回転円盤上の液膜流れへの熱の影響*

(第3報, 一次元モデルの数値解析)

北 村 哲 浩^{*1}Thermal Effect on Film Flow on a Rotating Disk
(3rd Report, Numerical Analysis of One-Dimensional Model)Akihiro KITAMURA^{*2}^{*2} Japan Nuclear Cycle Development Institute Tokai Works,
4-33 Muramatsu, Tokai, Naka, Ibaraki, 319-1194 Japan

The thermal effect on a liquid film of uniform thickness on a rotating disk is analyzed by numerical method. The Navier-Stokes equations and the energy conservation equation in self-similar form for a case in which the disk temperature remains constant and equal neither the temperature of the surrounding gas nor that of the initial film, are solved by a finite-difference scheme. Assuming Newton's cooling law at the liquid-gas interface, the film thinning process was simulated for any Prandtl numbers. The numerical results reveal that if the Reynolds number is small and the product of Reynolds number and Prandtl number is up to unit order, the analytical expression in the lubrication limit gives a reasonable prediction for the transient film thickness. Furthermore, above calculations were extended by solving coupled equations for both liquid and gas phase with applicable boundary conditions, and the transient value of temperature and film thickness were obtained.

Key Words: Fluid Mechanics, Axisymmetric Flow, Unsteady Flow, Heat Transfer, Film Flow, Spin Coating

1. 序論

スピンコーティングは薄膜形成法として, LSI 用ウエハへのフォトレジストの塗布, 磁気ディスクへの磁性材料の塗布などに広く応用されている. これらの製品の高度化に伴い, 正確でしかも均一な膜厚の実現が要求され, 液膜の厚みの時間経過を解明することは工学的に重要である.

回転円盤上におけるニュートン流体の液膜流れについて, Emslie ら⁽¹⁾は, 遠心力と粘性応力が釣り合うものとし解析を行い, 初期膜厚が不均一であっても回転につれて均一になるとの結果を得, 表面加工におけるスピンコーティングの工学的応用面での優位性を明らかにした. Higgins⁽²⁾は小さな Reynolds 数 (Re 数) に対し, 漸近級数を使った方法により解析的に解き, 急に回転を開始した円盤上の厚さの均一な液膜流れを解析している. Rehg ら⁽³⁾はこれを拡張し, 任意の Re 数に対し, 数値的な方法を用いて上と同様の解析を行い, 液膜への Re 数の影響を詳細に調べている. 松本ら⁽⁴⁾

はスピンコーティングの初期過程に焦点を当て, 回転円盤に乗せられた半球状の流体塊が液膜状に広がる過程について, 表面張力などの効果も取り込んだ詳細な数値解析を行い, さらに小原⁽⁵⁾らは拘束のない大気中の回転円盤上に形成された液膜が, その気液界面からの溶媒の蒸発等, 熱・物質の移動を伴い薄膜化する現象について数値解析を行っている.

著者ら⁽⁶⁾は回転円盤上に大気および初期の液膜の温度 T_0 とは異なる一定の温度 T_d を円盤に与えた場合に, 膜厚が径方向座標成分に依存しない 1 次元モデルについて熱的影響を調べた. そこでは, コーティング初期過程では温度差による影響は小さいが, 液に働く遠心力が粘性応力と釣り合状態となった後期過程では温度差による影響は大きく, 特に動粘度の変化による効果が強く現れ, 例えば $T_d > T_0$ のときは, 液膜はより速く薄くなることなどが示された. しかしながら, Prandtl 数 (Pr 数) が大きい場合については定性的な議論に留まっていた. そこで本論文では, 既報⁽⁶⁾で限定されていた部分に着目し, 数値的な手法を用いることにより, これらの限定部を克服することを試みる. まず始めに気液界面において Newton の冷却則を用い, 任意の Pr 数について解析を行い, さらに計算領域と

* 原稿受付 1999年9月6日.

^{*1} 正員, 核燃料サイクル開発機構東海事業所(〒319-1194 茨城県那珂郡東海村松4-33).

E-mail: kitamu@tokai.jnc.go.jp

して気層の部分も考慮し、気液界面での熱の移動を取りこむことにより既報では条件値として残していた Nusselt 数を除去した解析を行う。

2. 問題の定式化

初期温度 T_0 の不揮発性・非圧縮 Newton 流体を一定温度 T_d の回転円盤上で塗布する状況を考える。初期膜厚は一般に不均一であるが、初期液膜の膜厚と径の比（縦横比）が小さい場合には均一膜厚を仮定した解が安定に存在すること^{(2), (7)}、またこの解が不均一膜厚を仮定した液膜流れを支配する発展方程式の主要解となることから^{(8), (9)}、ここでは縦横比が充分小さい場合に限定し（縦横比が 0.25 を超える場合には、均一膜厚の近似が適切でなかったとの報告がある⁽¹⁰⁾）、初期膜厚 h_0 を均一とする^{(2), (3), (5)-(7)}。円盤が一定角速度 Ω で回転し始めると、液は遠心力により円盤上に広がり厚みを減少させるが、温度差を与えているために、その厚みの変化は熱的な影響も受けるであろう。流体を水とすると、その熱的性質は下表のようにになっている⁽¹¹⁾。

Table 1 Physical properties of Pure Water at 1 atm.

