

押出し金型内部における粒子濃度分布の数値予測

Numerical Prediction of the Particle Concentration Distribution in a Slot Die

中野 公一^a, 津田 武明^b, 京藤 敏達^a
Koichi Nakano, Takeaki Tsuda, Harumichi Kyotoh

Received 11 April 2011; Accepted 21 June 2011

In this study, the uniformity of particle concentration in a cavity die containing the unstable dispersed particles is predicted by using one-dimensional flow model for non-Newtonian fluid in a cavity and the Stokesian sedimentation model. In order to depict the movement of particles, the equation combining the one-dimensional flow equation in a cavity with the particle concentration equation predicting the sedimentation is derived. We investigated the resolution to avoid the sedimentation from the operational and material point of views. As a result, we found the appropriate conditions to prevent from the problems.

Keywords: Numerical analysis, Non-Newtonian fluid, Pipe flow, Stokesian sedimentation, Finite difference method

1. 緒 論

光学フィルムに代表される精密薄膜塗布製品は、製品の性能を保証するため、塗液の均一化および精密な薄膜塗布が重要である。一般的な光学フィルムでは、屈折率および光散乱等を操作するために、微粒子（粒子径 10 μm 程度）と樹脂とを溶剤に低固形分（10 vol %以下）で混合し、その塗液を薄膜に塗布（湿潤膜厚 20 μm 以下）することで光学性能を得ている¹⁾。その製造工程は、微粒子を樹脂や溶剤等に混合し、均一に分散させる工程、定量ポンプ等による計量工程、フィルタによる異物除去、押出し金型等による塗布工程、薄膜の固化・乾燥工程により成り立っている。

塗液の混合・分散工程では、塗膜の性能にとって重

要な微粒子の均質な分散を維持するために、微粒子の表面処理や分散安定化剤の添加により、微粒子の凝集や沈降等を防ぐ対応を実施する。しかしながら、粒子径が数 μm ~ 数十 μm の微粒子では、安定な分散が困難な場合が多く、微粒子の沈降等の解決が求められている²⁾。

塗布工程では、近年、薄膜塗布精度に優れる押出し金型を使用する傾向³⁾にあるが、微粒子を含む塗液にて押出し金型により長時間生産した場合、金型内部で微粒子の沈降が生じ、生産停止・清掃、塗工欠陥の発生による歩留り低下、さらには製品品質事故等の問題が生じる^{4, 5)}。

一般的に押出し金型は、ポンプから供給される塗液を金型内部で金型の幅方向へ分配する分配室、および塗液を成膜するスリットの二つの要素から成る。均一な薄膜を得るためには、スリットから流出する塗液量を金型全幅にわたり均一にする必要がある。そのためには、金型内部の流路である分配室およびスリットの形状を塗液の流動特性を考慮し、適切に設計することが重要となる^{6, 7)}。塗液の流動特性を考慮したこれまでの研究では、非ニュートン性の塗液における金型設計について、分配室およびスリットの流れを1次元方程式に簡略化し、短時間で簡便かつ高精度に最適形状

a 筑波大学大学院 システム情報工学研究科
(〒305-8573 茨城県つくば市天王台1-1-1)
TEL 029-853-5105
Graduate School of Systems and Information Engineering,
University of Tsukuba
(1-chome 1-1, Tennoudai, Tsukuba, Ibaraki 305-8573, Japan)

b 大日本印刷株式会社
(〒300-2646 茨城県つくば市緑ヶ原1-1-3)
TEL 029-847-0761
Dai Nippon Printing Co., Ltd.
(1-chome 1-3, Midorigahara, Tsukuba, Ibaraki 300-2646,
Japan)

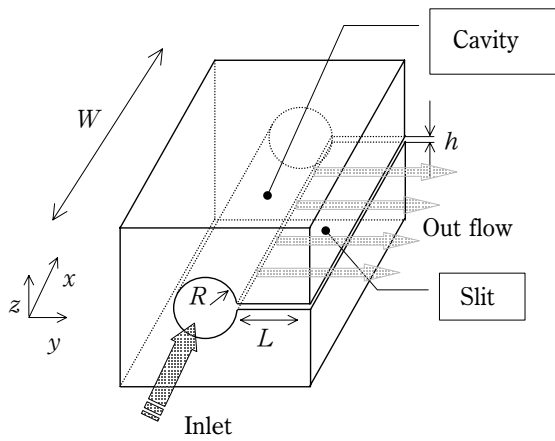


Fig. 1 Geometry of single cavity die

を計算する研究などが行われており^{8,9)}、津田らのモデルによる解析結果は顔料が均一に分散した塗液による実験値と比較され、両者の良好な一致が確認されている⁹⁾。光学フィルム製品では微粒子を含む希薄な塗液を用いており、その場合、薄膜で厚みが均一な塗膜を得ながらも、微粒子の濃度が不均一となりやすいため金型内部における微粒子の沈降が発生する。そのため、押し出し金型における流路設計では、金型内部における微粒子の沈降を防ぎ粒子濃度を均一に保つことが必要と考えられる。しかし、押し出し金型内部の分配室などのスリットを有する円管内部の粒子濃度に関する研究は行われていない。

