

# 粒子法による溶融樹脂の塗布挙動シミュレーション

## Numerical simulation of molten polymer behavior in coating process by particle method

- 鷺頭 伸一, 東工大, 東京都目黒区大岡山 2-12-1, washizu.s.aa@m.titech.ac.jp
- 川口 達也, 東工大, 東京都目黒区大岡山 2-12-1, kawat@mep.titech.ac.jp
- 齊藤 卓志, 東工大, 東京都目黒区大岡山 2-12-1, tsaito@mep.titech.ac.jp
- 佐藤 勲, 東工大, 東京都目黒区大岡山 2-12-1, satohi@mep.titech.ac.jp

Shinichi WASHIZU, Tokyo Institute of Technology, 2-12-1, Ookayama, Meguro-ku, Tokyo 152-8552  
 Tatsuya KAWAGUCHI, Tokyo Institute of Technology, 2-12-1, Ookayama, Meguro-ku, Tokyo 152-8552  
 Takushi SAITO, Tokyo Institute of Technology, 2-12-1, Ookayama, Meguro-ku, Tokyo 152-8552  
 Isao SATOH Tokyo Institute of Technology, 2-12-1, Ookayama, Meguro-ku, Tokyo 152-8552

We analyzed flow parameters of coating speed and flow rate in coating process using Moving Particle Semi-implicit (MPS) method which is one of particle methods. But in the simulation by using conventional MPS method, we encountered the problems which were concerned determination of surface particle and calculation of viscosity. In this paper, we suggested an improvement for these problems and show the effectiveness. In addition, for comparing the simulation result with Particle Image Velocimetry (PIV) experiment, we considered the effectiveness of MPS method for coating process simulation.

### 1. 緒言

近年、塗布成形の応用による熱可塑性樹脂の微細転写技術が進展し、幅広い分野での利用が期待されている<sup>(1),(2)</sup>。一方、このプロセスでは条件により樹脂を均一に塗布できない、または完全な微細転写が困難となるという問題が存在する。原ら<sup>(3)</sup>の PIV 実験において、吐出口形状や流量は塗布挙動に影響を与える重要なパラメータであり、塗布フロントが後退すると塗布面に気泡が入り込み安定的な成形が困難であるが確認された。流量、塗布速度だけでなく高さ、幅、角度等の出口形状や温度条件も成形に影響するため、最適な成形条件を実験的に求めることはコスト・時間の面から容易ではない。これに対し、本研究では最適な成形条件を予測するため、自由表面の解析に適した粒子法の一つである MPS 法によりシミュレーションを行ったが、この過程において従来の MPS 法における自由表面判定や粘性計算の問題に直面した。

そこで本研究では、これらの問題に対して画像処理の適用と有効境界という判定手法を導入した改善案を提案し、その有効性を示した。また、既報の実験<sup>(3)</sup>のように粘度が変形速度に依存する流体での解析を行う前段階として、本研究ではニュートン性を示す高粘度流体を仮定しシミュレーションを行った。安定塗布時の成形条件やその時の流動状態について実験データと比較することで、MPS 法<sup>(4)</sup>による塗布プロセスシミュレーションの有効性について検討した。

### 2. 計算手法

#### 2.1 支配方程式

本研究では非圧縮ニュートン性流体を仮定し、流れは以下の式に従うとした。

連続の式

$$\frac{D\rho}{Dt} = 0 \quad (1)$$

ナビエーストックス方程式

$$\frac{D\mathbf{u}}{Dt} = -\frac{1}{\rho}\nabla P + \nu\nabla^2\mathbf{u} + \mathbf{g} \quad (2)$$

ここで $\mathbf{u}$ ,  $\rho$ ,  $P$ ,  $\nu$ はそれぞれ速度、密度、圧力、動粘度である。

#### 2.2 MPS 法

本研究で用いる MPS 法は越塚らによって非圧縮性流れのために

開発された粒子法で、粒子間相互作用により支配方程式を移動する計算点に離散化し解析を行う手法である。MPS 法には、格子法のように形状が変化した場合に格子生成の必要が無く、ラグランジュ的解法であるため数値拡散がないという特徴があるため、自由表面の変形が起こる流動現象の解析に適している。

