

Pressure Drop in Entrance Flows from Cavity to Slot of Viscoelastic Fluids inside Slot Die

Tomohiko ANAZAWA*, Takeaki TSUDA*, Hiroshi YOSHIBA*, Takatsune NARUMI**,
 Nobuyuki FUJISAWA**, Takayuki YAMAGATA**, and Tomiichi HASEGAWA**

*Dai Nippon Printing Co., Ltd., 1-3, Midorigahara, 1-chome, Tsukuba-shi, Ibaraki, 300-2646, Japan

**Faculty of Engineering, Niigata University, 2-8050 Ikarashi, Nishi-ku, Niigata, 950-2181, Japan

In this work, entrance flows of viscoelastic fluids from a cavity to a slot in a slot die coating were investigated experimentally and numerically. Aqueous solutions of polyethylene glycol (PEG) and polyethylene oxide (PEO) mixtures, having viscoelasticity and Newtonian viscosity, were tested in order to clarify the effects of viscoelastic characteristics to the excess pressure drops at the entrance. The measured excess pressure drop changes corresponded to the flow pattern changes from a Newtonian-like flow pattern to vortex generation and growth patterns in an asymmetric entrance flow with a submillimeter slot. Numerical predictions of the transitions in the flow patterns and the pressure drops were also made utilizing exponential Phan-Thien-Tanner (EPTT) model with a finite element method. The predictions qualitatively indicated the increase in excess pressure drop and the vortex generation and growth.

Key Words: Slot die coating / Viscoelastic fluid / Entrance flow / Finite-element method

押し出し金型における粘弾性流体の分配室から スロットへの縮小流れにおける圧力損失

穴澤 朝彦*, 津田 武明*, 吉羽 洋*, 鳴海 敬倫**,
 藤澤 延行**, 山縣 貴幸**, 長谷川 富市**

(原稿受理: 2011年11月24日)

1. 緒 言

押し出し塗布は、様々な塗布方法の中で塗膜を精密に形成することが可能な方法であるため、光学フィルムやカラーフィルタ、粘着テープ等多くのコンバーティング製品の製造に使用されている。¹⁾ 押し出し塗布は塗布方式の分類として前計量方式と呼ばれる形式に属し、塗布品質の安定性に優れている。²⁾ 押し出し塗布の概略図を Fig. 1 に示す。図に示すように、ポンプより供給された塗液は、押し出し金型内部の塗液分配室により幅方向に分配され、スロットに流入後スロット内部で幅方向に流量が均一化されスロット出口より吐出される。スロット出口から吐出した塗液は、金型と基材との間に液だまりを形成し、その吐出流量と基材速度との比により塗膜厚さが決定される。このとき、金型内部流動状態が塗布膜厚の均一性に強く相関している。³⁾

金型内部流動状態を支配する要因は様々であるが、分配室からスロットへの縮小流れは塗膜厚さの不均一性に影響するため重要な検討項目となっている。⁴⁾ これまで縮小流れ

に対する慣性⁵⁻⁷⁾ や非ニュートン性⁸⁻⁹⁾ 等の影響について、幅広く研究が行われてきた。しかしながら、塗液が高分子材料を含む場合には、流動特性が粘弾性の影響を受けるため、その特性をせん断粘度の非ニュートン性のみでは適切に表せないことが多い。一般に高分子材料を含む場合は非ニュートン粘性と粘弾性が同時に現れるが、特に粘弾性の影響を明確にするため、せん断粘度が一定の粘弾性流体であるボガー

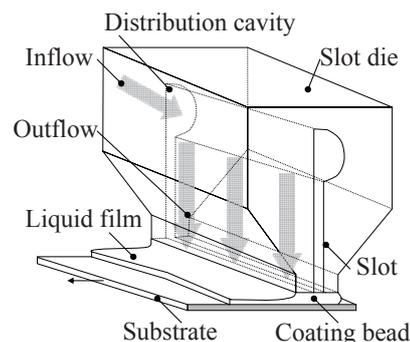


Fig. 1. Schema of slot die coating.

* 大日本印刷 (株) 〒300-2646 茨城県つくば市緑ヶ原 1-1-3

** 新潟大学工学部機械システム工学科 〒950-2181 新潟市西区五十嵐 2 の町 8050

流体を用い、分配室からスロットへの縮小流れのような平面縮小流れについて、基礎的な研究が行われてきた。

Oliveira ら¹⁰⁾は、比較的弾性力の弱い高分子溶液を用い、ミリメートルオーダーの平面縮小流れと軸対称の縮小流れを比較し、平面縮小流れでは圧力損失がニュートン流体とほぼ変わらないことを実験的に示した。その後、いくつかの数値解析¹¹⁻¹⁶⁾が報告されているが、渦形状に関する検討が主であり、圧力損失に関する検討例はわずかである。

一方で、Rodd ら¹⁷⁾は高分子水溶液の分子サイズと同じオーダーである対称平面縮小流れを用いて、すなわち、流路高さ(縮小方向と垂直な方向)が極端に小さい流路の入口の近傍において、ワイセンベルグ数が増加するにつれて、渦が成長し、余剰な圧力損失が増加することを実験的に示した。しかし、実際の塗布工程で用いられている流路サイズでの検討例が少なく、渦の発生と圧力損失について十分な検討がなされたとは言い難い。

著者らはこれまで実際の金型に近い実験装置を用いて、ボガー流体についてスロットからの吐出分布を実験的に調べた。そして、Rodd らの圧力損失に関するデータを元に、吐出量偏差には分配室からスロットへの流れにおいて発生する圧力損失が大きく関係していることを、ワイセンベルグ数の影響と共に示した¹⁸⁾さらに、著者らは可視化実験を行い、実際の塗布にて用いられるようなサブミリオーダーの非対称縮小流路入口の近傍で渦が発生し、その成長過程とワイセンベルグ数に相関があることを示した^{19,20)}既報¹⁸⁾では、流路高さ(=本研究ではスパン方向の幅)の非常に狭い Rodd らのデータを用いた考察であったが、より正確な議論にはスロットのスパン方向が広い実際の流路に関する圧力損失特性を明らかにすることが必要である。さらに、本研究で用いている非対称平面縮小流路のような流れ場における解析例は少なく、そのような流れ場での渦発生と圧力損失を解析的に検討することは、工業的に行われている押出し塗布流れの改善の基礎となると考えられる。

