

國立交通大學

應用化學研究所

碩士論文

共押出進料區塊之三維有限元素法模擬

Three-Dimensional Finite Element Simulation
of Coextrusion Feedblock

研究生：楊世豪
指導教授：吳建興

中華民國九十六年七月

共押出進料區塊之三維有限元素法模擬

學生：楊世豪

指導教授：吳建興教授

國立交通大學應用化學研究所碩士班

摘 要

共押出製程中之界面包覆及界面不穩定現象為影響多層薄膜及板材品質最重要之因素，故本文旨在使用Giesekus流變模型及於進料區塊壁面邊界採取滑動邊界設定以進行雙層共押出進料區塊內流動之三維有限元素模擬。由模擬結果可看出，相對於不滑動邊界，滑動邊界設定使壁面接觸線可在壁面上移動，能有效預測流體界面彎曲變化情形，且不會忽略壁面之影響。本文藉由改變Giesekus流變模型中之 α 參數探討因第二正向應力差造成之二次流動，結果顯示第二正向應力差對於界面包覆現象之影響極大。至於界面之正向應力差及剪切應力對於界面不穩定有極大之影響，故本文藉由分析雙層流體界面間之第一正向應力差及剪切應力以探討界面不穩定現象，結果顯示雙層流體之流量比及壁面光滑度為影響界面不穩定之重要因素。

關鍵字：共押出製程、進料區塊、接觸線、有限元素法模擬、滑動邊界、界面不穩定、包覆現象。

Three-Dimensional Finite Element Simulation of Coextrusion Feedblock

Student : Shih-Hao Yang

Advisor : Professor Jiann-Shing Wu

Institute of Applied Chemistry
National Chiao Tung University

Abstract

In coextrusion process, the encapsulation phenomena and interfacial instabilities are the most important factors for the properties of multilayer films and sheets. In this study, three-dimensional finite element simulation of bicomponent coextrusion feedblock with Giesekus rheological model and slip boundary conditions imposed on the wall were discussed. Results show that in contrast to no-slip boundary conditions, slip boundary conditions would allow the displacement of contact line along the wall and have a more precise prediction of interface distortion without neglecting the wall effects. The formation of secondary flow due to the second normal stress difference was analyzed by varying the parameter α in Giesekus rheological model. Consequently, the simulation results show that the second normal stress difference have an great influence on the encapsulation phenomena. Meanwhile, first normal stress difference and shear stress at interface have a significant influence on the interfacial instability. In this study, the interfacial instabilities were investigated by analyzing the first normal stress difference and the shear stress between both fluids. Results indicate that the flow ratio of the both fluids and slip over the upper and lower wall of the feedblock have a crucial effect on the interfacial instabilities.

Keywords: coextrusion, feedblock, contact line, finite element simulation, slip boundary, interfacial instability, encapsulation phenomena

致謝

首先誠摯的感謝指導教授吳建興教授，老師悉心的教導使我得以一窺共押出製程領域的深奧，不時的討論並指點我正確的方向，使我在這些年中獲益匪淺。老師對學問的嚴謹更是我輩學習的典範。

本論文的完成另外亦得感謝東海大學化工系的王曄教授大力協助，及交通大學應用化學系張豐志教授的支持。因為有你們的體諒及幫忙，使得本論文能夠更完整而嚴謹。

兩年裡的日子，實驗室裡共同的生活點滴，學術上的討論、言不及義的閒扯、讓人又愛又怕的宵夜、趕作業的革命情感、因為睡太晚而遮遮掩掩閃進實驗室.....，感謝眾位學長姐、同學、學弟的共同砥礪(墮落?)，你/妳們的陪伴讓兩年的研究生生活變得絢麗多彩。

感謝煥鋁、名洋、俊宏學長、曼琳、芝穎學姐們不厭其煩的指出我研究中的缺失，且總能在我迷惘時為我解惑，也感謝東和同學的幫忙，恭喜我們順利走過這兩年。實驗室的柏豪、諭徽、健超學弟們當然也不能忘記，你們的幫忙及搞笑我銘感在心。

女朋友文馨在背後的默默支持更是我前進的動力，沒有文馨的體諒、包容，相信這兩年的生活將是很不一樣的光景。

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
致謝	III
目錄	IV
表目錄	VI
圖目錄	VII
符號說明	X
一、緒論	1
1.1 高分子押出與共押出製程	1
1.2 共押出製程問題	5
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).....	7
1.3 文獻回顧	10
1.3.1 界面不穩定文獻回顧	10
1.3.2 層間不均勻性文獻回顧	11
1.4 研究動機與目的	13
二、理論模式及研究方法	16
2.1 理論模式	16
2.1.1 統御方程式(Governing equation)	16
2.1.2 邊界條件	18
2.1.3 流體自由界面與壁面接觸線(contact line)處理.....	20
2.1.4 黏彈流體之無因次參數(Dimensionless numbers).....	24

2.1.5 界面不穩定(Interfacial instability)分析	25
2.1.6 包覆現象(Encapsulation phenomena)分析	26
2.2 研究方法	29
2.2.1 網格處理	29
2.2.2 葛拉金有限元素法(Galerkin finite element method).....	30
2.2.3 三維非線性系統解	31
2.2.4 流體自由界面位置計算	31
2.3 計算流程	32
三、結果與討論	34
3.1 操作條件	34
3.2 網格研究	35
3.3 模擬結果驗證與比較	40
3.3.1 模擬結果比較	40
3.3.2 不同壁面邊界設定之比較	41
3.4 模擬結果分析	51
3.4.1 流變參數之影響	52
3.4.2 流量比之影響	67
3.4.3 滑動係數之影響	76
四、結論	81
參考文獻	83

表目錄

表 1-1 高分子塑料間接著力比較	2
表 3-1 Giesekus 模型流變參數	36
表 3-2 壁面網格加密之分析比較	37
表 3-3 界面網格加密之分析比較	39
表 3-4 模擬結果與文獻比較	42
表 3-5 不同外插法壁面設定比較	43
表 3-6 滑動係數設定之分析比較	46
表 3-7 不同滑動模型邊界之分析比較	50
表 3-8 不同 α 比設定之分析比較	55
表 3-9 固定 α 比設定之分析比較	60
表 3-10 上下層流體 α 值互換之分析比較	63
表 3-11 不同流量比之分析比較	68
表 3-12 雙層流體正向應力差異之分析比較	75
表 3-13 不同滑動係數設定之分析比較	78

圖目錄

圖 1-1 多重分歧管模具(multi-manifold die)示意圖	3
圖 1-2 共押出進料區塊/單歧管模具(feedblock)示意圖	4
圖 1-3 商業化之進料區塊/單歧管模具系統	4
圖 1-4 界面不穩定對膜之清晰度影響	5
圖 1-5 界面不穩定現象(A)鋸齒形 (B)波浪形	6
圖 1-6 鋸齒形(zig-zag)不穩定現象示意圖	7
圖 1-7 界面包覆現象示意圖	8
圖 1-8 界面包覆發展示意圖	9
圖 1-9 進料區塊設計及其效益	9
圖 1-10 界面不穩定時之 TNSD 變化	11
圖 1-11 界面包覆階段示意圖(A)初始界面 (B)流體重整 (C)包覆增加	12
圖 1-12 高分子塑料於方形流道中之二次流動現象	13
圖 2-1 進料區塊(feedblock)幾何形狀	19
圖 2-2 使用不滑動(no-slip)壁面假設之流體界面	21
圖 2-3 使用線性外插法處理壁面接觸線	22
圖 2-4 線運動學狀態(line kinematic condition)示意圖	23
圖 2-5 接觸線平行接觸力(contact force)之切線分量 F_t	24
圖 2-6 進料組合區塊匯流處示意圖(流速比 $Q_I : Q_{II} = 13.2 : 1$)	25
圖 2-7 黏彈流體二次流動(secondary flow)現象	27
圖 2-8 雙層流體包覆現象示意圖	28
圖 2-9 包覆度(degree of encapsulation)定義	29
圖 2-10 進料區塊網格示意圖	30
圖 2-11 計算流程圖	33

圖 3-1 進料區塊幾何形狀網格圖	35
圖 3-2 Polystyrene 之黏度-剪切率關係圖(220°C).....	36
圖 3-3 模壁面網格加密分析圖	39
圖 3-4 流體界面附近網格加密分析圖	40
圖 3-5 流體界面形狀比較圖	42
圖 3-6 不滑動邊界之進料區塊出口界面位置	44
圖 3-7 不同外插法之出口界面位置比較圖	44
圖 3-8 不同外插法之界面包覆度比較圖	45
圖 3-9 不同滑動係數下之出口界面包覆度比較圖	47
圖 3-10 不同滑動係數下接觸線位置之壁面剪切應力比較圖	47
圖 3-11 不同邊界設定下之包覆度比較圖	48
圖 3-12 不同邊界設定下壁面($z=0.5L$)接觸線位置比較圖	48
圖 3-13 不同邊界設定下之出口界面位置比較圖	49
圖 3-14 壁面剪切應力與滑動速度關係圖	50
圖 3-15 接觸線位置之壁面剪切應力比較圖	51
圖 3-16 線性及冪次式滑動模型之包覆度比較圖	51
圖 3-17 線性及冪次式滑動模型之壁面($z=0.5L$)接觸線位置比較圖	52
圖 3-18 沿流動方向之二次流動發展圖	53
圖 3-19 不同流道長度之 Y 方向速度分佈圖	54
圖 3-20 改變下層流體 α 值之界面包覆度增加圖	56
圖 3-21 改變下層流體 α 值之壁面($z=0.5L$)接觸線位置比較圖	56
圖 3-22 改變下層流體 α 值之 Y 方向速度分佈圖	57
圖 3-23 改變上層流體 α 值之界面包覆度增加圖	58
圖 3-24 改變上層流體 α 值之壁面($z=0.5L$)接觸線位置比較圖	58
圖 3-25 改變上層流體 α 值之 Y 方向速度分佈圖	59

圖 3-26 固定 α 比值之界面包覆度增加比較圖	61
圖 3-27 固定 α 比值之壁面($z=0.5L$)接觸線位置比較圖	61
圖 3-28 固定 α 比之 Y 方向速度分佈圖	62
圖 3-29 上下層流體 α 值互換之界面包覆度增加比較圖	64
圖 3-30 上下層流體 α 值互換之壁面($z=0.5L$)接觸線位置比較圖	64
圖 3-31 上下層流體 α 值互換之 Y 方向速度分佈圖	65
圖 3-32 改變上下層流體 α 值之二次流動示意圖	66
圖 3-33 進料區塊流體匯流處之速度向量圖($z=0$)	69
圖 3-34 不同流量比之出口界面位置比較圖	70
圖 3-35 不同流量比之包覆度比較圖	70
圖 3-36 不同流量比之壁面($z=0.5L$)接觸線位置比較圖	71
圖 3-37 不同流量比之 Y 方向速度分佈圖	72
圖 3-38 不同流量比之界面剪切應力比較圖	73
圖 3-39 沿流動方向之第一正向應力差變化圖($Q_I/Q_{II}=13.2$)	74
圖 3-40 沿流動方向之第一正向應力差變化圖($Q_I/Q_{II}=5$)	75
圖 3-41 沿流動方向之第一正向應力差變化圖($Q_I/Q_{II}=3$)	75
圖 3-42 沿流動方向之上下層流體 DN_1 變化圖	76
圖 3-43 進料區塊邊界設定示意圖	77
圖 3-44 不同滑動係數設定之界面剪切應力比較圖	78
圖 3-45 沿流動方向之第一正向應力差變化圖(no-slip condition)	79
圖 3-46 沿流動方向之第一正向應力差變化圖($F_{slip}=5\times 10^5$)	79
圖 3-47 沿流動方向之第一正向應力差變化圖($F_{slip}=1\times 10^5$)	80
圖 3-48 沿流動方向之上下層流體 DN_1 變化圖	80

符號說明

a	修正型流動性因子(modified mobility factor)
D	變形率張量(rate of deformation tensor)
F_{slip}	滑動係數(slip coefficient)
H	特徵長度(characteristic length)
N^I	二次內插函數(quadratic interpolation function)
N_p^i	線性內插函數(linear interpolation function)
v_k	各層之速度向量(velocity vector)
p	壓力(pressure)
t	單位切線向量(unit tangential vector)
n	單位法線向量(unit normal vector)
We	Weissenberg number
α	無因次流動性因子(dimensionless mobility factor)
ε_{slip}	滑動參數(slip parameter)
η_0	零剪切率黏度(zero-shear-rate viscosity)
η_s	溶劑之零剪切率黏度(solvent zero-shear rate viscosity)
η_p	高分子之零剪切率黏度(polymer zero-shear rate viscosity)
λ_1	鬆弛時間(relaxation time)
λ_2	滯留時間(retardation time)
σ	總應力張量(total stress tensor)
τ_k	各層之應力張量(extra stress tensor)

一、緒論

1.1 高分子押出與共押出製程

押出製程為一主要之高分子塑料加工製程。高分子原料經由熔化(melting)、傳送(transportation)及模具成型(shaping)等步驟之連續製程可得到所要求之產品形狀、熱性質及機械性質等。押出成型包含薄膜押出、管材押出、板材押出及異型押出等。其中薄膜(film)為高分子重要產品之一，在工業上廣泛應用於藥品包裝、食品包裝等包裝薄膜，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。一般高分子板、膜使用多層化之目的如下：

1. 組合不同塑料以達到特殊之性質要求，如阻光或透視效果。
2. 多層膜之一部分加以發泡或強化，可增加整體強度。

但亦有以下缺點及問題：

1. 多層膜製造設備成本高於單層膜成形機。
2. 多層膜之再生利用困難。
3. 模具及成形法之專利很多。
4. 不同塑料間之接著性，如表 1-1_[1]。
5. 多層膜之界面缺陷不穩定現象及層間不均勻性。

表 1-1 高分子塑料間接著力比較^[1]

	LDPE	EVA	HDPE	PP	PS	Ionomer	Nylon 6	Nylon 11
LDPE	◎	◎	◎	×	×	○	×	×
EVA		◎	◎	○	○	○	※	○
HDPE			◎	×	×	○	×	×
PP				◎	×	○	×	×
PS					◎	不明	×	×
Ionomer						◎	○	○
Nylon 6							◎	○
Nylon 11								◎

註：◎ 不能剝離(材質會破壞) ○ 接著良好(剝離力 400g/15mm 以上) △ 若干接著力
× 無接著力 ※ Nylon 6 之加工溫度為 270°C(不適合)

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：

(A) 可精準調整各層膜之厚度。

- (B) 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。
- (C) 各歧管間之絕熱設計不易克服。
- (D) 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。

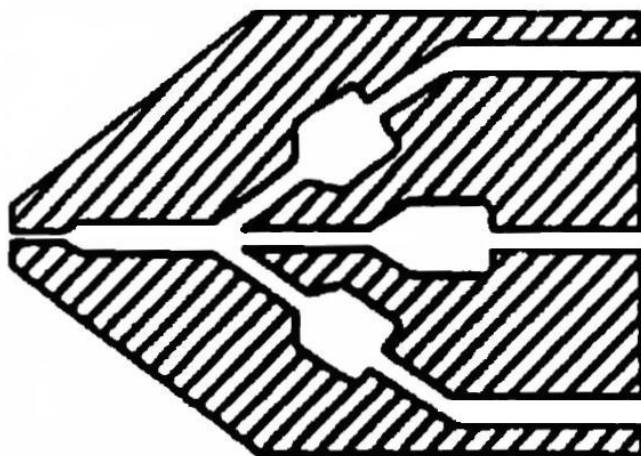


圖 1-1 多重分歧管模具(multi-manifold die)示意圖

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：

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

因此共押出模具設計需要對於三維共押出流動有深入之了解^[4]。儘管有以

上缺點，但進料區塊/單歧管模具比起多歧管仍然較為廣泛使用。

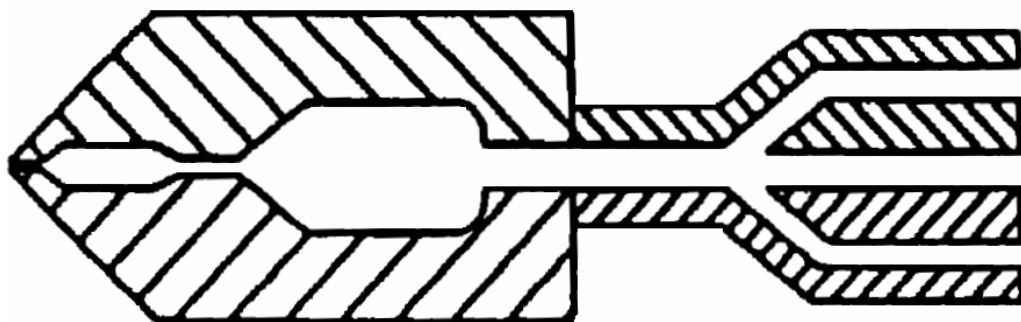


圖 1-2 共押出進料區塊/單歧管模具(feedblock)示意圖

進料區塊之多元性使其成為最普遍之平模共押出方法，且已有上千層之多層膜商業化，而每層厚度皆小於 100nm ^[5]。商業化之進料區塊/單歧管模具如圖 1-3 所示，其進料區塊為組合式之設計，可用來改變層數、順序或厚度分佈，亦可藉由適當調整進料區塊使邊緣切削廢棄物(edge waste)減至最少。

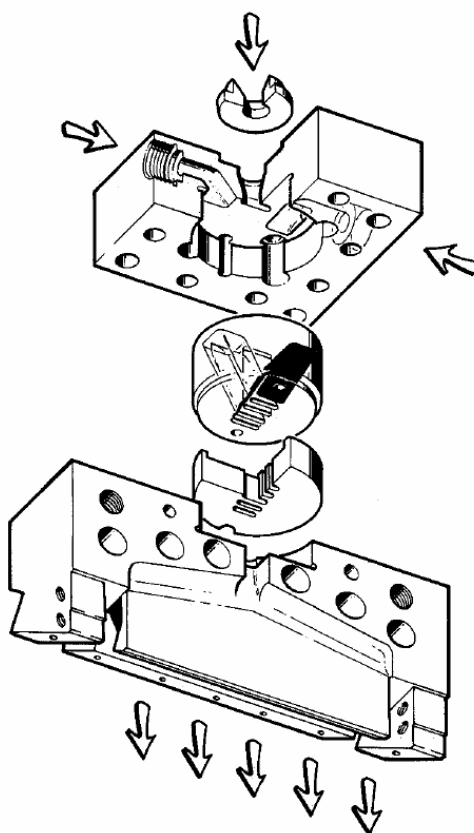


圖 1-3 商業化之進料區塊/單歧管模具系統

1.2 共押出製程問題

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，如圖 1-4^[6]。而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。一般傳統加工中，均是以經驗及試誤法(trial and error)調整加工參數來解決共押出製程之界面缺陷問題，相當費時費力及消耗成本，因此在要求高精密度之加工製程中，必須藉助模擬分析解決。

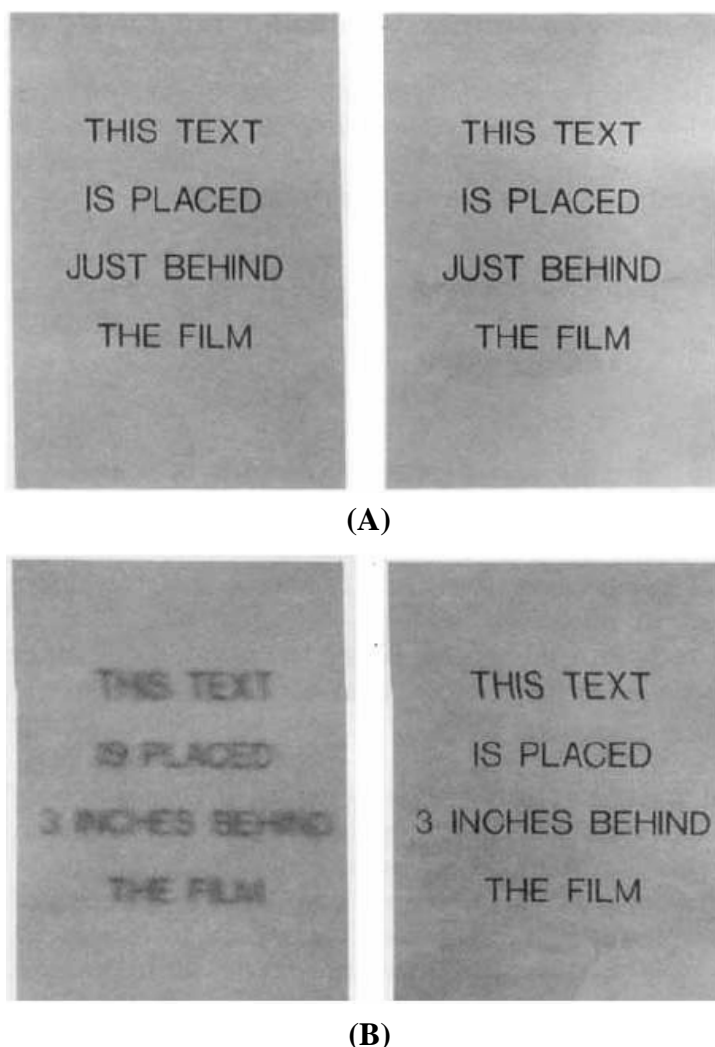
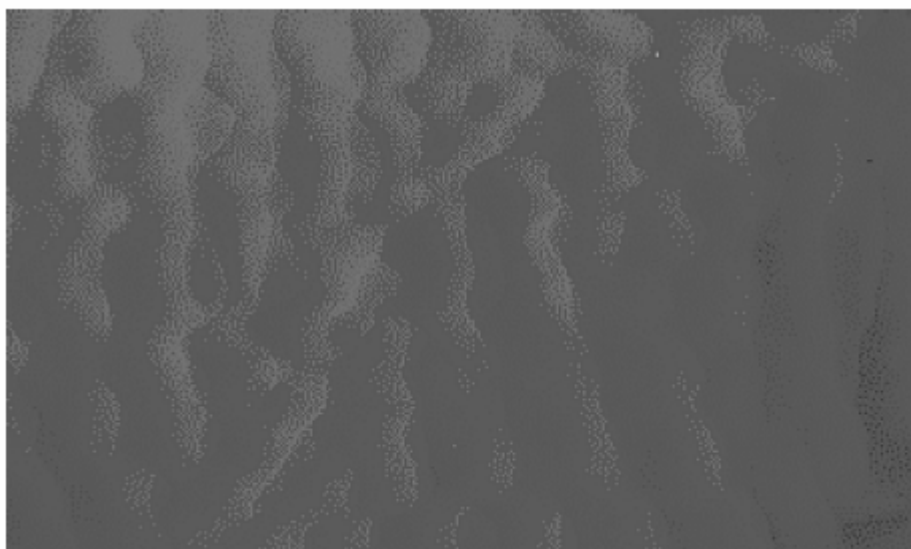


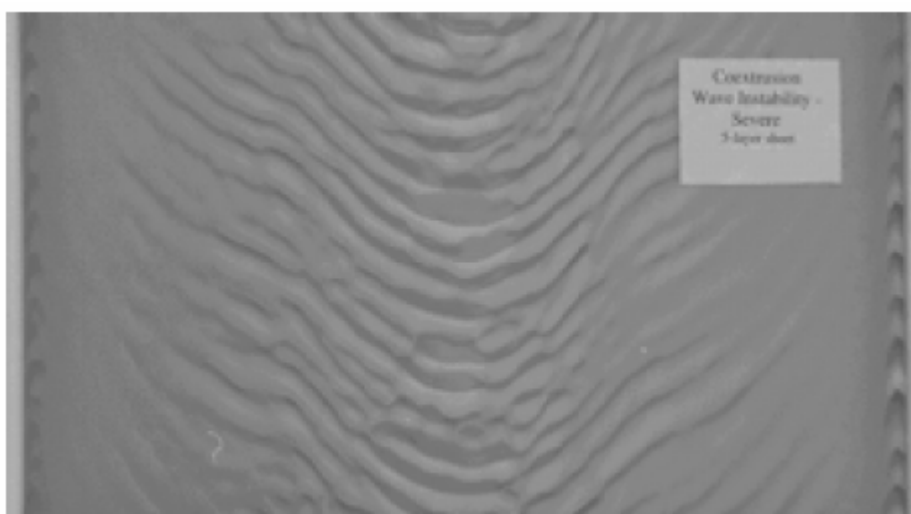
圖 1-4 界面不穩定對膜之清晰度影響^[6]
(A)近距離清晰度 (B)相隔 3 英吋遠清晰度

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)。鋸齒形不穩定為小振幅高頻率之界面缺陷，而波浪形不穩定為高振幅低頻率之界面缺陷，如圖 1-5^[7]。



(A)



(B)

圖 1-5 界面不穩定現象^[7](A)鋸齒形 (B)波浪形

最常見之界面不穩定現象為鋸齒形不穩定，其鋸齒尖端指向於流體流動方向。文獻[8]中指出，當流速極低時，界面相當平穩，無任何流動不穩定現象，如圖 1-6 (A)。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，如圖 1-6(B)。而當流速極大時，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，如圖 1-6(C)。Schrenk_[8, 9]亦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。

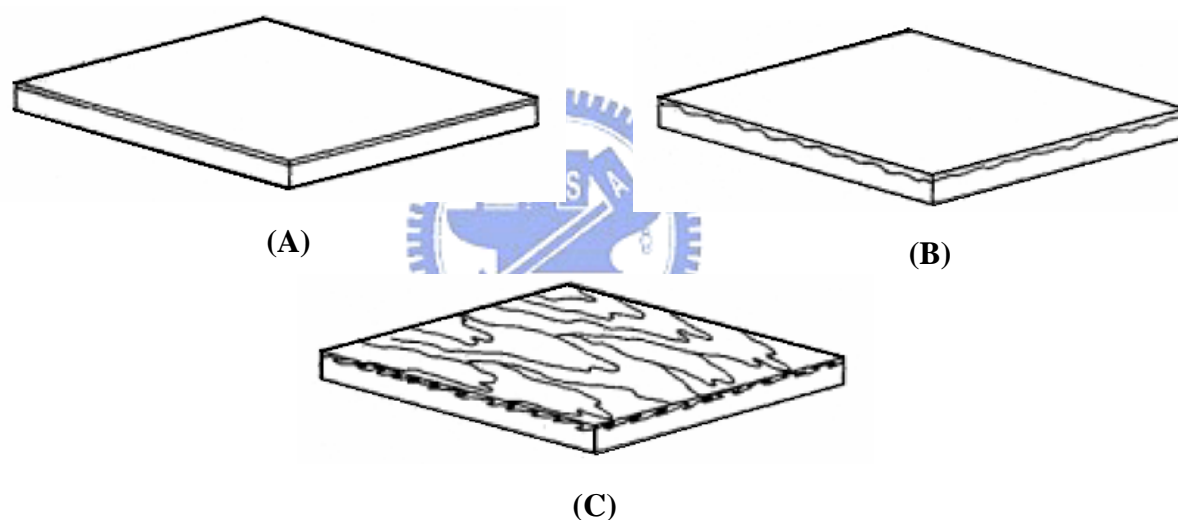


圖 1-6 鋸齒形(zig-zag)不穩定現象示意圖[8]

界面初形成時，是波浪形不穩定是否發生之關鍵，因上下層不同塑料之流速及流變性質差異，使進料區塊內部流體匯合處發生波浪形不穩定現象。此不穩定現象如同一連串橫跨於寬度方向之拋物線，向流動方向凸出。當外層塑料厚度相對於內層塑料較薄時，波浪形不穩定更易發生。鄰近層間塑料之拉伸黏度差異亦是波浪形不穩定發生原因之一。流動系統或幾何之不對稱性更使得波浪形不穩定愈加嚴重。

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，一般傳統加工皆是將成品邊緣裁切丟棄，如圖 1-7^[10]。黏度為影響包覆現象原因之一，低黏度之塑料會流向高剪切率之壁面並包覆高黏度之塑料。高分子彈性對於界面包覆現象之影響亦相當重要^[10-13]，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 1-8^[14]。

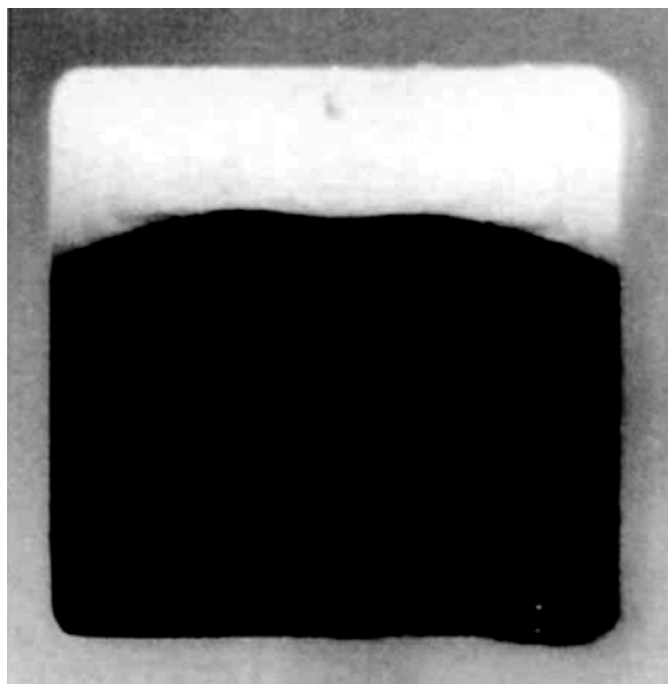


圖 1-7 界面包覆現象示意圖^[10]

為改善流體界面之不均勻性問題，經由特殊設計之進料區塊可藉由改變內部流道之幾何形狀，使上下層流體之流量均勻化，並減輕包覆現象發生之趨勢，如圖 1-9。此特殊設計雖可減輕流體界面之包覆現象，但實際上不同之高分子塑料流變性質差異極大及其流動特性相當複雜，故此特殊設計之效果及適用範圍不大。

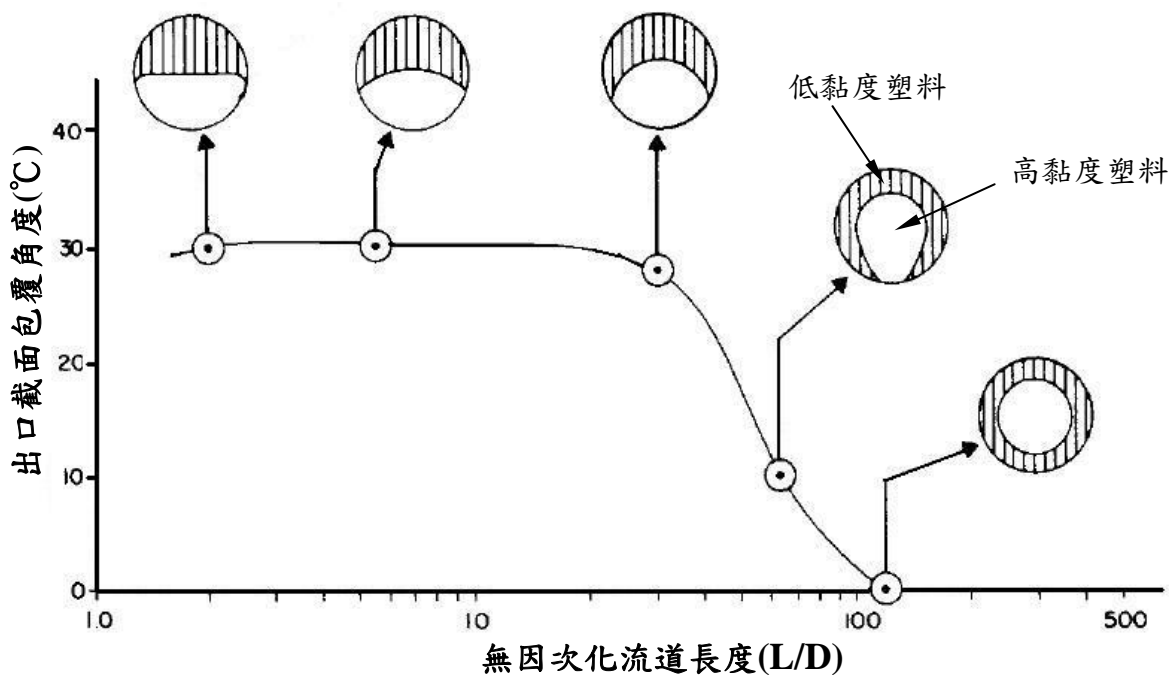


圖1-8 界面包覆發展示意圖[14]

