

# 傾斜平板上の重層流れの安定性

Stability of Multi-layer Stratified Film Flow on Inclined Plane

齊藤 篤志\*  
Saito, Atsushi

近藤 慶和\*  
Kondo, Yoshikazu

西脇 彰\*  
Nishiwaki, Akira

In the production of photosensitive materials made by the multi-layer coating method, stability of stratified film flow on inclined plane is very important. In this work, stability of two-layer film flow was investigated experimentally. Hydrodynamically instability is assumed to be caused by shear and density difference in liquids interface. In this point of view, stability has been analysed and 'Stability parameter' was derived, with which occurrence of instability can be predicted for given conditions.

## 1 背景

写真感光材料の製造において用いられている重層塗布方式はFig. 1 に示す重層スライド塗布、或いは重層カーテン塗布があり、いずれも傾斜平板上で重層流れを形成した後支持体上に重層液膜を塗布している。この重層流が不安定であると波立ちが生じて均一な塗膜を得ることはできず、これを安定化することは非常に重要である。

傾斜平板上の流れの安定性は、単層流れ<sup>1),2)</sup>、重層流れ<sup>3),4)</sup>、非ニュートン流れ<sup>5)</sup>などに関して多く研究されている。いずれも Orr-Sommerfeld 方程式を固有値問題として解法しているが、実際の現象と合致した結果が得られていないのが現状である。小林<sup>6)</sup> は同解法を発展させて、不安定な波のピッチが実験結果と一致することを示したが、実技上問題となる濃度ムラに対しては解決されない。

そこで、実用性を目的として二層流の安定性、特に液-液界面の安定性を実験的に解析し、実用的に安定化の方向を探索すると共に、安定条件を見出すことを目的として検討を行った。

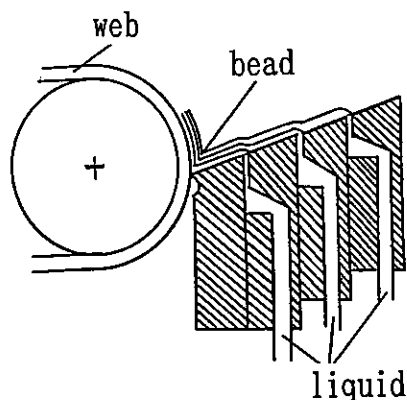


Fig. 1 Cross section of slide hopper

## 2 実験方法

### 2-1 波立ちの評価

傾斜平板（以下、スライド面と称す）上の流れが不安定になると液-液界面に波立ちが生じる。これをスライド面上で直接観察し評価することは困難である。何故なら、スライド面上の膜厚は微小であり、かつその変動はさらに小さいからである。そこで、塗布された支持体を評価することでスライド面上の現象を間接的に評価することにした。

支持体上の変動はマイクロデンストメータを塗布方向に走査することにより、光学濃度変動として出力した。測定結果の1例をFig. 2 に示す。

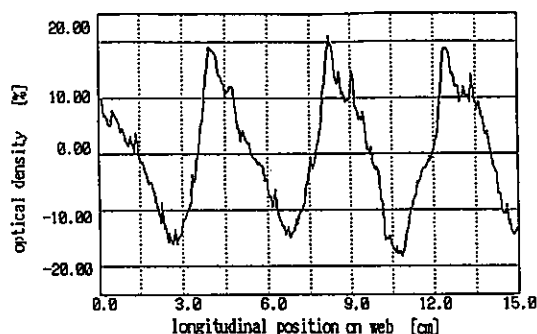


Fig. 2 Optical density fluctuation

横軸は塗布長手方向、縦軸は光学濃度である。変動が周期的に生じていることがわかる。これより、乱れの振幅及び周波数が評価できる。実技上重要なのは振幅であり振幅が十分に小さければ実用に供することができる。そこで濃度変動率を次式で定義して、

$$F = \frac{\text{RMS}}{\text{average}} * 100\%$$

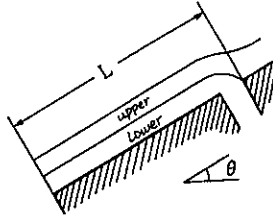
濃度ムラの定量化を図った。

\* 感光材生産本部 技術センター開発グループ

## 2-2 実験条件

### (1) 塗布条件

塗布方式：スライド塗布  
 塗布速度：30m/min  
 塗布液：ゼラチン水溶液  
 重層数：2



上図に示すようにスリットから流出した下層液は上流側から流下してくる上層液と重畳して液-液界面を形成した後スライド面を流下し、塗布される。

### (2) 実験範囲

スライド面上の流れの安定性を支配する因子及びその範囲を Table 1 に示す。

Table 1 Range of Parameters

	upper layer	lower layer
flow rate	0.15~0.83 cc/cm/sec	0.15~0.21 cc/cm/sec
viscosity	20~100 cp	20~100 cp
surface tension	27~40 dyne/cm	27~40 dyne/cm
density	1.00~1.20 g/cm <sup>3</sup>	1.00~1.20 g/cm <sup>3</sup>
angle of slide	5~40 deg	
length of slide	30~600 mm	

