Nihon Reoroji Gakkaishi Vol.37, No.5, 239~245
(Journal of the Society of Rheology, Japan)

Article

Slot Coating Flows of Viscoelastic Fluid inside Dies

Tomohiko ANAZAWA*, Takeaki TSUDA*, Hiroshi YOSHIBA*, Takatsune NARUMI**, 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

Flows of a viscoelastic fluid in slot die coating were experimentally and theoretically investigated. A viscoelastic fluid having a constant viscosity and a relaxation time (Boger fluid) as well as Newtonian fluid were used as test liquids in a wide range of Weissenberg numbers ($0 < Wi < 42$). We observed experimentally that the Boger fluid reduced the widthwise non-uniformity of the flow inside a slot die as flow rates were increased. However, this advantage disappeared in the higher flow rate region. This was not observed in the case of Newtonian fluids. In order to depict this behavior, a one-dimensional flow model was presented, where cavity flow and slot flow were combined by means of a planar entrance flow. The pressure drop induced by the planar entrance flow was assumed to characterize the flow from a cavity to a slot. Moreover, an excess pressure drop due to the viscoelasticity was empirically estimated, where the high deformation rates attained in the entrance flow from the cavity to the slot caused the increase of the excess pressure drop. The prediction by this model qualitatively agreed with the experimental results and showed utility of the proposed simple model.
Key Words: Slot coating / Viscoelastic fluid / Widthwise distribution of flow rate / Contraction flow

金型内部における粘弾性流体の押出しコーティング流れ

穴澤　朝彦*，津田　武明*，吉羽　洋*，鳴海　敬倫**，長谷川　富市**

（原稿受理：2009 年 6 月 29 日）

1. 緒　　言

押出しコーティングは，さまざまなコーティング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，その他多くの製品の製造に用いられる.[1] 押出しコーティングは前計量方式と呼ばれるコーティング方式に属する.[2] ポンプにより供給された塗液は，押出し金型内部の分配室により金型幅方向に渡って分配され，スロットに流入後スロット内部で流量が幅方向に均一となりスロット出口より吐出される．出口から吐出後，金型と基材との間に液だまりが形成され，吐出された流量と基材速度との比により塗膜厚さが決定される．塗膜を均一な厚さにするには金型内部流動状態の最適化および液だまりの安定性が重要である.[3]

金型内部流動状態の最適化については，Carley[4] がニュートン流体について研究を行い，分配室流れ，スロット流れをそれぞれ円管流れ，ポアズイユ流れで近似し，流量分配および均一吐出内部形状が予測可能な一次元モデル式を提示した．より一般的な流体の吐出特性に影響する要因としては，非ニュートン性，慣性，および二次元流れがある．非ニュートン性については分配室内のせん断速度がスロットへの塗液流出により流れ方向に減少するため，せん断粘度は徐々に大きくなる．そのため，使用する塗液の非ニュートン性に応じて金型内部の流動状態を最適化する必要がある．津田ら [5]，長島ら [6] はそれぞれエリス流体，ビンガム流体についての流量分配予測手法を導き実験によりその有効性を示した．また，慣性の影響については，Boger[7]，Binding[8]，および White ら [9] が分配室からスロットへの遷移流れのような縮小流れにおいて発生する入口圧力損失に関する実験を行い，粘性および慣性力の影響による入口圧力損失の関係式を提示した．

しかしながら，実際には高分子の塗液は粘弾性を示し，せん断粘性のみでは良好に金型内部の流動状態を表せない場合がある．粘弾性が影響する要因としては，変形履歴，せん断流れに起因する法線応力，および伸長流れに起因する法線応力がある．特に伸長流れに起因する法線応力については，従来，縮小部間隙が 1 mm 以上の平板状縮小流路におけるボガー流体の粘弾性流れでは余剰圧力損失が発生しないことが実験 [10] でも数値解析 [11-16] でも示されてきた．しかし，近年，Rodd らは高分子水溶液の分子サイズと同じオーダの

* 大日本印刷（株）　〒 300-2646 茨城県つくば市緑ケ原 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

縮小部間隙をもつ急縮小流路において上下に壁面があり完全な二次元的な流れではないものの余剰圧力損失が発生することを見出した.[11] 押出し塗布に用いるスロット間隙（縮小部）はサブミリオーダであり，この領域での研究はこれまで十分行われていなかった．また,押出し塗布については，Romero らが定常状態における粘弾性流体の液だまりの解析を行っているものの [17]，流量分配予測に関する報告は行われていない.

そこで，本研究では押出し塗布における高分子塗液の流量分配を予測するために，せん断粘度が一定の高分子水溶液とニュートン流体を用い実験した結果の比較を行い，粘弾性により生じる吐出量偏差を明らかにする．また，偏差の挙動を説明するために，分配室からスロットへの伸長流れに起因した法線応力による影響を考慮した分配室とスロットの一次元モデル式を提示する．さらに，粘弾性流体の吐出量偏差を縮小させることができる塗布条件の範囲を考察する.

