

非定常落下液膜の運動量積分方程式

京藤敏達(Harumichi Kyotoh)*、津田武明(Takeaki Tsuda)**、
 高木 優(Masaru Takagi)*、中野公一(Koichi Nakano)**

*筑波大学大学院システム情報工学研究科

University of Tsukuba

**大日本印刷株式会社技術開発センター精密塗工技術開発部

Dai Nippon Printing Co., Ltd.

1. はじめに

カラーフィルター、光学フィルムなど多くの薄膜はコーティングで製造されている。種々のコーティングの中でカーテンコーティングは、コーティングの高速化および凹凸のあるウェブのコーティングに対して有利である。ただし、高速で薄膜を塗布する際には、他のコーティングでは現れない課題を解決する必要がある。

コーティングの理論・数値計算法・実験のすべてにわたって、素晴らしい研究成果が L. E. Scriven および彼の弟子たちによって達成されている (University of Minnesota の doctor thesis 参照)。本論では、彼が液膜に対して用いた微分方程式の積分形にしたがって非定常・二次元薄膜の運動方程式を導いた。

2. 液膜中心曲面と曲面法線方向への座標変換

Ida and Miksis(SIAM J. Appl. Math., 1998)にしたがって、静止座標系から見た液膜内

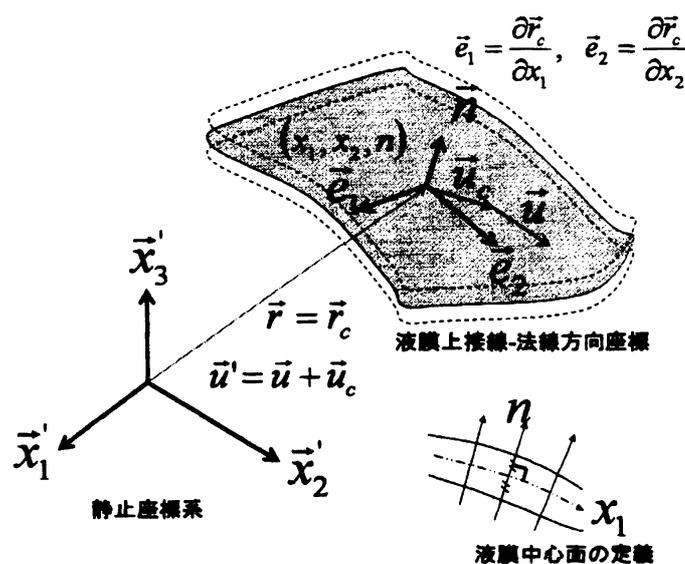


図 1. 液膜中心面と中心面の定義

の流れを、液膜中心面の運動と液膜中心面から見た運動に分解して、解析する(図1)。先ず、液膜中心面は、その法線ベクトルと液膜表面の交点を求め、中心からの距離が等しくなる位置を $\vec{r} = \vec{r}_c$ として定義する。この場合、 \vec{n} は液膜表面と直交しない。さて、液膜中心面に接する2つの単位ベクトルを \vec{e}_1, \vec{e}_2 、液膜中心面上におけるこれら単位ベクトル方向の距離を x_1, x_2 および \vec{n} 方向の距離を n と置き、液膜内の座標を (x_1, x_2, n) とする。このとき、静止座標系から見たときの液膜座標は

$$\vec{r} = \vec{r}_c(t, x_1, x_2) + n\vec{n} \quad (1)$$

となる。したがって、液膜中心以外では、液膜内のこの座標は直交系ではない。

液膜中心面の固定座標系から見たときの液体の流速を \vec{u} 、液膜中心の速度を \vec{u}_c と置き、静止座標系における流速を \vec{u}' とすると、

