グラビアロール塗布の流体力学

山村 方人^a, 三浦 秀宣^b

^a九州工業大学 大学院工学研究院 (〒 804-8550 福岡県北九州市戸畑区仙水町 1-1)

^b富士機械工業(株) 設計部 (〒 739-0146 広島県東広島市八本松飯田 2-7-1)

Hydrodynamics of Gravure Roll Coating Flows

Masato YAMAMURA^a and Hidenobu MIURA^b

^a Department of Applied Chemistry, Kyushu Institute of Technology (Sensui-cho 1-1, Tobata-ku, Kitakyushu-shi, Fukuoka 804-8550)

^b Fuji Kikai Kogyo Co., Ltd. (2-7-1 Hachihonmatsu-Iida, Higashi-Hiroshima-shi, Hiroshima, 739-0146)

Keywords : Gravure Roll Coating, Coating Defects, Flow Instability, Coating Window

1. はじめに

微細な3次元窪みが表面加工された回転ロールを用いる塗布方式を、グラビア塗布と呼ぶ。グラビア塗布は、乾燥前塗布膜厚で1 μm 未満～数十 μm の薄膜塗布が可能であること、またその塗布可能速度が毎分数百 m と高速であることから、リチウムイオン二次電池セパレータ、偏光板、反射防止フィルム、磁気テープ、帯電防止フィルムなどの製造に広く用いられる¹⁾。窪みはグラビアセルまたは単にセルと呼ばれ、転造彫刻、ケミカルエッチング、ダイレクトレーザ照射によってロール面に形成される。セルの形状はピラミッド、格子、ハニカム、斜線などが一般的である。規則的に並んだ隣接セルの間には、窪み加工が施されない平坦部(土手またはランド)がある。セルの構成は、形状、単位長さあたりのセル数、及び、ロール単位表面積あたりのセル体積を用いて表記されることが多い。

グラビア塗布は、セル内を液で満たす「充填」、ロール表面にドクターブレードを押し当て余剰液を掻き取る「ドクタリング」、及び、プラスチックフィルム、紙、金属箔等の走行基材と回転ロール表面との間に形成される液溜まり(ビード)を介して液体の一部を基材へ移動させる「転写」という連続した3つのプロセスで構成される。

上述のセル形状に由来する3次元性の強い流れ場と、空間・時間スケールの異なる3つのプロセスがロール回転に伴って順次繰り返される複雑さの故に、スロットダイ塗布、カーテン塗布、ディップ塗布、ロール塗布等の他の塗布方式に比べて、グラビア塗布の学術的解析は比較的遅れている。しかし最近の研究から、塗布流れの安定性に与えるセル形状の影響や、ドクタリングー転写プロセス間の相関性が少しずつ明らかにされてきた。ここでは著者の一人の博士論文の内容²⁾を基に、グラビア塗布の流体力学について述べる。

2. 塗布欠陥

グラビアロールー基材間のビードが力学的に不安定となると、製品不良となる塗布欠陥が生じる場合がある。一般にビード内の流れでは、粘性力と表面張力が支配的となることから、表面張力に対する粘性力の比で定義されるキャピラリ数 $Ca (= \mu U / \sigma)$ がしばしば安定性の指標として用いられる。ここで μ は塗布液の剪断粘度、 U は基材またはロールの速度、 σ は塗布液の静的表面張力である。塗布欠陥が形成する条件、及び、均一な塗布膜が安定に得られる条件を、キャピラリ数をはじめとする複数の操作パラメータで整理した図は、コーティングウィンドウ (Coating Window) と呼ばれ、塗布条件を決定する上で有益な指針を与える。

例として、ドクターブレードと斜線グラビアロール表面がなす角度が液体側について鈍角で、ロール表面と基材がビードに対して互いに逆方向へ移動するキスリバースグラビア塗布を考えよう(図1)。ここでキスとは、ロール表面に対して基材背面にバックアップロールを設置せず、ビードを介して

