

令和 6 年 6 月 25 日現在

機関番号：24405

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2019～2023

課題番号：19K21885

研究課題名（和文）分子雲/原始惑星系/彗星で生成する核酸塩基構造異性体は生命の進化に寄与したか？

研究課題名（英文）Did Isomers of Nucleic Acid Bases Generated in Molecular Clouds, Primitive Planetary Systems, and Comets Contribute to the Evolution of Life

研究代表者

前澤 裕之（Hiroyuki, Maezawa）

大阪公立大学・大学院理学研究科 准教授

研究者番号：00377780

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：我々の模擬星間ガスのダストプラズマから形成した核酸塩基と構造異性体について変異原性試験を行った。その結果、これらがDNA/RNAの形成・複製や、DNAの突然変異や進化に寄与する可能性が示された。さらに、近赤外・可視の撮像や分光、そして独自開発したテラヘルツ分光装置により、プラズマの非平衡物理・化学状態を解明し、凝集ダストの成長過程も捉えることに成功した。さらに、量子化学計算により異性体の生成経路も探索した。これらの研究により原始惑星系円盤や還元的环境、彗星や小天体などの高温のガス・ダスト領域における生命関連分子の形成の多様性、および生命を宿しうるハビタブルな環境について新たな知見を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

地球の生命がDNA/RNAにおいて現在の核酸塩基を採用した経緯や、宇宙でのアデニンの形成過程は未解明である。本研究は、星形成領域や原始惑星系円盤などでも高温の気相とダストが相互作用する環境を模して実際にダストプラズマを形成し、核酸塩基とその異性体の多様な形成過程と生物学的性質を探る斬新な取り組みとなっている。本実験で遺伝子の変異原も見つかり、宇宙での生命生存圏や、生命の起源・進化の理解にユニークなアプローチを提供する。開発したミリ/テラヘルツ分光システムによりダストプラズマの診断の突破口も開いた。今後の様々な応用が期待される。また、アグリゲート状有機ダストの成長過程を捉えることにも成功した。

研究成果の概要（英文）：We conducted mutagenicity tests on nucleobases and structural isomers formed from dust plasma, simulating interstellar gas. The results indicate the potential for these compounds to contribute to the formation of DNA/RNA, as well as to mutations and evolution of DNA. Additionally, using a visible camera and spectrometer, along with our developed THz spectroscopy diagnostics, we elucidated the non-equilibrium physical and chemical states of the plasma and successfully captured the growth processes of aggregate dust. Furthermore, quantum chemical calculations allowed us to explore the formation pathways of structural isomers. These approaches provide crucial insights into the formation of nucleobases in the reductive environments of protoplanetary disks, the high-temperature gas/dust regions of comets and small bodies, and the understanding of habitable environments and the origin of life on Earth.

研究分野：天文学

キーワード：星間物質 大質量星形成 核酸塩基 ダストプラズマ 遺伝子・DNA テラヘルツヘテロダイン分光 変異原性

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

## 1. 研究開始当初の背景

DNA/RNA は地球の生命の設計図であり、核酸塩基はそのセントラルドグマの構成要素として重要な役割を担う。現在の地球の生命は de novo 合成やサルベージ経路合成によって核酸塩基を形成できるが、原始の地球の生命の核酸塩基やアミノ酸の起源は未解明である。ただし、隕石や小天体からは核酸塩基やアミノ酸、それらの前駆体も検出されていることから、生命が宇宙由来の有機分子を利用したり、生命の進化に利用してきた可能性もある。

我々の星間ガスを模したダストプラズマにより形成した有機物には、多様なアミノ酸前駆体、複素環式芳香族化合物のプリン体、核酸塩基、そしてこれらの異性体などが検出されている。その中でも、核酸塩基の構造異性体の性質はまだよく知られてこなかった。また、それらを形成するダストプラズマの物理・化学状態も、まだ良く分かっていなかった。宇宙空間や還元的な環境での核酸塩基とその異性体の形成プロセス/起源の多様性の理解は、宇宙・原始惑星系でのハビタビリティを理解する上で重要な知見を与えるものと期待される。