MPS 法では式の離散化に以下のモデル式を用いる。

勾配モデル

$$\langle \nabla \phi \rangle_i = \frac{d}{n^0} \sum_{j \neq i} \left[ \frac{\phi_j - \phi_i}{|\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i|} (\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i) w(|\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i|) \right] \quad (3)$$

ラプラシアンモデル

$$\langle \nabla^2 \phi \rangle_i = \frac{2d}{\lambda n^0} \sum_{j \neq i} [(\phi_j - \phi_i) w(|\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i|)] \quad (4)$$

ここで $\mathbf{r}$ ,  $d$ ,  $\lambda$ は粒子位置、解析の次元数、統計的な分散の増加と解析解を一致させるための係数である。また、 $n^0$ は初期配置における粒子数密度、 $w(r)$ は重み関数である。

$$n_i = \sum_{j \neq i} w(|\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i|) \quad (5)$$

$$w(r) = \begin{cases} \frac{r_e}{r} - 1 & (0 \leq r < r_e) \\ 0 & (r_e \leq r) \end{cases} \quad (6)$$

ここで $r_e$ は Fig. 1 に示す通り重み関数の影響範囲であり、初期配置における粒子間距離を $l_0$ とすると粒子数密度の計算と勾配モデルには $2.1l_0$ 、ラプラシアンモデルには $4.0l_0$ を用いた。これらのモデル化によりナビエーストックス方程式を離散化した。

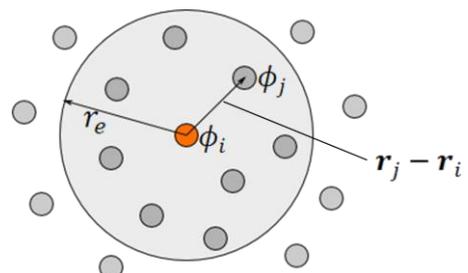


Fig. 1 Range of weight function.

本来の MPS 法では粘性を陽的に計算するが、解析対象がマイクロかつ高粘度により、拡散数の条件から計算の時間刻みは  $1.5 \times 10^{-8}$  s と非常に小さくなってしまふ。そこで池田ら<sup>6)</sup>の手法と同様、粘性を陰的に計算することで拡散数の制限を避けた。計算アルゴリズムを以下に示す。

①ナビエーストークス方程式の粘性項と重力項について計算し、粒子の仮の速度  $\mathbf{u}^*$  と位置  $\mathbf{r}^*$  を求める。このとき、粘性項は陰的に解く。

$$\mathbf{u}^* = \mathbf{u}^k + \Delta t(v\nabla^2\mathbf{u}^* + \mathbf{g}) \quad (7)$$

$$\mathbf{r}^* = \mathbf{r}^k + \Delta t\mathbf{u}^* \quad (8)$$

②更新された粒子位置の分布から、式(5)により各粒子における粒子数密度  $n^*$  を求める。

③以下の圧力ポアソン式に粒子数密度を代入し、粒子数密度を均一 ( $n^0$ ) にするための補正圧力  $p^{k+1}$  を求める。

$$\nabla^2 p^{k+1} = -\frac{\rho}{\Delta t^2} \frac{n^* - n_0}{n_0} \quad (9)$$

④  $p^{k+1}$  から速度の修正量  $\mathbf{u}'$  を求め、速度と位置を修正する。

$$\mathbf{u}' = -\frac{\Delta t}{\rho} \nabla p^{k+1} \quad (10)$$

$$\mathbf{u}^{k+1} = \mathbf{u}^* + \mathbf{u}' \quad (11)$$

$$\mathbf{r}^{k+1} = \mathbf{r}^* + \Delta t\mathbf{u}' \quad (12)$$

以上の粒子間相互作用により非圧縮条件を満たした流れの解析を行った。

### 3. 塗布成形の流動解析

解析は原ら<sup>3)</sup>の実験と同様の塗布プロセスを対象とし、塗布ノズル形状を Fig. 2 に示す。実験で用いたカルボキシルメチルセルロース水溶液(以下、CMC 溶液)は Fig. 3 に示す通り非ニュートン粘性を示すが、本研究ではまずニュートン流体と仮定してシミュレーションするため、塗布細流部のせん断速度  $50 \text{ s}^{-1}$  における粘度を基準として  $\nu = 5.9 \times 10^{-3} \text{ m}^2/\text{s}$  で一定とした。

