

助成研究成果報告

(2025年4月～2026年3月完了分)

2026年8月

公益財団法人 みずほ学術振興財団

第 6 6 回贈呈分（2023 年度）

1. Building an artificial cell using a polyester droplet as a scaffold..... 1
Hiroshima University, Office of Research and Academia-Government-Community Collaboration Professor, Tony Z Jia

第 6 7 回贈呈分（2024 年度）

2. クラスター物質を基盤とする超縮退物質の新規理論探索..... 3
東京大学 生産技術研究所 講師 塚本 孝政
3. 力学ひずみ制御による巨大磁気熱電機能の開拓..... 5
京都大学 大学院工学研究科 機械理工学専攻 助教 見波 将
4. 厳環境エレクトロニクス実現に向けた炭化ケイ素電子デバイスの研究..... 7
京都大学大学院 工学研究科 准教授 金子 光顕
5. 片麻痺患者の自立促進に向けたAssist-As-Needed上肢アシストロボットの開発..... 9
東京科学大学 助教 JIANG MING
6. 移動ロボットに対する計測量削減的な戦略に基づく安全性を担保した衝突回避制御の構築.....12
京都大学 大学院情報学研究科 講師 船田 陸
7. 最密充填粉末床の作製および高精度な熱履歴制御によるセラミックス熔融積層造形手法の開発.....14
東京科学大学 工学院機械系 助教 徳永 大二郎
8. グルコース転移酵素XgtAを利用した有用 α -グルコシドの選択的生産法の確立.....16
早稲田大学 先進理工学部 助教 曹 偉

第 6 6 回 贈 呈 分 (2 0 2 3 年 度)

1. Building an artificial cell using a polyester droplet as a scaffold

Hiroshima University, Office of Research and Academia-Government-Community Collaboration Professor, Tony Z Jia

(研究結果報告)

Following up on our preliminary data from 2023, we published two papers which found that lactic acid (LA) and phenyllactic acid (PA) can both polymerize and assemble into membraneless droplets in monovalent salts (NaCl and KCl) up to 1 M, but not in divalent salts (CaCl_2 and MgCl_2) up to 10 or 100 mM. Similarly, we found that PA was more robust than LA at polymerization and membraneless droplet assembly at low concentrations, suggesting that although LA is more abundant on early Earth, PA is more functional. In particular, PA is quite robust up to the hundreds-of-millimolar scale depending on the other environmental conditions, suggesting that droplets composed of PA are much more robust than those composed of TA. Similarly, we published one paper which reported that calcium can selectively drive homochiral polymerization of tartaric acid (TA) through a process involving crystallization. These studies drove our system selection for the droplet system to be used for the artificial cell scaffold. Although TA can also form droplets when combined with PA, the highly charged nature of TA-containing droplets may affect the ability for lipids to interact with the droplets due to a likely highly negative surface charge, and thus based on its stability, robustness, and slightly negative surface charge, we selected PA as the scaffolding droplet composition.

Following up on previous preliminary experiments, we have one paper under review which reports using polyPA droplets to scaffold phospholipid assembly. First, we expanded the pH range of polyPA from ~3 to ~8 (in HEPES buffer), which was not possible previously. Specifically, we found that polyPA synthesized at various temperatures (between 80°C and 120°C) were able to robustly form droplets at pH 8, which remained stable for up to 6.5 hours.

We next took these droplets and subjected them to hydration by the phospholipid DOPC (Dipalmitoylphosphatidylcholine), a commonly used phospholipid for vesicle assembly. After quite a bit of optimization, we were able to develop a formulation and procedure to generate lipid-layer enclosed polyester droplets. Specifically, these lipid-enclosed droplets were much more stable than those without droplets, appearing to be stable to hydrolysis and/or coalescence on the order of days to weeks; without the lipids, this timescale was only on the order of up to a few days. Next, we also observed that the lipid-enclosed droplets can still allow diffusion (entry/exit) of small molecule dyes such as SYBR gold, suggesting that the droplets are dynamic enough to be able to accept nutrients and dispel waste upon the progression of prebiotically plausible metabolic reactions. A manuscript is under review based on this data; this manuscript was published to ChemRxiv as a preprint.

(研究結果並びに成果報告)

Finally, we published additional papers, including one paper which converted polyLA plastic straw waste into poly(LA-malate) microdroplets *via* a two-step process combining enzymatics (to degrade polyLA into LA) and prebiotic chemistry (for dehydration synthesis of LA with added malate). Currently, we have four related manuscripts under review, including one on polyphosphate-based coacervates, which can also be incorporated into artificial cells.

Published Papers in 2025-2026

1. OOLEN, Silke Asche, [and 37 others, including **Tony Z. Jia**]. What it takes to solve the Origin(s) of Life: An integrated review of techniques - Part 1—Experimental methods and data repositories. *Cell Reports: Physical Science*, Accepted (2025).
2. OOLEN, Silke Asche, [and 37 others, including **Tony Z. Jia**]. What it takes to solve the Origin(s) of Life: An integrated review of techniques - Part 2—Theoretical methods and emerging trends. *Cell Reports: Physical Science*, Accepted (2025).
3. Ramona Khanum[†], Nirmell Sathiyasilan[†], Navaniswaran Tharumen, Terence P. Kee, Christian Mayer, P. Susthitha Menon, **Tony Z. Jia**^{*}, Kuhan Chandru^{*}. Prebiotic Gels as the Cradle of Life. *ChemSystemsChem*, e00038 (2025).
4. **Tony Z. Jia**^{*}, Yutetsu Kuruma. Interdisciplinary investigations into the biophysics of the origins of life. *Biophysics and Physicobiology*, 22(4), e220021 (2025).
5. Mahendran Sithamparam[†], Ming-Jing He[†], Navaniswaran Tharumen[†], Rehana Afrin, Niannian Ding, Chen Chen, Ruiqin Yi, Po-Hsiang Wang^{*}, **Tony Z. Jia**^{*}, Kuhan Chandru^{*}. A deeper dive into primitive polylactate polymerization and microdroplet assembly under restrictive early Earth conditions. *Polymer Journal*, 57, 897-910 (2025). [INVITED]
6. Kai-Cheng Wang, Shota Nishikawa, Wan-Wen Ting, Xue-Hong Luo, Takumi Takahashi, **Tony Z. Jia**, Min-Hsuan Huang, Kosuke Fujishima, I-Son Ng, Po-Hsiang Wang. *Green Chemistry*, 27, 6437-6448 (2025).
7. Po-Hsiang Wang^{*,†}, Ming-Jing He[†], Ruiqin Yi, Rehana Afrin, Wen-Chi Yu, Shota Nishikawa, Mahendran Sithamparam, Chen Chen, Kosuke Fujishima, Kuhan Chandru, and **Tony Z. Jia**^{*}. Low-temperature green synthesis and assembly of poly(lactate-co-malate) gel-based microdroplets from plastic polylactate straw waste. *ACS Applied Polymer Materials*, 7(7), 4218-4227 (2025).
8. Chen Chen^{*}, Ruiqin Yi^{*}, Motoko Igisu, Rehana Afrin, Mahendran Sithamparam, Kuhan Chandru, Yuichiro Ueno, Linhao Sun, Tommaso Laurenzi, Ivano Eberini, Tommaso P. Fraccia, Anna Wang, H. James Cleaves II, **Tony Z. Jia**^{*}. Primitive Homochiral Polyester Formation Driven by Tartaric Acid and Calcium Availability. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, 122(12), e2419554122 (2025).
9. Mahendran Sithamparam, Rehana Afrin, Navaniswaran Tharumen, Ming-Jing He, Chen Chen, Ruiqin Yi, Po-Hsiang Wang, **Tony Z. Jia**^{*}, Kuhan Chandru^{*}. Probing the limits of reactant concentration and reaction volume in primitive polyester synthesis and microdroplet assembly. *ACS Bio & Med Chem Au*, 5(1), 131–142 (2025). [INVITED]

Published Preprints in 2025-2026

1. Niannian Ding, Xu Han, Chen Chen, Tatsuya Shinoda, Mahendran Sithamparam, Navaniswaran Tharumen, Wancheng Zhang, Rehana Afrin, I Tang, Kuhan Chandru, Kosuke Fujishima, Anna Wang, Hailiang Dong^{*}, Tomoaki Matsuura^{*}, **Tony Z. Jia**^{*}. Lipid assembly on a polyphenyllactate droplet surface to form a hybrid protocell. ChemRxiv, NNN (2025). [Currently under review in Communications Chemistry as an invited article]