## 2. 研究の目的

(1)核酸塩基の中でもアデニン  $H_5C_5N_5$  について着目し、ダストプラズマにおける形成過程と、その構造異性体の素性を探るため、DNA の変異原性試験を行い、生物における役割・影響について明らかにする。他の生体高分子・前駆体についても探索・試験を推進する。

(2)電波のヘテロダイン分光や光・赤外分光(OES)、四重極型質量分析(QMS)によるプラズマ診断や数値モデルにより、有機分子を合成するダストプラズマの物理・化学的狀態を明らかにする。

(3)量子化学計算により核酸塩基構造異性体の形成過程の違いに迫る。

(4)Large Millimeter Telescope(LMT)などの電波望遠鏡を用いた観測により、核酸塩基などの形成のポテンシャルをもつ領域を探る。

これらを通して、星間分子雲/星形成領域、原始惑星系円盤、衛星大気、彗星や隕石などでの高温のダスト・プラズマガスの相互作用に伴う核酸塩基・アミノ酸関連有機分子の多様な形成環境/過程を探る。

## 3. 研究の方法

(1)堆積物には多くの未同定の有機分子が含まれており、完全には単離が難しいため、LCMS 分析とクロマトグラムの保持時間により同定した分子の標品を用いて、Ames/umu 試験や染色体異常/DNA 損傷試験などを実施し、その変異原性/毒性を明らかにする。これには、原核/嫌気性細胞や、真核/好気性生物/動物性培養細胞を用いて探索的に検証する。また、In silico 手法により変異原性/毒性の予測も行う。

(2)ダストプラズマ装置に独自開発した超伝導ミクサ検出素子を搭載したミリ・テラヘルツ波分光診断システムを用いて、QMS、OES などの結果と合わせて、核酸塩基の形成の鍵を握るプラズマ内の分子の同定や物理状態に迫る。また、3次元熱流体解析や化学反応モデルとの比較から、有機分子が形成されている化学状態を明らかにする。また近赤外域の撮像によりプラズマの気相とダストとの相互作用の現場・物理を探る。

(3)化学反応モデルでは大きな分子の反応や構造異性体の形成プロセスをカバーすることができないため、ADD-Following アルゴリズムを用いた量子化学反応自動探索により、核酸塩基とその構造異性体の形成ルートの可能性や違いに迫る。

(4)日本が開発した Band 4 Receiver(B4R)受信機を搭載した LMT 望遠鏡の観測データを用いて、大質量星形成領域の化学組成、特にシアン化合物の分布の偏りについて明らかにする。

## 4. 研究成果

(1)核酸塩基のアデニンの生成過程に着目すべく、酸素との反応を伴わない、H、C、N のみを含む有機溶媒を流入した $\sim 70$  Pa、400 W のプラズマ放電を実施した。堆積した有機分子(図 1)には、LCMS 分析の結果、微量のアデニンとその構造異性体である 2-Aminoprine、そして、それらより多くのアデニンに似た異性体 A が含まれていることが分かった。2-Aminoprine は、遺伝子変異原性の報告例もある核酸アナログである。一方この異性体 A は Ames 試験等のデータベースに情報が無い。そこで、In silico 予測を実施したところ、A は陰性であった(In silico 予測は国立医薬品食品衛生研究所 本間正充氏、中外製薬株式会社 三島雅之氏の御協力による)。