実験では供給流量を  $14.4 \text{ ml}/\text{min}$  と設定した場合、塗布フロントは Fig. 4 に示す状態で定常となった。流量がこの値より減じた条件では塗布フロントは後退し、塗布面に気泡が混入する結果が得られた。逆に流量を増加させた場合、塗布フロントは画面右方に進行し続け、何れも安定な成形が困難であることが示された。安定的な塗布条件においては、塗布フロントが Fig. 4 内に示す境界 A を越えた状態で定常となったことから、解析においても同状態となったときを安定的塗布と判断することとした。

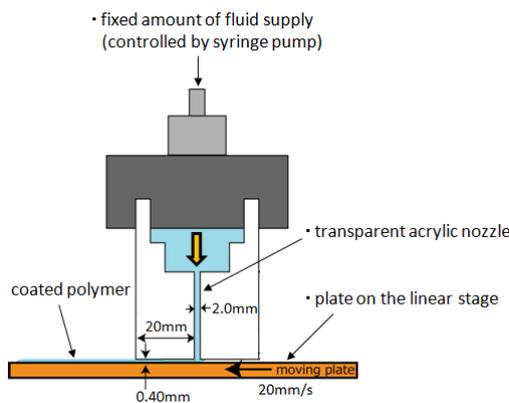


Fig. 2 Outline of coating process.

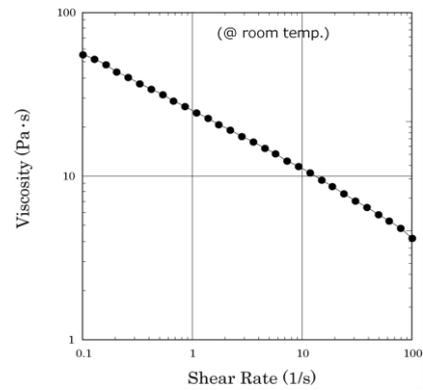


Fig. 3 Shear thinning viscosity of carboxymethylcellulose water solution, 5wt%.

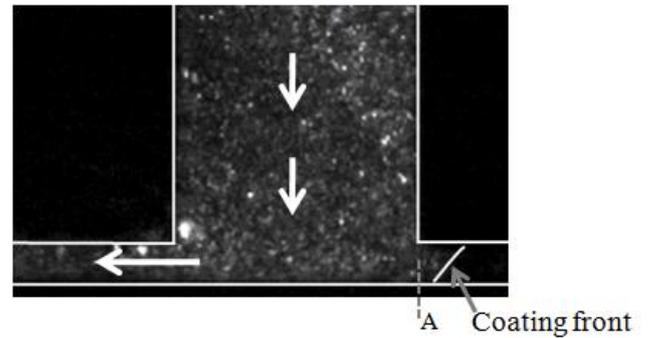


Fig. 4 Surface of coating front in stable flow.

### 4. 従来手法における表面判定・粘性計算の改善

#### 4.1 画像処理を用いた新たな表面判定手法

シミュレーションでは、安定成形の判定として塗布フロント表面位置の時間履歴を観測することを試みたが、この表面が正しく認識できない問題が生じた。Fig. 5 中の右側に示される黒枠の粒子が表面と判定された粒子であるが、流体内部においても表面と判定された粒子が存在する。これは従来の MPS 法では、式(5)の粒子数密度が一定値を下回った時、その粒子を表面と判定していたことが原因で、完全に粒子数密度が均一となっていないためにこのように表面粒子と判定されてしまうことがある。

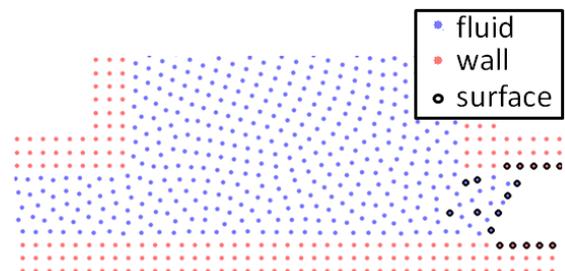


Fig. 5 Surface particle.

