

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 7 月 6 日現在

機関番号：82706

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H01176

研究課題名(和文)革新的再現実験から解読する生命の起源と初期進化を支えた原始地球窒素循環

研究課題名(英文) Nitrogen fluxes and chemical evolution potential in the Hadean Earth addressed by simulated experiments

研究代表者

高井 研 (TAKAI, Ken)

国立研究開発法人海洋研究開発機構・超先鋭研究開発部門・部門長

研究者番号：80359166

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 34,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、原始地球環境における様々な非生物学的還元的窒素化合物供給プロセスの化学量論を検証し、その還元的窒素化合物フラックスを明らかにすることを旨とした。隕石衝突によって地球外から持ち込まれ海洋に蓄積するプロセス、隕石衝突の衝撃によって大気窒素から還元的窒素化合物が生成されるプロセス、大気中で雷やUV照射によってNO<sub>x</sub>が生成された後海洋中で海底熱水循環によって還元的窒素化合物が生成されるプロセス、の3つを主要プロセスと想定し、再現実験による量論検証を行った。その結果、理論から予想された通り、原始地球環境において雷・海洋・熱水窒素固定プロセスが最も優占的であることが明らかとなった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

学際的かつ独創的なアプローチと綿密に準備された研究計画を通じて「含窒素有機物生成やアンモニア態窒素供給における雷・海洋・熱水窒素固定シナリオの重要性」が示されたことによって、「生命誕生の場＝深海熱水」説を支持する新しい重要な科学的根拠が得られた。つまり「生命はどこでどのように誕生したのか」という人類の根源的的好奇心や科学史上最大の科学命題の一つに対して現時点での最高水準の描像を提示することが出来た点において、我が国の学術・文化水準の向上・強化に多大な貢献を果たしただけでなく、次世代の研究者や一般国民の知的好奇心を活性化し、我が国の学術の独創性や創造性の発現に大きく寄与した。

研究成果の概要(英文)：This research has pursued the potential fluxes of reduced nitrogen compounds in the Hadean Earth, when the earthly life originated, by means of simulated state-of-art experiments for meteorite impact on ocean, UV irradiation and lightning discharge, and submarine hydrothermal circulations. Based on the data obtained from these newly developed experiments, we have estimated the potential supply fluxes of reduced nitrogen compounds from extraterrestrial and terrestrial sources. Although the significant contribution of extraterrestrial organic matter is not still ruled out, the synthesis of reduced nitrogen compounds in the ocean throughout the processes of lightning (NO<sub>x</sub> from N<sub>2</sub>), precipitation in the ocean (NO<sub>x</sub> accumulation), and hydrithermal circulation (reduced nitrogens from NO<sub>x</sub>) is the most predominant supply of reduced nitrogen compounds in the Hadean Earth. This implies that deep-sea hydrothermal vents would be the most advantageous for chemical evolution in the Hadean Earth.

研究分野：生命の起源

キーワード：生命の起源 化学進化 還元的窒素化合物 原始地球 隕石衝突

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

約 40 億年前の原始地球において生命は誕生したと考えられている。原始地球のどのような場で生命が誕生したかを明らかにする上で一つの鍵となるのが、生命誕生に必要な材料 (= 有機物) がどのようなプロセスでどれだけ供給されたかという点である。特に、タンパク質や核酸のような含窒素高分子有機物の化学進化においてアンモニアのような還元的窒素化合物が必須となり、原始地球における還元的窒素化合物供給プロセスやフラックスを体系的に理解する必要がある。

- これまでに考えられている原始地球における還元的窒素化合物の起源と生成プロセスとして、
- (1) 宇宙有機物起源説：彗星・隕石によって含窒素有機物やアンモニア態窒素が原始地球に運搬・供給
  - (2) 地球有機物起源説：原始地球環境においてアンモニア態窒素や含窒素有機物が生成・循環・供給

