

共射成型中纖維配向的動態變化與其對產品品質影響之研究
Dynamic Variation of the Fiber Orientation and Its Influence on the Product Quality in Co-injection Molding

陳宣璋¹、黃招財^{1*}、林國廣¹、徐志忠²、周祐陞²、許嘉翔²、曾世昌³
Xuan-Wei Chen¹, Chao-Tsai (CT) Huang^{1*}, Gwo-Geng Lin¹, Chih-Chung Hsu², Tim Chou²,
David Hsu², and Shi-Chang Tseng³

¹ 淡江大學化學工程與材料工程學系

¹ Department of Chemical and Materials Engineering, Tamkang University

² 科盛科技股份有限公司研發部

² R&D Department, CoreTech System Co. Ltd

³ 國立雲林科技大學機械工程系

³ Department of Mechanical Engineering, National Yunlin University of Science Technology

*Corresponding author email: cthuang@moldex3d.com; cthuang@mail.tku.edu.tw

摘要

近年來由於產業輕量化技術的快速進展，以纖維強化塑膠為基材之複合材料產品已經廣泛地應用於產業中，然而使用後含纖維之強化塑膠如何回收的問題已逐漸造成全球環境的衝擊。為此，能兼顧回收應用的共射成型技術(co-injection technology)持續受到許多人之關注，具體而言，我們可以利用內部芯層(core-layer)為回收之含纖維強化塑膠(fiber reinforced thermoplastics, FRT)材料，並使用純料為皮層(skin-layer)，以確保產品外觀特性。然而，共射技術如何有效控制皮層與芯層中間界面，以及材料內之纖維微結構特性如何變化並影響產品特性，至今仍是一項挑戰。為此，本研究之目的是希望透過模擬分析(Moldex3D)與實驗研究方法，以標準拉伸試片(ASTM D638 TYPE V)為系統，探討共射製程中內部玻璃纖維排向與機理的影響。研究結果顯示，透過基本共射充填分析，皮/芯層比例為 60/40 時具有良好之芯層滲透分佈；接著我們利用 Moldex3D 同時針對單射及共射系統進行玻璃纖維動態變化探討時發現，當固定在試片上游量測時，單射玻璃纖維排向變化並不明顯，然而共射系統之玻璃纖維排向變化相當大，特別是核心區段產生玻璃纖維完全亂排區域($A_{11}=A_{22}=A_{33}$)，此等完全亂排區域隨著充填時間越長，將由 40%擴增至 70%，可見共射皮層之存在對玻璃纖維排向影響很大。另外，為進一步確認此等現象，我們也進行實驗試模驗證。首先進行共射芯層滲透變化行為確認；接著利用光學顯微鏡進行玻璃纖維排向檢視，我們發現共射試片之玻璃纖維排向行為定性上與模擬分析相當吻合；最後我們進行拉伸試驗發現利用共射製程之試片因具有較差之排向，導致拉伸應力下降約 4%，然而此等較雜亂之玻璃纖維排向未來將有力於衝擊強度之需求。此項研究對於含纖維之強化塑膠回收，以及後續利用纖維排向調控產品不同機械強度將有非常正面之意義。

關鍵詞：含纖維之強化塑膠、共射成型、纖維排向、皮/芯層比例

Abstract

In recent years, due to the rapid development of industrial lightweight technology, composite materials based on fiber reinforced plastics (FRPs) have been widely used in the industry. However, the environmental impact of the FRPs is obtained greatly attention year by year. To overcome this impact, co-injection molding might be one of the good solutions. But how to make the suitable control on the skin/core ratio and to manage the glass fiber orientation features and their influence in the recycling of the FRPs products are still very challenge. In this study, we have applied both CAE simulation (utilized Moldex3D) and experimental study to investigate the core-layer penetration behavior and the fiber orientation variation dynamically on the single-shot and co-injection molding based on the standard tensile bar (ASTM D638 TYPE V) system. Results show that the skin/core = 60/40 can provide suitable core-layer penetration without blow-through numerically and experimentally. Moreover, comparing to the single-shot molding, the center portion on the sensor node A in thickness direction presents a fully random fiber orientation region (i.e., $A_{11}=A_{22}=A_{33}$) in co-injection molding at the same operation conditions. That fully random fiber orientation region is extended from 40% to 70% in thickness direction from t_1 to end of filling. To further verify the fiber orientation changed, we have sliced the testing specimens in three directions and observed the fiber orientation using polarized optical microscope (POM). It showed that the random fiber orientation feature is more significantly in in co-injection system. Furthermore, we also performed a tensile testing for the single-shot and co-injection molding specimens. Results show that the co-injection molding specimens exhibit a lower tensile stress by 4% due to the lower fiber orientation in flow direction. The experimental observation is consistent with that of numerical prediction in fiber orientations and their influence in co-injection molding.

