

# 多層コーティングのレベリング

Leveling of Multilayer Coating

風 間 研 一 \*      L. E. Scriven \* \*

Kazama, Kenichi

In the manufacturing of photographic films, a multilayer film with different viscosities and thicknesses in each layer is coated onto a web simultaneously. It is very important that the layers are uniform because a small fluctuation in the thickness can be easily detected after developing the film. If the web is wavy, the coated layers flow from the crest to the trough by gravity and capillary pressure gradient. Using the lubrication approximation, a method to compute the deformation in each layer of a N-layer film is presented.

## 1 はじめに

写真感光材料の塗布プロセスにおいて、スライドコーターやカーテンコーターによる多層フィルムの同時重層塗布を行っている。塗布直後にそれぞれの層が均一な膜厚であったとしても、支持体に凹凸がある場合にはレベリングにより液が流れ、膜厚が不均一になる (Fig.1)。また、塗布ムラのため、ある層に乱れが生じた場合、レベリングにより、その乱れが他の層に伝わっていくこともある。各層のわずかな膜厚の乱れも画像のムラとなって現れるため、レベリング量をコントロールすることは重要な課題である。

レベリング現象は以前から研究されている。<sup>1), 2)</sup> 従来、単層コーティングの研究の場合は、自由表面が平滑化するのに要する時間を求めることが研究の主目的であった。多層コーティングのレベリングに関する研究には、有限要素法を用いた解析<sup>3)</sup>、レベリング中の表面張力勾配を考慮した研究<sup>4)</sup>などがある。本研究の主目的は、任意の膜厚構成と粘度構成を有する多層コーティングの各界面のレベリング量を簡便な方法を用いて求めることである。

本研究の解析手法について簡単に述べておく。まず潤滑理論により各層内の速度分布を求め、任意のN層の場合のレベリングの方程式を導いた。初期外乱が小さい場合にはこれらの式を線形化することにより、簡便な式で解を表すことができた。また、初期外乱が大きい場合には、非線形の方程式を差分法で解いた。

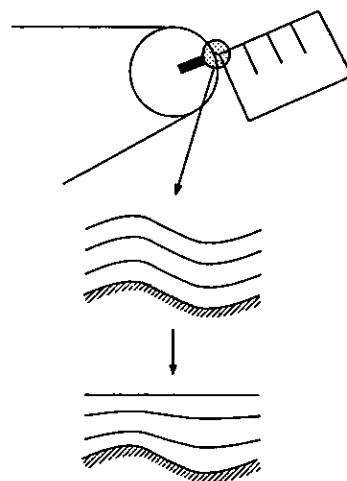


Fig.1 Leveling of the three-layer coating on wavy substrate.

\* 感材技術センター

\*\* University of Minnesota

## 2 初期外乱の振幅が小さい場合の線形解

膜厚の均一なコーティングが凹凸のある支持体上に塗布された場合を想定する。Fig.2は2層のコーティングの自由表面と中間界面の初期条件（上図）とレベリング終了時の状態（下図）を示す。初期条件では上下層とも均一な膜厚であり、自由表面と中間界面は支持体と同形状をしている。レベリングにより最終的に自由表面は平滑化するが、中間界面は完全に平滑化しない。

