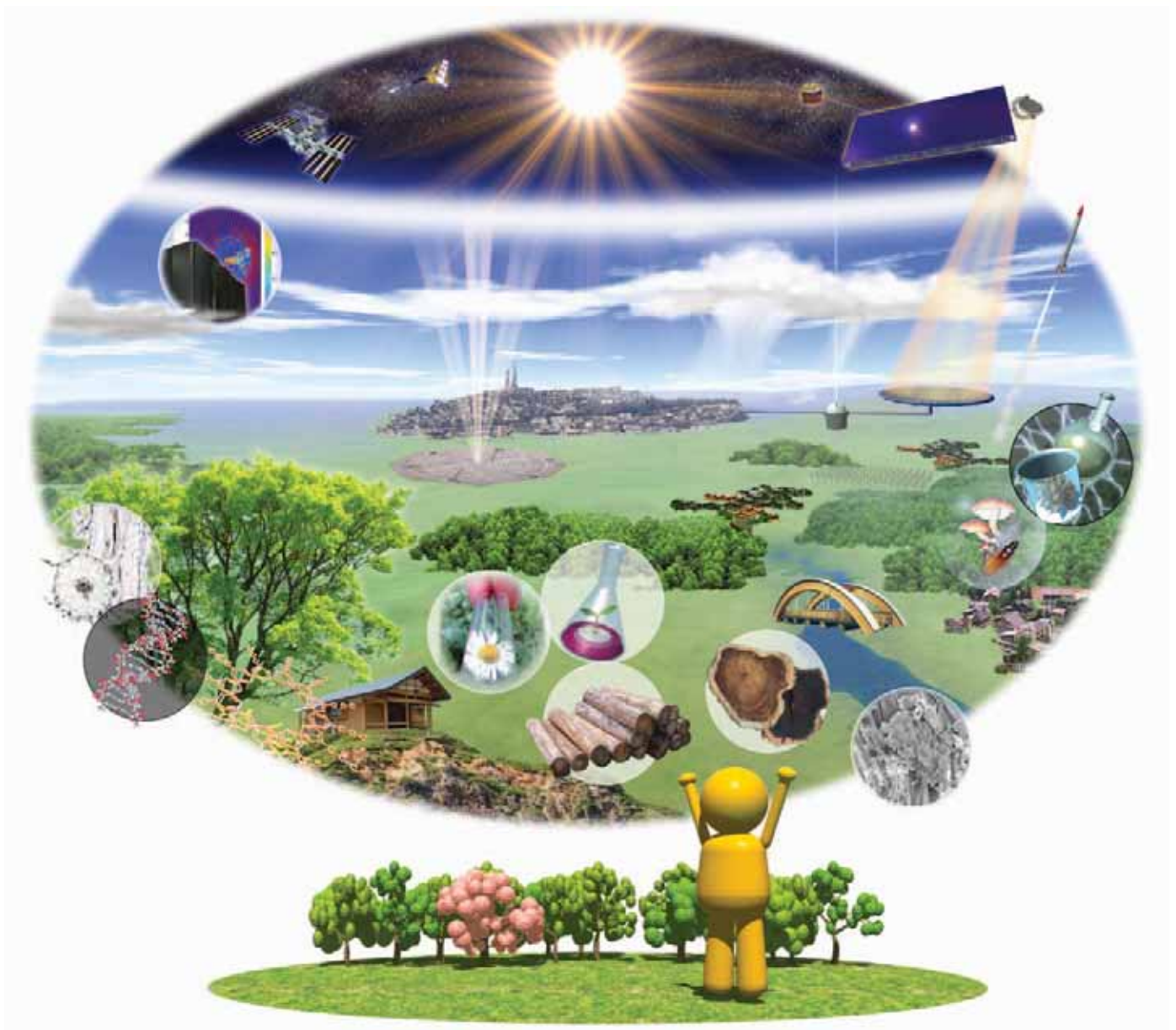


平成24年度

生存圏科学の新領域開拓

ロングライフイノベーション共同研究 活動報告



平成24年度

生存圏科学の新領域開拓

ロングライフイノベーション共同研究

活動報告

京都大学 生存圏研究所

は し が き

平成 16 年 4 月に発足した京都大学生存圏研究所は、平成 17 年度から大学附置全国共同利用研究所として本格的活動を開始し、平成 22 年度からは「生存圏科学の共同利用・共同研究拠点」として活動しております。生存圏の正しい理解と問題解決のために、環境計測・地球再生、太陽エネルギー変換・利用、宇宙環境・利用、循環型資源・材料開発をミッションとし、設立当初から、(1)大型設備・施設共用、(2)データベース利用および(3)共同プロジェクト推進の三位一体の活動を目指してきました。その中で、所内の「開放型研究推進部」ならびに「生存圏学際萌芽研究センター」が共同利用と共同研究を分担しつつ、相互に刺激しあって生存圏科学を推進しています。特に、開放型研究推進部では、MU レーダーなど大型機器を利用したそれぞれの設備利用型共同利用専門員会を立ち上げて推進しており、一方、生存圏学際萌芽研究センターでは、「生存圏ミッション研究」および 40 歳以下の若手研究者を対象とした「生存圏科学萌芽研究」という 2 つのプロジェクト型共同研究を公募・実施するとともに、公募により採用された若手のミッション専攻研究員が、萌芽的な研究の開拓を目指し、生存圏にかかわる夢のある新しい研究に取り組んでいます。

これらに加え、平成 22 年度に受けた外部評価における指摘に対応し、生存圏と人間との関わりに関する方向に研究を発展させるべく、平成 23 年度より生存圏学際萌芽研究センターが中心となり、新事業として、“生存圏科学の新領域開拓 – ロングライフイノベーション共同研究 –” を課題設定型プロジェクトとして立ち上げました。人を取り巻く生存環境（圏）の特性変化が人の健康に与える影響を科学的に解明し、同時に安心して安全な暮らしを支える超長寿命木質環境を創成するために、生存圏研究所の共同利用環境を活用するとともに学内外の関連機関と連携して、新たな研究テーマを推進しています。現在、主要テーマとして、5 つの個別研究課題を実施しているところです。1. バイオマス由来の生体防御物質、2. 木質住環境と健康、3. 電磁場の生体影響、4. 大気質と安心・安全、5. 千年居住圏の基盤と維持。

特に、1. 「バイオマス由来の生体防御物質」においては、地球温暖化などによる環境変動、グローバル化による人・動物・物の移動により、ウイルスをはじめとした感染症のリスクが高まっていることを受け、バイオマスから生理活性物質・生体防御物質を生産するという、新しい研究領域を開拓することを目的としています。具体的な成果として進捗があったのは、木酢液・竹酢液の脳心筋炎ウイルスに対する抗ウイルス活性を評価した京都大学ウイルス研究所との共同研究であり、平成 24 年度は、蒸留竹酢液に関して抗ウイルス活性を示す主要原因物質を特定して、論文として報告しました。

これら、主要 5 テーマの推進によって得られた成果は、「第 224 回生存圏シンポジウム 生存圏科学の新領域開拓 – ロングライフイノベーション共同研究」や学会において広く公開しました。さらに、本新領域の発展に向けて世界の第一線で活躍中の外国人講師を招聘し、第 224 回生存圏シンポジウムの一部を国際シンポジウム 224th Symposium on Sustainable Humanosphere – Collaborative Researches on Long Life Innovation – とし、生存圏研究所にて開催しました。さらにこの他、若手研究者を中心に新シーズ開拓を目的として、平成 24 年度は新領域開拓の新しい萌芽的研究テーマを公募し、7 つの新規課題を採択し、研究推進を行いました。

本報告書は、“生存圏科学の新領域開拓”に関わる学術研究の活動報告を収録しています。生存圏研究所の新たな研究ミッション策定とも深くリンクする研究活動として、開放型研究推進部および生存圏学際萌芽研究センターと連携を深め、さらなる研究の発展と深化を目指します。関係各位のご支援とご協力を賜れば幸甚です。

平成 25 年 3 月

京都大学生存圏研究所
所長 津田 敏隆

生存圏科学の新領域開拓
—ロングライフイノベーション共同研究—

International Activity

Pharmaceuticals, perfumes, and bioproducts: Discovery of plant diterpene biosynthetic pathways using an integrated metabolomics and transcriptomics approach.

Philipp Zerbe & Jörg Bohlmann

Michael Smith Laboratories, University of British Columbia, Canada

Alkylation of aromatic compounds by prenyltransferases from fungi as new resources of bioactive products.

Shuming Li

Institut für Pharmazeutische Biologie und Biotechnologie, Philipps Universität
Marburg, Germany

Plant cells as important green factories

Kirsi-Marja Oksman-Caldentey

VTT Technical Research Centre of Finland

新領域開拓共同研究

バイオマス由来の生体防御物質

木酢液・竹酢液の抗ウイルス活性物質

丸本真輔（京大大学生存圏研究所） 11

新規生体防御物質 —植物機能性低分子の代謝輸送—

高梨功次郎（京大大学生存圏研究所） 25

バイオマスの分析技術開発

西村裕志（京大大学生存圏研究所） 31

木質住環境と健康：—空気質特性の解明とヒトへの影響解析—

川井 秀一（京大大学生存圏研究所）

松原 恵理（京都大学・生存圏研究所） 37

人間生活圏を取り巻く大気の微量物質の動態把握

高橋 けんし（京都大学・生存圏研究所）

矢吹 正教（京都大学・生存圏研究所） 53

電磁場の生体影響：一 共鳴送電下における生体影響評価のためのばく露装置の 開発ならびに免疫細胞における高周波電波ばく露の影響評価研究一	宮越 順二（京都大学・生存圏研究所）	69
千年居住圏 一 東アジアの木の文化 国内外での研究経過一	田鶴寿弥子（京都大学・生存圏研究所） 杉山淳司（京都大学・生存圏研究所）	87
新シリーズ開拓		
生存圏における放射性物質の動態解明と低減を目指した新技術開発	上田義勝（京大大学生存圏研究所）	99
超高層大気観測用超小型衛星群の設計	山本 衛（京大大学生存圏研究所）	105
構造制御セルロースによる新規バイオマテリアル開発研究	今井友也（京大大学生存圏研究所）	111
木質系炭素電極を用いた静電容量型脱イオン法による土壌・地下水の放射性汚染 低減のための新技術開発	畑 俊充（京大大学生存圏研究所）	115
境界層レーダーLQ7 の観測高度範囲拡大	橋口浩之（京大大学生存圏研究所）	119
マイクロ波による瓦礫中の有害物質迅速処理 一アスベスト飛散とダイオキシン発生防止一	篠原真毅（京大大学生存圏研究所）	125
植物由来気体テルペンの酸性表面への沈着メカニズム	江波進一（京都大学白眉センター）	129
フラッグシップ研究から		
熱帯早生樹の生理動態の全体論的把握	梅澤俊明（京大大学生存圏研究所）	133
バイオナノマテリアル共同研究	矢野浩之（京大大学生存圏研究所）	137

<Invited talk>

Pharmaceuticals, Perfumes, and Bioproducts: Discovery of plant diterpene biosynthetic pathways using an integrated metabolomics and transcriptomics approach

Philipp Zerbe & Jörg Bohlmann

Michael Smith Laboratories, University of British Columbia, Vancouver, Canada

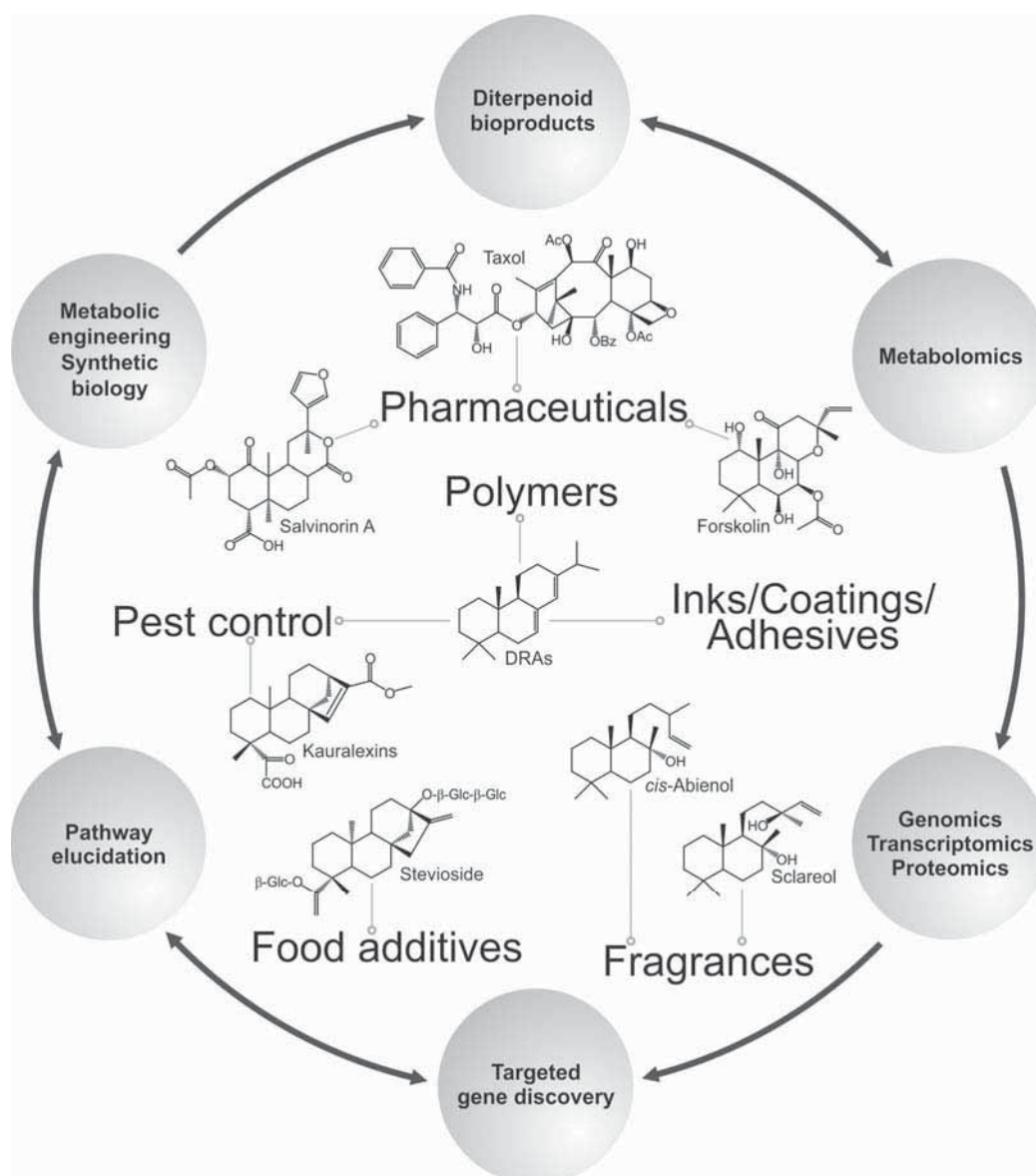
Abstract

Plants produce more than ten thousand different diterpenes of specialized (secondary) metabolism, and fewer diterpenes (e.g., GAs) of general (primary) metabolism^[1]. Specialized diterpenes are important in ecological interactions of plants with other organisms. They are also of great relevance for human health and well-being as pharmaceuticals, food additives, fragrances and other industrial bioproducts^[2]. Examples of widely used and novel diterpene therapeutics comprise the anti-cancer agent taxol, the cAMP regulator forskolin, and anti-viral diterpenes, such as prostratin and stelleralides. Other high-value diterpene bioproducts include industrial resins and inks or ambroxide fragrances^[2,3]. Yields and purity of diterpenes obtained from natural sources or by chemical synthesis are often insufficient for industrial application. Improved agricultural or biotechnological production of diterpenes requires knowledge of relevant pathway genes and enzymes^[4]. However, specialized diterpene biosynthetic pathways are extremely diverse across the plant kingdom and often taxonomically restricted to a few plant species, genera or families. To address this challenge, we used a set of ten different plant species, ranging from several angiosperms to species of conifer forest trees, to develop a general strategy for diterpene gene discovery in non-model systems. The approach combines metabolite-guided transcriptome resources, custom diterpene synthase (diTPS) and cytochrome P450 reference databases, and phylogenies with *in vitro* and *in vivo* enzymatic validation of relevant candidates. We identified 46 new diTPSs and 394 new P450s in a resource of nearly one million different transcripts of diterpene accumulating tissues for functional characterization. Here we present select examples, demonstrating how integrated gene discovery strategies can be employed for developing combinatorial metabolic engineering and synthetic biology platforms for the sustainable production of diterpene pharmaceuticals and bioproducts (*cf* Scheme 1).

References

1. Chen F *et. al.* (2011) *Plant J.* **66**, 212-229
2. Bohlmann J and Keeling C (2008) *Plant J.* **54**, 656-669
3. Zerbe P *et. al.* (2012) *JBC* **287**, 12121-12131
4. Facchini P *et. al.* (2012) *Trends Biotechnol.* **30**, 127-131

Scheme 1: Integrated gene discovery and bioengineering approaches for the sustainable production of diterpenoid bioproducts



<Invited talk>

Alkylation of aromatic compounds by prenyltransferases from fungi as new resources of bioactive products

Shuming Li

Institut für Pharmazeutische Biologie und Biotechnologie
Philipps Universität Marburg

Abstract

Plants and microorganisms are important sources of new drugs in traditional and modern medicines.^[1] Monoterpenoid indole alkaloids derived from tryptophan and geranyl diphosphate, *e.g.* camptothecin, quinine and quinidine, vincristine and vinblastine, reserpine and vincamine, occur widely in plant kingdom and are used for treatment of different diseases.^[2] Prenylated indole alkaloids are also hybrid natural products derived from prenyl diphosphates and tryptophan or its precursors and widely distributed in filamentous fungi, especially in genera *Claviceps*, *Penicillium* and *Aspergillus* of ascomycota.^[3] These compounds represent a group of natural products with diverse chemical structures and biological activities.^[3] The availability of the more and more genome sequences accelerates the identification of genes involved in the biosynthesis of secondary metabolites including prenylated indole derivatives from fungi by genome mining,^[4] which provides the prerequisite for molecular biological and biochemical investigations on their biosynthesis.

Prenyltransferases of aromatic substrates such as indoles, flavonoids, hydroxylated naphthalenes and benzoic acids are key enzymes in the biosynthesis of prenylated natural products and play important roles in the diversification of secondary metabolites.^[3;5;6] One of these enzyme groups show significant sequence similarity to dimethylallyltryptophan synthase (DMATS) in the biosynthesis of ergot alkaloids and was referred to as prenyltransferases of DMATS superfamily.^[7] These soluble enzymes are involved in the biosynthesis of diverse fungal secondary metabolites and mainly catalyze prenylation of diverse indole derivatives like tryptophan and tryptophan-containing cyclic dipeptides.^[3;7;8] Several members of this group prenylate, instead of indole, tyrosine,^[9] xanthenes^[10] or anthraquinones and other polyketide-derived aromatic compounds.^[11] Most of these enzymes show promising flexibility towards their aromatic substrates and catalyze regio- and stereoselective prenyltransfer reactions.^[8] These features were

successfully used for chemoenzymatic synthesis, not only for production of prenylated simple indoles and cyclic dipeptides,^[8] but also of prenylated hydroxynaphthalenes,^[12] flavonoids^[13] and indolocarbazoles.^[14]

By modification of the prenyl donor, a number of unnatural alkylated indoles has also been produced with prenyltransferases of the DMATS superfamily (Figure 1).^[15]

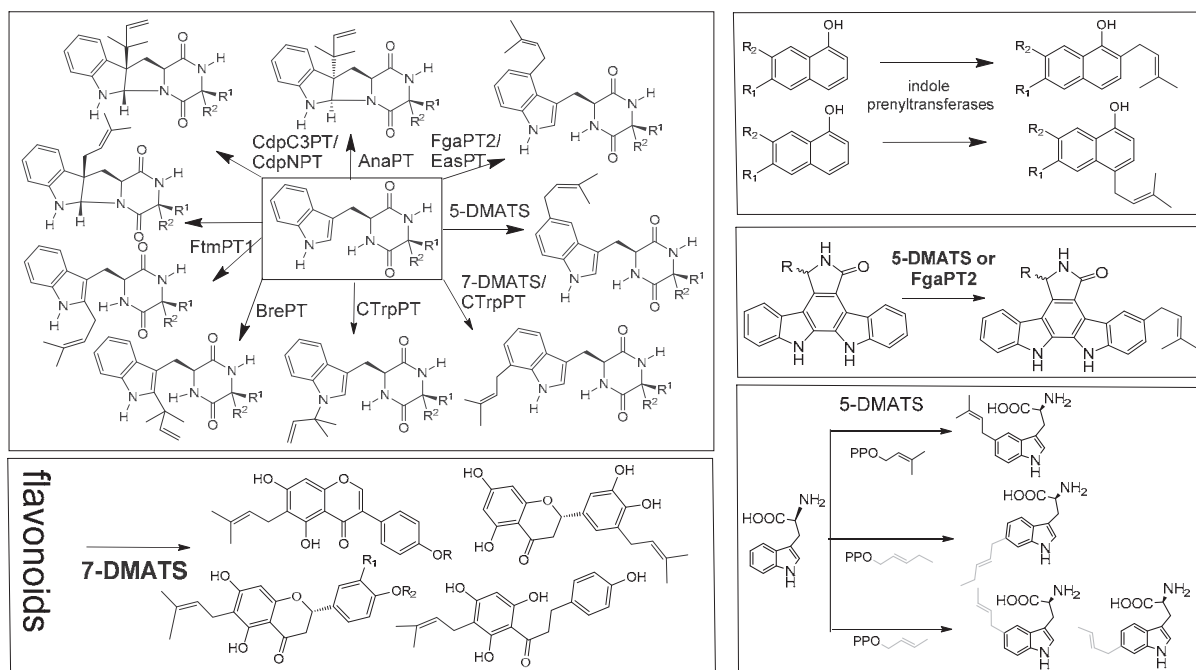


Figure 1: Chemoenzymatic synthesis of prenylated compounds by using fungal prenyltransferases

References

- [1.] D. J. Newman, G. M. Cragg, *J.Nat.Prod.* **2012**, *75*, 311-335.
- [2.] L. Yang, J. Stöckigt, *Nat.Prod.Rep.* **2010**, *27*, 1469-1479.
- [3.] S.-M. Li, *Nat.Prod.Rep.* **2010**, *27*, 57-78.
- [4.] C. Corre, G. L. Challis, *Nat.Prod.Rep.* **2009**, *26*, 977-986.
- [5.] L. Heide, *Curr.Opin.Chem.Biol.* **2009**, *13*, 171-179.
- [6.] K. Yazaki, K. Sasaki, Y. Tsurumaru, *Phytochemistry* **2009**, *70*, 1739-1745.
- [7.] X. Yu, Y. Liu, X. Xie, X.-D. Zheng, S.-M. Li, *J.Biol.Chem.* **2012**, *287*, 1371-1380.
- [8.] X. Yu, S.-M. Li, *Methods Enzymol.* **2012**, *516*, 259-278.
- [9.] A. Kremer, S.-M. Li, *Microbiology* **2010**, *156*, 278-286.
- [10.] D. Pockrandt, L. Ludwig, A. Fan, G. M. König, S. M. Li, *Chembiochem.* **2012**, *13*, 2764-2771.
- [11.] Y. H. Chooi, J. Fang, H. Liu, S. G. Filler, P. Wang, Y. Tang, *Org.Lett.* **2013**, *15*, 780-783.
- [12.] X. Yu, X. Xie, S.-M. Li, *Appl.Microbiol.Biotechnol.* **2011**, *92*, 737-748.
- [13.] X. Yu, S.-M. Li, *Chembiochem* **2011**, *12*, 2280-2283.

- [14.] X. Yu, A. Yang, W. Lin, S.-M. Li, *Tetrahedron Lett.* **2012**, *53*, 6861-6864.
- [15.] M. Liebhold, X. Xie, S.-M. Li, *Org.Lett.* **2012**, *14*, 4884-4885.

<Invited talk>

Plant cells as important green factories

Kirsi-Marja Oksman-Caldentey

VTT Technical Research Centre of Finland, B.O. Box 1000, 02044 VTT (Espoo), Finland

Eukaryotes such as higher plants have evolved to produce a diverse range of low-molecular-weight compounds – described as secondary metabolites – that can be used as food and feed additives, flavours, fragrances, cosmetics, agrochemicals and pharmaceuticals. There are approximately 298,000 species of higher plants¹ less than 10% of which have been chemically characterised to some extent. The first secondary metabolite isolated from plants was morphine (>200 years ago) and many other natural compounds have since become important pharmaceuticals in modern society. It is often difficult to find synthetic substitutes with the same efficacy, pharmacokinetics and specificity as natural compounds. The dominant role of secondary metabolites in the pharmaceutical industry is demonstrated by the fact that approximately 50% of novel anticancer drugs have been discovered from nature including blockbusters such as taxanes (paclitaxel), *Catharanthus* alkaloids and camptothecin. During the past 30 years, 1355 new drug entities (NDEs) were introduced into the market² of which 27% were either natural products or their derivatives. In addition, 20% of the drugs were synthesised after the molecule was first isolated from a natural source. **Table 1** shows the recent discoveries in the four major therapy groups³.

The chemical diversity of plants is more complex than any chemical library made by humans. The detailed exploration of plant biodiversity and the use of novel and innovative bioassays to evaluate natural compounds for their beneficial effects is therefore of great scientific, medical and bioeconomic importance. Many companies are undergoing a renaissance in their interest in plant-derived compounds, especially the pharmaceutical industry is looking for new drugs, and the cosmetics industry which uses plant extracts, oils and even plant cell cultures in some products. However, many plants that produce high-value secondary metabolites are difficult to cultivate or endangered because of over-harvesting. The chemical synthesis of plant-derived compounds is usually uneconomical because the complex stereospecific structures are difficult to replicate. Sustainable and cost-effective production systems for high-value plant-derived compounds must therefore be developed, and the best outcome can be achieved by

integrating biotechnology-based approaches into more sustainable production chains featuring cutting-edge innovative technologies. Spectacular advances in characterising plant metabolic pathways using functional genomics and through the development of large-scale cultivation processes have offered for the first time unprecedented opportunities to explore the extraordinary complexity of the biochemical capacity of plants in entirely new ways. State-of-the-art genomics tools can now be used to improve the production of known natural compounds or to synthesise entirely novel plant constituents by combinatorial biochemistry in cultivated plants and cells. Therefore, the utilisation of plants and cells as green production factories is becoming more realistic and more attractive also from a commercial point of view.

Table 1 Number of new drug entities (NDEs) discovered during 1981–2010 belonging to the four most important therapy groups³.

	N	ND	NS	B	S	Total	N+ND+NS (%)
Antimicrobial	12	74	34	13	60	230	52
Antibacterial	10	64	1	0	23	109	69
Antifungal	0	3	0	1	25	29	10
Antiviral	0	2	31	12	8	78	42
Antiparasitic	2	5	2	0	4	14	64
Anticancer	9	25	17	17	30	100	51
Antihypertensive	0	2	34	0	41	77	47
Anti-inflammatory	0	13	0	1	37	51	26
Total	21	114	69	31	168	458	48

Abbreviations: **N**, natural product; **ND**, derived from natural product, semisynthetic product; **NS**, synthetic but pharmacophore is from a natural product; **B**, biological origin, usually a large protein or peptide either isolated from an organism or cell line or produced by biotechnological means in a heterologous host; **S**, derived from total chemical synthesis.

In this presentation the above-mentioned opportunities and challenges will be discussed in the frame of three current research projects at VTT. Metabolic engineering aspects to discover bottlenecks in the biosynthetic pathways and direct the selected pathway towards the desired end-product will be discussed using examples of our large EU-project consortium SmartCell which focuses on terpenoid indole alkaloids. Secondly, it will be shown how we have integrated high-throughput screening (HTS) and high-content screening (HCS) technologies to systematically test a broad spectrum of bioactivities. The key strategy is to use a first line of general, rapid screening platforms and then a second line of lower-throughput, increasingly complex three-dimensional (3D) or organotypic models and assays combined with imaging. This approach will be demonstrated in the discovery of novel derivatives of betulinic acid possessing strong anti-cancer activities. Final example shows the potential of Nordic berries for human health. We have recently

Final example shows the potential of Nordic berries for human health. We have recently developed unique cloudberry cell cultures, scaled up their production in various types of bioreactors, and applied them in commercial cosmetic products.

References

- 1.) Mora C, Tittensor DP, Adl S, Simpson AGB, Worm B (2011): How many species are there on earth and in the ocean? PLoS Biol 9: e01001127
- 2.) Newman DJ, Cragg GM (2012): Natural products as sources of new drugs over 30 years from 1981-2010. J Nat Prod 75: 311-35.
- 3.) Rischer H, Häkkinen ST, Ritala A, Seppänen-Laakso T, Miralpeix B, Capell T, Christou P, Oksman-Caldentey K-M (2013): Plant cells as pharmaceutical factories. Curr Pharm Design (in press).

バイオマス由来の生体防御物質

1) 木酢液・竹酢液の抗ウイルス活性物質

丸本 真輔

京都大学・生存圏研究所

1. 研究組織

代表者氏名：渡辺 隆司（京都大学・生存圏研究所）

共同研究者：成田 亮（京都大学・ウイルス研究所）

山元 誠司（京都大学・生存圏研究所、ウイルス研究所）

西村 裕志（京都大学・生存圏研究所）

尾野本 浩司（千葉大学・真菌医学研究センター）

矢崎 一史（京都大学・生存圏研究所）

谷田貝 光克（東京大学名誉教授、木竹酢液協会会長、
木竹酢液認証協議会会長）

藤田 尚志（京都大学・ウイルス研究所）

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

ミッション1：環境計測・地球再生

ミッション2：太陽エネルギー変換・利用

3. 研究概要

地球温暖化などによる環境変動、グローバル化による人・動物・物の移動により、ウイルスをはじめとした感染症のリスクが高まっている。木酢液、竹酢液はバイオマスの熱分解物であり、これまでに消毒や土壌改良剤、皮膚疾患への薬効や抗菌性が一部認められているが科学的な検証は十分ではない。本研究ではバイオマスから生理活性物質・生体防御物質を生産するという新しい研究領域を開拓することを目的とし、これまでにほとんど知見がない木酢液、竹酢液成分の抗ウイルス活性について検討を行った。特に昨年来、日本、韓国をはじめ猛威をふるっている口蹄疫などの有害なウイルスの消毒薬を未利用バイオマスから生産することを視野に入れて、木酢液、竹酢液成分の抗ウイルス性試験を行い、木酢液、竹酢液の消毒薬への応用の可能性を検討した。

4. 研究の背景と目的

近年、光合成によるバイオマス資源が再生可能な持続資源として有望視されており、その90%以上を占める木質・森林バイオマスから得られるバイオエネルギーや化成品が脚光を浴びている。注目すべきは、木質バイオマスを資源として利用する過程において産出される副次的な天然物もまた有用であることである。そのひとつとして、様々な生理活性を有する木竹酢液が挙げられる。木竹酢液の基となる粗木竹酢液は、広葉樹や針葉樹、タケ類などの木竹材を炭化炉や乾溜炉により炭化する際に生じる排煙を冷却・凝縮させることで得られる液体である。粗木竹酢液を90日以上静置すると三層に分離し、その上層の軽質油ならびに下層の沈降タールを除いた中間層が木竹酢液と呼ばれる pH 1.5~3.7 の液体である。これには、木竹材を構成する主要三成分であるセルロース、ヘミセルロースおよびリグニンの熱分解生成物が溶け込んでおり、これには酢酸を主とする有機酸類、アルコール類、エーテル類、アルデヒド類、ケトン類、フェノール類、アミン類、スルホン類ならびにその他の中性成分等、200種類以上が含まれる¹⁾。木酢液の効能については古くから研究されており、農業など多方面で利用されてきた。木酢液は、イネいもち病やトマト灰色カビ病をはじめとした様々な農作物病害生物の防除に有効である。また、木酢液はトマトモザイクウイルスを完全に不活性化することも見出されており、ウイルスに対しても効果がある点で、木酢液と農薬は決定的に異なる²⁾。このように、木竹酢液の確かな効能は認められてきたものの、品質の不安定性、燃料革命による炭需要の減少、農薬や化学肥料の出現により木竹酢液はあまり注目されなかった。しかしながら、環境に配慮した生産活動が求められる現在、バイオマス資源より生産される木竹酢液の有効性は再認識されるべきであろう。我々は、木竹酢液の有する抗ウイルス効果に着目し、それが口蹄疫などのウイルス感染症予防に活用できるのではないかと考えた。

2010年春、家畜伝染病である口蹄疫が日本では10年ぶりに宮崎県で発生し、29万頭の牛や豚が殺処分されたことは記憶に新しい。口蹄疫は、ピコルナウイルス科の口蹄疫ウイルス (foot-and-mouth disease virus: FMDV) による牛、豚、羊などの偶蹄目の感染症である。FMDV 感染による致死率こそ低いものの、その高い伝播性や罹患した動物の生産性減少のため、患畜は全て速やかに殺処分される。したがって、FMDV 感染においては予防対策が極めて重要である。現在、FMDV 感染予防法としては地面への消石灰散布が基本的に推奨されている。木竹酢液は、農業において植物の生育を促進させるために使用することからも環境への悪影響は少ないと考えられ、さらに、その人畜等に対する安全性もラットへの経口投与実験 (急性毒性試験および90日反復毒性試験) などにより評価されている。基本的に FMDV は pH 7 以下において不安定であるため、酸性の木竹酢液処理によりウイルスは感染力を喪失するであろう。したがって、木竹酢液は FMDV 消毒薬の候補となりうることに疑いの余地はないが、木竹酢液の酸以外の複合的な成分が直接ウイルスに作用、または細胞に作用することで抗ウイルス効

果を発揮する可能性も十分に考えられる。しかしながら、上述したように、FMDV は pH 高感受性であるため、酸以外の抗ウイルス化合物探索には適さない。実際には、生ウイルスの使用自体が日本では動物衛生研究所を除いて禁じられている。一方、脳心筋炎ウイルス (encephalomyocarditis virus: EMCV) は FMDV と同じピコルナウイルス科でありながら pH 3~9 にて安定であり、マウス細胞やヒト細胞だけでなく、マウス個体を用いた感染実験にも使用できる。すなわち、EMCV を用いることで、木竹酢液の酸以外の抗ウイルス効果が分子レベルで解析可能となる。本研究では FMDV のモデルウイルスとして EMCV を用い、木竹酢液のもつ潜在的な抗ウイルス作用を検討し、その活性物質を同定することを目的とする。

5. 研究の結果および考察

6 種の木竹酢液原液 (A-F) の EMCV に対する抗ウイルス活性を評価した (図 1 a)。試験は、pH を調整しない方法と、炭酸水素ナトリウムを用いて中和後に行う 2 つ方法を用いた。その結果、pH を調整しない方法において、木酢液 D を除く 5 種の木竹酢液原液に抗ウイルス活性効果を認めた。しかし、中性に調整した木竹酢液 A~C では、抗ウイルス活性が喪失した。一方、木酢液 E ならびに F は中性条件下においても抗ウイルス活性を保持した。このことから木酢液 E ならびに F に含有されるウイルス不活化物質は中性においても作用することが明らかとなった。そこで細胞毒性が最も低かった竹酢液 (データ示さず) を各種分離操作で分画し (図 1 b)、それぞれの分画部のウイルス不活化活性を検討した。その結果、疎水性の中性物質分画部である Fr. 4 および Fr. 5 が EMCV の感染性を 1/20 程度まで抑制した (図 1 c)。続いて、Fr. 5 に含有されるウイルス不活化物質を同定するため GC-MS 分析を行った。その結果、12 種類の物質が Fr. 5 の主要構成物質として同定された (表 1)。これらの化合物を、それぞれが Fr. 5 内の濃度になるように再構築した (表 1、図 2)。この再構築した Fr. 5 は、Fr. 5 と同様に EMCV の感染性を 1/20 程度に低下させたことから、Fr. 5 の性状を忠実に反映しているものと考えられる (図 3a A11)。そこでこの再構築した Fr. 5 から、12 種類の化合物をそれぞれ一つずつ差し引いたサンプル (図 3a #1~12) それぞれの活性を検討した結果、フェノール (#5) の除去によりウイルス不活化活性が完全に喪失した (図 3a)。さらに、フェノール以外の化合物を除いてもウイルス不活化活性に大きな変化は見られなかった (図 3a)。このことからフェノールが Fr. 5 中で唯一ウイルス不活化活性を有する化合物であることが示唆された。そこで、Fr. 5 中に存在する濃度のフェノール (EMCV との混合液中では 1%フェノール) を用いて EMCV 不活化実験を行ったところ、Fr. 5 と同様に EMCV の感染性を 1/20 程度に低下させたことから、フェノールが Fr. 5 のウイルス不活化活性に必要・十分であることが明らかとなった (図 3b)。

また、竹酢液は、その主成分である酢酸により酸性の性質を有するため、酢酸が水溶性フェノールのウイルス不活化活性に影響を与える可能性がある。そこで、まず酢

酸のみの影響を検討したところ、1.9%以下の酢酸は EMCV の感染性を変化させなかった（データ示さず）。そこで酢酸とフェノールの組み合わせがウイルス不活化活性に与える影響を検討したところ、1%フェノールのみでは EMCV の感染性を 1/50 程度まで低下させるのに対し、1.4%酢酸との組み合わせによって EMCV の感染性は検出限界以下になった（図 3 b）。また、0.5%フェノールは EMCV の感染性になんら影響を与えなかったが、1.4%酢酸との組み合わせによって EMCV の感染性を 10 万分の 1 以下に減少させた（図 3 b）。これらの結果は、酢酸が水溶性フェノールのウイルス不活化活性を大きく増強することを示している^{3)、4)}。

続いて、ヒノキおよびカラマツ由来木酢液 E、F は中性条件下でも EMCV 不活化活性を有し、それらの親水性画分においてウイルス不活化活性が強かったことから、ヒノキおよびカラマツ由来木酢液の EMCV 不活化物質はフェノールとは異なる物質であることが期待され、その活性物質の探索を行った。木酢液 E（ヒノキ）を図 4a に示すスキームに従って分画し、それぞれの画分の抗ウイルス活性を試験した（図 4b）。その結果、木酢液 E のウイルス不活化活性は水溶性画分 E-Fr. 1 にある一方で、木酢液 C（竹酢液）の Fr. 1 にはその活性は無かった。以上の結果は、木酢液 E の抗ウイルス活性物質は、竹酢液のウイルス不活化物質であるフェノールとは異なることを示唆している。

そこで、木酢液 E のウイルス不活化物質を探索するため、スケールアップし、分画を行い、得られた E-Fr. 1 (126.77 g) を DIAION HP-20 を分離担体としたカラムで分画し E-Fr. 1-1~1-3 を得た（図 5）。それら分画部のウイルス不活化活性を検討した結果を図 6 に示す（以下のウイルス不活化活性からコントロールを HEPES 緩衝液とする）。その結果、E-Fr. 1-2 分画部において強いウイルス不活化活性を確認できた。また、それら分画部を HPLC および GC-MS 分析にて含有成分の同定を試みた結果、E-Fr. 1-3 に hydroxymethylfurfural (HMF) および maltol の存在を確認できたが（図 7）、それら物質はウイルス不活化活性を示さなかった（データ示さず）。さらに強い不活化活性を示した E-Fr. 1-2 (17.36 g) を逆相系のクロマトグラフィー (RP-18) (溶媒系 MeOH:H₂O 系) にて分画を行い、3 つの分画部 E-Fr. 1-2-1~1-2-3 を得た（図 5）。続いて、それら分画部のウイルス不活化活性を確認した結果を図 8 に示す。その結果、全ての分画部にウイルス不活化活性が認められた（図 8）。特に、E-Fr. 1-2-3 に強い活性が認められた。分画部の量が多く、不活化活性も強かった E-Fr. 1-2-2 (3.6 g) を再び逆相系のクロマトグラフィー (RP-18) (溶媒系 MeOH:H₂O 系) にて細かく分画を行い、E-Fr. 1-2-2-1~E-Fr. 1-2-2-7 を得た。これら分画部のウイルス不活化活性の結果を示す（図 9）。その結果、E-Fr. 1-2-2-6 を除く分画部で活性を確認できた。続いて、これら分画部の含有成分を同定する目的で GC-MS 分析を行った。その結果、各分画部において 13.5 min と 14.5 min 付近に同一の物質が含有されていることが分かったことから（図 10）、この 2 つのピーク（物質）に着目し、これら物質が多量に含まれている E-Fr. 1-2-2-1 および E-Fr. 1-2-2-2 分画部の詳細について研究を進めた。それら 2 種の分画部 Fr. 1-2-2-1

および Fr. 1-2-2-2 をアセチル化およびメチル化を試みた。その結果、Fr. 1-2-2-1 においてはアセチル化により GC-MS 分析で顕著な変化があった(主要ピークが 14.5 min → 26 min 付近にシフト) (図 1 1)、一方、分画部 Fr. 1-2-2-2 においてはメチル化においてのみ顕著な変化があったことから(複数のピークを新たに検出、データ示さず)、Fr. 1-2-2-2 には酸性の物質が多量に含有されていることが示唆された。現在、それら分画部から物質の単離および構造決定について検討中である。

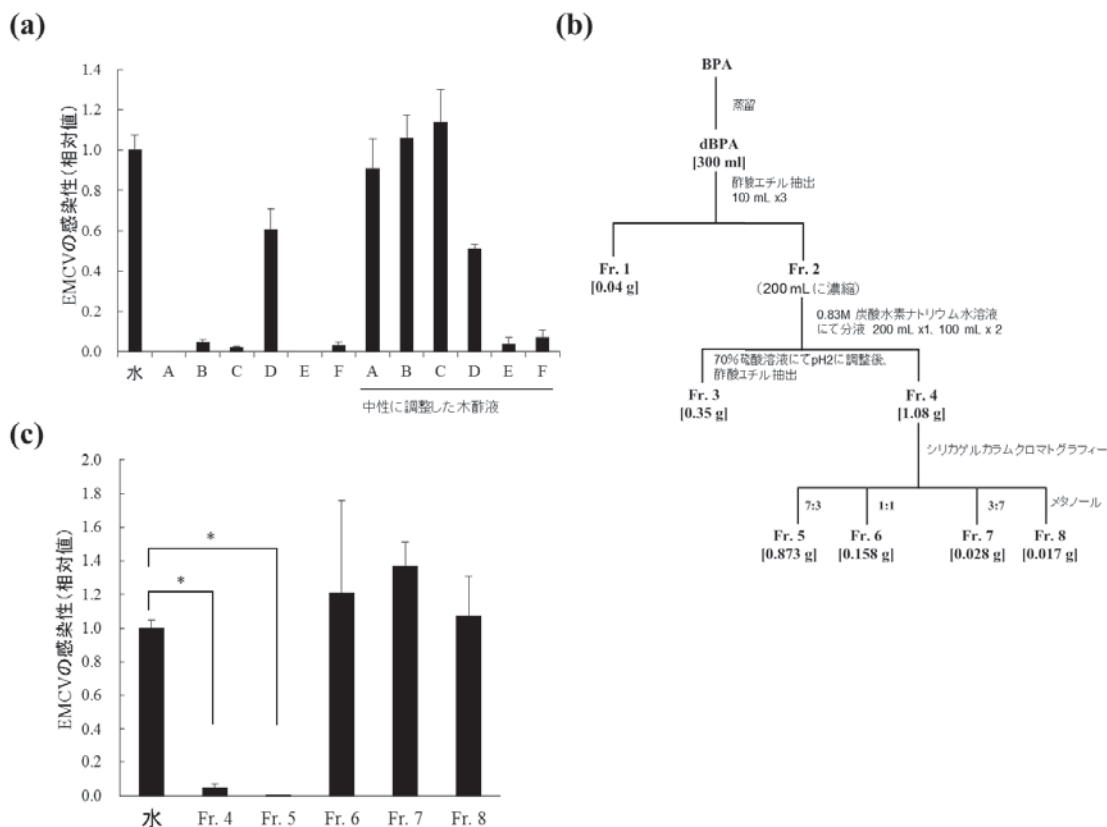


図 1 : 木竹酢液の不活化活性と分画。(a) 木竹酢液原液 (A:ウバメガシ、B: ミズナラ、C:モウソウチク、D:カラマツ、E:ヒノキ、F:カラマツ) ならびに炭酸水素ナトリウムにより中和した中性木酢液のウイルス不活化活性。EMCV をそれぞれの木竹酢液と混合し、室温で 1 時間反応後、L929 細胞に感染させた。感染後 6 時間で細胞から RNA を回収、逆転写後、EMCV 特異的プライマーならびに SYBR Green を用いた定量 RT-PCR により細胞中の相対的ウイルス RNA 量を算出した。(b) 竹酢液 (bamboo pyrolytic acid: BPA) の分画スキーム。蒸留した竹酢液 (distilled BPA: dBPA) を酢酸エチルならびにシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて分画した。シリカゲルカラムクロマトグラフィーはヘキサン:酢酸エチル 7:3、1:1、3:7 および 100%メタノールで順次溶出した。(c) 竹酢液画分のウイルス不活化活性。竹酢液の画分 (fraction: Fr.) 4~8 を用いて、上記と同様のウイルス不活化実験を行った。*はステューデント *t* 検定によって $P < 0.05$ であることを示す^{3)、4)}。

表1 Fr. 5ならびの再構築したFr. 5の構成因子とその濃度。

No.	化合物	Fr. 5		再構築した Fr. 5	
		相対量 (%)	濃度 (mg/mL) ^a	相対量 (%)	濃度 (mg/mL) ^a
1	フルフラール	1.6	10.5	3.0	15.1
2	2-メチル-2-シクロペンテン-1-オン	0.3	0.8	0.4	1.4
3	アセチルフラン	1.0	6.2	2.0	8.2
4	5-メチルフルフラール	0.6	4.4	1.1	5.5
5	フェノール	35.5	155.0	25.0	98.0
6	<i>o</i> -クレゾール	4.3	23.5	4.3	33.0
7, 8	<i>m</i> - およびまたは <i>p</i> -クレゾール	9.8	53.0	16.2	58.7
9	グアイアコール	29.0	100.0	23.8	77.8
10	4-エチルフェノール	8.9	47.5	15.6	52.8
11	4-メチルグアイアコール	6.1	32.1	5.3	35.2
12	4-エチルグアイアコール	2.8	16.5	3.2	18.7
計		100.0	449	100.0	404.3