$$\vec{u}' = \vec{u}_c + \vec{u} \quad (2)$$

である。座標変換(1)にしたがって、式(2)のオイラー微分から (x_1, x_2, n) 方向の加速度を計算し、応力との釣り合い式を求めると次式が得られる。

< x_1 方向>

$$\begin{aligned} & \left[\frac{\partial}{\partial t} + \frac{u_1}{l_1} \frac{\partial}{\partial x_1} + \frac{u_2}{l_2} \frac{\partial}{\partial x_2} + u_3 \frac{\partial}{\partial n} \right] (u_1 + u_{c1}) \\ & + (u_2 + u_{c2}) \frac{\partial u_{c2}}{\partial x_2} + (u_3 + u_{c3}) \left(\kappa_1 u_{c1} + \frac{\kappa_1 u_1}{l_1} - \frac{\partial u_{c3}}{\partial x_1} \right) \\ & = \frac{1}{\rho l_1 l_2} \left[\frac{\partial}{\partial x_1} (l_2 \sigma_{11}) + \frac{\partial}{\partial x_2} (l_2 \sigma_{12}) + \frac{\partial l_1}{\partial x_2} \sigma_{12} + \frac{\partial}{\partial n} (l_1 l_2 \sigma_{13}) + l_2 \frac{\partial l_1}{\partial n} \sigma_{13} - \frac{\partial l_2}{\partial x_1} \sigma_{22} \right] \end{aligned} \quad (3)$$

< x_2 方向>

$$\begin{aligned} & \left[\frac{\partial}{\partial t} + \frac{u_1}{l_1} \frac{\partial}{\partial x_1} + \frac{u_2}{l_2} \frac{\partial}{\partial x_2} + u_3 \frac{\partial}{\partial n} \right] (u_2 + u_{c2}) \\ & + (u_1 + u_{c1}) \frac{\partial u_{c2}}{\partial x_1} + (u_3 + u_{c3}) \left(\kappa_2 u_{c2} + \frac{\kappa_2 u_2}{l_2} - \frac{\partial u_{c3}}{\partial x_2} \right) \\ & = \frac{1}{\rho l_1 l_2} \left[\frac{\partial}{\partial x_1} (l_2 \sigma_{12}) + \frac{\partial}{\partial x_2} (l_1 \sigma_{22}) + \frac{\partial l_2}{\partial x_1} \sigma_{12} + \frac{\partial}{\partial n} (l_1 l_2 \sigma_{23}) + l_1 \frac{\partial l_2}{\partial n} \sigma_{23} - \frac{\partial l_1}{\partial x_2} \sigma_{11} \right] \end{aligned} \quad (4)$$

< n 方向>

$$\begin{aligned} & \left[\frac{\partial}{\partial t} + \frac{u_1}{l_1} \frac{\partial}{\partial x_1} + \frac{u_2}{l_2} \frac{\partial}{\partial x_2} + u_3 \frac{\partial}{\partial n} \right] (u_3 + u_{c3}) \\ & + (u_1 + u_{c1}) \left(-\kappa_1 u_{c1} - \frac{\kappa_1 u_1}{l_1} + \frac{\partial u_{c3}}{\partial x_1} \right) + (u_2 + u_{c2}) \left(-\kappa_2 u_{c2} + \frac{\kappa_2 u_2}{l_2} + \frac{\partial u_{c3}}{\partial x_2} \right) \\ & = \frac{1}{\rho l_1 l_2} \left[\frac{\partial}{\partial x_1} (l_2 \sigma_{13}) + \frac{\partial}{\partial x_2} (l_1 \sigma_{23}) + \frac{\partial}{\partial n} (l_1 l_2 \sigma_{33}) - l_2 \frac{\partial l_1}{\partial n} \sigma_{11} - l_1 \frac{\partial l_2}{\partial n} \sigma_{22} \right] \end{aligned} \quad (5)$$

上式中の添字 1,2,3 はそれぞれ (x_1, x_2, n) 方向を意味する。また、 l_1, l_2 は

$$\ell_1 = 1 + \kappa_1 n, \quad \ell_2 = 1 + \kappa_2 n \quad (6)$$

で与えられるスケールファクター、 κ_1, κ_2 は中心面の曲率、 σ_{ij} は応力テンソルである。また、連続の式は

$$\frac{\partial}{\partial x_1} [\ell_2 (u_{c1} + u_1)] + \frac{\partial}{\partial x_2} [\ell_1 (u_{c2} + u_2)] + \frac{\partial}{\partial n} [\ell_1 \ell_2 (u_{c3} + u_3)] = 0 \quad (7)$$