Temperature T ($^{\circ}\text{C}$)	20	25	30
Viscosity $\mu \times 10^{-2}$ ($\text{g/cm} \cdot \text{s}$)	1.002	0.891	0.798
Kinematic viscosity $\nu \times 10^{-2}$ (cm^2/s)	1.004	0.895	0.802
Thermal conductivity $\lambda \times 10^{-3}$ ($\text{J/cm} \cdot \text{s} \cdot ^{\circ}\text{C}$)	5.9	—	6.1
Heat transfer coefficient $\kappa \times 10^{-3}$ (cm^2/s)	1.42	—	1.46
Density ρ (g/cm^3)	0.998	0.997	0.996
Specific heat c ($\text{J/g} \cdot ^{\circ}\text{C}$)	4.182	4.179	4.178
Surface tension coefficient σ (dyn/cm)	72.8	72.0	71.2

表に示されているように、粘度および動粘度を除き、他の温度依存性は小さい。そこで、ここでは円盤と初期液膜・周囲外気の温度差を数度程度とし、(動)粘度が初期の値から変化する状況を考え、しかもそれは温度(差)に比例するものとする⁽¹²⁾。流動状況下で軸対称一次元モデルを考えると円柱座標 (r, θ, z) を用いて流体の速度成分 (u, v, w) と温度 T は径方向座標成分 r を分離した相似解の形で次のように表すことができる⁽²⁾。

$$u = r \cdot f(z, t), \quad v = r \cdot g(z, t), \quad w = w(z, t), \quad T = T(z, t) \quad \dots \dots \dots (1)$$

従って、Navier-Stokes 方程式、連続の式、およびエネルギー方程式は、

$$f_i + f^2 - g^2 + wf_z = \nu_0 [f_{zz} + \nu_0^{-1} \nu_{0T} \{f_z(T - T_0)\}_z] \dots (2a)$$

$$g_i + 2fg + wg_z = \nu_0 [g_{zz} + \nu_0^{-1} \nu_{0T} \{g_z(T - T_0)\}_z] \dots (2b)$$

$$2f + w_z = 0, \quad T_i + wT_z = \kappa T_{zz} \dots \dots \dots (2c, 2d)$$

となる。ここで、添字 0 は周囲の温度に対応した量を示し、動粘度の温度依存性は $\nu = \nu_0 + d\nu_0/dT(T - T_0)$ と表現した。さらに上式で流体の厚み h が一定であるから、 z 方向の Navier-Stokes 方程式は圧力場を決定するためにのみ用いられ、流体の厚みの時間変化を考える上では必要ないので省略してある⁽²⁾。添字 t, z, T はそれらの独立変数についての微分を示す。これらの方程式に対する境界条件は、まず、円盤上で粘着の条件および温度の連続性より^{(5), (13)},

$$f(0, t) = 0, \quad g(0, t) = \Omega, \quad w(0, t) = 0, \quad T(0, t) = T_d \dots (3)$$

となり、液体の表面 $z = h$ で、接線方向の力のつり合い式、ニュートンの冷却の条件と運動学的条件より

$$f_z(h, t) = g_z(h, t) = 0, \quad -\rho \kappa T_z(h, t) = \alpha \{T(h, t) - T_0\}, \quad h_t(t) = w(h, t) \dots \dots \dots (4)$$

となる。ここで α は熱伝達係数である。

さらに、初期条件は、時刻 $t = 0$ で流体が静止しており、その温度は周囲の温度 T_0 に等しく、円盤は回転角速度 Ω で回り出すので次のようになる。

$$f(z, 0) = g(z, 0) = w(z, 0) = 0, \quad T(z, 0) = T_0, \quad h(0) = h_0, \quad h_t(0) = 0 \dots \dots \dots (5)$$

ところで、実際の工程では、円盤が急に回転を始めるといっても、円盤の角速度が一定となるまでには僅かながら時間を要する。従ってここでは、円盤が定常角速度を有するまでの時間が充分小さく過程に影響を及ぼさない状況を考えていることに相当する⁽³⁾。

次に以上の式の無次元化を行うが、その前に時間スケールについて触れておく。この問題には、まず流体の運動に関連して流体内に渦度が拡散するまでの時間および流体の遠心力と粘性応力とがつり合うまでの時間の 2 つのスケール、また熱の移動に関連して流体内に熱が拡散するまでの時間スケールの合計 3 つの時間スケールが存在する。しかし、一般に液体については渦度の拡散の方が熱の拡散より速く、また、遠心力と粘性力がひとたび釣り合えば、以降この釣り合い状態が保持されるので、熱の拡散過程はこれら流体の運動に関する 2 つの時間スケールで捉えることができる（以上 2 つの時間スケールはそれぞれ、 h_0^2/ν_0 および $\nu_0/h_0^2\Omega^2$ で与えられる⁽²⁾）。そこでここでは代表時間としてこの 2 つの時間スケールの間を取り、円盤が一回転するのに要する時間 Ω^{-1} を用い（以上の時間スケールそれぞれに Ω を掛けると、渦度が拡散する時間スケール： $h_0^2\Omega/\nu_0$ 、円盤が一回転する時間スケール：1、遠心力と粘性力が釣り合う時間スケール： $\nu_0/h_0^2\Omega = (h_0^2\Omega/\nu_0)^{-1}$ となることに注意）、また代表長さとして初期液膜厚さ h_0 をとり、無次元量の諸量を次のよう定める。

$$Z = \frac{z}{h_0}, \quad \tau = t\Omega, \quad F = \frac{f}{\Omega}, \quad G = \frac{g}{\Omega}, \quad W = \frac{w}{h_0\Omega},$$

$$\Theta = \frac{T - T_0}{T_d - T_0}, \quad H = \frac{h}{h_0} \dots \dots \dots (6)$$