Selected Invited Presentations

- | | |
|-------------|---|
| 6 Nov 2025 | Membraneless Polyester Protocells as Primitive Cells in the early (and modern) Earth Environment. Invited Presentation. IDEC PHIS Ochakai Seminar. Hiroshima University, Higashi-Hiroshima, Japan. |
| 25 Sep 2025 | Vignettes on International Collaboration. Invited Presentation. HIRAKU-Global FY2025 Retreat. Tokushima University, Tokushima, Japan. |
| 16 Sep 2025 | Alternative Pathways in Astrobiology: Non-Biomolecular Origins of Terrestrial and Extraterrestrial Life via Polyesters. Invited Presentation. International Symposium on the Origin of Life. Keihanna Science Plaza, Kyoto, Japan. |
| 12 Sep 2025 | Exploring the Plausibility of Primitive Polyester Microdroplets on Early Earth. Invited Presentation. Origin of Life Early Career Network Meeting. [ONLINE] |
| 19 Aug 2025 | Membraneless Polyester Droplets as Protocell Models. Invited Presentation. IDEC Microbial Genomics and Ecology Seminar. Hiroshima University, Higashi-Hiroshima, Japan. |
| 5 Mar 2025 | The Origin of Membraneless Polyester Protocells on (or possibly off???) Earth. Invited Presentation. MISASA VIII. Institute of Planetary Materials, Okayama University, Tottori, Japan [ONLINE]. |
| 4 Mar 2025 | Liquid Crystal Coacervates and the Origin of Homochirality in Membraneless Polyester Protocells. Invited Presentation. WPI-SKCM2 Symposium. Hiroshima University, Hiroshima, Japan. |
| 14 Feb 2025 | Membraneless Polyester Protocells as Primitive Cells and Their Potential for Modern Applications. Invited Presentation. International Symposium on Understanding bacterial cells for Biomanufacturing. Yamaguchi University, Yamaguchi, Japan. |
| 16 Jan 2025 | A Tale of Primitive Polyesters Through the Years. Invited Departmental Seminar. National Central University Graduate Institute of Environmental Engineering, Taoyuan, Taiwan. |

第 67 回贈呈分（2024 年度）

2. クラスター物質を基盤とする超縮退物質の新規理論探索

東京大学 生産技術研究所 講師 塚本 孝政

（研究結果報告）

近年、申請者は、特定の金属原子から成る四面体型クラスターが、球対称をも超える対称性を有することを理論的に発見し、これを「超縮退物質」として提唱している。従来、高い対称性を持つ物質は、エネルギー状態が重なる「縮退」と呼ばれる現象を示すことが知られているが、超縮退物質は、クラスター内の「原子の結合距離が満たす特殊な数列」が起源となっており、球対称でさえ起こり得ないはずの高度な縮退度（超縮退）を示すことが明らかとなっている。化学物質の性質が化学構造の数理科学的な要素に結びつく現象が発見されたのは世界で初めてのことであり、当該物質群の発見により従来化学の延長上にない全く新しい科学領域の存在が示唆されている。

本研究の目的は、申請者がこれまでに理論的に発見していた代表的な超縮退物質である「四面体型クラスター」を基盤として、四面体とは異なる立体構造・結合因子の数列・力学的対称性を持つ「他の超縮退物質の探索」を行うことである。超縮退現象を発現する他のクラスターに共通する傾向・要素・起源を解明・分析し、これを通じて超縮退物質の新たな学理構築を行うことで、この未知の学術領域の開拓に向けた足がかりを得ることを目指す。

本年度においては、超縮退物質の理論的探索を目指し、主にTight-Bindingモデルによる超縮退物質の探索を行った。具体的には、高い対称性を持つ四面体以外の立体として、立方体、正八面体、正二十面体をベースとした原子配列を持つクラスターを設計し、その立体構造の中心を基準として原子数を階層的に増大させることで、一個の対称立体について複数の構造バリエーションを構築した。これらの立体構造について、原子配置と原子間の結合の情報を基に、クーロン積分とトランスファー積分を用いてハミルトニアンを作成し、エネルギー固有値を求めるプロセスにより、Tight-Bindingモデルによる解析を行った。特に、構造中の幾何学的に非等価なトランスファー積分同士の比率（「原子の結合距離が満たす特殊な数列」に相当するもの）に着目し、この比率をコントロールすることで、超縮退現象を発現する特定の条件「超縮退条件（トランスファー積分の比率）」の探索を行った。当該検討には、貴財団の助成により導入したワークステーションを用いている。

その結果、立方体、正八面体、正二十面体、それぞれの立体について、超縮退現象を発現するトランスファー積分の比率が存在することが初めて明らかとなった。また、これらの立体における「超縮退条件」には、主に二つの傾向があることが発見された。一つは、従来の四面体型クラスターと同様に、非等価なトランスファー積分が特定の比率となった際に超縮退現象が観測されるもので、縮退度は四面体型クラスターと異なるものの、原子数が増大するにつれて分子軌道の縮退度も増大していくなど、同様の傾向を持つものである。もう一つは、超縮退条件を満たすトランスファー積分の比率が数学的には存在するが、幾何学的にはそのような構造が存在できない（3次元空間の立体として描けない）というケースであった。この二つの傾向が生じる起源については、現在探求を行っている。

特に前者の超縮退物質について、DFT計算を用いたより精密なコンピュータシミュレーションを行い、実際に超縮退したエネルギー状態が再現されるかを検討した。その結果、四面体型クラスターにおいては、DFT計算においてもTight-Bindingモデルと同様の超縮退が予測された一方で、立方体をはじめとした他の立体構造については、一般的な分子やクラスターと同様に超縮退した電子状態は再現されなかった。これは、四面体型クラスターの構成ユニットが三次元空間におけるシンプレックス（4原子から成る四面体）により構成され、他の立体構造と比較してスルースペース相互作用が小さく、Tight-Bindingモデルで仮定した単純な条件により近い状態にあることに由来すると考えられた。

上記のような検討により、超縮退物質の学理構築に向けた有力な知見を得るとともに、超縮退現象の発現に向けた具体的な構造設計の指針について明らかにすることに成功した。今後は、より多くの立体構造について「超縮退条件」の探索を行うとともに、超縮退物質のハミルトニアンに対する非幾何学的対称操作の理解や、高度な対称性に関連した保存量など、超縮退現象の数学的起源について検討していく予定である。

(研究経過並びに成果報告)

【論文・著書等】

- [1] “Carbon nanotube growth catalyzed by metal nanoparticles formed via seed effect of metal clusters”
T. Moriai, **T. Tsukamoto***, K. Fukuhara, T. Imaoka, T. Kambe, K. Yamamoto*
Nanoscale Advances, 7, 346-353 (2025) .
- [2] “Recent advances in atomic cluster synthesis: a perspective from chemical elements”
T. Tsukamoto*
Nanoscale, 16, 10533-10550 (2024) .
- [3] “高次周期表 — 量子サイズ物質の先進的デザイン”
塚本孝政
現代化学、646, 38-40 (2025) .
- [4] “高対称クラスターの温室効果ガス変換触媒への展開 ——クラスターの特異的原子配列を利用した新たな触媒デザイン”
塚本孝政
化学と工業、77, 398 (2024) .

他

【招待講演等】

- [1] “1原子レベルで設計するクラスターが拓く新材料”
塚本孝政
ATAC DAY 2026 ピッチイベント、東京丸ビルホール (2026. 03.)
- [2] “クラスター物質を基盤とする新物質科学領域の開拓”
塚本孝政
分子研所長招聘研究会、分子科学研究所 (2026. 03.)
- [3] “Analysis of physical properties and chemical reactivity of cluster materials precisely synthesized by using a macromolecular template”
T. Tsukamoto
The 2025 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, Hawaii, USA (2025. 12.)
- [4] “Controlled synthesis of mono- and multimetallic clusters via macromolecular metal complexes and their unique properties”
T. Tsukamoto
10th Asian Conference on Coordination Chemistry, Hanoi, Vietnam (2025. 10.)
- [5] “力学的対称性を持つ化学物質「超縮退物質」の理論的発見”
塚本孝政
数理・情報×諸科学：領域横断のための研究会、東京国際フォーラム (2025. 07.)
- [6] “実験と理論から拓く量子サイズ物質の新化学領域”
塚本孝政
物質材料研究機構 MANAセミナー、物質材料研究機構 (2025. 06.)
- [7] “クラスター物質の化学 ～幾何学に基づく分子設計理論～”
塚本孝政
「幾何学と様々な自然科学」ワークショップ、東京理科大学 (2025. 03.)
- [8] “高効率メタンドライリフォーミングに向けた量子サイズクラスター触媒の設計”
塚本孝政
新化学技術推進協会 先端化学・材料技術部会 高選択性反応分科会 講演会 (2024. 12.)
- [9] “クラスターの理論から派生する物質科学の新領域”
塚本孝政
「クラスター科学の新しい潮流」シンポジウム、東京大学 (2024. 10.)
- [10] “メタンドライリフォーミング反応の低温駆動に向けた金属・合金クラスター触媒に関する研究”
塚本孝政
新化学技術推進協会 第13回新化学技術研究奨励賞受賞講演 (2024. 6.)
- 【受賞等】
- [1] **塚本孝政** 第12回 ヤマト科学賞 (株式会社ヤマト科学) (2025. 03.)
- [2] **塚本孝政** 令和6年度 東京大学卓越研究員 (東京大学) (2024. 11.)
- [3] **塚本孝政** 新化学技術研究奨励賞 (新化学技術推進協会) (2024. 6.)
- [4] **塚本孝政** Nanoscale 2024 Emerging Investigator (イギリス王立化学会) (2024. 4.)
- [5] **塚本孝政** 令和6年度 文部科学大臣表彰 若手科学者賞 (文部科学省) (2024. 4.)