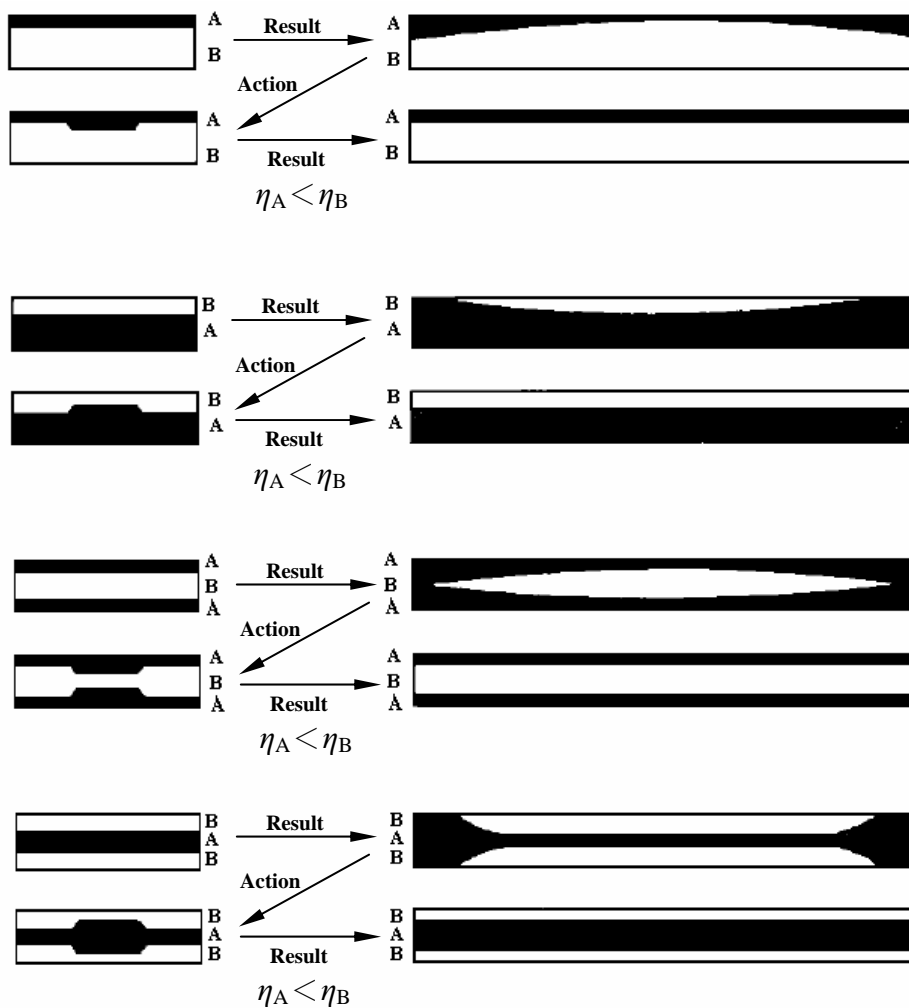


圖 1-9 進料區塊設計及其效益

1.3 文獻回顧

在過去已有許多研究人員從事於高分子兩相流之研究，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^[14-16]，以及會嚴重影響產品性質及價值之界面不穩定現象^[15, 17]，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。

1.3.1 界面不穩定文獻回顧

Chisholm與Schrenk^[2]首先於 1971 年獲得共押出進料區塊(feedblock)專利。Schrenk^[17]並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^[8]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，但在Schrenk^[8]之研究中使用冪次流體模型(power law fluid)無法觀察到此現象。在Han^[18]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^[6]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^[7]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之不規則(irregularity)現象。Tzoganakis

及Perdikoulis^[19]於 2000 年實驗研究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，隨後Zatloukal^[20-22]及Martyn^[23-25]等人於 2001-2004 年之研究中，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，如圖 1-10。

除上述主要之研究以外，另有其他許多關於黏度差^[26-28]、表面張力^[29]、臨界剪切應力^[8, 30]、流動模型之黏度參數^[31-33]以及彈性^[9, 34-41]等對於界面不穩定影響之研究。

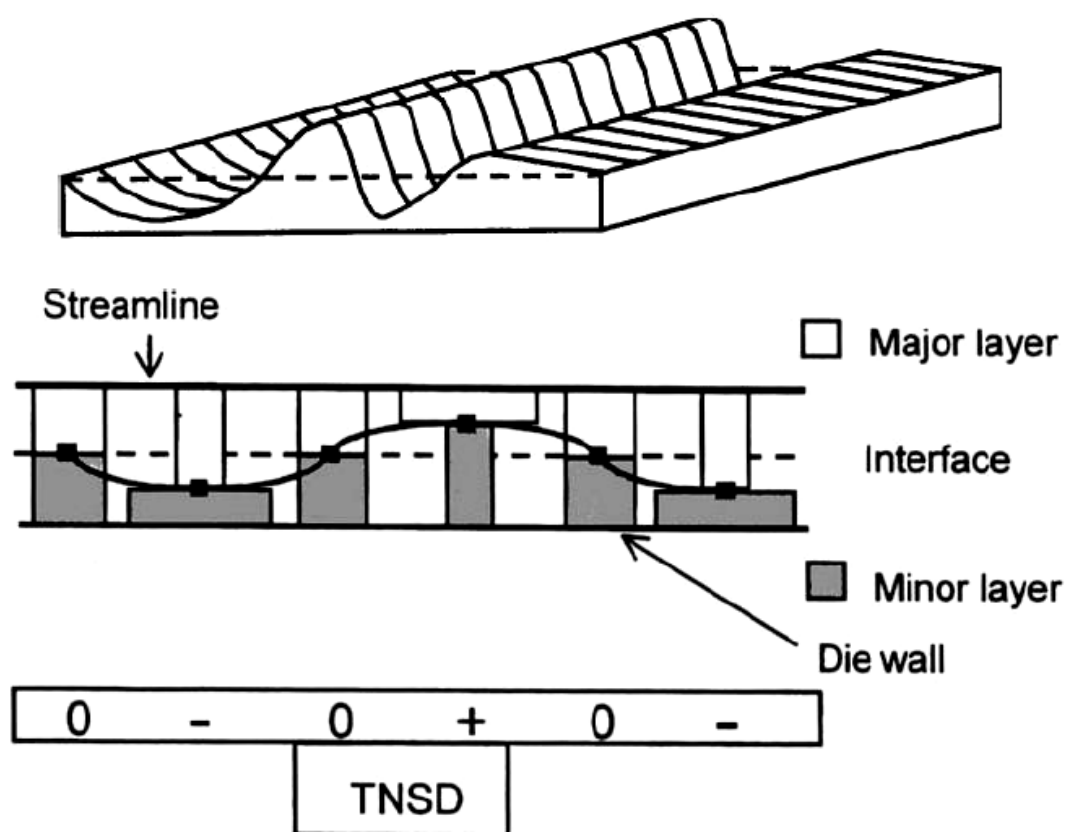


圖 1-10 界面不穩定時之TNSD變化^[20]

1.3.2 層間不均勻性文獻回顧

在許多實驗研究中^[14-16, 41-44]皆指出高分子塑料之黏度差異會使得低黏度流體趨向包覆高黏度流體。Everage^[14]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，如圖 1-11(B)，第二部份則為逐漸增加之包覆現象，如圖 1-11(C)，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_[45]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_[43]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_[44]及Khan_[46]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_[47]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。

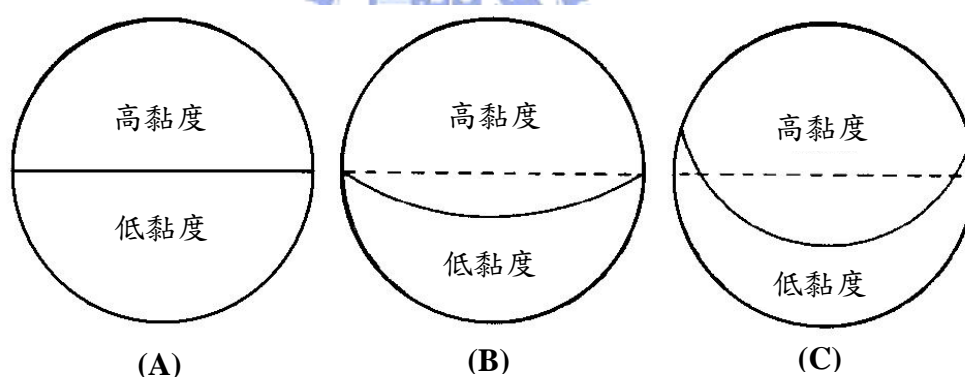


圖 1-11 界面包覆階段示意圖_[14](A)初始界面 (B)流體重整 (C)包覆增加

黏度對於界面不均勻性之影響已有較多之了解，近年來之研究則多著重於第二正向應力差。在Debbaut及Dooley_[10-13, 48, 49]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，如圖 1-12，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_[50]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_[51]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。

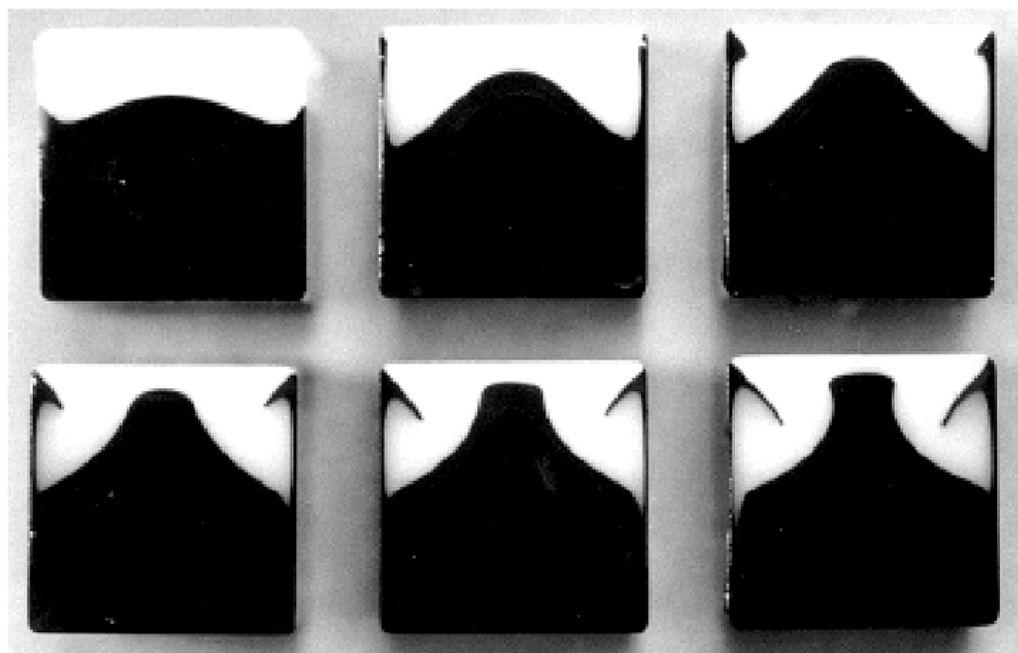


圖 1-12 高分子塑料於方形流道中之二次流動現象_[47]

1.4 研究動機與目的

熔融之高分子流體呈現黏彈性行為(viscoelastic behavior)，即為黏性流體與彈性固體的流動特性組合，此流動行為乃是非線性微分方程之問題，尤其共押出製程之多層流問題更是複雜。目前以數值分析方法來藉由電腦模擬計算，研究人員可輕易且快速的從數值模型所建立之數值模擬實驗，模擬出在許多不同物理模式與條件下所得的數據。Tanner_[52]就曾評論過有限元素法(finite element method, FEM)對高分子加工之應用為一相當適合之工具。

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_[53]、Mavridis_[54]、Binding_[55]、Dheur_[56]以及Karagiannis_[57]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^[57]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，而以牛頓流體或泛牛頓流體等流動模型無法滿足所要求之精確結果，且無法觀察到完整之包覆現象，故必須以黏彈模型(viscoelastic model)處理，將高分子之黏彈性質考量其中。

另外，流體界面於壁面接觸線(contact line)之邊界設定對於共押出模擬之準確度亦相當重要。過去之研究中，皆以不滑動邊界設定壁面之邊界狀態。Dheur^[56]提出在有限元素計算中使用不滑動邊界配合外插法(extrapolation method)以處理流體界面在壁面處之接觸線問題，其研究中使用線性外插法計算流體界面於壁面之接觸點(contact point)。在Karagiannis^[57]研究中則使用不滑動邊界設定配合二階外插法處理壁面接觸線問題。外插法是預測界面接觸線最簡單快速的方法，但無法正確預測出界面在模壁面處之變形及彎曲情形，亦忽略了模壁面對於流體界面之影響(wall effect)。Torres^[58]提出以滑動邊界設定處理接觸線問題之構想，但僅使用泛牛頓流體模型(generalized newtonian model)，忽略了重要之高分子黏彈性質。過去有關HDPE及LLDPE滑動邊界之影響已在Hatzikiriakos^[59-63]及Ramamurthy^[64]之研究中討論。Gifford^[65]則藉由改變壁面的光滑度探討平膜押出之流量均勻性以提昇押出膜的品質及減少邊緣裁切的浪費。

有鑑於上述之問題，本論文將使用 Giesekus 黏彈模型進行進料區塊內流動之三維有限元素模擬，並於模壁面使用滑動邊界設定，使得高分子之黏彈性質及壁面對流場之影響能考慮其中，亦將比較滑動邊界設定與外插法對於流體界面於壁面接觸線位置預測之差異，且藉由設定滑動邊界以討

論壁面光滑度對於不穩定現象之影響。另外，本論文將分析第二正向應力差對包覆現象之影響及觀察流體匯流處之拉伸變形對於界面不穩定之影響。



二、理論模式及研究方法

2.1 理論模式

本論文使用Polyflow[®]有限元素軟體分析雙層共押出高分子塑料於進料區塊(feedblock)中之流動，採用三維黏彈流動模型(3D viscoelastic model)模擬探討雙層流體中之界面包覆現象(encapsulation phenomena)、界面不穩定(interfacial instability)現象(波浪形(wave)及鋸齒形(zig-zag))及流變參數對上述現象之影響。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)之黏彈性流體。
2. 等溫(isothermal)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，包含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。對於各層黏彈流體(*I*：下層 *II*：上層)之流動行為使用連續方程式及運動方程式描述，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)：

$$\nabla \cdot \mathbf{v}_k = 0, \quad k = I, II \quad (2-1)$$

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， τ_k 為各層之應力張量(extra stress tensor)， p 為壓力。

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。本論文之本質方程式使用Giesekus黏彈模型，Giesekus黏彈模型包含了對於流體第二正向應力差(second normal stress difference)影響的描述，可有效預測高分子塑料黏彈性質造成之二次流動(secondary flow)，並有利於本論文對流體界面包覆現象之研究。Giesekus黏彈模型定義如下^[66]：

$$\tau = \tau_s + \tau_p \quad (2-3)$$

$$\tau_s = 2\eta_s D \quad (2-4)$$

$$\tau_p + \lambda_1 \overset{\nabla}{\tau}_p + \alpha \frac{\lambda_1}{\eta_p} \{ \tau_p \cdot \tau_p \} = 2\eta_p D \quad (2-5)$$

其中 λ_1 為鬆弛時間(relaxation time)， η_s 、 η_p 分別為溶劑及高分子之零剪切率黏度(zero-shear rate viscosity)， α 為無因次流動性因子(dimensionless mobility factor)， D 為變形率張量(rate of deformation tensor)。變形率張量之定義如下：

$$D = \frac{(\nabla v + \nabla v^T)}{2} \quad (2-6)$$

於應力張量上之倒三角形符號 ∇ 代表上隨動座標操作子(upper convected time derivative operator)，其定義如下：

$$\overset{\nabla}{\tau} = \frac{D\tau}{Dt} - \nabla v^T \cdot \tau - \tau \cdot \nabla v \quad (2-7)$$

其中 ∇v 為速度梯度， T 為矩陣之轉置(transpose)。隨動(或稱共旋)座標(convected coordinates)定義為此座標會隨著流體一起拉伸(co-stretching)、旋轉(co-rotation)及形變(co-deformation)，因此流體各點之座標值不會因流體拉伸、旋轉及形變而改變。

Giesekus 黏彈模型中，其第二正向應力係數(second normal stress coefficient)不為零，且相對於第一正向應力係數而改變。而 α 控制流體第二正向應力差或係數(second normal stress difference or coefficient)對第一正向應力差或係數(first normal stress difference or coefficient)之比。例如，在低剪切率時， $\alpha = -2N_2 / N_1 = -2\Psi_2 / \Psi_1$ ，故 α 可代表流體之第二正向應力差性質。

由(2-5)式可看出，當 $\alpha=0$ 時，該式變成 convected Jeffreys model，其第二正向應力差為零，所表現出之流體行為即如牛頓流體，不符合本論文所要探討之目標；當 $\alpha>0$ 時，流體彈性性質顯現，且第二正向應力差不為零，產生強烈之二次流動效應(strong secondary flow effects)，使得雙層高分子塑料界面產生不均勻並形成包覆現象。本論文將探討不同 α 參數對於界面包覆現象之影響。

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：

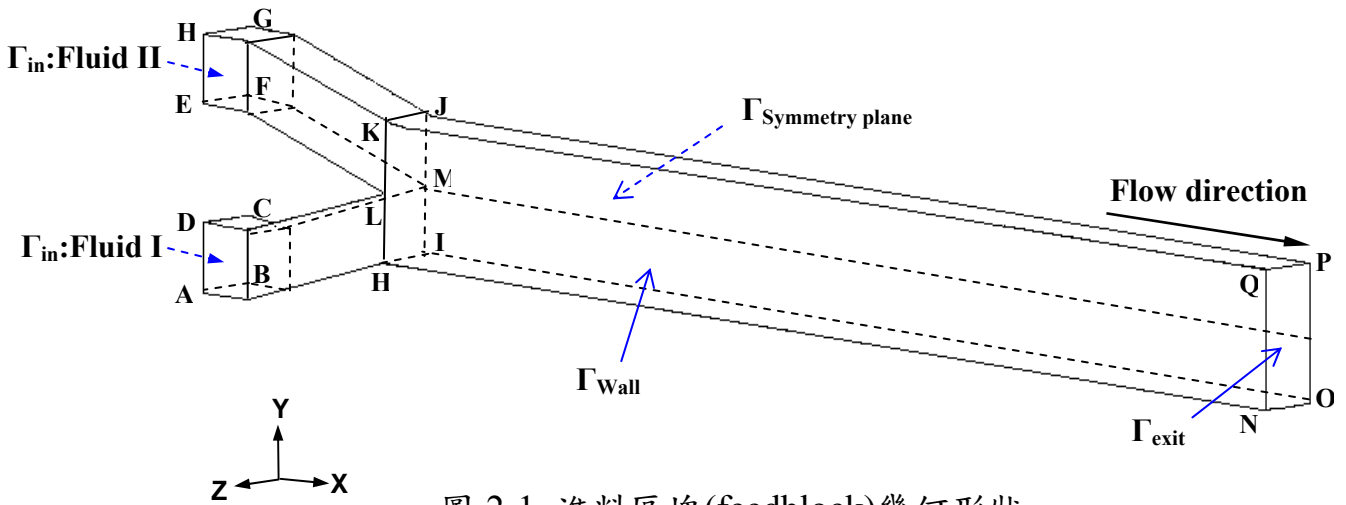


圖 2-1 進料區塊(feedblock)幾何形狀

- (1) Γ_{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) Γ_{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。
- (4) Γ_{Wall} (面AHLD、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 σ^I 及 σ^{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

在共押出模擬中，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，界面與壁

面接觸線(流體/流體/壁面邊界)無法移動，造成流體界面在壁面附近產生摺疊現象。

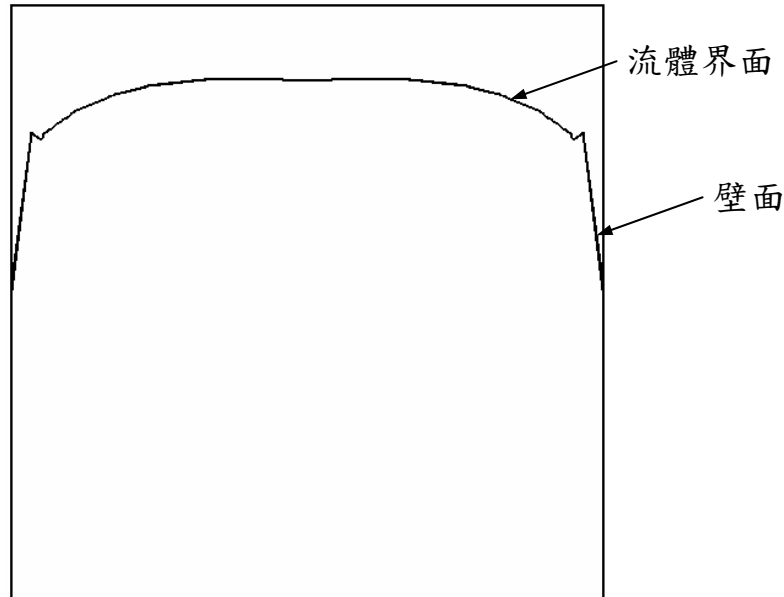
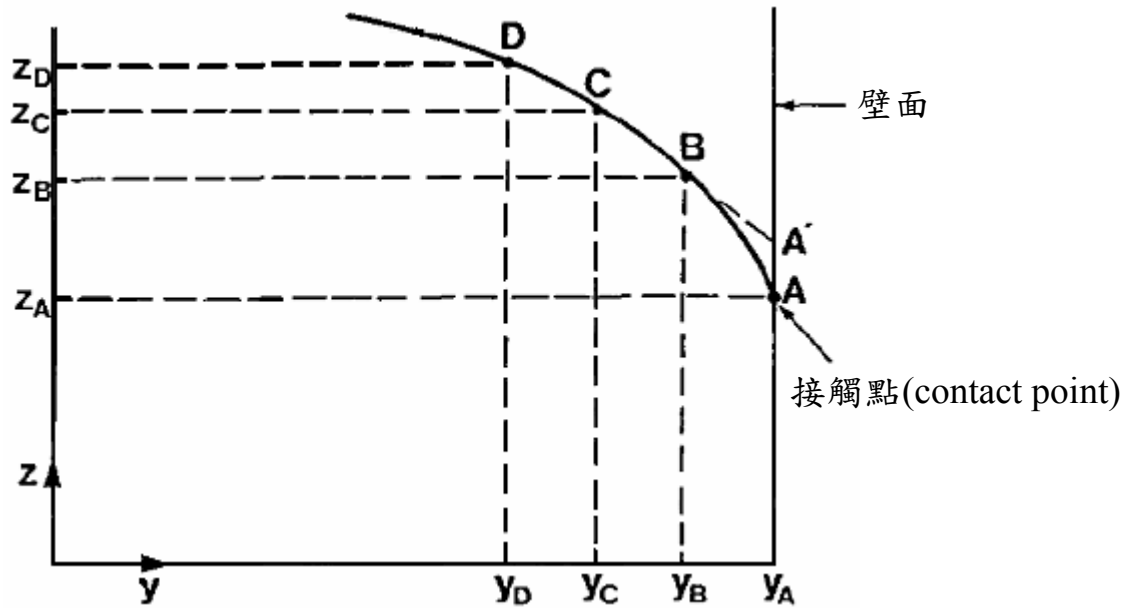


圖 2-2 使用不滑動(no-slip)壁面假設之流體界面

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。本論文將討論並比較外插法及滑動邊界之影響，以下簡介此兩種方法：

A. 外插法(Extrapolation method)

為避免上述壁面接觸線問題發生，Dheur_[56]、Karagiannis_[57]、Gifford_[47]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_[57]，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^[57]

本論文將以滑動邊界設定來比較外插法對於處理接觸線問題之優劣。

線性外插法如下：

$$z_c - z_A = (z_B - z_A)(y_c - y_A) / (y_B - y_A) \quad (2-8)$$

相對於以下之二階外插法，線性外插法僅用 B、C 兩點作外插求取流體界面在壁面之接觸點位置。而二階外插法如下：

$$z_A = ay_A^2 + by_A + c \quad (2-9)$$

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之接觸點 (contact point) 位置。

B. 滑動邊界(Slip boundary)

用外插法難以描述流體在壁面之流動行為，故需以滑動邊界設定壁面 (Γ_{wall})，使流體自由界面接觸線(contact line)可在壁面上移動，且壁面對流

動系統之影響(wall effect)不會被忽略。以下簡介本論文使用之滑動模型及其運動學狀態：

1. 滑動模型(Slip model)

滑動模型為描述流體在壁面滑動之關係式，本論文使用generalized Navier's law_[67]設定壁面(Γ_{wall})之滑動邊界，其表示式如下：

$$f_t = F_{slip} (v_{wall} - v_t) |v_t - v_{wall}|^{\epsilon_{slip} - 1} \quad (2-10)$$

其中 f_t 為高分子塑料接觸壁面產生之摩擦力； F_{slip} 及 ϵ_{slip} 為滑動參數(slip parameter)；當 $F_{slip}=0$ 時，流體在壁面產生完全滑動(full slip)，亦即無壁面摩擦力；當 $F_{slip} \rightarrow \infty$ 時，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，(2-10)式為線性式， $0 < \epsilon_{slip} < 1$ 時，(2-10)式為冪次模型(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)。

2. 線運動學狀態(Line kinematic condition)_[68]

本論文使用線運動學狀態計算雙層高分子塑料間之自由界面位置，線運動學狀態將自由界面上之網格(mesh)分割成數個線段，每一條線段皆平行於速度向量，可有效表現出接觸線之移動，如圖 2-4 所示。

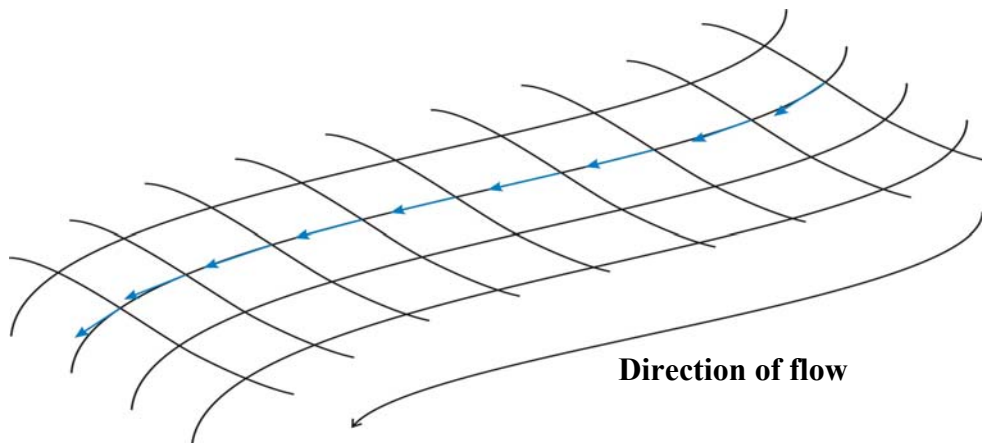


圖 2-4 線運動學狀態(line kinematic condition)示意圖

線運動學狀態(line kinematic condition)以接觸力(contact force)取代速度來計算運動學狀態，流體在壁面之切線速度即與切線力之方向相同，如圖 2-5^[69]。若假設壁面為不滑動邊界，則以線運動學狀態分割成之線段則無法移動並且無法平行於壁面切線力之方向，故此運動學狀態需配合滑動邊界條件才有意義。

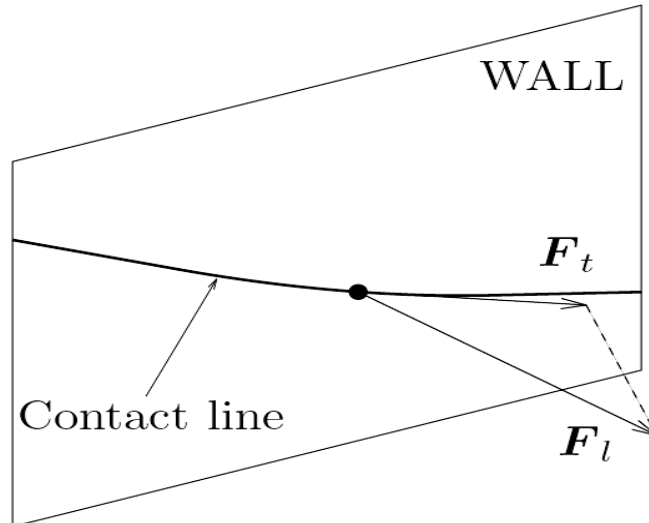


圖 2-5 接觸線平行接觸力(contact force)之切線分量 F_t ^[68]

2.1.4 黏彈流體之無因次參數(Dimensionless numbers)

無因次參數常用來描述流體力學問題之特性，如雷諾數(Reynolds number)定義為慣性力對黏性力之比，是判斷流體流動型態之指標。流體的黏彈性質則可用 We (Weissenberg number)數來描述， We 數為流體鬆弛時間對特定程序時間(specific process time)之比， We 數定義如下：

$$We = \lambda \langle v \rangle / H \quad (2-11)$$

其中 λ 為鬆弛時間(relaxation time)， $\langle v \rangle$ 為平均速度， H 為特徵長度(characteristic length)，即為進料區塊匯流處前各自流道之高度。

We 數描述由形變造成之非等向性程度及順向性。當流體系統為低 We 數時，泛牛頓模型(generalized Newtonian model)即足夠描述流體之流動特

性；若為高 We 數時，則需要黏彈模型(viscoelastic model)來描述流體之彈性效應(elastic effect)。同時，高 We 數也表示系統為高度非線性，在數值解上需耗費較多資源及時間。

2.1.5 界面不穩定(Interfacial instability)分析

界面不穩定現象為共押出製程中各層高分子塑料界面呈現之不規則現象，會影響產品透明度與外觀，常見之界面不穩定現象包括波浪形(wave)及鋸齒形(zig-zag)。為分析界面不穩定現象，須先知道不穩定現象發生之位置及原因，在過去之研究文獻中，可歸納出以下兩種可能發生界面不穩定現象之位置：

A. 雙層流體匯流處(Merging area)

進料區塊匯流處引發之不穩定現象為波浪形不穩定。高分子塑料出押出機後分別經由不同流道進入進料區塊(feedblock)，而高分子塑料在各自流道壁面之剪切應力極大，造成流體產生極大之拉伸，而後進入截面積較大之矩形流道，雙層高分子塑料因應力釋放會試圖恢復原狀而產生膨脹，若此恢復力道過大，界面即產生不穩定^[19]。

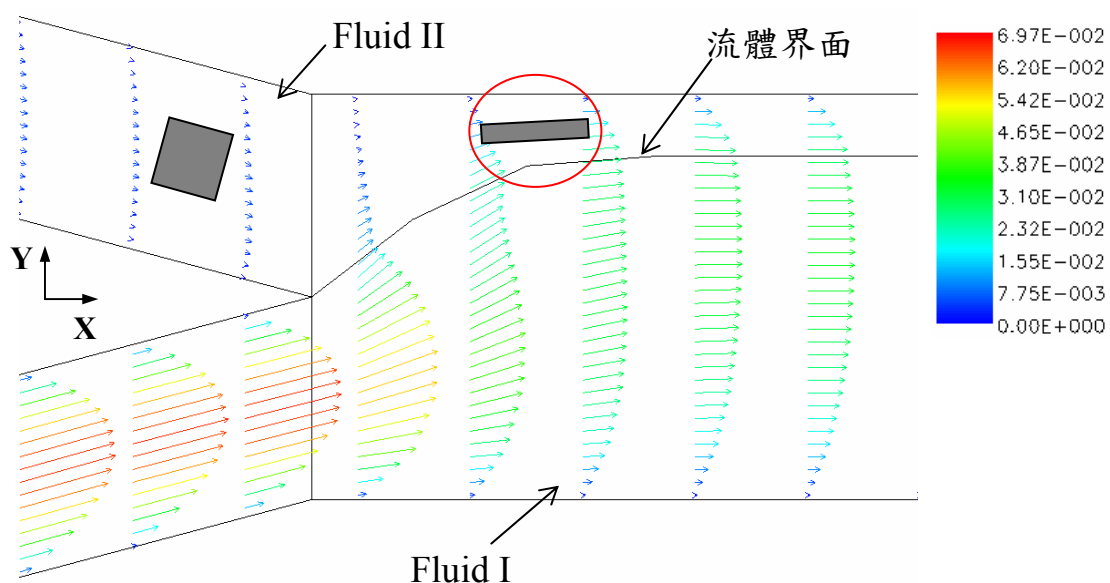


圖 2-6 進料組合區塊匯流處示意圖(流速比 $Q_I : Q_{II} = 13.2 : 1$)

如圖 2-6，在此匯流處雙層高分子塑料因膨脹而互相擠壓使塑料產生拉伸變形，流體速度也因塑料之互相推擠產生加速或減速情況，界面位置也隨著產生劇烈變化，之後則回復為平穩之界面。在雙層高分子塑料匯流之後進入矩形流道，因塑料之彈性(elasticity)性質及記憶效應，塑料會因應力釋放而產生正向應力，而因上下雙層塑料所產生之正向應力不相同，導致界面產生了如波浪形(wavelike)之不穩定現象。

本論文使用第一正向應力差(first normal stress difference)之差值 DN_1 來探討並比較雙層高分子塑料之第一正向應力差 N_1 對於波浪形不穩定現象之影響， DN_1 定義如下：

$$DN_1 = (N_1)_{Fluid II} - (N_1)_{Fluid I} \quad (2-12)$$

其中 N_1 為流體之第一正向應力差。本論文將比較通過匯流處時上下層高分子塑料流體之 DN_1 ，探討其對界面不穩定現象之影響。

B. 阻流區(Die land)

在模具出口前之阻流區(die land)，通常是壁面會產生最高剪切率及剪切應力之處，過去之研究如鯊魚皮現象(sharkskin phenomena)即是因此原因發生。界面自初形成至離開模具之過程中，剪切應力在阻流區達到最大，易使界面發生鋸齒形不穩定。改善對策則以降低阻流區之界面剪切應力為目標，而在文獻中對於發生鋸齒形不穩定現象之界面剪切應力臨界值有相當之研究。本論文則將針對流量比及壁面光滑度如何降低界面剪切應力作一探討。