主な記号

c	:	濃度　(wt%)
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)
$p_C(z)$	:	分配室任意断面圧力　(Pa)
$p_S(x, z)$	:	スロット内圧力　(Pa)
$\Delta p_{ent}(z)$	:	分配室からスロットへの流れにおける余剰圧力損失　(Pa)
$q_S(z)$	:	スロット内単位幅流量　(m^2/s)
$Q(z)$	:	分配室任意断面流量　(m^3/s)
Q_0	:	分配室入口流量　(m^3/s)
R	:	分配室断面半径　(m)
T	:	絶対温度　(K)
u_x, u_y, u_z	:	x, y, z 方向の流速成分　(m/s)
x	:	スロット長さ位置　(m)
z	:	金型幅位置　(m)
Wi	:	スロット内流速にて見積もられるワイセンベルグ数
Wi_m	:	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
δ	:	吐出量の均一性指数　(-)
δ_N	:	ニュートン流体での吐出量の均一性指数　(-)
η_0	:	溶液のせん断粘度　(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)

2. 実　　験

2.1 供試流体

粘弾性流体の塗液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，ニュートン流体としてグリセリン（純度 : 99.0 wt% 以上，η_0 : 0.749 Pa s，関東化学（株））とイオン交換水の混合液を使用した．同水溶液はコーティング流れに対する弾性の影響を研究するために Dontula ら [18] により提案された供試流体である．彼らは，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 および 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.

これらのうち本研究では，PEG (42.9 wt%)，PEO (0.05 wt%) の水溶液をボガー流体の供試流体とし，グリセリン (92.2 wt%) の水溶液をニュートン流体の供試流体とした．それぞれの液体に関するレオロジー物性値について，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計測した．その結果，Fig. 1 に示す通り，ニュートン流体，ボガー流体ともにせん断粘度 η_0 はせん断速度 $\dot{\gamma}_S$ によらず一定であった．なお，全ての液体は 20 ℃において計測された.

固有の緩和時間 λ_{Zimm} については，希薄系の Zimm 理論 [19] に従い算定した．Dontula らにより，使用した水溶液はせん断粘度 η_0 と PEG・PEO 濃度との相関関係から高分子鎖間の相互作用が無視できる希薄な濃度範囲にあることが示されている.[18] Tirtaatmadja らにより述べられているように [20]，溶質の分子量とその濃度の影響を考慮した実効の緩和時間は式 (1) のように表される.

Table I. Model liquid prerties.

	η_S (Pa s)	η_0 (Pa s)	ρ (kg/m^3)	$[\eta]$ (m^3/kg)	λ_{Zimm} (s)
Newtonian fluid	N.A.	0.230	1241	N.A.	0
Boger fluid	0.217	0.231	1073	1.41	0.219

N.A. : not applicable

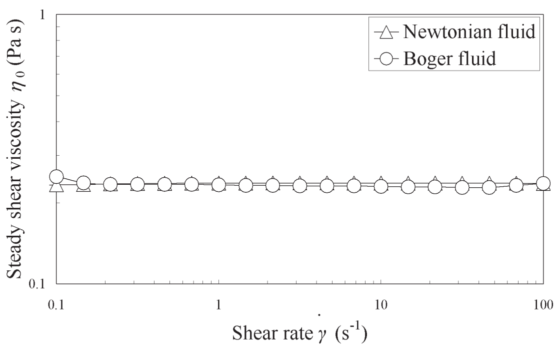

Fig. 1.　Steady shear viscosities of model liquids in Table I.

$$\lambda_{\mathrm{Zimm}} = F\frac{[\eta]M_{\mathrm{W}}\eta_{\mathrm{S}}}{N_{\mathrm{A}}k_{\mathrm{B}}T}\left(\frac{c}{c^*}\right)^{0.65} \quad (0.01 \leqslant c/c^* \leqslant 1) \qquad (1)$$

ここで，N_{A} はアボガドロ数，k_{B} はボルツマン定数，T は絶対温度，η_{S} は溶媒（PEG 水溶液）のせん断粘度，c は溶質の濃度である．$[\eta]$ は PEO 水溶液の固有粘度であり，Mark-Houwink-Sakurada (MHS) 方程式により与えられる.[20] 係数 F はリーマン・ゼータ関数 $\zeta(3\nu)^{-1} = \sum_{i=1}^{\infty} 1/i^{3\nu}$ により与えられる．ν は溶媒の品質指数であり，MHS 方程式の指数 $a' = 0.65$ に関する式 $a' = 3\nu - 1$ より計算され，$\nu = 0.55$ となる．これらより係数 F は，$F = 1/\zeta\,(1.65) \cong 0.463$ と求められる．また，c^* は臨界オーバラップ濃度であり，修正した Flory の分類を使用し $c^* = 0.77/[\eta]$ で表される．これにより計算した値を Table I に示す．