そこで、本研究では押し出し金型内部における微粒子の濃度を定量的に評価するために、分配室内での1次元流動モデル⁹⁾とストークスの粒子沈降モデルとを連成計算することで、押し出し金型全幅にわたる分配室内における粒子濃度分布を数値的に予測する手法を提案する。また、非ニュートン性の塗液を扱った場合にも適用し、粒子濃度分布と非ニュートン性との関係について、定量的に評価した。最後に、微粒子の沈降を防ぐ対策について、塗布条件および材料物性の両面から考察した。

2. 分配室内の微粒子濃度モデルおよび解析

2.1 押し出し金型内流れのモデルおよび1次元化

本研究に使用する押し出し金型のモデルをFig. 1に示す。流路のうち、分配室は円管状であり、金型幅方向において、その断面形状および断面積は一定である。スリットは平行平板状であり、塗液は分配室に直接流入し、その全てがスリットより流出する。

分配室内およびスリット内流れの1次元化、解析における離散化、また、非ニュートン性を有する塗液を

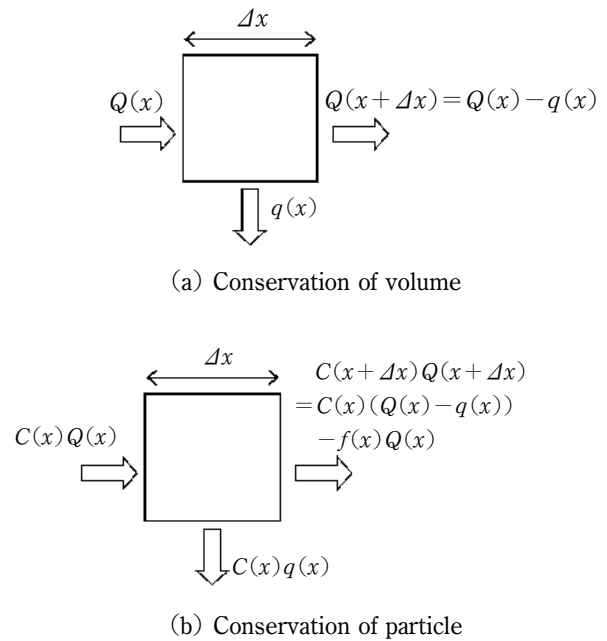


Fig. 2 Control volume

用いたモデル化については、津田らの研究に従う⁹⁾。

2.2 分配室内の微粒子濃度モデル

粒子径が数 μm ～数十 μm の微粒子の沈降に関する運動では、ストークスの粒子沈降モデル²⁾を用いることとし、分配室内の粒子濃度勾配をモデル化する。塗液流量および微粒子質量の保存則については、Fig. 2のような検査体積をとる。

塗液に占める微粒子の体積分率が十分小さい場合、Fig. 2 (a)に示すように分配室内の塗液体積の保存式は以下ようになる。

$$\frac{dQ(x)}{dx} + q(x) = 0 \quad (1)$$

ここで、 $Q(x)$ は分配室を通過する流量、 $q(x)$ はスリットより流出する単位幅あたりの流量であり、次式で与えられる⁹⁾。

$$q(x) = \left(\frac{p(x)}{L} \right)^{\frac{1}{n}} \frac{2n}{(2n+1)k^{1/n}} \left(\frac{h}{2} \right)^{\frac{2n+1}{n}} \quad (2)$$

ただし、 $p(x)$ は分配室内の圧力、 L は分配室の長さ、 n は非ニュートン性を表す指数で $n=1$ はニュートン流体となる。また、 k は粘度定数、 h はスリット幅である。詳しくは、津田らの論文⁹⁾を参照されたい。

Fig. 2 (b)に示す微小区間における微粒子の質量保存則は、粒子濃度 C および流量 Q における単位長さあたりの沈降割合を示す沈降係数 f を用いれば、次式で表すことができる。