となる。

一方、境界条件は液膜厚さを H と置くと、運動学的条件

$$u_{3p} = \left[\frac{\partial}{\partial t} + \frac{u_1}{\ell_1} \frac{\partial}{\partial x_1} + \frac{u_2}{\ell_2} \frac{\partial}{\partial x_2} \right] \left(+ \frac{H}{2} \right), \quad \text{at } n = + \frac{H}{2} \quad (8)$$

$$u_{3n} = \left[\frac{\partial}{\partial t} + \frac{u_1}{\ell_1} \frac{\partial}{\partial x_1} + \frac{u_2}{\ell_2} \frac{\partial}{\partial x_2} \right] \left(- \frac{H}{2} \right), \quad \text{at } n = - \frac{H}{2}$$

および力学的条件

$$\sigma \cdot \bar{n}_p = -p_a \bar{n}_p - \gamma K_p \bar{n}_p, \quad \text{at } n = + \frac{H}{2} \quad (9)$$

$$\sigma \cdot \bar{n}_n = -p_a \bar{n}_n - \gamma K_n \bar{n}_n, \quad \text{at } n = - \frac{H}{2}$$

となる。ここで、下付添字の p, n は図2に示される液膜表面における値を表す。また、 γ は表面張力係数、 K は液表面曲率であり

$$K_p = - \frac{1}{\ell_1} \frac{\partial \bar{t}_1}{\partial x_1} \cdot \bar{n}_p - \frac{1}{\ell_2} \frac{\partial \bar{t}_2}{\partial x_2} \cdot \bar{n}_p \quad (10)$$

$$K_n = - \frac{1}{\ell_1} \frac{\partial \bar{t}_1}{\partial x_1} \cdot \bar{n}_n - \frac{1}{\ell_2} \frac{\partial \bar{t}_2}{\partial x_2} \cdot \bar{n}_n$$

で与えられる。

3. 薄膜近似

液膜内の n 方向流速および圧力の分布を液膜表面の値を使って以下のように線形補間する。

$$u_3 = \frac{n + H/2}{H} (u_{3p} - u_{3n}) + u_{3n} \quad (11)$$

$$p = \frac{n + H/2}{H} (p_p - p_n) + p_n \quad (12)$$

さらに、 x_1, x_2 方向流速は、液膜表面で接線方向応力が0であるとすると

$$\tau_{nx_i} \approx \ell_i \frac{\partial}{\partial n} \left(\frac{u_i}{\ell_i} \right) \approx 0, \quad \text{at } n = \pm \frac{H}{2} \quad (13)$$

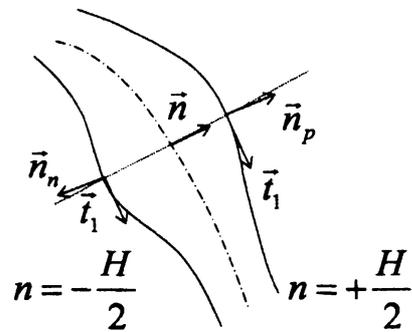


図2. 液膜表面の接線および法線ベクトル t_1 は x_1 方向の接ベクトル

より、

$$u_1 \approx U_1 + n\kappa_1 U_1, \quad u_2 \approx U_2 + n\kappa_2 U_2 \quad (14)$$

で近似することができる。式(13)の解(14)は、流体がせん断変形しない(剛体運動する)流れ場を表す。式(8)から u_{3p}, u_{3n} 、式(9)から p_p, p_n を求め、式(11),(12)に代入すれば、 u_3, p が U_1, U_2, H を使って表現される。