2.1.6 包覆現象(Encapsulation phenomena)分析

雙層高分子塑料出押出機後分別經由不同流道進入進料區塊，在匯流處產生流體自由界面，因雙層高分子塑料之流變性質或流動狀態不同而產

生包覆現象，影響界面之均勻性。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。

Everage_[14]之研究中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。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(如 2.1.5 節)，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 2-7。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 2-8。在White及Debbaut_[13, 45]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。

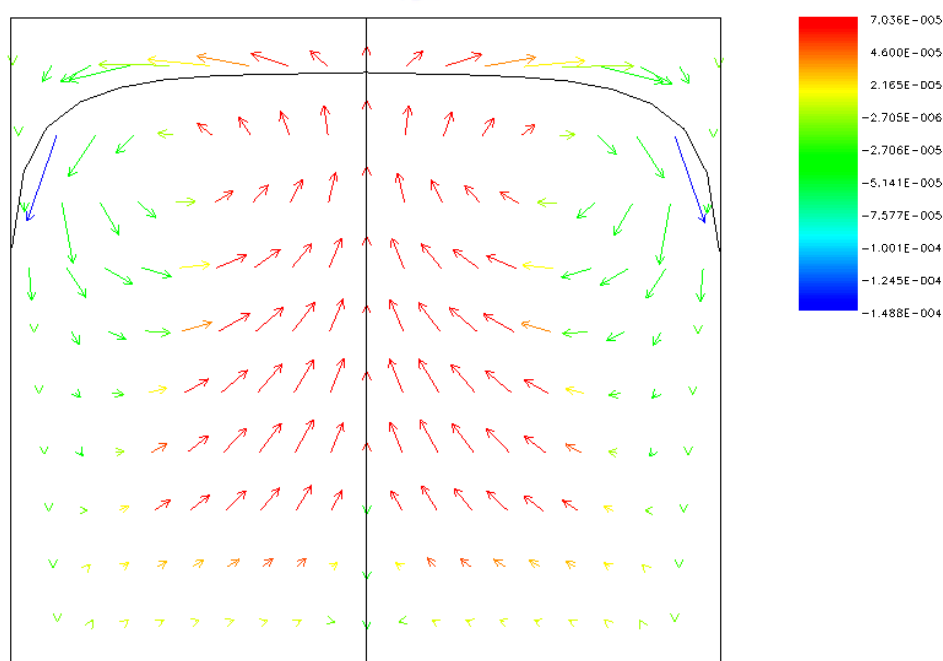


圖 2-7 黏彈流體二次流動(secondary flow)現象

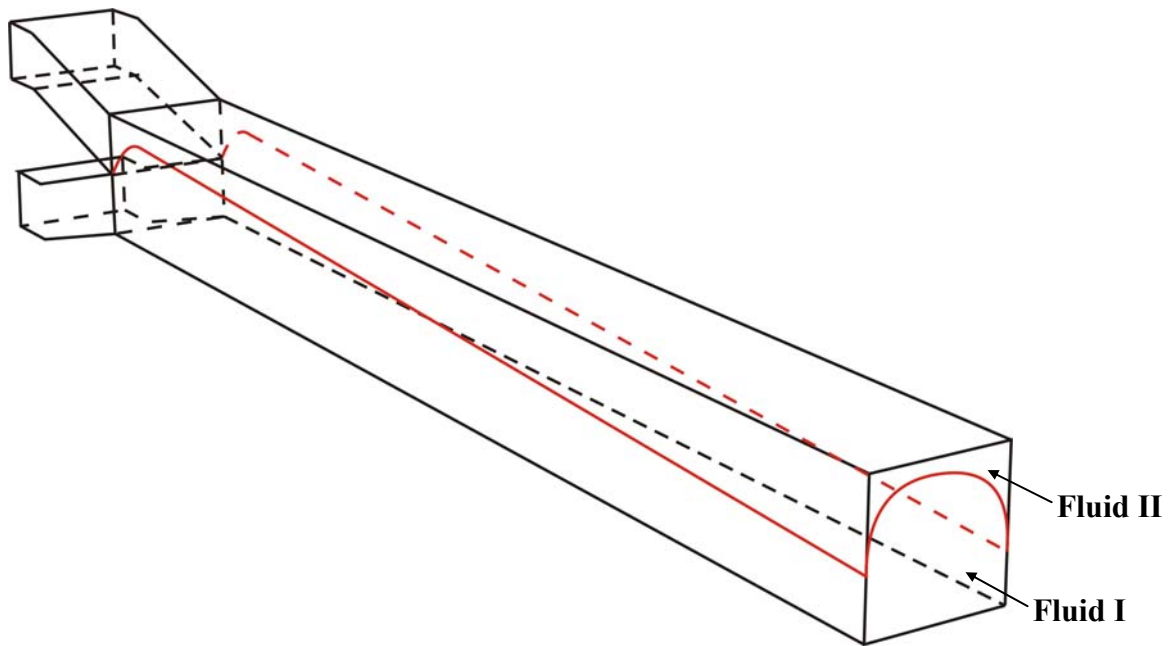


圖 2-8 雙層流體包覆現象示意圖

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。本論文使用 Giesekus 黏彈模型模擬共押出進料區塊之流動，Giesekus 黏彈模型包含對流體彈性性質之描述，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。

為了有效並定量地觀察流體之包覆程度，本論文使用包覆度(degree of encapsulation, DE)分析包覆現象，包覆度定義如下：

$$DE = \frac{|y_w - y_c|}{L} \times 100\% \quad (2-13)$$

其中 y_w 為流體界面在壁面之高度，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，即為進料區塊之矩

形流道高度，如圖 2-9。

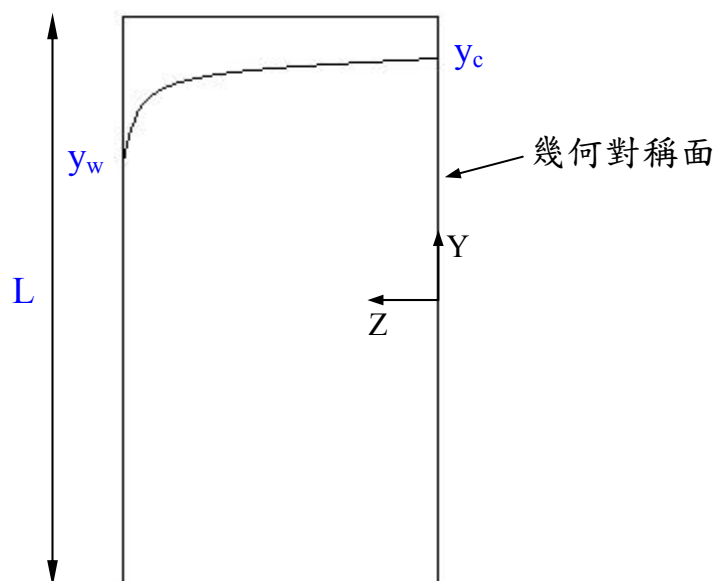


圖 2-9 包覆度(degree of encapsulation)定義

2.2 研究方法

本論文使用 Polyflow[®] 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[®] 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 2-10。

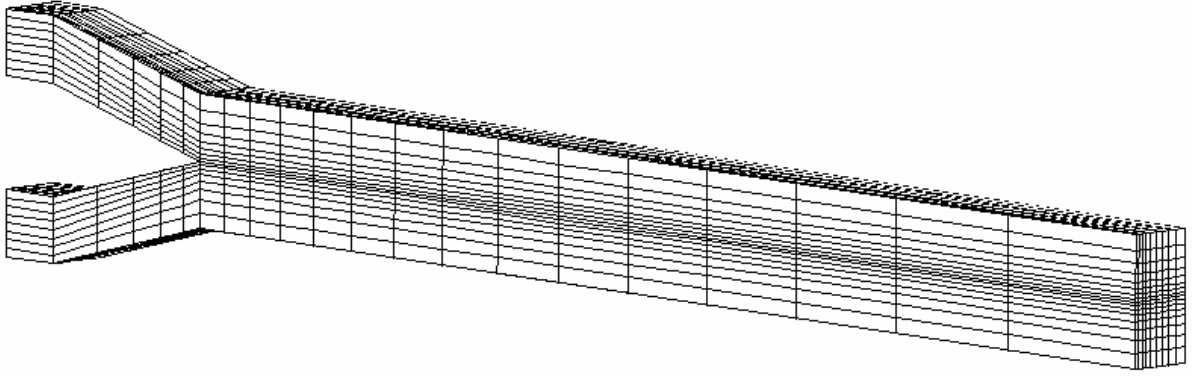


圖 2-10 進料區塊網格示意圖

2.2.2 葛拉金有限元素法(Galerkin finite element method)

連續方程式及運動方程式配合邊界狀態設定，可由 Galerkin 有限元素法求解。(2-1)及(2-2)式經由 Galerkin 有限元素法離散後得到下式，

$$\int_V (\nabla \cdot \mathbf{v}_k) N_p^i = 0, \quad k = I, II \quad (2-14)$$

$$\int_V (-\nabla p + \nabla \cdot \boldsymbol{\tau}_k) N^i = 0, \quad k = I, II \quad (2-15)$$

其中 N^i, N_p^i 為定義在節點上之二次及線性內插函數(quadratic and linear interpolation function)，而節點上之速度、壓力、應力近似值可表示如下：

$$\mathbf{v}_k = \sum_i N^i \mathbf{v}_k^i \quad (2-16)$$

$$p = \sum_i N_p^i p^i \quad (2-17)$$

$$\boldsymbol{\tau} = \sum_i N^i \boldsymbol{\tau}^i \quad (2-18)$$

其中 $\mathbf{v}_k^i, p^i, \boldsymbol{\tau}^i$ 為網格節點上之速度、壓力、應力值。

由於黏彈模型之本質方程式為高度非線性方程式及因流體自由界面迭代之影響，計算極易產生發散。為了增加數值計算之穩定，本論文使用

EVSS(elastic viscous stress splitting)方法將應力張量分為彈性項及黏性項，在有限元素法中，相較於傳統的 MIX 離散法，EVSS 提供較穩定及正確之解，EVSS 定義如下所示：

$$\tau = S + 2\eta D \quad (2-19)$$

其中 S 為修正應力張量(modified extra stress tensor)， D 為變形率張量(rate of deformation tensor)。

2.2.3 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Newton-Raphson迭代法來求解非線性系統。相對於Picard迭代法，Newton-Raphson迭代法只需較少迭代次數即可達到收斂值。因此，相較於退耦法(uncouple method)使用耦合法需耗費較多的電腦資源，但配合使用Newton-Raphson法可得到較快的收斂速率(二階收斂速率)及較少的迭代次數。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)設定在 10^{-4} 。

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 Newton-Raphson 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 2-11 所示。

2.3 計算流程

由於本論文使用之本質方程式為具高度非線性之黏彈模型，必須使用迭代計算以防止解之發散，包括進程方法(evolution method)及 Newton-Raphson 迭代法，計算流程如圖 2-11 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(governing equation)。
- (d) 以 Newton-Raphson 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 λ ，回(b)步驟重新計算流程。
- (f) 檢視鬆弛時間 λ_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 λ_k 回(b)步驟重新計算流程。

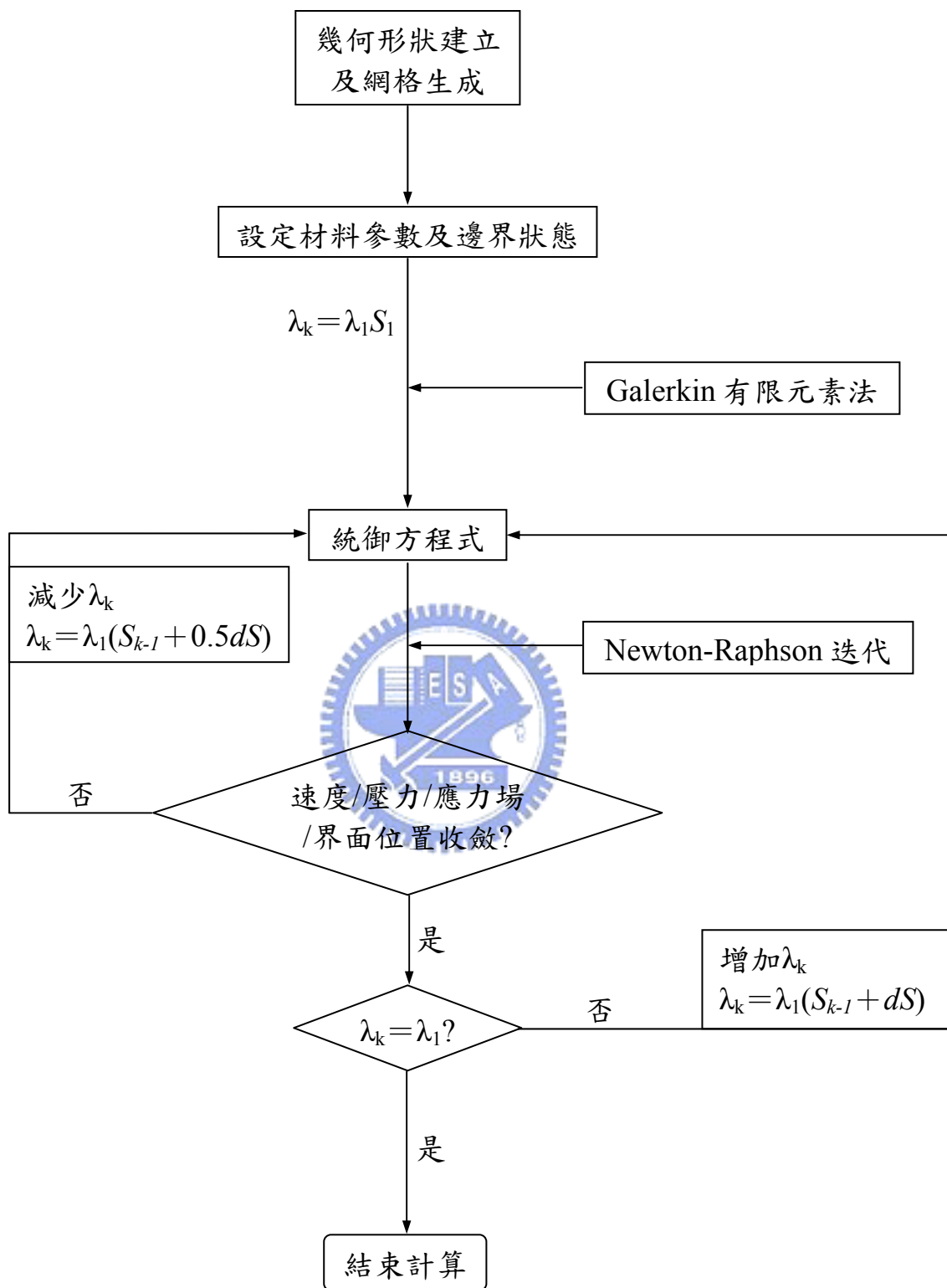


圖 2-11 計算流程圖

三、結果與討論

為使模擬結果符合實際高分子塑料之黏彈流動行為，本論文採用 Giesekus 黏彈模型(Giesekus viscoelastic model)進行進料區塊(feedblock)中雙層共押出高分子塑料之三維有限元素流動模擬分析。此黏彈模型可有效預測高分子塑料黏彈性質造成之二次流動(secondary flow)現象，因此採用此黏彈模型有利於本論文對流體界面包覆現象之研究。

3.1 操作條件

本論文採用Karagiannis^[57]文獻中之進料區塊以做模擬驗證及比較，圖 3-1 為此進料區塊之幾何形狀網格圖，由於系統為對稱流場，故僅取半邊幾何形狀進行分析。本論文使用之下層高分子塑料為 polystyrene(Dow Styron 678E, Fluid I)，而上層高分子塑料為 polystyrene(Dow Styron 472, Fluid II)，圖 3-2 為其黏度(viscosity)對剪切率(shear rate)於 220°C 量測之關係圖^[57]。表 3-3 為其 Giesekus 黏彈模型之流變參數值^[70]。

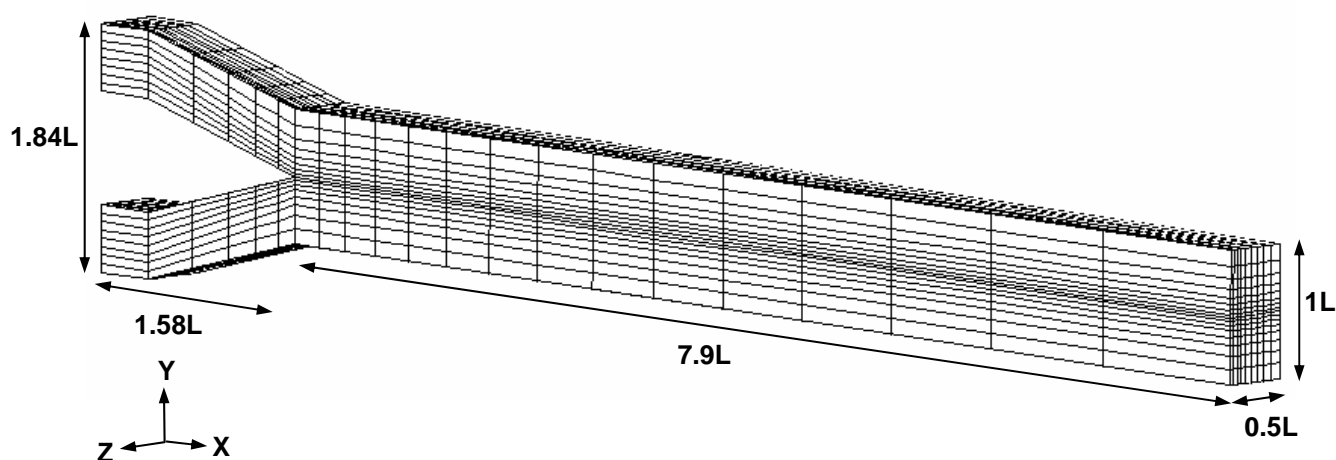


圖 3-1 進料區塊幾何形狀網格圖

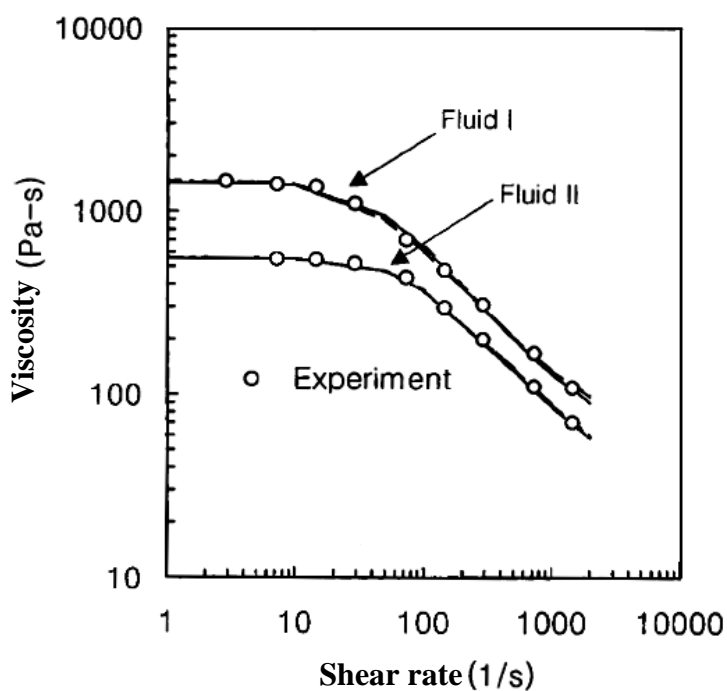


圖 3-2 Polystyrene之黏度-剪切率關係圖(220°C)^[56]



表 3-1 Giesekus模型流變參數^[69]

	下層 (Fluid I)	上層 (Fluid II)
α	0.4	0.1
$\eta_s(\text{Pa-s})$	48.4	22.0
$\eta_p(\text{Pa-s})$	1383.1	536.0
$\lambda_1(\text{s})$	0.020	0.019

Giesekus Model :

$$\tau = \tau_s + \tau_p, \quad \tau_s = 2\eta_s D$$

$$\tau_p + \lambda_1 \overset{\nabla}{\tau}_p + \alpha \frac{\lambda_1}{\eta_p} \{ \tau_p \cdot \tau_p \} = 2\eta_p D$$

3.2 網格研究

網格於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。緊密之網格雖可得到精準數值解，但卻會使得三維黏彈分析問題更加大型及複雜及增加計算困難度，而過度加密之網格不但不會增加精確度，反而使誤差增大。為了最佳化系統之收斂性及計算時間，本論文採取不同網格做一比較，並採取此節結論做後續之研究分析依據。本節中採取以下兩個網格切割方向作為探討：

(1) 加密壁面附近(Z軸方向)網格(Z軸網格數固定)

壁面為流體界面接觸線位置，因此處之剪切應力值極大及流體界面接觸線移動變化大，故此處網格密度應較高。此一小節以改變靠近模壁面附近網格疏密程度進行探討，如圖 3-3。表 3-2 為模擬結果，可看出若靠近模壁面之網格過於緊密，其計算收斂性極差，而網格 3b與網格 3c則差異不大。如圖 3-3a，因靠近模壁面之速度值趨近於零，因此模壁面附近之網格節點速度值亦會趨近於零，若靠近模壁面之網格過於緊密，會造成數值計算之收斂困難，此部份之結果證實Karagiannis_[57]所提出之觀點。另外亦可觀察到若靠近對稱面之網格過大，流體界面會向下凹陷，其界面位置座標計算值與實際狀況不符，相對而言網格 3b及網格 3c則無此問題。

表 3-2 壁面網格加密之分析比較

	Mesh 3a	Mesh 3b	Mesh 3c
Convergence	No	Yes	Yes
CPU time (sec)	×	51713	52524
Outlet Encapsulation (%)	×	31.3	31.3

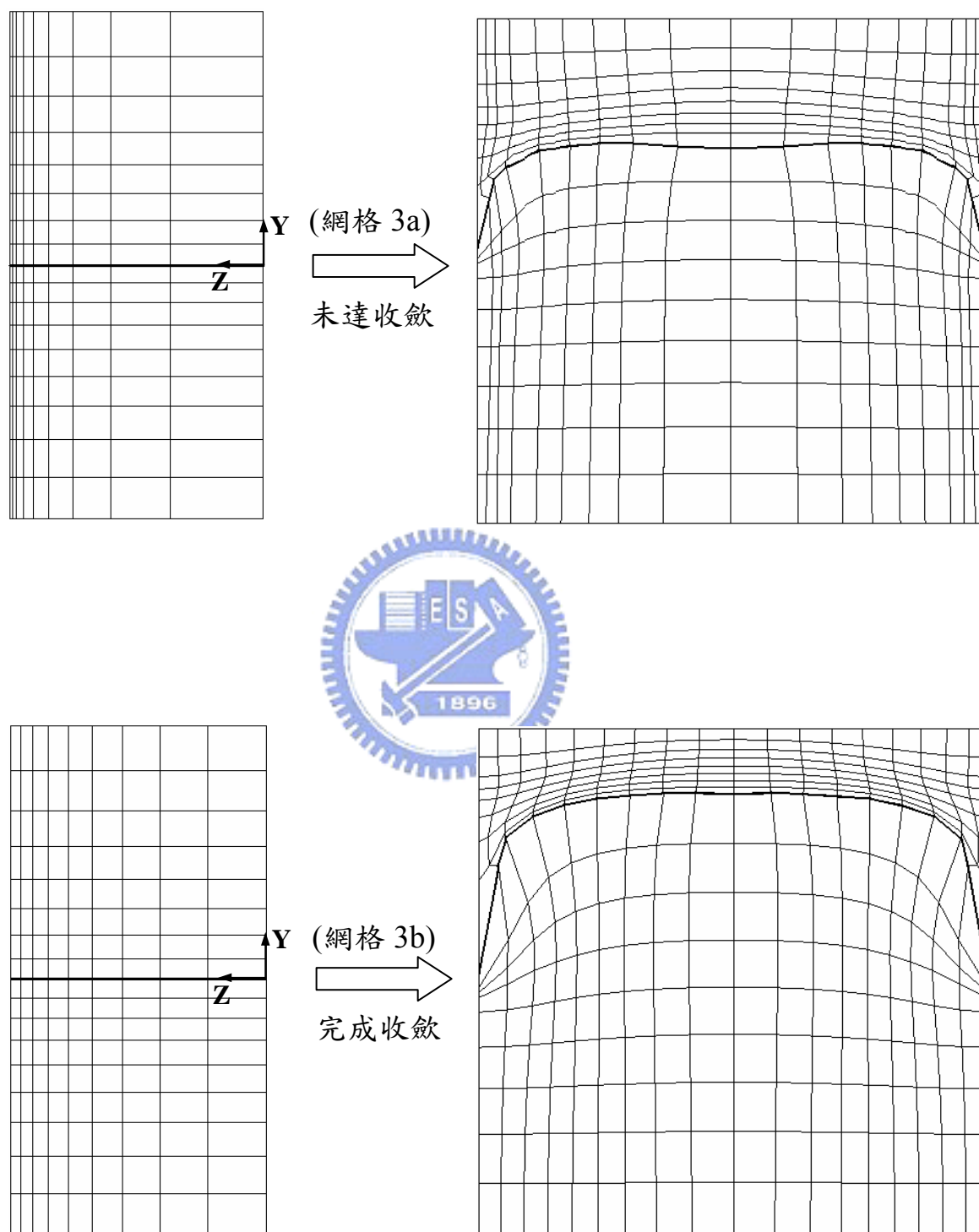


圖 3-3 模壁面網格加密分析圖

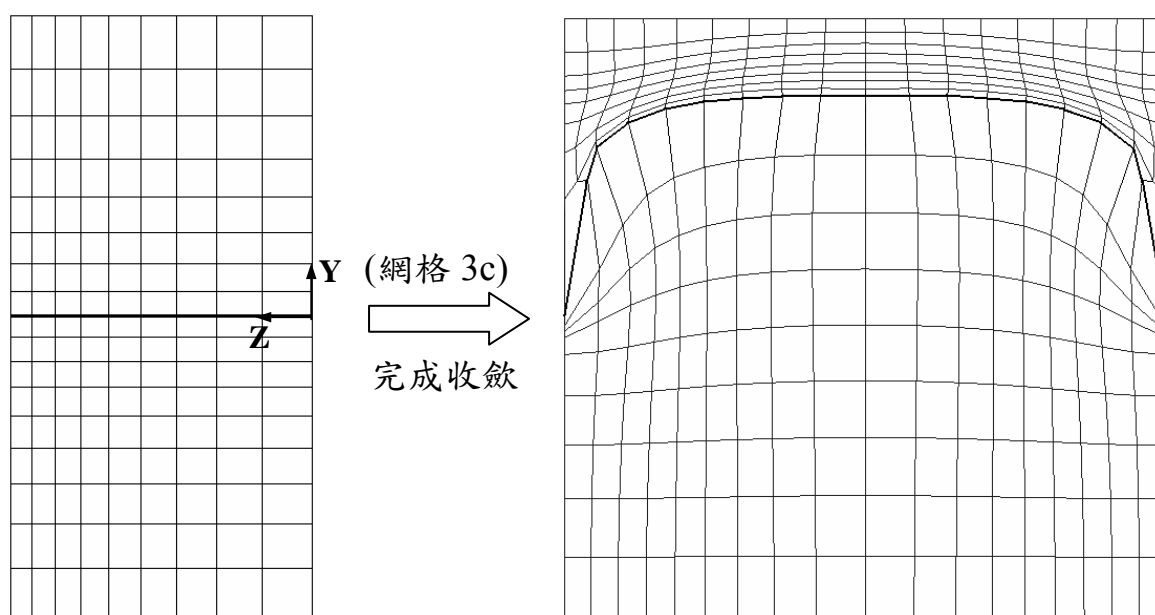


圖 3-3 模壁面網格加密分析圖

(2) 加密界面附近(Y 軸方向)網格(Y 軸網格數固定)

相對於(1)小節，此一節以改變流體界面附近網格之疏密程度進行探討，如圖 3-4。表 3-3 為模擬結果，可看出過度加密界面附近網格，會使得計算時間增加，且其出口截面之包覆度亦相對減少，而網格 4b 與網格 4c 之出口截面包覆度則相差不大，計算所需時間亦較短。因此，可看出網格 4a 之誤差相對較大，且模擬計算時間較不理想。

表 3-3 界面網格加密之分析比較

	Mesh 4a	Mesh 4b	Mesh 4c (同 3c)
Convergence	Yes	Yes	Yes
CPU time (sec)	63215	52413	52524
Outlet Encapsulation (%)	30.5	31.5	31.3

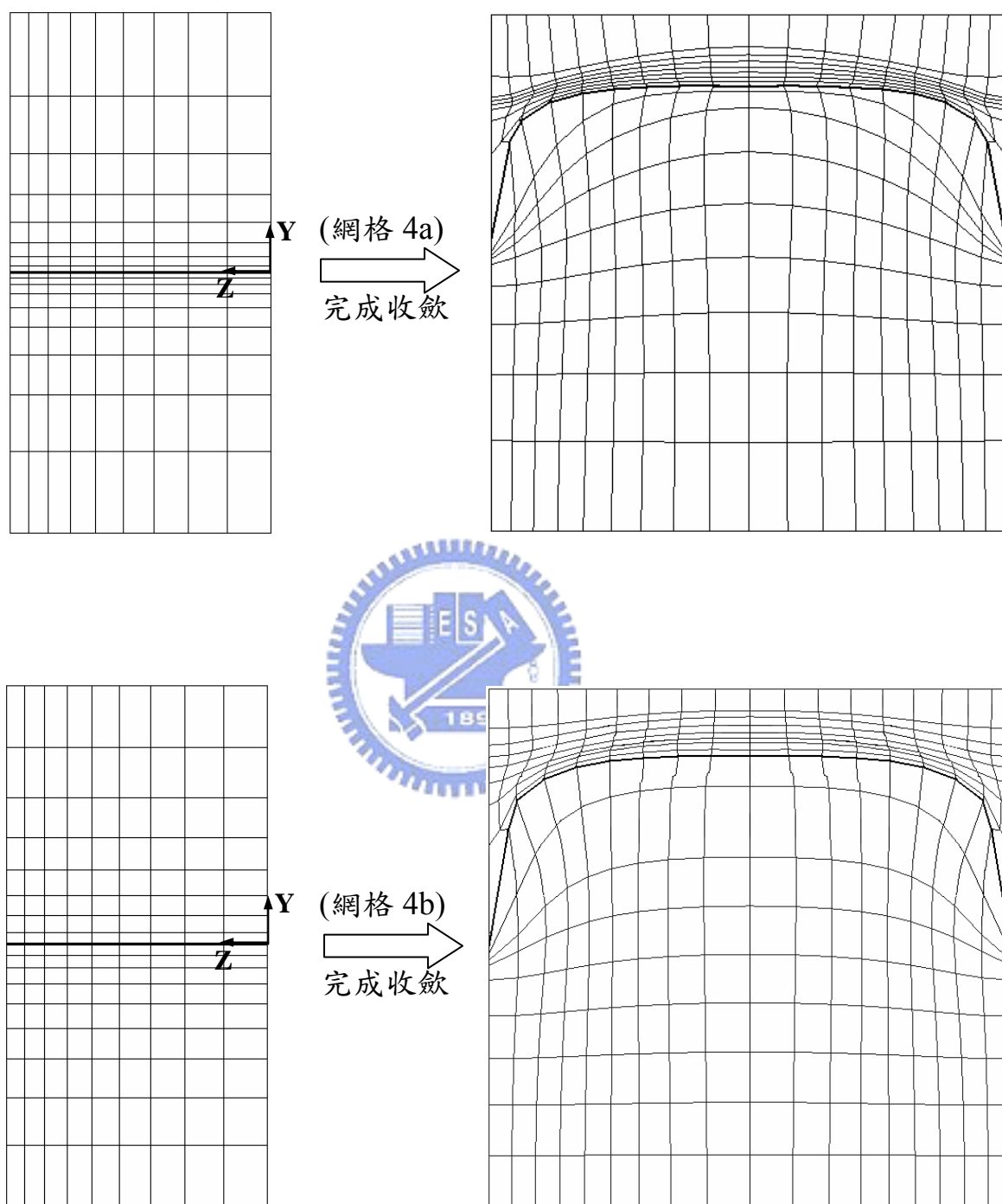


圖 3-4 流體界面附近網格加密分析圖

此節研究針對網格於各方向之疏密程度進行探討，藉由觀察界面包覆結果及有限元素計算時間以取決網格之優劣。經由表 3-2 及 3-3 之模擬結果，可得知靠近壁面或流體界面之網格過於緊密相當不利於有限元素之計算，其計算精確度亦不甚正確。為得到較好計算效率及正確模擬結果，本論文以此節所得到之結論作為後續研究之進料區塊(feedblock)網格分割依據。

3.3 模擬結果驗證與比較

此節將以文獻中之實驗及模擬結果與本論文研究做比較，並比較不同壁面邊界設定下對於模擬結果之影響，以了解壁面邊界之設定對於共押出製程流體自由界面之影響。亦將以文獻中使用之外插法與本論文所用之滑動邊界設定做比較及分析兩種不同壁面滑動模式模擬結果之差異。

