

色素-酵素ハイブリッド型人工光合成系による光駆動型水素生産

代表研究者 本田 裕樹
奈良女子大学 研究院 自然科学系 化学領域 准教授

研究要旨

太陽光エネルギーを用いて、水を原料に、水素等の高エネルギー化合物を得る“人工光合成”は、持続可能な社会の実現に向けた鍵となる技術である。本研究は、この人工光合成による水素生産系の構築を目的とし、特に、研究代表者らがこれまでに取り組んできた、色素による光-化学エネルギー変換と、酵素による高効率かつ高選択的な物質変換を組み合わせた、“色素-酵素ハイブリッド系”による光水素生産を研究対象とした。“色素-酵素ハイブリッド系”は色素エオシン Y の光レドックスと、水素生成酵素[FeFe]-ヒドロゲナーゼを大量合成する組換え大腸菌細胞による水素生産を組み合わせた反応系（EY/大腸菌系）で、トリエタノールアミン（TEOA）存在下で可視光照射下での見かけの量子収率が 14%に達することから、太陽光エネルギー変換に有望である。ただし、その反応持続性は色素の退色を要因として低く、EY/大腸菌系の今後の発展に向けた高機能化すなわち反応速度と反応持続性を両立が課題であった。そこで本研究は、EY/大腸菌系における電子伝達過程の解明と電子メディエーターの電位制御による高機能化に取り組み、今後のハイブリッド系の設計指針の取得を目指した。各種分光学的手法の結果、EY/大腸菌系における電子伝達は、励起 EY* の還元的消光過程に依ることを明らかにした。さらに、その過程で生じる EY⁻からのヒドロゲナーゼへの好ましい電子伝達（水素生産）と好ましくない電子伝達（EY の退色）が存在し、電子メディエーター（MV）の添加が EY の退色を抑えることが示された。ただし、反応条件下において還元型 MV に渡った電子が水素生産に効率的に使用できず、EY/大腸菌系の光水素生産速度は減少した。そこで、EY⁻→電子メディエーター→ヒドロゲナーゼへの各段階の電位差のチューニングが有効であると考え、還元電位の異なる各種電子メディエーターを試験したところ、EY/大腸菌系の水素生産速度を維持し、かつ反応持続性も両立できるメディエーターを発見した。以上より、目的とした EY/大腸菌系の高機能化を達成した。これらの知見は、太陽光エネルギー変換という持続可能な社会の実現に資する“色素-酵素ハイブリッド系”の設計指針の確立にも寄与する。