図 1:堆積した有機物。

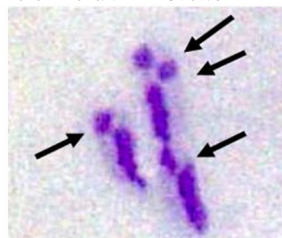


図 2:異性体 A の SCE 試験の陽性反応。

より詳しく調べるため、A の標品を利用して Salmonella Typhimurium による Ames 試験と DNA 損傷ストレスを調べる umu 試験、動物性細胞を用いた Sister chromatid exchange (SCE) 試験を実施したところ、前者二つでは陰性となったが、後者に対しては陽性であることが判明した。2-Aminoprine は Ames/ums 試験いずれも陽性であった。このことから、堆積した有機物に含まれる核酸塩基とその構造異性体は、地球生命/セントラルドグマの DNA/RNA や RNA 自己複製、原核生物や真核生物の DNA の突然変異や進化をもたらすポテンシャルをもつことが明らかとなった。

(2)超伝導 SIS ミクサ検出素子を用いたヘテロダイン分光システムにより、プラズマガスの長時間モニタリングを可能にした。これは、分光診断システムの安定化や、プラズマガスを排気・リセットしなくてもリファレンス(OFF 点)を観測できる較正システムの開発により実現した。これによりプラズマ内の HCN の存在量と回転温度の変化(360-500 K 程度で推移)を捉えることに成功した(図 3)。N<sub>2</sub> 分子の可視分光から、気相の平均温度は 340 K 程度と推察されるため、HCN は非平衡状態にあり、二体の化学反応だけでなく電極間の高エネルギー領域においてスパッタリングや光解離などによっても形成されている成分も含まれていると考えられる。これらは星形成領域・原始惑星系円盤などの環境にも通じる。

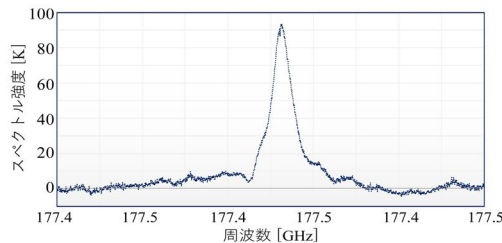


図 3:ダストプラズマの気相中の HCN  $J=2-1$  のスペクトル線(開発したテラヘルツ波を用いたプラズマ分光診断システムによる)。

また、プラズマの近赤外撮像を行い、帯電した有機ダストをクーロン結晶として音響波と共に浮遊させ、アグリゲート状構造を形成する様子を捉えることに成功した(ナノ粒子がミリサイズまで枝状に成長)。本プラズマ放電において、生体高分子とその前駆体の形成には、表面積の大きなアグリゲート状ダスト(図 4)やチャンバー/電極壁面が分子の冷却/表面反応/生成の場として重要な役割を果たしているものと推察される。

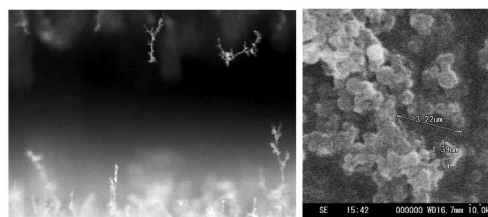


図 4: プラズマ気相中において成長/浮遊/堆積する有機物と、ダストの電子顕微鏡画像。

(3) QMS と熱流体・数値化学モデル(図 5)から、上記プラズマには HCN 以外にも H<sub>x</sub>、C<sub>x</sub>H<sub>y</sub>、N<sub>x</sub>、CH<sub>x</sub>CN、H<sub>x</sub>C<sub>2</sub>N<sub>2</sub>をはじめ、星間分子や彗星、タイタンなどの大気にも含まれる分子が多く存在することが示された。そこで量子化学反応経路探索を行ったところ、例えば QMS で検出されている 81 と 54 の分子には複数の安定な異性体が存在することもわかった。54 の分子は天体観測で検出されている HNCHCN も候補であるが、HCCNNH など形成されている可能性が探索により示唆された。そこで HCCNNH と H<sub>3</sub>C<sub>3</sub>N<sub>3</sub> の様々な構造異性体同士の表面での量子化学計算を行ったところ、異性体 A にはアデニンより遷移エネルギーが低く、形成されやすいルートがあることも分かった(図 6)。