以上のように薄膜近似で速度および圧力の n 方向の分布を与えた場合には、積分形の運動方程式

$$\int_{-H/2}^{H/2} \text{Equation} \times \ell_1 \ell_2 dn = 0 \quad (15)$$

を支配方程式とする (Kistler (1984, PhD)、Kheshgi, Kistler and Scriven (Chem. Engng Sci., v. 47, 1992)、Kistler and Scriven (J.F.M., 1994, v. 263))。式(15)の *Equation* は、式(3),(4),(5)および(7)を代入する。未知関数は $U_1, U_2, H, \vec{u}_c = (u_{c1}, u_{c2}, u_{c3})$ および $\vec{r}_c = (X_{c1}, X_{c2}, X_{c3})$ であり、方程式は(3),(4),(5)および(7)、オイラー・ラグランジュ関係式

$$\frac{\partial \vec{r}_c}{\partial t} = u_{c1} \vec{e}_1 + u_{c2} \vec{e}_2 + u_{c3} \vec{n} \quad (16)$$

と x_1, x_2 が曲面上の距離であるという規格化条件

$$|\vec{e}_1| = 1, \quad |\vec{e}_2| = 1 \quad (17)$$

である。以上より、方程式数と未知関数の数が一致し、閉じた方程式系となる。

4. 一次元薄膜の運動方程式

積分形の運動方程式(15)は n の分数を含み煩雑なため、薄膜近似にしたがって以下のスケールリングを行う。

$$\begin{aligned} O(\partial f / \partial x_i) &= \varepsilon, \quad O(\partial f / \partial t) = \varepsilon \quad \text{for } f = U_i, H, u_{ci} \\ O(\kappa_i) &= \varepsilon \end{aligned} \quad (18)$$

ここで、 ε は微小パラメータである。上式第一式は液膜内の流速および液膜厚が液膜内で緩やかに変化していること、上式第二式はこれら物理量の非定常性が前記の空間変化と同じオーダーで小さいことを意味する。このとき、式(8)から $O(u_3) = \varepsilon$ である。また、スライドコーティングの場合には、液膜中心面の接線勾配が $O(1)$ であることから、その曲率 κ_i のオーダーを ε と大きくしている。

さて、一次元薄膜の支配方程式を単位幅当たりの流量 q および長さスケール L を用いて無次元化すると最終的に次式が得られる。

$$\frac{\partial H}{\partial t} + U \frac{\partial H}{\partial s} + H \left(\frac{\partial U}{\partial s} + \frac{\partial U_c}{\partial s} + \kappa V_c \right) = 0 \quad (19)$$

$$\begin{aligned}
& R_e H \left(\frac{\partial U}{\partial t} + \frac{\partial U_c}{\partial t} + U \frac{\partial U}{\partial s} + U_c \frac{\partial U}{\partial s} + \kappa V_c U \right) \\
& + \frac{2}{H} \left[-\frac{\partial H}{\partial s} \left(\frac{\partial H}{\partial t} + U \frac{\partial H}{\partial s} \right) + H \frac{\partial}{\partial s} \left(\frac{\partial H}{\partial t} + U \frac{\partial H}{\partial s} \right) + H^2 \left(-\frac{\partial^2 U}{\partial s^2} - \frac{\partial^2 U_c}{\partial s^2} + \kappa^2 U_c - V_c \frac{\partial \kappa}{\partial s} - 2\kappa \frac{\partial V_c}{\partial s} \right) \right] \quad (20) \\
& + \frac{H}{2C_a} \left(\kappa^2 \frac{\partial H}{\partial s} + 2H\kappa \frac{\partial \kappa}{\partial s} + \frac{\partial^3 H}{\partial s^3} \right) = S_l H \frac{\partial X_{1c}}{\partial s}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& R_e H \left\{ \left(\frac{\partial V_c}{\partial t} + U \frac{\partial V_c}{\partial s} \right) - \frac{1}{2} \kappa U (U + 4U_c) \right\} \\
& + \left[-\kappa \left(\frac{\partial H}{\partial t} + U \frac{\partial H}{\partial s} - U_c \frac{\partial H}{\partial s} \right) - \frac{\partial H}{\partial s} \frac{\partial V_c}{\partial s} + H \left\{ 2\kappa^2 V_c + U_c \frac{\partial \kappa}{\partial s} + \kappa \left(\frac{\partial U}{\partial s} + 3 \frac{\partial U_c}{\partial s} \right) - \frac{\partial^2 V_c}{\partial s^2} \right\} \right] \quad (21) \\
& + \frac{\kappa}{C_a} = S_l H \frac{\partial X_{3c}}{\partial s}
\end{aligned}$$