以上の変数を用いると式 (2) は無次元形式で、次のようになる。

$$\text{Re} \left(\frac{\partial F}{\partial \tau} + F^2 - G^2 + W \frac{\partial F}{\partial Z} \right) = \frac{\partial^2 F}{\partial Z^2} - \varepsilon \frac{\partial}{\partial Z} \left(\frac{\partial F}{\partial Z} \Theta \right) \dots \dots (7a)$$

$$\text{Re} \left(\frac{\partial G}{\partial \tau} + 2FG + W \frac{\partial G}{\partial Z} \right) = \frac{\partial^2 G}{\partial Z^2} - \varepsilon \frac{\partial}{\partial Z} \left(\frac{\partial G}{\partial Z} \Theta \right) \dots \dots (7b)$$

$$2F + \frac{\partial W}{\partial Z} = 0, \quad \text{Pr Re} \left(\frac{\partial \Theta}{\partial \tau} + W \frac{\partial \Theta}{\partial Z} \right) = \frac{\partial^2 \Theta}{\partial Z^2} \dots \dots (7c, d)$$

また境界条件および初期条件は以下のようになる。

$$Z = 0 : F(0, \tau) = W(0, \tau) = 0, \quad G(0, \tau) = \Theta(0, \tau) = 1 \dots \dots (8a)$$

$$Z = H(\tau) : \frac{\partial F}{\partial Z} = \frac{\partial G}{\partial Z} = 0, \quad \text{Re} P(H, \tau) = 2 \frac{\partial W}{\partial Z}, \quad \frac{dH}{d\tau} = W,$$

$$\frac{\partial \Theta(0, \tau)}{\partial Z} = -\text{Nu} \Theta(0, \tau) \dots \dots \dots (8b)$$

$$\tau = 0 : F(Z, 0) = G(Z, 0) = W(Z, 0) = \Theta(Z, 0) = 0, \quad H(0) = 1 \dots \dots \dots (8c)$$

上式中の無次元パラメータは Reynolds 数 $\text{Re} = h_0^2 \Omega / \nu_0$, Prandtl 数 $\text{Pr} = \nu_0 / \kappa$, Nusselt 数 $\text{Nu} = \alpha h_0 / \kappa \rho c$ および動粘度温度依存率 $\varepsilon = -\nu_0^{-1} d\nu_0 / dT \times (T_d - T_0)$ である。なお、これらのパラメータの範囲としては、回転角速度を十～数十 rps, 温度差を 0～5 度程度とした場合、実際の塗布工程で用いられている粘性の低い水や粘性の高い PDMS (polydimethylsiloxane) などの物性値から⁽¹⁰⁾, $\text{Re} : 10^{-2} \sim 10^0$, $\text{Pr} : 10^0 \sim 10^3$, $\text{Nu} : 0 \sim 10^{-1}$, $\varepsilon : 0 \sim 10^{-1}$ 程度と考えられる。

ここで扱っている問題は、移動型境界値問題であるため、時間とともに変化する対象領域、すなわち液膜の部分 $Z \in [0, H(\tau)]$ を、次式で示される固定された計算領域 $\zeta \in [0, 1]$ に写像する⁽¹⁴⁾。

$$\zeta(\tau) = 1 - \ln \left(\frac{c+1-Z/H(\tau)}{c-1+Z/H(\tau)} \right) \cdot \left[\ln \left(\frac{c+1}{c-1} \right) \right]^{-1} \dots \dots \dots (9)$$

ここに $1 < c < \infty$ である。式 (7), (8) を式 (9) で変換したものを、Crank-Nicholson 法により計算する。この際、空間微分は、連続の式に現れるものを除き総て中心差分を用いる (連続の式については前進差分)。具体的な数値計算法としては以下に述べる手順で計算を進めた。

(1) 時間ステップ m において、各計算格子点における温度 $(\Theta_m^k)_i$ (ここに i は格子点の位置, k は反復数) を式 (7d) を差分化した式より計算する。この計算では、 Θ が W, H に依存しているため (H に依存するのは計算領域を式 (9) に従い変換しているた

め), 反復毎にこれらの更新値 ($k-1$ 回目に得られた値) を用いる。

(2) 周方向速度成分 $(G_m^k)_i$ を (1) 同様、式 (7b) を差分化した式より計算する。

(3) 半径方向速度成分 $(F_m^k)_i$ を式 (7a) を差分化した式より計算する。ただし、ここでは式 (7a) 右辺における F^2 の項を Newton 法により $(F_m^k)_i^2 = 2 (F_m^k)_i \times (F_m^{k-1})_i - (F_m^{k-1})_i^2$ と線形化したものを用いる。

