様　式　Ｃ－１９、Ｆ－１９－１、Ｚ－１９　（共通）

科学研究費助成事業　　研究成果報告書

令和　６ 年　 ６ 月 １１ 日現在

機関番号：１２６０５
研究種目：挑戦的研究（萌芽）
研究期間：2022～2023
課題番号：２２Ｋ１８７６６

研究課題名（和文）非定常・非一様ひずみ速度場における複雑流体のレオロジー・内部構造計測法の開発

研究課題名（英文）Development of rheological and internal structure measurement methods for complex fluids in unsteady and non-uniform strain rate fields

研究代表者

亀田　正治（Kameda, Masaharu）

東京農工大学・工学（系）研究科（研究院）・教授

研究者番号：７０２６２２４３

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費）　　5,000,000円

研究成果の概要（和文）：ドップラー光干渉断層撮影法(Doppler-OCT)による流動計測とコヒーレントアンチストークスラマン分光法(CARS)による物質・分子計測を組み合わせた新しい時間分解レオロジー計測システムを開発した．CARS法の要素として，光フィルターによるパルス整形を用いた新しいシングルパス狭帯域第2高調波発生（SHG）法の開発に成功した．各システムの基本的な特性を確認し，同時測定には至らなかったが，今後の複雑流体測定の実現への道筋を付けることができた．

研究成果の学術的意義や社会的意義
レオロジーは，流体が流動にともなってどのような変形を起こし，どのような力を生じるのかを知るための学問です．食品，日用品，塗料，血流などの複雑流体（complex fluids）のレオロジーは，工業プロセスにおける混合器，配管，ポンプなどの流動に大きな影響を及ぼします．本研究では，流動の急激な変化や管内での複雑流体の内部構造と流速を同時に測るシステムの開発を進めました．工業プロセスのその場計測は，製造工程の改善に大いに役立ちます．

研究成果の概要（英文）：We have developed a new time-resolved rheological measurement system that combines flow measurement by Doppler optical coherence tomography (Doppler-OCT) and material and molecular measurement by coherent anti-Stokes Raman spectroscopy (CARS). A new single-pass narrow-band second harmonic generation (SHG) method using optical filter pulse shaping was successfully developed as an element of the CARS method. Although simultaneous measurement was not achieved, the basic characteristics of each system were confirmed, and a prospect for the realization of complex fluid measurement in the future was established.

研究分野：流体工学

キーワード：流体工学　計測工学　レオロジー　光計測

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様　式　Ｃ－１９、Ｆ－１９－１（共通）

１．研究開始当初の背景

食品，日用品，塗料，血流などの複雑流体（complex fluids）は，ニュートン流体（粘度がひずみ速度に依存しない）とは異なり，流体の変形や時間発展による物質の内部状態変化がレオロジーに影響を及ぼす．例えば，急激な引っ張りのような強い非定常性を持つ流れで顕著に現れる非線形レオロジーは，物質内部の状態変化と密接にかかわる．また，管内流の固体壁付近のように，ひずみ速度が一様でない場では，それに応じた物質内部構造が生じる．

しかし，標準的な計測装置である回転式あるいは伸長レオメータのみでは，非一様ひずみ速度場や物質内部状態の解析はできない．流体内部の応力，ひずみ速度（ひずみ）分布と，物質の微視的構造や化学的性質を同時に把握する方法が必要である．

レオロジーと内部構造の同時測定法として，高分子物質や生体物質のようなソフトマターを対象に，流動装置と中性子小角散乱法（small angle neutron scattering, SANS）を組み合わせた rheo-SANS，flow-SANS と呼ばれる方法が良く用いられる）．しかし，SANS は，中性子源が必要であり，大規模研究施設での実験に限られること，時間分解計測は装置開発の段階であり，現状では定常流の計測に限られる，という問題がある．

２．研究の目的

本研究では，ラボスケールかつ非定常計測への拡張が可能な rheo-SANS, flow-SANS に代わる新しい方法論として，低コヒーレンス光の干渉現象を利用する「ドップラー光干渉断層撮影法（Doppler-OCT）」による流動計測と「コヒーレント反ストークスラマン分光（CARS）法」による物質分子計測を複合した高時間分解レオロジー計測システム（図１）の構築を進めた．構築したシステムにより，管内流のようなひずみ速度の非一様性がある場，液糸の伸長・破断過程のような大変形かつ非定常性の強い場のレオロジーの解明に挑戦することを目指した．

