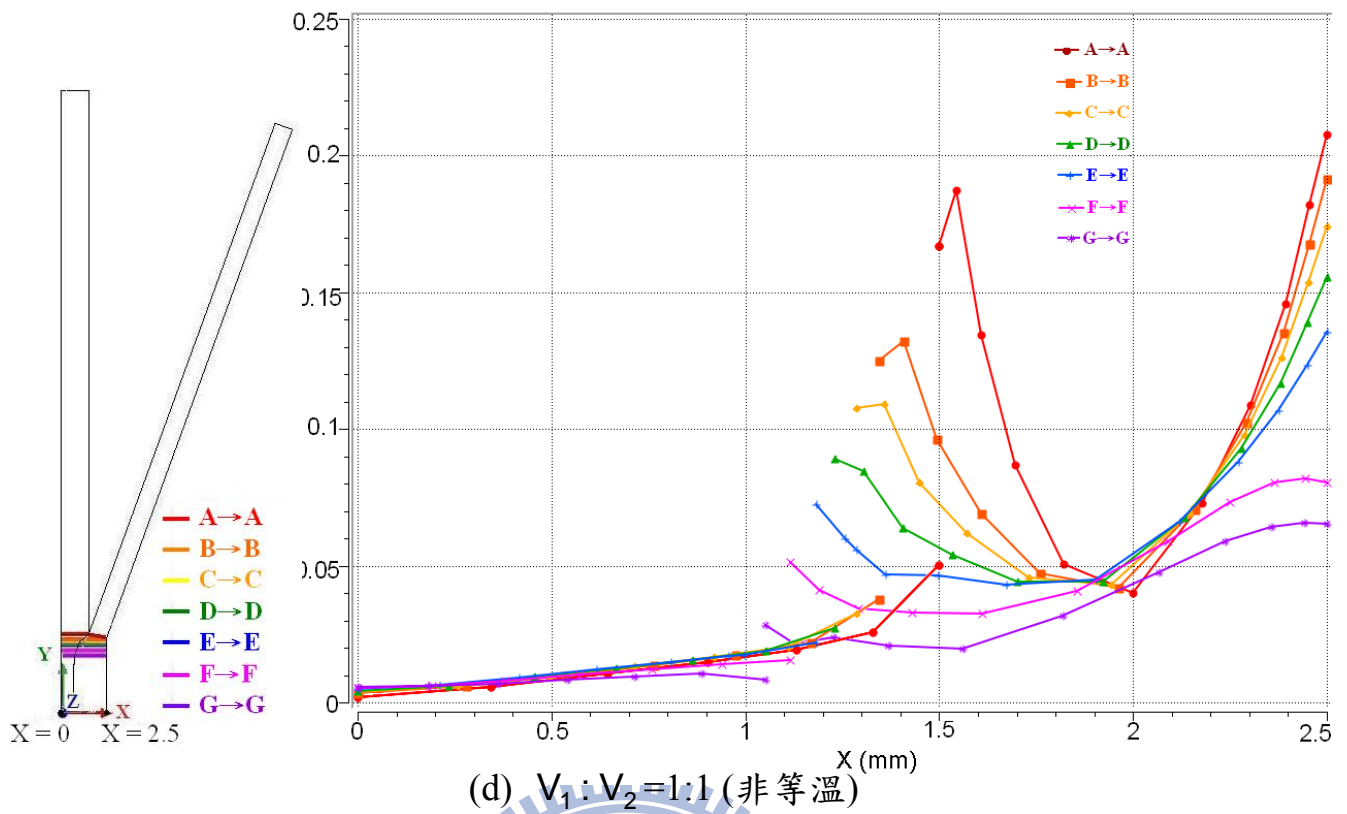


圖 4.58 (a)(b)(c)(d) 厚度 0.33 比 1 時，等溫與非等溫共擠出之剪應力曲線圖
($Z=15\text{mm}$)