ここで、 s は薄膜中心線に沿った距離座標、又、 $U_c = u_{c1}$ 、 $V_c = u_{c3}$ であり、それぞれ s 方向および n 方向の薄膜中心線速度である。また、レイノルズ数、キャピラリー数およびストークス数は、それぞれ

$$R_e = \frac{\rho q}{\mu}, \quad C_a = \frac{\mu q}{\gamma L}, \quad S_l = \frac{\rho g L^3}{\mu q} \quad (22)$$

で定義されている。

次に、オイラー・ラグランジュ関係式(16)は、

$$\begin{aligned}
\frac{\partial X_{c1}}{\partial t} &= U_c \sin \alpha - V_c \cos \alpha, \\
\frac{\partial X_{c3}}{\partial t} &= U_c \cos \alpha + V_c \sin \alpha
\end{aligned} \quad (23)$$

規格化条件(17)は、

$$\frac{\partial X_{c1}}{\partial s} = \sin \alpha, \quad \frac{\partial X_{c3}}{\partial s} = \cos \alpha \quad (24)$$

となる。ここでは、薄膜中心線の勾配角 α を媒介変数として用いた。薄膜中心線曲率 κ は α を用いて

$$\kappa = \frac{\partial \alpha}{\partial s} \quad (25)$$

と表される。

以上より、未知関数 H 、 U 、 U_c 、 V_c 、 X_{c1} 、 X_{c3} 、 α 、 κ に対する8本の方程式が得られた。これらの方程式の解が時間に依存しないときは、Kistler・Scrivenの方程式(JFM, 1994)となる。また、運動方程式(19),(20),(21)では、sinuous mode と varicose mode の非線形相互作用が考慮されている。

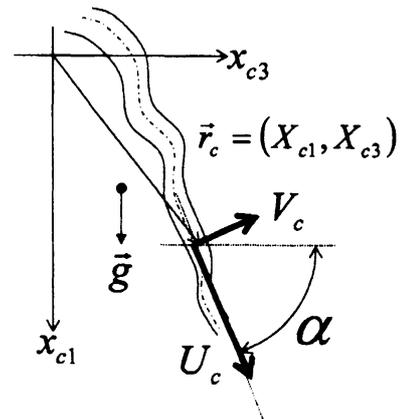


図3. 二次元液膜

5. 二次元薄膜の運動方程式

前章の式の展開から理解できるように、式(18)で与えられる薄膜近似を三次元流れに適用すると、方程式が非常に煩雑となる。したがって、本章では、以下の特殊な場合について支配方程式を示す。

5. 1 一様な液膜上の擾乱

一様な厚さおよび流速の液膜上に擾乱がある場合の擾乱の特徴について解析を行う。この場合は δ を微小パラメータとした次式を積分形の運動方程式(15)に代入し、 δ の1次の項を取れば良い。

$$\begin{aligned} H &\approx H_0 + \delta H_f, \quad U_1 \approx U_0 + \delta u_{1f}, \quad U_2 \approx \delta u_{2f} \\ X_{c1} &\approx x_1, \quad X_{c2} \approx x_2, \quad X_{c3} \approx X_{c3f}, \quad u_{c1} \approx 0, \quad u_{c2} \approx 0, \quad u_{c3} \approx \delta u_{c3f} \end{aligned} \quad (26)$$