^a 内部標準法にて定量

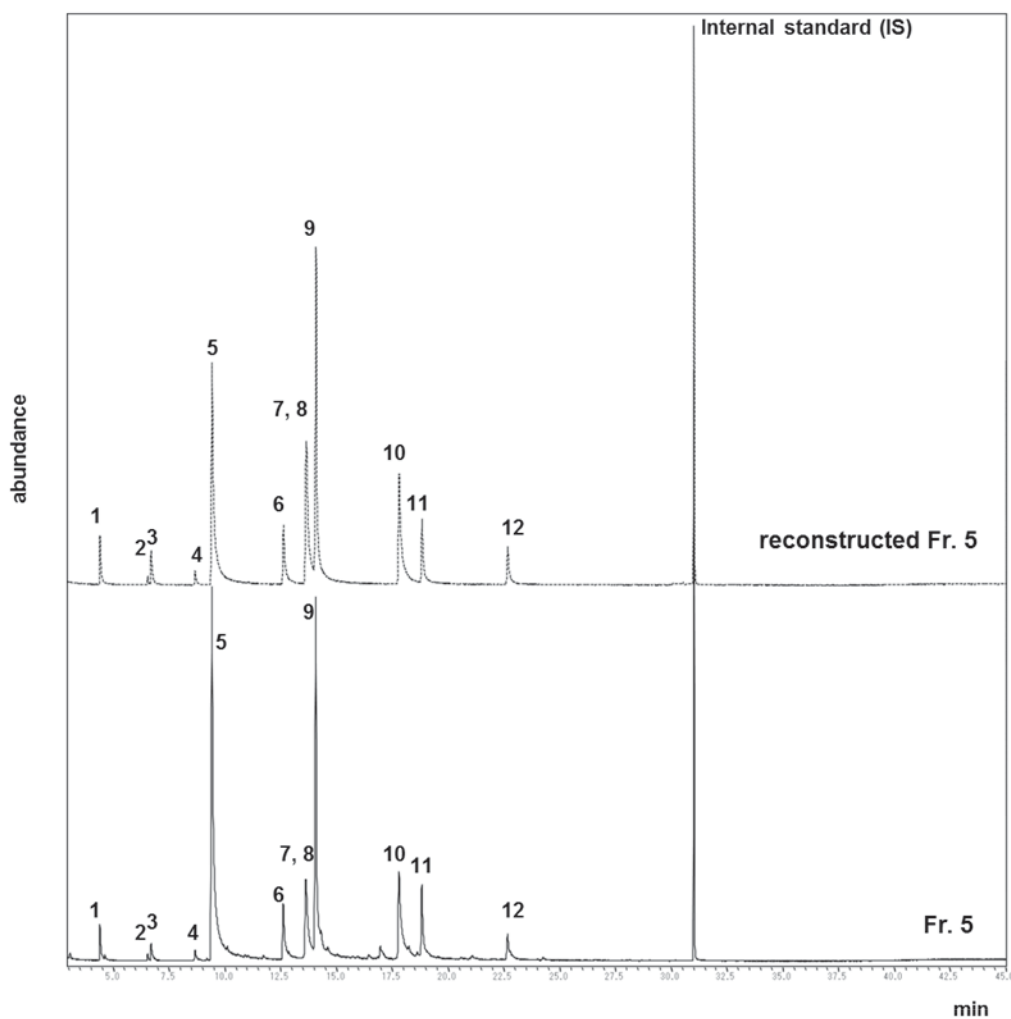
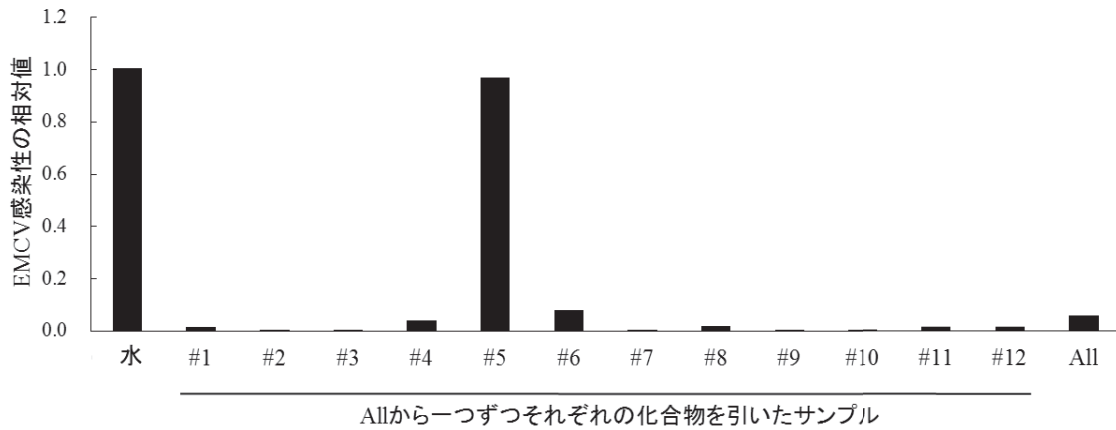


図2 :Fr. 5 および再構築した Fr. 5 の GC-MS 分析により得られた TIC クロマトグラム³⁾、

4)。

(a)



(b)

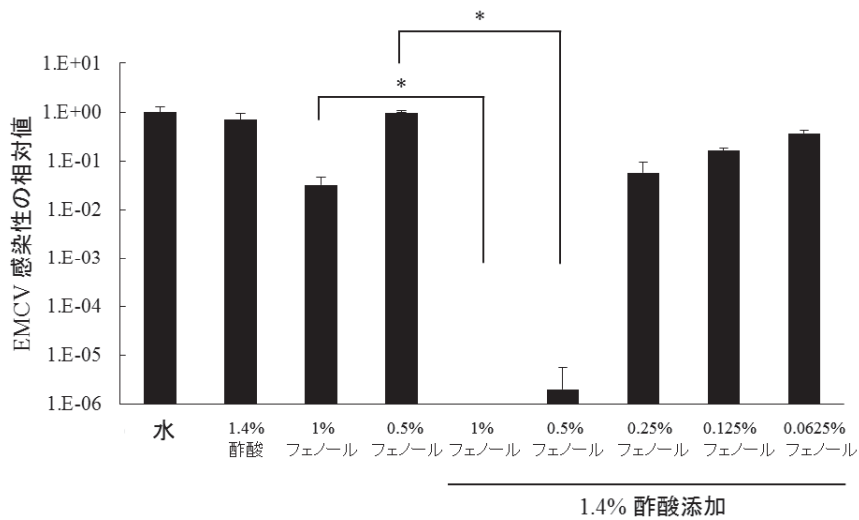
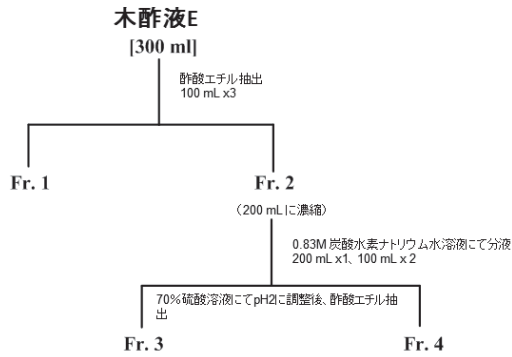


図 3 : ウイルス不活化因子フェノールの同定とその相乗効果

(a) 再構築した Fr.5 のウイルス不活化活性。再構築した Fr.5 (All)、ならびに All より 12 種類の化合物をそれぞれ一つずつ差し引いたサンプル (#1~12) を用いて前述と同様に EMCV 不活化実験を行った。(b) フェノールと酢酸の相乗効果。1.4%酢酸を含有するフェノールの 2 倍希釈系列を用いて前述と同様に EMCV 不活化実験を行った。*はステューデント *t* 検定によって $P<0.05$ であることを示す^{3), 4)}。

(a)



(b)

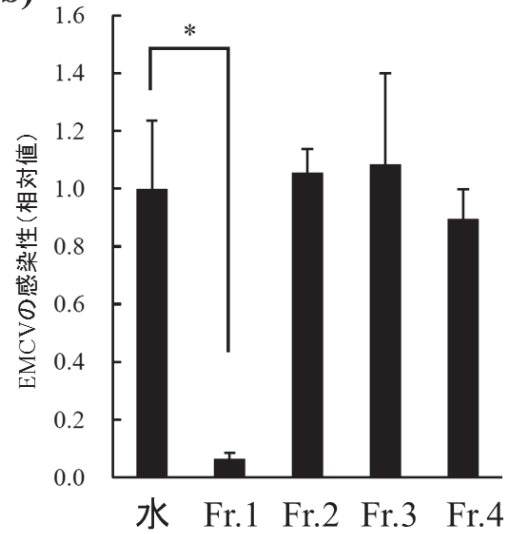


図4：ヒノキ由来木酢液Eの分画とウイルス不活化活性

(a) 木酢液Eの分画 (b) 分画部の EMCV 不活化活性。*はステューデント *t* 検定によって $P < 0.05$ であることを示す。

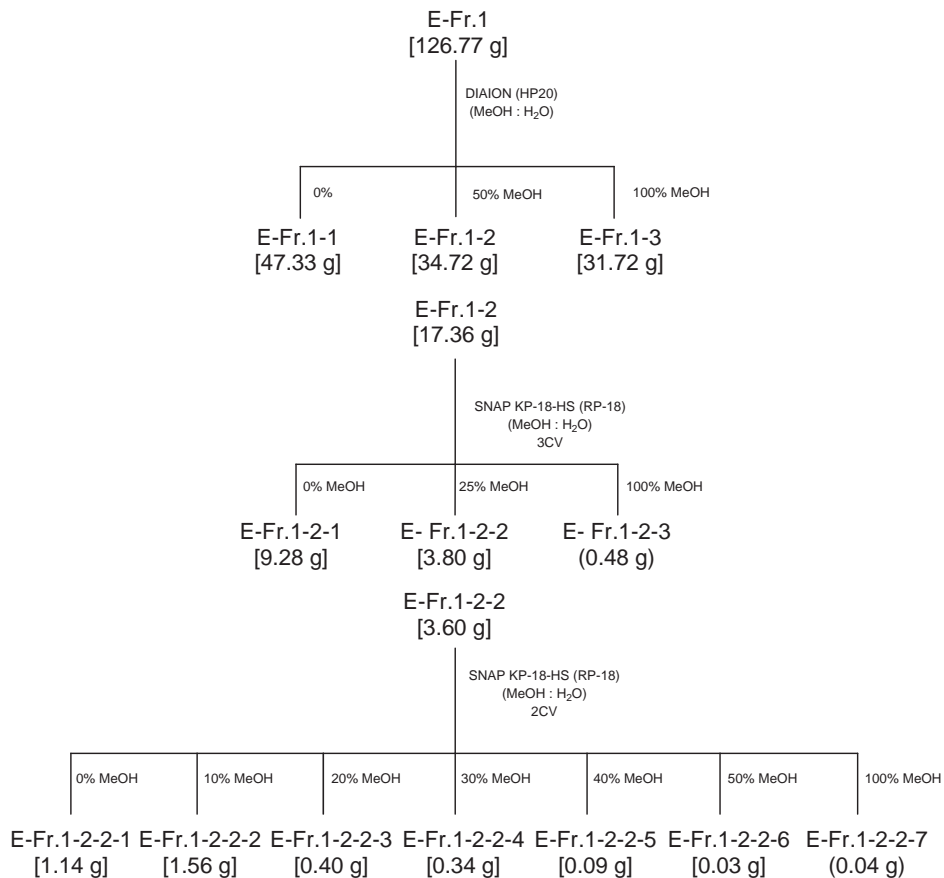


図5：ヒノキ由来木酢液Eの分画。

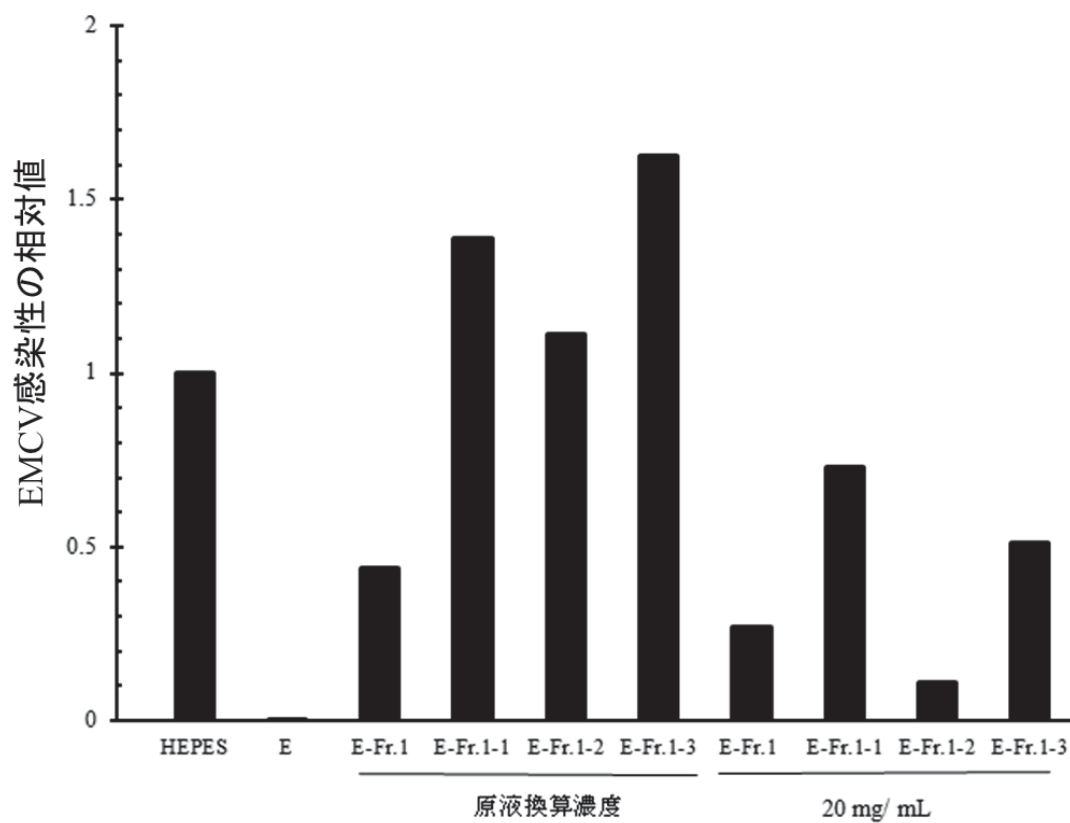


図 6 : 木酢液 E 分画部 E-Fr.1-1~E-Fr.1-3 の EMCV に対する不活化活性。

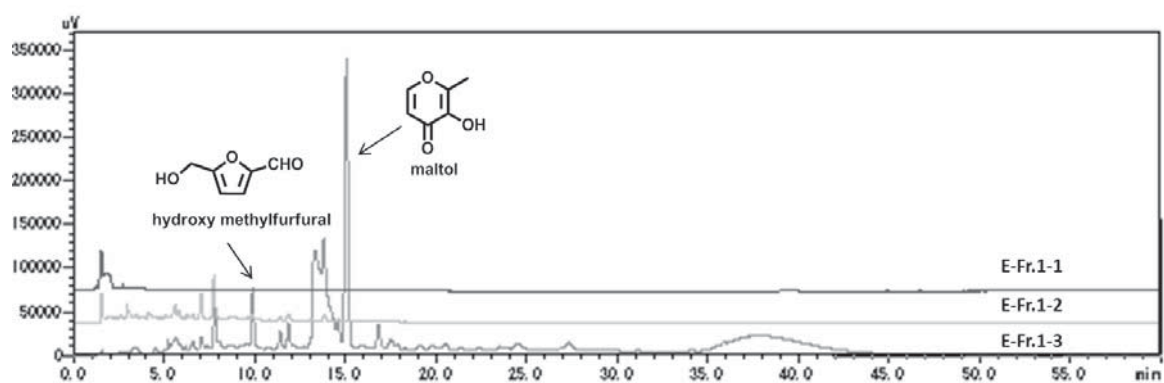


図 7 : 分画部 E-Fr.1-1~E-Fr.1-3 の HPLC 分析 (検出波長 260 nm)。

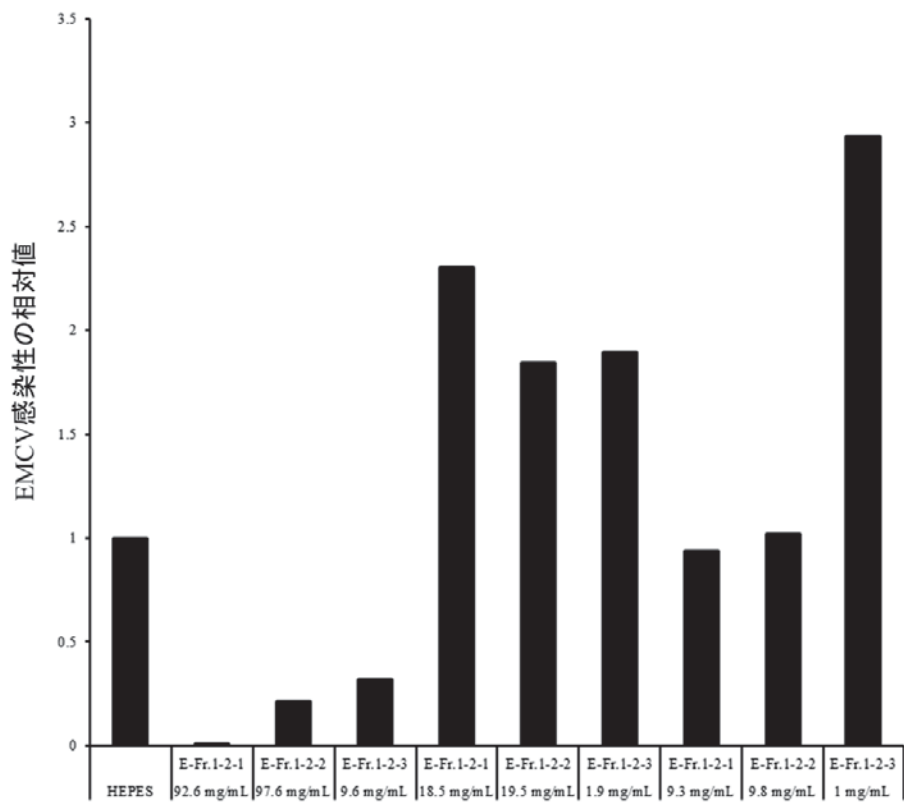


図 8 : 分画部 E-Fr.1-2-1~E-Fr.1-2-3 の EMCV に対する不活化活性。

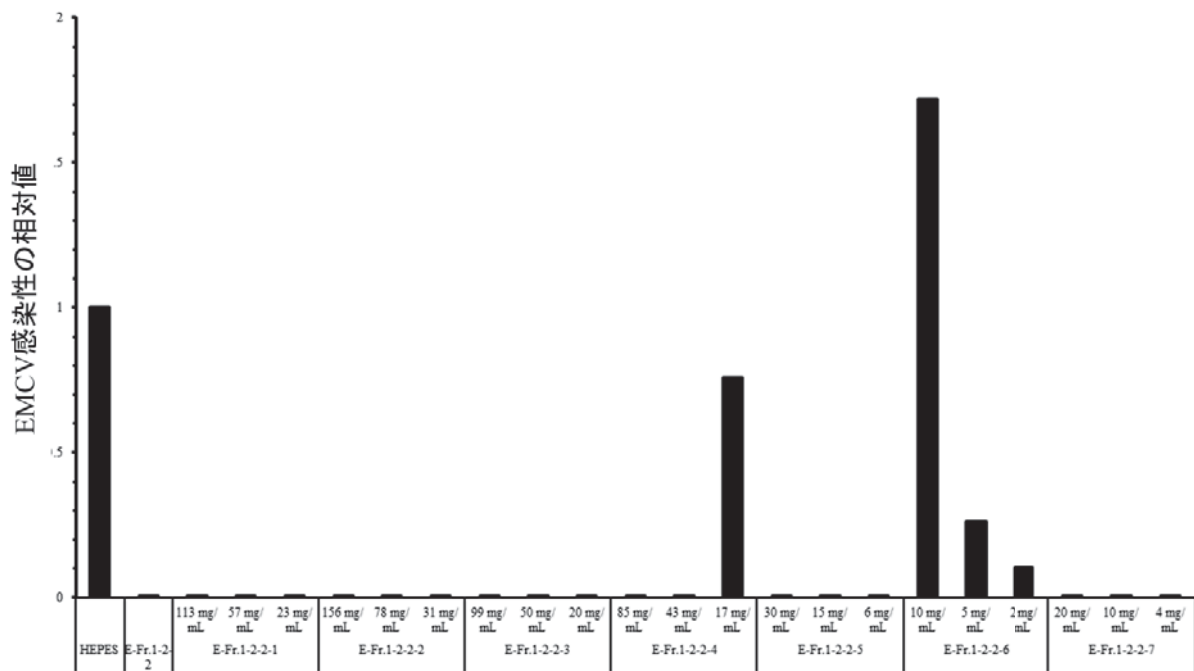


図 9 : 分画部 E-Fr.1-2-2-1~E-Fr.1-2-2-7 の EMCV に対する不活化活性。

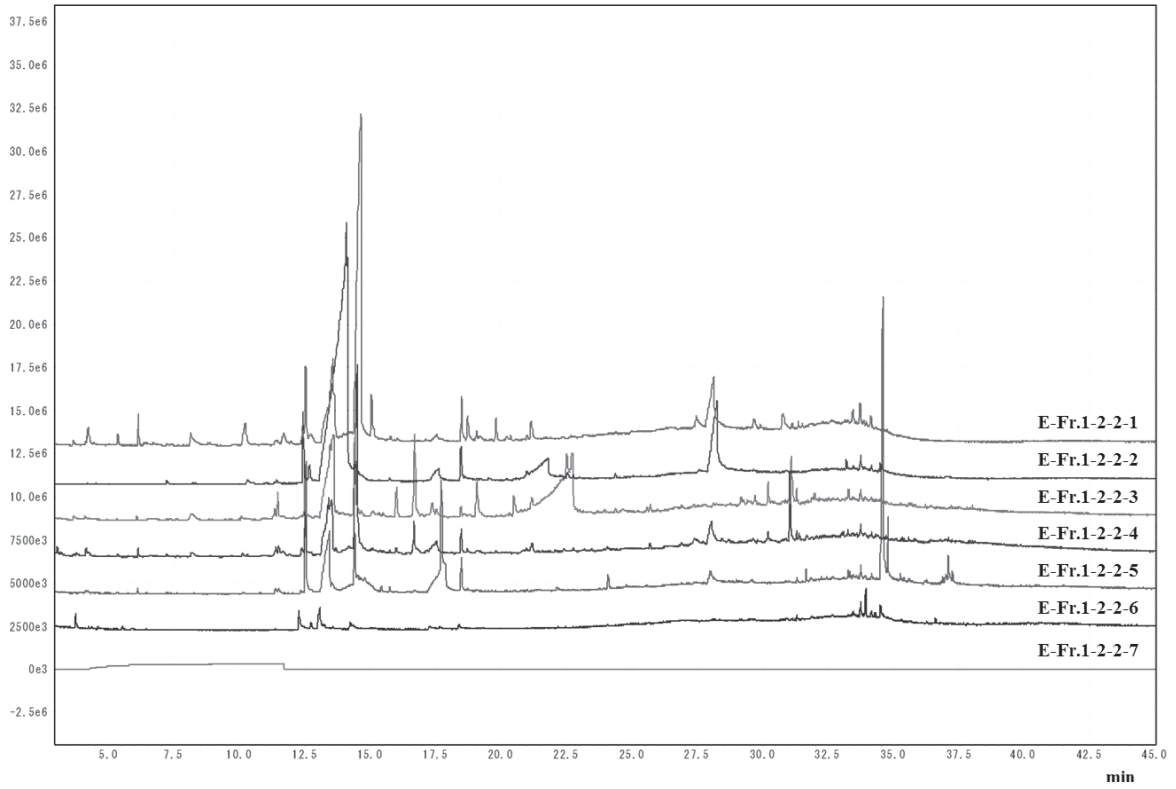


図 1 0 : 分画部 E-Fr.1-2-2-1~E-Fr.1-2-2-7 の GC-MS 分析より得られた TIC クロマトグラム。

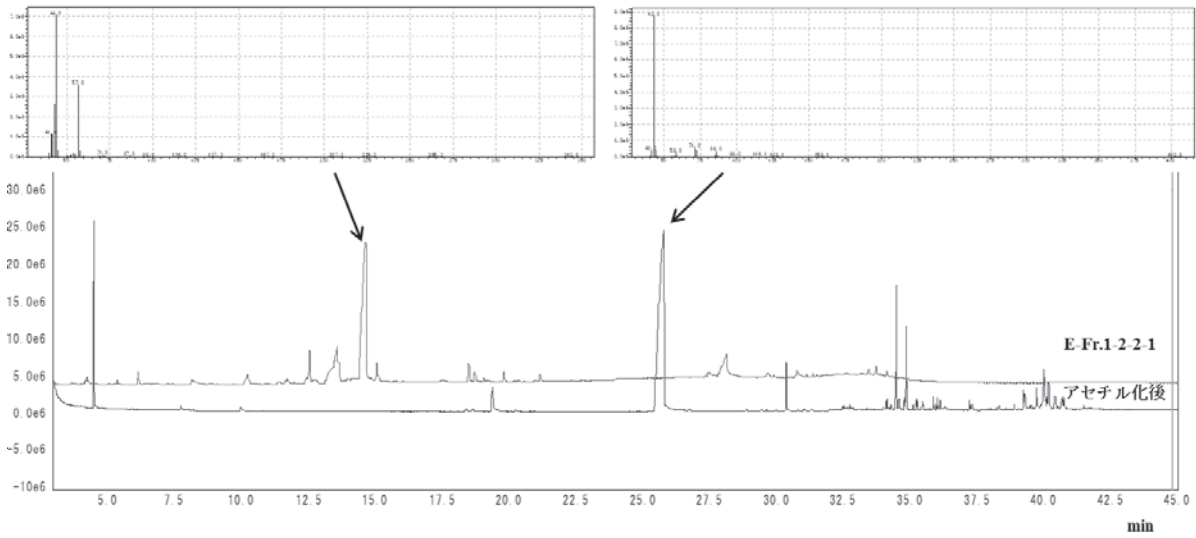


図 1 1 : 分画部 E-Fr.1-2-2-1 およびアセチル化 E-Fr.1-2-2-1 の GC-MS 分析より得られた TIC クロマトグラム。

6. 今後の展開

今後は、ヒノキ木酢液に含有されるウイルス不活性化物質を単離・精製し、その構造を決定する。また、竹酢液の抗ウイルス活性から得られた結果から、ヒノキ木酢液のウイルス不活性化活性においても数種の化合物による相乗効果が期待できることから、単離した物質と相乗効果を示す化合物を探索する。さらに、インフルエンザウイルス（オルトミクソウイルス科）など、他のウイルスに対する木竹酢液のウイルス不活性化試験を行い、有効成分の同定を進める。

7. 引用文献

- 1) Yatagai, M., Unrinin, G., and Ohira, T., By-products of wood carbonization. IV. Components of wood vinegars, *Mokuzai Gakkaishi*, **34**, 184-188, 1988.
- 2) Miyamoto, Y., Takeuchi, T., and Taniguchi, K., Inactivation of tobacco mosaic virus by “Mokusaku-eki”, *Nihon shokubutsu byorigaku kaihou*, **27**, 261, 1965.
- 3) Marumoto, S., Yamamoto, S., Nishimura, H., Onomoto, K., Yatagai, M., Yazaki, K., Fujita, T., Watanabe, T., Identification of germicidal compound against picornavirus in bamboo pyroligneous acid, *J. Agric. Food Chem.* **60**, 9106-9111, 2012.
- 4) 山元誠司, 丸本真輔, 西村裕志, 尾野本浩司, 谷田貝光克, 藤田尚志, 矢崎一史, 渡辺隆司, 木竹酢液のウイルス不活性化物質の探索, *生存圏研究*, **8**, 49-54, 2012.

8. 付記

○学会発表

Shinsuke Marumoto, Seiji P. Yamamoto, Hiroshi Nishimura, Koji Onomoto, Ryo Narita, Mitsuyoshi Yatagai, Kazufumi Yazaki, Takashi Fujita, Takashi Watanabe, 『Identification of germicidal compounds against picornavirus in pyroligneous acid』 Lignobiotech-II Symposium, Oct 15 and 16th, Fukuoka, Japan.

丸本真輔, 山元誠司, 西村祐志, 尾野本浩司, 藤田尚志, 谷田貝光克, 矢崎一史, 渡辺隆司, 『木酢液、竹酢液の抗ウイルス活性』第62回日本木材学会大会, 札幌, 2012年3月17日

西村裕志, 尾野本浩司, 藤田尚志, 谷田貝光克, 矢崎一史, 渡辺隆司, 『木酢液、竹酢液の成分分析と抗ウイルス活性』第61回日本木材学会大会, 京都, 2011年3月18日

○講演

山元誠司 「バイオマス由来の生体防御物質：木竹酢液のウイルス不活性化物質の探索」第198回生存圏ミッションシンポジウム(講演要旨集 p1-10), 2012年3月2日, 京都市

山元誠司, 『木質バイオマス由来抗ウイルス性化合物の探索』生存圏研究所学際萌芽

研究センター第 133 回定例オープンセミナー，宇治，2011 年 7 月 27 日

Hiroshi Nishimura, Structural analysis of wood degrading products and those biological activity, Chiang Mai Univ. seminar, Feb 10th, Thailand

西村裕志 『木酢液、竹酢液の成分分析と抗ウイルス活性評価』 第 175 回生存圏ミッションシンポジウム、要旨集、p41-44、2011 年 3 月 24 日(延期)

西村裕志、『木竹酢液の成分分析と生理活性評価 -抗ウイルス活性を中心として-』生存圏学際萌芽研究センター第 129 回定例オープンセミナー，宇治，2011 年 1 月 12 日

○報告書

生存圏科学新領域研究『木酢液・竹酢液の抗ウイルス活性評価』平成 24 年度前期研究経過報告書，2012 年 10 月

生存圏科学新領域研究『木酢液・竹酢液の抗ウイルス活性評価』平成 23 年度後期研究成果報告書，2012 年 3 月

生存圏科学新領域研究『木酢液・竹酢液の抗ウイルス活性評価』平成 23 年度前期研究経過報告書、2011 年 11 月

生存圏科学新領域研究『木酢液・竹酢液の抗ウイルス活性評価』平成 22 年度研究成果報告書，2011 年 4 月

バイオマス由来の生体防御物質

2) 新規生体防御物質 — 植物機能性低分子の代謝輸送 —

高梨 功次郎
京都大学・生存圏研究所

1. 研究組織

代表者氏名：高梨 功次郎（京都大学・生存圏研究所）
共同研究者：矢崎 一史（京都大学・生存圏研究所）
佐藤 文彦（京都大学・大学院生命科学研究所）

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

生理活性、植物二次代謝産物
ミッション 1：環境計測・地球再生

3. 研究概要

植物が生産する多種多様な生理活性物質を、効率よく高蓄積および大量生産させることを目指して、植物が有する生理活性物質の輸送・蓄積機構に関する研究を行っている。今年度は、抗ウイルス活性などの生理活性を有するベルベリンの植物細胞内における蓄積機構を解明するために、ベルベリン生産植物であるオウレン (*Coptis japonica*) の培養細胞を用いて以下 3 点の解析を行った。1) EST (Expressed Sequence Tag) からのベルベリン輸送タンパク質 (CjMATE1) の絞り込み、2) CjMATE1 の局在膜の確認、3) *CjMATE1* 遺伝子の組織特異的発現解析。これらの解析から CjMATE1 が新規ベルベリン輸送体であることが示唆されたので、来年度も引き続き CjMATE1 の解析を行い、オウレンにおけるベルベリン蓄積機構の解明を試みる。

4. 研究の背景と目的

植物は環境適応のために多種多様な生理活性物質を生産する。現在までに 200,000 種以上の植物由来の生理活性物質が見出されており、医薬品や栄養機能食品の原料としてヒトの疾病の治療や健康維持に利用されているものも少なくない。それら生理活性物質の大量生産を目的として、生理活性物質の植物内における代謝や輸送機構に関する研究が世界中で進められているものの、その大部分は未解明のままである。

植物生理活性物質由来の医薬品の生産方法として、植物から目的化合物を抽出・精製する方法と、植物から抽出した生合成前駆体を原料にして化学合成する「半合成」の 2 通りの方法が知られているが、その両方法とも原料となる植物に含まれる化合物

の蓄積量が非常に重要となる。よって、植物が生産する生理活性物質の蓄積に関する研究を推進することは、生命現象に対する基礎研究として意義のあるものだけではなく、バイオマス由来医薬品の安定供給による持続的社会的実現に役立ち、今後の生存圏科学の発展に貢献するところが大きいと考えられる。

多様な構造や特性を持つ植物由来の機能性低分子有機化合物の、植物による大量生産に関する研究は数多く行われており、それらは主に代謝遺伝子を改変することにより、その生合成能力を高めた植物を作出するという戦略によるものであった。その戦略により一定の結果が出つつある一方、生合成能力の改変だけでは目的化合物が蓄積されない例も多く見出されてきており、生理活性物質の高生産のためには生合成能の改変だけではなく、輸送・蓄積機構に関する研究も必要であると考えられるようになってきている。また、大量生産に成功した植物でも、大量生産された目的化合物の所定の蓄積部位への輸送過程も改変することで、より効率的な生産が可能になると考える。そこで本研究では植物内における低分子有機化合物の中でも、特に高い生理活性を有するものが多いアルカロイドの輸送・蓄積機構の解明を行う。植物が有する数ある輸送機構の中でも、近年特にアルカロイドを輸送することで注目されている ABC タンパク質および MATE 型輸送体に焦点を絞り、その遺伝子の単離、および発現特異性や基質特異性の解明を行う。これらの研究により得られた基礎的知見は、バイオマス由来の機能性低分子有機化合物の持続的な高生産に役立つと考えられる。

本研究ではイソキノリンアルカロイドであるベルベリンを研究対象とする（図 1a）。ベルベリンはオウバク (*Phellodendron amurense*) やオウレンなどの薬用植物が生産する主要アルカロイドで、サイトメガロウイルスに対する抗ウイルス活性を始め、フレンド白血病ウイルスによる赤白血病の進行抑制効果や化学発癌阻害活性、抗腫瘍活性など多様な生理活性を示すことが報告されている¹⁻⁴⁾。近年ではその生理活性の重要性から、大腸菌に植物由来の遺伝子を導入してベルベリンを大量生産することも試みられている^{5,6)}。本研究はオウレンの培養細胞をバイオマス材料として用いて（図 1b）、オウレンにおけるベルベリンの生合成器官から蓄積器官である液胞への輸送・蓄積機構の解明を目指す。

5. 研究の結果および考察

本年度は先ずオウレン培養細胞の EST (Expressed Sequence Tag) 解析を行った。オウレン培養細胞におけるベルベリンの液胞への取り込みは、先行研究からプロトン勾配を利用していると推測されている⁷⁾。京都大学大学院生命科学研究科の佐藤文彦先生が解析されたオウレン培養細胞 EST 延べ 4,242 クローンの中から、プロトン対向輸送体をコードするものを探索したところ、MATE 型輸送体をコードする遺伝子 1 分子 (*CjMATE1*) を見出した（図 2）。

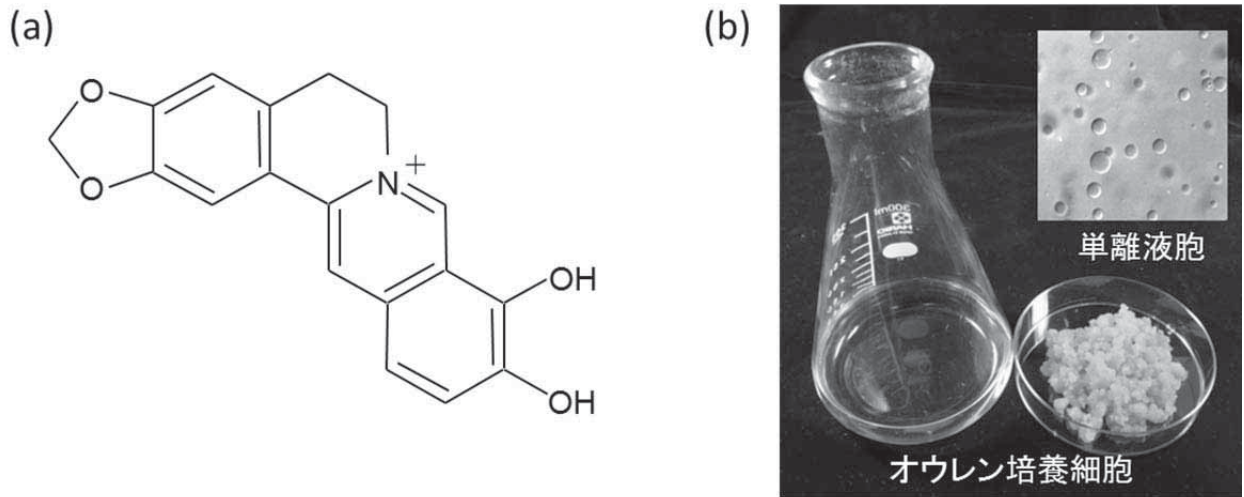


図 1 (a) ベルベリンの構造

(b) オウレン培養細胞



図 2 植物 MATE 型輸送体の分子系統樹

CjMATE1 が液胞膜ベルベリン輸送体であるとすれば、その特徴である液胞膜局在性を有するはずである。CjMATE1 の局在膜を調べるために、CjMATE1 の C 末に GFP をつなげ、オウレン培養細胞のプロトプラストに PEG 法で導入した。導入後 72 時間のプロトプラストを蛍光顕微鏡で観察したところ、液胞膜に GFP 蛍光が観察されたことから CjMATE1 が液胞膜局在性であることが示された。

続いて、オウレン植物体を用いて *CjMATE1* の組織特異的発現を調べたところ、*CjMATE1* はベルベリン蓄積部位である根茎を含む全草で発現していることが明らかとなった。ベルベリンはオウレン植物体の根茎に蓄積するため、根茎が薬用部位として古くから用いられている。その一方で、葉や葉柄にもベルベリンが微量ながら蓄積することが報告されており⁸⁾、*CjMATE1* が全草で発現していることは、液胞膜ベルベリン輸送体として妥当である。

6. 今後の展開

CjMATE1 のベルベリン輸送能を測定する。出芽酵母に発現させ、ベルベリンの細胞輸送能を測定する。その後、CjMATE1 発現膜画分を調製し、CjMATE1 の基質特異性や輸送特性を調べるとともに、本研究で得られた知見をもとに生理活性物質の高生産を試みたい。

7. 引用文献

- 5) Kyoko Hayashi, Kazuki Minoda, Yasuo Nagaoka, Toshimitsu Hayashi, Shinichi Uesato, Antiviral activity of berberine and related compounds against human cytomegalovirus, *Bioorganic and Medicinal Chemistry Letters*, 17, 1562-1564 (2007)
- 6) Kuzhuvellil B. Harikumar, Girija Kuttan, Ramadasan Kuttan, Inhibition of progression of erythroleukemia induced by Friend virus in BALB/c mice by natural products - Berberine, Curcumin and Picroliv, *Journal of Experimental Therapeutics and Oncology*, 7, 275-284 (2008)
- 7) K. V. Anis, N. V. Rajeshkumar, Ramadasan Kuttan, Inhibition of chemical carcinogenesis by berberine in rats and mice, *Journal of Pharmacy and Pharmacology*, 53, 763-768 (2010)
- 8) K. V. Anis, Girija Kuttan, Ramadasan Kuttan, Role of berberine as an adjuvant response modifier during tumour therapy in mice, *Pharmacy and Pharmacology Communications*, 5, 697-700 (1999)
- 9) Hiromichi Minami, Ju-Sung Kim, Nobuhiro Ikezawa, Tomoya Takemura, Takane Katayama, Hidehiko Kumagai and Fumihiko Sato, Microbial production of plant benzyloquinoline alkaloids, *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 105, 7393-7398 (2008)
- 10) Akira Nakagawa, Hiromichi Minami, Ju-Sung Kim, Takashi Koyanagi, Takane Katayama, Fumihiko Sato, Hidehiko Kumagai, A bacterial platform for fermentative production of plant alkaloids, *Nature Communication*, 2, 326 (2011)
- 11) Mihoko Otani, Nobukazu Shitan, Kyoko Sakai, Enrico Martinoia, Fumihiko Sato, Kazufumi Yazaki, Characterization of Vacuolar Transport of the Endogenous Alkaloid

- Berberine in *Coptis japonica*, *Plant Physiology*, 138, 1939-1946 (2005).
- 12) Hiroyuki Fujiwara, Norimatsu Takeshita, Yoshitake Terano, John H. Fitchen, Tetsuya Tsujita, Yasuyuki Katagiri, Fumihiko Sato, Yasuyuki Yamada, Expression of (S)-scoulerine 9-O-methyltransferase in *Coptis japonica* plants, *Phytochemistry*, 34, 949-954 (1993).

8. 付記

学会発表（ポスター）

- 1) Kojiro Takanashi, Yasuyuki Yamada, Fumihiko Sato, Kazufumi Yazaki, Analysis of a MATE-type transporter in cultured cells of *Coptis japonica*, *International Workshop on Plant Membrane Biology 2013*, Kurashiki.

バイオマス由来の生体防御物質

3) バイオマスの分析技術開発

西村 裕志

京都大学・生存圏研究所

1. 研究組織

代表者氏名：西村 裕志（京都大学・生存圏研究所）

共同研究者：片平 正人（京都大学・エネルギー理工学研究所）

渡辺 隆司（京都大学・生存圏研究所）

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

生理活性 先端分析化学

ミッション2：太陽エネルギー変換・利用

3. 研究概要

木質バイオマスは地球上に最も多く蓄積されている有機資源である。これを有効に変換、利用して生理活性物質をはじめとした有用物質やバイオエネルギーを生産することは、環境調和型の持続可能な社会の実現に貢献すると期待される。木質バイオマスは主にセルロース、ヘミセルロースおよびリグニンによって構成されているが、木材組織の中でこれらの構成物質がどのような分子構造をとっているかを正確に把握することは重要な課題である。また、木質バイオマスの変換過程における構造変化を把握することで、木材細胞壁構造およびその分解機構を包括的に理解することは、バイオリファイナリーのための基盤技術として重要である。近年、微粉末木粉そのものを溶液 NMR に適用する方法が開発され¹⁾、¹H-¹³C HSQC NMR を中心に多くの研究がなされてきた。木材を可能な限りインタクトな状態で溶液 NMR 法に適用できれば、化学処理や成分分離をすることなく、木材組織内部の化学構造を原子レベルで把握することが可能となる。木材細胞壁構造解析のためには、できる限り温和な条件での微粉末化(ボールミル処理)と NMR 測定溶媒への溶解が重要である。同時に、高分解能かつ高感度で NMR スペクトルを取得することが求められる。そこで昨年度に引き続き、試料調製法、測定法の改良を行った。また、NMR による構成成分の定量法についてモデル化合物を用いた検討を行った。以上の手法を元に木材腐朽菌による木質生分解過程の解析を行った。陸上生態系における炭素循環において、木材腐朽菌は樹木に固定化された炭化水素の分解者として重要な役割を担っている。しかしながら、木材腐朽過程における細胞壁構造の変化を天然状

態で解析した例は少ない。そこで、木質バイオマスの生分解過程を包括的に理解するために、その構造を精密かつ定量的に捉えるとともに、分解過程の変化を分子レベルでモニタリングすることを試みた。

4. 研究の背景と目的

バイオマスは生物が作り出す有機資源であり、多様な分子から成る。このため化成品材料やエネルギー資源のみならず、生理活性物質などの高機能性物質としても高いポテンシャルを持っている。中でも樹木に代表される植物バイオマスは未利用かつ豊富なバイオマス資源として重要である。植物細胞壁は、主にセルロース、ヘミセルロースおよびリグニンによって構成されていて、互いに多様な結合で3次元の高分子を形成している。この高分子ネットワークの結合構造を正確に把握することは植物バイオマスの戦略的な変換、利用につながると期待される。特に、リグニンの分岐構造やリグニンと糖の結合構造(LCC)などは、その存在量は少ないもののバイオマスの評価、変換反応を解析する上で鍵となる構造であるが、現在のところ、核磁気共鳴法(NMR法)によってのみ観測可能である。そこで本研究では、木質バイオマスの細胞壁構造を包括的に正確に捉え、さまざまなバイオマスの変換反応過程における構成成分の変化を評価する手法の開発を目的とした。

非破壊測定法である核磁気共鳴法(NMR)は、木材細胞壁構造を分子レベルで包括的に理解する唯一の方法である。しかしながら、分子量分布をもった高分子であり、多様な結合構造が存在する点が構造解析を難しくしている。本研究では、できる限り温和な条件での微粉末化(ボールミル処理)と、NMR測定溶媒への溶解、高分解能かつ高感度でNMRスペクトルを取得するための測定条件の最適化し、良好な ^1H - ^{13}C HSQC スペクトル(^1H - ^{13}C 相関 2次元 NMR スペクトル)を取得することを目的とした。また、HMBC法などのロングレンジ相関NMR法を用いて、リグニンの分岐構造の直接的な相関を得ることを目指した。

バイオマスは、多様な分子構造を有する構造の混合物であり、それぞれの分子構造の存在量を正確に評価するためには、結合定数($^1J_{\text{CH}}$)の相違によるシグナル強度を考慮する必要がある。そこで、本研究では、TROSY/anti-TROSY測定により、木質バイオマス成分の $^1J_{\text{CH}}$ を算出し高感度なHSQCからの補正定量する方法とその検証を行った。

5. 研究の結果および考察

木粉の調製は窒素雰囲気下、乾式粉碎によりのべ3時間の微粉碎処理を行い、良好なNMRスペクトルを取得することができた。粉碎強度、粉碎時間を減らすことにより、よりインタクトに近い状態での測定が可能であると考えられる。代表的なHSQCスペクトルを図1に示す。帰属は文献およびHMBC相関により行った。^{2,3)}

定量 HSQC NMR 法として Q-HSQC (quantitative HSQC) が報告されている。^{4,5)} この測定法は非常に優れた方法であると考えられるが、通常の HSQC と比較して、測定時間が長く、感度が低下する点や、パルスシーケンスが複雑で分極移動時間が長く定量可能な条件が限定される点など、木質バイオマスの構造解析を効果的に進める上で問題があった。特に重要な点として、結合定数($^1J_{CH}$)の相違によるシグナル強度差が挙げられる。木材中の構造は多様であるため、定量する結合の $^1J_{CH}$ はそれぞれ異なる。これを克服するため、Q-HSQC では幅広い $^1J_{CH}$ において同じ強度を実現するためのパルスプログラムが組み込まれているが感度と時間に問題があり木質微細構造の定量への適用は困難である。そこで、本研究では、TROSY/anti-TROSY 測定により、微細構造を含めた各構成成分の $^1J_{CH}$ 測定を試みた。その結果、定量に適した CH 結合、リグニンユニットの C α 、C β 、S 核、G 核などの $^1J_{CH}$ を算出することができた。

一般にバイオマス試料は高分子で粘性が高いため、緩和時間 T_2 が短く、ブロードで弱いシグナルを与える。これに対し我々は、 1H - ^{13}C TROSY NMR 法を適用することにより高分解能分析が実現できることを見出した。さらに TROSY 法を応用して、 1H - ^{13}C HSQC スペクトルにおいて各ピークの結合定数 $^1J_{CH}$ の相違により生じる積分体積のずれを補正する方法を提案し、定量精度の向上が実現できることを示した。

本研究では、以上の手法を木質生分解過程の解析に応用した。その結果、木材腐朽菌の種類による腐朽パターンの違いのほか、選択的白色腐朽菌 *Ceriporiopsis subvermispora* においては、培養期間に応じてリグニン分解の選択率が高い期間と低い期間が存在することが NMR 法から確認できた。また、それぞれのスペクトルから示差スペクトルを得ることにより、木質構成成分の構造変化の特徴を効果的に解析できることを見出した。また木材腐朽時に生じる菌体外二次代謝物の解析も行った。*C. subvermispora* はリグニンを高選択的に分解する一方、セルロースの分解率が低いというユニークな腐朽メカニズムを有し、特徴的な二次代謝物が分解反応に関与すると考えられている。最近、われわれは本菌特有の二次代謝物である ceriporic acid の過酸化反応がリグニン分解に関与することを示した。本研究では、こうした二次代謝物の生成を実際の腐朽状態を観察しながら NMR 法によりモニタリングするとともに、高分解能質量分析法(LC-IT-TOF-MS, FT-ICR-MS) による解析と合わせて重要な二次代謝物の動態に関する知見を得た。

6. 今後の展開

木質バイオマス試料の NMR スペクトルから直接、構成分子の精密情報を取得し、定量評価することは木質バイオマスの樹種や部位の相違による特性評価や、化学変換・微生物変換過程のモニタリングにつながると期待される。

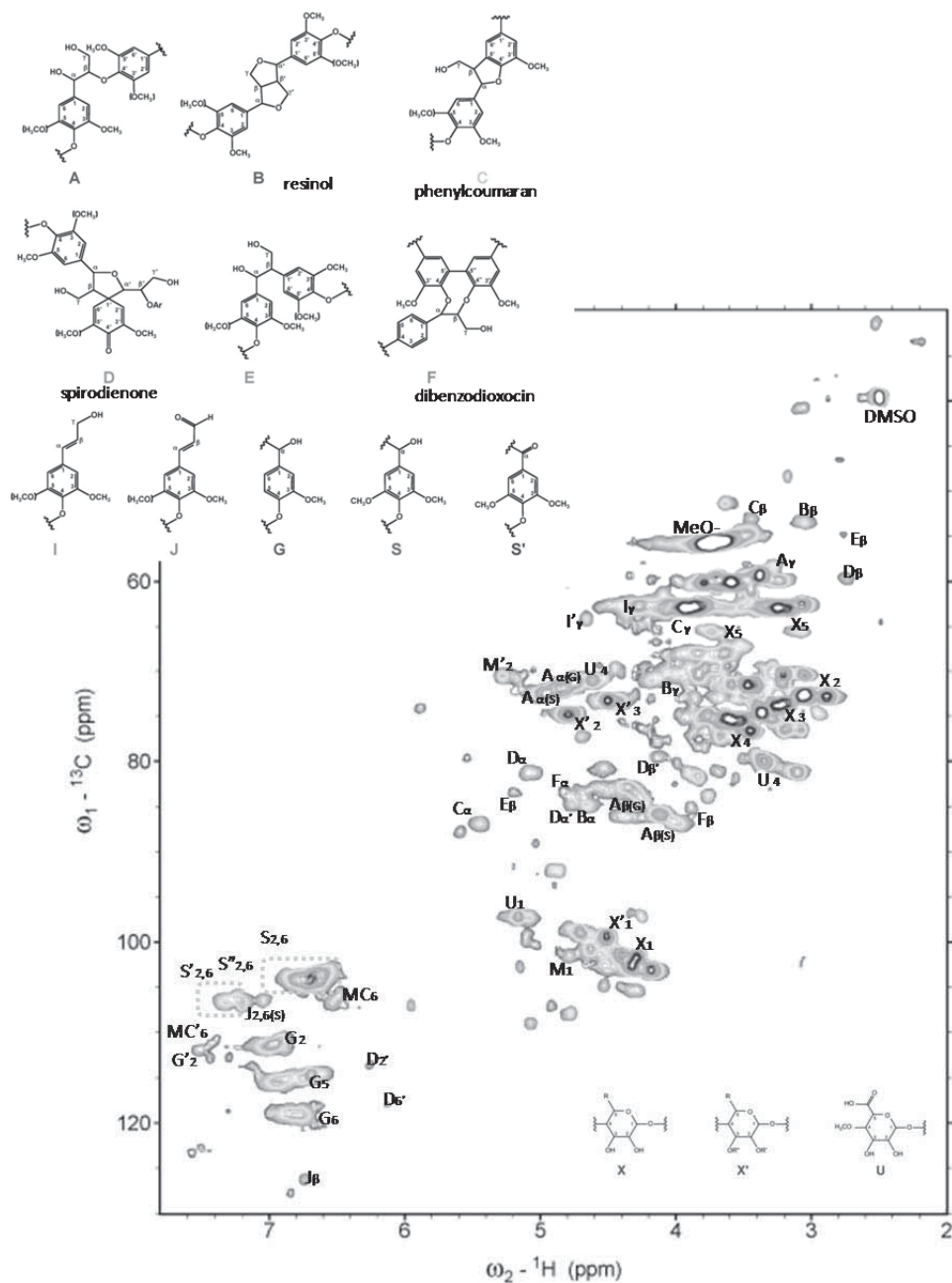


図 1 ブナ木紛の ^1H - ^{13}C HSQC スペクトル (^1H - ^{13}C 相関 2 次元 NMR スペクトル)

7. 引用文献

- 13) Lu, F., Ralph, J. Non-degradative dissolution and acetylation oball-milled plant cell walls: high-resolution solution-state NMR. *Plant J.* 2003, 35, 535–544.
- 14) Ralph, S. A., Ralph, J. Landucci, L. L. NMR Database of Lignin and Cell Wall Model Compounds, 2004.
- 15) del Río JC, Rencoret J, Marques G, Li J, Gellerstedt G, Jiménez-Barbero J, Martínez AT, Gutiérrez A. Structural characterization of the lignin from jute (*Corchorus capsularis*) fibers. *J Agric Food Chem.* 2009, 57, 10271-10281.
- 16) Heikkinen S, Toikka MM, Karhunen PT, Kilpeläinen IA. Quantitative 2D HSQC (Q-HSQC) via suppression of J-dependence of polarization transfer in NMR spectroscopy:

application to wood lignin. J Am Chem Soc. 2003, 125, 4362-4367.

