日本学士院エジンバラ公賞　受賞者

大河内（おおこうち）　直（なお）彦（ひこ）

専攻学科目　地球科学

生年月　昭和四一年　五月

略歴

平成二年	三月	東京大学理学部地学科卒業
同　七年	三月	東京大学大学院理学系研究科博士課程修了
同　七年	三月	博士（理学）
同　七年	四月	京都大学生態学研究センター日本学術振興会特別研究員（PD）
同　八年	三月	北海道大学低温科学研究所助手
同　一一年	五月	米国ウッズホール海洋研究所博士研究員
同　一四年	一月	海洋科学技術センター固体地球統合フロンティア研究システム地球古環境変動研究プログラム研究員
同　一七年	四月	海洋研究開発機構地球内部変動研究センター地球古環境変動研究プログラムグループリーダー（平成二一年三月まで）
同　二一年	四月	海洋研究開発機構海洋・極限環境生物圏研究領域プログラムディレクター（平成二六年三月まで）
同　二三年	四月	東京工業大学総合理工学研究科連携教授（平成三一年三月まで）
同　二四年	四月	東京大学大学院理学系研究科教授（委託、平成二六年三月まで）
同　二六年	四月	海洋研究開発機構生物地球化学研究分野長（平成三一年三月まで）
同　三一年	四月	海洋研究開発機構海洋機能利用部門長（現在に至る）
同　三一年	四月	海洋研究開発機構海洋機能利用部門生物地球化学プログラム長（令和二年三月まで）
令和　二年	四月	海洋研究開発機構海洋機能利用部門生物地球化学センター長（現在に至る）

博士（理学）大河内直彦氏の「分子レベルの高度同位体比分析法を駆使した生物界変動解析法の構築と応用」に対する授賞審査要旨

大河内直彦氏は、東京大学大学院理学系研究科において、海底堆積物を採取し脂質分子の超微量分析から過去の気候変動を読み解くという研究で学位を得た。この間、高度な化学分析技術を取得・開発する方向に転換し、古環境・古気候・近過去生態学に視野を広げた。大学院卒業後、京都大学生態学研究センターで博士研究員となり生態学を学んだのも、この表れの一つである。その後、北海道大学低温科学研究所助手として、オホーツク海のプロジェクトに参加、再び海底堆積物の研究に戻った。一九九九年に米国ウッズホール海洋研究所に移り、海底堆積物から特定の有機化合物の放射性炭素を測定するために、各種クロマトグラフィーや尿素包摂などの湿式分析を駆使して単離する方法を開発し、深海底に多様な年代をもつ有機物が濃集していることを明らかにした。二〇〇二年、現在の海洋研究開発機構に固体地球統合フロンティア研究システム地球古環境変動研究プログラムが発足し、研究員として採用される。以来、多様な化合物の集合体である天然物から特定の分子を単離し、その詳細な同位体自然存在比を精密に測定する技術を確立し、その結果をもとに環境中で起きている現象の詳細を読み解く「分子レベルの高度同位体比分析法を駆使した生物界変動解析法」を確立・発展させた。現在、海洋研究開発機構の生物地球化学センター長として、上記の方法論を応用した生態系や環境変動の解析で世界をリードしている。研究成果は *Science* 誌四報、*PNAS* 誌四報、*Nature* 姉妹誌三報などを含め、専門誌に二五〇報以上発表され、引用総数は八七〇〇回（Google Scholar, 二〇二一年七月現在）を超えている。また、一般向け書籍を三冊著し、そのひとつは講談社科学出版賞を受賞するなど高評価を得た。

以下に大河内直彦氏の業績のうち、特に「水界生態システムの解読」に関連する研究成果を三つに分けて述べる。

（1）海洋における天然有機分子の動態と、その化石分子（古い時代に作られた有機分子のこと）を用いた古環境の研究

大河内氏は、海底に分布するクロロフィルや脂肪酸など多様な分子を単離して放射性炭素年代の測定を行い、それらが幅広い年代をもつことを初めて明らかにした。そして特定の海域では、多様な有