2.2 実験装置と実験手順

流量分配の変化について，スロット間隙を変化させ，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，液貯蔵部，送液部および押出し金型部からなる．送液部には，容積式ポンプ（チビットコータタイプ，（有）キャドサービス）を用いた．

本研究に使用した押出し金型のモデルは，分配室内へ直接流入するものであり，分配室の断面は半円形で，その面積は一定である．分配室に流入した塗液は幅方向に間隙を均一に設けられているスロットより全量吐出される．各部寸法のスケール比はおおむね，$L_{\mathrm{C}}:L_{\mathrm{S}}:R:H_0 = 1:0.1:0.05:0.005$ 程度で使用されるケースが多く [3]，一般には塗液の流動特性により，各パラメータを調整する．

使用した金型は 4 種類あり，分配室は半円形の断面を有する．それぞれの分配室断面の水力半径 R およびスロット間隙 H_0 を Table II に示す．表から分かる様に半径 R はほぼ一定であり，スロット間隙 H_0 を変化させた実験となっている．4 種類とも入口を片側側面に設け，スロット長さは $L_{\mathrm{S}} = 2.00 \times 10^{-2}$ m，金型幅は $L_{\mathrm{C}} = 1.40 \times 10^{-1}$ m である．

流量分配の計測には，スロット出口に金型幅方向に等間隔で 10 分割された液回収器を用いた. 供試流体 2 種類について，スロット間隙および入口分配室流量を変化させ，塗液を押出し金型より一定時間吐出後，各分割部の液量を重量法により計測した．分配室入口側の分割部を 1 番目とし，i 番目の分割部における重量の値を平均値により除したものを規格化スロット内単位幅流量 $q_{\mathrm{S}i}^*$ の実験値と定義した（式 (2)）.

$$q_{\mathrm{S}i}^* = \frac{q_{\mathrm{S}i}}{\dfrac{1}{10}\displaystyle\sum_{i=1}^{10} q_{\mathrm{S}i}} \qquad (i = 1\sim10) \qquad (2)$$

また，$q_{\mathrm{S}i}^*$ は i の増加とともに単調に減少するので分割部のうち 1 番目と 10 番目との吐出量の偏差を吐出量の均一性指数 δ の実験値と定義した（式 (3)）.

$$\delta = q_{\mathrm{S}1}^* - q_{\mathrm{S}10}^* \qquad (3)$$

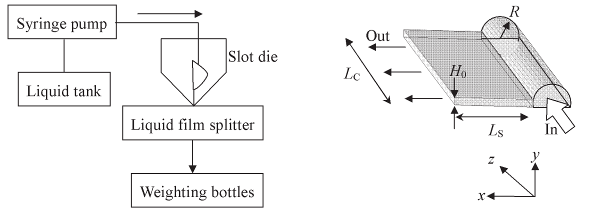

Fig. 2. Schematic of the experimental slot coating apparatus.

Table II. Slot die geometries.

	No.1	No.2	No.3	No.4
Hydraulic radius R (m)	3.77×10^{-3}	3.83×10^{-3}	3.90×10^{-3}	3.98×10^{-3}
Slot gap H_0 (m)	5.32×10^{-4}	6.93×10^{-4}	8.54×10^{-4}	1.05×10^{-3}

3. 実験結果

金型形状 No.3 において分配室入口断面流量 Q_0 を変化させた時のニュートン流体，ボガー流体それぞれの供試流体に関する吐出量 $q_{\mathrm{S}i}^*$ の実験結果を Fig. 3 に示す．ここで，横軸は規格化金型幅位置 z^* であり，$q_{\mathrm{S}i}^*$ は $z^* = (i\text{-}0.5)/10$ の位置にプロットしてある．吐出量 $q_{\mathrm{S}i}^*$ が金型幅位置 z^* に対しすべて 1 をとる時，吐出量は幅方向に均一であることを示す．記号はせん断速度 $\dot{\gamma}_{\mathrm{Sm}}$ が異なる 4 例を示してある．ここで，$\dot{\gamma}_{\mathrm{Sm}}$ はスロット内単位幅流量の平均値 Q_0/H_0 から求められる流路のスロットでの平均せん断速度である（式 (4)）.