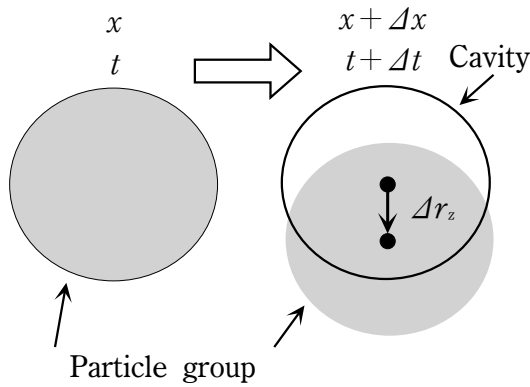


Fig. 3 Particle settling model

$$\frac{d(C(x)Q(x))}{dx} + C(x)q(x) + f(x)C(x)Q(x) = 0 \quad (3)$$

ここで、Eq. (1) と Eq. (3) とを連立させれば、次式を得る。

$$\frac{dC(x)}{dx} + f(x)C(x) = 0 \quad (4)$$

分配室内の流動は一般的に層流となるように設計し¹⁰⁾、塗液が十分に希薄であり、凝集力等の粒子の相互作用がない分散系を仮定すると、分配室内の任意 $y-z$ 断面における各粒子の沈降に関する運動は、 z 方向（重力方向）に垂直落下すると仮定できる。この結果、粒子全体の沈降の挙動は、Fig. 3 の様に円形粒子集合が初期位置より垂直移動する系でモデル化できる。

すなわち、この粒子集合が下方へ沈降により移動した場合、分配室からはみ出した部分は沈降粒子、はみ出した長さは沈降距離に相当する。このことから、粒子沈降量は沈降距離におおむね比例すると仮定できる。また、沈降距離が $2R$ のとき完全に沈降すると近似すれば、沈降距離を $2R$ で規格化することで、沈降割合に変換することが可能となる。

微粒子の沈降は、ストークスの粒子沈降モデルで近似できると仮定する。分配室内 z 方向への Δt 時間における微粒子の沈降距離 Δr_z は、終末沈降速度 $v_t(x) = \rho_p(1 - \rho_f/\rho_p)D^2g/(18\mu)$ ($Re < 6$) を使えば、Eq. (5) にて与えられる。ここで、 D は粒子径、 g は重力加速度、 ρ_p および ρ_f はそれぞれ粒子と液の密度であり、 μ は津田らの平均粘度係数を用いる⁹⁾。

$$\Delta r_z = v_t(x) \Delta t \quad (5)$$

また、 Δt 時間における粒子の移動距離 Δx は、分

配室内の平均流速 u より⁹⁾、次式にて求められる。

$$\Delta x = u(x) \Delta t \quad (6)$$

さらに、Eq. (5) と Eq. (6) とを連立し、次式を得る。

$$\frac{\Delta r_z}{\Delta x} = \frac{v_t(x)}{u(x)} \quad (7)$$

一方、沈降係数 f は単位長さあたりの沈降割合であるから、沈降距離が $2R$ のときに完全に沈降すると近似すれば $f(x) \Delta x = \Delta r_z/(2R)$ が成り立つ。以上より、

$$f(x) = \frac{1}{2R} \frac{v_t(x)}{u(x)} \quad (8)$$

が導かれる。

よって、Eq. (4) から粒子濃度 C の支配方程式が次式で与えられる。

$$\frac{dC(x)}{dx} + \frac{1}{2R} \frac{v_t(x)}{u(x)} C(x) = 0 \quad (9)$$

2. 3 解析および離散化

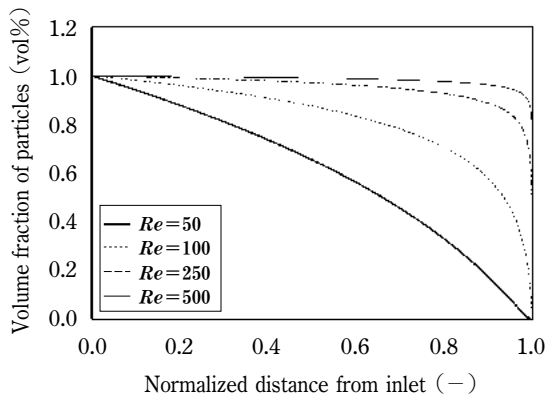
金型モデルにおける1次元運動方程式の差分格子はスタガード格子、スリット部は1次元平行平板流れを示す格子を使用し、空間の離散化は1次精度の前進差分を用いる⁹⁾。収束演算にはニュートン法を用い、金型幅方向での格子分割数は等間隔で1000分割した。濃度の支配方程式 Eq. (9) については、これらの流動解析結果を用い、1次精度の前進差分で離散化し、計算した。

3. 解析結果および考察

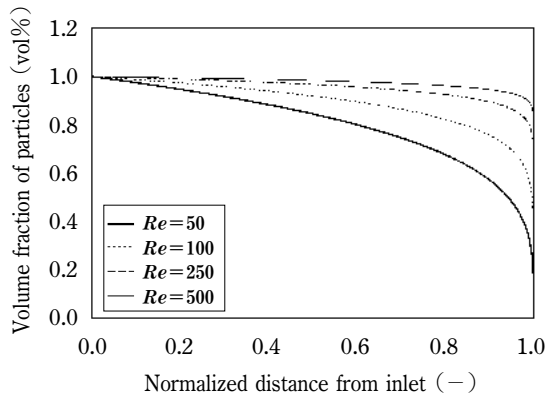
本研究では、緒論に示すような製品を対象としており、パラメータとして、塗液の流動特性であるべき乗則指数を $n=1.25 \sim 0.5$ 、粒子径を $D=5 \sim 50 \mu\text{m}$ 、流量変化を考慮した分配室内のレイノルズ数を $Re=50 \sim 500$ とし、数値解析を実施した。