3.3.1 模擬結果比較

文獻中之實驗於嚴密監控之等溫條件(220°C)下操作，於塑料達到穩態固化後取出，因此避免了出模口膨脹(die swell)造成界面位置變化之因素。

本文針對界面彎曲包覆情況與實驗結果比較，使用之幾何形狀及塑料流變參數如圖 3-1 至圖 3-3 所示。圖 3-5 為文獻中與本論文之流體界面比較圖，可看出在 6.71L 處之流體界面，實驗結果呈現之界面包覆明顯地比模擬結果更大，亦發現本論文在 6.71L 處之流體界面形狀與實驗之 3.37L 處之流體界面相符合，推斷可能是文獻中之操作條件資料(如流量比、流變量測數據)不甚完整，且或許應使用多重模式之 Giesekus 黏彈模型(multi-mode Giesekus viscoelastic model)進行模擬，使流體之黏彈流動特性能更精確的模擬計算。出口界面之邊界設定亦可能是誤差原因之一，本論文採取全展流(fully-developed)做為出口界面之邊界設定，但實際上之出口界面則是未知的狀態，此為有限元素數值計算方法之缺陷。

表 3-4 列出本論文與其他模擬文獻之界面包覆度比較，可看出相較於文獻中使用外插法求取壁面接觸線之模擬結果，本論文採用滑動邊界設定可得到較接近實驗值之模擬結果。

表 3-4 模擬結果與文獻比較

	Experiment _[57]	Numerical Karagiannis _[57]	Takase _[51]
Outlet Encapsulation (%)	53.6	38.5	8.5

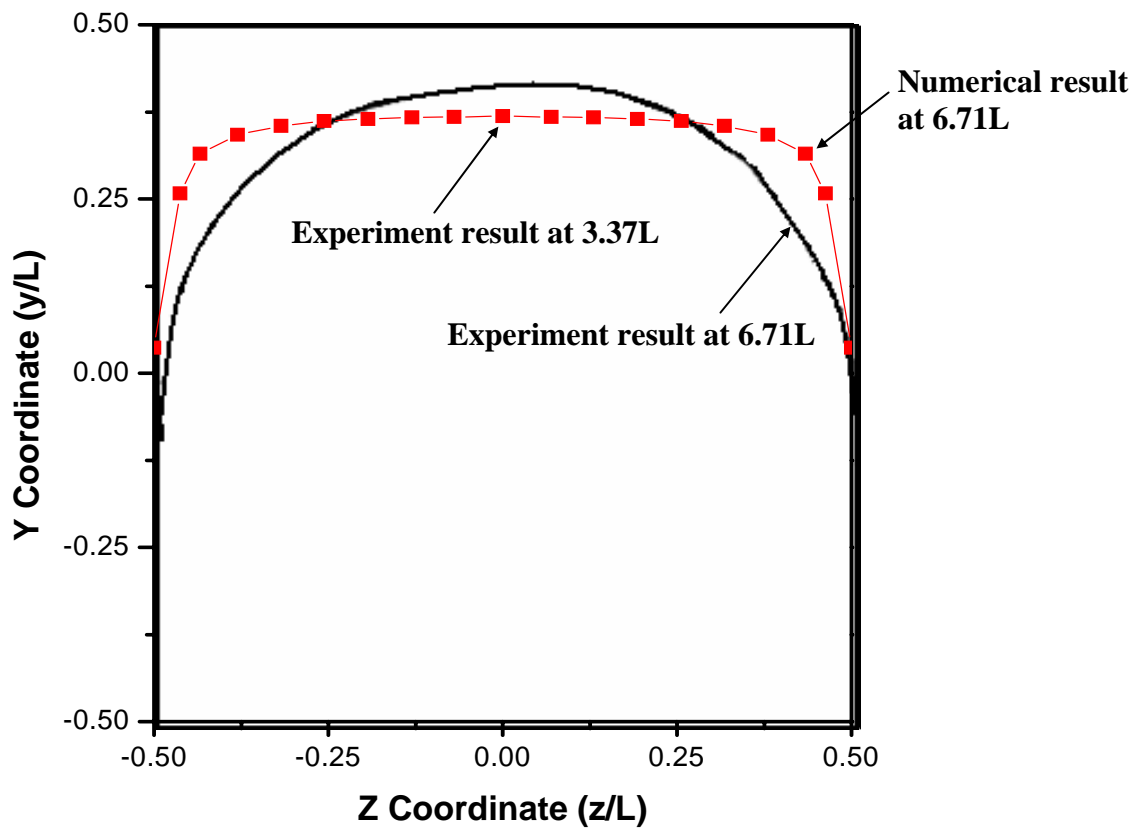


圖 3-5 流體界面形狀比較圖

3.3.2 不同壁面邊界設定之比較

藉由研究兩不互融之黏彈高分子流體在進料區塊中之流體界面扭曲變形狀況，可了解共押出系統界面不均勻性發生之原因，並針對其原因加以改進此共押出製程問題。在共押出製程模擬中，流體界面於壁面接觸線 (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，以期能正確預測界面變形及彎曲情形，而滑動係數值亦成為影響壁面接觸線移動之重要因素。此節亦將文獻中所使用之外插法與本論文使用之滑動邊界設定對於接觸線位置預測之影響與差異做一比較。

1. 外插法(Extrapolation method)

過去文獻中於壁面邊界使用不滑動(no-slip)邊界設定，界面於壁面之接觸線(contact line)無法移動，然而在實際共押出製程中存在不同程度的滑動，因此過去文獻中使用外插法求得流體界面於壁面之接觸點，圖 3-6 為使用不滑動邊界得到之進料區塊(feedblock)出口界面位置，可看到因不滑動邊界影響造成之界面摺疊現象。本小節使用外插法預測流體自由界面之壁面接觸點(contact point)位置，使用之線性外插法如下：

$$y_c - y_A = (y_B - y_A)(z_c - z_A) / (z_B - z_A) \quad (3-1)$$

在數學觀點上，使用較高階之外插法應能得到較準確之壁面接觸點(contact point)位置，故本論文亦使用二階外插法與線性外插法比較，二階外插法如下：

$$y_A = az_A^2 + bz_A + c \quad (3-2)$$

圖 3-7 為不同外插法之出口界面位置比較圖，其中 A'及 A"分別為線性外插法及二階外插法得到之接觸點位置，可看出線性外插法與二階外插法所得之結果差異不大，出口界面包覆度差異僅有 1%左右，如表 3-5 所示。

表 3-5 不同外插法壁面設定比較

Numerical Results ($Q_I/Q_{II} = 13.2$, $\eta_I/\eta_{II} = 2.5$)	Extrapolation Methods	
	Linear Extrapolation	2-order Extrapolation
Outlet Encapsulation (%)	9.84	11.02

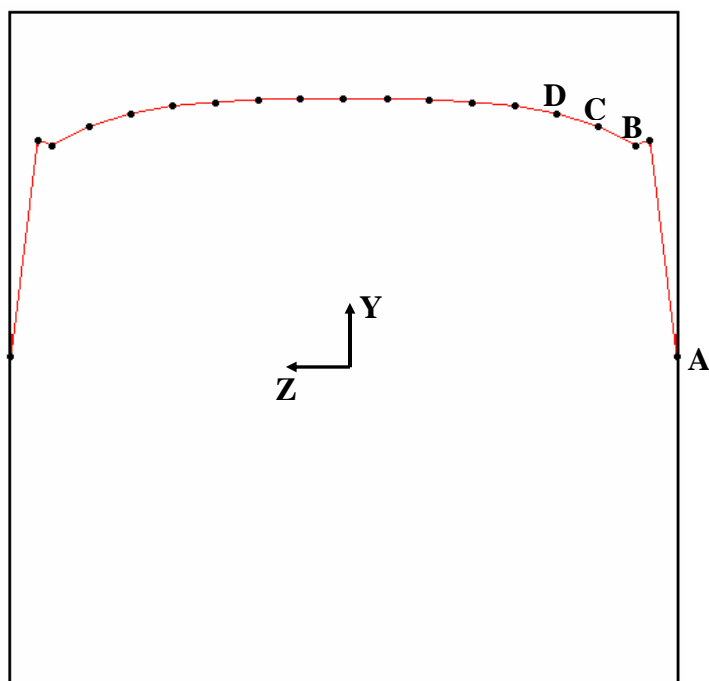


圖 3-6 不滑動邊界之進料區塊出口界面位置

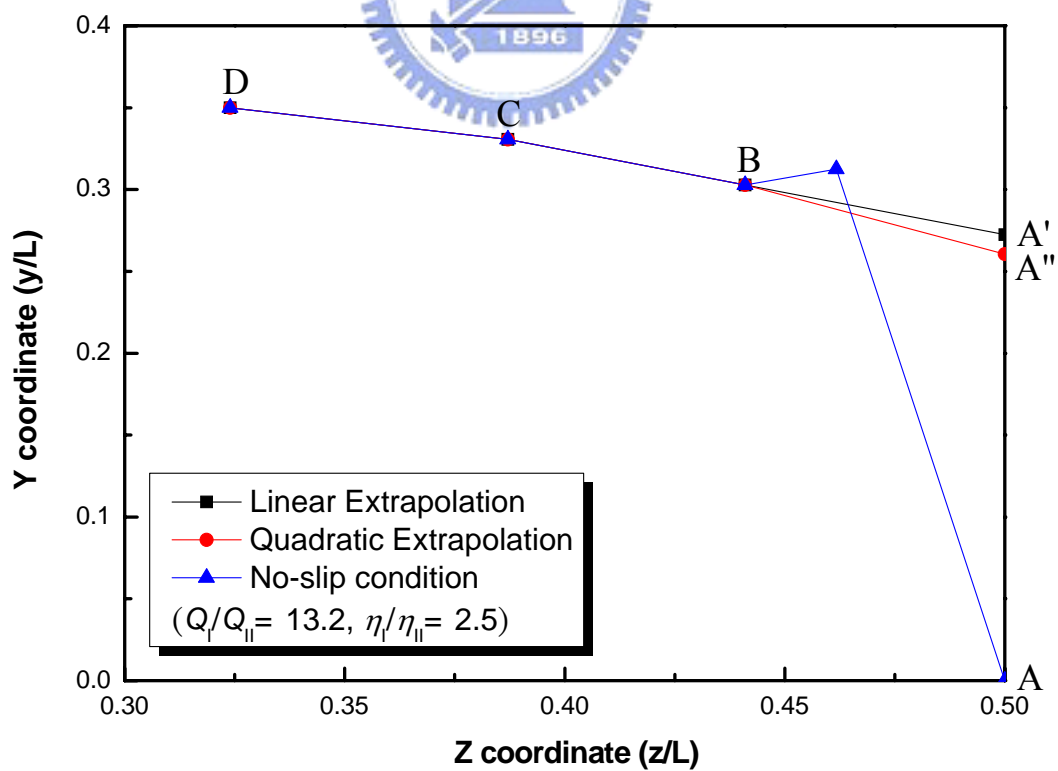


圖 3-7 不同外插法之出口界面位置比較圖

圖 3-8 為使用線性及二階外插法之界面包覆度(degree of encapsulation)比較圖，包覆度定義如下：

$$DE = \frac{|y_w - y_c|}{L} \times 100\% \quad (3-3)$$

由圖 3-8 可看出使用二階外插法會得到較大的包覆度，並發現在雙層流體匯流處(merging area)出現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，而使得界面因下層流體流量極大而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，包覆現象仍趨向低黏度包覆高黏度。

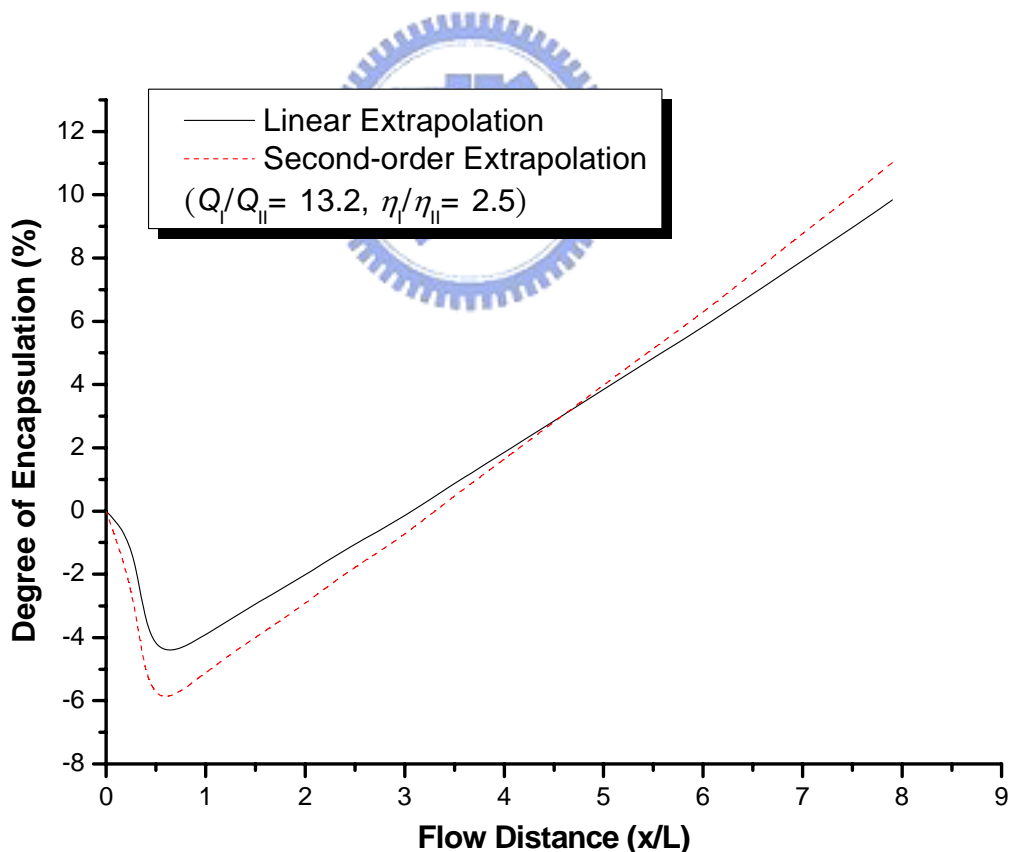


圖 3-8 不同外插法之界面包覆度比較圖

2. 滑動邊界設定(Slip boundary condition)

此節將以不同壁面滑動模式設定壁面邊界以進行有限元素分析，並觀察不同滑動係數設定對於模擬結果之影響，亦將與前一小節使用之外插法做比較。

圖3-9為不同滑動係數下進料區塊(feedblock)之出口界面包覆度比較圖，可看出隨著滑動係數越小，流體界面彎曲程度越小，產生更小的界面包覆。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。圖3-10為不同滑動係數下接觸線位置之壁面剪切應力，可看出因滑動係數下降而使得接觸線位置之壁面剪切應力下降。

(A) 線性滑動模型(Linear slip model)

本小節使用線性generalized Navier's law_[67]設定模壁面(Γ_{wall})之滑動邊界，線性generalized Navier's law表示式如下：

$$f_t = F_{slip} (v_{wall} - v_t) \quad (3-4)$$

表 3-6 為模擬結果整理，可看出隨著滑動係數增加，壁面摩擦力越大使得壁面速度逐漸下降，而界面包覆度逐漸上升。由圖 3-11 至 3-13 皆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圍程度，當滑動係數越高則界面包圍程度越高，且壁面接觸點(contact point)位置越低。

表 3-6 滑動係數設定之分析比較

	Wall Boundary Condition (Slip coeff.)			
	0.9×10^7	1.5×10^7	5×10^7	No-slip
Wall velocity (% $\langle v \rangle$)	6.63	2.86	0.797	0
Outlet Encapsulation(%)	-2.49	30.74	36.62	11.02

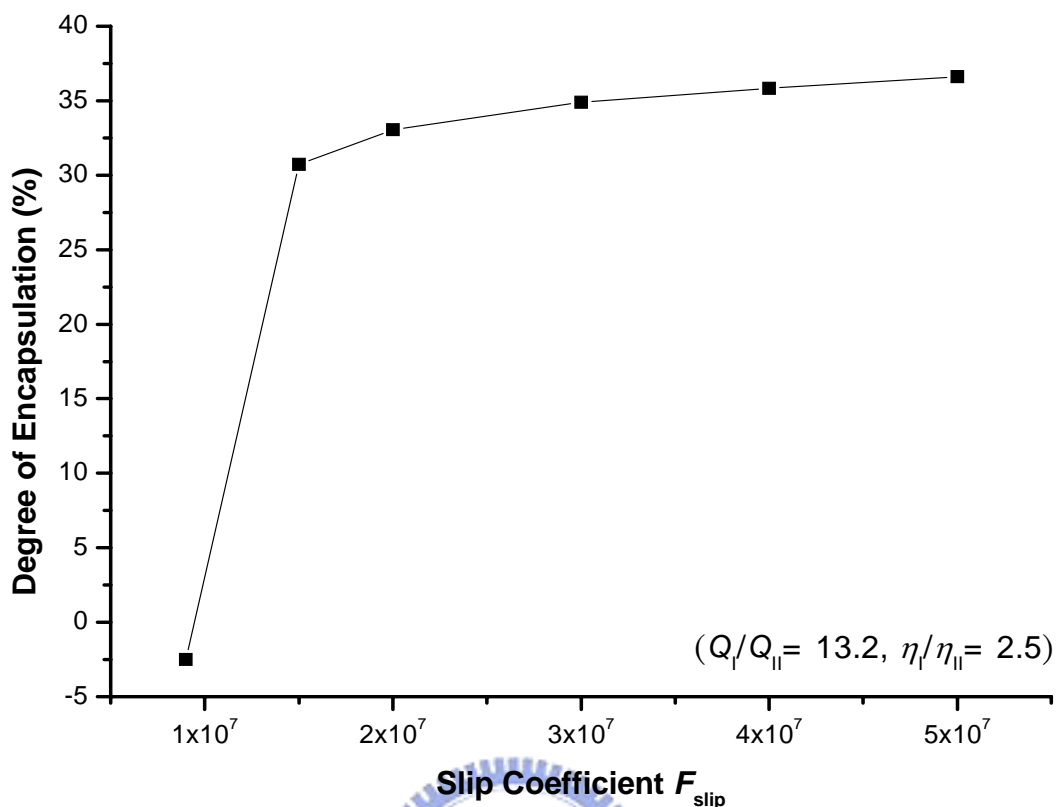


圖 3-9 不同滑動係數下之出口界面包覆度比較圖

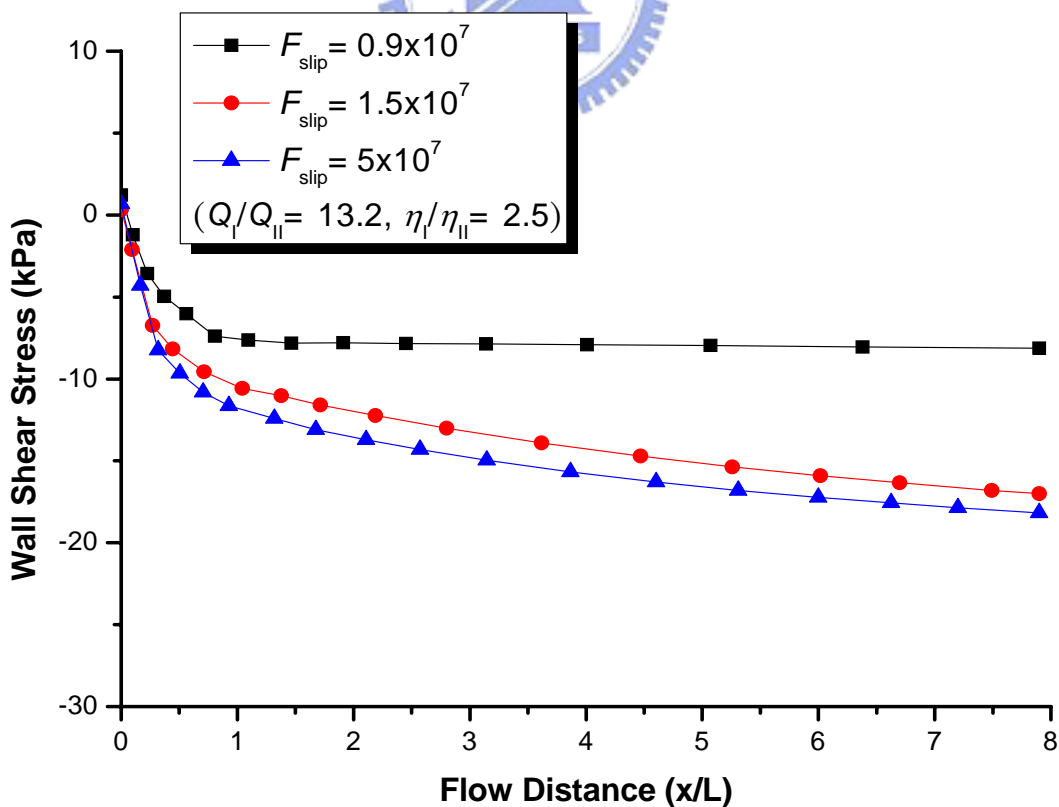


圖 3-10 不同滑動係數下接觸線位置之壁面剪切應力比較圖

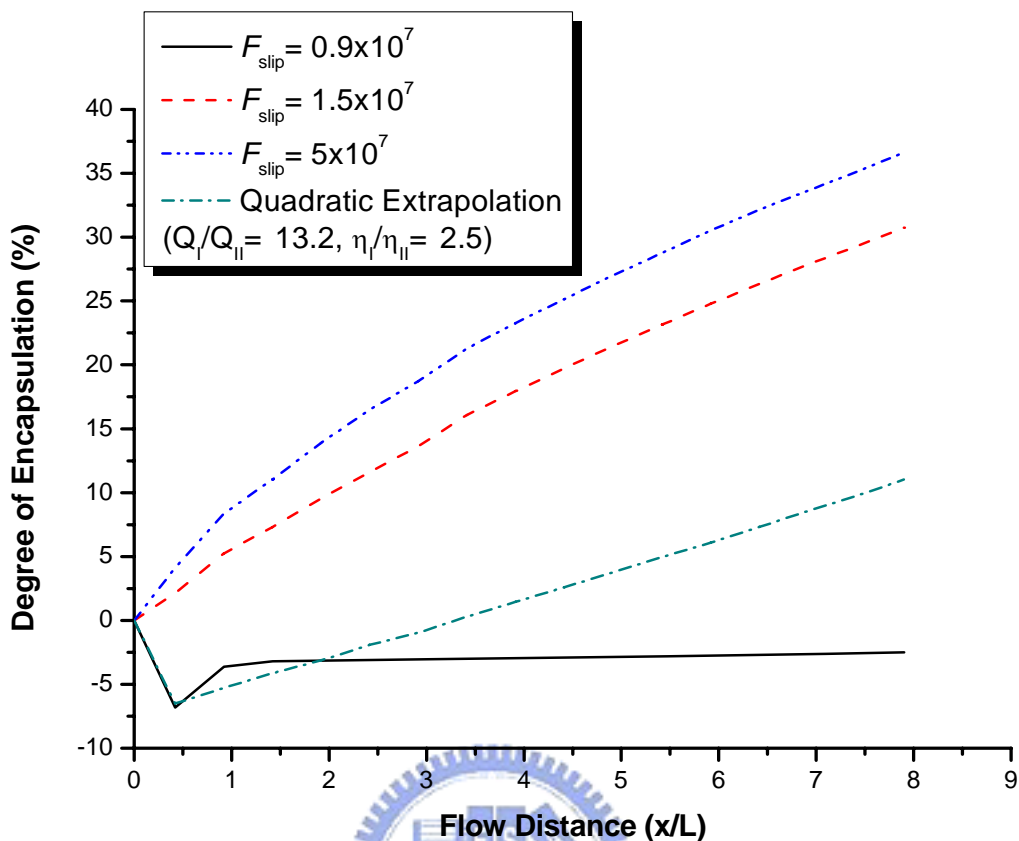


圖 3-11 不同邊界設定下之包覆度比較圖

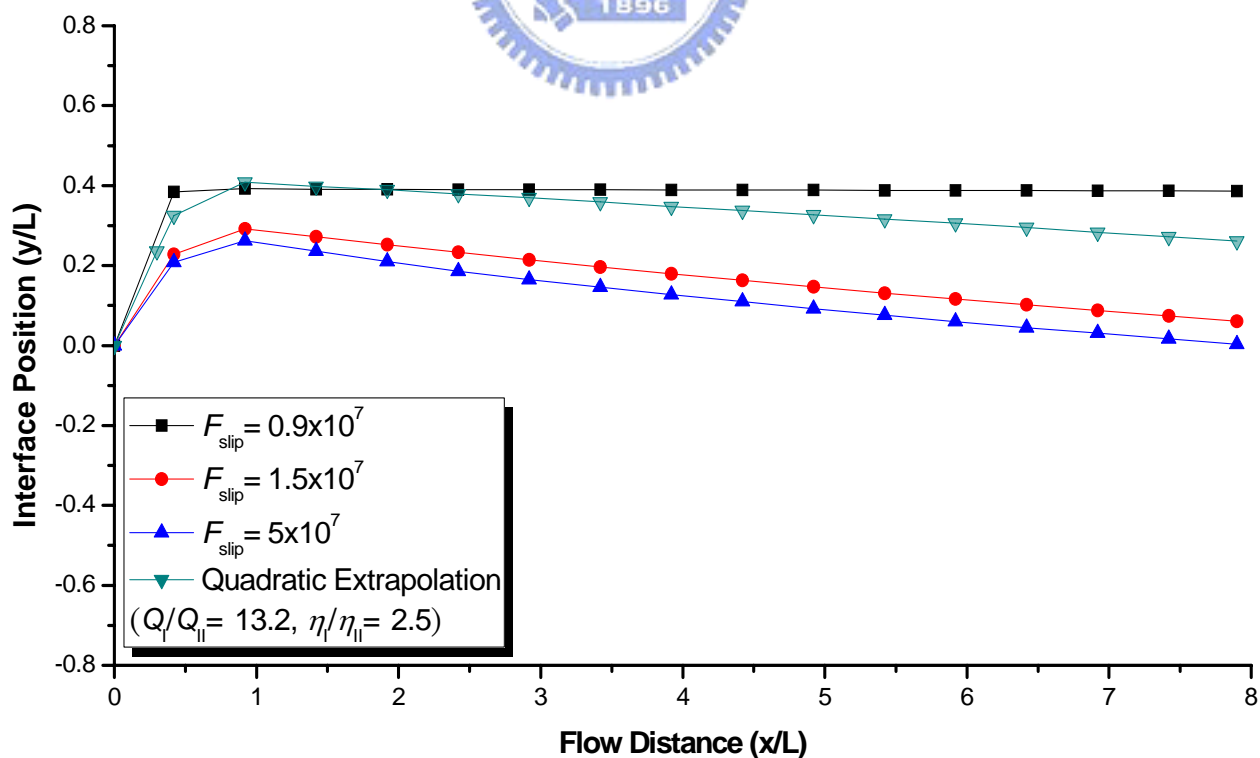


圖 3-12 不同邊界設定下壁面(z=0.5L)接觸線位置比較圖

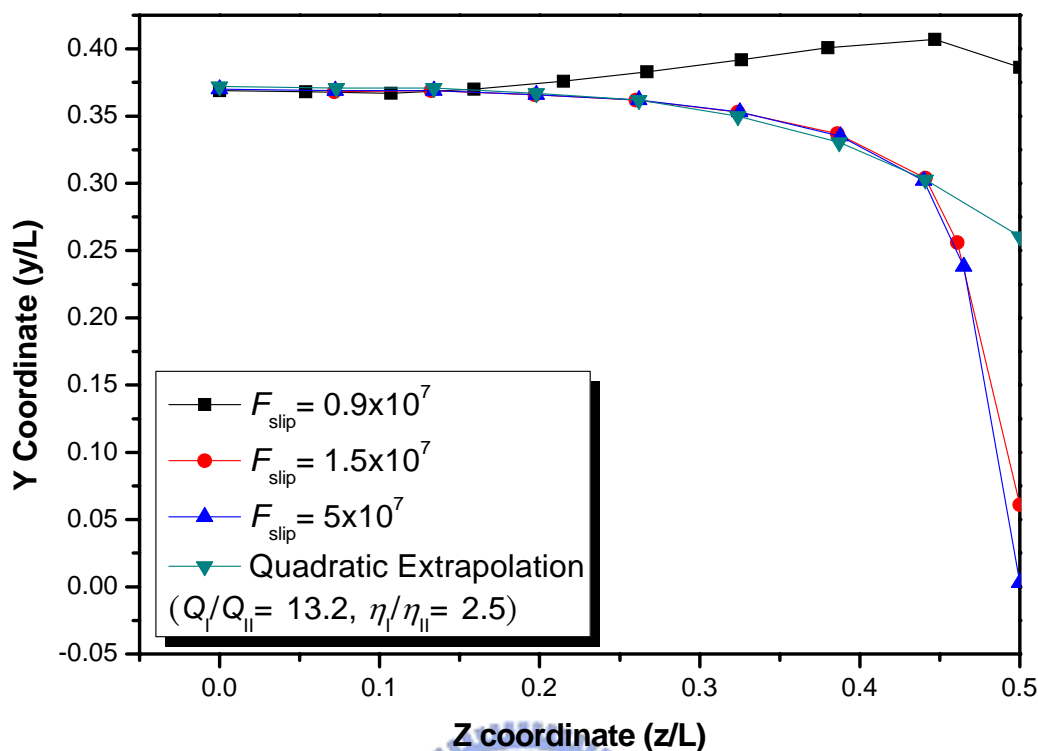


圖 3-13 不同邊界設定下之出口界面位置比較圖

由圖3-11亦可看出相較於較簡單之外插法，在相同系統及操作條件下，滑動邊界設定因不會忽略壁面之影響(wall effect)，故得到較高的界面包覆度。另外，由圖3-13可看出低滑動係數使壁面產生潤滑(lubrication)效果，界面彎曲現象因而減緩，但因流量比差異極為明顯，使得流體界面在壁面產生往上偏移(shift)，而有界面包覆度為負的情況發生。

(B) 冪次式滑動模型(Power law slip model)

本小節主要比較使用冪次式滑動模型與線性滑動模型設定壁面(Γ_{wall})邊界之差異，其表示式如下：

$$f_t = F_{slip} (v_{wall} - v_t) |v_t - v_{wall}|^{\varepsilon_{slip} - 1} \quad (3-5)$$

其中，上下層塑料之 ε_{slip} 皆設定為0.6。由圖3-14可看出在相同滑動係數、相同壁面剪切應力時，使用冪次式滑動模型表現出之接觸線壁面滑動

速度較低，因為使用冪次式滑動模型時，流體於壁面應會有不同的流動行為。表3-7為不同滑動模型之比較，此處使用相同壁面滑動速度對平均速度之比來比較線性模型與冪次式模型之差異。在相同的壁面滑動速度對平均速度比時，藉由觀察圖3-15至圖3-17得知線性模型與冪次式模型之模擬計算結果一致，而其壁面剪切應力、接觸線位置及界面之彎曲變形亦相同，因此線性與冪次式滑動模型之差異僅在於滑動係數之設定。

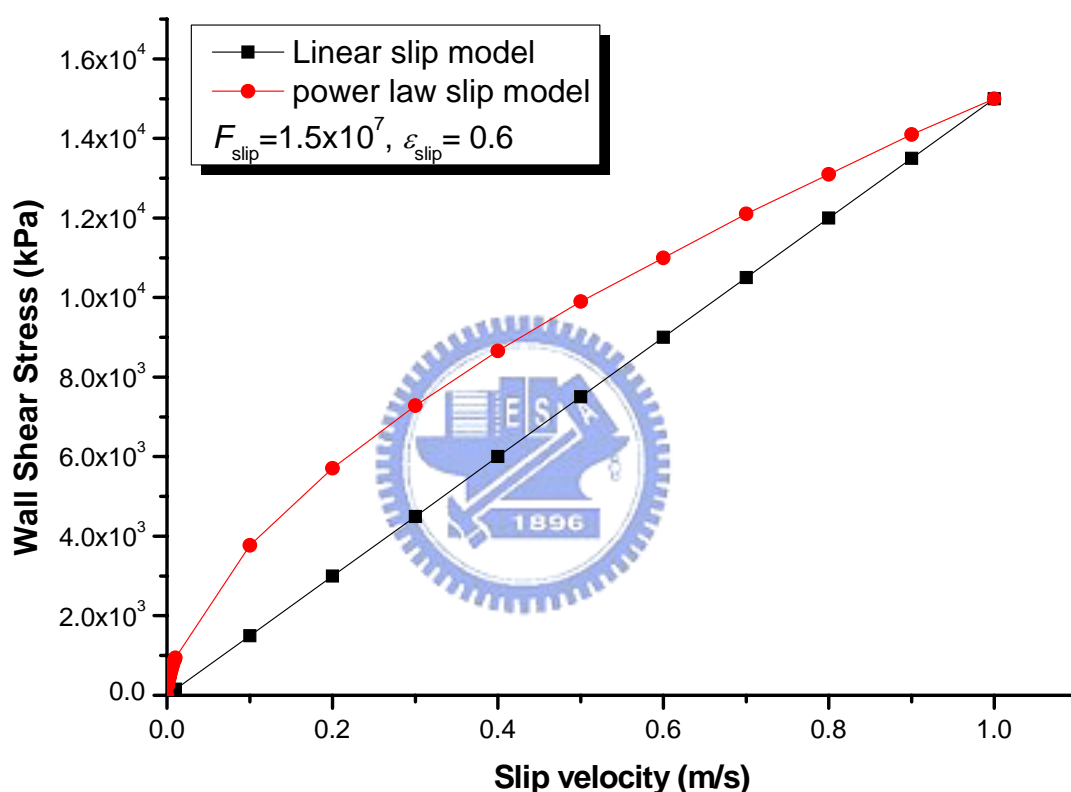


圖 3-14 壁面剪切應力與滑動速度關係圖

表 3-7 不同滑動模型邊界之分析比較

	Linear Slip Model		Power Law Slip Model	
	1.5×10^7	5×10^7	1.2×10^6	2.5×10^6
Wall Velocity (% $\langle v \rangle$)	2.86	0.797	2.89	0.798
Outlet Encapsulation (%)	30.74	36.62	31.10	36.17

