

# 助成研究成果報告

(2023年4月～2024年3月完了分)

2024年8月

公益財団法人 みずほ学術振興財団

## 第 6 5 回贈呈分（2022年度）

1. 天然粘土を母材とした規則性2次元ナノ空間設計による高選択的CO<sub>2</sub>転換触媒の開発…………… 1  
東京大学 大学院工学系研究科 講師 岸本 史直
2. 堅牢な分子認識を実現する有機合成的分子鋳型形成手法の開発…………… 3  
東京大学大学院 工学系研究科 講師 細見 拓郎
3. 効率的な多置換ベンゼンの合成を目指した複核金属錯体によるフェノール類縁体の触媒的変換技術の開発…………… 5  
京都大学 工学研究科 助教 仙波 一彦
4. サーモカメラを用いた主応力変動センサの開発および適用性評価…………… 7  
京都大学大学院 工学研究科 日本学術振興会特別研究員 佐藤 顕彦
5. ゲノム編集を駆使した有機酸輸送系の改変によるクエン酸超生産菌の創製…………… 9  
早稲田大学 理工学術院 招聘研究員 吉岡 育哲
6. イオン風を用いた静音飛行において発生する浮上力の過渡特性の解明……………11  
慶應義塾大学 理工学部 准教授 野崎 貴裕
7. 立ち座り動作および座位での上肢作業に対する座面硬さの影響解明……………13  
慶應義塾大学 理工学部 専任講師 小川 愛実

## 第 6 6 回贈呈分（2023年度）

8. 高密度な分子間相互作用を鍵とする高屈折・低誘電アモルファスポリマー……………15  
早稲田大学 先進理工学研究科 応用化学専攻 博士後期課3年 渡辺 清瑚
9. 圧電効果を利用した微小光共振器による高繰り返し超短パルス生成に関する研究……………17  
慶應義塾大学 理工学部 助教 藤井 瞬

## 第65回贈呈分（2022年度）

### 1. 天然粘土を母材とした規則性2次元ナノ空間設計による高選択的CO<sub>2</sub>転換触媒の開発

東京大学 大学院工学系研究科 講師 岸本 史直

#### (研究結果報告)

**背景と目的:** カーボンニュートラル社会創生に向けて、大気中の二酸化炭素と、再生可能エネルギーを用いて製造したグリーン水素を利用して、燃料や化成品などの様々な有用化成品を合成するプロセスが望まれている。このプロセスを実現するためには、CO<sub>2</sub>を効率的に活性化・反応させる固体触媒の開発が必要不可欠である。特に、高い転化率での反応運転条件において、CO<sub>2</sub>の活性化・反応効率が低下してしまうことが課題となっている。この反応効率の低下は、主に副生成物である水分子の影響が大きい。本研究では、天然に豊富に存在する天然粘土鉱物が有する水吸着能に着目した。天然粘土鉱物を、CO<sub>2</sub>を活性化する金属触媒とナノレベルで混合することで、CO<sub>2</sub>の活性化・反応を阻害する水分子を金属触媒表面から取り除くことで、高い転化率でも効率的なCO<sub>2</sub>転換を実現することを目的とした。このナノレベルの混合方法については、高次構造化によってナノ空間を創出した天然粘土鉱物に対して、金属ナノ粒子を導入する方法によって実現した。

**内容:** 中間報告までに、金属触媒が導入されたモンモリロナイト粘土材料を合成し、そのキャラクター化を行った。具体的に、Co-Si-Oピラーを導入したモンモリロナイトに、0.1~0.5 wt%のRuイオンを導入し、水素処理を施すことで層間に金属ナノ粒子を形成した。ピラー導入時に、テンプレートとして使用したアルキルアンモニウム分子のアルキル鎖長を炭素数8から12、18と変化させてナノ空間の制御を行った。得られた触媒をそれぞれ、0.1 wt% Ru/pillared (C8) MMT、0.5 wt% Ru/pillared (C12) MMT、0.5 wt% Ru/pillared (C18) MMTと表記する。Fig.1(a-c)にそれぞれの触媒のTEM像を示す。モンモリロナイトの層状構造に帰属される縞状部位と、層間に導入されたと考えられるRuナノ粒子の像が観察された。粒径ヒストグラムを作製したところ、0.1 wt% Ru/pillared (C8) MMTでは平均粒径2.2 nm、0.5 wt% Ru/pillared (C12) MMTでは平均粒径2.3 nm、0.5 wt% Ru/pillared (C18) MMTでは平均粒径2.5 nmとなり、テンプレート分子の大きさに対応して粒径が大きくなった。これは、層間にRuナノ粒子が閉じ込められていることの間接的な証拠である。

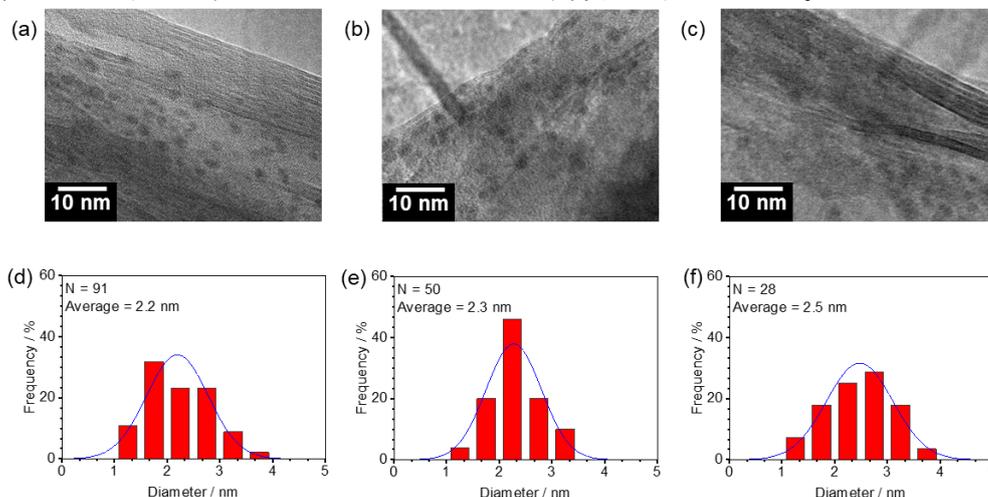


Fig. 1 TEM image of (a) 0.1 wt% Ru/pillared (C8) MMT, (b) 0.5 wt% Ru/pillared (C12) MMT, and (c) 0.5 wt% Ru/pillared (C18) MMT, and (d)(e)(f) histograms of Ru particle size in each, respectively.

(研究経過並びに成果報告)

**結果と考察：** 開発した触媒および、対照サンプルとして準備したRu/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>触媒とRu/MCM-41(メソポーラスシリカ)を用いたCO<sub>2</sub>水素化反応の結果をFig. 2に示す。開発した触媒は、高いCO<sub>2</sub>転化率においても高いCO<sub>2</sub>転換速度およびCH<sub>4</sub>生成速度を示した。一方で、対照サンプルはCO<sub>2</sub>転化率の上昇とともに著しいCO<sub>2</sub>転換速度並びにCH<sub>4</sub>生成速度の低下が見られた。この速度低下の要因が、副生する水分子による反応阻害の影響であることを、水分圧依存測定から明らかにした。今回開発した触媒は、モンモリロナイトの酸点によって水分子が効率的に反応系外に取り出され、水分子による反応阻害を受けにくかったと結論できる。

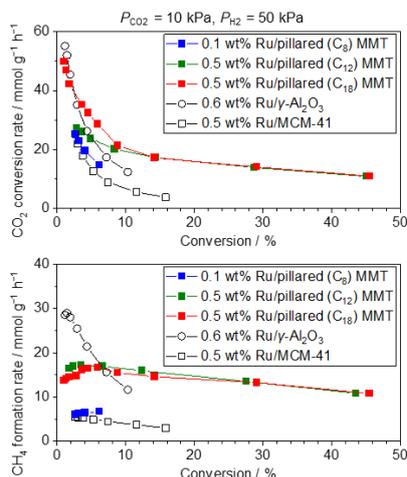


Fig. 2. CO<sub>2</sub> conversion and CH<sub>4</sub> formation rate over various catalysts.

生成物の阻害現象をより深く掘り下げるため、H<sub>2</sub>O分圧を0.5~2kPaの範囲で変化させた速度論解析を行った(Fig. 3)。H<sub>2</sub>Oに対して0.5 wt% Ru/pillared (C<sub>12</sub>) MMTでは-0.03次、0.6wt% Ru/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>では-0.6次であることが観測された。0.6wt% Ru/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>で観測された負のオーダーは、CO<sub>2</sub>水素化反応の副生成物としてH<sub>2</sub>Oが反応阻害剤として働くことを示唆している。MarwoodらによるRu/TiO<sub>2</sub>に関する先行研究では、CO<sub>2</sub>メタン化に対する水の阻害効果が同様に示されている。DRIFTS分析を通して、Marwoodらは、供給中の水分子分圧が増加すると、吸着COとHCOO<sup>-</sup>の濃度が減少することを観察した。彼らは、逆水ガスシフト反応による吸着COの生成を含むメタン化メカニズムを提案し、逆水ガスシフト反応とメタン化反応の両方の生成物であることから、水の抑制効果を説明した。0.5 wt% Ru/pillared (C<sub>12</sub>) MMTと比較して、0.6wt% Ru/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>ではH<sub>2</sub>Oの反応次数がより負であることから、0.5 wt% Ru/pillared (C<sub>12</sub>) MMTでは高転化率域でも十分なCO<sub>2</sub>水素化反応速度を維持できることが説明できる。さらに、H<sub>2</sub>Oが燃焼廃液中に存在することを考慮すると、その阻害効果は、単一の反応器におけるCO<sub>2</sub>回収とメタンへの変換のための二重機能材料の運転に影響を与える可能性がある。H<sub>2</sub>O阻害を緩和するために、pillared (C<sub>12</sub>) MMT担体が候補として考えられる。

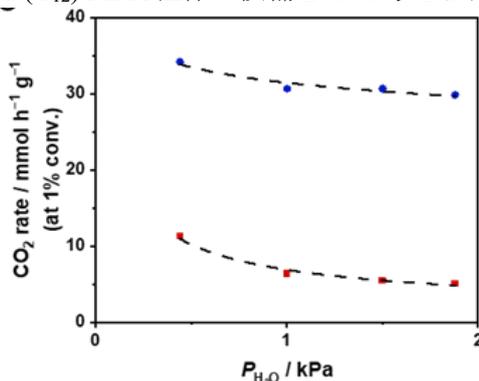


Fig. 3. Water partial pressure dependence of CO<sub>2</sub> hydrogenation rate over 0.5 wt% Ru/pillared (C<sub>12</sub>) MMT(blue) and 0.6wt% Ru/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (red).