3. 1 べき乗則指数と分配室内の粒子濃度分布との関係

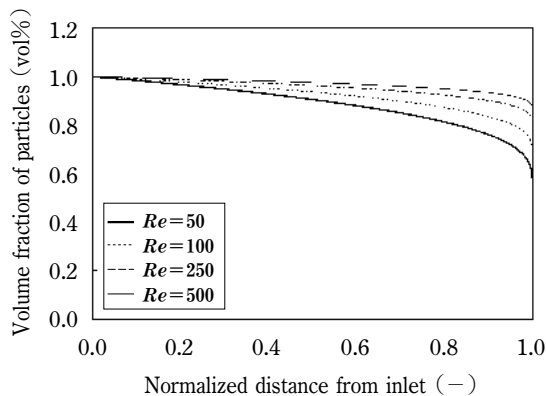
解析に使用する金型形状および塗液物性等を以下に示し、これを標準条件とする。押し出し金型の寸法は、金型全幅の長さ $W=0.5 \text{ m}$ 、流出方向のスリット長さ $L=0.02 \text{ m}$ 、スリットの間隙 $h=0.0004 \text{ m}$ 、分配室の断面半径 $R=0.015 \text{ m}$ とし、塗液物性では、液密度 $\rho_f=1000 \text{ kg/m}^3$ 、粒子密度 $\rho_p=2000 \text{ kg/m}^3$ 、粒子径



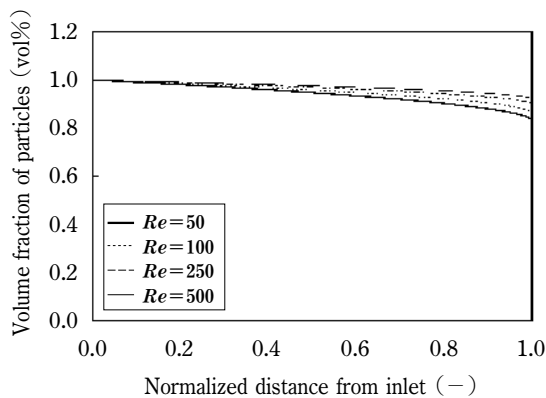
(a) Particle concentration distribution ($n=1.25$)



(b) Particle concentration distribution ($n=1.00$)



(c) Particle concentration distribution ($n=0.75$)



(d) Particle concentration distribution ($n=0.50$)

Fig. 4 Particle concentration distribution characteristics

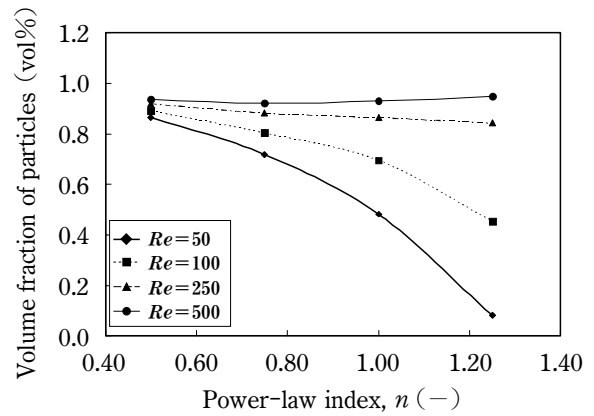


Fig. 5 Power-law index n characteristics

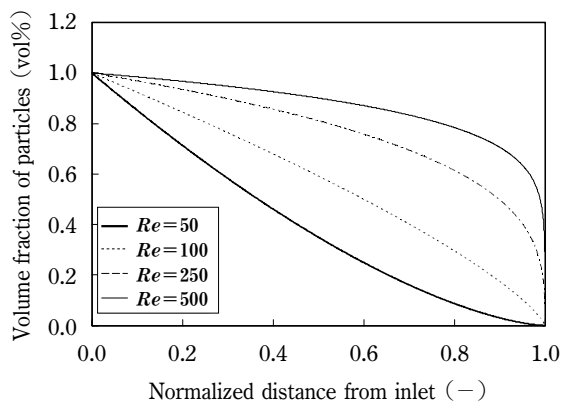
$D=20\ \mu\text{m}$, 塗液に含まれる微粒子の体積分率 $C=1\ \text{vol}\%$, 流体粘度 μ_m は, べき乗則流体のモデルより $\mu_m=k\dot{\gamma}_m^{n-1}$ を用い⁹⁾, 定数 $k=0.003\ \text{Pa}\cdot\text{s}^n$ およびべき乗則指数 $n=1$ を標準条件とする。ここで, $\dot{\gamma}_m$ は平均せん断速度である⁹⁾。

