1P165

進化フローリアクターにおけるアラニンの重合と異性化

○根本 淳史、今井 栄一、本多 元、羽鳥 晋由、松野 孝一郎
(長岡技術科学大学・生物系)

原始地球上の化学進化におけるアミノ酸の光学活性の起源および発展は興味深い問題である。本研究では、海底熱水環境を模倣した進化フローリアクターを用いて、アラニンからの反応生成物のラセミ化について調べた。その結果、熱水噴出孔環境下ではアラニンの異性化は不均一に生じることが分かった。L-Alaのみ、D-Alaのみ、L-AlaとD-Alaを等量含んでいる場合について実験を行った。反応条件は、高温部230℃、低温部0℃で、圧力23MPa、反応時間120分である。反応生成物は実験すべてにおいてジケトピペラジンと2量体の生成を確認した。反応物質である単量体の減少は、L-Alaの方がD-Alaよりも顕著だった。またL-Alaのみ、D-Alaのみ、どちらも20分前後から対掌体を生じ、反応120分後にはL-Alaの場合D-Ala:L-Ala=50:50、D-Alaの場合D-Ala:L-Ala=56:44になった。(図)なお、L-AlaとD-Alaを等量含んでいる場合は対掌体比率が一定のままだった。これらの結果は、L体がD体より安定である報告とは異なるものであり、ラセミ体は見かけ上の変化は起こさないことを示唆した。

Fig. Change of the chiral population accompanied by reaction time

A. Nemoto, E. Imai, H. Honda, K. Hatori, K. Matsuno : Synthesis and Isomerization of Alanine in Flow Reactor Simulating Submarine Hydrothermal System

1P167

熱水環境下におけるアミノ酸重合の多様性

○横山 進之介、菊地 叙夫、今井 栄一、本多 元、羽鳥 晋由、松野 孝一郎 (長岡技術科学大学・生物系)

我々は原始地球上においてアミノ酸の多量体生成の場として海底熱水噴出孔近傍の熱水環境に着目してきた。その環境を模倣した進化フローリアクターによってGlyまたはAlaのオリゴマーの生成を確認してきた。原始地球上で容易に合成されたと考えられるアミノ酸の種類にGly, Ala, Asp, Valの4種類がある。この4種類のアミノ酸はGNCのコードンによってエンコードされるもので、それらのアミノ酸からなるタンパク質で現存のタンパク質と同等の水溶性で球状の構造を取りうるという説がある。そこで本研究ではこれら4種類のアミノ酸を出発物質に選び重合実験を行った。高温環境を200℃、低温環境を0℃と設定し2つの環境が直接接触した非平衡循環反応系において120分間の重合実験を行った。アミノ酸の濃度はそれぞれ20mMとし、反応生成物の同定はHPLCに依った。分析結果によると複数の反応生成物が検出された。(図参照)その反応生成物には多様性があり、かつ反応の進行中に生成するパターンが変化した。これは熱水環境下において重合反応が一様に起こるのではなく、多様に起こり得る可能性を秘めていることを示唆する。

S. yokoyama, N. kikuchi, E. Imai, H. Honda, K. hatori and K. Matsuno : Diversity of the amino acid oligomerization in the formation of hydrothermal vent environment.

1P166

リポソームが存在する熱水環境下でのアミノ酸の重合

○今井 栄一、羽鳥 晋由、本多 元、松野 孝一郎 (長岡技術科学大学・生物系)

原始細胞の出現に至る過程においては機能、情報を司るタンパク質や核酸様物質の生成のほかに膜構造も必須である。リポソームが造る局所空間が熱水環境下におけるアミノ酸の重合に寄与するか実験的検証を行うことを目的とする。リン脂質とグリシン溶液を用い、熱水環境を模倣した進化フローリアクターによるグリシンのオリゴマーの生成実験を行った。

リン脂質 (DPPC, ジパルミトイルホスファチジルコリン) からリポソームを造り、180℃の高温環境下から0℃の低温環境下へ熱水を噴出させ急冷させることで、グリシンの7量体までのオリゴマーの生成を確認した。出発反応溶液の組成はグリシンの濃度が100mM, DPPCは0.3mM(0.22 μg/ml)であった。反応生成物の同定・定量はHPLCを用いた。リポソームの直径は微分干渉光学顕微鏡観察によって確認したところ最大10 μmであった。リポソーム存在下におけるジケトピペラジン、グリシン二量体、三量体はリポソーム非存在下に比べ増大することが認められた。このことからリポソームはアミノ酸の重合にとって有益であることが判明した。なおリポソームは180℃を超えると急速に構造体が減少し、運転開始後40分においてはほとんど消失していた。

Time developments of the yields of diglycine and triglycine both in the presence and in the absence of DPPC liposomes.

E. Imai, K. Hatori, H. Honda and K. Matsuno : Prebiotic oligomerization in lipid vesicles in Hydrothermal environments

1P168

模擬海底熱水噴出孔によるグアニル酸(GMP)の反応

○小澤 慶太、今井 栄一、本多 元、羽鳥 晋由、松野 孝一郎
(長岡技術科学大学・生物系)

我々は、化学進化の場として海底熱水噴出孔の環境に着目し、その環境を進化フローリアクターとして再現した。DNAを構成する4種のヌクレオチドの中で、アミノ酸をコードする核酸配列にグアニル酸(GMP)とシチジル酸(CMP)が多く含まれていることから、原始地球上で特異的にGMPとCMPが重合された可能性がある。本研究では、進化フローリアクターにおけるGMPの反応生成物について調査した。酸性条件(pH 2.0)下で10mM GMPに金属イオン(Pb²⁺, Zn²⁺)を添加したものを出発物質とし、高温110℃、低温0℃、圧力13MPaの条件下で3時間運転した。HPLCの分析により、グアノシンとグアニンに相当するピークが著しく増加していることがわかった。すなわち、GMPの重合反応より分解反応の方が進行した。中性条件下で100mMリン酸を含んだ10mM GMP溶液を出発溶液としたとき、グアニジンやグアニンの増加が、酸性条件下に比べて抑制され、GTP標準試料のリテンションタイムと一致するピークが認められた。現在、核酸において分解を抑制しながらも重合を促進するような反応系が進化フローリアクターで実現できるかどうかを試みている。

K. Ozawa, E. Imai, H. Honda, K. Hatori and K. Matsuno : Reaction of GMP in a simulated hydrothermal system.