そこで、本研究では押出し金型における分配室からスロットへの縮小流れにて発生する圧力損失を、実寸法に近くスパン方向の広い非対称平面縮小流路にボガー流体を流した場合について測定した。そして、塗膜厚さの均一性に関連する圧力損失のワイセンベルグ数の増加に伴う渦発生との関連を実形状に近い流れ場で明らかにすることを目的とした。また、同様の非対称流路において発生する渦に関してその挙動と、圧力損失特性を粘弾性流体の構成方程式を用いた数値解析から、検討を加えた。

主な記号

c	: 濃度 (wt %)
c^*	: 臨界重なり濃度 (wt %)
F	: Zimm 理論式における係数
H_0	: スロット間隙 (m)
k_B	: ボルツマン定数 ($m^2kg/(s^2K)$)
L_c	: 金型幅 (m)
L_s	: スロット長さ (m)
M_w	: 分子量 (kg/mol)
N_A	: アボガドロ数 (1/mol)
$p(x, y, z)$: 圧力 (Pa)

p_{SN}	: スロット部での圧力降下 (Pa)
ΔP_{ent}	: 入口部での余剰圧力損失 (Pa)
ΔP_{all}	: 分配室からスロットへの流れでの全圧力損失 (Pa) ($=\Delta P_{ent}+p_{SN}$)
ΔP	: 分配室からスロットへの流れでの規格化圧力損失 (-) ($=\Delta P_{all}/p_{SN}$)
Q_0	: 分配室入口流量 (m^3/s)
Re	: スロット内平均流速にて見積もられるレイノルズ数
T	: 絶対温度 (K)
v_x, v_y, v_z	: x, y, z 方向の流速成分 (m/s)
V_m	: スロット内平均流速 (m/s)
x, y, z	: スロット入口を原点とした位置座標 x, y, z (m)
z	: 金型幅位置 (m)
Wi	: スロット内平均流速にて見積もられるワイセンベルグ数
Wi_s	: 等価ワイセンベルグ数
ε	: 伸長パラメータ
η_0	: 溶液のせん断粘度 (Pa s)
η_p	: 高分子のせん断粘度 (Pa s)
η_s	: 溶媒のせん断粘度 (Pa s)
$[\eta]$: 固有粘度 (m^3/kg)
$\dot{\gamma}_s$: スロット内におけるせん断速度 (s^{-1})
$\dot{\gamma}_{sm}$: スロット内における平均せん断速度 (s^{-1})
ρ	: 塗液密度 (kg/m^3)
ν	: 溶媒の品質指数 (-)
λ	: 緩和時間 (s)
λ_{Zimm}	: Zimm 理論により見積もられる緩和時間 (s)
τ_p	: 偏差応力テンソルの高分子成分 (Pa)
τ_s	: 偏差応力テンソルの溶媒 (ニュートン流体)成分 (Pa)

2. 実験

2.1 供試流体

塗液を模した粘弾性流体の供試流体としてポリエチレングリコール (PEG, 平均分子量 M_w : 8 kg/mol, シグマアルドリッチジャパン (株)) およびポリエチレンオキシド (PEO, 平均分子量 M_w : 4×10^3 kg/mol, シグマアルドリッチジャパン (株)) からなる水溶液を使用した。同水溶液は塗布流れに対する弾性の影響を研究するために Dontula ら²¹⁾により提案された供試流体である。彼らは、この供試流体がせん断粘度一定のボガー流体であり、また、せん断粘度 η_0 および緩和時間 λ を、PEG, PEO の分子量および濃度により調整できる特徴をもつことを示した。本実験では、PEG の重量濃度を一定 (34 wt %) とし、PEO の重量濃度を種々変えることで (0.00263-0.0310 wt %), 3 種類の供試流体を作製した。それぞれの液体に関する物性のパラメータについて、せん断粘度 η_0 および緩和時間 λ_{Zimm} を Table I に示す。

せん断粘度 η_0 は、応力制御型レオメータ (MCR-301, (株) アントンパール・ジャパン) を用い、直径 7.50×10^{-2} m, 角度 1° のコーンプレートにより測定した。なお、全ての液体は $25^\circ C$ において測定された。

なお、緩和時間の算定については、既報¹⁸⁾と同様に Zimm 理論により見積もられる緩和時間を用いた。ここでは、最終的な式のみを再掲する。詳細は既報を参照いただきたい。

$$\lambda_{\text{Zimm}} = F \frac{[\eta] M_w \eta_s}{N_A k_B T} \left(\frac{c}{c^*} \right)^{0.65} \quad (0.01 \ll c/c^* \ll 1) \quad (1)$$

2.2 実験装置と実験手順

供試流路を用いて分配室からスロット部で生じる圧力損失について、入口流量および液物性値を変化させ、粘弾性による影響を調べた。実験装置の概略図を Fig. 2 に示す。装置は主に液供給部、供試流路および測定部からなる。液供給部には容積式ポンプ（チビットコータタイプ、(有) キヤドサービス）を用いた。供試流路には、実機押し出し金型の分配室からスロットへの縮小流れを模擬するために、図に示すような断面（側面）形状を有する押し出し金型モデルを用いた。モデルは、スパン方向（図の紙面と直角方向）の幅が 5 mm で、高さが 5 mm – 0.538 mm – 5 mm と変化する非対称な平面縮小拡大流路 (9.3:1:9.3) である。流体は図では下部から流入し、下から上へと流れる。スロット入口部の詳細を Fig. 3 に示す。

Table I. Model liquid properties.

Fluid	No. 1	No. 2	No. 3
PEG (wt.%)	34.0	34.0	34.0
PEO (wt.%)	0.00263	0.0105	0.0310
η_s (Pa s)	0.0743	0.0743	0.0743
η_0 (Pa s)	0.0713	0.0819	0.0922
ρ (kg/m ³)	1052	1052	1052
$[\eta]$ (m ³ /kg)	0.00141	0.00141	0.00141
λ_{Zimm} (s)	0.0111	0.0272	0.0541

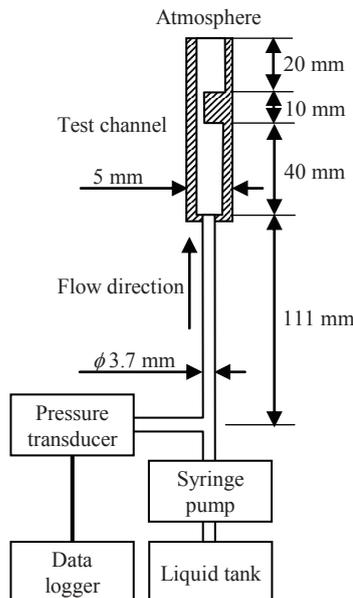


Fig. 2. Schema of the experimental apparatus.