$$\dot{\gamma}_{\mathrm{Sm}} = \frac{2Q_0}{H_0^{\,2}L_{\mathrm{C}}} \qquad (4)$$

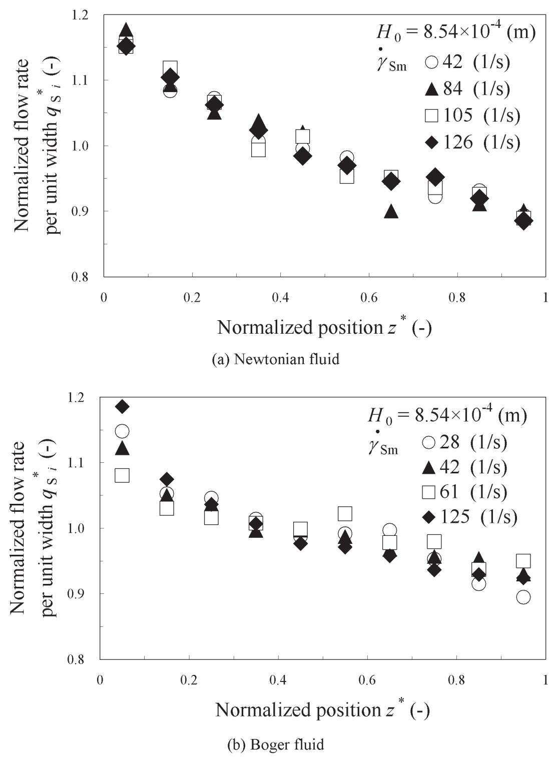

Fig. 3. Experimental results of widthwise distribution of flow rate.

その結果，ニュートン流体での吐出量 q_{Si}* の分布はせん断速度 $\dot{\gamma}_{\mathrm{Sm}}$ によらずほぼ同じとなった．一方，ボガー流体における吐出量 q_{Si}* の偏差は $\dot{\gamma}_{\mathrm{Sm}} = 28\ \mathrm{s}^{-1}$ ではほぼ図 (a) のニュートン流体の結果と同じ分布を示しているが，$\dot{\gamma}_{\mathrm{Sm}}$ の増加とともに分布は平坦になる傾向が見られる．しかしさらに $\dot{\gamma}_{\mathrm{Sm}}$ が増加したところでは q_{Si}* の偏差は増加していることがわかる．

スロット間隙 H_0，分配室入口流量 Q_0 を変化させた時のニュートン流体およびボガー流体それぞれの供試流体に関する吐出量の均一性指数 δ の実験結果を Fig. 4 に示す．ここで，横軸はせん断速度 $\dot{\gamma}_{\mathrm{Sm}}$ およびスロットの平均速度で定義するワイセンベルク数 Wi_{m} である（式 (5)）.

$$Wi_{\mathrm{m}} = \frac{2\lambda_{\mathrm{Zimm}} Q_0}{{H_0}^2 L_{\mathrm{C}}} \tag{5}$$

スロット間隙 H_0 により記号を変えている．

その結果，ニュートン流体での均一性指数 δ_{N} はせん断速度 $\dot{\gamma}_{\mathrm{Sm}}$ によらずほぼ一定値をとり，各スロット間隙 H_0 に対し δ_{N} の平均値はそれぞれ 0.03，0.13，0.27，0.41 である．一方でボガー流体での均一性指数 δ は $\dot{\gamma}_{\mathrm{Sm}}$ に応じて変化した．スロット間隙 $H_0 = 5.32 \times 10^{-4}$ m ではほぼニュートン流体と同じ結果が得られているが，それ以外は独自の変化を示している．例えばスロット間隙が $H_0 = 8.54 \times 10^{-4}$ m の場合，低せん断速度 ($\dot{\gamma}_{\mathrm{Sm}}$) 領域では δ は δ_{N} と同一の値（約 0.27）であるが，$\dot{\gamma}_{\mathrm{Sm}} = 42\ \mathrm{s}^{-1}$ から δ は減少し始め，$\dot{\gamma}_{\mathrm{Sm}} = 61\ \mathrm{s}^{-1}$ で極小値 $\delta = 0.13$ をとった後，増加に転じた．この傾向はスロット間隙 H_0 が増加しても同様であるが，H_0 の増加とともに極小値をとる $\dot{\gamma}_{\mathrm{Sm}}$ は小さくなった．

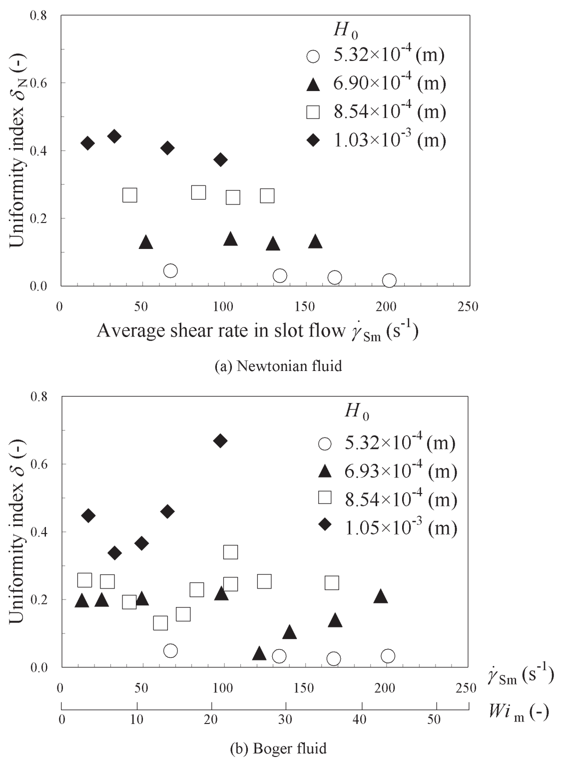

Fig. 4. Experimental results of uniformity index of widthwise distribution of flow rate.