- 17) Zhang L, Gellerstedt G. Quantitative 2D HSQC NMR determination of polymer structures by selecting suitable internal standard references. Magn Reson Chem. 2007, 45, 37-45.

7. 付記

- 1) Hiroshi Nishimura, Midori Sasaki, Hirofumi Seike, Masaharu Nakamura, Takashi Watanabe, Alkadienyl and alkenyl itaconic acids (ceriporic acids G and H) from the selective white fungus *Ceriporiopsis subvermispora*, A new class of metabolites initiating ligninolytic lipid peroxidation, Org. Biomol. Chem., 10, 6432-6442 (2012).
- 2) Hiroshi Nishimura, Wood Biomass Conversion: Lignin Biodegradation and Structural Analysis, Humanosphere Science School (HSS2012), 46-51, Bandung, Indonesia (Symposium Lecture), 2012.8.28
- 3) Hiroshi Nishimura, Masato Katahira, Takashi Watanabe, Analysis of wood cell wall structures and secondary metabolites during the biodegradation of white-rot fungi using solution NMR, Lignobiotech II, Fukuoka, Japan (Plenary Lecture), 2012.10.16
- 4) Keigo Mikame, Yasunori Ohashi, Hiroshi Nishimura, Ritsuko Katahira, Yu Kozawa, Masato Katahira, Satoshi Sugawara, Kenzo Koike, Takashi Watanabe, Natural organic ultraviolet absorbers from lignin derivatives, Lignobiotech II, Fukuoka, Japan (poster), 2012.10.15
- 5) Daisuke Ando, Hiroshi Nishimura, Masato Katahira, Toshiyuki Takano, Hiroyuki Yano, Fumiaki Nakatsubo, Multi-step degradation method for β -O-4 linkages in lignins, Lignobiotech II, Fukuoka, Japan (poster), 2012.10.15
- 6) 今村良教、西村裕志、寺島典二、松下泰幸、青木弾、片平正人、福島和彦, “ ^{13}C 標識法と高分解能 NMR を組み合わせたリグニンの構造解析”, 第 57 回リグニン討論会講演集, 26-29, 福岡, 2012.10.18
- 7) 安藤大将, 西村裕志, 片平正人, 高野俊幸, 矢野浩之, 中坪文明, リグニン β -O-4 結合新規選択的開裂法 (γ -TTSA 法) の検討(4) -天然リグニンへの適用-, 第 57 回リグニン討論会講演集, 42-45, 福岡, 2012.10.18
- 8) Tsukasa Mashima, Hiroshi Nishimura, Hideyasu Okamura, Fumiko Nishikawa, Yuji O. Kamatari, Takashi Nagata, Satoshi Nishikawa, Kazuo Kuwata, Takashi Watanabe, Masato Katahira, Interaction of RNA Aptamer with Prion Protein and Monitoring of Biodegradation of Wood Biomass, The 51st Annual Meeting of NMR Society of Japan, Nagoya, 2012.11.9
- 9) Hiroshi Nishimura, High resolution and quantitative NMR analysis of whole milled wood and biodegraded wood, International Symposium on Sustainable Development and Human Security in Southeast Asia through Biorefinery and Low Cost House, Proc. SABH2012, 59-62, 宇治, 2012.12.11
- 10) Hiroshi Nishimura, Biodegradation of Wood Biomass by Selective White-rot Fungi, The first Bristol-Kyoto Symposium 2013, Bristol, England, 2013.1.11
- 11) 西村 裕志, 田頭 英朗, 岡村 英保, 小澤 佑, 片平 正人, 渡辺 隆司, NMR 法によるリグノセルロースの微生物分解の解析, 日本農芸化学会, 仙台, 2013.3.25 (発表予定)
- 12) 安藤大将, 西村裕志, 片平正人, 高野俊幸, 矢野浩之, 中坪文明, リグニン β -O-4 結合新規選択的開裂法 (γ -TTSA 法) の検討(5) -粗 MWL への適用-, 第 63 回日本木材学会大会, 盛岡, 2013.3.27 (発表予定)

木質住環境と健康

—空気質特性の解明とヒトへの影響解析—

1. 研究組織

代表者氏名：川井 秀一（京都大学・生存圏研究所）	
共同研究者：松原 恵理（京都大学・生存圏研究所）	課題 1, 3, 4, 5
仲村 匡司（京都大学・農学研究科）	課題 2
木村 彰孝（長崎大学・教育学部）	課題 1, 2
東 賢一（近畿大学・医学部）	課題 5
萬羽 郁子（近畿大学・医学部）	課題 5
辻野 喜夫（大阪府環境農林水産総合研究所）	課題 1, 3
上堀 美知子（大阪府環境農林水産総合研究所）	課題 1, 3
中山 雅文（中山倉庫株式会社）	課題 1
高橋 けんし（京都大学・生存圏研究所）	課題 3
矢吹 正教（京都大学・生存圏研究所）	課題 3
宮越 順二（京都大学・生存圏研究所）	課題 5'
成田 英二郎（京都大学・生存圏研究所）	課題 5'
藤田 佐枝子（有限会社ホームアイ）	課題 1, 2, 3, 4, 5

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

木質住環境

ミッション 1：環境計測・地球再生

ミッション 4：循環型資源・材料開発

3. 研究概要

木材（とくにスギ材）には優れた空気浄化機能があり、また木材内装仕上げによって抑うつや不眠などの症状改善が観察されている。そこで本研究では、木質住環境における空気質特性の解明およびヒトへの影響解析により、居住者の健康改善・増進に寄与するデータの蓄積を目的としている。最終的には、木材を有効活用する技術開発を開拓、推進することを目標とする。

本年度は、以下に示す研究課題を設定して遂行した。

課題 1. 木材による調湿および空気汚染物質除去に関する研究

課題 2：木質住環境の見えが生理・心理・認知反応に及ぼす影響

課題 3. 木質住環境内の空気質計測

課題 4. 木材から放出する VOC の分析とヒトの生理・心理応答

課題 5. 木材パネルの設置が睡眠の質に及ぼす影響

課題 5'. 抽出成分の分析とヒト細胞の生理応答 (25 年度に報告予定)

4. 研究成果

各研究課題の成果について以下に示す。

課題 1 : 木材による調湿および空気汚染物質除去に関する研究

1.1 研究の背景と目的

スギ木口面は空気汚染物質の収着能や調湿能に優れていること¹⁾、特に、空気汚染物質の 1 つである NO₂ の収着には、仮道管有効内表面、構成成分、含有水分が寄与していること、など²⁻⁵⁾が既往の研究により明らかとなっている。そして、このような機能を活かす材料として、板目材の繊維直交方向に溝加工を施すことで表面に木口面を露出させたスギスリット材を実用化し、内装などへの利用が進みつつあるものの、実空間においてその効果を検証した例は少ない現状にある。そこで筆者らは、昨年度より屋内に設置されている保管庫の内装にスリット材を施工することで、実大空間へスリット材を使用することによる効果の検証を進めている。

本年度は、内装材としてスリット材と板目材を用い、その種類や使用量の異なる保管庫内の温湿度と空気質を経時的に測定することで、スリット材の使用量とスリットの有無が実大空間の調湿能と空気質に与える影響について比較・検討した。

1.2 実験方法

1) 供試保管庫 床面に合板を使用した亜鉛メッキ鋼板製の保管庫 (幅 1.605×奥行 1.850×天井高 2.025 mm (内寸)、壁面 4ヶ所に通気口あり) の内面にスリット材と板目材を施工した。スリット材は 45℃乾燥した熊本県小国産スギ板目材 (約 40 年生) に溝加工 (凹部幅 6、凸部幅 7、深さ 6 mm) を施したもの、板目材は溝加工を施していないこと以外はスリット材と同一のものを用い、両者の使用量の異なる保管庫を計 6 種類作成した (表 1)。

なお、保管庫へのスギ材の施工は 2012 年 6 月 19、20 日に実施した。

2) 測定項目と方法

温湿度は、保管庫内中央、倉庫内、

表 1 供試保管庫の仕様

保管庫No.	C1	C2	S1	S2	S3	N2
天井	-	-	スリット材	スリット材	スリット材	板目材
壁						
前面	-	-	-	スリット材	スリット材	板目材
左右面	-	-	-	-	スリット材	-
床 ¹⁾	合板	養生シート	養生シート	養生シート	養生シート	養生シート

注1) 床材に使用されている合板の影響を考慮し、表面に養生シート (プラベニア, ポリプロピレン樹脂製, 厚さ3mm) を施工した。

屋外の床上・地上 1.350mm に温湿度計 (TR-72Ui、(株)T&D) を設置し、15 分間隔で測定した。空気質は、保管庫内中央および倉庫内の空気を一定期間毎に捕集し、厚生労働省の指針値を含む VOC 48 成分と TVOC を加熱脱着-GC/MS、ホルムアルデヒドとアセトアルデヒドを HPLC、テルペン類を溶媒抽出-GC/MS により分析した。表 2 に各項目の

表 2 VOC の捕集・分析方法

測定項目	捕集条件	分析方法	分析条件	定性・定量方法
VOC 48成分	アクティブサンプリング法 流量:0.1L/min, 時間:30分間 吸着材: TenaxTA	加熱脱着-GC/MS法 加熱脱着部: Turbo Matrix ATD (PerkinElmer社)	カラム: HP-VOC (長さ: 60m, 内径: 0.32mm, 膜厚: 1.8 μm, Agilent Technologies社) 加熱脱着温度: 260°C オープン温度: 35°C (2min) - (15°C/min) - 95°C - (2.5°C/min) - 105°C - (5.0°C/min) - 250°C スプリット比: 7:1 キャリアガス: He (3mL/min), 測定モード: SCAN法	室内大気分析用標準試薬 (SUPELCO社)を用い、保 持時間と標準物質との ピーク面積比により算出
TVOC		GC部: 6890N (Agilent Technologies社) MS部: 5973inert (Agilent Technologies社)	ヘキサンからヘキサデカン の範囲に検出された全成 分を一括してトルエン換算 により算出	
ホルム アルデヒド アセト アルデヒド	アクティブサンプリング法 流量: 0.2L/min, 時間: 150分間 吸着管: InertSep mini AERO DNPH (ジーエルサイエンス社)	HPLC法 (HP-1100, Agilent Technologies社)	カラム: Inertsil ODS-SP (長さ: 250m, 内径: 4.6mm, 粒径: 5 μm, ジーエルサイエンス社) カラム温度: 40°C, 移動相流量: 1.2mL/min 検出波長: 360nm, 注入量: 10 μL	標準物質を用い、保持時 間と標準物質とのピーク面 積比により算出
テルペン 類	アクティブサンプリング法 流量: 0.1L/min, 時間: 3-24時間 吸着管: ORBO-91T (Sigma Aldrich社)	溶媒抽出-GC/MS法 (GCMS-QP2010, 島津製作所)	溶出: アセトン カラム: Ultra ALLOY-5 (長さ: 30m, 内径: 0.25mm, 膜厚: 0.25 μm, フロンティアラボ社) オープン温度: 50°C (3min) - (15°C/min) - 150°C - (4°C/min) - 170°C - (20°C/min) - 250°C スプリット比: 2:1, キャリアガス: He (1.7mL/min) 測定モード: SCAN法	標品とNISTライブラリを用 い、保持時間と内部標準 物質とのピーク面積比に より算出

捕集・分析方法を示す。

1.3 結果および考察

ここでは、スギ材による影響が大きいと推測される測定項目を中心に述べる。

梅雨 (2012年6月21日~7月16日) の湿度をみると、昨年度の結果⁶⁾と同様にスリット材使用量の増加とともに調湿能は高くなる傾向を示した。しかし、スリット材と板目材を同じ使用量とした S2 と N2 を比較すると、両者間で大きな違いは認められず、実験室実験で得られた結果¹⁾とは異なっていたことから、今後、内装仕様や測定方法を含め、更なる検証を行う予定である。

ホルムアルデヒドとアセトアルデヒドの気中濃度は、気温上昇と共に増加し、低下と共に減少する傾向がみられたものの、全測定値が厚生労働省の基準値 (各 100.48 μg/m³) 以下となった。倉庫内の気中濃度が最も高かった施工 51 日後について保管庫間でみると、スリット材使用量の増加と共にホルムアルデヒドの気中濃度は高く、アセトアルデヒドは低くなる傾向を示した。また、スリット材を施工した S2 は同一面

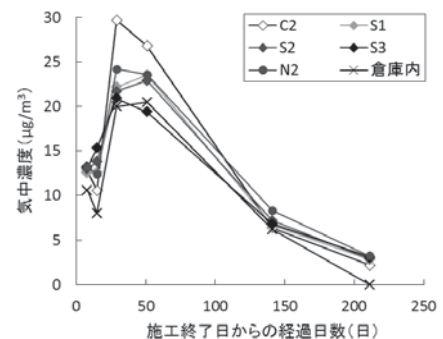


図 1 ホルムアルデヒド気中濃度の経時変化 (C1 を除く)

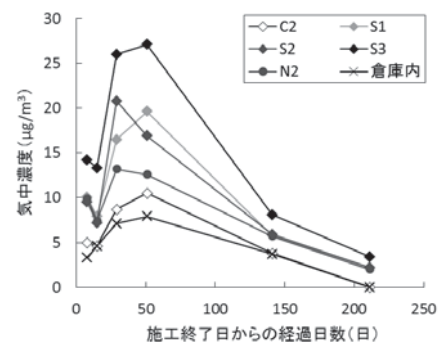


図 2 アセトアルデヒド気中濃度の経時変化 (C1 を除く)

積に板目材を施工した N2 よりホルムアルデヒドの気中濃度は低く、アセトアルデヒドは高かった（図 1、2）。

テルペン類を分析した結果、 α -クベベン、 β -クベベン、 β -カリオフィレン、 α -ムウロレン、 δ -カジネンなど、主にセスキテルペン類が 25 成分検出された。主成分は δ -カジネンであり、抗菌性が報告されている α -フムレン、 β -カリオフィレンも含まれていた。保管庫内のテルペン類気中濃度は、施工 1 ヶ月後で S1 : 15.745、S2 : 29.660、S3 : 52.699、N2 : 10.372 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ となり、時間経過と共に減少した（C1、C2 : 未検出）。

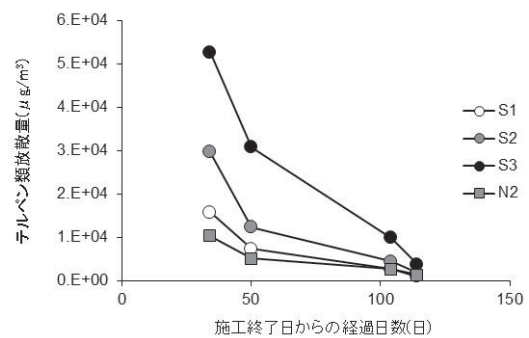


図 3 テルペン類気中濃度の経時変化（スギ材未施工の C1、C2 を除く）

保管庫間でみると、スリット材使用量の増加と共に気中濃度は高くなった。また、スリット材を施工した S2 は同一面積に板目材を施工した N2 より気中濃度は高くなった（図 3）。

課題 2 : 木質住環境の見えが生理・心理・認知反応に及ぼす影響

2.1 研究の背景と目的

スギ挽き板の板目面に多数の溝（スリット）を彫って木口を露出させたスギスリット材は、優れた二酸化窒素やオゾンの浄化機能、調湿機能を有することが明らかにされつつある¹⁾。住空間においてこの機能を存分に発揮させるには、スリット加工された凹凸面を内装側に「あらわし」にする必要がある。そこで筆者らは、スリット材およびスリット加工されていない板目材を壁面に貼った実大木質内装を組み、材を観察する被験者の心身の状態がどのように変化するかについて、実験的な検討を進めている。

昨年度には、スリット材と板目材でこれを観察する被験者の自律神経系反応および気分・感情の変化が異なること、スリットの有無が視線の停留回数や停留点の分布に及ぼす影響は小さいこと、材の使用量と配置によってはスリット材の方が板目材よりも生体を生理的に鎮静化した状態にすること、スリットの有無が印象評価に及ぼす影響は概して小さいこと、などを示した^{7, 8)}。今年度は、壁面にあらわしになるスギ材の面積を変えずに、材の配置、材の向き、スリットの有無が異なる壁面意匠を実空間に設置し、これらの視覚刺激がヒトの自律神経系反応、心理反応および認知反応に及ぼす影響を調べた。

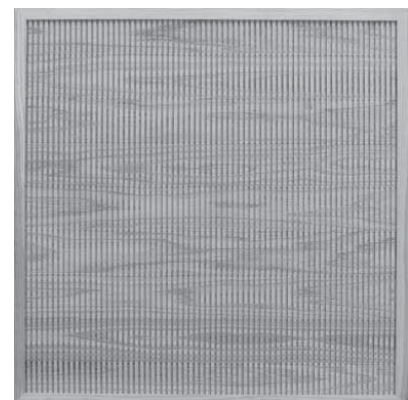


図 4 スリット材パネル

2.2 実験方法

1) 供試内装：幅 100 mm のスギ板目材（熊本県小国産）を用いて、スリット材パネル(凹部幅 6 mm、凸部幅 7 mm、図 4)、スリットの無い板目材パネルを、それぞれ 3 枚ずつ作製した。パネルの寸法は 960 mm 角であった。大学校舎内の標準的な実験室（RC 造，床面積約 20 m²）の向かい合った壁面に、スリット材パネル 3 枚、板目材パネル 3 枚をそれぞれ横並びに貼って壁面意匠とした。その際、「パネルの配置（貼る高さ）」および「パネルの向き（繊維方向）」を変えることで、3 種類のデザインを設定した。また、スギ材パネルを設置しない白色塗装の壁面を対照内装として別室に用意した。図 5 に供試した 7 種類の壁面内装を示す。実験室内の温度および湿度をそれぞれ約 27℃、50%RH、照度を約 800 lx に調整した。

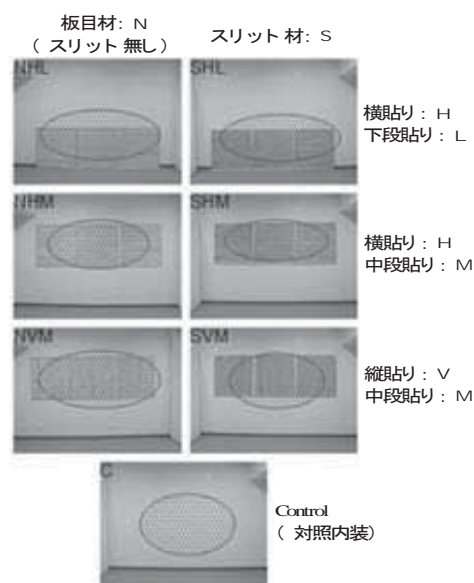


図 5 7 種類の供試内装

2) 被験者：年齢 18～27 歳（平均年齢 20.7±2.3 歳）で、裸眼またはソフトコンタクトレンズ装用で正常な視力（平均視力 0.9±0.2）を有する健康な男女学生 19 名（男性 11 名，女性 8 名）が被験者として実験に参加した。なお、本実験は京都大学大学院農学研究科実験倫理小委員会の承認を得て行われており、実施に際しては被験者に十分な説明を行い、各人から実験参加への同意書を得た。

表 3 測定項目

分類	項目	内容	使用機器など
自律神経系 反応	① 脈拍数	被験者の脈拍数を経時的にモニタリング。交感神経活動の亢進(ストレス増)により上昇し，副交感神経の亢進(ストレス減)により低下。	連続式血圧計 (Finapres model 2300, Ohmeda)
	② 血圧	被験者の収縮期血圧(最高血圧)，拡張期血圧(最低血圧)を経時的にモニタリング。交感神経活動の亢進により上昇し，副交感神経活動の亢進により低下。	
	③ 心拍変動	被験者の心拍R-R間隔の変動を周波数解析。パワースペクトルの低周波数成分LF(0.04～0.15Hz)および高周波数成分HF(0.15～0.40Hz)をリアルタイムに検出。交感神経活動の亢進によりLF/HF値が上昇し，副交感神経活動の亢進によりHF値が上昇。	メモリー心拍計(LRR-03, アームエレクトロニクス) 解析ソフトウェア(MemCalc Bonaly Light, GMS)
	④ 唾液中アミラーゼ活性	被験者の唾液を専用チップで採取し，唾液中に含まれるアミラーゼの活性レベルを測定。交感神経活動の亢進により活性度が上昇。	酵素分析装置唾液アミラーゼモニター(CM-2.1, ニプロ)
視覚認知 反応	⑤ 視線追跡	被験者の眼球運動を検出。視線が一定時間以上留まった場所(停留点)を注意が向いた場所として評価。	アイマークレコーダ(EMR-8, ナック)
心理反応	⑥ 感情プロフィール検査	専用質問紙を用い，被験者の「緊張-不安」「抑うつ-落込み」「怒り-敵意」「疲労」「混乱」「活気」の6つの気分尺度を評価。	POMS (Point Of Mood States) 短縮版(金子書房)
	⑦ 自己の状態の主観申告	その時点における目の疲労感や心理状態を被験者が自己申告。	Visual Analogue Scale (VAS)法を用いた両極尺度評価シート(タブレットPCを利用)
	⑧ 内装の見た目に 関する印象評価	被験者が対象に抱いた見た目の印象を評価。	

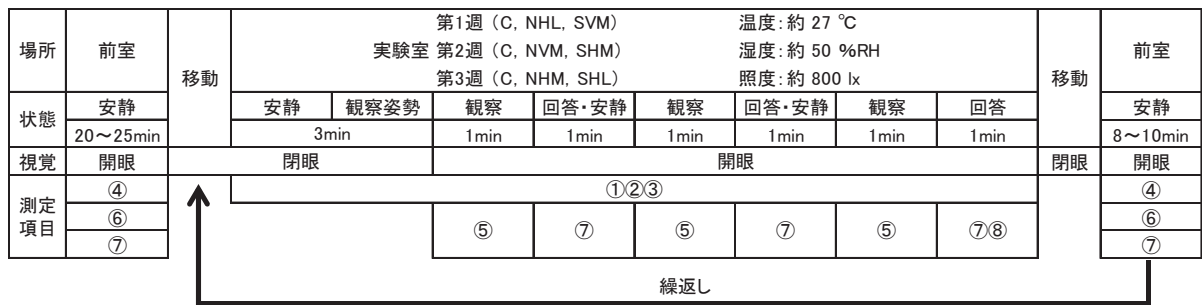


図 6 実験の流れ (丸数字は表 3 の測定項目に対応)

3) 測定項目: 表 3 に示す生理的および心理的指標について測定を行った。

4) 実験プロトコル: 前室において各種センサが取り付けられた被験者は、各種質問紙に回答、唾液を採取した後、臭気遮断用の活性炭マスクを着用し、閉眼状態のまま車椅子で実験室に移動した。被験者は実験室内でしばらく安静にした後、開眼指示を受け、2500 mm の距離から 1 分間にわたって眼前の壁面を自由に観察、続く 1 分間の休憩中に、目の疲労感や心理状態に関する自己評価を行った。観察と休憩を 3 回繰り返した後、被験者は閉眼状態で前室に戻り、質問紙への回答と唾液の採取を行った。実験の流れを図 6 に示す。

2.3 結果および考察

1) 自律神経系反応: 測定結果の 1 例として、図 7 に刺激提示前後における拡張期血圧の経時変化 (男女計) を示す。白色壁面の対照内装では刺激提示後の初期において有意に

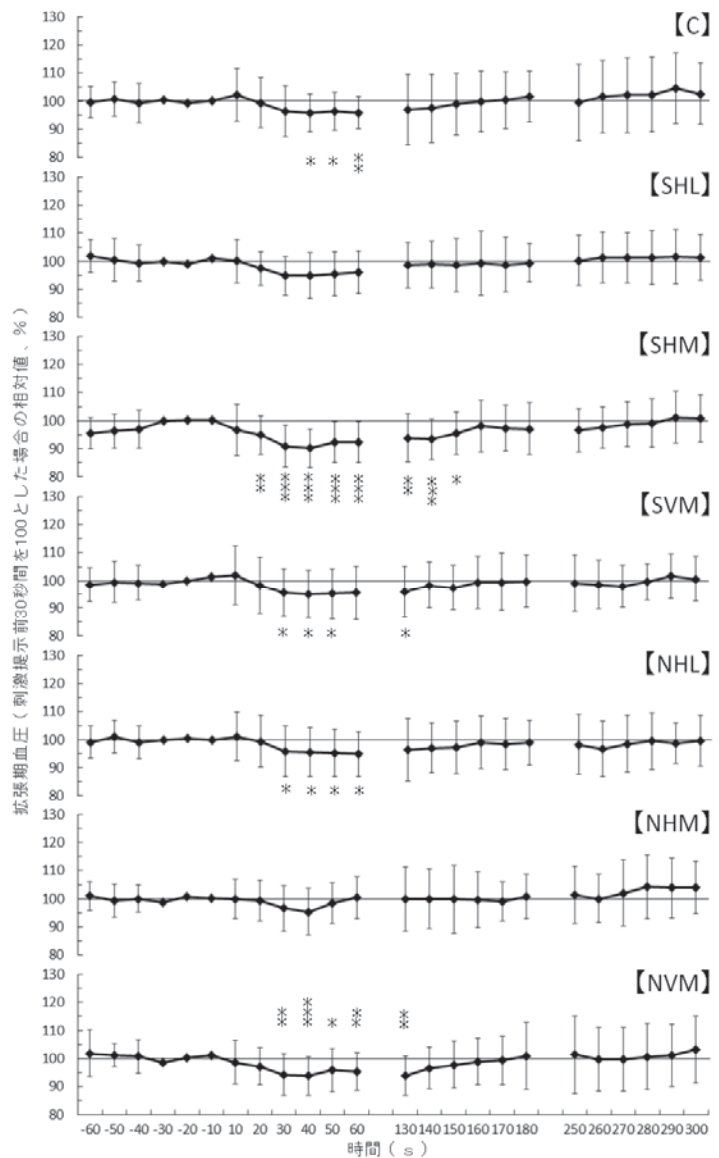


図 7 刺激提示前後における拡張期血圧の経時変化 (n=18 (男性 10 名, 女性 8 名), mean±S.D., *: p<0.05, **: p<0.01, ***: p<0.001 (対応のある t 検定: 刺激提示前 30 秒間の平均値と刺激提示後の測定値との間, 本研究では刺激提示後の 18 データ中 3 個以上有意差がみられた場合, 全体として有意な変化があるとみなした)

低下する傾向がみられたのに対し、スギ材を用いた壁面ではパネルを貼る高さや向きの違いにより異なる変化を示した。パネルの高さ毎に刺激提示後の変化をみると、板目材では下段貼りの NHL において有意に低下し、中段貼りの NHM では有意な変化は認められなかったのに対し、スリット材では中段貼りの SHM で有意に低下し、下段貼りの SHL では有意な変化は認められなかった。また、パネルの向き毎に刺激提示後の変化をみると、板目材では床に対して縦貼りの NVM において有意に低下し、横貼りの NHM では有意な変化は認められなかったのに対し、スリット材では縦貼りの SVM と横貼りの SHM の共に有意に低下した。

加えて、スギ材を用いた内装の条件毎に性別間の拡張期血圧の変化の違をみると、スリット材を下段・横貼りに施工した SHL と板目材を中段・縦貼りに施工した NVM において、女性は刺激提示後に有意に低下したのに対し、男性では有意な変化は認められず、板目材を下段・横貼りに施工した NHL において、男性は刺激提示後に有意に低下したのに対し、女性では有意な変化は認められなかった。なお、上記以外の内装条件では性別間で異なる変化はみられなかった。

以上のことから、同じスギ材の使用面積の場合でも、施工する高さや向きにより異なる自律神経活動を示し、スリットの有無により生体を鎮静状態とする配置や向きは異なることが明らかとなった。加えて、スギ材の配置や向きによっては性別間で異なる自律神経活動を示す可能性が示唆された。

2) 停留点分布の特徴：図 5 の各内装に重ねられた楕円は停留点の分布範囲を表している。この楕円の大きさを内装同士で比較すると、中段・横貼り (NHM および SHM) の楕円が他の内装よりも小さい。停留点分布楕円の面積を中段貼りどうしで比較すると、横貼り (NHM、SHM) はスリットの有無によらず縦貼り (NVM、SVM) よりも面積が小さい傾向が現れる (図 8a)。中段に貼られた内装を観察した際の停留

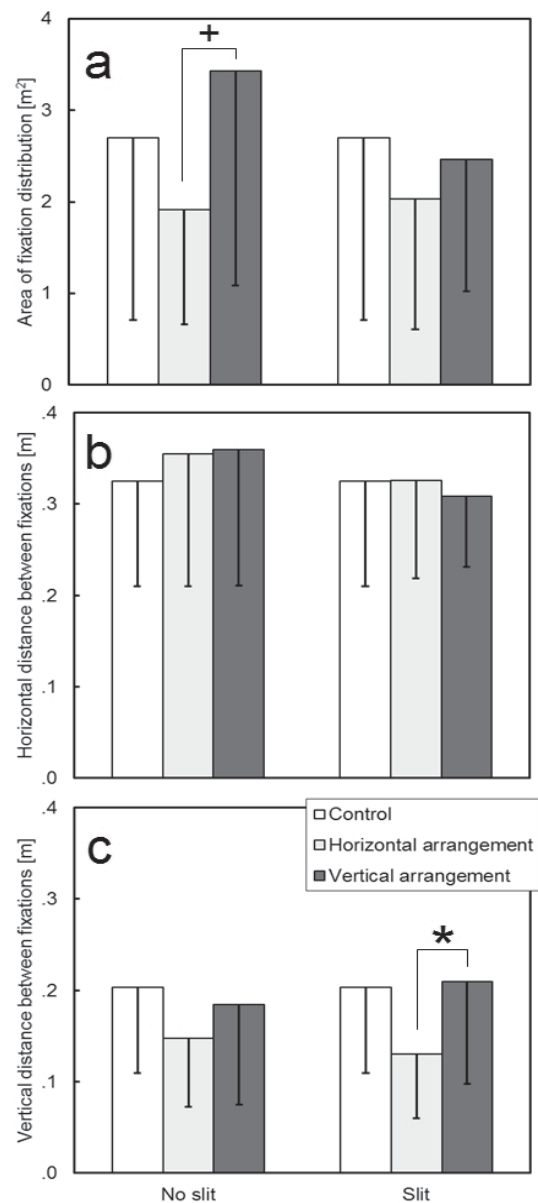


図 8 中段に貼られたスギ内装 (NHM, NVM, SHM, SVM) の観察における停留点分布面積および平均停留点間距離の比較

a: 停留点分布面積の比較, b: 水平方向の平均停留点間距離の比較, c: 垂直方向の平均停留点間距離の比較, mean ± S. D., +: $p < 0.1$, *: $p < 0.05$ (Wilcoxon 検定)

点間距離を水平方向および垂直方向に分けて比較すると、水平方向の停留点間距離は横貼りと縦貼りでほとんど差が無いが、垂直方向の停留点間距離は横貼りの方が縦貼りよりも短い（図 8b, c）。材の向きによって視線の動きが変化し、横貼りの壁面では視線の垂直移動が縦貼りよりも小刻みになったと考えられる。ただし、この変化はスリットの有無には影響されにくい。

3) 見た目の快適感：図 9 に各内装の「快適な－不快な」印象のスコアを示す。白色壁面の対照内装や、腰壁様の下段・横貼りの内装（NHL および SHL）は決して「快適」ではなかった。最も「快適」と評価されたのは、中段・横貼りの板目材内装（NHM）で、同じく中段・横貼りのスリット材内装（SHM）よりも有意に「快適」であった。目の高さに横貼りにされた板目材は、主観的には視覚ストレスを与えにくいものと考えられる。

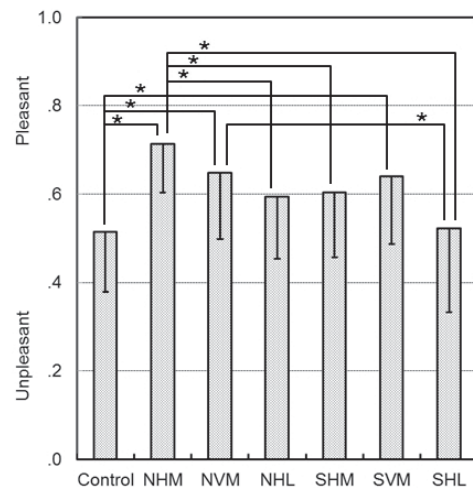


図 9 各内装の「快適な－不快な」印象スコア mean±S.D., *: p<0.05 (Wilcoxon 検定)

課題 3：木質住環境内の空気質計測

3.1 研究の背景と目的

現代人は一日のおよそ 8 割以上を室内で過ごすと言われており、住環境における空気質は、ヒトの健康影響を考える上で重要な問題である。住環境空気質を評価するうえで不可欠な物質は VOC である。住環境における VOC は、室内の建材や塗料などを主たる発生源としている。とりわけ日本に着目した場合、比較的風通しに優れた日本家屋よりも、気密性の高い洋間を取り入れた住居やマンションが増加した結果、室内の VOC 濃度が高くなっている可能性がある。一方、大気化学の分野では、大気中で VOC が酸化されると光化学オキシダントなどの有害物質や二次生成粒子(SOA)が生成されることが広く認知されている。光化学オキシダントや微粒子は、人体に取り込まれると呼吸器系疾患を誘因するとされている。したがって、住環境においても、居住者に対する VOC および VOC の酸化反応生成物の曝露は、健康影響が懸念される問題である。

課題 3 では、大気化学の研究分野で用いられているオンラインの超高感度分析技術を応用し、スギ材を配した住環境における空気質の評価を試みた。とりわけ、VOC および SOA の挙動を計測しながら、居住空間へのヒトの出入りや、窓・ドアの開閉による換気が、住環境空気質にどのような影響をもたらすかを明らかにすることを目指した。

3.2 実験方法

実験は、新領域課題の一つである「大気質と安心・安全」プロジェクトにおいて開発した大気自動サンプリング装置、ならびに、各種のガス成分および微粒子のオンラ

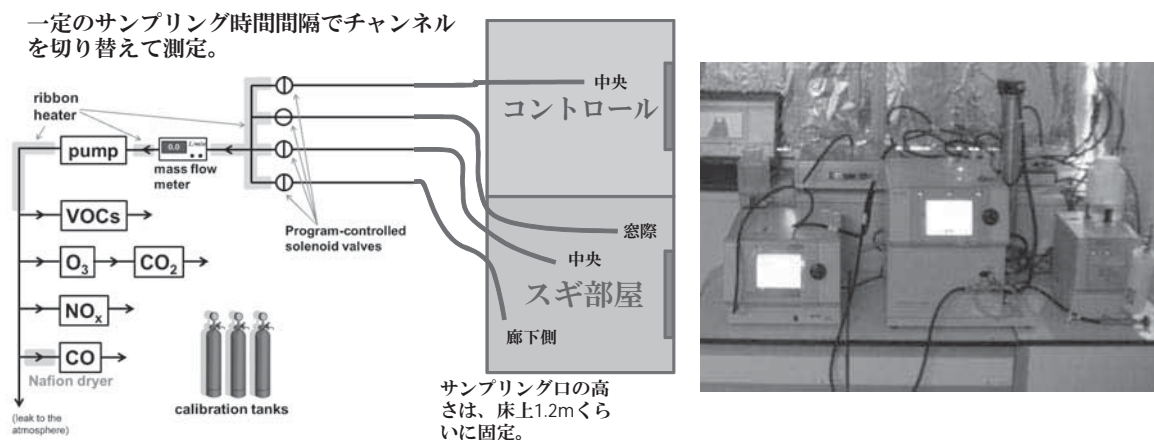


図 10 開発した気体成分オンライン分析システム(左)とナノ粒子分析装置(右)

イン計測装置を用いて行った(図 10)。スギスリット材を配置した部屋と、配置していない部屋(コントロール)、ならびに、野外の空気質を多点比較しながら、多成分の VOC 濃度および粒子径 10 nm~300 nm の粒子個数濃度のリアルタイム計測を行った。誌面の都合により測定機器類の詳しい説明は省くが、VOC 測定は陽子移動反応質量分析計(PTR-MS)を、CO₂ 測定は非分散型赤外分光計を、O₃ 測定は紫外吸光計を、各々用いた。微粒子の粒径分布は、走査型パーティクルサイザーで計測した。

3.3 結果および考察

図 11 に、スリット材の在る部屋の中央付近の空気を計測した PTR-MS スペクトルを示す。特徴的なピークとして、セスキテルペン M205 (およびそのフラグメントイオンが複数出現する) が挙げられる。フラグメントイオンを考慮すると、約 150 ppb 程度の濃度に達していたことが分かった。これは、森林環境で観測される代表的なセスキテルペン濃度(数 ppb 前後)に比べて極めて高い。また、モノテルペン M131 や VOC 酸化生成物の一つであるメタクロレイン/メチルビニルケトン M71 なども観測されている。一方、C8-C12 の芳香族(M107、121、135、149、163)や高濃度のメタノール M33、アセトン M59、トルエン M93 が検出されたが、それらは主として人為起源、すなわち、宇治キャンパス内の他研究施設から研究活動に伴って放出された物質が、スリット材の在る部屋へ換気口や出入用ドアを経由して流入したものと考えられる。ホルムアルデヒド M31 も 2000 ppb という高い値を示したが、これは室外からの混入と、VOC の酸化反応生成物との、両者の寄与であろう。コントロール部屋との比較から、スギ材由来 VOC 成分の濃度変動・化学的変質に関する詳しい解析を現在行っている。

他方、微粒子の測定を行った結果から、スリット材の在る部屋の室内を十分に換気した後に窓を閉め切ると個数密度が $1.5 \times 10^5 \text{ cm}^{-3}$ にも達するような粒子生成現象が起こっていたことが明らかとなった。この数値は、野外よりも数十倍も高い。同様の

実験をコントロール部屋で行ってもこの現象が起こらないことから、屋外から流入した酸化剤（オゾン、ヒドロキシラジカル）とスリット材の在る部屋に多く存在する VOC との多段階酸化反応により、粒子生成が促進されたと考えられる。以上のことより、高濃度の VOC が存在する居住空間では、微粒子から診た空気質が、換気方法に強く依存していることが示唆された。

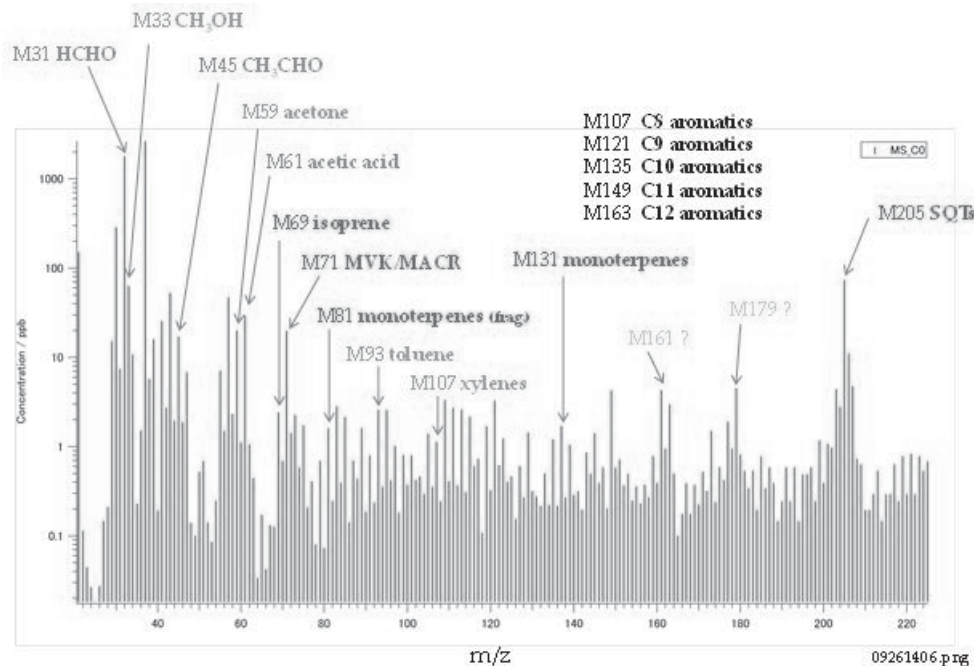


図 11 スギ集材パネルの在る実験室で測定した PTR-MS スペクトルの一例

課題 4：木材から放出する VOC の分析とヒトの生理・心理応答

4.1 研究の背景と目的

木材由来の揮発成分が生理・心理学的に鎮静的に働くことはこれまでも報告されてきた。しかし、木材を施工した空間において放散されるテルペン類の種類や濃度とヒトの生理・心理応答について関連付けて検討した研究事例は少ない。本研究では、スギ材を施工した室内のテルペン類と計算作業時の生理・心理応答について検討した。

4.2 実験方法

1) 供試材料と供試空間

45°Cで低温乾燥させた熊本県産の約 40 年生スギ材を供試材料として用いた。板目面に繊維直交方向に多数の溝(スリット)を等間隔に切削加工して木口を露出させた材を用いて内装パネル(950×950 mm、950×730 mm)を作製し、供試空間内



図 12 実験室内装と設備

壁に施工した。供試空間には研究棟内一室(W5040×D3270×H2500 mm)を使用した。スギ材を壁に施工した実験室に被験者からは施工壁が見えないように仕切りを置き、対照はスギ材無施工の実験室とし同様に仕切りを置いた(図 12)。

2) テルペン類の捕集と分析

テルペン類の捕集はスギ材施工から 2 週目及び 6 週目に行った。溶媒抽出用捕集管 ORB0-91T(Sigma Aldrich 製)と携帯型空気吸引ポンプ(MP-Σ 30N、柴田科学(株)製)を用いた。空気吸引ポンプをカメラ用三脚の上部に取り付けて、捕集管をチューブで連結して供試空間内中央部に設置した。捕集速度は 0.1 L/min として 24 時間捕集した。その後、溶媒で溶出し、GC-MS(ガスクロマトグラフ質量分析計)分析に供した。標品とライブラリを用いてスギ材由来揮発成分を同定、濃度を算出した。

3) 生理・心理応答実験の手順

スギ材施工から 6~7 週目に実験を行った。被験者は健康な男子大学生・大学院生 16 名(21 歳~28 歳)とした。一回の実験時間は約 50 分間とし、各被験者に対し、スギ材室と対照室で各 1 回ずつ以下の手順で実験を行った。前室にて被験者の唾液を採取し、心電図計測用電極を装着した。実験室に入室後、被験者に対して 15 分間の計算作業を実施、唾液を採取後、再度 15 分間の計算作業を実施した。全作業終了後に、被験者は主観調査表に記入し退室した。前室にて被験者の唾液を採取し、心電図計測用電極を脱着した。なお、作業前と全作業終了後に 5 分間安静状態を保つように指示した。

4.3 結果および考察

1) テルペン類の空气中濃度

スギ材由来揮発成分のうち多くがセスキテルペン類であり、主成分は δ -カジネンであった。スギ材施工から 2 週目の空气中濃度は $2744.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、6 週目で $498.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。室内空气中のテルペン濃度は 4 週間で約 80% 減少した。

2) 計算作業時の作業効率

計算作業には内田・クレペリン精神検査(日本・精神技術研究所)を用いた。スギ材室と対照室での作業量および誤答数を算出し、作業効率の評価を試みたが、本研究ではスギ材室と対照室での作業時の効率に違いは見られなかった。

3) 生理学的な応答

生理学的な応答は、電気生理学的なアプローチと生化学的なアプローチの両面から検討している。電気生理学的な評価には、心拍数や自律神経系機能の連続した計測を用い、生化学的な評価は、唾液中に分泌される酵素であるアミラーゼの活性や内分泌物質や免疫物質などであり、いずれもストレス刺激に対する応答を示す指標として広く知られている。作業前後の唾液

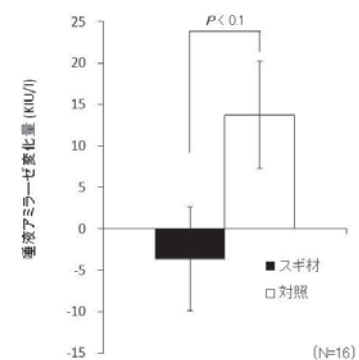


図 13 唾液アミラーゼ活性の作業前後の変化量

アミラーゼ活性を測定し、変化量を図 13 に示した。スギ材室での変化量は -3.7 ± 6.1 KIU/1、対照室では 13.8 ± 6.3 KIU/1であった ($P < 0.1$)。唾液アミラーゼ活性はストレス刺激により増大することが知られており、以上の結果から、スギ材由来セスキテルペン類は、計算作業によりストレス状態を緩和し、生理的に落ち着いた状態にする可能性が示唆された。また、作業中の交感神経系や心拍数の変動についても、唾液中アミラーゼ活性の変動を支持する結果であった。

4) 心理学的な応答

心理学的な応答を測るために、質問票を自作して用いた。各評価語に対して得点化を行い、その結果、実験室の印象に関して、良い香りか悪い香りかという問いに関してのみ、スギ材室と対照室との有意な差がみられた ($P < 0.05$)。

5) 被験者特性と生理・心理応答

本実験を行うにあたり、被験者には事前に実験内容に関して十分に説明し、インフォームドコンセントを取った。その際に、被験者の身体的・精神的状態を把握するための簡単な質問用紙を渡し、記入させた。項目は、ライフスタイルに関する項目や、薬の使用、自覚的なアレルギー疾患の有無など身体的な項目、ストレスや疲労感の有無など精神的な項目である。質問項目に関してまとめた結果、自覚的なアレルギー疾患を有する被験者が 13 名いた。そこで、これら 13 名のデータを用いて再度、上記の項目に関して解析を試みた。部屋の印象に関する主観的な評価について図 14 に示した。興味深いことに、自覚的なアレルギー疾患を有する被験者は、スギ材由来揮発成分をより好印象に捉えている一方で、集中にするかという項目に関しては、対照室よりも評価が低いことが分かった。