流路の上流側・下流側の流路は一辺が $L = 5 \text{ mm}$ の正方形断面となり、縮小（スロット）部は $0.538 \text{ mm} (= H_0) \times 5 \text{ mm}$ の矩形断面となる。なお、この縮小部分までの、上流側の流路の全長は 40 mm である。スロット部の全長は 10 mm であり、下流部は 20 mm の長さを有し、出口部は開放されている。なお、座標系はスロット入口を原点として位置座標 x, y を設定した。

流路から上流側に 111 mm の位置にダイヤフラム式圧力計 AP-80 ((株) キーエンス、計測範囲 0 - 98.1 kPa、応答時間 2 ms) が取り付けられており、この点の圧力を測定した。また、圧力の時間変化はデータロガー NR-500 ((株) キーエンス) により記録した。なお、流路の上流側および下流部の矩形流路での圧力損失は僅かであり無視できる。流路上流の円管内の圧力損失については、ポアズユ流れと仮定して圧力損失を算出し、測定圧力から差し引き、全圧力損失とした。全圧力損失 ΔP_{all} はスロット部での圧力降下 p_{SN} と入口部での余剰圧力損失 Δp_{ent} の和となる。また、基準化した圧力損失 $\Delta P (= \Delta P_{\text{all}} / p_{\text{SN}})$ を用いて、結果を考察する。

3. 実験結果

圧力損失の系統的な測定の前に、代表的な条件において本装置で測定される圧力の時間変動について確認した。代表例として、供試流体 No.2 に関する圧力損失の時間変化の例を Fig. 4 に示す。ここで、横軸はポンプから吐出を開始してからの時刻であり、縦軸は全圧力損失 ΔP_{all} である。図では測定条件（この場合は流速）の違いを、ワイセンベルグ数を用いて表している。ワイセンベルグ数 Wi は Zimm 理論により見積もられる緩和時間 λ_{Zimm} を用い、

$$Wi = \lambda_{\text{Zimm}} \dot{\gamma}_s \quad (2)$$

と定義した。ここで、本研究での $\dot{\gamma}_s$ はスロット内単位幅あたりの流量 $q_s(z)$ を用いて、スロットでのせん断速度に対応して、次式のように定めた。

$$\dot{\gamma}_s = \frac{V_m}{H_0/2} = \frac{2Q_0}{L_c H_0^2} \quad (3)$$

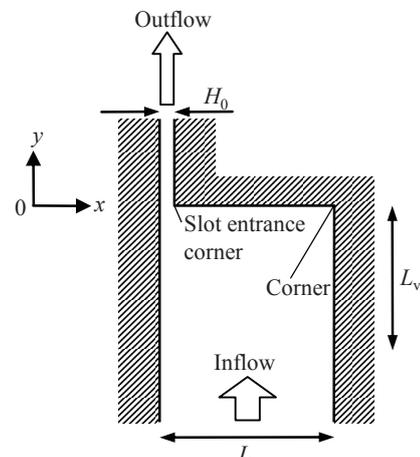


Fig. 3. Schema of the target area A.

本実験での圧力のサンプリングレートは 100 Hz であり、また、渦が生じていると考えられるスロット入口から離れた位置で圧力を測定しているため、渦に変動があっても圧力の細かい変動成分は減衰し、測定されていないと考えられる。既報¹⁸⁾で塗膜厚さの平均化に効果のあった領域は安定渦の範囲と予想されるため、ここでは圧力の平均値の安定性を中心に確認し、変動に関しては簡単な考察に止める。Fig. 4 の結果では、ポンプ始動後の圧力上昇も含まれるが、この範囲では配管系などでの過渡現象の影響も含まれていると考えられる。そこで、本研究では、過渡応答が終了した後の圧力を検討する事とする。定常状態になった後の圧力の測定値は、ワイセンベルグ数 Wi の増加とともに増加し、さらに、その測定値には比較的低周波の揺らぎが明確になることがわかる。ここでは示さないが、他の供試流体でも同様の傾向が見られたが、その変動幅は平均圧力の高々数パーセントであった。前報²⁰⁾の PIV 計測でもワイセンベルグ数が 50 程度までは大規模な渦変動は確認されておらず、圧力変動がわずかであることと対応していると考えられる。なお、Fig. 4 でワイセンベルグ数が 70 程度で、若干揺らぎ幅が大きくなっており、渦変動も現れ始めている可能性がある。そこで、本装置での実験条件範囲内だけであるが、圧力の揺らぎに關係する周波数特性のワイセンベルグ数による変化を検討した。

定常状態における圧力波形についてデジタルフーリエ変換を行った結果の一例を Fig. 5 に示す。Fig. 4 と同じ供試流体 No.2 に関する圧力損失のパワースペクトルであり、圧力の揺らぎに關連する低周波数領域を示している。図より、ワイセンベルグ数が高くなった場合には 1 Hz 以下の遅い変動成分が強くなることが分かる。なお、他の試料を用いた場合も、同様の結果を得ている。ワイセンベルグ数が増加した場合に、現象が明確になっている点から、渦がより発達した場合に生じる不安定性に關した現象と考えられる。この変動は渦自体の直接的な変動ではなく、渦と装置系による連生振動と予想されるが、その詳細なメカニズムは現時点では不明である。このような圧力の時間的な揺らぎがあることは塗膜厚さに流れ方向の変動を生じる可能性があることになる。よって、粘弾性流体を塗布する場合は、長周期の塗膜厚さ時間的変動も確認する必要があると考えられる。ただし、本報では、既報の塗膜厚さの均一性に寄与し

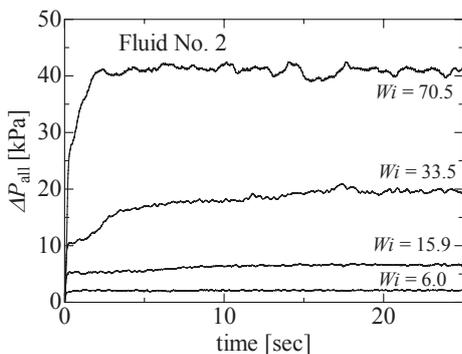


Fig. 4. Experimental results of transient pressure response through the 9:1 asymmetric planar contraction for the fluid No. 2.