図1 ドクターブレードが鈍角に設置されたキスリバースグラビア塗布

図2 キスリバースグラビア塗布におけるコーティングウィンドウの例²⁾

基材表面とロール表面とを接触させる方式を指す。基材速度がグラビアロール周速に比べ速くなると、ビードが基材幅方向に波打つと共に、基材走行方向に対し若干傾いて伸びる周期的な畝模様が、塗布膜全面または端部に生じる。この欠陥はしばしばリビング(Ribbing)欠陥と呼ばれる。さらに基材速度が高速になると、ビード上流より液中へ空気が同伴されはじめる。逆に基材速度がグラビアロール周速に比べ遅い場合には、基材進行方向に対し垂直に伸びたさざ波模様が塗布面に生じる。この模様は、さざ波(seashore)欠陥またはカスケード(cascade)欠陥と呼ばれる。他方、基材速度およびロール速度が共に遅い場合には、ビード内の液の一部が重力方向に流れる垂れ(dripping)欠陥が現れる。すなわち基材速度およびグラビアロール周速をそれぞれ代表速度として定義したキャピラリ数で整理すると、安定塗布が可能なのは2つのキャピラリ数の組み合わせがある閉じた範囲内にある条件となる(図2)。図中の破線は、ロール周速と基材速度が等しい条件を示している。この等速条件で速度を増加させると、垂れ欠陥の生じる領域から安定塗布領域を経て、リビング欠陥が生じる領域へと移行する。斜線の線数 70–110 line/inch、溝深さ 68–158 μm 、ブレード厚み 0.085–0.3 mm の範囲内では、安定塗布可能–リビング欠陥発生領域の境界、及び、安定塗布可能–カスケード欠陥発生領域の境界は、セルやブレードの形状に依らずそれぞれ図中の線 A、線 B で表される^{2),3)}。以下では、リビング欠陥とカスケード欠陥のメカニズムについて詳しく述べる。

2.1 リビング欠陥

リビング欠陥を生じさせる駆動力は、流れ方向の流体圧の増加すなわち逆圧力勾配である。逆圧力勾配の大きさが、表面張力と自由表面曲率の関数で表される臨界値を超えると、気液界面が力学的に不安定となり、流れ方向に平行で且つ幅方向に周期性を有する畝状の模様が生じることが理論的に知られている⁴⁾。

リビング現象の抑制には、逆圧力勾配を低減させることが必要であり(1)液粘度の低下、(2)基材速度の低下、(3)流れ

方向のビード長さの減少、(4)リバース塗布操作、及び、(5)ビード厚みの増加がそれぞれ有効である。小径ロールでリビング欠陥が生じにくいのは、ロール直径を減少させるとビードに保持される液量が低下するため、ビード内での圧力分布の発達が妨げられるためと考えることができる。また基材とロール表面とがビードに対し同方向へ移動するフォーワードロール塗布に比べて、移動方向が互いに逆であるリバースロール塗布の方が圧力勾配がより小さくなるため、よりリビング欠陥が発生しにくい。(1)～(5)の考え方は、グラビアセルを持たない平滑ロールを用いたロール塗布とグラビア塗布とで共通に成り立つ。

しかしグラビア塗布の場合、土手表面と基材との間のクリアランスに比べて、セル底面と基材表面との間のそれは大きいので、セル内で逆圧力勾配が局所的に低減される⁵⁾。従って、グラビアセルの存在は上記(5)に従って流れを安定化し、リビング欠陥を抑制するものと考えられる。

安定化の一例として、金属塗布面に作製した幅 3 mm、深さ 1 mm の V 溝を畝模様が通過する様子を、高速度カメラで撮影したスナップショットを図 3 に示す。塗布面は図の上から下へ一定速度で移動している。基材速度が臨界値以上になると、気液界面が部分的に下流側へと引き伸ばされ、幅方向に高い周期性を持つ畝模様が現れる。リブ先端には液溜まりが存在し、さらにその下流に筋状の模様が観察される(図 3a)。V 溝の下端が畝模様に到達すると、畝模様は速やかに減衰し(図 3b)、突端を有する形状からサイン波状の形状へと遷移する(図 3c)。さらに V 溝が下方へ通過すると、土手面上において畝模様が再び成長し、やがて V 溝が到達する前と同様の形状へ戻る(図 3d)。この場合土手は、流れ方向の圧力勾配を再発達させる役割を持つ。図には示さないが、塗布方向に対して傾斜した複数の V 溝を塗布面に加工し、畝模様が溝面と土手面とを周期的に通過するような流れ場において同様の可視化実験を行うと、セル深さが増加するほど、また斜線の軸方向がロール回転方向に近づくほど、リビング欠陥がより高速まで生じにくい⁶⁾。さらに、セルが深く且つ前述のキャピラリ数が高くなると、リビング欠陥の畝間隔は隣接する斜線セル間の間隔に一致する条件が現れる⁵⁾。これらの事実は、グラビアセルの構成を適切に設計することで、リビング欠陥の発生条件や畝模様の間隔の制御が可能である