## 2. 堅牢な分子認識を実現する有機合成的分子鑄型形成手法の開発

東京大学大学院 工学系研究科 講師 細見 拓郎

本研究では、熱的に堅牢な分子認識材料を構築するアイデアとして、「無機化合物表面上への有機合成的な分子鑄型形成」を提案した。このプロジェクトのゴールは、有機合成的な分子鑄型形成手法を構築することであり、2023年度はその方法論の構築および適用範囲の検証に取り組んだ。

まず、SAM上の官能基に分子鑄型となる分子（ピレン）の表面導入を行った。（12-ヒドロキシドデシル）ホスホン酸（OH-PA）に対して、5~50%の割合でピレン末端を有するホスホン酸を混合して自己組織化単分子膜（SAM）を形成させ、IRおよび蛍光測定を行ったところ、ピレン特有の蛍光発光ならびにダイマー発光が観察された（図1）。これにより、表面での分子凝集状態をピレン発光を用いて追跡可能であることが確かめられた。

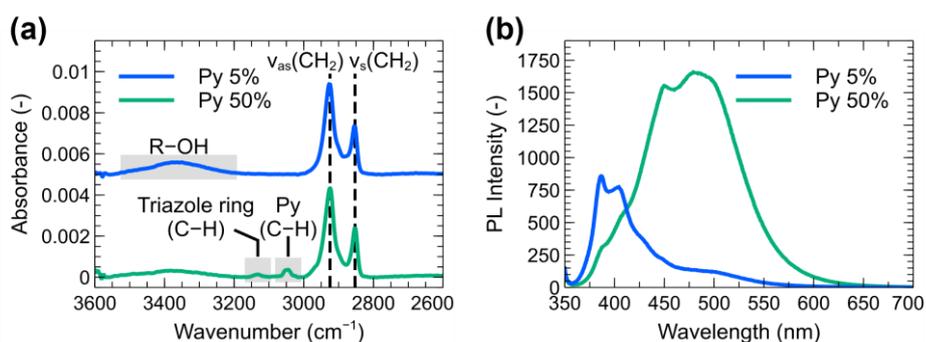


図1. 末端に鑄型分子を導入したALD基盤SAM

次に、この混合SAMに対してAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を原子層堆積（ALD）した（図2）。その結果、ピレン存在下においても水晶振動子マイクロバランスを用いた質量増加追跡からALD特有の階段状のピークが観測され、ALDが行われていることが分かった。また、表面ピレン濃度が増加するにつれて質量増加が線形へと以降する遷移サイクル数が遅くなっていることも観測され、ピレンが疎水性官能基としてALDを阻害していることも確認された。ALD前後の赤外分光スペクトルを比較すると、反応点である水酸基の消失が確認され、かつアルキル骨格はほとんど変化しなかったことから、目的通り分子膜上でのALDが行われたことが確かめられた。

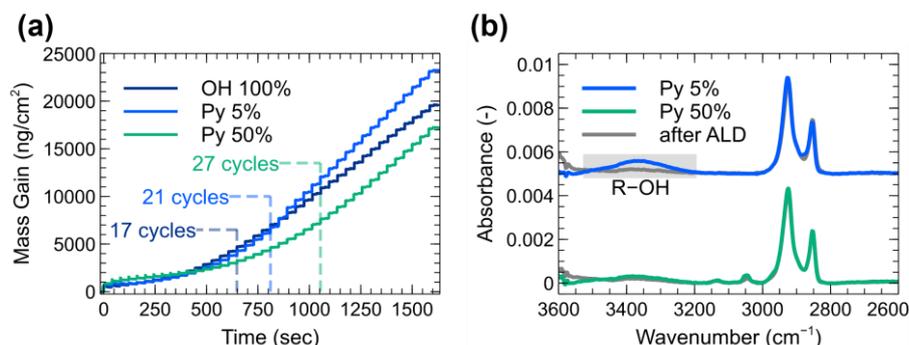


図2. 鑄型分子存在下におけるALD堆積

次に、アルミナの原子層堆積 (ALD) プロセス中におけるピレンの蛍光特性に焦点を当て、ピレン (Py) /水酸基 (OH) 混合自己組織化単分子膜とALDにより堆積されたアルミナ構造との相互作用を調査した (図3)。図3 a)にアルミナのALDを20、40、80サイクル後に測定されたPy 5%混合SAMの蛍光スペクトル (PL) が示す。ALDなしのPy 5%のPLスペクトル (0サイクル) も比較のために示した。ピレンのモノマー発光に支配される蛍光スペクトルの形状は、アルミナのALDを80サイクル経過しても一定であり、ほとんど発光波長のシフトは見られなかった。これは、共有結合によるピレンテンプレート初期の孤立状態が保たれたことが示している。興味深いことに、アルミナALD後にピレンの蛍光強度増加が確認された。これは、過酷なALDプロセス中で有機分子の分解が生じるという予想とは逆の挙動である。分子間の独立性により蛍光強度が増強される例は過去に知られているものの、今回の系で観察された蛍光強度の増強は、ALDプロセス前後で鑄型分子ピレンの孤立状態が変わらないため、異なるメカニズムに起因していると考えられる。そこで、蛍光寿命および量子収率を測定し、強度の異常増強の原理を調査した。蛍光平均寿命 ( $\tau$ ) および量子収率 ( $\Phi$ ) を図3 b)に示した。両者ともに蛍光強度増大と相関しており、したがって、鑄型分子を囲むマイクロ環境の変化が示された。ピレンをアルミナALD層で囲むことにより、励起状態における分子内構造に伴う無輻射失活が抑制されたことが原因と考えられる。この事実は、分子運動に影響されるレベルで鑄型分子周辺に近接する形で金属酸化物層を堆積されたことを明らかとしたものであり、本手法が分子による鑄型形成に適していることを実証するものである。

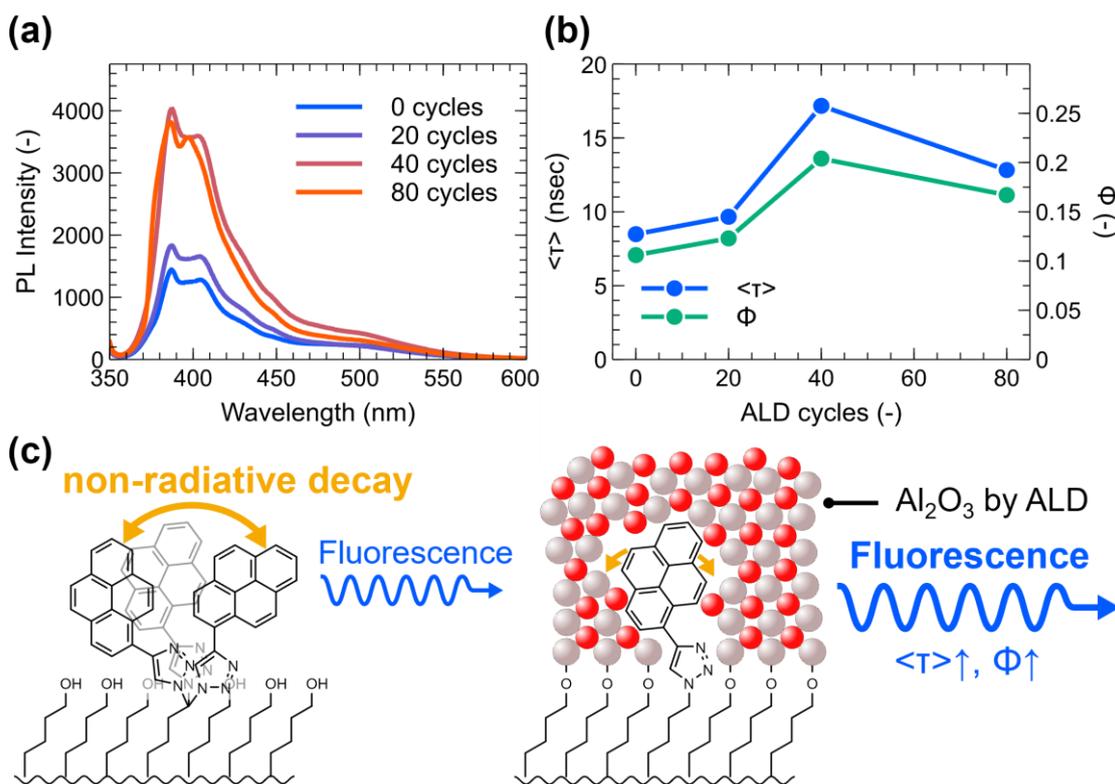


図3. 鑄型分子周辺への金属酸化物堆積が蛍光発光挙動に与える影響

さらに、TiO<sub>2</sub>, SnO<sub>2</sub>, およびHfO<sub>2</sub>を用いた場合でも同様の検討を行い、たしかにピレン近傍に金属酸化物堆積を行うことに成功した。Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>以外の金属酸化物種ではエネルギー移動に伴う蛍光失活が観測されており、上述のメカニズムを裏付けている。以上のように、「無機化合物表面上への有機合成的な分子鑄型形成」において提案手法が優れた効果を挙げることを実証に成功した。