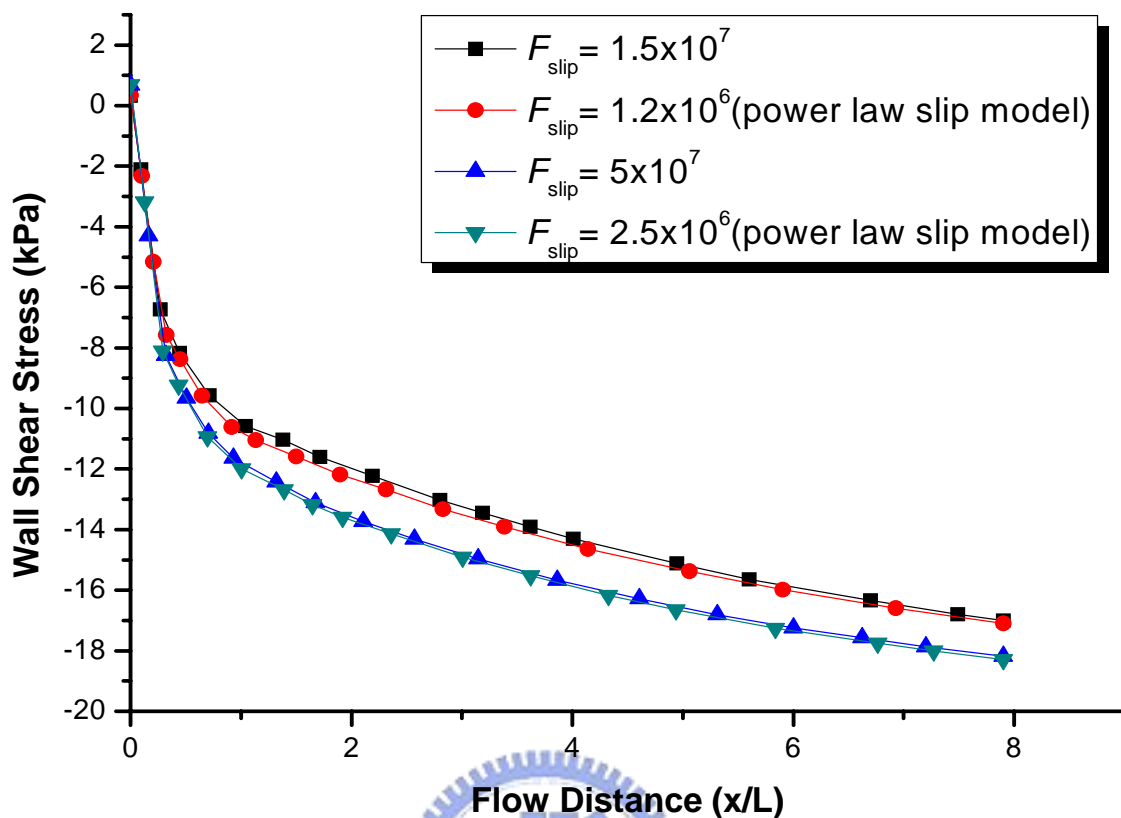


圖 3-15 接觸線位置之壁面剪切應力比較圖

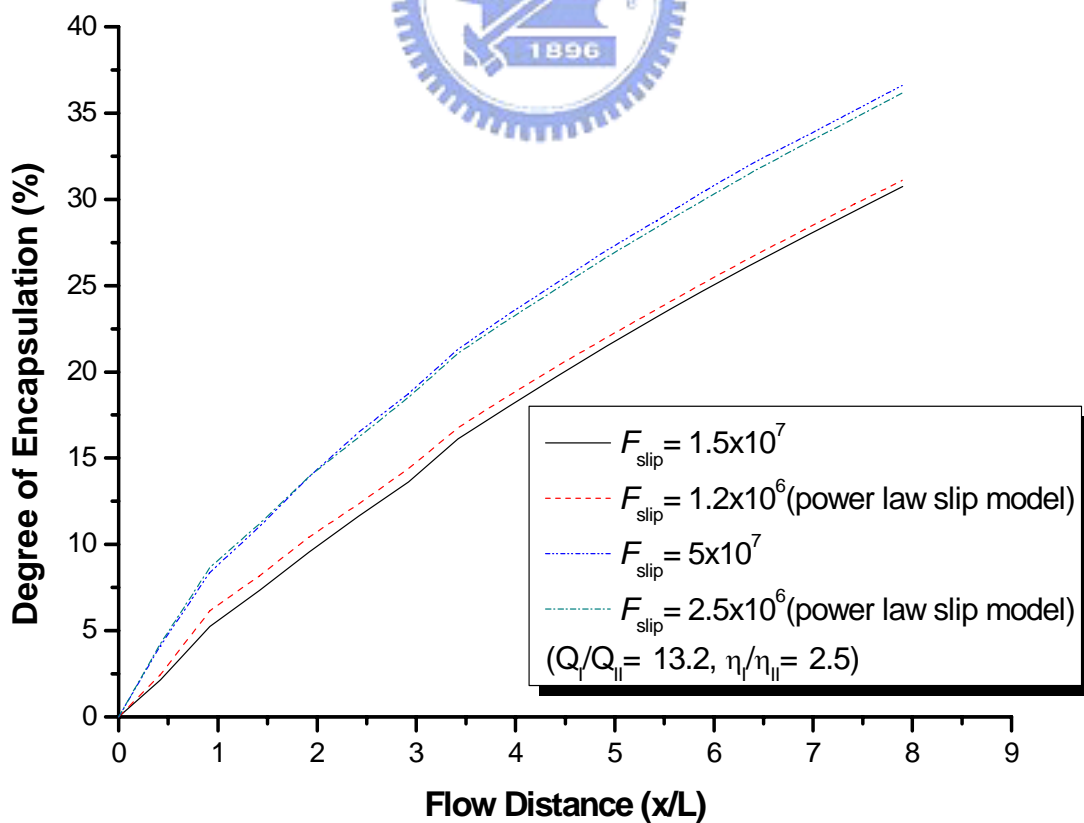


圖 3-16 線性及冪次式滑動模型之包覆度比較圖

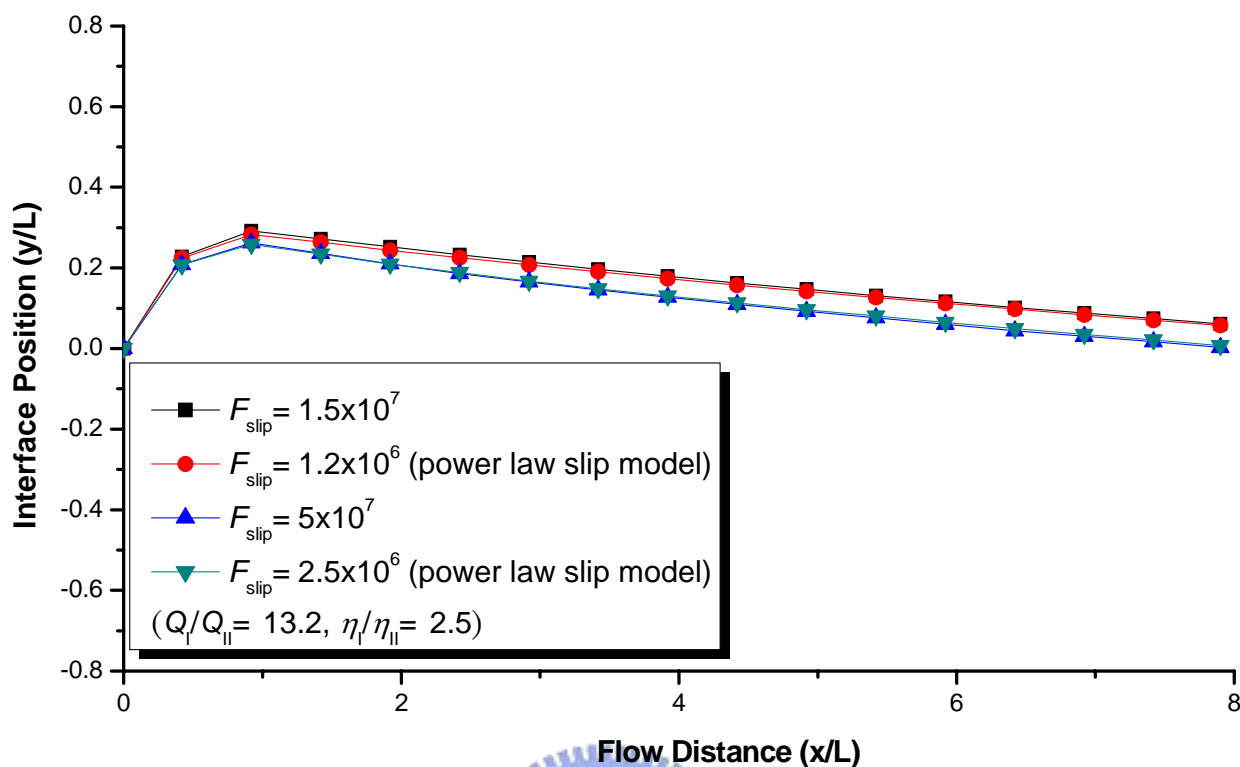


圖 3-17 線性及冪次式滑動模型之壁面($z=0.5L$)接觸線位置比較圖

由前述研究中不同壁面邊界設定之模擬結果，可看出相對於文獻中使用之外插法求取接觸線位置，本論文採用之滑動邊界因不會忽略壁面影響 (wall effect)，可較有效預測界面接觸線位置。而在冪次式模型與線性模型比較中，雖然其流動模式方程式不同，但對於流體界面於壁面接觸線位置之預測則是相同的結果。

3.4 模擬結果分析

此節將分析雙層共押出高分子塑料在進料區塊(feedblock)中產生之界面包覆現象(encapsulation phenomena)、界面不穩定(interfacial instability)現象及探討流變參數、流量比、滑動邊界設定對共押出製程問題之影響，希望能藉此了解高分子流體在進料區塊中之流動機制，並探討導致共押出製程問題發生之原因。

3.4.1 流變參數之影響

此節將討論 Giesekus 模型中之流變參數 α 對進料區塊內流動之影響， α 代表流體之第二正向應力差(second normal stress difference)性質，本論文改變上下層流體 α 值以藉此了解第二正向應力差對於共押出製程問題之關係。

圖 3-18 為第二正向應力差造成之二次流動(secondary flow)發展圖，前端因下層流體流量較高，將流體界面往上推擠，過了流體匯流區界面達平穩狀態後，二次流動之現象則更為明顯並產生迴流區域，但流道長度增加二次流動速度並不會隨之增加，且二次流動速度僅有押出方向(X 軸)速度之 1%左右，如圖 3-19 可看到 Y 方向速度分佈隨流道長度增加並無多大變化，但隨著流道長度增加二次流動造成之界面彎曲程度亦越大。

當塑料流體流變參數 α 值越高，表示此塑料會表現出更大的第二正向應力，因此 α 值較高的流體在應力釋放後，會有較高的第二正向應力(τ_{yy})，使得進料區塊中之雙層流體界面因 α 值差異而呈現突起的狀況。此節將針對上下層高分子塑料流體之 α 比來探討對於界面包覆現象之影響。

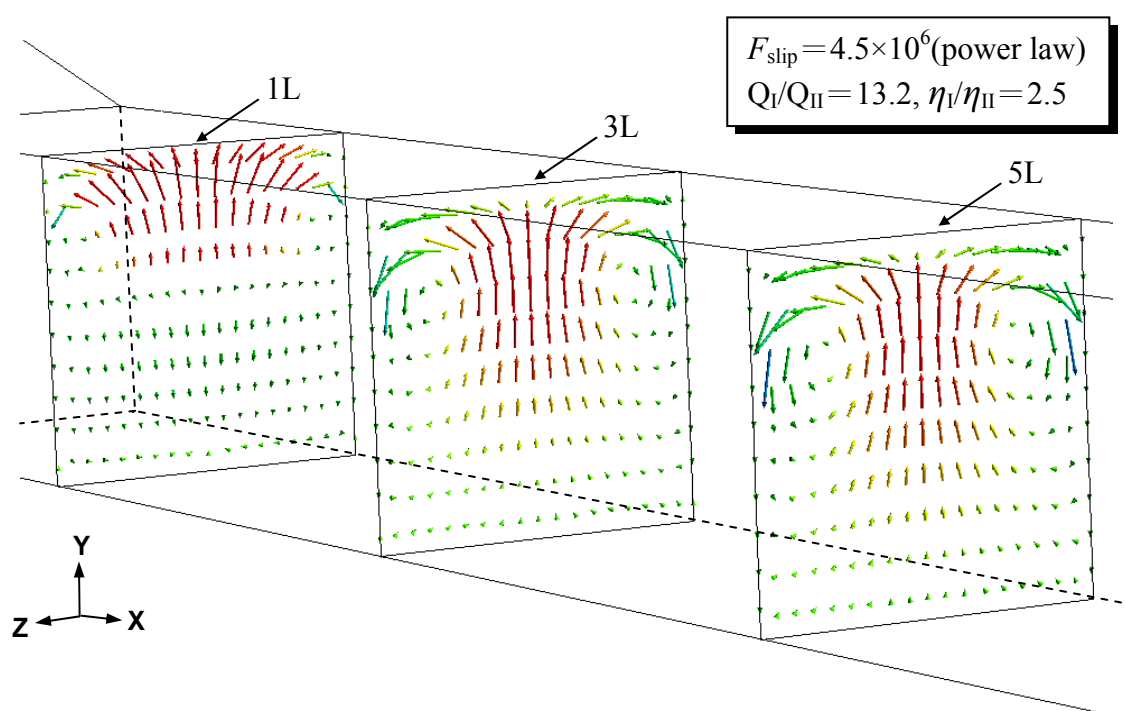
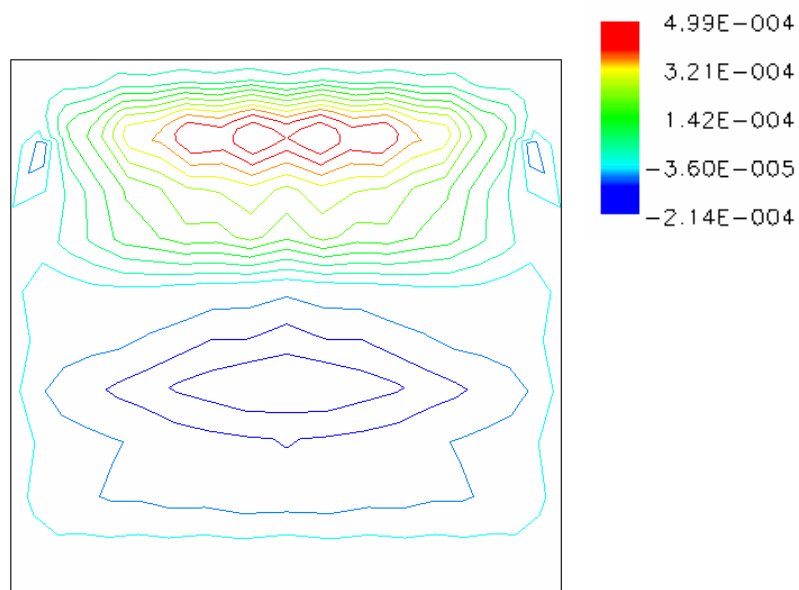
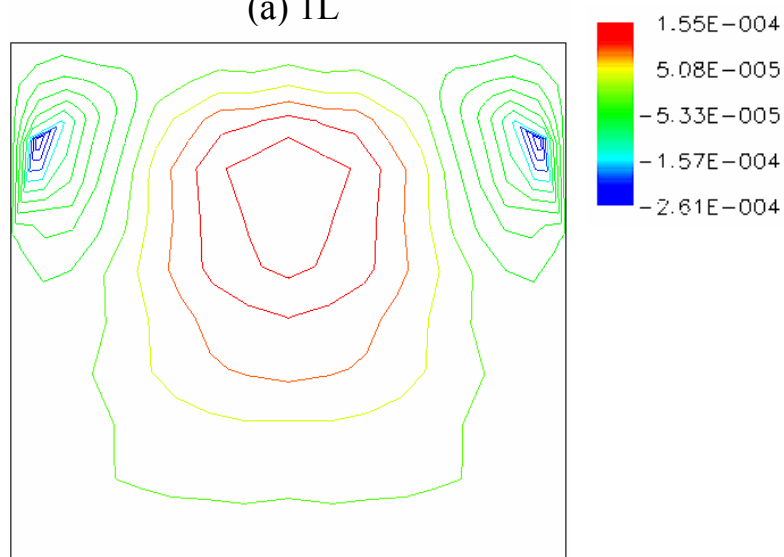


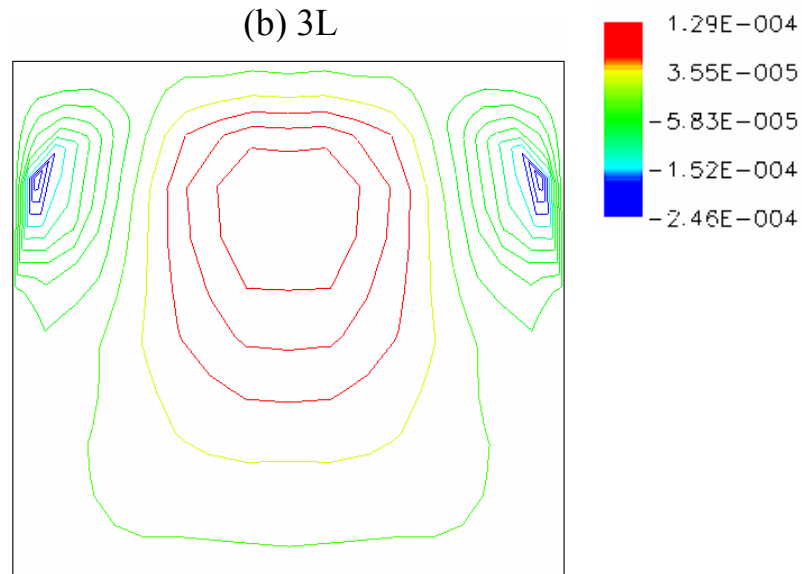
圖 3-18 沿流動方向之二次流動發展圖



(a) 1L



(b) 3L



(c) 5L

圖 3-19 不同流道長度之 Y 方向速度分佈圖

(1) 改變上下層流體 α 值

圖 3-20 及圖 3-23 為改變上下層 α 比之界面包覆度增加圖，因上下層高分子流體之黏度比相同，故界面包覆之變化僅隨 α 比不同而改變，由圖中可看出在矩形流道前端之界面包覆度不會因 α 比不同而產生大變化，此乃因此處為進料區塊匯流處，流體於此處匯流產生一流體界面，而因流量差異極大使得流體界面產生往上偏移，其影響遠大於第二正向應力差產生之二次流動，而其流體界面於壁面之接觸線位置如圖 3-21 及圖 3-24 所示。由圖中亦可觀察出過了進料區塊匯流處後， α 參數對於界面包覆增加之影響，當上下層流體之 α 值差異越大，因二次流動之效應越顯著，進而使得界面包覆程度增加。圖 3-22 及圖 3-25 為出口截面之 Y 方向速度分佈圖，可看出當 α 值差異越大，二次流動效應越顯著，且其迴流速度越大，其中迴流速度定義為靠近壁面之 Y 方向速度分量，當迴流速度越大界面包覆之趨向亦越大。表 3-8 為上述模擬結果整理，可明顯看出流體 α 值差異越大，其出口界面包覆度及迴流速度都隨之上升。

表 3-8 不同 α 比設定之分析比較

α Ratio (α_{II}/α_I)	Numerical Results ($Q_I/Q_{II}=13.2, \eta_I/\eta_{II}=2.5, F_{slip}=4.5\times 10^6$)	
	Outlet Encapsulation (%)	Recirculation Velocity (m/s)
1/1	15.4	-4.71×10^{-5}
1/2	28.7	-1.6×10^{-4}
1/3	36.6	-2.35×10^{-4}
2/3	33.8	-2.02×10^{-4}
3/3	28.6	-1.51×10^{-4}

