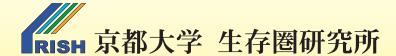
平成27年度

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 最終成果報告





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」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、生存圏にかかわる新しい萌芽的研究に取り組んでいます。

これらに加え、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"を課題設定型プロジェクトとして立ち上げました。これは、平成22年度に受けた外部評価において、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きであるとの指摘に対応した新事業です。このプロジェクトでは、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、同時に安心で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。主要テーマとして5つの研究課題、1)バイオマスの生理活性、2)木質住環境と健康、3)大気質と安心・安全、4)電磁場の生体影響、5)千年居住圏、があります。

特に、1)「バイオマスの生理活性」においては、近年のグローバル化に伴って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。これまでに、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示す主要原因物質を論文とするなど、関連する数々の研究成果を論文として報告してきました。

平成 27 年度は、平成 23 年度から続く新領域開拓研究の最終年度として、従前より推進してきた、居住、森林、大気、宇宙の4圏の間をつなぐ圏間研究、ならびに新研究醸成支援プログラムの継続推進と支援を行い、成果の取りまとめを推奨しました。11 月 16~17 日には、5 年間の新領域開拓の集大成としての国際シンポジウム "International Symposium on Frontier Researches in Sustainable Humanosphere 2015" を開催し、外国からの招待講演者を交えて研究期間全期間の成果報告を各課題について行い、その成果を広く公開しました。

本報告書は、平成23から27年度の"生存圏科学の新領域開拓"全期間に渡る学術研究の活動報告を収録しています。新領域開拓研究は、平成28年度からは生存圏研究所の新たな第5ミッションとして認定されました。これからは研究所の1ミッションを担う重要な研究活動として、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 28 年 3 月

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―

<u>新領域開拓共同研究</u>

1.	「バイオマスの生理活性」
	1) 木竹酢液の抗ウイルス性物質の探索
	渡辺隆司(京都大学生存圏研究所)・・・・・・・・1
	2) 植物機能性低分子の代謝輸送
	高梨功次郎(京都大学生存圈研究所)
	現所属:信州大学山岳科学研究所・・・・・・22
	3) 革新的なバイオマス構造解析技術を基盤とした新領域の創成
	西村裕志(京都大学生存圏研究所)・・・・・・・24
2.	「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~
	金山公三(京都大学生存圏研究所)・・・・・・・27
	1) スギ材の大気浄化機能の解明とその応用
	川井秀一(京都大学総合生存学館(思修館))・・・・・29
	2) 木質住環境内の空気質計測
	高橋けんし(京都大学生存圏研究所)・・・・・・35
	3-1) スギスリット材の調湿機能
	古田裕三(京都府立大学生命環境科学研究科)・・・・39
	3-2) スギスリット材を用いた保管庫の調湿機能と空気質
	木村彰孝(広島大学教育学研究科)・・・・・・・47
	4) 木質住環境の見えが生理・心理・認知反応に及ぼす影響
	仲村匡司(京都大学農学研究科)・・・・・・・・57

5) 木材の香りの生理・心理応答と有効成分の探索 光永 徹(岐阜大学応用生物科学研究科)・・・・・70
6) 実空間における木材パネルの設置が居住者の生理・心理反応に及ぼす影響 東 賢一(近畿大学医学部)・・・・・・・・・80
7)スギ材抽出成分のヒト細胞への生理応答 宮越順二(京都大学生存圏研究所)・・・・・・・90
3. 「大気質の安心・安全」 〜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)・・・・・・96
4. 「電磁場の生体影響」 宮越順二(京都大学生存圏研究所)・・・・・・・98
5. 「千年居住圏」 1) アジア地域に建つ木造建築物のモニタリングによる長期構造性能評価 五十田博(京都大学生存圏研究所)・・・・・・1 1 2
2) アジア地域の植物バイオマスを活用した循環型材料の開発 ~タンニンとスクロースを接着剤とした木質材料開発~ 梅村研二(京都大学生存圏研究所) ・・・・・・122
3) 東アジアの木の文化と科学 杉山淳司(京都大学生存圏研究所) 田鶴寿弥子(京都大学生存圏研究所) 小林加代子(京都大学生存圏研究所)・・・・・・130
署間共同研究

1)「微細気泡水効果の原理解明と環境・材料・農業分野への応用」 上田義勝(京都大学生存圏研究所)・・・・・・140

2)	「低炭素居住圏の確立に資する植物由来脂溶性生理活性成分の耐虫・耐朽性 評価と大量生産デザイン」
	矢崎一史(京都大学生存圏研究所)・・・・・・・145
3)	「ヒトと動物に対するリグニンの生理機能の解明と利用」 梅澤俊明(京都大学生存圏研究所)・・・・・・・147
4)	「樹木年輪と歴史・古環境」
	~アジア赤道域における季節スケールの気候·環境変遷の復元~
	渡邊裕美子 (京都大学理学研究科)
	杉山淳司(京都大学生存圏研究所)・・・・・・149
<u>新研究</u>	<u>醸成支援プログラム</u>
所外共	同研究
1)	「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)・・・・・・156
2)	「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)・・・・・・162
3)	「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)・・・・・・167
4)	「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
-	放射性汚染低減の試み」
	畑 俊充(京都大学生存圏研究所)・・・・・・170
5)	「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)・・・・・・172
6)	「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)・・・・・・177

7)	「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)・・・・・・180
8)	「光合成微生物を用いた太陽エネルギーによるイソプレン生産技術の開発」
	矢崎一史(京都大学生存圏研究所)・・・・・・184
9)	「LED 光環境と形質発現の相関解析による人工光栽培植物の生産性向上」
	鈴木史朗(京都大学生存圏研究所)・・・・・・187
10)	「マイクロ波照射によるバイオマスからのグラフェン合成に関する研究 開発動向調査」
	畑 俊充(京都大学生存圏研究所)・・・・・・189
11)	「植物揮発性物質が駆動する植物・植食生昆虫・捕食性昆虫の共進化」
	高林純示(京都大学生態学研究センター)・・・・191
12)	「化石資源の代替としての植物根共生微生物群および竹笹類のイソプレン 放出」
	奥村智憲(京都大学農学研究科)・・・・・・・193
13)	「根端分裂組織における細胞膜の弾性率測定とエキソサイトーシス機構との 関係」
	木村俊作(京都大学工学研究科)・・・・・・・195
研究集会	
1)	「植物アロマのメタ代謝科学 -生態学、大気科学、植物科学の融合-」
	杉山暁史(京都大学生存圏研究所)・・・・・・・197
2)	「次世代超高層大気研究検討会
	- 新規衛星計画にむけたブレーンストーミングー」
	山本 衛(京都大学生存圏研究所)・・・・・・200

海外研究者招聘 (国際共同研究)

「エステル型リグニン糖複合体の酵素分解反応の解析」 西村裕志(京都大学生存圏研究所)・・・・・・202

1. バイオマスの生理活性

1)「木竹酢液の抗ウイルス性物質の探索」

渡辺 隆司 京都大学生存圏研究所

1. 研究組織

代表者氏名:渡辺 隆司(京都大学生存圈研究所)

共同研究者:李瑞波(京都大学生存圈研究所)

成田 亮 (京都大学生存圈研究所)

丸本 真輔 (近畿大学共同利用センター)

西村 裕志 (京都大学生存圈研究所)

山元 誠司 (大阪市立環境科学研究所·研究員)

尾野本 浩司 (千葉大学真菌医学研究センター・助教)

谷田貝 光克 (東京大学名誉教授)

矢崎 一史 (京都大学生存圈研究所)

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

バイオマス由来の生体防御物質

3. 研究概要

地球温暖化や輸送手段の広域・高速化により、人畜に有害な病原体が広汎かつ迅速に伝播していることは大きな社会問題の一つとなっている。本研究では、再生産可能な木質・森林バイオマスの変換により人の健康や生活に寄与する有用な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、木竹酢液の抗ウイルス活性の評価と原因物質の探索研究を行った。木竹酢液は、木竹炭を製造する際に副次的に得られ、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などを含有する。木竹酢液は殺菌をはじめとする様々な生理活性を有することが報告されており、ウイルスなどの病原体の駆除にも有用なバイオマスである可能性が考えられるが、木竹酢液の抗ウイルス活性については十分な科学的根拠は示されていない。本研究では、日本で深刻な被害をもたらし、現在なお韓国や中国など世界各国で脅威を与えている口蹄疫ウイルスなどに対する消毒薬を木竹酢液から生産することを視野に入れて、木竹酢液の抗ウイルス活性の評価と、木竹酢液に含有される抗ウイルス活性物質の探索を行った。研究では、口蹄疫ウイルスと同じピコルナウイルス科に属する脳心筋炎ウイルス EMCV を用いて、竹酢液の抗ウイルス活性成分など

を解析した。即ち、竹酢液のウイルス不活化活性を示す部分精製物の主要構成成分 をすべて明らかにして、化学合成品を用いてウイルス不活化活性フラクションを再 現した。さらに、再構築した成分再現液から一成分を除く方法により、ウイルス不 活化活性に影響を与える化合物を解析し、ウイルス不活化にフェノールが大きく関 与していることを明らかにした。また、フェノール単独のウイルス不活化活性が、 部分精製物の活性より低いことから、フェノールと相乗的にウイルス不活化活性を 高める物質の存在を明らかにし、酢酸がフェノールのウイルス不活化活性を増強す ることを示した。また、木竹酢液に含まれる様々なフェノール誘導体が、脳心筋炎 ウイルス EMCV に対して強いウイルス不活化活性をもち、その効果は置換基の位置 により大きく異なるものがあることを示した。また、木竹酢液の抗ウイルス活性は、 樹種・製法により大きく異なることを見出し、原料と製法を規定して評価すること の重要性を指摘した。木竹酢液の中で、カラマツとヒノキの木酢液は、中和しても 脳心筋炎ウイルス EMCV に対するウイルス不活化活性をもつことを見出した。この 原因物質について、単離と構造決定、有機合成を進め、金属イオン存在下でウイル ス不活化活性を示す物質を特定した。さらに、木竹酢液が、インフルエンザウイル スや、風邪の主要な原因ウイルスであるライノウイルスに対しても抗ウイルス活性 を示し、その効果も樹種・製法により大きく異なることを見出した。これらの結果 は、未利用木材を含む植物バイオマスの人為的な熱処理により、抗ウイルス活性物 質が生産でき、その分解機構と原因物質の生成の関係を解明することにより、人や 動物の健康に貢献できる新たな分野が開拓できることを示す(図 1)。



図1 バイオマス変換による生体防御物質の生産

廃材、未利用材を含む植物バイオマスの人為的改変による病原性ウイルスを 抑える生理活性物質の生産という新分野を開拓する。

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、スルフォ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 農薬はその作用機序が異なる 2)。このように、木竹酢液の効能は報告されてきたもの の、有効成分は不明であり、抗ウイルス活性に関する科学的根拠は示されていない。ま た、原料や製法が与える抗ウイルス活性への影響も不明である。我々は、木竹酢液の有 する抗ウイルス効果に着目し、それが病原性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。口蹄疫は、ピコルナウイルス科の口蹄疫ウイルス(footand-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 $3\sim9$ 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 EMCV を FMDV のモデルウイルスとして使用し、木竹酢液のもつ潜在的な抗ウイルス作用を検討し、その活性物質を探索した。さらに、木竹酢液の消毒薬としての可能性を広げることを目的として、インフルエンザウイルス、風邪の主要な原因ウイルスであるライノウイルスに対する木竹酢液の抗ウイルス活性を検証した。

5. 研究の結果および考察

5-1. 木竹酢液の供試試料

木竹酢液の供試試料として、木竹酢液認証協議会の認証評価を受けた広葉樹由来白炭木酢液 (ウバメガシ・和歌山産)、黒炭木酢液 (ミズナラ・岩手産)、竹酢液 (孟宗竹・山梨産)および針葉樹由来木酢液 (アカマツ・秋田産、ヒノキ・岐阜産、カラマツ・北海道産)を用いた。白炭木酢液、黒炭木酢液、竹酢液、アカマツ木酢液に関しては、蒸留物も試験に供した。木竹酢液の試料情報を表 1 に示す。

表1 本研究に使用した木竹酢液

No.	試料名	種別	樹種	入手元、業者	産地	рН
Α	白炭木酢液	常緑広葉樹	ウバメガシ	三前商店	和歌山	2.3
Ad	蒸留白炭木酢液	常緑広葉樹	ウバメガシ	三 前 商 店 、 秋田木高研(蒸留)	和歌山	2.1
В	黒炭木酢液	落葉広葉樹	ミズナラ	北部産業	岩手	2.9
Bd	蒸留黒炭木酢液	落葉広葉樹	ミズナラ	北部産業	岩手	2.7
С	竹酢液	ተተ	孟宗竹	身延竹炭企業組合	山梨	3.5
Cd	蒸留竹酢液	ተተ	孟宗竹	身延竹炭企業組合	山梨	2.5
D	アカマツ木酢液	針葉樹	アカマツ	秋田木高研	秋田	3.7
Dd	蒸留アカマツ木酢液	針葉樹	アカマツ	秋田木高研	秋田	2.7
Ε	ヒノキ木酢液	針葉樹	ヒノキ	岐阜県小坂森林組合	岐阜	2.8
F	カラマツ木酢液	針葉樹	カラマツ	北海道白川町森林組合	北海道	3.5

5-2. 木竹酢液の成分分析

木竹酢液の GC/MS 分析の結果、フェノール類、フルフラール、カルボン酸類など約 200 のピークが検出された。EI-MS ライブラリーを中心に約 100 成分の同定を行った。o-, m-, p- cresol などの異性体の同定は保持時間(溶出順)を考慮して行った。また、イソブタンを反応ガスとした CI-MS 分析を行い、合わせて同定を行った。酢

酸については、木竹酢液の種類により約 3-12%含有していた。後述の細胞毒性、抗ウイルス性との直接的な相関は見られなかった。ホルムアルデヒドを定量した結果、その濃度は概ね 300 ppm 以下の濃度であり、それほど高い値ではなかった。ホルムアルデヒド含有量についても同様に後述の細胞毒性、抗ウイルス活性との直接的な相関は見られなかった。

5-3. AmidoBlack による木竹酢液の細胞毒性と細胞生存率を指標とした抗ウイルス活性試験

AmidoBlackによる木竹酢液の細胞毒性と細胞生存率を指標とした抗ウイルス性試験を行った。即ち、最初に木竹酢液の×100,500,1000,10000倍の希釈液をヒト由来細胞株(HeLa, Huh7, HEK293T)とマウス由来細胞株(L929)に加え、24 時間後の細胞生存率を AmidoBlack 染色法により検出した。その結果、Bd, Cd において×100希釈の溶液において 80%以上の細胞の生存が確認された。木竹酢液中の酢酸、ホルムアルデヒド濃度が比較的に高い Bd、Cd が低い細胞毒性を示したことから、酢酸、ホルムアルデヒド濃度との相関性は見られなかった。次に、同様に処理した細胞にEMCV ウイルスを 12 時間感染させ、Amido Black 染色を行い、細胞の生存率を調べた。Mock(ウイルス非感染,PBS×100 処理)を 100%として計算した。先の結果と同様に、木竹酢液に含まれる酢酸およびホルムアルデヒド濃度と抗ウイルス作用に直接的な相関性は見られなかったが、Bd、Cd 処理細胞で80%程度の生存率を示した。そこで、比較的毒性が低かった Bd、Cd の木竹酢液について図 2 に示す方法に従って成分分画を行い、黒炭木酢液蒸留物の有機溶媒可溶画分 Bd org4 と竹酢液蒸留物Cd org4 について、HEK293T と L929 細胞を用いて再び細胞毒性試験を行った。

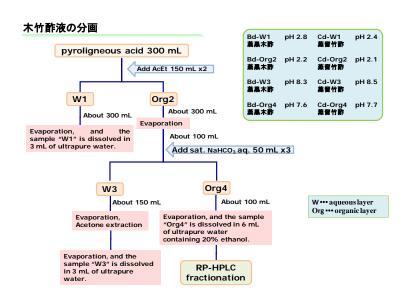


図2 細胞生存率測定のための木竹酢液の分画法

実験の結果、Bd, Cd, Bd org4, Cd org4 処理後の細胞は 50 倍希釈濃度において高い生存率を示した。そこでこの 4 種類の木竹酢液を殆ど細胞毒性を示さない 100 倍濃度に希釈した溶液を用いて EMCV 感染における抗ウイルス活性を再び検討した。自然免疫を誘導し、細胞に抗ウイルス活性を誘導する IFN- β を処理した細胞では顕著な抗ウイルス活性が見られ細胞生存率が増加した(図 3)。これに対し、木竹酢液処理細胞では、Bd org4 において若干の L929 細胞の生存率の増加が見られたが、本法では抗ウイルス活性を結論づける結果は得られなかった。

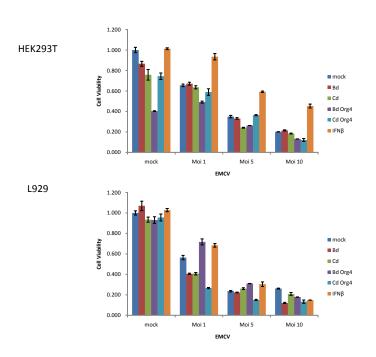


図 3 EMCV 感染後の細胞生存率に与える木竹酢液の影響 *Positive Control として IFN-β を細胞に処理した。

5-4. マウスを用いた抗ウイルス活性評価試験

予備実験としてマウス(C57BL/6NCrS1c、7週齢)3匹ずつに細胞毒性が低かったBd,Cd,Dd木竹酢液を床じきに散布(50倍希釈)し、100倍希釈した溶液を飲料水として与え一週間飼育した。その結果、マウスの体重に変化はControlと比較して差はなく、マウスに対してこれらの木酢液は毒性を殆ど示さなかった。さらにウイルス感染時における抗ウイルス応答の評価の一つとして赤外線サーモグラフィーを用いたマウスの体温変化を観察した。試験した条件では、マウスの体温変化から抗ウイルス活性を評価することが難しいとの結論となった。このため、今後は木竹酢液のウイルス不活化活性を評価することとした。

5-5. 木竹酢液のウイルス不活化活性

木竹酢液は材料、産地および製造法の違いによりその組成が異なる。木酢液を用いた EMCV 不活化実験では、木竹酢液と混合して一時間反応させた EMCV の感染性が低下するか否かを検討した。その結果、ウバメガシ (A)、ミズナラ (B)、モウソウチク (C) 由来の木竹酢液が EMCV の感染性を 1/10 以下に低下させるウイルス不活化活性を有するのに対し、アカマツ由来 (D) の木酢液にはその活性が認められなかった(図 4)。また、ヒノキ (E) およびカラマツ (F) の木酢液は、中和したものでも、抗ウイルス活性を示した。

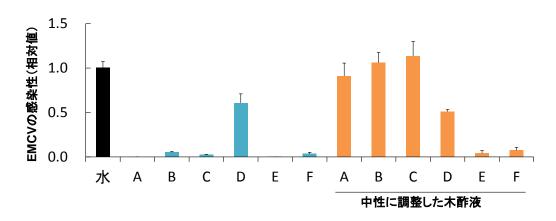


図4 木竹酢液の EMCV に対する抗ウイルス活性。

5-6. 竹酢液のウイルス不活化物質の同定

素留竹酢液を酢酸エチルで抽出し、200 ml まで濃縮後、0.83 M 炭酸水素ナトリウム水溶液を加えて分液し、水層と酢酸エチル層に分離した。酢酸エチル層を濃縮し Fr.4 とした。水層は、70%硫酸溶液で pH2 に調整後、酢酸エチルで抽出し、Fr.3 を 得た(図 5)。Fr.4 は、シリカゲルクロマトグラフィーでさらに、Fr.5-8 に分画し、 EMCV に対する抗ウイルス活性を測定した。EtOAc にて抽出した疎水性画分(Fr.4) は EMCV の感染性を 1/20 程度まで抑制した(図 6)。また、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで分離した $Fr.5\sim8$ では、もっとも疎水性の高い Fr.5 のみに Fr.4 と同等のウイルス不活化活性が認められた。強い活性を示した Fr.5 については、 GCMS で含有成分を分析し、標品との比較により、その主要な成分 1 2 種をすべて 明らかにした。この 12 種の化合物の濃度を測定し、市販の化学品を同一濃度になるように加えて、再現液を構築した(表 2、図 7)。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 7、All)。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 8#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 8)。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。また、Fr.5 に含まれる 12 種類の化合物単独でのウイルス不活化活性を測定したところ、フェノールのみが EMCV を不活化することが確認された(図 9)。これら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 10)。

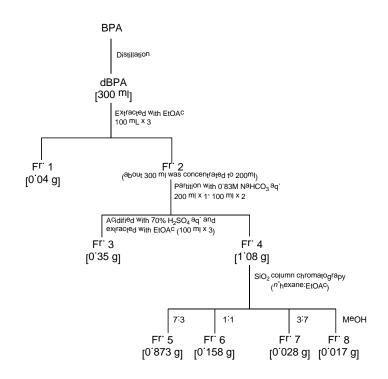


図 5 蒸留竹酢液の分画

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 11, 12)。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 11)。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。

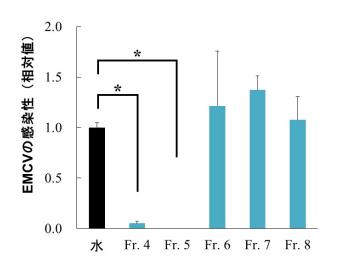


図6 竹酢液 C 分画部のウイルス不活化活性

表 2 竹酢液 C の Fr. 5 ならびの再構築した Fr. 5 の構成因子とその濃度。

Nie	11-04-	Fr.	5	再構築した Fr. 5	
No.	化合物	相対量 (%)	濃度 (mg/mL)ª	相対量 (%)	濃度 (mg/mL)®
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	8.0	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	o-クレゾール	4.3	23.5	4.3	33.0
7, 8	m - およびまたは p-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

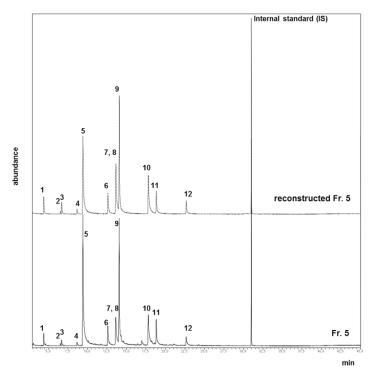


図 7 竹酢液 Fr.5 と再構築した Fr.5 の GCMS

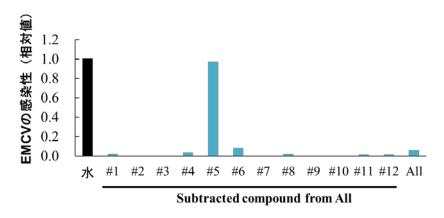


図 8 再構築した竹酢液 Fr.5 とその一成分欠損溶液の EMCV に 対する抗ウイルス活性

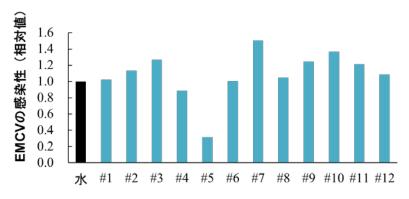


図 9 竹酢液 Fr.5 の成分の EMCV に対する抗ウイルス活性

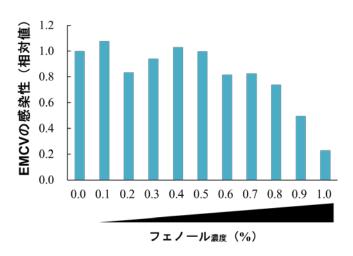


図 10 フェノールの EMCV に対する抗ウイルス活性の濃度依存性

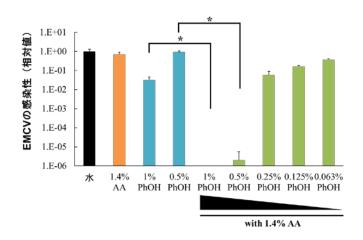


図 11 酢酸とフェノールの EMCV に対する相乗的ウイルス不活化活性におけるフェノール濃度の影響

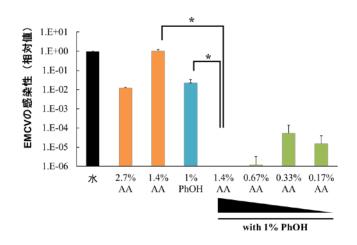


図 12 酢酸とフェノールの EMCV に対する相乗的ウイルス不活化活性における酢酸濃度の影響

酢酸とフェノールの相乗効果について考察した。高濃度のフェノールは蛋白質の変性による沈殿を引き起こすことでウイルスを不活化するが、低濃度のフェノールはウイルス性酵素の活性阻害あるいはそれらをウイルス粒子からの漏出させることでワクシニアウイルスや単純ヘルペス 1 型を不活化することが報告されている $^{3.4)}$ 。しかしながら、EMCV をはじめとしたピコルナウイルスはウイルス粒子(キャプシド)内には酵素を含有しておらず、まず細胞内でそのウイルスゲノム RNA から蛋白質が翻訳されなければならない。つまり、ピコルナウイルスのゲノム RNA が宿主細胞の細胞質に入りさえすれば、複製が開始され得る。ピコルナウイルス科のウイルスの中で、メンゴウイルスや FMDV は低 pH によってキャプシドの構造が変化することが報告されている $^{5.6)}$ 。EMCV は低 pH 条件では細胞に侵入することができないが、pH が中性付近に戻ると感染性が回復する 70 。これらの報告と合わせて考慮すると、酢酸による低 pH によって EMCV のキャプシドの構造が変化、そしてフェノールの変性作用に対し脆弱となり、ウイルスゲノム RNA のウイルス粒子からの漏出が誘引され、結果としてウイルスの感染性が失われているのかもしれない。

上述したように、ウバメガシ、ミズナラ、モウソウチク、アカマツ由来の木竹酢液は中性条件下にてそのウイルス不活化活性を喪失する。すなわち、ウバメガシ、ミズナラとアカマツ由来の木酢液のウイルス不活化活性は、竹酢液の場合と同様にフェノールと酢酸の相乗効果に起因する可能性が考えられた(表 3)。

試料名	樹種	フェノール含有量 (mg/mL)	酢酸含有量 (%)
A	ウバメガシ	0.36	11.9
В	ミズナラ	0.07	2.5
C	モウソウチ	1.20	3.5
D	アカマツ	0.05	1.4

表 3 木竹酢液のフェノールと酢酸の含有量

5-7. ヒノキ木酢液 E の分画

図 13 に従ってヒノキ木酢液 E の分画を行った。まず、酢酸エチルを用いて抽出によって得られた水層と有機層の抗ウイルス活性を測定したところ、水層に強い活性が確認できたことから、イオン交換レジンを用いてさらに分画を行い、E-Fr.1-1 ~3 を得た。これら分画はすべて強い抗ウイルス活性を示したため(図 14)、medium pressure liquid chromatogram (MPLC)によってさらに分画を行った。図 15 に示すように、E-Fr.1-1-1 および E-Fr.1-2-1 が強い抗ウイルス活性を示した。E-Fr.1-1-1-1 が強い EMCV 不活化活性を示したことから、GC-MS によって含まれる化合物の同定

を行ったところ、この画分は主に 3 種類の化合物から構成されることが明らかとなった。そのうちの一つである 1,6-anhydro- β -D-glucopyranose はすでに抗ウイルス活性を示さないことを明らかにしていることから、E-Fr. 1-1-1 の抗ウイルス活性は他の 2 種類の化合物によるものであると推察された。そこで再度 MPLC によって分画を行い、分画部 E-Fr. 1-1-1-1 および E-Fr. 1-1-1-2 を得た。これら分画部はそれぞれ化合物 1 および化合物 2 が主な構成成分であったため、HPLC を用いてこれら化合物の単離を行った。ヒノキ木酢液 E から単離した化合物 1 (compound 1) および化合物 2 (compound 2)を含む画分はどちらも強い抗ウイルス活性を示すことが明らかとなった。化合物 1 は、有機合成によりその構造を明らかにした。エステルである化合物 1 の合成品は、単独では EMCV に対するウイルス不活化活性を示さなかったが、化合物 1 の酸誘導体は、銅イオン存在下で、ウイルス不活化活性を示した。

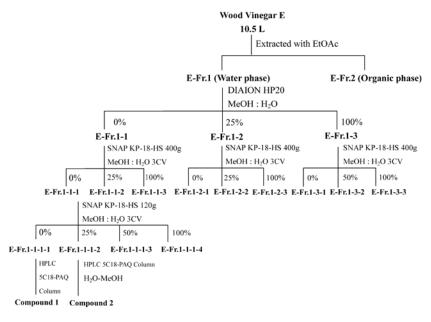


図 13 ヒノキ木酢液 E の分画

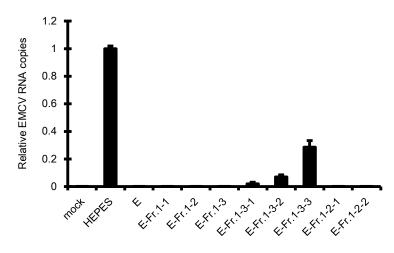


図14 分画部の抗ウイルス活性

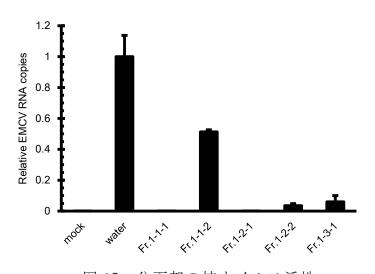


図 15 分画部の抗ウイルス活性

5-8. カラマツ木酢液のFの分画と脳心筋炎ウイルスに対する増殖抑制効果カラマツ木酢液Fは、中性条件下においても抗ウイルス活性を保持し(図 2)、木酢液Fの不活化物質は以前報告した竹酢液の phenol とは異なる物質である可能性が高いと推察された。酢酸エチルにより抽出したあと、有機溶媒可溶部 F-Fr.2 と水溶可溶部 F-Fr.1 に高いウイルス不活化活性が見られた。

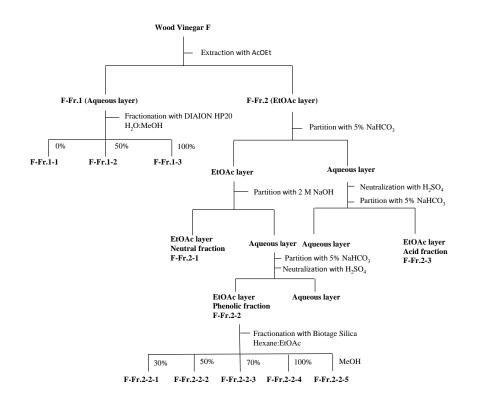


図 16 カラマツ木酢液 F の分画

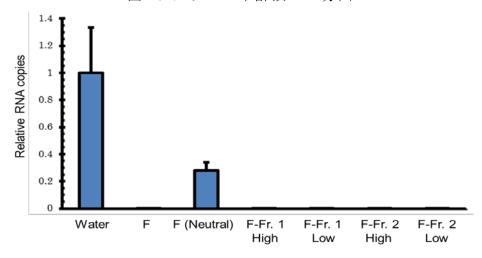


図 17 木酢液 F、中和した木酢液 F、F-Fr.1 と F-Fr.2 の抗ウイルス活性 F-Fr.1 高濃度 27.8 mg/mL、低高濃度 2.7 mg/mL F-Fr.2 高濃度 20.5 mg/mL、低高濃度 2.1 mg/mL

続いて、有機溶媒可溶部をさらに分離カラムを掛け、F-Fr. 1-1, F-Fr. 1-2, と F-Fr. 1-3 を得た(図 16)。溶媒可溶部 F-Fr. 2 を中和し、F-Fr. 2-1, F-Fr. 2-2 と F-Fr. 2-3 を得た。F-Fr. 2-1, F-Fr. 2-2 と F-Fr. 2-3 のウイルス不活化活性を図 17 に示した。有機溶媒可溶部 F-Fr. 2-2 に注目し、F-Fr. 2-2 をさらに五つの画分を分画

した。この五つの画分すべてが高いウイルス不活化活性を示した(図18)。

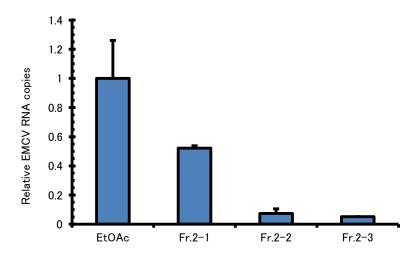


図 18 カラマツ木酢液分画物の EMCV に対する抗ウイルス活性 F-Fr. 2-1 (21.7 mg/mL)、 F-Fr. 2-2 (20.0 mg/mL)、 F-Fr. 2-3 (20.8 mg/mL)

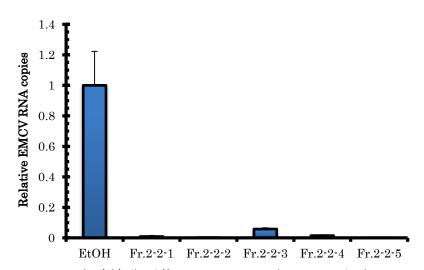


図 19 カラマツ木酢液分画物 F-Fr. 2-2-1 (25.5 mg/mL)、F-Fr. 2-2-2 (24.4 mg/mL)、 F-Fr. 2-2-3 (21.1mg/mL)、F-Fr. 2-2-4 (23.8 mg/mL)、F-Fr. 2-2-5 (25.5 mg/mL)の抗ウイルス活性

カラマツ木酢液分画物に高いウイルス不活化活性が認められたため、GC-MS で成分を分析した。その結果、構造が明らかとなった化合物を表 6 に示す。表 6 の化合物 $10\sim13$ は、竹酢液にも含まれる。

表 6 カラマツ木酢液有機溶媒画分に含まれる GC-MS で構造を明らかにした化合物

O Compound 7 m/z 86.0 (51.8), 56.0 F-Fr.2-2-4 Dihydro-2(3H)-furanone (47.6), 42.1 (100), Compound 8 m/z 112.0 (100.0), 83.0 2-hydroxy-3-methyl-2-cyclopenten (30.2), 69.0 (52.9), 55.0 F-Fr.2-2-2, F-Fr (60.7), 42.1 (20.8) OH Compound 9 m/z 110.1 (100), 92.1 (13.8), F-Fr.2-2-1
2-hydroxy-3-methyl-2-cyclopenten (30.2), 69.0 (52.9), 55.0 F-Fr.2-2-2, F-Fr -1-one (60.7), 42.1 (20.8)
OH 1, 2-Benzenediol 81.1 (18.9), 64.1 (54.9), 54.9 F-Fr.2-2-1 (24.8)
Compound 10 m/z 138.1 (90.9), 123.0 (100), 95.1 (71.8), 77.0 (61.0), 67.1 (66.1), 55.0 (57.0), 41.0 (39.1)
OH Compound 11 m/z 94.0 (100), 66.1 (36.9), P-Fr.2-2-1 40.1 (15.8)
OH
OH Compound 13 m/z 124.0 (94.9), 109.0 (100.0), F-Fr.2-2-1 OCH ₃ 2-Methoxyphenol 80.9 (95.1), 53.0 (57.2)

カラマツ木酢液に含まれる化合物 13 種の抗ウイルス活性を試験し、多数のフェノール誘導体にウイルス不活化活性を見出した。

5-9. 木酢液のライノウイルスと A 型インフルエンザウイルスに対する不活化活性 風邪の原因ウイルスの一つであるライノウイルスに対するヒノキ木酢液とその 分画部の不活化活性を測定した結果、いずれの画分も高い不活化活性を示した。また、A 型インフルエンザウイルスに対するウイルス不活化活性を評価した結果、竹酢液とその蒸留物、ウバメガシ、ミズナラ木酢液とその蒸留物およびアカマツ木酢液蒸留物が IAV の増殖抑制効果が高いことを見出した。

6. 今後の展開

本研究では、再生産可能な木質バイオマスの変換により人の健康や生活に寄与する有用な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、木竹酢液の抗ウイルス活性の評価と原因物質の探索研究を行った 8-16)。研究では、口蹄疫ウイルスと同じピコルナウイルス科に属する脳心筋炎ウイルス EMCV を用いて、竹酢液の抗ウイルス活性成分などを解析した。即ち、竹酢液のウイルス不活化活性を示す部分精製物の主要構成成分をすべて明らかにして、ウイルス不活化にフェノールが大きく関与していることを明らかにした。また、酢酸がフェノールのウイルス不活化活性を相乗的に増強することを示した。また、木竹酢液に含まれるフェノール以外のフェノール誘導体が、脳心筋炎ウイルス EMCV に対して強いウイルス

不活化活性をもち、その効果は置換基の位置により大きくことなるものがあることを示した。また、木竹酢液の抗ウイルス活性は、樹種・製法により大きく異なることを見出し、原料と製法を規定して評価することの重要性を指摘した。木竹酢液の中で、カラマツとヒノキの木酢液は、中和しても脳心筋炎ウイルス EMCV に対するウイルス不活化活性をもつことを見出した。この原因物質について、単離と構造決定、有機合成を進め、金属イオン存在下でウイルス不活化活性を示す物質を特定した。さらに、木竹酢液が、インフルエンザウイルスや、風邪の主要な原因ウイルスであるライノウイルスに対しても抗ウイルス活性を示し、その効果も樹種・製法により大きく異なることを見出した。これらの結果は、未利用木材を含む植物バイオマスの人為的な熱処理により、抗ウイルス活性物質が生産でき、その分解機構と原因物質の生成の関係を解明することにより、人や動物の健康に貢献できる新たな分野が開拓できることを示す。今後、動物試験を含めた国際共同研究として、展開していきたい。