### 3. 効率的な多置換ベンゼンの合成を目指した複核金属錯体によるフェノール類縁体の触媒的変換技術の開発

京都大学 工学研究科 助教 仙波 一彦

#### (研究結果報告)

##### 研究目的

多置換ベンゼンは、医薬品および機能性有機材料に広く用いられる有用な化合物群である。そのため、多置換ベンゼンの効率的な合成法の開発は重要であり、これまでに様々な反応剤が開発されてきた。その中で、安価で高活性なアリールグリニャール反応剤は、それをを用いることで様々な官能基をベンゼン環に導入できるため、工業スケールから実験室スケールまで広く用いられている。本研究では、アリールグリニャール反応剤の新たな調製法の開発を目的とした。具体的には、通常利用することができないフェノール誘導体からアリールグリニャール反応剤を合成する方法の開発を行った。フェノール類は、バイオマスにも広く見られる入手容易な化合物であるため、本手法は新たな多置換ベンゼンの合成ルートの開発に繋がると期待される。

##### 研究成果

4-*n*-ブチルフェノール誘導体をモデル基質として、炭素-酸素結合のマグネシウム化反応の反応条件の探索を行った。その結果、アルミニウム-ロジウム複核錯体を触媒とし、カルバミン酸エステルを用いた場合に良好な収率でアリールグリニャール反応剤が得られた(図1)。アリールグリニャール反応剤の収率は、炭酸ナトリウムメチルとの反応により生成する安息香酸誘導体の収率から推測した。本反応におけるアルミニウム-ロジウム複核錯体の効果は顕著であり、一般に汎用されるロジウム触媒系では反応が進行しなかった。本反応において脱離基の選択は重要であり、クロスカップリング反応でよく用いられる

-

トルエンスルホン酸エステルでは生成物が全く得られなかった。

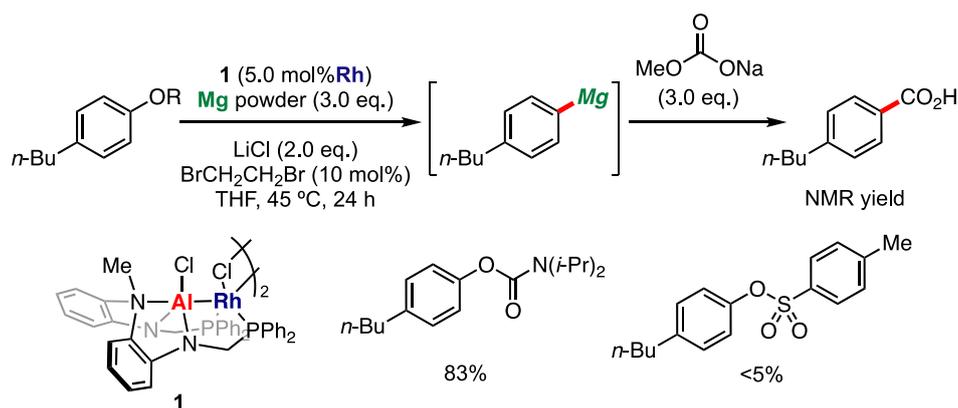


図1

得られた反応条件をいろいろな置換基を有するカルバミン酸エステルに適用した(図2)。電子供与性の置換基を有するフェノール誘導体からは良好な収率で生成物が得られた。また、スチレン誘導体を用いた場合には、アルケニル部位を損なうことなく、中程度の収率で生成物が得られた。アルケニル基はさらに変換することができるため、本生成物は複雑な多置換ベンゼンの合成中間体として有用である。本反応で生成するアリールグリニャール反応剤は、種々の求電子剤と反応し、官能基を導入することが可能であった。例えば、ホウ素求電子剤 (MeOB(pin)) やケイ素求電子剤

## (研究経過並びに成果報告)

(ClSiMe<sub>2</sub>Ph) と反応させると、対応するアリールホウ素およびケイ素化合物がそれぞれ良好な収率で得られた (図2)。アリールホウ素およびケイ素化合物は、その炭素-金属結合を炭素-炭素、炭素-酸素、炭素-窒素結合などへと温和な条件下で変換する手法が確立されている。そのため、本手法によって得られる生成物は、様々な多置換ベンゼンを合成するための有用な合成中間体となると考えられる。

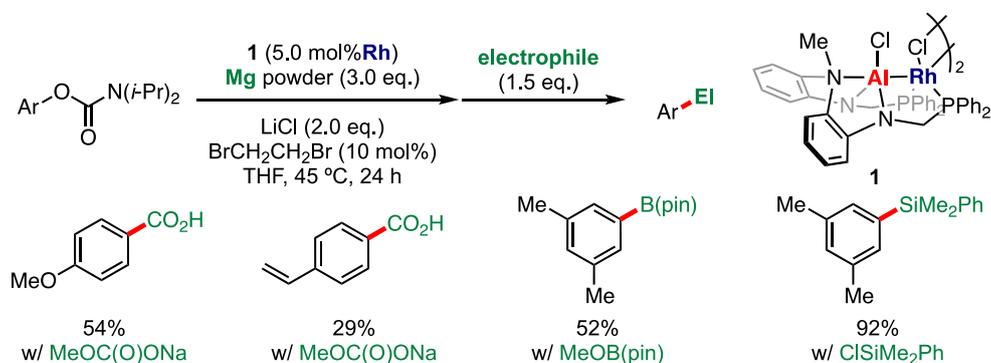


図2

## まとめ

本研究では、フェノール誘導体の炭素-酸素結合をマグネシウム化し、アリールグリニャール反応剤を調製する方法の開発に成功した。本手法の実現には、アルミニウム-ロジウム結合を有する複核金属錯体を触媒として利用することが鍵であった。本知見は、我々の生活を支える物質変換に重要な不活性σ結合の変換反応において、複核金属錯体の有効性を示した点で学術的価値が高い。また本手法により、アリールグリニャール反応剤の原料として一般的なハロゲン化アリールではなく、フェノール誘導体を原料として用いることが可能となった。本手法により調製したアリールグリニャール反応剤は、様々な求電子剤と反応し、官能基導入が可能であることも明らかになった。フェノール誘導体は、バイオマスにも広く見られる入手容易な化合物であり、芳香族求電子置換反応やオルトメタル化反応などにより、芳香環上の炭素-水素結合を変換する手法が確立されている。そのため、本手法と既存法を組み合わせることで、入手容易な出発原料から様々な多置換ベンゼンを合成できるようになると期待できる。

## 成果発表

[1] ロジウム-アルミニウム複核金属錯体を触媒とするフェノール誘導体のマグネシウム化反応  
藤井郁哉, 城戸春香, 仙波一彦, 中尾佳亮  
第68回有機金属化学討論会, PA-10, オンライン, 2022/9/6.

[2] ロジウム-アルミニウム複核金属錯体を触媒とするC-FおよびC-O結合のマグネシウム化反応  
藤井郁哉, 城戸春香, 肥後諒大, 仙波一彦, 中尾佳亮  
日本化学会第103春季年会, K404-1am-07, 東京理科大学, 2023/3/22.

(研究結果報告)

鋼部材に生じる疲労き裂は、維持管理上無視することができない重大な損傷であるが、初期の疲労き裂は非常に小さいうえ目視点検が困難な箇所に発生することも多く、非破壊検査が必要とされている。本研究では非破壊検査手法としてサーモカメラを用いた応力測定法に着目する。既往の研究では、熱弾性効果とサーモカメラを応用した応力測定法の、疲労き裂の検知や補修効果の評価への適用性が示されている。しかし、同手法を用いて主応力方向を推定する方法については確立されていない。そこで本研究では、サーモカメラを用いた応力測定で使用できる、新たな三軸の熱弾性ゲージを開発し、一軸引張実験を通して適用性を検討した。以下に成果を報告する。

1. 鋼材から放射される赤外線の影響の遮断方法の検討

本研究では新たな熱弾性ゲージを開発し、熱弾性ゲージの温度変動量の大小から主応力方向を推定する。熱弾性ゲージの温度変動の計測にはサーモカメラを使用するが、このとき鋼材から放出される赤外線を遮断する必要がある。そこで、2022年度は繰り返し载荷試験を実施し、2種類のフィルムによる赤外線遮断効果を検討した(図1)。検討対象はIRカットフィルターと遮光フィルムである。両者を鋼板試験体に分子勾配膜両面テープで接着し、黒色マット塗装を施した。载荷はサーボパルサ(島津製作所, 最大荷重50kN)を用い、応力全振幅が100MPaとなるように3Hzの繰り返し载荷を行った。

図2にロックイン解析の結果得られた温度変動分布を示す。縦横軸はpixel番号である。鋼材表面は理論値0.10Kの温度変動に対して、0.06~0.08K程度の温度変動を記録した。これは熱弾性効果の理論値以下だが、塗膜によって熱の放射が防がれた可能性がある。また、IRカットフィルターは赤外線の遮断効果が極めて高く、熱弾性効果による赤外線放射をほぼ完全に遮断していた。遮光フィルムも同様の効果であるが、赤外線の遮断効果は比較的低い。以上のことから、熱弾性ゲージの基盤にはIRカットフィルターを設けることが有効であると考えられる。

