

論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称	博 士 (理 学)	氏名	梅田 悠平
学位授与の要件	学位規則第4条第①②項該当		
論文題目			
Experimental simulations of reactions by meteorite marine impact: Implications for chemical evolutions of amino acids present in early oceans and the origin of life on the Earth (隕石海洋衝突による化学反応の実験的考察：初期地球におけるアミノ酸の化学進化と生命の起源への応用)			
論文審査担当者			
主 査	准教授	宮原 正明	
審査委員	教 授	柴田 知之	
審査委員	教 授	須田 直樹	
審査委員	教 授	安東 淳一	
審査委員	教 授	片山 郁夫	
審査委員	特任教授	関根 利守	
〔論文審査の要旨〕			
<p>生命が誕生する以前の海洋には大量のアミノ酸が含まれていたことが予想されている。その海洋には特に後期隕石重爆撃期に激しい隕石体衝突が起きていた。しかし、その激しい隕石体衝突が海洋中のアミノ酸にどのような影響を与え、生命の発生に寄与したかは謎が多い。そこで、本博士論文では1) アミノ酸溶液の衝突化学反応（生成メカニズム、重合や二量化）、2) 水—鉄物—アミノ酸の衝突化学反応を衝撃銃合成実験とその回収試料の分析に基づき明らかにし、隕石体の海洋衝突により生成される物質とその進化プロセスの一端を解き明かしている。</p> <p>1) アミノ酸溶液の衝突化学反応（生成メカニズム、重合や二量化）</p> <p>隕石体の海洋衝突を模した衝突回収実験を行っている。海洋模擬物質（アラニンとグリシンを含む溶液）と隕石体模擬物質（カンラン石、赤鉄鉱等）を試料コンテナに封入し、衝撃銃を用いて鉄の飛翔体をその試料コンテナに超高速衝突させた。実験後、試料コンテナから溶液を回収し成分を液体クロマトグラフで分析した。実験の結果、i) アラニンとグリシンの一部は海洋衝突後も残存した、ii) 一部のグリシンがアラニンに変化した、iii) 多量のメチルアミンとエチルアミンが生成したことが明らかとなった。メチルアミンとエチルアミンの生成量はカンラン石をアミノ酸溶液に添加するより、赤鉄鉱を添加した方がより多く生成されることが判明した。アラニンとグリシンに加えて窒素、アンモニア及びベンゼンを添加した実験系では n-ブチルアミンが生成していた。この結果は、隕石体の海洋衝突により新たな生体分子が生成した可能性を示唆するものである。この研究成果は公表論文[1]で公開している。</p> <p>2) 水—鉄物—アミノ酸の衝突化学反応</p> <p>1) のアミノ酸溶液の衝突化学反応実験で回収された隕石体模擬物質（カンラン石、赤鉄鉱等）を走査型・透過型電子顕微鏡、エネルギー分散分光装置や走査透過型 X線顕微鏡</p>			

法を用いて分析し、水—鉱物—アミノ酸間の衝突化学反応を明らかにした。回収試料に含まれていたカンラン石を走査型・透過型電子顕微鏡で観察すると、カンラン石の内部には多数の亀裂が発生しモザイク状となっていた。その表面は熱水との接触によりこぶ状となり、繊維状やタケノコ状の微小結晶が生成しているものもあった。また、カンラン石の表面には溶液に含まれていたアミノ酸に由来する炭素に富む物質が新たに生成していた。このカンラン石表面に付着した炭素に富む物質を、走査透過型X線顕微鏡法を用いて官能基分析と化学種分析を行ったところ、i) カンラン石の表面が溶解していた、ii) 炭素に富む物質は溶解したカンラン石中に侵入していた、iii) 炭素に富む物質には C=C, COOH, CO₃ が含まれることが明らかになった。この研究成果の一部は公表論文[2]で公開している。

1) と 2) 以外にも衝突化学反応による無機炭素から HCN の生成を試みる衝撃実験も行っている。実験の結果、シアン化物の生成率は添加された鉄・炭素の総量と衝突速度に依存することが明らかになった。HCN を含む溶液から様々な生体分子を生成させること目的とし、ギ酸アンモニウム水溶液とホルムアミド水溶液を染み込ませたカンラン石粉末を用いた衝撃実験も行っている。回収試料を高性能ハイブリッド質量分析装置で分析したところ、アミノ酸、アミノ酸重合体、カルボン酸、ヌクレオ塩基、糖や環状ペプチドが生成していた。