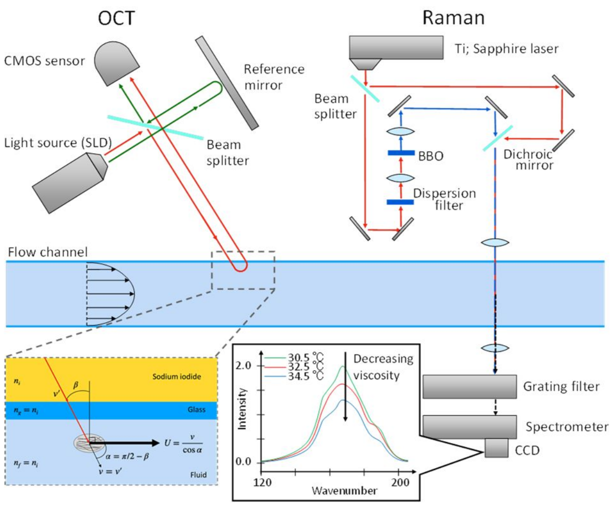

図１ OCT/ラマン複合レオロジー計測システム

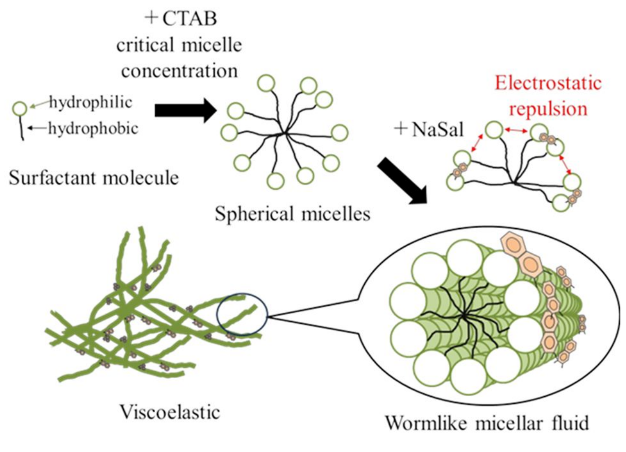

図２ ひも状ミセルの構造

３．研究の方法

OCT は流速計としてのセットアップ（図１左）を基本に，高速サンプリングが可能なシステムを組み立てた．ラマン分光は，高強度の信号が得られサブミリ秒での時間分解計測が可能であり，本研究グループが実績を有する「CARS 法」（図１右）を本システム用に改良した．流体工学を専門とする研究代表者，分担者（武藤），研究協力者（農工大・名工大学生）によって諸元を設定し，光工学を専門とする分担者（伊藤）と研究協力者（農工大学生）が装置の設計，製作を行った．

４．研究成果

（１）計測対象とする流体の選定とレオロジー計測

計測対象として，粘弾性流体であるひも状ミセル水溶液（図２）を取り上げた．水溶液の構成材料は，既往の研究を参考に，界面活性剤（臭化セチルトリメチルアンモニウム（CTAB））とサリチル酸ナトリウム（NaSal）を用いた．この溶液について，液滴落下法による一軸伸長レオロジー試験と，試料内の分子の配向状態の指標である複屈折の同時計測を実施し，伸長応力や複屈折の大きさと伸長応力を関連付ける応力光学係数を明らかにした（武藤 2023）．

（２）CARS 法計測システムの構築

まず，顕微レーザーラマン分光装置を用いて，水溶液のラマンスペクトルを取得した．その結果，152~155cm^{-1} 付近にひも状ミセルの絡み合い構造に起因する水分子間の水素結合伸縮モー

ドのスペクトルとその変化が確認できた（図3）.