べき乗則指数 $n=1.25\sim 0.5$ における金型幅方向での分配室内の粒子濃度分布を **Fig. 4** に示す。縦軸は, 塗液に占める粒子体積分率, 横軸は, 金型全幅の長さ W で無次元化した x 方向の位置である。レイノルズ数は, 分配室内の値を示し, $Re=\rho[Q(0)/(2\pi R^2)]^{2-n}2R^n/k$ にて定義される。

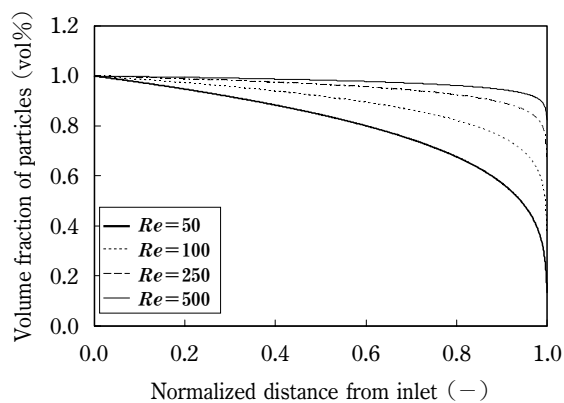
全条件において分配室内端部付近の粒子濃度が減少し, 粒子沈降の傾向が著しいことが分かる。これは, 分配室内の端部に近づくにつれて, 分配室内の流速が減速し, その結果, 滞留時間が長くなることで⁹⁾, 沈降距離 r_z が増加したことを示している。

べき乗則指数 $n=1$ のニュートン流体の場合に着目すると, 分配室内の粒子濃度分布において, レイノルズ数が低くなるに従い, 全域の濃度分布が増加する傾向にある。これは, 分配室内の流速が全域にわたり減少し, 微粒子の滞留時間が増加したためと考えられる。べき乗則指数を $n=1$ より増加させた場合では, この傾向がさらに強くなる。これは, 分配室内の流速が減少することで, 塗液のダイラタント性により粘度が低下し, 粒子沈降速度が速くなるためである。指数が $n=1$ より小さい場合では, 塗液は擬塑性が強まり, 分配室内の端部に近づくにつれて流速が減少し, これにより粘度が増加するため, 端部においても粒子沈降が生じない傾向となる。

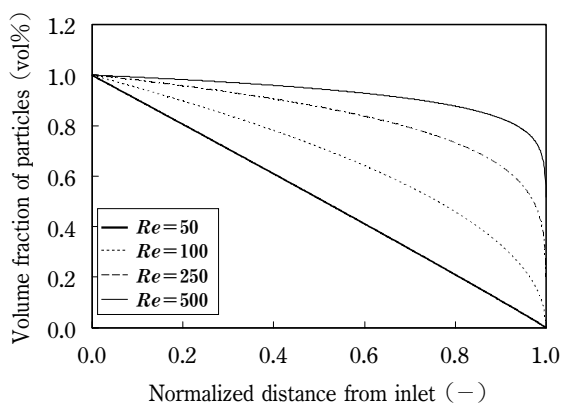
このように, 金型内部流動における分配室内の粒子濃度は, 滞留時間に影響するレイノルズ数, および沈降速度に影響する塗液の流動特性に依存していること



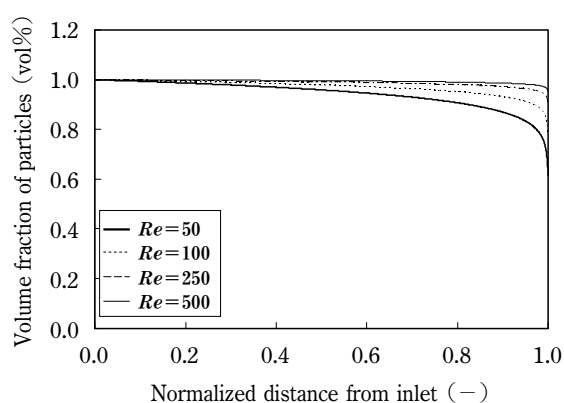
(a) Particle diameter ($D=50 \times 10^{-6} \text{ m}$)