機分子が陸・海を問わず広い範囲から集まり、その動態が小氷期や中世温暖期といった小規模な気候変化によっても大きく変化することを明らかにした（Ohkouchi *et al.* 2002）。本成果は *Science* 誌に発表され、堆積物中に含まれる有機物を指標にして環境を読み解く分野で一般的に用いられてきた方法の欠点（「堆積物がたまった年代＝そこに含まれる有機物が生成された年代」を前提とすること）を指摘し、大きな警鐘を鳴らすと同時に、気候変動が深海の粒子の移動にまで影響を及ぼしていることを初めて明らかにした。

これまで、大河内氏のグループは、個々の微量有機成分の正確な安定同位体比を測定するために、現在世界で最も微量で天然レベルの炭素・窒素同位体比を測定する質量分析計の開発も行った（Ogawa *et al.* 2010）。これにより、各化合物を単離後、五ナノモルで窒素安定同位体比を、一五ナノモルで炭素同位体比を精密に測定することを可能にし、海洋中に分布するクロロフィル、ヘム、膜脂質、脂肪酸、アミノ酸、炭化水素など多岐にわたる分子の炭素・窒素同位体比の測定を可能にした。その主たる成果は次のようなものである。

深海底に生息する古細菌の膜脂質の炭化水素（イソプレノイド）部は、古細菌自身が合成したものではなく、細胞を取り巻く環境中に「落ちていた」大きな（質量数五〇〇以上）炭化水素分子をそのまま取り込んで、再利用されたものであることを示した。同様のことは、クロロフィルの側鎖フィトールについても見られる。つまり、環境中の微生物は生命活動に必要な化合物を合成する能力を使う前に、まずは環境中に「使い回せる」化合物を探し、それを再利用して済ませる生き方をしている。本成果は、海洋というエネルギーや栄養に強く制御された場で暮らす生物の本質的な姿を明示している（Takano *et al.* 2010）。

また、遠赤色光を吸収し光合成を駆動するクロロフィル *d* を、水温や塩分濃度が大きく異なる世界各地の水域の堆積泥からクロロフィル *a* の一～四％の濃度で検出したことも顕著な成果の一つである（Kashiyama *et al.* 2008）。本成果は *Science* 誌に発表され、海洋の有光層において長波長光を利用した特殊な一次生産が普遍的に行われていることを示した。

（2）シアノバクテリアのブルームの出現と大気酸素の蓄積の動態

クロロフィルの中心環をなすテトラピロール構造（ポルフィリン）が堆積物中で長期間保存されることを利用し、過去の海洋における一次生産者の復元も行った。具体的には、いまだ謎が多い石油の根源岩である中生代白亜紀九四〇〇万年前の黒色頁岩からクロロフィルの分子化石であるポルフィリンを単離し、ポルフィリンの詳

細な構造決定および炭素・窒素安定同位体比から、それらが主として珪藻－窒素固定シアノバクテリアの共生系が起源であることを明らかにした。このブルームは、マントル物質が海洋に供給された地質学的事件と連動しており（Kuroda *et al.* 2007）、このようなブルームの繰り返しによってパルス的な大気中の酸素の蓄積や、石油起源物質の蓄積を生み出したシアノバクテリアの世界を描くことに貢献した。また、絶対嫌気性光合成細菌しか合成しないバクテリオクロロフィルを起源とする構造をもつポルフィリンを発見し、当時の海洋表層の有光層内（水深二〇〇米以浅）に無酸素水塊が存在したことを証明した。同様の方法論を先カンブリア代にも応用し、一一億年前の地層から世界最古のクロロフィル化石を見出すとともに、その窒素同位体比から当時の海洋表層の主要な生産者がシアノバクテリアであったことも明らかにした（Ohkouchi *et al.* 2006, 2015; Gueneli *et al.* 2018）。