この様に Wi_{m} が増加すると δ が減少し塗膜の均一性が改善される．この点は，塗布条件が定まっていれば，逆に塗液の物性を調整し，適切なワイセンベルグ数に合わせることにより，塗膜の均一性を向上できることを示している．しかし，更に，Wi_{m} が増加すると均一性が元に戻る，ないしは，均一性がニュートン流体よりも悪くなる．これらの点を一次元的な解析を提案し次章で検討を加える．

4. 一次元流れモデル・解析

4.1 押出し金型内流れのモデル

Fig. 5 に押出し金型のモデルを示す．以下でこの金型の分配室とスロット内の流れをそれぞれ一次元化して考える．

4.2 分配室流れの一次元化

非圧縮性流体における，z 方向の流れの定常運動方程式および，連続の式について，体積力は無視できるものと仮定する.[21] 分配室内の系は円管流れで近似可能であり [4]，ニュートン流体およびボガー流体が円管を流れる際の分配室内任意断面流量は運動方程式を解き式 (6) のように表わされる．

$$Q(z) = -\frac{\pi R^4}{8\eta_0}\frac{\mathrm{d}p_{\mathrm{C}}(z)}{\mathrm{d}z} \tag{6}$$

ここで，$Q(z)$ は分配室任意断面流量，R は分配室断面半径，η_0 は溶液のせん断粘度，z は金型幅位置，$p_{\mathrm{C}}(z)$ は分配室任意断面圧力である．

分配室入口および分配室終端における境界条件は，それぞれ式 (7)，(8) のように表される．

$z = 0$:

$$Q(0) = Q_0 \tag{7}$$

$z = L_{\mathrm{C}}$:

$$Q(L_{\mathrm{C}}) = 0 \tag{8}$$

ここで，Q_0 は分配室入口流量である．

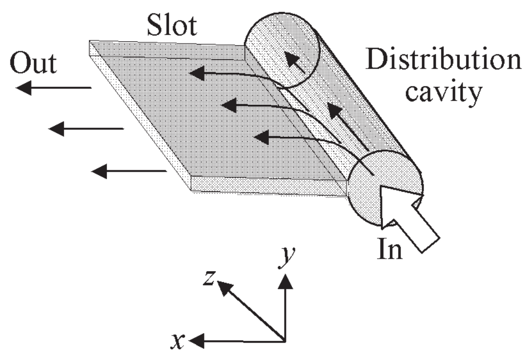

Fig. 5. Geometry of slot die.

4.3 スロット流れの一次元化

非圧縮性流体における x 方向の流れの定常二次元運動方程式，および連続式を式 (9)，(10)，(11) に示す．なお，体積力は無視できるものと仮定する.[21]

$$\frac{\partial p_{\mathrm{S}}(x,z)}{\partial x}=\frac{\partial \tau_{yx}}{\partial y} \tag{9}$$

$$\frac{\partial v_x}{\partial x}=0 \tag{10}$$

$$\frac{\partial p_{\mathrm{S}}(x,z)}{\partial y}=0 \tag{11}$$

以上の系は二次元ポアズイユ流れであり，ニュートン流体およびボガー流体がスロットより吐出される単位幅あたりの流量は運動方程式を解き式 (12) のように表わされる

$$q_{\mathrm{S}}(z)=\frac{{H_0}^3}{12\eta_0}\frac{p_{\mathrm{S}}(0,z)}{L_{\mathrm{S}}} \tag{12}$$

ここで，$q_{\mathrm{S}}(z)$ はスロット内単位幅流量，H_0 はスロット間隙，$p_{\mathrm{S}}(x, z)$ はスロット内圧力，L_{S} はスロット長さ，x はスロット入口面を基準としたスロット長さ位置である．

4.4 分配室とスロット入口における圧力

前記二つの節で記述された分配室流れとスロット流れは，スロット入口流れにより連結される．このとき分配室からスロットに流出した液体と分配室内の流量の関係式は次のようになる.[4]

$$\frac{\mathrm{d}Q(z)}{\mathrm{d}z}=-q_{\mathrm{S}}(z) \tag{13}$$

また，分配室任意断面圧力 $p_{\mathrm{C}}(z)$ はスロット内圧力 $p(x, z)$ のスロット入口 ($x = 0$) における値 $p_{\mathrm{S}}(0, z)$ と $\Delta p_{\mathrm{ent}}(z)$ との和と考え，次の式 (14) を仮定する.[22]

$$p_{\mathrm{C}}(z)=p_{\mathrm{S}}(0,z)+\Delta p_{\mathrm{ent}}(z) \tag{14}$$

ここで，$\Delta p_{\mathrm{ent}}(z)$ は分配室からスロットへの流入に伴い生じる余剰圧力損失である．Hasegawa らはオリフィス，細管への入口で発生する伸長流れにおいて，余剰圧力損失と伸長速度，伸長応力との関連を明らかにした.[23] 本研究における余剰圧力損失も，流れ場の違いはあるが，同様に主に伸長流れに起因した法線応力（伸長応力）により特徴付けられると考えられる．なお，縮小流路における粘弾性流れで発生する余剰圧力損失は，溶液の非ニュートン性，縮小流路の形状，分子サイズと流路スケールとのスケール比により異なる値を示す．

