

## ERATO 橋本光エネルギー変換システムプロジェクト事後評価（予備評価）報告書

【研究総括】 橋本 和仁 （東京大学大学院工学系研究科／教授）

【評価委員】（委員はあいうえお順）

上田 充 （東京工業大学大学院理工学研究科／教授）

柿菌 俊英 （広島大学大学院先端物質科学研究科／准教授）

末永 智一 （委員長；東北大学原子分子材料科学高等研究機構／教授）

### 評価の概要

ERATO 橋本光エネルギー変換システムプロジェクトは、「新たなエネルギー変換技術、特に光エネルギーの獲得法を開発し、人類・社会に貢献する」という壮大な目標のもと、その実現の基盤となるエネルギー変換／獲得材料を「ナノ構造の最適化」という視点から設計・作成することを目指す「目的指向型基礎研究」を展開している。

自然界にありふれた安全な物質や微生物を利用し、急速な発展を見せる「ナノサイエンス」、組み立てに高度な技術やエネルギーを必要としない「自己組織化」を研究の柱に据えた独創的かつ挑戦的なプロジェクトである。

本プロジェクトは、橋本 和仁 研究総括（東京大学大学院工学系研究科 教授）の指揮のもと、有機高分子材料グループ・金属錯体グループ・微生物グループが、高分子薄膜太陽電池、無機人工光合成ナノデバイス、微生物が持つ自己組織化・自己修復機能を組み込んだ新規なエネルギー変換・環境浄化材料の創出に精力的に取り組んでいる。

有機高分子材料グループは、理論計算を駆使した分子設計、ナノ構造制御、自己組織化を巧みに組み合わせ、フラーレンを使わない全ポリマー型有機薄膜太陽電池を創出し、太陽光エネルギー変換効率で世界最高値を得るなど秀逸な成果を挙げている。金属錯体グループの、希少金属や有害金属を使用しない効率的な光触媒系の構築は、これまでの研究とは一線を画し、新たな光触媒開発研究の方向性を示すものである。

加えて、電流産生菌と無機金属の相互作用による微生物細胞間の長距離電子移動に関する知見は、微生物燃料電池の可能性を大きく広げるものであり高く評価したい。微生物グループの、微生物の電力生産メカニズム解明から、育種、電極改良を経て電池反応槽のエンジニアリングに至る一連の研究成果も当初の予想を上回る優れたものである。金属錯体グループとの連携により、物理化学・遺伝子工学の融合を図り、微生物の環境適応やエネルギー生産に新たな学問的視点を導入したことを高く評価する。

こうした成果が世界的な学術誌に多数掲載されるにとどまらず、産業界からも注目を集め、共同研究や検討会を通じた企業との連携強化、実用化研究を推進する新規プロジェクト発足へと広がりを見せている事実は、本プロジェクトの水準の高さを雄弁に物語っていると言えよう。また、終了を待たずして、世界を先導し、環境・エネルギー材料研究に新たな風を吹き込んだ研究総括の研究構想と強力なリーダーシップによるプロジェクトマネジメントについても高い評価を与えたい。

以上から、本プロジェクトの取り組みは、当初の予想を上回る展開を見せ、世界最先端の水準で推移していると判断する。今後の展開にも大いに期待が持てるものであり、戦略目標「環境負荷を最大限に低減する環境保全・エネルギーの高度利用の実現のためのナノ材料・システムの創製」に資する十分な成果が得られるものと結論する。

## 1. 研究プロジェクトの設定および運営

### 1-1. プロジェクトの全体構想

21世紀の科学技術には、深刻化するエネルギー問題、環境問題に対する解決策の提示と実践が求められている。化石燃料に頼らない新エネルギーシステム、環境汚染の防止／復元のための技術といった環境調和型・環境保全型の科学技術の構築が急務である。このためには、科学者の自由な発想と興味に基づく研究から生まれるブレークスルーに依存するだけでは立ち行かなくなる。課題を明確に定め、その課題解決のための本質的命題を研究する目的志向型基礎研究が鍵を握るであろう。