これら黒色頁岩の研究により、中生代以前のシアノバクテリアのブルーム出現（約二三億年前、七億年前、六億三九〇〇万年前など）時の海洋生態系の姿が明らかとなった。黒色頁岩生成時期に、パルス的に大気酸素の蓄積が進んだことも示唆された。

（3）食物連鎖の構造解析：アミノ酸窒素同位体比による栄養段階の決定とその応用

大河内直彦氏のグループは世界に先駆けて、自然界の生態系における「食う－食われる」という関係が、生物体を構成するグルタミン酸とフェニルアラニンの窒素同位体比に記録されていることを明らかにした。栄養段階の上昇にともなう^{15}Nの一定の濃縮がアミノ酸の脱アミノ過程で生起することを明らかにし、生物の栄養段階を正確に決定する以下の経験式を求めた（Chikaraishi *et al.* 2009; Ohkouchi *et al.* 2017）。

$$\text{栄養段階} = (\delta^{15}\mathrm{N}_{\text{グルタミン酸}} - \delta^{15}\mathrm{N}_{\text{フェニルアラニン}} + \beta)/7.6 + 1.$$

$$\beta = -3.4‰\ (\text{水界生物}),\ +8.4‰\ (\text{陸上生物})$$

各種生物の栄養段階を知ることは、食物網の中でのニッチェ（位置付け）を明らかにすることであり、自然界における生き物の基本データの一つとなる。大河内氏は、本手法を多様な生態系に応用して生態系解析をリードし、水産学や養殖技術開発、産地判別法などにまで幅広い分野に貢献してきた。さらに、本手法が遺跡で発見される骨など化石試料にも応用できることを示し、考古学や人類学的な問題に応用した。その結果、縄文人やネアンデルタール人の食性

解析に成功した。以下に、本方法論の応用によって明らかにされた多様な成果を列挙する。

（一）富栄養化した琵琶湖を例に、二〇世紀に起きた富栄養化にともなう水界の環境変化は、各種魚類のニッチェに変化を及ぼしてこなかった（Ogawa *et al.* 2013）。

（二）バイカル湖を例に、最上位捕食者であるバイカルアザラシの栄養段階が五・一であり、現在知られる自然界の栄養段階の最高値をもつ（Ohkouchi *et al.* 2015）。

（三）岩礁域の多くの魚類の栄養段階は二・九～三・六という栄養段階を示すことを明らかにした（Chikaraishi *et al.* 2014）。

（四）天然におけるウナギの稚魚の餌はマリンスノーである。本成果はその後、養殖ウナギの餌開発に利用された（Miller *et al.* 2012）。

（五）サケの骨に刻まれた記録によると、サケがベーリング海東部の大陸棚で成長・性成熟してから日本に戻るという回遊経路をもつ（Matsubayashi *et al.* 2020）。

（六）内陸部に生息した中期縄文人の栄養段階は二・六であり、そのタンパク源の少なくとも六割が陸上動物に由来する（Naito *et al.* 2010）。

（七）ベルギー内陸部にかつて生息したネアンデルタール人の栄養段階は平均二・九で、きわめて強い肉食性をもつ（Naito *et al.* 2016）。

以上、大河内直彦氏は、今後大きく発展が期待される分子レベルの同位体組成を応用する新しい道を、海洋学、生態学、人類学、水産学などといった既存分野に切り開き、当該分野のパイオニアに位置する成果を上げた。この手法は、地球環境が人間活動によって擾乱を受けた二〇世紀以降の人新世（Anthropocene）において、生物界の変動を解析する有力な手法となった。人新世では、グローバルからローカルまで、生物から非生物を貫いて、包括的・総合的な視点で〝生態系の保護や生物種の保全を目指すこと〟が急務となる。大河内氏が開発してきた「分子レベルの高度同位体比分析法」は今後、益々重要な知見を見出していくことが期待でき、日本学士院エジンバラ公賞にふさわしい業績である。