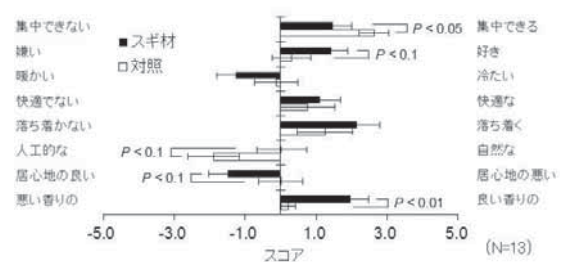


図 14 実験室の印象に関する主観評価比較

課題 5 : 木材パネルの設置が睡眠の質に及ぼす影響

5.1 研究の背景と目的

木材の抽出成分の精油による効果としては、ストレス症状緩和の効果があること^{9、10}や、木材に含まれるセドロールの吸入による睡眠内容の改善などの効果^{11、12}が確認されているが、伐採された木材を居住空間に用いてその効果を確認した既往の研究報告は少ない。昨年度の実験結果より、木材パネルを設置した空間は疲労回復効果が高いことが明らかとなった¹³。本研究では、木材による疲労回復および睡眠内容の改善効果に着目し、スギスリット材パネルを枕元に設置した場合の睡眠の質に及ぼす影響を明らかにすることを目的とした。

5.2 実験方法

1) 実験概要および測定項目

実験は、各被験者の自宅で実施することとし、寝室の枕元周辺にパネルを設置したときとしないときの、睡眠時の心理および生理反応の変化を測定した。実験は2012年11月～12月に実施した。本実験は近畿大学医学部倫理委員会の承認を得て実施した。

測定項目として、就寝前と起床後の心理反応の評価として、OSA睡眠調査、感情プロフィール検査（POMS: Profile of Mood States）、室内の評価などアンケート調査を行なった。OSA睡眠調査では、起床時眠気、入眠と睡眠維持、夢み、疲労回復、睡眠時間の5つの因子について評価を行なった。生理反応の評価としては、アクチグラフを用いて就寝中の活動量測定を行い、その結果から睡眠時間、睡眠効率（就床時間に対する睡眠時間の割合）、入眠潜時（消灯後の睡眠開始までの時間）、中途覚醒時間などを求めた。また、物理環境測定としては、寝室内の温度、相対湿度の経時測定と、被験者属性として、事前アンケート（年齢、性別、喫煙、家族、飲酒、生理状況、医薬品の服用など）を実施した。なお、実験で使用したパネルからの放散物質および放散量分析も実施した。

2) 実験条件

実験条件は、以下の3条件とした。条件AおよびBで試料として使用したパネルは、240 mm×325 mm×20 mm（幅20 mmの枠を含む）を2枚繋ぎ合せたもので、片面のみスリット加工を施した（図15、図16）。これらのパネルを被験者寝室、枕元付近に設置した（図17）。

条件A：スギ（産地；熊本県小国，樹齢40年），45℃乾燥 を枕元に設置

条件B：スギ合板（産地；九州，樹齢40～60年），130～140℃で10分以内のホットプレス，F☆☆☆☆ を枕元に設置

条件C：試料設置なし

※条件A/Bの枠材：スギ（産地；熊本県小国，樹齢80年），地熱乾燥

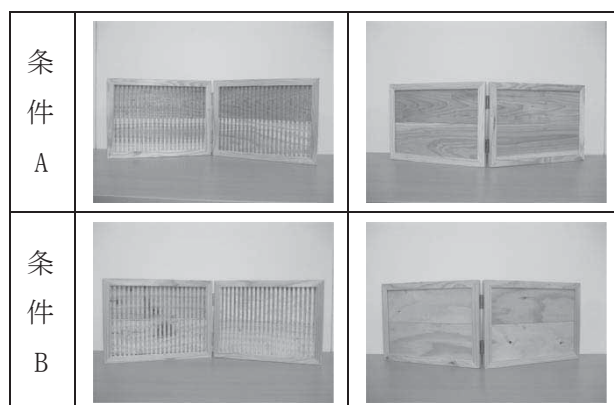


図15 使用したパネルの写真

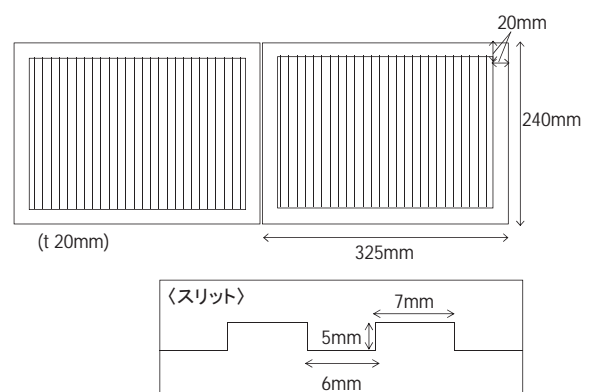


図16 使用したパネルの寸法

3) 被験者

被験者は18歳以上の大学生20名（男性8名／女性12名）で、実験は3群に分けてクロスオーバー法で実施した。

各条件において、連続する2晩の測定を行なった。1日目は全ての条件で試料設置なし、2日は条件A～Cのとおりとした。実験は、睡眠が乱れやすい土曜日・日曜日・祝日を除いた月曜日から金曜日の被験者ごとに同じ曜日で行なった。持ち越し効果による影響を避けるため、被験者ごとに各条件の間には1週間以上の間隔を空けた。



図 17 使用したパネルと設置例

表 4 クロスオーバー法による実験条件の提示順序

	グループ i		グループ ii		グループ iii	
	1 日目	2 日目	1 日目	2 日目	1 日目	2 日目
1 回目	試料なし	条件 A	試料なし	条件 B	試料なし	条件 C
2 回目	試料なし	条件 B	試料なし	条件 C	試料なし	条件 A
3 回目	試料なし	条件 C	試料なし	条件 A	試料なし	条件 B

5.3 結果および考察

実験は2012年12月末に終了し、現在 OSA 睡眠調査およびアンケート調査等のデータを入力中である。

5. 今後の展開

課題 1: 木材による調湿および空気汚染物質除去に関する研究については、本年度得られた結果を再検証しつつ、昨年度より実施している金属の保存状態の評価を含めて引き続き実験を進めることで、1年を通じた評価や再び気温が上昇した条件下での評価、実使用を想定した評価等を行う。以上の研究成果を基に、実空間において高い調湿および空気質改善効果を得るための新たな材料の開発や施工方法の提案を目指す。

課題 2: 木質住環境の見えが生理・心理・認知反応に及ぼす影響については、2年間で得られた知見を基に、実空間において視覚的に最も適したスギスリット材の内装プランの提案を目指す。加えて、提案した内装プランを実際に施工し、ヒトの生理・心理・認知反応に及ぼす影響について明らかにすることで、その有効性を検証する。

課題 3: スギ集材からの VOC 放散が空気質に与える影響、とりわけ、ナノ粒子成長への寄与率を評価するため、VOC およびナノ粒子制御の観点から屋内換気方法の検討などを行う。また、大気化学分野で広く知られている二次生成有機エアロゾルの物理化学プロセスを参照しながら、居住圏環境におけるナノ粒子生成の分子機構を調べる。

課題 4: スギ材由来の揮発成分が、計算作業時の生理・心理応答に影響を及ぼすことが分かった。また、嗅覚刺激による生理・心理応答は、個人の性別や年齢、疾患、嗜好、習癖、生活環境など、様々な要素によっても影響される。被験者の身体的・精神的特性と木材の香りの関係について検討していきたい。

課題 5: 木材パネルの設置が睡眠の質に及ぼす影響については、今年度の実験結果の解析を進めるとともに、引き続き、木材を利用したより快適な睡眠環境の検討を行ないたいと考える。

以上の研究を進めることで、スギ材による空気質およびヒトへの効果を実証し、健康改善・増進に寄与する新たな木質住環境の構築や高性能材料の提案を目指す。

6. 引用文献

- 1) 川井秀一，辻野喜夫，藤田佐枝子，山本堯子，木材による調湿と空気浄化，Clean Technology，**2010年7月号**，1-4，2010.
- 2) 西岡美銘，梅村研二，川井秀一，辻野喜夫，スギ材の二酸化窒素吸着における種々の因子の影響，第60回日本木材学会全国大会研究発表要旨集，CD-ROM 2010.
- 3) 西岡美銘，梅村研二，川井秀一，スギ材の二酸化窒素吸着における水分及び構成成分の影響，第61回日本木材学会全国大会研究発表要旨集，CD-ROM 2011.
- 4) 中川美幸，西岡美銘，梅村研二，川井秀一，スギ材の二酸化窒素吸着 粒度が及ぼす影響，第61回日本木材学会全国大会研究発表要旨集，CD-ROM 2011.
- 5) 中川美幸，木村彰孝，梅村研二，川井秀一，スギ材の二酸化窒素吸着における仮道管内表面の寄与，第62回日本木材学会全国大会研究発表要旨集，CD-ROM 2012.
- 6) 中川美幸，木村彰孝，中山雅文，藤田佐枝子，辻野喜夫，梅村研二，川井秀一，保存空間に施工したスギスリット材の調湿効果，第62回日本木材学会全国大会研究発表要旨集，CD-ROM 2012.
- 7) 木村彰孝，仲村匡司，藤田佐枝子，川井秀一，スリット加工が施されたスギ材の観察がヒトに及ぼす影響Ⅰ．自律神経活動および気分・感情の変化について，第62回日本木材学会全国大会研究発表要旨集，CD-ROM 2012.
- 8) 仲村匡司，木村彰孝，藤田佐枝子，川井秀一，スリット加工が施されたスギ材の観察がヒトに及ぼす影響Ⅱ．視線移動および主観評価に及ぼす影響，第62回日本木材学会全国大会研究発表要旨集，CD-ROM 2012.
- 9) Yada Y., Sadachi H., Nagashima Y., Suzuki T., Overseas Survey of the Effect of Cedrol on the Autonomic Nervous System in Three Countries, *J. Physiol. Anthropol.*, **26**, 349-354, 2007.
- 10) 花輪尚子，才木祐司，山口昌樹，日本古来の香りが日本人にもたらす交感神経活動の鎮静作用，日本生理人類学会誌，**13(1)**，49-56，2008.
- 11) 山本由華吏，白川修一郎，永嶋義直，大須弘之，東條聡，鈴木めぐみ，矢田幸博，

鈴木敏幸，香気成分セドロールが睡眠に及ぼす影響，日本生理人類学会誌，**8(2)**，69-73，2003.

12) 松浦倫子，安藤直美，有富良二，駒田陽子，白川修一郎，香気成分セドロールを含浸させた枕カバーが睡眠に及ぼす影響，日本生理人類学会誌第 57 回大会要旨集，**12 特別号(2)**，38-39，2007.

13) 萬羽郁子，東賢一，藤田佐枝子，辻野喜夫，上掘美和子，木村彰孝，仲村匡司，甲田勝康，川井秀一，居住空間におけるスギ材の心理的及び生理的効果に関する研究—スギ材設置が疲労回復に及ぼす影響の検討—，平成 24 年度室内環境学会学術大会講演要旨集，122-123，2012.

7. 付記

1) 木村彰孝，仲村匡司，川井秀一，配置と向き異なるスギ材パネルの観察がヒトに及ぼす影響Ⅰ．自律神経活動および気分・感情の変化について，第 63 回日本木材学会大会，2013 年 3 月発表予定

2) 仲村匡司，木村彰孝，川井秀一，配置と向き異なるスギ材パネルの観察がヒトに及ぼす影響Ⅱ．視線移動および主観評価について，第 63 回日本木材学会大会，2013 年 3 月発表予定

3) 松原恵理，木村彰孝，中山雅文，藤田佐枝子，中川美幸，梅村研二，川井秀一，スギスリット材を施工した保存空間でのスギ材由来テルペン類の分析，第 30 回記念日本木材加工技術協会年次大会講演・研究発表要旨集，39-40，2012.

4) 松原恵理，梅村研二，藤田佐枝子，川井秀一，スギ材施工空間における作業時の生理・心理応答，第 63 回日本木材学会大会，2013 年 3 月発表予定

人間生活圏を取り巻く大気の微量物質の動態把握

1. 研究組織

代表者氏名：高橋 けんし（京都大学・生存圏研究所）

矢吹 正教（京都大学・生存圏研究所）

津田 敏隆（京都大学・生存圏研究所）

共同研究者：中山 智喜（名古屋大学・太陽地球環境研究所）

青木 一真（富山大学・大学院理工学研究部）

林 泰一（京都大学・防災研究所）

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

大気質変動、光化学オキシダント、エアロゾル、揮発性有機化合物、
森林－大気相互作用、健康影響、接地境界層

ミッション1：環境計測・地球再生

3. 研究概要

大気質の変動は、健康や植生に対する影響、気候変動への関与など、多岐に亘って影響を及ぼすことが懸念されている。安全で安心な大気環境を確立・維持するためにも、現在の大気質変動の動態を詳細に把握し、将来的な変動を正しく予測する必要がある。しかしながら、その対策の際に必須の知見となる大気質特性の変動要因には、未解明な部分も多く残されている。本プロジェクトでは、人間生活圏および森林圏に近い大気の化学的動態の変動に着目し、大気微量成分（ガスおよび粒子状物質）の時空間分布を精細に描写する新しい大気計測手法を提案する。2010年秋および2011年春の予備調査ならびに予備観測を踏まえて、2011年9月には滋賀県甲賀市にある信楽MU観測所（34.9° N, 136.1° E）において、接地境界層におけるエアロゾル・微量気体プロファイル観測実験（AEROGAP - Phase I）を実施した。この観測では、新しい試みとして、係留気球をプラットフォームとして活用することにより、微量気体成分ならびにエアロゾル粒子の個数濃度と粒径分布の鉛直立体分布を観測する方法を考案した。また、地上設置の直接測定およびリモートセンシング計測データと、係留気球を上空に飛翔させて観測したデータとを突き合わせ、エアロゾルの物理・化学・光学特性の立体分布特性を考察した。この観測から、オゾン濃度の高度勾配の時間変化や、鉛直方向の風速と関連すると思われる極微細なエアロゾル粒子の濃度の変化など、今まで直接的な観測が困難であった現象を捉えることができた。2012年8月には同観測所において、AEROGAP-I で発見した現象を更に精密に探査するために、AEROGAP - Phase II を実施した。AEROGAP-II では、AEROGAP-I で開発した地上および上空の大気質計測シ

システムに加えて、走査機構を付加した型ラマンライダーの新規開発と試験運転を行った。走査ライダー手法が、水蒸気とエアロゾルの時空間変動の精緻な観測に走査型ラマンライダー有効であることを示唆する結果が得られた。また、人為汚染大気のトレーサーとして、上空 100m における黒色炭素粒子の連続観測を試みた。一方で、野外で発生する光化学オキシダントやエアロゾルは、我々の居住空間にも容易に入り込む。居住空間内における大気質の問題、いわゆる、indoor air quality を評価するシステムの開発も 2012 年度から新たに始めた。

4. 研究の背景と目的

本プロジェクトは、地球環境問題の中でも大気圏で生起している問題、とりわけ人間生活圏および森林圏に近い大気の化学的動態の変動の解明に焦点を当てている。我々人間の営む活動によって、大気中に様々な物質が放出される。これらは概して量は微量であるが、種類は多岐に及び、人間の健康や植生への被害、気候変動の要因となる放射収支への作用¹⁾など、多方面に亘って複雑な影響を及ぼす(図 1)。地表付近の大気質(air quality)の悪化は、スモッグとよばれる視程の低下をもたらす現象を引き起こすこともある。視程障害は、人為起源の気体やエアロゾルにより太陽放射が吸収・散乱されることが原因である。エアロゾルとは、空気中に微小な液体粒子や固体粒子が浮遊している分散系、あるいはそれらの微小な粒子そのものを意味する。エアロゾル粒子の発生源は、工場や自動車など人間活動に伴い排出される人為起源と、樹木や土壌、海水など自然界から放出される自然起源とに大別される。大気中に放出されたガス成分とエアロゾル粒子は、大気の運動によって輸送・拡散され、またその間に物理・化学的に変質するとともに、降雨や重力沈降に伴う沈着過程により大気中から除去される²⁾。

様々な汚染物質から人々を保護する目的で、多くの先進国において大気質の環境基

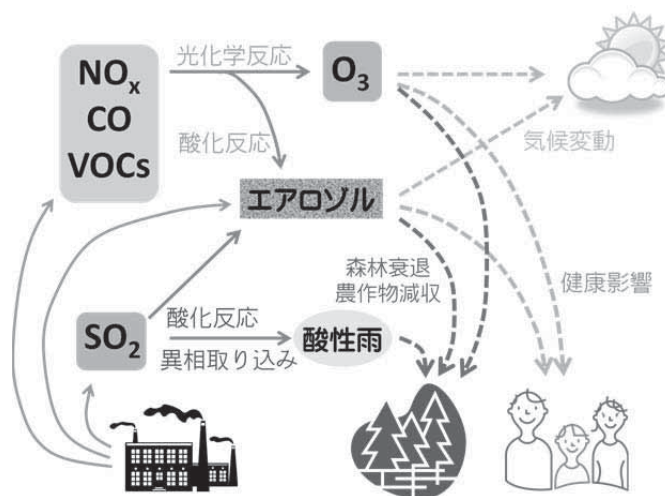


図 1 : 光化学オキシダントとエアロゾルがもたらす種々の影響を示す概念図。

準（それを超えてはいけない濃度レベル）が法令で定められている。例えば光化学オキシダント（ O_x ）に関して、わが国では、環境基本法により「一時間値が 0.06ppm 以下であること」を定めている。同様に窒素酸化物や硫黄酸化物、微小粒子状物質（粒径 $2.5\mu\text{m}$ 以下の粒子、以下 PM2.5）、浮遊粒子状物質（同 $10\mu\text{m}$ 以下）に関しても、それぞれ環境基準が定められている。高度成長期時代に最悪とされていた我が国の大気質は徐々に改善されているとされてきたが、2000 年代に入ってから、スモッグの発生件数が増加に転じたことが問題となっている。光化学オキシダントに関して言えば、環境基準の達成率は例年 0.4%にも達していない³⁾。光化学オキシダントの全国の年平均値は、1985 年から 2004 年の 20 年間で約 5ppb 上昇したことも報告されている⁴⁾。これらの原因として、中国などの新興国からの前駆物質の放出・輸送、日本で排出される炭化水素の構成比の変化、都市域のヒートアイランド現象などとの関連が指摘されているが、結論は出ていない。ごく最近では、2013 年 1 月に、中国の都市部で多量に発生した PM2.5 が西日本域に流入したことにより、近畿地方でも場所によっては、一時的ながら我が国の環境基準を超過する事態に及び、マスコミ報道でも度々取り上げられた。ただし、都市域に集中的に展開している我が国の PM2.5 の地上観測網だけでは、ローカルな発生による寄与と、リージョナルスケールでの大陸間輸送による寄与とを分離することは未だに容易ではなく、更なる観測網の稠密化と測定データの蓄積が必要とされている。実際、近年欧米諸国においては、微小粒子状物質の健康影響に関する疫学研究の深化と呼応して、微小粒子の排出規制が強化される動きも見られており、大気環境場における動態の把握は、益々その重要性を増している。こうした背景を踏まえ、本プロジェクトでは、人間生活圏および森林圏に影響を与える大気質変動のより精緻な理解、特に大気微量成分の変質・輸送過程を詳細に調べるために、新しい研究手法の創出を目指している。

上述のように、我が国では環境基本法により定められた環境基準があり、大気質監視のためのモニタリングステーションが都市部を中心として全国に配置されている。しかしながら、大気中へ放出されたガス成分とエアロゾル粒子の拡散は地表付近の気象条件によって強く影響を受けるため、地上の平面的な観測のみならず、接地層を含む上空の大気質観測に興味を持たれる。上空の大気質観測のプラットフォームとして、航空機をチャーターした観測実験がある。しかしながら航空機観測は、航空法に基づく最低安全飛行高度による制約のため、人間生活圏と森林圏を直接取り巻く接地層下部領域を対象にすることが難しい。また、コストの観点からも、頻繁な航空機実験は不可能である。大気微量成分の観測例が少ない地表から高度数十 m の領域には、地表面摩擦の影響を大きく受ける接地境界層と呼ばれる大気の層が存在する。接地境界層は、地表付近から放出された物質や熱エネルギーを、上層の大気と交換する際に重要な役割を担う。さらに、水蒸気や気温の時空間変動が大きい接地境界層では、雲凝結核への活性化過程や粒子の変質過程を考える際に重要となるエアロゾル吸湿特性にも

大きく寄与していると推察される。そこで本プロジェクトでは、地上モニタリングと、散発的な航空機観測との間を埋める、地表付近の微量成分の空間分布を精細に描写する新しい大気質計測手法を提案する。

2010年秋および2011年春の予備調査ならびに予備観測を踏まえて、2011年9月と2012年8月に滋賀県甲賀市にある信楽MU観測所(34.9°N, 136.1°E)において、大気境界層におけるエアロゾル・微量気体プロファイル観測(AEROSol and GASes Profiling experiment near surface boundary layer: AEROGAP)を実施した。周囲を森林で囲まれた信楽MU観測所は、植生起源物質の一次放出と、滋賀県や大阪方面から輸送される人為起源物質とが相互作用していると期待される興味深いサイトである。また、気象条件を精密に探査することのできるレーダー設備やライダーといった先進的な観測機器が集まっていることから、大気微量物質と気象場の統合的な高時間分解能計測によって、地表付近の大気質の動態把握に繋がる新しい手法が開拓できるものと期待される。本報告では、2012年の成果の一部を報告する。

我々はまた、人間生活圏のうちでも、とりわけ滞在時間が長い居住空間に焦点を当て、居住空間内の大気質(indoor air quality)における大気質を診断する新しい手法の開拓を試みた。居住空間内には、たばこやダニの死骸、花粉といった一次放出エアロゾルの他、建材等から放出される多種の揮発性有機化合物の酸化反応による二次生成エアロゾルが存在する。また、エアコンや窓などを通じて戸外からエアロゾルや光化学オキシダントが流入するなど、ヒトへの健康影響を明らかにするうえで看過できないプロセスもある。そこで2012年には、本新領域課題のプロジェクトの一つである“木質住環境と健康”課題(代表:川井秀一教授)と連携し、木質住環境を対象としたindoor air qualityに関する共同実験を実施した。その成果については、“木質住環境と健康”課題の報告書も参照されたい。

5. 研究の結果および考察

5.1 キャンペーン観測 AEROGAP-II の結果および考察

5.1.1 AEROGAP-II の概要

AEROGAP-IIは、2012年4~8月上旬にかけて行われた校正・試験計測などの準備期間を経て、2012年8月16日から31日の大気化学反応が最も活性化される盛夏に実施した。AEROGAP-Iと同様に、AEROGAP-IIは人間生活圏と森林圏に直接接している地表面大気の化学特性の精密な計測を指向した直接計測とリモートセンシング計測を融合した複合観測である。図2にキャンペーンの概要と直接観測のための鉛直分布観測点の様子を示した。AEROGAP-Iで開発を行った係留気球(内容積28m³)をプラットフォームとした計測システムを改良・発展させ、上空100m、50mおよび地上(1.2m)に加えて、地上15mの鉄塔を利用した観測も行った。この工夫により、詳細な鉛直分布構造を捉えることを目指した。鉄塔の先端までは、滑車付きのロープを利用してアクセス

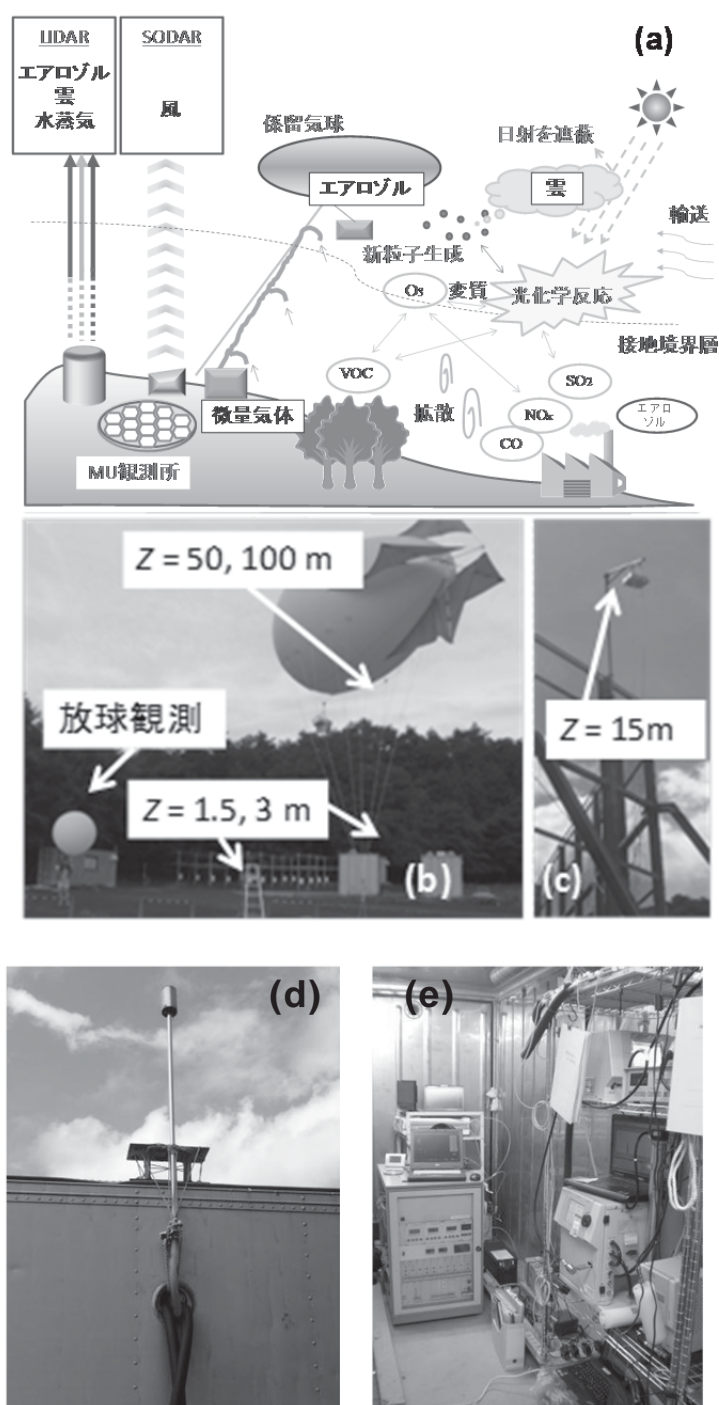


図 2 : (a) AEROGAP 実験の概要。(b)、(c) 鉛直分布観測の様子：高度 1.2 m (微量気体地上計測)、高度 3 m (エアロゾル地上計測)、高度 15 m (鉄塔計測) 高度 50・100 m (係留気球計測)、気象要素の連続分布 (放球計測)。(d) 地上コンテナ外部にとりつけたエアロゾルのサンプリングライン。(e) 地上コンテナ内部の様子。

できるように設計し、計測関連機器の保守作業を容易に行うことができるようにした。

AEROGAP-II の観測に用いた測定装置の一覧を表 1 に示す。微量気体の計測装置は、装置の重量や電力供給などの事由により、上空へ飛揚させることができない。そこで、地上の観測小屋に多成分同時計測システムを設置し、地上で機器を操作・運用しながらにして、気体成分の鉛直立体分布を測定する方法を用いた。本研究では、係留用ロ

表1 2012年のキャンペーン観測 AEROGAP-II に使用した観測機器一覧

測定種	測定器	研究機関
O ₃	UV absorption spectrometer	RISH
NO _x	Molybdenum catalysis/Chemiluminescence detector	RISH
CO	Quantum Cascade Laser Spectrometer	RISH
CO ₂	Non-dispersive IR spectrometer	RISH
Volatile organic compounds	Proton-Transfer Mass Spectrometry	(Rental)
Aerosol size distribution	Fast Mobility Particle Sizer ($d = 5.6\text{-}560\text{ nm}$)	GSES ^{a)}
	Scanning Mobility Particle Sizer ($d = 15\text{-}300\text{ nm}$)	STEL ^{b)}
	Optical Particle Counter ($d = 0.3 - 5\ \mu\text{m}$)	RISH, NIPR ^{c)}
Aerosol concentration	Condensation Particle Counter ($d > 10\text{ nm}$)	RISH
	Condensation Particle Counter ($d > 4\text{ nm}$)	RISH
Aerosol scattering coefficient	Integrating Nephelometer	NIPR ^{c)}
	Miniature Black Carbon Monitor	RISH
Aerosol absorption coefficient	Radiance Research PSAP, Particle Soot/Absorption	NIPR ^{c)}
	Photometer	
Column aerosol properties	Skyradiometer	Toyama Univ.
Aerosol profile	Multi-wavelength Mie-Raman Lidar	RISH
	Micro pulse Lidar	NIPR ^{c)}
Spatial distributions of Water vapor and aerosol	Scanning Raman Lidar	RISH
Vertical/horizontal wind	Doppler SODAR	DPRI ^{d)}
Temperature, relative umidity, pressure	Radiosonde	RISH
Cloud image	All-sky camera	RISH

a) Graduate School of Energy Science, Kyoto University, b) Solar-Terrestrial Environment Laboratory, Nagoya University, c) National Institute of Polar Research, d) Disaster Prevention Research Institute, Kyoto University

ープや滑車用ロープに PFA チューブを添うように取り付け、上空の外気にアクセスできるようにした。すなわち、大気吸引口を 100m、50m、15m の三高度に取り付け、これに地上を加えた計四高度から連続的にサンプリングした外気を、地上の観測小屋に設置したドライポンプを用いて一定間隔のタイムシーケンスで取り込み、微量気体成分の分析計へ連続的に導入した。測定した気体成分は、 O_3 、 NO_x 、CO、 CO_2 、VOCs である（表 1）。VOCs は、植生由来物質で二次粒子生成にも関与する 2-メチル-1,3-ブタジエン（イソプレン）やモノテルペン、人為起源物質であるキシレンやアセトンなどを計測した。使用した測定機器の計測原理の説明は、誌面の制約上割愛する。AEROGAP-II キャンペーン中は、高純度窒素、高純度合成空気、各種の混合ガス (NO/N_2 、 CO/N_2 、selected VOCs/ N_2) を用いて定期的に装置の較正を行った。また、四高度ごとの PFA チューブの長さの差異が、チューブ内での化学成分の変質に与える影響についても、標準ガス試料を用いて定量的に評価した。その結果、6 種の VOCs（メタノール、アセトアルデヒド、アセトン、イソプレン、トルエン、p-キシレン）のチューブによる損失は、読み値の 3% 以下であることが分かった。また、チューブごとの差異は、読み値の 5% 以内であった。一方、ドライポンプの影響を調べるため、標準ガスをドライポンプ経由で PTR-MS へ供給した場合と、ドライポンプを経由せずに供給した場合とで、測定値の比較を行った（表 2）。メタノールとアセトンについては、ポンプ内部からの揮発が原因と推測される過大評価が見受けられたが、それ以外の気体に関しては、計測誤差範囲内で深刻な干渉は認められなかった。なお、メタノールとアセトンについては、野外大気の測定値に一定の補正を行った。

一方、エアロゾル計測には、粒径別の粒子数濃度、黒色純炭素濃度、粒子の光散乱・吸収特性、および気柱積算のエアロゾル特性を連続的に観測できる装置を用いた（表 1）。とりわけ、AEROGAP-I で発見したナノ粒子濃度の鉛直不均一性を精密に探査するために、AEROGAP-II では、ナノ粒子の粒径分布を計測する異なる原理の機器を二台、ナノ粒子の総粒子数濃度を計測する機器を計三台用いた。係留気球下部および鉄塔には、粒径 10 nm の以上の粒子数濃度と粒径 0.3–5 μm の粒径分布を計測するエアロゾル観測機器と、気温・湿度の測定器を積み込んだ発泡スチロー

表 2 ドライポンプが PTR-MS（陽子移動反応質量分析計）による VOCs の定量分析に与える影響を調べた結果

分子	信号強度比 ¹
CH_3OH	1.28 ± 0.28
CH_3CHO	1.04 ± 0.17
$(CH_3)_2CO$	1.19 ± 0.12
isoprene	1.00 ± 0.03
toluene	1.00 ± 0.03
p-xylene	1.02 ± 0.03

1) ポンプを経由したときの測定値 / ポンプを経由しないときの測定値

ルを取り付けた。地上の観測小屋には、粒径分布計測装置やエアロゾル光学特性を計測する機器を設置した。また、微量物質の変質過程や大気熱力学過程の理解に欠かせない温湿度の情報を、定量的に計測するための改良も行った。AEROGAP-I では、温湿度計のシールドが完全でなかったため、日中、特に係留気球の影から外れて直接太陽光が計測機器にあたってしまう太陽高度が比較的低い時間帯において、正しい計測値が得られないという課題があった。そこで、AEROGAP-II では、図 3(上)に示す簡易型の通風シールドを独自に製作して観測に適用した。一般的に使用されている通風シールドは、金属でできているため重量制限がある係留気球計測に用いることは難しい。本研究で作成した通風温湿度計は、可搬型の扇風機と発砲スチロールを組み合わせた、バッテリー込の重量が 350g 以下で 8 時間以上の連続運転が可能なものである。四高度の気温の計測例を図 3(下)に示す。日射の影響を受けた際にみられるスパイク状のノイズは見られず、昼夜を通して安定して計測が出来ていることが分かる。

AEROGAP-II では複数のリモートセンシング機器も使用した。具体的には、風を計測するドップラーソーダー、エアロゾル特性の気柱積算量を計測するスカイラジオメータ、およびエアロゾルと水蒸気のプロファイルを計測するライダーである (表 1)。AEROGAP-I からの大きな変更点としては、ライダーに走査機能を付加したことである。ライダーは、レーザーと望遠鏡の視野重なりが近傍では 100%にならないという問題点があり、ライダー設置場所から 100 m 以下の距離では、定量的な取り扱いが難しかった

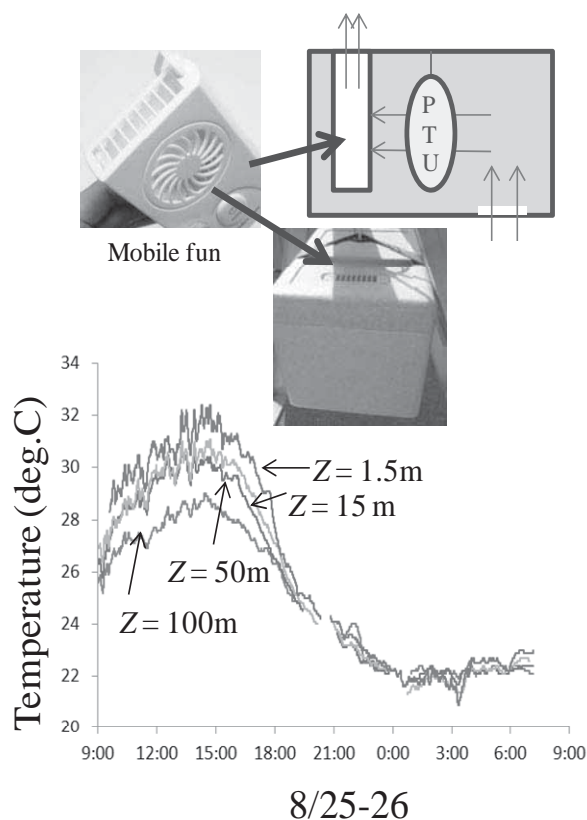
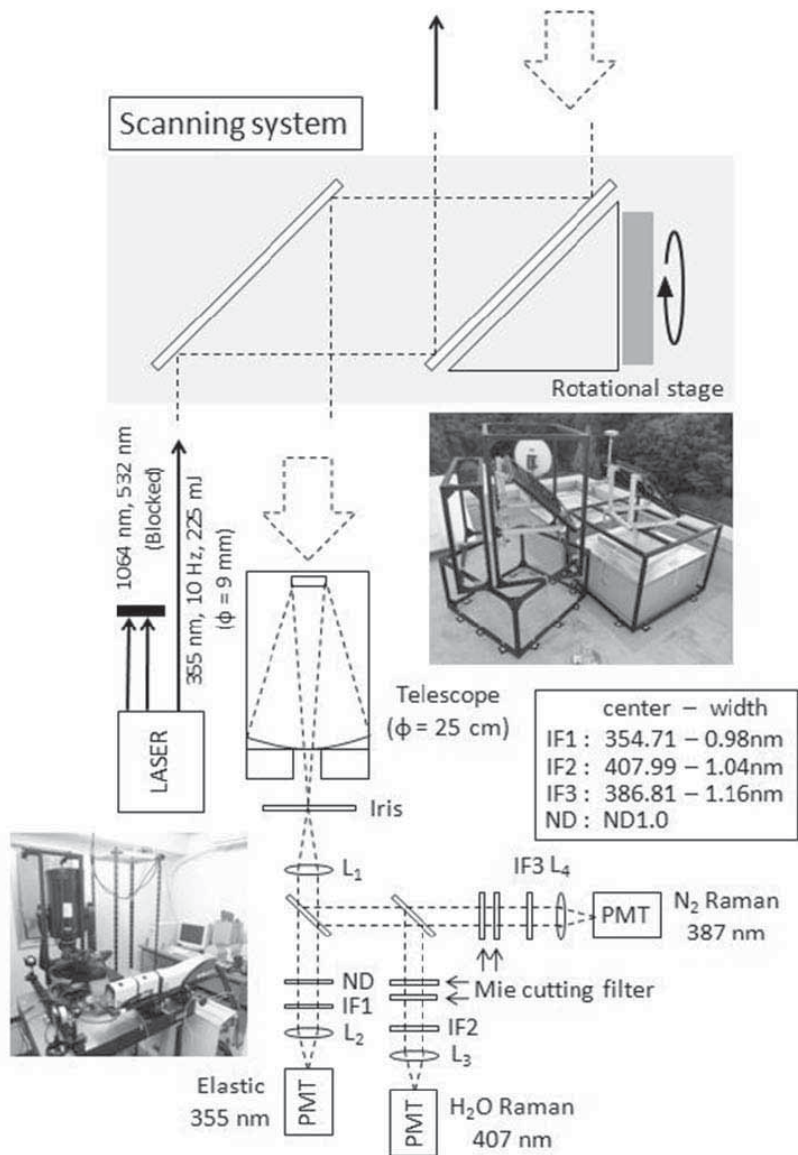


図 3 : (上) 簡易通風温湿度計の様子。(下) 4 高度で取得された気温の日変化 (2013 年 8 月 25 日 9:00 ~ 26 日 9:00 JST)。日射による影響を受けずに、昼夜を通して安定して計測できていることが分かる。

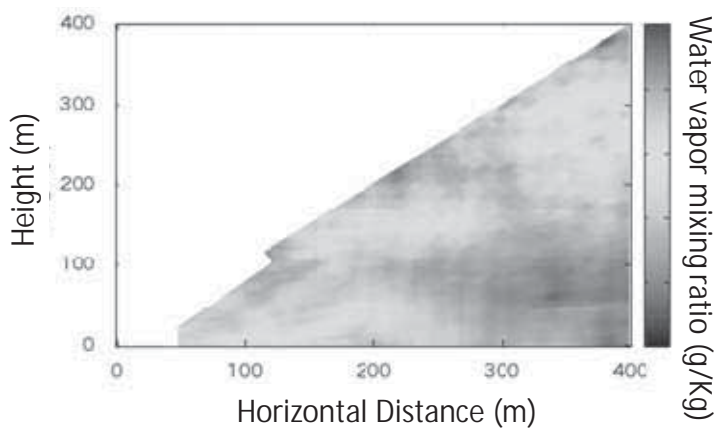
た。本研究では、ライダー観測視野の方向を鉛直走査させて、鉛直断面観測が行えるライダーシステムを開発した。走査計測を行うことで、目的とする観測点から 100 m 以上離れた場所にライダーを設置すれば、地上からの連続した鉛直分布の情報を得ることが可能である。図 4(a)に開発した走査型ラマンライダーの概要を示す。基となっているのは、2011 年度に開発した水蒸気とエアロゾルを計測するラマンライダーであり、鉛直計測については精度評価も既に実施されている。また、このライダーで用いている紫外レーザーは、眼障害に対する安全性が高く、レーザー射出点から約 130 m 以上離れた所ではアイセーフ性が確保される。そのため、水平方向を含む走査計測へも応用しやすい。走査観測をするためのシステムは、ライダーが設置されている信楽 MU 観測所の 3 階に天窗を設けて、その屋上部分に取りつけた。走査機構は、ライダーのレーザー射出・望遠鏡視野面に設けた高反射ミラーと、ミラーの角度を自動で制御する回転モーターにより構成される。回転モーターを自動制御することにより、最大 $1.8^\circ/\text{s}$ の走査速度で任意の角度範囲を鉛直走査することができる。図 4(b)に、走査ライダーから得られた水蒸気混合比の鉛直断面図の一例を示す。係留気球観測は、図中の水平距離約 150 m の地点で行われており、直接観測から得られる計測値と比較可能なデータが提供可能であることが分かる。加えて、1 点のみの計測では理解することが難しかった、水平方向の物質分布についても合わせて得られることから、本研究の目指す大気微量物質の空間立体的な可視化という観点からも有効な手法である。

5.1.2 AEROGAP-II の初期解析結果

AEROGAP-II キャンペーンの初期解析結果の一例として、図 5 に 2012 年 8 月 21 日 13:58 に、地上で観測された VOCs の質量スペクトルを示す。PTR-MS は、 H_3O^+ をイオン源とした化学イオン化法を用いている。 H_3O^+ イオンと衝突した VOCs はプロトン付加イオン $\text{VOC} \cdot \text{H}^+$ を生成する。 $\text{VOC} \cdot \text{H}^+$ は四重極質量分析計で測定される。Proton affinity が H_2O よりも大きな分子しか検出できないため、アルカンなどは検出できないが、大気質変動で重要な役割を果たす生物起源の揮発性有機物 (Biogenic VOCs; BVOCs) や多環芳香族などを多成分同時計測することが可能である。図 5 に見られる BVOCs としては、 m/z 69 (イソプレン) や 131 (モノテルペン) がある。また、イソプレンやモノテルペンの OH ラジカル反応やオゾン反応生成物の一つである ⁵⁾ 71 (メタクロレイン/メチルビニルケトン) が検出されている。厳密には、プロトン移動反応はフラグメントイオンフリーではないため、 m/z 69 にはイソプレン以外のシグナルが干渉している可能性は否定されない ⁶⁾。しかしながら、信楽サイトでは日の出とともに m/z 69 のシグナルが鋭敏に立ち上がり、日中に最大 8 ppb 程度に達し、日没後数時間でまたシグナルが微弱となったことや、上空よりも地表近傍ほど指数関数的に高濃度となる鉛直分布が観測されたことから、サイトに自生するコナラからのイソプレン放出が、 m/z 69 シグナルの主要な構成源であったことが伺える。他方、図 5 では m/z 59 (アセトン)、71 (ベン



(a)



(b)

図 4 : (a) 走査型ラマンライダーの概要。(b) 走査型ラマンライダーで取得された水蒸気混合比の鉛直断面構造 (2012年8月28日 22:17 JST)

と

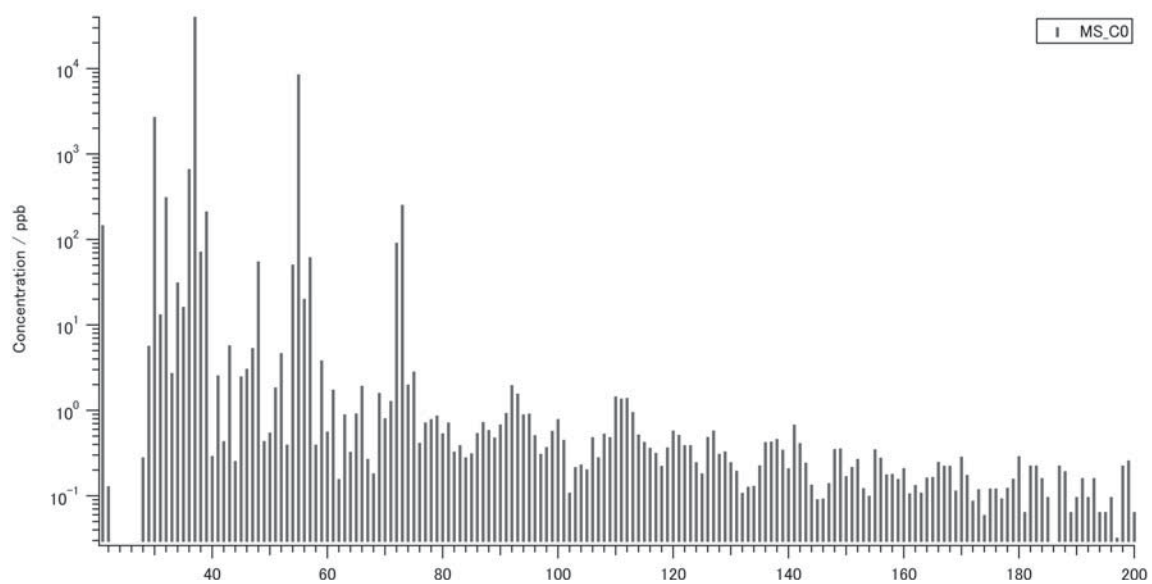


図 5：2012 年 8 月 21 日 13：58（JST）に地上で測定したプロトン移動反応質量スペクトルの例。横軸は質量電荷比(m/z)、縦軸は濃度(ppb 単位)を表す。m/z 37 と 55 はイオン化剤として用いている H_3O^+ のクラスターイオンによるピーク。

ゼン)、93 (トルエン)、107 (o-, m-, p-キシレン) といった人為起源物質も検出されていることが分かる。これらの濃度は、例えば八王子市で夏季に測定された文献値⁷⁾と比較すると、数分の 1 以下であることが分かった。また、イソプレン濃度は信楽サイトの方が最大一桁高いことから、図 5 を測定した 8 月 21 日の日中は、都市部からの人為汚染気塊の流入が抑えられ、森林域由来の空気塊で囲まれていたことが推測される。現在、より詳細な測定データ分析を行うとともに、後方流跡線解析を用いた気象場との比較検討も試みている。

図 6 に (a) 8 月 22 日、(b) 8 月 24 日、(c) 8 月 29 日に観測された地上と上空 100 m のナノ粒子数濃度を示す。AEROGAP-II の目的の一つであった、地表と高度約 100 m のナノ粒子数濃度に大きな違いが生じる現象は、8 月 24 日の 11 時～14 時と 8 月 29 日の 9 時～12 時に観測された。AEROGAP-I で計測されたケースでは、15 時～17 時と必ずしも現象が起こる時間は一致していない。また、8 月 22 日のように地表と上空で明確な違いが生じない場合もある。ナノ粒子の大部分を占めるガスから変換された二次粒子は、オゾンや VOC が重要な働きをする大気化学過程により生成される。一方、二次粒子の生成を妨げるものとしてより大きなサブミクロン粒子へのナノ粒子の取り込みなどが挙げられる。つまり、二次粒子の前駆物質の濃度に加えて、サブミクロン粒子濃度や、更にそれらの時空間変動を決める大気輸送・拡散過程が、ナノ粒子増加率の高度依存性を決めていると考えられる。実際、午前中からナノ粒子の増大が見られた