(4) 軸方向速度成分 $(W_m^k)_i$ を連続の式 (7c) を差分化したものに $(F_m^k)_i$ を代入することにより解く。

(5) 運動学的条件式 (8b) に従い、 $(W_m^k)_i$ の自由境界面での値に時間刻みを乗じたものを時間ステップ $m-1$ の液膜厚さに加え、時間ステップ m における液膜厚さ H の k 回目の反復値 H_m^k を求める。

(6) 各従属変数 $S (= F, G, W, \Theta, H)$ が以下の条件を満たすまで上記アルゴリズムを繰返す。 $|(S_m^k)_i - (S_m^{k-1})_i| / |(S_m^k)_i| \leq 10^{-6}$

3. 数値計算結果

3.1 液膜厚みの近似解 実際のスピンコーティングの工程では、流体層の厚みが非常に小さいため、 Re 数が比較的小さいことと、円盤と周囲との間に温度差があるといっても、高々数℃程度であるから、パラメータ Re と ε は小さい。これに RePr が小さいという仮定を設ければ、液膜厚さの近似解を比較的簡単に求めることができ、結果は次のようになる⁽⁶⁾。

$$H = \left(\frac{4}{3} \text{Re} \tau + 1 \right)^{-1/2} + \varepsilon \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{4}{3} \text{Re} \tau + 1 \right)^{-1/2} + \frac{1}{2} \left(\frac{4}{3} \text{Re} \tau + 1 \right)^{-3/2} \right. \\ \left. + \frac{\text{Nu}}{4} \left\{ \left(\frac{4}{3} \text{Re} \tau + 1 \right)^{-1} - \left(\frac{4}{3} \text{Re} \tau + 1 \right)^{-3/2} \right\} - \frac{\text{Nu}^2}{4} \left(\frac{4}{3} \text{Re} \tau + 1 \right)^{-3/2} \right. \\ \left. \times \left\{ \ln \left(\frac{4}{3} \text{Re} \tau + 1 \right)^{1/2} + \text{Nu} \right\} - \ln(1 + \text{Nu}) \right\} \dots \dots \dots (10)$$

この近似解との比較も行いながら、以下において数値解析結果を見ていく。なお、本研究では、基礎的な数値実験を行うとの観点から、コーティング液の物性値として比較的広い範囲のものを用いており^{(14), (16)}, コーティング条件として現実的でないものも含まれていることをあらかじめお断りしておく。実用的な液体の熱伝達率や Nu 数については文献(17)の文献リストが参考となろう。

3.2 液膜厚みへの ε の影響 本数値計算ではメッシュ数を 50, 時間刻み幅を 1.0×10^{-3} とした。誤

差を見積もるために, $Re = 0.1$, $Pr = 1$, および $Nu = 0.1$ に対し, メッシュ数を 100, 時間刻み幅を 1.0×10^{-4} とした場合についても計算を行い, 両者を比較した. その結果, $\tau = 100$ における液膜厚さの差は約 0.2% であった. なお, 計算時間については, PC Dell Optiplex GX1 (CPU 550MHz) で計算を実施した結果, 単位時間当たり約 3sec であった. 数値計算結果として, まず始めに ε の効果を見る. 本節では ε の寄与のみを抽出してその性質を明らかにするため, 理想的に $Pr = 0$, $Nu = 0$ の極限で考える. これは液膜が回転円盤に乗せられた瞬間に液膜全体の温度が円盤温度となる場合に相当する. また, Re 数が小さければ潤滑近似が成立し, 上記のように解析解が得られるので (式 (10)), ここでは $Re = 0.1$ とした場合を対象とし, 数値解と解析解との比較を主に行う. 図 1 に ε をパラメータとしたときの液膜厚さの時間変化を示した (なお本図では潤滑近似解と数値解の違いを際立たせるため, ε として大きめの値まで計算を行っている).

図より ε の値が小さいときには, 数値計算による解と解析的な解はよく一致しており, 差はほとんど見られないが, ε が大きくなるにつれ, 乖離が増し, 解析解の方が数値解より大きくなる傾向が見られる.

Fig. 1 Transient film thickness for $Re=0.1$, $Pr=0$, and $Nu=0$

このことは次のように考えることができる. $Pr = 0$, $Nu = 0$ とし, 式 (7d) を (8b), (8c) のもとに解けば, まず $\Theta = 1$ を得, 従って, 式 (7a), (7b) はそれぞれ,

$$Re \left(\frac{\partial F}{\partial \tau} + F^2 - G^2 + W \frac{\partial F}{\partial Z} \right) = (1 - \varepsilon) \frac{\partial^2 F}{\partial Z^2} \quad \dots \dots (11a)$$

$$Re \left(\frac{\partial G}{\partial \tau} + 2FG + W \frac{\partial G}{\partial Z} \right) = (1 - \varepsilon) \frac{\partial^2 G}{\partial Z^2} \quad \dots \dots (11b)$$

となる. ここで $Re/(1 - \varepsilon)$ が小さければ, これらの方程式より得られる液膜厚みの解の主要項は $(4 Re \tau / 3 (1 - \varepsilon) + 1)^{-1/2}$ となるが⁽²⁾, この解は次のようにできる.