押出し塗布に関連付けられる余剰圧力損失の研究では，Rodd らが高分子水溶液をサブミリオーダの縮小部間隙をもつ平板状縮小流路に流入させ，上下に壁面があり完全な二次元流れではなく流路の縮小比も異なるものの圧力損失 ΔP (= (p_{SN}+Δp_{ent})/p_{SN}) が Fig. 6 に示すように変化することを実験により示した.[24]

ここで，p_{SN} は流路のスロット（縮小部）でのニュートン流体の圧力損失であり，$p_{\mathrm{SN}} = 12\eta_0 L_S q_S/{H_0}^3$ で与えられる．Wi は Zimm 理論により見積もられる緩和時間 λ_{Zimm} から求めたワイセンベルグ数である（式 (15)）.

$$Wi=\lambda_{\mathrm{Zimm}}\dot{\gamma}_{\mathrm{S}} \tag{15}$$

ここで，本研究での $\dot{\gamma}_{\mathrm{S}}$ はスロット内単位幅流量 $q_{\mathrm{S}}(z)$ から求められる流路のスロットでのせん断速度に相当する（式 (16)）.

$$\dot{\gamma}_{\mathrm{S}}=\frac{u_{\mathrm{x}}}{H_0/2}=\frac{2q_{\mathrm{S}}(z)}{{H_0}^2} \tag{16}$$

一方で，サブミリオーダの平板状縮小流路にて発生する余剰圧力損失を数値解析した研究は見当たらない．また，Walters らはサブミリオーダの円管状縮小流路では解析結果が実験結果と一致せず，構成方程式の改良が必要であることを示した.[25] そこで本研究においては，上下に壁面があり z 方向の二次元性が異なり流路の縮小比も異なるものの余剰圧力損失 $\Delta p_{\mathrm{ent}}(z)$ として Rodd らによる二次元の実験値 $\Delta P(Wi)$ をもとに，次式で表される余剰圧力損失 $\Delta p_{\mathrm{ent}} = 12\eta_0 L_S q_S(z)(\Delta P(Wi)-1)/{H_0}^3$ が適用可能と仮定した．

4.5 解析

本研究で用いたボガー流体の緩和時間は Table I に示すように 10^{-1} s のオーダであり，スロットのせん断速度 $\dot{\gamma}_{\mathrm{S}}$ は 10^2 s^{-1} のオーダであるためワイセンベルグ数 Wi は 10 のオーダである．したがってワイセンベルグ数 Wi の領域が 0 - 32.5 である Rodd らによる実験結果が妥当であると考え，これを用いて分配室とスロットの一次元モデル式の計算を試みた．

計算では Fig. 6 に示す実験値を用い，その代表的な離散データのスプライン補間値（Fig. 6 中に実線で表示）から余剰圧力損失を算出することとした．

式 (6) - (8)，(12) - (16) を用いて分配室任意断面圧力 $p_{\mathrm{C}}(z)$ に関する数値解をニュートン法により求めた．これを式 (12) に代入し，スロット内単位幅流量 $q_{\mathrm{S}}(z)$ を平均値で割ったものを規格化スロット内単位幅流量 q_{S}*(z) と定義した（式 (17)）.

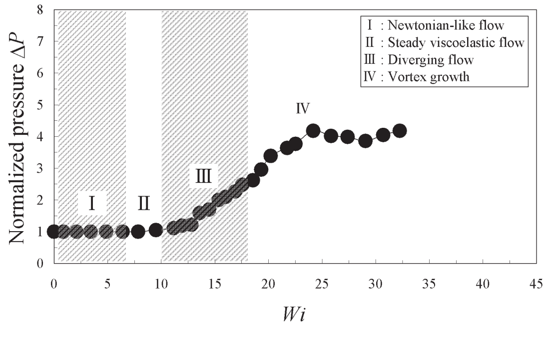

Fig. 6. Normalized pressure drop ΔP/Weissenberg number Wi data taken from Rodd et al. (2007) for flow in a 16:1 planar contraction[24] for a range of flow conditions; (I) Newtonian-like flow, (II) steady viscoelastic flow (III) diverging flow and (IV) vortex growth.

$$q_S^*(z) = \frac{q_S(z)}{\dfrac{Q_0}{L_C}} = \frac{L_C q_S(z)}{Q_0} \tag{17}$$

また，吐出量の均一性指数δをスロット内単位幅流量$q_S^*(z)$の最大値と最小値の差と定義した（式 (18)）.

$$\delta = q_S^*(0) - q_S^*(L_C) \tag{18}$$

δが小さいほど吐出量分布は均一であることを示す．一方，ニュートン流体での吐出量の均一性指数δ_Nを粘弾性流体と比較するため式 (19) を用いた.[4)]

$$\delta_N = \frac{H_0^3 L_C^2}{3\pi L_S R^4} \tag{19}$$

5. 解析結果および実験結果との比較

金型形状 No.3 において分配室入口断面流量Q_0を変化させたときのニュートン流体，ボガー流体それぞれの供試流体に対する吐出量q_S^*の解析結果を Fig. 7 に示す.