Keywords : fiber reinforced plastics (FRPs), co-injection, fiber orientation, skin-to-core ratio

1. 前言

塑膠產品與日常生活應用已密不可分，在各個產業中的需求也相當可觀，其中，纖維複合材料因具備質量輕、高強度和耐衝擊等特性，近幾年來使用持續增長，特別是汽車與航太產業應用[1]，但大量使用後之含纖維強化塑膠之回收與處理，將會是我們之大挑戰，因為其先天特性問題，纖維強化塑膠回收再利用技術困難度遠比一般塑膠來得困難許多；另外一項值得我們去注意的議題是，全球領先的對於複合材料的創新應用研究團隊針對纖維強化塑膠的回收利用在 2016 年訂出目標，希望在 2020 年時，有 80% 之含纖維複合材料能被回收再利用[2]。為了達成此等艱鉅的回收工作，或許共射成型(co-injection)是一項良好又實務之技術，因為從產業現況，每年都有許多產品是利用共射成型(co-injection)來製作，例如：為提供良好觸感，表皮層(skin layer)使用較柔軟的材料，而芯層(core layer)則使用堅韌的材料，提供良好機械性質，此類產品常見於耳機、手把；或是皮層是使用新的塑料，而內部則使用再生的回收料或是使用含纖維強化塑膠(fiber reinforced thermoplastics, FRT)材料作為芯層，等等的組合[3]。然而，共射製程與產品仍然面臨許多問題，比如：如何控制合適的皮/芯層材料分佈，以及針對玻璃纖維複合材料所顯示維微結構特性如何變化並影響產品特性，等等都將深切影響但至

今仍無法有效掌握。為此，本研究希望藉由對共射成型(co-injection)能深入探索，進而能掌握其機理，之後能進一步應用於處理含纖維強化塑膠之回收應用。為能有效切入此研究，我們已進行許多文獻搜尋與探討，首先針對共射成型操作條件之影響，Seldén[4]使用了五種不同的控制參數，分別為：射出速度、模具溫度、皮芯層溫度、芯層含量作為變因，研究結果得知芯層含量是造成產品吹穿的主要因素。然而，在共射成型中，重要的是獲得皮層和芯層適當的分佈，皮芯層的分佈深受充填過程中的熔體流動行為影響，然而，在實際操作上，共射成型過程中非常複雜，使得共射產品與模具開發的挑戰越來越大，過於複雜的共射產品往往會導致芯層的充填出現缺陷。之後，Yang 等人[5]使用了不平衡的流道設計進行研究，藉此了解到低黏度材料比高黏度材料更容易達到均衡填充，且流道分支處的流動行為深受射出速度的影響。再則，Chien 等人[6]在其研究論文中，指定了不同的皮/芯層材料組合，並藉以了解到材料差異如何影響皮層與芯層之界面，從研究結果發現，皮層料黏度低而芯層黏度高，會形成較長且較窄之中間界面，再者，不同材料組合芯層分布差異，主要原因是起因於介於界面兩邊不同之皮層/芯層材料剪切應力差異所導致。之後，Tzeng [7]進一步量化滲透長度，將模擬分析的部分以數值呈現，並比較許多材料物理特性，發現黏度變化與皮芯層界面的滲透長度變化具有一致之特性。如同前述，共射成型有著複雜皮/芯層內部機制，但因應回收之含纖維強化塑膠之應用，至今我們尚未完全了解共射成型的材料內之玻璃纖維微結構特性如何變化並影響產品特性。在本研究中，我們將使用單射與共射系統，探討皮層與芯層熔膠內在的纖維排向動態變化。最後，我們也進行實驗的驗證以確認數值分析模擬的正確性。