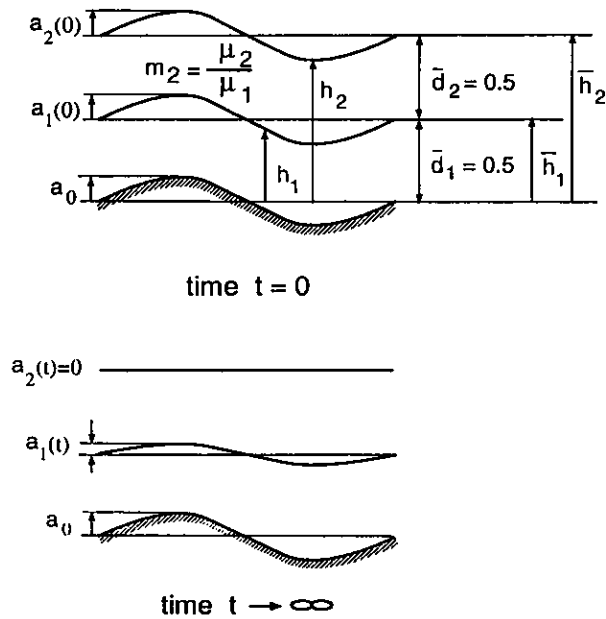


Fig.2 Leveling of the two-layer coating on wavy substrate. Upper figure is the initial condition at  $t=0$ . Lower figure is the ultimate amplitude of the interfaces.

初期条件における自由表面と各界面の振幅が総膜厚に比べ小さい場合、中間界面の振幅  $a_1$  および自由表面の振幅  $a_2$  は下記の線形解で与えられる。

$$a_1(t) = \left[ 1 - \frac{M_1}{M_1 + M_2} \left[ 1 - e^{-\left(\frac{Bo}{2\alpha^2} + 1\right)(M_1 + M_2)t} \right] \right] a_0$$

$$a_2(t) = e^{-\left(\frac{Bo}{2\alpha^2} + 1\right)(M_1 + M_2)t} a_0 \quad (1)$$

ここで  $M_i$  は第  $i$  層の流動性を表すパラメータであり、

各層の粘度および膜厚の関数である。

$$M_i = \frac{1}{2} \left\{ \frac{1}{m_i} \left[ (1 - \bar{h}_i)^3 - (1 - \bar{h}_{i-1})^3 \right] - 3 \left[ \sum_{k=1}^i \left( \frac{1}{m_{k-1}} - \frac{1}{m_k} \right) (1 - \bar{h}_{k-1})^2 \right] (\bar{h}_i - \bar{h}_{i-1}) \right\} \quad (2)$$

$Bo$  はボンド数  $Bo = (2\rho g H_0^2) / \sigma$  であり、重力と表面張力の比を表す。レベリングの推進力は、波長が大きい場合には重力が支配的、波長が短い場合には表面張力による毛管力が支配的になる。 $\alpha$  は総膜厚と波長  $L$  の比、 $h_i$  は第  $i$  層の界面位置、 $H_0$  は総膜厚を示す。Fig.3に線形解で計算した自由表面と中間界面の振幅の時間変化を示す。時間の単位は  $(3\mu_1 L) / (\alpha^3 \sigma)$ 、縦軸は初期振幅で除した振幅である。上層の下層に対する粘度比  $m_2$  が小さいほど自由表面のレベリングは早くなり、中間界面のレベリング量は減少することがわかる。

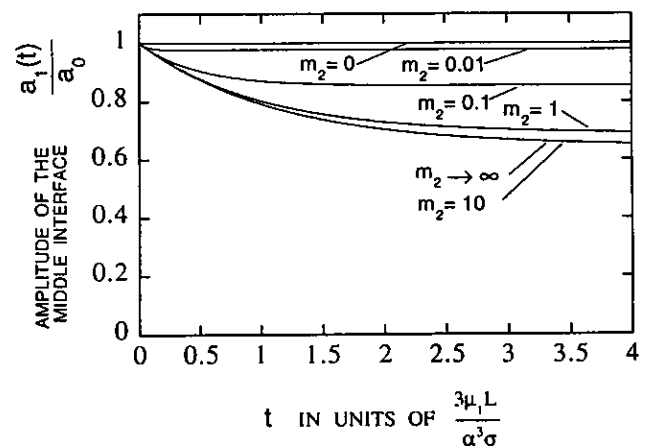
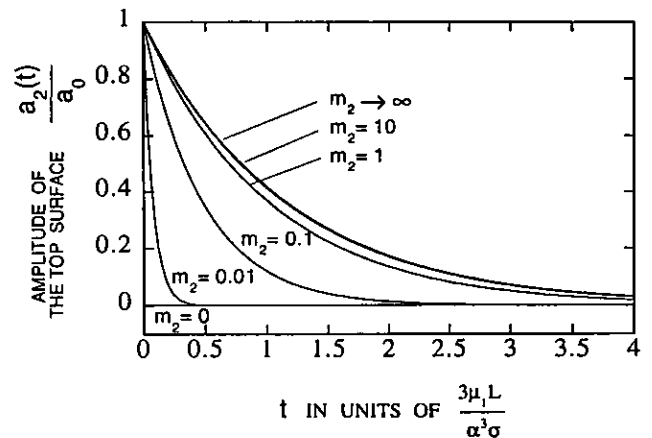