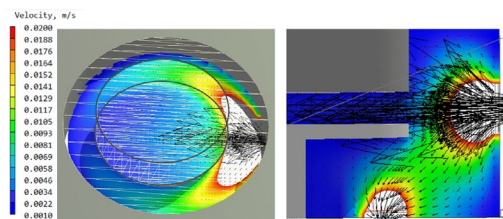


図 5: ラジカルの輸送・化学反応の時定数を探るためのプラズマ放電の熱流体モデル。

(4) LMT 望遠鏡の 131.4-152.4GHz 帯 B4R 受信機による大質量星形成領域 Orion-KL の観測データ(空間分解能 11 秒角)を用いて Line-ID を行った。そして C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>CN と CH<sub>3</sub>OCHO 分子の複数の遷移の輝線から温度と柱密度の分布を調べたところ、温度の高いホットコア領域で C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>CN の存在量が高いことを確認した。

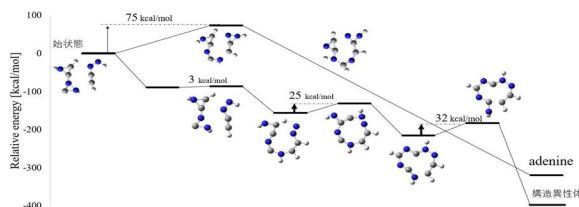


図 6: 核酸塩基のアデニンとその構造異性体 A の反応プロセスのエネルギーダイヤグラムの例。

以上のことは、星・惑星系形成環境やそれに準じた彗星や小天体の高温気相/ダスト領域、タイタンの超高層大気など、ニトリルや HCN などが比較的豊富に形成される領域において、ダストの表面なども利用して、アデニンやその構造異性体が形成可能であることを示唆する。ダスト氷だけでなく、こうした環境で形成された核酸塩基やアミノ酸、その前駆体や異性体が、彗星や星間ダストなどによって静かに地球に持ち込まれた場合、それらが原始の地球の生命に利用されたり、あるいは微生物や動物の突然変異・進化を促した可能性も示唆される。現在、プラズマの条件を変えて、核酸塩基も含めた生命関連分子とその異性体の種多様性と、それらの形成過程についてさらに解析・分析を進めている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1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 1件）