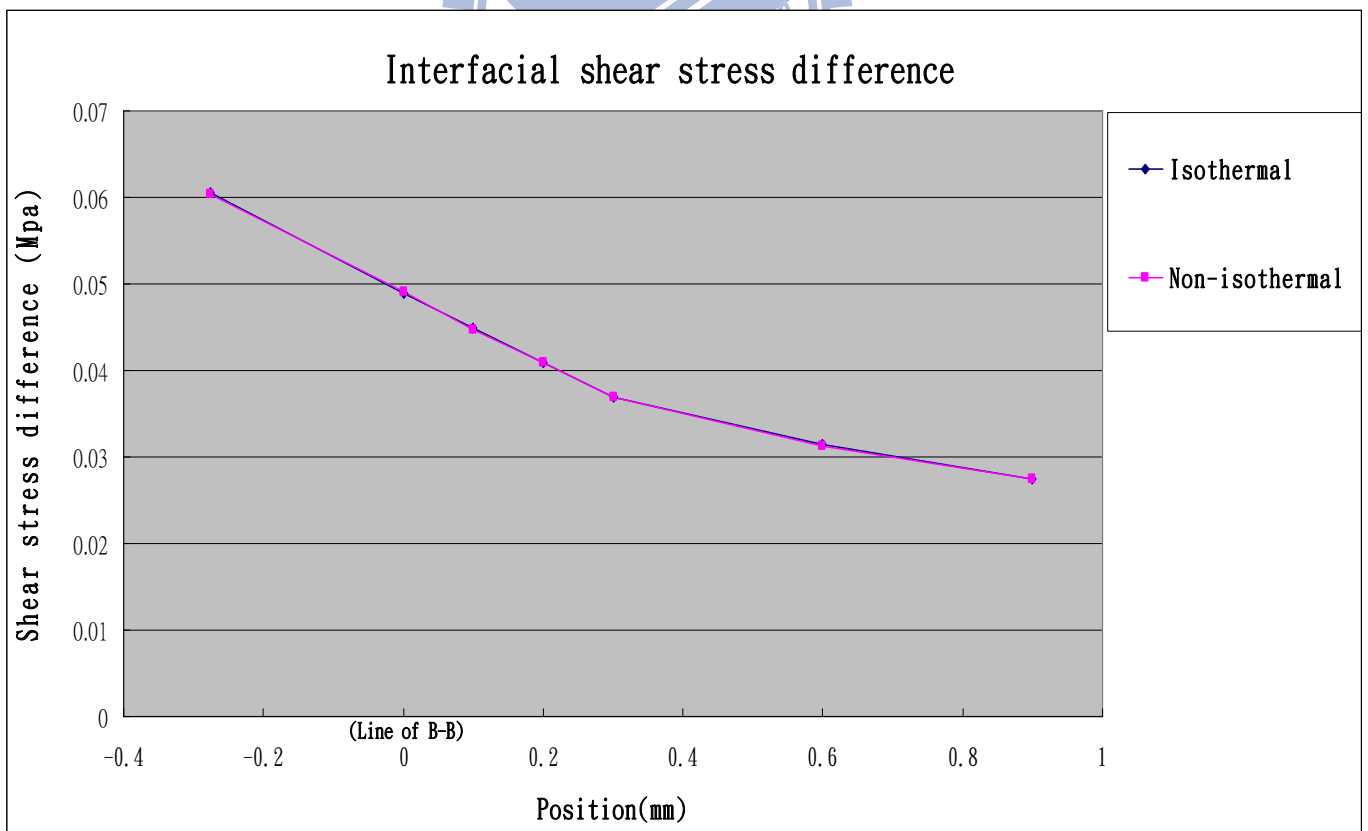