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. Klein, M., and Deforest, A. Principles of Viral Inactivation. In Disinfection, sterillization, and preservation, S.S. Block, ed. (Lea & Febiger), pp. 422-434. (1983).
- 4. Prindle, R.F. Phenolic compounds. In Disinfection, sterillization, and preservation, S.S. Block, ed. (Lea & Febiger), pp. 197-198. (1983).
- 5. Madshus, I.H., Olsnes, S., and Sandvig, K. Different pH requirements for entry of the two picornaviruses, human rhinovirus 2 and murine encephalomyocarditis virus. Virology 139, 346-357. (1984).
- 6. Mak, T.W., O'Callaghan, D.J., and Colter, J.S. Studies of the pH inactivation of three variants of Mengo encephalomyelitis virus. Virology 40, 565-571. (1970).
- 7. Racaniello, V.R. Picornaviridae: The viruses and their replication. In Fields VIROLOGY, D.M. Knipe, and P.M. Howley, eds. (Lippincott Williams & Wilkins), pp. 795-838. (2006).
- 8. Marumoto S., Yamamoto S.P., Nishimura H., Onomoto K., Yatagai M., Yazaki K., Fujita T., Watanabe T. Identification of a Germicidal Compound against Picornavirus in Bamboo Pyroligneous Acid. *J. Agric Food Chem.*, **60**, 9106-9111, 2012.
- 9. 成田亮, 李瑞波、植物バイオマス由来抗ウイルス活性物質の探索, 生存圏研究,

- **11**, 42-47, 2015.
- 10. 渡辺隆司, 木竹酢液のウイルス不活化物質の探索, 生存圏研究, 10, 32-33, 2014.
- 11. 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化物質の探索, 生存圏研究, 8, 49-54, 2012.
- 13. 木竹酢液の抗ウイルス活性、第二章 地球環境、生存圏科学への招待、第二版,44-47、2015, ISBN 978-4-908540-00-4
- 14. Narita, R., Antiviral compounds from plant biomass, International Newsletter, Research Institute of Sustainable Humanosphere, Kyoto University, 7-8, 30, 2016
- 15. 渡辺隆司、木竹酢液の抗ウイルス性物質の探索、平成 26 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—成果報告、1-8、2015
- 16. 渡辺隆司、木竹酢液の抗ウイルス性物質の探索、平成 25 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—成果報告、1-6、2014

8. 付記

研究発表

- 1. 成田亮、植物バイオマス由来抗ウイルス活性物質の探索、第 307 回生存圏シンポジウム、生存圏ミッションシンポジウム、13-16, 2016 年 3 月 3-4 日、宇治
- Ryo Narita, RISH International seminar, Chemistry and Biotechnology for Lignocellulose, Antivirus activity of phenol derivatives derived from wood and bamboo vinegar, Feb. 18, 2016, Uji, Japan
- 3. Ruibo Li, Ryo Narita, Shinsuke Morumoto, Seiji Yamamoto, Hiroshi Nishimura, Koji Onomoto, Mitsuyoshi Yatagai, Takashi Fujita, Takashi Watanabe. Characterization of antivirus activities of wood and bamboo vinegar. International Symposium on Frontier Research, November 16-17th, 2015, Uji, Japan
- 4. 成田亮、植物由来抗ウイルス活性物質の探索、生存圏研究所学際萌芽研究センター第 197 回定例オープンセミナー、2015 年 9 月 16 日、宇治
- 5. Ruibo Li, Shinsuke Marumoto, Hiroshi Nishimura, Mitsuyoshi Yatagai, Takashi Watanabe. Characterization of antivirus activities of wood and bamboo vinegar. IAWPS 2015, March 15-17th, 2015, Tokyo, Japan
- 6. 渡辺隆司「木竹酢液の抗ウイルス性物質の探索」新領域開拓シンポジウム 2014、 2014年11月26-27日、宇治
- 7. 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, 2014, Fukuoka, Japan.
- 8. Ruibo Li, Shinsuke Marumoto, Hiroshi Nishimura, Mitsuyoshi Yatagai, Takashi

- Watanabe. Characterizations of antivirus activities of wood and bamboo vinegar. The 27th international conference polyphenols. Sep. 2-6th 2014, Nagoya, Japan.
- 9. Ruibo Li, Shinsuke Marumoto, Hiroshi Nishimura, Mitsuyoshi Yatagai, Takashi Watanabe. Characterizations of antivirus activities of wood and bamboo vinegar. The 64th Annual Meeting of the Japan Wood Research Society. March 13-15, 2014, Matsuyama, Japan.
- 10. Ruibo Li, Shinsuke Marumoto, Hiroshi Nishimura, Mitsuyoshi Yatagai, Takashi Watanabe. Evaluations of antivirus activities of wood and bamboo vinegar. ICRIS'14, March 10-12th, 2014, Uji, Japan
- 11. Takashi Fujta. Antiviral activity of wood and bamboo vinegar, International Symposium on Frontier Researches in Sustainable Humanosphere, Nov 27-28, 2013, Uji, Japan.
- 12. 丸本真輔、木酢液・竹酢液の抗ウイルス活性物質、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—、2013年3月14日、宇治
- 13. 丸本真輔、山元誠司、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、竹酢液の抗ウイルス活性、第 62 回日本木材学会大会、 2012 年 3 月 17 日、札幌
- 14. 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化物質の探索、第 198 回生存圏ミッションシンポジウム、1-10, 2012 年 3 月 2 日、宇治
- 15. 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 41-44, 2011 年 3 月 24-25 日(延期)、宇治
- 16. 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評価、第 61 回日本木材学会大会、2011 年 3月18日、京都
- 17. 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、第 129 回定例オープンセミナー、2011 年 1 月 12 日、宇治
- 18. 丸本真輔、山元誠司、西村裕志、尾野本浩司、谷田貝光克、矢崎一史、藤田尚志、渡辺隆司,木竹酢液のウイルス不活化物質の探索、第 224 回生存圏ミッションシンポジウム、2013 年 3 月 13 日、宇治
- 19. 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、2011 年 7 月 27 日、宇治市
- 20. 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 —、生存圏研究所学際萌芽研究センター第 129 回定例オープンセミナー、2011 年 1 月 12 日、宇治

招待講演

- 1. 渡辺隆司:「木酢液・竹酢液の抗ウイルス活性成分の探索」、第 26 回日本木酢 液協会講演会、平成 25 年 2 月 22 日、東京
- 2. Takashi Watanabe: Development and exploration of antivirus compounds and functional materials from lignocellulosic biomass for sustainable society, Special seminar in Lanzhou Veterinary Research Institute, Lanzhou, China, Mar 14, 2016.
- 3. Hiroshi Nishimura, Structural analysis of wood degradation products and those biological activity Analysis and evaluation of wood and bamboo pyroligneous acids as antiviral agents, Special Seminar in Chaing Mai Univ., Feb 10, 2011, Thailand.

新聞報道

「竹酢液を医療研究に新たな用途 世界も注目」、山梨日日新聞、平成 25 年 2 月 3 日

1. バイオマスの生理活性

2)「植物機能性低分子の代謝輸送」

髙梨 功次郎

京都大学生存圈研究所 (現:信州大学山岳科学研究所)

1. 研究組織

代表者氏名: 髙梨 功次郎(京都大学生存圈研究所)現:信州大学山岳科学研究所

共同研究者: 矢崎 一史(京都大学生存圏研究所)

佐藤 文彦 (京都大学生命科学研究科) 山田 泰之 (京都大学生命科学研究科)

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 通りの方法が行われているが、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の実現に役立ち、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る。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た^{1,2)}。また、大量生産に成功した植物でも、大量生産された生理活性化合物の特異的蓄積部位への輸送・隔離過程も改変することで、生産植物の生長にもメリットが生じ、より効率的な生産が可能になると考えられる。

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・蓄積機構の解明を目的とする。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試みた。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。

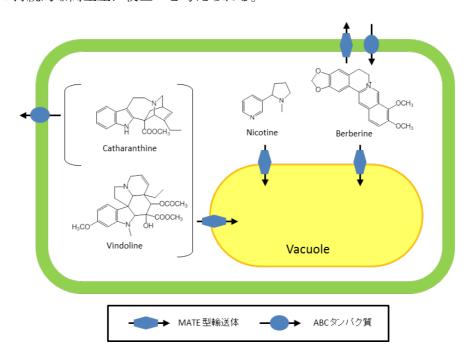


図 1. アルカロイド輸送への関与が推測される膜輸送体 これらの輸送体を利用して輸送工学を行う。

4. 引用文献

- 1. Andersen, T.G., et al., Integration of biosynthesis and long-distance transport establish organ-specific glucosinolate profiles in vegetative *Arabidopsis*. *The Plant Cell*, 2013. 25(8): p. 3133-45.
- 2. Nour-Eldin, H.H. and Halkier, B.A., The emerging field of transport engineering of plant specialized metabolites. *Curr Opin Biotechnol*, 2013. 24(2): p. 263-70.

1. バイオマスの生理活性

3)「革新的なバイオマス構造解析技術を基盤とした 新領域の創成」

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(京都大学生存圈研究所)

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(京都大学生存圈研究所)

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

バイオマスの生理活性、先端分析化学

ミッション2:太陽エネルギー変換・利用

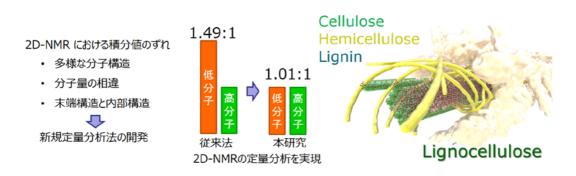
3. 研究概要

化石資源の急速な消費によるアンバランスな物質循環は、地球温暖化、環境汚染、資源枯渇といった地球規模の重大な問題を引き起こしてきた。持続可能な生存圏の未来を実現するためには、生態系全体のバランスを維持しながら、有用物質やエネルギーを生産することが求められている。本研究では、生物由来の有機物であるバイオマスを包括的かつ原子・分子レベルで分析する技術開発を行い、生存圏に多様な形態で存在するバイオマスを分子構造の解析を通じて診断し、有用資源として効果的に利用・変換する技術の確立へ貢献することを目指して研究を実施した。

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注目されている。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三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。特に、リグニンの分岐構造やリグニンと糖の結合構造は、その存在量は少ないもののバイオマスの高分子ネットワークを"ほどく"ための鍵となる構造であり、バイオマスの成分分離、変換反応を開発する上で重要であるが、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。そこで化学の目

でバイオマスの利活用を進める基盤としてNMR法を中心に質量分析法と組み合わせて木質バイオマスを分子レベルで捉え、化学分解や成分分離、微生物分解など、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て研究を行った。

木質バイオマスを包括的に測定可能な溶液 NMR 法を用いて、構成成分の存在比を定量する手法の改良を行った。2次元 NMR においてはスピン結合の強度や緩和時間の長さによってシグナル強度は影響を受ける。そこで、HSQC スペクトルの相関シグナルから構成成分の相対量を見積もり、得られた定量値を較正する手法、および分子量の異なる混合物について定量する手法を開発した。次に、木質バイオマス中における高分子ネットワークの結合構造で特に重要なリグニンの分岐構造および糖-リグニンの複合体構造をロングレンジ相関 NMR 法を用いて解析した。また、木質バイオマスの木材腐朽菌による微生物分解過程の解析をおこなった。木質バイオマスの生分解過程におけるリグノセルロース構造の変化や生分解過程で分泌される腐朽菌由来の二次代謝物を分析することは、環境負荷の小さいバイオマス変換法構築へ向けた基礎知見として重要である。その他、様々なバイオマスおよびバイオマス由来の反応生成物の分析を行った。溶液NMR 法を用いたバイオマス成分の包括分析と定量評価、精密構造解析、バイオマスの変換反応や生分解過程における動態解析は有用であり今後の発展が期待される。



4. 付記

- H. Okamura, H. Nishimura, T. Nagata, T. Kigawa, T. Watanabe, M. Katahira, Accurate and molecularsize-tolerant NMR quantitation of diverse components in solution, *Scientific Reports*, 6, doi:10.1038/srep21742, 2016.2
- 2) 西村裕志,永田一真,岸本崇生,中村正治,Qu Chen, 片平正人,渡辺隆司,バイオリファイナリーのための超高感度 NMR によるリグニンの構造解析,京都大学エネルギー理工学研究所 ゼロエミッションエネルギー研究拠点共同利用・共同研究平成27年度成果報告書,68-69,2016/3
- 3) Hiroshi Nishimura, NMR analyses of wood cell wall structures and the biodegradation, WWSC special seminar, Wallenberg Wood Science Center, Sweden, 2016 年 1 月 28 日

- 4) 西村裕志, 木に学ぶ、きのこに学ぶサイエンス, 第 12 回京都大学生存圏研究所公開講演会, 宇治, 2015 年 10 月 24 日
- 5) Hiroshi Nishimura, Structural analysis for lignocellulosic biomass, 6th Int. Symp. Adv. Energy Sci., Kyoto, 2015 年 9 月 1 日[Invited]
- 6) Hiroshi Nishimura, Analysis of lignocellulosic biomass by solution-state NMR spectroscopy, Swedish NMR Centre, University of Gothenburg, Sweden, 2015 年 3 月 23 日 [Invited lecture]
- 7) 西村裕志, バイオリファイナリーへ向けた木質バイオマスの NMR 分析, 理研シンポジウム 「第 14 回分析・解析技術と化学の最先端」, 2013 年 12 月 11 日 [Invited]
- 8) 西村裕志,分子レベルでみる木質バイオマス変換,第 238 回生存圏シンポジウム第 10 回持続的生存圏創成のためのエネルギー循環シンポジウム マイクロ波高度利用と先端分析化学 第 3 回 先進素材開発解析システム (ADAM) シンポジウム マイクロ波高度利用生存圏フラッグシップ共同研究,2013 年 11 月 18 日
- Nishimura H., Kamiya A., Katahira M., Watanabe T., Characterization of lignin-carbohydrate complex linkages using nuclear magnetic resonance spectroscopy, Pacifichem 2015, Hawaii, USA, 2015/12/19
- 10) Hiroshi Nishimura, Akihiro Kamiya, Masato Katahira and Takashi Watanabe, Structural studies on the chemical linkage between lignin and polysaccharide, IAWPS International Symposium on Wood Science and Technology 2015, 2015/3/17
- Okamura, H., Nishimura, H., Nagata, T., Kigawa, T., Watanabe, T. and Katahira, M., Development of new methods to compensate distortion of quantitation caused by difference in molecular weight (transverse relaxation time), 53rd Ann. Meeting NMR Soc. Japan, 2014/11/5
- Nishimura H., Kamiya A., Katahira M., WatanabeT., Structural analysis of lignin-carbohydrate complex, 3rd Symp. Biotechnol. Appl. Lignocelluloses, Lignobiotech III, Concepcion CHILE, 39, 2014/10/29
- Nishimura H., Kamiya A., Katahira M., WatanabeT., NMR study of Lignin-carbohydrate Linkage in Milled Wood, Polyphenols Communications 2014,331-332, 2014/9/3
- 14) Okamura, H., Nishimura, H., Imamura, Y., Kozawa, Y., Terashima, N., Matsushita, Y., Fukushima, K., Watanabe, T. and Katahira, M., Development and application of the methodology to investigate wood biomass by solution NMR, The 52th Annual Meeting of NMR Society of Japan, Kanazawa, 2013/11/1
- 15) Hiroshi Nishimura, High resolution and quantitative NMR analysis of whole milled wood and biodegraded wood, Proc. SABH2012, 59-62, 2012/12/11
- 16) Nishimura, H., Katahira, M., Watanabe, T., Analysis of wood cell wall structures and secondary metabolites during the biodegradation of white-rot fungi using solution NMR, Lignobiotech II:47, 2012/10/16 [Plenary Lecture]

2. 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」

金山 公三 京都大学生存圏研究所

1. 研究組織

代表者氏名:金山	公三(京都大学生存圈研究所)	
共同研究者:川井	秀一(京都大学生存学館(思修館))	課題1~7
矢野	浩之(京都大学生存圈研究所)	課題 1 ~ 7
梅村	研二(京都大学生存圈研究所)	課題 1
西岡	美銘(京都大学生存圏研究所)	課題 1
藤田	佐枝子 (有限会社ホームアイ)	課題1~6
松原	恵理 (森林総合研究所)	課題1~6
木村	彰孝 (広島大学教育学研究科)	課題1.2
山本	良雄 (中山倉庫株式会社)	課題1
中村	宜弘 (中山倉庫株式会社)	課題 1
中山	雅文(中山倉庫株式会社)	課題1
中川	美幸 (愛媛県林業研究センター)	課題 1
辻野	喜夫 (大阪府環境農林水産総合研究所)	課題1
上堀	美知子 (大阪府環境農林水産総合研究所)	課題 1
大山	正幸 (大阪府立公衆衛生研究所)	課題1
三宅	英隆 (大阪府木材連合会)	課題1
仲村	匡司 (京都大学農学研究科)	課題 2
高橋	良香 (京都大学生存圈研究所)	課題 2
高橋	けんし (京都大学生存圏研究所)	課題3
矢吹	正教 (京都大学生存圈研究所)	課題3
津田	敏隆 (京都大学生存圈研究所)	課題3
光永	徹(岐阜大学応用生物科学研究科)	課題4
小川	愛 (岐阜大学応用生物科学研究科)	課題 4
坂本	祥子(岐阜大学応用生物科学研究科)	課題4
服部	浩之(岐阜大学応用生物科学研究科)	課題4
東『	蚤 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
宮越	順二(京都大学生存圈研究所)	課題 6

小山 眞(京都大学生存圈研究所) 課題 6 成田 英二郎 (京都大学生存圈研究所) 課題 6 清水 陽子(京都大学生存圈研究所) 課題 6 古田 裕三 (京都府立大学生命環境科学研究科) 課題7 三好 由華(京都府立大学生命環境科学研究科) 課題7 古谷真理子(京都府立大学生命環境科学研究科) 課題7 石原麻由子 (京都府立大学生命環境科学研究科) 課題7 田井 駿一(京都府立大学生命環境科学研究科) 課題7 馬場 潤一(京都府立大学生命環境科学研究科) 課題 7

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

木質住環境と健康

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標として遂行した。最終的には、木材を有効活用する技術開発を開拓、推進することを目的としているものである。

過去5年間、以下に示す7テーマを設定し、上記7課題を割り振って遂行した。そして7テーマの成果報告は各々別添のとおりである。

- 1. スギ材の大気浄化機能の解明とその応用 (課題1担当)
- 2. 木質住環境内の空気質計測 (課題3担当)
- 3. スギ木ロスリット材の調湿機能
 - 3.1 スギスリット材の調湿機能(課題7担当)
 - 3.2 スギスリット材を用いた保管庫の調湿機能と空気質 (課題1担当)
- 4. 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2担当)
- 5. 木材の香りの生理・心理応答と有効成分の探索 (課題4担当)
- 6. 実空間における木材パネルの設置が居住者の生理・心理反応に及ぼす影響 (課題 5)
- 7. スギ抽出成分のヒト細胞への生理応答(課題6)

2. 木質住環境と健康

1) スギ材の大気浄化機能の解明とその応用 川井 秀一(京都大学総合生存学館(思修館))

研究組織

川井秀一、中川美幸、西岡美銘、木村彰孝、梅村研二、藤田佐枝子、辻野喜夫

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。本報告では、木質住環境におけるスギ材の大気浄化機能の解析・解明を試み、主として組織構造と抽出成分の関係を明らかにした。その過程で、スギ材の乾燥条件と大気浄化機能を関連付け、加工技術上の知見を得て、国産材を有効活用する技術開発を開拓、推進に資するデータを収集した。

1. 研究の背景と目的

スギ材は空気汚染物質の収着能に優れていることが明らかとなっている¹⁾。その要因として、抽出成分、仮道管有効内表面、含有水分の寄与が考えられているものの、各因子の詳細な機構は解明されていない。また、スギ材木口面は調湿能にも優れていることが知られている¹⁾。

本研究では、形状および乾燥処理方法の異なるスギ材木口試料を用いて二酸化窒素 (NO2) の通気実験を行うことで、スギ材の NO_2 収着における仮道管内有効表面と抽出成分の影響を検討した。 $^{2)-7)}$ これらの機能を活かす材料としてスギ木口スリット材 (以下「スリット材」) が開発され $^{8)}$ 、実用化段階にあるが、ここでは応用事例について紹介する。

2. 実験方法: NO2 収着能の評価

熊本県産の約40年生のスギ心材から、形状および乾燥処理方法の異なる種々の試料を作成し、含水率約10%に調製した後、実験に用いた。通気実験に用いた木口試料の形状を図1に示す。

円盤状木口試験片



D:10, L 方向:1.5

板状木口試験片



単位(mm)

R:100×T:500 L 方向:1.5,3.0,5.0

図1 通気実験に用いた木口試料の形状

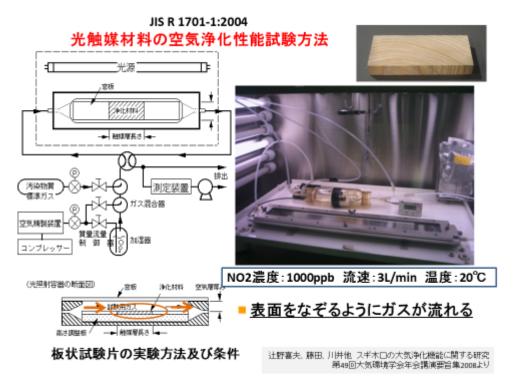


図 2 光触媒材料の空気浄化性能試験方法(JIS R 1701-1:2004)

測定系には、JIS R 1701-2004 (光触媒材料の空気浄化性能試験方法) に規定される通 気試験(図2)のほか、気体透過型の測定系(図3)を新たに作成した。

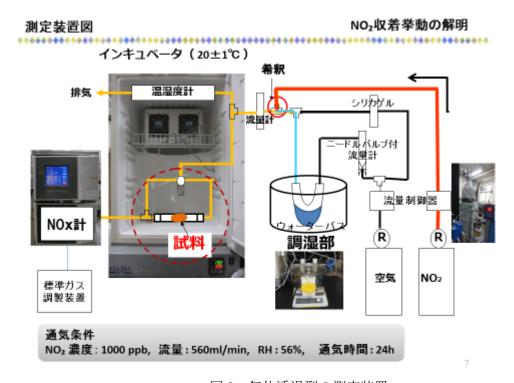


図3 気体透過型の測定装置

前者は汚染空気が材料表面をなぞるように流れるのに対し、後者の場合は材料内を汚染空気が透過する。いずれも、汚染物質の濃度や測定部の温度(20°C)・湿度(56°8 RH)をコントールする制御系と通気中の汚染物質濃度を検出する測定系に分けられる。JIS 試験法の場合には、入口 $N0_2$ 濃度 1000ppb、流速 3L/min に制御し、出口の N02 濃度を測定した。また、気体透過型の測定系の場合では、恒温(20°C)のインキュベータ内の試料に一定濃度(1000ppb)、定速(流速 560ml/min)の N02 を透過し、入口と出口の N02 濃度の差から試料透過前後の N02 収着量や収着率等を算出した。

なお、後者の透過型試料の形状は、スギ材の平均仮道管長が3~5mmであることを考慮して通気方向に仮導管両端が開放されるように繊維(L)方向長さを1.5mmの試料とし、これを直列に5枚重ねて試験を行った。

さらに、透過型実験により、試料の乾燥条件の影響を調べた。すなわち、熊本県産の約40年生のスギ心材を天然乾燥及び人工乾燥した。人工乾燥の条件は低温 (45°) 、中温 (60°) 、及び高温乾燥 (105°) として、これらの乾燥材から円盤型試料を作成し、透過型実験に供した。さらに、乾燥条件の異なる木口円盤試料からアルコール・ベンゼン溶液への浸漬 (48°) 時間)により、抽出成分を取り除いた試料を透過型実験に供し、 $N0_2$ 収着量のスギ材抽出成分の影響を調べた。

3. 結果と考察

表層流動実験により NO2 ガスを仮道管横断面上に通過させた試料(板状木口試験片)の NO2 収着量を容積換算して、図 4 に示す。図より、単位時間・容積当たりの NO2収着量は試験片の L 方向厚さが厚くなるほど、収着量の増加割合が減少する傾向が認められた。このことは、試験片が薄い程容積当りの収着量が大きい、つまり、汚染物質が流れる木口表面に近いほど収着効果が高いことを示している。

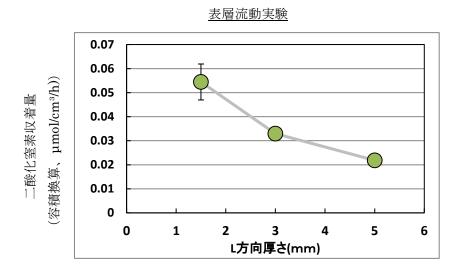


図 4 NO₂収着量(容積換算)に及ぼす板状木口試験片の繊維(L)方向厚さの影響

一方、表層流動実験の結果を透過実験、すなわち、仮道管内に通過させた試料(円盤状木口験片)のそれを比較すると、図 5 のとおりである。透過実験による円盤状木口試料のN02 収着量は表層流動実験の板状試料のそれの7~8 倍程度に達することがわかる。

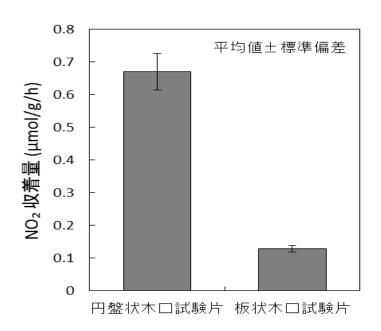


図 5 透過実験(左)及び表層流動実験(右)における試験体 (厚さ:1.5mm)の単位重量当りNO₂収着量

重量換算した NO2 収着量の乾燥条件の影響を図 6 に示す。抽出未処理材では天然乾燥における NO2 収着量が最も大きく、人工乾燥がこれに続くが、同じ人工乾燥でも乾燥温度が高くなるとともに、収着量が低下する傾向が見られた。抽出未処理材は抽出成分を含有し、一方抽出処理材には抽出成分は無いとみなせる。高温乾燥したスギ材は天然乾燥と比較して、抽出成分の中でもテルペノイド類の減少が既往の研究により認められている。乾燥温度の上昇に伴い、低沸点のテルペノイドを主体とするスギ抽出成分が材外へ揮発するためである。したがって、乾燥温度による NO2 収着量の違いはスギ材が含有する抽出成分量の差異によるものと推察される。このことは、抽出処理材が、全ての条件で未処理材よりもNO2 収着量が低下し、かつ乾燥条件に関係なく、ほぼ同じ値を示し、有意差が認められなかったとよく符号する。

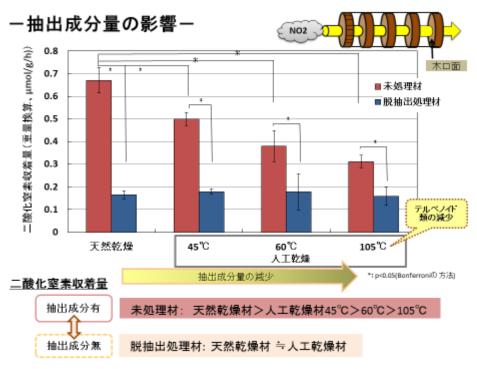
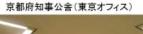


図 6 各乾燥処理方法における脱抽出処理前後のNO2収着率

4. スギ木ロスリット材の応用事例

スギ材、とくにその木口面の優れた大気浄化機能や調湿性能に着目し、板目材や柾目材に 垂直方向に鋸目を施し、木口が現わしになったスギ木口スリット材が住宅の内装材として 開発されている⁸⁾。このような、スギ材の特徴的な機能を十分に発揮させるためには、産地・ 辺心材の影響や乾燥条件、並びに木口を現わすための切削加工の方法、施工上の課題など、 種々の要件の検討が必要である。また実大実験による居住空間の空気質、VOC や湿度の長期 にわたる検証も必要であるが、これらについては次章以下に報告する。

以下にスギ木口スリット材を応用したいくつかの事例を紹介する。





般住宅のリフォーム



朝日ウッドテック(株)ジャパンプレミアム







図7 スギ木口スリット材の応用事例 左上 (壁材)、右上 (壁材、裏面にスリット加工)、 左下 (天井材)、右下 (机、裏面にスリット加工)

参考文献

- 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収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収着 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収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,梅村研二,川井秀一,スギ材の二酸化窒素収着における仮道管内 表面の寄与、第62回日本木材学会大会、2012年3月15-17日(札幌市)研究発表要旨 集, CD-ROM, 2012.
- 7) S. Kawai, E. Matsubara: Wooden Habitat and Human Health- Characterization of air quality and the effect on the human health-. International Symposium on Frontier Researches in Sustainable Humanosphere 2013, Nov., 2013, Kyoto Univ. Kihada Hall
- 「スギ材を用いた二酸化窒素の浄化方法」(有)ホームアイ、大阪府 8) 特許第 4759550 号 2011年

2. 木質住環境と健康

2) 木質住環境内の空気質計測*

高橋 けんし**

京都大学 生存圈研究所

研究組織

高橋けんし、矢吹 正教 ***、津田 敏隆 ***、松原 恵理 ****、川井 秀一 *****

概要

近年、居住空間における空気質がヒトの健康に与える影響に関して非常に高い注目が集まっている。本研究では、気密性の高い居住空間にスギ集材パネルを設置し、揮発性有機化合物や二次有機エアロゾルの観点から見た空気質の測定実験を行った。空気質の計測は、大気化学の研究分野で主に野外観測で用いられているオンラインの超高感度分析装置を用いてリアルタイムに行った。実験の結果、自スギ集材から揮発するセスキテルペンなどの揮発性化合物と自然換気等により流入するオゾンなどの反応性気体との化学反応により、非常に高い濃度のナノ粒子が発生することが分かった。ナノ粒子の発生機構を明らかにするために、クリーンブースを用いたプロセス実験も実施した。一方でナノサイズの二次有機エアロゾルがヒトの健康に与える影響については、未だにほとんど明らかにされておらず、居住圏空気質の総合的な診断のためには、今後必要不可欠な情報である。

1. はじめに

現代人は一日のおよそ8割以上を室内で過ごすとされており、住環境における空気質(Indoor air quality; IAQ)は、ヒトの健康影響を考える上で重要な問題である。住環境空気質の評価をするうえで本研究が着目したのは、揮発性有機化合物(Volatile Organic Compounds; VOC)とエアロゾルである。住環境における VOC は、室内の建材や塗料などの他、洗剤や香水など芳香を放つ物質を発生源としている 11 。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(Secondary Organic Aerosol; SOA)が生成されることが広く認知されている 12 0。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。SOA が人体に対して有害であるという直接的な報告はまだ見当たらないが、エアロゾルの化学組成に依らず一定の粒径以上のエアロゾルに対して重量濃度(例えば、PM2.5や PM1 など)の観点で環境基準を設けている国は多い。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の一つとなっている $^{3.4}$ 0。住環境空気質が、時にシックハウス症候群(Sick Building Syndrome)と呼ばれるよう

^{** 〒611-0011} 宇治市五ヶ庄 京都大学 生存圏研究所 大気圏環境情報分野. E-mail: tkenshi@rish.kyoto-u.ac.jp

^{***} 同 大気圏精測診断分野

^{**** 〒305-8687} 茨城県つくば市松の里1 国立研究開発法人 森林総合研究所

^{***** 〒606-8306} 京都市左京区吉田中阿達町1 京都大学大学院 総合生存学館(思修館)

な健康被害をもたらすことは社会的にもよく知られている。

我々は、大気化学の研究分野で主に野外観測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 を実時間計測しながらそれらの変動特性に着目し、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。

2. 実験方法

行った実験は主として2つの内容に大別できる。一つは、生存圏研究所のレンタルラボを使うことにより、実際の居住空間を模した環境下にスギ集材パネルを配置し、窓や入口ドアからの外気の移流などによる室内空気質の特性変化を調べた実験である。もう一つは、同じくレンタルラボを使用するものの、レンタルラボの中にクリーンブースを設置することで、ある程度の環境制御が可能な実験条件を作り、実際の居住空間で起こる VOC 変動やナノ粒子の生成プロセスに関する詳しい知見を得る実験である。前者の内容は主に平成24年度に、後者の内容は主に25年度に実施した。

平成 24 年度は、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試料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イン分析装置を用いて行った。スギ集材パネルを配置した部屋と、スギ集材パネルを配置していない部屋(コントロール)、ならびに野外からの、各々の空気を時間的に切り替えながらサンプリングしつつ連続的に分析を行った。ガス濃度の計測は、多成分の $VOC \Leftrightarrow O_3$, NO_x , CO_2 などである。エアロゾルは、粒子径 $10nm\sim300$ nm の粒子個数濃度分布を計測した。VOC 測定は陽子移動反応質量分析計(Proton-Transfer Reaction Mass Spectrometry; PTR-MS)⁵⁾を、 CO_2 測定は非分散型赤外分光計を、 O_3 測定は紫外吸光計を、 NO_x 測定はモリブデン触媒ー化学発光法を、各々用いた。微粒子の粒径分布は、走査式ナノ粒子粒径分布計測器で計測した。

平成 25 年度はスギ集材パネルを配置した室内環境におけるナノ粒子の発生機構ならびにその除去方法ついて詳しく検討した。特に、自然換気に伴って室内に発生するナノ粒子の発生要因に着目した

詳しい実験を行うとともに、それを踏まえたナノ粒子の生成・成長を抑制する方法の試験的検討を行った。クリーンブース内に VOCs の生成源としてスギスリット材を 6 枚設置した。スリット材は、24 年度に使用したものではなく、25 年度に施工業者に新規に依頼して作成して頂いたものである。その理由は、24 年度に使用したスリット材からは、ナノ粒子の生成実験に必要な VOC 放出速度が検出されなかったからである(検出実験は、クリーンブースを使った実験とは異なる実験を別途行った)。クリーンブース内における総 VOC 濃度は、真空紫外光イオン化装置の不具合等の為、正確には測定できなかったが、24 年度と同程度かそれ以上であったと推測された。スギ材から放出される VOCs のうち、セスキテルペン(SQTs)に着目して GC-MS による分析を行ったところ、δ-cadinene がおよそ 4 分の 1 を占めることが分かった。クリーンブース内の空気を、走査式ナノ粒子粒径分布計測器および凝縮粒子カウンターに導入して、それぞれ、粒径 10-300 nmにおける粒径分布と粒径 4 nm 以上の総個数濃度をリアルタイム計測した。

3. 結果および考察

3.1 自然換気がスギ集材パネルを設置した居住空間の空気質に与える影響

平成 24 年度に実施したスギ集材パネル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、図 1 に示す。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の) が挙げられる。フラグメントイオンを考慮すると、約 150ppb 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

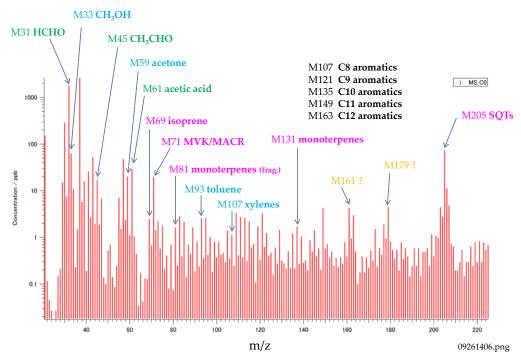


図1:スギ集材パネルの在る実験室で測定したPTR-MSスペクトルの一例。

(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、スギ集材パネル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、両者の寄与であると考えられる。

3.2 クリーンブースを利用した木質住環境におけるナノ粒子の生成過程の検討

クリーンブースを利用した実験ではまず、室外からの空気をブース内部へと自然換気によって 取り入れ、その後瞬時に自然換気を停止し、ブース内を閉鎖系にした。その結果、ブース内にお いてナノ粒子の発生が検出された。ナノ粒子の成長速度を、スギ集材パネルを設置したレンタル ラボと、クリーンブースとで比較してみると、大きく変わらないことが分かった。この観測事実 から、いずれの実験環境においても同様のメカニズムによってナノ粒子が生成されていたことが 示唆された。

ナノ粒子の発生の背景として、VOCs のオゾン酸化反応(ozonolysis reaction)が考えられる。とりわけ、分子内炭素が多い SQTs からはモノテルペンからよりも多くのエアロゾル収量をもたらすことが分かっている 70 。本研究課題の実験においても、VOCs のオゾン酸化反応がナノ粒子生成をトリガーしたと考えられる。本研究ではさらに、市販されている空気清浄器を用いて、ナノ粒子の抑制を試みる実験も試験的に実施した。

4. 今後の展開と将来展望

本研究では、スギ集材パネルから揮発する VOC の酸化反応が、非常に高い数濃度のナノ粒子を室内に発生させることを示した。我々はさらに、比較的多くの人が集まるような室内空間(学

校の教室や市民ホールなど)における空気質環境にも関心を持っている。とりわけ、建材等から発生する VOC が誘発するナノ粒子の生成機構や、戸外からのエアロゾルの流入にも興味がある。

これらの研究に関連する最も重要な議論として、ナノ粒子がヒトの健康に与える影響に関する知見が不足しているという点が挙げられる ¹⁻⁴。ナノ粒子は、その粒径の観点からは、ヒトの肺胞まで到達することが示唆されているが、吸引に伴う生体影響についての知見はほとんどないのが実情である。日常生活における主要なナノ粒子として、VOCs や SO₂の酸化によって生成される二次粒子や、ディーゼル排出ナノ粒子などが挙げられる。こうしたナノ粒子の単体および複合的な生体影響を調べることは、急務な課題である。

参考文献

- 1) P. Wolkoff, C. K. Wilkins, P. A. Clausen, G. D. Nielsen, Organic compounds in office environments sensory irritation, odorm measurements and the role of reactive chemistry, *Indoor Air*, **16**, 7, 2006.
- 2) M. Hallquist, J. C. Wenger, U. Baltensperger, Y. Rudich, D. Simpson, M. Claeys, J. Dommen, N. M. Donahue, C. George, A. H. Goldstein, J. F. Hamilton, H. Herrmann, T. Hoffmann, Y. Iinuma, M. Jang, M. E. Jenkin, J. L. Jimenez, A. Kiendler-Scharr, W. Maenhaut, G. McFiggans, Th. F. Mentel, A. Monod, A. S. H. Pŕevot, J. H. Seinfeld, J. D. Surratt, R. Szmigielski, and J. Wildt, The formation, properties and impact of secondary organic aerosol: current and emerging issues, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9, 5155, 2009.
- 3) A. P. Jones: Indoor air quality and health. Atmospheric Environment, 33, 4535, 1999.
- 4) P. Wolkoff, Mini-Review: Indoor air pollutants in office environments: Assessment of comfort, health, and performance, *International Journal of Hygiene and Environmental Health*, **216**, 371, 2013.
- 5) R. S. Blake, P. S., Monks, and A. M. Ellis, Proton-Transfer Reaction Mass Spectrometry, *Chemical Review*, **109**, 861, 2009.
- 6) S. Kim, T. Karl, D. Helmig, R. Daly, R. Rasmussen, and A. Guenther, Measurement of atmospheric sesquiterpenes by proton transfer reaction-mass spectrometry (PTR-MS), *Atmospheric Measurement Technique*, **2**, 99, 2009.
- 7) B. Bonn and G. K. Moortgat: Sesquiterpine ozonolysis: Origin of atmospheric new particle formation from biogenic hydrocarbons. *Geophysical Research Letters*, **30**, 1585, doi:10.1029/2003GL017000, 2003.