## 3 実験結果

### 3-1 スライド面長さ影響

Fig. 3 に濃度変動率  $F$  に対するスライド面長さの影響を示す。横軸はスライド面長さ、縦軸が濃度変動率  $F$  である。パラメータは、上層の流量である。スライド面長さが延長する、即ち流下する距離が大きくなるに従い、濃度変動が増大していることがわかる。これは、液-液界面形成後発生した乱れが流下に伴い発達してゆくことを表している。

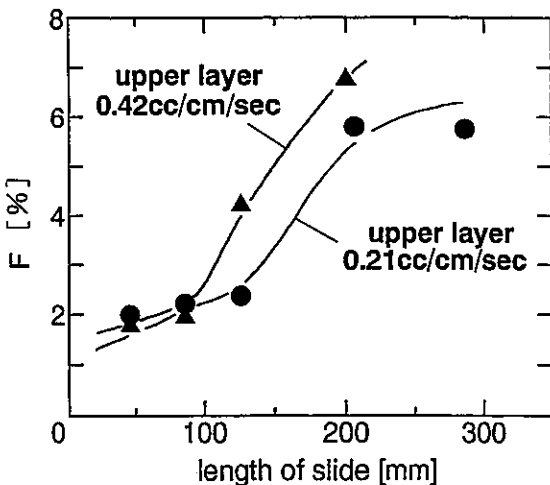


Fig. 3 Effect of slide length on waving

### 3-2 スライド面角度の影響

Fig. 4 にスライド面角度の濃度変動率  $F$  への影響を示した。パラメータは上層流量である。いずれの条件においても、スライド面角度が大きくなるに従い濃度変動が大きくなる傾向が認められる。また、上層流量が大きいほど、濃度変動が大きくなっている。

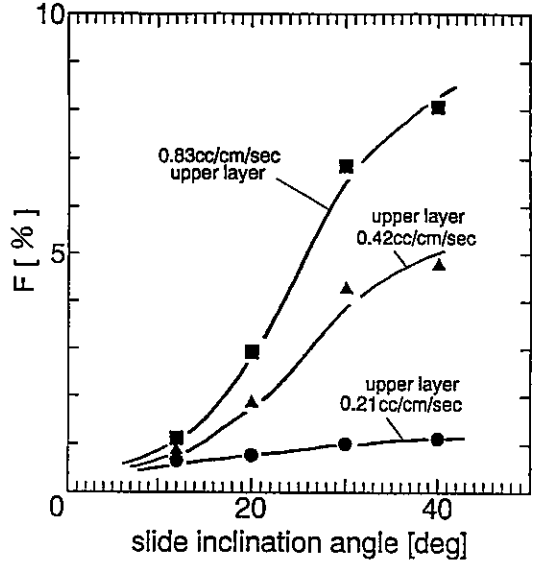


Fig. 4 Effect of slide angle on waving

### 3-3 塗布液粘度の影響

Fig. 5 に濃度変動率  $F$  に対する塗布液粘度の影響を示した。パラメータは先と同様に、上層流量である。いずれの場合でも、粘度増加に伴い濃度変動が減少する傾向にある。即ち、粘度増加により乱れが抑制されることがわかる。なお、上層と下層の粘度は同一である。また、上層流量が多いほど乱れやすいという傾向はここでも認められる。

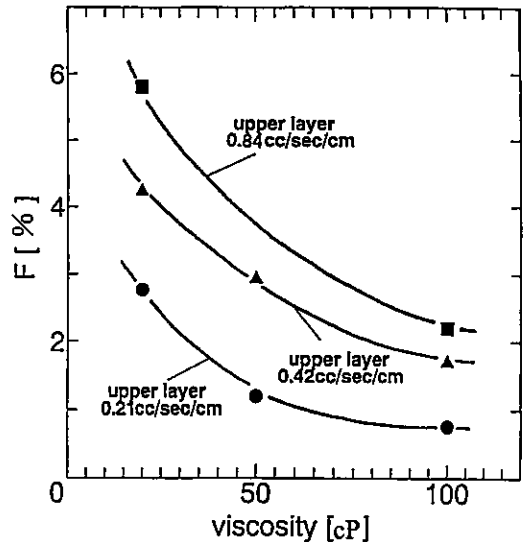


Fig. 5 Effect of liquids viscosity on waving

### 3-4 塗布液密度の影響

Fig. 6 に塗布液密度の濃度変動に対する影響を示す。横軸は上層と下層の密度差であり、第1象限は上層高密度の領域、第2象限は下層高密度の領域を表している。いずれの領域においても、密度差が大きくなるに従い乱れが大きくなっていく傾向にある。さらに、上層高密度の場合の方がより乱れやすく不安定であることがわかる。