ていると考えられる安定領域での議論を中心に行い、より高いワイセンベルグ数における不安定性の発生に関しては、今後の課題としたい。

続いて、Fig. 6 にワイセンベルグ数の変化に対する全圧力損失の平均値の変化について検討した結果を示す。なお、高濃度の試料ではワイセンベルグ数が高い場合に測定時間内に圧力損失が十分安定しない場合もあったため、ここでは、ワイセンベルグ数が 50 程度までの範囲、すなわち、渦自体の大きな変動がないと考えられる範囲で検討を行う。供試流体 No. 1 から 3 に関する入口流量 Q_0 の変化、すなわちワイセンベルグ数に対する縮小流路における圧力損失の変化を示す。ここで、横軸はワイセンベルグ数 Wi であり、縦軸は全圧力損失をスロットでの圧力損失で規格化した圧力損失 ΔP である。

いずれの供試流体においても低ワイセンベルグ数領域では規格化圧力損失はほぼ $\Delta P = 1$ となり、ワイセンベルグ数が 15 を超える ($Wi > 15$) と ΔP は増加し始め、そして、本実験条件範囲内では $\Delta P = 1.6 \sim 1.8$ 程度まで増加した。前報²⁰⁾において、筆者らは同じ実験系を用いた PIV 計測によって、流動構造が擬似ニュートン流れ領域 (Newtonian-like flow region)、リップ渦の初生からコーナ渦への遷移領域 (Transitional region)、およびコーナ渦の成長領域 (Vortex growth region)

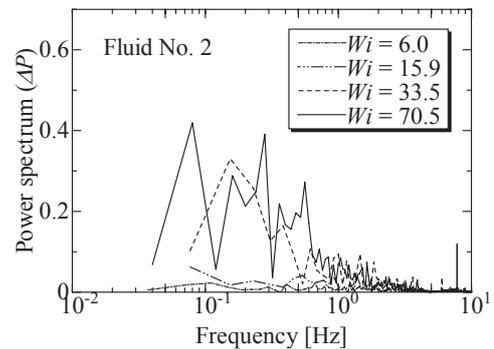


Fig. 5. Experimental results of power spectrum of transient pressure response through the 9:1 asymmetric planar contraction for the fluid No. 2.

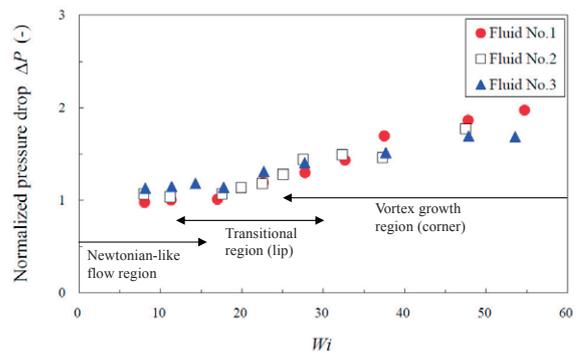


Fig. 6. Experimental results of normalized pressure drop versus Weissenberg number through the 9:1 asymmetric planar contraction; (●) fluid No. 1, (□) fluid No. 2, and (▲) fluid No. 3.

growth region) の三領域に分類され、その遷移条件は主にワイセンベルグ数のみに依存することを示した。いずれの供試流体においても、流動構造は $Wi < 15$ では擬似ニュートン流れ領域であり、 $15 < Wi < 30$ で遷移領域であり、 $Wi > 30$ で渦成長領域になる結果を得ている。しかし、PIV 計測では壁際の渦など十分に流れ場を観測し切れていない領域が生じる。そこで、前報と同じ装置を用い、露光時間を 100 ms 程度（流動条件により変化）と長くして、流線を撮影して、詳細な渦構造の発達を確認した。供試流体 No. 2 について撮影した結果を Fig. 7 に示す。同図 (b), (c) において、リップ渦が確認され、PIV 計測結果より低い Wi 数から渦が発生していることが分かる。また、コーナ渦への移行も、(d) に見られるように低い Wi 数で起きていることが確認された。なお、撮影を不定期に数回行い、写真を比較することにより、Fig. 7 の (e), (f) に示す範囲でも、渦の大きな変動がないことを確認している。

Fig. 6 には上記の領域を、前報²⁰ および Fig. 7 の結果を合わせて範囲として示してある。厳密な境界は得られないためオーバーラップして示している。圧力損失 ΔP が増加し始める点とリップ渦の初生位置がほぼ一致していることがわかる。

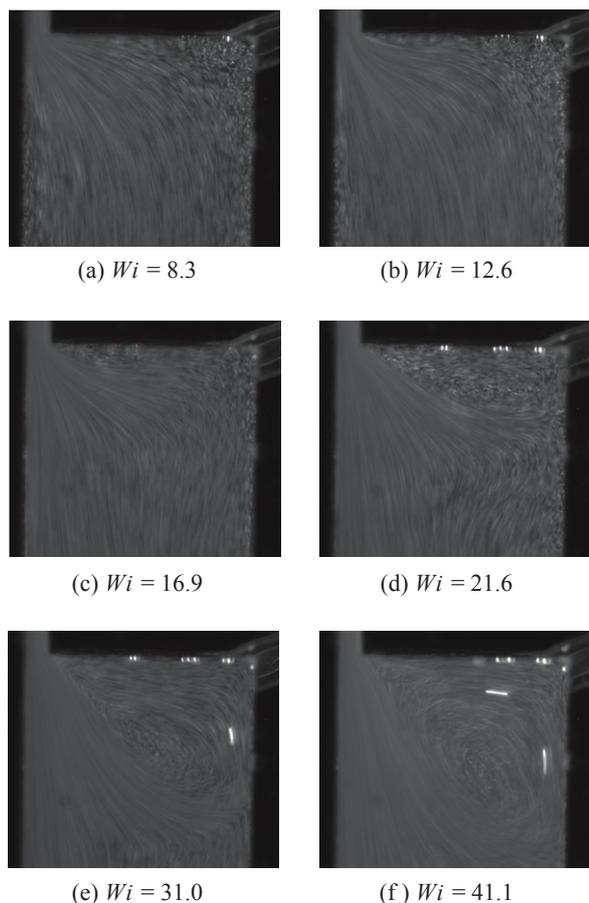


Fig. 7. Experimental results of streamlines (flow is from bottom to top), upstream of the 9:1 asymmetric planar contraction for a range of flow rates; (a) $Q_0 = 0.221$ ml/s ($Wi = 8.3$, $Re = 0.57$), (b) $Q_0 = 0.335$ ml/s ($Wi = 12.6$, $Re = 0.86$), (c) $Q_0 = 0.450$ ml/s ($Wi = 16.9$, $Re = 1.16$), (d) $Q_0 = 0.573$ ml/s ($Wi = 21.6$, $Re = 1.47$), (e) $Q_0 = 0.823$ ml/s ($Wi = 31.0$, $Re = 2.11$) and (f) $Q_0 = 1.09$ ml/s, ($Wi = 41.1$, $Re = 2.81$).