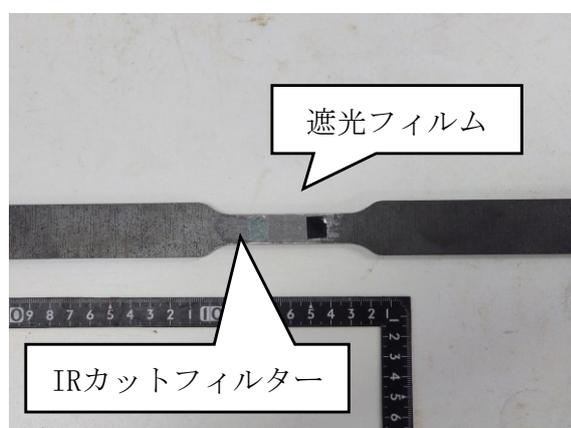


図1 赤外線遮断効果の検証に使用した試験体

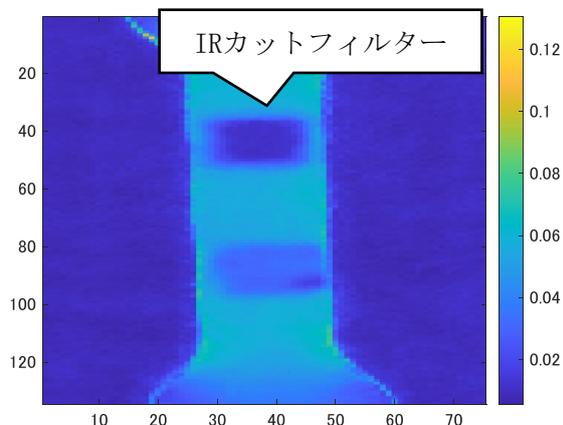


図2 鋼材表面の3Hz温度変動コンター図

(研究経過並びに成果報告)

## 2. 三軸熱弾性ゲージを用いた主応力分析

2023年度は開発した熱弾性ゲージを用いて主応力の分析を行った。試験体を図3に示す。本実験では、熱弾性ゲージを鋼板に貼付した試験体を使用し、一定周波数の繰り返し载荷を与えた際の温度変動を分析した。熱弾性ゲージの測定部は $10 \times 2 \times 0.2$  mmの銀板であり、0度、45度、90度の3方向に配置されている。熱弾性ゲージはシアノアクリレート系接着剤を用いて鋼試験体に接着した。熱弾性ゲージは2枚接着したが、母材の温度変動の影響を取り除くため、片方には熱弾性ゲージと鋼板の間にIRカットフィルター (DAIXO MEG, CO. LTD.) を設置した。熱弾性ゲージの貼付後に試験体全体に黒色マット塗装を施した。载荷状況を図4に示す。载荷はMTS製载荷試験機を用い、応力全振幅が113MPaとなるよう3Hzの繰り返し载荷を約30秒間行った。表面温度の計測にはサーモカメラ (FLIR E85) を用い、30 fpsで動画を撮影した。計測は同一条件下で3ケース実施した。

IRフィルター上の熱弾性ゲージの3Hz温度変動を図5に示す。図5の測定部 (0度、45度、90度) の温度変動を比べると、载荷方向に沿った0度の温度変動が他方向と比べて大きいことが見て取れる。このことから、一軸载荷の場合、熱弾性ゲージ測定部の温度変動を比較することで主応力方向を推定できる可能性が示唆された。測定部の軸方向と温度変動の大きさについて考察するため、各測定部の中心付近の温度変動を抽出し図6にプロットした。図6の縦軸は0度方向のゲージの温度変動の理論値に対する実温度変動を示し、横軸は測定部の軸方向と载荷方向のなす角  $\theta$  を表す。なお、図6の理論値は熱弾性効果の式とモールのひずみ円から算出した値に一律の補正係数0.36を乗じて求めた。図6から、全ての測定部で得られた温度変動は理論値と比べて半分以下であるが、0度方向の温度変動は45度や90度と比べて大きいことがわかる。また、測定部方向と温度変動の関係は理論式で概ね表現できることが示された。今後はゲージの改良を重ね熱弾性効果による主応力方向の推定方法について研究を続ける計画である。

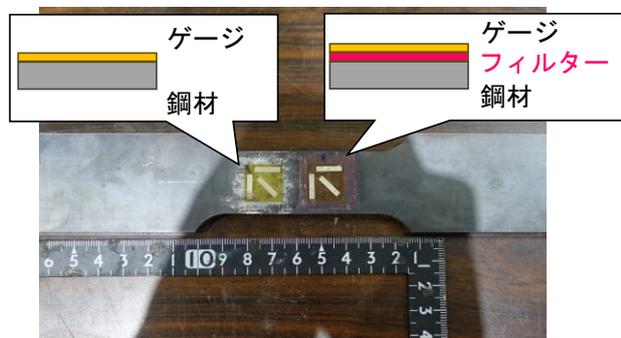


図3 熱弾性ゲージ試験体



図4 実験状況

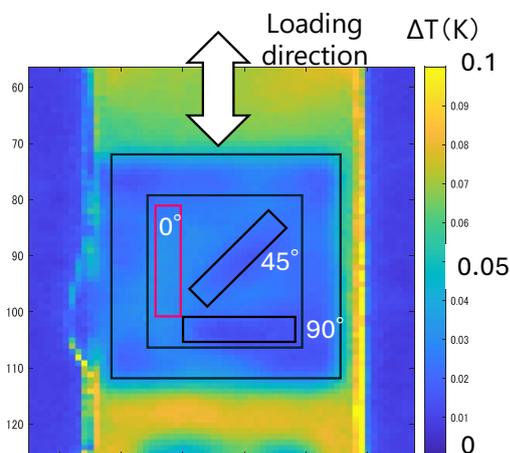


図5 IRフィルター上の3Hz温度変動コンター図

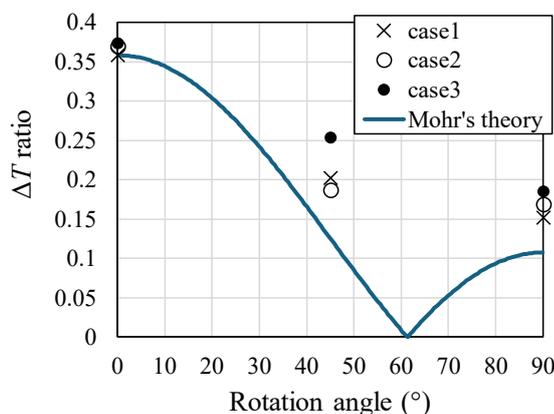


図6 ゲージ上の温度変動と理論値の比較

## 5. ゲノム編集を駆使した有機酸輸送系の改変によるクエン酸超生産菌の創製

早稲田大学 理工学術院 招聘研究員 吉岡 育哲

### (研究結果報告)

クエン酸は食品や飲料の酸味料、pH 調整剤として広く利用されている。その工業的生産には *Aspergillus* 属糸状菌 (カビ) による発酵法が用いられ、世界で年間200万トン以上生産されるが、その需要は増加傾向にある。本研究では、クエン酸高生産糸状菌 *Aspergillus tubingensis* WU-2223L を供試菌として、「ミトコンドリア」および「サイトゾル」からのクエン酸の排出 (輸送) に着目したクエン酸生産菌の改良、すなわち超生産菌の創製を目的とした研究を実施した。本研究で想定したクエン酸の生合成経路とその排出機構を図1に示す。なお、ミトコンドリアの有機酸輸送体はミトコンドリア内のクエン酸とサイトゾル内の有機酸の対向輸送を行うが、詳細な機構の描写は省略した。

本研究では、まず、細胞膜に局在するクエン酸排出タンパク CEXA をコードする遺伝子 *cexA* ノックアウト株を作製し、クエン酸が排出されなくなることを確認した。つぎに、当該 *cexA* ノックアウト株を宿主にして、*cexA* を恒常的なプロモーター *Ptef1* で高発現させた LhC-1株を作製し、そのクエン酸生産量を検証した。120 g/Lのグルコースを炭素源に発酵促進剤として2% (v/v) のメタノールを加えた培地での発酵試験では、12日間の培養で野生株 WU-2223L株が65.5 g/L、LhC-1株が66.7 g/L のクエン酸を生産した。さらに、LhC-1株はメタノール無添加でもクエン酸を高生産すること (68.3 g/L) を明らかにした (図2)。すなわち、*cexA* の高発現によってクエン酸生産量の増大に成功した。

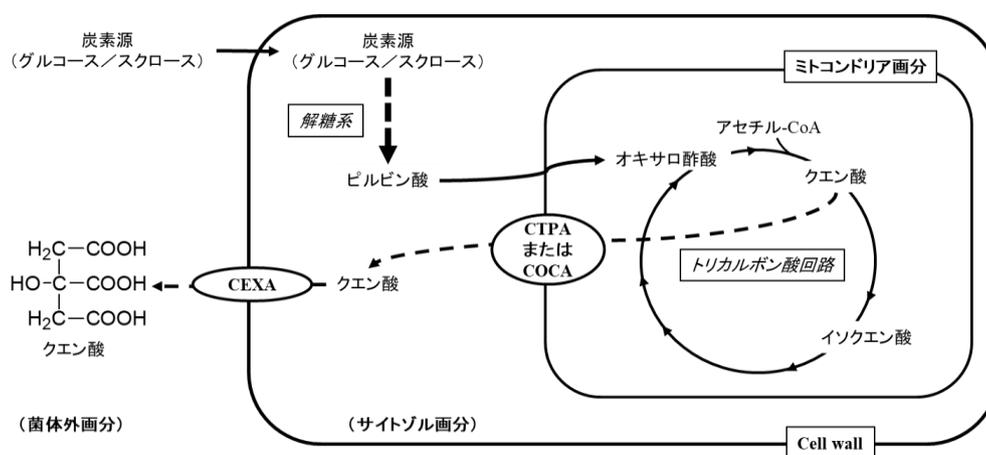


図1. クエン酸生産糸状菌における代謝と輸送体の寄与。点線は有機酸の輸送を表す。

上述の成果を基盤として、バイオマスから効率的にクエン酸を生産する菌の育種について検討した。発酵原料に用いられるバイオマスの多くはグルコース (またはそれから成る多糖)、スクロースを主要な炭素源とする。前述のように、WU-2223L株はグルコースを炭素源とした培地に発酵促進剤としてメタノールを添加することでクエン酸を高生産する。一方、スクロースを炭素源とした場合はメタノールの添加なしに高生産する。そこで、種々のバイオマスから安定にクエン酸を高生産するためには、これらの糖を炭素源とした発酵における挙動 (特性) の違いを明らかにする必要があると考えた。具体的には「*cexA* の転写量は糖の種類によって大きく変化し、とくにスクロースを使用した場合に増大する」との作業仮説を立て、その検証のため *cexA* の転写解析を実施した。グリセロールにて十分に増殖させた WU-2223L 株の菌糸をグルコース、スクロースをそれぞれ唯一の