成果発表

- 1) 高橋けんし, 矢吹正教, 松原恵理, 川井秀一, 津田敏隆: 居住空間における二次粒子生成過程 に与える換気の影響、第54回大気環境学会年会, P-001, 2013年9月, 朱鷺メッセ (新潟)
- 2) K. Takahashi, M. Yabuki, T. Tsuda: Observational and experimental studies on the air quality issues in outdoor and indoor environments. International Symposium on Frontier Researches in Sustainable Humanosphere 2013 Humanosphere Science School 2013—, Nov., 2013, Kyoto University Kihada Hall.

2. 木質住環境と健康

3-1) スギスリット材の調湿機能

古田 裕三 京都府立大学 生命環境科学研究科

研究組織

古田裕三、三好由華、田井駿一、馬場潤一、古谷真理子、石原麻由子

研究概要

スギスリット材の調湿性能を向上させるために、スリット試料の溝の形状、空気の対流、熱処理が吸放湿性能に及ぼす影響について検討を行った。その結果、スリット試料の吸放湿速度は木口面の増加にしたがって増加した。しかしながら、凹部深さが深い試験体では、木口面の面積が増加するにもかかわらず、吸放湿速度は増加しなかった。一方で、凹部深さの深いスリット試料の吸放湿速度は、空気を対流させることにより増加した。そして、その増加率は凹部深さが深い試料ほど大きかった。

スリット試料の平衡含水率は熱処理温度が高くなるにつれ減少した。細胞壁内の 0.6nm以下のミクロ孔の細孔容積も熱処理温度が高くなるにつれ減少した。

スリット材の最適な製造条件を確立するには、製造コストや歩留まり、乾燥条件、 設置環境などについて更に考慮する必要があると考えられた。

1. 研究の背景と目的

スギ木ロスリット材(以下、スリット材)は、板目材に繊維直交方向の溝(スリット)加工を施し木口面を増加させることで、大気浄化能力や吸放湿性能の向上を図っている内装材である。このスリット材は、すでに実用段階にあり、家具、内装材などとして使用されている。しかしながら、スリット材に施すスリットの形状(深さ、角度など)や、材の乾燥条件などがスリット材の吸放湿性能に及ぼす影響については未だ明らかでない。そこで、本研究では、スリット材の最適な製造条件を把握することを目的として、スリットの形状や、材の乾燥温度、設置環境などの各種因子と吸放湿性能の関係について検討を行った。

2. 実験方法

2.1 供試試料

試料には、天然乾燥された京都府立大学付属大野演習林産の 50 年生スギを用いた。 胸高直径は約 25 cmであった。試料(1)吸放湿の測定用、試料(2)平衡含水率の測定用、 試料(3)ミクロ孔の測定用の 3 種類の試料を作製した。

試料(1)の形状を図.1 に示す。繊維方向(L 方向)の厚さの影響を検討するため、L

方向厚さの異なる板状試料(図 1(a))を作製した。L 方向寸法は 2mm、5mm、7mm、10mm とした。また、L 切削角度の影響を検討するため、L 方向に対する切削角度の異なる板状試料(図 1(b))を作製した。L 方向に対する切削角度は、 0° (板目板)、 30° 、 45° 、 60° 、 90° (木口板)とした。これらの試料は横断面を除く、四方をアルミテープでシーリングした。

凸部の L 方向厚さの影響を検討するため、凸部の厚さの異なるスリット試料 (図.1(c2))を作製した。凸部の厚さは 2mm、5mm、7mm、10mm とし、凹部の深さ及び幅はそれぞれ 7mm、6mm とした。また、凹部深さの影響を検討するため、凹部深さの異なるスリット試料(図.1(d2))を作製した。凹部深さは 3mm、7mm、15mm、20mm、30mm とし、凸部厚さ、凹部幅はそれぞれ 6mm、7mm とした。スリット試料は、70mm(L)×40mm(R)×70mm(T)の板目面にスリットを施して作製した。加えて、スリット施さない板目試料も作製し、実験に供試した。スリット試料は、凸部以外からの吸湿を防ぐため、図.1(c1)(d1)に示すように、側面をアルミテープでシーリングした。

試料(2)は $7mm(L) \times 40mm(R) \times 40mm(T)$ に切り出し、25、45、60、100 の各温度で全 乾状態まで乾燥させた後(熱処理)、実験に供試した。試料(3)の形状は、 $1\sim 2mm$ の立 方体とした。重量は約 1 グラムであった。

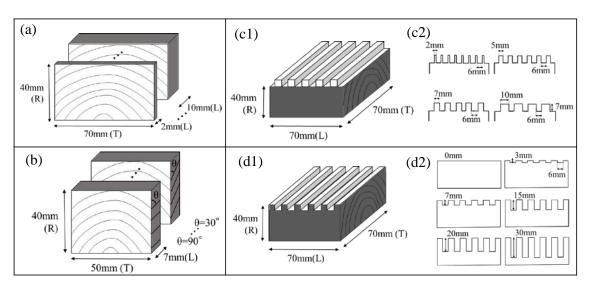


図.1 試験体の形状

(a)L 方向の厚さの異なる板状試料 (b)L 方向に対する切削角度の異なる板状試料 (c)L 方向の凸部厚さの異なるスリット試料 (d)凹部深さの異なるスリット試料

2.2 吸放湿速度の測定

それぞれの試料が恒量に達するまで、恒温室(20%.65%RH)で養生した後、KN0。飽和塩入りデシケータ内(20%.93%RH)で各試料の吸湿を開始した。吸湿開始から、30

分後、1 時間後、1 時間 30 分後、3 時間後、6 時間後、12 時間後、24 時間後の重量を 測定した。測定方法は以下の通りである。試験体をデシケータから取り出し、電子天 秤を用いて重量を測定した後、試験体をデシケータに素早く戻した。これらの測定は 無風もしくは空気を強制対流させた条件下で行った。デシケータ内の空気の対流はケースファン(1400rpm、92mm×92mm)を用いて発生させた。風速は約 0.7m/s であった。 スリット試料およびケースファンの配置を図.2 に示す。



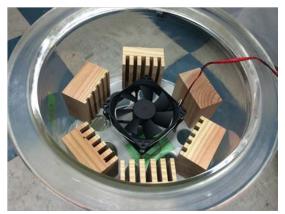


図.2 強制対流時のファンおよび試料の配置 (左)ケースファンを設置したデシケータ (右)スリット試料の配置

2.3 平衡含水率の計測

試料(2)を、それぞれ 23% RH (CH3COOK)、42% RH (K2CO3)、65% RH (NH4NO3)、85% RH (KC1)の飽和塩水溶液入りデシケータに静置した。試料が恒量に達した後、平衡含水率を計測した。

2.4細孔容積の測定

細孔容積の測定には全自動ガス吸着装置、AUTOSORB-1 (Quantachrome 社製)を用いた。装置概要を図.3 に示す。試料(3)を、AUTOSORB-1のマントルヒーターを使用して、45 $^{\circ}$ $^{\circ}$ $^{\circ}$ $^{\circ}$ $^{\circ}$ $^{\circ}$ でそれぞれ 19 時間乾燥させ、二酸化炭素の吸着量の測定を行った。得られた吸着等温線から、過去の例に倣って $^{1)}$ HK 法による解析を行い、細孔径と微分細孔容積の関係を求めた。

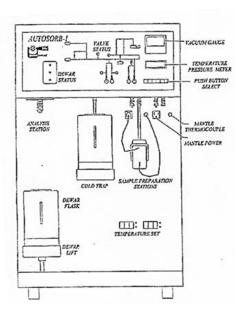


図.3 全自動ガス吸着量測定装置 AUTOSORB-1

3. 結果および考察

3.1 板状試験体の吸放湿性能

調湿材の調湿性能を評価する場合、湿度変化後の吸放湿速度が重要となる。そこで、L方向厚さ、L方向に対する切削角度の異なる板状試験体の吸放湿速度を測定した。図.4 に板状試料の単位体積当たりの吸放湿量の一例を示す。図.4 から、単位体積当たりの吸放湿量の変化量は、測定開始 10 時間程度で大きく減少することが確認された。そこで、本報告では、測定開始から 6 時間後の単位体積当たりの吸放湿量の値を吸放湿速度とした。

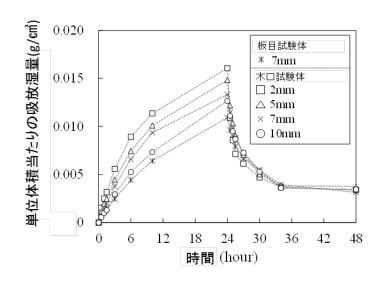


図.4 L 方向厚さの異なる板状試料の吸放湿量の変化

図.5 に L 方向厚さと吸放湿速度の関係を示す。吸放湿速度は L 方向厚さが厚くなるほど減少する傾向がみられた。一般にスギの仮道管長は 3mm であり 2)、このことが L 方向厚さの異なる木口板の吸放湿性能に影響したと考えられた。

木材の吸放湿性能は、板目面より木口面において優れていると報告されている 3)4)。 木材の L 方向に対する切削角度を小さくしていくと、切削面の面積は増加する。しかしながら、切削面に占める木口面の投影面積の割合は減少する。そこで、木口面面積が吸放湿性能へ及ぼす影響を検討するため、有効木口面面積率 (以下、EAR) を定義した。両端の木口面面積が同じ角材を、軸方向に対して斜めに切削すると、露出する横断面積は増加するが、木口面の投影面積は変化しない。このときの、露出している横断面に対する元の木口面面積の割合を EAR と定義した。したがって、木口面の EAR は100%となる。図.6 に吸放湿速度と EAR の関係を示す。EAR が大きいほど、吸放湿速度は増加した。一方で、木口面より EAR の小さい、切削角度が 90°以下の試験体は、木口面に比べ、細胞内腔表面がより露出していたと考えられる。つまり、横断面におけ る吸放湿性能には、細胞内腔表面が露出することより、細胞壁内の水分拡散が影響することが示唆された。

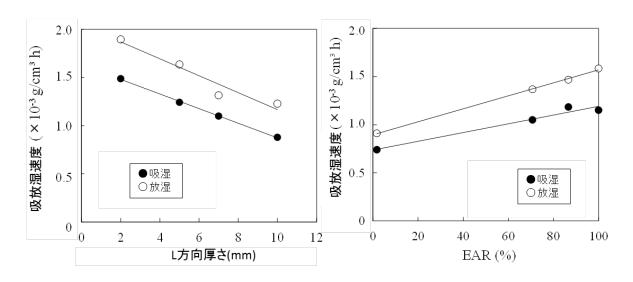


図.5 吸放湿速度と L 方向の厚さの関係 図.6 吸放湿速度と有効木口面積率(EAR)の関係

3.2 スリット試料の吸放湿性能

図.7 に、凸部の L 方向厚さの異なるスリット試料の、凸部体積当たりの吸放湿速度と、凸部木口面面積当たりの吸放湿速度を示す。凸部体積当たりの吸放湿速度は凸部の L 方向厚さが厚くなるにつれて減少し、板状試験体の吸放湿速度の傾向と一致した。このことから、スリット材凸部の吸放湿性能の発現機構は、板材のそれと同じとみな

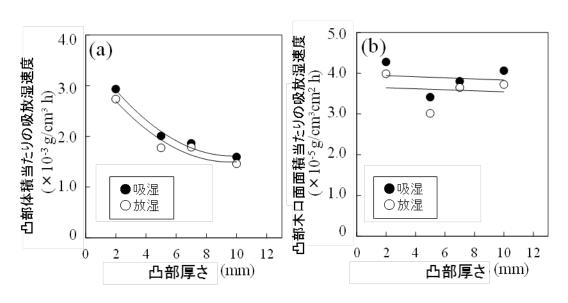


図.7 吸放湿速度と凸部の L 方向厚さの関係

(a) 凸部体積当たりの吸放湿速度 (b) 凸部木口面面積当たりの吸放湿速度

してもよいことが示唆された。したがって、スリット材凸部の吸放湿性能は、板材の それにより評価できる可能性があることが示唆された。一方、凸部木口面面積当たり の吸放湿速度は、スリット試料の凸部厚さと明確な関係は見られなかった。

図.8 に、凹部深さの異なるスリット試料の、凸部体積当たりの吸放湿速度と、凸部木口面面積当たりの吸放湿速度を示す。凸部体積当たりの吸放湿速度は、凹部深さが深くなるにつれ減少した。また、凸部木口面面積当たりの吸放湿速度でも同様の傾向がみられた。このような結果が得られた原因として、今回、吸放湿測度の測定を無風状態のデシケータ内で行っていため、凹部深部で、空気が対流していなかったことが考えられる。これに伴って、凹部深部の木口表面での吸放湿性能が制限され、吸放湿速度が低下したことが考えられる。したがって、凹部深部で空気を強制対流させることで、吸放湿量が増加することが考えられた。

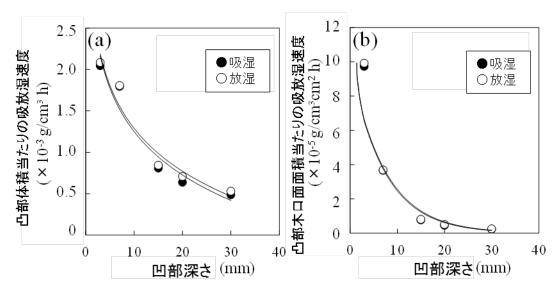


図.8 吸放湿速度と凹部深さの関係

(a) 凸部体積当たりの吸放湿速度 (b) 凸部木口面面積当たりの吸放湿速度

そこで、空気の対流がスリット試料の吸放湿性能に与える影響を明らかにするため、図.9に、空気の対流による吸放湿速度の変化率 (M/M_a) と、スリット試料の凹部深さの関係を示す。M は無風条件下の吸放湿速度、 M_a は空気を対流させた場合の吸放湿速度である。すべての凹部深さの異なるスリット試料において、 M/M_a は空気を強制対流させることにより増加した。 M/M_a の値は凹部深さの深い試験体ほど大きくなった。

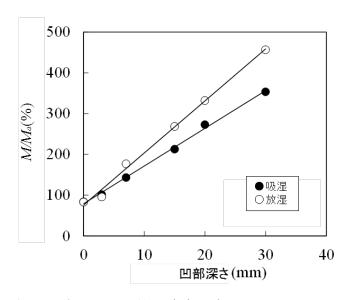


図.9 空気の対流による吸放湿速度の変化

M:無風条件下の吸放湿速度 Ma:空気を対流させた場合の吸放湿速度

これら結果から、以下のことが考えられる。スリット試料の吸放湿速度は、木口面面積が増加するにしたがって増加する。しかしながら、凹部を深くすると、木口面面積が増えるにもかかわらず、吸放湿速度は減少する。さらに、その減少した吸放湿速度は、凹部深部において空気を強制対流させることにより増加する。今後は、スリット材の調湿性能の制御技術の更なる向上のため、凹部の幅や空気の対流の条件が吸放湿性能に与える影響について更に検討する必要があると考えられる。特に、空気の対流が吸放湿性能に及ぼす影響については、より実際の使用環境に近い条件下において、スリットに対する対流の向き、風速などの影響について検討が必要である。

3.3 スギ材における熱処理の影響

現在、スリット材は、スギ材から放出される香気成分を減少させないよう、低温で乾燥が行われている。しかしながら、乾燥条件が調湿性能に与える影響については未だ検討されていない。そこで、乾燥温度に着目し、様々な温度で熱処理を行った験体の吸湿性について検討を行った。図. 10 に、熱処理温度と各相対湿度下における平衡含水率との関係を示す。平衡含水率は熱処理温度の増加とともに減少した。熱処理温度の異なる試験体間での各相対湿度における平衡含水率の差は、相対湿度が低いほど大きくなった。これと同様の傾向は、140 $^{\circ}$ $^{\circ}$

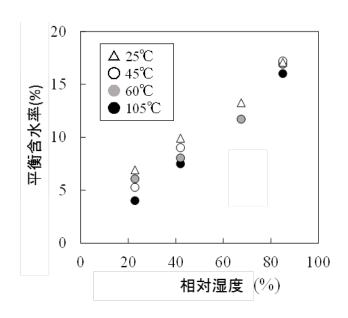


図.10 各乾燥温度と各相対湿度にお ける平衡含水率との関係

図.11 乾燥温度の異なる試料の細孔径と 微分細孔容積(dV/dL)の関係

めであると示唆された。熱処理による吸湿性やミクロ孔の減少は、吸水または吸湿させることにより、ほぼ元の水準まで回復することが報告されている ¹⁾⁵⁾。つまり、木材の熱処理による吸湿性やミクロ孔の減少は可逆的な変化である。このことから、今後、異なる乾燥スケジュールで乾燥させたスリット材に対して、乾湿繰り返し試験を行うことにより、吸放湿性能を損なわないような、適切な乾燥法や使用法が提案できる可能性が考えられる。

引用文献

- 1) Kojiro, K., Furuta, Y., Ishimaru, Y.: Influence of heating and drying history on micropores in dry wood, J Wood Sci, 54, 202-207, 2008.
- 2) 文英堂出版 日本木材学会編 木質の構造, p. 37
- 3)津村千香子:木材木口面の吸放湿性能に関する研究(その 1 湿度変動による評価), 2006年度日本建築学会大会講演梗概集,1003-1004,2006
- 4) 宮野秋彦,小林定教,宮野則彦:木材の湿気透過特性について,日本建築学会大会学術講演梗概集 環境工学分冊 265-266, 1994.
- 5) 小幡谷英一,田中文男,則元京,富田文一郎:熱処理木材の吸湿性(第 1 報) 熱処理木材の吸湿性に対する後処理の影響,木材学会誌,46・2,77-87,2000

2. 木質住環境と健康

3-2) スギスリット材を用いた保管庫の調湿機能と空気質

木村彰孝*

広島大学 教育学研究科

研究組織

木村彰孝、中川美幸**、中山雅文***、山本良雄***、中村宜弘***、辻野喜夫****、藤田佐枝子*****、松原恵理******、川井秀一*******

研究概要

空気汚染物質の収着能や調湿能に優れていることが明らかとなっているスギ木口面を多く露出させたスギスリット材 (以下、スリット材) が開発され、内装等への利用が進められつつある。本研究課題では、スリット材を用いた実大空間の性能評価およびデータの蓄積を産学連携で進めている。そのうち、本報告では保存環境の維持に必要なエネルギーを可能な限り使用することなく良好な環境の維持と向上を図ることと、利用者である人の安全・安心の配慮を両立した保管庫の実用化を目指し、スリット材の使用量とスリットの有無が実大保存空間の調湿能と空気質に与える影響、スリット材の調湿能や空気浄化機能が金属の腐食とカビの成長抑制に与える影響、について検討した。

1. はじめに

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 1 NO $_{2}$ 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 $^{2-5}$ 1 が既往の研究や他の研究課題により明らかとなりつつある。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木口スリット材(以下、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。また、スギ材の香り(抽出成分)は吸入することで人に対して鎮静的に作用することなどが多くの研究により明らかとなっており 6 0、スリット材を用いることで同様の作用が期待される。このような機能を有するスギスリット材を保存空間に用いることで、保存環境の維持に必要なエネルギーを使用することなく良好な保存環境の維持・向上と利用者である人の安全・安心に配慮した保存空間の創造が期待される。しかし、実際の保管庫に施工し、その効果を実大実験により検証した研究は行われていない。

そこで、本研究ではスリット材を用いた保管庫の実用化を目指し、スリット材の使用量とスリットの有無が実大保存空間の調湿能と空気質に与える影響、スリット材の調湿能や空気浄化機能

- * 広島大学教育学研究科
- ** 元京都大学大学院農学研究科修士課程
- *** 中山倉庫株式会社
- **** 元大阪府立環境農林水産総合研究所
- ***** 有限会社ホームアイ
- ****** 森林総合研究所
- ******* 京都大学·大学院総合生存学館

が金属の腐食とカビの成長抑制に与える影響、について検討した。本報では、これまでの研究成果の概要と今後の予定を報告する。

2. 実験方法

2.1 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(内寸幅1,605×奥行1,850×天井高2,025mm)、壁面4ヶ所に通気口)の内面にスリット材と板目材を施工した。スリット材はスギ板目材に溝加工(凹部幅6、凸部幅7、深さ6mm)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6種類作成した。各保管庫の仕様を表1に示す。なお、保管庫へのスギ材施工は2012年6月19、20日に実施した。

	N. M. C.									
				* • •						
	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		
スギ材 ¹⁾	P#	前面	-	-	-	スリット材	スリット材	板目材		
使用箇所	壁-	左右面	_	-	-	-	スリット材	-		
	床2)		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		
金属試験片	20	011年1月24日~3)	×	0	0	×	0	×		
設置	2	2013年12月28日~	×	0	×	0	×	0		

表1: 供試保管庫の仕様

- 注1) 45℃乾燥した熊本県小国産スギ板目材(約40年生)
- 注 2) 床材に使用されている合板による影響を考慮し、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
- 注 3) 同一内装仕様(天然乾燥した和歌山県産スギ板目材(約40年生)、施工日:2010年12月24日)の保管庫にて2011年1月24日から2012年6月19日まで暴露していたものを2012年6月20日に移設

2.2 測定項目

本研究では、温湿度、空気質、カビと金属試験片の暴露試験を実施した。測定方法を以下に、 測定状況を図1に示す。

(1) 温湿度

保管庫内中央、倉庫内、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。測定場所に金属製 H 型スタンドを設置し、クランプで温湿度計を固定した。

(2) 空気質

保管庫内の空気質の検討として、VOC類(厚生労働省の指針値を一部含む VOC 48 成分と TVOC) に加え、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、テルペン類の分析を行った。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、TVOC および VOC 48 成分とそれを除く上位 10 成分を加熱脱着-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。各項目における空気捕集と分析の方法を表 2 に示す。なお、VOC 48 成分とそれを除く上位 10 成分の分析結果は族別に分類した。

(3) カビの暴露試験

カビの成長抑制に与える影響を実験的に評価することを目的に、カビセンサー(環境生物学研究所)を用いた暴露試験を行った。カビセンサーとは、表 3 に示す住宅に生息するカビのうち好湿性のカビである Alternaria alternta、好乾性カビである Eurotium herbariorum、絶対好乾性カビである Aspergillus penicillioides の成長可能相対湿度の下限値が異なる 3 種類の標準菌を、図 2 に示す状態で不織布の袋の中に閉じ込めたものである 7。

カビセンサーの暴露スケジュールを図 3 に示す。暴露は保管物のカビ発生が最も懸念される2012年6月20日~9月27日を4週間程度の3期間(期間①~③)に分けて行った。加えて、期間①については最も湿度が高い梅雨であったことから、期間を2つに分けた条件(期間①-1、2)を設けた。各期間における開始日の15:00頃に各保管庫内、屋外、倉庫内に設置した支持棒につり下げることで暴露を開始し、終了日の15:00頃に回収した後、菌糸長を測定した。菌糸長のうち、図4に示すように胞子分散スポットの外側まで伸長していない場合は胞子からの長さ、胞子分散スポットの外側まで伸長している場合はスポット端からの長さを測定し、最も長いものから2~4番目の菌糸長の平均値を測定値とした。

(4) 金属試験片の暴露試験

金属の腐食に与える影響を実験的に評価することを目的に、金属試験片の暴露試験を行った。金属試験片には、日本テストパネル社製の①炭素鋼(JIS G 3141、SPCC-SB、縦:40×横30×厚さ:1.2mm、取り付け孔:1ヶ所(直径:6mm)、両面#400 研磨仕上げ)、②銅(JIS H 3100、C1100P、縦:40×横30×厚さ:0.5mm、取り付け孔:1ヶ所(直径:6mm)、両面鏡面バフ研磨仕上げ)、③銀(純金99.98%以上、縦:40×横30×厚さ:0.5mm、取り付け孔:1ヶ所(直径:6mm)、両面鏡面バフ研磨仕上げ)を用い、各金属試験片は暴露開始前にアセトンで超音波洗浄を行うことで脱脂処理した後、乾燥させた。処理後の金属試験片は、ポリプロピレン製の糸を孔に通した状態で各金属試験片が接触しないよう、保管庫内、倉庫内、屋外に設置した支持棒につり下げた。加えて、未暴露(blank)としてシリカゲルを入れたデシケーター内にて保管した。

実験は 2011 年 1 月 24 日に開始し、2012 年 6 月 19 日までは今回設置した C2、S1、S3 と同一内装の保管庫内にて暴露した。その後、本研究で施工した保管庫が完成した 2012 年 6 月 20 日にそれまで暴露していた保管庫から移設した。暴露後の金属試験片は、約半年後、1 年後以降 1 年間隔で重量(電子天秤(精度:0.01mg)を使用)、寸法(マイクロメータ(精度:0.001mm)とノギス(精度:0.01mm)を使用)、光沢度、色彩の測定と表面観察を行った。重量については暴露前も測定した。光沢度は変角光沢度計(VGS-1D、日本電色工業)を用い、鏡面光沢度を測定した。入射角および受光角は共に 60°に設定し、表裏それぞれについて中央の縦・横方向の計 4 点を測定し、その平均値を測定値とした。色彩は分光測色計(CM-2600d、コニカミノルタ)を用いて金属表面色を測定した。試験片表面上に設定した図 5 に示す 4 ヶ所の直径 8mm の円内を測定箇所とし、4 点の平均値を測定値とした。測定条件は、測定径:8mm、紫外線:100%含む、正反射光:含む、光源:D65、視野角:10°とした。測定値は L*a*b*表色系(JIS Z 8729)により表示した。なお、色差については暴露時間 t における色差(△E)を式 1 により算出した。表面観察は、まず目視により金属試験片表面を観察した後、マイクロスコープ(DS-3USV、MAGNIFICATION)を用い、試験片表面の中心を 300 倍、右縁中央を 100 倍で撮影・観察した。

$$\triangle E = [(Lt^* - Lr^*)^2 + (at^* - ar^*)^2 + (bt^* - br^*)^2]^{1/2}$$
(1)

∠E:色差

Lt*、at*、bt*:時間 t における暴露試験片の L*、a*、b*

Lr*、ar*、br*:時間tにおける未暴露試験片(blank)のL*、a*、b*





(a) 倉庫内







30

0

15

(b) 屋外倉庫内

図1:測定状況

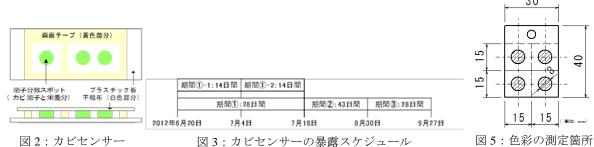


図2:カビセンサー

図3:カビセンサーの暴露スケジュール

(a) スポットの外側まで伸長していない場合 (b) スポットの外側まで伸長している場合 図4:菌糸長の測定方法

50

表 2: 空気捕集と分析の方法

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	加熱脱着-GC/MS法 加熱脱着部: Turbo Matrix ATD (PerkinElmer社) GG部: 6890N	カラム: HP-VOC(長さ: 60m, 内径: 0.32mm, 膜厚: 1.8 \(\mu \) M, 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	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	吸着材:TenaxTA	(Agilent Technologies社) MS部:5973inert (Agilent Technologies社)	7-70-20で(5.0°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	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
アルデヒド アセト	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:5μm,ジーエルサイエンス社) カラム温度:40°C,移動相流量:12mL/min 検出波長:360nm,注入量:10μL	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	アクティブサンブリング法 流量:0.1L/min, 時間:180分間 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:025mm, 膜厚:0.25 μ m, フロンティアラボ社) オープン温度:50℃(3min)-(15℃/min)-150℃ -(4℃/min)-170℃-(20℃/min)-250℃ 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

表3:住宅に生息するカビ

	生長可能相対湿度 の下限値	代表例	カビセンサーに用い られている菌種
絶対好湿性カビ	90~100%程度	Alternaria (アルタナリア、ススカビ) Rhizopus	_
好湿性カビ	90~100%程度	(リゾープス、クモノスカビ) Mucor (ムコール、ケカビ)	Alternaria alternta
中湿性 かご (耐乾性真菌)	80~90%程度	Aspergillus (アスペルギルス、コウジカビ) Penicillium (ペニシリウム、アオカビ)	_
好乾性カビ	65~80%程度	Aspergillus の一部 Penicillium の一部 Eurotium	Eurotium herbariorum
絶対好乾性 カビ	03~60%程度	(ユーロチウム、カワキコウジカビ) Wallemia (ワレミア、アズキイロカビ)	Aspergillus penicillioides

3. 結果と考察

3.1 温湿度 8)

結果の例として、各保管庫の梅雨期(2013 年 5 月 27 日~7 月 8 日)における温湿度の日較差(1 日 $(0:00\sim23:45)$ の最大・最小値の差)を図 6 に示す。気温は保管庫間で大きな違いは認められなかった。湿度はスリット材使用量の増加とともに小さくなり、調湿能の向上が確認された。しかし、スリット材と板目材を同一面積とした S2 と N2 を比較すると、実験室実験で得られた結果 11 とは異なり、両者で大きな違いは認められず、最大・最小値については N2 の方が低い値となった。これは、保管庫内の換気量が 0.2 回/n 程度と低く、空気の動きが少ない環境であったことにより、スリット凹部の空気が循環しづらく、スリット全体を有効に使用できでいなかったことによると推測される。

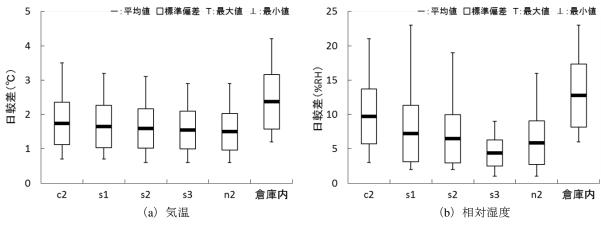


図 6: 各保管庫の梅雨期 (2013年5月27日~7月8日) における温湿度の日較差

3.2 空気質 9)

各保管庫における TVOC、ホルム・アセトアルデヒド、テルペン類気中濃度の経時変化を図 7に示す。ホルムアルデヒドとアセトアルデヒドの気中濃度について、厚生労働省では基準値を各 100、 $48\mu g/m^3$ と定めている。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以下となった。

TVOC の気中濃度は、施工 211 日後で最も低い値を示した。その後は時間経過と共に増加し、スギ材を用いた保管庫における施工 402 日後の測定値は施工 29 日後の 30%程度を示し、全保管庫で厚生労働省の暫定目標値 (400μg/m³) 以上となった。また、最も TVOC の気中濃度が高かった S3 について族別に VOC 気中濃度をみると、テルペン類の占める割合が最も大きく、TVOC 気中濃度の増減に最も影響を及ぼしていた。スギ材未施工の C2 および倉庫内ではテルペン類のTVOC に占める割合は小さいことから、測定されたテルペン類の多くはスギ材由来のものであると考えられる。本実験で用いた保管庫のような換気回数の少ない条件の場合、施工から 1 年以上経過しているにも関わらず比較的高濃度のテルペン類が存在することが確認された。

テルペン類を分析した結果、 α -Cubebene、 β -Cubebene、 β -Caryophyllene、 α -Muurolene、 δ -Cadinene などの主にセスキテルペン類が 25 成分検出された。主成分は δ -Cadinene であり、抗菌性が報告されている α -Humulene、 β -Caryophyllene も含まれていた。なお、スギ材未使用の C1 と C2 では検出されなかった。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: $10,372\mu g/m^3$ となり、時間経過と共に減少した。また、スリット材の使用量の増加と共に気中濃度は高くなり、スリット材を天井と壁一面に施工した 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。

アセトアルデヒドについては、特に木材や木質材料から多く放散することが知られている $^{10,11)}$ ことから、スリット材の使用量の増加と共に大きくなり、加えて表面積の大きい S2 は N2 より大きくなったと考えられる。ホルムアルデヒドはギ酸、アセトアルデヒドは酢酸に変化する可能性があり、それらの物質は金属の腐食や顔料の変色に影響を及ぼす代表的な物質されている $^{12)}$ 。よって、本実験に用いた保管庫における気中濃度は厚生労働省の基準値以下であったものの、一定期間の養生期間を設けることで、TVOC の気中濃度の暫定目標値以下への低減と同時にホルムアルデヒドとアセトアルデヒドの気中濃度を可能な限り低下させた状態で使用することが保存空間としては望ましいと推測される。

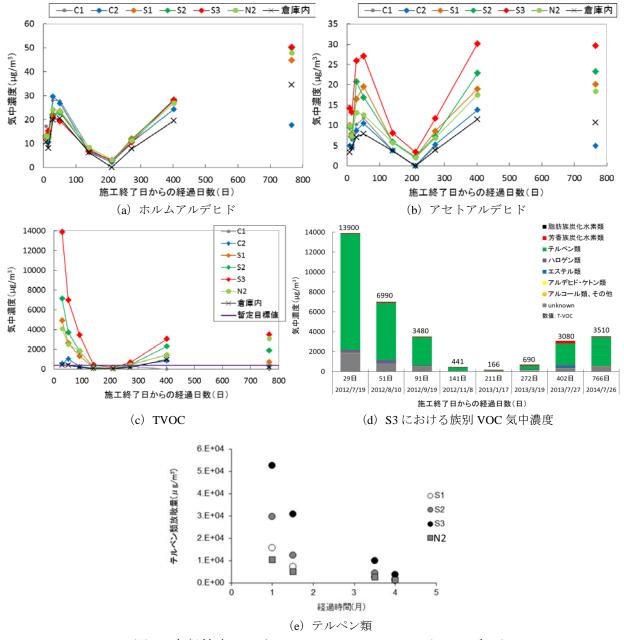


図7:各保管庫におけるTVOC、ホルム・アセトアルデヒド、 テルペン類気中濃度の経時変化

3.3 カビの暴露試験

各保管庫、倉庫内、屋外の菌糸長のうち、期間①と期間①-2について表 4に示す。暴露期間①から③のうち、期間②と③については屋外を除く全ての条件において発芽が認められなかった。期間①について、好湿性のカビである Alternaria alternta は屋外を除く全ての条件において発芽が認められなかった。しかし、絶対好乾性カビである Aspergillus penicillioides と好乾性カビである Eurotium herbariorum は保管庫間で菌糸長に違いが認められ、スリット材使用量の増加に伴い菌糸長は短くなり、S3 における Eurotium herbariorum では発芽が認められなかった。加えて、スリット材を天井と壁一面に施工したS2の菌糸長は板目材を同一仕様で施工したN2と比較して短かった。