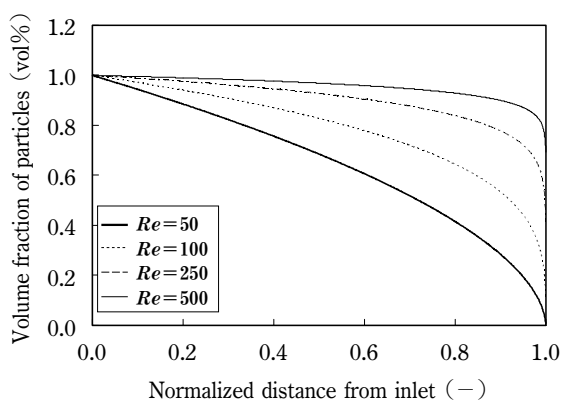
(d) Particle diameter ($D=20 \times 10^{-6} \text{ m}$)



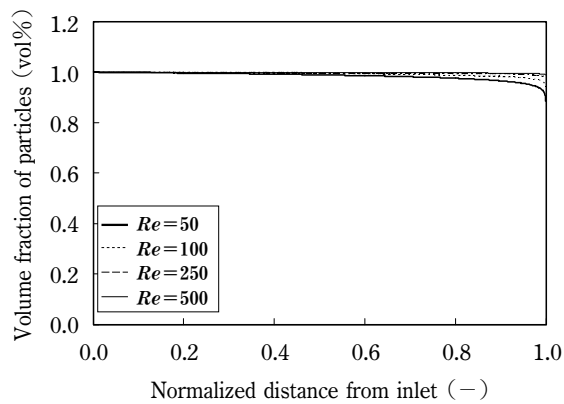
(b) Particle diameter ($D=40 \times 10^{-6} \text{ m}$)



(e) Particle diameter ($D=10 \times 10^{-6} \text{ m}$)



(c) Particle diameter ($D=30 \times 10^{-6} \text{ m}$)



(f) Particle diameter ($D=5 \times 10^{-6} \text{ m}$)

Fig. 6 Particle concentration distribution characteristics

が分かる。一般的に端部付近の塗布膜厚ムラは避けることが困難なため、工業用塗布製品では良好品質のみを得るために端部を除去する¹¹⁾。そこで、本研究では、良好品質の判断として、端部から金型全幅 (W) の 5% の位置を評価位置と設定し、粒子濃度を評価した (5% 下限品質)。Fig. 5 に、この 5% 下限品質での粒子濃度とべき乗則指数 n の関係を示す。Fig. 5 より、べき乗則指数 n が低下する場合、また、レイノルズ数が増加する場合に 5% 下限品質は良化していくことが分かる。

3. 2 粒子径と分配室内の粒子濃度分布との関係

標準条件において、粒子径を 5~50 μm の範囲で変更した場合の金型幅方向における、分配室内の粒子濃度分布を Fig. 6 に示す。縦軸は、塗液にしめる粒子体積分率、横軸は、金型全幅の長さ W で無次元化した x 方向の位置である。

粒子径を大きくした場合には、レイノルズ数の低下に伴い、端部より粒子沈降が始まり、最終的には分配室全体において粒子濃度が減少する傾向となることが分かる。これは、粒子径が大きくなるに従い沈降速度

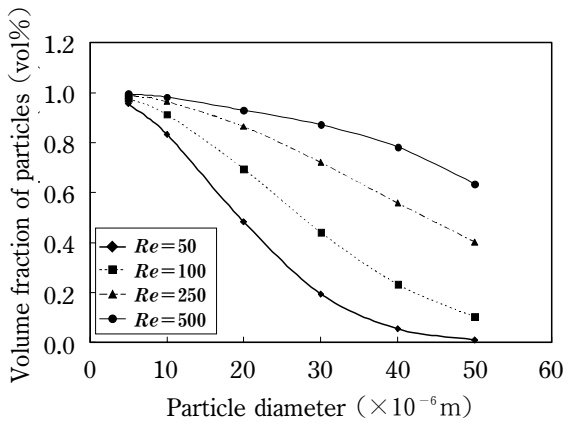


Fig. 7 Particle diameter characteristics

が増加し、沈降距離が増加したためと考えられる。このように、金型内部の粒子濃度分布は、塗液の粒子径および金型内部の流動特性に依存して形成されることが分かる。

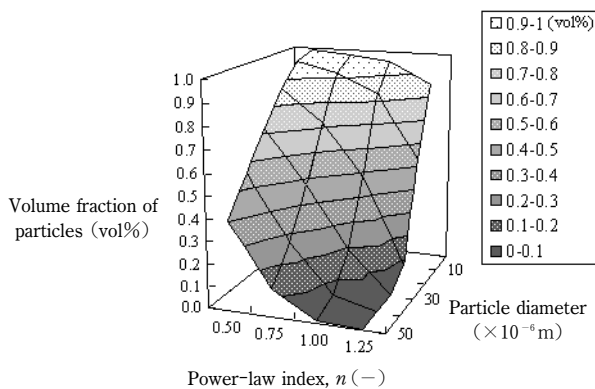
Fig. 7 に、5%下限品質における粒子濃度と粒子径との関係を示す。Fig. 7 より、粒子の小径化、また、レイノルズ数の増加に伴い下限品質は良化していくことが分かる。