### (研究経過並びに成果報告)

炭素源とする培地に移して培養し、その遺伝子の転写量をRT-qPCR法を用いて決定した。予想通り、スクロースで培養した場合の*cexA*の転写量は、グルコースのそれと比較して10倍以上増大していた。そこで、クエン酸生産試験を実施したところ、WU-2223L株では炭素源としてスクロースを使用した場合にグルコースを使用した場合に比較して2.9倍のクエン酸生産量を示した(図3)。一方、*cexA*高発現株LhC-1株を使用した場合、クエン酸生産量は同等(変化なし)であった(図3)。すなわち、スクロースを使用した場合の*cexA*の転写量の増大にตอบสนองして、クエン酸生産量が増大していることを明らかにした。さらに特筆すべきは、スクロースを炭素源とした際のLhC-1株のクエン酸生産量はWU-2223L株よりも高く、*cexA*の高発現による「炭素源に依存しないクエン酸の高生産」、すなわち「バイオマスから効率的にクエン酸を生産する菌の育種」に成功した。

最後に、クエン酸生産量のさらなる増大に挑戦するため、「CTPAまたはCOCAによるクエン酸のミトコンドリアからサイトゾルへの排出」と「CEXAによるクエン酸のサイトゾルから菌体外への排出」を併せて強化、協調させることを計画した。*cexA*と*ctpA*の二重高発現株は*cexA*単体の高発現株と比較して顕著な生産量の増大は認められなかったが、*cexA*と*cocA*の二重高発現株はクエン酸生産量が10%以上増大した。以上の成果は、「COCAがクエン酸高生産に寄与する」という既報の研究成果を強く支持した(K. Kirimura et al., Biosci. Biotechnol. Biochem., vol. 83, 1538-1546 (2019))。

総括として、本研究ではクエン酸高生産糸状菌*A. tubingensis* WU-2223Lにおいて、既知の高生産条件(メタノールの添加やスクロースの利用)ではクエン酸排出タンパク遺伝子*cexA*が強く誘導されている(転写量が増大している)ことを明らかにした。また、*cexA*の恒常的高発現によりクエン酸生産量が増大した生産菌LhC-1株の創製に成功した。今後は、有機酸輸送機構の理解をさらに深め、新規かつ意義深い知見を基盤として、LhC-1株を凌駕するクエン酸超高生産菌の創製に取り組む予定である。なお、本研究の成果の一部は現在論文として投稿中である。

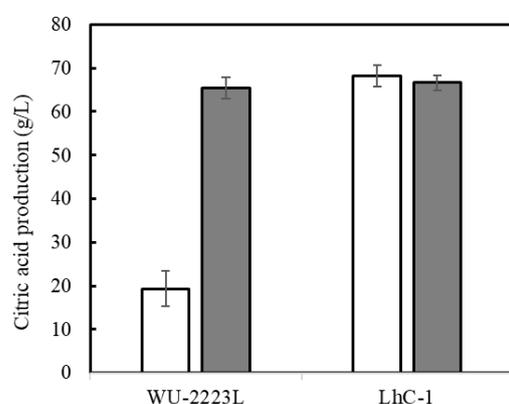


図 2. *cexA* 高発現株のクエン酸生産におけるメタノール効果. 白いバーはメタノール無添加、黒いバーはメタノール添加時の生産量を表す。

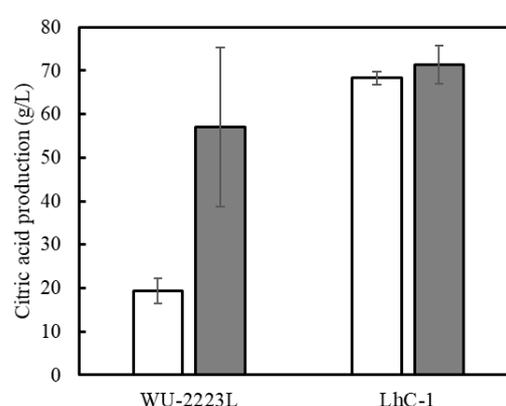


図 3. *cexA* 高発現株のクエン酸生産における炭素源の影響. 白いバーはグルコース、黒いバーはスクロースを炭素源としたときの生産量を表す。

### (研究成果：学会発表)

吉岡 育哲, 岡村 隼杜, 桐村光太郎, 糸状菌*Aspergillus tubingensis* WU-2223Lにおけるクエン酸排出タンパク遺伝子*cexA*の高発現によるメタノール効果非依存性のクエン酸高生産, 第74回(2022年)日本生物工学会大会(大阪, オンライン開催), 講演要旨集 3C03-03, p.163, 2022年10月。

(研究結果報告)

機動性に富むことから、高所の撮影や物品の運搬での利用を中心に、小型無人航空機（ドローン）の需要が高まっているが、飛行時に生じる騒音が問題となっている。また、プロペラなどの駆動部を高速に動かし続ける必要があることから、安全性と堅牢性の不足が指摘されている。よって、本研究の目的は、将来的に航空機の姿勢安定化制御に応用することを前提に、イオン風を用いた静音飛行における発生力の過渡特性を明らかにすることである。本研究では、イオン風を用いた推進機構の動特性を考慮した、水平面方向の姿勢制御に取り組んだ。制御対象の電極構成を図1に示す。本制御対象は、水平面内での回転運動を行うものであり、対抗する向きに2つの電極対が設置されている。また、回転角度はエンコーダによって測定可能である。

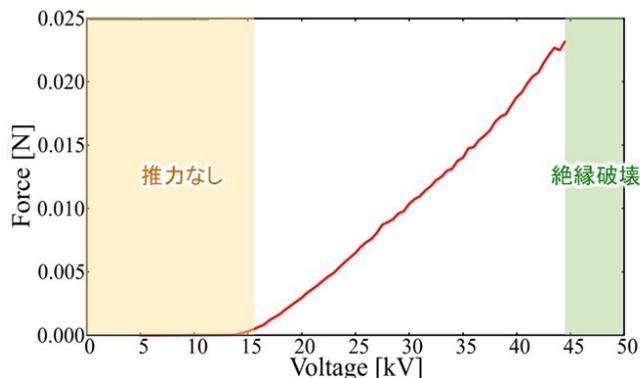
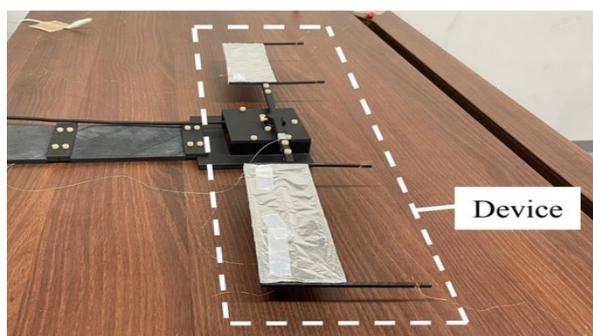


図1 シミュレーションで想定した制御対象

図2 イオン風が生み出す推力の特性

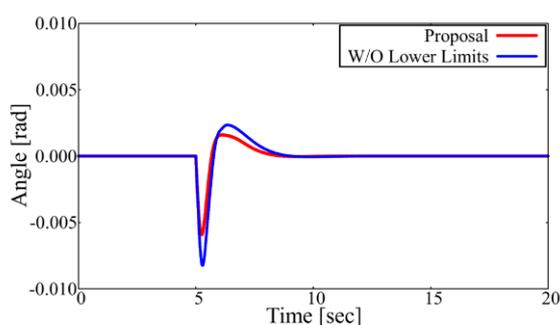
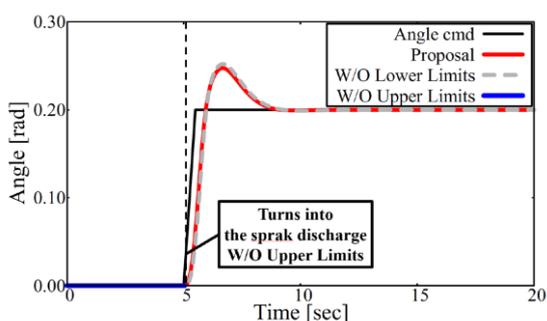


図3 印加電圧に上限値を設定しない場合との比較

図4 印加電圧に下限値を設定しない場合との比較

本研究で用いるイオン風は非対称電極対に電圧を印加する際に生じるコロナ放電によって得られる。しかしながら、印加電圧が一定値以下の場合、コロナ放電は発生せず、推力も生じない。一方、印加電圧が一定値以上の場合、電極間で全路破壊が生じ、短絡によって系が破綻することとなる。従って、姿勢制御のためのフィードバック制御系に加え、印加電圧に上限と下限とを設ける必要がある。イオン風が生み出す推力の特性を図2に示す。

(研究経過並びに成果報告)