期間①を2つに分けた条件である期間①-1、2については暴露期間の後半である①-2におい

てのみ保管庫内で発芽し、期間①-1では屋外を除く全ての条件において発芽が認められなかっ た。期間 \mathbb{I} \mathbb{I} ここれで、好湿性のカビである Alternaria alternta は屋外を除く全ての条件におい て発芽が認められなかった。しかし、絶対好乾性カビである Aspergillus penicillioides と好乾性カ ビである Eurotium herbariorum は保管庫間で菌糸長に違いが認められ、スリット材使用量の増加 に伴い菌糸長は短くなり、S2 と S3 における Eurotium herbariorum、S3 における Aspergillus penicillioides では発芽が認められなかった。加えて、スリット材を天井と壁一面に施工したS2の 菌糸長は板目材を同一仕様で施工した N2 と比較して短かった。以上のことから、スリット材は 板目材よりカビの成長抑制作用は高いこと、加えてスリット材使用量の増加によりカビの成長抑 制作用は高くなることが明らかとなった。

表 4: 各保管庫における菌糸長

(a) 期間①: 2012年6月20日~7月18日

(b) 期間①-2:2012年7月4日~18日

Alternaria alternat

(好湿性カビ)

213.3

	Aspergillus penicillioides (絶対好乾性カビ)	Eurotium herbariorum (好乾性カビ) 相対湿度が96%以上72%以下 で発育速度が低下	Alternaria alternata (好湿性カビ)		Aspergillus penicillioides (絶対好乾性カビ)	Eurotium herbariorum (好乾性カビ) 相対湿度が96%以上72%以下 で発育速度が低下
C1	200.0	566.7	-	C1	123.3	210.0
C2	293.3	380.0	-	C2	160.0	303.3
S1	218.3	343.3	-	SI	138.3	190.0
S2	96.7	63.3	-	S2	13.3	-
S3	43.3	-	-	\$3	-	-
N1	153.3	210.0	-	N1	71.7	103.5
倉庫内	313.3	653.3	-	倉庫内	160.0	250.0
屋外	2433.3	>3000	333.3	屋外	1066.7	2273.3
San Santa San	E/ \ Elistophico	(平日の下わけ のまれ) こう	SLINE LIED IN INC.	SALS HER AL	E/ \ Eustonico	(平日の下わけ のせた)

注)菌糸長(μm):長いものから2~4番目の平均値、-:発芽なし 注) 菌糸長(µm):長いものから2~4番目の平均値、-:発芽なし、>: 計測上限値以上

3.4 金属試験片の暴露試験

結果の例として、炭素鋼暴露試験片における色彩と光沢度の経時変化を図 8、表面観察の結果 を表 5 に示す。スリット材使用量の増加に伴って明度 L*が僅かではあるが低下する傾向が認めら れた。a*については時間経過に伴うスリット材の使用量による変化の違いはほぼ認められなかっ たのに対し、b*はスリット材使用量の増加に伴い僅かではあるが大きくなり、黄みへの変化が増 すことが分かった。色差はスリット材使用量の増加とともに僅かではあるが大きくなる傾向を示 し、スリット材の使用により色彩変化が大きくなることが示唆された。光沢度について、暴露325 日後までは保管庫間で光沢度に大きな違いは認められなかったが、その後において S3 は S1、C2 と比較して小さくなった。

以上の結果から、スリット材の使用量の増加は金属の色彩や光沢度に影響を与える可能性が示 唆された。及川はスギ材由来の揮発成分によりわずかなくもりを生じたことを報告しており ¹³⁾、 本実験では高濃度のスギ材由来の揮発性成分に暴露されていたことからスギ材由来の揮発性成 分の付着、あるいは腐食による影響が推測される。今後は、金属表面に生成されている物質の成 分分析等を通して、色彩や光沢度の変化に影響を与えた要因の解明を進める。

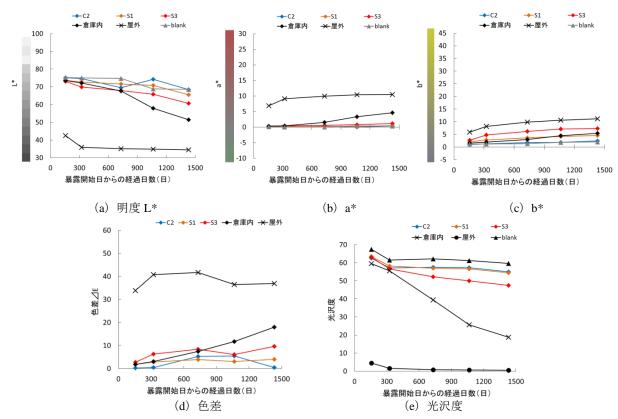
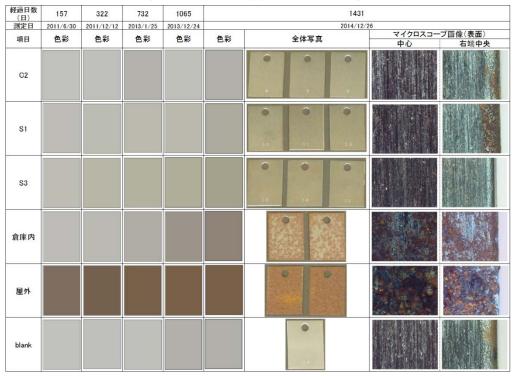


図8:各保管庫における炭素鋼暴露試験片の色彩と光沢度の経時変化

表 5: 各保管庫における炭素鋼暴露試験片の表面観察の結果



注:色彩の項目は各条件における明度、色相、彩度の測定結果を用い、ソフトウェア(彩チェック XP Ver.1、(株) ポープ・ロース (水) により表示したものである。

4. まとめ

本研究により、調湿機能と空気質に加え、実際の使用を想定した視点からスリット材を保存空間へ用いることの有効性と改善点を明らかにされつつある。今後は、これまでに得られた結果を再検証しつつ、金属の保存状態の評価を含めて引き続き実験を進める予定である。特に、スギ材を用いた保管庫内に存在するテルペン類が金属の腐食に与える影響について検証する。以上の成果を基に、スギ材の調湿・空気質改善性能を生かし、かつ実用に即した材料やその施工法の提案を行うことで、研究成果の産業界への還元を目指していきたいと考えている。

参考文献

- 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, pp.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収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収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収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) 木村彰孝, スギ材の香りがヒトの生理反応に与える作用, AROMA RESEARCH, 13 (3), pp.24-28, 2012.
- 7) 阿部恵子, カビの発育を利用する環境評価法-カビの発育環境の検出とカビ対策の評価にカビを利用する-, 建築設備と配管工事, 50(6), pp.13-17, 2012.
- 8) 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.
- 9) 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,日本木材加工技術協会第30回記念 大会講演要旨集,pp.39-40,2012.
- 10) 福田淳, アセトアルデヒド室内濃度指針値と木材・木質材料(2)[完], 木材工業, 59(6), pp.246-248, 2004.
- 11) (財) 日本ウエザリングテストセンター、大気暴露試験ハンドブック(Ⅱ)金属編,2007
- 12) 呂俊民, 佐野千絵, 加藤和歳, 内装材料の異なる収蔵庫の空気環境の比較, 保存科学, 50, pp.91-99, 2011.
- 13) 及川規, 木質系内装材を用いた博物館収蔵庫の空気環境と木材揮発成分が文化財材質に与える影響, 木材工業, 61(8), pp.345-349, 2006.

2. 木質住環境と健康

4) 木質住環境の見えが生理・心理・認知反応に及ぼす影響

仲村匡司*

京都大学 農学研究科

研究組織

中村匡司、木村彰孝**、高橋良香***

1. はじめに

スギ木ロスリット材(スギ挽き板の材面に繊維直交方向に多数の溝を彫って木口を露出させた板材)は、空気中の二酸化窒素やオゾンなどに対する浄化機能、また、挽き板以上の調湿性能を有することが明らかにされつつある。この空気浄化機能や調湿性能を住空間において存分に発揮させるためには、スリット加工された凹凸面を内装側に見せる、すなわち「あらわし」にする必要がある。このとき居住者は、互いに平行に一定間隔に並んだ明るい凸部と暗い凹部が織り成す平行縞を目にすることになるが、観察距離によってはこの陰影が観察者の視知覚に周期的な図地反転を引き起こし、不快なちらつき感を与えてしまう可能性がある。

「空気浄化や調湿性のような機能の発揮」と「居住者の心身に快適な視環境の確保」は、いわばトレード・オフの関係にあるが、両立させるための最適解を示すためには、機器による理化学的な測定によって量的に示されうる材料(木材)側の特性と同様に、多義的で曖昧さを内包するヒューマン・ファクタを定量的に示さなければならない。しかし、内装にどのくらいの木材をどのように用いれば居住者にポジティブなあるいはネガティブな影響を及ぼしうるのかに関する具体的な知見は非常に限られており、材の向きや配置など、木材を内装利用する上でごく基礎的なデザイン因子に対する検討も行われていないのが現状である。

そこで本課題では、木材を実大内装空間における壁面意匠に設定し、これ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、実験的な検討を行うこととした。本稿では一連の 実大木質内装実験についてまとめる.

2. 実験方法

2.1 呈示刺激

^{* 〒606-8502} 京都市左京区北白川追分町 京都大学大学院農学研究科森林科学専攻. E-mail: nakamasa@kais.kyoto-u.ac.jp

^{** 〒739-0046} 広島県東広島市鏡山 1-1-1 広島大学教育学研究科技術・情報教育学講座. E-mail: aakimura@hiroshima-u.ac.jp

^{*** 〒611-0011} 宇治市五ヶ庄 京都大学生存圏研究所生存圏学際萌芽研究センター. E-mail: yoshika takahashi@rish.kyoto-u.ac.jp



Type A, Type B: 2700 mm (W) × 2550 mm (H), Type C, Type D: 2400 mm (W) × 2400 mm (H)

図1に一連の実大内装実験で設定した4系統の呈示刺激(木質壁面)を示す.

Type A は本課題の最初期に供試したもので、寸法約 900 mm × 900 mm のパネルに組まれたスギ 板目板を用いて、スリットの有無および木材の量が異なる実大木質壁面を構成した。 Type B でも このパネル化されたスギ材を用いて、スリットの有無、木理の向き、パネルの配置の異なる木質壁面を構成した。 Type C および Type D では、木材による意匠がヒトに及ぼす影響をより詳細に 調べるために、スギ材パネルではなく軸材を用いてデザインの自由度を高め、材の向きおよび材 と材の間隔の異なる木質壁面(Type C)と、木材の量および表面加飾(浮造り、波形、スリット)の異なる木質壁面(Type D)を構成した。

これらの木質壁面はいずれも京都大学生存圏研究所の学際萌芽研究センタープロジェクト実験室 (RC 造, 床面積約 20 m^2) に設置された。また、いずれの壁面にも無塗装のスギ材を使用した。

2.2 測定項目と実験プロトコル

図1に示すような実大木質壁面を前にしたとき、観察者の心身にどのような変化が現れるかを客観的に捉えるために、表1のような9つの測定項目を設定した。自律神経系反応および心理反応に関する測定項目(①~④、⑦~⑨)は $Type A \sim D$ の4系統で共通しているが、認知反応を捉えるための視線追跡(項目⑥)はType AおよびBにおいて、中枢神経系反応を捉えるための眼球停留関連電位測定(項目⑤)はType CおよびDにおいて実施した。

実験実施時期は Type A~D の系統ごとに異なっており、 Type A については 2011 年 9~10 月に、 Type B, C, D については 2012 年、2013 年、2014 年の 8~9 月にそれぞれ実施した. また、1 日

表1 一連の実験における測定項目,内容,使用機器

分類	項目	内容	使用機器など
	① 脈拍数	被験者の脈拍数を経時的にモニタリング,交感神経系活動の 亢進(ストレス増)によって増加,副交感神経系活動の亢進 (ストレス減)によって減少	連続式血圧計(Finapres model
自律神経	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),平均血圧を経時的にモニタリング,交感神経系活動の 亢進によって増加,副交感神経系活動の亢進により減少	2300, Ohmeda)
系反応	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, 交感神経系活動の亢進によってLF/HF値が増加, 副交感神経系活動の亢進により HF値が増加	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, 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、唾液に含まれるアミ ラーゼの活性レベルを測定、交感神経系活動の亢進によって 活性度が増加	酵素分析装置(唾液アミラー ゼモニター, ニプロ)
中枢神経 系反応	⑤ 眼球停留関連電 位(EFRP)	眼球のサッケード(速い動き)の終了をトリガにして脳波を加算平均することで求められる、感覚や認知と視覚の事象関連電位(ERP)	EFRP測定・解析システム(メ ロンテクノス)
視覚認知 反応	⑥ 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,関心の度合いを 瞳孔径で評価	アイマークレコーダ (EMR8, ナック)
	⑦ 感情プロフィー ⑦ ル検査	専用質問紙を用いて、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)
心理反応	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	両極尺度7段階評価(紙の調査票を利用) Visual Analogue Scale (VAS)法
	⑨ 内装の見た目に⑨ 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	による両極尺度評価(タブ レットPCを利用)

で 7~8 種類の壁面を観察させることは壁面の施工に要する時間や被験者の疲労を考慮すると極めて困難であったので、被験者には2日にわたって実験に参加してもらった。その際、測定が同一時間帯となるように調整した。

これらの測定は図 2 に示す実験プロトコルにしたがって行われた。被験者はまず前室(実験準備室)においていくつかの事前調査に回答した後、電極などのセンサやカメラなどの装置を装着される。また、現在の気分を尋ねる調査(⑦感情プロフィール検査)に回答し、ストレスレベルを確認するために唾液を採取される(④唾液中アミラーゼ活性の測定)。その後、車椅子に乗せられ、閉眼状態で木内装室に誘導される(車椅子で搬送)。連続的に測定されている脈拍、心拍、血圧、脳波(測定項目①~③、⑤)の各値が安定する頃を見計らって、2500 mm 先(Type A, B)または 2850 mm 先(Type C, D)の壁面を自由に観察するように指示が出される。1 分間ないし 2 分間の自由観察中の被験者の脈拍、心拍、血圧、脳波、視線移動(測定項目①~③、⑤、⑥)がデータとして収録される。自由観察の後、被験者は現在の自己の状態や壁面の見た目の印象について主観評価を行う(測定項目⑧、⑨)。これで当該壁面の評価が完了するので、被験者は再び閉眼状態で前室に戻る。

各プロトコルは概ね同様で、例えば、木内装室への滞在前後でのストレスレベルの変化を確認するために、前室で唾液アミラーゼ活性を測定し(測定項目④)、木内装室から戻ってきてから再び測定する手順は4系統に共通である。一方で、木内装室滞在中の自由観察と主観評価の手順



繰返し

Type C 場所 木内装室 前室 前室 移動 移動 安静 安静 観察 回答 安静 状態 20~30min 1min 3min 2min 2min 1 min 8~10min 視覚 閉眼 開眼 閉眼 開眼 開眼 <u>④</u>唾液アミラーゼ <u>④</u>唾液アミラーゼ ①脈拍 ②血圧 調査 7POMS 7POMS ⑨主観評価 項目 ③心拍変動 その他調査 その他調査 ⑤脳波 繰返し

Туре	D								
場所	前室	移動	木内装室				前室		
状態	安静	19到	安静	観察	回答	移動	安静		
1人忠	20~30min	1min	3min	2min	2min	1min	8~10min		
視覚	開眼	閉眼		閉眼	開眼				
	④ 暉 夜 アミラーセ゛ ↑		O.A.	派拍	7)POMS				
調査	中心亜/及/ミノーと		21	()FOIVIS		④唾液アミラーゼ			
項目	項目その他調査		3/心 ₁	9主観評価	1	生の重水グミノーと			
	ての他調直		⑤脳波						

図2 実大木質壁面観察実験のプロトコル ○囲み数字は表1の測定項目に対応

はプロトコルごとに若干異なっている. Type A および B では 1 分間自由に観察した後に主観評価を行うことを 3 回繰り返させたが, 3 回分のデータに特に差異が無かったので,Type C および D では 2 分間の自由観察と主観評価を 1 回だけ行うように変更した.また,Type D では POMS 検査(測定項目⑦)を木内装室内で行うようにしたが,これは木内装室滞在中の気分をできるだけ素早く捉えるための変更であった.

実験風景を図3に示す.



図3 実大木質壁面観察実験風景

左から Type A, Type B, Type Cの観察, および, 車椅子による被験者の移動の様子

2.3 被験者

Type A の実大木質壁面を用いた観察実験には 13 名の男子学生(平均年齢 22.3±1.8 歳, 視力 1.2 ± 0.3)が、Type B を用いた実験には 19 名の男女学生(男性 11 名、女性 8 名、平均年齢 20.7 ±2.3 歳、視力 0.9 ± 0.2)が、Type C を用いた実験には 30 名の男女学生(男性 15 名、女性 15 名、平均年齢 21.3 ± 2.0 、視力 0.9 ± 0.1)が、そして Type D を用いた実験には 24 名の男女学生(男性 14 名、女性 10 名、平均年齢 21.8 ± 1.7 、視力 1.0 ± 0.3)が、それぞれ被験者として参加した、被験者には実験前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、なお、一連の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た。

3. 結果および考察

3.1 スリットの有無によるヒトの反応の相違

「繊維直交方向に彫り込まれたスリットは観察者に不快なちらつき感を与える視覚刺激になり得る」という仮説を確認するために Type A および B の実大木質壁面を設定した. しかし, 結論から言えば, デザインや木材使用量が等しい場合, スリットの存在が観察者の心身の状態にネガティブな影響を及ぼすとはいえず, スリット材を観察したときの方が身体的にリラックスしている場合も確認された.

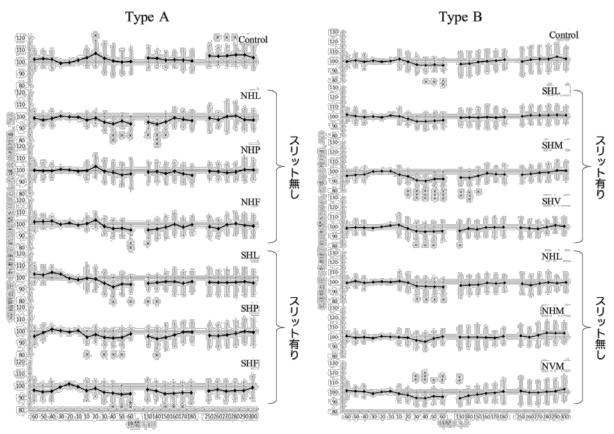


図 4 刺激提示前後における血圧の変化(実大木質壁面観察前後の比較)

左: Type A 観察時の収縮期血圧の変化 ($n = 10 \sim 11$), 右: Type B 観察時の拡張期血圧の変化 (n = 18) (*: p < 0.05, **: p < 0.01, ***: p < 0.001, 対応のある t 検定), エラーバーは標準偏差

図4はType AおよびBの実大木質壁面を観察中の血圧を観察前の血圧と比較したもので、白色の対照壁に比べて実大木質壁面を観察したときの方が血圧が低下しやすい傾向にある.ただし、スリットが無い方があるものよりも血圧が下がりやすいわけではない. 例えば壁面全体にパネル

を施工した場合で比較すると、板目材を貼った場合(Type A の NHF)とスリット材を貼った場 合(Type Aの SHF)のどちらにおいても、収縮期血圧が観察前に比べて統計的に優位に低下する 時間帯が現れている.

表 2 Type Cの実大木質壁面観察前後における自律神経活 動指標の有意差検定の結果

		C	H0	H1	H2	V0	V1	V2
	ANOVA ²	PL9.	PL9.	11.5.	Fl.9.	*	11.5.	15.5
原伯教"	多重比較"	-	-	-	-	*:60s > *:90s >	-	-
40 40 ML + TC I	ANOVA ²	n.s.	*	*	ILE.	0.4	rus.	*
収縮調血圧'	多重比較"		*:60s >	ri.s.	-	-	-	75.8
	ANOVA*	PL9.	*	11.5.	Pl.9.	75.5.	11.5.	71.5
拡張頻血圧"	多重比较"	-	*:30s \ **:60s \	-	-	-	-	-
HF ⁽¹⁾	ANOVA ²	PL9.	PLS.	11.5.	FI.S.	15.5.	11.5.	25.5
(副交感神経活動指標)	多重比較"	-	-	-	-	-	-	-
. m hamily	ANOVA ²	n.s.	n.s.	ri.s.	**	11.6.	rus.	75.6
LF/HF ¹ (交感神経活動指標)	多重比较"	-	-	-	**:60s > *:120s >	-	-	-
唾液アミラーゼ活	性 ^{2,10}	D.9.	nus.	F1.5.	PLS.	15.5.	11.5.	21.5

1)n=28(男性94、女性14)、21n=27(男性15、女性12) 3)反復測定一元配置分散分析(整要等に終点間(刺激提示前30s、提示後30s、60s、90s、120s)で比較) 4)Dumnet(切方法(ANOVAI:85)で有意水準ので有意差が認められた場合に実施)

5)対応のある(検定(刺激提示的検)

*:p<0.06、**:p<0.01、n.s.:有意蓋なし、秒数:刺激提示前と比較して有意差が認められた時点、<:低下

表 3 Type D の実大木質壁面観察前後における自律神経活 動指標の有意差検定の結果

		C	M1	M2	M3	W1	W3	81	83
	ANOVA*	5.6.	**		PL9.	0.9.	PLS:	0.9.	
BRIDGE"	多重比较"	-	**:30a \ **:60a \	**:60 ₅ %	-	-	-	-	**:50a \ *:120a \
在路界由信气	ANOVA*	na.	0.4.	**	**	n.s.		n.s.	n.e.
4.000000000000000000000000000000000000	多重比较"	-	-	++:50s %	+:60a.%	-	+:60s %	-	-
	ANOVA"	5.5.	2.5.	**	PL9.	0.9.	*	8.9.	PL9.
松张着本征。	多重比较"	-	-	#:30a \ ###:60a \	-	-	**:60 ₆ \	-	-
HET	ANOVA*	na.	0.4.	6.4.	n.e.	na.	na.	na.	*
(副交易神経活動指標)	多重比较"	-	-	-	-	-	-	-	*:90s /* **:120s /
16.000	ANOVA ²	na.		++	n.e.	na.	n.s.	n.s.	n.e.
(文學神經活動指標)	多重比较"	-	**:60s \	**:60s \ *:50s \	-	-	-	-	-

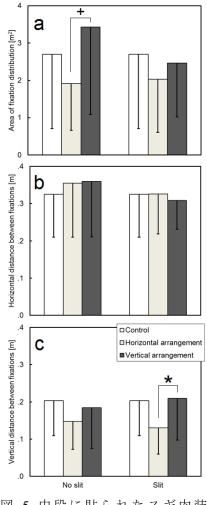


図 5 中段に貼られたスギ内装 (Type B Ø NHM, NVM, SHM, SVM)の観察における停留点分布 面積および停留点間距離の比較 a:停留点分布面積の比較,b:水平方 向の平均停留点間距離の比較, c:垂直 方向の平均停留点間距離の比較, +: p < 0.1, *: p < 0.05 (Wilcoxon の符号順位 検定), エラーバーは標準偏差

Type A および B のようなパネルに組まれたスリット材ではなく, 幅約 160 mm の板材にスリッ ト加工を施して、これを壁面の一部または全面に貼った場合(Type Dの S1 および S3)において も Type A および Type B の場合と同様の傾向が認められた(表3). Type D の実大木質壁面のうち, M1, M2 および M3 は表面加飾の無い壁面であるが、これらの 2 分間の観察によって生体が鎮静 化する方向への変化が現れた. ところが、スリット材が壁面全体に貼られた Type D の S3 の観察 においても脈拍数が観察前よりも優位に低下し、心拍変動の HF 成分(副交感神経活動指標)が 優位に増加したのである.

観察者の視線の動き、言い換えると認知反応も同様で、視線が 0.1 秒間以上留まった点(停留

点;観察者の注意の向く特徴が現れていると見なせる)の分布面積や,停留点と停留点の間の平均距離に,スリットの有無による差異は認められなかった(図 5).その代わりに,縦貼り(繊維方向が壁面の上下方向に平行)の方が横貼り(繊維方向が壁面の左右方向に平行)よりも停留点の分布面積が大きくなったり,停留点間距離が上下に広がったりするなど,材の向きによって観察者の壁面の見方が変わるものと考えられる.

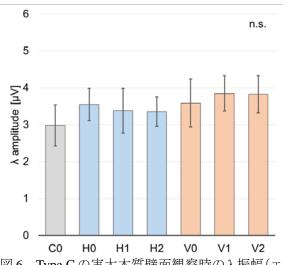
以上述べてきたように、本課題で設定した実験条件の下では、当初予想していたスリット加工の見えがヒトに及ぼす悪影響を確認できなかった。ただし、スリットによる単純縞パターンは観察距離によってはチラツキ感の多い視覚刺激となる可能性は依然残されており、今後、観察距離を変えて同様の実験を行い確認する必要がある。

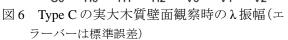
3.2 木材による単純な壁面デザインが認知反応に及ぼす影響

上の結果において興味深いのは、同じ材であっても、縦向きか横向きかという単純で幾何学的なデザインの違いによって、視線の動き方、言い換えると、興味のある対象に視線が停留するという認知反応が変化した点である。このことは、単に木材を内装に使うのではなく、内装の意匠として木材をどのように使うか考慮することが、真にヒトに望ましい居住環境の実現に必要であることを示唆する。そこで、単純な壁面デザインがヒトの認知反応に及ぼす影響について、基礎的な知見を得るために、壁面に現れている木材の量を固定して、材の向きと、材と材の隙間の大きさだけを変化させた実大木質壁面を設定した。これが図1のType Cである。

また、Type A および B で用いられたスリット材の表面に現れている凹凸は、木質壁面に施された装飾とみなすこともできる。そこで、内装壁面に用いる木材に対する表面加飾もデザイン因子のひとつと考えて、表面をわずかに浮造り加工したもの、ルーター切削によって波形に加工したもの、そしてスリット加工の 3 種類の表面加飾を設定し、これに壁面に占める木材量の違い(33、66、100%)を組み合わせたのが Type D の実大木質壁面である。

表 2 および表 3 は、それぞれ Type C および Type D の実大木質壁面観察前後における自律神経活動指標の変化をまとめたものである。これらの表に基づいて壁面デザインが自律神経活動に及ぼす影響を検証すると、木材が現れていない対照壁(Control)の観察前後では統計的に有意な変化が現れていないこと、Type C の H0 と Type D の M1 は木材の量や壁面における位置などが等しく、ほぼ同一のデザインであるが、ともに生体を鎮静化させる傾向にあること(ただし、有意差の現れた指標は異なる)、などがわかる。また、表 2 の Type C の H1 と V1 は、材幅と材と材の間の隙間の比が 1 対 1 で、材の向きが横か縦かが異なるのだが、どちらにおいても観察前後で自律





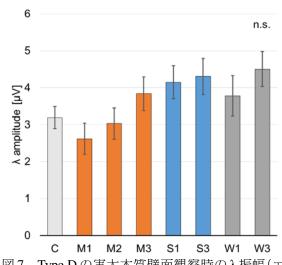


図7 Type D の実大木質壁面観察時のλ振幅(エラーバーは標準誤差)

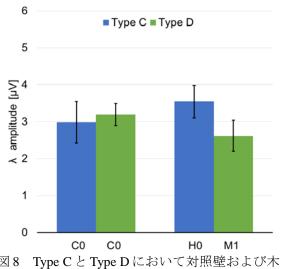


図8 Type C と Type D において対照壁および木 材が水平に寄せ貼りされた壁を観察する際 の λ 振幅の比較 (エラーバーは標準誤差)

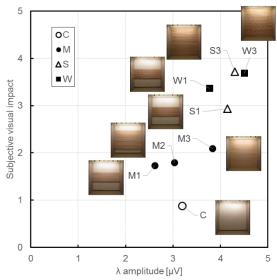


図 9 λ振幅と壁面の「見た目のインパクト」 との関係 (Type D)

神経活動に有意な変化は認められず、ヒトに対して少なくとも鎮静的に作用しない可能性を示唆している。見方を変えると、材幅と隙間の大きさが等しいデザインは自律神経活動を賦活するのかもしれない。同様に表 3 の W1 と S1 は互いに木材量が等しく、表面加飾が波形かスリットかが異なるが、この両者の観察前後でも自律神経活動に有意な変化は現れておらず、やはりヒトに対して鎮静的には作用しなかったと見なせる。同じ木材量でわずかに浮造りされた M1 では鎮静効果が認められるので、この結果は表面加飾の違いで自律神経活動に差異が生じることを意味している。

このように、木材による壁面デザインによって自律神経活動に変化が生じうることが示された.一方で、刺激(実大木質壁面)に対する注意、すなわち認知反応にどのような変化が現れるか客観的に把握するために、Type C および D の実大木質壁面の観察実験では脳波測定を実施し、眼球停留関連電位(Eye Fixation Related Potential; EFRP)の検出を試みた(表 1⑤). ヒトの後頭部に存在する視覚野付近から検出される EFRP は特に観察対象に対する関心や注意の程度を反映するとされていることから、本課題においても国際 10-20 法に基づいて導出された脳波のうち、後頭部の 01位および 02位の信号を用いて EFRP を検出した。図 6 および図 7 はそれぞれ 1 Type 1 とおなて 1 で

ただし、Type C と Type D の白い対照壁を観察した際の λ 振幅を比較すると両者はほぼ同等であり(図 8)、EFRP の検出そのものは安定的に行えているものと判断される。また、壁面に占める木材の量が約30%で、壁面の中央部に材を水平に隙間なく寄せ貼りした Type C の H0 と Type D の M1 はデザイン的にはよく似ているが、両者を観察した際の λ 振幅は H0 の方が大きい(図 8)。このことは観察者が H0 に対して M1 よりも多くの注意資源を振り向けたことを意味しているが、その原因として材面の木目模様の見え方の差異が考えられる。H0 を含む Type C の実大木質壁面はスギの平角材で構成されており、材面に木目模様がかなり明瞭に現れていた。一方、M1 を含

む Type D の壁面はスギ集成材で構成されているため木理が連続せず,各部材の木目模様は Type C に比べておとなしかった. この見えの違いが H0 と M1 の λ 振幅の差につながったものと推察される.

視覚刺激の印象と λ 振幅の関係に関する報告はほとんどないが,試みに Type D の実大木質壁面に対する主観的な「見た目のインパクト」とラムダ反応との関係を示したのが図 9 である.木材の現れている壁面の場合,ラムダ反応が大きいほど見た目のインパクトも大きくなる傾向にあった(C を含まない場合相関係数 0.86,含む場合 0.82,いずれも危険率 1%未満で有意).ラムダ反応と主観量との間に何らかの因果関係が存在するかどうかについては今後さらに検証を重ねる必要がある.また,本課題では中枢神経活動の指標として EFRP に注目したが,他の指標(α 波や β 波などの脳波帯域に分けた分析など)も交えて解析すると,木材で構成されたデザインを目にしたヒトの反応に関して,より確度の高い情報が得られるものと考えられる.

3.3 見た目の印象

Type B~D の実大木質壁面の見た目の印象に関する主観評価は、共通する印象語対(両極尺度)を用いて、Visual Analogue Scale (VAS) 法によって行われた。このうち、見た目の「快適さ (Comfortable)」と「好ましさ (Favorite)」を数直線上に表したものを図 10 に示す。実際の調査は「快適な一不快な」「好きな一嫌いな」という両極尺度で行われたが、Type B~D の対照壁はほぼ同等の白い壁面であり、いずれの系統においても最も「快適ではなく」「好ましくない」と評価されたため、対照壁を 0 とする正の片側イメージスケールとして各数直線を表している。また、画像の右肩および連結線上のアスタリスクは、それぞれ当該壁面と対照壁と比較した時および連結線でつながれた 2 壁面を比較した時の「快適さ」あるいは「好ましさ」の差異の統計的有意性の程度を表している。

全体的に見て、木材のある壁面は白い対照壁に比べて「快適な」「好ましい」印象を有意に与えやすかった。ただし、パネル化された板目材あるいはスリット材で構成された Type B の実大木質壁面は Type C や Type D の壁面に比べて「快適さ」や「好ましさ」に劣った。また、Type B の壁面において、パネルの高さが同じ場合には、スリット加工されていない壁面のスリット加工された壁面よりも「快適」で「好ましい」と評価される傾向にあった。

Type Cの6種類の実大木質壁面は、壁面に占める木材の量がいずれも等しいにもかかわらず、材と材の隙間の大きさによって見た目の「快適さ」や「好ましさ」が大きく異なった。観察者の主観に基づいて申告させた壁面に占める木材の割合(主観的木材率)も隙間の大きさによって大きく変化した。材と材の隙間の大きさはいわゆる"目透かし"の大きさに対応するが、このような単純なデザイン因子によって印象が左右されることは驚きである。

Type D の浮造り加工された実大木質壁面は、波形加工あるいはスリット加工された壁面よりも容易に「快適な」「好ましい」印象を与えた.ここで興味深いのは、表面加飾の種類の方が木材の量よりも見た目の「快適さ」や「好ましさ」に大きく影響することである.また、Type B の壁面と同様に、スリット加工された壁面は浮造り加工および波形加工された壁面よりも「快適さ」や「好ましさ」に劣る傾向にあった.

以上のような実大木質壁面を観察した際の見た目の印象評価と、先に述べた観察前後での自律神経活動の変化や、観察中に現れる認知反応の変化が結びつくのか、あるいは互いに無関係なのかについては、現状では十分に解析が進んでおらず、今後の課題としたい.

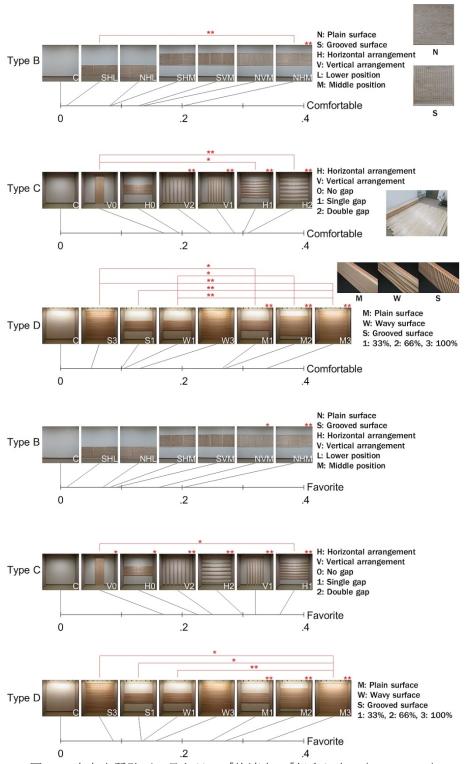


図 10 実大木質壁面の見た目の「快適さ」「好ましさ」(Type B~D)

対照壁はいずれの系統でも最も「快適でない」「好ましくない」と評価されたので、これを0に設定して数直線を構成した。画像の右肩のアスタリスクは対照壁との有意差の程度を、連結線上のアスタリスクは木質壁面どうしの有意差の程度を表している(Steel-Dwass 法による多重比較、*: p < 0.05, **: p < 0.01)

4. 今後の展開

4.1 視覚と触覚のマルチモーダル実験



図11 スギ材の実験ブース

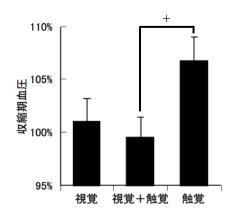


図 12 観察条件による収縮期血圧 の相違 (n = 10, +: p < 0.1, エ ラーバーは標準誤差)

多くの場合、建築や住宅の内装に「あらわし」になった木材を、居住者は直接見たり触れたりできる。したがって、居住者が受ける木材の質感には材面の見た目の印象だけでなく、触り心地も大きく影響するものと考えられる。木材の触り心地に関する調査は、他の内装材料などとの比較を通して多数行われてきており、表面粗さや熱伝導率などの物理量との対応関係も調べられている。ただし、その多くは触覚に限定した官能検査に留まっており、見ながら触る、すなわち、触覚と視覚が融合するマルチモーダルな条件での印象評価や生理量測定については、データの蓄積が非常に少ない。

そこで本課題では、「視覚のみでスギ材を観察」「触覚のみでスギ材を観察」「視覚と触覚のみでスギ材を観察」する条件を設定して、観察条件間で生理量がどのように異なるか、実験的な検証を開始した。図11に、スギ材パネルで構成されたブースに入って刺激を観察している被験者の様子を示す。ブースは室温20度、相対湿度50%の室内に設置された。3分間の観察中に収録された自律神経活動の指標となる収縮期血圧の条件間での差異を図12に示す。

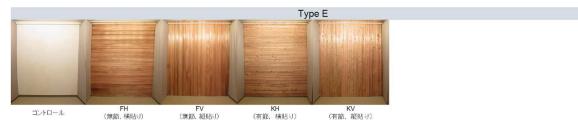
図12に示すとおり、スギ材に触れていることがわからない 条件よりも見ながら触れている条件において収縮期血圧が 低下する傾向にあった. 視覚情報を遮断して触覚情報のみを 与えると交感神経活動が亢進されるのか、あるいは、視覚情 報と触覚情報が統合されるときに視覚情報による触覚情報 のマスキングが生じて交感神経活動が抑制されるのか、現象 の機序についての考察が今後必要である. また、スギ材以外

の材料 (例えば広葉樹材, プラスチックス, 金属など) を観察する場合 (視覚のみ, 触覚のみ, 視覚+触覚) でもこのような結果が得られるのかについても検証すべきであろう.