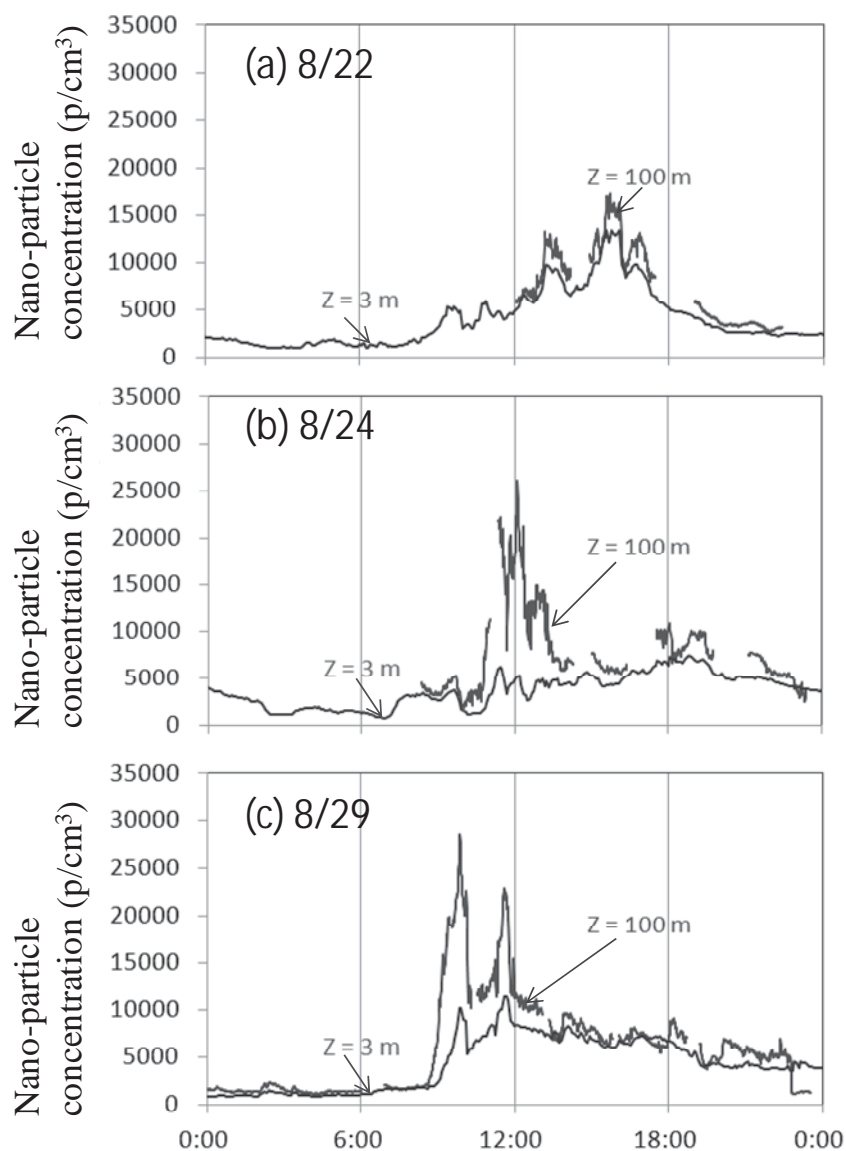


図6:地上と高度100 mのナノ粒子数濃度の時間変化:(a)2012年8月22日、(b)8月24日、(c)8月29日。時刻はJST。

ROGAP-II と午後から現象が起こった AEROGAP-I では、サブミクロン粒子の濃度に二倍以上の違いがあったことが計測より明らかになっている。二年間のキャンペーン観測で類似した現象が得られたことから、接地境界層上部におけるナノ粒子の大幅な増加現象は、特異なものではなく、定常的に大気中で起きている可能性を示唆しており、現在さらに詳細なデータ解析を進めている。

5.2 木質住環境における空気質の特性評価実験

屋外で生成される光化学オキシダントやエアロゾル粒子は、窓の開閉や人の出入りに伴って、居住環境内にも流入しうる。他方、居住圏内においても、VOCs の発生や二

次有機エアロゾル生成に伴う、野外とは異なる空気質環境が存在する。我々は、“木質住環境と健康”課題と連携し、木質住環境を対象とした indoor air quality に関する共同実験を実施した。実験は、生存圏研究所レンタルラボラトリー内に設置した、スギ集材パネルを配置した部屋を利用した（同時に、スギ材のない部屋をコントロールデータの取得に用いた）。実験では、AEROGAP-I および AEROGAP-II で開発したマルチバルブシステムを適用するとともに、ナノ粒子の成長過程を実時間で追尾するための走査式モビリティパーティクルサイザー ($d = 15\text{-}300 \text{ nm}$) による測定を行った。

VOC 測定関連の成果については、“木質住環境と健康”課題の報告書を参照されたい。一方、エアロゾルから診た木質住環境は、酸化材 (OH ラジカル、 O_3) の流入に起因すると考えられる、ナノ粒子生成現象が観測された。これは、窓の開閉に伴って流入する酸化剤と、室内に蓄積されているセスキテルペンやモノテルペンとが多段階酸化反応を起こし、二次有機エアロゾルを生成したためであると考えられる。この結果は、物理化学や大気化学の研究分野でよく用いられるスモッグチャンバー実験で見出される結果と対応している⁸⁾。ナノ粒子の数密度が屋外よりも一桁以上高くなる時間帯もあり、気密性の高い居住空間内における VOC の多段階酸化反応の理解の必要性が明らかとなった。

6. 今後の展開

2012年8月のAEROGAP-II観測キャンペーンでは、PFAチューブの軽量化を図ることで、AEROGAP-Iキャンペーンよりも、複数のポータブル計測器を上空へと持ち上げることができたが、以前として実質的な浮力には上限があり、係留気球の飛揚高度（すなわちガスサンプリングとエアロゾル計測の高度）をより上空へ設置することは難しかった。今後も、安全を優先させつつ、より高高度での観測を行う工夫を検討したい。また、観測サイトの空間的な展開として、信楽サイトとは地上環境が異なる地域に観測対象を広げることも検討している。信楽サイトには、イソプレンの強力なエミッターであるコナラや、 α -ピネンなどのモノテルペンのエミッターであるマツなどが混在している。先行研究から、イソペンやモノテルペンの酸化反応よりも、セスキテルペン(SQT)の酸化反応のほうが、エアロゾル負荷としては大きいという指摘がある⁹⁾。これは、SQTの分子量がイソペンやモノテルペンのそれよりも大きく、分子構造が複雑であるためである。ゆえに、植生の異なる森林環境での観測実験を検討中である。

また、リモートセンシング技術を深化させた更なる活用法を検討している。現在は、ドップラーソナーにより風を、ライダーによりエアロゾルと水蒸気量の空間分布情報を得ているが、さらに、気象要素の重要なパラメータである気温の情報も同時に計測できるライダー手法の構築を検討している。ライダーから気温を計測するためには、気温により散乱特性が変化する回転ラマン散乱光を抽出する必要がある。しかしながら、これまでに開発されてきた気温ライダーは、特殊な光学性能が要求させる複数の

光学素子に加えて、波長安定精度の高いレーザーが必要となるため、高コストで大型のシステムになりがちであった。本課題では、地上環境が異なる地域に観測対象を広げる際にも適用できる可搬性の高いシステムを指向した、最先端の多波長分光検出器を活用した小型の気温ライダーシステムの開発を進めたいと考えている。気温と水蒸気量が同時に計測することで、大気微量物質の変質過程に対する湿度依存性や、物質の輸送や拡散に寄与する大気熱力学過程の考察に有効となることが期待される。

さらに、人間生活圏を直接取り巻く大気質を理解するうえで欠かせない都市域において、観測サイトを設けることができるかどうかを検討している。第1章でも述べたように、人口の集中する都市域での環境基準の達成は、健康影響の観点からとりわけ重要であるが、ナノ粒子の生成過程や、オキシダントやPM2.5濃度を支配する要因については未知の部分が多い。また、中国からのPM2.5の移流過程を詳しく調べる重要性について、環境省が強調したことが最近の新聞等でも報じられており、人間生活圏を取り巻く大気質変動の理解は喫緊の課題である。

本プロジェクトでは、京都府宇治市における大気質変動の予備調査を2012年7月末

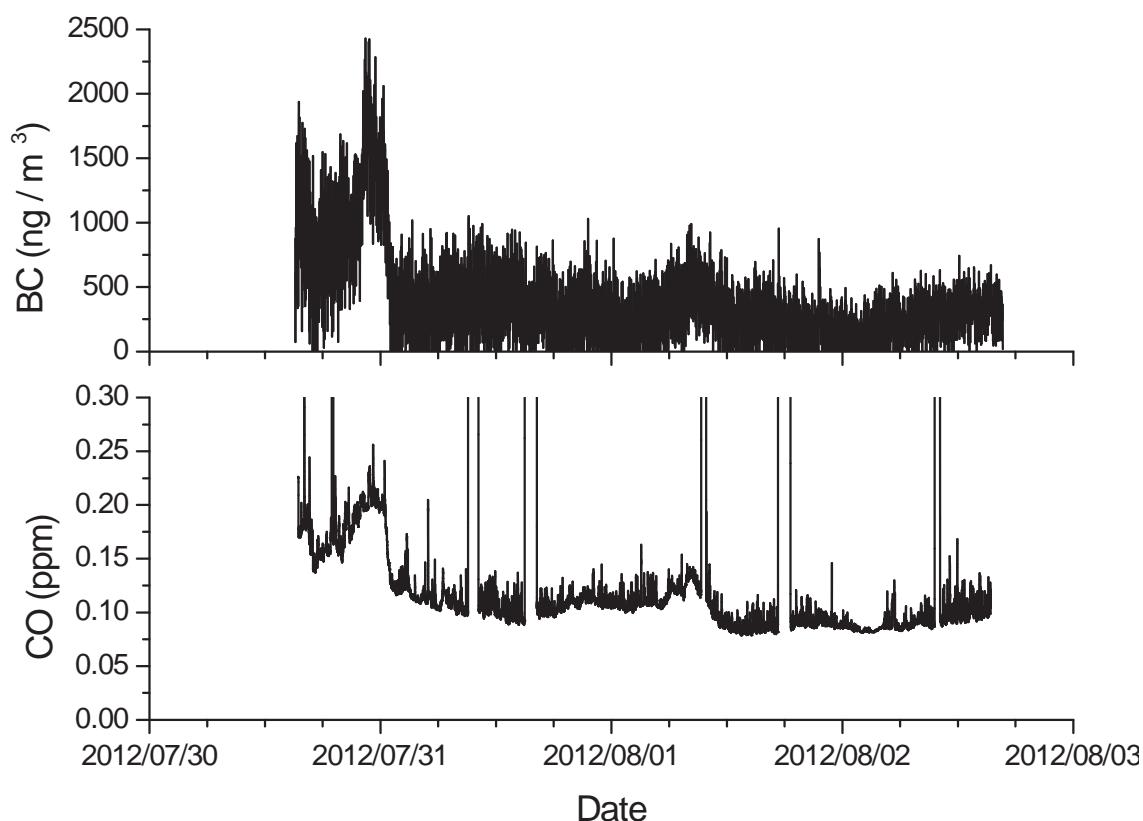


図7：京都府宇治市内（京大宇治キャンパス）で観測したブラックカーボンの重量濃度（上）と一酸化炭素(CO)濃度（下）との比較プロット。CO濃度が0.30ppmを超過している時間帯は、標準ガスによるキャリブレーションのため。

に実施した。その結果の一部を、図 7 に示す。図 7 は、ブラックカーボン(BC)粒子の重量濃度と、CO の時間変化をプロットしたものである。BC 粒子および CO は、ともに自然起源由来の一次発生源が無く人為起源のみである。実際、両者の変動は非常に高い相関があることが見て取れる。7 月 30 日には BC 粒子の重量濃度、CO 濃度ともに大きな変動を示すが、7 月 31 日午前以降は、両者ともに相対的に低濃度を維持している。こうした変動特性は、接地境界層の動的な挙動や、総観規模での気象場の影響が関係していると考えられる。こうした予備調査を踏まえて、今後のサイトの展開について検討している。

さらに、本稿では詳しくは記載しなかったが、2012 年度は、本新領域課題のプロジェクトの一つである“木質住環境と健康”課題との共同実験を実施した。とりわけ、スギ材を用いた木質住環境内では、スギ材から放出される SQT の高いフラックスによって、屋外の個数濃度を上回る量のナノ粒子が、屋内に滞留している事実が判明した。屋外からのエアロゾル粒子や光化学オキシダントの流入と併せて、居住環境に独特な空気質の変動の理解の必要性が示唆された。居住環境における空気質環境のより詳細なアセスメントも進めていきたいと考えている。

7. 謝辞

観測の実施にあたりご配慮を賜りました京都大学・生存圏研究所の橋口浩之先生と古本淳一先生に感謝申し上げます。エアロゾル計測機器の一部は、国立極地研究所・塩原匡貴先生ならびに京都大学大学院エネルギー科学研究科・東野達先生より拝借致しました。京都大学大学院エネルギー科学研究科・博士研究員の奥村智憲さんには、エアロゾル計測装置の運用ならびにブラックカーボン計の校正実験でお世話になりました。ライダー計測や走査機構の開発は、京都大学・生存圏研究所の松田真さんにご尽力頂きました。ラジオゾンデ計測では、京都大学・生存圏研究所のリュウギョウドウさんにご助力頂きました。さらに、観測補助作業に参加して下さった、京大の杉本純也さん(修士 2 回生)、堀田耕平さん(修士 2 回生)、坪井彩さん(修士 2 回生)、藤原央典さん(学部 2 回生)、荒居直道さん(学部 4 回生)、三宅裕也さん(学部 1 回生)、山形優太朗さん(学部 2 回生)にお礼申し上げます。

8. 引用文献

- 18) IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change): *Climate Change 2007: The Physical Science Basis, Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, Solomon, S., Qin, D., Manning, M., Chen, Z., Marquis, M., Averyt, K.B., Tignor M., and Miller, H.L., eds., p. 996, Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 2007.
- 19) Seinfeld, J. H., and S. N. Pandis, *Atmospheric chemistry and physics*, Wiley Interscience, New York, 1998.

- 20) 環境省、平成21年度大気汚染状況について、2010.
http://www.env.go.jp/air/osen/jokyo_h21/full.pdf
- 21) 環境省、光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会報告書、2007.
http://www.env.go.jp/air/osen/pc_oxidant/conf/ir/full.pdf
- 22) Surratt, J. D., Chan, A. W. H., Eddingsaas, N. C., Chan, M.-N., Loza, C. L., Kwan, A. J., Hersey, S. P., Flagan, R. C., Wennberg, P. O. and Seinfeld, J. H., Reactive intermediates revealed in secondary organic aerosol formation from isoprene, *PNAS*, **107**, 6640, 2010.
- 23) Blake, R. S., Monks, P. S., Ellis, A. M., Proton-transfer reaction mass spectrometry, *Chem. Rev.*, **109**, 861, 2009.
- 24) Kato, S., Miyakawa, Y., Kaneko, T., and Kajii, Y., Urban air measurements using PTR-MS in Tokyo area and comparison with GC-FID measurements, *Int. J. Mass. Spectrometry*, **235**, 103, 2004.
- 25) Langer, S., Moldanová, J., Arrhenius, K., Ljungström, Ekberg, L., Ultrafine particles produced by ozone/limonene reactions in indoor air under low/closed ventilation conditions, *Atmos. Environ.*, **42**, 4149, 2008.
- 26) Bonn, B. and Moortgat, G. K., Sesquiterpene ozonolysis: Origin of atmospheric new particle formation from biogenic hydrocarbons, *Geophys. Res. Lett.*, **30**, 1585, doi:10.1029/2003GL017000, 2003.

9. 付記

- 1) 高橋けんし、矢吹正教、宮脇力、松田真、津田敏隆、中山智喜、青木一真、林泰一、塩原匡貴、「係留気球を用いて接地層における微量成分の鉛直分布特性をトレースする試み」、日本地球惑星連合大会 2012、2012年5月20-25日、幕張メッセ国際会議場、AAS21-P05.
- 2) 松田真、矢吹正教、高橋けんし、青木一真、宮脇力、林泰一、津田敏隆、「信楽における下部対流圏エアロゾルの動態観測」、日本気象学会春季大会 2012、2012年5月26-29日、つくば国際会議場、P228.
- 3) 矢吹正教、高橋けんし、宮脇力、松田真、津田敏隆、中山智喜、青木一真、林泰一、塩原匡貴、「接地境界層におけるエアロゾル・微量気体の鉛直観測」、日本気象学会春季大会 2012、2012年5月26-29日、つくば国際会議場、P322.
- 4) 松田真、矢吹正教、高橋けんし、津田敏隆、「ラマンライダーを用いた地表面に近い大気の水蒸気鉛直断面構造の連続観測」、第18回大気化学討論会、2012年11月6-8日、福岡県朝倉市、A-1-3.

電磁場の生体影響

ー 共鳴送電下における生体影響評価のためのばく露装置の開発ならびに免疫細胞における高周波電波ばく露の影響評価研究ー

1. 研究組織

代表者氏名：宮越 順二（京都大学・生存圏研究所）

共同研究者：水野 公平（京都大学・生存圏研究所）

成田 英二郎（京都大学・生存圏研究所）

三谷 友彦（京都大学・生存圏研究所）

篠原 真毅（京都大学・生存圏研究所）

鈴木 敬久（首都大学東京・理工学研究科）

多氣 昌生（首都大学東京・理工学研究科）

2. 関連領域

新領域研究：電磁場の生体影響

3. 共鳴送電下における生体影響評価のためのばく露装置の開発

3-1. 研究概要

現代社会は、生活環境で目には見えない電磁波があふれている。身の回りの電磁波の発生源としては、高圧送電線、家電製品、携帯電話とその基地局、医療の電磁波機器などがある。このような電磁波の健康影響の可能性についてはこれまでから人々の関心事であり、そのため、多くの研究が実施されてきた。

近年、新しい無線電力伝送技術として、電磁共鳴方式が注目を集めている。この方式では、従来から実用化されている電磁誘導方式と異なり、送電側と受電側のコイルの共振周波数を一致させることで、数メートルの距離を高効率で伝送することが可能であり、早期の実用化が期待されている。しかしながら、共鳴送電下における生体影響の可能性について実験的に評価した例はない。

本研究では、共鳴送電下における生体影響評価を細胞実験により実施するために必要となる細胞実験用ばく露装置の開発に取り組んだ。開発したばく露装置は、12.6MHzの共振周波数において72.4%の伝送効率を有するとともに、細胞ばく露位置において、国際非電離放射線防護委員会（ICNIRP）の定めるガイドラインで示される磁界強度80A/mを実現している。また、細胞培養に必要な温度、湿度、二酸化炭素濃度等の条件を有していることを、実際の細胞培養により実験的に確認した。

今後は開発したばく露装置を用いて、共鳴送電下において細胞の基本動態や遺伝毒性を指標とした評価を実施することにより、共鳴送電下における生体影響の可能性を明らかにしていく。

3-2. 研究の背景と目的

近年、新しい無線電力伝送技術として、電磁共鳴方式が注目を集めている。この方式では、従来から実用化されている電磁誘導方式と異なり、送電側と受電側のコイルの共振周波数を一致させることで、数メートルの距離を高効率で伝送することが可能⁽¹⁾であり、早期の実用化に向けて多くの研究が進められている⁽²⁻⁴⁾。しかしながら、この共鳴送電下における生体影響の可能性について実験的に評価した研究はない。

本研究では、共鳴送電下における生体影響の可能性を細胞実験により評価するため、必要となるばく露装置の開発に取り組んだ。

3-3. 研究の結果および考察

3-3-1. ばく露装置

ばく露装置の構成を図 1 に示す。CO₂ インキュベータの中に構築した送受電用コイル類、高周波電源、温度計、適切な細胞培養温度を維持するための温度コントローラ、受電電力の負荷として用いる電球により構成されている。高周波電源（サムウエイ）は AC100V 単相、50/60 Hz、定格 1.3kVA で動作し、出力する高周波電力は最大 200 ワット、発信周波数は 8MHz から 15MHz まで可変が可能である。

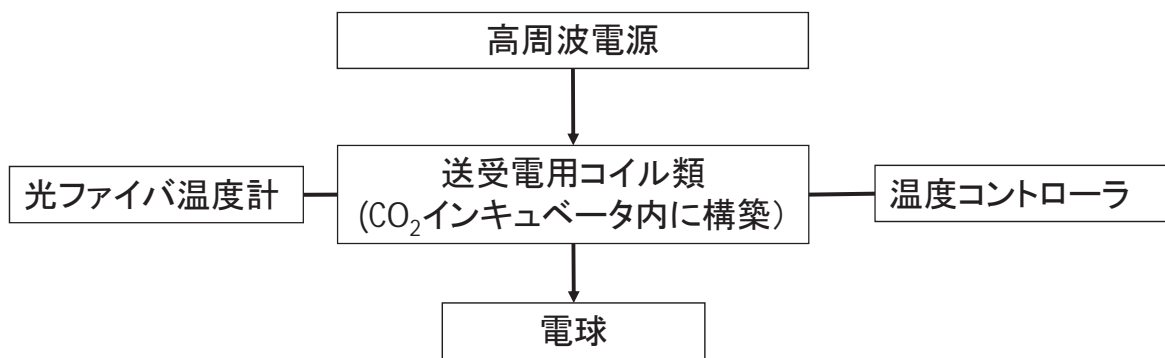


図 1 共鳴送電細胞ばく露装置の構成

細胞を培養するためには、例えば 37℃の温度、二酸化炭素 5%濃度、飽和湿度等を確保する必要があり、そのために CO₂ インキュベータが用いられるが、これらのサイズは一般に大きくはない。本研究において使用した CO₂ インキュベータの内部寸法も 480 mm×480 mm×585 mmと非常に限られており、その限られたスペースの中で送受電用コイル類を構築する必要があった。実際に CO₂ インキュベータの内部に構築したコイル類の外観を図 2 に示す。

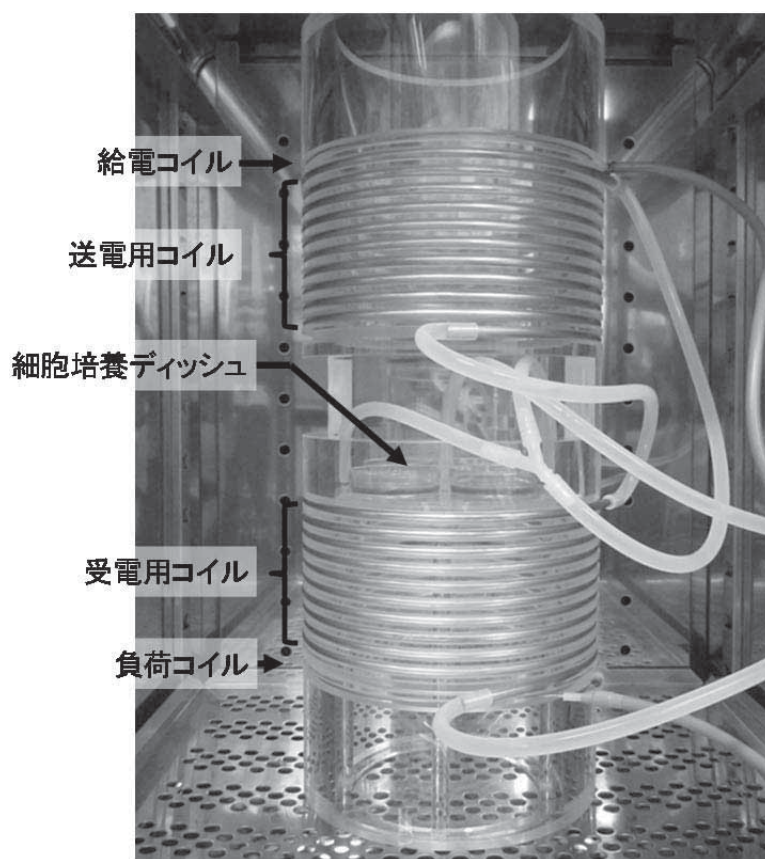


図2 CO₂インキュベータ内に構築した送受電コイル類

送受電用コイルは、ヘリカルコイル型を採用しており、そのコイルの材料には、外径6mm、内径4.2mmの銅パイプを用いた。これは、コイルの発熱を抑制するためにパイプ内に冷却水を流すためである。送受電用コイルの直径は200mm、コイル巻き数は10巻、コイル巻線間隔は10mm、送受電用コイルの間隔は100mmである。高周波電源および受電電力の負荷として用いる電球に接続される給電コイルおよび負荷コイルは、直径1.4mmの銅線で制作されており、その直径は200mmである。コイルの架台にはアクリル製の架台を用い、それにコイル用の溝を掘ってコイルを固定している。

3-3-2. 共鳴送電特性

3-3-2.1 伝送効率

共鳴送電の伝送効率は、実際にパワーセンサー (Agilent Model N8481B) により測定を行うとともに、数値解析を用いて検証を行っている。高周波電源の発信周波数を11MHzから15MHzまで可変させた時の伝送効率を図3に示す。周波数12.6MHzにおいて主ピークが確認されており伝送効率は72.4%であった。また、周波数13.9MHzにおいてもピークが確認されており伝送効率は53.0%であった。

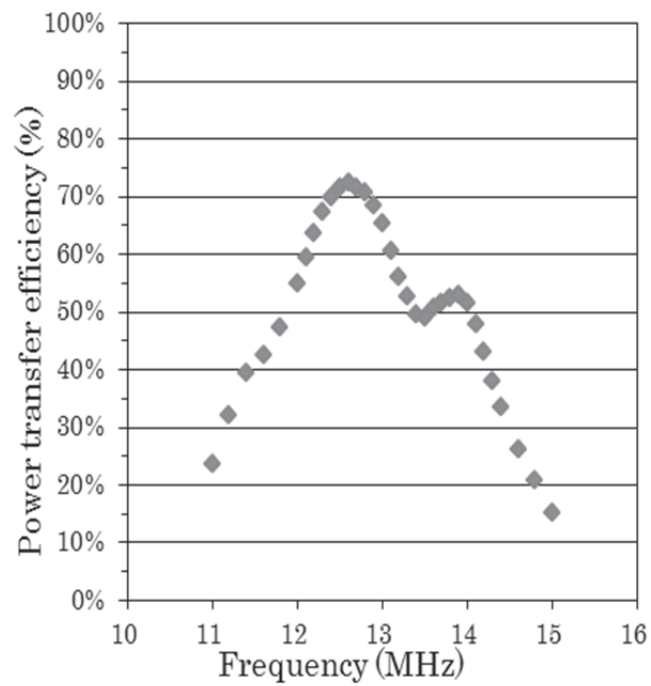


図3 パワーセンサーによる伝送効率実測値

伝送効率の数値解析には、Ansoft 社の有限要素法解析ソフト HFSS Ver13.0.2 を用いた。図4にコイル類の解析モデル概要を示す。

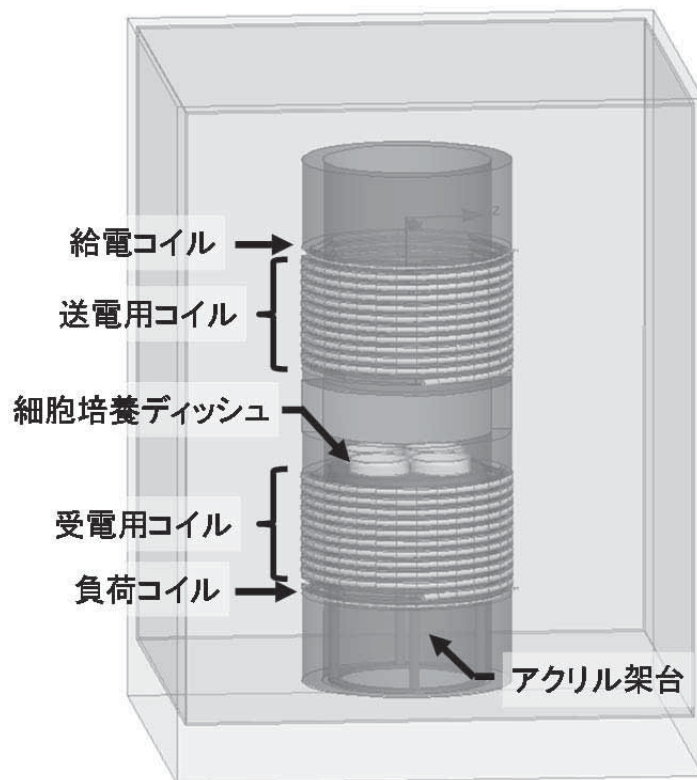


図4 構築したコイル類の解析モデル

解析モデルに用いた寸法等は実際に制作したコイル類と同じである。ただし、コイルの形状については、実際は円形であるものの、解析の簡略化のために32角形と模擬している。本解析モデルによる伝送効率解析結果を図5に示す。伝送効率はSパラメータを用いて $|S_{21}|^2$ により推定している。解析結果から、周波数12.6MHzと13.9MHzでピークが確認でき、それぞれの伝送効率は72.3%、50.9%と、実際の測定結果と良く一致した。

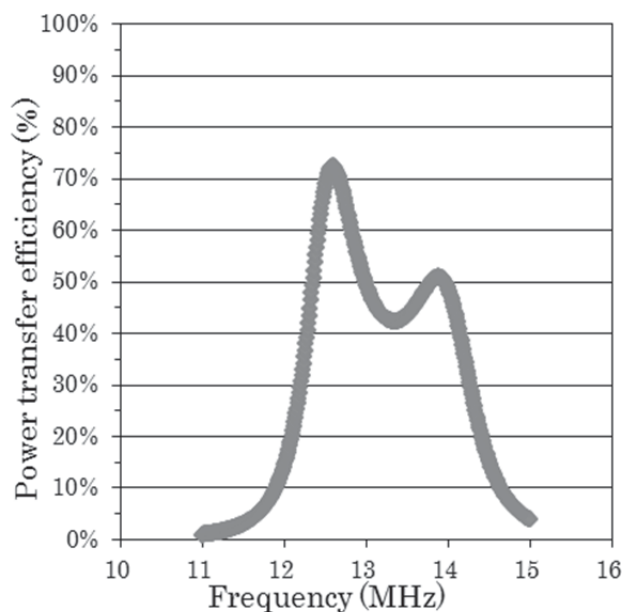


図5 HFSSによる伝送効率解析結果

3-3-2.2 磁界分布

電磁波による健康影響を防護するためのガイドラインとして、国際非電離放射線防護委員会 (ICNIRP) が定めるガイドライン⁽⁵⁾がある。そのガイドラインでは、10MHzの周波数において、職業ばく露ガイドライン値として磁界強度 80A/m が定められている。本研究では、細胞培養位置においてこの磁界強度を実現することとし、磁界測定器 (EHP-200A, Narda S. T. S) により細胞培養位置において磁界強度 82A/m を確認するとともに、共鳴送電下における磁界測定結果と有限要素法による解析結果が良く一致することが知られている⁽⁶⁾ことから、細胞培養位置における詳細な磁界分布を確認するため、前項において構築した HFSS 解析モデルを用いて磁界分布解析を行った。

図6に、送電電力 200 ワットにおける、共振周波数 12.6MHz および 13.9MHz の場合の磁界分布解析結果を示す。共振周波数 12.6MHz において磁界は送受電コイルの中央付近に密となるのに対し、共振周波数 13.9MHz の場合には逆に送受電用コイルの中央付近では疎となること示されている。また、共振周波数 12.6MHz において、細胞培養位置において磁界強度が 80A/m を超過することが確認できた。

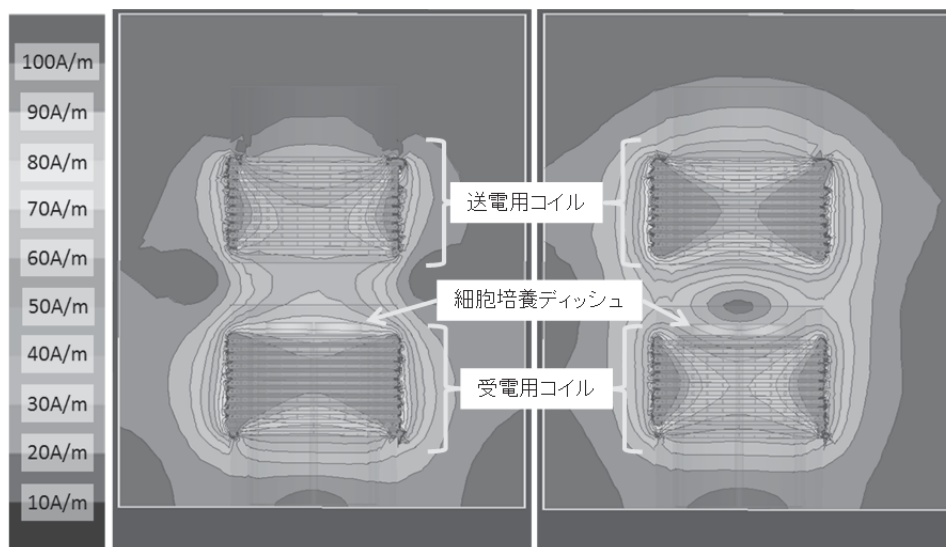


図6 磁界分布解析結果（左：共振周波数 12.6MHz、右共振周波数 13.9MHz）

次に共振周波数 12.6MHz における、細胞培養位置における水平磁界分布の解析を行った。その結果を図 7 に示す。細胞培養には 60mm ディッシュを用いており、それぞれのディッシュ位置における平均磁界強度は、

- ・位置 A : 83.0 A/m ± 2.0 A/m (±2.41 %)
- ・位置 B : 82.0 A/m ± 1.0 A/m (±1.22 %)
- ・位置 C : 86.0 A/m ± 3.0 A/m (±3.49 %)
- ・位置 D : 84.5 A/m ± 1.5 A/m (±1.78 %)

であった。我々がこれまでに開発したヘリカルコイルを用いた磁界ばく露装置では、磁界強度の均一性は±3%以内であった⁽⁷⁾。このため、本研究で開発するばく露装置においても、±3%以内の均一性を有する位置 A, B, D を細胞実験に使用することとした。

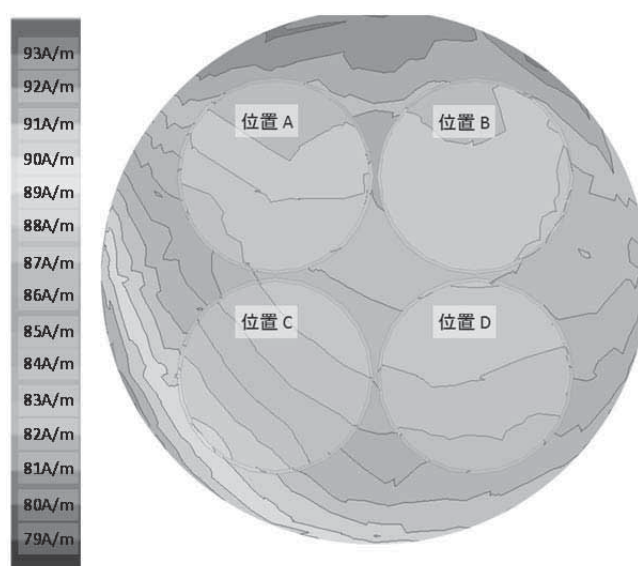


図7 共振周波数 12.6MHz、送電電力 200 ワットにおける水平磁界分布

3-3-2. ばく露装置の細胞培養特性

3-3-2.1 使用細胞

細胞実験を行うためには、ばく露装置は、細胞培養に必要な適切な条件（温度、湿度、二酸化炭素濃度等）を有する必要がある。開発したばく露装置がこれらの条件を満たしていることを確認するため、実際に細胞を用いて、送電電力0ワット（送電OFF）状態で細胞の増殖能および細胞周期特性を評価した。使用したWI38VA subclone 2RA 細胞（JCRB 細胞バンク）は、ヒトの肺由来の線維芽細胞で、10%のFBS（BioWest）を添加したイーグル最少必須培地（和光純薬）で、37°C、二酸化炭素 5%濃度、飽和湿度中で事前に培養した。

3-3-2.2 細胞増殖能評価

細胞増殖能力の評価は、 1×10^5 個の細胞を 60mm ディッシュに播種したサンプルを、開発したばく露装置と、比較に用いるため一般的なCO₂インキュベータにおいて、それぞれ24時間、72時間、96時間、168時間培養し、各時点における細胞の数を計測することにより行った。

図8に、独立3回の評価により得られた細胞増殖能カーブを示す。開発したばく露装置で培養したサンプルにおける増殖能カーブと、一般のCO₂インキュベータにおいて培養したサンプルにおける増殖能カーブは非常によく一致しており、この結果から、開発したばく露装置は細胞培養に対して適切な条件を満たしていることがわかる。

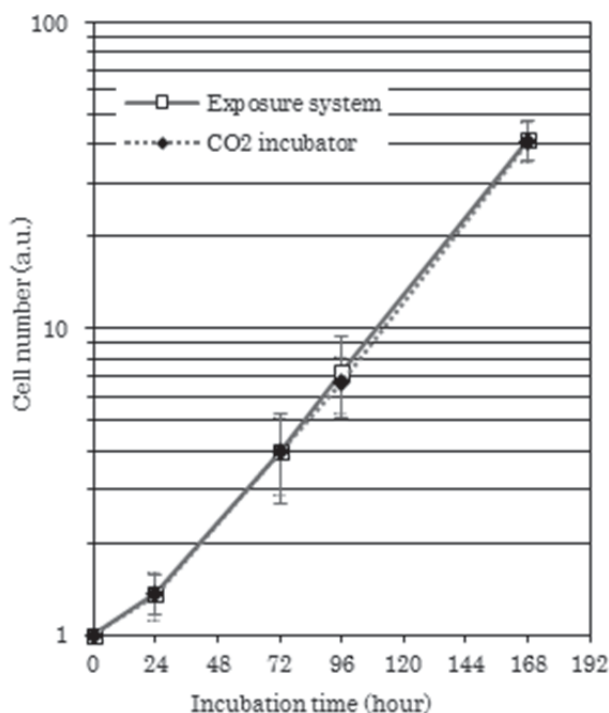


図8 ばく露装置およびCO₂インキュベータにおける細胞増殖能カーブ

3-3-2.3 細胞周期評価

細胞が増殖するにあたり、DNA 複製と細胞分裂が周期的に繰り返される。このような周期を細胞周期といい、一般に細胞が分裂する M 期、DNA が合成される S 期、ならびにこれらに介在する G₁ 期、G₂ 期からなり、G₀/G₁→S→G₂→M→G₁・・・のように進行する。このような細胞周期の評価を、前述の細胞増殖能と同様に、24 時間後、72 時間後、96 時間後、168 時間後で実施した。それぞれの評価時に適切な細胞量とするため、最初の細胞播種量は、2*10⁶ 個、1*10⁶ 個、5*10⁵ 個、1*10⁵ 個としている。

図 9 に、得られた細胞周期分布のヒストグラムの代表例を示す。左側にある大きなピークが G₀/G₁ 期を、右側のピークが G₂/M 期を示す。そして、その間が S 期を示しており、これらヒストグラムの形状を比較しても、開発したばく露装置において培養した細胞と、一般の CO₂ インキュベータで培養した細胞との間に差異が見られないことがわかる。また、独立 3 回の評価により得られた周期解析結果を図 10 に示す。この結果より、開発したばく露装置および CO₂ インキュベータで培養した細胞の細胞周期に差異は見られなかったことから、開発したばく露装置は細胞培養のために適切な条件を有していることがわかる。

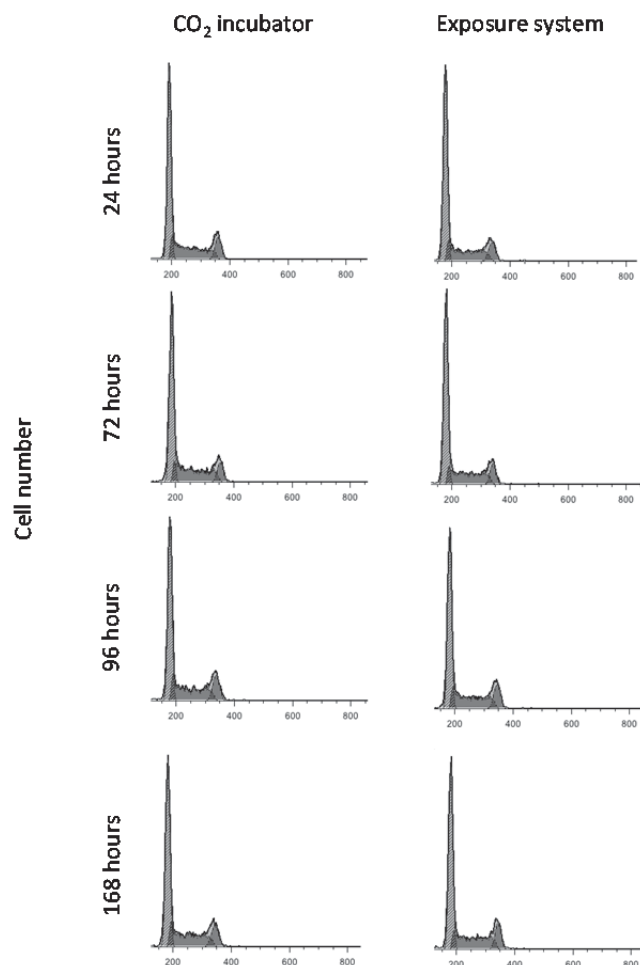


図 9 代表的な細胞周期分布のヒストグラム

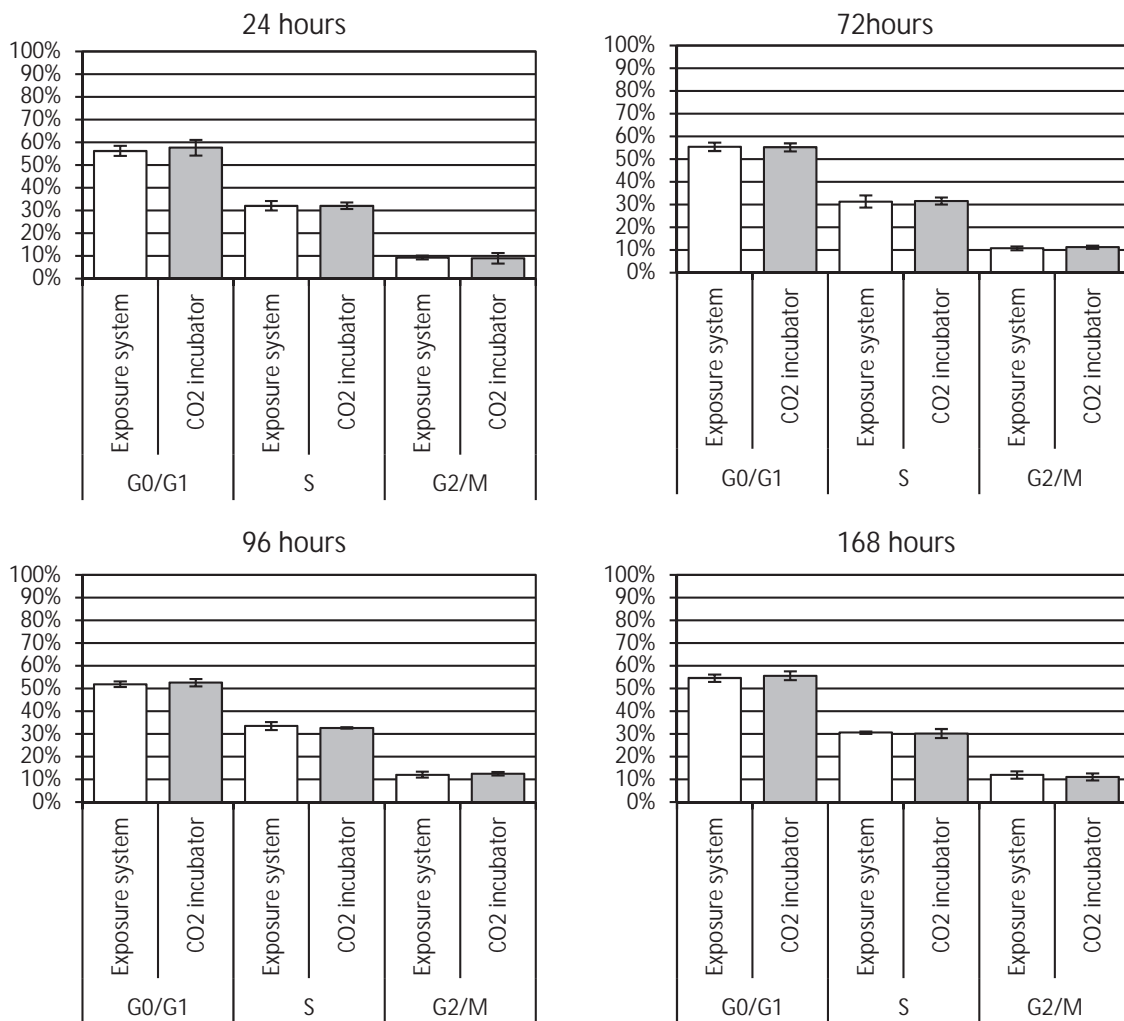


図 10 ばく露装置およびCO₂インキュベータにおける細胞周期評価結果

3-4. 今後の展開

本研究では、共振周波数 12.6MHz において 72.4%の伝送効率を有するとともに、細胞ばく露位置において、国際非電離放射線防護委員会 (ICNIRP) の定めるガイドラインで示される磁界強度 80A/m を満足するばく露装置の開発に取り組んだ。また、開発したばく露装置が細胞培養に適切な条件を有していることを、実際の細胞を用いて、細胞増殖能、細胞周期評価により確認した。

今後は開発したばく露装置を用いて、共鳴送電下において細胞の基本動態や遺伝毒性を指標とした評価を実施することにより、共鳴送電下における生体影響の可能性を明らかにしていく。

4. 免疫細胞における高周波電波ばく露の影響評価研究

4-1. 研究目的

生体の恒常性を保つために、我々の体には、生体内に侵入した異物を生体外にする、免疫と呼ばれる防御システムが存在する。この免疫力が低下すると、人は感染を引き起こしやすくなるなど、健康を保てなくなる。本研究では、周波数 2.45GHz のマイクロ波に対する細胞学的影響評価の一環として、1 ならびに 10W/kg の SAR で電波ばく露を行い、免疫細胞の基本的な機能であるサイトカイン分泌特性に対して ELISA 法を実施し、電波が細胞の免疫機能に影響を与えないかどうかについて検討する。

4-2. 細胞用高周波電波ばく露装置

本研究で用いた電波ばく露装置外観を図 11 に示す。
本装置は、安定した正常な培養環境（37℃、5%二酸化炭素、飽和湿度）を整え、高精度の電磁工学的検証（周波数 2.45GHz、ドシメトリ（細胞位置での正確な SAR 分布）、ペルチェ素子による温度安定機能の保証など）を完了している

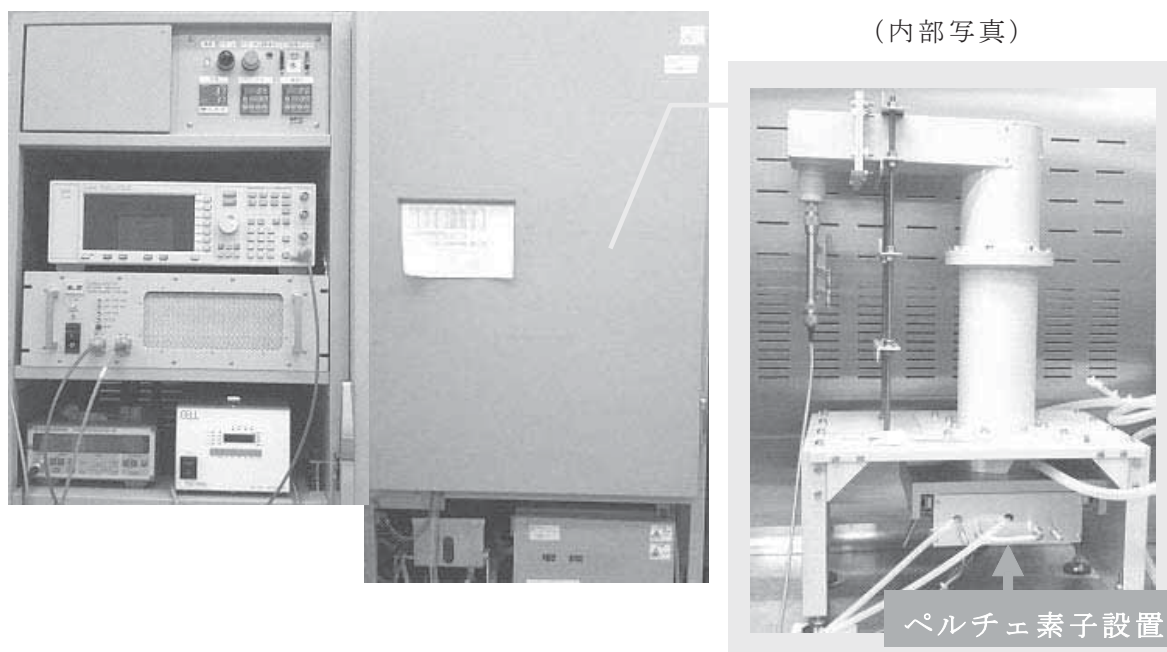


図 11 細胞用高周波電波ばく露装置

電波ばく露条件は以下の通りで行った。

- 周波数：2.45GHz
- ばく露処理条件：SAR 1、10W/kg
- ばく露時間：4時間

4-3. 使用細胞および培養条件

下記に示す通り、2種類の白血球由来細胞をサイトカイン分泌に関する免疫機能評価試験に用いた。それぞれの細胞の培養時写真（図 12, 13）と培養条件を示す。

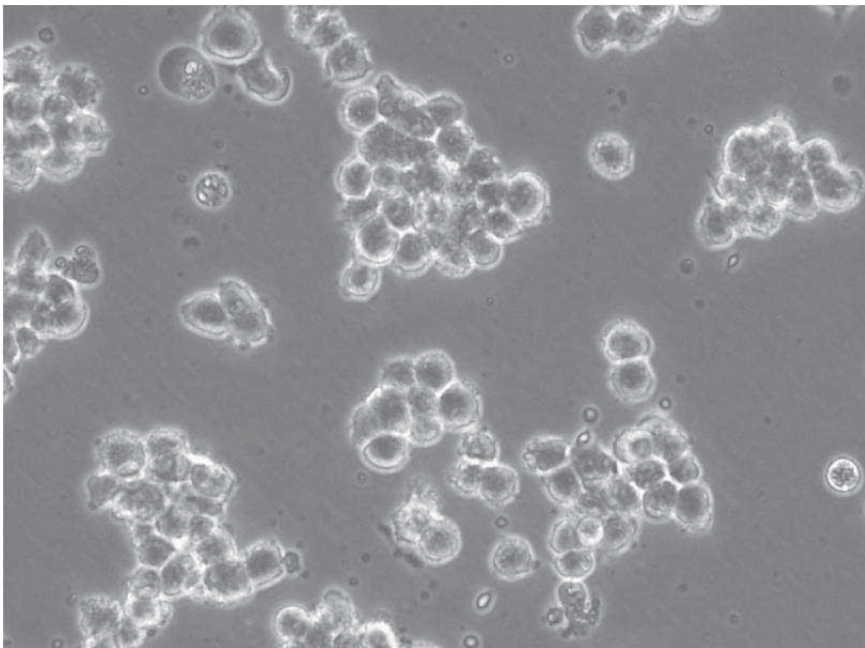


図 12 U937 細胞

- 細胞：U937（ヒトリンパ腫由来単芽球様細胞）（図 12）
- 培養液：RPMI1640 培地（10%牛胎児血清）
- 培養条件：37℃、5%二酸化炭素、飽和湿度