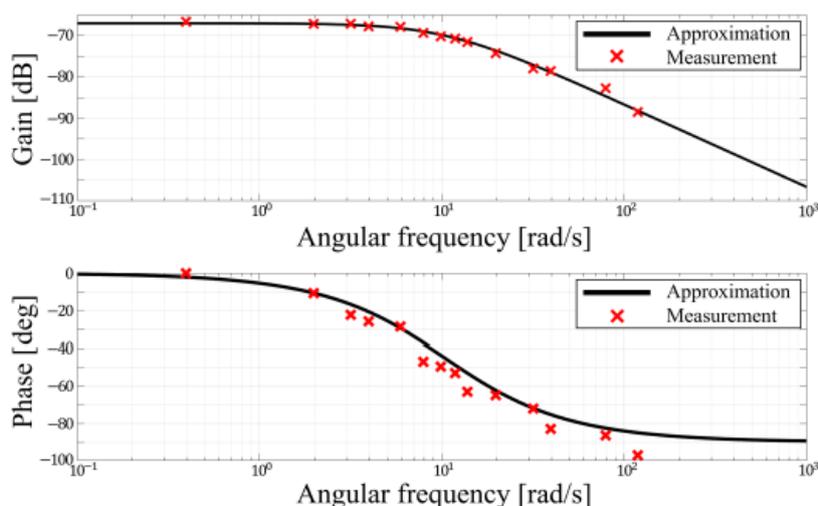


図5 イオン風によって生じる推力の周波数特性(入力:印加電圧、出力:推力)

本研究ではこれらの条件を満たす制御系を提案し、その有用性をシミュレーションおよび実験によって確認した。印加電圧に上限値を設けない場合との比較結果を図3に示し、印加電圧に下限値を設けない場合との比較結果を図4に示す。これらの結果より、上限値を設けない場合には全路破壊によって系が破綻してしまうこと、下限値を設けない場合にはコロナ放電が停止し過渡特性が劣化すること、提案手法によってこれらの問題が解決されることを確認した。また、構築した高電圧電源装置システムを使用し、イオン風によって生じる推力の周波数特性(図5)を明らかにした。この結果から、系の逆モデルを導出し、外乱オブザーバを構築することで、高精度な指令値追従特性と外乱抑圧特性を実現することに成功した。

#### <研究発表成果>

- [1] Shigeki Yashita, Hiroaki Katagiri, Tomoya Kitamura, and Takahiro Nozaki, "Modeling of Device Using Corona Discharge Considering Voltage Range Limitation and Delay," in *Proc. the 18th biennial international conference on Advanced Motion Control*, Kyoto, Japan, 2024.
- [2] Shigeki Yashita, Hiroaki Katagiri, Tomoya Kitamura, and Takahiro Nozaki, "Modeling of Device Using Corona Discharge Considering Voltage Range Limitation and Delay," *The 18th biennial international conference on Advanced Motion Control*, Kyoto, Japan, 2024.
- [3] Shigeki Yashita, Hiroaki Katagiri, Tomoya Kitamura, Kazuki Yane, Yuki Inada, Yutaka Kazoe, and Takahiro Nozaki, "Attitude Control Method Based on Differential Mode Voltage Considering Start Voltage of Corona Discharge," in *Proc. of the 49th Annual Conference of the IEEE Industrial Electronics Society* (6 pages), Singapore, Oct. 2023.
- [4] Hiroaki Katagiri, Shigeki Yashita, Tomoya Kitamura, Yuki Inada, Yutaka Kazoe, and Takahiro Nozaki, "Effect of Electrode's Shape and Application Voltage on Thrust Generated by Corona Discharge," in *Proc. of the 49th Annual Conference of the IEEE Industrial Electronics Society* (6 pages), Singapore, Oct. 2023.
- [5] Hiroaki Katagiri, Shigeki Yashita, and Takahiro Nozaki, "Effect of Length and Number of Electrodes on Thrust Generated by Corona Discharge," in *Proc. of Joint Conference on 14th France-Japan and 12th Europe-Asia Congress on Mechatronics and the 9th Asia International Symposium on Mechatronics* (6 pages), Kanagawa, Japan, Sep. 2023.
- [6] Tomoya Kitamura, Hiroaki Katagiri, Shigeki Yashita, Yuki Saito, Hiroshi Asai, Kouhei Ohnishi, and Takahiro Nozaki, "Verification of Anode Position and Generated Force Vector of EHD at Wire-cylinder Electrode," in *Proc. of the 32nd International Symposium on Industrial Electronics* (6 pages), Helsinki-Espoo, Finland, Jun. 2023.
- [7] Shigeki Yashita, Hiroaki Katagiri, Tomoya Kitamura, Yuki Inada, Yutaka Kazoe, and Takahiro Nozaki, "Angle Control Using Corona Discharge Considering Voltage Range Limitations," in *Proc. of the 32nd International Symposium on Industrial Electronics* (6 pages), Helsinki-Espoo, Finland, Jun. 2023.

(研究結果報告)

立ち上がり動作は日常生活において頻繁に繰り返される動作でありながら、身体重心制御と筋出力の双方を調整することが要求されるため、運動器疾患患者や高齢者にとっては難易度が高い動作である。しかし、立ち上がり動作が想定される椅子やベッドは使用時の快適性やデザイン性に焦点をあてたものが一般的であり、立ち上がり動作に配慮した座位環境の整備が求められる。既往研究では、座面高さや角度、クッションの有無などが座面環境パラメータとして扱われている。このうち、クッションに関連するパラメータは、家具そのものの設計変更よりも容易であるため、個人への適応性も高く研究の意義がある。一方で、クッションに関連する研究においては、その有無や同一の材の厚みの違いによる影響の調査にとどまっており、座面硬さや反発弾性などの諸パラメータに関する検討はなされていない。そこで本研究では座面環境パラメータとして既往研究が僅少である座面硬さを選定し、座面硬さの違いが立ち上がり動作および座位時の快適性と圧力分散性に与える影響の解明を目的とした。

座面硬さを調整するため、クッション材として一般的なウレタンフォームを3種選定し（やわらかい順に、硬さ75.9 N, 180 N, 336 N）、クッション無しの条件を加えた計4種の座面条件を用いて立ち上がり動作計測実験を行った。動作評価のため、3次元動作解析装置（VICON, VICON Motion System, UK）と床反力計（フォースプレートTF-3040, 株式会社テック技販, Japan）2台を用い、健常成人15名（ $22.5 \pm 0.88$  歳）の立ち上がり動作を各座面条件で計測した。また、各条件下における座位での快適性評価のため、シート型圧力センサ（SRソフトビジョン数値版, 住友理工株式会社, Japan）を用いて座面の圧力分布を計測した。加えて、底つきによる不快感の有無についても被験者へのヒアリングを行った。

結果として、異なる座面硬さ間で、立ち上がり動作中の臀部離床までの重心移動変位、足関節背屈モーメント最大値、および下肢関節への負荷に有意差が見られた。臀部離床までの重心移動変位は座面がやわらかいほど大きいという結果が得られた。座面がやわらかい場合、体幹前傾の開始とともに大腿部が沈み込むことで股関節と膝関節が伸展するため、股関節を屈曲させる体幹前傾運動と膝関節を屈曲させる足関節背屈運動が生じやすくなる。その結果、やわらかい座面では臀部離床までに体幹前傾角度と足関節背屈角度が大きくなり、重心がより前方に移動したと考えられる。これは足関節背屈モーメント最大値がやわらかい座面で有意に大きくなったこととも矛盾しない。重心が前方に移動するほど重心と支持基底面の距離は短くなるため、臀部離床時の姿勢は安定する。したがって、やわらかい座面のほうが安定した臀部離床を行える可能性がある。一方、やわらかい座面では重心の最大前方速度が有意に大きかったことから、推進力の制御に必要な力が大きくなることが予想される。推進力の制御が困難な対象においては、転倒リスクに配慮して手すりや掴まれるものを設置するなど、より安全な環境構築が必要である。加えて、下肢の抗重力伸展活動の程度を反映する床反力最大値が中程度の条件で最も小さくなった。このことから、中程度の硬さ条件で立ち上がり動作時の下肢関節の伸展活動の負担が最も軽減される傾向にあることが分かった。

座位での快適性評価に関しては、やわらかい座面では底つきを感じた被験者が10名にのぼったが、中程度および硬い座面では申告者はいなかった。最大圧力はやわらかいものが他と比較して有意に大きく、接触面積は硬いものが他と比較して有意に小さかった。座面の最大圧力が大きいほど臀部の不快感が大きいとされる。また、主観的な不快感以外にも、局所的に圧力がかかった状態での長時間の座位姿勢は血流の悪化に繋がるだけでなく、褥瘡リスクにもつながることが懸念される。先述の立ち上がり動作での考察と快適性及び圧力分散性の評価結果を踏まえると、最も身体への負荷が軽減されるのは中程度の硬さの座面であると結論付けることができる。

#### 参考文献

- 1) 浅井葉子ら, 椅子からの立ち上がり動作における体幹前傾角度と下肢関節モーメントとの関係, 日本保健科学学会誌, vol. 8(1),2005, pp 51-58.