3. 力学ひずみ制御による巨大磁気熱電機能の開拓

京都大学 大学院工学研究科 機械理工学専攻 助教 見波 将

(研究結果報告)

身の回りの微小エネルギーを回収し再利用するエネルギーハーベスティング技術は、カーボンニュートラルやIoT社会の実現に向けて重要性を増している。温度差により起電力が生じる熱電効果は、排熱からの電力回収や極限環境下での独立電源として有望である。近年、材料中の磁気秩序と電子波動関数の幾何学的位相（トポロジー）に由来する量子磁気熱電効果（異常ネルンスト効果：ANE）が、次世代の環境発電技術として注目されている。ANEは温度勾配に垂直方向に起電力が生じるため、超小型化・超高集積化を可能とする革新的デバイス実装という応用上不可欠な要素を備えている。しかしANEを活用した熱電発電デバイスの実用化には熱電係数が $N \sim 20 \mu\text{V/K}$ 程度必要と試算される一方、従来報告値は $1 \mu\text{V/K}$ 程度のオーダーにとどまり、応用化には約2桁の性能向上が必要という「発電性能の壁」問題が存在していた。

本研究では、材料力学と材料科学を融合した申請者独自のアプローチにより、産業応用に耐える高効率な量子磁気熱電材料の創出を目指した。ANEは電子波動関数のトポロジー（ノードルライン等）に鋭敏に依存するため、力学ひずみによる電子状態制御は量子磁気熱電性能を飛躍的に向上させる有力な手段となりうる。以上の背景のもと、第一原理計算に基づき、ひずみ負荷下における量子磁気熱電効果の解析、力学変形トポロジカル物性間のマルチフィジックス特性の解明、巨大ANEを実現する力学モデル・材料設計指針の構築、を本研究の目的とした。

L1_2 型 Fe_3Ga は空間群 $Pm-3m$ の単純立方構造を有し、キュリー温度が 900 K を超えるため室温以上で動作する磁気熱電材料の候補として着目した。第一原理計算の結果、室温で横型熱電伝導度 α_{xy} が約 $3 \text{ AK}^{-1}\text{m}^{-1}$ という巨大な値を示すことが明らかとなった。特筆すべきは、高温域（500 K）で α_{xy} が約 $4 \text{ AK}^{-1}\text{m}^{-1}$ に増大し、電子キャリアドーピングによるフェルミエネルギー調整で約 $4.5 \text{ AK}^{-1}\text{m}^{-1}$ まで増強されることを見出した点である。これらの値は Co_2MnGa や $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ など既存の代表的トポロジカル磁性体と同等以上の水準であり、 L1_2 型 Fe_3Ga が高性能磁気熱電材料として有望であることを示している。異常ホール伝導度(σ_{xy})のエネルギー依存性を解析したところ、フェルミ準位よりわずかに高エネルギー側で σ_{xy} が約 $1500 \text{ } \Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$ の鋭いピークを示した。Mott 関係式の観点から、この鋭いピーク両側に α_{xy} が正負の大きなピークを持つことが定量的に説明され、室温での巨大磁気熱伝導度と整合した。

巨大な α_{xy} の起源解明のため、 σ_{xy} のピーク位置におけるベリー曲率分布を詳細に解析した。その結果、逆格子空間の特にブリルアンゾーン境界近傍のX点・M点周辺で大きな正のベリー曲率が集中することを見出した。この高強度領域は少数スピンのバンド縮退点（ノードルライン）の分布と空間的に高い相関を示し、ノードルラインが巨大ベリー曲率の発生源であることが実証された。ブリルアンゾーン全体でのノードルラインは円環状ネットワークを形成し、そのエネルギーはフェルミエネルギーから 0.2 eV 以内に集中していた。以上により、ミラー面上の少数スピンにより形成されるノードルラインネットワークが L1_2 型 Fe_3Ga における巨大な横型熱電伝導度の根源であることを解明した。これらの成果は Scripta Materialia 誌に発表した（発表論文 [1]）。

(研究経過並びに成果報告)

D0₃型Fe₃Siは安価かつ豊富な元素のみから構成され、キュリー温度約 830 K と高く、SiおよびMgO基板上で 4～5% のエピタキシャルひずみが印加可能であることが実験的に知られる。申請者らの先行研究から、ひずみなし条件ではフェルミ準位下方約 0.22 eV に σ_{xy} の顕著なピークがある一方、フェルミ準位での α_{xy} は限定的であることが報告されている [S. Minami et al., Phys. Rev. Mater. 8, 075403 (2024)]。本研究では、(001)面および(111)面への系統的なエピタキシャルひずみ印加に対する α_{xy} の応答を解析し、ひずみ印加方向と大きさによって磁気熱電性能が劇的に変化することを見出した。(001)面では 1% 圧縮ひずみで室温 α_{xy} が 1.4 AK⁻¹m⁻¹に達するものの限定的条件下での増強にとどまる一方、(111)面への圧縮ひずみでは全ての圧縮条件で顕著な α_{xy} の増強が観測され、4% 圧縮ひずみで室温 3.4 AK⁻¹m⁻¹、700 K で 5.8 AK⁻¹m⁻¹という最大値が得られた。これはひずみなし条件比で約50倍という劇的向上であり、D0₃型Fe₃GaやCo₂MnGaといった既存の有望磁気熱電材料を上回る水準である。

この α_{xy} 増強の起源を解明するため、 σ_{xy} のひずみ依存性を詳細に解析した。(111)面への 4% 圧縮ひずみ下で α_{xy} の顕著なピークがひずみなし時から約 100 meV 上昇しフェルミ準位に接近することが示され、 α_{xy} の増大と定量的に対応することを明らかにした。さらにノーダルラインの観点から解析したところ、ひずみなし条件では -200 ～ -400 meV の範囲に集中していたノーダルラインのエネルギー分散が、4% 圧縮ひずみ下では -100 ～ -200 meV へ約 100 meV 上昇し、フェルミ準位に接近することが判明した。ひずみ後のベリー曲率空間分布がノーダルライン分布と高い相関を示すことも確認され、ノーダルラインのエネルギーシフトがベリー曲率増大を通じて α_{xy} の増強をもたらすことを明らかにした。

ノーダルラインのエネルギーシフトの微視的起源を原子軌道の観点からさらに解析した。ノーダルラインを構成する 2 本のバンドのうち、エネルギー分散の小さいバンドはFe原子の $d_{3z^2-r^2}$, d_{zx} , d_{yz} の z 方向軌道成分から主に構成され、電荷密度分布の解析から z 方向の Fe(I)-Fe(II) および Fe-Si ボンドに沿って電子が局在していることを示した。結晶軌道ハミルトン占有数 (COHP) 解析により、このバンドが Fe(I)-Fe(II) 間の結合状態に対応することを確認した。(111)面への面内圧縮ひずみは [111] 方向への引張ひずみと等価であるため、Fe(I)-Fe(II) 結合距離が伸長し結合状態バンドが不安定化されてエネルギーが上昇する。その結果、ノーダルラインのエネルギーがフェルミ準位に接近し、巨大な α_{xy} が実現されるという増強機構を解明した。これらの成果は Physical Review Materials 誌に発表した (発表論文 [2])。

以上より、Fe₃GaおよびFe₃Siの両強磁性体においてミラー面上のノーダルラインネットワークに由来する巨大な量子磁気熱電効果が発現することを第一原理計算から明らかにするとともに、力学ひずみによってノーダルラインのエネルギーをフェルミ準位近傍に制御することで磁気熱電性能が約 50 倍に増強されるという劇的効果を示した。これらの成果は、申請時に提案した「力学変形ートポロジカル物性間のマルチフィジックス特性」に基づく磁気熱電性能増大の設計指針を具現化する、実証的な一例を与えるものである。

本助成金による主な学術論文

- [1] S. Minami, S. Nishihara, S. Hogaki, and T. Shimada, "Giant transverse thermoelectric conductivity in L1₂-type Fe₃Ga: A first-principles study", Scripta Materialia 271, 117015 (2026).
- [2] S. Hogaki*, S. Minami*, and T. Shimada, "Enhancement of nodal line-driven anomalous Nernst effect in Fe₃Si by strain engineering", Physical Review Materials 10, 025402 (2026). (*equally contributed)

(研究結果報告)

シリコン集積回路技術の発展により情報処理技術の飛躍的向上が達成され、集積回路なくして現代の人々の生活は成り立たないものとなった。近年、高温環境で動作可能な集積回路に注目が集まっている。現在主流のシリコン集積回路はn型およびp型の金属-酸化物-半導体 (MOS) デバイスを利用しているが、シリコンが約200℃で真性領域に入り、n型とp型の区別がつかなくなるため、それ以上の温度での動作が不可能である。例えば、石油・ガスの掘削作業では周辺温度が約300℃の中、地盤情報をリアルタイムでセンシングするニーズがある。また、金星表面の温度は約400℃に達しており、過去にシリコン集積回路を搭載した探索機が着陸に成功したが約30分で動作を停止し、失敗に終わってしまった。他にも、航空機や自動車のエンジン燃焼室の燃焼効率向上に向け、燃料混合比のその場制御が望まれるが、燃焼室内の温度は600℃に達する。このように300℃以上の超高温環境で動作する集積回路は多種多様な応用先が存在するが、既存のシリコン集積回路では動作不可能な温度域となり、未踏領域となっている。

上述の背景を踏まえ、本研究では、接合型電界効果トランジスタ (JFET) を集積回路のキーデバイスとして使用する。JFETはゲート酸化膜の問題がない、閾値電圧の温度変化が小さい、電圧駆動である等の利点から、高温動作集積回路に最適なデバイスである。本研究ではデバイス構造全てをイオン注入で作製することにより、室温～400℃でのノーマリーオフ動作の実証に成功した。また、インバータ回路を作製し、室温～350℃の広い温度範囲でSiC相補型JFET動作実証に至っている。上記課題を解決し、世界初のSiC相補型JFETの動作実証に至ったが、その動作上限温度は350℃に留まっている。SiCの材料物性から予測される動作限界温度は800℃であり、実験的に得られた動作限界温度と大きく乖離している。研究助成期間中には、更なる動作温度向上を目的とした半絶縁性SiC基板の物性解明を目指す。

