

氏名	中島 遼太
博士の専攻分野の名称	博士（工学）
学位記号番号	博理工甲第 1167 号
学位授与年月日	令和2年3月23日
学位授与の条件	学位規則第4条第1項該当
学位論文題目	粘着剤塗布の数値シミュレーション
論文審査委員	委員長 准教授 本間 俊司 委員 教授 山口 祥一 委員 教授 平原 裕行 委員 教授 小原 哲郎 委員 准教授 姜 東赫

## 論文の内容の要旨

粘着剤塗布は、粘着ラベルの製造工程で用いられている。粘着ラベルは、宅配伝票など様々な用途に用いられているが、通信販売などの物流の著しい拡大により、粘着ラベルの需要が増大し続けているとともに、ラベルユーザーの激しい競争から、粘着ラベルのコストダウンが求められている。コストダウンを達成するために、粘着剤塗布量の削減、製造工程の高速化が挙げられる。特に、製造工程の高速化には、カーテンコーティングの導入による、粘着剤の高速塗布が検討されている。カーテンコーティングは塗布手法の1つであり、塗布液をカーテン状の薄膜として流下するのが特徴であり、粘着剤塗布で使用されている他の手法と比べ、より高速での塗布が可能となる。

粘着剤の高速塗布では、はじきの発生が課題である。はじきとは、粘着膜上に生じる穴のことであり、粘着ラベルの印刷不良の原因となる。粘着剤塗布量を削減し高速での塗工を行うと、はじきが発生しやすくなり、はじきの発生を抑制するためには、粘着剤の改良が必要であるため、粘着剤メーカーでは、新規の粘着剤開発が行われている。

粘着剤の開発は、経験に基づき試行錯誤的に行われている。さらに開発した粘着剤を、各企業の塗布装置に対応させる必要があり、塗布性能の試験もラベルメーカーの実機を使用して行うため、粘着剤の開発には多大な費用および時間を必要としている。高速塗布に対応した粘着剤の開発においても、カーテンコーティングに関する知見が必要であるが、粘着剤塗布にカーテンコーティングを利用しているラベルメーカーが非常に少なく、対応する粘着剤の開発が困難になっているのが現状である。

本研究では、粘着剤開発に数値計算を導入することを目的とする。具体的には粘着剤塗布の数値シミュレーションを行い、カーテンコーティングによる高速塗布、およびはじきの発生に関する知見を得ることで、カーテンコーティングに対応した粘着剤の開発を可能にし、必要な費用および期間の削減を達成することが狙いである。粘着剤を share-thinning を示す純粘性流体と仮定し、はじきの発出現象を、以下の過程に分割し、数値計算を実施することで、はじきの生じにくい条件の提供を可能とする。

- ・粘着剤の塗布工程において、塗膜内に気泡が混入する。
- ・気泡を核として、塗膜上に微小なピンホールを生じ、成長してはじきとなる。

数値計算ツールには、オープンソースの OpenFOAM を使用する。はじきの発生現象の再現性を確認するため、これら 2 つの過程について、数値計算モデルを構築し、数値計算を行った。

本研究では、以下の内容で構成される。第 2 章では、OpenFOAM 付属の VOF 法による三相接触線の移動を伴う現象の再現性を確認するため、塗膜上に生じた微小なピンホールが成長し、はじきとなる様子を数値計算により再現した。はじめに、粘着剤塗膜上におけるピンホール成長の実験を実施し、計算結果と比較することで数値計算モデルの妥当性を検証した。この結果を用いて、物性値を変更し数値実験を行うことで、ピンホールの成長に与える影響を調査し、先行研究として報告されている、ニュートン流体におけるピンホールの成長速度式が、粘着剤に適用可能か評価した。その結果、接触線が後退しピンホールが成長する様子が得られた。塗布実験と比較を行った結果、接触角について動的接触角モデルを導入し、後退角を使用することでピンホールの成長が再現出来ることがわかった。この数値計算を用いて、ピンホールの成長速度と粘着剤の物性値との関係を調査したところ、成長速度は粘着剤の表面張力に比例し、粘性に反比例することがわかった。また、後退角を変更した結果、成長速度は後退角の値に応じて 3 乗で比例することがわかった。これは、先行研究として報告されている成長速度の関係と一致していることから、粘着剤では後退角を用いることで、報告されている成長速度式が利用可能であることがわかった。

第 3 章では、塗膜内への気泡の混入について数値計算を実施した。高速塗布で使用されているカーテンコーティングの 2 次元数値計算モデルを作成し、カーテンの形状を表す coating window の再現を行い、VOF 法により気泡混入の原因となる空気同伴 (air entrainment) が観測可能か調査した。そして、定常状態における三相接触線について、先行研究と比較をし、VOF 法によるカーテンコーティングの再現性を検討した。その結果、液体の粘度、塗布量および塗布速度を変更することで、heel formation や air entrainment などのカーテン形状が再現できた。これらの結果を用いて coating window を再現した結果、先行研究のものと概ね一致した。また、定常状態となった結果について三相接触線の位置を調査したところ、既存の研究で報告されている関係と概ね一致した。これらより、VOF 法を用いてカーテンコーティングの再現が可能であることがわかった。