4.2 有節材の見えに関する実験

材面に現れる節は樹木の枝の名残であり、木材かつて植物体として生きてきたことの証でもある。したがって、材面に節が現れることは自然であり宿命的であるのだが、ヒトにとって非常に誘目性の高い特徴であるため、決して万人受けしない。そのため、いわゆる無節信仰によって有節材を受け付けない世代もあるし、逆に20代以下では節を見たことのない層が増えており、偏見なく一種のドット柄として受け入れる傾向すら見受けられる。しかし、節の現れた空間に滞在したヒトの心身にどのような変化が生じるかについて、実験的に確認した例は極めて限られている。

そこで本課題では、図13のような5種類の実大木質壁面(Type E)を構成し、同じ屑13に示すようなプロトコルにしたがった観察実験も開始した(2015年8月~9月に実施). この実験では脳波測定と視線追跡を同時に行うこと(測定項目⑤および⑥)も可能とした.



Type E

場所	前室	移動			移動	前室	
状態	安静	1夕到	安静	観察	回答	1夕到	安静
1八忠	40~50min	1min	3min	2min	2min	1min	8~10min
視覚	開眼	閉眼		開眼			開眼
		†	O.A.	派拍	⑦POMS		
調査	その他調査		21	位圧	UFONS		
項目	ての他調査		3/1/3	③心拍変動			
			⑤脳波		⑨主観評価		
			⑥視線追跡				

繰返し

図 13 呈示刺激として新たに供試した実大木質壁面 (Type E) と実験プロトコル 2400 mm (W) × 2400 mm (H)

付記

- 1) 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)
- 2) 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)
- 3) 木村彰孝,仲村匡司,川井秀一,配置と向きの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研究発表要旨集,CD-ROM (2013)
- 4) 仲村匡司,木村彰孝,川井秀一,配置と向きの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研究発表要旨集,CD-ROM (2013)
- 5) 菊地由衣,仲村匡司,八木佳子,中野隆人,木材による壁面デザインが主観的木材量に与える影響,第63回日本木材学会大会研究発表要旨集,CD-ROM (2013)
- 6) 仲村匡司, 菊地由衣, 木村彰孝, 八木佳子, 末宗浩一, 中野隆人: 木材による単純な壁面デザインがヒトの心身に及ぼす影響 1.主観的木材率の変化. 第64回日本木材学会大会, 2014年3月, 愛媛大学(松山)
- 7) 木村彰孝,仲村匡司,菊地由衣:木材による単純な壁面デザインがヒトの心身に及ぼす影響 2.自律神経活動および気分・感情への影響.第 64 回日本木材学会大会研究発表要旨集, CD-ROM (2014)
- 8) 菊地由衣,仲村匡司,木村彰孝,八木佳子,末宗浩一,中野隆人:木材による単純な壁面デザインがヒトの心身に及ぼす影響 3.眼球停留関連電位(EFRP)の変化. 第 64 回日本木材学会大会研究発表要旨集, CD-ROM (2014)

- 9) 菊地由衣,仲村匡司,木村彰孝,八木佳子,末宗浩一,中野隆人:木材による単純な壁面デザインがヒトの心身に及ぼす影響 4.見た目の印象の変化.第64回日本木材学会大会研究発表要旨集,CD-ROM(2014)
- 10) 菊地由衣, 仲村匡司, 中野隆人, 八木佳子: 木材による単純な壁面デザインが眼球停留関連 電位 (EFRP) に及ぼす影響. 2013 年度日本生理人類学会研究奨励発表会要旨集 (2014)
- 11) 菊地由衣,仲村匡司,木村彰孝,八木佳子,中野隆人:壁面デザインが眼球停留関連電位および印象評価に及ぼす影響,日本生理人類学会誌特別号(1),19,152-153 (2014)
- 12) Kikuchi, Y., Nakamura, M., Yagi, Y., Kimura, A., Nakano, T.: Effects of wooden wall designs on perceived wood ratio, Proceedings of IAWPS2015 (2015)
- 13) Nakamura, M., Kimura, A., Kikuchi, Y.: Evaluation of visual impression of full-size wooden wall decorated by Sugi timber, Proceedings of IAWPS2015 (2015)
- 14) 菊地由衣, 仲村匡司, 木村彰孝, 中野隆人: 表面加飾および木材量の異なる木質壁面デザインがヒトの心身に与える影響 1, 第65回日本木材学会大会研究発表要旨集, CD-ROM (2015)
- 15) 木村彰孝,仲村匡司,菊地由衣:表面加飾および木材量の異なる木質壁面デザインがヒトの 心身に与える影響 2,第65回日本木材学会大会研究発表要旨集,CD-ROM (2015)
- 16) 木村彰孝: 内装への木材使用がヒトの心理・生理面に与える作用-実大空間による検討-, 生物資源, 8・4, 10-20 (2015)
- 17) 高橋良香: スギ材が人の心理及び生理面に及ぼす作用 (スリット加工および各種感覚間の効果), 第65回日本木材学会大会研究発表要旨集, CD-ROM (2015)

2. 木質住環境と健康

5) 木材の香りの生理・心理応答と有効成分の探索光永 徹 (岐阜大学 応用生物科学研究科)

研究組織

光永徹、小川愛、坂本祥子、服部浩之

1. 研究の背景と目的

木材は、建築物の構造材や内装材、家具や食器その他、様々な形で私たちの身近な環境中に存在している。とりわけ日本特有の樹種であるスギは国土の森林面積のうち約2割を占めるほど豊富なバイオマス資源である。故に、スギ材の有効かつ機能的利用法の開発は重要な課題と言える。我々は、スギ材の有効活用を目指す上で、特徴の一つである香りに着目した。スギ材から採取した精油がヒトに心理的な安らぎや生理的なリラックス効果をもたらすことは、既に報告されている 1,2)。しかし、木質内装化した実大空間において、香りがヒトの心や身体にどのような影響を与えるかについて検討した研究報告は多くない。また、香りの構成成分は多いが、ヒトに対する有効成分はほとんど明らかにされていない。

本研究では、スギ材を用いた木質内装空間におけるヒトの生理・心理応答解析、および、スギ 材の香りに含まれる有効成分分析、さらにはスギ材精油を吸入した麻酔下ラットの自律神経活動 測定を行い、スギ材の香気成分がヒトや動物に与える生理・心理効果を科学的に検証する事を目 的とした。

2. 実験方法

■木質内装空間でのヒトの生理・心理応答実験と木材由来香り成分分析

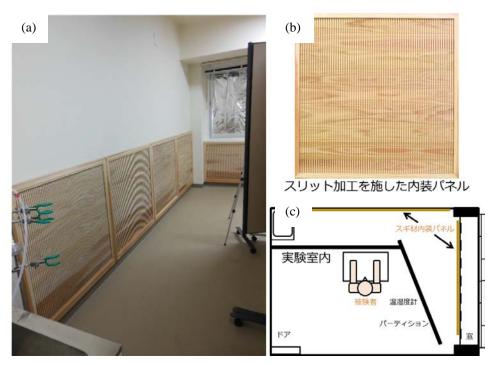


図 A スリット内装パネル設置概要

- (a) スリット内装パネルを実験室内壁に設置
- (b) スリット加工(凹部幅6×凸部幅7×深さ6 mm)を施した内装パネル
- (c) 実験室の全体像

2.1スギ内装材を施工した実験室でのヒトの生理・心理応答実験

2.1.1 供試材料と供試空間

45℃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³⁾ (950×950 mm, 950×730 mm)を作製し、供試空間内壁に施工した。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 A)。

2.1.2 空間内香り成分の捕集と分析

香り成分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 0RBO-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。

2.1.3 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・院生16名とした。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。

2.1.4 生理応答指標の計測

心電図は、メモリー心拍計(LRR-03、アームエレクトロニクス(株))を用いて測定し、MemCalc/Bonaly Light(version 2.5、Suwa Trust、GMS(株))により心拍変動解析を実施した。心拍数および交感神経系活動、副交感神経系活動の時間変動を解析した。また、唾液中バイオマーカー数種類を選抜し、実験前・中・後の変動を分析した。唾液は、唾液採取用チューブにて採取して、遠心分離し検体を回収した。Enzyme Immunoassay 法による検査キット(Phoenix Pharmaceuticals Inc., USA、Salmetrics Inc., USA)を用いて、クロモグラニンA(CgA)、コルチゾール、デヒドロエピアンドロステロン(DHEA)、硫酸基抱合型デヒドロエピアンドロステロン(DHEA)、分泌型免疫グロブリンA(sIgA)を分析した。唾液中アミラーゼ活性は唾液アミラーゼモニター(ニプロ(株))を用いて測定した。

2.1.5 心理応答指標

心理学的な応答を測るための質問票は、SD (Semantic Differential) 法を用いて自作し、VAS (Visual Analogue Scale) 法により解析した。質問票の評価語は以下の通り:集中できないー集中できる、嫌い一好き、暖かい一冷たい、快適でない一快適な、落ち着かない一落ち着く、人工的な一自然な、居心地の良い一居心地の悪い、悪い香りの一良い香りの(部屋の印象評価)、難しい一容易い、疲れない一疲れる(作業に対する評価)。

2.2 スギ内装材を施工した保管空間における香り成分分析

2.2.1 供試材料と供試空間

供試材料として、45℃で乾燥させた熊本県産の約40年生スギの板目材に繊維方向に対して直交するスリットを施して木口面が露出した材料「スギ木口スリット材」((株)パネシス製, L1800,

2000×W100×D12 mm, スリット幅: 凹部幅 6×凸部幅 7×深さ6mm)を用いた。供試空間として, 亜鉛メッキ 鋼板の屋内保管庫(内寸: W1560×D1840×H1975 mm)を 用いた。保管庫番号 S1, S2, S3, N1 はスリット材と 板目材の施工面を変えてスギ材の使用量が異なるよ う施工し、未使用のC1とC2を対照とした。床材には、 北洋カラマツの低ホルムアルデヒド構造用合板を用 い, C2 を除く 5 条件は合板の上に養生シート(ポリプ ロピレン製)を貼った。各保管庫の施工は、2012年6 月 19-20 日に実施した(仕様は,課題1の報告通り)。

2.2.2 空間内香り成分の捕集と分析

スギスリット材と板目材由来の香り成分の捕集に は、溶媒抽出用捕集管 ORBO-91T (Sigma Aldrich 製) と携帯型空気吸引ポンプ(MP-Σ30N, 柴田科学(株)製) を用いた。空気吸引ポンプは、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保管庫内中 央部に設置した(図B)。捕集速度は0.1 L/min とし,3 時間捕集した。その後、溶媒で溶出し、GC-MS 分析に 供した。標品とライブラリを用いて、香り成分を同定、濃度を算出した。捕集は、施工から約半 年の間において数回実施した。



図 B 保管庫内に捕集管設置

■スギ材精油を用いた有効性評価実験

2.3 スギ材精油の調製

幾つかの製材所(熊本県, 静岡県,京都府,奈良県な ど)から、天然乾燥あるい は低温乾燥したスギ板材を 入手して,抽出物 (精油) を調製した。供試材は,チ ッパーとハンマーミルを用 いて小片化し, 抽出までは 恒温恒湿室で保管した。抽 出には,水蒸気蒸留装置(ピ ュアスティーラーHC/S, (株)黄河)を用い、GC-MSを 用いて分析を行った。

2.4 スギ材精油香り成分 を吸入したラットの自律 神経活動計測

2.4.1 供試動物と測定方 法

12週齢のオス Wistar 系ラ ット(体重300g程度)にウレ タン溶液の腹腔内投与で麻

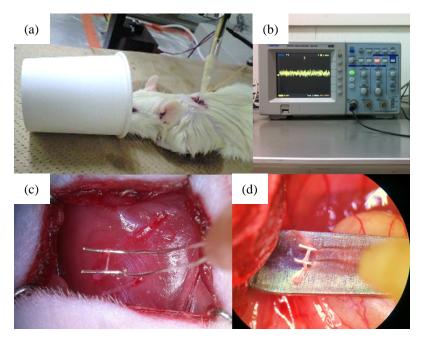


図 C 自律神経活動測定概要

- (a) 嗅覚刺激下での交感神経活動測定の様子
- (b) オシロスコープ
- (c) 肩甲骨間褐色脂肪組織支配交感神経と銀線電極
- (d) 胃枝瞑想神経(副交感神経)と銀線電極

酔を行った。測定方法に関しては,以下に簡単に示す(図C)。

- ① 交感神経活動 (BAT-SNA): ラットの肩甲骨上部を切開し、褐色脂肪組織を支配する神経の束を末梢側で切断した。東に た(a) いる神経を1本ずつに分け、結合組織を除去した神経を銀線電極に掛けた。神経測定部位に流動パラフィン溶液を流し込み、測定を行った。
- ② 副交感神経活動(GPNA): ラットの腹部を大きく切開し、胃をむき出しにした状態で、食道に沿って走る迷走神経を剥離した。この神経を金属板上で銀線電極にかけ、絶縁するため接触部に流動パラフィン溶液を流し込み、測定を行った。

2.4.2 供試試料および吸入方法

供試試料は、熊本県産および京都府産スギ材の精油を用いた。嗅覚刺激は、供試料をそれぞれ 紙コップの底に敷いたキムワイプに滴下してラットの鼻先に提示して行い、刺激前後の神経活動 の経時変化を記録した。提示は以下の2通りの方法で行った。

- ① 同じ試料を60分間連続で提示する60分間連続嗅覚刺激。
- ② 10 分ごとに新しく調製した吸入試料と交換し、計 60 分提示する 10 分交換制嗅覚刺激。

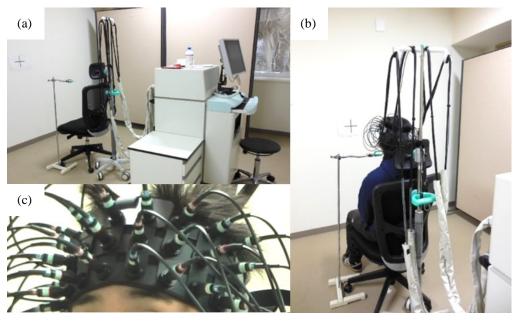
2.5 木材香り成分による脳機能への影響解析および主観評価

2.5.1 供試試料と供試方法

(-)- α -ピネン(ナカライテスク, #28017-82), (+)-セドロール(シグマアルドリッチ, #22135), (+)-セドレン(シグマアルドリッチ, #22134), β -カリオフィレン(シグマアルドリッチ, #536711), α -フムレン(ChromaDex, #ASB-00008333), n-ドデカン(ナカライテスク, #14205-42) の6種類を用いて,各試料は10 μ 1ずつ,50 ml 容バイアルに封入した。対照は,試料を入れない空のバイアルを用いた。

2.5.2 スギ材香り成分の提示実験の手順

被験者は健康な男子大学生・院生で計 16 名とした。心理学的評価には、SD (semantic differential) -VAS (visual analog scale) 法に基づいた 18 項目の質問票を作成して用いた。脳血流変動解析には、fNIRS (functional Near Infra- Red Spectroscopy, 近赤外分光脳機能イメージング装置) (島津製作所(株)製)を用いた。各被験者の前頭部には、合計 42 本の計測プローブを設置した。実験は、前レスト (安静) 30 秒間、タスク (試料提示) 80 秒間、後レスト (安静) 70 秒間の合計 180 秒間を 1 サイクルとし、1 回の実験において、連続した計 5 サイクルを行った。被験者は実験開始から終了まで座位であり、タスク時に、実験者が被験者の鼻先 10 cm の位置に試料を近接させた。質問票はタスク時間中に記入させた(図 D)。



図D 実験概要

- (a) 装置の全体像
- (b) 計測プローブを装着し安静状態の被験者
- (c) 計測プローブを装着した額

2.6 スギ材精油を用いたヒトの主観評価

市販のアロマディフューザーを用いて、一定容積の空間内に香り成分を揮散させた。対象者は 男女大学生とし、スギ材香り成分が噴霧された空間に対する主観的な評価について、アンケート 用紙を用いて調査した。質問項目は、集中できない一集中できる、快適でない一快適な、落ち着 かない一落ち着く、居心地の良い一居心地の悪いとした。熊本産スギ材精油を用い、精油は希釈 液で希釈して用いた。また、5つの製材所からスギ材を入手し、精油を抽出した。これらの精油 に対する主観的な評価について、アンケート用紙を用いて調査した。対象は一般の成人男女とし、 質問項目は、年代、性別、各精油に対する好み、無垢材接触経験の有無とした。一定容のバイア ルに入れた精油を直接嗅いで評価させた。

3. 結果および考察

- ■木質内装空間でのヒトの生理・心理応答実験と木材由来香り成分分析
- 3.1 スギ内装材を施工した実験室でのヒトの生理・心理応答実験
- 3.1.1 香り成分の空気中濃度

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 週目の空気中濃度は 2744.3 μ g/m³であり、6 週目で 498.8 μ g/m³であった。室内空気中のテルペン濃度は 4 週間で約 80%減少した(図 E)。

3.1.2 生理学的な応答

生理学的な応答については、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きた。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内分泌物質、免疫物質、酵素活性などを指標として用いた。近年、様々な研究分野で、唾液を用いた生化学物質測定が盛んに行われるようになり、その指標としての有用性が指摘されている 4.5。非侵襲的に、長期的に測定できること、幼児から高齢者ま

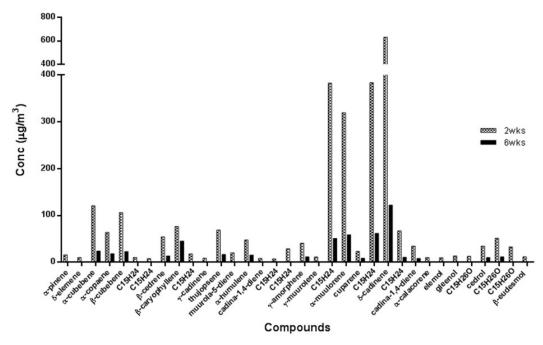


図 E 実験室内の香り成分濃度推移 スギ材内装施工から 2 週目と 6 週目に検出した香り成分濃度, 斜線: 2 週目, 黒: 6 週目

で年齢層を問わずにサンプリングが可能であることなど、指標としての大きな可能性が示唆される。本研究においては、自律神経系活動の変動を解析した結果、作業前に比べて作業中の交感神経系活動の低下を認めた(図 F)。また、唾液中アミラーゼ活性とクロモグラニン A は、スギ材を施工した実験において、作業後のアミラーゼ活性とクロモグラニン A の抑制が認められた(図 G-1,2)。アジーゼ活性とクロモグラニン A はいずれも、交感神経系活動増大にともない分泌が促進し、特に、クロモグラニン

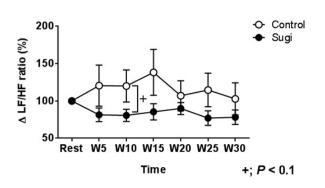


図 F 交感神経活動の推移 作業前安静状態に対する変化率, 黒: スギ材室, 白: 対照室

は精神的なストレスを反映することが報告されている ^{6,7)}。また、スギ材室と対照室での違いは認められなかったが、硫酸基抱合型デヒドロエピアンドロステロンと分泌型免疫グロブリン A も 作業中に増加することを確認した(データ未記載)。これまでの成果をまとめると、精神的なストレスがかかる作業環境下において、スギ材香りが交感神経系活動を抑制する可能性が示唆された。

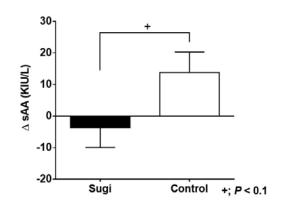


図 G-1 唾液中アミラーゼ活性変化量 作業前後の変動,黒:スギ材室,白:対照室

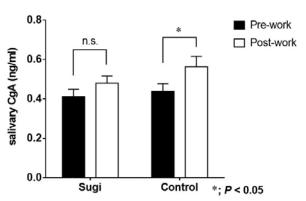


図 G-2 唾液中クロモグラニン A 分泌量

3.1.3 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った。本研究においては、悪い香りの-良い香りの(P < 0.05)、難しい-容易い(P < 0.1)について、スギ材室と対照室とに統計学的に有意な違いが認められた。

3.1.4 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。

3.2 スギ内装材を施工した保管空間における香り成分分析

3.2.1 スギ材由来香り成分

 α -クベベンや 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検出された。主成分は δ -カジネンであり,スギ材施工一か月目において,各保管庫のテルペン類放散量は15745 (μ g/m3)(S1),29660(S2),52699(S3),10372(N1)であり,無施工保管庫のC1,C2では検出されなかった。また,スギ材施工保管庫のテルペン類放散量は継時的に減少することを確認した。

3.2.2 内装材面積とテルペン放散量の比 較

スリット材を用いた S1, S2, S3 および板目材を施工した N1 の内装材面積とテルペン類の放散量について比較した。その結果,スリット材面積の増加およびスリット加工

5 relative value terpens 4 3 1.5506x + 0.1872 2 $R^2 = 0.9994$ 1 0 N1 0 0.0 1.0 2.0 3.0 A/V (m-1)

図 H 気積率とテルペン放散量 S1の放散量を1としたときの相対値で比較(N=3) 黒: スリット材,白:板目材

によりテルペン類放散量が増加することを確認した(図H)。

■スギ材精油を用いた有効性評価実験

3.3 スギ材精油の調製

スギ材精油の収率は、天然乾燥および低温乾燥材では 0.21-1.16%であり、高温乾燥材では 0.015%であった。また、同じ産地のスギ材を、異なる温度条件で乾燥し、採取した精油の分析結果を図 I に示した。天然乾燥材に比べて高温乾燥材では、ジテルペン類を多く含むことが明らかであった。天然乾燥材と高温乾燥材の香りに対する主観評価は大きく異なることがよく知られており、これらの成分の違いの影響が示唆された。

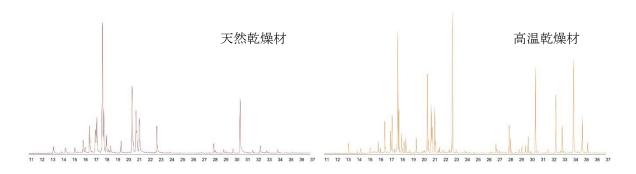


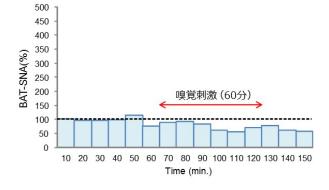
図 I トータルイオンクロマトグラム

3.4 スギ材精油香り成分を吸入したラットの自律神経活動計測

スギ材精油を吸入したラットのBAT-SNAおよびGVNAのスパイクヒストグラムの経時変化を図Jと図 Kに示した。香り刺激を開始してから徐々に、交感神経系活動の活動低下および副交感神経

系活動の増加が観察され,交 感神経系活動に関しては,約 50%の低下が認められた。一 方,副交感神経系活動は最大 で約120%の上昇が観察された。 スギ材精油を嗅ぐことによる リラックス効果と胃腸の活動 増加が期待できると考えられ た。

上記の結果より、スギ材精油は BAT-SNA を抑制し、GPNAを増大させることが示唆されたが、効果が持続しないに問題がある可能性が考えられた。そこで、嗅覚刺激方法を実験方法を更し、常に新鮮なした。②に変更し、常に新鮮した。これらの結果から、これらの結果から、これらの結果から、



図Jスギ材精油を吸入したラットの交感神経活動

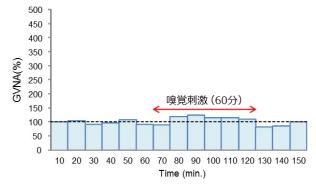


図 K スギ材精油を吸入したラットの副交感神経活動

スギ材精油を連続的 に吸入することによ り交感神経活動の持 続的で顕著な抑制を 示すことが明らかと なった。

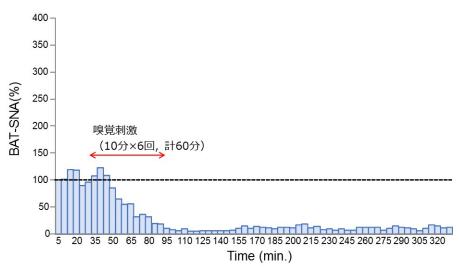


図 L スギ材精油の 10 分間交換吸入法によるラット交感神経活動

3.5 木材香り成分による脳機能への影響解析および主 観評価

試料に対する心理学的な応答は 18 項目からなる質問票を用いて評価した。その結果,個性的な一平凡な,刺激的な一刺激的ではない,興奮する一興奮しない,弱々しい一力強い,の4項目において,試料間あるいは対照との統計的に有意な差が認められた(図 M)。また脳血流の変動を解析したところ,供試した香り成分により前頭部の活動を賦活あるいは抑制する可能性が示唆された。

4. 結論

■木質内装空間でのヒトの生理・心理応答実験と木材由 来香り成分分析

一定量の香り成分が実大の空間内に存在するときのヒトの生理・心理応答について明らかにした。また,気積率および加工、香り成分放散量との関係性についても明らかにした。今後,さらに実大木質空間における香りとヒトの関係に関するデータを蓄積したい。また,香りの有効性を長く維持する技術の開発が必要と考えている。

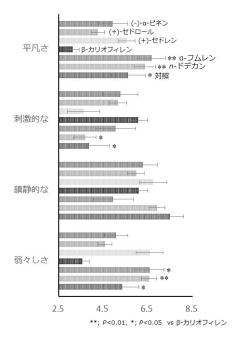


図 M 試料に対する主観評価

■スギ材精油を用いた有効性評価実験

木材は乾燥方法によって香り成分が異なり、産地によっても成分比が異なる。木材加工など材料要因とヒトの主観および生理応答との関係については今後の研究テーマの一つである。また、スギ材精油の有効活用法についても併せて検討したい。ヒトでもラットでもスギ材由来の香り成分が自律神経活動へ影響することを明らかにした。薬理的な作用も示唆されることから、有効成分の決定が重要であろう。

5. 参考文献

- 1) 恒次祐子, 森川岳, 宮崎良文, 木材の香りによるリラクゼーション効果, *木材工業*, 60(11), 598, 2005.
- 2) 木村彰孝, 佐々木靖, 澁谷栄, 小林大介, 飯島泰男, 谷田貝光克, 秋田スギ材油の吸入が人

- の心理・生理反応に及ぼす影響, Aroma Research, 38, 62, 2009.
- 3) 川井秀一, 辻野喜夫, 藤田佐枝子, 山本尭子, 木材による調湿と空気浄化, クリーンテクノロジー, 20(7), 18, 2010.
- 4) 山口昌樹, 唾液マーカーでストレスを測る, 日本薬理学雑誌, 129, 80, 2007.
- 5) 田中喜秀, 脇田慎一, ストレスと疲労のバイオマーカー, *日本薬理学雑誌*, 137, 185, 2011.
- 6) 中根英雄, 新規精神的ストレス指標としての唾液中クロモグラニン A, *豊田中央研究所 R&D* レビュー, 34(3), 17-22, 1999.
- 7) Toda M., Morimoto K., Effect of lavender aroma on salivary endocrinological stress markers, *Archives of Oral Biology*, 53, 964-968, 2008.

6. 付記

- 1) 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.
- 2) Matsubara E., Umemura K., Kawai S, Evaluation of the VOC of Sugi (*Cyptomeria japonica*) wood on psychophysiological responses, *Sustainable Humanosphere*, **8**, 9, 2012.
- 3) 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研究発表要旨集,G27-04-1100,2013.
- 4) 松原恵理,川井秀一,藤田佐枝子,自覚的なアレルギー症状保有者の木材由来香りに対する 生理・心理応答,第 26 回におい・かおり環境学会講演要旨集,p. 66,2013.
- 5) 高橋けんし、矢吹正教、松原恵理、川井秀一、津田敏隆、居住空間における二次粒子生成過程に与える換気の影響、第54回大気環境学会年会、P-001、2013.
- 6) Kawai S., Matsubara E. Wooden Habitat and Human Health- Characterization of air quality and the effect on the human health-, *International Symposium on Frontier Researches in Sustainable Humanosphere 2013*, p23-25, 2013.
- 7) Matsubara E., Kawai S, VOCs emitted from Japanese cedar (*Cryptomeria japonica*) interior walls induce physiological relaxation, *Building and Environment*, **72**, 125-130, 2014.
- 8) 光永徹, サイプレス材テルペンの吸入による肥満抑制効果, 生物資源, 8(2), 16-24, 2014.
- 9) 光永徹, サイプレス材精油香気成分の肥満抑制食品フレーバーとしての可能性, Foods & food ingredients journal of Japan, 219(2), 126-133, 2014.
- 10) 松原恵理,川井秀一,藤田佐枝子,自覚的なアレルギー症状保有者の木材由来香りに対する生理・心理応答Ⅱ, 第27回におい・かおり環境学会講演要旨集, p. 65, 2014.
- 11) 松原恵理, 天然資源由来の香りの機能性―快適な室内環境つくりー, 木材工業, 69(7), 280-285 2014.
- 12) 松原恵理,川井秀一,藤田佐枝子,スギ材施工空間における作業時の生理・心理応答Ⅱ,*第* 64 回日本木材学会大会研究発表要旨集,G15-09-1115,2014.
- 13) 松原恵理, 川井秀一. スギ材香り成分の心理学的評価と脳血流変動解析, 第 65 回日本木材 学会大会研究発表要旨集, G17-P-S04, 2015.
- 14) 小川愛, 光永徹, 清水邦義, 近藤隆一郎, 其田桂子, 松原恵理, 植物香気成分の吸入が自 律神経活動に及ぼす効果, 第65回日本木材学会大会発表要旨集, M18-07-1130, 2015.
- 15) 松原恵理, 光永徹, 川井秀一, 木質内装材施工空間における香りとヒトの生理心理応答, Aroma Research, 2015, in press.
- 16) 松原恵理, 川井秀一, 木材由来の香り成分による生理心理応答解析, *日本味と匂学会第 49 回大会*, P-126, 2015.

2. 木質住環境と健康

6) 実空間における木材パネルの設置が居住者の生理・心理反応 に及ぼす影響

東 賢一 (近畿大学 医学部)

研究組織

東賢一、萬羽郁子

1. はじめに

シックハウス症候群や化学物質過敏症などの問題に対処する方法の1つとして、これらの疾病に関連する症状や抑うつ、不安、不眠等を呈する居住者の家屋において、無垢の木材(特にスギ材)による内装仕上げを行ったところ、症状の改善が施工者により観察されている。しかし、これらの変化の科学的検証は十分なされていない。

また、木材の抽出成分である精油にはストレス症状緩和の効果があること ^{1, 2)}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 ^{3, 4)}も確認されているが、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ほとんど見当たらない。日本では森林整備の遅れによって、間伐材の 8 割が未使用のまま林の中に放置されていることから、間伐材を有効に活用する技術や用途の開発が必要と考える。

以上のような背景を踏まえ、スギ材を居住空間に用いた場合の居住者の心理的・生理的な影響 について検討することを目的とし、被験者実験を実施した。

2. スギパネルの設置が疲労回復に及ぼす影響の検討 5,6)

2.1 実験方法

2011 年 $11 \sim 12$ 月に実施した。実験室平面図を図 2-1 に示す。隣り合う 2 部屋 $(5,075\times3,630\times2,555\text{mm})$ をパーティションで仕切り、出来上がった 4 室のうちの 3 室を使用した。Case 1 と Case 2 は環境室で、Case 1 にはスギ材(小国産、45^{\circ}</sub> 乾燥と天然乾燥の併用)の壁面内装を施し、被験者位置から確認できるようにした。Case 1 とパーティションで仕切られた Case 1 は、サーキュレーターにより Case 1 と空気の強制循環があり、被験者位置からスギ材を確認できない様にした。Case 1 は、スギ材のない対照室とした。

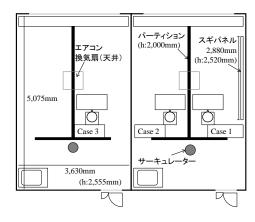


図 2-1 実験室平面図

被験者は、準備室で作業負荷(1桁の計算作業 15分×2セット)を行った後に、実験室に移動した。実験室には60分間滞在し、その間の心理・生理反応を観察した。

測定項目は、心理指標の POMS (Profile of Mood States) 短縮版と疲労感、快適感などの主観評価、生理指標の心拍、血圧、唾液アミラーゼ活性測定とした。また、実験室の空気質分析と、温湿度、机上面照度、騒音の物理量測定を行った。

男性8名と女性7名の被験者(Ave. ± S.D.; 23±3.8歳)を3群に分け、クロスオーバー法を用いた。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。

2.2 結果および考察

実験室の温熱・光・音環境については測定の結果、違いがないことを確認した。表 2-1 は空気質分析の結果を示す。環境室からはセドロール $(0.94\mu g/m^3)$ と β -オイデスモール $(0.69\mu g/m^3)$ が特異的に検出された。

表 2-1 実験室空気質分析の結果

【ホルムアルデヒド・アセトアルデヒド】

【テルペン類】

捕集: アクティブ法, 0.1 L/min ×24 h,

捕集: アクティブ法, 0.1 L/min × 30 min

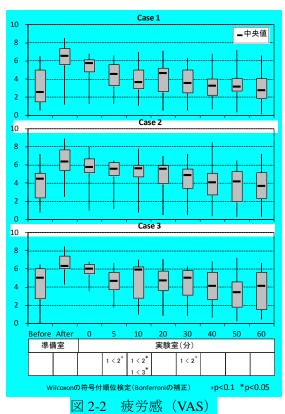
分析: HPLC

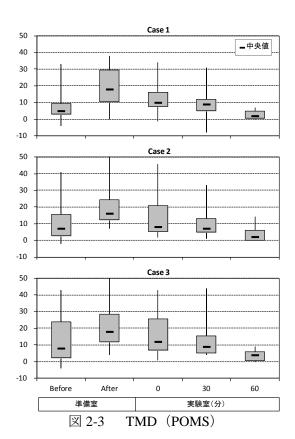
分析: GC-MS

75 77 . III LC			75 VI. GC-IVIS				
$(\mu g/m^3)$	Case 1, 2	Case 3	$(\mu g/m^3)$	Case 1, 2	Case 3		
ホルムアルデヒド	11.9	9.9	α-ピネン	0.99	0.82		
アセトアルデヒド	13.1	14.2	カンフェン	0.08	0.07		
[VOCs]	·		3-カレン	0.01	ND		
捕集: パッシブ法, 24 h,			s-(s)-リモネン	0.26	0.06		
分析: GC-MS / HPLC			テルピノレン	0.31	ND		
$(\mu g/m^3)$	Case 1, 2	Case 3	カンファー	0.51	0.49		
脂肪族炭化水素類	12.4	13.3	1-ボルニルアルコ―ル	0.15	0.13		
芳香族炭化水素類	17.6	18.3	セドロール	0.94	0.02		
テルペン類	4.5	4.4	β-オイデスモール	0.69	ND		
ハロゲン類	10.9	15.9					
エステル類	3.5	3.0					
アルデヒド・ケトン	10.5	10.8					

入室直後の臭気強度(「0. 無臭」~「5. 強烈なにおい」,6 段階尺度)は、Case 1(Med. \pm S.D.; 3 ± 1.0)で Case 2(2 ± 1.0)、Case 3(1 ± 0.9)より有意に高く、快不快度(「-4. 極端に不快」~「4. 極端に快」,9 段階尺度)は Case 1(2 ± 1.3)で Case 3(0 ± 0.7)よりも有意に高かった。見た目の好みには差がなかった。

疲労感(「0. 疲れを全く感じない最良の感覚」~「10. 何もできないほど疲れきった最悪の感覚」,VAS)の結果を図 5-2-2 に、POMS の TMD(Total Mood Disturbance)の結果を図 5-2-3 に示す。いずれも時間帯別に条件間の比較をした(Wilcoxon の符号付順位検定,Bonferroni の補正)。疲労感について、いずれの条件においても計算課題直後が最も高く、実験室に入室後疲労感が低下する様子がみられたが、入室後 10 分では Case 2 および 3 よりも Case 1 の疲労感が有意に低く、Case 1 で最も疲労感の回復が速かったことが示唆された。TMD についてもいずれの条件においても実験室入室後に低下する様子がみられたが、条件による違いはみられなかった。生理量についても条件による違いはみられなかった。





3. 木材等のにおい刺激による脳血流量の変化の検討 7.8.9)

3.1 実験方法

2011 年 12 月に実施した。実験には、前頭葉の大脳皮質の血流変化を機能的近赤外分光法 (functional near infrared spectroscopy; fNIRS, 島津製作所製 OMM-3000) を用いた。近赤外線を用いた脳機能計測は、非侵襲計測装置であり立位や座位での測定が可能である。光ファイバの配置は図 3-1 のとおりで、送光ファイバと受光ファイバの間の 42 チャンネルを同時計測した。

被験者は、健康な大学生 13 名 (男性 7 名/女性 6 名, 平均 ± 標準偏差; 23.2 ± 3.9 歳) であった。 被験者には実験前に説明会を行ない、においの評価を行う実験であることや、注意事項として実験前日からにおいの強い食事や飲酒を控えること、実験当日は香水や強い香りのする化粧品、整髪剤等の使用を控えることなどを伝えた。

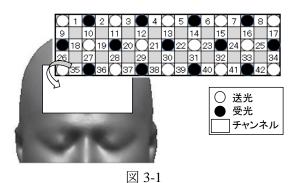
試料は、100mm×100mmの4種類の木材、ゴムと試料提示なしの条件とした。試料は実験者により、閉眼状態の被験者の鼻前に提示され、提示順序は被験者ごとにランダムとした。