研究経過

これまで作製したSiC相補型JFETのデバイス間の絶縁には、半絶縁性層を用いてきた。半絶縁性とは、バンドギャップ中央付近にキャリアを捕獲する欠陥を導入し、半導体中に残留するドーパントを全て補償し、電流を担うキャリア密度を極限まで減少させることで高抵抗が得られる性質のことである (図1)。

半絶縁性層は室温近傍では十分大きい抵抗率 ($10^{12} \Omega \text{cm}$) が得られることがわかっているが、高温環境では点欠陥からのキャリアの捕獲・放出のダイナミクスが生じ、電気的性質が大きく変化することが考えられる。一般的に用いられる半絶縁性基板ではトラップとして空孔や置換原子などの真性欠陥が用いられている。空孔や置換原子はその密度の定量および半導体中のフェルミ準位の位置の同定が困難であり、デバイス設計指針を立てることが難しい。空孔や置換原子以外の深いトラップ準位を有する欠陥が導入できれば、半絶縁性層の性質を予測・制御することが容易となり、さらなる高温動作が達成できると考えた。

バナジウムはSiC中に深い準位を形成することが知られている。バナジウム密度は二次イオン質量分析などの方法で比較的簡便に検出可能であり、バナジウムドーパシC層を半絶縁性層として使用した場合、デバイス作製前に補償欠陥密度を定量することが可能である。近年、バナジウムをドーパした基板が入手できるようになった。しかしながら、バナジウムドーパシC層へのイオン注入によるn型・p型層の形成可否や注入層の電子物性を評価した報告は皆無である。特に、バナジウムによるトラップ準位に加えて、イオン注入により生成された欠陥によるトラップ準位も存在するため、n型・p型層の電気的性質がSiCエピ層に形成した場合と大きく異なる可能性がある。

そこで、本研究では、バナジウムドーパシ半絶縁性SiCに様々な条件でドナー (N, P) あるいはアクセプタ (Al) を注入し、活性化アニール後の電気的性質をホール効果測定により評価する。

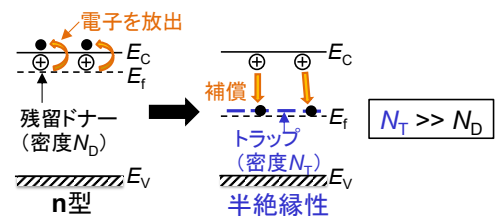


図1: 補償欠陥導入による半絶縁性の発現

(研究経過並びに成果報告)

1年目のバナジウムドーパ半絶縁性SiC基板自体の評価に続いて、2年目でAlイオン注入を行ったイオン注入層の評価を行った。図2にサンプルの模式構造を示す。注入量を変化させた複数回の注入を行うことで、異なるAl原子濃度 ($1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ から $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) を持つボックスプロファイルを形成した (図3)。1750°Cで20分間の活性化アニールを行った後、反応性イオンエッチング (RIE) によってクローバーリーフ型のメサ構造を作製した。図4に、異なるドーパ濃度を持つAlイオン注入VドーパSiCにおける、自由ホール密度の温度依存性を示す。シンボル (記号) で示された実験結果は、p型SiCエピタキシャル層について報告されているホール散乱因子によって補正されており、以下の電荷中性条件の式を用いた曲線フィッティングが行った。

$p + N_{\text{comp,D}}(\text{total}) = \frac{N_A}{1 + g_A(p/N_V) \exp(\Delta E_{\text{Al}}/kT)}$ (ここで、 $N_{\text{comp,D}}(\text{total})$: 全補償ドナー密度、 N_A : アクセプタ密度、 g_A : 縮退度、 N_V : 価電子帯の有効状態密度、 ΔE_{Al} : Alのイオン化エネルギーである)。

$N_{\text{comp,D}}(\text{total})$ 、 N_A 、および ΔE_{Al} はフィッティングパラメータとして扱った。低ドーパ濃度 ($1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$) のAlイオン注入サンプルは、高抵抗のためホール効果測定による評価ができなかった。これは、注入されたAlアクセプタが完全に補償されたことを示している。より高いドーパ濃度 ($1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 以上) においてp型層の形成が確認され、注入量 (ドーズ量) の増加に伴うホール密度の増加が見られた。フィッティングによって得られたパラメータを表1に示す。すべてのサンプルにおいて、Alの電気的活性化率は90%以上であった (図5)。

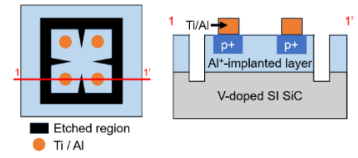


図2:作製した試料模式図

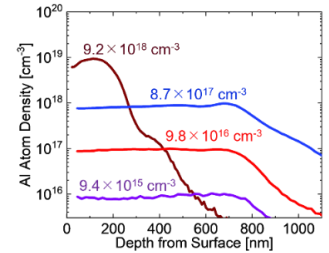


図3:Al原子の深さ方向プロファイル

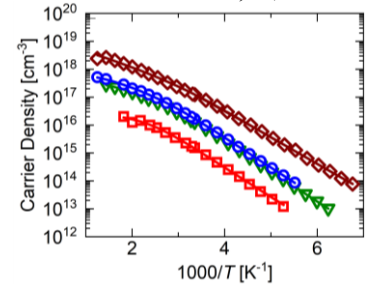


図4:ホール密度の温度依存性

表1:ホール密度の温度依存性

SIMS	[Al] [cm ⁻³]	9.4×10^{15} and 4.0×10^{16}	9.8×10^{16}	4.7×10^{17}	8.7×10^{17}	9.2×10^{18}
Hall effect (fitted results)	$N_{\text{comp,D}}(\text{total})$ [cm ⁻³]	cannot be measured	7.0×10^{16}	8.1×10^{16}	1.4×10^{17}	4.7×10^{17}
	N_A [cm ⁻³]	cannot be measured	9.4×10^{16}	4.4×10^{17}	8.5×10^{17}	9.2×10^{18}
	ΔE_{Al} [eV]	cannot be measured	0.18	0.19	0.19	0.17

図6に、補償ドナー密度 ($N_{\text{comp,D}}$) と注入Al原子濃度との関係を示す。 $N_{\text{comp,D}}$ は、実験結果へのフィッティングから得られた $N_{\text{comp,D}}(\text{total})$ から、残留窒素濃度 ($N_{\text{comp,D}}[\text{N}]$) を差し引くことで決定した ($N_{\text{comp,D}} = N_{\text{comp,D}}(\text{total}) - N_{\text{comp,D}}[\text{N}]$)。 $N_{\text{comp,D}}$ は、低ドーパのサンプル ($1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 以下) ではほぼ一定に保たれているのに対し、高ドーパのサンプルでは注入Al原子濃度の増加に伴って増加している。低ドーパのサンプルでは、注入に起因する欠陥の密度が低く、キャリアの補償は主にバナジウム (V) 原子によるものである。これに対して高ドーパのサンプルでは、注入に起因する欠陥密度が増加し、これらの欠陥によるキャリア補償が支配的となる。低ドーパのサンプル ($1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ および $5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) において、 $N_{\text{comp,D}}$ は約 4×10^{16} から $5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ と見積もられ、これはバナジウム原子の50~80%に相当する。

以上の結果から、バナジウムドーパSiC基板上であってもエピ層と同じようにイオン注入層が形成可能であり、電気的特性も大きく変わらないことから 高温動作JFET回路作製用基板として有望である ことがわかった。

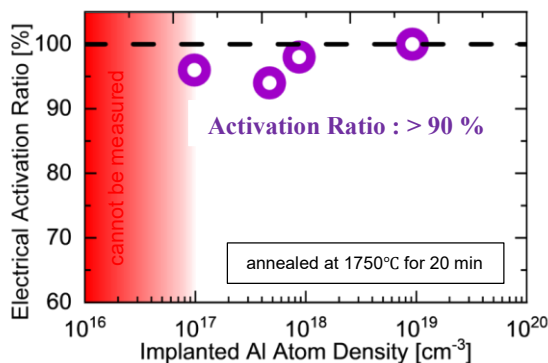


図5:注入したAl原子の電気的活性化率

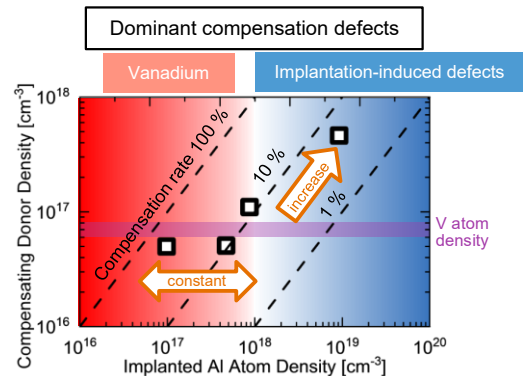


図6:注入したAl原子密度と補償欠陥密度の関係

(研究経過並びに成果報告)