2. 理論背景與數值方法

本研究是利用Moldex3D R16[®]軟體進行數值模擬，皮層及芯層高分子材料皆為廣義的可壓縮牛頓流體，並忽略熔體前緣的表面張力。整體流動之三維非等溫暫態行為之主控方程式為：

質量守恆方程式

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot \rho u = 0 \quad (1)$$

動量守恆方程式

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho u) + \nabla \cdot (\rho u u + \tau) = -\nabla p + \rho g \quad (2)$$

能量守恆方程式

$$\rho C_p \left(\frac{\partial T}{\partial t} + u \cdot \nabla T \right) = \nabla \cdot (k \nabla T) + \eta \dot{\gamma}^2 \quad (3)$$

其中 ρ 為密度； u 為速度向量； t 為時間； τ 為總應力張量， p 為壓力； η 為黏度； C_p 為比熱； T 為溫度； k 為熱傳導係數； $\dot{\gamma}$ 為剪應率。對於高分子熔體，其應力張量可表示為

$$\tau = -\eta(\nabla u - \nabla u^T) \quad (4)$$

黏度則是用Modified-Cross model來表示

$$\eta(T, \dot{\gamma}) = \frac{\eta_0(T)}{1 + \left(\frac{\eta_0 \dot{\gamma}}{t^*}\right)^{1-n}} \quad (5)$$

$$\text{及 } \eta_0(T) = B \exp\left(\frac{T_b}{T}\right) \quad (6)$$

其中n為冪次定律指數(power law index)； η_0 為零剪切黏度； τ^* 則是描述黏度曲線中冪次定律區及零剪切黏度間的過度區域。

另外，在此引入體積分數函數來描述聚合物及空氣間界面(i=1)和皮層芯層間的界面(i=2)的變化，其中 $f_i = 0$ 定義為未充填區域； $f_i = 1$ 為完全充填區域； f_i 值界於0和1之間時則代表界面前端的位置。 f 隨著時間變化則以以下方程式來表示

$$\frac{\partial f_i}{\partial t} + \nabla(u f_i) = 0 \quad (7)$$

3. 研究之模型與相關資訊

3.1 數值模擬分析與相關幾何模型資訊

本研究之產品幾何模型及尺寸如圖1所示，其中產品(模穴)之尺寸長度為63.5 mm、寬9.53 mm、及厚度為3.5 mm的ASTM D638標準試片系統當基礎；水路與模座配製圖，如圖2所示。再則，共射成型與單射成型主要的操作條件為：充填0.3 Sec、料溫230°C、模溫35°C，實驗材料使用PP Globalene SF7351 (+30% Short Fiber)為玻璃纖維材料，其它成型條件如表1與表2所示。另外，為了研究在皮/芯層流動的情形與內在之纖維微結構動態變化與其效應，我們特別在ASTM D638標準試片上選定三個區域，並且置入感測節點，其中感測點量測位置分別在靠近澆口(A點)，試片中心(B點)，末端(C點)，如圖3(a)所示；再則，當芯層抵達節點A時，充填時間為 t_1 ，如圖3(b)所示；抵達節點B為時間 t_2 ，如圖3(c)所示；當抵達節點C為時間 t_3 (充填結束)，如圖3(d)所示。