図3 V溝上を通過するリビング欠陥の可視化画像²⁾

ことを示唆している。

2.2 カスケード欠陥

カスケード欠陥の発生はリバースロール塗布で一般的な現象であり、ビードが走行基材から受ける強い粘性力がその主要因である。リバースロール塗布におけるビードは、ロール回転方向と基材走行方向へ同時に力を受ける。基材速度を臨界値以上に増加させると、不安定となったビードはこの2つの方向へ交互に移動を繰り返す。この振動運動によって膜厚が周期的に変動すると、横段状の欠陥が現れる。グラビアセルを持たない平滑ロールを用いたリバース塗布に関する過去の研究から、ロール速度に対する基材(または metering roll)速度の比が大きいほど、カスケード欠陥が生じやすいことが知られている⁷⁾。これに対し図1に示す構成のリバースグラビア塗布では、グラビアロール速度が高い場合にカスケード欠陥が生じ(図2)、平滑ロールの場合とは定性的に異なる挙動を示す。これは、グラビアロール速度が増加するほど、グラビアセル内の一部のみが液で充填された部分充填状態が生じる結果として、ビードが縮小しより不安定になるためと説明できる⁸⁾。以下では、ドクタリングプロセスの流れ場について述べ、セル充填状態と転写の関連性について解説する。

3. ドクタリングプロセスの流体力学

3.1 流れ場の特徴

ドクタリングプロセスにおいて考慮すべき要素を図4に示す。回転するグラビアロールの表面にブレードが押し当てられると、ロールからの粘性力に牽引された流体運動は、セル内へ入る流れとブレードに沿う流れとに分かれる。静止したブレードに対しグラビアセルが移動するため、前者はブレード表面とセル表面の相対位置が時間と共に変化する移動境界流れとして取り扱う必要がある。この場合、セルの移動に伴って流体圧が周期的に変化するから、圧力勾配によって駆動されるポアズユ流れと、回転ロールからの剪断応力によるクエット流れとが重なり合った複雑な流れ場がセル内に生じる。

ブレード下流側では、湾曲した自由表面が形成され、その曲率半径に対応する毛管圧(ラプラス圧)が生じる。図のように自由表面が凹形状の場合、毛管圧は負圧として働く。さらに図のように流体側から見たブレードの設置角がロール表面に対して鈍角の場合、ブレード直下は拡大流れとなるので、流体圧は流れ方向のある位置で極小値を示す。ブレード剛性

が小さいと、これらの負圧によってブレード先端がロール表面へ押しつけられ、セルとブレード間のクリアランスが減少する。このクリアランス変動によってセル内の流体圧が変化するので、圧力分布を得るためには、Navier-Stokes 式に基づくセル内の流動と弾性力学に基づくブレード変形をカップリングさせた流体-構造連成問題を解かなければならない。この場合、ブレード位置や自由表面形状は予め規定されるものではなく、連立方程式の解の一部となる。このようにドクタリングプロセスでは、ブレードの角度、弾性率および形状、液物性、セル形状、並びに塗布条件に応じて多様な流れ場が生じ得るが、系統的な実験的、理論的解析は筆者の知る限りあまり進んでいない。

3.2 ドクタリングプロセス後のロール表面状態

ドクタリング後のグラビアセル内における気液界面の形状を把握することは、後に続く転写プロセスを制御する上で重要である。前述のようにドクタリングプロセスの流れ場は複雑であるが、大別するとロール表面における状態は(I)液体が土手面上を含む全てのロール表面を均一に覆った過充填(over-filled)、(II)土手面の位置ですり切られた状態、及び、(III)過剰に掻き取られセル内の一部のみが液で満たされた部分充填(starved)に分けられる。

過充填であれば、後に続く転写プロセスは2つの移動固体間に挟まれた流動問題となり、その解析には古典的潤滑理論が適用できる。これに対して部分充填の場合、セル表面上に気液固3相接触線が存在するため、物理的特異点である接触線の移動とそれに伴う自由表面流れを同時に解かなければならず、潤滑理論の枠組みでは取扱いが難しい。適した理論的枠組みを選択するためにも、与えられた操作条件下で如何なる充填状態が生じるかを評価する実験手法の開発は重要な課題である。

筆者らは最近、共焦点レーザ変位計(Keyence 製、LT-9010M および LT-9500SO)を用いてレーザ光を液膜表面に対して垂直に照射し、反射光強度が最も高くなる表面位置を同定することで、グラビアセル内の液面形状をX軸方向の空間解像度 $2\mu\text{m}$ で直接計測することに成功した³⁾。ただしロール回転速度が例えば 200 m/min と実工程に近い高速となる場合には、グラビアセルからの乱反射の影響が極めて大きく正確な測定ができない。そこでACサーボモータを用いて測定毎に同じセルを同位置に停止させ、グラビアロールの回転を急停止させた直後の液面形状を測定した。