本研究は、上肢の片麻痺等により自力での動作が困難な方々の日常生活動作（ADL）を支援することを目的とした、ウェアラブルエンドエフェクタ型の上肢アシストロボット「WELiBot」の設計と開発を主軸としている。2024-2025年度は試作機の製作・改良を目的として、重力補償機構の設計に取り組んだ。2025-2026年度は、重力補償機構の設計・解析及び重力補償効果の検証に取り組んだ。本報告では、2年間にわたる研究結果について述べる。

1. 上肢支援ロボットWELiBotの試作と初期評価

2024-2025年度には、図1に示す3自由度の並列リンク機構（4R-5R）を用いたWELiBotの実寸大プロトタイプ的设计・製作を行った。WELiBotは、円弧状のガイドレールをフレーム構造とし、2本の並列リンクを介してエンドエフェクタ（アームカフ）を支持・駆動する構造を持つ。リンクの一部に能動関節およびスライダ機構を配置し、これによりエンドエフェクタに図2で示す3自由度の運動（鉛直方向、半径方向、円周方向）を実現することが可能である。本試作機はコンセプトの検証と動作確認を主な目的としており、四分の一のガイドレールを製作し、アルミフレームに固定する構造で試作を行った。試作機の完成後には、健常者を被験者とした筋電位（EMG）測定による動作確認及び支援効果の評価実験を実施した。この実験では、ロボットによる腕の垂直上昇運動を支援した場合と、非支援の条件下における筋活動を比較した。その結果、上腕および前腕の筋活動が有意に低下することが確認され、WELiBotによる支援が動作負担の軽減に寄与することが示された。一方で、三角筋においては支援時の筋活動が非支援時と同等かやや増加する傾向も見られたため、アームカフの設計や身体との相互作用に関して改善の余地があることも明らかとなった。

上記の試作および初期段階における支援効果の評価に関する研究成果は、イタリアで開催されたIFIT2024において[1]として発表され、またジャーナル論文[2]として掲載された。

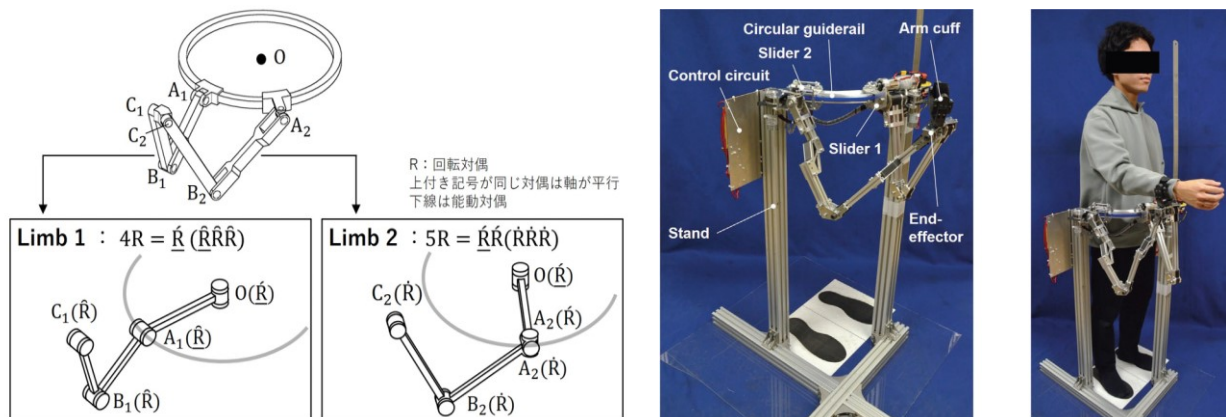


図1 設計・試作したWELiBot

2. 重力補償機構の設計と理論解析

試作機の開発および初期評価を通じて、ロボットの自重および被支援者の腕の重量に起因する負荷が大きく、モータの駆動トルクの低減および装置の軽量化が重要な課題であることが明らかとなった。そこで本研究では、ばねを用いた重力補償機構の導入に着目し、特に重力に影響される二つの動作、鉛直方向の持ち上げ動作と半径方向の到達動作に対して補償設計を行った。

本ロボットは並列機構であり、一自由度系に対して広く用いられている従来の重力補償手法をそのまま適用することは困難である。一方で、タスクレベルにおいて各動作が比較的独立しているという特徴を有しているため、本研究では各動作における重力ポテンシャルエネルギーの変化に着目し、それぞれの動作に対して独立に補償設計を行う手法を採用した。

具体的には、図3に示すリンク機構の幾何学関係に基づき、各動作におけるエンドエフェクタの鉛直位置と関節変数（関節角度およびスライダ変位）との関係を導出し、その変化に対応する重力ポテンシャルエネルギーを算出した。これに対し、ばねの弾性エネルギーが一致するように設計することで、動作中の重力影響をばねの弾性エネルギーに相殺する補償条件を導いた。

設計した補償機構について数値シミュレーションを行い、動作範囲全体における駆動トルクを評価した結果、鉛直方向動作および半径方向動作のいずれにおいてもトルクの低減が確認された。また、ばね定数や取り付け位置、リンク長さなどの設計パラメータが補償性能に与える影響を明らかにし、適切な設計指針を得た。これにより、並列機構型ロボットに対して、各動作を分離して重力補償を設計する手法の有効性を理論的および数値的に示した。重力補償機構の設計と理論解析で得られた研究成果は、オーストラリアで開催した国際学会ICM2025において[3][4]として発表され、会議論文集に掲載された。

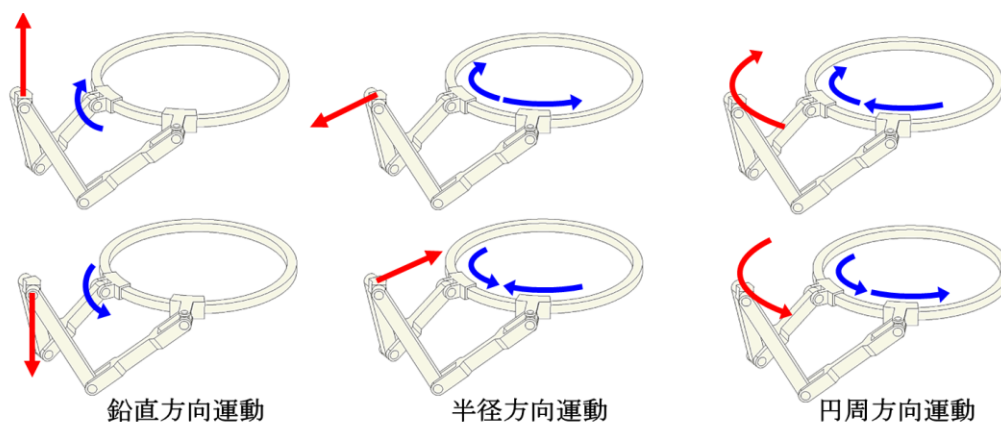


図2 WELiBot が実現できる3自由度の運動

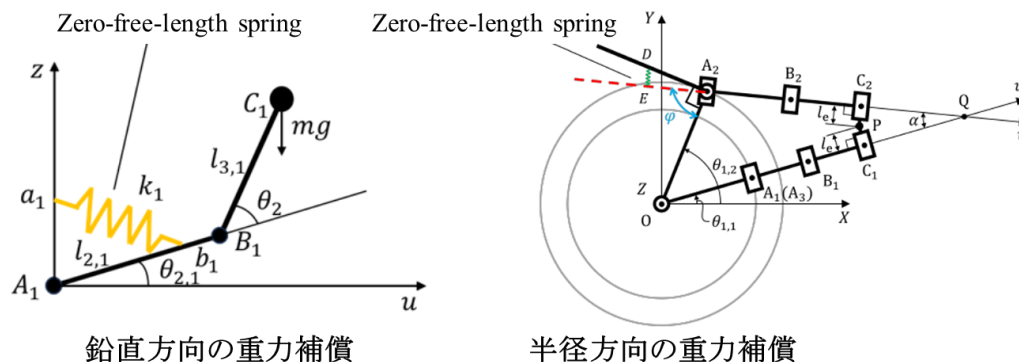


図3 鉛直方向と半径方向の重力補償設計

3. 重力補償機構の実機実装および検証実験

上記の設計結果に基づき、重力補償機構の実機実装を行った。鉛直方向動作に対しては、回転関節の運動に応じてばね力を変換するばね一歯車機構を設計し、関節角度に応じた補償トルクを生成する構造とした。一方、半径方向動作に対しては、スライダの移動に伴う非線形な位置変化に対応するため、ばね一カム機構を採用し、カム形状を設計することで動作軌道に適合した補償特性を実現した。

これらの補償機構は、いずれも既存のリンク構造に組み込むことを前提として設計されており、機構全体の大幅な変更を伴わずに適用可能なモジュールとして構成した。また、ばねやセンサ類を含む試作機の構築を行い、実際の動作条件下で評価可能な実験環境を整備した。

図4に示す試作した補償機構をロボットに組み込み、動作実験を実施した結果、補償機構導入前と比較して、駆動時のモータ負荷の低減が確認された。特に、電流値を指標とした評価において、動作中の負荷が全体的に低減される傾向が見られ、重力補償機構が有効に機能していることを確認した。これにより、提案した重力補償手法の実機適用可能性が実験的に検証された。

本研究は当初、制御手法の検討を中心とする計画であったが、研究を進めるに伴い、研究方針を調整した。本装置が並列機構であることから、既存の一自由度系に基づく重力補償手法の直接適用が困難であることが明らかとなったためである。その結果、ロボットの各動作における重力ポテンシャルエネルギーの変化に着目し、各動作を分離して補償設計を行う手法へと展開した。