圧力ポアソン式の計算では表面と判定された粒子に圧力 0 の境界条件を与えていることや、解析対象によっては表面張力が存在するため、より多くの対象の解析に向けて、表面判定の改良は重要である。そこで本研究では、新たな表面判定手法として画像処理の境界線追跡を導入し判定の改善を試みる。そのプロセスを以下に示す。

① Fig. 6, 7 のように全粒子を囲み格子間隔が  $a_0 \text{ m}$  に相当する配列 buffer, border(配列の初期値は全て 0) を作成し、各粒子を中心とした半径  $r_{RP} \text{ m}$  の円領域に存在する buffer の配列に各粒子に対応した番号を格納する。

ここで、 $r_{RP}$ の大きさに関する係数 $\alpha_{JS}$ 、半径長さの分解能 $S_R$ とすると

$$r_{RP} = l_0 \cdot \alpha_{JS} \quad (13)$$

$$a_0 = \frac{r_{RP}}{S_R} \quad (14)$$

②buffer の 0 とそれ以外の値に対して、4 連結の境界線追跡<sup>6)</sup>を行うことで、border に内側・外側境界の抽出結果を格納する。このとき Fig. 8 の通り、各内側境界については負の値、外側境界には正の値でラベリングする。ただし、Fig. 9 のように内側境界内に外側境界がある場合はその内側境界と同じ番号でラベリングする。

③負のラベルで囲まれた配列の数が $b_B$ 以上の場合、そのラベルを正に変更し、正のラベルを持った境界を有効境界とする。有効境界に変更後の図は Fig. 10 の通りである。

ここで面積の閾値を $b_R$  m<sup>2</sup> とすると

$$b_B = \frac{b_R}{a_0^2} \quad (15)$$

④Fig. 11 の通り、有効境界の border と同じ配列番号の buffer に格納されている番号に対応した粒子を自由表面と判定する

この手法の導入により、Fig. 12 のように自由表面の判定を大きく改善することができた。なお本研究では  $r_{RP} = 0.5 \times \sqrt{2}, S_R = 10, b_B = 300$  を用いた。

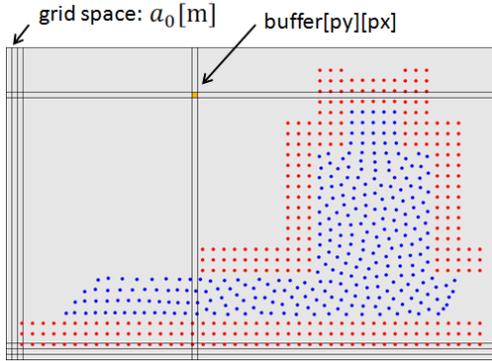


Fig. 6 Creating 2D arrays named buffer and border.

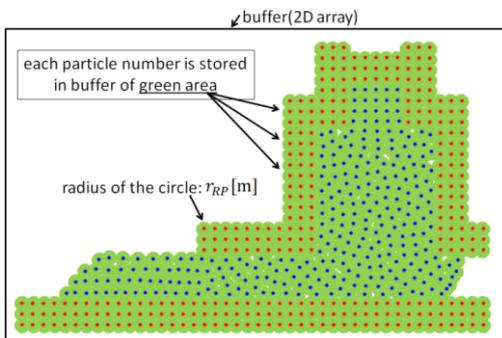


Fig. 7 Particle number is stored in buffer.

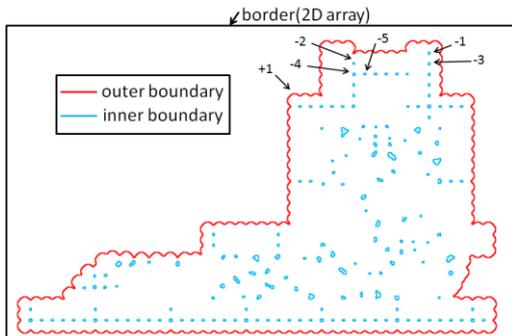


Fig. 8 Boundary label is stored in border.

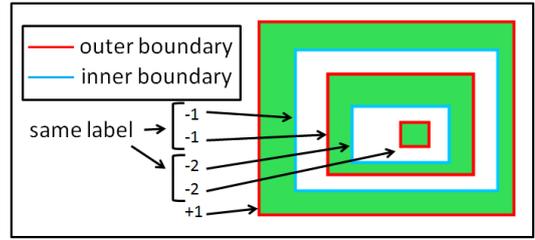


Fig. 9 Outer boundary in inner boundary.