測定例として、グラビアロール周速基準のキャピラリ数を変化させた場合のロール表面の液面形状を図5に示す。グラビアロール回転が低速すなわち低キャピラリ数の場合には、流体はV溝を過充填し、ロール表面全体を均一に覆っている。ロール速度が増加すると自由表面位置が土手表面に接近する。さらに高速度では、隣接した土手間で凹んだメニスカス形状を示す部分充填となる。同様の過充填から部分充填への遷移は、ブレードに作用する静圧を減少させた場合や、ロール速度を固定して液粘度を増加させた場合にも生じる。また1次元潤滑理論を適用すると、過充填-部分充填の遷移条件が液粘度、ロール速度、セル代表長さ、セル内の圧力勾配の関数として表現できる。詳細は原報⁸⁾を参照されたい。

図4 ドクタリングプロセスにおいて考慮すべき要素²⁾

図5 異なるキャピラリ数における液面形状

なおグラビアロールを高速回転させた場合に部分充填が生じることは、ブレードの設置角が鈍角であることと無関係ではない。3.1で述べたように、鈍角で設置されたブレード直下には負圧が作用するので、ロール速度の増加と共にブレード先端はロール表面へ押しつけられる。その結果、ドクタリングプロセスにおいてより多くの液がロール表面から掻き取られ、セル体積の一部は空気でおめられる。この部分充填されたセルが転写プロセスに入ると、セルから基材へ転写される液量は過充填の場合に比べ相対的に小さくなり、それに伴って基材とグラビアロール間に形成されるビードの体積も小さくなる。この小さなビードは、走行基材から強い粘性力を受けて下流に移動するが、グラビアロールの回転に伴う粘性力はこのビードを逆に上流側へ戻す方向へ作用するので、ビードは上流-下流間を振動し、カスケード欠陥を引き起こすものと考えられる。この考え方は、カスケード欠陥が高速域で発生することを示している図2の結果と矛盾しない。

一方で、もしブレード設置角が鋭角であれば、ブレード直下は縮小流れとなるため流体圧は流れ方向に増加し、ブレード先端が押し上げられることで、セルとブレード間のクリアランスは増加する。従ってより多くの液がクリアランス間を

通過して、ドクタリングプロセス後の土手面上に液が残りに易い。この場合、転写プロセスにおけるビードの体積はロール速度と共に増加するので、鈍角の場合と比べカスケード欠陥はより生じにくくなるものと考えられる。

4. おわりに

本稿では、グラビア塗布の中でも、ドクターブレードが鈍角で設置されたキスリバースグラビア塗布における塗布欠陥、コーティンウィンドウについて述べた。特に塗布欠陥の発生が、単に転写プロセスのみで決定されるのではなく、ドクタリングプロセス後のセル内の液充填状態に依存することを紹介した。今後は、ドクタリングプロセスにおけるロール表面状態を常時モニタリングし、その情報を転写プロセスへフィードバックすることで、安定な塗布操作を実現する技術が注目されるものと思われる。さらに、充填状態を制御しやすく、且つ、流れを安定化する効果の高いグラビアセル形状の開発も、重要な課題として挙げられる。なお転写プロセスにはキス方式に加えて、ダイレクト方式、オフセット方式があり、ロールと基材の回転方向によってそれぞれ正転・逆転の各操作があるので、各種方式・操作の組み合わせに対し網羅的な研究が進むことで、より高度なグラビア塗布技術の進展が期待される。

(Received April 13, 2018)

文 献

- 1) 山村方人; 表面技術, **60**, 420 (2009).
- 2) 三浦秀宣; 博士論文, 九州工業大学 (2017).
- 3) H. Miura, M. Yamamura; *Journal of Coatings Technology and Research*, **12**, 827 (2015).
- 4) D. J. Coyle, C. W. Macosko, L. E. Scriven; *Journal of Fluid Mechanics*, **216**, 437 (1990).
- 5) X. Yin, S. Kumar; *Physics of Fluids*, **17**, 063101 (2005).
- 6) H. Miura, M. Yamamura; submitted
- 7) D. J. Coyle, C. W. Macosko, L. E. Scriven; *AIChE Journal*, **36**, 161 (1990).
- 8) H. Miura, A. Tsuruoka, M. Yamamura; *Journal of Chemical Engineering of Japan*, **50**, 262 (2017)