前レスト(安静) 30 秒間、タスク(試料提示) 30 秒間、後レスト(調査票の記入+安静) 60 秒間を繰り返した。被験者は座位で、タスクでは実験者が被験者の鼻部に試料を近接させた。前レストおよび調査票記入時間を除いた後レストでは、小声で「あいうえお」を繰り返すことで安定状態を確保した。また、調査票(臭気強度、快不快度等)の記入時間以外は試料提示中を含め被験者は閉眼で、実験室は入射遮蔽した。

fNIRS では、各チャンネルにおける oxyHb、deoxHb、それらの合計である totalHb が記録されるが、本報では神経活動により生じる局所脳血流の変化と最も高い相関が報告されている oxyHb の変化量 10 について解析をした。また、これらの値は計測開始時点を基準とした相対値であるこ

とから、前レストの最後(タスクの直前)10 秒間の平均値を 0、標準偏差 1 となるようにタスクの結果を 10 秒間ごとに区切って標準化した値(z-score)を用いた。

本研究は近畿大学医学部倫理委員会の承認を得て実施した。



光ファイバおよび測定チャンネルの位置

表 3-1 試料の放散量測定の結果

試料No.	1	2	3	4	5	6
種類	スギ	スギ	ヒノキ	ポプラ 合板	ブチルゴム	試料 提示なし
産地等	熊本県 小国	岡山県 院庄	九州	中国製	日本製品	
樹齢	60~80年	50~60年	50~70年	不明		
乾燥温度	45°C	60°C	60°C	不明		
表面積(m²)	0.0238	0.0238	0.0244	0.0205	0.0205	
ホルムアルデヒド	17.210	4.380	7.370	53.350	0.662	
<u>アセトアルデヒド</u>	13.180	10.770	64.680	8.980	0.102	
アセトン	5.930	2.990	9.760	4.000	0.053	
イソオクタン	0.012	0.019	0.027	0.009	0.050	
ヘプタン	0.011	0.017	0.027	0.002	0.055	
トルエン	0.178	0.836	1.500	2.150	1.070	
オクタン	0.017	0.008	0.035	0.026	0.237	
ノナン	0.029	0.020	0.004	0.081	0.481	
α-ピネン	0.228	0.053	4.510	0.183	1.660	
リモネン	0.024	0.010	0.223	0.182	1.010	

※ デシケータ法(ガスクロマトグラフ質量分析法), 28°C, 単位:μg/hr/m²

3.2 結果および考察

表 3-1 に、実験に用いた試料および放散量測定の結果を示す。

図 3-2 に試料の臭気強度(「0. 無臭」~「5. 強烈なにおい」,6 段階尺度)、図 3-3 に試料臭気の快不快度(「-4. 極端に不快」~「4. 極端に快」,9 段階尺度)を示す。被験者は、実験室のにおいの影響からか、試料提示なしでも「1. やっと感知できるにおい」を感じていたが、試料なしに比べて全ての木材およびゴムの臭気強度は有意に高かった(p < 0.05)。快・不快度評価はゴムが試料提示なしに比べて有意に低かったが(p < 0.05)、その他の試料間や試料なし条件との差はみられなかった。

図 3-4 に、oxyHb の試料提示 $0\sim10$ 秒後の変化量から求めた z-score の全被験者の平均値をマッピングした。試料提示なしに比べて、全ての試料あり条件において中央付近で血流量の上昇部位が多くみられた。これは眼窩前頭皮質嗅覚野が反応したためと考えられる。図 3-5 に示すとおり、試料提示なしと対比較したところ、合板では中央付近、左半球側で血流量の有意な上昇が認められたが (p<0.01,0.05)、他の試料では有意な変化は認められなかった。被験者の主観評価による臭気強度の中央値は $2\sim3$ で、試料間の差が大きくはなかったため、試料間の脳血流量変化の違いも出にくかったと考えられる。また、快不快感と脳活動の関係については、様々な報告がありい、完全に一致した見解は得られていない。本研究においても、快・不快度と脳血流量の変化部位の関連性はみられなかった。ただし、有意な血流量の上昇が認められた合板は、ホルムアルデヒドやアセトアルデヒドなどの放散量が高く、既往研究においてもホルムアルデヒドへの暴露による一部の被験者の脳血流量の上昇が報告されている 120。以上のことから、試料の放散物質による脳血流変化の違いがみられ、脳活動はホルムアルデヒド等の刺激性の高い成分の影響を受けやすかったと考えられる。

なお、試料提示 10 秒以降は提示直後にみられた中央付近の脳血流量が徐々にみられなくなった。

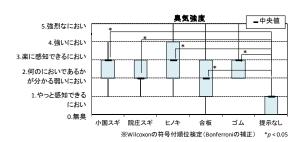


図 3-2 試料の臭気強度

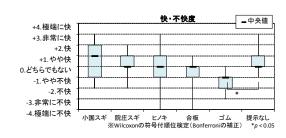
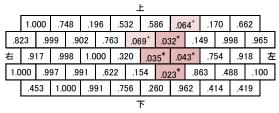


図 3-3 試料臭気の快・不快度



※ Dunnettの検定,+p < 0.10 *p < 0.05

図 3-5 試料提示なしとの対比較結果 〈有意確率〉(試料提示 0~10 秒,合板)

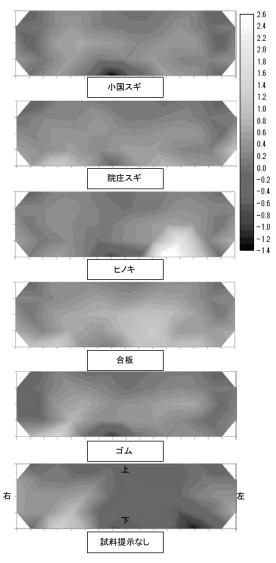


図 3-4 脳血流変化の z-score (試料提示 0~10 秒)

4. 木材パネルの設置が睡眠の質に及ぼす影響の検討 13)

4.1 実験方法

2012 年 11 月~12 月に実施した。実験条件は 3 条件で、条件 A(熊本県小国産スギ,樹齢 40 年,45℃乾燥を枕元に設置)、条件 B(九州産スギ合板,樹齢 40~60 年,130~140℃で 10 分以内のホットプレスを枕元に設置 ※枠材は条件 A・B ともに熊本県小国産,樹齢 80 年、地熱乾燥)、条件 C(パネル設置なし)とした。条件 A および B で用いたパネルを図 4-1 に示す。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。パネルを被験者寝室内、枕元付近に設置し、睡眠時の心理および生理反応の変化を測定した。

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。実験は、睡眠が乱れやすい土・日・祝日を除いた月から金曜日の被験者ごとに同じ曜日で連続する2晩で行い、持ち越し効果の影響を避けるため、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。

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。

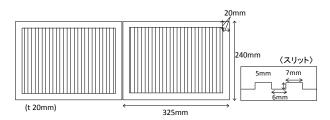


図 4-1 実験条件と試料

4.2 結果および考察

表 4-1 は試料からの放散量測定の結果を示す。試料の枠 材が同じであったこと、条件 B の合板はF☆☆☆☆であっ たことから、放散量に違いはみられず、睡眠内容の改善効 果が報告されているセドロール 3,4)はいずれの試料からも 放散が確認された。

部屋で感じるにおいの臭気強度(「0. 無臭」~「5. 強烈 なにおい1,6段階尺度)について、就寝前は条件A(p<0.01)、 起床時は条件 A および B (p<0.05) で試料設置なしの 1 日 目に比べて試料を設置した2日目に高く、2日間の臭気強度 の差は就寝前、起床時ともに条件 C より A が大きかった $(p < 0.05)_{\circ}$

表 4-2 はアクチグラフ(加速度センサー)の結果を示す。 1日目と2日目の測定結果に有意差はみられなかったが、2 日間の中途覚醒時間の差の中央値は、条件 A は試料設置の 2 日目がより短く、条件 C では 2 日目がより長かった

表 4-3 は OSA 睡眠調査票の結果で、得点は高い方が睡眠 の質が高いことを示す。条件 A の起床時眠気因子は 2 日目 の得点が低くなっていたが (p<0.05)、条件 B の起床時眠気 因子、疲労回復因子、睡眠の長さ因子は2月目が高く (p<0.05, 0.01)、2 日間の差は条件 B が A や C よりも大き かった (p<0.05, 0.01)。

スギスリット材の設置により、被験者は睡眠の前後にパ ネルのにおいを感じていた。アクチグラフ、OSA 睡眠調査 票の結果から、パネルの設置が睡眠の質に効果をもたらす ことが示唆されたが、今回の実験では条件 A と B のパネル の材による差がみられなかったことから条件等を見直し引 き続き検討していく必要があると考える。

表 4-1 放散量測定結果 【アルデヒド・VOC】

単位:μg/hr/m²	条件A	条件B
アセトン	1.54	8.35
2-ブタノン	0.082	0.234
ヘキサン	0.061	0.079
エチルアセテート	1.37	2.41
2,4-ジメチルペンタン	0.03	0.039
1-ブタノール	0.146	0.166
イソオクタン	26.8	16.7
ヘプタン	26.8	16.7
トルエン	0.338	0.38
オクタン	71.3	58.7
エチルベンゼン	0.061	0.075
m,p-キシレン	0.055	0.099
o-キシレン	0.085	0.115
ノナン	0.398	0.375
α-ピネン	0.165	1.35
3-エチルトルエン	0.02	0.036
4-エチルトルエン	0.008	0.013
1,3,5-トリメチルベンゼン	0.008	0.016
2-エチルトルエン	0.005	0.011
β -ピネン	0.004	0.045
1,2,4-トリメチルベンゼン	0.035	0.045
デカン	0.357	0.276
1,2,3-トリメチルベンゼン	0.007	0.009
リモネン	0.036	0.087
T-VOC	130	106
ホルムアルデヒド	0.429	0.369
アセトアルデヒド	3.83	8.51

※1)デシケータ法

【テルペン類】

単位:ng/L	条件A	条件B
α-ピネン	0.77	0.92
カンフェン	0	0
3-カレン	0.08	0
α-テルピネン	0	0
s-(s)-リモネン	0.14	0.16
γ-テルピネン	0	0
テルピノレン	0	0
フェチルアルコール	0	0
カンフル	0.08	0.55
1-ボルニルアルコール	0	0.02
セドロール	1.46	1.34
<i>β</i> −オイデスモール	1.55	1.49
※1)チャンバー内に試料を設置	i	·

幅300mm、高270-300mm、奥行170mm チャンバー内温度:20°C、湿度:40%

- 3)調査で使用した試料の1/2サイズのものを作成
- 4)加熱脱着-GC/MS法により測定
- 5) 検出下限: 0.02ng/L(3L捕集)

²⁾調査で使用した試料の1/2サイズのものを作成 3) GC/MS法およびHPLC法により測定

²⁾捕集条件:Tenax TA, 捕集速度:100mL/min, 捕集時間:10min、30min

表 4-2 アクチグラフの解析結果

中央値		条件A			条件B			条件C		多重
(四分位範囲)	なし	スギ	差	なし	スギ合	差	なし	なし	差	比較
睡眠時間:	414.5	433	37.5	369.5	411	7.5	403	433.5	17.5	
分	(79.5)	(33.8)	(88.5)	(84.5)	(81)	(55.5)	(87.3)	(58.5)	(42)	
入眠潜時:	7	6	-1	6	6.5	1	6	7	0	
分	(1.8)	(3)	(5.8)	(3.3)	(5)	(8)	(3.5)	(6.5)	(11)	
睡眠効率:	96.9	98	0.3	97.4	98.2	0.6	95.8	96.8	-0.5	
%	(4.8)	(2)	(2.8)	(5.1)	(5.1)	(2.5)	(5.3)	(4.4)	(3)	
中途覚醒	12.5	8	-1	10	7	0	16.5	14	1.5	A / O+
時間:分	(18.5)	(9.5)	(13)	(20.3)	(22)	(10.3)	(19.3)	(14.8)	(16.3)	A <c<sup>+</c<sup>

※多重比較: Wilcoxonの符号付順位検定(Bonferroniの補正) + p < 0.10

表 4-3 OSA 睡眠調査票の結果

中央値		 条件	-A			 条件	-B			条件	-C		多重
(四分位範囲)	なし	スギ	前後 比較	差	なし	スギ合	前後 比較	差	なし	なし	前後 比較	差	乡里 比較
起床時眠気因子:	17	14.3	*	-1.63	10.8	15.8	**	3.8	15.8	16.8		0	A <b**< td=""></b**<>
点	(9.1)	(6.5)		(2.8)	(4.5)	(7)		(4.5)	(7)	(9.5)		(2.5)	A <c*< td=""></c*<>
入眠と睡眠維持因子:	19.9	20.4		0	18	20.4		1.7	17.9	17.3		-0.1	
点	(7.1)	(5.6)		(5.7)	(9.2)	(11.0)		(3.5)	(2.8)	(10.4)		(5.1)	
夢み因子:	26.5	26.5		0	29.5	23.5		0	23.5	21.5		0	
点	(15)	(9)		(3.8)	(11.3)	(14.5)		(0)	(12.3)	(13.5)		(5)	
疲労回復因子:	18.3	15.667		0	15.333	20.167	**	3.6667	18.667	18.667		1.5	• (D*
点	(8.8)	(3.7)		(6.1)	(6.7)	(5.3)		(4.3)	(6.7)	(6.5)		(3.5)	A <b*< td=""></b*<>
睡眠の長さ因子:	16	18.8		0	16	21.5	*	5.5	16	18.8		0	0 (D+
点	(8.9)	(5.5)		(4.1)	(9.6)	(5.5)		(8.9)	(5.5)	(5.5)		(5.5)	C <b<sup>+</b<sup>

※前後比較:Wilcoxonの符号付順位検定 * p < 0.05. ** p < 0.01 多重比較:Wilcoxonの符号付順位検定(Bonferroniの補正) + p < 0.10. * p < 0.05, ** p < 0.01

5. 木材パネルの設置が精神健康度に及ぼす影響の検討 14)

5.1 実験方法

2014年12月~2015年2月に実施した。実験は奈良市内の大学の学生寮を対象に実施した。被 験者に通常の環境下(自室)で連続する3日間過ごした後、スギスリットパネル(南小国産,天 然乾燥材)を室内に設置した状態でさらに3日間過ごしてもらった。パネルの形状は図4-1と同 様で、設置位置を図5-1に示す。アクチグラフによる活動量測定と、OSA睡眠調査票(MA版)、 ピッツバーグ睡眠調査票、日本語版 GHQ 精神健康調査票による心理評価を行った。また、唾液 採取用チューブを用いて被験者自身に唾液を採取してもらい、唾液中コルチゾールと免疫グロブ リン(分泌型 IgA)を分析した。

被験者は学生寮居住者から募集し、調査への協力が得られた女性 13 名 (平均年齢±標準偏差 20.5±1.2 歳) とした。本実験は近畿大学医学部倫理委員会の承認を得て実施された。

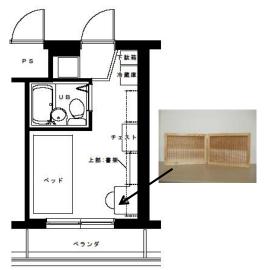


図 5-1 パネルの設置位置

表 5-1 放散量測定結果

【アルデヒド】

	単位: μ g/(m	n²•h)
アルデヒド類(HPLC)	ホルムアルデヒド	0.9
	アセトアルデヒド	4.5

[VOC]

L · · · · 2		
	単位: μ g/(m	2•h)
	ヘプタン	0.2
 脂肪族炭化水素類	オクタン	0.6
脂肪族灰化水系類	トリデカン	0.3
	テトラデカン	0.3
芳香族炭化水素類	トルエン	0.1
テルペン類	α-ピネン	0.2
エステル類	酢酸エチル	0.1
アルデヒド・ケトン類	アセトン	1.5
アルナロト・クトン領	メチルエチルケトン	0.1
フリー リ*5	エタノール	0.1
アルコール類	イソプロピルアルコール	0.2

【テルペン類】

	単位: μ g/(n	n²•h)
テルペン類	β-オイデスモール	0.3

小型チャンバー法 温度:28±1℃ 相対湿度:50±5%, 換気回数:0.5回/h 検出限界未満のものは省略

5.2 結果および考察

表 5-1 は小型チャンバー法(温度 28 ± 1 °C,相対湿度 50 ± 5 %,換気回数 0.5 回/h)によるパネルからの放散量測定の測定結果を示す。テルペン類として α -ピネンの他に β -オイデスモールが検出された。ただし、室中央で捕集した空気の分析結果からはこれらの物質は検出されず、居住者の室内のにおいについての評価にもパネル設置の影響はみられなかった。今回の実験条件では、パネルの近くに滞在したときのみパネルのにおいを感じる様な条件であったと言える。

図 5-2 は OSA 睡眠調査票の結果で、起床時眠気、入眠と睡眠維持、夢み、疲労回復、睡眠時間の 5 因子について、それぞれ得点が高い方がより睡眠の質が良いことを示す。パネル設置前とパネル設置後で比較して、起床時眠気については有意傾向、入眠と睡眠維持については有意に睡眠の質が改善していた。ただし、表 5-2 に示すとおりアクチグラフの解析結果からは条件による違いはみられなかった。図 5-3 はピッツバーグ睡眠調査票および GHQ 精神健康調査票の結果で、点数が低いほど睡眠の障害がないこと、精神健康度が高いことを示す。パネルの設置により精神健康度は有意に高くなっていた。図 5-4 は唾液分析の結果を示す。ストレス状態との関連性が高いことが報告されているコルチゾールに差はなかったが、分泌型 IgA は就寝前、起床後ともにパネルの設置により有意に高くなっていた。既往研究においても針葉樹林によって分泌型 IgA が増加したという同様の報告があり I8、スギパネルの設置によって免疫活動が活発化した可能性が示唆された。

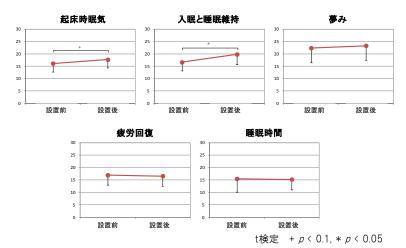
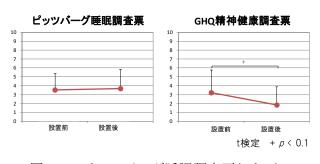


表 5-2 アクチグラフの解析結果

平均値 (標準偏差)	設置前	設置後
睡眠時間:	375.4	357.6
分	(84.0)	(68.0)
入眠潜時:	6.7	4.3
分	(4.5)	(2.1)
睡眠効率:	95.9	95.6
%	(2.8)	(2.9)
中途覚醒	23.0	21.3
時間:分	(12.7)	(12.5)

図 5-2 OSA 睡眠調査票の結果



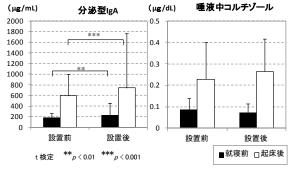


図 5-3 ピッツバーグ睡眠調査票および GHQ 精神健康調査票の結果

図 5-4 唾液分析の結果

6. 脳機能イメージングを用いた木材のにおい評価方法の検討

「木材等のにおい刺激による脳血流量の変化の検討」では機能的近赤外分光法を用いて、木材等のにおいを嗅いだときの前頭葉の大脳皮質の血流変化について調べたが、脳血流と脳波を同時計測して脳機能イメージングによって、脳内の活性を捉え木材のにおいが人に及ぼす影響について検討することが望まれる。

参考文献

- 1) 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.
- 2) 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.
- 3) 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.
- 4) 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.
- 5) 萬羽郁子, 東賢一, 藤田佐枝子, 辻野喜夫, 上掘美知子, 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要旨集,122-123,2012.
- 6) BAMBA I. AZUMA K. FUJITA S. TSUJINO Y. UEBORI M. KIMURA A. NAKAMURA M. KOUDA

- K and KAWAI S, Effect of Japanese cedar on psychological and physiological factors influencing fatigue recovery in an indoor environment, Environment and Heath -Bridging South, North, East and West, P-2-17-12, 2013.
- 7) 萬羽郁子,東賢一,におい刺激による脳血流変化の検討―木材等の試料提示直後の変化―,日本建築学会 2013 年度大会学術講演梗概集,879-880,2013.
- 8) 萬羽郁子, 東賢一, 木材等のにおい刺激による脳血流量の経時変化, 第 37 回人間-生活環境系 シンポジウム報告集, 203-206, 2013.
- 9) BAMBA I, AZUMA K, Relation of changes in cerebral blood flow and diffusion material caused by smelling wood, Indoor Air 2014, HP0970, 2015.
- 10) HOSHI Y, KOBAYASHI N, TAMURA M, Interpretation of near-infrared spectroscopy signals, Journal of Applied Physiology, **90**, 1657-1662, 2001.
- 11) 内山惠二, 味覚・嗅覚, 朝倉書店, 2009.
- 12) 久満美奈子, 岡本美孝, 茶薗英明, 花澤豊行, 堀口茂俊, 大川徹, 小林皇一, 米倉修二, ホルムアルデヒド曝露による脳血流変化 functional MRI を用いた検討, アレルギー, 56(3/4), 341, 2007.
- 13) 萬羽郁子, 東賢一, 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 パネルの設置が睡眠に及ぼす影響の検討―, 日本家政学会関西支部第 35 回(通算 91 回)研 究発表会要旨集.1,2013.
- 14) 萬羽郁子, 東賢一, 室内空気質から見た木の家, チルチンびと, 84, 風土社, 120-123, 2015.
- 15) 松波謙一,井川原弘一,広葉樹林と針葉樹林が人の感情に及ぼす影響について脳波と POMS での分析,宇宙航空環境医学,43 (4),2006.

2. 木質住環境と健康

7) スギ材抽出成分のヒト細胞への生理応答

宮越 順二

京都大学生存圈研究所

研究組織

成田英二郎、小山真、清水陽子、松原恵理、宮越順二

研究概要

本プロジェクト研究では、木質住環境における空気室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。我々の分担研究では、よりミクロなレベルでのアッセイ系として、ヒト由来培養細胞でスギ材抽出成分の有効性評価を試みる。

我々の体には、恒常性を保つため、生体内に侵入した異物を生体外に排出する免疫システムと呼ばれる防御システムが存在する。自己免疫力の向上は感染に対して抵抗性を増し、健康維持増進に結びつくことになる。しかしながら、その逆の可能性も否定できない。

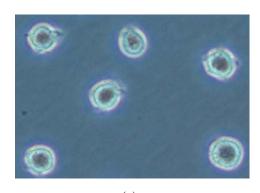
そこで、スギ材抽出成分の人体への影響評価の一環として、細胞レベルにおける応答を検索する。

1. スギ材抽出物によるヒト免疫担当細胞におけるサイトカイン産生への影響

1.1 スギ材抽出成分と使用細胞

n-ヘキサン抽出物: 2.57mg、酢酸エチル抽出物: 2.75mg、アセトン抽出物: 2.76mg、メタノール抽出物: 3.3mg、温水抽出物: 2.94mg をそれぞれジメチルスルホキシド (DMSO)で 2.5mg/ml に溶解調製後、フィルター濾過滅菌しスギ材抽出成分ストックとした (川井先生の研究室より入手。松原先生の情報を参考とした)。

実験に用いた細胞は、ヒトリンパ腫由来単芽球様細胞である U937 細胞で、培養液は RPMI1640 に添加材として 10%FBS を加えたものである。これをホルボール 12-ミリステート 13-アセテート(PMA) 50ng/mℓ を含有する培地で培養することでマクロファージ様細胞へ分化させることができる。図 1 に細胞顕微鏡写真を示す。



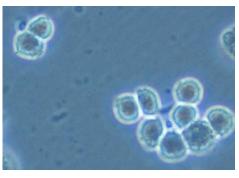


図 1. U937 細胞播種直後(a)とマクロファージ様細胞へ分化後(b)

1.2 サイトカインとその作用

サイトカインは免疫システムを担う細胞により分泌される特殊なタンパク質の総称で、特定の細胞に情報を伝達する。これまで見つかったものには多くの種類があり、インターロイキン、インターフェロン、腫瘍壊死因子、ケモカイン、コロニー刺激因子、増殖因子などがある。これらの中から、代表的なものとして表1に示すものを指標として、スギ材抽出成分の有効性評価を試みた。

	産生細胞	作用
IL-1	マクロファージ、B 細胞、NK 細胞、好中 球など	T細胞・B細胞の増殖および機能発現の補助など
IL-6	T細胞、肥満細胞、マクロファージ、B細胞など	B 細胞刺激因子 2 (B 細胞の分化促進)、キラーT 細胞発現補助など
IL-10	T 細胞、活性化 B 細胞、単球、肥満細胞など	単球系細胞に対して炎症性サイトカイン の産生を始めとする免疫機能の抑制性
TNF- α	B 細胞、NK 細胞、マクロファージなど	腫瘍細胞を壊死

表 1. サイトカインとその作用

1.3 実験方法

- (1) 細胞は U937 (ヒトリンパ腫由来単芽球様細胞) を用い、ホルボール 12-ミリステート 13-アセテート(PMA) 50ng/mℓ を含有する培地に播種し、一昼夜培養してマクロファージ様細胞へ分化させた。
- (2) 通常培地で洗浄し、培地交換を行った後、一昼夜培養した。
- (3) 5 種のスギ材抽出成分は最終濃度 $5\mu g/10mL/100mmdish$ となるよう PBS で調製し、またそれぞれにリポ多糖(LPS)を最終濃度 $1\mu g/m\ell$ となるよう添加した。
- (4) DMSO コントロールは培地に DMSO のみ添加し、DMSO 濃度を合わせたコントロールとして行った。
- (5) 1 および 24 時間後、培地上清を回収し eBioscience 製 InstantELISA® Human IL-1 β 、Human IL-6、Human IL-10 および Human TNF- α を用いて ELISA 法によるサイトカイン産生の解析を行った。

1.4 結果および考察

最適播種細胞数の予備検討実験として、細胞数を 1×10^4 個/mℓ から 1×10^5 個/mℓ の間の 4 段階の細胞濃度で播種し、24 時間培養後の培地上清の IL-1 β 産生量(サンプル原液濃度)を ELISA 法により解析した。その結果を図 2 に示す。

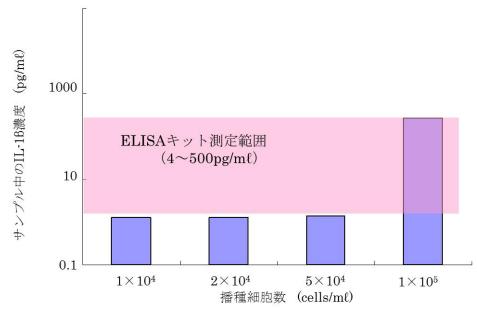


図 2.24 時間培養後の IL-1 β 産生量 (サンプル原液濃度)

 1×10^5 個/mℓ 未満の細胞濃度では、使用した ELISA 法によるサイトカイン測定キットの検出下限を下回るため、 1×10^5 個/mℓ 以上の細胞を播種する必要があると考えられる。また、検出上限を超える濃度のサンプルについては、測定キット付属の希釈液を用いて測定範囲内で測定することが可能である。 1×10^5 cells/mℓ の細胞を播種したときの培地上清から、ELISA 法によるサイトカイン産生を解析した結果を図 3に示す。

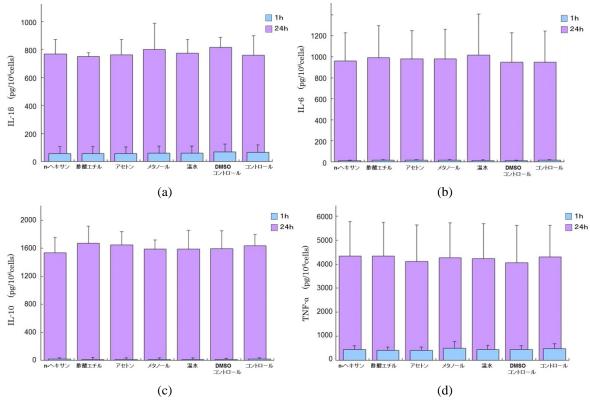


図 3. U937 細胞によるサイトカイン産生((a)IL-1 β 、(b)IL-6、(c)IL-10、(d)TNF- α)

ヒトリンパ腫由来単芽球様細胞(U937)を用いて、スギ抽出物によるサイトカイン産生の 測定を3回実施した。コントロール群とスギ抽出物添加群のU937細胞より、培養時間とともに サイトカインが産生されることが確認できた。コントロール群とスギ抽出物添加群では、統計的 に有意な影響は観察されず、スギ抽出物はサイトカイン産生へ顕著な影響を及ぼさないと考えら れる。

2. スギ材抽出物によるヒト免疫担当細胞におけるヒートショックタンパク (HSP) 産生への 影響

2.1 スギ材抽出成分と検討方法

スギ材抽出物については前述 1.1 にある抽出法全てより抽出された成分(国立研究開発法人森林総合研究所、松原先生の情報を参考とした)を、ジメチルスルホキシド(DMSO)で溶解して $500\,\mu\,\ell/m\ell$ ストックした。

検討方法として、スギ材抽出成分添加濃度をこれまでの 10 倍程度に上げ、スギ材抽出成分の人体への影響評価の検討方法として、培養中のヒト由来細胞にスギ材抽出成分添加濃度を変化させたときの生存率、また、ヒートショックタンパク (HSP) 産生への影響を検索する。

2.2 ヒートショックタンパクと使用細胞

細胞が熱や化学物質等のストレスにさらされると発現が上昇し、細胞を保護する役割を持つ タンパク質の一群である。ヒートショックタンパクは分子シャペロンとして機能する。

実験に用いた細胞は、ヒト胎児グリア細胞である SVGp12 細胞で、培養液は EAGLE MEM に添加材として 10%FBS、 1%Na Pyruvate Solution、 1%MEM Non-Esential Amino Acid を加えたものである。図 4 に細胞顕微鏡写真を示す。

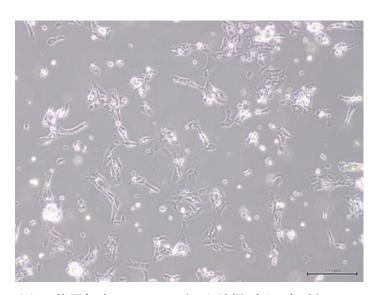


図 4. 使用細胞、SVGp12 (ヒト胎児グリア細胞)

2.3 細胞生存率評価(WST)実験方法

- (1) 35 mm ディッシュに SVGp12 細胞(4000 個/ディッシュ)を播種。
- (2) 24 時間培養後、スギ抽出物を添加。(0.01, 0.02, 0.05, 0.1, 0.2, 0.5, 1%、1h)
- (3) 通常培地で洗浄し培地交換後、通常の CO₂インキュベータ内で 48 時間培養。

- (4) 培地を取り除き、premix WST-1 試薬を 200µL 添加し、1 時間培養。
- (5) プレートリーダーで 450 nm の吸光度を測定。

2.4 ヒートショックタンパク発現評価実験方法

- (1) ばく露用シャーレに 1 枚当たり 1×10⁶個の SVGp12 細胞を播種し、24 時間培養。
- (2) 陽性対照として 43^{\circ}のインキュベータに 1 時間、スギ抽出物は添加して 1 時間細胞を培養し、冷 PBS で洗浄後、CelLytic(SIGMA)により回収。
- (3) ウェスタンブロッティング
- (4) 免疫染色
- (5) HRP 染色
- (6) ATTO Cool Saver(ATTO)で撮影。
- (7) 撮影したバンドの強度と面積を解析後、タンパク量を比較。

2.5 結果および考察

現在、ヒト胎児グリア細胞である SVGp12 細胞を用いて WST 試験による生存率評価を行い、 至適条件を検討した。細胞応答の検索については、生存率評価により得られたスギ材抽出成分の 添加濃度条件により、ヒートショックタンパク産生(HSP70 など)の検出実験を進行中である。

また今後の展開として、他のヒト細胞を用いた追試験を行うことや、細胞分裂の際細胞質分裂を阻害し、核分裂のみを起こした細胞内で核に組み込まれなかった小核を観察することにより、細胞への障害を判断する小核試験を行うことなどを検討中である。

参考文献

- 1) Broadley S.A. and Hartl F.U., The role of molecular chaperones in human misfolding diseases, *FEBS Letters*, 583(16):2647-2653, 2009.
- 2) Daugaard M., Rohde M. and Jäättelä M., The heat shock protein 70 family: Highly homologous proteins with overlapping and distinct functions, *FEBS Letters*, 581(19):3702-3710, 2007.
- 3) 大塚健三, がんにおけるHSF1 および分子シャペロンの役割-がんと神経変性疾患、どちらを取るか-, *生物機能開発研究所紀要*, 13: 22-40, 2012.
- 4) Li X., Colvin T., Rauch J.N., Acosta-Alvear D., Kampmann M., Dunyak B., Hann B., Aftab B.T., Murnane M., Cho M., Walter P., Weissman J.S., Sherman M.Y. and Gestwicki J.E., Validation of the Hsp70–Bag3 Protein–Protein Interaction as a Potential Therapeutic Target in Cancer, *Molecular Cancer Therapeutics*, 14(3): 642–648, 2015.
- 5) Ko S.K., Kim J., Na D.C., Park S., Park S.H., Hyun J.Y., Baek K.H., Kim N.D., Kim N.K., Park Y.N., Song K. and Shin I., A Small Molecule Inhibitor of ATPase Activity of HSP70 Induces Apoptosis and Has Antitumor Activities, *Chemistry & Biology*, 22: 391-403, 2015.
- 6) Sekihara K., Harashima N., Tongu M., Tamaki Y., Uchida N., Inomata T. and Harada M., Pifithrin-m, an Inhibitor of Heat-Shock Protein 70, Can Increase the Antitumor Effects of Hyperthermia Against Human Prostate Cancer Cells, *PLOS one*, 8: e78772, 2013.
- 7) Katsogiannou M., Andrieu C. and Rocchi P., Heat shock protein 27 phosphorylation state is associated with cancer progression, *Frontiers in GENETICS*, 5: Article 346, 2014.
- 8) Leszczynski D., Joenväärä S., Reivinen J. and Kuokka R., Non-thermal activation of the hsp27/p38MAPK stress pathway by mobile phone radiation in human endothelial cells: Molecular mechanism for cancer- and blood-brain barrier-related effects, *Differentiation*, 70: 120-129, 2002.
- Matsunaga A., Ishii Y., Tsuruta M., Okabayashi K., Hasegawa H. and Kitagawa Y., Inhibition of heat shock protein 27 phosphorylation promotes sensitivity to 5- fluorouracil in colorectal cancer cells, ONCOLOGY LETTERS, 8: 2496-2500, 2014.

- 10) Nakashima M., Adachi S., Yasuda I., Yamauchi T., Kawaguchi J., Itani M., Yoshioka T., Matsushima-Nishiwaki R., Hirose Y., Kozawa O. and Moriwaki H., Phosphorylation status of heat shock protein 27 plays a key role in gemcitabine-induced apoptosis of pancreatic cancer cells, *Cancer Letters*, 313: 218-225, 2011.
- 11) Matsushima-Nishiwaki R., Takai S., Adachi S., Minamitani C., Yasuda E., Noda T., Kato K., Toyoda H., Kaneoka Y., Yamaguchi A., Kumada T. and Kozawa O., Phosphorylated Heat Shock Protein 27 Represses Growth of Hepatocellular Carcinoma via Inhibition of Extracellular Signal-regulated Kinase, *THE JOURNAL OF BIOLOGICAL CHEMISTRY*, 283: 18852-18860, 2008.

大気質の安心・安全 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·生存圈研究所)

津田 敏隆 (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

大気質変動, エアロゾル, 微量気体, 森林-大気相互作用, 接地境界層

ミッション1:環境計測・循環機能制御

ミッション5:高品位生存圏(人と健康)

3. 研究概要

大気中の微量成分(ガスおよびエアロゾル)は、グローバルな温暖化や大気質、ヒトの健康や植物に対する影響など、生存圏における様々な問題に関与している。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、とりわけ大気微量成分の時空間分布を、高い分解能で描写する新しい大気計測手法を開拓することを主たる目的とした。特に、(1) 航空法に基づく最低安全飛行高度による制約のため航空機をチャーターした観測ができない接地層およびその近傍に着目して、大気微量成分の鉛直構造とその変動過程を詳しく捉えること、(2) ヒトの居住空間における大気微量成分の空間分布を捉えること、を主眼とした。

我々がこれまでに本プロジェクトにおいて活用してきたプラットフォームと、対応する物質探査の高度領域を図1に概略的に示した. 野外における観測場所としては、滋賀県甲賀市にある京大生存圏研 MU 観測所とその周辺地域(観測時期: H22-24 年度)、滋賀県大津市にある京大農学研究科・桐生水文試験地(H22-27 年度)、東京都八王子市にある東京農工大フィールドサイエンスミュージアム多摩丘陵(H25-27 年度)、静岡県御殿場市にある富士山麓太郎坊基地(H25-27 年度)であった. これらの観測では、大型の係留気球や微気象観測用タワーをプラットフォームとして用いることにより、地表面から上空数十メートルの高度領域における微細な物質構造を抽出することを目指した. また、MU 観測所から周辺地域へ車両を利用して移動しながら標高を変えつつ観測を行うことで、地上から数百メートルの範囲における物質分布を探査する試みを行ったほか、富士山を一つの大きなプラットフォームとみなす山岳大気共同観測に参加し、大気境界層から自由対流圏に至る物質分布

を調べる試みも行った.これらの観測により、接地境界層の生成・崩壊に伴う地表付近の 微量ガス・エアロゾル鉛直分布の変動特性や、接地境界層を含む大気境界層や自由対流圏 におけるナノ粒子の生成速度の空間分布、森林樹冠内および樹冠直上におけるエアロゾル 粒径分布の鉛直微細構造、森林樹冠分布とガスフラックスの時間的微細構造などについて、 詳しい情報を抽出することができた.一方、本研究のもう一つの柱である居住空間におけ る実験は、生存圏研レンタルラボおよびクリーンブースを利用して行った.これにより、 健康影響が懸念される粒径領域のエアロゾル生成過程が、居住環境に対してどのように影響するかを精査する方法を開発した.