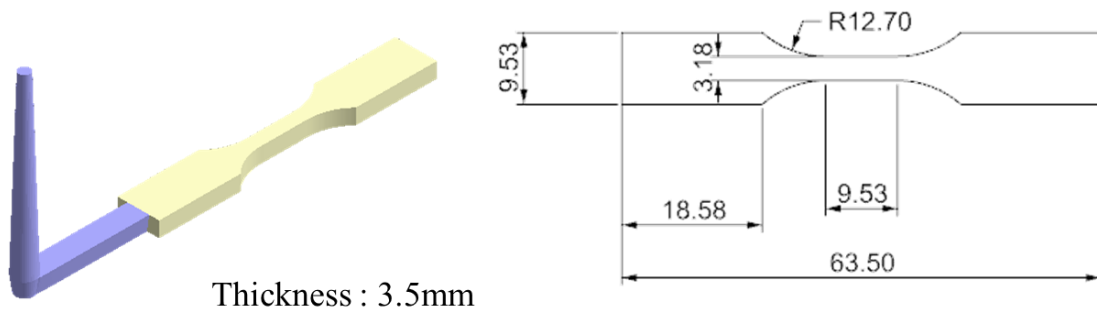


圖1 產品幾何模型及尺寸

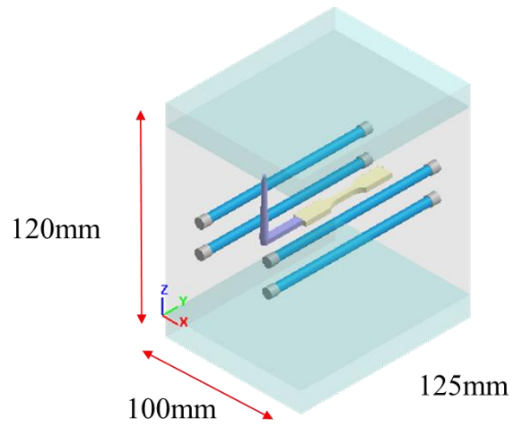


圖2 水路與模座配製圖

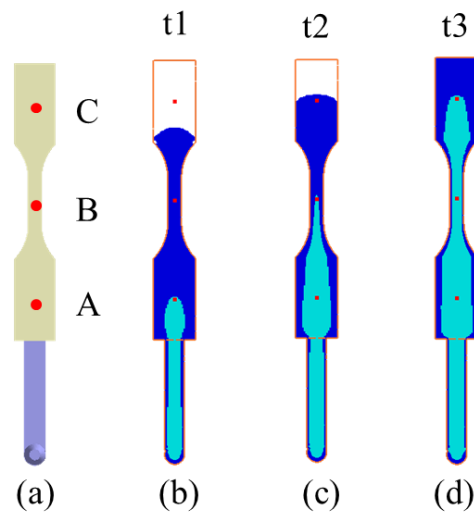


圖3 感測節點分布圖: (a)感測節點分布位置, (b)皮/芯層界面抵達節點A, (c)皮/芯層界面抵達節點B, (d)皮/芯層界面抵達節點C

表 1 共射成型參數設定

材料	skin layer : PP Globalene SF7351(+30% short fiber) core layer : PP Globalene SF7351(+30% short fiber)
充填時間	0.3(sec)
最大流率	10(cm ³ /sec)
料溫	230(°C)
模溫	35(°C)
射出壓力	70(%)
芯層材料進入時間	By volume(%) 60%

表 2 單射成型參數設定

材料	PP Globalene SF7351(+30% short fiber)
充填時間	0.3(sec)
料溫	230(°C)
模溫	35(°C)
射出壓力	70(%)
保壓時間	3(sec)

3.2 實際實驗研究與相關資訊

實際共射實驗之模具與設備系統，精簡說明如下。如圖4為共射機台系統，該系統包括兩個各別獨立可供料、塑化、以及射出之螺桿系統，因此可各別提供皮層及芯層之熔膠；另外，圖5為模具系統，該幾何與尺寸大小與CAE模擬分析系統完成相同，如圖1所示。再則，為了實際驗證產品內纖維排向，實務上我們如同數值模擬分析定義將產品切面，並利用光學顯微鏡進行實際之觀察與研究，期盼能定性地掌握纖維在皮層及芯層排向狀況。



