

## 審査の結果の要旨

氏名 付 乾

当該博士論文は、微生物による電気化学的メタン生産を利用した二酸化炭素の新規変換・利用技術システム開発のための基礎的研究を主題とするものである。ここで研究対象とする電気化学的メタン生産は、微生物を触媒としたカソード電極（バイオカソード）反応によるものであり、電気エネルギーを駆動力として二酸化炭素をメタンへと還元する。本論文は、この萌芽的技術シーズを「二酸化炭素回収・貯留によって地中貯留された二酸化炭素をメタンへと変換して再利用する」システムの中核として技術化することを全体構想としている。

本論文は、地下環境における電気化学的メタン生産の技術利用を目的に、触媒となる微生物系の解析、地下微生物系の調査、実験室レベルでのバイオカソードの構築と検証を行っており、具体的には

- 1) 電気化学的メタン生産を触媒する中温性微生物系の解析
- 2) 微生物燃料電池リアクターを用いた好熱性電子放出細菌の探索
- 3) 水素生産を触媒する好熱性バイオカソードの構築と解析
- 4) 電気化学的メタン生産を触媒する好熱性バイオカソードの構築と解析

に関する研究成果を纏めたものである。

まず項目1)では以後の項目に必要な基礎的知見として、電気化学的メタン生産の反応素子である微生物系の構造を明らかにした。一般的に用いられている中温性微生物群を菌源として電気化学的メタン生産活性を持つバイオカソードを構築、カソード上の微生物系の構成種を解析し、「メタン生成古細菌（メタン菌）」と「電子放出細菌」の2つの微生物種が触媒としての機能に必要であることを示した。この内、メタン菌に関しては地下で利用可能な好熱性種が多数知られているが、好熱性の電子放出細菌は殆ど見つかっていなかった。そこで項目2)では高温環境（油田貯留層、高温性消化汚泥等）から微生物サンプルを採取し、それらの電気化学的活性を微生物燃料電池リアクターを用いて検証した。その結果、調査した全てのサンプルで活性が検出され、地下を含む高温

環境中での電子放出細菌の遍在性が示された。また新規の好熱性電子放出細菌を複数種発見した。

項目3) 4) では、高温環境下で水素とメタンの生産をそれぞれ触媒するバイオカソードを初めて構築し、性能評価と実用化を見据えた課題抽出を行っている。項目3) で検証した水素生産を触媒するバイオカソードでは、発生した電流が水素生産に利用された効率(電流-水素変換効率)は約80%であり、希金属触媒に匹敵する触媒活性が示された。また、同バイオカソードでは電気化学的活性が知られていない微生物種の優占化が見られ、多様な好熱性微生物が電気化学的反応の触媒能を持っている可能性が示唆された。項目4) では、実際に地下に由来する微生物群を菌源として電気化学的メタン生産を触媒するバイオカソードを構築した。このバイオカソードは既往研究中で最も高い電気化学的メタン生産速度を示し、更に電流-メタン変換効率はほぼ100%であった。同バイオカソードにおける反応の電気化学的特性を解析したところ、電位に依存して異なる経路で反応が起こっている可能性が示唆された。

以上の研究成果により、電気化学的メタン生産を触媒する微生物系に関する理解が顕著に進み、技術化への基盤となる知見が多く得られた。更に好熱性微生物がバイオカソードの反応素子として高い機能性を有している事が示され、電気化学的メタン生産の地下環境における技術利用と二酸化炭素変換・利用技術としての実用化の有望性が示唆された。これら好熱性バイオカソードから得られた知見と反応素子である微生物系を基点に、技術化へ向けた反応システムの高効率化、最適化を行う発展的研究が提案された。

論文審査会においては、上記のような研究成果と今後の研究展開について論文提出者より説明があり、その後審査委員よりその内容についての諮問が行われた。当該論文では大きく分けて、電気化学的メタン生産の反応機構と好熱性バイオカソードの性能評価の2点が議論されている。前者の反応機構に関して、分子レベルでの反応経路、電極表面での微生物の増殖ならびに吸着について質疑応答があった。また、後半の好熱性バイオカソードの性能評価に関しては、実用化を想定した反応系のエネルギー収支とその評価方法についての議論があった。何れの質疑に対しても、妥当な回答ならびに今後の発展的研究指針が論文提出者より適切に示された。また、当該論文には、新規性・有用性・外部発表実績が十分に備わっていることも確認された。

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。