

氏名(国籍)	林	彬	(中国)
学位の種類	博士(農学)		
学位記番号	博甲第3538号		
学位授与年月日	平成16年3月25日		
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当		
審査研究科	農学研究科		
学位論文題目	<i>Chlorella</i> の光水素発生に関する装置工学的研究		
主査	筑波大学教授	工学博士	向高祐邦
副査	筑波大学教授	農学博士	臼井健二
副査	筑波大学助教授	工学博士	小嶋英一
副査	筑波大学教授	農学博士	木村俊範

論文の内容の要旨

微細藻による水素ガスの生成に関しては、水素発生のために必要な電子を水から供給する光水素発生と、細胞内の内部還元物質を電子供与体とする暗水素発生との2種が知られており、前者は水素発生の原料が安価である一方、同時に発生する酸素によるヒドロゲナーゼの失活を回避する手段が必要である。本研究は、緑藻 *Chlorella* による光水素発生において、光合成によって供給される電子が、水素発生と炭酸固定回路に競争的に分配される点に着目し、目的の光水素発生速度を最大化するための方策を、装置工学的な観点から検討している。以下にその概略を述べる。

Chlorella による光水素発生は、藻細胞を20h以上暗嫌気条件下に保持し、水素発生に必要な酵素ヒドロゲナーゼを誘導させた後、酸素吸収剤を添加する系について検討している。光照射条件は培養槽壁の一部を光不透過性の膜で遮光し、光照射体積比を17-100%に変化させ、光水素発生速度の経時変化を観測した。光水素発生速度は初期に短時間のピーク値を示した後、定常速度を40h以上維持した。定常期における光水素発生速度は、光照射体積比が小である場合ほど高くなるという知見を得た。これは通常の光化学反応と逆の傾向であり、この理由を考察するため藻細胞中のクロロフィルaからの蛍光誘導曲線を測定し、光水素発生と光合成電子伝達特性との関係を検討した。蛍光誘導曲線を得る際に、培養装置から採取した藻細胞を暗所に適応させる時間(τ)を30s-10minに変化させたところ、 τ が30sの短い場合、藻細胞が示す誘導曲線中のパラメータ、山-I及びPの高さは培養装置内の光強度に対応して決定されることが明らかとなった。また藻細胞単位重畳当りの光水素発生速度は、これらのパラメータの値に比例することを見出した。一方 τ が10minの場合、蛍光誘導曲線は光照射条件に関係なく、長時間暗所に適応させた細胞特有の高い山-Iを有する型を示した。これらの結果から、光照射培養槽を部分遮光するという物理的な手段により、光合成電子伝達系においてフェレドキシンを経由し競合する二つの回路において、炭酸固定回路への電子の流れを抑制し、光水素発生速度を増加させ得ると結論している。

以上で述べた *Chlorella* による光水素発生と光合成電子の分配について、フェレドキシン及びフェレドキシン還元酵素に作用する2種の阻害剤、ピロリン酸ナトリウム及びヘキサシアノクロム酸カリウムの効果を調べた。これら2種の阻害剤を光水素発生定常期に添加することで光水素発生速度が増加し、同時に測定し

たクロロフィル a の蛍光誘導曲線の型から、発生速度の増加は炭酸固定回路への電子の流れが抑制されたことによると結論した。

光照射分割円筒型エアリフト培養槽に関して、装置特性の検討を行なった。液循環速度は通気速度の増加とともに増加し、一定値に達することを示した。液流速変動に関し一次元パワースペクトル分布を測定し、気泡塔型培養槽におけるそれと比較し、エアリフト型装置において上昇流部で気泡塔型装置より強い乱れが発生している一方、下降流部で乱流強度が低いなどの知見を得た。装置内の光強度分布を微小な光プローブで測定し、部分遮光した場合に藻細胞が装置内を循環し明所を通過する時間を求めた。エアリフト型培養槽において藻細胞が明所で光照射される時間は最大約 2s で、蛍光測定から得られたフェレドキシン還元酵素が光によって再活性化する時間 (5s) より短く、光水素発生速度は光照射時間が短いほど大となるという結果を得た。

審 査 の 結 果 の 要 旨

本論文の主目的は、微細緑藻 *Chlorella* による光水素発生に関して、光合成電子伝達系において電子がフェレドキシンを経て光水素発生と炭酸固定回路の二つに競争的に分配されることに着目し、光水素発生速度を増加させる方策を装置条件と関連づけて検討することにあり、所期の目的を達成している。

藻単位重量当りの *Chlorella* による水素発生速度については、光照射気泡塔型培養槽の装置壁を部分遮光して検討した結果、通常の光化学反応とは異なり、光を利用した水素発生であるにもかかわらず、部分遮光により水素発生速度が増加するという結果を得ている。この理由を検討するため、暗所に適応させた藻細胞のクロロフィル a からの蛍光を測定した。この方法において従来、蛍光測定時に暗所に適応させる時間 τ は 5min 以上とされてきたが、この研究においては 30s という短時間に設定している。これにより培養装置内の平均光強度に応じた藻細胞の電子伝達特性の観測が可能となり、装置を部分遮光した場合の方が装置内で暗所に適応した藻細胞の割合が多いことを見出した。これらから暗所に適応した藻細胞が明所に運ばれたときに電子が水素発生に多く分配されるという機構を提唱し、部分遮光の効果を説明している。これらの結果は、微細藻による光水素発生についての、実用的見地からの有用な指針を与えるものであり、高く評価できる。

さらに光合成電子の分配に関し、フェレドキシンを経由して炭酸固定回路へ伝達される電子の流れに対する阻害剤を添加することで、光水素発生速度を増加させ得ることを示し、部分遮光と同様な機構が作用することを見出している。

微細藻による光水素発生の実用化には、太陽光の利用が必須であるが、その場合本研究に示されたように培養槽壁の一部を遮光することが、光水素発生速度の点で、また藻体に対する強光阻害の軽減などの点で有利と考えられ、必要な指針となり得る。

以上のように、本研究は微細藻による光水素発生に関し、基礎的及び装置工学的な立場から定量的に検討しており、高く評価できる。

よって、著者は博士 (農学) の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。