$$(1 - \varepsilon)^{1/2} \left(\frac{4}{3} Re \tau + 1 \right)^{-1/2} \left(1 - \frac{\varepsilon}{4 Re \tau / 3 + 1} \right)^{-1/2} \quad \dots \dots (12)$$

上式で第 1 項および第 3 項を ε について Taylor 展開すると, 式 (12) は次のようになる.

$$\left(1 - \frac{1}{2} \varepsilon - \frac{1}{4} \varepsilon^2 - \dots \right) \left(\frac{4}{3} Re \tau + 1 \right)^{-1/2} \left\{ 1 + \varepsilon \frac{1}{2} \left(\frac{4}{3} Re \tau + 1 \right)^{-1} + \dots \right\} \quad \dots \dots (13)$$

他方, 式 (10) の右辺は, $Pr = 0$, $Nu = 0$ で次式のようにになる.

$$\left(\frac{4}{3} Re \tau + 1 \right)^{-1/2} + \varepsilon \left\{ -\frac{1}{2} \left(\frac{4}{3} Re \tau + 1 \right)^{-1/2} + \frac{1}{2} \left(\frac{4}{3} Re \tau + 1 \right)^{-3/2} \right\} \quad \dots \dots (14)$$

これは式 (13) において ε の 1 次までの近似をとったものに他ならない. τ が充分大きい極限で考えると, 式 (13) の三番目の括弧内は 1 と見做せ, 式 (14) の補正項 (ε の掛かった部分) の 2 番目の項は無視できる. 従って, 式 (13) および (14) は近似的にそれぞれ, $(1 - \varepsilon / 2 - \varepsilon^2 / 4) (4 Re \tau / 3 + 1)^{-1/2}$ および $(1 - \varepsilon / 2) (4 Re \tau / 3 + 1)^{-1/2}$ と近似でき, 特に後期時間スケールにおいては式 (14) は式 (13) より大となり, 図のような状況が実現されることが判る.

3.3 液膜厚みへの Nusselt 数の影響 次に Nu 数の影響を見るために, ε , Pr 数を固定して, Nu をパラメータとした液膜厚さ H の時間的変化を考える. ここでは, 特に熱の影響がどのように現れているかを際立たせるために, 温度差を与えなかった場合の同 Re 数に対する液膜厚さ H_0 を H から差引き, 全体を ε で割ったものを H_1 と定義し (ここで ε で割ったのは, 解析解に基づく H_1 が ε に関して独立となるためである), この時間変化を図 2 に示した.

Fig. 2 The effect of Nusselt number to H_1 for $Re=0.1$ and $Pr=1.0$

図より, 数値解と解析解との間に僅かな差が見られるが, 全域に渡って両者の一致は極めてよいことが判る. ここで用いた解析解は, 運動方程式に現れていた慣性項の部分を小さいものとして解いたもので, 結果

として初期過程の効果が入っていない。しかしながら、ここでの例のように Re 数が極めて小さい場合には、初期過程の効果は無視できることが判る ($Re = 0.075$ 以下では慣性項を考慮したものと無視したものの差は区別できないという報告もある⁽³⁾)。従って、 Re 数と $RePr$ が共に小さい場合には、解析解は、全過程において精度よく成り立つことが判る。

3.4 液膜厚みへの Prandtl 数の影響 上と同様に H_1 を定義し、 Pr 数をパラメータとした H_1 の時間変化を図 3 に示した。図より、 Pr 数の増加とともに、低 Pr 数の曲線からの乖離は大きくなり、むしろ温度差の無い場合の液膜厚さ ($H_1 = 0$ に相当) に近づく様子が見られる。しかしながら、 Pr 数が 10 以下であれば、それらの差は約 1~3% 程度で、先に求めた (Pr 数の影響を無視した) 解析解はこの領域については妥当であることが判る。なお、ここには示していないが、 Re 数を 0.1 以下の範囲で変化させた場合でも $RePr$ が 1 以下であれば解析解との差は上記と同程度であることが確かめられた。これは H_1 が熱的な寄与部、すなわちエネルギー保存式(7d)からの寄与を表しており、従って、 H_1 のパラメータ依存性は $RePr$ のみとなることから理解される。

Fig. 3 The effect of Prandtl number to H_1 for $Re = 0.1$ and $Nu = 0.1$

Pr 数の増加に伴う H_1 の乖離は、 Pr 数が大きくなると、充分時間が経過した後 (温度場が定常になった状態) では時間の $-3/2$ 乗に主に比例して減少していくので⁽⁶⁾、 ϵ の効果 (時間の $-1/2$ 乗に主に比例、式 (10) 参照) や Nu 数の効果 (時間の -1 乗に主に比例、式 (10) 参照) に比べ、 Pr 数の違いによる H_1 の差は速く 0 に収束することが期待される。実際、図 3 と 図 2 (Nu 数の効果を表わした図) とを比べるとパラメータの違いによる H_1 の差は前者の方が後者よりも速く収束していることが判る。

3.5 支配方程式の各項の時間変化 液膜厚さの時間変化を支配する運動方程式のうち径方向成分 (式 7a) に現れている各項の時間的変化 ($Z = H/2$ におけ