圖4 共射機台

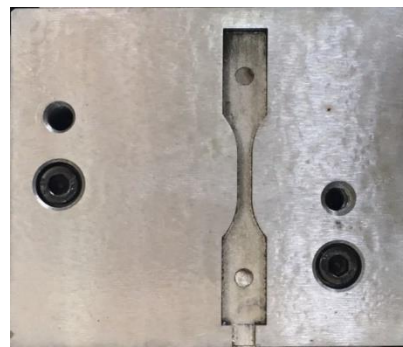


圖5 模具系統照片

4. 結果與討論

4.1 皮/芯層含量比例之探索

首先我們透過基本共射充填分析，將皮/芯層比例從90/10改變到10/90，探索最適量之皮/芯層比例，如圖6所示。我們的目標是希望在皮層不被吹穿時，芯層比例越高越好。從模擬分析結果發現，當皮/芯層比例為60/40 (芯層比例佔全體體積之40%)時，具有良好之芯層滲透分佈，倘若再進一步增加芯層比例至皮/芯層比例為50/50以上，此共射系統就會出現穿吹現象，因此後續各項特性研究就以皮/芯層比例為60/40為基準。

4.2 纖維在皮/芯層內部展現排向變化之探索

接著，為了研究並理解纖維在共射系統內的纖維排向變化，我們利用ASTM D638標準試片系統，如圖1所示，特別規劃安排成單一射出與同質材料共射系統，透過此等系統化探索。

其中，不論單射及共射系統，我們於模穴中設置了3個感測節點(如圖3所定義)。在經歷一系列之單射及共射成型模擬分析(操作條件如表1及表2所示)，圖7(a)顯示單射成型系統中，選定在固定量測節點A，量測內部熔膠之纖維排向在流動方向(A_{11}) 從 t_1 到充填結束不同時間下變化情形；同樣地圖7(b)共射系統從 t_1 到充填結束的纖維排向變化情形。結果顯示，當固定在節點A量測時，單射成型系統內之纖維排向隨時間變化並不明顯，纖維排向 A_{11} 大致從0.3至0.8，其中靠近兩側邊界層具有較強之排向($A_{11} = 0.8$)；反之在核心層，具有較弱之排向($A_{11} = 0.3$) 整體纖維排向幾乎不隨著成型歷程而變。然而，當我們將研究轉換成共射系統時，在同樣之材料組合及相近之操作條件下，纖維排向變化相當大(如圖7(b)所示)，對比於圖7(a)很明顯可以發現兩者之差異性，特別是核心區域纖維排向呈現完全亂排區域(亦即 $A_{11}=A_{22}=A_{33}$)，此等完全亂排區域隨著充填時間越長，將由40%擴增至70%。此處我們發現單射與共射系統在纖維排向會有這麼大的差異，可能原因是當共射射出成型時，加上早一步進入模穴內之皮層材料，在芯層進入時可能做為潤滑層，導致芯層沒有受到邊界之剪切作用的影響因此熔膠內纖維有足夠時間自由發展，造成共射系統纖維排向在中心處較亂所致。