ERATO 橋本光変換エネルギーシステムプロジェクトは、自然界に潤沢に存在する安全・安価な物質や微生物を用い、主として光エネルギーの獲得・変換に必要な新規材料・システムを創出するという、既往の視点とは異なったユニークかつ明確な研究目的を掲げて 2007年4月に発足した。本プロジェクトを指揮する橋本研究総括は、資源枯渇・環境保護・生態系保全問題に役立つ実用的な材料・システムの実現を念頭に、①高効率な有機薄膜太陽電池の創出、②耐久性に優れた無機人工光合成ナノデバイスの構築、③微生物が持つ自己修復などの優れた機能を利用した新しい微生物燃料電池や微生物太陽電池、環境浄化材料の開拓、を提示した。そして、この到達点に向け、目的に合わせた物質のナノ構造最適化の手法、さらにはバイオサイエンスの知見を利用した新規材料・システムの創出に精力的に取り組んでいる。まさに、21世紀の社会に必要な環境調和／保全型の科学技術構築に不可欠な目的志向型基礎研究の典型とも言えるプロジェクトであろう。

橋本総括は、これまで、物理化学・光化学分野において顕著な業績を挙げている。例えば、太陽光をエネルギー源とし、酸化チタンのナノ薄膜・ナノ粒子光触媒を用いた新しい環境保全・改善のための材料・システムを開発するなど光応答材料、ナノ材料技術開発において先駆的な研究を展開してきた。こうした研究成果が、本プロジェクトの研究構想の基盤を強固に裏打ちしていることは言うまでもない。また、「微生物の呼吸活動の結果として排出される電子を、効率よく外部に取り出す手法を追究すれば、微生物が持つ優れた機能を取り込んだ新しい機能性材料、微生物ハイブリッド材料の開発につながる」という着想から生まれた、新しい微生物燃料電池や微生物太陽電池、環境浄化材料創出への挑戦は、橋本総括ならではの独創的かつ挑戦的なものとして高く評価できる。

実用化を念頭に、安全・安価な有機・無機物質と微生物を「ナノ構造制御」という切り口から巧みに組み合わせ、エネルギー変換材料・システムを自在に設計するための基盤を構築せんとする斬新かつ野心的な研究構想は、「新しい科学技術の源流」を予感させるものであり、ERATO に相応しいものであると確信する。本プロジェクトの研究が、戦略目標「環境負荷を最大限に低減する環境保全・エネルギー高度利用の実現のためのナノ材料・システムの創製」の達成に貢献するであろうことは想像に難くない。

### 1-2. プロジェクトの枠組みや研究体制、および研究活動の状況

本プロジェクトは、有機高分子材料グループ、金属錯体グループ、微生物グループから成る。このうち、有機高分子材料グループとプロジェクト事務所は東京大学大学院工学系研

究科（東京・本郷）に置かれ、金属錯体・微生物グループは東京大学駒場オープンラボラトリーにおいて研究を実施している。研究実施場所が2つに分かれているものの、プロジェクトスタッフが定期的に集まり、互いの研究進捗を報告しあい、議論を通じて課題を共有する、あるいは実験を互いに手助けしあっている。橋本研究総括が、拠点が並存するために生じる問題を最小限に抑えるために尽力している様子が窺えた。本プロジェクトで活躍する研究者のバックグラウンドは、物理化学、基礎化学はもとより、生化学、微生物学、生命工学に及び、さらに中国出身者をはじめとする外国人研究者が常時4～5名程度研究に参画している。まさに、ERATOが意図する“ヘテロな研究者集団”が形成され、アグレッシブな研究活動の源になっている。これらのことから、プロジェクトの枠組みや研究体制については、橋本研究総括の狙いでもある、異分野出身の若手研究者が互いに啓発しながら新たな研究を展開できる体制が実現され、かつ実効的に機能していると認められ、的確かつ効果的なものであると評価したい。

次いで研究活動の概況について述べる。高効率な有機薄膜太陽電池の創出については、高分子合成化学的手法を駆使して新規に合成した半導体ポリマーを用いて有機薄膜太陽電池を作成し、世界最高レベルの太陽光変換効率を実現した。また無機ナノ構造体とのハイブリッド化、ドナー・アクセプターの協調配列化、自己組織化による界面制御など、実用化を念頭に意欲的な試みを行い優れた成果を挙げている。