の 2 つの大きなソースが考えられている。そして「地球有機物起源説」を支える前段階プロセスとして、

隕石衝突窒素固定シナリオ：隕石衝突によって含窒素有機物やアンモニア態窒素が生成・供給されるプロセス

雷-海洋-熱水窒素固定シナリオ：雷放電によって大気で酸化的窒素化合物が生成され、海洋に蓄積した後、海洋や海底熱水においてアンモニア態窒素へと変換・供給されるプロセス

熱水窒素固定シナリオ： $N_2$  が海底熱水によってアンモニア態窒素へと変換・供給されるプロセス

の 3 つが考えられている。

これらの仮説やシナリオについて、「現象として定性的な証拠」は得られている一方、各プロセスにおける化学量論や組成、原始地球でのフラックス、に関する知見は皆無に等しい。そのため生命の誕生や存続に必要な有機物供給に対する各ソースおよびプロセスの「量論に基づいた寄与の大きさ」や「質的な影響」については未解明のままである。

### 2. 研究の目的

本研究は、上記のソースおよびプロセスのそれぞれについて、再現実験によって含窒素有機物・アンモニア態窒素供給の化学量論や組成、安定同位体特性を検証し、生命の誕生と存続に密接に結びつく原始地球窒素フラックスの定量的理解を目指す。そのための準備として研究チームは、上記のソースおよびプロセスについて、既報の実験および理論計算データに基づき、原始地球窒素フラックスの予察的理論計算を行った。断片的な情報に基づいたラフな試算ではあるものの、全球規模でのマスバランスから「アンモニア態窒素供給における雷-海洋-熱水窒素固定シナリオの重要性」が強く示唆された。さらに期間内の各プロセス再現実験による研究目標達成に向けて、研究チームは既に(a) 宇宙有機物起源説や隕石衝突窒素固定シナリオの検証のための世界初の隕石-海水衝突実験系の構築と予備実験、(b) 雷-海洋-熱水窒素固定シナリオの検証のための弱還元型大気中での紫外線照射 + 放電実験系の構築と予備実験、および(c) 雷-海洋-熱水窒素固定シナリオや熱水窒素固定シナリオの検証のための高温高压熱水実験系の予備実験、を進めてきた。

### 3. 研究の方法

本研究では、まず予察的理論計算によって示された「アンモニア態窒素供給における雷-海洋-熱水窒素固定シナリオの重要性」について、原始大気-海洋-熱水環境再現実験による検証を行う。具体的には、(i) 弱還元型大気での紫外線照射 + 放電実験と(ii) 原始海洋環境での二価鉄や熱水による還元反応を再現した実験によって、原始地球環境での無機・有機窒素化合物の生成・変換の量論、反応速度、安定同位体特性を決定する。これら一連の研究から、「原始大気から海洋への無機・有機窒素化合物供給」や「海洋でのアンモニア態窒素や含窒素有機物の生成」の量論ポテンシャルを定量的に見積もる。次に宇宙有機物起源説や隕石衝突窒素固定シナリオについて、(iii) 世界初の詳細な開放系隕石-海水衝突実験を行い、隕石に含まれる宇宙起源難溶性複雑有機物の無機化や低分子化(可溶化)プロセスや大気  $N_2$  からの含窒素有機物やアンモニア態窒素の生成プロセスの反応速度、安定同位体特性を明らかにする。従来の隕石衝突化学反応は、すべて固体-固体間衝突および閉鎖系での実験に基づいており、固体-液体間衝突や開放系衝突の挙動や物理プロセスが化学反応に与える影響が不明のままであった。結果として、隕石による宇宙起源有機物の運搬・供給や隕石衝突による窒素固定の量論が不正確に評価されてきた可能性があり、海洋への隕石衝突を再現した実験によって、原始海洋や海底熱水環境への宇宙起源の含窒素有機物や無機窒素化合物の供給量やフラックスを定量的に見積もる。研究期間内にこれら(i)-(iii)の実験とそのデータに基づいた理論計算を通じて、原始地球環境での「アンモニア態窒素供給における雷-海洋-熱水窒素固定シナリオの重要性」や他のソースやシナリオの寄与、について決定的な答を与える。さらに原始地球窒素フラックスが明らかになることで、地球における生命誕生や初期進化の場の特定に対して定量的な指標を提示することができる。

