

# 1G0945 酸素の生物電気化学的還元反応の解析と生物燃料電池のカソード反応への応用

(京大院農)

辻村清也・巽 広輔・加納健司・池田篤治

【緒言】燃料電池のカソード側では、通常 **名前には必ずふりがなを!** いる。酸素の電気化学的 4 電子還元反応において、触媒として白金（電極）などを用いた場合は、強酸性条件下では可能であるものの、中性条件下においては困難であり、またコスト面での問題もある。そこで、我々は生体触媒（酵素）を用いることで、非常に穏和な条件下で酸素の電気化学的 4 電子還元を実現することを目的とした。本生物電気化学的触媒系に関して電気化学的な速度解析を行った。また、カーボンフェルト電極を用い、生物燃料電池のカソード側に本反応系を適用したときの、電気化学特性を評価した。

【実験】還元酵素としてビリルビンオキシダーゼ（BOD）を用いた。この酵素は基質から電子を受け取り、酸素の水までへの 4 電子還元反応を触媒する。電極と酵素との電子伝達メディエータとしては、2,2'-azinobis(3-ethylbenzothiazoline-6-sulfonate; ABTS) を用いた。実験方法は、BOD と ABTS を pH 7.0 のリン酸緩衝液に溶解し、25 °C、1 atm 下でサイクリックボルタンメトリーを行い、酵素の触媒反応と電極反応を共役させ、酸素の電気化学的還元反応に起因する触媒定常電流を測定し、速度解析を行った。カーボンフェルト電極をカソードに、銀塩化銀電極をアノードとする電池の端子間電圧を、負荷を変えて測定し、電流-電圧曲線を測定した。同時に、各電極の電位をそれぞれの電解液に入れた参照電極に対して測定した。同じカーボンフェルト電極系で、リニアースweepボルタンメトリーを行い電流-電圧曲線を得た。

【結果】ABTS-BOD-O<sub>2</sub> の酵素反応系において、酵素-ABTS、及び、酵素-酸素間の二分子速度定数はそれぞれ、 $7.5 \times 10^7$ 、 $6.4 \times 10^6 \text{ M}^{-1} \text{ s}^{-1}$  となり、効率的な酸素の 4 電子還元反応が進行することがわかった。また、ABTS の電極での反応速度も十分速いことがわかり、酸化還元電位も 505mV(vs. Ag|AgCl)と中性条件での酸素の酸化還元電位(623mV vs. Ag|AgCl)に近く、理想に近いメディエータであることもわかった。また、実験 と の結果が一致することを明らかにし、電池における定電流条件下での電流-電圧曲線を、ボルタモグラムと比較して論じることの有用性を示した。現在、この系を生物燃料電池のカソード側に用い、様々なアノード側と組み合わせた生物燃料電池の実現に向けて検討中である。