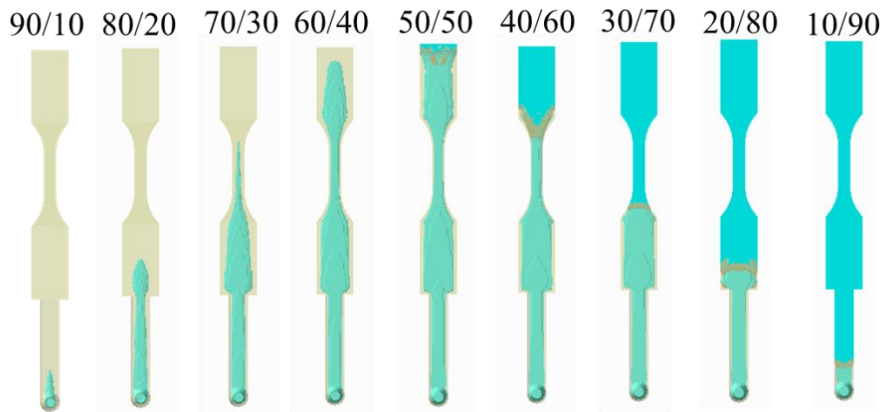
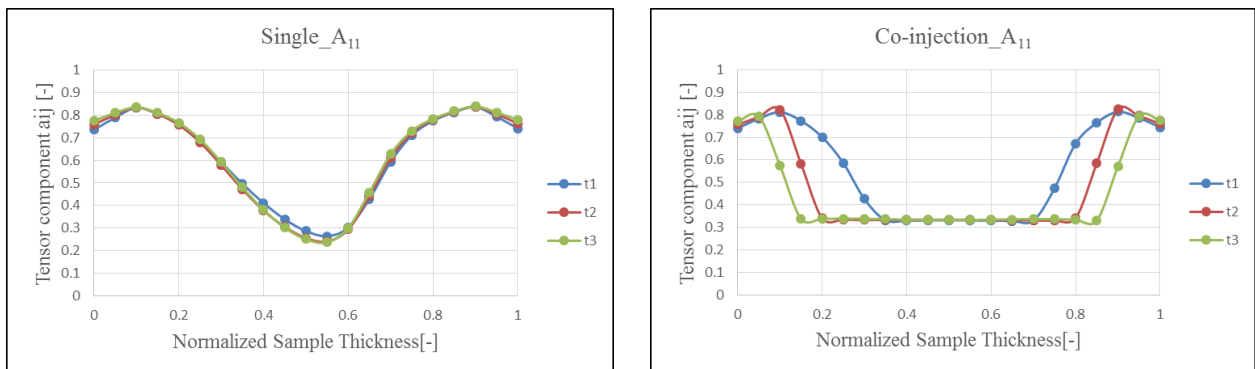


圖6 皮/芯層含量比例之探索：比例測試從90/10到10/90，其中皮/芯層大於50/50 開始發生吹穿



(a) 單射成型系統之纖維排向:流動方向之張量(A_{11})

(b) 共射成型系統之纖維排向:流動方向之張量(A_{11})

圖7 纖維排向隨充填時間之變化比較

另外，為了進一步在確認纖維排向在單射與共射系統之差異現象，我們在任一時間、可任意選定某一量測點，比如量測節點B，嘗試比較在充填結束時流動平行方向(A_{11})張量，如圖8所示。很明顯我們發現纖維排向在試片中心處單射與共射系統差異非常大；其中，單射系

統因試片頸縮區域，造成纖維排向 A_{11} 會有較提高之效應；然而，共射系統中，可能如同我們之前的推論，即使是以量測節點B當參考點，早先進入模穴內之皮層材料，在芯層進入時可能做為潤滑層，導致芯層沒有受到邊界之剪切作用的影響因此熔膠內纖維有足夠時間自由發展，造成共射系統纖維排向在中心處較亂所致。

4.3 皮/芯層含量比例變化之實驗驗證

為了確認我們的理論推估是否正確，我們也同步進行實際之共射實驗，所使用之材料與操作條件與CAE模擬分析專案完全相同，結果如圖9所示。很清楚可以看到實際之共射實驗與CAE模擬分析結果相當吻合，其中皮/芯層比例為60/40為較適當基準。

4.4 纖維在皮/芯層內部展現排向變化之實驗探索

為了確認我們對纖維在皮/芯層內部展現排向變化的理論推估，我們嘗試將試片從三方向進行切面，再利用光學顯微鏡(POM)進行纖維排向檢視，結果發現共射系統之纖維排向在中心層相較於單射系統皆呈現比較多亂排之現象，接著我們把所觀察三方向之纖維排向畫成示意圖，如圖10所示。其中圖10(a)為共射系統之實際纖維排向示意圖，圖10(b)為單射系統之實際纖維排向示意圖，結果顯示共射與單射試片定性上之纖維排向行為與模擬分析相當吻合。