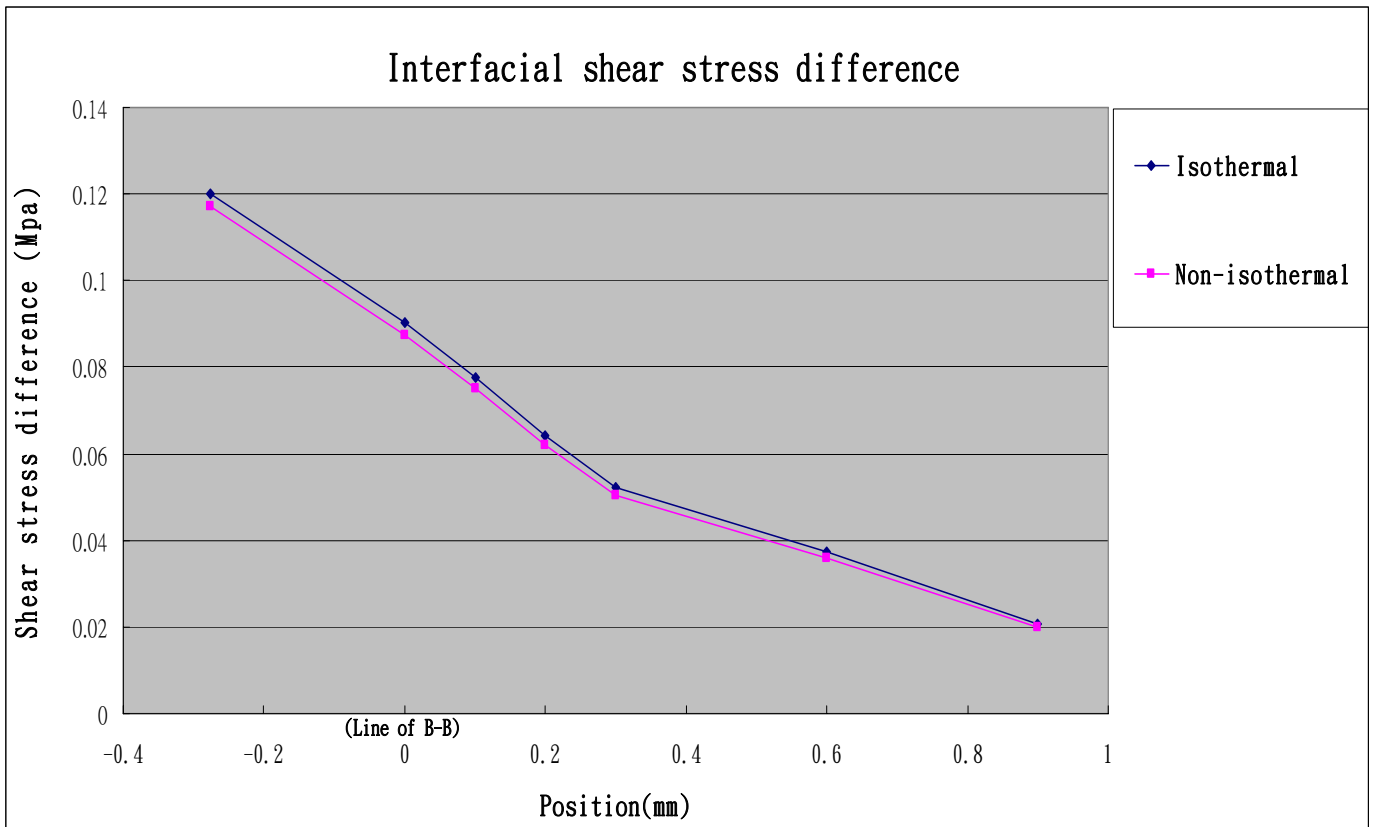