Fig.3 Evolution of the amplitude of deformation of the top surface (top figure) and the middle interface (bottom figure). Substrate is wavy.

粘度比  $m_2$  が小さいほど式(2)に示した上層の流動性  $m_2$  は大きくなる。このため式(1)の指数部が増加し、自由表面のレベリング速度 ( $a_2$  の変化速度) が増加した。また、流動性の比  $M_1/(M_1+M_2)$  の減少により中間界面の最終レベリング量 ( $a_1$  の変化量) が減少した。

### 3 初期外乱の振幅が大きい場合の数値解析

初期外乱の振幅が総膜厚の 10% 程度以上の場合には、次の非線形方程式を数値解析で解く必要がある。

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}(h_i - h_{i-1}) = & -\frac{3a}{2} \frac{\partial}{\partial x} \left\{ \frac{1}{2\alpha^2 a} \left[ Bo \frac{\partial h_N}{\partial x} - 2\alpha^2 \frac{\partial^3 h_N}{\partial x^3} \right] \right. \\ & \left. \left[ \frac{1}{3m_i} \left[ (h_N - h_i)^3 - (h_N - h_{i-1})^3 \right] \right. \right. \\ & \left. \left. - \left[ \sum_{k=1}^i \left( \frac{1}{m_{k-1}} - \frac{1}{m_k} \right) (h_N - h_{k-1})^2 \right] (h_i - h_{i-1}) \right] \right\} \\ & i = 1 \dots N \quad (3) \end{aligned}$$

上記式を差分法により空間的に離散化し、汎用ソルバーである DDASSL<sup>5)</sup> によって解いた。支持体が平滑で自由表面のみに外乱が与えられた場合の自由表面と中間界面形状の時間変化を Fig.4 に示す。初期条件は自由表面に Sin 波状の外乱が与えられており、中間界面は水平であった。上層の粘度は下層の粘度に等しい。レベリングの進行とともに、上層の液が図中左から右に流れ、下層の液にも影響を及ぼした結果、中間界面に乱れが生じていく様子がわかる。初期に乱れない層であってもレベリング中に他の層の影響を受け、乱れが生じていくことを示している。また、式非線形性のため、中間界面の乱れが Sin 波状ではなく、非対称な形状であることがわかる。式非線形性とは、この場合、深さの大きな位置でレベリング量が多いことを表しており、下層の左側でレベリング量が小さく、右側でレベリング量が多いことに対応している。

次に、支持体が平滑であり、下層にのみ外乱が与えられた場合を Fig.5 に示す。初期条件では上層の膜厚は均一であるが、レベリングの結果、図中左側で上層が薄くなっていることがわかる。

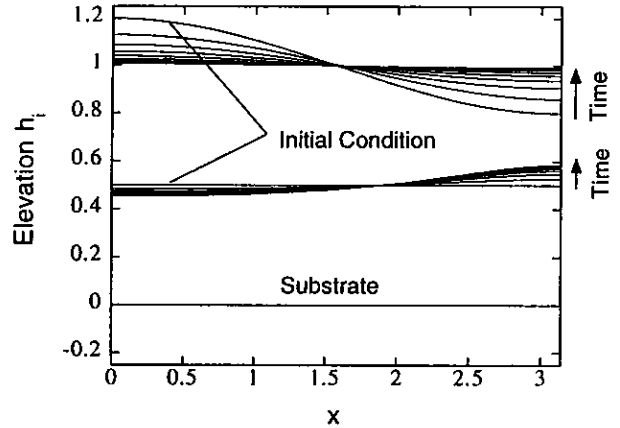


Fig.4 Top surface and middle interface profiles during leveling. The top layer and the bottom layer have the same viscosity and the same mean thickness. Initially, the middle interface is flat.