この結果、設計の簡素化と実機への適用可能性を両立することができ、重力補償機構の有効性を確認するに至った。本成果は、今後の装置改良およびAssist-As-Needed制御の実現に向けた基盤となるものである。なお、本研究で得られた成果は現在論文として整理されており、英文の学術誌への投稿準備を進めている。

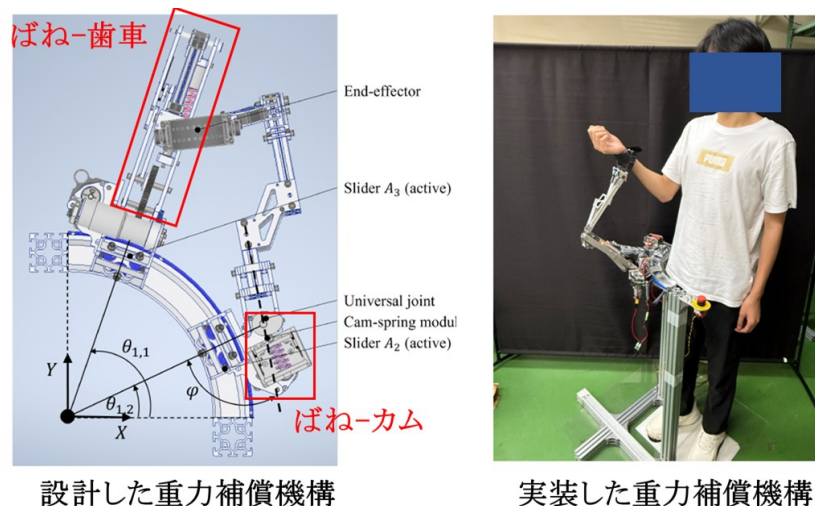


図4 重力補償機構の実機実装

4. 本研究と関連する研究業績

- [1] Ryohei Morita, **Ming Jiang**, Andrea Botta, Yusuke Sugahara, Giuseppe Quaglia, Marco Ceccarelli, Yukio Takeda, Design and Preliminary Testing of WELiBot: A Wearable End-Effector Type Upper Limb Assistive Robot, Mechanisms and Machine Science, pp. 67-75 July, 2024. https://doi.org/10.1007/978-3-031-64569-3_9.
- [2] **Ming Jiang**, Ryohei Morita, Yang Wang, Takashi Shinoda, Qizhi Meng, Andrea Botta, Giuseppe Quaglia, Marco Ceccarelli, Yukio Takeda, Design and analysis of WELiBot for assisting upper limb motion, Robotica, Jan. 2025. <https://doi.org/10.1017/s0263574725102476>.
- [3] **Ming Jiang**, Yang Wang, Qizhi Meng, Chin-Hsing Kuo, Marco Ceccarelli, Yusuke Sugahara, Yukio Takeda, Preliminary Investigation of Spring-Based Gravity Compensation for an Upper Limb Assistive Robot, , IEEE ICM2025, pp.1-6, Feb., 2025. <https://doi.org/10.1109/icm62621.2025.10934949>
- [4] Qizhi Meng, **Ming Jiang**, Ruijie Tang, Chin-Hsing Kuo, Marco Ceccarelli, Yukio Takeda, Design of A Novel Statically Balanced Mechanism for End-effector-type Upper Limb Assistance, IEEE ICM2025, pp.1-6, Feb., 2025. <https://doi.org/10.1109/icm62621.2025.10934923>

(研究結果報告)

本研究の目的は、できるだけ少ない回避行動と計測によって、移動ロボットを安全に目的地へと到達させる制御・計測手法を構築することである。この達成に向けて、本研究では衝突回避制御則の構築に取り組んだ。提案した衝突回避手法は国際学術雑誌[1]に掲載されたほか、本成果を含む発表を複数の招待講演[2], [3]において実施した。また、本研究で実施した関連研究調査の成果として、国内学術雑誌において解説記事を執筆した[4]。最後に、当初研究計画では想定していなかったものの、研究代表者の異動に伴って必要となった実験システムの構築を進めた。

まず、本研究では計測を少なくした場合に、ロボットの位置が確率分布として表現されるとした。この際、確率分布として正規分布を仮定した場合、ロボットや障害物がある確率以上で存在する領域は楕円体として表現される。この点に注目して、本研究ではロボットと障害物を楕円体として表現した上で、楕円体同士の衝突回避問題を考察した。

楕円体同士の衝突回避において、本研究では制御バリア関数とよばれる手法に基づいた制御則の構築に取り組んだ。制御バリア関数を用いた既存の衝突回避手法では、ロボットや障害物の形状が点や円といった互いの距離が解析的に求められる形状に近似できると仮定して構築されてきた。他方、楕円体同士の距離は解析的に求めることが困難であることが知られており、この難しさが楕円体同士の衝突回避手法を構築する上での課題となった。

上記課題を解決するために、本研究では図1(a)に示すように、一方の楕円体に対して支持超平面を用意し、その支持超平面ともう一方の楕円体までの距離を制御バリア関数として用いるという着想を得た。この際、支持超平面と楕円体までの距離は解析的に求まるものの、その距離は楕円体同士の実際の距離よりも短くなる。よって、そのままでは極めて保守的な衝突回避入力が生成されるという問題が生じた。そこで、図1(b)のように、支持超平面ともう一方の楕円体までの距離が最大化されるように支持超平面を回転させるという最適化問題を構築し、制御バリア関数に組み込んだ。この際、上記のように支持超平面を回転させることで、解析的に求めるのが困難であった楕円体間の距離が求まることを証明した。提案手法は、各ロボットでの分散的な計算により実装可能である上に、二次元の楕円・三次元の楕円体双方に対して統一的に扱える定式化をしている。本研究の有効性は、図2に示した車両系ロボットを含む様々な制御対象に対してシミュレーションにより検証した。本研究成果は、IEEE Transactions on Control Systems Technologyに掲載された(成果報告[1])。

上記シミュレーションで示された通り、車両といった細長い形状をもつロボットをはじめとして、楕円体としてその形状を良く近似できるロボット同士の衝突回避にも提案手法の有効性が示された。この衝突回避手法を含んだ研究発表を、計測自動制御学会制御部門の部会における講演会と株式会社デンソーアイティラボラトリを主催とする講演会それぞれにおいて実施した(成果報告[2], [3])。

本研究を進めるうえで、申請者は制御バリア関数を用いた安全性の担保といった研究の実施、および調査をした。これに伴って得られた知見を所属学会において広く共有するために、国内学術雑

(研究経過並びに成果報告)

誌において解説記事を執筆した（成果報告[4]）。この解説記事では、本研究で用いた制御バリア関数が、複数台のロボットに対する協調制御という枠組みにおいても安全性の担保やタスクの達成といった観点で有効であることを紹介した。

最後に、2025年10月に研究代表者が異動したことに伴い、本研究における実験システムを新たに構築する必要が生じた。現時点では、図3に示す通り、ドローン飛行時の安全確保を目的としたゲージを設置した段階である。今後、構築したゲージにドローンの位置・姿勢計測を目的としたモーションキャプチャカメラシステムを導入する予定である。

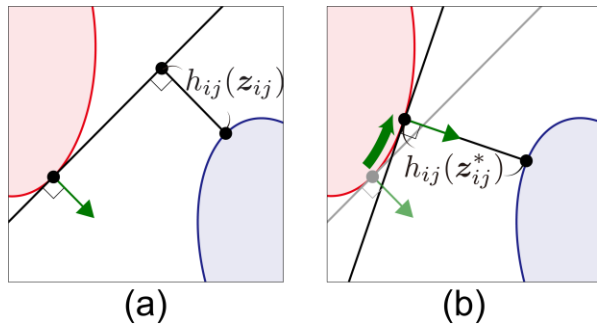


図1：提案手法における指示超平面の動きと制御バリア関数 $h_{ij}(z_{ij})$ の関係

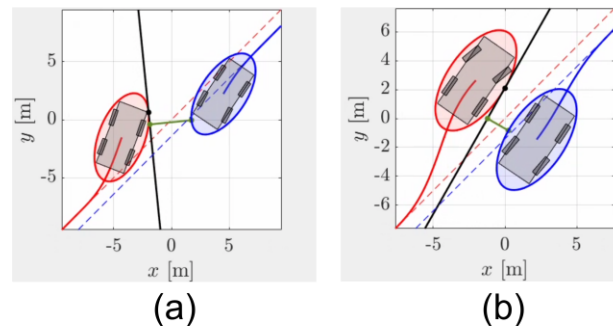


図2：提案手法による車両の衝突回避
(動画は成果報告[1]のURLを参照のこと)

本研究で得られた成果は、様々な形状のロボットが外界や他ロボットとの衝突を実時間計算で防ぐことができるものである。また、位置計測によってその分散が変わる正規分布を楕円体として模擬することによって、計測量を削減、すなわち分散が大きな状態となったロボットに対する衝突回避制御を今後構築する上で、基盤となる成果だと考えられる。