しかしながら、Fig. 5 においては、ベキ乗則指数に

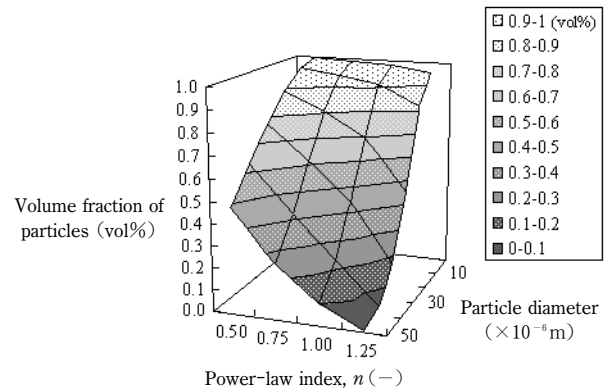
かかわらず、レイノルズ数増大で粒子沈降が予防可能であるが、Fig. 7 に示すように粒子径が大きくなるにつれて、レイノルズ数が増大しても粒子沈降の改善が十分でない場合もある。したがって、生産時の粒子沈降の対策では、ベキ乗則指数と粒子径の最適組合せを、変更が可能な範囲内で見出していくことが5%下限品質の向上に重要となる。

3.3 粒子濃度分布の均一化

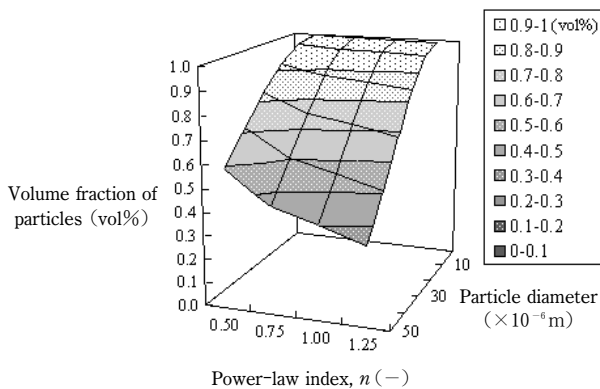
生産現場において、製品品質に影響する金型内部の粒子沈降の改善手法を早期に確立することは、安定品質の保証および歩留りの向上に重要である。改善の手法では、塗工条件および材料条件を操作する二つの手法がある。塗工条件については、生産速度および塗布膜厚を変更することを想定し、金型への塗液の流入流量を変更する。材料条件については、塗液物性のベキ乗則指数と粒子径とを操作することを考慮し、それぞれの条件における粒子濃度分布について、最適化を検討する。Fig. 8 に、標準条件の下、ベキ乗則指数と粒子径とを変更した場合の5%下限品質における粒子濃度を示す。なお、良好品質の判断基準として、粒子濃度0.9%以上と設定する。



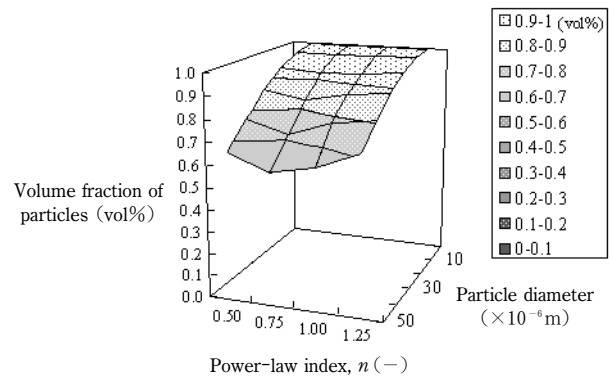
(a) Reynolds number ($Re=50$)



(c) Reynolds number ($Re=250$)



(b) Reynolds number ($Re=100$)



(d) Reynolds number ($Re=500$)

Fig. 8 Effect of Reynolds number on particle concentration distribution

Fig. 8 から分かるように、レイノルズ数の増加に伴い、良好品質が得られる領域が拡大することが分かる。Fig. 8 (d) のレイノルズ数500の時は、粒子径が小さければ（粒子径 $<20\mu\text{m}$ ）、どのべき乗則指数でも良好品質が得られることが分かる。一方、レイノルズ数50の時は、限定された領域（粒子径 $<10\mu\text{m}$ 、べき乗則指数 <0.5 ）のみ良好品質が得られることが分かる。また、Fig. 8 (d) のレイノルズ数500の条件における、 $0.75 < n$ の条件では、他のレイノルズ数条件とは異なり、粒子濃度の上昇が見られ、5%品質位置よりさらに良品の幅が広く得られる条件であることが分かった。