最終的に

$$\begin{aligned} \frac{\partial H_f}{\partial t} + U_0 \frac{\partial H_f}{\partial x_1} + H_0 \frac{\partial u_{1f}}{\partial x_1} + H_0 \frac{\partial u_{2f}}{\partial x_2} &= 0 \\ R_e H_0 \left(\frac{\partial u_{1f}}{\partial t} + U_0 \frac{\partial u_{1f}}{\partial x_1} \right) - H_0 \Delta_2 u_{1f} - H_0 \frac{\partial}{\partial x_1} \left(\frac{\partial u_{1f}}{\partial x_1} + \frac{\partial u_{2f}}{\partial x_2} \right) + 2 \frac{\partial}{\partial x_1} \left(\frac{\partial H_f}{\partial t} + U_0 \frac{\partial H_f}{\partial x_1} \right) - \frac{H_0}{2C_a} \frac{\partial}{\partial x_1} (\Delta_2 H_f) &= 0 \\ R_e H_0 \left(\frac{\partial u_{2f}}{\partial t} + U_0 \frac{\partial u_{2f}}{\partial x_1} \right) - H_0 \Delta_2 u_{2f} - H_0 \frac{\partial}{\partial x_2} \left(\frac{\partial u_{1f}}{\partial x_1} + \frac{\partial u_{2f}}{\partial x_2} \right) + 2 \frac{\partial}{\partial x_2} \left(\frac{\partial H_f}{\partial t} + U_0 \frac{\partial H_f}{\partial x_1} \right) - \frac{H_0}{2C_a} \frac{\partial}{\partial x_2} (\Delta_2 H_f) &= 0 \\ R_e H_0 \left(\frac{\partial^2 X_{c3f}}{\partial t^2} + U_0 \frac{\partial^2 X_{c3f}}{\partial x_1 \partial t} + U_0^2 \frac{\partial^2 X_{c3f}}{\partial x_1^2} \right) - H_0 \frac{\partial}{\partial t} (\Delta_2 X_{c3f}) - \frac{2}{C_a} \Delta_2 X_{c3f} &= 0 \end{aligned} \quad (27)$$

が得られる。ここで、

$$\Delta_2 \equiv \frac{\partial^2}{\partial x_1^2} + \frac{\partial^2}{\partial x_2^2} \quad (28)$$

である。式(27)の第1,2,3式は varicose mode、第4式は sinuous mode の運動方程式となる。

例えば、式(29)第3式の定常解は

$$(1 - W_e/2) \frac{\partial^2 X_{c3f}}{\partial x_1^2} + \frac{\partial^2 X_{c3f}}{\partial x_2^2} = 0, \quad W_e \equiv C_a R_e H_0 U_0^2 \quad (29)$$

を満たす。上式中 W_e はウエバー数である。良く知られているように、上式で $W_e/2 > 1$ のときは式(29)は双曲型となり、液膜上に sinuous mode の定在波が存在することになる。また、液膜上の擾乱の流れ方向に対する角度から W_e が推定できることが分かる。

5. 2 鉛直落下液膜上の varicose mode

積分形の運動方程式(15)は液膜の中心曲面が平面となる時、 $\bar{u}_c = 0$ となるために簡潔な方程式形を与える。簡単な計算から $\bar{U} \equiv (U_1, U_2)$ とおくと

$$\begin{aligned} \frac{\partial H}{\partial t} + \nabla \cdot (H\bar{U}) &= 0 \\ R_e \left(\frac{\partial \bar{U}}{\partial t} + \bar{U} \cdot \nabla \bar{U} \right) &= \frac{1}{2C_a} \nabla(\Delta H) + S_l \frac{\bar{g}}{|\bar{g}|} + \Delta \bar{U} + 3\nabla(\nabla \cdot \bar{U}) \end{aligned} \quad (30)$$

が導かれる (J.-M. Chomaz (J.F.M., v. 442, 2001))。上式第2式右辺最終項は液膜厚さが増減し流体が伸縮することで発生する粘性項である。大スケールの sinuous mode の上に発生した波長の短い varicose mode は、空間局所的に見れば、式(30)に従うと考えることができる。