ニュートン流体での吐出量q_S^*の分布（せん断速度$\dot{\gamma}_{Sm}$によらず一定）は図中の破線で示してある．ボガー流体における吐出量q_S^*の偏差はせん断速度$\dot{\gamma}_{Sm} = 10$ s^{-1}ではほぼ図 (a) のニュートン流体の結果と同じ分布を示しているが，$\dot{\gamma}_{Sm}$の増加とともに分布は平坦になる傾向が見られる．しかしさらに$\dot{\gamma}_{Sm}$が増加したところではq_S^*の偏差は増加していることが分かる．実験結果 (Fig. 3) と比較すると，$\dot{\gamma}_{Sm}$の増加とともに分布が平坦となり再びq_S^*の偏差が増加するという傾向は一致している.

スロット間隙H_0，分配室入口流量Q_0を変化させた時のボガー流体の供試流体に関する吐出量の均一性指数δの解析結果を Fig. 8 に示す. ニュートン流体の均一性指数δ_Nは式 (19) より$\dot{\gamma}_{Sm}$によらずH_0のみによるので，これを図中に破線で示す.

その結果，ボガー流体でのδは$\dot{\gamma}_{Sm}$に対し特徴的な変化をしている．例えばスロット間隙が$H_0 = 8.54 \times 10^{-4}$ m の場合，低せん断速度 ($\dot{\gamma}_{Sm}$) 領域ではボガー流体でのδはニュートン流体でのδ_Nと同一の値 (0.28) であるが，$\dot{\gamma}_{Sm} = 29$ s^{-1}からδは減少し始め，$\dot{\gamma}_{Sm} = 108$ s^{-1}で極小値$\delta = 0.035$をとった後，増加に転じている．この傾向はH_0が増加しても同様であるが，H_0の増加とともに極小値をとる$\dot{\gamma}_{Sm}$は小さくなっている．ただし，せん断速度が$\dot{\gamma}_{Sm} = 130$ s^{-1}付近を超えるとδの収束解は求められなかったが，これ以外では，上記の$\dot{\gamma}_{Sm}$の増加とともに偏差が減少し再び増加する傾向は実験結果 (Fig. 4 (b)) と一致している．本研究では，入口側と終端側との間に最大で 48 % の差が *Wi* に生じることになる.

6. 考　　察

本報告 4 章ではボガー流体においてδが減少し，q_S^*が均一化するという実験結果を，Rodd ら[24)]による入口流れの圧力損失ΔPを基に解析した．本章ではΔPがδやq_S^*に及ぼす影響を Fig. 6 に基づき物理的に考察する．ここで，Fig. 6 で示したように，Rodd らは縮小流れについてワイセンベルグ数 *Wi* の増加とともに分配室内の流動構造が変化し，(I) ニュートン流れ (Newtonian-like flow)，(II) 安定で定常的な粘弾性流れ，(III) 不安定で時間依存性の発散流れ，(IV) 渦の成長の 4 領域に分けられ，余剰圧力損失$\Delta p_{ent}(z)$はワイセンベルグ数が *Wi* = 10 から増加し始め，ワイセンベルグ数 *Wi* = 23 で極大値をとることを報告している.[24)] 以上の各領域をもとにδやq_S^*の変化を考える．この際，次の (A) ～ (C) に分けて考えることが妥当であろう.

(A) 分配室入口領域と分配室終端領域が共に Fig. 6 横軸 *Wi* の I・II 範囲に在るとすると，ΔPについてはニュートン流体と同じであるのでδやq_S^*に変化はない.

(B) III あるいは IV でのΔPのピークよりも小さい範囲に入ると，入口領域の方が相対的にq_S^*，すなわちせん断速度$\dot{\gamma}_{Sm}$およびワイセンベルグ数 *Wi* が高いため，入口領域のΔPが終端領域のΔPより大きくなる．そのため, スロット流れに実質的に寄与する圧力が減り，入口領域のスロット内流量が相対的に小さくなり，その結果δの減少とq_S^*の平坦化が起きる.