耐久性に優れた無機人工光合成ナノデバイスの構築についても良好な研究の進展が認められる。すなわち、表面上でのヘテロ原子の整列制御による光反応場の構築という新しい考え方を打ち出し、それを実践・実証した点は高く評価されるべきものである。あわせて、金属クラスター間の光電子移動触媒の研究は、既にNEDOプロジェクトへ継承され新たな展開が図られている。ERATOにおける基礎研究の成果が社会に還元されることを期待したい。

微生物が持つ自己修復などの優れた機能を利用した新しい微生物燃料電池や微生物太陽電池、環境浄化材料に関する研究も顕著な成果が得られている。特に遺伝子工学的手法と物理化学的手法を組み合わせ、微生物の電子移動過程や微生物-導電材料間の電子移動を単一細胞レベルで明らかにし、エネルギー生産過程を定量的に理解しうる道筋を切り拓いたことは大きなインパクトを有している。特殊環境下での生物エネルギー生産に関わる新しい学問体系を築く端緒となる秀逸な成果である。

こうした研究成果がいずれも研究者コミュニティから高い評価を得ていることは言うまでもない。インパクトファクターの高い国際誌に、多くの論文が掲載されている事実は、本プロジェクトが、科学的・実用的な視点から見て重要な発見や発明を積み上げている証拠である。また、シンポジウム、新聞、TVを通じた、研究成果の普及活動や啓蒙活動に注力している点も高く評価する。更に、実用化を念頭においた研究を展開するとの言葉通り、産業界からの注目が高いプロジェクトであることにも言及したい。特に、微生物燃料電池の研究については、9社に及ぶ民間企業と研究グループを形成し、情報交換のための研究集会を月1回のペースで開催し、実質的な実用化研究に向けた展開を図っている。

以上の事由から、本プロジェクトの研究活動は高い水準で順調に推移しており、今後の進展にも期待が持てるものと判断する。

## 2. 研究成果

### 2-1. 有機高分子材料グループ

有機高分子材料グループは、新規半導体ポリマーの設計・合成から有機薄膜太陽電池デバイス作成の開発までを手掛けている。本グループでは、まず、より多くの光子を吸収し電流に変換するため、電子受容性 (A) 及び電子供与性 (D) を持つ多様な新規ポリマー群を合成した。そして、いかなる組み合わせ・構造が太陽光スペクトルの広い領域を吸収できるかを検討した。その結果、可視光～近赤外領域に及ぶ広範囲において高い量子収率を示す新規の D/A 型ポリマーを得た。特筆すべきは、短絡電流密度が世界最高の  $23.7 \text{ mA/cm}^2$  を達成したことである。この成果は、有機薄膜太陽電池の持つポテンシャルを実証したものとして評価できるだろう。

多くの有機薄膜太陽電池において、n 型半導体にフラーレン誘導体を用いているが、これに代わる新規な n 型半導体ポリマーを合成し全ポリマー型有機薄膜太陽電池の試作も行った。この研究において、ポリマー薄膜中の混合形態と電池性能の間に相関関係を見出した。この相関関係に基づき、条件最適化を行なうことで、全ポリマー型有機薄膜太陽電池では世界最高レベルの太陽光変換効率 2.2% を得るなど良好な成果を得ている。n 型半導体としてフラーレン誘導体を用いた系と比較すると、太陽光変換効率の絶対値はまだ低い。一方で、既に電子受容性に優れた高い立体規則構造を持つ n 型半導体ポリマーを合成し、電子移動度が従来のランダム構造の大きく向上することを見出していることから、今後の展開にも大いに期待がかかる。

混合バルクヘテロジャンクションにおける電荷分離界面の安定性を向上させる方法として、熱架橋性半導体ポリマー（ポリチオフェン）を提案した点も見逃せない。ポリチオフェンと PCBM（フェニル C61 酪酸メチルエステル）の混合薄膜に熱処理を施すと、ポリマーの架橋により PCBM の薄膜中での運動が抑制され、太陽電池の性能低下が大幅に抑えられることを明らかにした。この成果は一般性を有しており、今後の材料開発に貢献するものと認められる。