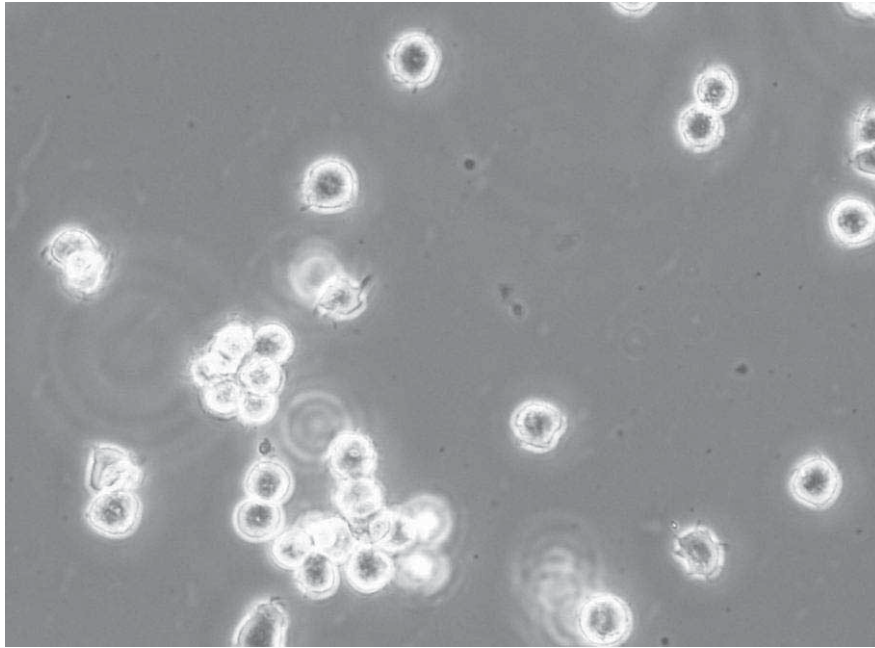


図 13 Jurkat 細胞

- 細胞：Jurkat（ヒト白血病由来 T 細胞）（図 13）
- 培養液：RPMI1640 培地（10%牛胎児血清）
- 培養条件：37℃、5%二酸化炭素、飽和湿度

4-4. 実験方法、結果および考察

4-4.1 ELISA（IL-1 β 、IL-6）実験方法

- (1) 電波ばく露用シャーレに、1 枚当たり 6×10^6 個の U937 細胞を播種、終夜培養
- (2) 電波ばく露（2.45GHz）
- (3) 細胞回収
- (4) 上清を除去後、ホルボール 12-ミリステート 13-アセテート（Phorbol 12-myristate 13-acetate（以下、「PMA」という。））（50ng/ml）を含有する培地に懸濁し、12 ウェル細胞培養プレートに 0.8ml/ウェル（ 5×10^5 個/ウェル）で播種
- (5) 24 時間後、培地上清を除去し、培地で洗浄後、0.8 ml/ウェルの培地で培養
- (6) 6 時間後、培地上清を除去し、リポ多糖（Lipopolysaccharide（以下、「LPS」という。））（1 μ g/ml）を含有する培地を 0.8ml/ウェル加える
- (7) 1、6、18、24 時間後、培地上清全量を回収し、遠心沈降後、上清中に

- 含まれるインターロイキン-1 β (Interleukin-1 β (以下、「IL-1 β 」という。)) およびインターロイキン-6 (Interleukin-6 (以下、「IL-6」という。)) の濃度を R&D Systems 製 Quantikine[®] Human IL-1 β および Human IL-6 を用いた、ELISA (Enzyme-linked immunosorbent assay) 法で測定
- (8) 細胞をセルスクレーパーで回収後、(7)の回収残渣と合わせて細胞数を測定

4-4.2 ELISA (IL-2) 実験方法

- (1) 電波ばく露用シャーレに、1枚当たり 6×10^6 個の Jurkat 細胞を播種、終夜培養
- (2) 電波ばく露 (2.45GHz)
- (3) 細胞回収
- (4) PMA (10ng/ml) と A23187 (1 μ g/ml) を含有する培地に懸濁し、12ウェル細胞培養プレートに 0.8ml/ウェル (5×10^5 個/ウェル) で播種
- (5) 1、18、24 時間後、培地上清全量を回収し、遠心沈降後、上清中に含まれるインターロイキン-2 (Interleukin-2 (以下、「IL-2」)) の濃度を R&D Systems 製 Quantikine[®] Human IL-2 を用いた、ELISA 法で測定
- (6) 細胞をセルスクレーパーで回収後、(5)の回収残渣と合わせて細胞数を測定

4-4.3 U937 細胞における IL-1 β ならびに IL-6 産生への影響結果

U937細胞から分泌された IL-1 β と IL-6 の分泌量を図 14～図 17 に示す。分泌量は、細胞数で標準化して示した。

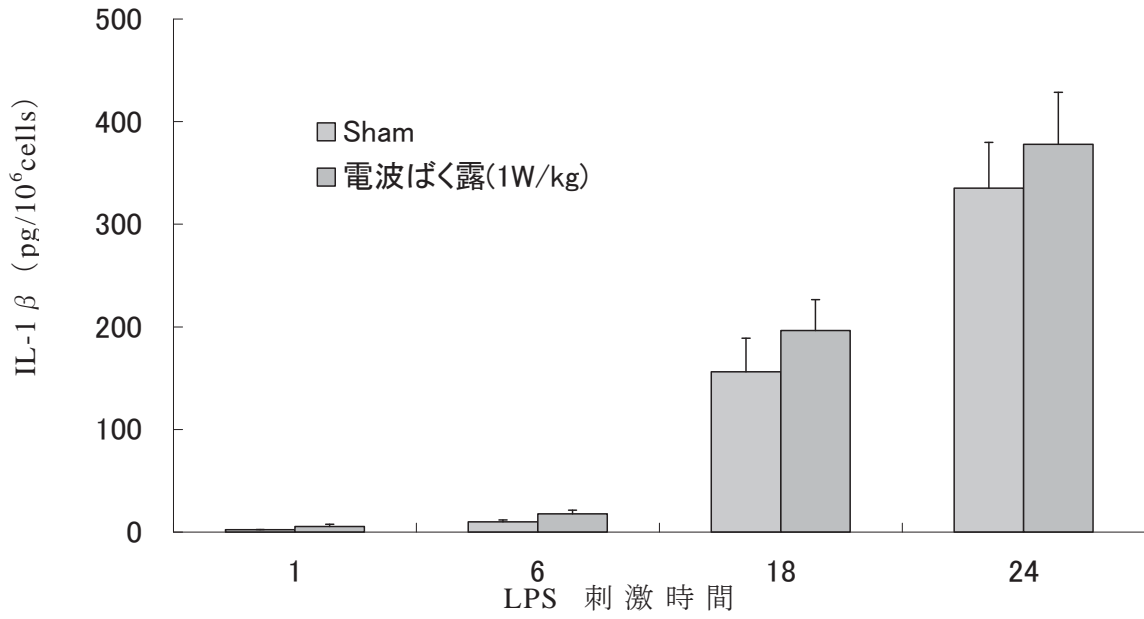


図 14 U937 細胞による IL-1β 分泌量 (1W/kg 4 時間ばく露)

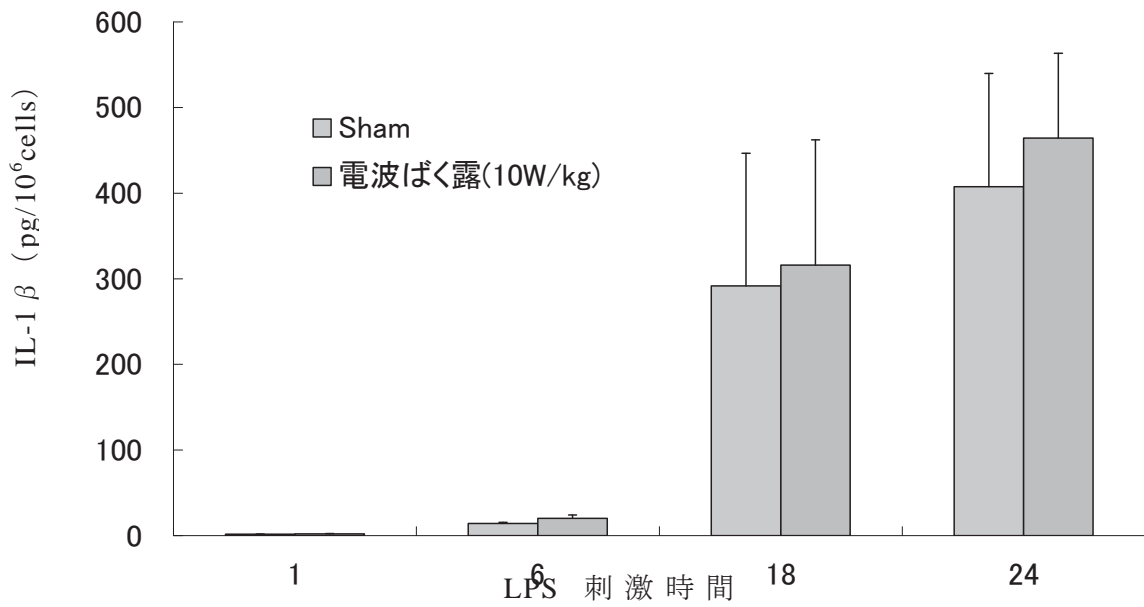


図 15 U937 細胞による IL-1β 分泌量 (10W/kg 4 時間ばく露)

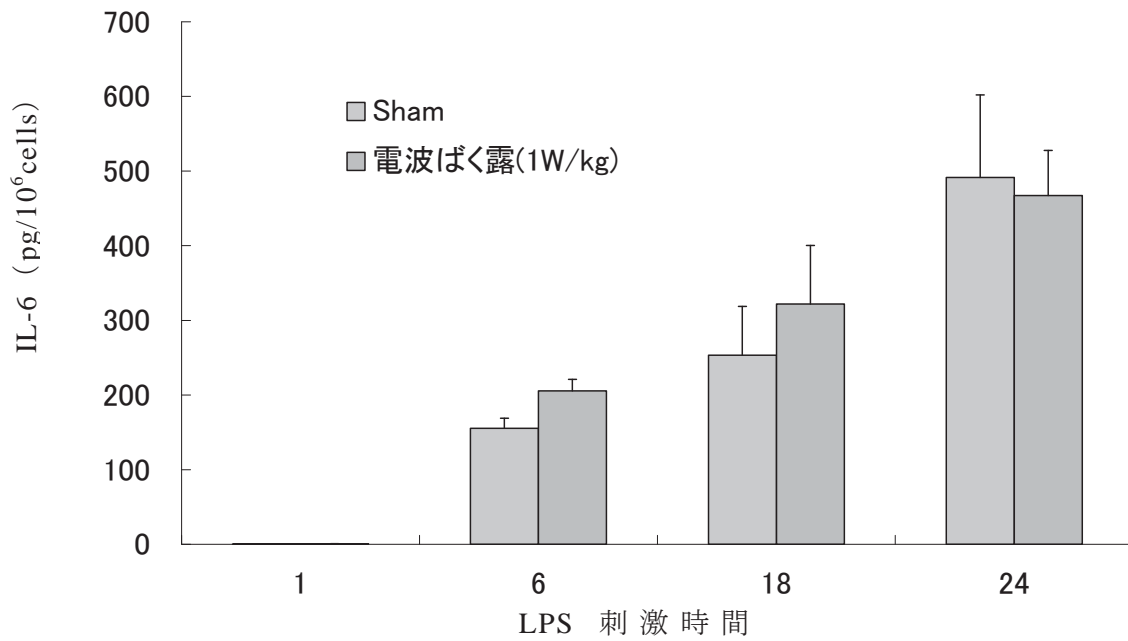


図 16 U937 細胞による IL-6 分泌量 (1W/kg 4 時間ばく露)

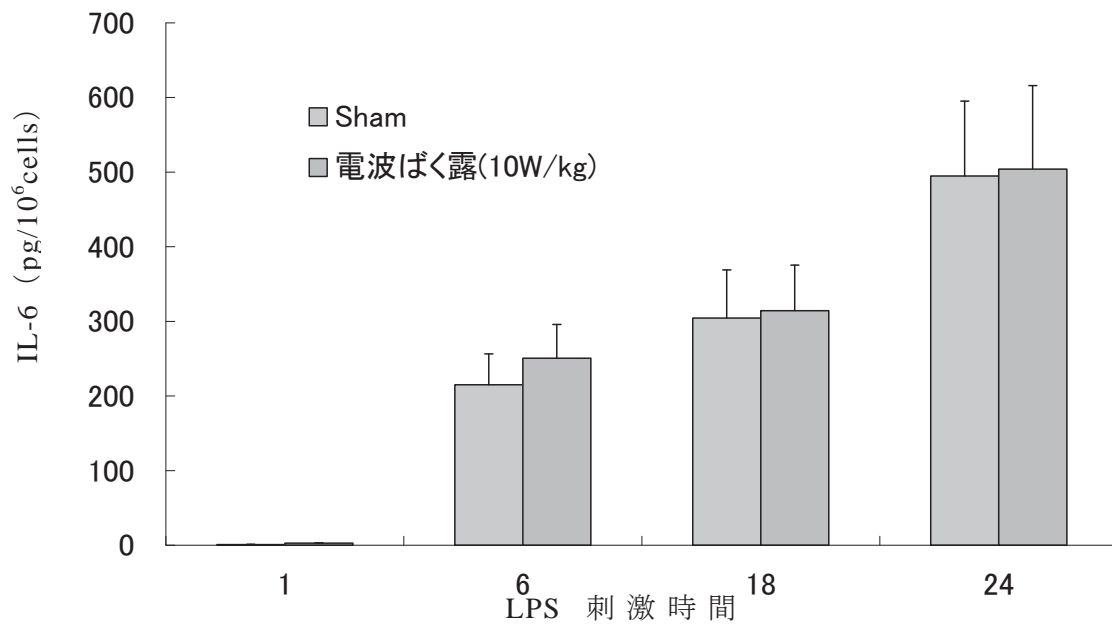


図 17 U937 細胞による IL-6 分泌量 (10W/kg 4 時間ばく露)

4-4.4 Jurkat 細胞における IL-2 産生への影響結果

Jurkat 細胞から分泌された IL-2 の分泌量を図 18 ならびに図 19 に示す。分泌量は、細胞数で標準化して示した。

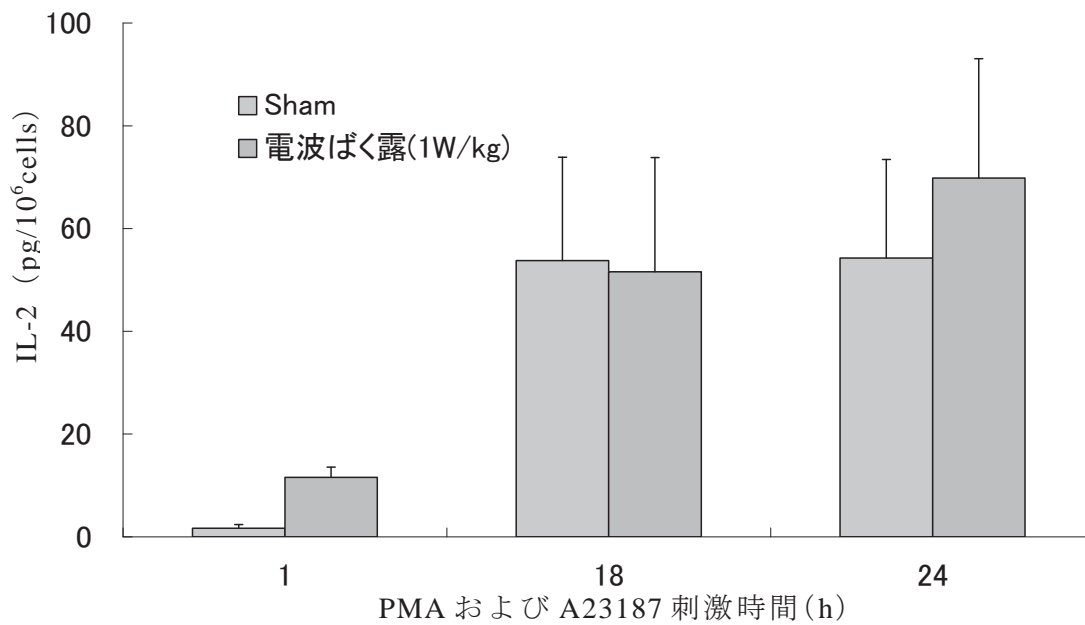


図 18 Jurkat 細胞による IL-2 分泌量 (1W/kg 4 時間ばく露)

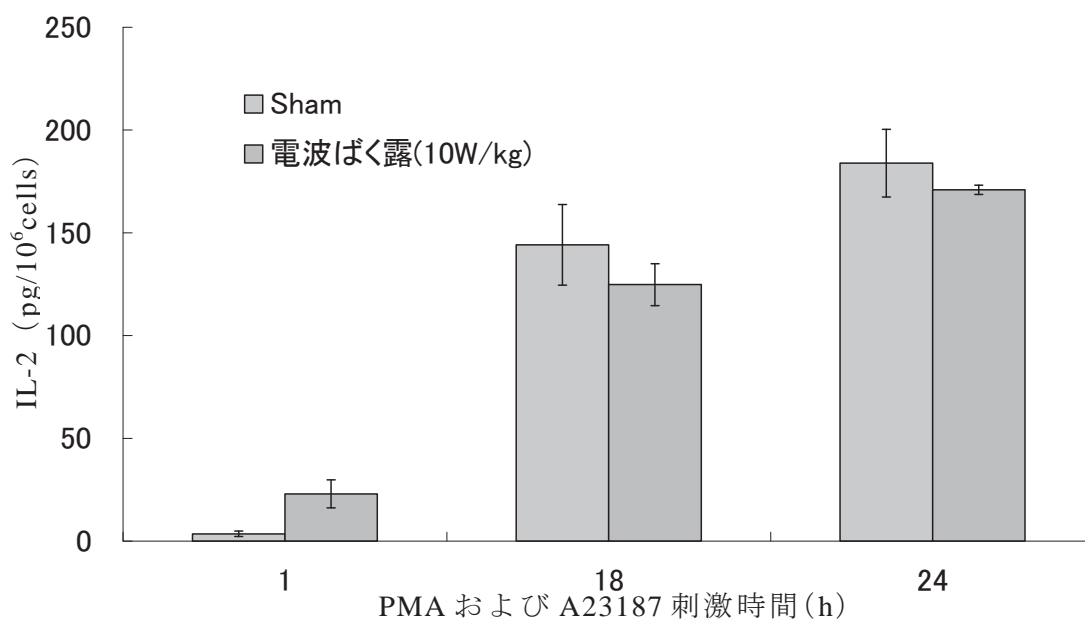


図 19 Jurkat 細胞による IL-2 分泌量 (10W/kg 4 時間ばく露)

4-4.5 結果および考察

U937 細胞及び、Jurkat 細胞を用いて、2.45GHz 電波の 4 時間連続ばく露 (SAR : 1、10W/kg) を行い、ELISA 法によって免疫細胞から産生される各種サイトカイン量への影響を検討した。これらの条件での、電波ばく露によって、いずれの細胞から分泌されたサイトカインにおいても、統計学上有意な差は見られなかった。本研究結果からは、細胞のサイトカイン産生を指標とした電波ばく露の影響は観察されなかったが、今後、今回検討しなかったサイトカインや貪食能など、さらに細胞の免疫機能への影響評価を進める予定である。

5, 引用文献

- 1) A. Kurs, A. Karalis, R. Moffatt, J. D. Joannpoilos, P. Fisher, M. Soljagic. “Wireless Power Transfer via Strongly Coupled Magnetic Resonances” , Science Magazine, vol. 317, pp. 83-86, 2007.
- 2) T. Imura, H. Okabe, Y. Hori “Basic Experiment Study on Helical Antennas of Wireless Power Transfer for Electric Vehicles by using Magnetic Resonant Couplings” , in Proc. IEEE Vehicle Power and Propulsion Conf., pp. 936-940, 2009
- 3) S. Ahn, J. Kim, “Magnetic field design for high efficient and low emf wireless power transfer in on-line electric vehicle” , in Proc. EUCUP 2011, pp. 4148-4151.
- 4) N. Shinohara, “Power without Wires” , IEEE Microwave Magazine, Vol.12, No.7, pp. S64-S73, 2011
- 5) Guidelines for Limiting Exposure to Time-Varying Electric and Magnetic Fields (1 Hz - 100 kHz), ICNIRP, 2010
- 6) A. Taniya, S. Kobayashi, M. Horiuchi, Y. Yokoi, “Comparison of Simulation and Real Distribution of Magnetic Field Emitted by Magnetic Resonant Wireless Power Transmission Demo System” , Technical report of IEICE WPT 2010-14, pp. 7-10, 2010
- 7) T. Sakurai, M. Yoshimoto, S. Koyama, J. Miyakoshi, “Exposure to Extremely Low Frequency Magnetic Fields Affects Insulin-Secreting Cells” , Bioelectromagnetics, vol. 29, pp. 118-124, 2008

5. 付記 : 2012 年度の業績

<原書論文、著書、総説など>

1. Sakurai T, Narita E, Shinohara N, Miyakoshi J.; (2012) Intermediate frequency magnetic field at 23 kHz does not modify gene expression in human

fetus-derived astroglia cells. *Bioelectromagnetics*. Dec;33(8):662-9. doi: 10.1002/bem.21734.

2. Sakurai T, Hashimoto A, Kiyokawa T, Kikuchi K, Miyakoshi J.; (2012) Myotube orientation using strong static magnetic fields. *Bioelectromagnetics*. Jul;33(5):421-7. doi: 10.1002/bem.21701.
3. Miyakoshi J.; (2012) Electromagnetic fields and environmental health. *An Environmental Journal for the Global Community (SANSAI)*. No. 6: 53-60.

<招待講演、学会発表など>

1. Kohei Mizuno, Junji Miyakoshi, and Naoki Shinohara; Coil design and dosimetric analysis of a wireless energy transmission exposure system for in vitro study, IMWS-IWPT 2012, May 10-11, 2012, Avanti Kyoto Hall, Ryukoku University, Kyoto, Japan
2. Eijiro Narita, Tomonori Sakurai, Yukihiisa Suzuki, Masao Taki, and Junji Miyakoshi; Influence of a high-frequency electromagnetic field at 2.45 GHz on cytokine productions in macrophage-like U937 cells. IMWS-IWPT 2012, May 10-11, 2012, Avanti Kyoto Hall, Ryukoku University, Kyoto, Japan
3. Kohei Mizuno, Junji Miyakoshi, and Naoki Shinohara; Coil design and dosimetric analysis of a wireless energy transmission exposure system for in vitro study. The Bioelectromagnetics Society 34rd Annual Meeting, 17-22 June 2012, Brisbane, Australia
4. Eijiro Narita, Tomonori Sakurai, Yukihiisa Suzuki, Masao Taki, and Junji Miyakoshi; Influence of an HFEMF at 2.45 GHz on migration potency in neutrophil-like differentiated from HL-60 cells. The Bioelectromagnetics Society 34rd Annual Meeting, 17-22 June 2012, Brisbane, Australia
5. Junji Miyakoshi, Eijiro Narita, Tomonori Sakurai, and Noki Shinohara; Effects of exposure to intermediate frequency magnetic fields on neurite outgrowth in PC12VG cells. The Bioelectromagnetics Society 34rd Annual Meeting, 17-22 June 2012, Brisbane, Australia
6. 水野公平, 成田英二郎, 山田勝, 篠原真毅, 宮越順二; 紫外線 (UVB) の生物学的影響に対する超低周波電磁界の補助作用, 日本磁気科学会年会, 2012年11月20日~22日、京都大学北部総合教育研究棟益川ホール

千年居住圏

東アジアの木の文化 国内外での研究経過

田鶴寿弥子¹、Mechtild Mertz¹、杉山 淳司¹、柳川 綾²、吉村 剛²
京都大学・生存圏研究所
¹バイオマス形態情報学分野
²居住圏環境共生分野

1. 研究組織

代表者氏名：杉山 淳司（京都大学・生存圏研究所）
共同研究者：金 南勲（江原大学校・森林環境科学科）
李 元熙（慶北大学・林産工学科）
高妻 洋成（奈良文化財研究所）
田鶴 寿弥子（京都大学・生存圏研究所）
Mechtild Mertz（京都大学・生存圏研究所 客員研究員）
柳川 綾（京都大学・生存圏研究所）
吉村 剛（京都大学・生存圏研究所）

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

千年居住圏、樹種識別、新しい分析手法、木材保存
ミッション1：環境計測・地球再生
ミッション4：循環型材料開発、持続的生活圏

3. 研究概要

日本国内での木質文化財調査として、旧園田家住宅（石川県）用材の樹種識別調査、国宝朝光寺本堂（兵庫県）用材の樹種識別調査、総持寺祖院（石川県）用材の樹種識別調査ならびに年代測定、松尾大社（京都府）における神像の樹種識別調査、与謝野町（京都府）一帯における神像・狛犬の樹種識別調査、滋賀県地域における神像・狛犬樹種識別調査を行った。また、指定文化財木彫像の9点の鑑定（美術院国宝修理所、京都国立博物館、奈良国立博物館）を完了した。

8月3日生存圏研究所にて、「東アジアの木文化」と題する日韓文化財関連国際共同研究ワークショップを開催した(図1)。江原大学教授金教授との共同研究として、韓国産のアカマツの中でも材質にすぐれる黄腸木の解剖学と耐久性に関する研究を開始した。また慶北大学李教授との共同研究として、韓国世界文化遺産海印寺所蔵、八萬大藏経に使用された木材の材質調査のための非破壊調査法の検討を開始した。X線関連の分析にあたっては九州国立博物館今津氏(文化財用大型CT装置、9月10日に実験開始)とソウル大学李教授(10月29日-11月3日杉山が特別講義ならびに共同研究実施にソウル大訪問)との共同研究を開始した。また8月3日韓国江原大学校山林環境科学大学との間でMOUを締結した。

所内客員研究員 Mechtild Meltz 博士との共同研究でチベットシッキム地域の寺院用材の調査を11月4日より12月2日の予定で実施した。H25年2月、インド林業研究所のサンギッタ博士を招聘し、第12回木の文化「木の文化へのいざない -インド・東ヒマラヤ」を主催すると同時に、インド産木材の樹種識別に関する共同研究を実施した。

最後に、ベトナムハノイ市内の12世紀の遺跡、タンロン遺跡より出土する木材の樹種識別と保存に関する、ベトナム林業大学、奈良文化財研究所、生存圏研究所間の共同研究が開始した、11月にはフン准教授が来室し、1月には高妻、杉山がベトナム林業大学を訪問し、特別講演と学生指導の方針について話会うとともに、タンロン遺跡現地における木材保存状態の調査ならびに指導を行なった。

4. 研究の背景と目的

未来型の循環型生活を可能にするため、古の仕組みの中で基盤となってきた木材の選択的利用や年輪情報による過去の情報抽出は非常に重要である。古の英知と先端科学を融合し、木質文化財から様々な情報を抽出し、人類が歩もうとしている未来の構築に向けたデータベースとして整備するのが目的である。

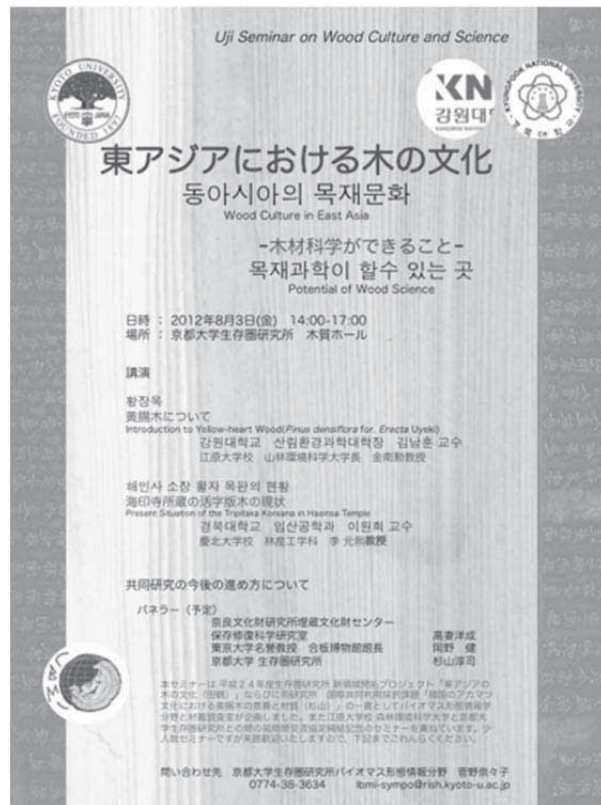


図1 「東アジアの木文化」と題する日韓共同研究ワークショップのポスター。

5. 研究の結果および考察

以下に、国内での識別調査の進捗状況、韓国の黄腸木、インド東ヒマラヤ地域の寺院用材に関する研究の成果について、順に述べることとする。

5-1. 国内での識別調査の進捗情報

古くより樹種特性と用途における明確な体系を確立してきた日本では、木質文化財のうち特に、宗教・信仰の対象物である木彫像や建造物の制作には、何らかの意味・重要性をもつ樹種が選択されたと想像できる。そのような考えに基づき、日本国内での木質文化財調査として、旧園田家住宅（石川県）用材の樹種識別調査、国宝朝光寺本堂（兵庫県）用材の樹種識別調査、総持寺祖院（石川県）用材の樹種識別調査ならびに年代測定、松尾大社（京都府）における神像の樹種識別調査、与謝野町（京都府）一帯における神像・狛犬の樹種識別調査、滋賀県地域における神像・狛犬樹種識別調査を遂行した。各調査結果は、それぞれ報告書や学会発表などで公表してきたが、未公表データも含まれるため、本論文では例として、総持寺祖院建築用材調査、滋賀県地域における神像・狛犬樹種識別調査の結果について提示する。



図2 修理中の総持寺祖院白山蔵（左上）、修理工事中の内部写真（左下）ならびに採取試料詳細（右上）

5-1-1. 総持寺祖院建築用材調査

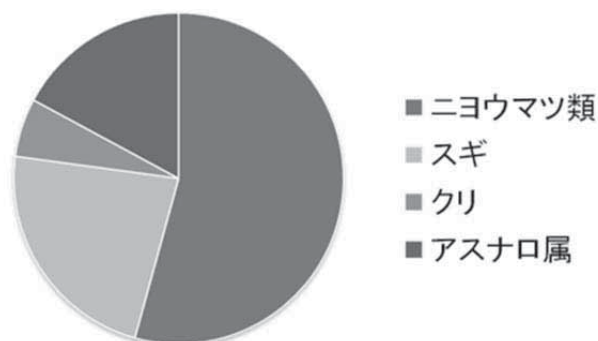


図 3 総持寺白山蔵に使用されていた部材の樹種

樹種情報は、建造物の修理工事での後補材選択に重要となるだけでなく、部材の樹種選択の地域性や当初・修理における部材選択の変遷などの把握にも重要な情報である。また、当時の木材流通の解明にも繋がる他、植生解明にも有益であることが判明してきた。しかし、修理現場担当者の采配や予算問題で、現在も目視による調査が大部分を占めているのが実状である。本研究では、特に関西・北陸地方に注目し、歴史的建造物の修理工事に際して部材の樹種調査、年代情報の蓄積、並びに木取りなどの調査を行うことで、使用樹種の時代・地域的な変遷を追うことを目的とした。

総持寺祖院(図 2)は、石川県能登半島に位置する曹洞宗大本山であり、本調査では修理工事に際して白山蔵の部材の樹種識別調査 36 点ならびに、白山蔵・白山殿の部材の年代測定を行った。樹種識別は、主にプレパラート観察を行った。その結果、ニヨウマツ類・スギ・アスナロ属・クリの主な使用が認められた(図 3)。中でもア

表 1 総持寺白山殿・白山蔵における部材の放射性炭素年代測定および暦年較正結果

測定番号	$\delta^{13}\text{C}$ (‰)	暦年較正用 年代 (yrBP \pm 1)	^{14}C 年代 (yrBP \pm 1 σ)	^{14}C 年代を暦年代に較正した年代範囲	
				1 σ 暦年代範囲	2 σ 暦年代範囲
白山殿 柱	-25.14 \pm 0.14	398 \pm 19	400 \pm 20	1448AD (68.2%) 1481AD	1442AD (86.1%) 1502AD 1507AD (1.0%) 1511AD 1601AD (8.4%) 1615AD
白山蔵柱2	-24.09 \pm 0.15	141 \pm 19	140 \pm 20	1680AD (10.3%) 1696AD 1726AD (20.3%) 1764AD 1801AD (8.1%) 1814AD 1836AD (3.8%) 1845AD 1851AD (11.5%) 1877AD 1917AD (14.2%) 1939AD	1670AD (15.7%) 1707AD 1720AD (28.0%) 1779AD 1797AD (11.8%) 1826AD 1832AD (22.4%) 1884AD 1913AD (17.5%) 1943AD
白山蔵柱11	-26.41 \pm 0.14	102 \pm 18	100 \pm 20	1697AD (26.1%) 1726AD 1815AD (18.9%) 1836AD 1848AD (2.0%) 1850AD 1878AD (13.0%) 1892AD 1908AD (8.2%) 1917AD	1690AD (26.8%) 1730AD 1810AD (68.6%) 1925AD

スナロ属の多用は、能登半島におけるヒノキの代用材としてのアスナロ属の利用を確認する上で貴重なデータとなった。

また年代測定は、試料を調製後、加速器質量分析計（パレオ・ラボ、コンパクト AMS：NEC 製 1.5SDH）を用いて測定した。得られた ^{14}C 濃度について同位体分別効果の補正を行った後、 ^{14}C 年代、暦年代を算出した。本調査では、 1σ 、 2σ それぞれ確率の最も高い年代範囲が測定した試料の最も可能性の高い年代範囲と考えて問題は無いと考えられる。そのため表 1 に示した通り、例えば試料 No. 1（白山殿 柱）については、 1σ 暦年代範囲では 1448AD-1481AD、 2σ 暦年代範囲では 1442AD-1502AD の年代範囲と考えて良いと考えられる。年代測定結果からは、白山殿に使用された部材が 15 世紀のものであることが判明した。

これらの結果は、地域的な樹種選択、木材の流通などを示唆するものとして重要な情報を含んでいる。今後、樹種調査が増加することで、さらにデータの蓄積が期待できると考えられる。

5-1-2. 滋賀県地域における神像・狛犬樹種識別調査

近年、東京国立博物館により 8-10 世紀の仏像彫刻の多くが従来考えられてきたヒノキ製ではなく、カヤ製であることが科学的に明らかにされ、美術や宗教の分野に激震が襲った。

筆者は、日本彫刻史の中でも仏像に比べ遥かに調査の機会に乏しく、遅れをとっている分野であった神像彫刻や狛犬に注目し、古代から中・近世に至る造像の展開を通観できる日本神像史解明に向けた体系的樹種データの蓄積を目的としている。これらの神像彫刻には、形態学の観点から仏像制作の影響を明確に看取することが出来ることから、制作に当たった工人は主として仏像制作に携っていた者であったと推察される。これまでに関西地域を中心とした神像・狛犬についての樹種識別調査を進めてきた。

本研究では、安土城考古博物館の学芸員により保管されていた滋賀県地域に伝来する神像・狛犬の破片を用いて樹種識別調査を行った。得られた剥離片は非常に小さく、また劣化しているものも多かったことから、従来の光学顕微鏡法では識別が不可能であると考えられたものについては、シンクロトロン μCT を用いて樹種識別を行った。中でも特に、滋賀県地域に伝来する神像についての樹種調査からは大変興味深い結果が得られた。平安時代から室町時代と推定される滋賀県内の複数の神像がカヤで作られていたのである（図 4）。鑑真によって開創された唐招提寺の一群の木彫像に多く使用されているカヤは、中国における栢（柏）の概念の拡大化の反映と見做されているが、神像もこうした拡大化の中に位置づけられる可能性が少なからず示唆される結果と考えられた。

また参考までに奈良県や大分県の神像においても調査を行ったが、一部でカヤの使用が認められたことから、滋賀県のみならず他府県においても神像にカヤが使用されていることがわかった。

現在、木材の年代測定に用いられている AMS 法（加速器質量分析器）等ではその発展

が著しく、微量の木片によって年代測定が可能となってきた。シンクロトロン μ CT を用いて識別を行った極小試料は、将来の科学的分析等のために、継続して保管を徹底していく予定であり、将来これらの木片を用いて年代決定が可能であるならば、現在、形態等により推測されている年代を補正し、そこに樹種情報を盛り込むことにより、神像における樹種変遷、さらには木彫像における神像のありかたを明確にできる日が来るだろう。

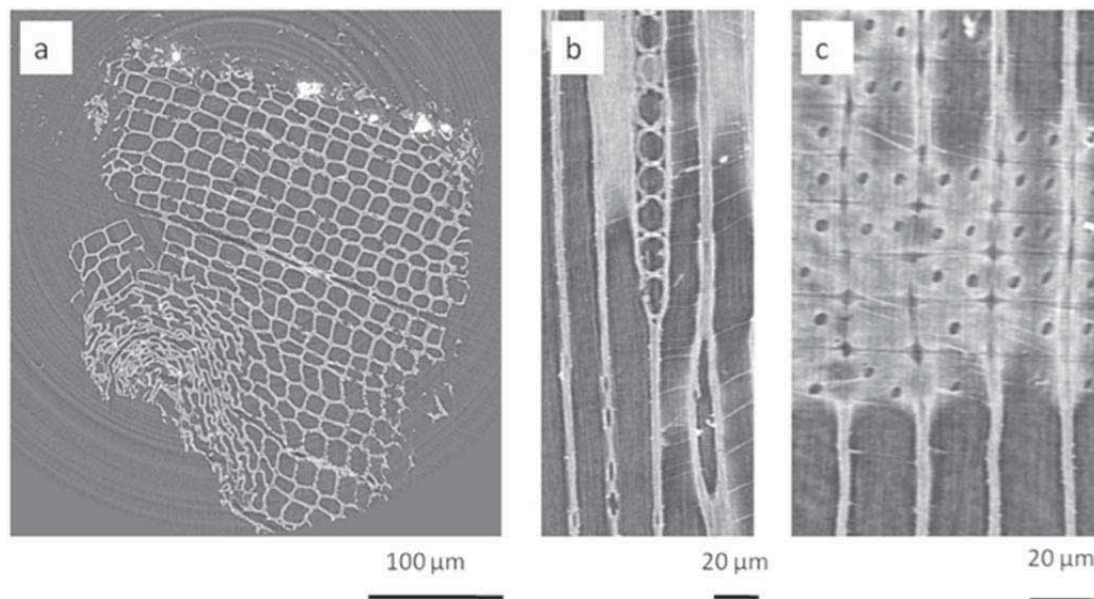


図4 神像から剥離した試料について、シンクロトロン μ CT を用いて撮影した 1800 枚の縦断面像から Slice を用いて画像より切り出し構築した木口 (a)、板目 (b)、柁目 (c) に相当する断層像。これにより、カヤと識別できた。

5-2. 韓国のアカマツ

古い木材の樹種を調べる事で、当時の用材観や物流、経済を知る手がかりが得られるのが何よりも素晴らしいことだが、どうやら日本の事だけを考えていては、視野が狭いのではないか、というのが実感である。特に中国と韓国の用材観はその基本になるものなので、これらを併せて俯瞰的に調査することが重要と考えるに至った。

最近、ある著名な仏師に、なぜクスノキが彫刻につかわれるのかを尋ねたところ、次のような解答であった。「さか目、順目を気にせずに掘る事ができるから、針葉樹で彫るより、なまくらの（良く切れない）ノミでもほれるから。」これを聞くまでは、巨木になり神格化するから、樟脳の匂いが良いから、腐りにくいからと思いつこんでいたので、目から鱗であった。

韓国には黄腸木と呼ばれるアカマツがあり、字面通りに解釈すれば、心材が黄色いものが過去において重用されたようである。中国においても黄腸木は、地位の高い人物の棺材として利用されていたことがわかっている。日本では黄色いカヤの木が使われ、また水に強いコウヤマキが使われている。

少し話しは変わるが、日本において、一木彫(一本の木から仏像をつくったもの)を彫る際には、6-7世紀にはビャクダンの代替として、カヤが使われた。その理由は、芳香と難腐朽性という物性に関わることに加えて、色だという見解もある。つまり、黄色が重要で、表面仕上げに金箔を必要としないのである。

さて、日本の歴史が始まる6世紀頃、朝鮮半島から渡来した秦氏は、京都の太秦に広隆寺をもうけ、弥勒菩薩を祀る。ソウルの国立博物館の弥勒菩薩半跏像と酷似した像である。韓国の像は金銅製だが、広隆寺の像はアカマツ製で、我が国の仏像では唯一とっていいほど珍しい。このアカマツが黄腸木と呼ばれる貴重な材であれば、朝鮮半島より伝来したという傍証として報告に値すると考え、まず韓国産アカマツ(金剛松、黄腸木)について、その由来や植生、組織構造や物性等について詳細に調べることにした。

5-2-1. 朝鮮半島のマツ型

朝鮮半島には図5に示すように6つのタイプがあり、その中で黄腸木は金剛型のマツに属する。中でも耐久性が高く、朝鮮王朝建築などに多用された材が黄腸木である。金剛型は図のように現在の江原道の山林地帯に多く生育するが、時の権力者は重要な産地に黄腸禁標という石標を設置して、一般の人たちの伐採を禁止し、管



図5 朝鮮半島における六つのマツ型

理区域とした。

5-2-2. 材質と加工性に関する予備調査結果

現在の市場における黄腸木の材質としての特徴は、辺材領域が小さく、黄色っぽい心材色を有し、年輪数が少なくとも100以上で年輪幅が小さいこととされている。それらに加え、江原大学金南勲教授との共同調査からは、①樹脂道の平均直径が小さい、②放射組織細胞高が低い、③仮道管長が長い（150%）、④比重が大きいなど、材質に大きく影響する組織構造の差が認められた。典型的な柾目板を図6に示す。また、国産のアカマツでは早晚材の密度差が激しく彫刻には向かないとされるが、本研究で収集した黄腸木について矢野健一郎氏（仏師、東京芸術大学）に評価をお願いしたところ、図7のとおり、細かい造作も可能とのことであった。

黄腸木がなぜ重用されるかを理解するために、今後試験体数を増やしつつ、①組織構造、②物性、③シロアリならびに腐朽菌耐性について、通常のアカマツ材と比較しながら検討を進める予定である。



図6 黄腸木の柾目板。写真の横幅が7センチメートルに相当。

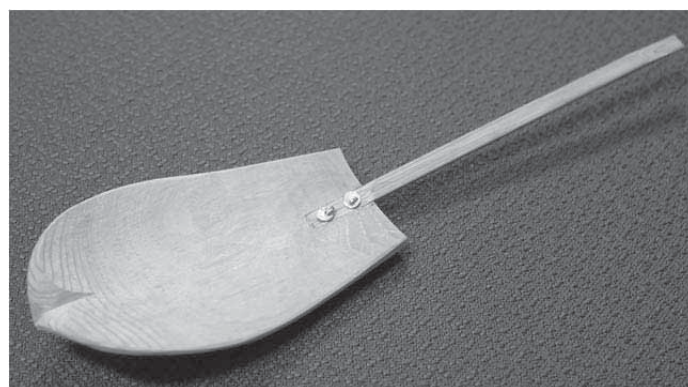


図7 マツ材で彫刻した蓮弁

5-3. インドシッキム州の寺院用材の調査



図 8 山間部にある Mani Lakhang 寺
(Lachen, シッキム北部) (中央右)

5-3-1. 現地における活動について

シッキム州は、シッキム王国として 400 年ほどの歴史を持つ小さな州である。伝統的に Bon と呼ばれるシャーマニズムが存在し、8 世紀には仏教が、14 世紀にチベット仏教が伝来、やがて 1642 年、王国として成立した。建国当初からチベットの属国（同時にチベットの君主国であった清朝の属国）であったが、17 世紀にはイギ

リスに併合され、1947 年のインド連邦独立とともにインドとなり、現在に至る。現在は、ネパールからの移民が多いことからヒンドゥー教徒が人口の 60% を占める。北東西の三方をヒマラヤ山脈に囲まれ、南にインド、北にチベット、西にブータンおよび東にネパールが続く山岳地帯に位置し、岩場が多く農業に向く土地は少ないが、湖や川を多く有し、気候は比較的穏やかで、夏季が 28 度まで上がり、冬は 0 度以下まで下がる。もともとの民族であるレプチャ人はブータンに縁が強いことや、その歴史的経緯に加え、こうした独特の地形的要因により、シッキム独自の文化を有し、その文化は独自の発展を遂げてきた。

本プロジェクトは、シッキム王国王族末裔で現地の指導者的な立場にある Hope Leezum 姫の要請を受けて、The Tibet Heritage Fund (THF) が取り組む文化財保護事業の一環である。文化財保護事業そのものは、2011 年に故 Alexander 博士と Tsewang 氏によって Tsukulhakhang 王宮礼拝堂の修復を目的に開始されたものだが、その文化的重要性から、現在その他の古建築（おもに寺院）及び古建築内部の壁画へと、保護の対象を広げて引き継がれているものである。国際的な NGO 組織である THF の他にも Tsukulhakhang Trust などのローカル組織も事業に参入しており、こうした NGO 団体の協力のもとで現地での木材サンプルの採集を行った。また、文化財保護の観点から、古建築および内部壁画の現状維持と修復後長期保存のため、木材害虫対策を講じる必要があったことから、地元企業あるいは地元の人々が取り組める形での害虫対策について、対策を話し合い、情報提供を行った。

5-3-2. サンプルング



図 9 サンプルングの様子

現地においては、それぞれに文化的特色を持つ東西南北すべての地域において、サンプルの採集を行うことができた。調査を行った場所としては 1. Tsuklakhang 寺院 (Royal Chapel) (Gangtok, シッキム東部), 2. Rinchen Surgye 家 (Phensong, シッキム北部), 3. Nadakh 寺院 (Namchi, シッキム南部), 4. Pemayangtse 寺院, 5. Tashiding 寺院 (シッキム西部), および 6. Mani Lakhang 寺 (Lachen, シッキム北部) (図 8) で、寺院 5 社、古建築 1 という内訳となる。Tsuklakhang 寺院より 9 か所、Rinchen Surgye 家より 16 か所、Nadakh 寺院より 28 か所、Pemayangtse 寺院より 4 か所、Tashiding 寺院からは 1 か所および Mani Lakhang 寺より 37 か所、さらに 4 サンプルを現地でえて、計 99 個の木材サンプルの収集を行った (図 9)。