1. 著者名 Yutaka Hasegawa, Hiroyuki Maezawa, Hideo Ogawa	4. 巻 42
2. 論文標題 Novel 500-GHz Band Waveguide Stepped Septum-Type Circular Polarizer with a New High-Accuracy and Very Small Waveguide Flange	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves	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） 10.1007/s10762-020-00752-9	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15件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 米津 鉄平, 松原 浩, 前澤 裕之
2. 発表標題 有機ダストプラズマにおけるダストの成分同定に向けた解析手法の検討
3. 学会等名 日本天文学会2023秋季年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 米津 鉄平, 北村 太一, 山内 良斗, 尾田 拓人, 松本 侑大, 前澤 裕之
2. 発表標題 Global Reaction Route Mapping による C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> N <sub>2</sub> の反応経路網の探索/解析
3. 学会等名 日本天文学会2023秋季年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 米津鉄平、北村 太一、山内 良斗、尾田 拓人、松本 侑大、前澤 裕之
2. 発表標題 GRRMによる星間分子C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> N <sub>2</sub> の反応経路網の探索/解析
3. 学会等名 シンポジウム「化学反応経路探索のニューフロンティア2023」主催:量子化学探索研究所
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 前澤裕之, 米津鉄平
2. 発表標題 プラズマ合成で探る有機分子のアグリゲイト状構造の形成過程/撮像
3. 学会等名 日本天文学会2023年春季年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 米津 鉄平, 前澤 裕之
2. 発表標題 有機物合成実験のための mm - THz 波プラズマ分光診断システムの最適化開発
3. 学会等名 日本天文学会2022年秋季年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 前澤裕之
2. 発表標題 GRRMにより探る星形成領域の複雑な有機分子
3. 学会等名 シンポジウム「化学反応経路探索のニューフロンティア2022」主催:量子化学探索研究所, 協賛:日本化学会、分子科学会、理論化学会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 米津鉄平, 前澤裕之, 川邊良平, 吉村勇紀, 廿日出文洋, 河野孝太郎, 竹腰達哉, 酒井剛, 田中邦彦, 谷口暁星, 田村陽一, 大島泰, 鳥尻芳人
2. 発表標題 50m大型ミリ波望遠鏡LMT/2mm帯受信機B4RによるOrion-KL領域の試験観測
3. 学会等名 Japan Geoscience Union Meeting 2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 米津鉄平, 前澤裕之, 川邊良平, 吉村勇紀, 廿日出文洋, 河野孝太郎, 竹腰達哉, 酒井剛, 田中邦彦, 谷口暁星, 田村陽一, 大島泰, 鳥尻芳人, 他11名(海外)
2. 発表標題 LMT50m鏡搭載2mm帯受信機B4Rを用いたOrion-KL 領域マッピング観測による分子の存在量比の観測結果報告
3. 学会等名 日本天文学会2021年秋季年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 吉村勇紀, 川邊良平, 米津鉄平, 前澤裕之, 酒井剛, 田中邦彦, 竹腰達哉, 廿日出文洋, 河野孝太郎, 谷口暁星, 田村陽一, 大島泰, David Hughes, David Sanchez, Arturo Gomez, Victor Rodriguez, Edgar Colin, Javier Zaragoza, Miguel Chavez, Pete Schloerb, Kamal Souccar, Min Yun
2. 発表標題 大口径望遠鏡による広域マッピング観測: LMT 50m 望遠鏡搭載2mm帯受信機によるOrion A 領域の電波再結合線観測結果及びLST 将来サイエンス
3. 学会等名 日本天文学会2021年秋季年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 前澤裕之、米津鉄平、濱口優輝
2. 発表標題 超伝導ミクス素子によるダストプラズマのテラヘルツ波ヘテロダイン分光診断
3. 学会等名 本天文学会2021春季年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 米津鉄平, 前澤裕之, 川邊良平, 吉村勇紀, 廿日出文洋, 河野孝太郎, 竹腰達哉, 酒井剛, 田中邦彦, 谷口暁星, 田村陽一, 大島泰, 鳥尻芳人, 他11名(海外)
2. 発表標題 LMT50m望遠鏡搭載2mm帯SIS受信機B4Rによる観測結果の紹介
3. 学会等名 第21回ミリ波サブミリ波受信機ワークショップ
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 米津鉄平, 前澤裕之, 川邊良平, 吉村勇紀, 廿日出文洋, 河野孝太郎, 竹腰達哉, 酒井剛, 田中邦彦, 谷口暁星, 田村陽一, 大島泰, 島尻芳人, 他11名(海外)
2. 発表標題 2mm帯受信機B4R/LMT50m望遠鏡搭載によるOrion-KL領域試験観測の解析報告
3. 学会等名 日本天文学会2021年春季年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 米津鉄平、前澤裕之
2. 発表標題 量子化学計算によるC <sub>2</sub> H <sub>2</sub> N <sub>2</sub> の形成プロセスの探索
3. 学会等名 日本天文学会2020秋季年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 米津鉄平、前澤裕之
2. 発表標題 Study of formation processes of C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> N <sub>2</sub> by quantum chemical calculation
3. 学会等名 JPGU-AGU Joint Meeting 2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 前澤裕之
2. 発表標題 電波天文学におけるヘテロダイン分光 -星間物質に探る有機分子と質量分析
3. 学会等名 合同講演会 日本質量分析学会、イオン反応研究部会、イオン移動度研究会(招待講演)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔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	川西 優喜  (Masanobu Kawanishi)  (70332963)	大阪公立大学・理学(系)研究科(研究院)・教授    (24403)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------