

## 審査の結果の要旨

氏名 西尾 晃一

本論文において、学位請求者（西尾 晃一）は、外膜シトクロムを有する特殊な微生物の細胞外電子移動に基づいた従来の電気化学系を、一般微生物を用いた電気化学系に拡張することを目的とした研究発表を行った。本論文は以下の4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おり、近年までの関連論文の成果や問題点などが明確にされ、本論文の研究の意義づけが明確にされた。

第2章では、外膜シトクロムを有する金属還元細菌と光合成微生物との共生に基づく微生物太陽電池の構築が行われた。第1節では金属還元細菌と光合成微生物が自然界において共生関係を構築している自然微生物群集を、そのまま電極触媒として利用することで、微生物太陽電池の構築が行われた。これは、微生物共生系を用いることで微生物太陽電池を構築できることを初めて実証する結果である。この微生物太陽電池の性能を示す光電変換効率は0.03%と低く、光電変換効率の向上が課題であることが見出された。第2節においては、光合成微生物(*Chlamydomonas*)と金属還元細菌(*Geobacter*)を人為的に共生させた二者共生系を利用することで微生物太陽電池が構築された。この微生物太陽電池の光電変換効率は0.1%となり、自然群集を用いた場合と同程度であることが示された。光電変換効率を低下させる要因として、光合成微生物の有機酸生産効率が小さいことが明らかとされた。この原因は、光合成産物が主に澱粉として細胞内に蓄積し、細胞外へと分泌されないためであることを指摘した。これをもとに、第3節では光合成微生物の細胞内に蓄積したバイオマスを分解し、乳酸発酵することのできる細菌(*Lactobacillus*)の利用が検討された。その結果、光合成微生物のバイオマスが高効率に有機酸へと変換され、このエネルギー変換系の光電変換効率が0.47%となり、大きな効率向上が達成された。以上の成果は、金属還元細菌により従来構築されていた微生物燃料電池（有機物をエネルギー源として発電する燃料電池）を、光電変換系へと拡張する成果であるといえる。

第3章においては、生体親和型メディエーターを利用することによって外膜

シトクロムを持たない一般微生物の電気化学的代謝制御系が構築された。第1節では、一般微生物の細胞外電子移動に用いられてきた従来のメディエーター分子は細胞毒性が高いという本質的な欠点をもつことが指摘され、これを受け細胞膜透過型の生体親和型メディエーターが合成された。具体的にはリン脂質分子を模倣した構造を持つMPCの生体親和性に着目して、MPCとビニルフェロセンとの共重合体(PMF)が合成された。PMFが細胞膜構造の異なる2種類の細菌に対して膜透過性をもち、細胞外電子移動を媒介できることが示され、PMFの細胞毒性は極めて小さいことが示された。第2節ではこのPMFを用いることによって、ポリヒドロキシ酪酸(PHB)生産菌(*Ralstonia*)のPHB生産代謝を電気化学的に活性化できることが見出された。この成果は遺伝子操作を加えた場合と同程度の活性化効果を、遺伝子操作以外の方法で達成した画期的な成果である。活性化のメカニズムには細胞外電子移動によるNADH酸化による解糖系の促進のほか、活性酸素発生の抑制効果の関与が指摘された。第3節では、シアノバクテリア(*Synechococcus*)概日リズムの*in vivo*電気化学的計測が行われた。概日リズム制御に関与しているプラストキノンの酸化還元電位に注目して、オクタメチルフェロセンを骨格にもつMe8-PMFが新規に合成され、シアノバクテリアの細胞外電子移動に用いられた。このメディエーターを用いて開放電位を測定し、開放電位に約24時間の振動が現れることが示された。この振動は温度補償性が確認されたため、概日リズムであることが確認された。この開放電位の振動は、クロロフィル蛍光観測によりプラストキノンの酸化還元状態の振動と同位相であることが示された。さらに、時計遺伝子欠損株においても電位振動が観測され、時計遺伝子とは別の代謝リズムが電位振動に反映されていることが見出された。この結果は代謝の概日リズムが細胞外電子移動によって開放電位として*in vivo*で計測できることを初めて示す結果である。以上の成果は、従来の知見である、外膜シトクロムを有する微生物の電気化学的代謝制御系を、一般微生物へと拡張する成果であるといえる。

第4章では、本研究の総括、及び、今後の展望が論じられた。

本論文における、以上の細胞外電子移動に基づいた電気化学系は、電気化学を基礎とした生物の利用・解析技術の発展に大きく貢献する、素晴らしい成果であるといえる。

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。