これまでも有機太陽電池では、有機層と金属電極の間にバッファー層を挿入し開放電圧を高めることが行なわれてきた。これに対して、本グループは、フッ素化アルキル基を持つ新たなフラーレン化合物を合成し、これを混合バルクヘテロ接合の溶液に少量混入し、スピコートなど薄膜形成中に分子を表面偏析させるという方法を提案した。そして、自己組織化によるバッファー層形成は二層型太陽電池の開放電圧の向上に有効であることを見出した。これは、開放電圧を制御する全く新しい手法として意義のある成果である。

バルクヘテロ系の有機薄膜太陽電池の課題の一つに、塗布による積層化の難しさが指摘されている。本グループは、熱圧着法や転写法による有機薄膜太陽電池の作成法を新たに検討し、その有効性を実証しつつある。特に水溶性ポリマーを犠牲層として用いる薄膜転写法による有機電子デバイスの作成法は、相互溶解する有機薄膜の積層を容易にするために有効なものと言える。

以上のように、本グループは、有機薄膜太陽電池の各要素について約 4 年と言う短期間のうちに多くの優秀な研究成果を紡ぎだしている。これらの成果は、計画段階で期待された以上のものであるというのが、評価委員の一致した見解である。今後については、他の 2 グ

ループとの協力・連携関係を強化しつつ、この短期間のうちに挙げた成果を有効に組み合わせ、高短絡電流、高開放電圧そして大きなフィルファクターを擁した、他の追随を許さない有機薄膜太陽電池の実現に向けて歩みを進めて欲しい。

## 2-2. 金属錯体グループ

金属錯体グループは、生体における電子移動系を参考に、金属間電荷移動遷移に着目した無機人工光合成ナノデバイスの開発を行なっている。これと並行して、微生物グループと連携し、微生物を介したエネルギー変換系を「生きた金属錯体系」として物理化学的に捉えることから、生体の持つ自己組織化・自己修復能を理解し、これを模倣した人工エネルギー変換系の構築、及び微生物そのものをデバイスに組み込んだハイブリッド系の構築を目指し、興味深い研究を展開している。

まず、無機人工光合成ナノデバイス開発の進捗状況と成果について述べる。本グループは、原子・分子レベルで制御可能でかつ無機物からなる人工光合成材料の創出に挑み、酸素架橋型で Ti(IV)/Ce(III)をはじめとするヘテロ二核金属サイトを合成した。そしてメソポーラスシリカ細孔内に合成した Ti(IV)/Ce(III)サイトが、可視光域において金属間電荷移動遷移由来の強い吸収特性を有すること、有機物の光酸化分解反応に対して高い可視光応答性を示すことを見出している。ここでは、多核クラスター間の電子移動を制御した光触媒の設計指針が示されたこと、さらに有機物を分解できる可能性が示された点を高く評価したい。また、本成果をベースとした環境浄化型の光触媒創製を目指す NEDO プロジェクトが立ち上がったことも、本成果の意義を物語るものである。ERATO における基礎研究が、シームレスに応用・実用化研究へとつながった好例として、その展開から目が離せない。

本グループは、物性の操作が容易な多核錯体の特徴を活用しながら、上記二核サイトを多核錯体系へと拡張し、多核系・光誘起電荷移動錯体を構築した。この錯体を利用し、自然界の鉱床において酸化マンガんにセリウム (Ce) イオンが特異的に吸着する現象をヒントに、シリカ上に CO<sub>2</sub>還元触媒、O<sub>2</sub>発生触媒を規則的に集積・配列させ、人工光合成系を構築した。そして、この系が CO<sub>2</sub>還元と O<sub>2</sub>発生の機能を兼ね備えた無機物からなる光反応場であることを確認した。このように、触媒を規則的に配列させ、光電子移動を制御することにより CO<sub>2</sub>固定と O<sub>2</sub>発生を協調的に行なえることを示した点は、科学的に見て高く評価できる