圖 4.59 (a)(b) 厚度 0.33 比 1，等溫與非等溫共擠出之剪應力曲線圖 ($Z=15\text{mm}$)



(b) $V_1 : V_2 = 1:1$

圖 4.59 (a)(b)厚度 0.33 比 1，等溫與非等溫共擠出之剪應力曲線圖($Z=15\text{mm}$)



第五章 結論與建議

5.1 結論

本研究藉由有限元素法模擬三維共擠出成型過程，包括等溫與非等溫之檢討，獲得匯合區域之高分子融體流動行為，如匯合區域的速度場、剪切率、溫度場與剪應力等。研究中使用材料為非結晶型塑料 PC 與 PMMA，配合剪切黏度實驗數據所選用流變模型為 Modified Cross Law，用於一般需描述低剪切速率的剪稀薄效應黏度行為，至於成型參數包括討論匯合角度、擠出速度、黏度比與薄膜厚度比的影響；非等溫系之模擬的部分主要探討剪切熱的影響性，綜合各項分析討論可歸納出以下幾點結論：

1. 當高分子融體進入匯合區域時，隨著匯合角度越大時，其速度中心分佈位置會偏向支流路模壁處，造成支流路模壁外側轉角附近剪應力上升，而可能導致表面鯊魚皮從此處開始發生。而對於出口界面包覆現象而言，角度越大時，界面越靠近模壁處的剪切率愈大，會導致支流路與主流路黏度差異($\eta_1:\eta_2$)變大，而使得包覆更加嚴重。
2. 在支流路與主流路之擠出速度比方面，由於支流路的塑料為高黏度的聚碳酸酯，當支流路擠出速度越快，會導致聚碳酸酯的剪切黏度快速降低，而使得支流與主流路黏度差異降低，可減少包覆程度。但匯合區與支流路模壁處的剪應力隨著擠出速度增加，而可能產生鯊魚皮與界面不穩定現象；反之，支流路速度若太慢，則會造成黏度差異增大，在匯合區時即可觀察到包覆現象的產生
3. 塑料黏度差異大時，界面的剪應力會呈不連續分佈，可能導致界面產生扭曲現象，且出口界面的包覆情形亦隨黏度差異增大而更加嚴重。
4. 薄膜厚度比方面，支流路厚度為 0.6mm、1mm 與 3mm、主流路固定為 3mm，擠出速度比 1:1 時，當薄膜厚度比 1:3 與 0.6:3 時可觀察支流路在匯合後，剪應力已超過文獻記載產生鯊魚皮之臨界剪應力 0.14MPa，而可能產生不穩定流動，導致高黏度包覆低黏度融體或界面邊緣呈現不規則分佈情況，結果顯示薄膜厚度過薄會承受較大變形作用。

5. 當支流與主流路黏度比變大時，由於在等溫系時只需考慮到剪稀薄效應，因此包覆現象會比非等溫共擠出時嚴重；而在非等溫系統時，由於高分子塑料流動時因剪切作用會導致溫度上升，進而影響到黏度的變化，且支流路由於黏度較大使得溫度上升亦較多，而導致黏度下降幅度比主流路多，其黏度比會下降使包覆程度變不明顯。



5.2 未來展望

1. 由於高分子流體為黏彈性流體，在先前文獻中指出，非線性黏彈性流體其第二正向應力差在擠出過程中會產生二次流，此二次流為垂直擠出方向的流場，會造成擠出過程中界面的重新排列，為影響界面包覆形狀的主要因素。若未來能進行黏彈性模形模擬，並與純黏性模型比較其差異性，並藉由實驗來探討二次流動是否為影響包覆現象主要因素。
2. 網格質量(Quality)應更加均勻，以得到精確模擬結果，但網格質量均勻化會導致網格數大量增加，使計算繁複耗時，須從硬體方面著手。
3. 從模擬結果得知，當黏度差異過大，單純從匯合角度、流速與薄膜厚度無法有效改善包覆現象。在之後能針對材料性質做改善，使其剪切黏度差異不致過大，從而改善包覆情形。



參考文獻

- [1] 劉大倭，“高分子加工原理與應用”，初版，揚智文化，中華民國八十六年。
- [2] J. Dooley, “Viscoelastic flow effects in multilayer polymer Coextrusion”, Technical University Eindhoven, Doctoral dissertation, ISBN 90-386-2983-4, 2002.
- [3] 劉士榮，“塑膠擠出成形”，第二版，滄海書局，中華民國八十九年十月。
- [4] 胡德，“高分子物理與機械性質”，初版，國立編譯館主編，渤海堂文化公司印行，中華民國七十九年一月。
- [5] F. N. Cogswell, “Stretching flow instabilities at the exits of extrusion dies”, *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, Vol. 2, No.1, pp. 37-47, 1977.
- [6] W. J. Schrenk, N. L. Bradley, T. Alfrey, JR., “Interfacial Flow Instability in Multilayer Coextrusion”, *Polymer Engineering and Science*, Vol. 18, No. 8, pp. 620-623, 1978.
- [7] O. Martin, L. Ave'rous, “Comprehensive Experimental Study of a Starch/Polyesteramide Coextrusion”, *Journal of Applied Polymer Science*, Vol. 86, pp. 2586-2600, 2002.
- [8] C. Combeaud, Y. Demay, B. Vergnes, “Experimental study of the volume defects in polystyrene extrusion”, *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, Vol. 121, pp. 175-185, 2004.
- [9] D. R. Arda, M. R. Mackley, “The effect of die exit curvature, die surface roughness and a fluoropolymer additive on sharkskin extrusion instabilities in polyethylene processing”, *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, Vol. 126, pp. 47-61, 2004.
- [10] R. P. G. Rutgers, M. R. Mackley, “The effect of channel geometry and wall boundary conditions on the formation of extrusion surface instabilities for LLDPE”, *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, Vol. 98, pp. 185-199, 2001.
- [11] E. Miller, J. P. Rothstein, “Control of the sharkskin instability in the extrusion of polymer melts using induced temperature gradients”, *Rheologica Acta*, Vol. 44, pp. 160-173, 2004.