主要な著書及び論文の目録

（1）海洋における天然有機分子の動態と、その化石分子を用いた古環境の研究

1. Ohkouchi, N., Eglinton, T. I., Keigwin, L. D., and Hayes, J. M. (2002) Spatial and temporal offsets between proxy records in a sediment drift. *Science*, **298**, 1224–1227.
2. Kashiyama, Y., Miyashita, H., Ogawa, N. O., Chikaraishi, Y., Takano, Y., Suga,

H., Toyofuku, T., Nomaki, H., Kitazato, H., Nagata, T., and Ohkouchi, N. (2008) Evidence of global chlorophyll *d*. *Science*, **321**, 658.

3. Takano, Y., Chikaraishi, Y., Ogawa, N. O., Nomaki, H., Morono, Y., Inagaki, F., Kitazato, H., Hinrichs, K.-U., and Ohkouchi, N. (2010) Sedimentary membrane lipids recycled by deep-sea benthic archaea. *Nature Geosciences*, **3**, 858–861.
4. Ogawa, N.O., Nagata, T., Kitazato, H., and Ohkouchi, N. (2010) Ultra-sensitive elemental analyzer/isotope ratio mass spectrometer for stable nitrogen and carcon isotopic analyses. In *Earth, Life, and Isotopes* (Eds. Ohkouchi N, Tayasu I, Koba K), Kyoto University Press, pp. 339-353.
5. Inagaki, F. *et al.*（四四人中二九番目が大河内）(2015) Exploring deep microbial life in coal-bearing sediment down to ~2.5 km below the ocean floor. *Science*, **369**, 420–424.
6. Yokoyama, Y., Yamazaki, T., Miyairi, Y., Anderson, J. B., Koizumi, M., Suga, H., Kusahara, K., Hasumi, H., Southon, J. R., and Ohkouchi, N. (2016) Widespread collapse of the Ross Ice Shelf during the late Holocene. *Proceedings of the National Academy of Science, USA*, **113**, 2354–2359.
7. Takano, Y., Chikaraishi, Y., Imachi, H., Miyairi, Y., Ogawa, N. O., Kaneko, M., Yokoyama, Y., Kruger, M., and Ohkouchi, N. (2018) Insight into anaerobic methanotrophy from $^{13}C/^{12}C$- amino acids and ^{14}C-ANME cells in seafloor microbial ecology. *Scientific Reports*, **8**, 14070.
8. Ishikawa, N. F., Itahashi, Y., Blattmann, T., Takano, Y., Ogawa, N. O., Yamane, M., Yokoyama, Y., Nagata, T., Yoneda, M., Eglinton, T. I., and Ohkouchi, N. (2018) An improved method for isolation and purification of underivatized amino acids for radiocarbon analysis. *Analytical Chemistry*, **90**, 12035–12041.