5-3-3. 寺院に使われている木材の同定について

現在までに Mani Lakhang 寺、Pemayangtse 寺院および Tashidin 寺院より採集したサンプルの樹種同定を終えている。Mani Lakhang 寺では Himalayan silver fir の使用が特に多いことが明らかとなった。この樹木は生長が早く、人々が入手しやすいことから、これまでもこの寺の修復に寄贈されてきたという経緯が地元の人々から報告されており、調査結果と一致する。また、寺院柱部では本種に加え、*Pseudotsuga* sp. / トウガサワラ属などの針葉樹の使用が認められた。

5-3-4. その他諸問題としての害虫対策

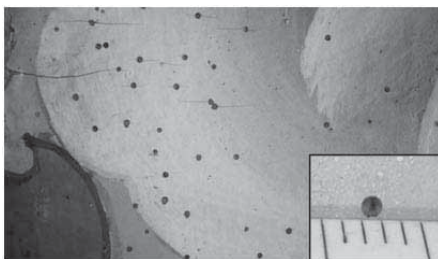


図 10 壁画に見られた甲虫による加害

シッキムは山岳地帯にあることから、南方では特に古建築に対する木材害虫被害は深刻である。現地 NGO 責任者からは、シロアリ対策に関する相談が寄せられたが、実際に足を運んだところ、甲虫類による加害も文化財に甚大なダメージを与えていることが報告された (図 10)。現在、現地に木材害虫に知識を持つ研究者はおらず、対策は民間伝承としてヨモギ (*Artemisia Indica*) の汁を木材に塗るという対策が取られるのみであるが、本手法は害虫対策として実質的な効果が見受けられない。山岳地帯から木材害虫を駆逐することは不可能であり、昆虫を森林内に留め、

共存しながら文化財を守るためには、まずは人の生活区域にすでに侵入している木材害虫を管理しなければならない。地元の人々も家の周りに木材を放置しないなど、一定のルールを学ぶ必要がある。こうした害虫の管理には10年単位の長い年月がかかり、実際には地元の人々の継続的な取り組みがなければ効果が期待できないことから、本課題では、害虫に対する比較的一般的な知識と対策を紹介したリーフレットを作成し、日本で行われているシロアリ対策について紹介するなどの教育的な取り組みを行った。また、現地で情報を収集した結果、インド林業研究所に木材害虫を送ると、その害虫を標的として、専門家からなる対策委員が林業研究所から派遣されるシステムが存在することが明らかになり、現地組織に害虫対策をゆだねるための下地を築くことができた。

最後に、シッキムの調査にあたって、インド林業研究所に研究協力いただいた過程で、京都ーインドで木材サンプルを交換し合うなど、木質科学研究の発展にとっても有意義な交流を行うことができたことも報告する。

6. 今後の展開

今後とも継続的に、より広い範囲における長期的かつ広域的な調査を進め、比較研究を行うことが、東アジア文化における木質文化財のもつ叡智を解明するために必要である。宗教的、地理的要因も踏まえつつ、人類がどのように木材を活用してきたか、文化的な観点から明らかにすることは、人類の持続的な未来の発展のために不可欠である。

7. 謝辞

本研究の一部は、株式会社パレオ・ラボ第七回若手研究者を支援する研究助成(ST)により遂行することができた。この場を借りてお礼申し上げます。調査および樹種同定結果の公表にご理解をいただいた関係寺院および関係機関に心よりお礼を申し上げます。なお本研究は、高輝度光科学研究センターの課題研究 課題番号：2007B1544, 2008B1563, 2009B1093 ならびに 2009B1981 によって、ビームライン BL20XU において得られた成果に基づき纏めたものである。

生存圏における放射性物質の動態解明と低減を目指した 新技術開発

上田 義勝

京都大学・生存圏研究所

1. 研究組織

代表者氏名：上田 義勝（京都大学 生存圏研究所）

共同研究者：杉山 暁史（京都大学 生存圏研究所）

伊藤 嘉昭（（京都大学 化学研究所）

徳田 陽明（京都大学 化学研究所）

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

東日本大震災、原発事故、除染、農業再生

ミッション1：環境計測・地球再生

3. 研究概要

本研究は、生存圏研究所の新規ミッションの一つとして、福島原発近郊（避難区域以外の比較的汚染度の高い地域）にて実際に放射性セシウムで汚染された土壌の効率的な除染技術、及び、農作物への低吸収技術の提案を目的とする。本テーマでは福島県農業総合センターと緊密に連携し、実際の汚染土壌を用いて技術の実証研究を行う。申請者らのグループは、昨年度から微細気泡水を用いて放射性セシウム汚染を除染する技術や、非放射性セシウム水溶液を用いて水耕栽培したダイズに関し、葉、茎、種子などの各組織におけるセシウム蓄積部位について検討を行ってきた。これまでの研究経緯として、第191回（2012年1月）および第215回（2012年11月）生存圏シンポジウム「東日本大震災以後の福島県の現状及び支援の取り組みについて」における議論を踏まえ、新規ミッションとして重要テーマとするべく、福島県農業分野の復旧・復興への貢献に軸足をシフトしつつある。具体的には、代表者上田義勝、徳田陽明によるナノバブル水等による除染技術と、杉山暁史、伊藤嘉明による蛍光X線を利用した高分解能蓄積部位解析を統合的に活用し、学内での連携研究として化学研究所とも共同で、福島県農業センターとの緊密な連携の下で支援事業を行う。

4. 研究の背景と目的

本概要においては、研究テーマの一つであるナノバブル水を用いた除染技術について報告を行う。

身近な存在である気泡は、その大きさによって特性を変化させる。近年、気泡の大きさが 100 マイクロメートル程度になると、浮力が減少する事や表面張力が大きくなる事から、通常の大さきの気泡とは異なった性質（安定性や浸食・洗浄効果）を示すことが明らかとなってきた。我々は、空気を用いた微細気泡水を用いる事で、2011 年に発生した原発事故で問題となっている放射性セシウムの除染技術研究を行い、その濃度と効率についての研究報告を行ってきた。本研究は既に我々が実証しつつある微細気泡水を使った除染技術を初めとして、農業用途での応用利用技術を電気化学的な側面から解析し、原理探求と今後の発展に繋がる技術革新を目指すものである。

ナノバブル発生には、ナノバブル発生装置 BUVITAS HYK-32-D（Ligaric 製）を用いて、気液混合剪断方式による微細気泡の生成を行った。また、気泡径の評価は、NanoSight LM-10（NanoSight 社製）により行った。我々は、土壌に関する除染について東日本大震災直後から調査を開始し、その浄化技術に関する基礎データを集めてきた¹⁻³⁾。その土壌浄化の一例として、ナノバブルを用いた洗浄効果について紹介する。洗浄サンプルの砂礫は、福島県農業総合センターで採取し、砂礫 100 g を種々の水 500 ml 中にそれぞれ静置し、静置前後の乾燥状態での放射能定量を測定し比較した。セシウム除去率を洗浄前と洗浄後の放射能定量から比率として求め、ナノバブル水の効果を確認するため、生成機の稼働時間及びナノバブル濃度との比較を行った。また、本発表では農業への応用利用として、花き植物の着色及び延命効果について電気化学的側面から考察も行った。着色対象となるのはトルコキキョウであり、このトルコキキョウに対して、着色剤（パレス化学「ファンタジー（オレンジ）」）を使っの 24 時間染色試験を行った。希釈方法としては、着色剤と水を重量比 1 : 1 で混和し、それぞれ純水とナノバブル水（双方とも約 5 度で使用）を用いた。実験環境としては試験室の温度は 20 度に保ち、日長時間を明期 12 時間-暗期 12 時間（蛍光灯、PPFD $10 \mu\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ）と自動設定して 10 分毎にデジタルカメラによる自動撮影でその色合いを確認した。色合いの調査には、計算機上で花の部分の画像を CMYK 解析し、特に黄色についてのピーク平均値についての時間経過をグラフとして作成した。

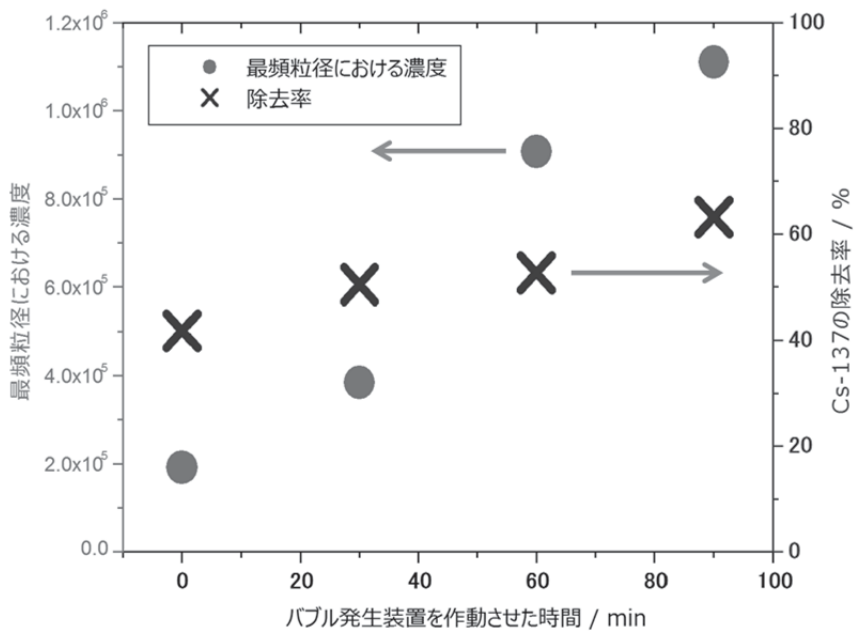


図1. ナノバブル発生装置の稼働時間と、最頻粒径における濃度(1ml中の個数),砂礫からのCd-137の除去率の関係

トルコキキョウの染色傾向の違い(黄色)

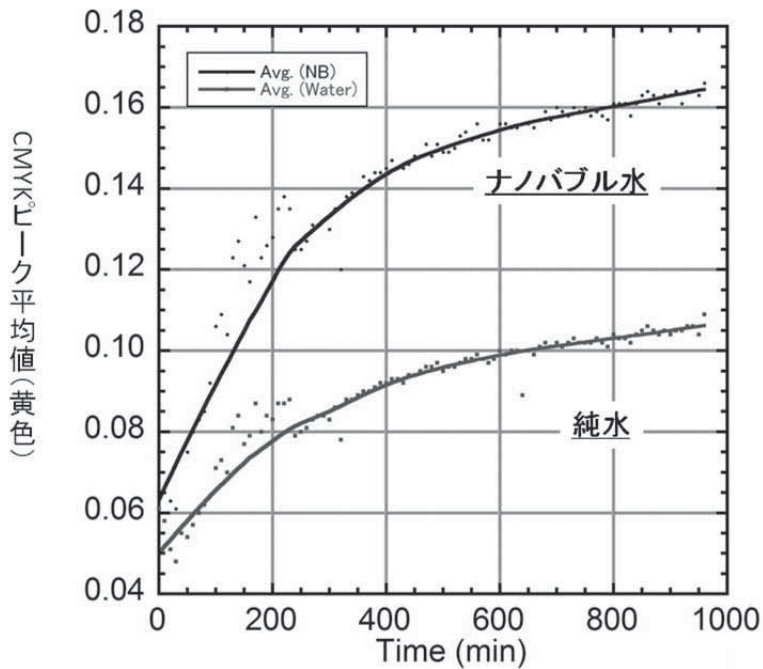


図2. ナノバブル水を用いた際の花き類の着色度合いの違い。着色にはパレス化学「ファンタジー(オレンジ)」を用い、CMYK解析は計算機上で行った。

5. 研究の結果および考察

ナノバブル水生成のための生成機稼働時間に応じてナノバブル濃度（最頻粒径）が増加し、それに伴って除去率も増加する傾向がみられた（図1）。また、着色試験においては、着色の早さと色合いの濃さについて、生成したナノバブル水の方が明らかに早く、そして濃い色合いになっている事がわかる（図2）。本試験はまだ参考程度の試験であり、調査に必要なパラメータ（生成時間や温度、染色材の濃度等）はまだこれからの研究が必要な段階であるが、今後に期待が持てる研究結果となっている。

6. 今後の展開

本報告は研究成果の一例であるが、共同で研究を行っている福島県農業総合センターとの連携研究として、大豆に関する研究についても既に研究が進捗している。また、新たな活動として福島県農業総合センターにて2/21に現地研究員を主とした新領域開拓シンポジウム「生存圏科学の新領域開拓に向けた取り組み（福島県との連携研究）」を開催予定であり、継続した研究を進めつつある。

7. 引用文献

- 27) Yoshikatu Ueda, Yomei Tokuda, Shigeto Fujimura, Naoto Nihei, and Toru Oka, Removal of radioactive Cs from gravel conglomerate using water containing air bubbles, Water Science and Technology, accepted
- 28) 上田 義勝, 徳田 陽明, 福島県農業総合センターとの連携研究（除染及び農業分野への応用利用）－微細気泡生成技術－, 東京大学アイソトープ総合センターニュース, Vol. 43, No. 3, p.2-10, 2013.1
- 29) 上田 義勝, 徳田 陽明, （期待される放射性物質の除去技術5）微細気泡で汚染土壌を浄化, 「化学」2012年（67巻）11月号, P.38-40

8. 付記

関連業績

1. 上田 義勝, 徳田 陽明, 福島県農業総合センターとの連携研究（除染及び農業分野への応用利用）－微細気泡生成技術－, 東京大学アイソトープ総合センターニュース, Vol. 43, No. 3, p.2-10, 2013.1
2. 知的財産（特許）特願2012-000763 「放射性物質汚染物の汚染除去方法」, 2012.12
3. 上田 義勝, 徳田 陽明, （期待される放射性物質の除去技術5）微細気泡で汚染土壌を浄化, 月刊「化学」2012年（67巻）11月号, P.38-40, 化学同人
4. Yoshikatu Ueda, Yomei Tokuda, Shigeto Fujimura, Naoto Nihei, and Toru Oka, Removal of radioactive Cs from gravel conglomerate using water containing air bubbles, Water Science and Technology, accepted

5. Yoshikatu Ueda, Yomei Tokuda, Shigeto Fujimura, Naoto Nihei and Toru Oka, Cesium Transfer from Granule Conglomerate Using Water Containing Nano-Sized Air Bubbles, abstract of the 222th Meeting of ECS (The Electrochemical Society Prime2012)
6. 上田 義勝, 微細気泡技術を用いたセシウム汚染土壌の浄化とその応用利用について, 第6回 京都大学宇治キャンパス産学交流会, 2012.9.24 (招待講演)
7. Yoshikatu Ueda, Yomei Tokuda, Shigeto Fujimura and Naoto Nihei, Remediation/Cleanup Technologies of Radioactive Contamination for Support Fukushima, Humanosphere Science School (HSS) (the 208th symposium on Sustainable Humanosphere) and the 2nd international symposium for sustainable humanosphere, August, Indonesia, 2012(招待講演)
8. 徳田 陽明, 上田 義勝, ナノバブル水を用いた放射性セシウムの除染, 第30回関西界面科学セミナー 環境・浄化・洗浄・ナノ —時代が求めるコロイド界面科学—, 2012.7.6 (招待講演)
9. 上田 義勝, 徳田 陽明, ナノバブル水を用いた放射性セシウムの直接洗浄効果の実証, 除染モデル実証事業等の成果報告会, 内閣府原子力被災者生活支援チーム 環境省 独立行政法人日本原子力研究開発機構, 2012.3.26 (招待講演)
10. 上田 義勝, 京都大学アカデミックデイ:お茶を片手に座談会「トークライブ」, 「震災からの1年: 知の拠点たる「大学」がすべきこれからの仕事とは」, 京都, 2012.3.10 (招待講演)
11. 上田 義勝, 生存圏研究所の東日本大震災以後の福島県の現状及び支援の取り組みについて, 生存圏だより, no. 10, 2012.3
12. 上田 義勝, 福島県農業総合センターの土壌等に関する放射能汚染状況とその除染手法に関する検討, 平成23年度放射性同位元素センター実験室利用成果発表会, 京都, 2012.2.20 (招待講演)
13. 藤村 恵人, 上田 義勝, 水田における放射性物質の動態(2)排水のトラップによる放射性物質の除去技術, 第5回放射性物質試験研究課題に関する検討会, 福島, 2012.1.13 (招待講演)
14. 上田 義勝, 徳田 陽明, 農業総合センターとの連携研究 (土壌・森林の除染について), 第191回生存圏シンポジウム 東日本大震災以後の福島県の状況及び支援の取り組みについて, 2012.1.6 (招待講演)
15. 上田 義勝, 徳田 陽明, 農業総合センターとの連携研究 (土壌・森林の除染について), 第191回生存圏シンポジウム 東日本大震災以後の福島県の状況及び支援の取り組みについて 要旨集, 2012, P.13-28
16. 知的財産(特許) 特願2012-000763 「放射性物質汚染物の汚染除去方法, 2012.1
17. 上田 義勝, 農業総合センター内のホットスポットとその洗浄についての検討, 第4回放射性物質試験研究課題に関する検討会, 福島, 2011.11 (招待講演)
18. 藤村 恵人, 上田 義勝, 稲ワラ焼却による放射性セシウム量の変化について, 第4回放射性物質試験研究課題に関する検討会, 福島, 2011.11 (招待講演)
19. 上田 義勝, 福島県における農業可能用地の土壌汚染調査とその対策について, 第8回京大生存圏研究所公開講演会, 2011.10.23 (招待講演)
20. 上田 義勝, 福島県下における土壌・水質汚染の実地調査と放射性核種の高速除去技術の実証研究, 生存圏研究所第134回定例オープンセミナー, 2011.9.14 (招待講演)
21. 古屋仲 秀樹, 上田 義勝, 福谷 哲, 徳田 陽明, 放射性廃液の浮選法による処理技術、ならびに防腐処理木材の安全なリサイクル技術, 環境資源工学会シンポジウム「リサイクル設計と分離精製技術 第23回 震災廃棄物のリサイクルのための分離精製技術, 2011.9 (招待講演)
22. 上田 義勝, 徳田 陽明, 古屋仲 秀樹, 福谷 哲, 福島県下の土壌汚染の現地調査と合理的な放射性核種除染手法の検討 - 総長裁量経費による活動報告 -, 第187回生存圏シンポジウム 東日本大震災復興に向けた生存圏科学, 2011.8.30 (招待講演)
23. 上田 義勝, 福島県下の土壌汚染の現地調査と合理的な放射性核種除染手法の検討, 京都大学シンポジウムシリーズ I - II「大震災後を考える」 京都大学発・

新技術セミナー「土壌・水質汚染の実態と放射性核種の高速除去」，東京，2011.8
（招待講演）

24. 上田 義勝，放射性物質の除去・低減技術の開発状況について，農業分野における放射性物質試験研究課題成果説明会（第1回），福島，2011.8（招待講演）
25. 上田 義勝，福島県下における土壌・水質汚染の実地調査と放射性核種の高速除去技術の実証研究，第1回放射性物質試験研究課題に関する検討会，福島，2011.7（招待講演）
26. 上田 義勝，汚染土壌から長寿命放射性核種の高速除去を目的としたフロテーション法および吸着法の有効性を調査・実証するための実装活動，緊急に取り組む試験研究課題検討会，福島，2011.5（招待講演）

超高層大気観測用超小型衛星群の設計

山本 衛

京都大学・生存圏研究所

1. 研究組織

代表者氏名：山本 衛（京都大学・生存圏研究所）

共同研究者：斎藤昭則（京都大学・理学研究科）

坂野井健（東北大学・理学研究科）

Roland Tsunoda（米国 SRI International）

Sri Kaloka（インドネシア航空宇宙庁）

Timbul Manik（インドネシア航空宇宙庁）

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

キーワード：大気圏、宇宙圏、宇宙天気

ミッション1：環境計測・地球再生、ミッション3：宇宙環境・利用

3. 研究概要

当研究所ではMUレーダー、赤道大気レーダー（Equatorial Atmosphere Radar; EAR）[1]を中心とし、国内外の大学・研究機関と協同して地球大気の地上観測網を設置し研究を推進してきた。EARは2001年の完成から現在まで、インドネシア航空宇宙庁（LAPAN）を運営のカウンターパートとし、赤道大気の長期連続観測を実施してきた。現在は、文部科学省科学技術戦略推進費（国際共同研究の推進）「インドネシア宇宙天気研究の推進と体制構築」（平成22～24年度の3年計画）（以下では「インドネシア宇宙天気」と呼ぶ）を得て超高層大気の研究を推進している。

インドネシアを初めとする東南アジア地域で超高層大気を共同研究する上で最近感じられるのが、各国の宇宙開発への熱意である。当研究所では地上観測網を中心として大気研究を推進してきたが、これを一段と発展させる手段として超小型衛星を活用することを考え始めた。一方でLAPANは同国の宇宙開発を推進中であり、衛星の活用方法を求めている。そこで本課題では、超小型衛星を用いた超高層大気観測を新しい研究シーズとして捉え、LAPANと共同で実現可能な計画を策定する。具体的には、SATREPS（地球規模課題対応国際科学技術協力）[2]に提案することを目指している。更に本課題は、例えば新しい環境観測衛星構想に発展することもあり得る。つまり本課題は、当研究所全体にとっても新しい研究シーズ開拓としての重要性が高いと考えられる。

4. 研究の背景と目的

「宇宙天気」は超高層大気から地球周辺の宇宙空間の環境を研究し予報を目指す領域であり、通信・測位・環境計測・資源探査・科学研究等を支える衛星システムの安定に資する。インドネシア共和国は、赤道全周の 1/8 にわたる領域に分布する広大な島嶼国であるため、通信や衛星システムの重要性には言を待たない。地方間の通信は今でも短波通信に頼る部分が多く、古典的な問題も残っている。そのため宇宙天気に対する関心が政府レベルで高まっている。これに対応して LAPAN は宇宙天気研究を全力で推進し始めている。この宇宙天気研究に対する熱意の高まりと EAR という優れた観測装置を用いた研究成果を背景として、当研究所は、名古屋大学太陽地球環境研究所（略称 STEL）および（独）情報通信研究機構（略称 NICT）とともに、LAPAN をカウンターパートとする研究プロジェクト「インドネシア宇宙天気」を推進してきた[3]。このプロジェクトは終了を間近に控え、将来への展開を構想するべき時期となっている。本課題はこのような状況で構想されたものであり、超小型衛星を活用した超高層大気の観測計画の策定を目的としている。

5. 研究の結果および考察

赤道大気レーダーの長期連続観測

EAR はこれまで対流圏・成層圏下部の観測を連続的に行ってきた。超高層大気の長期連続観測は 2010 年 7 月に開始された。新しい観測モードは、電離圏観測と大気風速観測を組合せたものである。図 1 に EAR 観測開始から現在（2012 年 12 月）までの観測状況を示す。色の付いている部分が観測期間であり、薄い色が大気風速観測、濃い色が電離圏を含む超高層大気観測に対応している。白く抜けているところは欠測期間である。EAR の観測は初期には大気風観測を中心として実施され、徐々に超高層大気の観測が増えてきた。新しい観測モードが開始された後はほぼ全期間にわたって超高層大気を観測している。現在は欠測期間がほぼなくなった。更にデータの公開を順次進めてきた点を考慮すると、EAR による長期連続観測は高い水準で成功を収めてきたといえる。

宇宙天気の観測強化とデータ収集

「インドネシア宇宙天気」では EAR 以外の観測増強も目指している。そのうちデジタル衛星ビーコン観測網[4]は、図 2 に示す通りこれまで順調に拡張されてきており、アフリカから太平洋に至る広い経度範囲の低緯度域で約 20 点に達している。また STEL による EAR とタイ・チェンマイにおける大気光ファブリペロー分光計観測、NICT による SEALION 観測網も維持発展している。つまり東南アジア域を中心とする地上観測網は順調に強化されつつある。

低緯度赤道域の電離圏研究

「インドネシア宇宙天気」では関連する多くの論文が公表されつつある。ESF の発生原因のひとつとして、電離圏下部が東西方向に波長数百 km で波状構造を示す、Large Scale Wave Structure (LSWS)が注目されている。GRBR 観測網と低緯度電離圏観測衛星 C/NOFS からのビーコン電波を地上の GRBR 観測網で受信することで LSWS が検出可能であり、これと ESF の関連に関する論文が多く公表されている[5]。我々の衛星ビーコン観測から、日没後に現れる波長数百 km の変動である LSWS に対応して ESF の発生を見いだした[6]。更に統計解析から、LSWS 振幅の増大と ESF 出現の対応関係が明らかになってきた。C/NOFS 衛星の直接観測と EAR 観測の組合せを用いて、太陽活動度の極小期に出現するとされる、夜半過ぎに発生する ESF についても研究成果が公表されている ([7], [8])。

インドネシアの宇宙天気サービスに向けた基盤整備

「インドネシア宇宙天気」の目的として、LAPAN の宇宙天気研究の向上とインドネシアにおける宇宙天気サービスの開始に向けた基盤整備を掲げた。このため毎年インドネシアにおいて国際ワークショップを開催している。第1回ワークショップの期間中にはアジア＝オセアニア地域の宇宙天気関係機関の協力について議論され、結果的に Asia-Oceania Space Weather Alliance (AOSWA)が形成された[9]。LAPAN にとっては各国の関係機関と協議する枠組みを得たことになる。第2回目は2011年9月に開催され、EAR 開設 10 周年の記念式典と同期することによって、インドネシア科学技術大臣や日本国大使（公使が代理）を初めとする来賓と約 200 名の参加者を得て成功を修めた。

宇宙天気研究の推進に向けて LAPAN 側も独自の努力を重ねている。国連が支援する宇宙天気研究の振興の枠組みとして、International Space Weather Initiative (ISWI) ([10])があり、毎年大学院生・若手研究者向けの ISWI スクールを開催している。LAPAN は独自に ISWI スクール (2012 ISWI & MAGDAS School) をインドネシアに誘致し 2012 年 9 月に開催した。以上に示すように、「インドネシア宇宙天気」を契機として LAPAN 自身の宇宙天気研究は活性化されてきたといえる。

6. 今後の展開

超小型衛星で実現可能かつ科学目的に合致する観測項目は多くないが、「大気光イメージング観測衛星」「2周波ビーコン送信衛星」「GPS 掩蔽観測衛星」ならば実現可能ではないかと考えられる。本課題では、それぞれについて可能性を探る。まず「大気光イメージング観測衛星」については、研究班の斎藤と坂野井が主導して最近に国際宇宙ステーションに設置され観測が始まった ISS-IMAP を参考例とすることで、超小型衛星用センサーを具体的に検討することができる。「GPS 掩蔽観測衛星」についてはこれまで数多くの衛星が開発されていることから、本課題に適したシステムの選択は可能

ではないかと考えられる。「2周波ビーコン送信衛星」については、米国の Roland Tsunoda 博士が Cubesat 搭載を検討していることから、本課題への応用を考える。

本課題の採択は 2012 年 12 月であったため、年度内に残された時間は多くはない。しかしながら、例えば、すでに米国に出張して Tsunoda 博士と「2周波ビーコン送信衛星」について意見交換を実施した。「大気光イメージング衛星」については、ISS-IMAP のセンサー開発企業に検討させる。更に超小型衛星全体のシステムに関しても、これまでの調査から有力候補が浮上してきている。このように、本課題では短時間に効率よく検討を進めている。年度末には LAPAN を訪問する機会があるため、ぜひ本課題の成果をもとに建設的な議論を行いたいと考えている。

7. 引用文献

[1] 赤道大気レーダー (Equatorial Atmosphere Radar; EAR)

<http://www.rish.kyoto-u.ac.jp/ear/>

[2] SATREPS (地球規模課題対応国際科学技術協力), <http://www.jst.go.jp/global/>

[3] 科学技術振興調整費「インドネシア宇宙天気研究の推進と体制構築」

<http://www.rish.kyoto-u.ac.jp/isw/>

[4] GNU Radio Beacon Receiver (GRBR), <http://www.rish.kyoto-u.ac.jp/digitalbeacon/>

[5] Tsunoda, R. T., M. Yamamoto, T. Tsugawa, T. L. Hoang, S. Tulasi Ram, S. V. Thampi, H. D. Chau, and T. Nagatsuma, On seeding, large-scale wave structure, equatorial spread F, and scintillations over Vietnam, *Geophys. Res. Lett.*, **38**, L20102, doi:10.1029/2011GL049173, 2011.

[6] Sudarsanam, Tulasi Ram, M. Yamamoto, R. T. Tsunoda and S. V. Thampi, On the application of differential phase measurements to study the zonal large scale wave structure (LSWS) in the ionospheric electron content, *Radio Sci.*, **47**, RS2001, doi:10.1029/2011RS004870, 2012.

[7] Yokoyama, T., M. Yamamoto, Y. Otsuka, M. Nishioka, T. Tsugawa, S. Watanabe, and R. F. Pfaff, On post-midnight low-latitude ionospheric irregularities during solar minimum: 1. Equatorial Atmosphere Radar and GPS-TEC observations in Indonesia, *J. Geophys. Res.*, **116**, A11325, doi:10.1029/2011JA016797, 2011.

[8] Yokoyama, T., R. F. Pfaff, P. A. Roddy, M. Yamamoto, and Y. Otsuka, On post-midnight low-latitude ionospheric irregularities during solar minimum: 2. C/NOFS observations and comparison with Equatorial Atmosphere Radar, *J. Geophys. Res.*, **116**, A11326, doi:10.1029/2011JA016798, 2011.

[9] Asia-Oceania Space Weather Alliance (AOSWA), <http://aoswa.nict.go.jp/>

[10] International Space Weather Initiative (ISWI), <http://www.iswi-secretariat.org/>

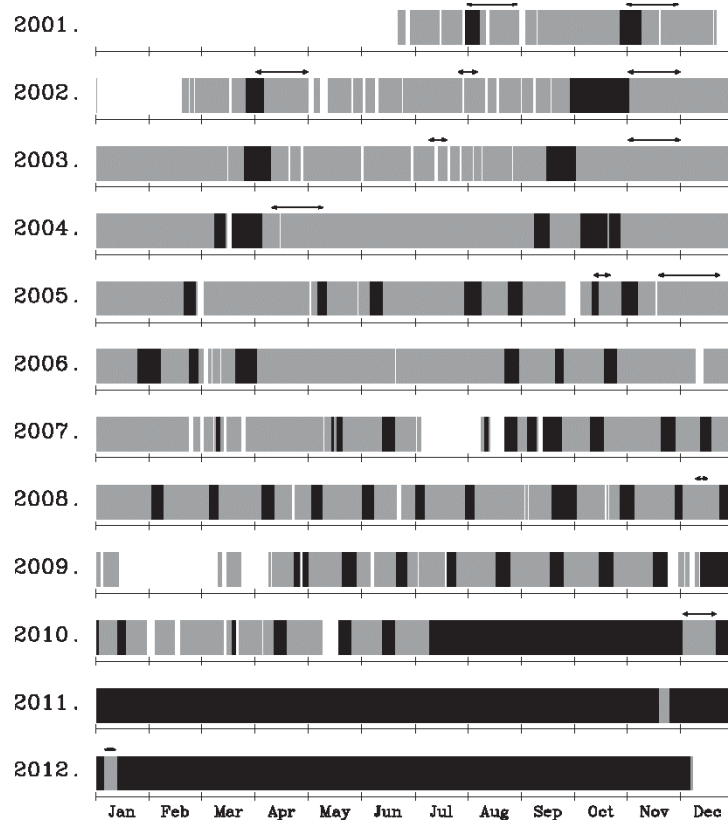


図1 EAR完成以来の観測状況。薄い色は大気風速観測モード、濃い色は電離圏を含む観測モードに対応している。2010年7月以降は本課題に関する観測を継続している。

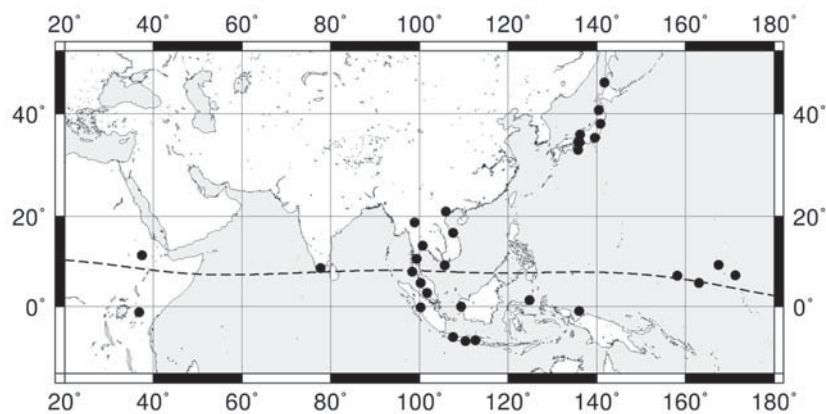


図2 衛星ビーコン受信機 GRBR 観測網の広がり。東南アジアを中心として低緯度地域に約 20 点、日本を含めると約 30 点に達している。
(図中の点線は磁気赤道を示す)

構造制御セルロースによる新規バイオマテリアル開発研究

今井 友也

京都大学・生存圏研究所

1. 研究組織

代表者氏名：今井友也（京都大学生存圏研究所）

共同研究者：杉山淳司（京都大学生存圏研究所）

堀川祥生（京都大学生存圏研究所）

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

セルロース生合成、膜タンパク質複合体、高次構造制御

ミッション1：環境計測・地球再生

ミッション4：循環型資源・材料開発

3. 研究概要

セルロースは、水系溶媒中では、複数のセルロース分子が集合した状態で通常存在する。高分子は一般に、その分子集合体の構造が変化すると、物性も様々に変化する。セルロースの場合、セロファンやレーヨンにその例を見ることができる。これらのセルロース材料は再生セルロースとも呼ばれ、セルロース（パルプ）の溶解・再生の過程を経て作られる。そして優れた透析能や、滑らかな光沢のある風合いなど、天然セルロースとは異なる性質を持つ。

一方、天然のセルロースは生物の細胞膜で合成される。そこには溶解・再生の過程は存在せず、高分子量化の過程の直後に構造形成過程が存在すると考えられている。そして大変興味深いことに、ほぼ例外なくI型結晶かつ微小繊維（マイクロファイブリル）の形態を持つことから、セルロース合成酵素には、特殊な構造形成機構が存在すると推察される。したがって、その機構の実体に変異を導入することができれば、分子集合構造の改変が原理上可能となる。そこで本研究課題では、組換え体セルロース合成酵素を使ったセルロース合成系の開発を行い、部位特異的変異を導入した合成酵素を使用することで、*de novo* 構造制御による新規セルロース性材料の開発を目指す。

また、自由な構造制御のためには、上述の「特殊な構造形成機構」を解明することが重要となる。そこで、セルロース合成酵素の生化学的・生物物理学的研究という観点も含めて、総合的に研究を進める。

4. 研究の背景と目的

天然セルロースは、変異体生物の作るケースを除けば、例外なくマイクロフィブリルという微小繊維として存在する。セルロース分子鎖の剛直な分子特性を考えれば、セルロースがこのような微小繊維として存在することは、一見、至極当然と考えられる。しかし、セルロースを人工合成した場合、そのほとんどにおいて、セルロースマイクロフィブリルは合成されず、セルロース II という非天然型の結晶構造を持つ凝集あるいは板状結晶が合成される（例えば文献 1 を参照、図 1 A）。したがって、セルロース生合成において、セルロースはその分子鎖特性に基づいて自発的にマイクロフィブリルとなるのではなく、セルロースをマイクロフィブリルとして作り上げる積極的なメカニズムが、生物には存在することが示唆される。

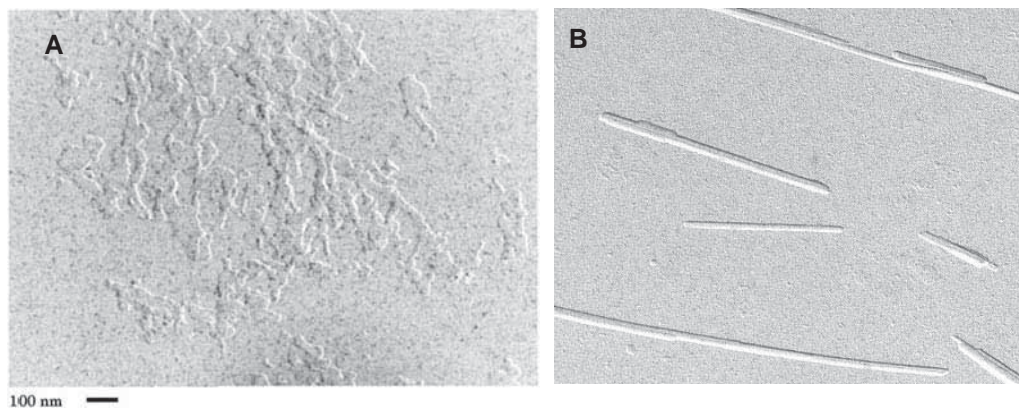


図 1 人工・天然セルロースの電子顕微鏡像

- A: 分解酵素の逆反応により人工合成したセルロース（文献 1 より引用）。
B: 天然セルロースの繊維（海藻の一種、バロニアの細胞壁由来）。希酸による加水分解で解繊したもの
両者ともシャドーイング法による観察像。倍率は A, B とも同じ。

この「積極的なメカニズム」の実体は、細胞膜に存在するセルロース合成酵素複合体である。より具体的には、セルロース合成酵素複合体の構造が、マイクロフィブリル形成のメカニズムの正体であると言える。したがって、この構造と機能を理解し、逆に利用することができれば、セルロースの構造をその形成段階で制御できる可能性が生じる。しかし、セルロース合成酵素は膜タンパク質複合体であり、研究対象として決して容易な対象ではない。

それでも、セルロース合成酵素の持つ構造制御機構を理解し、それを具体的に役立てるためには、合成酵素そのものの研究に取り組む必要があることに変わりない。我々の研究グループでは、この課題に正面から取り組み、組換え体セルロース合成酵素によるセルロース合成系・CESEC システム (CELLulose Synthesis in *E. coli*) の開発を進めている。そこで、CESEC を利用して、セルロース構造の制

御による新規セルロース材料開発を最終目的とした研究を提案する。

5. 研究の結果および考察

実験材料として、セルロース生産性細菌である酢酸菌のセルロース合成酵素を選択した。細菌であるために、取り扱いが楽である点と、セルロース合成に必要なサブユニットが、部分的だが特定されていることが選択の理由である。これらの必要サブユニットの大腸菌発現系を構築し、セルロースの大腸菌内合成（CESEC）に供した。未発表データであるため、詳細は割愛させていただく。

CESECは、組換え体合成酵素にセルロースを合成させることができる数少ない実験系の一つである。組換え体タンパク質を使用できるということは、タンパク質に望みの変異を入れた組換え体合成酵素の発現が可能であることを意味する。このことは、学術上大きな意味を持つが、それに加えて、部位特異的変異導入技術を使えば、構造形成過程に改変を入れた合成装置でセルロースを合成できることを意味する。つまり、セルロースに新規物性を付与できる可能性がある。以上から、応用の観点からも、CESECは大きなポテンシャルを持つ実験系である。

6. 今後の展開

セルロースを利活用するための研究は、現存するセルロースの超分子構造をどう活用するか、という観点で研究を進めるが、CESECシステムを使えば、セルロース合成の時点での構造制御が原理上可能となり、従来とは全く異なる性質（高撥水性等）をセルロース材料に付与できる可能性を持つ。「診断」という側面からの研究しかできなかったセルロース生合成研究を、「材料創製」へと展開できる点で画期的であり、新領域開拓を期待できる。

学術的には、本提案のように、セルロース合成酵素あるいは酵素反応そのものを分析する研究はあまり例がない。しかし合成酵素の三次元構造が解かれた²今、セルロース生合成の生化学研究は、今後短期間で熱い分野となることが予想され、CESECシステムはその中心として期待できる。さらに生存圏研究所で培われてきたセルロース構造解析のノウハウ（例えば文献3, 4）とリンクすることで、セルロース・バイオマス生合成研究の枢要として期待できる。非常に基礎的ではあるが、現在のミッションに欠けている課題である。

7. 引用文献

- 1) Kobayashi, S. *et al.*, *Biomacromolecules* **1**, 168-173 (2000)
- 2) Morgan, J.L.W. *et al.* *Nature* **493**, 181-186 (2013)
- 3) Imai, T., Sugiyama, J. *Macromolecules* **31**, 6275-6279 (1998)
- 4) Horikawa, Y., Sugiyama, J. *Biomacromolecules* **10**, 2235-2239 (2009)

木質系炭素電極を用いた静電容量型脱イオン法による土壌・地下水の放射性汚染低減のための新技術開発

畑 俊充

京都大学・生存圏研究所

1. 研究組織

代表者氏名：畑 俊充（京都大学・生存圏研究所）

共同研究者：本間千晶（北海道立総合研究機構林産試験場）

P. M. Biesheuvel（ワーゲニンゲン大学・環境技術科）

S. Porada（ワーゲニンゲン大学・環境技術科）

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

土壌・地下水、放射線汚染の低減、木質系多孔質炭素電極、静電容量型脱イオン法、放射性核種

ミッション1：環境計測・地球再生

ミッション2：太陽エネルギー変換・利用

ミッション4「循環型資源・材料開発」

3. 研究概要

東日本大震災以降の原子力発電事故により福島県やその周辺で広範囲に放射性物質が拡散し、生活圏に多大な影響が出ている。土壌や地下水中のセシウムのような放射性核種を減少させるため、イオン交換膜静電容量型脱イオン(MCDI)法を用いた放射性汚染の低減を提案する。MCDI法では海水からイオンを回収した後、電圧を減少することによってイオンを再回収し少量のイオンとして放出する。一方、多孔質炭素電極は再生され、再び使用に供することができるので新たな公害源とはならない。木質系多孔質炭素電極を静電容量型脱イオン法で用いる予備的検討として、木質多孔質炭素のイオン交換性とその結果としてできる金属錯体の微細構造を調べた。処理物表面にカルボキシル基等イオン交換性官能基が多量に存在しており、それらと鉛イオンが塩形成等により化学的に結合することが示された。セシウムイオンも同様に、熱処理物との錯体を形成していると考えられた。

4. 研究の背景と目的

東日本大震災以降の原子力発電事故により福島県やその周辺で広範囲に放射性

物質が拡散し、生活圏に多大な影響が出ている。除染のための努力が懸命に続けられているが、除染のために削り取られた表層土や化学処理後の廃棄液などが新たな公害源になるという問題がある。土壌・地下水の放射性汚染問題を解決することを目標に、土壌や地下水中のセシウムのような放射性核種を減少させるため、イオン交換膜静電容量型脱イオン(MCDI)法を用いた放射性汚染の低減を提案する。図 1 に MCDI 法で用いる単セルの模式図を示す。MCDI 法は海水淡水化において用いられる新しい電気化学的手法で、多孔質炭素電極を用いてセル電圧を印加した後に海水からイオンのみを除去することで、海水から淡水を得ることを可能にする画期的な手法である。海水からイオンを回収した後、電圧を減少することによってイオンを再回収し少量のイオンとして放出する。一方、多孔質炭素電極は再生され、再び使用に供することができるので新たな公害源とはならない。

一価と二価の塩の混合溶液から二価イオンを分離できることが既実証されており、環境に対する負荷が少なく放射性汚染の低減と人類の持続的生存の両方を満たす、理想的なシステムであるといえる。放射性汚染土壌・地下水では、セシウムのような一価の放射性化合物も存在しているが、電界効果に対して強く反応する二価または三価の化合物も存在する。放射性化合物のみをイオンの形で除去する方法は、放射性汚染土壌・地下水の水質改善上で極めて効率的である。一方、MCDI 法は海水の淡水化では実績があるが放射性汚染の低減に試みられたことはなく、木質系多孔質炭素電極の作製に研究代表者等がもつ炭素化技術を応用することで、MCDI 法の効果がより一層発揮される。

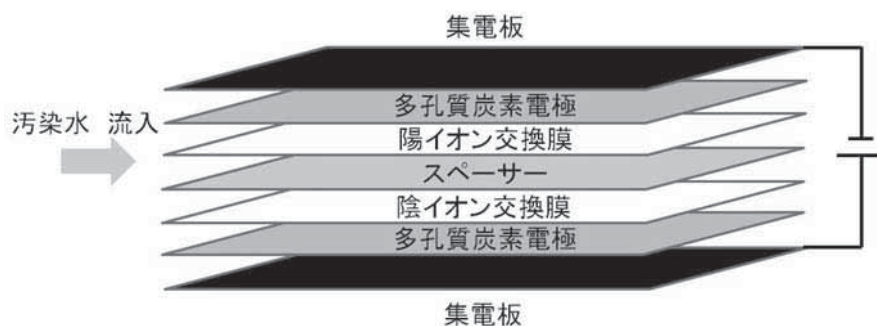


図 1 : イオン交換膜 CDI(MCDI)単セルの模式図

5. 研究の結果および考察

5.1 木質系多孔質炭素電極の合成

通電焼結法を用いて木質系多孔質炭素電極材料の合成を行った。通電焼結法では加熱速度、焼結時の圧力や温度を変化や触媒の選択により、木材炭素化物から種々の空

隙分布、比重、表面化学状態をもつ多孔質炭素電極材料を合成した。

5.2 木質系多孔質炭素のイオン交換性とその金属錯体の特性

木質系多孔質炭素電極を静電容量型脱イオン法で用いる予備的検討として、木質多孔質炭素のイオン交換性とその結果としてできる金属錯体の微細構造を調べた。木質系多孔質炭素、セルロース熱処理物およびその鉛錯体の FT-IR スペクトルおよび XPS 分析の結果、処理物表面にカルボキシル基等イオン交換性官能基が多量に存在しており、それらと鉛イオンが塩形成等により化学的に結合することが示された。セシウムイオンも同様に、熱処理物との錯体を形成していると考えられた。

6. 今後の展開

(ア) MCDI 法による放射性核種除去性能の評価

MCDI 法では電解の影響により、水中の陽イオンが空隙水路内に設置されたイオン交換膜を通して、隣接する多孔質炭素電極上に蓄積される。それと同時に陰イオンが対極上に蓄積されるというプロセスを通じ、セシウムなどのイオンが取り除かれ回収される。多孔質炭素電極上での反応は可逆的で、再利用が可能である。上記で得られた木質系多孔質炭素電極を用いた MCDI 法により、放射性核種であるセシウムなどを電気化学的に吸着除去する実験を行う。福島県周辺で採取される汚染地下水と類似のサンプル水を人工的に調整して単セルに吸入させる。イオン除去性能の向上のために賦活による活性化やカルボン酸基、アミノ基などの化学修飾を行い、電極に正または負の電荷を付与して検討する。木質系多孔質炭素電極の合成条件によるイオン除去性能の違いを調べる。

6.2 木質系多孔質炭素電極材料の物性評価

木質系多孔質炭素電極材料を熱分解ガスクロマトグラムマス(Py-GC/MS)、X線光電子分光分析法(XPS)、分析型透過電子顕微鏡(TEM-EELS)を用いて分析し、MCDI法による放射性核種除去性能が発現するメカニズムを調べ、木質系多孔質炭素電極の合成条件の最適化を試みる。

境界層レーダーLQ7の観測高度範囲拡大

橋口 浩之

京都大学・生存圏研究所

1. 研究組織

代表者氏名：橋口 浩之（京都大学 生存圏研究所）

共同研究者：山本 衛（京都大学 生存圏研究所）

山本 真之（京都大学 生存圏研究所）

川村 誠治（情報通信研究機構）

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

大気境界層、大気運動、大気質

ミッション1：環境計測・地球再生

3. 研究概要

地上から高度 2km 程度までの大気の最下層は大気境界層と呼ばれ、人間生活にも直接関係する重要な領域である。信楽 MU 観測所設置の境界層レーダーLQ7(図 1)は大気境界層を含む高度数 km までの風速を観測するための周波数 1.3GHz の小型レーダーである。雨や雲のない透明な大気の動きを知る上で有用であるため、新領域開拓研究の課題「大気質の安心・安全」の観測にも一部利用されているが、観測領域が地表に近いと、送信アンテナからほぼ横向きに漏れ出す弱い電波が周辺の山や建物に当たって強いエコー（クラッタエコー）を生じ、観測対象である大気乱流エコーを遮ってしまうという問題がある。本課題では、すでに利用が終わった情報通信研究機構の LQ7 用クラッタフェンスを信楽 MU 観測所に移設して、LQ7 の観測能力を向上させ、共同利用課題や「大気質」課題における大気微量成分の輸送の定量的把握に資することを目的とする。



図 1. 信楽 MU 観測所に設置の境界層レーダーLQ7

4. 実施内容

クラッタエコーは境界層レーダー観測では避けがたい問題であるが、うまく対策することによって観測高度範囲を拡大することができる。もっとも基本的な対策はレーダーの周囲にクラッタフェンスを設置することである。信楽 MU 観測所の境界層レーダーLQ7 は共同利用設備の一部であって様々な研究課題に活用されているが、クラッタフェンスが無いという問題点を抱えていた。本年 2 月 25 日に（独）情報通信研究機構において利用を終えた LQ7 専用クラッタフェンスを撤去し、翌 26 日に信楽 MU 観測所に搬入する。天候を見ながら 3 月に設置工事を実施する。

5. 期待される成果・今後の展開

上記の通り LQ7 は信楽 MU 観測所共同利用設備の一部であり、観測データは多くの研究者によって活用されている。クラッタフェンスの導入により観測可能最低高度を下げる事ができれば、地表近くを研究対象とする新領域開拓課題「大気質の安心・安全」の観測でもより有効に活用され、大気微量成分の輸送の定量的把握などが可能になると期待される。また、現在並行してソフトウェア無線技術を活用したコンフィギュラブル受信機の開発を行っており、図 2 に示すような信号処理をリアルタイムに実施可能となっている。これを利用することによりレーダーイメージングによる高分解能観測が可能になり、今後「大気質」課題の

観測でもこの技術を利用し、高度分解能が向上したより詳細なデータを取得できると期待される。

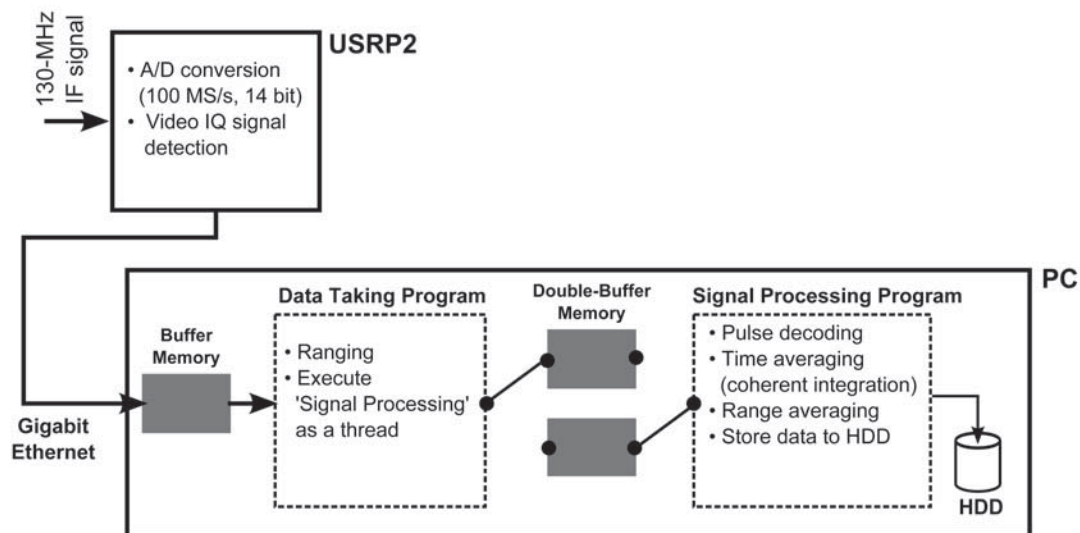


図 2. 新開発のコンフィギュラブル受信機におけるオンライン信号処理

6. 付記

関連業績

中城智之・小倉佑基・佐々木健治・齋藤陽一郎・橋口浩之・山本真之・山中大学・深尾昌一郎, 下部対流圏レーダーで観測された対流境界層の平均像とその季節変動について, 第26回大気圏シンポジウム講演集, 4-2, 相模原, 2012年3月1-2日.