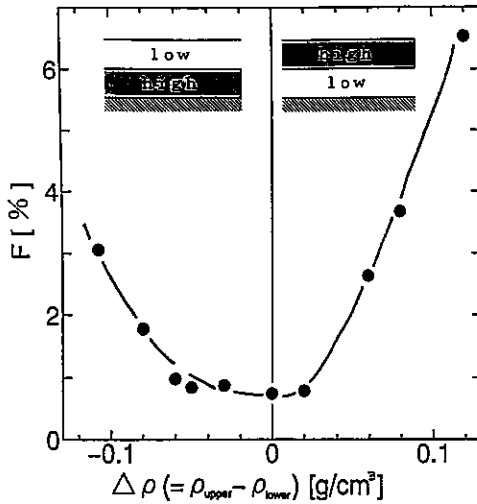


Fig. 6 Effect of liquids density on waving

### 3-5 実験結果のまとめ

各パラメータに関して、流れの安定化の方向と効果を定性的にまとめたのがTable 2である。

Table 2 Tendency of experimental results

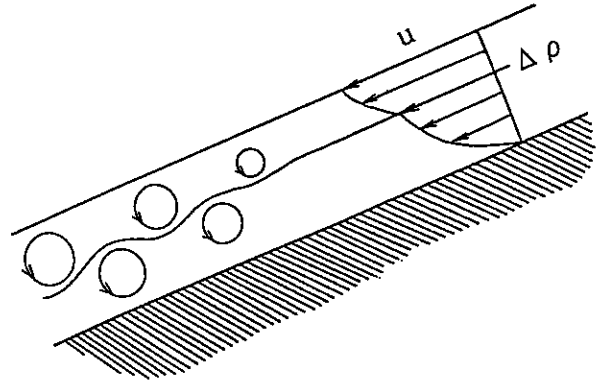
パラメータ	安定化の方向	効果
スライド面長さ	減少	大
スライド面角度	減少	中
流量	上層	減少
	下層	増加
	total	増加
塗布液粘度	増加	中
塗布液密度	差を減少	大

スライド面長、上層流量を小さくし、塗布液の密度差を小さくすることが特に有効である。

## 4 考察

スライド面上の重層流れを流体力学の観点で考察する。速度分布は壁面で0、気-液界面で最大となりせん断が存在する。また、上下で異なる塗布液が流下するので密度差が存在する。したがって、『せん断を有する密度成層流』ととらえることができる。

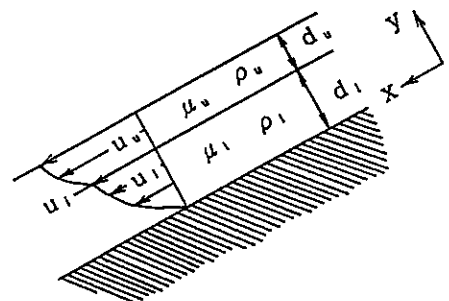
次に、乱れの発生及び成長について考える。



上図に示すような、乱れが発生し、流下に伴い成長していく現象であり、渦の発生が予想される。発生の原因としては、液-液界面におけるせん断及び密度差が考えられる。乱れの成長は、流下に伴い増大することから、スライド面上での滞留時間に支配されていると考えた。

### 4-1 流動計算

二次元平行流を仮定して、上記因子の数値化を行う。各変数は下図のとおり。



#### (1) せん断速度

液-液界面における上層側、下層側でのせん断速度は、それぞれ次式で表される。

$$\left. \frac{\partial u_u}{\partial y} \right|_{y=d_1} = \frac{g \sin \theta}{\mu_u} \rho_u d_u$$

$$\left. \frac{\partial u_l}{\partial y} \right|_{y=d_1} = \frac{g \sin \theta}{\mu_l} \rho_u d_u$$

#### (2) 密度差

$$\Delta \rho = \rho_u - \rho_l$$

(3) 滞留時間

液-液界面の速度  $u_i$  で流下距離  $L$  を除した値

$$t = \frac{L}{u_i} = \frac{\mu_1 L}{g \sin \theta \left( \frac{1}{2} \rho_1 d_1^2 + \rho_u d_u d_1 \right)}$$

以上より、濃度変動率  $F$  はせん断速度、密度差、滞留時間の関数になると考える。すなわち、

$$F = f \left( \frac{\partial u}{\partial y}, \Delta \rho, t \right)$$

さらに、 $x$ 、 $y$  の各成分に分けると

$$F = \underbrace{g_1 \left( \frac{\partial u}{\partial y}, t \right)}_{\text{X-component}} \cdot \underbrace{g_2 (\Delta \rho)}_{\text{Y-component}}$$