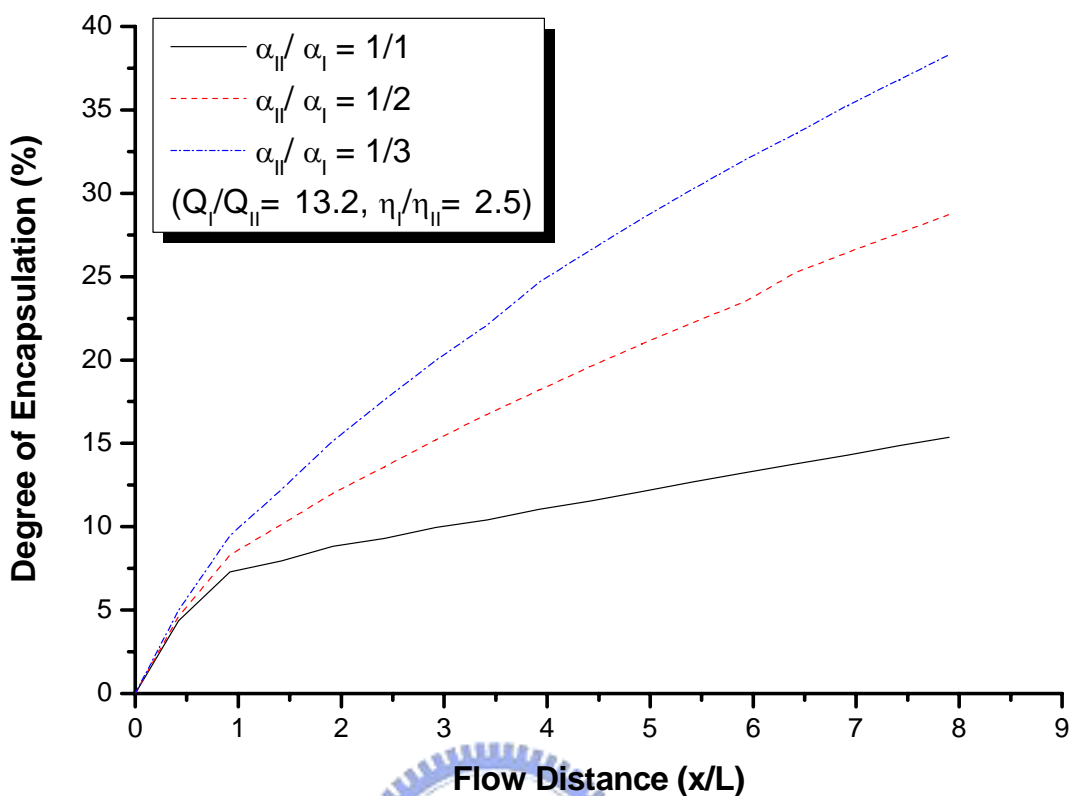


圖 3-20 改變下層流體 α 值之界面包覆度增加圖

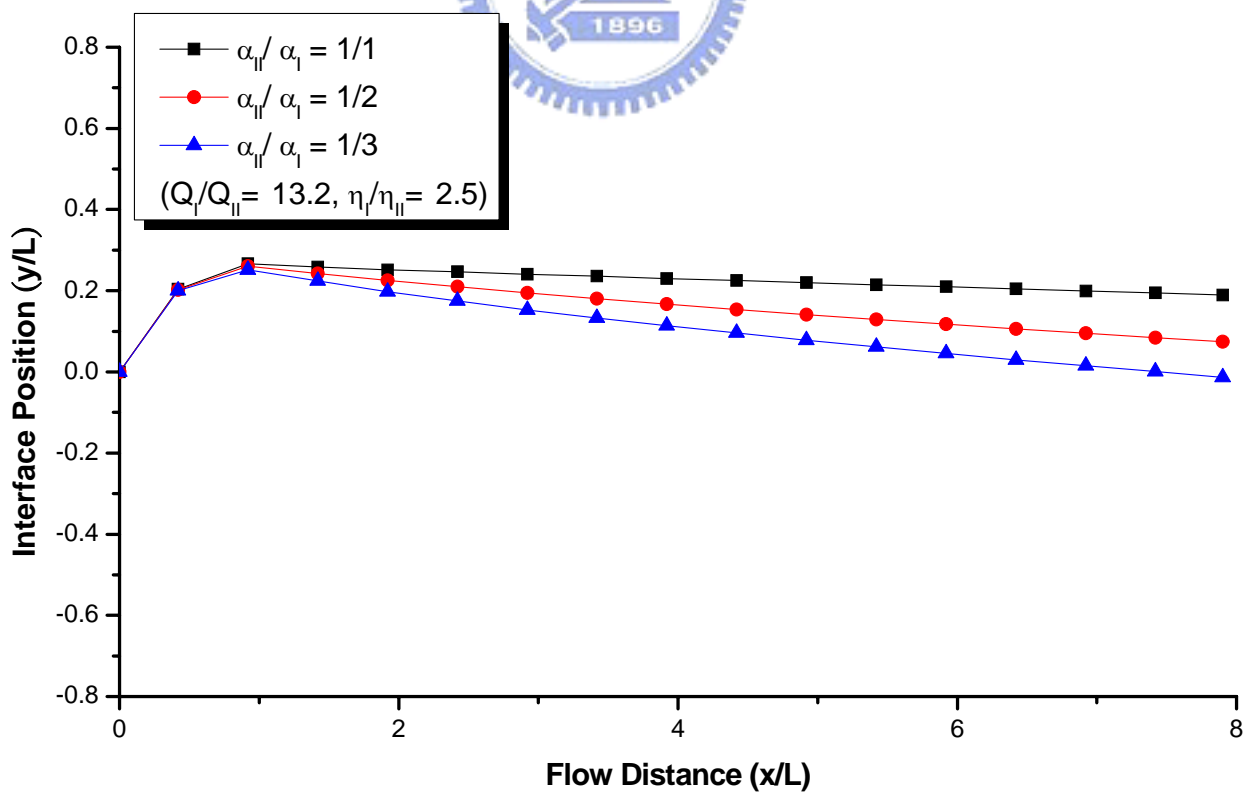


圖 3-21 改變下層流體 α 值之壁面($z=0.5L$)接觸線位置比較圖

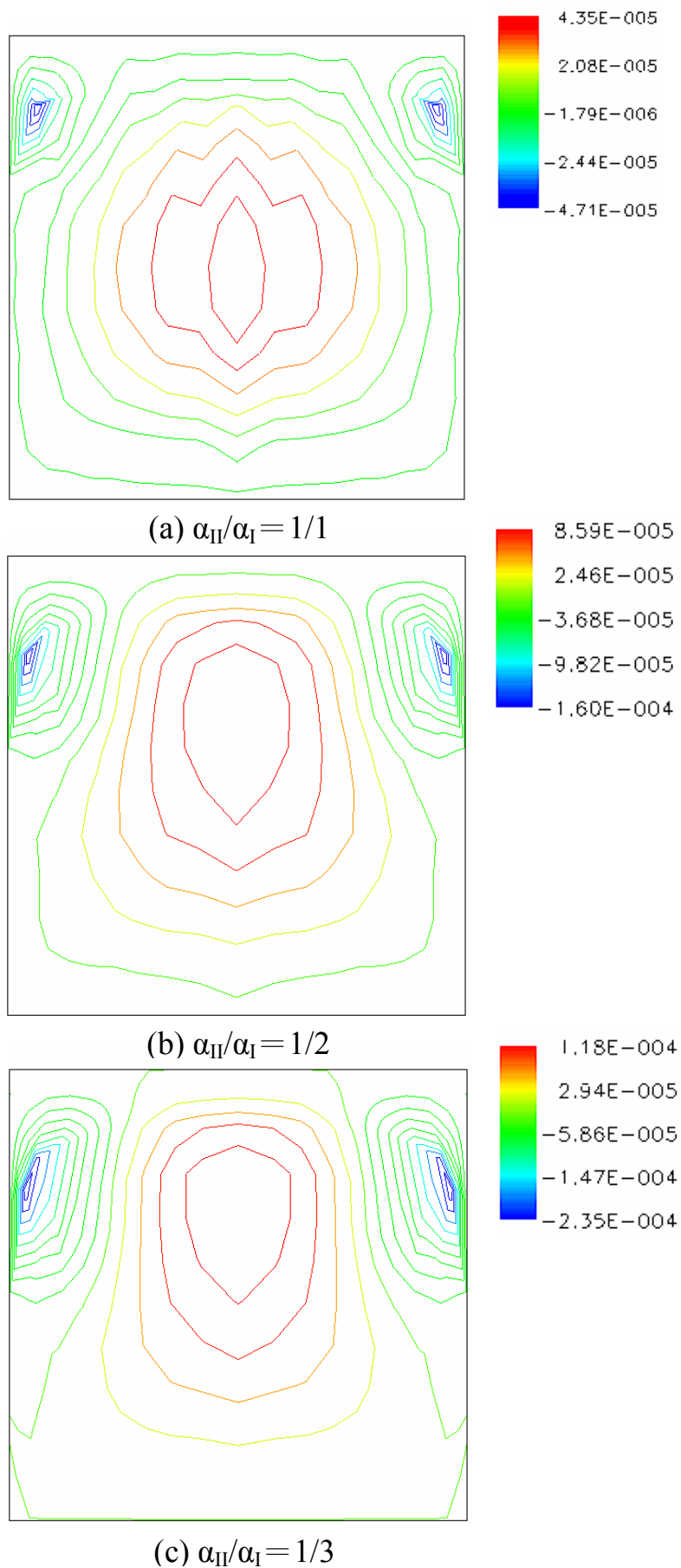


圖 3-22 改變下層流體 α 值之 Y 方向速度分佈圖

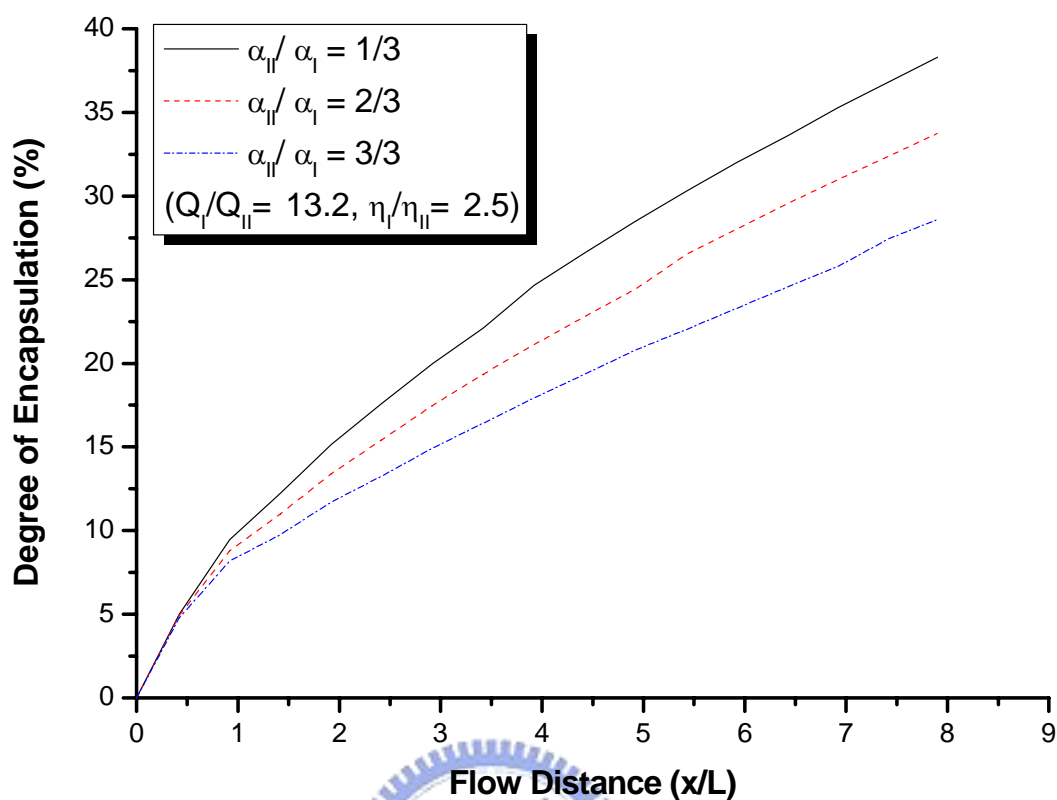


圖 3-23 改變上層流體 α 值之界面包覆度增加圖

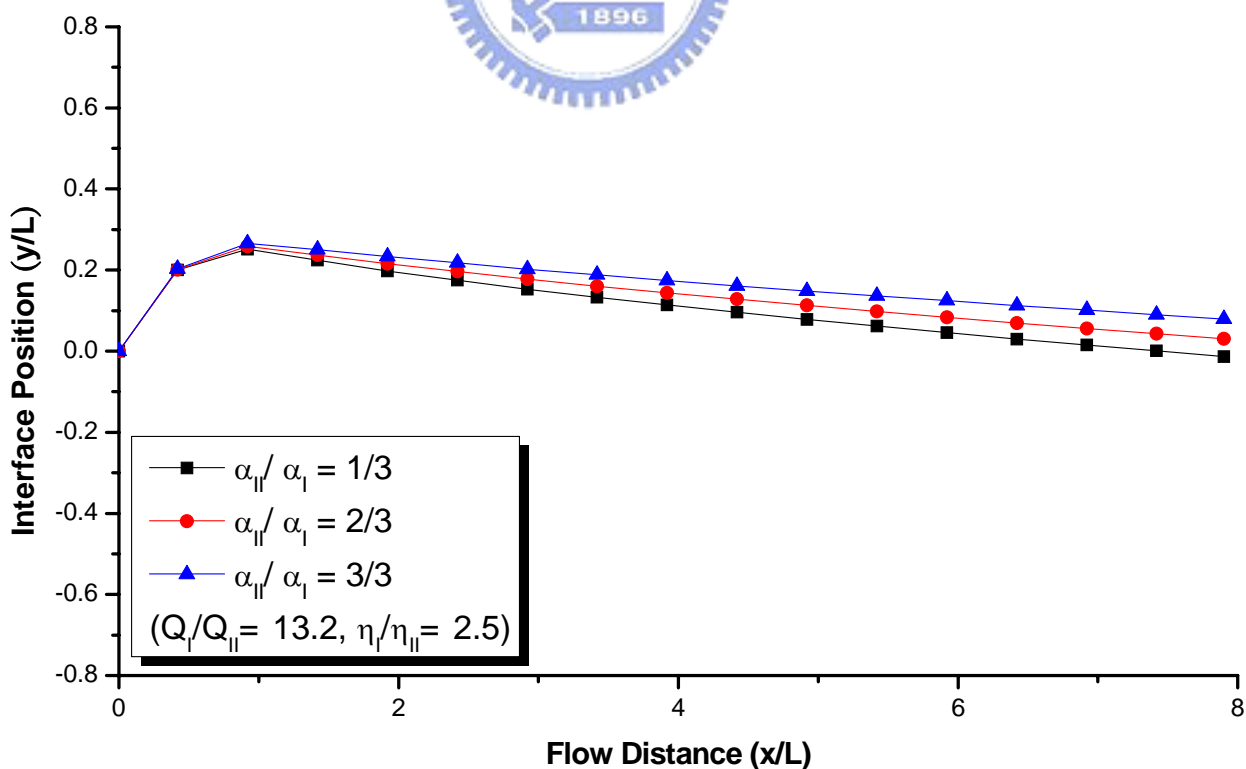
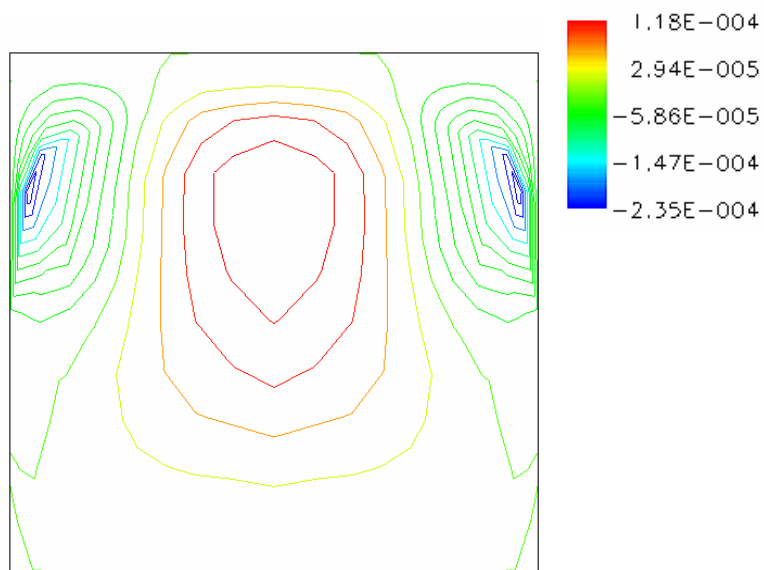
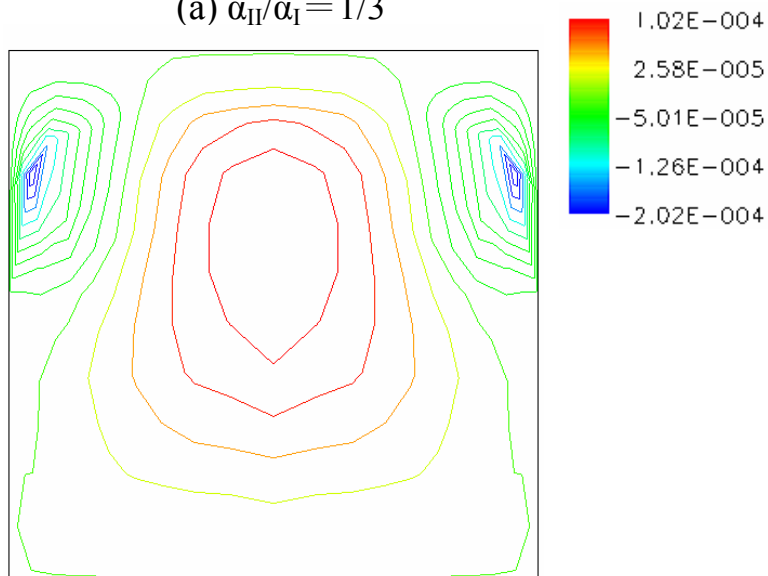


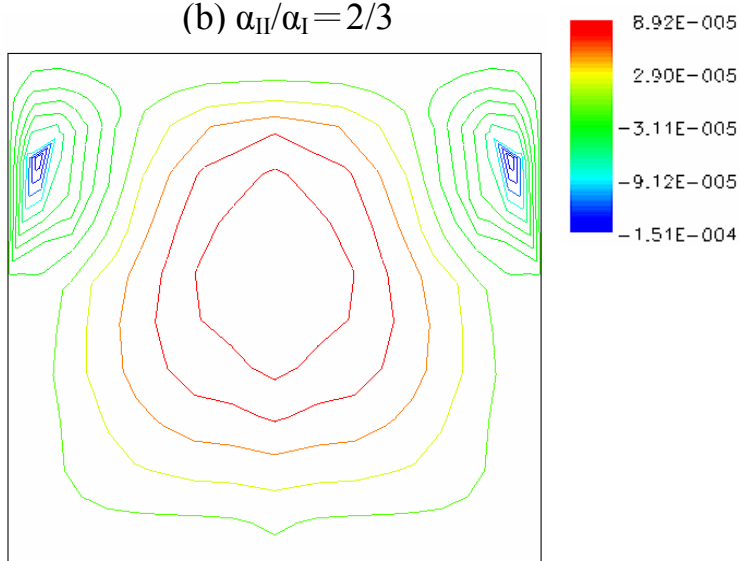
圖 3-24 改變上層流體 α 值之壁面($z=0.5L$)接觸線位置比較圖



(a) $\alpha_{II}/\alpha_I = 1/3$



(b) $\alpha_{II}/\alpha_I = 2/3$



(c) $\alpha_{II}/\alpha_I = 3/3$

圖 3-25 改變上層流體 α 值之 Y 方向速度分佈圖

(2) 固定上下層流體 α 比

Giesekus 黏彈模型中之 α 參數代表流體第二正向應力差之性質， α 值越大流體所表現出之二次流動效應越大，由前述研究可知上下層流體 α 值差異越大使得進料區塊內之二次流動現象越顯著，此小節將固定上下層流體 α 比以探討 α 值對於界面彎曲包覆及二次流動之影響。

圖 3-26 為固定上下層塑料流體之 α 比值並藉由改變 α 值探討其對包覆現象之影響，可看出即使上下流體之 α 值沒有差異，但 α 值越大仍使得界面包覆程度上升，其流體於壁面接觸線位置如圖 3-27 所示。因 α 在 Giesekus 黏彈模型中代表第二正向應力差之性質，為流體第二正向應力差或係數(second normal stress difference or coefficient)對第一正向應力差或係數(first normal stress difference or coefficient)之比，因此即使上下流體 α 值相等，高 α 值仍會造成較強烈的二次流動現象，造成較高的界面包覆現象。圖 3-28 為進料區塊出口截面(7.9L)處之 Y 方向速度分佈圖，可明顯看出當流體 α 值越高其二次流動效應越大，迴流速度亦越大，其所表現出之二次流動行為亦符合前述流體界面之彎曲包覆結果。表 3-9 為上述模擬結果整理。

表 3-9 固定 α 比設定之分析比較

α Ratio (α_{II}/α_I)	Numerical Results ($Q_I/Q_{II}=13.2$, $\eta_I/\eta_{II}=2.5$, $F_{slip}=4.5\times 10^6$)	
	Outlet Encapsulation (%)	Recirculation Velocity (m/s)
1/1	15.4	-4.71×10^{-5}
2/2	22.2	-1×10^{-4}
3/3	28.6	-1.51×10^{-4}

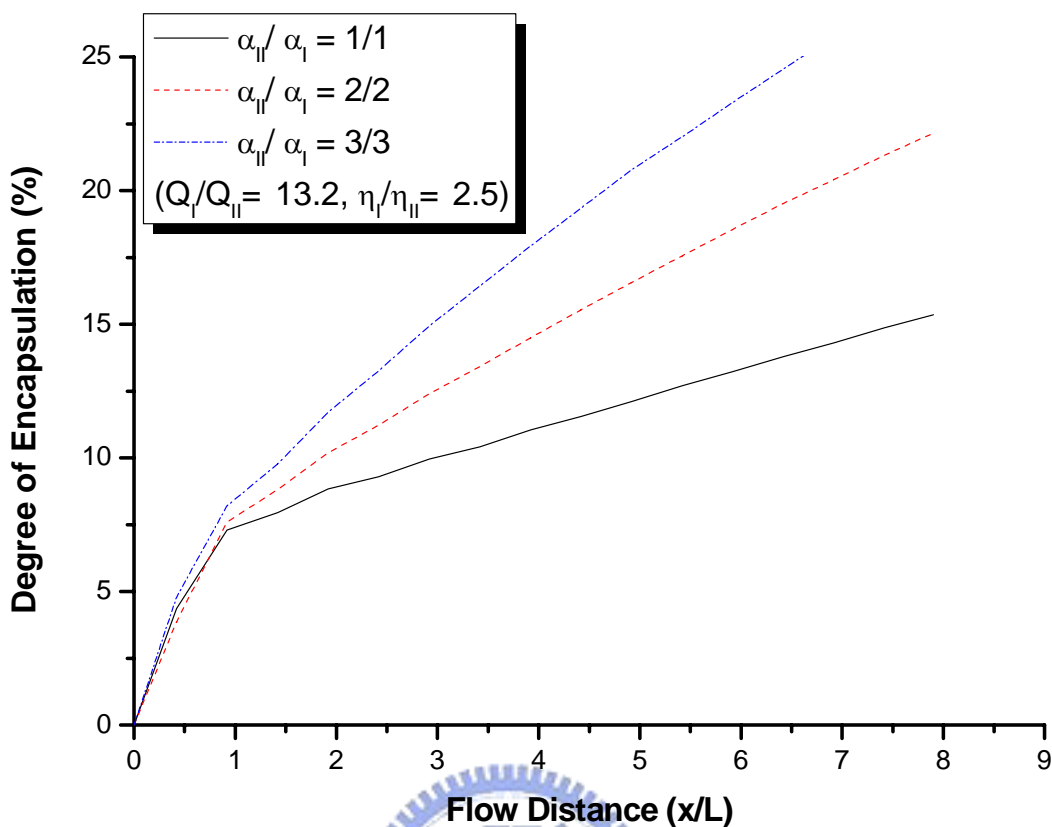


圖 3-26 固定 α 比值之界面包覆度增加比較圖

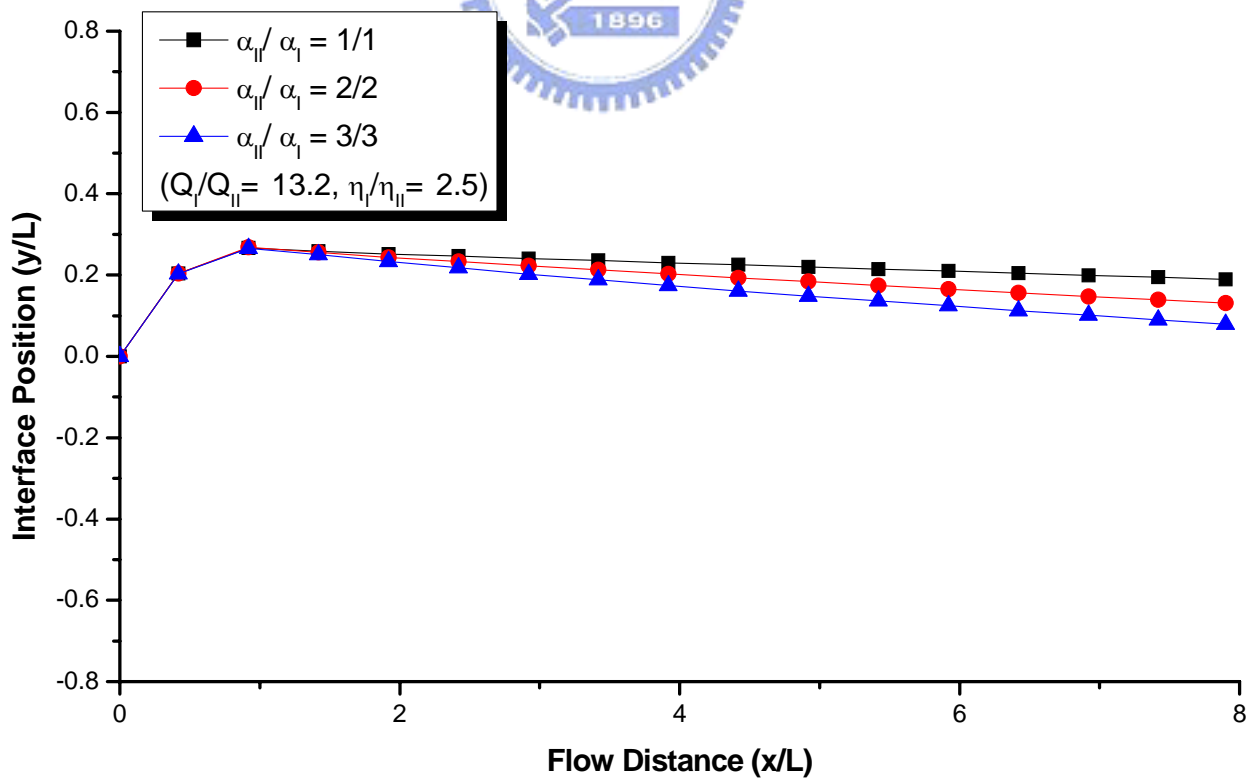
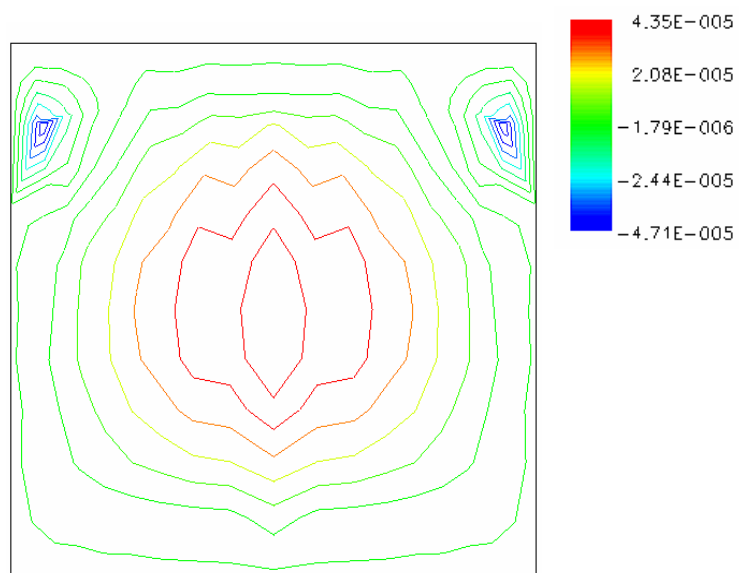
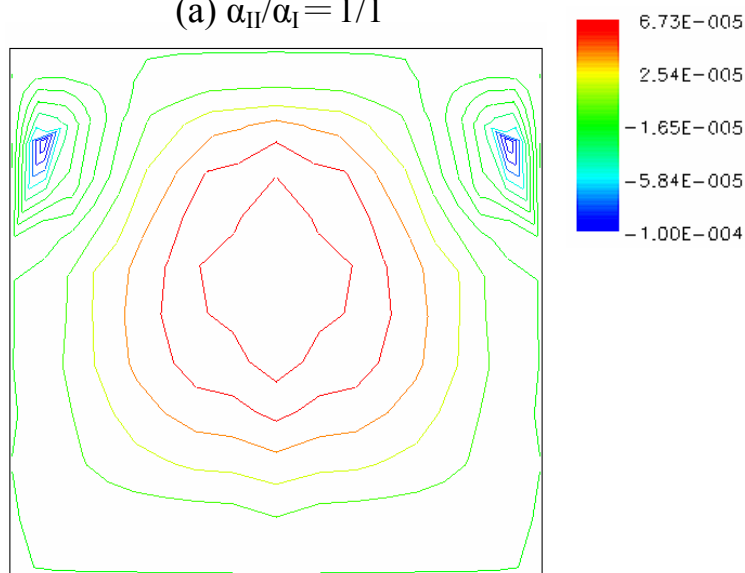


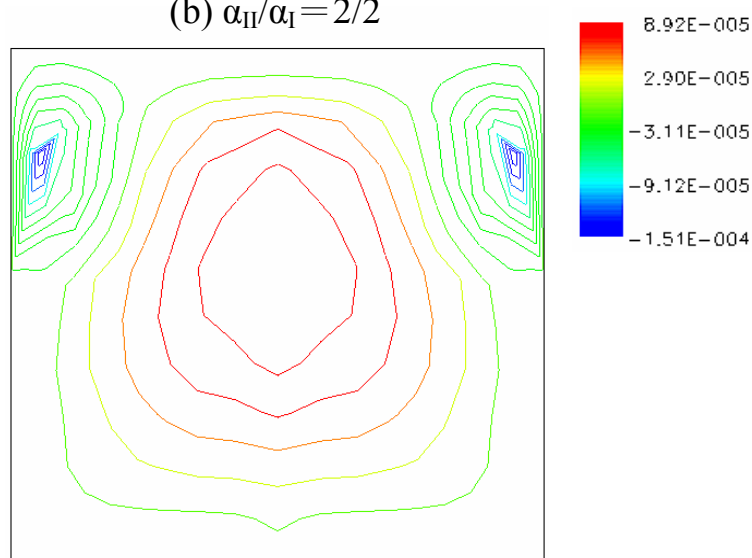
圖 3-27 固定 α 比值之壁面($z=0.5L$)接觸線位置比較圖



(a) $\alpha_{II}/\alpha_I = 1/1$



(b) $\alpha_{II}/\alpha_I = 2/2$



(c) $\alpha_{II}/\alpha_I = 3/3$

圖 3-28 固定 α 比之 Y 方向速度分佈圖

(3) 上下層流體 α 值互換

在本論文研究系統中，下層流體(I)黏度較高故會呈現上層流體包覆下層流體之情況，此小節將上下層流體之 α 值互換，使上層流體 α 值高於下層流體，藉此探討第二正向應力差對於包覆現象之影響。

由圖 3-29 及圖 3-30 可看出當上層流體之 α 值較高且若流道長度夠長，流體界面之彎曲包覆會因二次流動之影響而抵消因黏度造成之界面包覆，甚至產生高黏度流體包覆低黏度流體之情況。由圖 3-31 可看出互換了上下層流體 α 值，二次流動現象減弱甚至產生與前述研究相反之二次流動方向，如圖 3-32 所示，靠近壁面之流體速度向量往上，將靠近壁面之流體界面往上推，界面中央之速度向量則向下，使流體界面中央往下移，此現象即為界面包覆度在互換 α 值後變得較低之原因。上述現象為當上層流體 α 值較高，表示上層流體之第二正向應力差相對較高，其表現出之流體第二正向應力 (τ_{yy}) 大於下層流體，在上下層流體出各自流道後，上層流體將界面往下推擠，因此產生與前述研究不一樣之包覆趨向，而抵消黏度造成之界面包覆。表 3-10 為上述現象之模擬結果整理。

表 3-10 上下層流體 α 值互換之分析比較

α Ratio (α_{II}/α_I)	Numerical Results ($Q_I/Q_{II}=13.2, \eta_I/\eta_{II}=2.5, F_{slip}=4.5\times 10^6$)	
	Outlet Encapsulation (%)	Recirculation Velocity (m/s)
1/3	36.6	-2.35×10^{-4}
3/1	-1.8	3.19×10^{-5}
1/2	28.7	-1.6×10^{-4}
2/1	6.5	1.29×10^{-5}
2/3	33.8	-2.02×10^{-4}
3/2	15.1	-3.58×10^{-5}

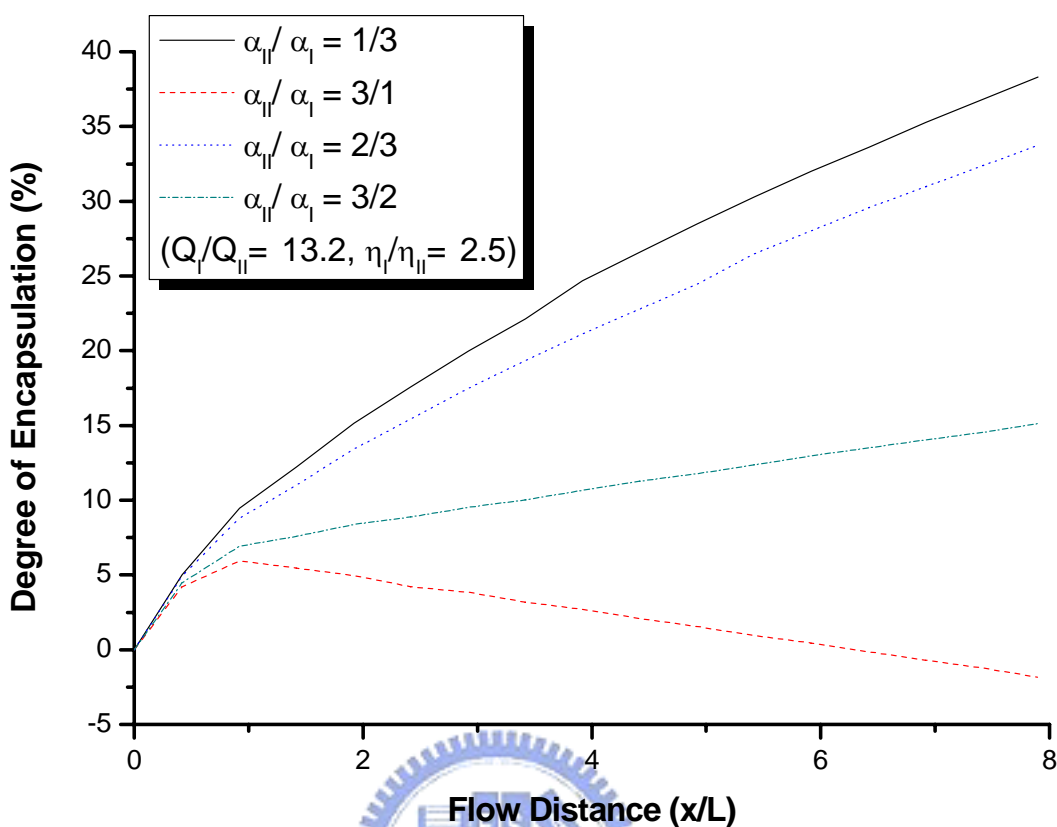


圖 3-29 上下層流體 α 值互換之界面包覆度增加比較圖

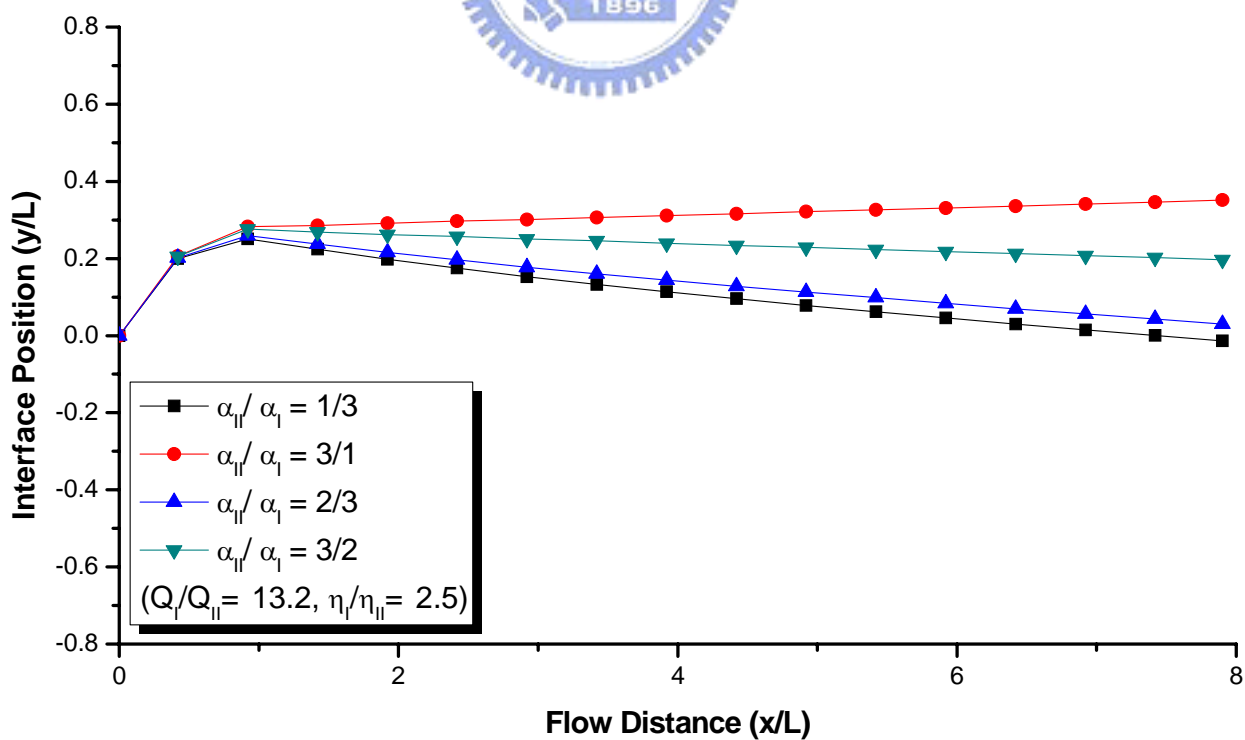


圖 3-30 上下層流體 α 值互換之壁面($z=0.5L$)接觸線位置比較圖

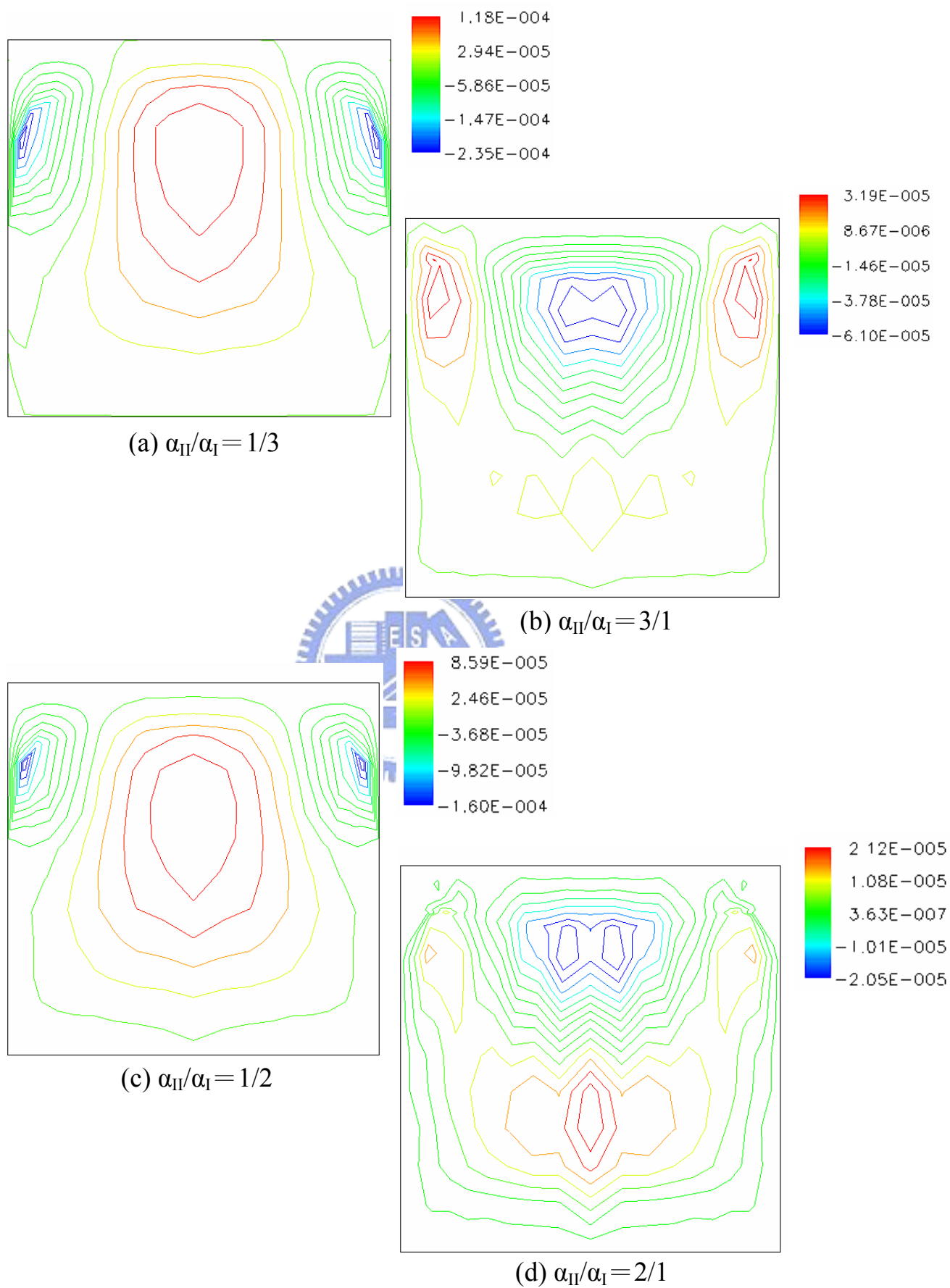


圖 3-31 上下層流體 α 值互換之 Y 方向速度分佈圖

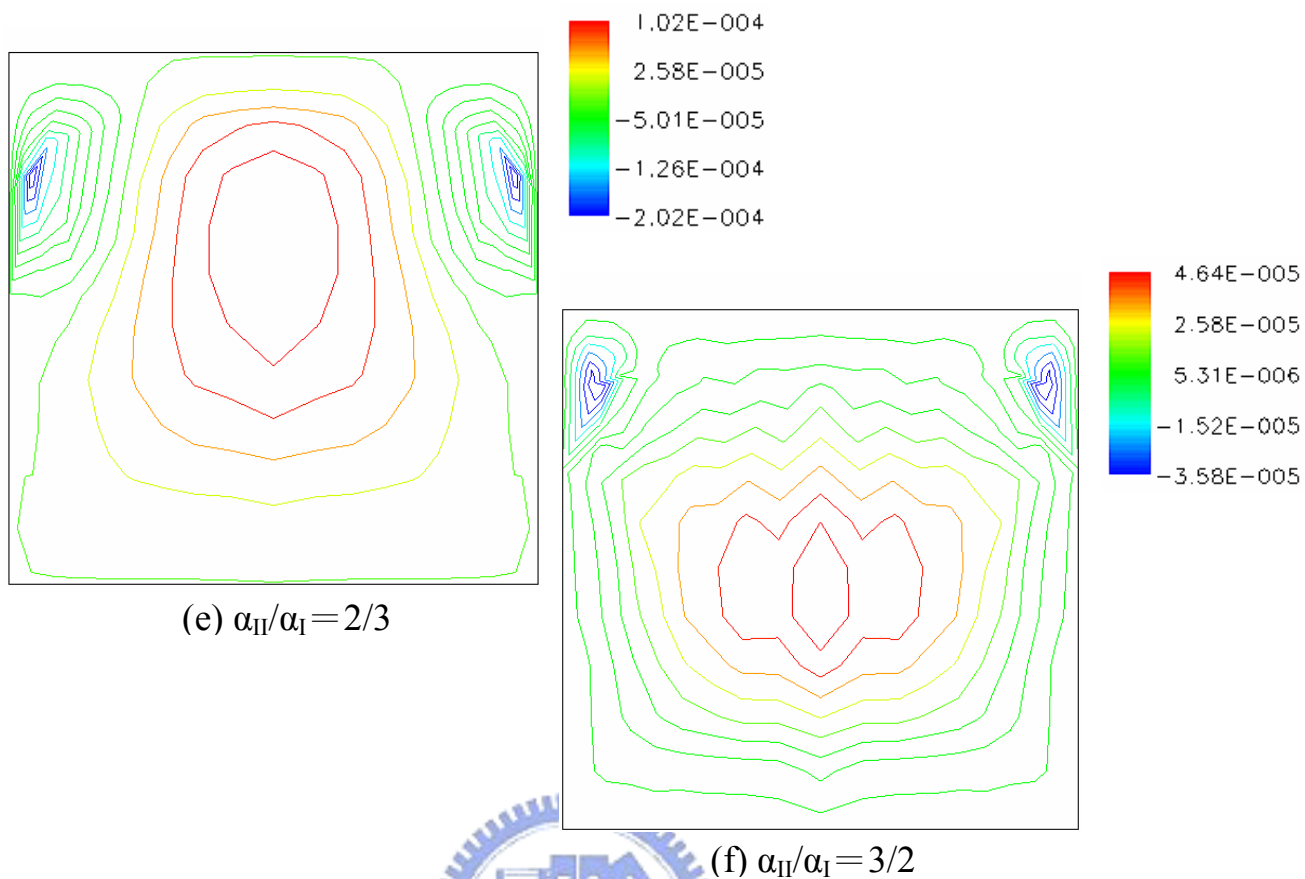


圖 3-31 上下層流體 α 值互換之 Y 方向速度分佈圖

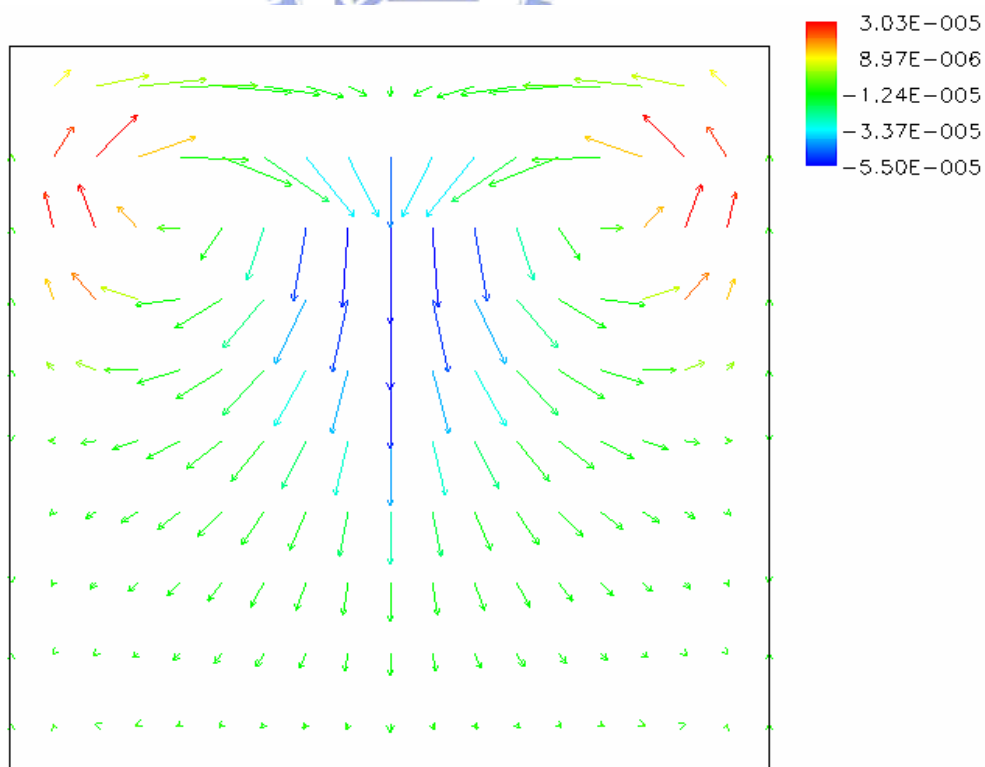


圖 3-32 改變上下層流體 α 值之二次流動示意圖

由此節之研究可清楚看出第二正向應力差對於雙層共押出流體界面之影響，亦證實White及Debbaut^[13, 45]所提出之第二正向應力差可能造成界面包覆增加之論點。當Giesekus黏彈模型中之流變參數 α 越大，流體之第二正向應力差性質越明顯，且若上下層流體之 α 值相差越大，則此現象越更加明顯。因此在進行高分子共押出時，需對於塑料之流變特性有相當的了解，以避免界面不均勻性之問題產生。