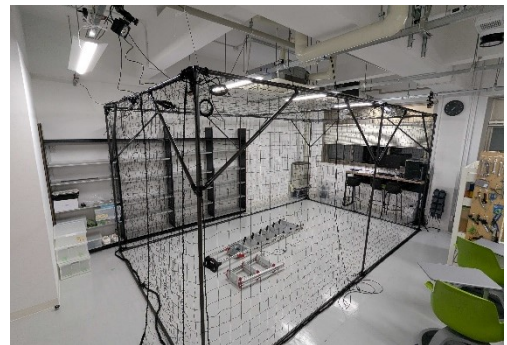


図3：構築中のロボット実験場

【成果報告】

[1] R. Funada, K. Nishimoto, T. Ibuki and M. Sampei, "Collision Avoidance for Ellipsoidal Rigid Bodies With Control Barrier Functions Designed From Rotating Supporting Hyperplanes," IEEE Transactions on Control Systems Technology, vol. 33, no. 1, pp. 148-164, 2025. (国際学術雑誌)
URL: <https://doi.org/10.1109/TCST.2024.3467809>

[2] 船田陸, “制御バリア関数を用いた制約に基づくマルチロボット制御,” 研究会: 「制御, 情報, 学習のディープシンセシス」 (主催: 計測自動制御学会・制御部門・プラントモデリング部会), 2025年6月10日. (招待講演)

[3] 船田陸, “制約に満ちた世界でロボット群を協調させる制御に向けて,” DENSO ITLAB Tech Conference: AI × Control Conference 2025, 2025年12月3日. (招待講演)

[4] 船田陸, 山内淳矢, 畑中健志, “制御バリア関数に基づく制約付きマルチロボット制御,” システム/制御/情報, vol. 69, no. 2, pp. 41-46, 2025. (国内学術雑誌・解説記事)

URL: https://doi.org/10.11509/isciesci.69.2_41

7. 最密充填粉末床の作製および高精度な熱履歴制御によるセラミックス溶融積層造形手法の開発

東京科学大学 工学院機械系 助教 徳永 大二郎

(研究結果報告)

本研究は、セラミックスのレーザ溶融積層造形を目的として、粉末床、さらにはシート積層（加圧粉末床）法による造形を検討する。また、レーザ照射条件による高密度な造形手法を開発する。初年度は粉末床より扱いが容易と考えられる、粉末を加圧もしくは押出成形したグリーン体の溶融凝固挙動の観察を行い、より適した被加工対象を検討した。また、グリーン体に対する熱履歴制御の検討を行うため、加工の様子をin situ観察することで、レーザ照射条件が溶融プール内で発生する気泡の挙動に与える影響を明らかにし、気泡挙動の制御を試みた。

次年度は粉末床溶融積層造形を目指して、加圧により密充填された粉末床に対して様々な条件でレーザ照射を行い、その様子をin situ観察およびX線CT画像を得ることで、緻密な造形物を得ることを目的とした。

・加圧粉末床の溶融プールin situ観察

直径 $17\mu\text{m}$ 程度のアルミナ粒子は粉末床用の粉末として用いるには粒径が小さいため、流動性が低く、Balling effectなど様々な問題を引き起こす。そこで内径が 16mm のパンチとダイを用いて 300MPa で加圧して、緻密な粉末床を得た。この粉末床に対して CO_2 レーザを出力 $26\sim 82\text{W}$ 、レーザ走査速度を $0.6\sim 6.0\text{mm/s}$ で走査した。波長は $10.6\mu\text{m}$ である。焦点距離 100mm のレンズで集光して、スポット径は計算値で約 $400\mu\text{m}$ とした。積層造形におけるエネルギー制御の指針として広く用いられるNormalized Enthalpyが統一されるように出力と走査速度を変化させた。

初年度の成果により、酸化物セラミックスであるアルミナは近赤外光を用いたin situ観察が可能である。そこで、観察系を粉末床に対して斜め上に設置することで、粉末床における溶融プール内部を観察した。図1に試料および実験系の模式図を示す。

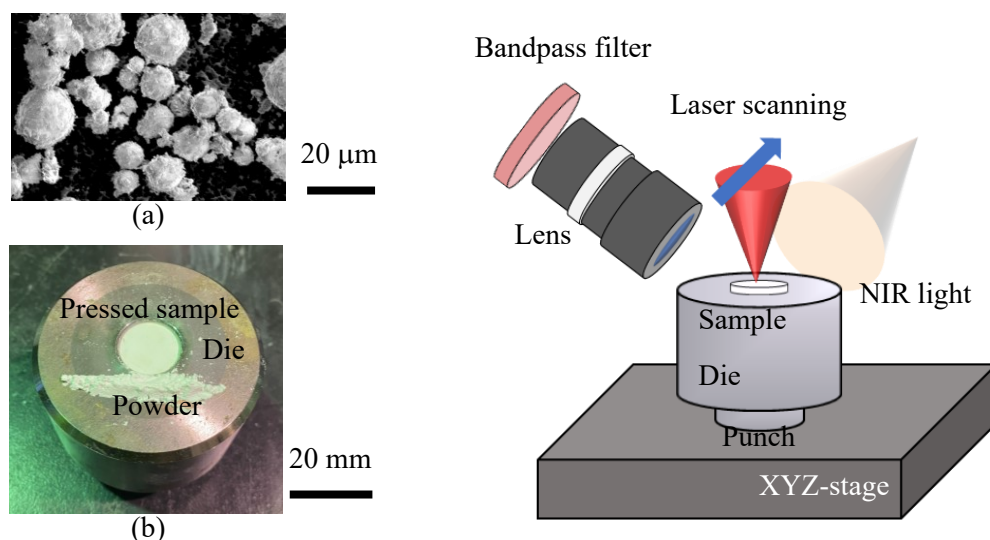


Fig. 1 Experimental setup: (a) SEM image of the powder, (b) pressed sample, (c) apparatus.

(研究経過並びに成果報告)

図2に観察結果を示す．それぞれ溶融プール内部の気泡が可視化されている．白点線は凝固界面を示す．黒点線矢印は代表的気泡の移動経路を示す．(a)のように低走査速度では気泡は溶融プール内部を移動せず，レーザの移動方向に追従する．(b)，(c)では，気泡は溶融プール内部を界面に沿って移動し，その後にレーザ照射点付近に移動するような旋回運動をするか，(c)の拡大図のように凝固界面に捕捉される．また凝固界面から発生する気泡も観察できる．

図3に各試料をX線CTにより観察した画像の断面を示す．(b)，(c)のように著しい気泡の発生および移動が観察された実験条件においては，凝固組織にも大量の気孔が生成されている．しかし，(a)のように低速走査では凝固組織に捕捉される気泡は観察されず，断面にも気孔が生成されない緻密な組織を得ることができる．

これらより，アルミナの加圧粉末床に対して適切なレーザ照射条件を設定することで，気孔の無い緻密な凝固組織を作製することに成功した．今後は複数の層を作製する予定である．また，in situ観察による気泡挙動と凝固組織内の気孔分布には相関があることがわかっているため，今後はより詳細に気泡挙動を制御することで，高走査速度でも気孔が発生しないレーザ条件を模索する．

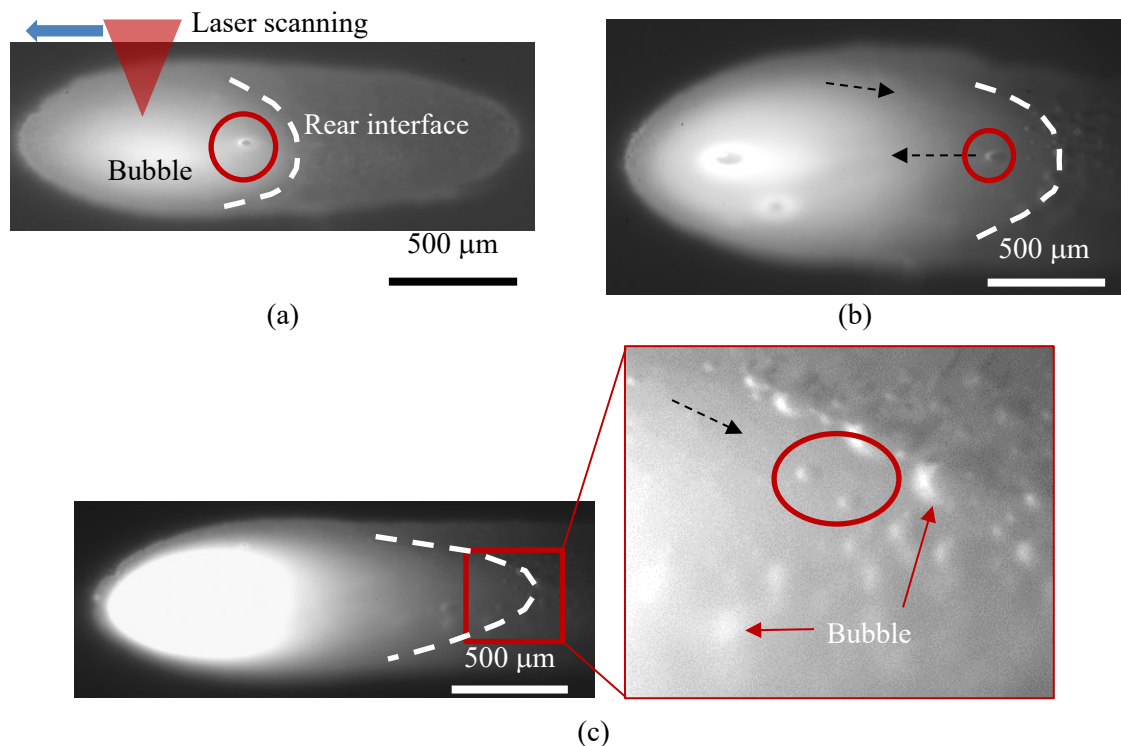


Fig. 2 High-speed images of molten pool generated by different laser power and scanning speed: (a) 26 W–600 μm/s, (b) 47 W–2000 μm/s, (c) 82 W–6000 μm/s.