コーナ渦への変化は、Fig. 6 には明確に現れておらず、 ΔP は連続的に増加している。本実験範囲は安定渦の領域であり、既報¹⁸⁾ の Fig. 4 で、スロット高さが同じ流路のデータが、ワイセンベルグ数が 50 近くまで、塗膜厚さの均一性が保たれている点に対応している。この点から、既報¹⁸⁾ における液膜厚さの均一性が再び低下する現象は、さらに Wi 数が増加し、不安定渦の発生によるものであることが推察される。この渦の不安定性の発生に関しては、今後検討を要すると思われる。しかし、塗布工程で用いられる金型の実寸法に近い装置で得られたこれらのデータおよび既報¹⁸⁾ の結果から、実際の押し出し塗布工程においても、分配室内の渦発生により、圧力上昇が発生し、それにより渦が安定している領域においては、スパン方向の塗膜厚さの安定性に寄与することが明らかになった。

4. 数値解析

緒言でも述べたとおり、平面縮小流れの数値解析による研究例の多くは渦の形状などを扱っており、本研究のような形で圧力損失を検討した例は少ない。また、ほとんどの研究は対称な縮小流路を扱っており、本実験に用いたスロットのような片側から流入している非対称な流れ場は、ステップを越える流れやぜん動流れ、ジグザグ流路における流動などで扱われている程度である。²²⁾ さらに、それらの研究では、主にステップ出口側の検討が中心であり、入口部を中心に圧力損失やセカンダリーフローなどを検討した例は著者等の知る限りほとんどない。そこで、本実験に用いた流体の物性を模擬した数値解析を行い、このような非対称流れにおいても実験結果と同様の流れ場が再現されるか、さらに前章で得られた圧力損失の挙動が表わし得るのかについて、検討した。ここでは粘弾性流体の流動を比較的良好に表す²³⁾ EPTT モデルを有限要素法 CFD 数値コードの POLYFLOW3.12²⁴⁾ (アンシス・ジャパン株式会社) を用いて解析した。ただし、計算上の条件もあり、また、塗膜厚さが均一になる傾向のある安定した渦状態での比較を行うため、二次元の定常解を求めた。よって、前章で述べた時間的不安定性については、本章では検討せず、安定渦の状態とその圧力損失への影響が実験結果と定性的に一致するかについて議論する。まず、そのモデル、物性値のパラメータ算定およびその解法について述べる。

4.1 支配方程式と境界条件

非圧縮性で定常状態における平板状縮小流路における速度場および圧力場は連続の式 (4) および運動方程式 (5) により支配される。

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \quad (4)$$

$$-\nabla p + \nabla \cdot \boldsymbol{\tau} = \mathbf{0} \quad (5)$$

ここで、応力テンソル $\boldsymbol{\tau}$ はニュートン流体の溶媒成分 $\boldsymbol{\tau}_s$ および高分子成分 $\boldsymbol{\tau}_p$ の和とする。

$$\boldsymbol{\tau} = \boldsymbol{\tau}_s + \boldsymbol{\tau}_p \quad (6)$$

また、ニュートン流体の溶媒応力はひずみ速度テンソル $\mathbf{D} = \nabla \mathbf{v} + (\nabla \mathbf{v})^T$ の線形関数であり、式 (7) で与えられる。

$$\boldsymbol{\tau}_s = \eta_s \mathbf{D} \quad (7)$$

ここで η_s は溶媒の粘度である。また、 $\boldsymbol{\tau}_p$ は構成方程式により定義され、本研究では、式(8)のEPTTモデルを採用した。このモデルは他の論文でも²³⁾PEO系の希薄高分子溶液の流動解析に用いられている。

$$\lambda \nabla \boldsymbol{\tau}_p + Z \boldsymbol{\tau}_p + \frac{\xi}{2} \lambda (\boldsymbol{\tau}_p - \boldsymbol{\tau}_p) = 2\eta_p \mathbf{D} \quad (8)$$

ここで、 $\nabla \boldsymbol{\tau}_p \equiv \mathbf{v} \cdot \nabla \boldsymbol{\tau}_p - (\nabla \mathbf{v})^T \cdot \boldsymbol{\tau}_p - \boldsymbol{\tau}_p \cdot \nabla \mathbf{v}$ は高分子の応力テンソルの upper convected 微分、 $\hat{\boldsymbol{\tau}}_p \equiv \mathbf{v} \cdot \nabla \boldsymbol{\tau}_p + (\nabla \mathbf{v})^T \cdot \boldsymbol{\tau}_p + \boldsymbol{\tau}_p \cdot \nabla \mathbf{v}$ は高分子の応力テンソルの lower convected 微分と定義される。また、係数Zは式(9)のように表される。

$$Z = \exp \left[\frac{\varepsilon \lambda}{\eta_p} \text{tr}(\boldsymbol{\tau}_p) \right] \quad (9)$$

ここで、 λ は緩和時間、 η_p は高分子の粘度、 ε は伸長パラメータである。

一方で、流動領域における支配方程式および構成方程式に適用する境界条件を Fig. 8 (解析では9:1:9)のそれぞれの部位に対し、式(10)から式(12)とした。

①流入：完全発達二次元ポアズイユ流れ

$$v_n = \frac{6Q_0}{L^4}(L-x)x, v_s = 0 \quad (10)$$

②流出：完全発達流れ

$$n \cdot \nabla \mathbf{v} = 0 \quad (11)$$

③壁面：スリップなし、貫通なし

$$\mathbf{v} = \mathbf{0} \quad (12)$$

ここで、 v_n は境界に対し法線方向の速度成分、 v_s は境界に対し接線方向の速度成分である。

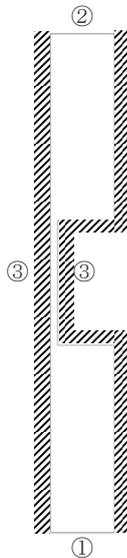
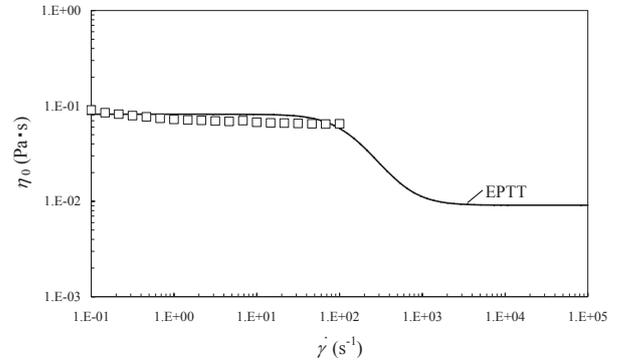