高効率の光触媒の開発を目指す研究はこれまでも多数なされているが、稀少元素や有害元素を用いる例がほとんどである。将来的な実用性や環境保全等を考慮すると、別の視点での光触媒開発が必要不可欠であるが、実用的観点からの試みはほとんどなされていなかった。本グループの試みは、これまでの流れと一線を画すものであり、新しい光触媒開発のモデルケースになり得る秀逸なものと評価すべきであろう。

次いで、本グループと微生物グループの連携により進めた、微生物を介したエネルギー変換系及び微生物を組み込んだハイブリッド系構築に関する研究成果について述べる。電流産生菌と酸化鉄の相互作用を見だし、なかでもヘマタイトが電流発生を媒介することによって、微生物細胞間の長距離電子移動を可能とする知見を得たことは顕著な成果であると考えられる。このような無機金属と微生物の関わりは、微生物燃料電池の応用の可能性を広げるだけでなく、土壌生態学的にも極めて興味深い。海底の熱水鉱床における「熱水チムニー電池」を提唱したことが一流化学誌への掲載のみならず、分野を超えた他誌において解説され再評

価を受けたことにも、その意義が示されている。

光ピンセットを用いた単一細胞の電気化学的研究では、電流発生と電極電位応答を解析することによって、電子媒介分子が関わる間接経路を実証した。さらに、新知見として、電極電位が呼吸経路を切り替えていることを見出した点も評価したい。個々の微生物には個性があるため、細胞集団を観察しても詳細なメカニズムは分からない。最新の計測技術を駆使し、一細胞レベルで直接電子移動を評価したことは賞賛に値すると言えよう。本成果は、電子産生菌の電流発生の基本的意義を示していると考えられ、その科学的インパクトが高いものと同時に、単一微生物工学の新しい展開にも期待が持てる。また、微生物が集合した場合クオラムセンシング等の自己調整に関しても新しい知見が得られる可能性がある。

以上、このグループの研究成果は斬新かつ秀逸なもので、高く評価できるものが多いことは言うまでもない。その一方でグループとしての研究の方向性がやや発散している印象も拭えない。前半に注力していた無機材料を用いた研究は、一部 NEDO プロジェクトへ移行し、ERATO 研究としての役割を全うしたと言えるが、残された研究期間においては、内容を今一度整理し、研究対象とテーマの絞り込みを行なうことが、本グループの研究を更なる高みへと導くものと考ええる。

### 2-3. 微生物グループ

微生物グループの研究目標は、微生物のエネルギー変換システムの分子メカニズム、中でも重要な役割を担っていると考えられる分子間相互作用、細胞間相互作用を解明し、微生物エネルギー変換システムの制御及び高効率化の基盤を築くことである。これまで、微生物の電力生産メカニズムの理解に始まり、分子育種、電極の改良を含め、電池反応槽のエンジニアリングへと至る研究を主として金属錯体グループと効果的な連携を取りながら進展させ、顕著な知見を得ている。

まず、本グループでは、ゲノム情報と近年の遺伝子工学における新技術である不均衡変異の導入により、野生株（親株）を大きくしのぐ電流生産能を持つ変異株を獲得した。さらに、この変異株の細胞は表層多糖が欠損しており、親株より疎水的であることを見出している。これまで、微生物の電流生産に関する研究は、細胞外電子伝達経路を構成するタンパク質に焦点が当てられてきた。細胞の表層多糖表層を除去すると言った細胞表面の改質による電子伝達効率の向上を示した本研究は、微生物燃料電池の研究に新しい視点・可能性を提供したものと評価できる。

電極改良については、電極表面をカーボンナノチューブなどで被覆することにより微生物燃料電池の出力密度が増強されることを示した。また、金属錯体グループとの協力により、酸化鉄ナノコロイドを微生物系に導入すると電流密度が増大することも見出している。リアクタの製作では、平板型、カセット型に加え、10 L の大型カセット電極の実現にも目処をつけている。前述した電極改良の成果と組み合わせることによって、より高電力を生む微生物燃料電池が期待できるだろう。