る値) を図 4 に示した。

Fig. 4 Term by term contributions to the radial momentum equation 7 (a) for $Re = 0.1$, $Nu = 0.1$, and $Pr = 1$

ここでは各項の符号を、流れを促進する方向に働く力を正に、流れを抑制する方向に働く力を負にとっている。また、全時間にわたり値の小さな項 $-F^2$ および $-W\partial F/\partial Z$ はここには示していない。図より慣性項のうち $-dF/d\tau$ は初期にのみ現れており、遠心力の項 G^2 と釣合いを形成している様子が見られる。しかしながら、その後は減少し 0 となり、 $-dF/d\tau$ からの流れへの寄与はなくなる。従って、過程全体で見たときには慣性項の影響は小さく、このことから先に見たように潤滑近似が成り立つことが判る。一方粘性の変化を表わす項 $Re^{-1} \frac{d}{d\tau} (\Theta \cdot \frac{\partial F}{\partial Z}) / \frac{\partial F}{\partial Z}$ は $-dF/d\tau$ の寄与が小さくなった後に一定値となり、定常的に流れを支配している。ここでは Pr 数を 1 としているため、比較的初期の段階において $Re^{-1} \frac{d}{d\tau} (\Theta \cdot \frac{\partial F}{\partial Z}) / \frac{\partial F}{\partial Z}$ が一定となっているが、もちろん、 Pr 数が大きくなればその位置は後半にずれることになる。しかし、液膜内の温度場が定常となれば、流れ場は Pr 数に依存しなくなり、先に見たように Pr 数による液膜厚さの差も減少していく。大局的に見た場合、流れは粘性応力 $Re^{-1} \frac{\partial^2 F}{\partial Z^2}$ と $Re^{-1} \frac{d}{d\tau} (\Theta \cdot \frac{\partial F}{\partial Z}) / \frac{\partial F}{\partial Z}$ および遠心力 G^2 の 3 つの項の釣り合いにより支配されていることが判る。

4. 大気層を考慮した場合

4.1 計算アルゴリズム ところで、液層以外にもこれを取り囲む外界の気体層 (例えば空気) についても計算を行えば、気液界面の条件は、流体の流速および熱流束が保存されるという条件に読み替えることができ、特に Nu 数を定義する必要がなくなる。そこで、ここでは、このような 2 層流体問題について考察を行う。このとき、気体層の流れを支配する方程式は、無次元形で以下のようなになる。

$$\frac{\partial \bar{F}}{\partial \tau} + \bar{F}^2 - \bar{G}^2 + \bar{W} \frac{\partial \bar{F}}{\partial \zeta} = \left\{ \frac{\partial^2 \bar{F}}{\partial \zeta^2} - \bar{\varepsilon} \frac{\partial}{\partial \zeta} \left(\frac{\partial \bar{F}}{\partial \zeta} \bar{\Theta} \right) \right\} \cdots (15a)$$

$$\frac{\partial \bar{G}}{\partial \tau} + 2\bar{F}\bar{G} + \bar{W} \frac{\partial \bar{G}}{\partial \zeta} = \left\{ \frac{\partial^2 \bar{G}}{\partial \zeta^2} - \bar{\varepsilon} \frac{\partial}{\partial \zeta} \left(\frac{\partial \bar{G}}{\partial \zeta} \bar{\Theta} \right) \right\} \cdots (15b)$$

$$2\bar{F} + \frac{\partial \bar{W}}{\partial \zeta} = 0, \quad \frac{\partial \bar{\Theta}}{\partial \tau} + \bar{W} \frac{\partial \bar{\Theta}}{\partial \zeta} = \frac{1}{\text{Pr}} \frac{\partial^2 \bar{\Theta}}{\partial \zeta^2} \cdots (15c,d)$$

ここでは、液膜層内の流れと区別するため、各関数および各パラメータ記号の上にバーをつけている。またここで用いた無次元量は以下の通りである。

$$\zeta = \frac{z}{(\bar{v}_0/\Omega)^{1/2}}, \quad \tau = t\Omega, \quad \bar{F} = \frac{f}{\Omega}, \quad \bar{G} = \frac{g}{\Omega},$$

$$\bar{W} = \frac{w}{(\bar{v}_0/\Omega)^{1/2}}, \quad \bar{\Theta} = \frac{T - T_0}{T_d - T_0}, \quad \bar{H} = \frac{h}{h_0} \cdots (16)$$

ここでは、代表の長さを、気層に生じる境界層の厚み $(\bar{v}_0/\Omega)^{1/2}$ に取っているため Re 数が現れず、無次元パラメータは $\text{Pr} = \bar{v}_0/\kappa$ および $\bar{\varepsilon}$ の二つとなっている。これらの方程式系 (15) を液膜層の方程式系 (7) とともに解くことになるが、その際気液界面の条件は、式 (8b) とは異なり以下のようなものとなる。いま気液界面の位置、 $Z = H(\tau)$ 、は気層の座標系で書き表すと、 $\zeta = h(\tau)/(\bar{v}_0/\Omega)^{1/2}$ となることに留意する。このとき、まず温度および速度の連続性から次式が成り立つ。

$$\Theta = \bar{\Theta}, \quad G = \bar{G}, \quad F = \bar{F}, \quad W = \frac{1}{\text{Re}^{1/2}} \left(\frac{\bar{v}_0}{v_0} \right)^{1/2} \bar{W} \cdots (17a)$$