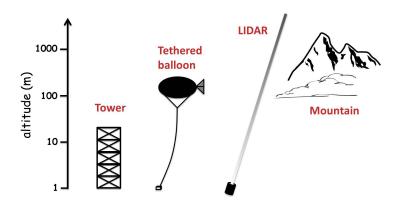


図1:本プロジェクトで利用または開発したプラットフォームと対応する探査可能高度

なお、本プロジェクトの推進にあたり、次の方々にご協力を賜りました. 記してお礼申し上げます.

青木一馬(富山大),岩本洋子(東京理科大),奥村智憲(大阪府立環境農林水産総合研究所),加藤俊吾(首都大東京),川井秀一(京大),久世宏明(千葉大),小杉緑子(京大),塩原匡貴(極地研),中山智喜(名大),林泰一(京大),原圭一郎(福岡大),松田和秀(東京農工大),松原恵理(森林総研),眞子直弘(千葉大),三浦和彦(東京理科大)(五十音順).

4. 電磁場の生体影響

宮越 順二 京都大学生存圏研究所

1. 研究組織

代表者氏名: 宮越 順二 (京都大学生存圈研究所) 共同研究者: 小山 填 (京都大学生存圈研究所)

成田 英二郎 (京都大学生存圈研究所) 水野 公平 (京都大学生存圈研究所) 清水 陽子 (京都大学生存圈研究所) 櫻井 智徳 (京都大学生存圈研究所) 三谷 友彦 (京都大学生存圈研究所)

二谷 友彦 (京都大字生仔圈研究所)篠原 真毅 (京都大学生存圏研究所)

多氣 昌生 (首都大学東京理工学研究科) 鈴木 敬久 (首都大学東京理工学研究科)

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:マイクロ波、中間周波数帯電磁波、共鳴送電、無線エネルギー伝送、生 体影響評価、安全性、発がん性、細胞遺伝毒性、小核形成、ストレスタ ンパク発現、免疫応答、サイトカイン、貪食能

新領域研究:電磁場の生体影響

関連ミッション2:太陽エネルギー変換・利用

3. 研究概要

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¹⁾。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、早期の実用化に向けて多くの研究が進められている。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のばく露装置の開発に取り組み、発がん性に関与する細胞遺伝毒性への影響について検索した。

また、携帯電話は 1990 年代後半から現在に至るまで、世界的に急速な普及をたどっている。電波 (マイクロ波) の生体影響として、発がん性への評価はすでに行われているが²⁾、免疫能への研究実績は未だ少ない。本研究では、細胞の免疫機能について、特にサイトカイン産生への影響について検索した。さらに、マウス膵臓由来のハ

イブリドーマ細胞を用いて、高周波のT細胞依存性抗体産生能への影響についても検索した。

これまで、低周波や高周波帯電磁波の生体影響研究は、これまでに多くの研究がおこなわれてきたが ³⁾⁻⁵⁾、中間周波数帯電磁波については、研究実績が極めて少なく、生体影響の評価を行うための本格的な研究がまたれている。そこで、本研究では、前骨髄球白血病細胞(HL-60)を用い、23kHz 電磁波ばく露による生体影響について、免疫応答、特に好中球の遊走能と貪食能を中心として、解析し評価した。

上述した研究概要について、図1にまとめた。

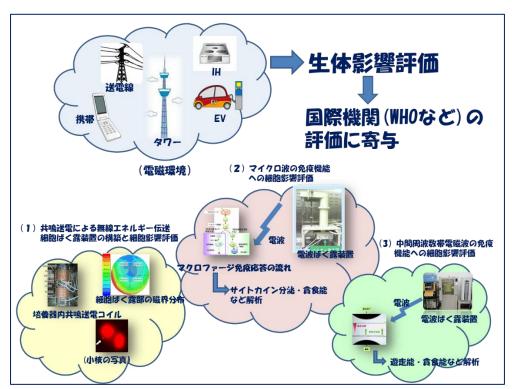


図1 研究概要まとめ

4. 研究の背景と目的

現代社会は、目には見えないが生活環境に電磁波あふれている。高圧送電線、家庭内の電化製品、医療現場、それに携帯電話やその基地局などである。未来社会において人が生活する上で、定常磁場、低周波から高周波に至る多種多様な電磁環境は、ますます増加の一途をたどることが予想される。放射線と同様に、電磁波環境は目に見えないこともあり、このような背景から、電磁波の健康への影響について不安を抱いている人が多いのも事実である^{3,6)}。

近年、新しい無線電力伝送技術として共鳴結合方式が注目を集めており多くの研究が進められている。しかし、共鳴結合無線電力伝送下における生体影響の可能性を 実験的に評価した例はほとんどない。本研究の1つ目のテーマとして、共鳴結合無線 電力伝送下における生体影響の可能性を評価することを目的に、安定した共鳴結合無線電力伝送環境、国際的なガイドライン⁷⁾を踏まえた電磁波ばく露環境、厳密に管理された細胞培養環境を兼ね備えた、細胞研究のための新たな共鳴結合無線電力伝送システムの開発に取り組んだ。さらに、開発したばく露システムを用い、細胞の基本動態や遺伝毒性を指標とした研究を実施することにより生体影響評価を行う。

電波の生体影響について、免疫機能が注目されている。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排除する、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。本研究の2つ目のテーマとして、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の比吸収率(SAR: Specific Absorption Ratio)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。

一方、T 細胞依存性抗原に対する特異抗体が産生されるまでには、マクロファージや樹状細胞などの抗原提示細胞、T 細胞ならびに B 細胞が必要とされる。T 細胞依存性抗体産生の場合、上記のいずれかの細胞の機能に異常が起きたとしても最終的には T 細胞依存性抗体産生に変化がみられることになる。従って、幅広く細胞の機能の変化をとらえるためには T 細胞依存性抗体産生能の測定が有効である。しかしながら、T 細胞依存性抗体産生試験にはマウスまたはラットを用いてインビボでのヒツジ赤血球を抗原とする抗体産生能をプラークの検出により行うのが最も一般的であり、培養細胞株を用いたインビトロの測定系は確立されていないのが現状である。そこで、培養細胞株を用いたインビトロの測定系の検討を行い、T 細胞依存性抗体産生能の電波ばく露による影響を検索することを目的とし、周波数 2.45 GHz、SAR は 2 および 10W/kg、ばく露時間を 4 および 24 時間で評価した。

さらに、中間周波帯電磁波(Intermediate frequency: IF)の生体影響について注目されている。この周波数帯領域については、国際的にも研究実績が少ない。身近な中間周波数帯領域の汎用機器としては I Hクッキングシステムがある。また、将来の無線エネルギー伝送にもこの周波数帯が 1 つの候補となっている。そこで、本研究の 3 つ目のテーマとして、ヒト免疫システムの初期レスポンスを担う好中球における遊走能と貪食能への影響を検索した。

5. 研究の結果及び考察

5.1 共鳴送電下における生体影響評価のためのばく露装置開発と細胞遺伝毒性 ばく露システムは、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。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 8)。

製作したばく露システムの外観を図 2 に示す。 CO_2 インキュベータに電力伝送用のコイル等を配置している。また、送電用コイルと受電用コイルの間隔は 100 mmである。送電用コイルと受電用コイル間の 4 枚の細胞培養ディッシュ (60mm) は、その下の水冷式冷却装置により 37℃温度に維持されている。



周波数(MHz)

図2 ばく露システムの外観

図3 伝送効率評価結果

電力伝送特性評価として、伝送効率の評価結果を図 3 に示す。共振周波数 12.5MHz において伝送効率は約 85%であり、また、実測結果と高周波 3 次元電磁界シミュレータ(HFSS: High Frequency Structural Simulator)による解析結果との間に良い一致が確認できた。

細胞の遺伝毒性評価として、染色体へのダメージを検出する小核試験を実施した。細胞は、ヒト胎児由来繊維芽WI38VA13を用いた。図4に小核試験の結果を示す。 共鳴結合無線電力伝送下において培養した細胞サンプルにおける結果と、対照の CO₂ インキュベータにおいて培養した対照サンプルにおける結果は非常によく一致しており、この結果から、共鳴結合無線電力伝送下においても細胞の遺伝毒性に影響を及ぼさなかった。ブレオマイシンはポジティブコントロールとして用いたもので、ばく露サンプル、対照サンプルに対して有意な影響を及ぼしていることが確認された。また、電波の細胞影響として、注目を集めているストレスタンパク(熱ショックタンパク)の発現についても検討したが、有意な陽性効果は認められていない 9,100。

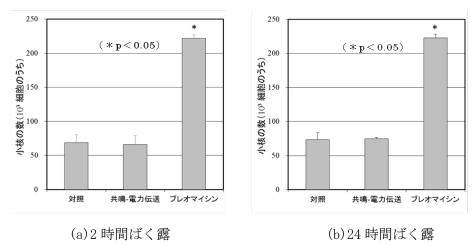


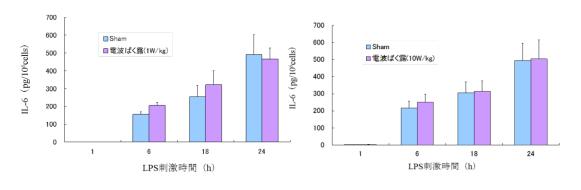
図 4 小核形成試験による細胞遺伝毒性評価

5.2 免疫細胞における高周波電波ばく露の影響評価研究

用いた高周波ばく露装置は、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)を行っている ¹¹⁻¹³⁾。

電波ばく露条件は、周波数: 2.45GHz、ばく露処理条件: SAR 1、10W/kg、ばく露時間: 4時間で実施した。2種類の白血球由来細胞(U937(ヒトリンパ腫由来)および Jurkat(ヒト白血病由来 T 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。サイトカイン産生は、IL-1 β 、IL-6(以上は U937 細胞)、および IL-2(Jurkat 細胞)について、ELISA 法を用いて測定した。

結果の1例として、図5(a, b)に、U937 細胞における電波ばく露後のLPS(リポ多糖)刺激による経時的なIL-6の変化を示す。電波の比吸収率、1W/kg、10W/kg、共に、Sham と比べ IL-6 産生量に有意な変化は認められなかった。他のサイトカイン、IL-1 β 、IL-2 についても同様の結果が得られた14)。



a: 1W/kg 4 時間ばく露 b: 10W/kg 4 時間ばく露 図 5 U937 細胞による IL-6 分泌量

次に、マウス脾臓由来、抗ヒツジ赤血球 IgM 抗体産生ハイブリドーマ (JCRB1358.03) を用いて、電波ばく露による T 細胞依存性抗体産生能への影響を検討した。カニンガムチャンバー法で確認したところ、図 6 に示すように抗体産生細胞が周りの赤血球を溶血し、プラーク(溶血斑)を形成した。

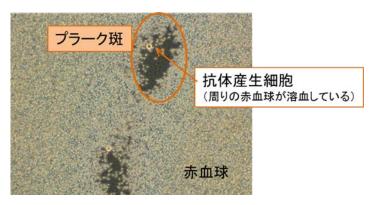


図6抗体産生細胞の形成するプラーク

電波ばく露とシャムばく露で、ばく露直後およびばく露 24 時間後について 比較した。図 7(a,b) は、2.45 GHz,2 W/kg のばく露装置についての結果を示す。10 W/kg の結果も含めて、4 および 24 時間の電波ばく露は、ヒツジ赤血球に対する抗体産生 能について統計学的に有意な差を及ぼさなかった

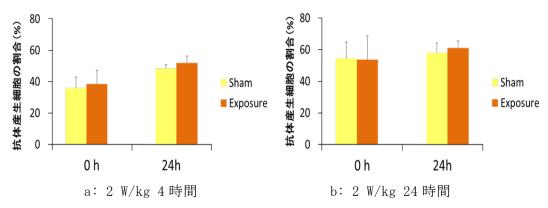


図7 ヒツジ赤血球に対する抗体産生能の電波ばく露の影響

これらの研究成果から、検討した電波のばく露条件下において、インビトロT細胞依存性抗体産生(TDAR)を指標とした免疫システム機能へ影響を及ぼさないことが示唆された ¹⁵⁾。

5.3 中間周波帯電磁波による好中球細胞の遊走能および貪食能への影響

ヒト白血病由来 HL-60 細胞をジメチルスルホキシド (DMSO) 添加により、好中球に分化させた。図 8 に示す通り、3 日目より形態的に好中球への分化が確認された。さらに、分化に伴い増加するスーパーオキサイド (SOD) の上昇も認められた。

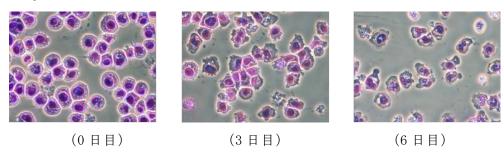


図8:DMS0添加によるHL-60細胞の形態経時変化

好中球の貪食能は、一定数の好中球に蛍光ビーズを加え、貪食により取り込ませた後、取り込まれなかった蛍光ビーズを洗浄し、フローサイトメーターにより測定した。ばく露条件は、23kHz、2mT、2~4時間の条件で行った。その結果を図9に示す。IFをばく露した好中球と疑似ばく露(Sham)した好中球で貪食能の違いは見られなかった。

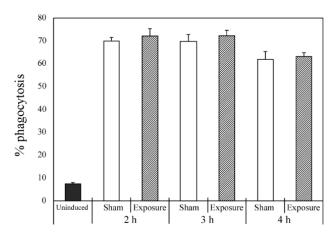


図9:ばく露後における好中球の貪食能

さらに、好中球の遊走能についても、走化性測定装置を用いて検討したが、 IF ばく露とシャムの間に有意な差は認められなかった ¹⁶⁾。

6. 今後の展開

開発した細胞研究のための共鳴結合無線電力伝送システムを用いては、電力伝送 下における細胞の小核試験以外の遺伝毒性評価(コメットアッセイ、突然変異試験) を実施する。さらに、熱ショックタンパクの発現以外の細胞機能に関与する指標を用い、引き続き、共鳴結合無線電力伝送下における生体影響の有無を明らかにしていく。

高周波(2.45GHz)については、細胞の遺伝毒性評価、および免疫応答やストレスタンパク発現を含む細胞機能に関しての評価はほぼ完了している¹⁷⁾。2016年中に世界保健機関(WHO)のタスク会議にて、高周波に関する環境保健クライテリア(EHC: Environmental Health Criteria)が発表される予定である。この EHC には、今後の推奨研究が示されるので、WHO タスク会議の見解を参考に進めて行く。

中間周波数帯電磁波については、現在、400kHz の新たな細胞ばく露用装置を設計・製作中である。このばく露装置が完成した後、これまでに生体影響評価研究報告がほとんどない周波数領域であるので、発がん性関連への影響評価から研究を始める予定である。さらに、近年の社会的電磁環境の利用は多種多様な周波数領域にわたってきており、特に超高周波領域においても汎用機器としての応用が見込まれている。この分野の電磁環境生体影響評価研究にも取り組んで行きたいと考えている。

7. 謝辞

本研究の一部は、新領域開拓研究費に加えて文部科学省科学研究費ならびに総務省委託研究費の援助を得て実施した。

8. 引用文献

- 1) 宮越順二,(篠原真毅・編)電磁波の安全性、電界磁界結合型ワイヤレス給電技術、 科学情報出版株式会社,pp363-381,2014
- 2) IARC Working Group (Miyakoshi J. and 29 members): Non-Ionizing Radiation, Part 2: Radiofrequency Electromagnetic Fields. Vol. 102, IARC Monographs on The Evaluation of Carcinogenic Risks to Humans, 2013
- 3) 宮越順二(編者)電磁波生命科学. 京都大学学術出版会, 2005
- 4) Miyakoshi, J., Cellular Biology Aspects of Mobile Phone Radiation, James C. Lin (Ed.): Health Effects of Cell Phone Radiation. Advances in Electromagnetic Fields in Living Systems, Vol. 5, pp1-33, Springer New York, 2009
- 5) Miyakoshi, J., In Vitro Experimental Results, Masamichi Kato (Ed.): Electromagnetic Biology. pp115-136, pp305-317, Springer Japan, 2006
- 6) 宮越順二, 電磁場と健康を考える~WHO の評価から~ *Electron Science Institute.* Vol. 29. Nol 1, 2011
- 7) International Commission on Non-Ionizing Radiation Protection (ICNIRP), Guidelines for limiting exposure to time-varying electric and magnetic fields (1Hz-100kHz), *Heath Physics* vol. 99, PP. 818 836, 2010

- 8) Mizuno, K., Miyakoshi, J., Shinohara, N., In vitro exposure system using magnetic resonant coupling wireless power transfer, *Wireless Power Transfer*, 1, 97-107, 2014
- 9) Mizuno, K., Shinohara, N., Miyakoshi, J., In vitro evaluation of genotoxic effects under magnetic resonant coupling wireless power transfer, International Journal of Environmental Research and Public Health, 12(4), 3853-3863, doi: 10.3390/ijerph120403853, 2015
- 10) Mizuno, K., Shinohara, N., Miyakoshi, J., Expression of Heat Shock Proteins in Human Fibroblast Cells under Magnetic Resonant Coupling Wireless Power Transfer. *Energies*, 8(10), 12020-12028 2015
- 11) Sakurai, T., Kiyokawa, T., Narita, E., Suzuki, Y., Taki, M., Miyakoshi, J., Analysis of gene expression in a human-derived glial cell line exposed to 2.45 GHz continuous radiofrequency electromagnetic fields. *J. Radiat Res* (Tokyo), 52(2):185-92. Epub. Feb 19, 2011
- 12) Sakurai, T., Narita, E., Suzuki, Y., Taki, M., Miyakoshi, J., Microarray Analysis of Human-derived Glial Cells Exposed to 2.45 GHz Microwave. *IMWS-IWPT*, 105-108, 2011
- 13) Narita, E., Sakurai, T., Suzuki, Y., Taki, M., Miyakoshi, J., Effects of Exposure to A High-Frequency Electromagnetic Field at 2.45 GHz on Neurite Outgrowth in PC12VG Cells. *IMWS-IWPT*, 215-218, 2011
- 14) Narita, E., Sakurai, T., Suzuki, Y., Taki, M., Miyakoshi, J., Influence of a high-frequency electromagnetic field at 2.45 GHz on cytokine productions in macrophage-like U937 cells. *IMWS-IWPT*, 123-126, 2012
- 15) Koyama, S., Narita, E., Suzuki, Y., Taki, M., Shinohara, N., Miyakoshi, J., Effect of a 2.45-GHz radiofrequency electromagnetic field on neutrophil chemotaxis and phagocytosis in differentiated human HL-60 cells, *J. Radiat. Res.*, doi: 10.1093/jrr/rru075, 2014
- 16) Koyama, S., Narita, E., Shinohara, N., Miyakoshi, J., Effect of an Intermediate-Frequency Magnetic Field of 23 kHz at 2 mT on Chemotaxis and Phagocytosis in Neutrophil-Like Differentiated Human HL-60 Cells. Int. J. Environ. Res. Public Health 2014, 11, 9649-9659; doi:10.3390/ijerph110909649 2014
- 17) Miyakoshi J., Cellular and Molecular Responses to Radio-Frequency Electromagnetic Fields. *Proceedings of the IEEE*. Vol. 101 (6); 1494-1502, June 2013

9. 付記:業績原著論文

- 1) Sakurai, T., Kiyokawa, T., Narita, E., Suzuki, Y., Taki, M., Miyakoshi, J., Analysis of gene expression in a human-derived glial cell line exposed to 2.45 GHz continuous radiofrequency electromagnetic fields., *J. Radiat Res* (Tokyo), 52(2):185-92. Epub Feb 19, 2011
- Sakurai, T., Narita, E., Suzuki, Y., Taki, M., Miyakoshi, J., Microarray Analysis of Human-derived Glial Cells Exposed to 2.45 GHz Microwave. IMWS-IWPT, 105-108, 2011
- 3) Narita, E., Sakurai, T., Suzuki, Y., Taki, M., Miyakoshi, J., Effects of Exposure to A High-Frequency Electromagnetic Field at 2.45 GHz on Neurite Outgrowth in PC12VG Cells. *IMWS-IWPT*, 215-218, 2011
- 4) Miyakoshi J., Electromagnetic fields and environmental health. An Environmental Journal for the Global Community, SANSAI, No. 6: 53-60, 2012
- 5) Sakurai, T., Narita, E., Shinohara, N., Miyakoshi. J., Intermediate frequency magnetic field at 23 kHz does not modify gene expression in human fetus-derived astroglia cells. *Bioelectromagnetics*. Dec; 33(8): 662-9, 2012
- 6) Narita, E., Sakurai, T., Suzuki, Y., Taki, M., Miyakoshi, J., Influence of a high-frequency electromagnetic field at 2.45 GHz on cytokine productions in macrophage-like U937 cells. *IMWS-IWPT*, 123-126, 2012
- 7) Sakurai, T., Narita, E., Shinohara, N., Miyakoshi, J., Alteration of gene expression by exposure to a magnetic field at 23 kHz is not detected in astroglia cells. *J Radiat Res.* Nov 1; 54(6), 1005-9, May 30 2013
- 8) Miyakoshi J., Cellular and Molecular Responses to Radio-Frequency Electromagnetic Fields. *Proceedings of the IEEE.* Vol. 101 (6); 1494-1502, June 2013
- 9) Koyama, S., Narita, E., Shinohara, N., Miyakoshi, J., Effect of an Intermediate-Frequency Magnetic Field of 23 kHz at 2 mT on Chemotaxis and Phagocytosis in Neutrophil-Like Differentiated Human HL-60 Cells. *Int. J. Environ. Res. Public Health 2014*, 11, 9649-9659; doi:10.3390/ijerph110909649 2014
- 10) Koyama, S., Narita, E., Suzuki, Y., Taki, M., Shinohara, N., Miyakoshi, J., Effect of a 2.45-GHz radiofrequency electromagnetic field on neutrophil chemotaxis and phagocytosis in differentiated human HL-60 cells, *J. Radiat. Res.*, doi: 10.1093/jrr/rru075, 2014

- 11) Mizuno, K., Miyakoshi, J., Shinohara, N., In vitro exposure system using magnetic resonant coupling wireless power transfer, *Wireless Power Transfer*, 1, 97-107, 2014
- 12) Mizuno, K., Shinohara, N., Miyakoshi, J., In vitro evaluation of genotoxic effects under magnetic resonant coupling wireless power transfer, *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 12(4), 3853-3863, doi: 10.3390/ijerph120403853, 2015
- 13) Mizuno, K., Shinohara, N., Miyakoshi, J., Expression of Heat Shock Proteins in Human Fibroblast Cells under Magnetic Resonant Coupling Wireless Power Transfer. *Energies*, 8(10), 12020-12028, 2015

著書・総説

- 1) 宮越順二, 篠原直毅(監修),電磁界電磁波防護指針と生体影響,ワイヤレス送電技術の最前線 エレクトロニクスシリーズ, pp107-118,シーエムシー出版, 2011
- 2) 宮越順二, 携帯電話の電波に発がん性? Newton Vol. 9, p125, 2011
- 3) 宮越順二,白井智之(和訳):ケータイ電波の発がん性〜WHOが「疑いあり」とした内幕〜、Meike Mevissen, Christopher Portier (著者)、*日経エレクトロニクス*、pp87-92, 2012
- 4) IARC Working Group (Miyakoshi J. and 29 members): Non-Ionizing Radiation, Part 2: Radiofrequency Electromagnetic Fields. Vol. 102, IARC Monographs on The Evaluation of Carcinogenic Risks to Humans, 2013
- 5) 小山眞, 宮越順二: 高周波電磁界による細胞応答研究の動向、Journal of the National Institute of Public Health, 64 巻、6 号、pp547-554、12 月 2015

学会発表

- 1) Sakurai, T., Narita, E., Suzuki, Y., Taki, M., Miyakoshi, J., Microarray Analysis of Human-derived Glial Cells Exposed to 2.45 GHz Microwave, IMWS-IWPT 2011, Obaku Plaza, Uji Campus, Kyoto University, Uji, Kyoto, Japan, May 12-13, 2011
- 2) Narita, E., Sakurai, T., Suzuki, Y., Taki, M., Miyakoshi, J., Effects of Exposure to A High-Frequency Electromagnetic Field at 2.45 GHz on Neurite Outgrowth in PC12VG Cells. *IMWS-IWPT 2011*, Obaku Plaza, Uji Campus, Kyoto University, Uji, Kyoto, Japan, May 12-13, 2011,
- 3) Narita, E., Sakurai, T., Suzuki, Y., Taki, M., Miyakoshi, J., Influence of A High-Frequency Electromagnetic Field at 2.45 GHz on Human Interleukin 1

- Beta and Interleukin 6 Productions in Macrophage-like U937 Cells. XXX URSI General Assembly and Scientific Symjposium of International Union of Radio Science, Istanbul, Turkey, 13-20 August 2011
- 4) Sakurai, T., Kiyokawa, T., Narita, E., Miyakoshi, J., Microarray Analysis of Human-Derived Cells Exposed to Intermediate Frequency Magnetic Fields Generated by An Induction Heating (IH) Cooktop. XXX URSI General Assembly and Scientific Symposium of International Union of Radio Science, Istanbul, Turkey, 13-20 August, 2011
- 5) Sakurai, T., Narita, E., Miyakoshi, J., Microarray analysis of human-derived glial cells exposed to intermediate frequency magnetic fields. *The Bioelectromagnetics Society 33rd Annual Meeting*, Halifax, Canada, 12-17 June, 2011
- 6) Narita, E., Sakurai, T., Suzuki, Y., Taki, M., Miyakoshi, J., Effects of exposure to a high-frequency electromagnetic field at 2.45 GHz on interleukin 1β and interleukin 6 production in macrophage-like U937 cells. The Bioelectromagnetics Society 33rd Annual Meeting, Halifax, Canada, 12-17 June, 2011
- 7) Narita, E., Sakurai, T., Suzuki, Y., Taki, M., Miyakoshi, J., Influence of a high-frequency electromagnetic field at 2.45 GHz on cytokine productions in macrophage-like U937 cells. *IMWS-IWPT 2012*, Avanti Kyoto Hall, Ryukoku University, Kyoto, Japan, May 10-11, 2012
- 8) Mizuno, K., Miyakoshi, J., Shinohara, N., Coil design and dosimetric analysis of a wireless energy transmission exposure system for in vitro study. *IMWS-IWPT 2012*, Avanti Kyoto Hall, Ryukoku University, Kyoto, Japan, May 10-11, 2012*
- 9) Narita, E., Sakurai, T., Suzuki, Y., Taki, M., Miyakoshi, J., Influence of an HFEMF at 2.45 GHz on migration potency in neutrophil-like differentiated from HL-60 cells. The Bioelectromagnetics Society 34th Annual Meeting, Brisbane, Australia, 17-22 June 2012
- 10) Miyakoshi, J., Narita, E., Sakurai, T., Shinohara, N., Effects of exposure to intermediate frequency magnetic fields on neurite outgrowth in PC12VG cells. The Bioelectromagnetics Society 34th Annual Meeting, Brisbane, Australia, 17-22 June 2012
- 11) Mizuno, K., Miyakoshi, J., Shinohara, N., Coil design and manufacture of in vitro exposure system for wireless power transfer using resonant coupling

- phenomenon. Asia-Pacific International Symposium and Exhibition on Electromagnetic Compatibility, Taipei, Taiwan, 20-23 may 2013
- 12) Miyakoshi, J., Narita, E., Shinohara, N., Influence of exposure to IF magnetic fields on migration potency in neutrophil-like differentiated HL-60 Cells.

 Joint Meeting of The Bioelectromagnetics Society and the European BioElectromagnetics Association, Thessaloniki, Greece, 10-14 June 2013
- 13) Miyakoshi, J., Mizuno, K., Shinohara, N., Characteristics of new in vitro exposure system using resonant coupling wireless power transfer. *Joint Meeting of The Bioelectromagnetics Society and the European BioElectromagnetics Association*, Thessaloniki, Greece, 10-14 June 2013
- 14) Narita, E., Suzuki, Y., Taki, M., Miyakoshi, J., HFEMF at 2.45 GHz does not affect T cell dependent antibody responses in mouse hybridoma cell line (SRBC-P20-13-13). *Joint Meeting of The Bioelectromagnetics Society and the European BioElectromagnetics Association*, Thessaloniki, Greece, 10-14 June 2013
- 15) 小山真、成田英二郎、椎名健雄、鈴木敬久、多氣昌生、宮越順二:ヒト眼部由来 細胞におけるミリ波(60GHz)による小核形成への影響。日本放射線影響学会、第56 回大会、青森市,10月18日~20日、2013年
- 16) 宮越順二:携帯電話の電波の健康影響 ~発がん性評価について~。第8回日本磁 気科学会年会、仙台市,11月21日、2013年
- 17) Mizuno, K., Narita, E., Koyama, S., Shinohara, N., Mitani, T., Shinohara, N., Suzuki, Y., Taki, M., Miyakoshi, J., New in vitro wireless power transfer exposure system and effects of radio-frequency fields on T cell dependent antibody responses (TDAR), *International Symposium on Frontier Researches in Sustainable Humanosphere 2013*, November 27-28, 2013.
- 18) Miyakoshi, J., Cellular Responses to Radiofrequency Electromagnetic Fields.

 *Thailand-Japan Microwave 2013 (TJMW2013), Bangkok, Thailand, December 2-4, 2013
- 19) 水野公平、宮越順二、篠原真毅:細胞研究のための新たな共鳴結合無線電力伝送 システム、電子情報通信学会、佐賀市、1月30日、31日、2014年
- 20) 宮越 順二、水野 公平、成田英二郎、小山真、三谷友彦、篠原真毅: ワイヤレス 共鳴送電の生体影響評価 ~ばく露装置と細胞研究~、*電子情報通信学会*、新潟 市、3月19日~22日、2014年
- 21) Koyama, S., Narita, E., Suzuki, Y., Shiina, T., Taki, M., Shinohara, N., Miyakoshi J., Effects of Long-Term Exposure to 60 GHz Millimeter-Wave

- on Genotoxicities in Cells Derived from Human Eye. *URSI GASS 2014*, Beijing, China, 16-23August, 2014
- 22) 小山眞,成田英二郎,清水陽子,椎名健雄,鈴木敬久,多氣昌生,宮越順二; ヒト眼部由来細胞におけるミリ波(60GHz)によるDNA切断およびストレス タンパク質への影響. 日本放射線影響学会第57回大会、鹿児島、10月、2014年
- 23) Koyama, S., Cellular and Molecular Responses to Long-term Exposure to Radiofrequency Radiation (2.45-GHz Microwaves, Millimeter Waves and Terahertz Waves). The 15th International Congress of Radiation Research (ICRR 2015), Kyoto, Japan, 25-29 May, 2015
- 24) Koyama, S., Narita, E., Shimizu, Y., Shinohara, N., Miyakoshi, J., Effect of low-dose radiation on micronucleus formation in human newborn, infant, embryo and cervical cancer cells. *The 15th International Congress of Radiation Research (ICRR 2015)*, Kyoto, Japan, 25-29 May, 2015
- 25) Koyama, S., Narita, E., Shimizu, Y., Shiina, T., Taki, M., Shinohara, N., Miyakoshi, J., Effects of long-term exposure to 0.12 THz in HCE-T cells derived from human eye. *Joint Meeting of The Bioelectromagnetics Society and the European BioElectromagnetics Association,* Asilomar Conference Center California, USA, 14-19 June 2015

5. 千年居住圏

1)「アジア地域に建つ木造建築物のモニタリングによる長期構造性能評価」

五十田 博京都大学生存圏研究所

1. 研究組織

代表者氏名:五十田 博(京都大学生存圈研究所)

共同研究者:北守顕久(京都大学生存圈研究所)

森 拓郎 (京都大学生存圈研究所)

田守伸一郎 (信州大学工学部)

楠 浩一(東京大学地震研究所)

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

千年居住圈

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

長期にわたり安心で安全な建物を維持するためには、外乱に対する状態を常時監視し、必要に応じ適切な対処を実施することが重要となる。本研究は、資源循環型材料の代表である木材を用いた建物を対象に加速度計による長期振動計測を実施し、構造性能を評価するヘルスモニタリングシステムを構築し、実証実験をおこなうものである。本年度は昨年度来構築してきたヘルスモニタリングシステムが実際に適用可能なのかを過去に実施した振動台実験に対して適用し確認する。また、長期計測に先駆けて、アジア地域を対象とした木造建築物の構造・構法調査事例について報告する。

4. 研究の背景と目的

本課題では、アジア地域に建つ木造建築物を対象に、環境振動、交通振動、地震応答等の長期計測を通じて、木造建築物の構造性能に係わる調査を実施し、長期にわたり健全な建築構法の開発に資するデータの蓄積を図る。長期にわたり安心で安全な建物を維持するためには、外乱に対する状態を常時監視し、必要に応じ適切な対処を実施することが重要となる。外乱としては日常的な振動に加えて、予期しない地震動など様々なものがある。加速度応答などの日常的な振動計測と地震時の最大変形値の記録

によって建物の状態変化の監視が可能であり、計測方法別の閾値と建物の損傷を関連付けられれば、監視のみにより損傷の把握、そして、その後の適切な対処に進む判断が可能となる。そこで、本研究では計測方法や閾値と損傷状況を関連づける要素技術を開発するとともに、計測手法を含めた評価技術の体系を構築する。なお、監視方法については、建物の状態変化を把握するに十分と考えられる振動計とデータ発信機能をすでに有するスマートフォン等の汎用機器の利用を視野に入れながら進める。図 1 には個別建物に対する損傷検知に関する概要と主要な研究項目を整理して示した。最終的には個々の建物の長期的な安全安心に着目するばかりでなく、多くのデータを集積し、群(圏)としての建物の状態変化を掌握できるシステムの構築を目指す。

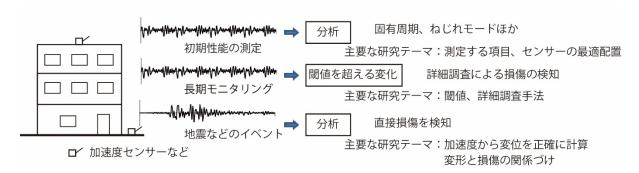


図1:個別建物のモニタリングと主要な研究テーマ

5. 研究の結果および考察

5.1 ヘルスモニタリングシステムの演算手法の確認

本節では、過去に行われた1 階建て木造建物、2 階建て木造建物の振動台実験を対象とし、加速度記録をウェーブレット変換によって特定の周期に分け、2 階積分することで建物の層間変位を求める。そして、変位計で計測された層間変位と比較により、ウェーブレット変換を用いて層間変位を推定することを目的とする。

(1) ウェーブレット層間変位の概要

ウェーブレット(Wavelet)は小さな波である。ウェーブレット変換は、特定のウェーブレットをマザーウェーブレットとし、それを単位として信号を分解するものである。式(1)のように、N 個のデータを持つある信号 f_0 (x)はウェーブレット変換により特定の周期帯に分解される。

$$f_0(x) = g_1(x) + g_2(x) + \dots + g_n(x) + f_n(x)$$
(1)

この時、nは

$$n = \log_2 N \tag{2}$$

となる。

ウェーブレット変換で分解された波の成分をランクという。そのため、式(2)に示すようにランク数はデータ数に依存する。データの時間刻みが Δ_t のとき、iランクの g_i のナイキスト周波数 Δ_i は

$$\Delta_i = \frac{1}{2\Delta_t} \times 2^i \tag{3}$$

で示される。ナイキスト周期は

$$T_i = 2\Delta_t \times 2^i \tag{4}$$

となる。ナイキスト周期とランクの関係を表 1 に示した。本研究で扱うデータは、0.005s 刻みと 0.01s 刻みのため、その 2 つに時間刻みについて表記した。伝達関数のピークを主要ランクとした。

ランク 1 2 3 4 7 9 6 8 dt = 0.005s0.02 0.040.08 0.32 0.16 0.641.28 2.56 5.12 0.08 0.16 dt = 0.01s0.04 0.32 0.64 1.28 2,56 5.12 10.24

表 1: ランクと時間刻み(dt)ごとのナイキスト周期

(2) ウェーブレット層間変位の概要

ウェーブレットを使用して得られる層間変位(以下、ウェーブレット層間変位)を求める。建物上部と下部の加速度記録を、ウェーブレット変換によってそれぞれランク毎に分解する。その後、ランク毎に2階積分を行ない、得られた変位のうち建物上部の変位から下部の変位を引くことでウェーブレット層間変位を計算する。また、主要ランクとその他のランクを足し合わせたウェーブレット層間変位も求めた。