X-component Y-component

4-2 Stability parameter

まず  $X$  成分について考える。parameter としては、次式を採用した。

$$X = \frac{1}{2} \left[ \left( \frac{\partial u}{\partial y} \right)_{upper} + \left( \frac{\partial u}{\partial y} \right)_{lower} \right] \times t \quad [-]$$

$$= f(q, \mu, \rho, \theta, L)$$

せん断速度の項は上下層の平均値をとっている。これは、実験結果より決定したものである。上下層のせん断速度差という捉え方もある<sup>9)</sup>が、これでは増粘により乱れが抑制されるという実験結果と合致しない。上記 parameter は、無次元であり、かつ流量、粘度、密度、スライド面角度、長さの影響を包括したものとなっている。この Stability parameter  $X$  で実験 data を整理したのが、Fig. 7 である。

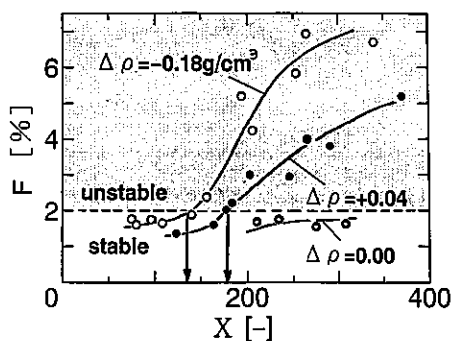


Fig. 7 Relation between  $X$  and  $F$

Stability Parameter  $X$  の増加に伴い、濃度変動率  $F$  は単調増加している。即ち、 $X$  が大きいほど不安定である。パラメータは上下層の密度差であり、密度差が小さ

いほど  $F$  の増加は小さくなっている。実用上の許容値を仮に  $F=2$  として、安定、不安定の領域分けをすると、各密度差に対して不安定領域に移行する  $X$  の閾値が決定される。例えば、 $\Delta \rho = 0.04 \text{g/cm}^3$  の場合の閾値は  $X=180$  と読みとれる。

4-3 安定性の予測

$y$  成分である密度差についての  $X$  の閾値をプロットした結果が Fig. 8 である。横軸が上下層の密度差、縦軸が安定状態から不安定状態へ移行する閾値  $X$  threshold である。白色部が安定領域、グレー部が不安定領域を示す。これより、密度差が大きいかほど閾値は小さく不安定であることがわかる。

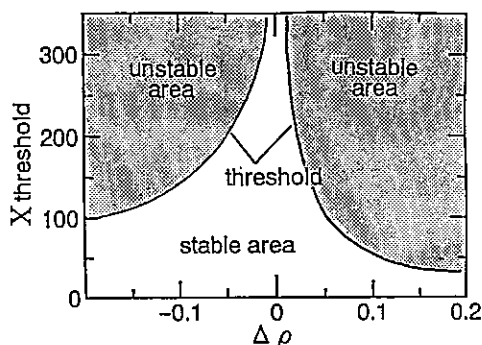


Fig. 8 Relation between  $X$  threshold and  $\Delta \rho$

ここで観点を換えれば、この Fig. 8 を用いて重層流れの安定性を予測することができる。

手順は、①予測したい条件（流量、粘度、密度、スライド面角度、長さ）に対して、stability parameter  $X$  及び密度差  $\Delta \rho$  を計算する。②得られた  $(\Delta \rho, X)$  を Fig. 8 上にプロットし、安定か、不安定かを判断する。

5 結論

傾斜平板上の重層流れの安定性を 2 層のスライド塗布実験により解析した。安定性の支配因子の影響を明らかにすると共に、液-液界面のせん断速度、流下時間、密度差に着目して解析した結果、平行流の計算により乱れの発生をある程度予測できるようになった。

今後、この解析方法を 3 層以上の系へ適用していく。また、界面の物質拡散が乱れ発生の原因であるという報告もあり<sup>7)</sup>、物質移動、或いは、界面化学の観点でも重層流れの安定性を解析していく必要があると考える。

[references]

1. Benjamin, T. B.: J. Fluid Mech., 2, 554(1957)
2. Yih, C.S.: Phys. Fluids, 6(3), 321(1963)
3. Kao, T.W.: Phys. Fluids, 8(5), 812(1965)
4. S. P. Lin et al.: J. Appl. Mech., 45, 25(1978)
5. S. J. Weinstein: AIChE J., 36(12), 1873(1990)
6. C. Kobayashi: I. C. R., 2, 65(1992)
7. W. V. Abbenyten et al.: I. C. R., 2, 89(1992)