### (研究経過並びに成果報告)

#### 【研究経過報告】

1年目には健常者および脳卒中片麻痺患者を対象とした評価実験を行った。コロナ渦による病院への立ち入り制限のため患者を対象とした実験が困難であったこと、また反発弾性の統一が不十分であった可能性が指摘されたことを踏まえ、2年目には対象者を健常者に絞り、またウレタン材の物性を計測したうえで厳密なパラメタの統一を実現し、実験を行った。

今後の展望としては、今回対象とした硬さに加えて反発弾性による立ち上がり動作への影響を明らかにすることや、上肢作業への影響を明らかにすることが挙げられる。また、パイロットスタディにとどまった研究については、被験者を増やして傾向を確認し、成果としてまとめることを計画している。

#### 【成果報告】

##### 1. 若齢健常成人を対象とした立ち上がり動作における座面硬さの影響

前節で報告した研究内容である。本成果は国際会議にて発表が決定している<sup>[1]</sup>ほか、国際ジャーナルに投稿中である。

[1] Yusuke Onoda, Ami Ogawa, How do different physical properties of the seat material affect Sit-to-Stand motion?, 15th International Conference on Applied Human Factors and Ergonomics (AHFE 2024) and the Affiliated Conferences, Université Côte d'Azur, Nice, France, 2024.07.24 口頭発表予定。

##### 2. 脳卒中片麻痺患者と若齢健常成人における立ち上がり動作の比較

脳卒中片麻痺患者を対象に同様の実験を実施したところ、健常者との間で有意差が見られた指標に股関節モーメント平均値、臀部離床時股関節モーメントが挙げられ、いずれも脳卒中片麻痺患者の方が小さい値をとった。また、時系列データ解析の結果、股関節パワーとCOM上下方向変位に波形の類似度の差が見られた。脳卒中片麻痺患者は健常者よりも股関節伸展筋群の伸展と収縮による反動および体幹の大きな前傾による重心移動の勢いを利用して臀部離床をする傾向があることが示唆された。この戦略により股関節伸展筋群の負担を抑えていると考えられる。

##### 3. 膝疼痛のある成人を対象とした立ち上がり動作における座面硬さの影響

日常生活において膝疼痛のある成人を対象として同様の実験を実施した。計測時間および身体負荷の制約ため、クッションは1種類のみを使用したため、クッションの有無による結果の考察にとどまった。膝疼痛のある成人はクッションのある座面で体幹を大きく前傾する傾向が見られた。このことから、前傾時に大腿部が沈み込む硬さをもつ座面が、膝疼痛のある成人の立ち上がり動作の補助に有効であることが示唆された。

## 第66回贈呈分（2023年度）

### 8. 高密度な分子間相互作用を鍵とする高屈折・低誘電アモルファスポリマー

早稲田大学 先進理工学研究科 応用化学専攻 博士後期課3年 渡辺 清瑚

#### (研究結果報告)

##### 研究の背景と目的

高屈折率ポリマーは、発光デバイス (有機発光ダイオード: OLED等) の高効率化・軽量化を実現する材料として、近年注目されている。一般的に、ポリマーの屈折率を増加させるためには分極率の高い原子団 (硫黄・芳香環など) を繰り返し単位中に組み込む設計が一般的であるが、分極率の過度な増加は透明性の低下に繋がるため、ポリマーの着色を伴わずに向上可能な屈折率には上限値 (< 1.8) が示唆されていた。本研究では、代表者らが従前に見出した超高屈折率ポリマー: ヒドロキシ置換ポリ(フェニレンスルフィド)(OHPPS)(可視光透明性・超高屈折率 ~1.8を両立可能) を起点に、ポリマー鎖間に働く分子間相互作用と、ポリマーの繰り返し構造の分極率の両者を精密に制御することで、更なる高屈折率・低誘電損失を示す新たな分子構造を解明することを目的とした。併せて、低誘電率と低誘電正接を併せ持つポリ(フェニレンスルフィド)(PPS) 誘導体も複数明らかにした。

##### 研究成果

#### 1. 硫黄含量の高いPPS誘導体の側鎖変換による光学特性制御

代表者らが従来報告したメチルチオ置換PPS (SMePPS) (屈折率 $n_D = 1.81$ ) を“側鎖反応性高分子”と捉え、側鎖選択的な酸化によるスルホキシド化、脱保護によるチオール化を経ると、光学特性 (屈折率・アッベ数・透明性) を系統的に制御できることを見出した (図1)。側鎖メチルチオ基を酸化 (図1左) すると屈折率は低減し、透明性は増大するが、酸化度を概ね半分に調節すると超高屈折率 ( $n_D = 1.80$ )・高アッベ数 ( $\nu_D = 22$ ) を両立できることを見出した。また、側鎖を完全に脱保護したSHPPS (図1右) は、チオール基同士での分子間水素結合と部分的な酸化反応の相乗効果によって屈折率が $n_D = 1.84$ まで向上した。上記の実験結果は時間依存密度汎関数理論 (TD-DFT) 計算の結果とも整合し、硫黄含有ポリマーの新たな光学特性制御手法として一般化できることを明確にした。以上の成果は *Macromolecules*誌 (文献3) に報告し、Supplementary Coverにも採択された。

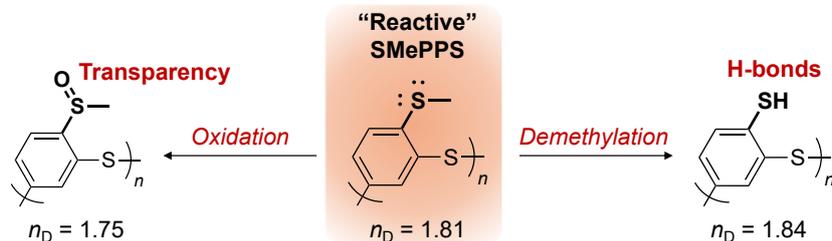


図1. “反応性高屈折率ポリマー” SMePPSを基質とした高分子変換による光学特性制御。

#### 2. 分極性水素結合ポリマー: ポリ(チオウレア)への拡張

OHPPS・SHPPSで実証した概念を、無秩序な多点水素結合を形成するポリ(チオウレア) (PTU) へと拡張し、非晶性を維持しながらポリマーを高密度化することで更なる超高屈折率と透明性を実現した (図2)。PTU類は重付加・重縮合反応で簡便に合成可能で、高分子量 ( $\sim 10^4$ )・高耐熱性 (ガラス転移温度  $> 140^\circ\text{C}$ )・フレキシブル性など優れた成形加工性を有しながらも、いずれの構造でも高屈折率 (1.7-1.8)・可視光透明性 ( $> 88\%T, 1\mu\text{m}$ 換算) を両立可能であった。特に、スパーサー構造を

### (研究経過並びに成果報告)

コンパクトにすることで高密度化が促進され、**mpPhPTU**では超高屈折率 ( $n_D = 1.81$ )、可視光透過率  $> 92\%T(1\ \mu\text{m}$ 換算) を達成した (図2b)。以上の材料は発光電気化学セル (LEC) に塗布することで外部量子効率を向上可能で (図2c)、使用後にアミンを加えて加熱するのみで迅速に分解されることも実証した。以上の成果は *Adv. Funct. Mater.* 誌 (文献4) に報告し、早大プレスリリース (2024.04.22) に掲載されたほか、多数メディアにも取り上げられ報道された。

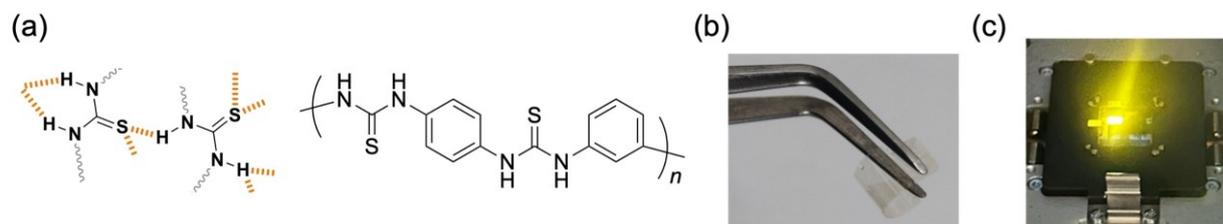


図2. 新しい超高屈折率ポリマー: ポリチオウレア (PTU). (a) チオウレア同士が形成する無秩序な多点水素結合の模式図 (左) と、最もコンパクトなスペーサーを有するPTU: **mpPhPTU**. (b) フレキシブル性にも優れる**mpPhPTU**の自立フィルム. (c) **mpPhPTU**薄膜を塗布したLECが動作している様子。

### 3. 両末端修飾PPS誘導体の高効率合成反応の開発

PPS誘導体の末端に反応性を付与し、更なる高分子反応による機能付与に向けた両末端修飾PPSの選択的・高効率合成を達成した。具体的には、*p*-位に重合不活性な電子求引性のハロゲン (塩素・臭素) を導入したジスルフィドを酸性条件でDDQ酸化させ、三中心スルホニウムカチオンへ誘導した後にジメチル置換PPSと求電子置換反応させることで、両末端にハロゲン基を有するPPS誘導体を定量的な末端修飾率 (99 %)・高収率 (91 %) で合成できることを見出した。得られたハロゲン両末端置換PPSは、更なる熊田・玉尾クロスカップリング反応によりビニル両末端置換PPSへと誘導でき、示差走査熱量分析 (DSC) から熱硬化性を示すことを見出した。本手法は、申請者が開発した高屈折率・低誘電ポリマーの架橋や耐熱性向上に活かすことができる。以上の内容は、*RSC Adv.* 誌 (文献2) で報告した。

### 4. 低誘電損失を示すポリ(フェニレンスルフィド)誘導体の開拓

汎用の低誘電ポリマーであるポリ(フェニレンオキシド) (PPO) を凌ぐ低誘電損失の実現に向け、その類縁体であるPMPSやPMPS-PPO共重合体などを酸化重合により合成し、側鎖構造や硫黄含量を最適化することで、芳香族系ポリマーでは類例ない超低誘電損失を達成した。