#### 4. 研究成果

世界初の詳細な開放系隕石—海水衝突実験によって、実験から以下の5点を明らかにした。(1) 衝突速度 5km/s では飛翔体の破壊は水中で始まる。(2) 飛翔体の水中での破壊程度や破片の分散度はステンレス鋼(鉄隕石のアナログ)が最も小さく、普通コンドライトとオリビン(コンドライト隕石のアナログ)は同程度である。(3) 飛翔体の水中での破壊と減速によって海底にクレーターが形成されなくなる限界水深(衝突体の直径で規格化した無次元量)はステンレス鋼(鉄隕石のアナログ)が10、普通コンドライトとオリビン(コンドライト隕石のアナログ)が5である。(4) 強度支配領域での水深を考慮した海底クレーターのスケーリング則を提唱した。(5) どの飛翔体においても水衝突によって有意なアンモニア生成(10 $\mu$ mol以上)は見られなかった。

本実験に基づく量論解析の結果、ハーバーボッシュ反応でアンモニアが合成しやすいと予想されるステンレス(鉄隕石のアナログ)と水の衝突でもアンモニアの生成は観測されなかったため、従来考えられてきた隕石の海洋衝突にともなう大気窒素からのアンモニア態窒素の合成はほとんど起きなかったと考えられた。つまり、「隕石衝突窒素固定シナリオ」は原始地球の窒素循環に寄与しなかった可能性が明らかとなった。一方、本実験では、原始海洋への隕石の衝突は、隕石の直径が0.5-1km以下の場合、固体—固体衝突によるクレーター形成に至らず、海洋への隕石物質の分散という現象を引き起こすことが世界で初めて証明された。この場合、隕石に含まれていた宇宙起源有機物が、衝突時に窒素やアンモニアへ分解されることなく、難溶性有機物の状態あるいはやや可溶化した状態で海洋へ分散した新たなプロセスが示され、これらの宇宙起源有機物が生命の誕生に必要な化学進化に重要な役割を果たした可能性も考えられた。しかしこの場合においても、海洋への全窒素化合物の供給量は「雷-海洋-熱水窒素固定シナリオ」に比べ圧倒的に小さいことが予想された。

「雷-海洋-熱水窒素固定シナリオ」の検証のための弱還元型大気中での紫外線照射+放電実験では、放電によりN<sub>2</sub>からの硝酸生成が実証された。紫外線照射にかかわらず硝酸生成は安定で、その収率(初期N<sub>2</sub>量に対する収率)は80%程度であることがわかった。さらに「雷-海洋-熱水窒素固定シナリオ」や「熱水窒素固定シナリオ」の検証のための高温高圧熱水実験では、冥王代の海洋環境に優占していたと考えられるコマチアイト型熱水循環を模した再現実験を行い、コマチアイトが海水中に溶存した硝酸のN<sub>2</sub>やアンモニアへの変換反応を触媒すること、硝酸からアンモニア生成収率は10%程度であること、等を明らかにした。一方、コマチアイト型熱水循環を模した再現実験では、従来報告されていた熱水窒素固定プロセスを再現することはできず、「熱水窒素固定シナリオ」は原始地球の窒素循環に大きな寄与はなかった可能性が考えられた。