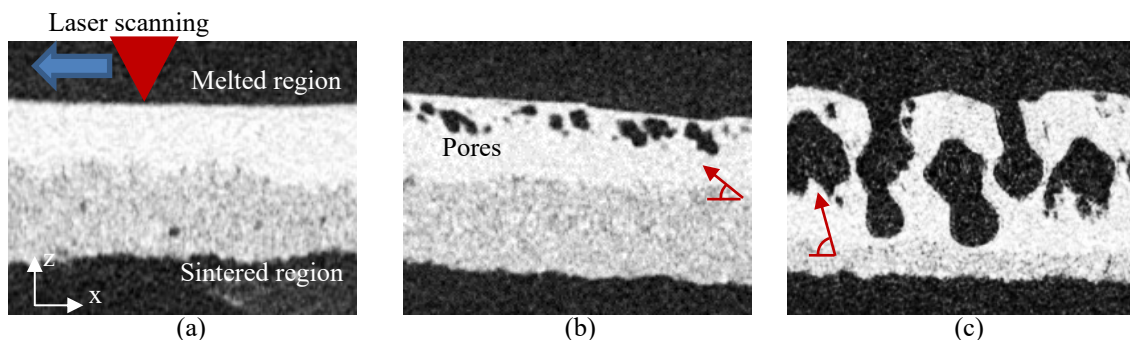


Fig. 3 X-ray CT images: (a) 26 W–600 μm/s, (b) 47 W–2000 μm/s, (c) 82 W–6000 μm/s.

8. グルコース転移酵素XgtAを利用した有用 α -グルコシドの選択的生産法の確立

早稲田大学 先進理工学部 助教 曹 偉

(研究結果報告)

アルキルグルコシドは、アルコールとグルコースがグリコシド結合した配糖体の一種であり、界面活性作用に加えて多様な生理作用を有する化合物群である。特に、アルキル基の炭素数が6以上のものは高い起泡性および泡安定性を示し、乳化剤、分散剤、膜タンパク質可溶化剤などとして利用されている。このため、アルキルグルコシドは食品、化粧品、医薬品、洗剤など幅広い分野で用いられている。近年では、生分解性や安全性に優れることから、環境調和型界面活性剤としても注目されている。

申請者は、アルキル α -グルコシド (α -AG) の一種であるエチル α -グルコシド (α -EG) に着目している。 α -EGは日本酒やみりんなどに含まれ、甘味に加えて穏やかな苦味やコク味を呈する化合物である。また、保湿作用や整肌作用などの生理機能を有することから、食品のみならず化粧品分野への応用も期待されている。そのため、 α -EGを低コストかつ効率的に大量生産する技術の確立は、産業的にも重要である。アルキルグルコシドの製造には主に化学合成法が用いられているが、副生成物の生成や精製工程の複雑化といった課題がある。一方、酵素反応を利用した生産法は、温和な条件下で高い基質特異性および立体選択性を示すため、副生成物の少ない効率的な生産が可能である。

当研究室では、*Xanthomonas campestris* WU-9701由来のグルコース転移酵素XgtA (EC 3.2.1.20) について、酵素学的性質の解析および遺伝子クローニングに成功している。XgtAは、マルトースを糖供与体、アルコール類やフェノール類を糖受容体として利用し、副生成物としてマルトオリゴ糖をほとんど生成することなく、受容体分子へ選択的にグルコースを転移できる特徴を有する。この特性は目的物収率の向上や精製工程の簡略化につながるため、工業的利用に有利である。

そこで本研究では、XgtAを利用した高付加価値アルキル α -グルコシドの生産性評価および効率的生産法の確立を目的とした。さらに、酵素の再利用性向上や安全性確保、低コスト化を目的として固定化酵素法の導入を検討し、高効率な生産システムの構築を目指した。

以上より、本研究では、(1) XgtAを用いた高付加価値アルキル α -グルコシドの生産性評価と効率的生産法の確立、ならびに (2) 固定化酵素技術を活用した安全性の高い低コスト・高効率生産システムの構築を目的として研究を遂行した。これにより、食品・化粧品分野への応用拡大に加え、環境負荷の低減に資する持続可能なバイオプロセスの実現に貢献することが期待される。

本年度 (2025年度) の研究では、昨年度に続き、主に (1)として、生理機能などを持つ高機能性化合物に対する基質特異性、すなわち糖受容体としての利用可能性についての検討、および (2) として、XgtAのタンパク質発現量の最大化を検討した。

(1) 高付加価値を持つアルキル α -グルコシド生産性の確認とこれらの効率的な生産法の確立

昨年度の研究では、従来確認されていた炭素数C2～C10の直鎖アルコールに加え、分岐鎖アルコールおよび2級・3級アルコールに対するXgtAの基質特異性について検討した。特に、炭素数6以下の2級・3級アルコールを糖受容体として用い、さらに未検討であったメタノールに対するグルコース転移反応についても評価を行った。

(研究経過並びに成果報告)

その結果、XgtAは直鎖アルコールのみならず、分岐構造を有する2級・3級アルコールのような立体的に嵩高い基質に対してもグルコース転移活性を示すことが明らかとなり、幅広いアルキル α -グルコシド合成への応用可能性が示唆された。

本年度は、生理機能を有する高機能性化合物として(-)- α -Bisabololに着目した。(-)- α -Bisabololは、皮膚刺激緩和作用や抗炎症作用などを有し、薬用化粧品成分として広く利用されている。しかし、(-)- α -Bisabololは水溶性が低いため、製剤化に際して界面活性剤の使用が必要となる場合が多く、さらに皮膚への浸透性にも課題がある。そこで本研究では、(-)- α -Bisabololの水溶性向上および機能性改善を目的として、グルコシド化反応の検討を行った。

XgtAを用いて(-)- α -Bisabololのグルコシド化を試みたところ、目的とするグルコシド化産物の生産は確認されなかった。これは、(-)- α -Bisabololが嵩高い構造を有するため、XgtA活性部位への基質結合性や反応時の基質配向が十分ではない可能性が考えられた。そこで、(-)- α -Bisabololに対する糖転移活性の向上を目的として、XgtA変異体の作製を検討した。

変異導入部位の選定にあたっては、分子動力学 (MD) シミュレーションを実施した。複合体モデルとして、XgtA-oxocarbenium ion-(-)- α -Bisabololからなる反応中間体モデルを構築し、活性部位における基質の結合挙動について解析を行った。具体的には、糖供与体と糖受容体との反応に重要と考えられる結合距離の推移、および各アミノ酸残基と基質との相互作用エネルギーを評価した。その結果、基質近傍に位置するF165、F228およびF295の3つのフェニルアラニン残基が、(-)- α -Bisabololの結合安定性や反応時の配向制御に関与している可能性が示唆された。特に、これらの芳香族側鎖が基質周辺の空間を制限することで、適切な反応配置の形成を阻害している可能性が考えられた。

そこで、AlphaFold3を用いて、F165、F228およびF295をそれぞれ他の19種類のアミノ酸へ置換した変異体モデルを構築した。さらに、各変異体について同様にMDシミュレーションを実施し、反応に重要な結合距離の変化を指標として変異体の評価を行った。その結果、合計11種類の変異体において、野生型XgtAと比較して基質間結合距離の短縮が確認され、反応性向上の可能性が示唆された。選抜した11種類の変異体を実際に作製し、(-)- α -Bisabololを糖受容体としたグルコシド化反応を評価した。しかしながら、現時点では十分なグルコシド生産性の向上には至っていないことが明らかとなった。以上の結果より、単一アミノ酸置換のみでは活性部位空間や基質配向の最適化が不十分である可能性が示唆された。今後は、複数残基を同時に改変した二重変異体および三重変異体の設計・作製を進めるとともに、それらの糖転移活性を詳細に評価することで、(-)- α -Bisabololに対する効率的なグルコシド生産系の構築を目指す予定である。

(2) 固定化酵素による生産による安全性の確保や安価かつ効率的な生産法の確立

2025年度では、XgtAの固定化と、固定化XgtAによる α -EGの効率的生産を検討し、 α -EGの安価かつ大量供給に貢献する生産技術の開発に成功した。本年度では、更なる効率的な生産を実現することに向けて、XgtAの発現量を最大化する課題について検討を行なった。

XgtAの発現量を増大するために、XgtAをコードする遺伝子 $xgtA$ に対してコドン最適化を行った。コドン最適化の結果、コドン適応指標 (CAI) は最適化前の0.71から0.74に上昇し、実際に酵素を発現したところ、無細胞抽出液 (CFE) 中のグルコシダーゼ活性が最適化前の約3.5倍に増加しており、SDS-PAGEでも最適化後のXgtAの発現量が増加したことを確認でき、コドン最適化によるXgtAの発現量の増大に成功した。

以上の結果より、本研究で得られた知見は、XgtAの基質認識機構の理解深化に加え、難水溶性機能性化合物に対する効率的なグルコシド化合物生産法の開発へ展開できる可能性を示した。