**謝辞** 本研究の遂行に際し、工学研究助成にて多大なる支援を賜りました、みずほ学術振興財団の皆様へ深く感謝申し上げます。

#### 【本研究助成による成果 (学術論文)】

1. **Seigo Watanabe**, Kenichi Oyaizu, “Designing Strategy for High Refractive Index Polymers: From the Molecular Level to Bulk Structure Control”, *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **2023**, *96*, 1108-1128. (総説)
2. **Seigo Watanabe**, Hiromichi Nishio, Kenichi Oyaizu, “Facile synthesis of telechelic poly(phenylene sulfide)s by means of electron-deficient aromatic sulfonium electrophiles”, *RSC Adv.* **2023**, *13*, 32363-32370.
3. **Seigo Watanabe**, Yoshino Tsunekawa, Teru Takayama, Kenichi Oyaizu, “Diverse Side-chain Transformation of High Refractive Index Methylthio-substituted Poly(phenylene sulfide)s”, *Macromolecules* **2024**, *57*, 2897-2904.
4. **Seigo Watanabe**, Luca M. Cavinato, Vladimir Calvi, Richard van Rijn, Rubén D. Costa, Kenichi Oyaizu, “Polarizable H-bond Concept in Aromatic Poly(thiourea)s: Unprecedented High Refractive Index, Transmittance and Degradability at Force to Enhance Lighting Efficiency”, *Adv. Funct. Mater.* **2024**, in press. (DOI: 10.1002/adfm.202404433)

**(研究結果報告)****(研究背景)**

高Q値微小光共振器はレーザーのようなコヒーレント光を非常に小さな領域に高効率に閉じ込めることのできる微小デバイスであり、量子光操作や非線形光学変換、低閾値レーザー発振にいたるまで様々な基礎研究、応用研究のプラットフォームとして利用されてきた。近年、特に注目を集めるのが、微小光共振器によって生成される光周波数コム（マイクロ光コム）である。

マイクロ光コムの大きな特徴を三つあげると、「小型・省エネ・安価」、「高繰り返し周波数」、「超低ノイズ性」となる。マイクロ光コムは周波数軸上で等間隔な光スペクトルをもつ光コム（超短パルス）が高繰り返しかつ微小素子によって得られるため、将来的には可搬型筐体のみならずウェアラブルデバイスへの搭載すらも現実的であると期待されており、世界中で熾烈な研究競争が行われている。しかし、マイクロ光コムを生成するためには一般的にレーザー光を共振器へ結合させるための特殊な光結合器や光増幅器、光フィルター、偏光素子などの多くの周辺装置が必要であり、さらに励起レーザー光の緻密な周波数制御が不可欠であるなど、将来身近に使える技術になるかと問うと可搬性や動作安定性などの点から疑問が呈されてきたのも事実である。

**(研究目的)**

本研究では、圧電効果を利用したマイクロ光コムの新たな生成手法の開発に取り組んだ。模式図を図1に示した。これにより励起レーザーの緻密な波長制御や光変調器などの複雑な機構を必要としない、より簡便で安定なマイクロ光コムによる高繰り返し超短パルス光源の確立を目指した。

**(研究手法と結果)**

本研究ではまず、単結晶フッ化マグネシウムを切削研磨加工することで、Q値 $10^9$ を超える超高Q値微小光共振器を作製した。作製した微小光共振器に、電圧を加えることで機械的に変形する素子である圧電（ピエゾ）素子を圧着する機構を開発し、レーザー光の周波数変調を利用しなくても微小共振器の光モードが高速に変調可能であることを実験的に確認した。

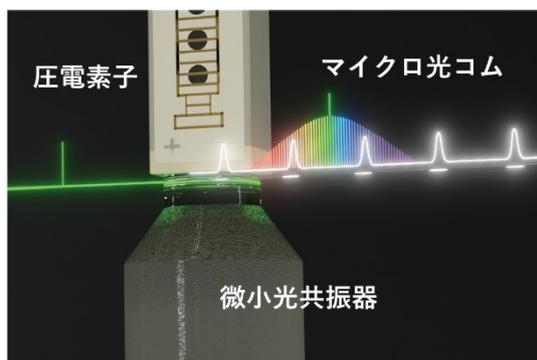


図1：本研究で狙った圧電素子を利用した新たなマイクロ光コム生成手法の模式図

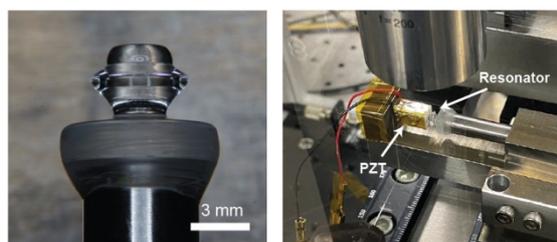


図2：単結晶フッ化マグネシウムを切削研磨加工することによって作製した超高Q値微小光共振器（左）とマイクロ光コムの実験セットアップ（右）。

得られた周波数変調効率は数十MHz/Vであり、数Vの電圧印可で共振線幅の数100倍以上の周波数チューニングが可能であることが分かった。ここまですりマイクロ光コム生成に十分な光学性能が得られたことが確認できたので、周波数固定レーザーによるモード同期したマイクロ光コムであるソリトンマイクロコムの生成に取り組んだ。ピエゾ素子に掃引信号を印可することで、共振モードが励起連続光レーザーに対して高速に周波数変調される。この周波数掃引をきっかけとしてソリトンマイクロ光コムが生成し、図3に示すような非常になめらかなスペクトル包絡線が得られた。

このときの繰り返し周波数は光出力を高速フォトディテクタで検出することで測定され、~15.2 GHzであることが分かった。さらに透過光の一部を誤差信号に用いた閉ループ制御を行い、制御信号を圧電素子にフィードバックすることでマイクロ光コムの状態を長期的に安定化することにも成功した。圧電素子に加える電圧を微調整することによって、2パルス状態や3パルス状態のような高次ソリトンの生成も実験的に確認することができた。また、この手法をさらに発展させることで繰り返し周波数の任意波形による高速変調も合わせて実証した。

### (まとめと展望)

本研究で得られた成果は海外学術論文誌[1]に発表し、国内会議[2]および国際会議[3,4]で成果発表を行った。また慶應義塾よりプレスリリースも行った。高繰り返しなマイクロ光コムをレーザー掃引なしで安定的に発生できる本手法は今後、精密分光や光時計、高純度マイクロ波発生など様々な応用が期待される。

[1] S. Fujii, K. Wada, S. Kogure, H. Kumazaki, and T. Tanabe, "Mechanically actuated Kerr soliton microcombs," *Laser Photon. Rev.* 2301329 (2024). Published online.

[2] 藤井瞬, 和田幸四郎, 木暮蒼真, 田邊孝純, 「超高Q値微小光共振器を用いた機械駆動型ソリトンマイクロコム」 第84回応用物理学学会秋季学術講演会, 22p-B204-3, 2023年9月19日~23日.

[3] S. Fujii, K. Wada, H. Kumazaki, S. Kogure, and T. Tanabe, "Extending Spectral Tunability of Soliton Microcombs in Ultrahigh-Q Microresonators," *Progress In Electromagnetics Research Symposium (PIERS2023)*, 1A4-11:10, Prague, Jul. 3-6 (2023).

[4] S. Fujii, K. Wada, S. Kogure, H. Kumazaki, and T. Tanabe, "Mechanical Actuation of Kerr Soliton Microcombs in Ultrahigh-Q Crystalline Microresonators," *CLEO-PR 2024*, We1B-3, Incheon, Aug. 4-9 (2024)

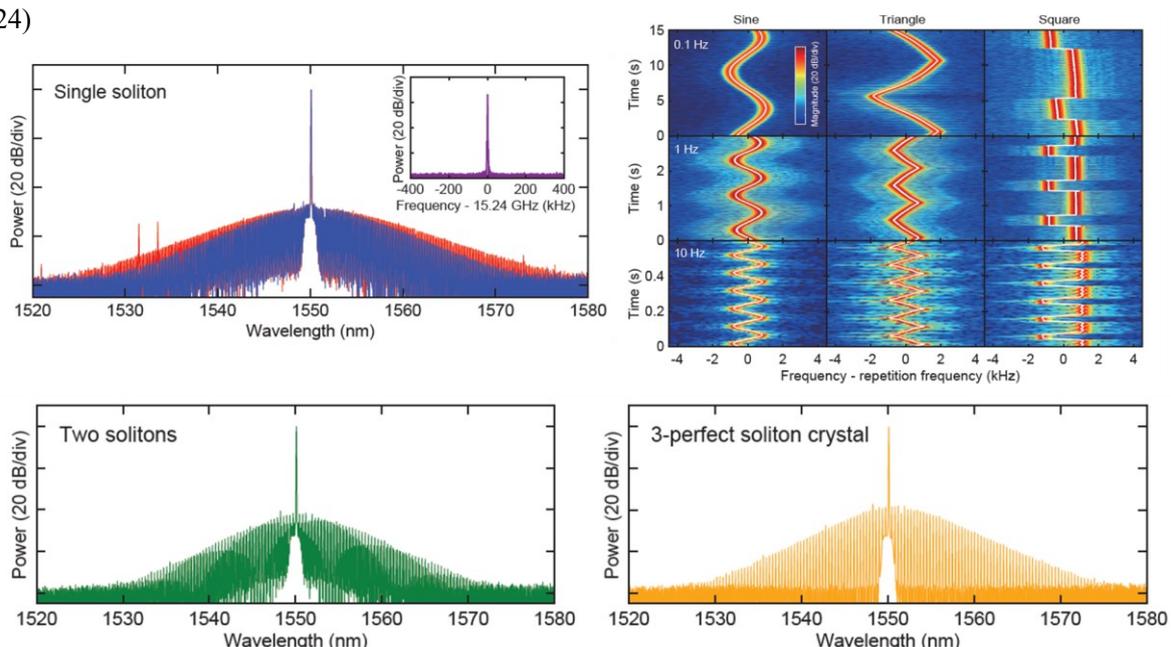


図3：本研究手法によって発生したソリトンマイクロ光コムの光スペクトルと高速周波数変調のリアルタイムイメージングの結果。