3.4.2 流量比之影響

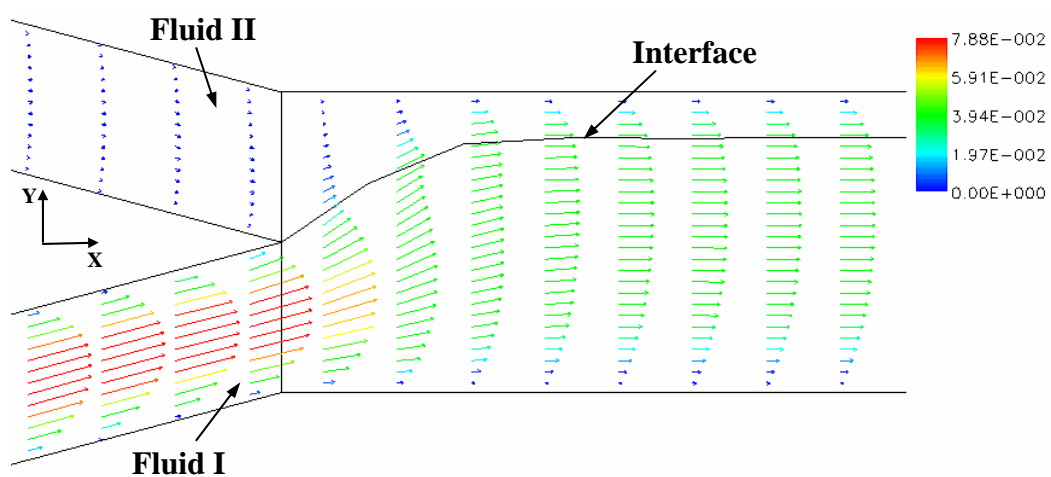
此節將討論上下層塑料流體流量比對進料區塊(feedblock)內流動之影響，以期能藉此了解此製程操作條件與共押出製程問題之關係。

圖 3-33 及圖 3-34 分別為不同流量比下進料區塊匯流處之速度向量及出口界面位置圖，可觀察到當流量比越高，流體界面往上偏移程度越高且上層流體之厚度越薄，而在經由進料區塊匯流處(merging area)之流體重整(fluid rearrangement)後，界面皆趨向平穩狀態。圖 3-35 及圖 3-36 則為不同流量比下之界面包覆度及壁面接觸線位置比較圖，可看出當流量比越高，其界面彎曲包圍程度越低，是因為高流量比時，壁面附近之流體界面被下層流體往上推擠，而使界面彎曲變形趨向減緩。由圖 3-37 可看出，上層流量增加使得 Y 方向速度分佈亦往下偏移，而流量上升使得流體黏彈性質更明顯(We 數上升)，因此第二正向應力差造成之二次流動效應越顯著且迴流速度亦越大。表 3-11 為改變流量比之模擬結果整理。

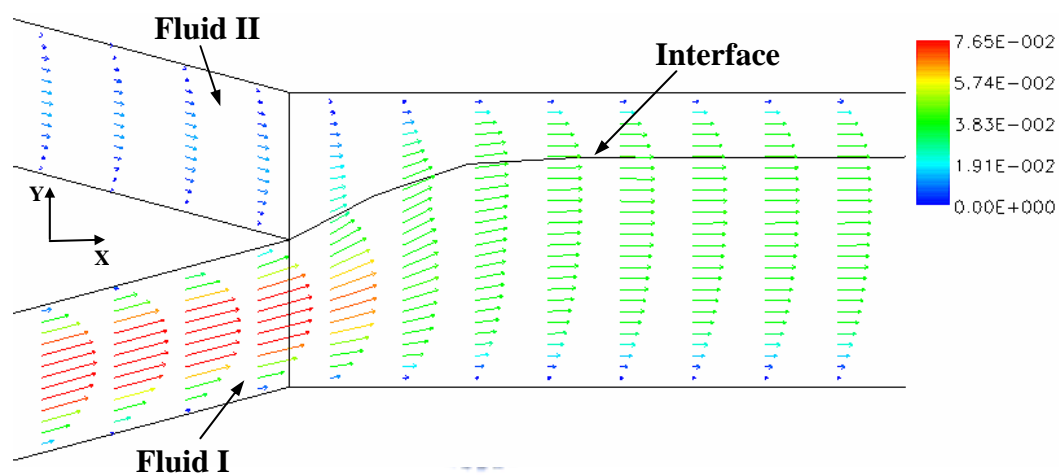


表 3-11 不同流量比之分析比較

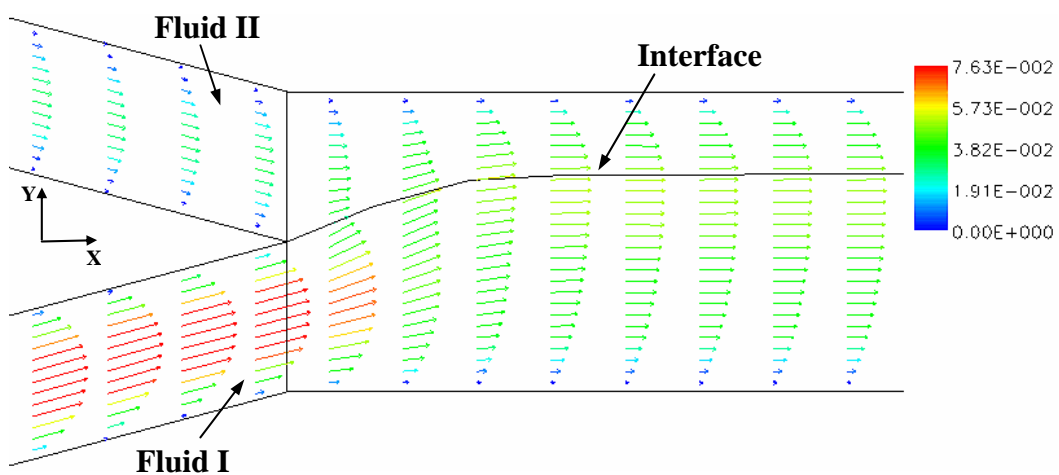
	Flow Ratio (Q_I/Q_{II})		
	13.2	5	3
Fluid II Thickness Ratio (%)	14.4	21.1	27.1
Outlet Encapsulation (%)	38.3	47.1	51.5
Interfacial Shear Stress (kPa)	9.11	5.73	3.41
Recirculation Velocity (m/s)	-2.35×10^{-4}	-3.29×10^{-4}	-3.97×10^{-4}



(a) $Q_I/Q_{II}=13.2$



(b) $Q_I/Q_{II}=5$



(c) $Q_I/Q_{II}=3$

圖 3-33 進料區塊流體匯流處之速度向量圖($z=0$)

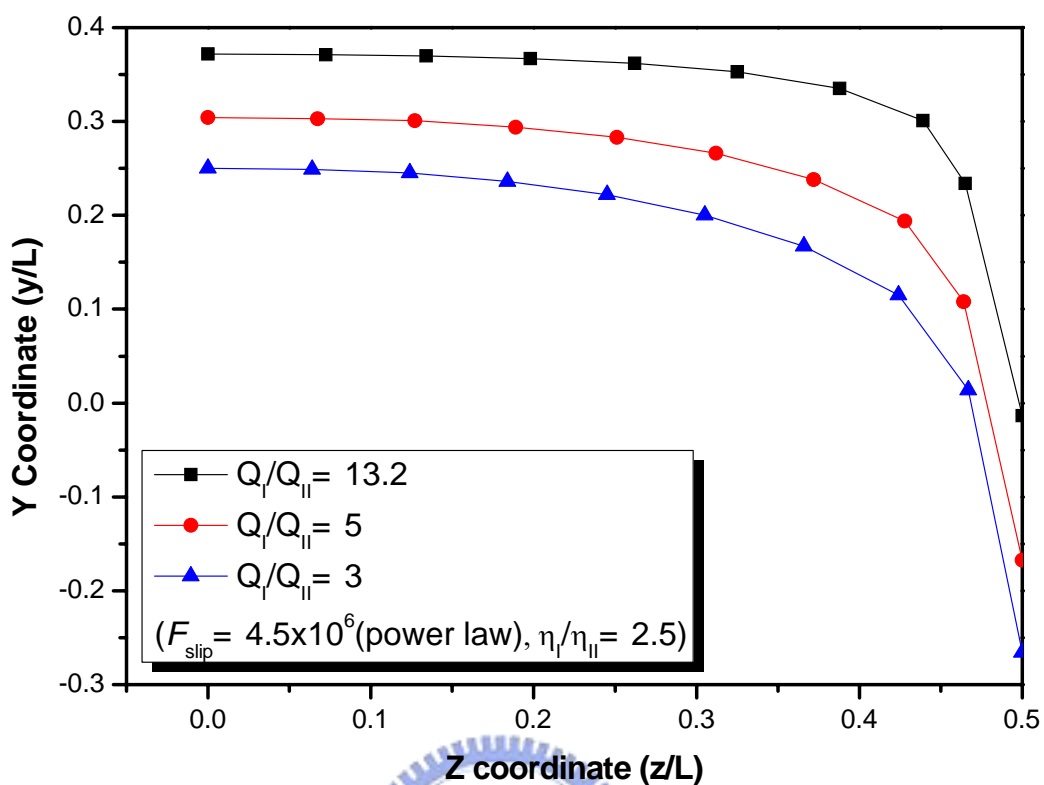


圖 3-34 不同流量比之出口界面位置比較圖

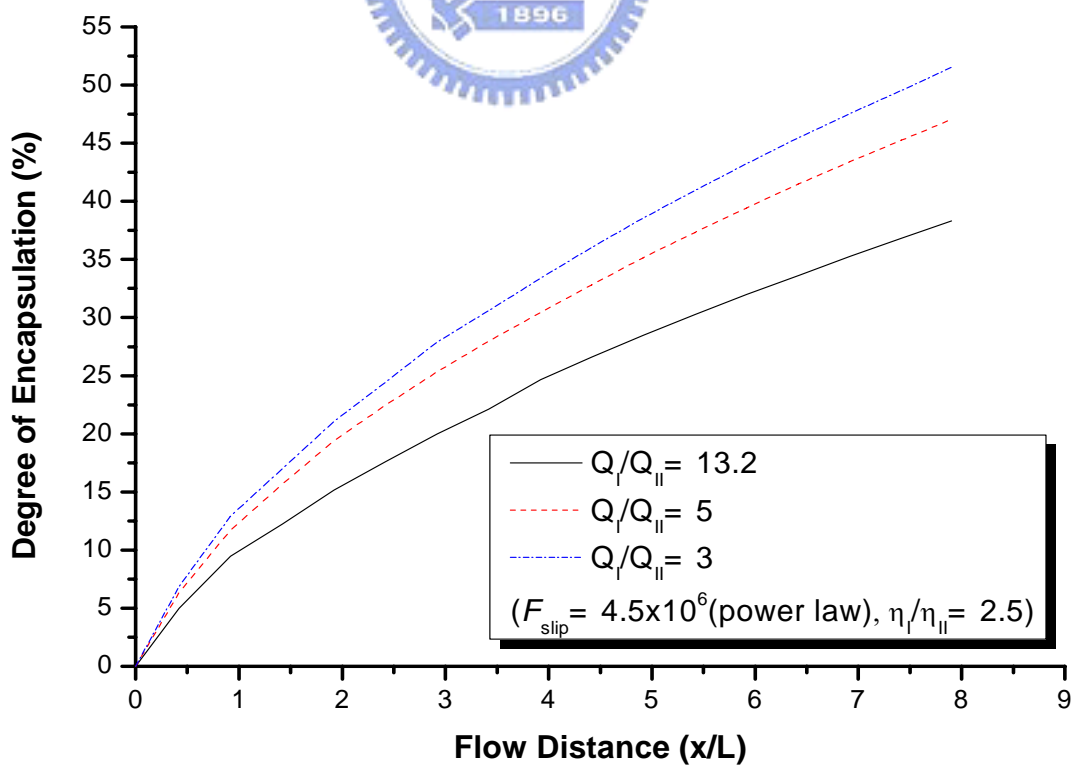


圖 3-35 不同流量比之包覆度比較圖

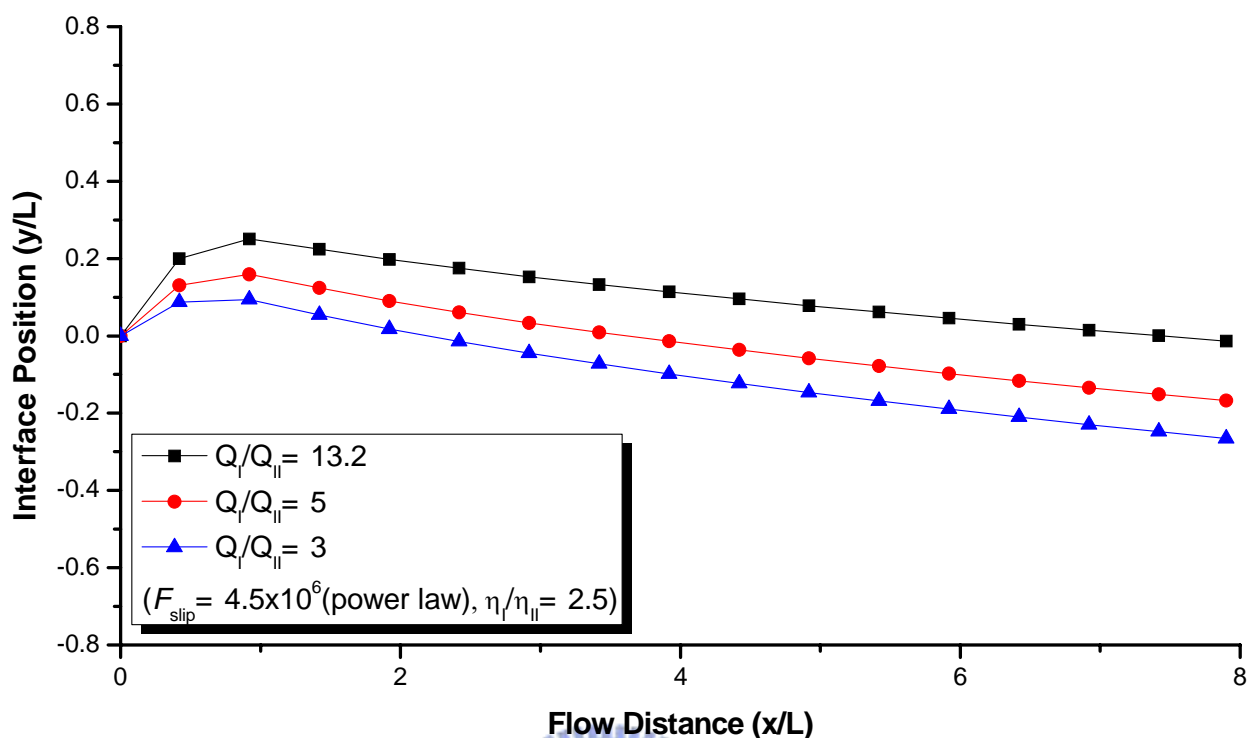
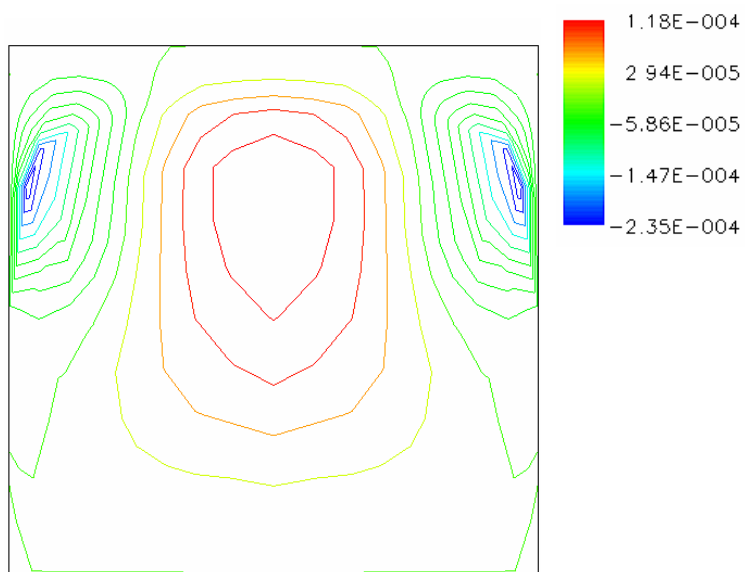
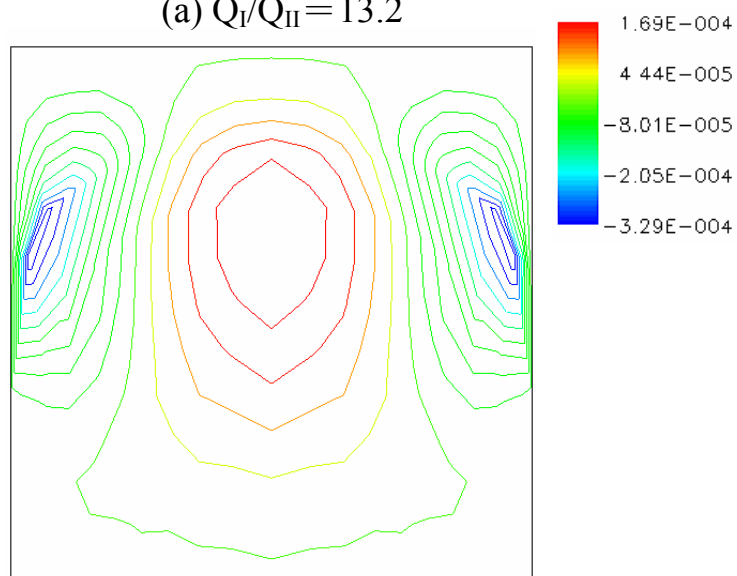


圖 3-36 不同流量比之壁面($z=0.5L$)接觸線位置比較圖

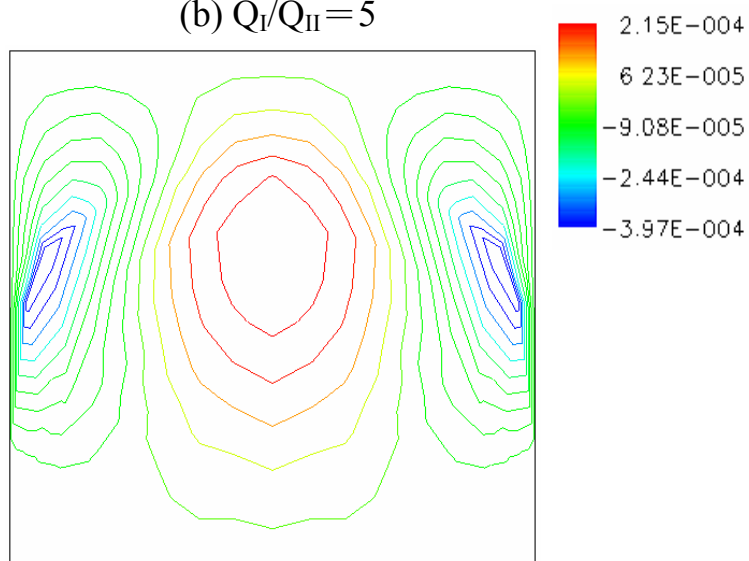
圖 3-38 為不同流量比下之界面剪切應力比較圖，可看出上層流量增加造成押出量上升，因此使得進料區塊內之剪切應力上升，但上層流量增加卻造成流體界面位置往下偏移，因此流量比越低則界面之剪切應力值亦越低，如表 3-11 所示。當流量比越低時，上層流量增加進而推擠流體界面位置往下偏移，使上層流體(Fluid II)厚度增加且流體界面遠離有較高剪切應力之壁面，因此流體界面間之剪切應力隨著流量比下降而降低，預期可藉此降低鋸齒形不穩定發生之可能性。



(a) $Q_I/Q_{II}=13.2$



(b) $Q_I/Q_{II}=5$



(c) $Q_I/Q_{II}=3$

圖 3-37 不同流量比之 Y 方向速度分佈圖

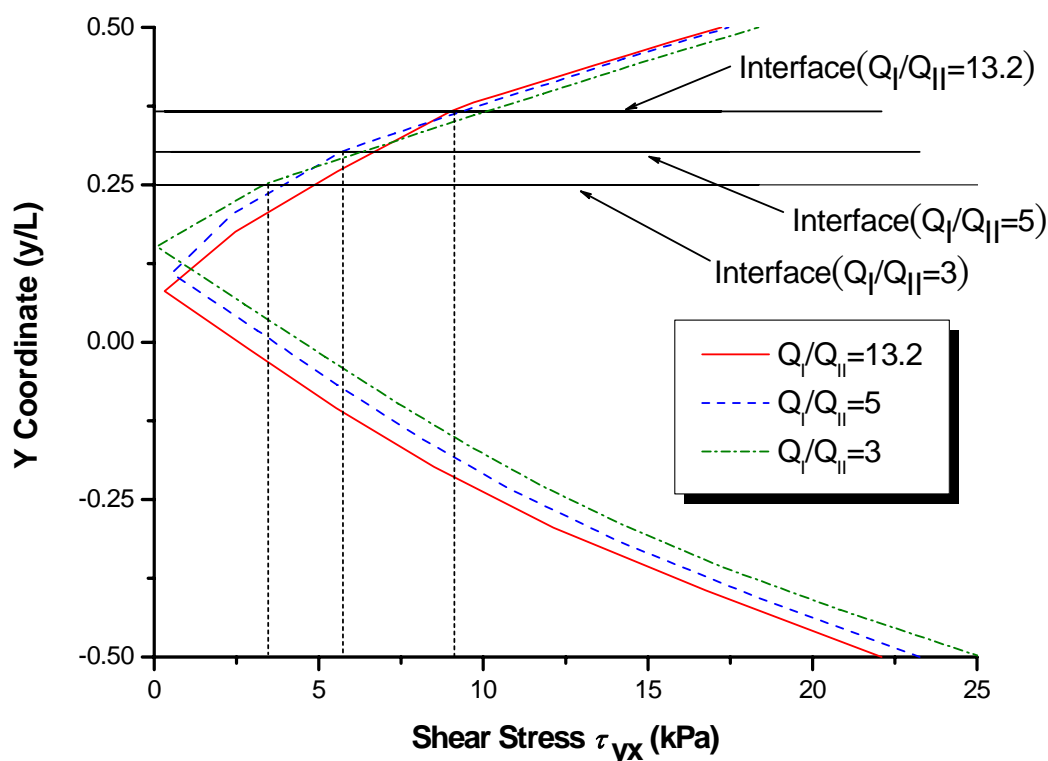


圖 3-38 不同流量比之界面剪切應力比較圖

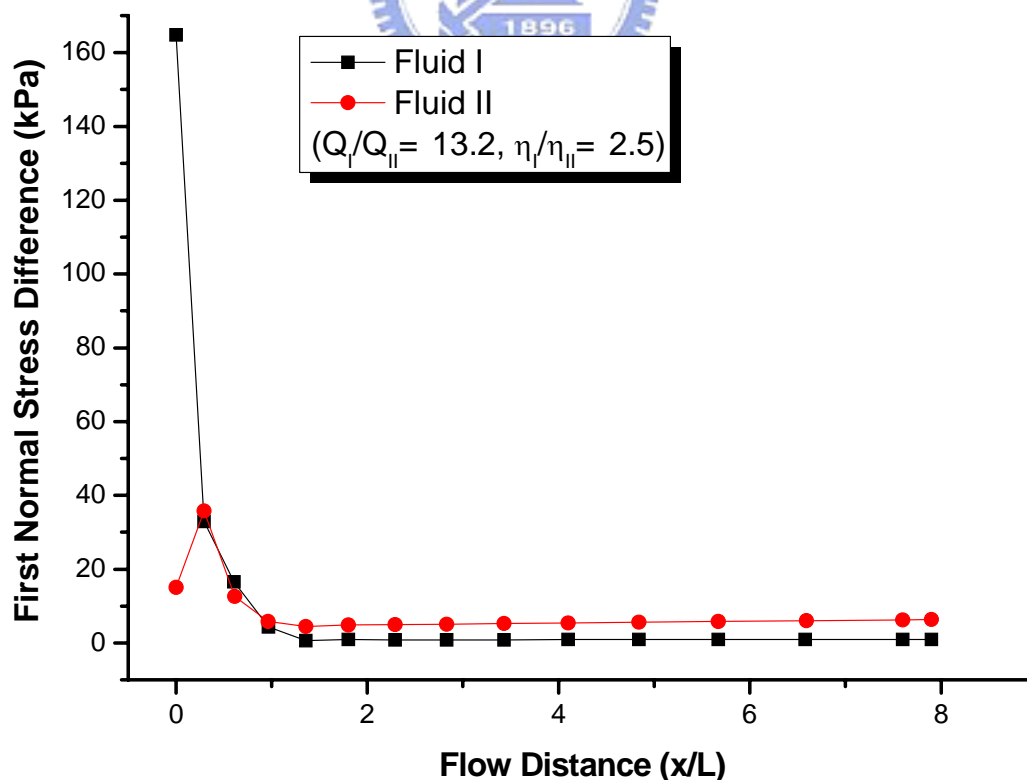
當流量差異極大時，流體在匯流處因互相擠壓而產生拉伸形變，在界面附近會造成上下流體有不同的正向應力(τ_{xx})，易造成波浪形不穩定現象產生，此節藉由改變不同流量比探討進料區塊匯流處之流體形變對波浪形流動不穩定現象之影響。

圖 3-39 至圖 3-41 分別為不同流量比時上下層流體於流體界面附近之第一正向應力差(N_1)變化圖，可看出在進料區塊匯流處($x=0L$)，上下層高分子流體皆有較大的第一正向應力差，而流量較高之下層流體(Fluid I)其第一正向應力差又較上層流體(Fluid II)高，但隨著流道長度增加，上層流體之第一正向應力差變為比下層流體高。上述現象是因為高分子流體在剛出各自流道後，因應力釋放會試圖恢復原狀而產生正向應力，而因上下層流體之流量差異將上層流體往上推擠，進而使得上層流體產生拉伸變形，但隨著流道長度增加，上層流體則逐漸釋放應力而產生較高的正向應力。由

圖中亦可看出，曲線前端較低之正向應力點即為進料區塊匯流處產生之流體推擠造成之現象，而隨著流量比下降此點之正向應力值也隨之上升，因上層流量增加會使上層流體產生較高之正向應力以及較不易受下層流體推擠產生拉伸形變。由圖 3-42 可看出流量比越低，上下層流體之 DN_1 差異越低， DN_1 定義為上下層流體第一正向應力差之差值($DN_1 = (N_1)_{\text{fluid II}} - (N_1)_{\text{fluid I}}$)，因此 DN_1 差異越低表示上下層流體於界面附近之正向應力越相近，可降低波浪形不穩定現象形成。表 3-12 為上述模擬結果整理。

表 3-12 雙層流體正向應力差異之分析比較

	Flow Ratio (Q_I/Q_{II})		
	13.2	5	3
First Normal Stress Difference N_1 (Fluid II, Merging Area) (kPa)	15.1	25.2	40.2
Outlet DN_1 (kPa)	5.4	2.7	1.2

圖 3-39 沿流動方向之第一正向應力差變化圖($Q_I/Q_{II}=13.2$)

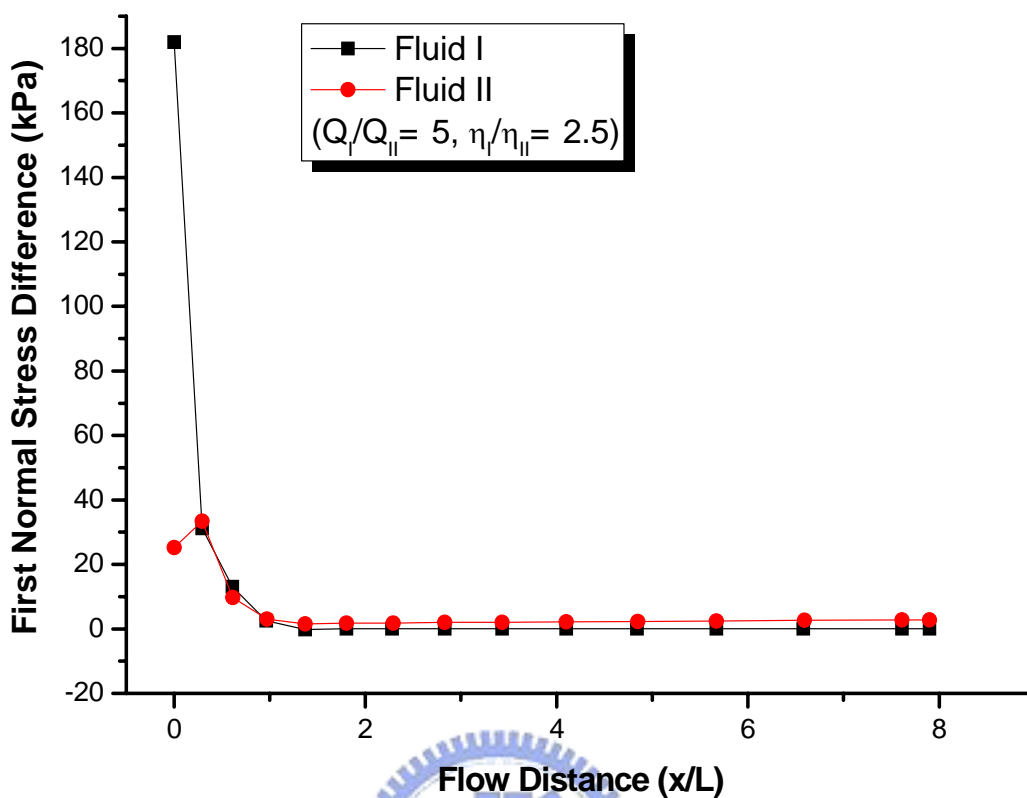


圖 3-40 沿流動方向之第一正向應力差變化圖($Q_I/Q_{II}=5$)