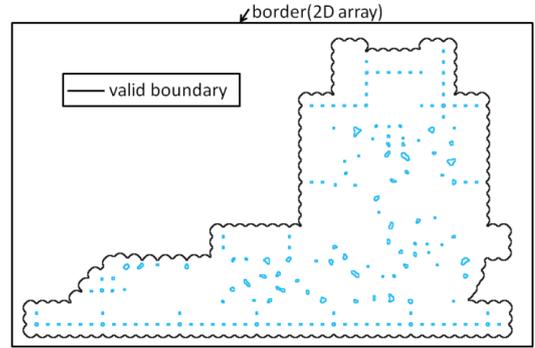


Fig. 10 Inner boundary met conditions and outer boundary are treated as valid boundary.

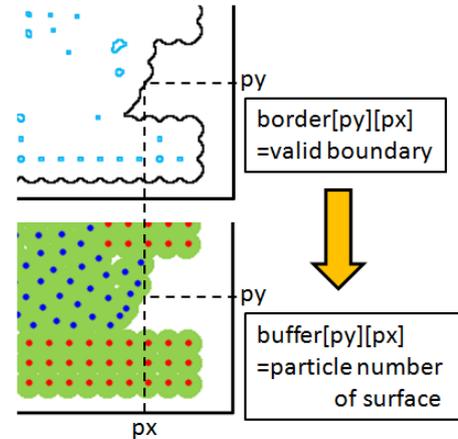


Fig. 11 Determination of surface particle by using border and buffer.

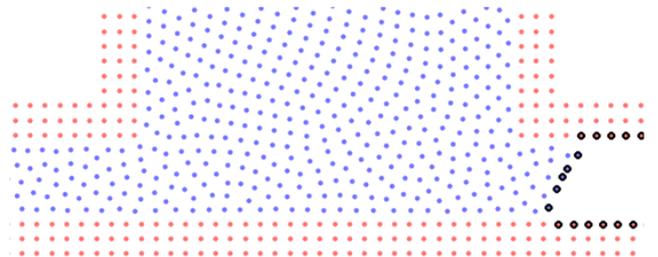


Fig. 12 Improvement of determination of surface particle.

#### 4.2 有効境界を用いた粘性計算の改善

表面判定の改良に伴って、従来の近傍粒子に対する考えを見直した。様々な塗布のシミュレーションを行うために、樹脂を押しつけながら塗布する方法だけでなく、Fig. 13 のようにノズル塗布面が比較的離れている条件についても検討しているが、このような対象のシミュレーションにおいて、Fig. 14 に示す通り塗布樹脂が移動壁に接触する前に移動するという結果が生じた。これは、従来の粘性計算では、一定半径内に存在する粒子を近傍粒子とし、その近傍粒子の全てから粘性の影響を重み付けと与えていたが、

この方法の場合、Fig. 15 のように接触していない壁も近傍粒子に含まれてしまうため、流体が壁面に接触する前に粘性が働いてしまうという結果となる。そこで、表面判定で作成した有効境界を用いた改良を提案する。そのプロセスを以下に示す。

- ①まず、従来の近傍粒子と判定された粒子同士の線上を走査する。
- ②Fig. 16 のように、粒子間を結ぶ線上に有効境界が存在する場合、その粒子同士は非接触であることから、近傍粒子ではないとみなし、粘性の影響を計算しないことにする

このプロセスにより Fig. 17 に示す通り接触後に粘性が働くように改善された。また、有効境界による近傍粒子の除去プロセスは粘性だけでなく圧力や伝熱の計算時にも利用可能である。

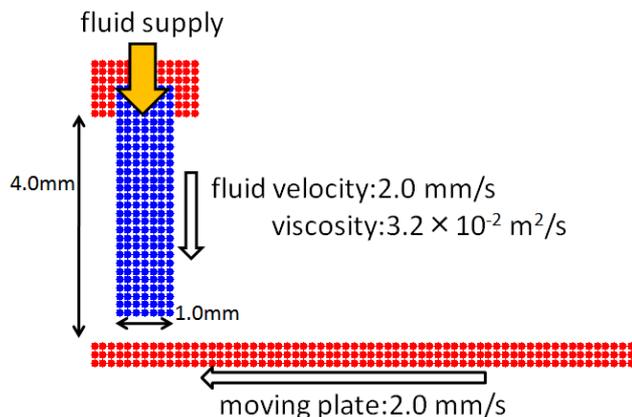


Fig. 13 Calculation condition of a coating process.

