

審査の結果の要旨

氏名 石居拓己

本論文において、学位請求者（石居拓己）は自然界における鉄イオンを介した生物学的CO₂還元の観点から鉄酸化化学独立細菌の炭素固定能について論じ、これらの菌体による電気化学的な有機物生産を駆動するとともにそのメカニズムを明らかにすることを目的として研究発表を行った。本論文は以下の5章から構成されている。

第1章では、研究の背景、目的、及び概要が論じられている。自然界における炭素固定に関わるエネルギー代謝について解説し、中でも光合成生物との比較のうえで鉄酸化化学独立細菌のもつ独特の電子昇圧機構について論じた。さらに、電気化学的に鉄酸化化学独立細菌によるCO₂還元を行うことで、生物の代謝を物理化学的に理解することができ、物質生産にも応用可能であるとして意義付けが示されている。

第2章ではモデル微生物である酸性鉄酸化化学独立細菌 *A. ferrooxidans* を、鉄イオンを含む培地で電気化学的に培養し、振盪培養に対する優位性を明らかにする検討を行った。まず、振盪培養および電気化学培養によって、系中の有機炭素濃度が上昇することを明らかにした。このような条件で振盪培養系では電子源である Fe²⁺が消費され枯渇することで有機炭素濃度の上昇が停止するが、電気化学培養では連続的な有機物生産が行われることを示した。次に生産された有機物の一部がピルビン酸として溶液に放出されることを明らかにし、ピルビン酸の代謝への影響を論じている。電気化学培養と振盪培養のそれぞれの系にピルビン酸を加え、電気化学培養条件ではピルビン酸による代謝抑制の効果が弱まることを示し、電気化学培養の優位性が示された。

第3章では、*A. ferrooxidans* の代謝系として電極から直接電子を引き抜くプロセスが存在するという仮説を立て、鉄イオンを含まない培地を用いた電気化学培養を試みた。このようなカソード型の電子伝達（細胞外電子移動）は、近年有

機物生産や微生物腐食などの分野で着目されている。本章では、このプロセスの存在を示すとともに、このような条件下での電子伝達について検討を行った。まず、電気化学リアクターに *A. ferrooxidans* の菌体を入れ、電極に直接接触させることで還元電流の生成を観測した。ここで観測された電流は+0.82 V vs. SHE から立ち上がり、微生物によって代謝可能な還元力の電位限界が示された。続いて、代謝阻害剤を用いることで、電子伝達経路の同定が行われた。阻害剤として KCN、CO を用いることで aa3 複合体が代謝に利用されていることを明らかにし、Antimycin A を用いることで bc1 複合体が利用されていることを明らかにした。これは、代謝プロセスとして鉄イオンの酸化と同様の電子伝達経路が利用されていることを示唆している。更にこの代謝プロセスにおいて、菌体増殖が行われていることを観測し、空気中の CO₂ が還元されていることを示した。これらの結果から、*A. ferrooxidans* には固体電極を直接酸化し、引き抜いた電子を利用する代謝経路があることが示された。

第 4 章では、中性鉄酸化化学独立細菌において、固体との間の電子の授受について、検討を行った。中性鉄酸化化学独立細菌 *M. ferrooxydans* を用いて電気化学培養を行い、+0.63 V vs. SHE から代謝が行われることが示された。中性鉄酸化化学独立細菌の場合、固定した有機物が多糖のポリマーとして放出されることが知られており、電気化学培養においても同様のポリマー生成が行われていることを実験的に確かめた。

第 5 章では、本研究の総括が行われ、研究の意義として、今後カソード型の細胞外電子伝達の検討や深海生態系の代謝プロセスの解明などに展開可能であることが示されている。

以上の内容から、本論文は鉄酸化化学独立細菌に着目して新しい代謝系を示すとともに電気化学的に有機物合成を駆動し、今後の有機物生産や生態系の理解の上で重要な成果を提供した。また、鉄酸化化学独立細菌が直接カソード型の細胞外電子移動能を持つことを示した成果は、生物学的二酸化炭素固定に関わる電子伝達経路の観測ならびに制御法の開拓につながると期待される。よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。