そこで，このスペクトル域を対象として，**Collinear CARS** 光学系を設計・製作を進めた. ガラスをサンプルとする **CARS** 光測定を行ったところ，非共鳴バックグラウンド（**NRB**）光が，本来の **CARS** 光と重なるという問題が生じた．**CARS** 法ではポンプ光，ストークス光によって分子運動をコヒーレントに励起させた後，プローブ光を入射させることで発光を得るが，問題の原因は，スペクトル分解能を決定する，プローブ光の狭帯域化が不十分であることによると判明した．

CARS 法で高速・高分解能分光を実現するために，本研究では，広帯域フェムト秒パルスを同期した狭帯域ピコ秒パルスに変換する帯域幅圧縮と波長変換技術を用いてプローブ光を生成している．以上の問題を解決する手段として，分散特性を精密に制御した光フィルタによるパルス整形を用いたシングルパス狭帯域第 **2** 高調波発生（**SHG**）法を開発した．具体的には，Ta_2O_5/SiO_2 誘電体を **140** 層重ねたバンドパスフィルタを製作した（**Tajima et al. 2024**）．このフィルタは，基本波フェムト秒パルスと同じ **808 nm** を中心周波数とし，透過帯域幅 **35 nm**，透過率 **95%** を有し，中心周波数に対して対称な強い奇数次分散による遅延が発生するものである（図4）．フィルタ通過後に **0.1 mm** 厚の非線形光学結晶（**Type I BBO**）を通すことで，狭帯域第 **2** 高調波（**404 nm**）光を発生させた．このフィルタを **10** 枚重ねたスタックに，パルス光を通す特性試験を行った結果，**SHG** 帯域幅は **1/6** に圧縮され，波長変換効率はフィルタなしの場合に比べて **18** 倍向上することが分かった（図５）．分散特性を設計した光学フィルタがパルス整形ツールとして有用であることを示した．

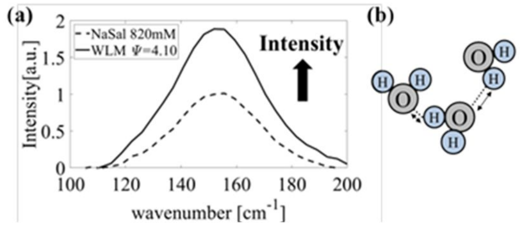

図３ ラマンスペクトル

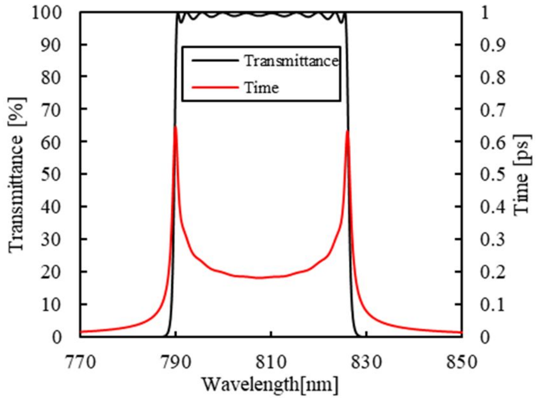

図４ 分散フィルタの特性

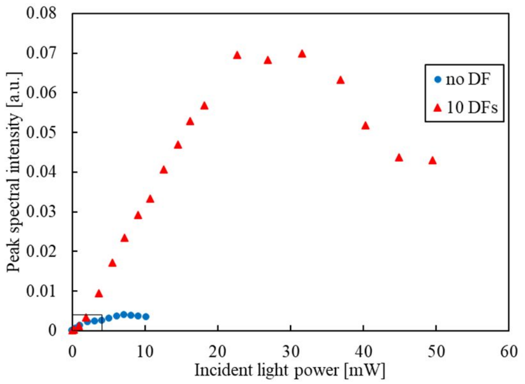

図５ フィルタによる波長変換効率の改善

（３）ドップラーOCT 計測システムの構築

複合計測システムの構成要素として，**Doppler OCT** システム（図６）を自作した．光源には中心波長 **1325 nm**，半値幅 **100 nm** の近赤外線スーパールミネッセントダイオード(**SLD**)光源を用いた．ファイバーカプラーで **90:10** の分岐比で光を分け，サンプルと参照ミラーに照射した．反射光は同じファイバ光路を通じてフォトディテクタに導かれる．参照ミラーには，モーターステージを設置した．モーターステージは **PC** で制御することができ，参照ミラーの位置を **0.5** μm 単位で調整できる．サンプル側の反射光と，変調していない参照ミラー側の反射光が干渉することでドップラー信号が得られ，その周波数から流速を求めることができる．