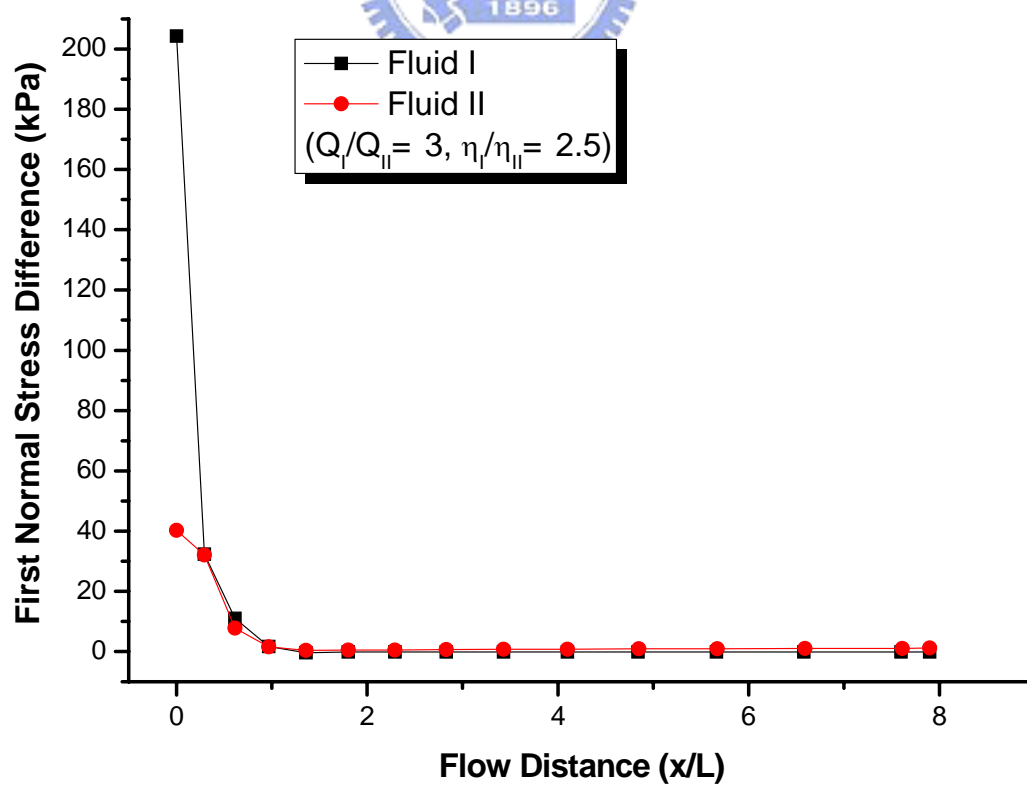


圖 3-41 沿流動方向之第一正向應力差變化圖($Q_I/Q_{II}=3$)

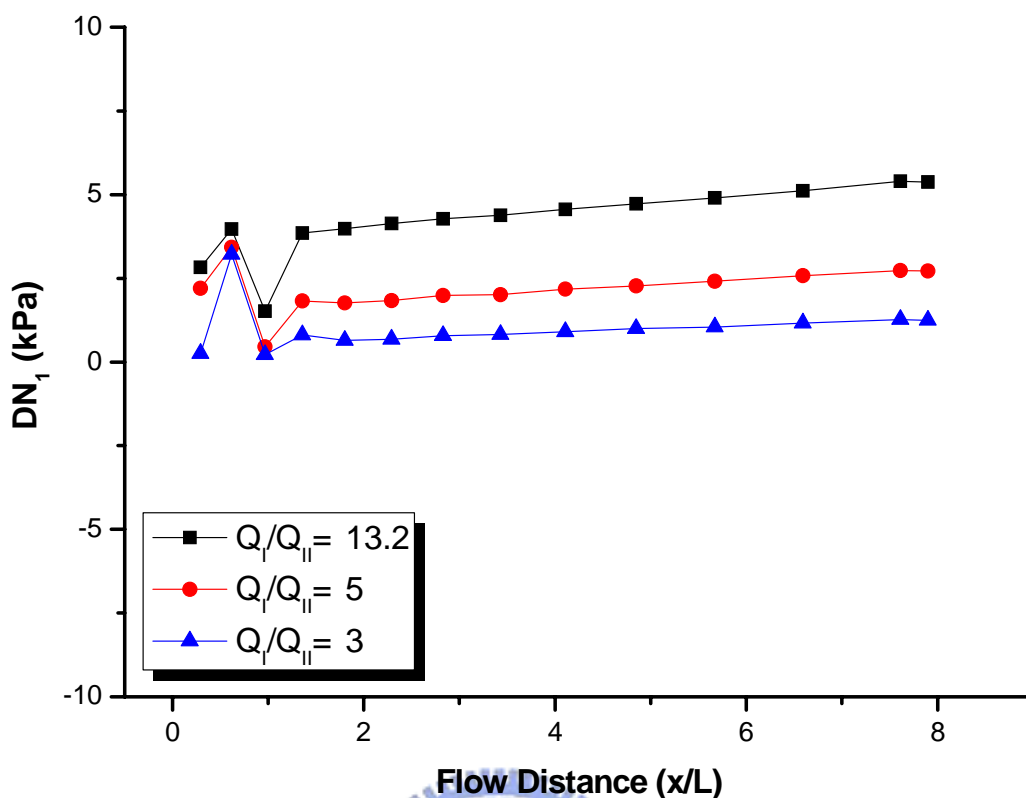


圖 3-42 沿流動方向之上下層流體 DN_1 變化圖

由上述研究可看出，當流量比越低時，上層高分子塑料流量較高，可避免因流體拉伸形變造成界面附近之正向應力差異，進而減緩波浪不穩定現象之產生。另外，由於流體界面位置遠離具有較高剪切應力之壁面，因此可減少界面之剪切應力，進而減緩鋸齒形不穩定現象之發生。但須注意的是低流量比時，界面彎曲包覆程度會較嚴重，故應使用較短之流道長度以避免此逐漸增加之包覆現象。而若整體押出量增加，會造成模具內剪切應力上升及流體黏彈性質越顯著，造成界面鋸齒形不穩定現象及流體界面包覆現象越嚴重。

3.4.3 滑動係數之影響

由前述研究可知不同滑動係數造成在壁面有不同之剪切應力值，而過去文獻中指出，流體界面間之剪切應力為鋸齒型不穩定現象生成之主要因素，故除了滑動係數對壁面剪切應力之影響外，本論文亦藉由改變壁面滑動係數來探討壁面光滑度對於界面之剪切應力影響，以期能改善鋸齒形 (zig-zag) 不穩定現象。

因左右壁面邊界設定不會影響壁面之剪切應力(τ_{yx})，故此小節之滑動邊界設定僅改變進料區塊上下壁面之滑動係數做比較，以避免流體界面接觸線(contact line)因滑動係數過小而產生往上偏移的情況，其餘設定則同上述研究，邊界設定如圖 3-43。

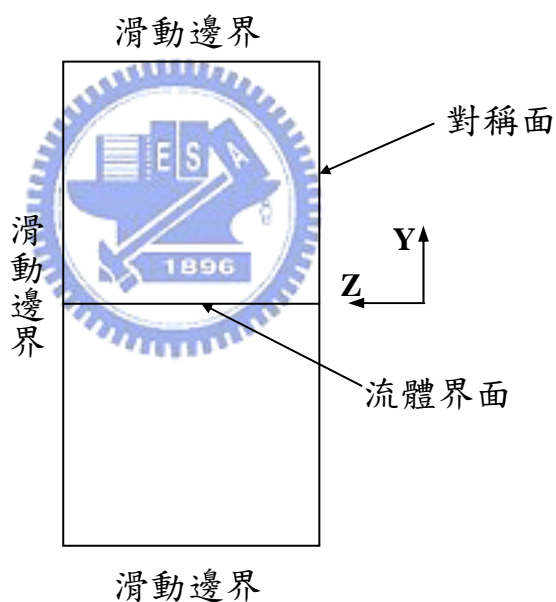


圖 3-43 進料區塊邊界設定示意圖

表 3-13 不同滑動係數設定之分析比較

	Slip Coefficient t (Power law slip model)		
	noslip	5×10^5	1×10^5
Wall Shear Stress (kPa)	22.1	19.6	9.3
Interfacial Shear Stress (kPa)	9.06	8.40	4.89
Outlet DN_1 (kPa)	5.52	4.64	1.35

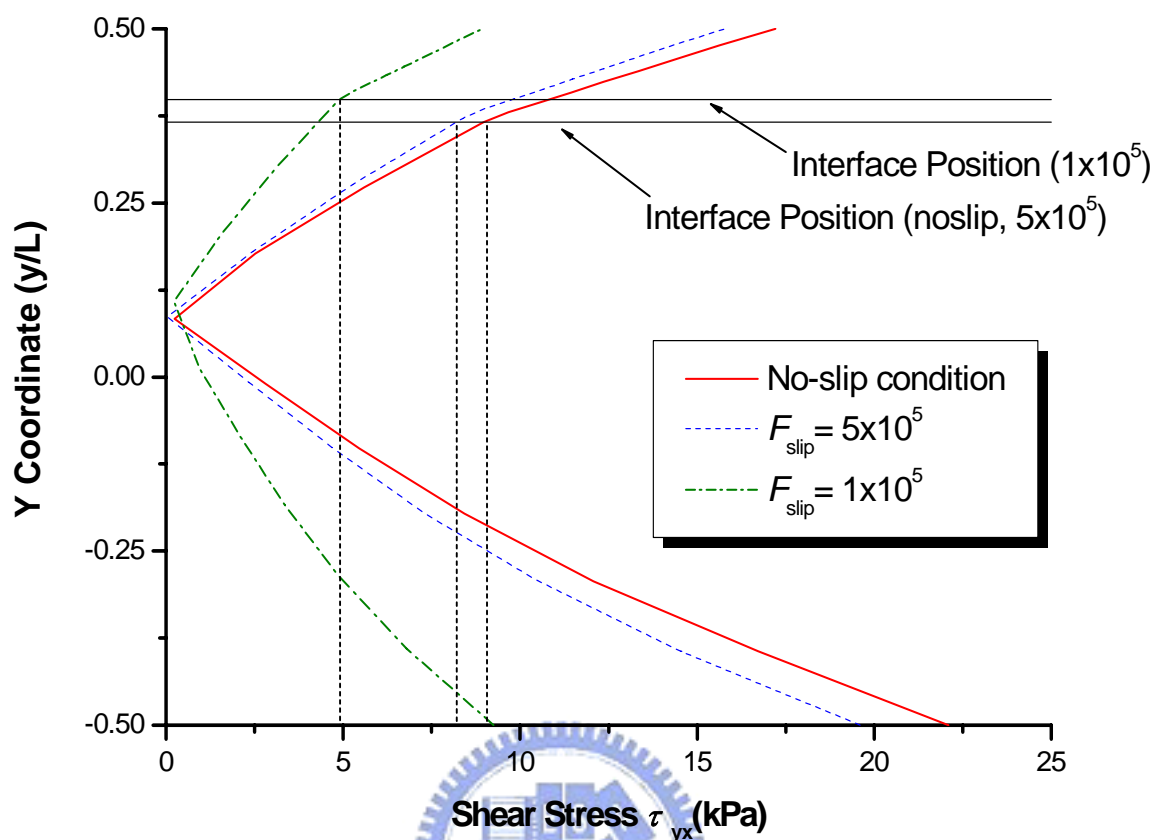


圖 3-44 不同滑動係數設定之界面剪切應力比較圖

表 3-13 及圖 3-44 為不同滑動係數設定下之界面剪切應力比較，可看出當滑動係數越低，流體剪切應力(τ_{yx})越低，而其界面剪切應力值亦越低，可避免鋸齒形不穩定產生。上述現象是因滑動係數越低表示流體於壁面越易產生滑移，而由前述研究可知當壁面滑動係數大則壁面之剪切應力越小，此現象亦間接影響流體界面之剪切應力，使其隨著滑動係數減小而降低。

圖 3-45 至圖 3-47 分別為不同滑動係數設定時上下層流體於流體界面附近之第一正向應力差(N_1)變化圖，可看出隨著滑動係數下降，流體界面附近之正向應力越低，而上下層流體之正向應力差亦隨著滑動係數而下降，因此可推測此現象亦是因壁面滑移而造成。

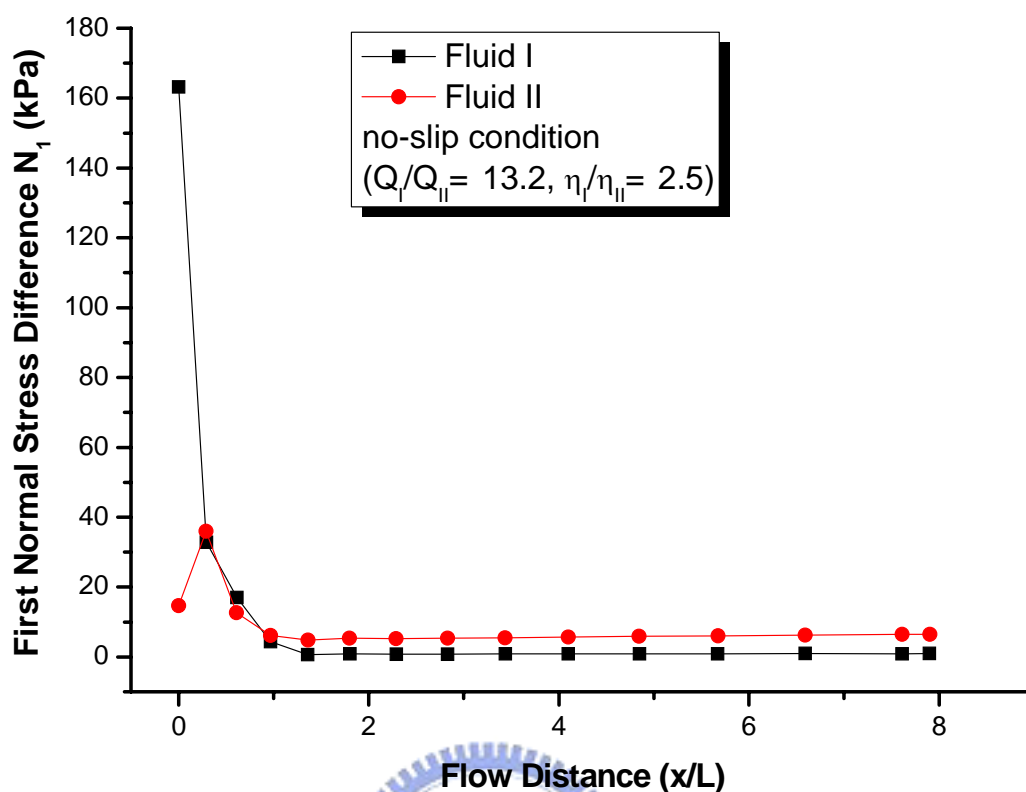


圖 3-45 沿流動方向之第一正向應力差變化圖(no-slip condition)

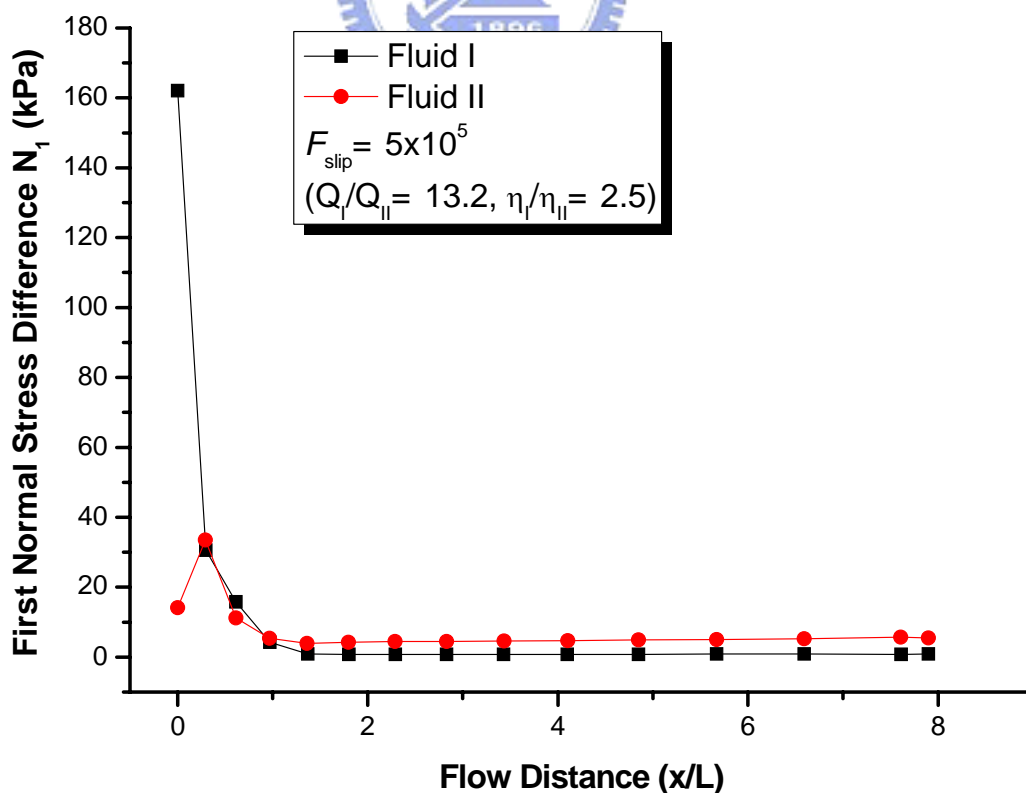


圖 3-46 沿流動方向之第一正向應力差變化圖($F_{slip} = 5 \times 10^5$)

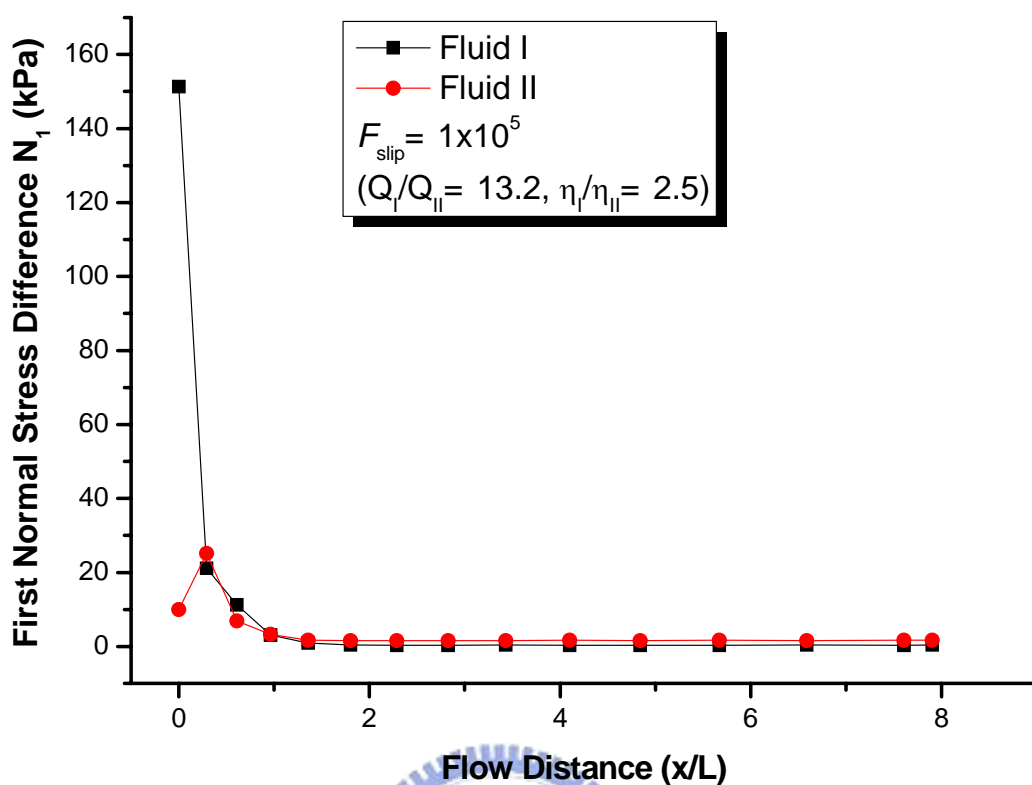


圖 3-47 沿流動方向之第一正向應力差變化圖($F_{slip} = 1 \times 10^5$)

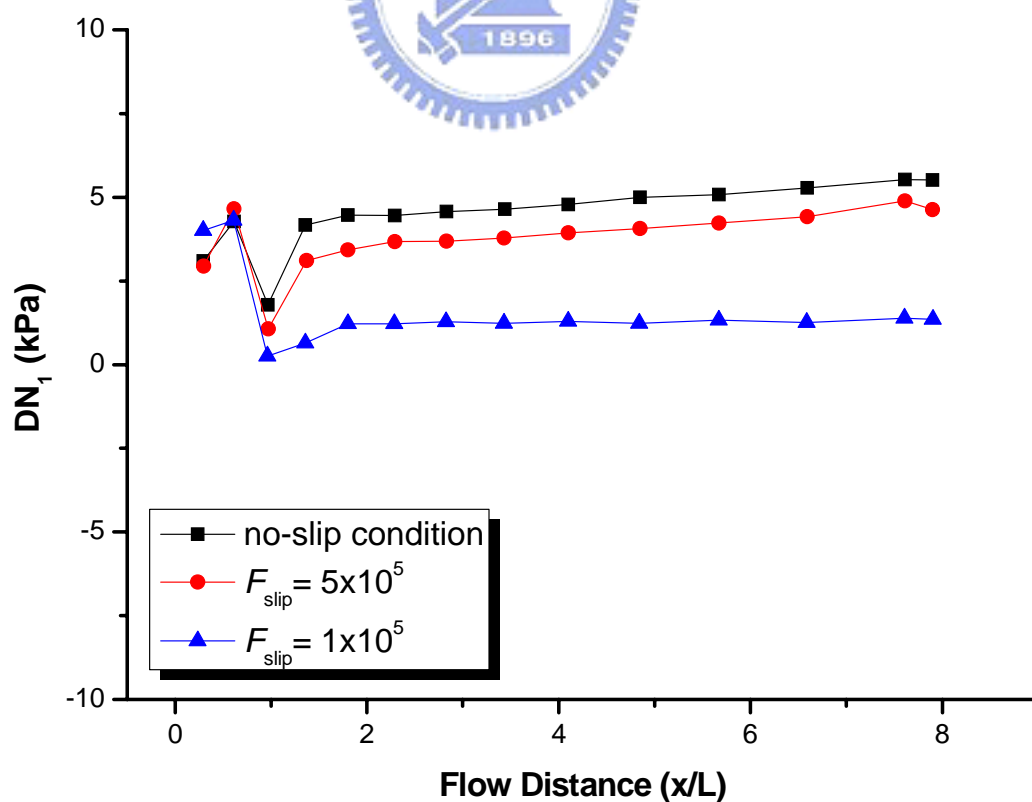


圖 3-48 沿流動方向之上下層流體 DN_1 變化圖

由圖 3-48 可看出當滑動係數越低，上下層流體之正向應力差之差值 DN_1 越低，表示上下層流體於界面附近之正向應力值越相近，而藉此可避免波浪形不穩定現象之形成。

由此小節之研究可知，藉由增加上下壁面之光滑度使流體在壁面產生滑移，因流體所受壁面阻力減少，流體所受拉伸變形亦減小，而相較於粗糙壁面，流體表現出不同之流動特性，雙層流體間之界面剪切應力值及正向應力差皆因此降低，在共押出製程中可藉此避免流體界面不穩定現象發生。



四、結論

本論文進行進料區塊(feedblock)內流動之三維有限元素模擬，並於模壁面使用滑動邊界設定，相較於其他文獻中使用外插法求取壁面接觸線之模擬結果，本論文採用滑動邊界設定可得到較接近實驗值之模擬結果。而相對於使用牛頓流體或泛牛頓流體模型，本論文採用 Giesekus 黏彈模型 (Giesekus viscoelastic model) 將高分子塑料黏彈性質之影響考慮其中，更有效的模擬出了高分子流體之黏彈流動特性。本論文亦針對共押出製程中之三項主要製程問題及缺陷進行一系列之討論。

本論文針對 Giesekus 黏彈模型中代表流體第二正向應力差性質之流變參數 α 進行一系列之討論，由本論文之研究可清楚看出第二正向應力差 (second normal stress difference) 對於雙層共押出流體界面之影響，亦證實文獻中之論點。當 Giesekus 黏彈模型中之流變參數 α 越大，流體之第二正向應力差性質越明顯，且若上下層流體之 α 值相差越大，則此現象越更加明顯，而此性質造成逐漸增加之界面包覆現象越為嚴重，大大影響界面之均勻性。因此在進行高分子共押出時，需對於塑料之流變特性有相當的了解，以避免界面不均勻性之問題產生。

本論文亦發現流量比對鋸齒形不穩定現象有極大影響，當流量比越低時，上層流量增加進而推擠流體界面位置往下偏移，使上層流體 (Fluid II) 厚度增加且流體界面遠離有較高剪切應力之壁面，因此流體界面之剪切應力隨著流量比下降而降低。而當流量差異極大時，流體在匯流處因互相擠壓而產生拉伸形變，在界面附近會造成上下流體有不同的正向應力 (τ_{xx})，此不同之正向應力即為造成波浪形不穩定發生之原因。本論文發現流量比越低，上層高分子塑料流量較高，上下流體正向應力之差異越低，藉此可降低波浪形不穩定現象形成。但須注意的是低流量比時，界面彎曲包覆程

度會較嚴重，而若整體押出量增加，會造成模具內剪切應力上升及流體黏彈性質越顯著，造成界面鋸齒形不穩定現象及流體界面包覆現象越嚴重。

本論文藉由改變壁面滑動係數來探討壁面光滑度對於雙層流體間之正向應力差及界面剪切應力之影響，研究發現隨著滑動係數減小，雙層流體間之正向應力差及界面剪切應力皆隨著降低，因此藉由增加上下壁面之光滑度使流體在壁面產生滑移，可減少共押出製程中進料區塊雙層流體間之界面剪切應力值及正向應力差，以避免流體界面不穩定現象發生。

本論文與其他模擬文獻之比較，可看出相較於文獻中使用外插法求取壁面接觸線之模擬結果，本論文採用滑動邊界設定可得到較接近實驗值之模擬結果，但比較文獻實驗結果呈現之界面彎曲包覆仍有誤差，亦發現本論文在 6.71L 處之流體界面形狀與實驗之 3.37L 處之流體界面相符合，因此若能改善採用精確之流體流變參數及黏彈流動模型，以及更有效之出口邊界條件，應能大大改善模擬精確度。



參考文獻

1. Toporek, A., Blown Nylon/EVOH Film Coextrusion Made Via a 5-Layer Die, Coex'85, 1985.
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. Karagiannis, A., Coextrusion of Polymer Melts, *Rheological Fundamental of Polymer Processing*, ed. A., C.J., Kluwer Academic Publishers, 265.1995.
5. Schrenk, W.J. and Pinsky, J., Coextruded Iridescent Film, *AGARD Conference Proceedings*, 141-145, 1976.
6. Mavridis, H. and Shroff, R.N., Multilayer Extrusion - Experiments and Computer-Simulation, *Polymer Engineering and Science*, 34, 559-569, 1994.
7. Ramanathan, R., et al., 'Wave' Pattern Instability in Multilayer Coextrusion - An Experimental Investigation, *Annual Technical Conference - ANTEC, Conference Proceedings*, 1, 224-228, 1996.
8. 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.
9. 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.
10. 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.
11. Dooley, J. and Hilton, B.T., Layer Rearrangement in Coextrusion, *Plastics Engineering*, 50, 25-27, 1994.
12. Dooley, J. and Dietsche, L., Numerical Simulation of Viscoelastic Polymer Flow - Effects of Secondary Flows on Multilayer Coextrusion, *Plastics Engineering*, 52, 37-&, 1996.

13. 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.
14. 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.
15. Han, C.D., *Multiphase Flow in Polymer Processing*, Academic Press, 1981.
16. Southern, J.H. and Ballman, R.L., Stratified Bicomponent Flow of Polymer Melts in a Tube, *Applied Polymer Science*, 20, 175-189, 1973.
17. Schrenk, W.J. and Alfrey, T., *Coextruded Multilayer Polymer Films and Sheets, Polymer Blends*, Academic Press, New York, 1978.
18. 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.
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. Everage, A.E., Jr., Theory of Stratified Bicomponent Flow of Polymer Melts. I. Equilibrium Newtonian Tube Flow, Transactions of the Society of Rheology, 17, 629-646, 1973.
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. 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.
46. 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.
-

-
47. Gifford, W.A., A Three-Dimensional Analysis of Coextrusion, *Polymer Engineering and Science*, 37, 315-320, 1997.
48. Dooley, J. and Rudolph, L., Viscous and Elastic Effects in Polymer Coextrusion, *Journal of Plastic Film & Sheeting*, 19, 111-122, 2003.
49. 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.
50. Uwaji, T. and Legat, V., Numerical Analysis on Wrap Around Phenomena of Stratified Two Phase Flow, *JSPF'97 Symp Papers*, 1997.
51. Takase, M., Kihara, S., and Funatsu, K., Three-Dimensional Viscoelastic Numerical Analysis of The Encapsulation Phenomena in Coextrusion, *Rheologica Acta*, 37, 624-634, 1998.
52. Tanner, R.I., *Computer Simulation of Plastics Extrusion*, 59-63, 1986.
53. Mitsoulis, E., Extrudate Swell in Double-Layer Flows, *Journal of Rheology*, 30, S23-S44, 1986.
54. Mavridis, H., Hrymak, A.N., and Vlachopoulos, J., Finite-Element Simulation of Stratified Multiphase Flows, *AIChE Journal*, 33, 410-422, 1987.
55. 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.
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. Torres, A., et al., Boundary Conditions for Contact Lines in Coextrusion Flows, *Rheologica Acta*, 32, 513-525, 1993.
59. Hatzikiriakos, S.G. and Dealy, J.M., Wall Slip of Molten High-Density Polyethylene .I. Sliding Plate Rheometer Studies, *Journal of Rheology*, 35, 497-523, 1991.
60. Hatzikiriakos, S.G. and Dealy, J.M., Wall Slip of Molten High-Density

- Polyethylenes II. Capillary Rheometer Studies, *Journal of Rheology*, 36, 703-741, 1992.
- 61.Hatzikiriakos, S.G. and Dealy, J.M., Role of Slip and Fracture in the Oscillating Flow of Hdpe in a Capillary, *Journal of Rheology*, 36, 845-884, 1992.
- 62.Hatzikiriakos, S.G., A Slip Model for Linear-Polymers Based on Adhesive Failure, *International Polymer Processing*, 8, 135-142, 1993.
- 63.Hatzikiriakos, S.G. and Dealy, J.M., Effects of Interfacial Conditions on Wall Slip and Sharkskin Melt Fracture of HDPE, *International Polymer Processing*, 8, 36-44, 1993.
- 64.Ramamurthy, A.V., Wall Slip in Viscous Fluids and Influence of Materials of Construction, *Journal of Rheology*, 30, 337-357, 1986.
- 65.Gifford, W.A., The Effect of Wall Slip on the Performance of Flat Extrusion Dies, *Polymer Engineering and Science*, 41, 1886-1892, 2001.
- 66.Bird, R.B., Armstrong, R.C., and Hassager, O., Dynamics of Polymeric Liquids, 2nd Edition ed. Vol. Volume 1, Fluid Mechanics, Wiley, New York.1987.
- 67.Navier, C.L.M.H., Sur les lois du mouvement des fluides, *Mem. Acad. R. Sci. Inst. Fr.*, 6, 389-440, 1827.
- 68.Polyflow User's Manual 3.10.0, Fluent. Inc, Lebanon, NH, USA
- 69.Sizaire, R., Numerical Study of Free Surface Newtonian and Viscoelastic Flows, Université catholique de Louvain, Belgium, PhD Thesis, 119, 1998.
- 70.Sunwoo, K.B., et al., Three-dimensional viscoelastic simulation of coextrusion process: comparison with experimental data, *Rheologica Acta*, 41, 144-153, 2002.