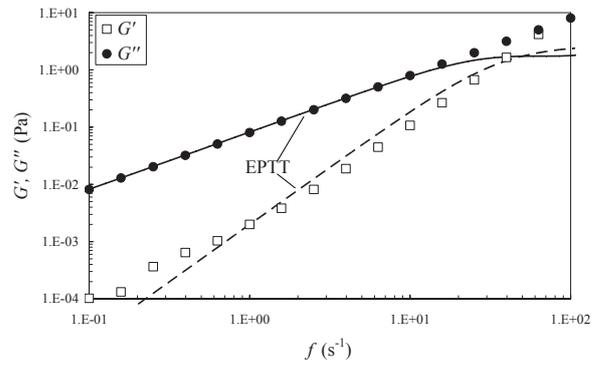
Fig. 8. Flow domain with boundary conditions; ①imposing velocity profiles, ②no-slip and no-penetration and ③fully developed flow.

4.2 モデルのパラメータ算定

流動構造の変化²⁰⁾および前章にて得られた圧力損失の挙動は主にワイセンベルグ数の増加とともに変化した。本解析では供試流体のうちNo.2に対応するパラメータを用い、流量(流速)を変化させた場合について検討した。パラメータ算定には Fig. 9 に示すせん断粘度および動的粘弾性を用い、パラメータ算定ソフト Polymat により決定した。得られた構成方程式の各パラメータを Table II に示す。また、その値から算出されるせん断粘度・動的粘弾性を Fig. 9 に実線および破線で示す。EPTT モデル上の解析を安定化させるために総粘度に対するニュートン流体の粘度の比 η_s/η_0 を 1/9 とし^{16,23,25)}、伸長粘度の測定は一般的に困難であるため²³⁾、そのパラメータ ε を 0.008 と仮定した。なお、Fig. 9 の結果から分かるように、粘弾性特性は比較的フィットしているが、せん断粘度は、実験で用いた流体はニュートン性を示すの



(a) Steady shear viscosity



(b) Dynamic viscoelasticity

Fig. 9. Steady shear viscosity and dynamic viscoelasticity for fluid No. 2.

Table II. Relaxation time and estimated material parameter ξ of the EPTT model for fluid No. 2.

Mode	G (Pa)	λ (s)	η (Pa s)	ε	ξ	η_s/η_0
Polymer	2.68	0.0272	0.0728	0.008	0.0301	0.1111
Solvent	N. A.	N. A.	0.0081	N. A.	N. A.	N. A.
Total			0.0819			

N.A. : not applicable

に対し、モデルはシアニング性を示す。この点の影響については次章で考察する。

4.3 解法

支配方程式 (4)-(12) を離散化するために、流線上流型 (SU) 法^{26,27)} と EVSS 法^{28,29)} を結合した混合型有限要素法³⁰⁾ を用いた。また、二次元の幾何形状 (Fig. 10) については解析を安定化すべくスロット入口コーナを曲線状とした。Rothestein³¹⁾ はこの形状より得られる速度場および応力場はスロット入口コーナ近傍を除き、鋭い形状と同様な解析結果が得られることを示した。ただし、曲線状コーナの幾何形状にて渦長さおよび圧力損失を求めるには等価ワイセンベルグ数 $Wi_e = \lambda v_x / (H_0/2 + R_s)$ を用いる必要がある。本研究では曲率半径 R_s を $0.1H_0$ とし、倍率は $Wi/Wi_e = 1.20$ となる。また、メッシュ数による影響については、メッシュ数を 10,800, 15,775 および 21,700 で比較し、結果に影響がないことを確認した。なお、計算方法については、確保できるメモリ量に余裕がある場合にはニュートン・ラプソン法を用い、メモリ量に余裕が無い場合には反復法を用いた。

5. 解析結果および実験結果との比較

ここでは、本解析により得られた結果について流動構造および圧力損失について、実験結果と比較検討する。まず、解析によって得られたワイセンベルグ数を変化させた時のスロット入口近傍における渦の成長過程を Fig. 11 に示す。

Fig. 10 の解析結果では、(a) $Wi = 0.1$ でニュートン流体に近

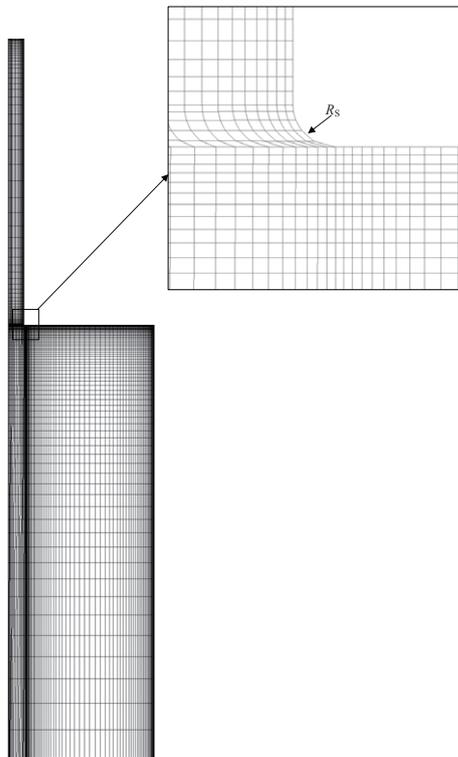


Fig. 10. Detail – the entrance from cavity to slot of the mesh used, upstream of the asymmetric planar contraction.