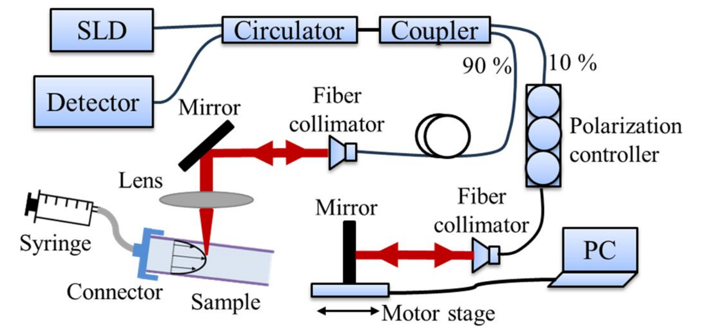

図６　ドップラーOCT 計測システム

システムの計測精度を評価したところ，サンプル側の深度を測定する精度は相対誤差 **0.40%**と非常に高いことがわかった．一方，速度の算出では，想定より大きな約 **10%**の誤差が生じた．この原因として，波長分散の影響が推察された．

（４）まとめ

ドップラー**OCT**/ラマン複合計測の実現に向けて，それぞれのシステムの構築を進めた．同時計測には至らなかったものの，各システムの基本特性が確認でき，今後の複雑流体計測実現へのめどをつけることができた．

５．主な発表論文等

〔雑誌論文〕　計1件（うち査読付論文　1件／うち国際共著　0件／うちオープンアクセス　1件）

１．著者名 武藤真和，ウォービーウィリアム海アレクサンダー，中峰健登，横山裕杜，田川義之	４．巻 41
２．論文標題 流動複屈折計測とインデックスマッチングを複合した円管内流体応力場計測手法の開発	５．発行年 2022年
３．雑誌名 ながれ	６．最初と最後の頁 383-386
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 －

〔学会発表〕　計5件（うち招待講演　1件／うち国際学会　2件）

１．発表者名 Masakazu Muto, William Kai, Alexander Worby, Kento Nakamine, Yuto Yokoyama, Yoshiyuki Tagawa
２．発表標題 Non-Contact And Non-Steady Rheo-Optical Measurement of hydrodynamic stress fields inside a cylindrical tube
３．学会等名 20th International Symposium on Applications of Laser and Imaging Techniques to Fluid Mechanics（国際学会）
４．発表年 2022年

１．発表者名 龍見 香穂，亀田 正治，山中 晃徳，市原 美恵
２．発表標題 フェーズフィールド法による粘弾性流体伸長変形におけるき裂進展の解明
３．学会等名 日本流体力学会 年会2022
４．発表年 2022年

１．発表者名 Kanako Tajima, Katsuya Iwata, Masaharu Kameda, Kazuhiko Misawa, and Terumasa Ito
２．発表標題 Pulse shaping with dispersion engineered optical filters for single-pass narrowband second harmonic generation
３．学会等名 SPIE Photonic West LASE 2024, Frontiers in Ultrafast Optics: Biomedical, Scientific, and Industrial Applications XXV（国際学会）
４．発表年 2024年

１．発表者名 梅澤遼,武藤真和,亀田正治,玉野真司
２．発表標題 流動複屈折法とPIV法の複合計測による複雑流体の流体応力場と流速場の関係性の調査
３．学会等名 日本機械学会 東海支部 第55回学生員卒業研究発表講演会
４．発表年 2024年

１．発表者名 武藤真和
２．発表標題 レオロジーと複屈折の複合計測が拓く複雑流体の医工計測技術の紹介
３．学会等名 第26回日本機械学会 流体工学部門 複雑流体研究会（招待講演）
４．発表年 2023年

〔図書〕　計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

－

６．研究組織

	氏名 （ローマ字氏名） （研究者番号）	所属研究機関・部局・職 （機関番号）	備考
研究分担者	伊藤　輝将 (Ito terumasa) (60783371)	東京農工大学・工学（系）研究科（研究院）・准教授 (12605)	
研究分担者	武藤　真和 (Muto Masakazu) (30840615)	名古屋工業大学・工学（系）研究科（研究院）・助教 (13903)	

７．科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕　計0件

８．本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関