この様に塗工条件、レイノルズ数に制約がある場合も、材料条件の組合せ、ここでは、粒子径およびべき乗則指数を最適化することで、良好な品質が得られるほか、更に良好な品質領域を拡大することができることが分かる。

今後は、本数値解析と実験との比較を行い、妥当性について検討する予定である。

4. 結 論

本研究では、押出し金型内部における微粒子の濃度を定量的に評価するために、分配室内での1次元流れモデルとストークスの粒子沈降モデルとを連成計算す

ることで、押出し金型全幅にわたる分配室内での粒子濃度分布を数値に予測する手法を提案した。また、この手法を非ニュートン性の塗液を扱った場合にも適用し、粒子濃度と非ニュートン性との関係、さらに粒子濃度と粒子径との関係について、定量的に評価した。さらに、微粒子の沈降を防ぐ対策について、塗布条件および材料物性の両面からも考察した。それらの結果、以下の結論を得た。

- 1) 押出し金型内部における微粒子濃度方程式を、ストークスの粒子沈降モデルを用いて導いた。また、本式と金型内部流動方程式とを連成して計算することで、分配室内の粒子濃度分布を算出した。
- 2) 非ニュートン性（べき乗則流体）塗液でも連成計算が可能のように拡張し、べき乗則指数および粒子径を変化パラメータとして、分配室内の濃度分布を計算した。その結果、べき乗則指数および粒子径ともに小さい条件の場合、5%下限品質における粒子沈降量は少ない条件であることが分かった。
- 3) レイノルズ数の増加は、微粒子沈降の抑制に効果が高いが、レイノルズ数の変更には制約がある場合においては、材料条件（べき乗則指数・粒子径）の組合せを最適化することで、良好な品質が得られることが分かった。

Nomenclature

C : concentration of particles	(—)	Re : Reynolds number	(—)
D : particle diameter	(m)	r_z : settling distance	(m)
f : settling coefficient	(m^{-1})	t : time	(s)
g : gravitational acceleration	(m/s^2)	u : average velocity	(m/s)
h : slit gap length	(m)	v_t : terminal settling velocity	(m/s)
k : non-Newtonian viscosity at reference shear rate	($\text{Pa} \cdot \text{s}$)	W : die width	(m)
L : slit length	(m)	$\dot{\gamma}_m$: average of shear rate	(s^{-1})
n : power-law index	(—)	μ : average coefficient of viscosity	($\text{Pa} \cdot \text{s}$)
p : pressure	(Pa)	μ_m : coefficient of viscosity	($\text{Pa} \cdot \text{s}$)
Q : flow rate in a cavity	(m^3/s)	ρ_f : liquid density	(kg/m^3)
q : flow rate for unit length of a slit	(m^2/s)	ρ_p : particle density	(kg/m^3)

References

- 1) Tomizawa, N., M. Shimizu, Y. Noritake, T. Sakamoto and N. Nakamura : “Bougensei Film”, Japanese Patent No. 4134159 (2008)
- 2) Yanagida, H. : “Biryushi Kougaku Daikei, Dai I kkan Kihongijyutu”, pp. 765-801, Fuji Techno System (2003)
- 3) Schweizer, P. M. and S. F. Kistler : “Liquid Film Coating”, pp. 369-426, CHAPMAN & HALL (1997)
- 4) Araki, M. : “Shin Coating no Subete”, pp. 45-51, Converting Technical Institute (2009)
- 5) Hasegawa, Y., T. Ogawa and K. Nojyou : “Tofuhouhou oyobi Bougensei Film no Seizouhouhou”, Japanese Patent No. 4505810 (2010)
- 6) Sartor, L. : “Slot coating : Fluid mechanics and die design”, PhD Thesis University of Minnesota, Published by University Microfilms International, Ann Arbor, MI. (1990)

- 7) Weinstein, S. J. and K. J. Ruschak : "One-dimensional equations governing single-cavity die design", *AICHE Journal*, **42**(9), 2401-2414 (1996)
- 8) Leonard, W. K. : "Inertia and gravitational effects in extrusion dies for non-Newtonian fluids", *Polym. Eng. Sci.*, **25**(9), 570-576 (1985)
- 9) Tsuda, T., T. Hasegawa and T. Narumi : "Study of the Flow of Non-Newtonian Fluids in a Single Cavity Die", *Trans. Japan. Soc. Mech. Eng., B*, **67**(661), 2174-2179 (2001)
- 10) Tsuda, T. : "Kisokouza Coating to Suuchikaiseki Sono4 Ryuutairikigaku no Ouyou Chishiki (1)", *Converttech*, **38**(3), 28-33 (2010)
- 11) Iwase, E., Y. Hasegawa and Y. Mizukai : "Extrusion To-fusouchi", Japanese Unexamined Patent Application Publication No. 2009-220025 (2009)