微生物燃料電池開発については、当初、実用エネルギー生産としての微生物燃料電池の実用化は無理ではないかとする向きも多かった。しかし、本グループで得られた成果から判断すると、単に汚水処理や環境浄化の副産物としてエネルギーを取り出す付随システムという位置づけに止まらず、エネルギー生産の主要システムとしての展開も可能ではないかとい

う期待すら抱かせるものである。まだ、科学的、技術的に克服すべき問題が多いが、これを着実に解決しようとする意欲も感じられる。

次に、微生物太陽電池に関する研究について所見を述べる。本グループでは、自然生態系における光電変換プロセス、すなわち、光合成により産出された有機物を介して金属や電極へ電子を渡すプロセスを再現する共生系をデバイス内に再現し、メディエーターを必要としない、新原理の微生物太陽電池を開発するという野心的なコンセプトに基づいて研究を進めてきた。このコンセプトを実証すべく、細菌と藻類が人工的に共生して光電変換する斬新な光発電システムを考案し、田んぼ発電に始まる興味深い電力変換システムを稼働させた。発電効率は  $30\text{mW/m}^2$  と低いものの、自然界をそのまま太陽電池として使える可能性を世界で初めて示した本成果は大きなインパクトを与えたものとして高く評価したい。

以上のように本グループは、微生物のエネルギー変換システムに学ぶと共に、物理化学的手法、遺伝子工学的手法を巧みに融合させ微生物のエネルギー変換システムを有効利用するための基盤を固めつつある。残された研究期間においても、金属錯体グループのみならず、有機高分子材料グループとの連携をも深めながら、微生物の代謝を含めた電子移動、エネルギー生産過程、情報伝達機能の解明と言った波及効果の大きな、本プロジェクトならではの基礎研究を力強く進めてもらいたい。

### 3. 総合評価

本プロジェクトは、「量的に豊富かつ安全な資源の使用」、「ナノ構造の最適化」という独特の視点から、将来的な実用化を見据えつつ、新たな光エネルギー変換材料の開発やシステムの構築に切り込むという、創造的・挑戦的なものである。橋本研究総括のリーダーシップもさることながら、個別の研究課題においては、研究者の自由な発想も重視するような巧みなプロジェクト運営がなされていると認められる。多様な研究者が、それぞれのバックグラウンドをベースに、生物学的視点を積極的に取り込み、新しい研究を展開している。まさに ERATO に相応しい研究プロジェクトであると言えよう。

科学的・技術的観点から言えば、高分子薄膜太陽電池、無機人工光合成ナノデバイス、自己修復能・自己調整能を備えたエネルギー変換・環境材料共に、確実に目標とした人工材料の創成から生物利用を含めた光エネルギー変換システムの構築について、世界を先導する意義深い成果が数多く得られていると認められる。特に、これまで極めて物理化学的な取り扱いが困難とされ、理論的な機能解析も遅れていた、微生物の電子移動機能を、代謝系も含め独自の視点で解析している点は秀逸な研究成果として高く評価されるべきものである。一連の研究を更に進めることにより、新しい学問体系が構築できる予感も抱かせる。将来、“オール有機の太陽電池”、“オール無機の人工光合成システム”、“微生物を使うエネルギー変換システム”が実現された時、その源流に本プロジェクトの基礎研究が位置するであろうことは容易に想像がつく。研究成果の真の実用化に向けたハードルは依然として高いが、その道筋を示す成果を得ているというのが評価委員の一致した意見である。同時に、それぞれの研究成果が今後どのように統合され進化を遂げていくのかといった「将来予測」を垣間見たいというのが評価委員ならずとも自ずと抱く希望ではないだろうか。こうした点も踏ま

えて、残された研究期間においては、優秀な成果が総花的に並ぶ状況にならないよう、ERATOプロジェクトとしての明確な着地点を共有しながら研究を進めてもらいたい。

以上、全体の研究テーマ設定、運営状況、研究活動およびその成果を総合的に判断し、評価委員会は本研究プロジェクトの研究実施状況は優秀な研究水準にあり、戦略目標「環境負荷を最大限に低減する環境保全・エネルギーの高度利用の実現のためのナノ材料・システムの創製」に資する十分な成果が得られるものと評価する。