- [12] M. T. Martyn, R. Spares, P. D. Coates, M. Zatloukal, "Imaging and analysis of wave type interfacial instability in the coextrusion of low-density polyethylene melts", *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, Vol. 156, pp. 150-164, 2009.
- [13] M. Zatloukal, W. Kopytko, A. Lengalova, J. Vlcek, "Theoretical and Experimental Analysis of Interfacial Instabilities in Coextrusion Flows", *Journal of Applied Polymer Science*, Vol. 98, pp. 153-162, 2005.
- [14] T. E. Bernal-Lara, R.Y. F. Liu, A. Hiltner, E. Baer, "Structure and thermal stability of polyethylene nanolayers", *Polymer*, Vol. 46, No.9, pp. 3043-3055, 2005.
- [15] Y. Jin, A. Hiltner, E. Baer, "Fractionated Crystallization of Polypropylene Droplets Produced by Nanolayer Breakup", *Journal of Polymer Science, Part B, Polymer Physics*, Vol. 45, pp. 1138-1151, 2007.
- [16] L. Wild, R. Ranganath, D. C. Knobloch, "Influence of Long-Chain Branching on the Viscoelastic Properties of Low-Density Polyethylenes", *Polymer Engineering and Science*, Vol. 16, No. 12, pp. 811-816, 1976.
- [17] L. A. Hamielec*, J. Vlachopoulos, "Influence of Long Chain Branching on Extrudate Swell of Low-Density Polyethylenes", *Journal of Applied Polymer Science*, Vol. 28, pp. 2389-2392, 1983.
- [18] A. C. -Y. Wong, "Factors affecting extrudate swell and melt flow rate", *Journal of Materials Processing Technology*, Vol. 79, pp. 163-169, 1998.
- [19] D. G. Kiriakidis, E. Mitsoulis, "Viscosity Simulations of Extrudate Swell for an HDPE Melt through Slit and Capillary Dies", *Advances in Polymer Technology*, Vol. 12, No. 2, pp. 107-117, 1993.
- [20] J. Z. Liang, "Effect of extrusion conditions on die-swell behavior of polypropylene /diatomite composite melts", *Polymer Testing*, Vol. 27, pp. 936-940, 2008.
- [21] W. A. GIFFORD, "A Three-Dimensional Analysis of Coextrusion", *Polymer Engineering and Science*, Vol. 37, No. 2, pp. 315-320, 1997.
- [22] W. A. GIFFORD, "A Three-Dimensional Analysis of Coextrusion in a Single Manifold Flat Die", *Polymer Engineering and Science*, Vol. 40, No. 9, pp. 2095-2100, 2000.
- [23] J. L. White, C. R. C. Ufford, K. R. Dharod, "Experimental and theoretical study of the extrusion of two-phase molten polymer

- systems”, Journal of Applied Polymer Science, Vol. 16, pp. 1313-1330, 1972.
- [24] B. Debbaut, T. Avalosse, J. Dooley, K. Hughes, “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, Vol. 69, pp. 255-271, 1997.
- [25] K. Funatsu, S. Kihara, M. Takase, “Three-dimensional viscoelastic numerical analysis of the encapsulation phenomena in coextrusion”, Rheol Acta, Vol. 37, pp. 624-634, 1998.
- [26] 劉士榮, “高分子流變學”, 第二版, 滄海書局, 中華民國九十四年二月。
- [27] J. J. Aklonis, W. J. MacKnight, “聚合物黏彈性概論”, 張家禎編譯, 第二版, 復文書局, 中華民國八十年。
- [28] 林建中, “高分子材料科學：高分子材料機械性質”, 第二版, 文京圖書, 中華民國九十年四月。
- [29] “擠出成形技術入門”, 塑膠世界雜誌社。
- [30] 科盛科技, “CAE模流分析技術入門與應用”, 初版, 全華科技圖書, 中華民國九十一年十一月。
- [31] “POLYFLOW 3.12 User’s Guide”, FLUENT Inc, 2008.