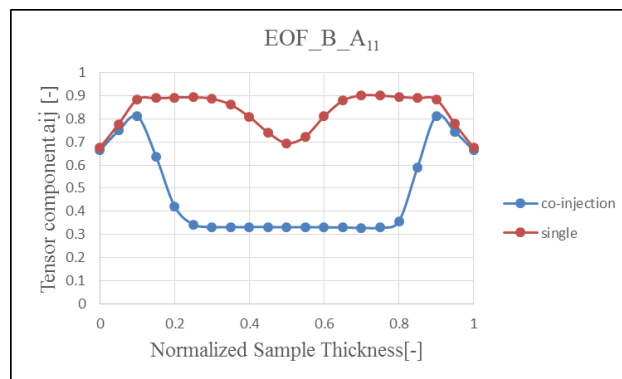


圖8 單射與共射系統之纖維排向節點B比較

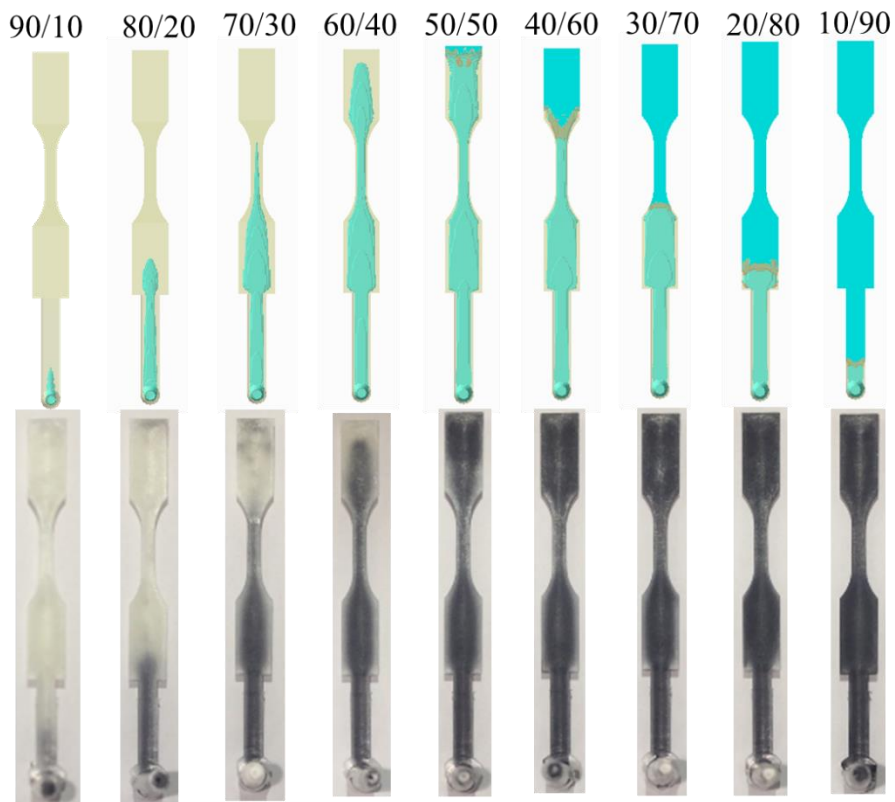


圖9 皮/芯層含量比例之實驗驗證

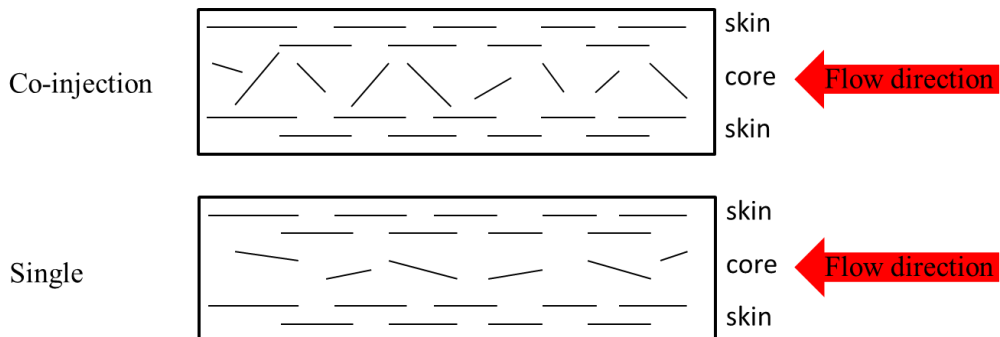


圖10 單射與共射系統之實際纖維排向示意圖

4.5 纖維排向變化對產品機械強度影響之實驗探索

再則，我們也嘗試探索纖維排向如何具體影響產品機械強度，理論上當產品具有較強之纖維流動排向(A_{11})時，我們推測應該具有較強之拉伸強度；為此，我們利用相同成型條件之單射與共射成型標準試片各5個(成型條件如表1與表2所示)，進行拉伸強度試驗，將拉伸速度設定10 (mm/min)，觀察產品機械性質變化，從圖11可發現單射與共射成型之拉伸強度變化特性，結果顯示共射系統之拉伸強度比於單射系統較弱，此部份可能是因共射成型內部之纖維排向較雜亂，導致拉伸強度較弱。此部份實驗可以間接證明共射成型系統因流場改變，造成熔膠內在纖維排向較沒有方向性，進而影響產品機械強度。

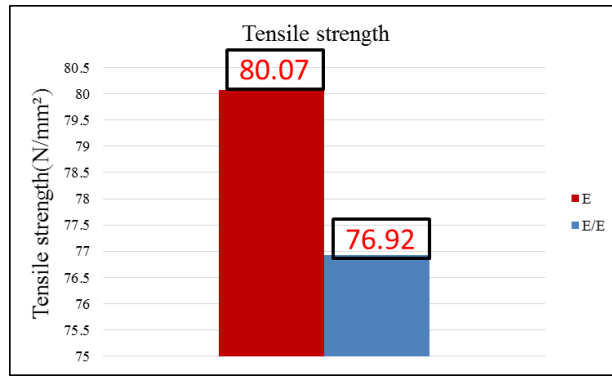


圖11 單射與共射系統之抗拉強度

5. 結論

含纖維複合材料已大量使用於汽車與航太產業應用，但衍生之環境衝擊非常大，為解決此等複合材料之回收問題，共射成型製程可能是良好方案之一，惟纖維在此等複合材料之排向變化一直是無法掌握的。有鑑於此，本研究利用標準拉伸試片(ASTM D638 TYPE V)為測試系統，透過單射成型與共射共射成型機制，深入探討共射成型製程中，熔膠內部纖維排向如何動態地變化，並進一步探討此等的纖維排向如何影響最後產品之機械強度。