二次元定常鉛直落下液膜において気流のせん断応力を付加すると

$$\begin{aligned} \frac{\partial(HU)}{\partial s} &= 0, \\ R_e U \frac{dU}{ds} &= \frac{1}{2C_a} \frac{d^3 H}{ds^3} + S_l + 4 \frac{d^2 U}{ds^2} - \frac{2}{H} \frac{\tau}{\rho(q/L)^2} \end{aligned} \quad (31)$$

が得られる(式(19),(20)と式(30)の結果は一致する)。液膜表面のせん断応力は簡易的にブラジウスの境界層解

$$\tau = \alpha \rho_a U_d \sqrt{\frac{\mu_a U_d}{\rho_a s_d}}, \quad U_d = \frac{q}{L}, \quad s_d = Ls \quad (32)$$

を用いる。ここで、 α は0(1)の値である。カーテンコーティングにおいて気流のせん断が液膜厚さに影響するかどうかは、式(31)を解けば良いが、簡易的には式(31)から U および H が一定となった時の値を見積もることで評価することもできる。

次に、気流によるせん断が無視できる範囲の液膜流速を対象として、定常な varicose mode が液膜上で存在しないための十分条件を求める。式(31)から U を消去すると

$$R_e \frac{H'}{H^2} + \frac{8H'^2}{H^2} - \frac{4H''}{H^2} + \frac{H H'''}{2C_a} + S_l H = 0 \quad (33)$$

が得られる。上式の境界条件として

$$H = 1 \quad \text{at } s = 0 \quad (34)$$

$$H' + \frac{S_l}{R_e} H^3 = 0, \quad H'' - \frac{3S_l^2}{R_e^2} H^5 = 0 \quad \text{at } s = s_f \quad (35)$$

を与えれば、varicose mode の無い液膜形状が計算される。式(35)は液膜下流端の条件であり、重力加速度と慣性力が釣り合っていることを意味する。この解を $H = H_S$ とおく。さて、液膜上に varicose mode が存在するかは、式(33)の解として $H = H_S + \delta H_f$ と置き δ に関して

線形化し、その解 H_f が振動解を持つかどうかで判別することができる。下流端で擾乱が発生する場合を想定して、 $s = s_f$ における摂動方程式を求めると

$$H_f''' + C_2 H_f'' + C_1 H_f' + C_0 H_f = 0$$

$$C_2 = -\frac{8C_a}{H_s^2} + \frac{9S_t^3 H_s^8}{2R_e^3}, \quad C_1 = -\frac{32C_a S_t}{R_e} + \frac{2C_a R_e}{H_s^3} - \frac{27S_t^4 H_s^{10}}{4R_e^4}, \quad C_0 = \frac{6C_a S_t}{H_s} \quad (36)$$

となる。ここで、 H_s の微係数は式(35)を使って消去した。式(36)の解を $H_f \propto e^{\lambda s}$ と置いたときの特性方程式の解 λ が3実根を持つとき、振動解は存在せず、varicose modeは発生しない。

6. おわりに

本論で対象とした液膜は厚さが数十 μm 程度であり、また、液膜落下に伴う気流の影響が無視できる落下高さを対象としている。この場合には、表面のせん断応力も無視できるため、液膜内の流速および圧力分布は断面方向座標の1次関数で近似することができる。

一方で、上記の条件はコーティングダイのスリット出口およびエッジガイド近傍では満たされない。さらに、液膜擾乱の発生源はこれら液膜境界にある。したがって、今後は流れが急激に変化する境界近傍の解析が必要である。

参考文献

1. Kistler (1984), The Fluid Mechanics of Curtain Coating and Related Viscous Free Surface Flows with Contact Lines, Ph.D. thesis, The University of Minnesota.
2. Ida (1995), The Dynamics of Thin Liquid Films, Ph.D. thesis, Northwestern University.