（2）シアノバクテリアのブルームの出現と大気酸素の蓄積の動態

9. Ohkouchi, N., Nakajima, Y., Okada, H., Ogawa, N. O., Suga, H., Oguri, K., and Kitazato, H. (2005) Biogeochemical processes in the meromictic lake Kaiike: Implications from carbon and nitrogen isotopic compositions of photosynthetic pigments. *Environmental Microbiology*, **7**, 1009–1016.
10. Ohkouchi, N., Kashiyama, Y., Kuroda, J., Ogawa, N. O., and Kitazato, H. (2006) The importance of diazotrophic cyanobacteria as primary producers during Cretaceous Oceanic Anoxic Event 2. *Biogeosciences*, **3**, 467–478.
11. Kuroda, J., Ogawa, N. O., Tanimizu, M., Coffin, M. F., Tokuyama, H., Kitazato, H., and Ohkouchi, N. (2007) Contemporaneous massive subaerial volcanism and late Cretaceous Oceanic Anoxic Event 2. *Earth and Planetary Science Letters*, **256**, 211–223.
12. Ohkouchi, N., Nakajima, Y., Okada, H., Ogawa, N. O., Chikaraishi, Y., Suga, H., Sakai, S., and Kitazato, H. (2008) Carbon isotopic composition of tetrapyrrole nucleus in chloropigments from a saline meromictic lake: A mechanistic view for interpreting the isotopic signature of alkyl porphyrins in geological samples. *Organic Geochemistry*, **39**, 521–531.
13. Sekine, Y., Suzuki, K., Senda, R., Tajika, E., Tada, R., Goto, K., Yamamoto, S., Ohkouchi, N., and Ogawa, N. O. (2011) Osmium evidence for a correlation of the rise of oxygen and Paleoproterozoic glaciations. *Nature Communications*, **2**, 502.
14. Nakayama, T., Kamikawa, R., Tanifuji, G., Kashiyama, Y., Ohkouchi, N., Archibald, J. M., and Inagaki, Y. (2014) Complete genome sequence of a non-photosynthetic cyanobacterium: Insight into bacterium-eukaryote endosymbiosis from the spheroid bodies of rhopalodiacean diatoms. *Proceedings of the National Academy of Science, USA*, **111**, 11407–11412.
15. Ohkouchi, N., Kuroda, J., and Taira, A. (2015) The origin of Cretaceous black shales: a change in the surface ocean ecosystem and its triggers. *Proceedings of the Japan Academy, Series B*, **91**, 273–291.
16. Nunoura, T., Chikaraishi, Y., Harada, T., Mori, K., Kato, Y., Sato, T., Yanaga-

wa, K., Miyazaki, M., Shuto, A., Ohkouchi, N., Fujita, N., Atomi, H., Takaki, Y., and Takai, K. (2018) A primordial reversible TCA cycle in a facultatively chemolithoautotrophic thermophile. *Science*, **359**, 559–563.

17. Gueneli, N., McKenna, A. M., Ohkouchi, N., Boreham, C., Beghin, J., Javaux, E. J., and Brocks, J. J. (2018) 1.1 billion years old porphyrins and their isotopic composition establish a marine ecosystem dominated by bacterial primary producers. *Proceedings of the National Academy of Science, USA*, **115**, E6978–E6986.