以上の研究結果と実際の衝突条件との相違点を議論し、梅田悠平君は生命が誕生する以前の海洋に含まれていたアミノ酸が隕石体の海洋衝突により生体分子へ進化しえた結論づけた。また、隕石体に含まれる鉱物（カンラン石や赤鉄鉱等）がアミノ酸のさらなる化学進化を促した可能性を実験的に指摘した。これらの研究成果は、隕石体の海洋衝突による化学反応の重要性を実証すると同時に、地球生命の発生・進化の解明に取り組む研究者にとって新たなマイルストーンとなるものである。梅田悠平君は研究成果の一部を既に 2 報の国際学術雑誌で公刊しており、研究成果は国際的な評価を得ている。また、未発表の成果についてはさらなる国際雑誌への投稿の準備も積極的に進めている。他に梅田悠平君はX線自由電子レーザー施設での研究課題「XFELとパワーレーザーによる新極限物質材料の探索」に共同研究者として参画しており、それらの成果は参考論文[1]～[3]で公開している（予定も含む）。梅田悠平君の研究遂行能力及び情報発信能力は博士として十分値するものである。

以上、審査の結果、本論文の著者は博士（理学）の学位を授与される十分な資格があるものと認める。

公表論文

- [1] Y. Umeda, N. Fukunaga, T. Sekine, Y. Furukawa, T. Kakegawa, T. Kobayashi, and H. Nakazawa, Survivability and reactivity of glycine and alanine in early oceans: effects of meteorite impacts, *Journal of Biological Physics* (2016) 42:177–198. doi: 10.1007/s10867-015-9400-5.
- [2] Y. Umeda, A. Takase, N. Fukunaga, T. Sekine, T. Kobayashi, Y. Furukawa, and T. Kakegawa, Morphological changes of olivine grains reacted with amino acid solutions by impact process, *Physics and Chemistry of Minerals*, in Press. doi: 10.1007/s00269-016-0849-y.

参考論文

- [1] T. A. Pikuz, A. Ya. Faenov, N. Ozaki, N. J. Hartley, B. Albertazzi, T. Matsuoka, K. Takahashi, H. Habara, Y. Tange, S. Matsuyama, K. Yamauchi, R. Ochante, K. Sueda, O. Sakata, T. Sekine, T. Sato, Y. Umeda, Y. Inubushi, T. Yabuuchi, T. Togashi, T. Katayama, M. Yabashi, M. Harmand, G. Morard, M. Koenig, V. Zhakhovsky, N. Inogamov, A. S. Safronova, A. Stafford, I. Yu. Skobelev, S. A. Pikuz, T. Okuchi, Y. Seto, K. A. Tanaka, T. Ishikawa, and R. Kodama, Indirect monitoring shot-to-shot shock waves strength reproducibility during pump–probe experiments, *Journal of Applied Physics* (2016) 120, 035901. doi: <http://dx.doi.org/10.1063/1.4958796>.
- [2] N. J. Hartley, N. Ozaki, T. Matsuoka, B. Albertazzi, A. Faenov, Y. Fujimoto, H. Habara, M. Harmand, Y. Inubushi, T. Katayama, M. Koenig, A. Krygier, P. Mabey, Y. Matsumura, S. Matsuyama, E. McBride, K. Miyanishi, G. Morard, T. Okuchi, T. Pikuz, O. Sakata, Y. Sano, T. Sato, T. Sekine, Y. Seto, K. Takahashi, K. A. Tanaka, Y. Tange, T. Togashi, Y. Umeda, T. Vinci, M. Yabashi, T. Yabuuchi, K. Yamauchi, and R. Kodama, Ultrafast Lattice Dynamics in Laser-Irradiated Gold Foils, *Applied Physics Letters* 110, 071905 (2017); doi: <http://dx.doi.org/10.1063/1.4976541>.
- [3] B. Albertazzi, N. Ozaki, V. Zhakhovsky, A. Faenov, H. Habara, M. Harmand, N. J. Hartley, D. K. Ilnitsky, N. Inogamov, Y. Inubushi, T. Ishikawa, T. Katayama, M. Koenig, A. Krygier, T. Matsuoka, S. Matsuyama, E. McBride, K. Migdal, G. Morard, T. Okuchi, T. Pikuz, N. Purevjav, O. Sakata, Y. Sano, T. Sato, T. Sekine, T. Seto, K. Takahashi, K. A. Tanaka, Y. Tange, T. Togashi, K. Tono, Y. Umeda, T. Vinci, M. Yabashi, T. Yabuuchi, K. Yamauchi, and R. Kodama, Dynamic fracture of tantalum under extreme tensile stress, submitted to *Science Advances*.