い流線を示し、(b) $Wi = 7.2$ および (c) $Wi = 14.6$ でコーナ渦が成長するとともにスロット入口コーナ (リップ部) から渦が発生・成長した。(d) $Wi = 20.4$ および (e) $Wi = 28.3$ ではこれらがお互いに合体したコーナ渦に成長する様子が観測された。この結果を Fig. 7 の流線の撮影結果と比較すると、定性的に一致していることが分かる。しかし、解析結果ではリップ渦の初生が $Wi = 3$ 程度で有り、観察結果では $Wi = 15$ 程度になっている。この点は流線観察での限界も有り、厳密な比較は難しい。コーナ渦への移行に関しては、やはりある程度低い Wi 数で生じているが、予測としては比較的良好な結果と言える。すなわち、コーナ渦は実験結果 Fig. 7(d) の $Wi = 21.6$ の結果で、解析結果では Fig. 11 (d) で近い形状のコーナ渦になっており、その渦高さも実験結果で上流側流路高さの 27%、計算結果は 25% と近い値を取っている。しかし、コーナ渦の成長は実験結果の方が大きく、Fig. 7 (e) $Wi = 31.0$ で渦高さが 65% に達しているのに対し、計算結果 Fig. 11(e) $Wi = 28.3$ では 44% となっている。

この完全には定量的に一致しない原因については以下の点が考えられる。まず、解析における二次元流れおよび単一モードの EPTT モデルによる単純化が実験条件を十分には反映していない可能性がある。Omowunmi²³⁾ は Rodd¹⁷⁾ の実験条件を再現し、三次元形状にて EPTT モデルを 4 つ重畳するマルチモードで物性値を表すことにより、渦の発生条件が実験結果と一致することを示した。これに対し、本

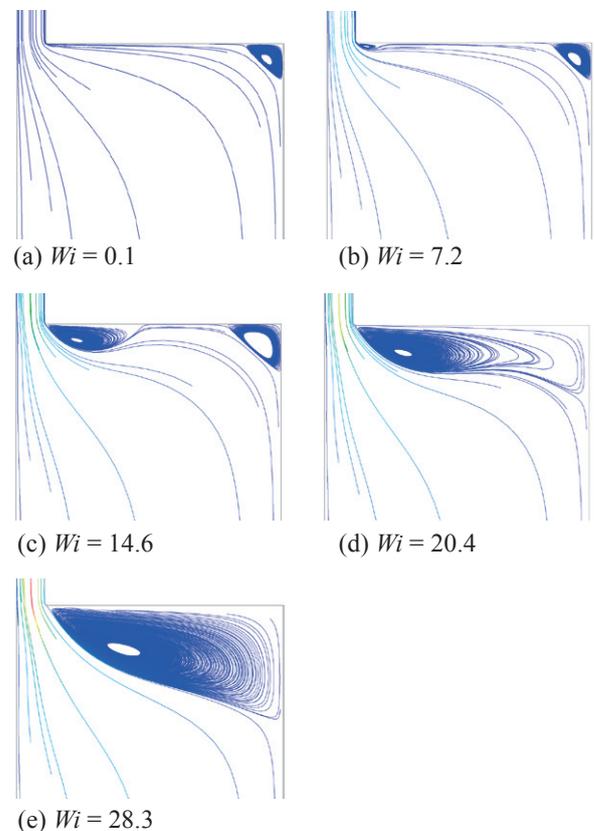


Fig. 11. Theoretical predictions of streamlines (flow is from bottom to top) for fluid No. 2, upstream of the asymmetric planar contraction.

研究では計算の都合上、二次元の流路形状において単一の EPTT モデルを用い、実験条件を単純化して解析し、その結果を実験結果と比較した。それに伴い、渦の発生条件等に差異が生じている可能性がある。第二に、高せん断速度域における EPTT モデルのシアシニング性が解析結果に影響した可能性がある。Omowunmi ら²³⁾は同じ EPTT モデルを用い、PEO 水溶液の挙動がよく表現できることを示しているが、本研究では高分子量および濃度が異なっており、本実験結果をモデルが表しうるかは検討を要する。レオメータでは高せん断速度域におけるせん断粘度の測定が困難であるため、Fig. 8 に示すように、高せん断領域において EPTT モデルより計算されたせん断粘度と実測値とがどの程度一致しているかは不明である。なお、供試流体が非ニュートン粘性を生じないとすれば、Fig. 8 でせん断速度で 100 (1/s) 付近からシアシニングが生じており、緩和時間との積で考えれば、概算で Fluid No2 では $Wi = 3$ 程度からその影響が出ている可能性がある。しかし、この値はスロット内の流れを基準としており、流入部ではその影響はより低いと考えられる。第三に、スロット入口コーナの形状について、実験では鋭い形状であるとして Wi 数を計算しているが、実際には加工上、曲率半径の存在は避けられず、それが渦の発生条件の計算に影響している可能性がある。曲率半径については、Rothstein ら³¹⁾がワイセンベルグ数に影響することを示した。Rodd らはリソグラフィにより数十 μm の流路高さをもつ縮小流路を精密に加工したのに対し、本研究では数百 μm の流路高さを切削にて加工しており、相対的な曲率半径の増大は避けられない可能性がある。これらに関しては更なる検討を要するが、本解析では完全な定量的な一致は見られなかったものの、渦の形成・成長過程を一部定量的かつ定性的に表している。なお、非対称流路による計算結果であったが、過去の対称流路を用いた解析で得られた渦形状¹²⁻¹⁶⁾と明確な違いは見られなかった。

続いて、圧力損失についても、実験結果と定性的な比較検討を行った。Fig. 12 に本解析にて得られたワイセンベルグ数を変化させた時のスロット部での圧力降下と入口損失を合計した圧力損失の計算結果を示す。横軸はワイセンベルグ数 Wi であり、縦軸はスロットでの圧力損失で規格化した圧力損失 ΔP である。合わせて解析結果から得られた各ワ

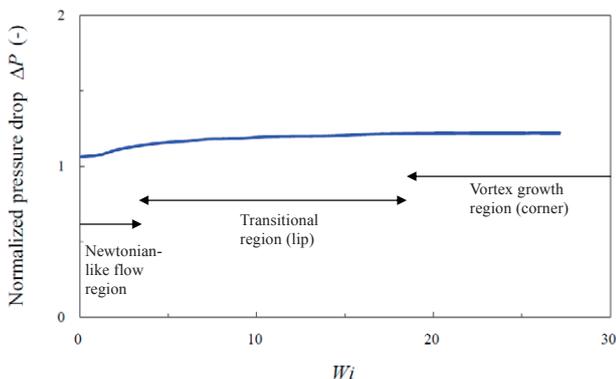


Fig. 12. Theoretical predictions and experimental results of normalized pressure drop versus Weissenberg number for flow in the 9:1 asymmetric planar contraction.