（3）食物連鎖の構造解析：アミノ酸の窒素同位体比による栄養段階の決定とその応用

18. Chikaraishi, Y., Ogawa, N. O., Kashiyama, Y., Takano, Y., Suga, H., Tomitani, A., Miyashita, H., Kitazato, H., and Ohkouchi, N. (2009) Determination of aquatic food-web structure based on compound-specific nitrogen isotopic composition of amino acids. *Limnology and Oceanography: Methods*, **7**, 740–750.
19. Naito, Y., Honch, N. V., Chikaraishi, Y., Ohkouchi, N., and Yoneda, M. (2010) Quantitative evaluation of marine protein contribution in ancient diets based on nitrogen isotope ratios of individual amino acids in bone collagen: An investigation at the Kitakogane Jomon site. *American Journal of Physical Anthropology*, **143**, 31–40.
20. Miller, M., Chikaraishi, Y., Ogawa, N. O., Yamada, Y., Tsukamoto, K., and Ohkouchi, N. (2012) A low trophic position of Japanese eel larvae indicates feeding on marine snow. *Biology Letters*, **9**, 20120826.
21. Ohkouchi, N., Tsuda, R., Chikaraishi, Y., and Tanabe, K. (2013) A preliminary estimate of trophic level of Ram's Horn Squid *Spirula spirula* based on nitrogen isotopic composition of amino acids. *Marine Biology*, **160**, 773–779.
22. Ogawa, N. O., Chikaraishi, Y., and Ohkouchi, N. (2013) Trophic position estimates of formalin-fixed samples with nitrogen isotopic compositions of amino acids: an application to gobiid fish (Isaza) in Lake Biwa, Japan. *Ecological Research*, **28**, 697–702.
23. Chikaraishi, Y., Steffan, S. A., Ogawa, N.O., Ishikawa, N. F., Sasaki, Y., Tsuchiya, M., and Ohkouchi, N. (2014) High-resolution food webs based on nitrogen isotopic composition of amino acids. *Ecology and Evolution*, **4**, 2423–2449.
24. Ohkouchi, N., and Takano, Y. (2014) Organic nitrogen: Sources, fates, and chemistry. In *Treatise on Geochemistry 2nd Ed*. (Eds. P. Falkowski and K. H. Freeman), Elsevier, London, pp. 251–289.
25. Steffan, S. A., Chikaraishi, Y., Currie, C., Gaines Day, H. R., Pauli, J. N., Zalapa, J. E., and Ohkouchi, N. (2015) Microbes are trophic analogs of animals: Unification of the micro- and macrobiome in food web ecology. *Proceedings of the National Academy of Science, USA*, **112**, 15119–15124.
26. Ohkouchi, N., Ogawa, N. O., Chikaraishi, Y., Tanaka, H., and Wada, E. (2015) Biochemical and physiological bases for the application of carbon and nitrogen isotopes to the environmental and ecological studies. *Progress in Earth and Planetary Science*, **2**, 1.
27. Naito, Y. I., Chikaraishi, Y., Drucker, D. G., Ohkouchi, N., Semal, P., Wißing, C., and Bocherens, H. (2016) Ecological niche of Neanderthals from Spy Cave revealed by nitrogen isotopes of individual amino acids in collagen. *Journal of Human Evolution*, **93**, 82–90.
28. Ohkouchi, N., Chikaraishi, Y., Close, H. G., Fry, B., Larsen, T., Madigan, D. J., McCarthy, M. D., McMahon, K. W., Nagata, T., Naito, Y. I., Ogawa, N. O., Popp, B. N., Steffan, S., Takano, Y., Tayasu, I., Wyatt, A. S. J., Yamaguchi, Y. T., and Yokoyama, Y. (2017) Advances in the application of amino acid nitrogen isotopic analysis in ecological and biogeochemical studies. *Organic Geochemistry*, **113**, 150–174.
29. Cortés-Sánchez, M., Jimenez-Espejo, F. J., Simón-Vallejo, M. D., Stringer, C.,

Odriozola, Lloret C., García-Alix, A., Lozano Francisco, M. C., Vera Peláez, J. L., Riquelme-Cantal, J. A., Parrilla Giráldez, R., Maestro González, A., Ohkouchi, N., and Morales-Muñiz, A. (2019) An early Aurignacian arrival in southwestern Europe. *Nature Ecology and Evolution*, **3**, 207–212.

30. Matsubayashi, J., Osada, Y., Tadokoro, K., Abe, Y., Yamaguchi, A., Shirai, K., Honda, K., Yoshikawa, C., Ogawa, N. O., Ohkouchi, N., Nagata, T., Naito, Y. I., Miyamoto, H., Nishio, S., and Tayasu, I. (2020) Tracking long-distance ocean migration of marine fishes using compound-specific stable isotope analysis of amino acids. *Ecology Letters*, **23**, 881–890.

（4）その他（著書・編書）

31. 大河内直彦（二〇〇八）『チェンジング・ブルー：気候変動の謎に迫る』岩波書店（講談社科学出版賞受賞、二〇一三年、韓国語訳）。
32. Ohkouchi, N., Tayasu, I., and Koba, K. (eds.) (2010) *Earth, Life, and Isotopes*. Kyoto University Press, Kyoto.
33. 大河内直彦（二〇一二）『「地球のからくり」に挑む』新潮社。
34. 大河内直彦（二〇一五）『地球の履歴書』新潮社。
35. 大河内直彦・山福朱美（二〇一七）「石油のものがたり」『たくさんのふしぎ』二〇一七年六月号、福音館書店（二〇一九年、中国語訳）。