第 4 章では、カーテンコーティングの 3 次元数値計算を実施し、気泡混入の再現が可能か調査した。初めに、2 次元計算モデルを拡張して 3 次元計算モデルを作成し、coating window における air entrainment の観測が可能か検討した。また、カーテンガイドを導入した 3 次元計算モデルを作成し、同様に air entrainment が観測可能か調査した。その結果、air entrainment を含む 4 つのカーテン形状が得られた。これらの結果を用いて coating window を再現したところ、2 次元計算で得られた分布と概ね一致した。また、カーテンガイドを導入したモデルにおいても、air entrainment が観測された。これより、本研究で作成した 3 次元計算モデルを用いて、塗膜への気泡混入を再現できる可能性が示唆された。

本研究により、塗膜表面に生じたピンホールの成長を、粘着剤粘度、表面張力、濡れ性から予測することが可能となった。また、今回作成した数値計算モデルを用いて、空気同伴の数値実験が可能となった。これらの成果は、カーテンコーティングに対応した粘着剤の開発を可能にし、開発に必要なコストおよび期間の削減に貢献することが期待される。

## 論文の審査結果の要旨

宅配伝票など様々な用途に用いられる粘着ラベルは、e コマースの発展に伴う物流の著しい拡大により需要が増大し続けている。また、海外ラベルメーカーの低価格攻勢により粘着ラベル製造のコストダウンが常に求められている。これに対して、ラベル製造の中心工程である粘着剤塗布において塗布量の削減および塗布の高速化が検討されている。粘着剤の高速塗布では、「はじき」が発生しやすくなる。はじきとは、粘着剤の塗布膜上に生じる穴のことであり、ラベル印刷不良の原因となる。本研究では、はじきが発生しにくい粘着剤の開発を支援するため、数値流体力学シミュレーションによって、はじきの発生および成長メカニズムを明らかにすることを目的とした。

第1章では研究背景および目的を述べた。

第2章では塗膜上に生じた微小なピンホールが成長し、はじきとなる様子を数値計算により再現し、はじきの成長メカニズムを検討した。まず、粘着剤塗膜上におけるピンホール成長に関する実験を実施し、計算結果と比較することで数値計算モデルの妥当性を検証した。次に、数値実験を行うことで、ピンホールの成長に与える物性値の影響を調査した。その結果、ピンホールの成長速度は粘着剤の表面張力に比例し、粘性に反比例することがわかった。また、ピンホールの成長速度は接触角の3乗に比例することがわかった。これらのことから、はじきの成長速度と粘着剤の物性値ならびに接触角の関係が明らかになり、最適な粘着剤設計の指針を与えることに成功した。

第3章では、高速塗布で使用されているカーテンコーティングの2次元数値計算モデルを作成し、カーテンの形状および気泡の混入について検討した。まず、先行研究との比較よりVOF法による数値シミュレーションによってカーテンコーティングが再現可能かどうか検討した。液体の粘度、塗布量および塗布速度を変更することで、Heel formationやAir entrainmentなど異なるカーテン形状が再現できた。これらの結果を用いて、カーテン形状が分類できるCoating windowを作成した結果、先行研究のものと概ね一致した。また、定常状態における三相接触線の位置を調査したところ、既往の研究結果とよく一致した。これらより、VOF法を用いた数値シミュレーションによってカーテンコーティングの再現が可能であることを示した。

第4章では、カーテンコーティングの3次元数値計算を実施し、塗布時の気泡混入の再現が可能か調査した。初めに、2次元計算モデルを拡張して3次元計算モデルを作成し、Coating windowにおけるAir entrainmentの観測が可能か検討した。また、カーテンガイドを導入した3次元計算モデルを作成し、同様にAir entrainmentが観測可能か調査した。その結果、Air entrainmentを含む4つのカーテン形状が得られた。

これらの結果を用いてCoating windowを再現したところ、2次元計算で得られた分布と概ね一致した。また、カーテンガイドを導入したモデルにおいてもAir entrainmentが観測された。これらのことより、本研究で作成した3次元計算モデルを用いて、カーテンコーティングにおける塗膜への気泡混入を再現できる可能性が示唆された。

第5章で本研究を総括するとともに期待される今後の展開を述べた。

本研究の成果により、塗膜表面に生じたピンホールの成長を、粘着剤の粘度、表面張力、濡れ性（接触角）から予測することが可能となった。また、今回作成した数値計算モデルを用いて、カーテンコーティングにおける空気同伴の数値実験が可能となった。これらの成果は、カーテンコーティングに対応した粘着剤の合理的な開発を可能にし、その開発に必要なコストおよび期間の削減に大いに貢献することが期待される。

これらの成果は2編の論文として査読付き学術雑誌に既に掲載されている。また、本研究の成果は実際の

粘着剤の開発に貢献するもので工学的な価値が高く、今後の技術的および学術的展開も示していることから、当審査委員会は本論文が博士（工学）の学位授与に十分値する内容を有するものと判断した。