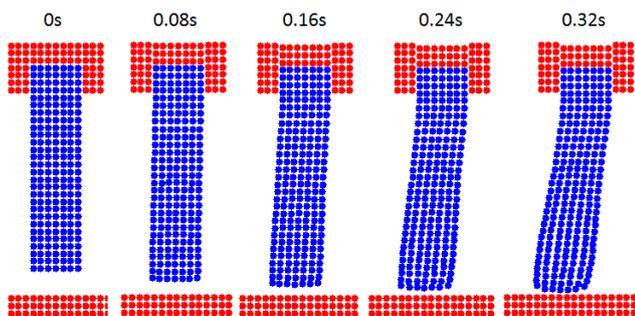


Fig. 14 Fluid move with plate before contact.

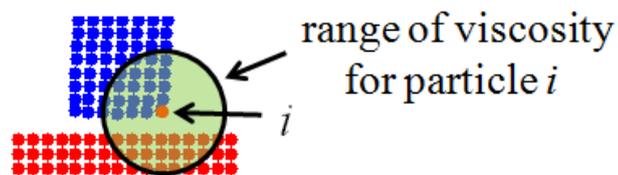


Fig. 15 Range of viscosity.

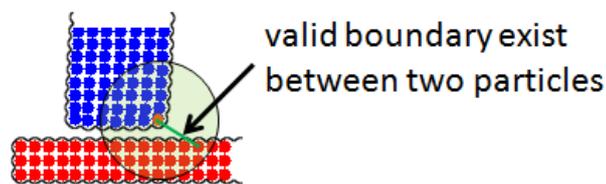


Fig. 16 Determination of noncontact by using valid boundary.

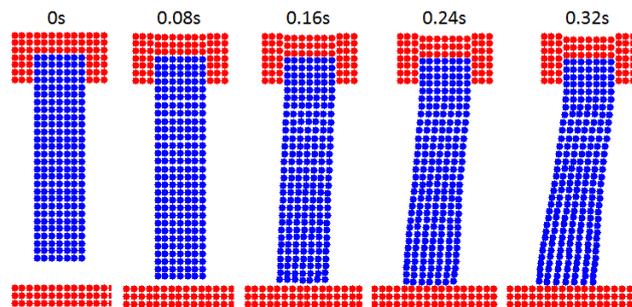


Fig. 17 Fluid move with plate after contact.

### 5. 解析結果と実験データとの比較

4章の手法を導入し、再度塗布成形について流量を変化させてシミュレーションを行ったところ、塗布フロント表面位置の時間履歴はFig. 18 のようになり、流量7.9 ml/min のとき流れもほぼ定常となっていることが確かめられた。安定塗布時流量に関しては実験の 14 ml/min とは比較的離れた値となってしまったが、このときの塗布フロント表面形状、流路内速度分布はFig. 19, 20 のようになり、実験と定性的には良い一致を示すことから塗布成形における流動状態を予測するのに MPS 法は有効であると考えられる。

流量の違いについては、実験においては樹脂の押しつけ圧により塗布高さが0.40 mm から変動していることや、今回の解析において流体を粘度一定と仮定していることが原因と考えられる。

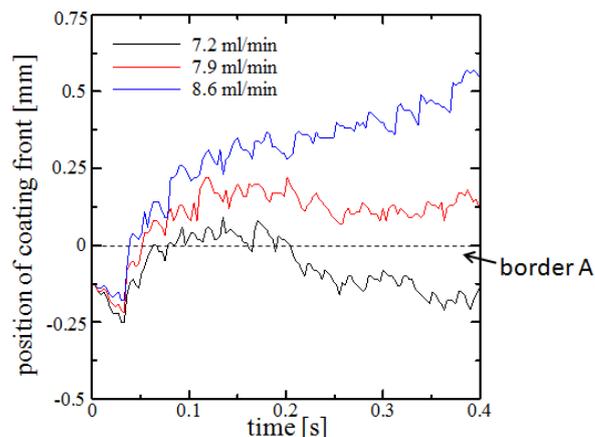
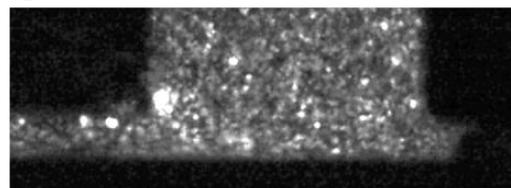


Fig. 18 Position of coating front time-history.