結果顯示調控皮/芯層比例可適當地控制芯層滲透與分佈；再則，透過CAE模擬分析可以明顯發現，在相同的製程條件下，在共射成型系統內之核心層纖維排向具有不明顯的排向(完全亂排區域)，此等完全亂排區域隨著充填時間越長，將由40%擴增至70%。此部份可能原因是當共射射出成型時，早一步進入模穴內之皮層材料，在芯層進入時可能做為潤滑層，導致芯層沒有受到邊界之剪切作用的影響因此熔膠內纖維有足夠時間自由發展，造成共射系統纖維排向在中心處較亂所致。為探索此等纖維排向變化情形，我們將實際產品切割，並利用光學顯微鏡觀察該等排向；再應用拉伸機械強度測驗進行驗證，結果顯示共射系統之拉伸強度比於單射系統較弱，此部份可能是因共射成型內部之纖維排向較雜亂，導致拉伸強度較弱。透過實驗間接證明共射成型系統因流場改變，造成熔膠內在纖維排向較沒有方向性，進而影響產品機械強度。

6. 參考文獻

1. A. Brent Strong, 2005. *Plastics: Materials and Processing* (3rd Edition), pp.687-695.
2. https://www.compositesworld.com/cdn/cms/iacmi_roadmap_public_version.pdf
3. P. J. Garner and D. F. Oxley, 1971. *British Patent* 1,156,217
4. R. Seldén, 2000. *Polymer Engineering & Science*, 40, 1165
5. W. M. Yang, H. Yokoi, 2003. *Polymer Testing*, vol. 22, issue 1, p37-43
6. 陳城煌， 2017. 共射成型中材料黏度差異性對皮層/芯層界面之影響，淡江大學化學工程與材料工程學系碩士論文，台北，台灣。
7. 曾韋傑，2018. 共射成型皮層與芯層之界面機理探討，2018模具暨應用產業技術論文發表會論文集，pp.116-123