(C) IV のピークよりも大きい範囲でΔPが一定または減少する領域に入ると，(B) の効果はなくなりさらには入口領域のΔPが終端領域のΔPより小さい状態が生じ，この場合には入口領域の流れが増速し終端領域の流れ

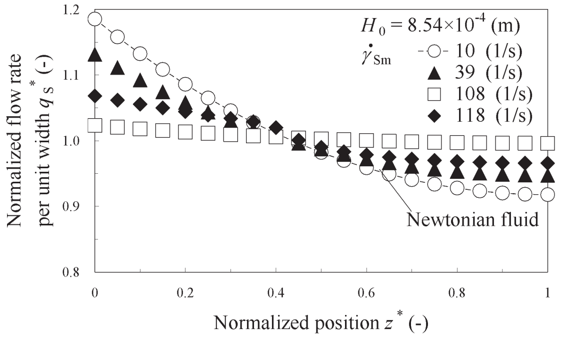

Fig. 7.　Theoretical predictions of widthwise distribution of flow rate.

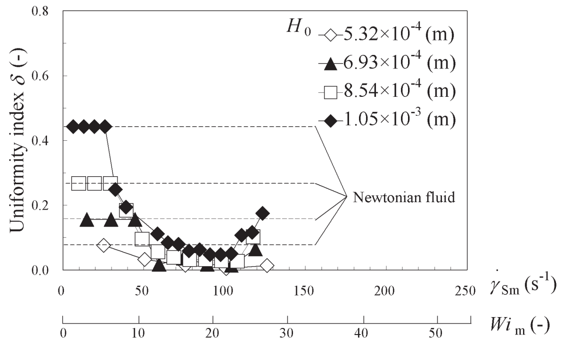

Fig. 8.　Theoretical results of uniformity index of widthwise distribution of flow rate.

が減速するため，δ はニュートン流体のそれよりも大きく q_S* についてもニュートン流体より大きな不均一性を示すことになる．

ただし，Rodd ら[24]による余剰圧力損失は，上下に壁面がある流路内の流れを利用して得られたものであって一般的な二次元流れによるデータではなく，また本研究とは流路の縮小比，スケールが異なるため，これに基づいたさらに精確な考察は困難であると考えられる．今後は，二次元スロット流における詳細な余剰圧力損失の計測が必要になるであろう．

7. 結　　言

押出し塗布における高分子水溶液の流量分配について，せん断粘度が一定の高分子水溶液とニュートン流体を用い，粘弾性により生じる吐出量分布を実験的に調べた．また，偏差の挙動を説明するために，分配室からスロットへの伸長流れに起因した入口圧力損失を考慮した分配室とスロットの一次元流動モデルを提示した．

実験の結果，ニュートン流体での吐出量偏差は金型寸法のみに依存したのに対し，ボガー流体での吐出量偏差は分配室入口流量 Q_0 の増加とともに減少し極小値をとった後，増加に転じた．実験値のうち，ニュートン流体での吐出量偏差の値，ボガー流体での吐出量偏差が減少する傾向は解析と一致し，これらの挙動が定性的に説明できることが確認された．

押出し金型のスロット間隙はサブミリオーダであり，特に粘弾性流体についてその研究は十分行われてこなかった．本研究により，分配室からスロットへの入口流れにおける法線応力の影響による圧力損失の増加が吐出量偏差の減少に寄与することがわかった．また，粘弾性流れは一般的に複雑であり，理論的数値的に解析することは困難であるが，提示したモデルは単純ながら実験結果を定性的に説明でき，粘弾性流体の吐出量偏差を説明するモデルとして有効であると考えられる．さらに，塗液の物性値を調整すること等で適切なワイセンベルグ数に合わせ，これにより塗膜の均一性を向上させ得ることがわかった．

謝　　辞

著者一同は，実験にご協力頂いた新潟大学の高島誠氏および石井治彦氏に深謝する．

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) Carley JF, *J Appl Phys*, **25**, 1118 (1954).
5) Tsuda T, Hasegawa T, Narumi T, *Nihon Reoroji Gakkaishi*, **30**, 133 (2002).
6) Nagashima M, Hasegawa T, Narumi T, *Nihon Reoroji Gakkaishi*, **34**, 205 (2006).
7) Boger DV, *Annu Rev Fluid Mech*, **19**, 157 (1987).
8) Binding DM, *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **27**, 173 (1988).
9) White JL, Gotsis AD, Baird DG, *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **24**, 121 (1987).
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) Romero OJ, Scriven LE, Carvalho MS, *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **138**, 63 (2006).
18) Dontula P, Macosko CW, Scriven LE, *AIChE J*, **44**, 1247 (1998).
19) Zimm B H, *J Chem Phys*, **24**, 269 (1956).
20) Tirtaatmadja V, McKinley G H, Cooper-White JJ, *Phys Fluids*, **18**, 043101 (2006).
21) Tsuda T, Hasegawa T, Narumi T, *Trans Jpn Soc Mech Eng, Ser B*, **67**, 2174 (2001).
22) Kistler SF, Schweizer PM, “*Liquid Film Coating*”, New ed (1997), Kluwer Academic Pub.
23) Hasegawa T, Iwaida T, *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **15**, 257 (1984).
24) Rodd LE, Cooper-White JJ, Boger DV, McKinley GH, *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **143**,170 (2007).
25) Walters K, Webster MF, Tamaddon-Jahromi HR, *Chem Eng Sci*, ARTICLE IN PRESS (2009).