また、せん断応力の連続性および熱流束の保存より、

$$\frac{\partial F}{\partial Z} = \frac{\partial \bar{F}}{\partial \zeta} \left[\text{Re} \left(\frac{\bar{\rho}}{\rho} \right)^2 \left\{ \frac{\bar{v}_0(1 - \bar{\delta}\bar{\Theta})^2}{v_0(1 - \delta\Theta)^2} \right\} \right]^{1/2} \cdots (17b)$$

$$\frac{\partial G}{\partial Z} = \frac{\partial \bar{G}}{\partial \zeta} \left[\text{Re} \left(\frac{\bar{\rho}}{\rho} \right)^2 \left\{ \frac{\bar{v}_0(1 - \bar{\delta}\bar{\Theta})^2}{v_0(1 - \delta\Theta)^2} \right\} \right]^{1/2} \cdots (17c)$$

$$\frac{\partial \Theta}{\partial Z} = \frac{\partial \bar{\Theta}}{\partial \zeta} \left[\text{Re} \left(\frac{\bar{\lambda}}{\lambda} \right)^2 \left(\frac{v_0}{\bar{v}_0} \right) \right]^{1/2} \cdots (17d)$$

が得られる。最後に気体層についての初期条件および気層上層部での境界条件は

$$\bar{F}(\zeta, 0) = \bar{G}(\zeta, 0) = \bar{W}(\zeta, 0) = \bar{\Theta}(\zeta, 0) = 0, \quad \bar{H}(0) = 1 \cdots (18)$$

$$\bar{F}(\zeta, \tau) = \bar{G}(\zeta, \tau) = \bar{\Theta}(\zeta, \tau) = 0 \quad (\zeta \rightarrow \infty) \cdots (19)$$

となる。ここでも、圧力場は考察対象外とし、従って圧力場の決定のみに使われる式は省略している。

なお、気層の領域は、軸方向については半無限区域となっているため、ここでは有限の範囲で計算するために、以下の変換式を用いる。

$$\gamma = \frac{\zeta/\bar{H} - 1}{\zeta/\bar{H} - 1 + A} \quad (\bar{H} = h(\tau)/(\bar{v}_0/\Omega)^{1/2}) \cdots (20)$$

ここで、パラメータ A は気層側の気液界面付近の計算格子を細かく分割し、他方気層の上部については格子を粗く分割する役割をになうものである。本計算では液層のメッシュ数を 50、気層のメッシュ数を 100、時間刻み幅を 2.0×10^{-4} とした。また計算時間としては単位時間当たり約 2min 要した。なお、ここでは解析しないが本計算法は本解析で気層とした領域を液層に変えたものについても適用可能である⁽³⁾。

4.2 大気層を考慮した場合の数値計算結果

ここでは解析の一例としてコーティング液を水、気体層を空気とした場合の結果を示す。水および空気の物性値はそれぞれ以下のようにになっている⁽¹¹⁾。

Table 2 Physical properties of water and air at 20°C

$T=20^\circ\text{C}$	ρ	$\lambda \times 10^{-3}$	$\nu \times 10^{-3}$	$\kappa \times 10^{-3}$	Pr 数
water	0.998	5.9	1.004	1.42	7.02
air	0.001	0.25	15	208	0.78

(表中の単位は表 1 と同一) これより、式 (17) に現れている諸々のパラメータは以下ようになる。

$$\frac{\bar{\rho}}{\rho} \approx 0.001, \quad \frac{\bar{\lambda}}{\lambda} \approx 0.04, \quad \frac{\bar{v}_0}{v_0} \approx 15 \cdots (21)$$

上の条件を代入し計算した結果のうち、液膜界面における温度の時間的変化を図 5 (a) に示す。

Fig. 5(a) Transient value of T at the film surface for $\text{Re}=0.1$, $\text{Pr}=7$

ここでは比較のため、Nu 数をパラメータとして変化させた温度の時間変化も合わせて載せてある。図より、この例 (液体を水、気体を空気とした場合) では、Newton の冷却則を用いた数値解のうち $\text{Nu} = 0$ に相当するものに近いが、 $\text{Nu} = 0$ のものよりは若干下側になっている様子が見られる。これは次のように考えることができる。温度に対する境界条件式 (17d) において両辺の温度勾配は同じ符号を取りしかも 0 でないことからまず、Nu は 0 ではないことが判る。しかしながら、同式右辺には非常に小さい値が掛かっているため、結局右辺全体も小さく、 $\text{Nu} = 0$ の場合の状況に近くなるものと考えられる。また先と同様 H_1 の振

舞いについて考える。その前に、温度差のない場合についても気層を考えた場合とそうでない場合では液膜厚さの減少の仕方が違うことに注意しよう。すなわち、液膜がほぼ剛体回転しているものとみなせる状況においては、円盤と液膜両者がひとつの回転円盤系とみなすことができ、気体はこの回転から影響を受け流れを形成する。この気体の流れは逆に液膜に作用を及ぼし液膜の厚さを減少させやすくするのである⁽¹⁸⁾。