・Experiment



・Numerical simulation (MPS method)

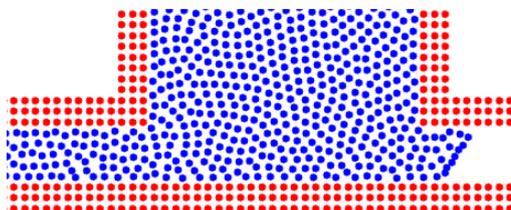
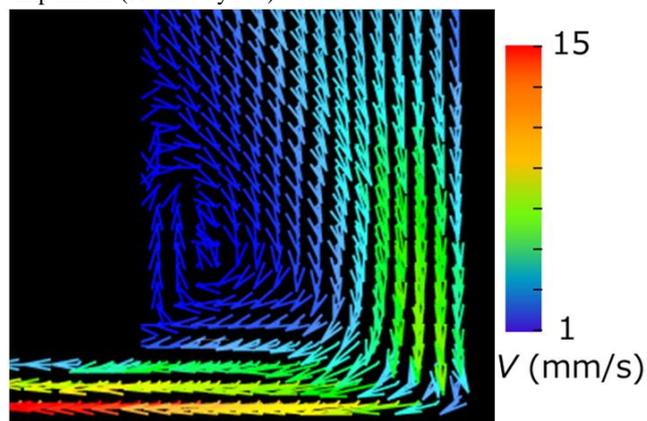


Fig. 19 Surface of coating front.

・Experiment (obtained by PIV)



・Numerical simulation (MPS method)

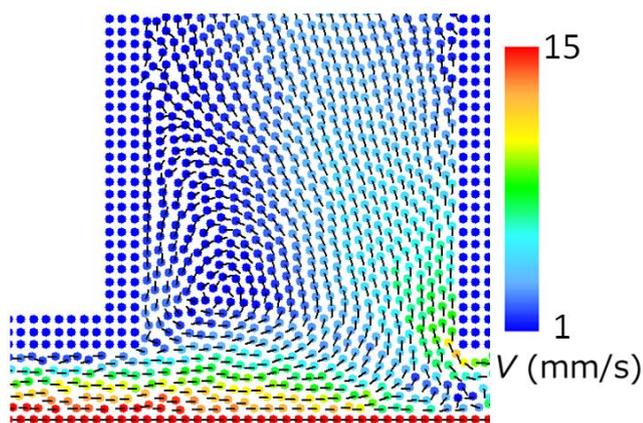


Fig. 20 Velocity distribution.

## 6. 結言

本研究では、従来の MPS 法における自由表面の判定と未接触粒子間に働く粘性の問題について改善案を提案し、その有効性について確かめた。改善案を導入したシミュレーションの結果、安定成形時の流量は実験と比較的離れた値となってしまったが、塗布フロント表面や速度分布について定性的に良い一致を示していることが確認できた。流量に関しては、実験において樹脂の押しつけ圧により塗布高さが 0.4 mm から変動していることや、今回の解析において流体を粘度一定と仮定していることが原因と考えられる。この問題に対し、今後実験における正確なデータの取得と解析における非ニュートン粘性の考慮という両面からアプローチを行っていくことで MPS 法による塗布成形シミュレーション結果への信頼性を高めていくことができると考えられる。

## 参考文献

- (1) 伊東宏, 他 3 名 : 成形加工, 21 (2009). pp.94-102
- (2) 伊東宏, 他 3 名 : 成形加工, 21 (2009). pp.499-509
- (3) 原雄太, 他 4 名 : 成形加工 '07 (2007). pp.233-234
- (4) 越塚誠一 : 粒子法, 丸善(2005)
- (5) 池田博和 : 東京大学博士論文(1999)
- (6) 酒井幸市 : デジタル画像処理入門, CQ 出版(2002)