イセンベルグ数における流動構造の変化も図中に示す。規格化圧力損失は流動構造の変化にある程度対応していることがわかる。擬似ニュートン流れ領域でワイセンベルグ数が十分小さい範囲では圧力損失はほぼ $\Delta P = 1$ (実験結果でもほぼ $\Delta P = 1$) となり、 $Wi > 3$ の遷移領域 (実験結果では $Wi = 15$) 以降では、圧力損失がわずかではあるが高くなる結果が得られた。しかし、その圧力損失の最大値は $\Delta P = 1.2$ 程度であり、実験結果の $\Delta P = 1.7$ と比較すると小さい。このように、解析結果は実験結果と定性的に一致していると言えるものの、遷移条件 Wi および ΔP の値は異なる。

本研究では、その形状と寸法が実際の押し塗布金型に近い流れにおいて、圧力損失が発生することを実験的に示し、それが定性的ながら EPTT モデルの解析結果と一致することを示した。この渦成長を含む流動構造の変化および圧力損失の上昇には粘弾性の効果が支配的であることは自明であるが、既報でも述べた通り、特に入口流れにおける伸長流れの影響が重要と考えられる。流路の非対称性による伸長特性への影響およびモデルの伸長特性への対応性などを、明らかにしていくこと、ならびに三次元解析を行うことにより、より定量的な一致の可能な解析が可能になると考えられる。

このように、本研究では解析的に定量的な検討は出来なかったが、定性的には現象を表しうることを明らかにした。よって、本解析を基礎として、上記の点を加味していくことにより、より正確な解析的な取り扱いが可能となると考えられる。

6. 結 言

押し塗布金型における分配室からスロットへの縮小流れについて、圧力損失を測定した。その供試流体には PEO と PEG の希薄な高分子水溶液を用い、ワイセンベルグ数による圧力損失への影響を調べた。また、有限要素法による流動解析を EPTT モデルを用いて行い、以下の結論を得た。

1. 圧力損失測定の結果、擬似ニュートン流れ領域では余剰な圧力損失は発生しないが、渦が発生する遷移流れ領域および渦成長領域では余剰な圧力損失がワイセンベルグ数の増加とともに増加した。このように、本実験から圧力損失の変化が渦挙動と対応していることを実際の押し塗布工程と同程度の系で実証された。
2. 解析の結果、ワイセンベルグ数の増加に伴い、分配室内での流動構造が渦成長に遷移し、余剰な圧力損失が増加した。これらの結果は、実験結果と定性的に一致し、渦挙動および圧力損失の変化が EPTT モデルを用いて定性的ながら現象を再現できることが分かった。

このように本研究では、実際の塗布工程における塗膜厚さおよび基材移動方向の膜厚の変動と渦の発生と成長および圧力損失の増加などの関係を解明する基礎的データを得ており、今後これらのデータを基に、塗布工程の精度向上に関する研究がさらに展開されることが期待される。

謝 辞

実験にご協力頂いた新潟大学工学部学生矢島隆宏氏に感謝の意を表します。

REFERENCES

- 1) Araki M, “Coating nosubete”, Converting technical institute ed., (1999), Tokyo.
- 2) Araki M, “Coating nosubete”, Converting technical institute ed., (2002), Tokyo.
- 3) Sartor L, “Slot coating: Fluid mechanics and die design”, (1991), Dissertation Information Service, MI.
- 4) Kistler SF, Schweizer PM, “Liquid Film Coating”, (1997), Chapman & Hall, London, New York.
- 5) Boger DV, *Annu Rev Fluid Mech*, **19**, 157 (1987).
- 6) Binding DM, *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **27**, 173 (1988).
- 7) White JL, Gotsis AD, Baird DG, *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **24**, 121 (1987).
- 8) Tsuda T, Hasegawa T, Narumi T, *Nihon Reoroji Gakkaishi*, **30**, 133 (2002).
- 9) Nagashima M, Hasegawa T, Narumi T, *Nihon Reoroji Gakkaishi*, **34**, 205 (2006).
- 10) Nigen S, Walters K, *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **102**, 343(2002).
- 11) Oliveira PJ, Pinho FT, *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **88**, 63 (1999).
- 12) Alves MA, Pinho FT, Oliveira PJ, *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **93**, 287 (2000).
- 13) Alves MA, Oliveira PJ, Pinho FT, *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **45**, 110 (2003).
- 14) Alves MA, Oliveira PJ, Pinho FT, “Numerical simulation of viscoelastic contraction flows”, K Bathe ed., (2003), Second MIT Conference on Computational Fluid and Solid Mechanics, Elsevier, MIT, Cambridge.
- 15) Xue S, Phan-Thien N, Tanner RI, *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **74**, 195 (1998).
- 16) Xue S, Phan-Thien N, Tanner RI, *Rheol Acta*, **37**, 158 (1998).
- 17) Rodd LE, Cooper-White JJ, Boger DV, McKinley GH, *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **143**,170 (2007).
- 18) Anazawa T, Tsuda T, Yoshiba H, Narumi T, Hasegawa T, *Nihon Reoroji Gakkaishi*, **37**, 239 (2009).
- 19) Anazawa T, Fujisawa N, Yajima T, Yamagata T, *J Visualization*, DOI 10.1007/s12650-010-0028-z (2010).
- 20) Anazawa T, Fujisawa N, *Trans Vis Soc Jp*, **30**, 33 (2010).
- 21) Dontula P, Macosko CW, Scriven LE, *AIChE J*, **44**, 1247 (1998).
- 22) Correia A, Afonso A, Cavadas A, Oliveira MSN, Alves MA, Pinho FT, Paper 36.pdf, *Proc.3rd National Conference on Fluid Mechanics, Thermodynamics and Energy, Portugal*, 2009.
- 23) Omowunmi SC, Yuan XF, *Rheol Acta*, DOI 10.1007/s00397-009-0410-8 (2009).
- 24) POLYFLOW (2008) Users’ manual, version 3.12.2. ANSYS, Canonsburg.
- 25) Aboubacar M, Matallah H, Webster MF, *J Non-Newton Fluid Mech*, **103**, 65 (2002).
- 26) Inoue Y, *R&D review of Toyota CRDL*, **29**, 29 (1994).
- 27) Haagh G, Van De Vosse FN, *Int J Numer Methods Fluids*, **28**, 1355 (1998).
- 28) Guénette R, Fortin M, *J Non-Newton Fluid Mech*, **60**, 27 (1995).
- 29) Rajagopalan D, Armstrong RC, Brown RA, *J Non-Newton Fluid Mech*, **36**, 159 (1990).
- 30) Marchal JM, Crochet MJ, *J Non-Newton Fluid Mech*, **26**, 77 (1987).
- 31) Rothstein JP, McKinley GH, *J Non-Newton. Fluid Mech*, **98**, 33 (2001).