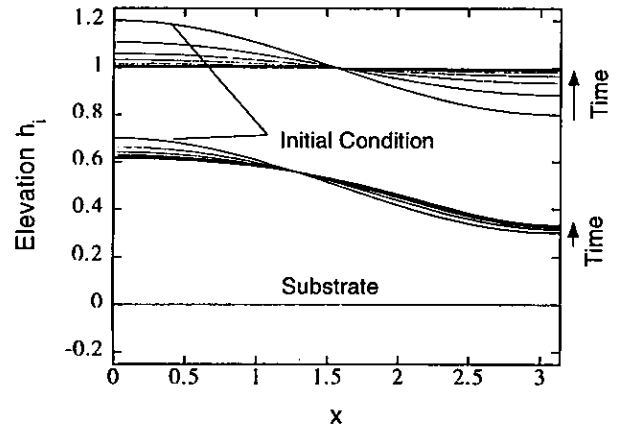


Fig.5 Top surface and middle interface profiles during leveling. Initially, the top layer has uniform thickness.

Fig.6に5層コーティングの場合の各界面のレベリング中の形状変化を示す。支持体はSin波状であり、各層の粘度は等しい。初期条件では各層の膜厚は均一である。グラフより、下層ほどレベリング量が小さいことがわかる。これは、支持体に近いほど流速が小さいためであり、自由表面でレベリング量は最大になる。ここに示したのは5層のコーティングであるが、さらに層数が多い場合についても計算することが可能である。

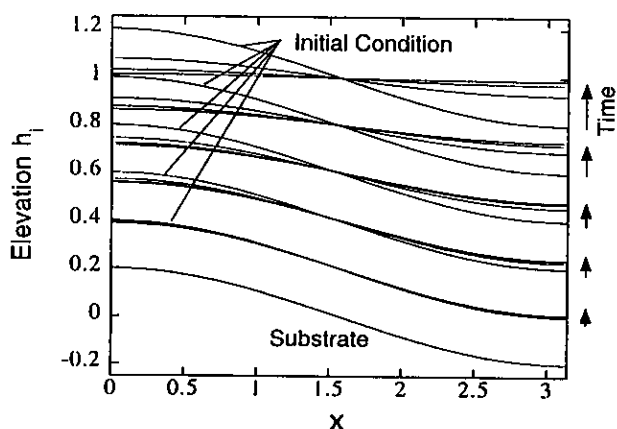


Fig.6 Profiles of the interfaces of five-layer coating during leveling. The viscosities and the mean thickness of all the layer are equal.

#### 4 まとめ

本研究で導かれた式により、任意のN層のコーティングについて自由表面と各界面のレベリング量を簡便に予測できるようになった。これにより、各層の粘度および膜厚を最適設計することで、所望の層の膜厚変動をコントロールすることができるようになった。

#### ●参考文献

- 1) Anshus, B.E., Am. Chem. Soc. Div. Org. Coating Plastics Chem. 33(2) 493-501 (1973)
- 2) Orchard, S.E., Appl. Sci. Res. A11, 451-464, (1962)
- 3) 沖 和宏、片桐良伸 化学工学会第 28 回秋季大会研究発表講演要旨集、85 (1995)
- 4) Joos, F.M., AIChE Journal 42, 623-637 (1996)
- 5) Petzold, L. R. "A description of DASSL: A differential/algebraic system solver." Sandia National Laboratory Report SAND 82-8637, (1982)