これらの再現実験の結果を基に、「雷-海洋-熱水窒素固定シナリオ」に基づくアンモニア態窒素供給フラックスを見積もったところ、10<sup>7</sup>-10<sup>11</sup> mol/yと推定され、これは1億年間で海洋中のアンモニアが、1-10000  $\mu$ Mに濃縮されることを意味する。本研究の作業仮説として提示した理論計算に基づくモデルが実験的に証明され、窒素フラックスからみた深海熱水環境の化学進化における優位性が明らかとなった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Ken Takai	4. 巻 34
2. 論文標題 The Nitrogen Cycle: A Large, Fast, and Mystifying Cycle	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Microbes and Environments	6. 最初と最後の頁 223-225
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.1264/jsme2.ME3403rh">https://doi.org/10.1264/jsme2.ME3403rh</a>	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 高井研	4. 巻 45
2. 論文標題 宇宙における共通物理・化学現象としての生命の誕生	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Viva Origino	6. 最初と最後の頁 1-16
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 1件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 西澤学, 松井洋平, 渋谷岳造, 須田好, 高井研, 矢野創
2. 発表標題 開放系における固体-液体 (水) 間衝突現象の観測 III
3. 学会等名 平成 30 年度宇宙科学に関する室内実験シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 西澤学, 斎藤拓也, 眞壁明子, 渋谷岳造, 高井研
2. 発表標題 コマチアイト熱水環境における非生物学的硝酸還元と初期地球窒素循環
3. 学会等名 日本地球化学会第 66 回年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M Nishizawa, Y Matsui, K Suda, T Saito, T Shibuya, H Yano, K Takai
2. 発表標題 Hypervelocity Impact Experiments to Study Meteorite Fragmentation in the Ocean and Impact-Derived Products
3. 学会等名 Lunar and Planetary Science Conference (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 西澤学, 斎藤拓也, 眞壁明子, 渋谷岳造, 高井研
2. 発表標題 初期地球海底熱水環境における非生物学的硝酸還元
3. 学会等名 2018年度日本地球化学会第65回年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 M. Nishizawa, Y. Matsui, T. Shibuya, K. Suda, K. Takai, H. Yano
2. 発表標題 Experimental study of hypervelocity impact of meteoritic material into liquid water in an open system for better understanding of the fate of extraterrestrial organics in the Hadean ocean
3. 学会等名 2017年日本地球惑星科学連合大会(招待講演)(国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 西澤学、松井洋平、渋谷岳造、須田好、高井研、矢野創
2. 発表標題 開放系における隕石-海水間超高速衝突現象の観測
3. 学会等名 日本地球化学会第64回年会
4. 発表年 2017年

## 〔図書〕 計2件

1. 著者名 山岸 明彦、高井 研	4. 発行年 2019年
2. 出版社 集英社インターナショナル	5. 総ページ数 192
3. 書名 対論! 生命誕生の謎	

1. 著者名 高井 研	4. 発行年 2018年
2. 出版社 岩波書店	5. 総ページ数 206
3. 書名 生命の起源はどこまでわかったか : 深海と宇宙から迫る	

## 〔産業財産権〕

## 〔その他〕

-

## 6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	矢野 創  (YANO Hajime)  (00321571)	国立研究開発法人宇宙航空研究開発機構・宇宙科学研究所・助教   (82645)	
研究分担者	西澤 学  (NISHIZAWA Manabu)  (60447539)	国立研究開発法人海洋研究開発機構・超先鋭研究開発部門(超先鋭研究プログラム)・研究員   (82706)	
研究分担者	黒澤 耕介  (KUROSAWA Kosuke)  (80616433)	千葉工業大学・惑星探査研究センター・研究員   (32503)	

## 6. 研究組織（つづき）

	氏名 (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	上野 雄一郎 (UENO Yuichiro) (90422542)	東京工業大学・理学院・教授  (12608)	
研究分担者	渋谷 岳造 (SHIBUYA Takazo) (00512906)	国立研究開発法人海洋研究開発機構・超先鋭研究開発部門 (超先鋭研究プログラム)・主任研究員  (82706)	