Noor Hafizah Binti Abdul Aziz, M.K. Yamamoto, T. Fujita, H. Hashiguchi, and M. Yamamoto, Software Development for Wind Profiler Signal Processing Using Python with NumPy and SciPy, 第26回大気圏シンポジウム講演集, P-2, 相模原, 2012年3月1-2日.

川村誠治・橋口浩之・山本衛・東邦昭・足立アホロ・梶原佑介・別所康太郎・黒須政信, 航空安全運航のための次世代ウィンドプロファイラによる乱気流検出・予測技術の開発, 第26回大気圏シンポジウム, 相模原, 2012年3月1-2日.

H. Hashiguchi, K. Higashi, S. Kawamura, A. Adachi, Y. Kajiwara, K. Bessho, M. Kurosu, and M. Yamamoto, Development of turbulence detection and prediction techniques with wind profiler radar for aviation safety, Abstracts: The 13th Workshop on Technical and Scientific Aspects of MST/ST Radar, Kuhlungsborn, Germany, March 19-23, 2012.

K. Higashi, J. Furumoto, and H. Hashiguchi, Measurements of wind variation in surface boundary layer with tilted 1.3GHz wind profiler, Abstracts: The 13th Workshop on Technical and Scientific Aspects of MST/ST Radar, Kuhlungsborn, Germany, March 19-23, 2012.

T. Nakajo, K. Sasaki, Y. Ogura, Y. Saito, H. Hashiguchi, M.D. Yamanaka, and S. Fukao, Vertical flow in atmospheric boundary layer observed by a lower troposphere radar under clear air condition, Abstracts: The 13th Workshop on Technical and Scientific Aspects of MST/ST Radar, Kuhlungsborn, Germany, March 19-23, 2012.

M.K. Yamamoto, H. Hashiguchi, Noor Hafizah Binti Abdul Aziz, Y. Wakisaka, and M. Yamamoto, Development of digital radar receiver using software-defined radio

- technique, Abstracts: The 13th Workshop on Technical and Scientific Aspects of MST/ST Radar, Kuhlungsborn, Germany, March 19-23, 2012.
- M.K. Yamamoto, H. Hashiguchi, M. Yamamoto, and S.Fukao, Observation of turbulence and clouds in the tropics by the Equatorial Atmosphere Radar, Invited talk, Abstracts: The 13th Workshop on Technical and Scientific Aspects of MST/ST Radar, Kuhlungsborn, Germany, March 19-23, 2012.
- 橋口浩之・山本衛・東邦昭・川村誠治・足立アホロ・梶原佑介・別所康太郎・黒須政信, 航空安全運航のための次世代ウィンドプロファイラによる乱気流検出・予測技術の開発, 日本地球惑星科学連合 2012年大会講演予稿集 PEM32-P27, 幕張, 2012年5月20-25日.
- 橋口浩之・田畑悦和・山本真之・山本衛・山中大学・森修一・柴垣佳明・下舞豊志・Fadli Syamsudin・Timbul Manik・Wahid Heryanto・Moch Ichsan・Ahmad Mudjahidin, 1.3-GHz ウィンドプロファイラネットワーク観測に基づくインドネシア海洋大陸における降水日変化の特徴, 日本地球惑星科学連合 2012年大会講演予稿集 MIS29-P06, 幕張, 2012年5月20-25日.
- Noor Hafizah Binti Abdul Aziz・山本真之・藤田俊之・橋口浩之・山本衛, 小スケール乱流検出用 UHF 帯大気レーダーにおける信号処理ソフトウェアの開発, 日本地球惑星科学連合 2012年大会講演予稿集 MIS29-P05, 幕張, 2012年5月20-25日.
- 中城智之・橋口浩之・山本真之・山中大学・深尾昌一郎, 下部対流圏レーダーで観測された大気境界層の平均像と季節変動について, 日本地球惑星科学連合 2012年大会講演予稿集, 幕張, 2012年5月20-25日.
- 東邦昭・古本淳一・橋口浩之, 傾斜型 1.3GHz ウィンドプロファイラを用いた接地境界層の面的観測, 日本地球惑星科学連合 2012年大会講演予稿集 MIS29-P12, 幕張, 2012年5月20-25日.
- Noor Hafizah Binti Abdul Aziz, Masayuki K. Yamamoto, Toshiyuki Fujita, Hiroyuki Hashiguchi, and Mamoru Yamamoto, Development of Signal Processing Software for New Turbulence Profiler Radar, 日本気象学会 2012年度春期大会講演予稿集 P145, つくば, 2012年5月26-29日.
- 山本真之・藤田俊之・Noor Hafizah Binti Abdul Aziz・橋口浩之・山本衛, 突風災害の低減に向けた小スケール乱流検出手法の開発, 日本気象学会 2012年度春期大会講演予稿集 P146, つくば, 2012年5月26-29日.
- 藤田俊之・Noor Hafizah Binti Abdul Aziz・山本真之・橋口浩之・山本衛, Configurable なレーダー用デジタル受信機の開発, 日本気象学会 2012年度春期大会講演予稿集 P147, つくば, 2012年5月26-29日.
- 東邦昭・古本淳一・橋口浩之, 傾斜型ウィンドプロファイラと LES を組み合わせた境界層の数値シミュレーション, 日本気象学会 2012年度春期大会講演予稿集 P132, つくば, 2012年5月26-29日.
- 東邦昭・古本淳一・橋口浩之, 傾斜型ウィンドプロファイラと LES による境界層の数値シミュレーション, 第6回 MU レーダー・赤道大気レーダーシンポジウム報告書, 宇治, 2012年8月30-31日.
- 藤田俊之・山本真之・Noor Hafizah Binti Abdul Aziz・橋口浩之・山本衛・Tian-You Yu, ソフトウェア無線技術を用いたレーダー用受信機の開発, 第6回 MU レーダー・赤道大気レーダーシンポジウム報告書, 宇治, 2012年8月30-31日.
- 山本真之・Noor Hafizah Binti Abdul Aziz・藤田俊之・橋口浩之・山本衛, High Range Resolution Measurement of Wind and Turbulence Using Range Imaging and Oversampling, 第6回 MU レーダー・赤道大気レーダーシンポジウム報告書, 宇治, 2012年8月30-31日.
- 橋口浩之・山本衛・東邦昭・川村誠治・足立アホロ・梶原佑介・別所康太郎・工藤淳・岩淵真海・黒須政信, 航空安全運航のための次世代ウィンドプロファイラによる乱気流検出・予測技術の開発, 第6回 MU レーダー・赤道大気レーダーシンポジウム報告書, 宇治, 2012年8月30-31日.
- 梶原佑介・橋口浩之・足立アホロ, 晴天乱気流検出に必要なウィンドプロファイラの感度の考察, 日本気象学会 2012年度秋期大会講演予稿集 B111, 札幌, 2012年10月3-5日.

山本真之・藤田俊之・Noor Hafizah Binti Abdul Aziz・橋口浩之・山本衛, 1.3GHz 帯レンジイメージングウィンドプロファイラーの開発, 日本気象学会 2012 年度秋期大会講演予稿集 B112, 札幌, 2012 年 10 月 3-5 日.

Noor Hafizah Binti Abdul Aziz¹, Masayuki K. Yamamoto, Toshiyuki Fujita, Hiroyuki Hashiguchi, Mamoru Yamamoto, Development of Signal Processing Software for Radar Range Imaging, 日本気象学会 2012 年度秋期大会講演予稿集 P313, 札幌, 2012 年 10 月 3-5 日.

川村誠治・橋口浩之・山本衛・東邦昭・足立アホロ・梶原佑介・別所康太郎・黒須政信, 次世代ウィンドプロファイラ・プロトタイプの開発, 地球電磁気・地球惑星圏学会第 131 回講演会, B005-P008, 札幌, 2012 年 10 月 20-23 日.

藤田俊之・山本真之・Noor Hafizah Binti Abdul Aziz・橋口浩之・山本衛・Tian-You Yu, コンフィギュラブルな大気レーダー用デジタル受信機の開発, 電子情報通信学会技術研究報告 SANE2012, 千葉, 2012 年 11 月 30 日.

梶原佑介・橋口浩之・山本衛・東邦昭・川村誠治・足立アホロ・別所康太郎・工藤淳・岩渕真海・黒須政信, ウィンドプロファイラによる晴天乱気流の検出を目指して, 第 7 回航空気象研究会, 東京, 2013 年 1 月 31 日.

マイクロ波による瓦礫中の有害物質迅速処理 —アスベスト飛散とダイオキシン発生防止—

篠原 真毅

京都大学・生存圏研究所

1. 研究組織

代表者氏名：篠原 真毅（京都大学・生存圏研究所）

共同研究者：樫村 京一郎（京都大学・生存圏研究所）

佐藤 元泰（中部大学・工学部）

吉川 昇（東北大学・環境科学研究科）

堀越 智（上智大学・理工学部物質生命理工学科）

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

フラッグシップ共同研究「バイオマス・物質変換のためのマイクロ波高度利用共同研究」に関連する。

キーワード：マイクロ波利用、マイクロ波化学、災害復興

3. 研究概要

本研究は生存圏研究所のフラッグシップ共同研究「バイオマス・物質変換のためのマイクロ波高度利用共同研究」に関連し、今年度から京都大学、中部大学、東北大学、上智大学らの研究グループで環境省環境研究総合推進費による研究事業「マイクロ波による瓦礫中の有害物質迅速処理—アスベスト飛散とダイオキシン発生防止—」として推進したものである。本研究はマイクロ波加熱炉による、瓦礫の無害化・再資源化処理に関する研究である。東日本大震災で発生した瓦礫は、セメント、木材、および、プラスチック、有機物・金属などに、大量の塩分(海水由来)が含まれおり、これらの混在物をマイクロ波で1050℃にまで加熱することで以下の効果を期待する。

- (1) 無害化を促進、コンクリート廃材再生可能なセメント原料および安全な埋め立て用資材化する。コンクリート廃棄物に含まれるアスベスト類を加熱処理することで、再生セメント原料や二次汚染を気にすることのない埋め立て用の資材にする
- (2) 利用不可能な木材・燃料，即ちハイブリッド加熱処理の前段燃焼炉熱源として活用する。
- (3) 非飛散性アスベストの無害化・塩分含有有機物の燃焼によって生じるダイオキシンを迅速に無害化する。

(4) 事例の緊急に鑑み、法令と関連当局の認可のもとに、迅速に無害化処理を開始し、その有効性を実証する。

本計画では、これまでに研究者らが実証してきた新技術を結集し、高効率で迅速に廃棄物を無害化・減容できる設備を構築運用するための研究である。

4. 研究の背景と目的

津波によって倒壊し流された瓦礫には、法令で規定された有害物質が、混入していることは各種の調査で判明している。特に、アスベスト繊維強化スレート波板およびスレート瓦の粉碎断面、配管等断熱材からアスベスト繊維が露出しており、迅速拡散防止が必要である。しかし、これらは断熱性、耐熱性が高く熱伝導率が小さいため、従来の方法では塊を均一に加熱処理するには長い時間が必要である。これをマイクロ波加熱を用いることで迅速化し、同時にエネルギーコストの向上を図る(図1)。マイクロ波による加熱を用いれば、東日本大震災で生じた大量の瓦礫を迅速に無害化することが可能となる。マイクロ波はアスベスト塊の内部まで届き、主成分のセメントのカルシウムに強く吸収され、全体を均一・迅速に高温処理出来る。

本研究は既に得られたこれらの処理炉を改造して、東日本大震災関連の瓦礫中のアスベスト含有セメント無害化処理、再利用不可能な高濃度塩分含有木質系廃材・廃プラスチックの無害燃焼による減容を迅速処理を実証するものである。一連の工程で、セメントが 1050℃以上に加熱され、アスベストが無害化すると共に、マイクロ波の電磁界および高温のセメントとの接触によって、ダイオキシンが分解される。さらに、排ガスに高性能集塵機・2次燃焼器を接続し、有害成分を大気中に排出しない二重の安全対策を施す。

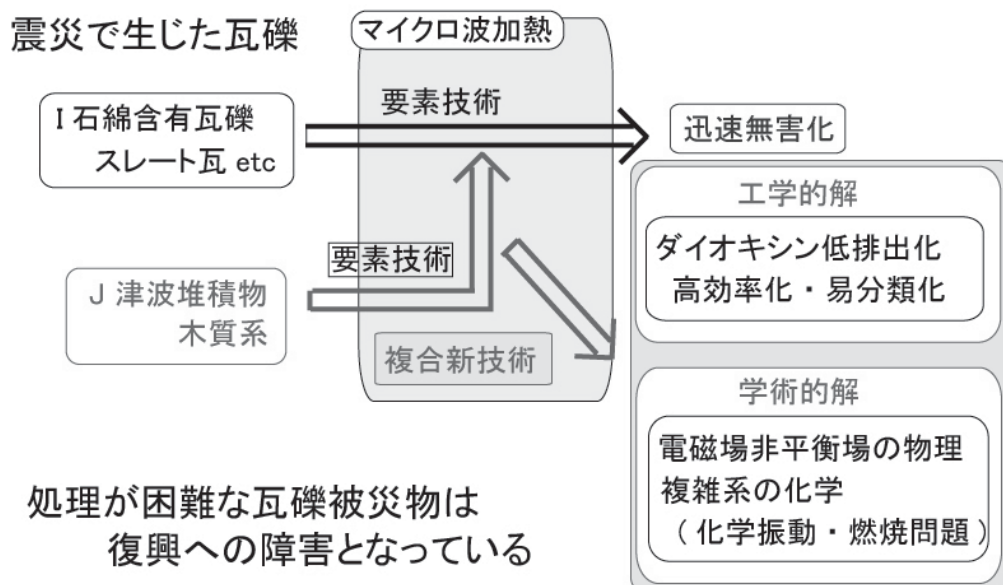


図1 本研究の概要

5. 研究の結果及び考察

開発した炉を用いて 2012 年 12 月から 2103 年 2 月に実証実験を実施した。その結果、2 トン以上/日でのアスベスト無害化の実証に成功した。図 2(a)はマイクロ波処理前の瓦礫(スレート瓦)の顕微鏡写真、図 2(b)はマイクロ波処理後の顕微鏡写真である。分析手順は以下のとおりである。

a) アスベスト繊維の同定

アスベストの種類ごとに異なった染色液を使い、蛍光着色出来た繊維状の像をアスベストと認める。図 3(a)はクリソタイル(白石綿)に蛍光着色する顔料によって、紫色に蛍光を発している状態を示しています。

b) この蛍光着色した繊維の内、アスペクト比(長さ/直径の比)が、3以上の繊維を有害と見なす。法的にアスペクト比が3を下回ったものは無害となる。

c) 約 70 視野を覗き、アスベストをカウントする。

分析の結果、実験前のスレート瓦のアスベスト含有量は約 12%、実験後の含有量は 0.07%と大幅に減少し、無害化に成功した。

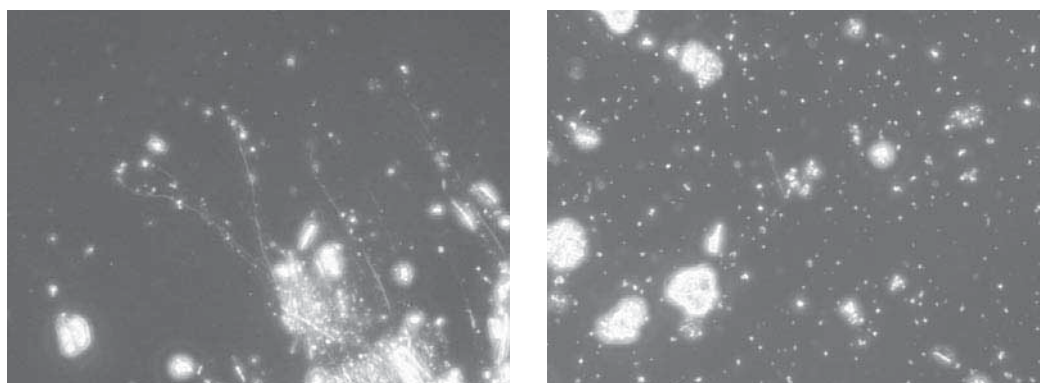


図 2 (a) マイクロ波処理前の瓦礫の顕微鏡写真 (b) 処理後の顕微鏡写真

6. 今後の展開

本プロジェクトは 2014 年度までの 2 年間のプロジェクトであり、来年度はマイクロ波を用いると通常加熱よりも低温でアスベストが処理される科学に関し詳細を研究する。さらに本マイクロ波処理炉の事業化に向け、活動を加速する。

7. 付記

本研究成果は以下のメディアに取り上げられた。

- ・ '12.12.20 仙台放送 「スーパーニュース」
- ・ '13.1.27 NHK 教育 「サイエンス・ゼロ」
- ・ '13.2.15 日刊工業新聞 「震災がれき処理にマイクロ波が一役」
- ・ '13.3.11 テレビ朝日 「モーニングバード」(予定)

植物由来気体テルペンの酸性表面への沈着メカニズム

江波 進一

京都大学・白眉センター

1. 研究組織

代表者氏名：江波 進一（京都大学・白眉センター）

共同研究者：塩谷 雅人（京都大学・生存圏研究所）

高橋 けんし（京都大学・生存圏研究所）

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

大気質、大気圏、生物圏

ミッション1：環境計測・地球再生

3. 研究概要

地球の気候変動を正しく理解・予測するためには大気圏と生物圏の複雑な相互作用を解明する必要がある。生物圏から年間数百 Tg という膨大な量が放出されているテルペンは、その反応性の高さから容易に大気エアロゾルを生成し、また大気中の HO_x 濃度に重要な影響を与えている。しかし、その大気中の消失過程には未知のファクターが多い。近年、フィールド観測によって相当量のテルペンが植物表面に乾性沈着している可能性が示唆されている。この場合、現在見積もられているテルペンの放出量は過大評価されていることになる。筆者は新規気液界面反応測定装置を用いて、気体の α -ピネン、 β -ピネン、リモネンがどのように酸性表面に吸着・変質するかを調べた。その結果、これらのテルペンは pH4 以下の水の表面に吸着し、気液界面でオリゴマー化することが明らかになった。pH4 以下の弱酸性表面は実際の森林に存在しており、この反応が気体テルペンの未知のシンクになっている可能性がある。本研究で得られた取り込み係数から推測される実際の森林大気における影響度を評価した。

4. 研究の背景と目的

地球の気候変動を正しく理解・予測するためには大気圏と生物圏の複雑な相互作用を解明する必要がある。生物圏から年間数百 Tg（テラグラム）という膨大な量が放出されているテルペンはその反応性の高さから容易に大気エアロゾルを生成し、また大気中の HO_x 濃度に重要な影響を与えている。しかしその大気中の消失過程には未知のファクターが多い。例えば、植物から放出された量のどれくらいの割合が大気エアロゾルに変換されており、また乾性沈着などによって消失しているかといった定量的な情

報が欠如している。特に近年フィールド観測によって相当量のテルペンが植物表面に乾性沈着している可能性が示唆されているなど、いまだに不確定要素が多く残されている^{1,2}。具体的には Bamberger ら¹⁾はオーストリアの山岳地帯における気体テルペンの濃度変化をリアルタイムで測定することにより、草原がテルペンの未知のシンクになっている可能性を指摘した。彼らの結果が正しいとすれば、現在見積もられているテルペンの放出量は過大評価されていることになる。しかし、どのようなメカニズムで植物がテルペンを「再吸収」しているかについては今のところ全くわかっていない。テルペンの大気での消失過程を正確に理解するためには、植物表面への吸着メカニズムを分子レベルで解明し、その影響度を評価する必要がある。

5. 研究の結果および考察

筆者は独自に考案した気液界面反応測定装置を用いて気体の α -ピネン、 β -ピネン、リモネンがどのように酸性表面に吸着・変質するかを分子レベルで調べることに成功した^{3,4)}。この結果、これらのテルペンは pH4 以下の水の表面に吸着し、気液界面でオリゴマー化することが明らかになった(図1)。テルペンが強酸性条件の水溶液中でオリゴマー化することは知られている⁵⁾。今回、テルペンは水の表面では弱酸性(pH<4)の条件でオリゴマー化することが初めて明らかになった(図2)。これは弱酸性の水の最表面に存在する H_3O^+ イオンが気相の反応性を一部保持しているからであると考えられる^{6,7)}。本研究から得られたテルペンの pH2 程度の酸性表面への取り込み係数の下限値は 4.6×10^{-5} であり、この値から見積もられる典型的な森林大気における寿命は約1分以下であることがわかった。この酸性表面への乾性沈着による大気寿命は、気相における OH ラジカルやオゾンなどの酸化剤による消失過程に匹敵する。pH4 以下の弱酸性表面は実際の森林に存在しており⁸⁾、この反応が気体テルペンの未知のシンクに

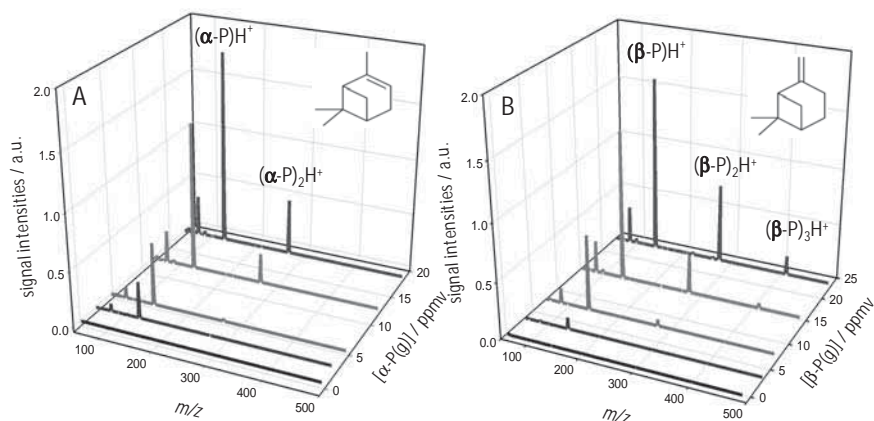


図1：新規界面反応測定装置で得られた酸性表面(pH 2.6)に吸着した α -ピネン(A)と β -ピネン(B)の質量スペクトル

なっている可能性が初めて物質界面の分子レベルで確かめられた。

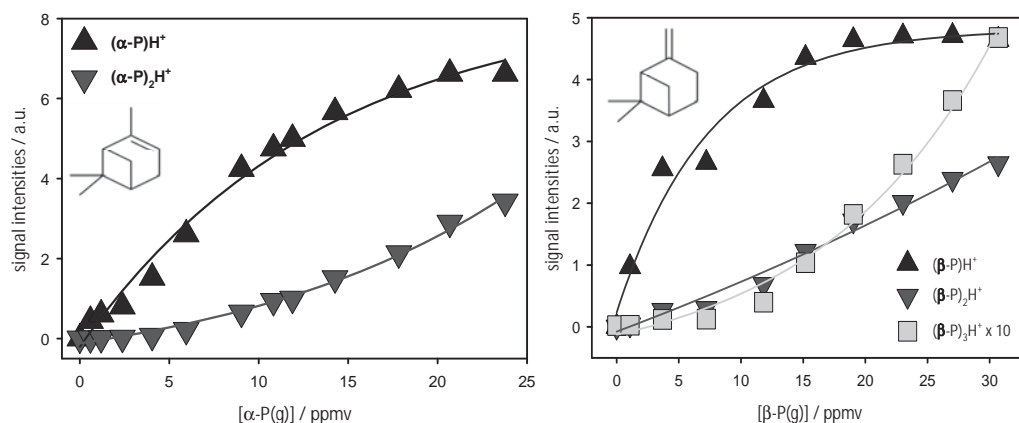


図 2 : 酸性表面に沈着した α -ピネンと β -ピネンがカルボカチオン（上向き三角）、ダイマー（下向き三角）、トリマー（四角）になる収率の気体濃度依存性

6. 今後の展開

筆者はこれまでにピネン、リモネンなどのモノテルペンの酸性表面への沈着メカニズムに関して研究を行ってきた。しかし、さらに大きい質量のセスキテルペンの酸性表面への沈着メカニズムに関しては、今のところほとんどわかっていない。 β -Caryophyllene などのセスキテルペンは一般的なモノテルペンよりもはるかに反応性が高いため、より効率的に酸性表面に吸着することが予想される。今後はこれらのセスキテルペンの酸性表面への吸着メカニズムの実験的解明を行い、森林大気への影響評価を行う予定である。

7. 引用文献

- 1) Bamberger, I.; Hortnagl, L.; Ruuskanen, T. M.; Schnitzhofer, R.; Muller, M.; Graus, M.; Karl, T.; Wohlfahrt, G.; Hansel, A. Deposition Fluxes of Terpenes over Grassland. *J. Geophys. Res.*, **116**, 10.1029/2010jd015457, 2011.
- 2) Karl, T.; Harley, P.; Emmons, L.; Thornton, B.; Guenther, A.; Basu, C.; Turnipseed, A.; Jardine, K. Efficient Atmospheric Cleansing of Oxidized Organic Trace Gases by Vegetation. *Science*, **330**, 816-819, 2010.
- 3) Enami, S.; Hoffmann, M. R.; Colussi, A. J. Dry Deposition of Biogenic Terpenes Via Cationic Oligomerization on Environmental Aqueous Surfaces. *J. Phys. Chem. Lett.*, **3**, 3102-3108, 2012.
- 4) Enami, S.; Mishra, H.; Hoffmann, M. R.; Colussi, A. J. Protonation and Oligomerization of Gaseous Isoprene on Mildly Acidic Surfaces: Implications for Atmospheric Chemistry. *J. Phys. Chem. A*, **116**, 6027-6032, 2012.

- 5) Liggio, J.; Li, S. M.; Brook, J. R.; Mihele, C. Direct Polymerization of Isoprene and Alpha-Pinene on Acidic Aerosols. *Geophys. Res. Lett.*, **34**, 10.1029/2006gl028468, 2007.
- 6) Enami, S.; Stewart, L. A.; Hoffmann, M. R.; Colussi, A. J. Superacid Chemistry on Mildly Acidic Water. *J. Phys. Chem. Lett.*, **1**, 3488-3493, 2010.
- 7) Enami, S.; Hoffmann, M. R.; Colussi, A. J. Proton Availability at the Air/Water Interface. *J. Phys. Chem. Lett.*, **1**, 1599-1604, 2010.
- 8) Sorgel, M.; Trebs, I.; Serafimovich, A.; Moravek, A.; Held, A.; Zetzsch, C. Simultaneous Hono Measurements in and above a Forest Canopy: Influence of Turbulent Exchange on Mixing Ratio Differences. *Atmos. Chem. Phys.*, **11**, 841-855, 2011.

熱帯早生樹の生理動態の全体論的把握

梅澤 俊明

京都大学・生存圏研究所

〒611-0011 京都府宇治市五ヶ庄

tumezawa@r ish. kyoto-u. ac. jp

1. 研究組織

代表者氏名：梅澤 俊明（京都大学・生存圏研究所）

共同研究者：鈴木 史朗（京都大学・生存圏研究所）

M d. マハブブルラーマン（京都大学・生存圏研究所）

柴田 大輔（かずさDNA研究所）

バンバン スビヤント（インドネシア科学院）

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

フラッグシップ

1：環境計測・地球再生

2：太陽エネルギー変換・利用

4：循環型資源・材料開発

3. 研究概要

化石資源の大量使用に基づく急激な地球環境の悪化や化石資源の枯渇予想により、エネルギー・食糧・工業原材料の供給を、環境保全及び経済成長との折り合いのもとに達成する方策の確立が今後の人類の生存に必須となっている。そして、この方策の確立こそ、生存圏科学に与えられた使命と言える。

化石資源に代わり、再生可能資源に対する依存度を上昇させることへの必然性は、既に世界的共通認識となっている。太陽エネルギーや風力エネルギーを始めとして、再生可能資源には様々なものがあるが、エネルギー供給に加え、炭素系工業原材料の供給が可能な植物バイオマス資源はとりわけ重要であり、その資源育成と有効利用システムの確立が、世界的に強く求められている。とりわけ、熱帯地域における樹木生長量は、温帯域のそれをはるかに上回っており、熱帯産業造林の持続的維持管理とそこで得られる森林バイオマスの効率的利用が、再生可能資源依存型社会において極めて重要となる。

以上に鑑み、京大生存圏研究所では、その発足と共に、国内外の研究機関と連携して、熱帯アカシアの持続的生産・利用に関する統合的・融合的研究（いわゆるアカシアプロジェクト）を推進し、さらにこのプロジェクトを生存圏フラッグシ

ッププロジェクト「熱帯産業林の持続的生産利用に関する多角総合的共同研究」として展開している。

本研究では、熱帯アカシア資源の持続的生産利用基盤の確立に向けたバイオテクノロジーの基盤構築のため、環境変動に対する早生樹の動態を遺伝子レベルで解析することを目的とした研究を実施する。

4. 研究の背景と目的

[背景]

熱帯地域における持続的な大規模産業造林は、持続的、循環的な木質バイオマス資源の生産基盤として、我が国の資源確保や地元住民の経済活動・福祉に大きく貢献している。その一方で、遺伝的多様性に乏しい限られた系統の連続的かつ土地集約的な植林に伴う「生産の問題」、土壌栄養分の短期収奪に関する「持続性の問題」、地域住民の生活保証や経済振興といった「社会問題」、木質資源の効率的な材料変換やエネルギー変換に関わる「利用の問題」など生存圏全体に関わる様々な課題が存在している。これらの課題の解決には従来の技術では不十分であり、関連学術基盤の深化に基づく圧倒的な技術革新が必須である。これらの課題解決に向け、生存圏研究所ではその発足とともに内外の研究機関と連携して、インドネシア南スマトラ州、リアウ州、マレーシアサバ州などの事業植林地をフィールドとして、大気圏・森林圏・人間生活圏の物質循環の精測を行い、それに基づき地域の環境を損ねることなく木質バイオマス資源生産の持続性と循環性を保証する方策を考えることを目的とした総合的研究を行ってきた。その結果、アカシア人工林の育成と利用に関して多くの個別プロジェクトが進行しそれぞれ成果を上げてきた。

[目的]

本研究の究極的な目的は、熱帯人工林資源の持続的生産利用基盤を確立することである。本年度の研究では、熱帯人工林資源の持続的生産利用基盤の確立に向けたバイオテクノロジーの基盤構築のため、環境変動に対する早生樹の動態を遺伝子レベルで解析することを目的とした研究を実施する。

5. 研究の結果および考察

本研究では、当初、形質転換アカシア等における遺伝子発現の網羅解析を近年急速に進展している次世代シーケンサー解析により集中的に検討する計画であったが、まずは比較対象における解析を行うこととした。すなわち、ゲノム情報が完備しているポプラを用い、アカシアと同様人工気象室内で生育させた個体につき、全発現遺伝子を抽出精製・安定化したのち、高性能次世代シーケンサー解析に供した。さらに、得られた遺伝子発現データをバイオインフォマティクスを用いて詳細に解析した。本解析は、共同研究者のかずさDNA研究所柴田大輔部長（生存圏

研究所客員教授) のグループの援助の下実施された。

6. 今後の展開

熱帯人工林の持続的生産利用には、技術革新に基づく経済性の向上が必須である。熱帯早生樹の目的適合型育種に対するバイオテクノロジーの基盤構築のため、環境変動に対する早生樹の動態を遺伝子レベルで解析することは必須である。本年度で得られた知見を比較対象として、熱帯アカシアなどの環境変動に対する生理動態解析を一層進展させる計画である。

バイオナノマテリアル共同研究

矢野 浩之

京都大学・生存圏研究所

1. 研究組織

代表者氏名：矢野 浩之（京都大学・生存圏研究所）

共同研究者：中坪 文明（京都大学・生存圏研究所）

阿部賢太郎（京都大学・生存圏研究所）

伊福伸介（鳥取大学・工学研究科）

能木雅也（大阪大学・産業科学研究所）

アントニオ・ノリオ・ナガイト（徳島大学大学院）

（他 20 名）

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

持続型資源、バイオマス材料、ナノ材料、千年居住圏

ミッション 4：循環型資源材料

3. 研究概要

今、世界中で、植物由来の高性能ナノ繊維：セルロースナノファイバー（CNF）に注目が集まっている。セルロースナノファイバーはすべての植物細胞の基本物質で、植物バイオマスの約半分を占める、ほぼ無尽蔵の持続型資源である。幅 10-20nm で均質で、植物が構造支持物質として進化の過程で獲得した伸びきり鎖による結晶構造は、セルロースナノファイバーに鋼鉄の 1 / 5 の軽さで、鋼鉄の 7 - 8 倍の強度という、優れた機械特性をもたらしている。精密部品や大型構造部材にとって重要な線熱膨張係数もガラスの 1 / 50 と極めて小さい。これまで我が国は、セルロースナノファイバーの製造と用途に関し世界をリードして多くの優れた研究成果を挙げてきたが、最近では、研究支援体制を整えた北欧、北米の国々に研究面、知財面で追い越されようとしている。中国のキャッチアップの速さも無視できない。一昨年からは、フィンランド、カナダ、米国の主導で ISO 化の議論も始まり、まさに、国家レベルでの競争の様相を呈している。本報告では、フラッグシップ共同研究の一環として昨年秋に行った国際シンポジウム「Nanocellulose Summit 2012」での情報や年末に行った北米調査の結果を踏まえ、セルロースナノ材料の研究開発動向を概観する。

4. 調査結果

ナノセルロースの研究グループ数はトロント大、Mohini 教授によれば、2003 年の時点では世界中で 10 にも満たなかったが、2007 年には北米だけで 30 以上になり、それが 2010 年には 200 に達し、現在では世界中で約 2000 ものグループが何らかの形でナノセルロース材料に関する研究に関

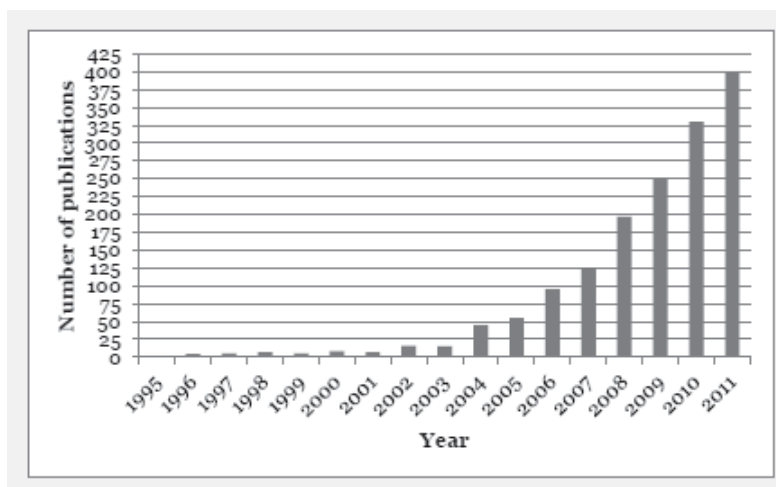


図 1 ナノセルロース研究の動向 Future Market

わっているという。近年の研究グループ数の伸びは目覚ましい。米国の調査機関 FutureMarkets, Inc の調査では、論文数も 2004 年以降、急激に増えている (図 1)。

最初のセルロース系ナノ材料の開発は 1987 年に遡る。セルロースナノウisker (セルロースナノクリスタル) によるポリスチレンやポリプロピレンの補強である。まだ、当時はナノコンポジットという概念が確立されておらず、高強度・高弾性のナノウisker を用いたことの特徴が見いだせないままに、研究は終了したようである。ウisker 補強の優れた特性が最初に明らかになったのは、1995 年にフランス、グルノーブルのセルロース研究者グループ (CERMAV、他) が報告したナノウisker とラテックスの複合材料 (ウisker 量: 3-10wt%) である。同グループは、その後、50 を超える論文を発表しているが、多くは、柔らかなマトリックスを剛直なナノウisker のネットワークで補強するという考えに基づくもので、パーコレーション理論の適用可能な複合材料である。少量のナノウisker 添加で T_g より高温側での弾性率低下が大きく抑制されることを特徴としている。

この様なナノウisker 研究とは独立して、京都大学・矢野グループは 1996 年頃からセルロースナノファイバーの高強度を活かした材料の開発を進め、マイクロファイブリル化セルロースを基本エレメントとするナノコンポジットの開発に辿り着いた。2001 年に高強度ナノセルロース材料に関する特許が出願されている。本技術をベースに京都市産業技術総合研究所と共同で、2005 年度-2006 年度にかけて経済産業省地域新生コンソーシアムで、セルロースナノファイバー材料の製造と利用に関するプロジェクトを行った後、2007 年度-2009 年度に大手製紙会社 2 社と大手化学会社 3 社と共同で NEDO 大学発事業創出プロジェクトにおいて、セルロースナノファイバーで強化したポリプロピレン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ゴム材料の商品化を目指して研究開発を進めた。続いて、2010-2012 年度に NEDO グリーン・

サステイナブルケミカルプロセス基盤技術開発プログラムにおいて、製紙会社、化学会社とともにセルロースナノファイバー強化による自動車用高機能化グリーン部材の研究開発を自動車メーカーや自動車部材メーカーをアドバイザーに加えて進めている。並行して、矢野らは、ナノファイバーの特徴を活かした透明材料を世界で初めて開発し2003年に特許出願をしている。本技術については、2010年より三菱化学と王子製紙が事業化に向けた共同研究を進めている。

世界のナノファイバー研究に大きなインパクトを与えた研究として、東大・磯貝教授らのグループによる2007年のTEMPO酸化によるシングルセルロースナノファイバー製造技術の開発がある。水系常温常圧での触媒酸化により、セルロースナノファイバー表面にのみ高密度でマイナス荷電を有するカルボキシル基を導入することで、均一なナノファイバーを簡単に得ることが出来る。このことからTEMPO酸化セルロースナノファイバーは世界中に急速に広まり、いまや代表的なセルロースナノファイバーとなっている。磯貝教授の技術をベースに、日本製紙は、花王、凸版印刷と共に、セルロースナノファイバー材料のコーティング素材としての実用化をNEDO ナノテクチャレンジプログラムの支援で目指している。

セルロースナノファイバーの構造用途への利用、エレクトロニクスデバイスへの利用は、日本発の技術である。均一なナノファイバーの分離においても日本の技術が世界をリードしている。しかしながら、昨今の欧米諸国での急速な研究展開を見ると、日本の優位性は、知財と基盤技術において一気に失われそうである。

世界の主要な研究拠点について図2に示す。多くが北米、北欧に集中しているが、

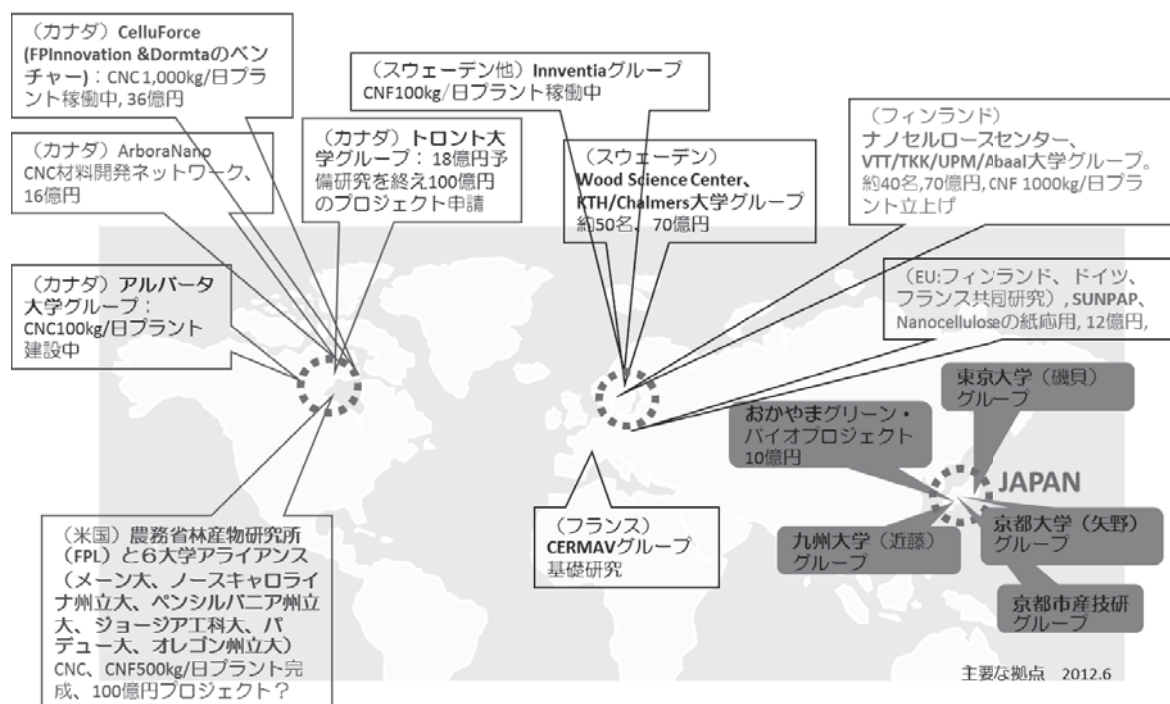


図2 世界の主要なナノセルロース研究拠点

中国も多額の研究資金が複数の大学に投入されており研究が急激に活発化しており、今後の動きが見逃せない。

フィンランドとスウェーデンは、ともに豊富な森林資源を有し、紙・パルプ産業が国の基幹産業である。両国は、セルロースナノファイバーの高いポテンシャルにいち早く注目し、3年間の予備的研究を共同で行った後、フィンランドは2008年2月に、また、スウェーデンは2009年の2月に、それぞれ独立して10年間、5000万ユーロ（当時の換算レートで約70億円）の大型プロジェクトを立ち上げた。森林資源を石油資源代替とすべく、木材からのセルロースナノファイバーやリグニンの分離、その化学変性、再構築技術の開発に最先端の技術を駆使して取り組んでいる。さらに、フィンランドは、ナノセルロースの製造と並行して、その利用に関する研究をSUNPAPというドイツやフランスの企業、研究機関とのEUプロジェクトにおいて展開している。

カナダは、3年ほど前から国や州政府の全面的な支援、資金提供のもと、ナノセルロースの供給ならびに用途特許の確保に向けた体制づくりを戦略的に進めてきた。林産物研究所と紙パルプ研究所が統合してできたFPInnovationという研究機関がリードして、セルロースナノクリスタルの製造プラント（日産1トン）を、1年半の建設期間を経て今年1月に完成させた。36億円の経費はカナダ政府およびケベック州政府から出資されている。また、2011年からArboraNanoというFPInnovation主導の組織が、15億円の資金（政府7.5億円、民間7.5億円）を基にナノセルロース材料の用途開発に関し25の研究プロジェクトを採択し、推進している。

アメリカは、政府資金により農務省林産物研究所が、メイン大学、ペンシルバニア大学、等、7大学とアライアンスを組んで、ナノセルロース材料の実用化に取り組んでいる。農務省林産物研究所やメイン大学にセルロースナノファイバーやナノクリスタル製造プラントを完成させ、企業に供給することで用途開発を積極的に進めている。

この様に川上と川下が連携して動くことで、今後、北米、北欧から多くの知財が出てくることと思われる。現在、日本は、ナノセルロース材料の研究では、北米、北欧に負けていないが、将来的にはこれらの知財により日本の企業は大変厳しい状況に置かれるものと推察される。持続的バイオマス資源に基づく高機能グリーン材料により我が国産業基盤の強化、海外展開支援を行う上で、待ったなしの状況といえる。

セルロースナノ材料の事業化において、川上側からの材料供給体制の強化を第1の柱、川下側におけるその用途開発を第2の柱とすれば、それをつなぐ第3の柱がセルロースナノ材料の国際標準化である。昨年カナダ、米国、フィンランドの主導で北米紙パルプ技術協会（TAPPI）を核にセルロースナノ材料の国際標準化に

向けた活動が始まった。ナノ材料を扱う ISO TC229 におけるナノセルロース作業部会設置の提案である。米国、カナダ、フィンランドの研究機関が共同で提案するナノセルロース国際標準化の枠組みには、1) すべての原料からナノセルロースを含有する製品までのセルロースナノ物質(Nanoscale objects)を含む、2) ナノセルロースおよびナノセルロースを含有する製品の全てのサプライチェーンとその製造から廃棄を含む、3) ナノセルロースおよびナノセルロースを含有する製品の研究開発、加工、輸送、ハンドリング、試験および評価において、ナノスケールであるか否かに関わらず、関連する事象、プロセスおよび装置を含む、としている。その中で、カーボンナノチューブやフラーレン、ナノクレイといった TC229 で議論されている他のナノ物質と同様に、「用語・命名法」、「計測・キャラクタリゼーション」、「健康・安全・環境」、「材料規格」について議論がなされている。この様な欧米の動きを受けて、我が国も経済産業省のリードで関係者が集まり議論を開始したところである。ナノセルロースに関し、研究面、事業面、双方において世界をリードしている我が国としては、是非とも議論の中心に居たいところである。

平成24年度
生存圏科学の新領域開拓
ロングライフイノベーション共同研究
活動報告

発行日 平成25年5月31日
編集兼発行者 京都大学生存圏研究所
印刷所 株式会社 田中プリント