Fig. 5 (b) Transient value of H_1 for $Re = 0.1$ and $Pr = 7$

このことを考慮した上で、ここでは気層を考慮した H_1 については、気層を考慮した H_0 に基づいて構成した。結果が図 5 (b) に示されている。やはりここでも $Nu = 0$ のものとほぼ一致していることが見て取れ、先の場合と同様の結論を得る。

5. 結論

スピンコーティングに関連し、その熱的影響を数値的な手法を用いることにより解析を行った。既報で得られていた結果と比較した結果、 Re 数と $RePr$ が共に小さい場合には、解析の近似解は良好な値を与えることが判った。そして、径方向運動方程式に現れる各項が過程にどのような影響を及ぼすかを調べることにより、液膜の流動のメカニズムが明らかにされた。また、任意の Pr 数について解析を行い、さらに計算領域として気層の部分も考慮し気液界面での熱の移動を取り込むことにより、以前の解析では条件値として残っていた Nu 数を除去した解析を行った。解析の結果、特に次の点が明らかになった。

- (1) $Re = 0.1$, $Pr = Nu = 0$ の条件のもとに ε を変化させた結果、 ε の増加とともに数値解は解析解に比べ早く減少する傾向にある。
- (2) Re と $RePr$ が小さい場合、 Nu 数の液膜厚さに及ぼす影響は数値解および解析解共に一致する。

- (3) Re が 0.1 以下で、かつ、 $PrRe$ が 1 以下であれば数値解と解析解は一致するが、 $PrRe$ の値が大きくなると、これら二つの解にずれが生じる。しかし、後期時間スケールにおける Pr 数の及ぼす影響は Nu 数の及ぼす影響に比べ小さい。
- (4) 液膜厚さの時間変化を支配する運動方程式のうち径方向成分に現れている各項の時間的変化が明らかとなった。
- (5) 液層を水、気層を空気とした場合には、Newton の冷却則を用いたもので $Nu = 0$ に相当するものにおおむね一致する。

文献

- (1) A.G. Emslie, F. T. Bonner, and L. G. Peck, "Flow on a viscous liquid on a rotating disk," *J. Appl. Phys.*, **29** (1958), 858-862.
- (2) B. G. Higgins, "Film flow on a rotating disk," *Phys. Fluids*, **29** (1986), 3522-3529.
- (3) T. J. Rege and B. G. Higgins, "The effect of inertia and interfacial shear on film flow on a rotating disk," *Phys. Fluids*, **31** (1988), 1360-1371.
- (4) 松本洋一郎・小原拓・照屋功・大橋秀雄, "回転円盤上における薄膜形成過程 (第1報, 初期過程の数値解析)," 機論, **54**-499, B (1988), 569-574.
- (5) 小原拓・松本洋一郎・島本憲夫・大橋秀雄, "回転円盤上における薄膜形成過程 (第2報, 熱・物質移動を伴う薄膜形成過程の数値解析)," 機論, **55**-514, B (1989), 1640-1648.
- (6) 北村哲浩・長谷川英治, "回転円盤上の液膜流れへの熱の影響," 機論, **63**-611, B (1997), 2322-2329.
- (7) 小原拓・大橋秀雄・松本洋一郎, "回転円盤上の薄膜形成," 機論 **57**-543, B (1991), 167-174.
- (8) B. Reisfeld, S. G. Bankoff, and S. H. Davis, "The dynamics and stability of thin liquid films during spin coating. I. Films with constant rates of evaporation or evaporation or absorption," *J. Appl. Phys.*, **70** (1991), 5258-5266.
- (9) A. Kitamura, "Asymptotic solution for film flow on a rotating disk," *Phys. Fluids*, **12** (2000), 2141-2144.
- (10) S. K. Wilson, R. Hunt, and B. R. Duffy, "The rate of spreading in spin coating," *J. Fluid Mech.*, **413** (2000), 65-88.
- (11) G. K. Batchelor, *An Introduction to Fluid Dynamics* (Cambridge University Press, 1967), p.596.
- (12) B. Reisfeld and S. G. Bankoff, "Nonlinear stability of a heated thin liquid film with variable viscosity," *Phys. Fluids*, **A2** (1990), 2066-2067.
- (13) A. Oron, S. H. Davis, and S. G. Bankoff, "Long-scale evolution of thin liquid films," *Rev. Mod. Phys.*, **69** (1996) 931-980.
- (14) G. O. Roberts, *Lecture Note in Physics*, Vol. 8 (Springer, New York, 1971), p. 171.
- (15) B. Reisfeld and S. G. Bankoff, "Non-isothermal flow of a liquid film on a horizontal cylinder," *J. Fluid Mech.*, **236** (1992), 167-196.
- (16) A. Oron and P. Rosenau, "On a nonlinear thermocapillary effect in thin liquid layers," *J. Fluid Mech.*, **273** (1994) 361-374.
- (17) 斎藤弘順・望月貞成・村田章・斎藤博史, "複数のキャビを有する回転体内の流れと熱伝達," 機論, **65**-633, B (1999), 1710-1715.
- (18) S. Middleman, "The effect of induced air-flow on the spin coating of viscous liquids," *J. Appl. Phys.*, **62** (1987), 2530-2532.