(3) 対象振動台実験

対象とした振動台実験の中で、事例として 1 階建ておよび 2 階建て試験体それぞれ 1 棟ずつ取り上げ説明をする。1 階建ては、制振壁の平屋箱型試験体とした。試験体寸法は 2,730 mm×2,730 mmで、階高は 2,762.5 mmである。厚さ 9 mmの構造用合板 4P と制振壁 1P を持ち、N50 釘、ピッチ 150 mmで打った。2 階建ては、木造軸組構法住宅で試験体寸法は 3,640mm×5,460mm、最高高さ 6,660 mmである。屋根を和瓦葺き、耐力壁として外壁に厚さ 9 mmの火山性ガラス質複層板を、間仕切壁に厚さ 12.5 mmのものを使用した。1 階建て試験体、2 階建て試験体の加振はともに 1 軸加振とした。加振スケジュールを表 2 に示す。

表 2:加振スケジュール

(a)1 階建て入力波

加振	1	2	3	4	5	6	7	8
地震波	BS	SL	JMA 神戸		BSL	JMA ?	神戸	
スケール	20%	100%	100%	100%	100%	50%	100%	100%

(b) 2階建て入力波

加振	1	2	3	4	5	
地震波	JMA 神戸					
スケール	25%	50%	60%	70%	70%	

(3)解析結果

図2に2階建て試験体の2F部分の荷重-層間変位のグラフを図示する。伝達関数から主要ランクは5とされる。主要ランクのみの場合、ウェーブレット層間変位は計測層間変位と対応していない。しかし、主要ランクとそのほかのランクを足した場合に、対応が見られた。このようにランクの足し合わせにより良好な結果が得られる一方で、ランクの足し合わせでも追跡ができないものがあった。ランニングスペクトルによりランク判断し、時間を区切って解析することにより追跡が可能か、現在検討中である。

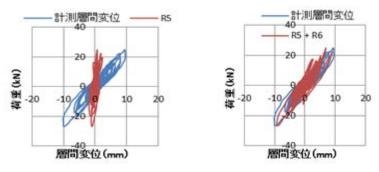


図 2:2 階建て 2F(JMA 神戸 50%)

5.2 アジア地域の木造建築物の構造・構法調査事例

本節では伝統技法からの知見を現代に生かす千年居住圏の構築の試みの中で、アジア各地の伝統構法建築物の技術に焦点を当て、実地調査による構法の詳細調査やその後日本で実施した要素実験、構造解析の結果の概要について紹介する。具体的には、(1)中国・侗族の伝統構法建築物調査、(2)台湾型の組み物を有する木造架構の耐震性能調査、(3)インドネシア・北スマトラ地域の伝統構法建築物調査の3例であり、これらの取り組みは海外研究期間との共同研究として実施した。各項目の調査期間、共同研究先を表3に示す。

表 3: 各調査研究テーマの概要

調査概要	調査実施年度	共同研究先		
中国・侗族の伝統構法建築物調査	2013	中国南京林業大学・闕准教授		
台湾型の組み物を有する木造架構の	2015	台湾国立成功大学・徐教授		
耐震性能調査	2015			
インドネシア・北スマトラ地域の伝	2015	インドネシアイスラム大学・		
統構法建築物調査	2015	Yulianto Prihatmaji 講師		

(1) 中国・侗族の伝統構法建築物調査事例

中国の少数民族の一つである侗族は独特な木造架構技術を有しており、鼓楼建築 や木橋などが特に著名である。本課題では、鼓楼建築の詳細な実地調査を行い、その構法的な特徴を明らかとし、また常時微動計測によって構造的な振動特性値を計測することで、建物の構造的特徴について分析を行った。

構法調査により、鼓楼建築の主要架構部は図 3 に示す様な形態を示すことがわかった。また、加工技術的には以下の様な独特な方法によることが明らかとなり、不整形の部材を用いながら剛性の高い構造を実現させていることが分かった。

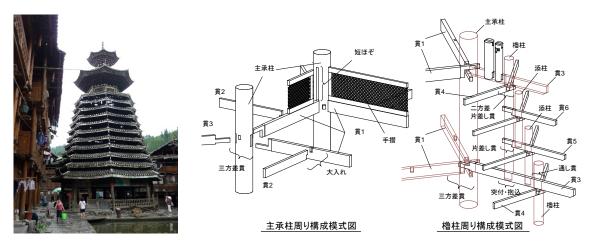


図3:鼓楼建築の構造の例(増衝鼓楼、1672年創建、高25m、11層)

①柱と貫の仕口は事前に加工を施され、仕口内部で相互に隙間なく交差させて組み上げる。その場合楔を利用した貫の締め固めをおこなわないので、仕口部の事前加工には精度が要求される。また仕口の加工は手斧やのみといった伝統的な工具を用いる。②主要な柱は円形状の通し柱である。この通し柱の元反りは修正しないし、断面を真円に加工しない。さらに柱の元口と末口を同一断面に加工しないので、柱の中心線は柱断面の中心ではない。このことは、貫が貫通する柱のすべての位置で柱断面の大きさが異なり、柱の中心と断面の中心はずれている事を意味する。③このような条件で精度良い加工を実現するために、チエンと呼ばれる竹尺に柱穴の寸法情報を写し取り、

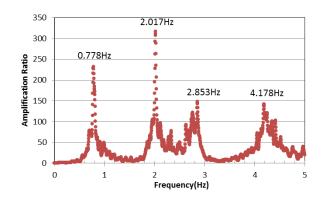
貫材の加工異に使用する技法を用いる。④さらに侗族は建築の組み上げ方で、ハップと呼ばれる建物を揺すりながら徐々に部材を組み建てていく独特な構築法をあみだし、組み上げた時点で部材同士の嵌合力をもたせる。そして貫に滑り勾配を持たせて仕口内に入りやすく、かつ嵌め込み後に部材同士が締め付け合うようにする。

鼓楼建築の常時微動測定により、固有振動数及び減衰定数を同定した。対象とした 鼓楼建築は、増衝鼓楼(1672年創建、高25m、11層)を含む三例である。

測定には 3 成分型サーボ型加速度計 (SF-3000L, Si-Flex 社製)を使用し、計測システムには RS-MAX24 (ALNIC 社製)を使用した。計測は鼓楼基部と頂部をそれぞれ 6 成分同時で、サンプリングを 200Hz として 10 分間ずつ計測した。

各地点での応答加速度から固有振動数、固有モードの同定を行った。加速度の時刻歴データを 50%オーバーラップで 32768 点ずつの小サンプルに分割し高速フーリエ変換した結果をアンサンブル平均で重ね合わせた。なおスペクトルの平滑化には Parzenウィンドウのバンド幅 0.05Hz を用いた。また、各振動モードでの減衰定数を同定した。ピーク振動数の前後 1.5Hz をバンド幅とするバンドパスフィルターを通した波形に RD 法を適用し自由振動波形を抽出し、開始 5 周期分の自由振動波形から最小二乗法による近似曲線を作成し減衰定数を同定した。図 4 に鼓楼の振動数一応答倍率曲線と RD 法自由振動波形の一例を示す。

測定の結果、鼓楼の一次固有振動数は 0.473Hz~1.031Hz、減衰定数は 2.36%~4.35%であった。 塔建築としては比較的剛性の高い性状と言えるが、通し柱を用いる侗族の 鼓楼建築特有の性質であると考えられる。また、高精度での加工を可能とする接合技術により、比較的大きな仕口剛性を持つ様子を確認した。



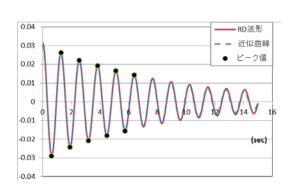


図 4: 増衝鼓楼 Y 方向振動数 - 応答倍率曲線(左)と RD 法自由振動波形(右)の例

(2) 台湾型および日本型の組み物を有する木造架構の耐震性能調査

我が国と同様に地震頻発国である台湾には多くの伝統的木造寺院建築物が残されている(図 5 左)。これら建築物の上部構造には多数の部材からなる組み物架構が用いられている。柱と一体となった組み物を有する架構の地震応答特性を明らかとするため、

木質材料実験棟内で静的水平載荷実験を実施した。台湾産コウヨウザン製の柱(径300mm)の上部に大斗を設置し、一方向に貫材を挿した架構を試験体とした。大斗を水平鋼製桁と結合し、桁端部、貫材端部をピン接合で鋼製柱で支持して架構を形成し(図5右)、大斗の上部からプーリーシステムを用いて一定の鉛直力を与えた状態で、鋼製桁を介して正負繰り返し水平載荷を行った。台湾式、比較のための日本式、頭貫式と、貫の形式の異なる3条件の試験体を設定した。試験体の柱の高さ、鉛直力の大きさをパラメータとした。図6に試験結果の一例として、頭貫試験体の荷重-変形関係を示す。柱復元力特性値に関しては、既往の力学モデルに基づく計算値と比較を行った。その結果、柱復元力特性単体としては理論値と良い精度で推定することが可能であったが、柱頭の鋼製桁の抵抗成分および頭貫の抵抗成分の寄与が大きいことが明らかとなった。





図 5:(左)台湾の伝統木造架構の例、(右)組み物を有する柱梁架構の水平加力試験体

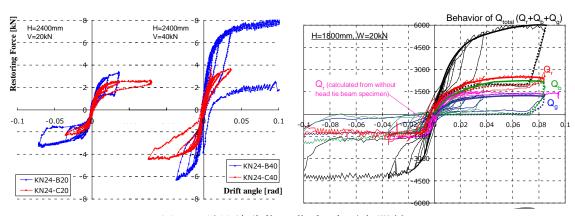


図 6:頭貫試験体の荷重-変形角関係:

貫の有無、鉛直力の大きさの影響比較(左)とその抵抗成分要素の分解(右)

(3) インドネシア・北スマトラ地域の伝統構法建築物調査事例

北スマトラ地域の Toba 族、Simalungun 族の建築構法の現地調査を実施し、また生存研においてその構造要素の加力試験を実施した。調査地域はスマトラ島北部の toba 湖

周辺であり、Batak 族に属するいくつかの少数民族グループが固有の建築様式を有している。2004年にはスマトラ島沖地震を経験するなど、地震履歴の多い地域である。

Toba 属は貫構造形式の高床式の住居に住む(図 7 左)。1 戸に複数の家族が同居するため、15×10m 程度の大空間の建築である。小屋まで達する数本の通し柱を持つが、床下において通し柱を含む多数の東柱を貫部材を貫通させており、床下を固めることで柱脚ラーメン構造を形成していることが特徴である。なお、使用する木材は非常に密度の高い現地の広葉樹種で、これを貫材として使用する事で広葉樹の高い圧縮性能により、床下架構に高い剛性と曲げ耐力を付与するのに有効に働いていると考えられる。

Simalungun族もBatak族の位置グループであり、その建築様式は非常に独特である。すなわち、床下に丸太を井桁状に多段に組んだ構造を有し、井桁の交点には貫通穴を設け、そこに小屋まで達する通し柱を差し込むことで柱を支持する構造としている(図7右)。柱は直接地盤に鉛直力を伝達することなく、上部構造の鉛直力は井桁組の柱最上部にかかり、最終的に井桁最下部を礎石で直接支持することで伝達される。すなわち、井桁の丸太間には上部架構の自重が作用している。そのため、丸太形状であってもある程度の傾斜復元力と摩擦抵抗力が作用しているものと推察される。

Toba 族と Simalungun 族の建物に共通する特徴は、高床式構造物で、床下部に柱脚ラーメンを形成する仕組みを有する点である。高床構造は本来、通風や地盤からの湿気や害虫の遮断、水害対策等の環境的目的によって成立するものであるが、Batak の建築様式では同時に構造的に大きな意味を持つものとなっている。他地域において床下空間には家畜小屋を設けたり、何らかの用途を付与する空間とすることがあるが、Batakの様式においては交差する部材が多く、空間としての使用は制限される。むしろ、外部の人間が床下に容易に接近することを防ぐ囲いとしての役割が大きいと考えられる。

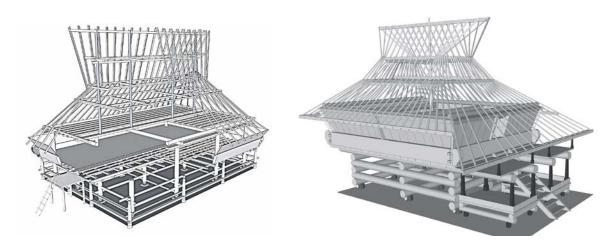


図 7:(左)Toba 族の住居、(右)Simalungun 族の住居

Simalungun 族の床下架構について、生存研木質材料実験棟で実大モデルの静的要素加力試験を実施した。アカシアマンギウム集成材を用いて作成した床下丸太組架構の

一部を模して試験体(図8左)を作成し、プーリーシステムを用いて一定の鉛直荷重作用かで正負繰り返し水平力を与えた。寸法条件を変えて2条件作成し、柱の有無、鉛直荷重の大きさをパラメータとして試験を実施した。結果の一例を図8右に示す。柱が無い場合、傾斜復元力特性に準じる履歴性状を示し、柱がある場合、鉛直力が大きい条件ほど初期剛性・耐力が高い結果を示した。これにより、上部架構の鉛直力が作用する柱脚丸太の井桁組に通し柱を差し込むことで柱脚ラーメンを形成するSimalungun族の建築形態の力学的合理性が明らかとなった。



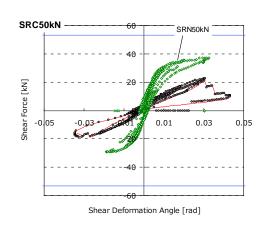


図8:(左) Simalungun 族柱脚架構を模した試験体、(右)水平荷重-変形角関係

6. 今後の展開

以上、地震時のヘルスモニタリングシステムの適用事例とその利用可能性を示すとともに、対象建物であるアジア地域に立つ固有の建築様式に対する構造実験等について述べた。ヘルスモニタリングについては、振動特性によっては単純なウェーブレット変換では良好に変形が追跡できない場合があり、追跡精度を向上させるため今後検討を深める予定である。建物の固有の抵抗性能についてはすべての要素の耐力性状が確認されたものではないため、今後追加実験を予定している。

7. 引用文献

- 1) 服部勇樹,楠浩一,川村学,山下美帆,日向大樹,田才晃:リアルタイム残余耐震性能 判定装置の開発 その16 Wavelet変換を用いた実建物の1次モード成分抽出方 日本建築学会大会学術講演梗概集 2012年
- 2) 楠浩一,日向大樹,服部勇樹,古川直矢,田才晃:リアルタイム残余耐震性能判定装置の開発 その26 鉄骨18層建物を用いた振動台実験への適用 日本建築学会大会学術講演梗概集 2014年
- 3) Kawai N.: Column Rocking Resistance in Japanese Traditional Timber Buildings. In: Proceedings of the International Engineering Conference, Vol. 1:186-190, 1996.
- 4) Kitamori A, Jung K, Hassel I, Chang W-S, Komatsu K, Suzuki Y.: Mechanical analysis of lateral loading behavior on Japanese traditional frame structure depending on the vertical load. In: World conference on timber

engineering 2010.

8. 付記

本研究に関連し、以下の発表をおこなった。

1)田守伸一郎、五十田博、楠浩一:ウェーブレット変換を用いた層間変位の推定-1階建ておよび2階建ての木造建物を対象とした場合-;日本建築学会北陸支部研究報告集 第59号 2016年7月

5. 千年居住圏

2) 「アジア地域の植物バイオマスを活用した循環型材料の開発 ~ タンニンとスクロースを接着剤とした木質材料開発 ~ 」

梅村研二、金山公三 京都大学生存圏研究所

1. 研究組織

代表者氏名:梅村研二(京都大学生存圈研究所) 共同研究者:金山公三(京都大学生存圈研究所)

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

千年居住圈

ミッション4:循環型資源・材料開発

3. 研究概要

縮合型タンニンは比較的反応性が高く、タンニン系接着剤として古くから研究が行われてきた。しかしこれまでの手法では、アルデヒド化合物や合成樹脂を併用して接着剤化することが多く、非化石資源由来の天然物のみによる接着剤の調製は行われていない。

我々は、縮合型タンニンとスクロースの混合物が接着剤として利用できる可能性を新たに見出し、木質材料への適応性について研究を進めている。そこで本研究では、縮合型タンニンとスクロースを接着成分として木質成形体やパーティクルボードの作製を試みた。木質成形体の作製ではアカシアマンギウム木粉をエレメントとし、タンニンとスクロースの混合比や木粉への混合方法が木質成形体の物性に及ぼす影響を明らかにした。また、タンニン・スクロース接着剤にクエン酸を少量添加すると、木質成形体の作製において熱圧温度の低下や熱圧時間の短縮に有効であることを示すとともに、その硬化特性についても検討した。次に、より汎用性の高い木質材料への応用を目指しパーティクルボードの作製を行い、熱圧温度や熱圧時間がボード物性に及ぼす影響について明らかにした。

4. 研究の背景と目的

昨今の木質材料の製造では、化石資源由来の合成系接着剤を用いて木材エレメント 同士を接着成形している。しかし、地球環境問題や化石資源の有限性を考えると、今後 は非化石資源由来の天然物を用いた接着剤の使用が望まれている。天然系接着剤は、 多糖類系、タンパク系、フェノール系など様々な種類が開発されてきたが、耐水性が低く、また化石資源由来の化合物による補完が必要な場合が多い。そのため、今後の天然系接着剤の開発では耐水性を含めた接着性能の向上や化石資源への依存の低減が重要になると考えられる。

タンニン系接着剤は、縮合型タンニンを原料として調製され、比較的優れた接着性能を示すことが知られている。以前はホルムアルデヒドとの反応によってフェノール樹脂の代替として用いる研究が盛んに行われてきた。しかし、ホルムアルデヒドの毒性問題が指摘されてからは非ホルムアルデヒドとの反応による接着剤化に関する研究へと移行し、より安全性に配慮した検討が行われている。このような状況のなかで、我々はタンニンとスクロースの混合物が木材用接着剤として利用できる可能性があることを新たに見出した。しかし、その接着性能や硬化特性などは全く知られておらず、詳細な検討が求められる。そこで本研究では、この天然接着剤を用いて木質成形体やパーティクルボードを作製し、作製条件が物性に及ぼす影響について調べるとともに、硬化挙動を検討することによって接着剤としての性能を明らかにした。

5. 研究の結果および考察

5.1 タンニンとスクロースを接着成分とした木質成形体の物性

木質成形体の作製は、まず図 1 の実験 1 ように行った。すなわち、原料は東南アジアで植林されているアカシアマンギウム材、スクロース(ナカライテスク(株))、ワットルタンニン(富士化学工業(株))をそれぞれ 60 メッシュパスに粉末化し、60℃で減圧乾燥させた。スクロースとタンニンは混合比が 100:0~0:100 の範囲で 5 水準とし、予め混合粉末を調製後、木粉への添加率が 40wt%となるように加え、振盪混合した。この混合粉末をダンベル型金型(JIS K 7139 多目的試験片 A型)に充填後、ホットプレスにて熱圧した。熱圧条件は、200℃、10 分、4MPa とした。得られた成形体は、常態

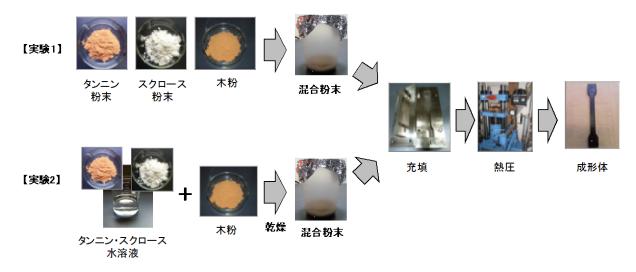


図1. 木質成形体の作製方法

曲げ試験、湿潤曲げ試験、煮沸繰り返し試験を行った。得られた成形体の両端持ち手部分をカットし、短冊部分は曲げ試験用試験片、両端部分は煮沸繰り返し試験用試験片とした。曲げ試験では1条件につき 3 体の試験片を用い、寸法 $80 \times 10 \times 3 \sim 5 \text{mm}$ 、クロスヘッドスピード 5 mm/min で 3 点曲げ試験を行った。湿潤曲げ試験は、沸騰水中に 2時間浸漬後、常温水中に 1 時間浸漬した後に常態試験と同様の条件で試験した。煮沸繰り返し試験は、寸法 $20 \times 20 \times 3 \sim 5 \text{mm}$ の試験片を沸騰水に 4 時間浸漬させ、一旦 60 ℃ で 20 時間乾燥し、再び沸騰水に 4 時間浸漬させた後、60 ℂで 15 時間減圧乾燥させ、各段階での重量変化率を求めた。ここでは 1 条件につき 6 体の試験片を供した。

これに加え、粉末混合では不均一な混合が懸念されたため、タンニンとスクロースをあらかじめ水に溶かし、その水溶液と木粉との混合を試みた(図 1 の実験 2)。作成条件は粉末混合の結果を基にタンニンとスクロースの混合比を 50:50、添加率を 40wt%、熱圧条件を 200°C、10 分、4MPa とした。作成した成形体は常態曲げ試験、煮沸繰り返し試験を行った。

その結果、粉末混合での常態曲げ試験においてはタンニンとスクロースの混合比が75:25、50:50 の場合で優れた結果を示し、MOR は約36MPa、MOE は約7.1GPaであった。湿潤曲げ試験においてはタンニンとスクロースの混合比が75:25、50:50 の場合で煮沸後でも試験片の形状を維持し、混合比50:50 の場合で MOR 約9.5MPa、MOE 約1.6GPaの最も優れた値を示した。煮沸繰り返し試験においても混合比が75:25 または50:50 の場合で形状の維持が確認され、混合比50:50 での試験後の重量減少率は約17%であった。この結果に基づいて、溶液混合で作成した成形体の物性を調べたところ、常態曲げ試験での MOR は約58MPa、MOE は約8.4GPaを示し、粉末混合の場合と比べ MOR で約60%、MOE で約18%の向上が見られた。また、煮沸繰り返し試験においても溶液混合した場合の重量減少率が約13%と粉末混合の場合と比べ耐水性の向上が確認された。以上、タンニンとスクロースを接着成分として木質成形体を作成した結果、タンニンとスクロースの混合比が50:50 において機械的特性や耐水性に優れた木質成形体が得られることが分かった。また、タンニンとスクロースの水溶液を用いた混合方法は、成形体の物性向上に有効であることが明らかとなった。

5.2 タンニンとスクロースを接着成分とした木質成形体に対するクエン酸の添加効果

既往の研究 $^{1)}$ によると、天然ポリカルボン酸のクエン酸が接着剤として利用できるため、ここではタンニン・スクロース接着剤に対するクエン酸の添加効果について検討した。5.1 の研究結果に基づいて、タンニン、スクロース、クエン酸はあらかじめ水に溶かして 60%水溶液とした。この水溶液を木粉に添加し、一旦乾燥させた。なお、タンニンとスクロースの混合比は 1:1 とし、タンニン・スクロースに対するクエン酸添加率を $0\sim50$ wt%とした。タンニン、スクロース、クエン酸の合計添加量は木粉に対

して 40wt% 一定とした。得られた乾燥木粉をダンベル型金型に投入し、熱圧温度 200℃、 熱圧時間 10 分、圧締圧力 4MPa で木質成形体を作成した。成形体から曲げ試験片(80 ×10×3~6mm)を切り出し、各条件3本の試験片を準備した。また、スパンは厚みの15 倍、クロスヘッドスピードは 5mm/min とした。クエン酸添加率が 2.5wt%の場合、MOR は 約 56MPa、MOE は約 7.9GPa を示した。クエン酸を添加しない場合との分散分析を行っ た結果、5%の有意水準で有意差は認められず、同等の性能であることが認められた。 しかし、更なる添加は曲げ性能の低下をもたらし、クエン酸添加率 50wt%での MOR は約 26MPa、MOE は 6.2GPa を示した。この MOR の値は、クエン酸を添加しない場合の約半分 であった。比強度を計算すると、添加率 Owt%の MOR は約 46MPa、2.5wt%で約 45MPa、 12.5wt%で約 25MPa、25wt%や 50wt%では約 20MPa となり、クエン酸添加率の増加に よる曲げ強度の低下が認められた。次に、煮沸繰り返し処理における木質成形体の重 量変化とクエン酸添加率との関係を調べた結果、クエン酸の添加割合に関わらず木質 成形体は形状を維持し、良好な耐水性を示した。処理後の重量低下率は、クエン酸添加 率 0wt%で13.7%であったのに対し、2.5wt%で10.7%、12.5wt%で12.8%、25wt%で14.4%、 50wt%で 20.1% であった。すなわち、クエン酸添加率 25wt%までは 0wt%と同程度の重量 低下率を示すことが分かった。クエン酸添加率 50wt%の成形体は、煮沸による重量増加 率が小さく、乾燥による低下率が大きかったことから、未反応のクエン酸が溶出した 可能性が考えられる。これらの結果から、クエン酸の添加率を 2.5wt%として、熱圧温 度を 180℃と 200℃とした場合の物性の違いについて検討した。MOR は 200℃で幾分高 い値を示したが、MOE はほぼ同等の値を示した。熱圧温度が 200℃の場合の曲げ性能は、 前述したようにクエン酸を加えない場合とほぼ同程度である。一方、熱圧温度が 180℃ の場合、MOR は約 47MPa、MOE は約 7.7GPa を示した。これまでの研究²⁾ において熱圧 温度 180℃でクエン酸を添加しない条件での成形体の MOR は約 33MPa、MOE は約 4.9GPa であったことから、クエン酸の添加によって 180℃での曲げ性能が著しく向上すること が明らかとなった。なお、比強度は熱圧温度 200℃で約 45MPa、180℃で約 39MPa であ った。

煮沸繰り返し試験の結果、200℃の成形体は前述のように沸騰水に対する抵抗性が認められたが、180℃での成形体は崩壊した。180℃での成形体については、クェン酸を添加しない場合でも同様に崩壊したことから、<math>クェン酸の有無に関わらず 180℃では十分な耐水性が得られないことが明らかとなった。したがって、クェン酸を添加することで <math>180℃の熱圧温度でも良好な曲げ性能を有する成形体が得られるが、耐水性の発現は得られないことが分かった。

次に、クエン酸の添加率を 2.5wt%、熱圧温度 200°C、圧締圧力 4MPa とし、熱圧時間と物性の関係について検討した。熱圧時間は 3、5、10 分の 3 条件とした。熱圧時間が 3 分と 5 分では、5 分の方が高い曲げ性能を示した。しかし、5 分と 10 分ではほぼ同等の性能を示し、分散分析による解析でも 5%の有意水準で有意差が認められなか

った。5 分での MOR は 51 MPa、MOE は 8.0 GPa であり、既出のクエン酸を添加しない同条件での成形体は MOR37 MPa、MOE 6.8 GPa であったことから、クエン酸を添加することで MOR は約 38%、MOE は約 18%の増加が確認された。すなわち、クエン酸の添加は熱圧時間の短縮に有効であることが示唆された。また比強度を計算すると、熱圧時間 3 分で MOR が約 35 MPa、5 分で約 42 MPa、10 分で約 45 MPa となった。

煮沸繰り返し試験における重量変化を観察した結果、熱圧時間が 3 分の成形体は処理中に崩壊し、低い耐水性を示した。熱圧時間が 5、10 分の成形体は煮沸後も形状を維持し、沸騰水に対する良好な耐水性が認められた。これまでの研究 2) でクエン酸を添加しない成形体の場合、7 分以下の熱圧時間では耐水性が得られなかったことを考えると、クエン酸の添加によって短い熱圧時間で耐水性が発現したと考えられる。処理後の重量減少率は、熱圧時間 5 分で約 20%、10 分で約 10%の値を示し、熱圧時間が長くなると、耐水性が向上することが分かった。

5.3 クエン酸添加がタンニン・スクロース接着剤へ及ぼす影響

5.2 ではクエン酸の少量添加が熱圧温度の低下や熱圧時間の短縮に有効であること を示した。そこで、ここではクエン酸の少量添加が接着剤の硬化挙動に及ぼす影響に ついて検討した。クエン酸の添加効果を熱処理硬化物の熱水不溶化率より検討した。 これまでの研究結果に基づいてタンニンとスクロース(タンニン:スクロース比 1:1) にクエン酸を 2.5wt%添加した水溶液を 80℃で乾燥させ、さらに 60℃で減圧乾燥後、60 メッシュパスに粉末化したものを試料として用いた。 これを 180、200、220℃のオーブ ンで最大 60 分間熱処理し、得られた硬化物を沸騰水中で 4 時間処理することによって 不溶化率を算出した。また、タンニンのみやスクロースのみ、タンニン・スクロースの みの場合についても同様の方法により測定した。その結果、タンニンのみの場合、いず れの加熱温度でも加熱時間 10 分では低い不溶化を示したが、220℃で 20 分加熱したも のは 90%以上の値を示した。スクロースのみの場合では、180 \mathbb{C} や 200 \mathbb{C} では加熱時間 に関わらず不溶化を示さず、220℃で 40 分以上加熱すると不溶化を示した。タンニン・ スクロースにクエン酸を添加しない場合、180℃で 20 分加熱しても 10%程度の不溶化 率しか示さず、短時間で硬化させるためには 200℃以上の温度が必要であった。一方、 クエン酸を添加すると加熱温度に関わらず 10 分で 50%以上の不溶化率を示し、加熱 温度が高いほど高い不溶化率を示した。加熱時間が 20 分以上になると、いずれの加熱 温度でも不溶化率はほぼ一定の値を示し、各加熱温度での硬化が完了していることが 示唆された。加熱温度が 220℃の場合は 90%以上の値を示した。これらの結果から、 クエン酸を添加すると短時間で硬化が進行し、特に 180℃では著しい効果が認められ た。これは、既出の木質成形体の物性と熱圧温度との関係を支持する結果となった。

次に、DSCによるクエン酸添加の有無に対する挙動変化を観察した。測定は、昇温 速度 10/min で室温から 400℃の範囲を窒素雰囲気下で行った。クエン酸を添加しない 場合、200℃付近に吸熱ピークが見られ、スクロースの融解やタンニンとスクロースの反応が起こっていると考えられた。一方、クエン酸を添加した場合もほぼ同様の変化を示し、200℃付近にピークが観察された。クエン酸添加の有無による最大ピーク温度は、それぞれ 198℃と 201℃であり、クエン酸の添加によって若干低温側にシフトした。また、ピーク面積はクエン酸を添加した方が幾分小さく、エンタルピー変化が小さいことが認められた。同様の測定条件でTGAによるクエン酸添加の影響を観察したところ、クエン酸を添加しない場合、200℃付近で大きな重量低下を示し、300℃付近でも小さな重量低下が認められた。クエン酸を添加した場合にも同様の温度域で変化が観察されたが、200℃付近での重量低下はクエン酸を加えない場合に比べると小さくなった。DTGによるピーク温度は、クエン酸の添加によって 196℃から 190℃へと幾分低温側にシフトすることが分かった。また、400℃での重量低下率は、クエン酸の添加によって 41%から 36%へ減少し、熱的な安定性が若干向上することが分かった。これら熱分析の結果から、クエン酸添加によって熱に対する挙動が若干低温側にシフトするとともに、熱的安定性が向上することが分かった。これは、硬化促進作用を示唆していると考えられるが、詳細については、更なる検討が必要である。

200 \mathbb{C} の温度で 0、10、20、60 分間加熱処理した硬化物の熱的性質をTGAおよびDSCで測定した結果、クエン酸の添加の有無に関わらず、加熱時間が長くなるにつれて 200 \mathbb{C} 付近の変化が小さくなることが確認された。これは、加熱時間とともに接着剤の硬化が進行していることを示している。クエン酸を添加した場合には、より短時間で 200 \mathbb{C} 付近の変化が小さくなる傾向が認められた。すなわち、ここでもクエン酸の添加によって短時間で硬化が進んでいることが示唆された。

所定時間加熱処理した硬化物を沸騰水に浸漬し、溶け残った不溶物について FT-IR 測定した結果、クエン酸添加の有無に関わらず、1700cm⁻¹付近にピークが確認され、カルボニル基の生成が示唆された。また、1070 cm⁻¹付近にもピークが確認された。1700cm⁻¹付近のピークはエステル結合またはカルボキシル基に由来すると考えられ、1070cm⁻¹付近のピークはエーテル結合に由来すると考えられる。しかしながら、クエン酸の添加の有無による顕著なピークの相違は認められなかった。これは、硬化物の化学構造が類似していることを示唆している。

5.4 クエン酸添加タンニン・スクロース接着剤を用いたパーティクルボードの作 製

前述まではタンニン・スクロース接着剤を用いた木質成形体の物性やクエン酸添加による効果、さらには硬化特性について検討した。そこで、タンニン・スクロース接着剤の汎用性を検討するために、パーティクルボードの作製を行い、その物性から接着性能を検討した。ここでは既往の研究結果³⁾ に基づいて、タンニンとスクロースの比率を 25:75、塗布量 30wt%とし、クエン酸添加量とプレス温度がボード物性に及ぼす



図 2. パーティクルボードの作製方法

影響について調べた。ボードの作製方法を図 2 に示す。まずタンニンとスクロースを水に溶かし、さらにクエン酸を $0\sim33.3$ wt%添加した。水溶液濃度は 40wt%とし、これを接着剤として用いた。チップはリサイクルチップを篩にかけて一定サイズに分級したものを用いた。ブレンダーにチップを投入後、接着剤を噴霧塗布し、その後、80℃で12 時間予備乾燥を行い、チップ含水率を $3\sim6$ wt%に調整した。フォーミングによりマットを成形し、ホットプレスにて熱圧成形した。プレス温度は $160\sim220$ ℃とし、プレス時間は 10 分とした。目標密度は 0.8g/cm³、ボード寸法は $300\times300\times9$ mm とした。得られたボードは JIS A 5908 に準じて 3 点曲げ試験、はく離試験、吸水厚さ膨張率試験を行った。

熱圧温度 160 $\mathbb C$ の場合、0 $\mathbb C$ の添加割合が高くなるにつれて物性が高くなる傾向が認められた。すなわち、曲げ試験において0 $\mathbb C$ 工ン酸を添加しないボードは約 8 $\mathbb C$ 8 $\mathbb C$ の値であったが、33.3 $\mathbb C$ 8 $\mathbb C$ 3 $\mathbb C$ 4 $\mathbb C$ 3 $\mathbb C$ 3 $\mathbb C$ 3 $\mathbb C$ 4 $\mathbb C$ 3 $\mathbb C$ 4 $\mathbb C$ 3 $\mathbb C$ 4 $\mathbb C$ 4 $\mathbb C$ 4 $\mathbb C$ 9 $\mathbb C$ 5 $\mathbb C$ 6 $\mathbb C$ 9 $\mathbb C$ 6 $\mathbb C$ 7 $\mathbb C$ 8 $\mathbb C$ 8 $\mathbb C$ 9 $\mathbb C$ 7 $\mathbb C$ 8 $\mathbb C$ 9 $\mathbb C$ 7 $\mathbb C$ 8 $\mathbb C$ 9 $\mathbb C$ 9 $\mathbb C$ 7 $\mathbb C$ 9 $\mathbb C$ 9 $\mathbb C$ 7 $\mathbb C$ 9 $\mathbb C$ 9

6. 今後の展開

本研究では、タンニンとスクロースを主成分とした接着剤の木材に対する接着性能を明らかにするとともに、クエン酸添加が効果的であることを示した。しかし、実際の木材工業での熱圧条件を考慮すると加熱温度の低下や熱圧時間の短縮が求められる。よって、今後はこれらの改善を目指した研究を行う必要がある。また、詳細な硬化特性の解明や、合板などへの適応性も今後の課題として考えられる。

7. 引用文献

- 1) K, Umemura, T. Ueda, S. S. Munawar, S. Kawai, J. Appl. Polym. Sci, **123**, 1991-1996, 2012.
- 2) 竹山、梅村、川井、第30回日本木材加工技術協会年次大会要旨集、59-60pp., 2012.
- 3) Z. Zhao, K. Umemura, J. Wood Sci., 60, 269-277, 2014.

8. 付記

- 1) Z. Zhao, K. Umemura, International Symposium on Wood Science and Technology 2015 (IAWPS 2015), 2015, 3.15-17 (Tokyo, Japan)
- 2) Z. Zhao, K. Umemura, K. Kanayama, BioResources, 11, 1319-1333, 2016.

5. 千年居住圏

3)「東アジアの木の文化と科学」

杉山淳司,田鶴寿弥子,小林加代子 京都大学生存圏研究所

1. 研究組織

代表者氏名: 杉山淳司(京都大学生存圈研究所)

共同研究者: 田鶴寿弥子(京都大学生存圈研究所)

小林加代子(京都大学生存圈研究所)

遠藤利恵 (現:東洋羽毛工業)

堀川祥生 (現:東京農工大学農学部)

高妻洋成 (奈良文化財研究所)

翟勝丞 (南京林業大学)

金南勲 (韓国・江原大学)

李元熙(韓国・慶北大学)

Hwang Sung Wook (韓国・慶北大学)

Nguyen Duc Thanh (京都大学生存圈研究所)

Mechtild Mertz (CRCAO アソシエイト)

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

千年居住圈

3. 研究概要

過去の木材利用における用材選択の変遷をみることにより、植生史、交流史、道 具史、歴史などさまざまな木にかかわる文化を知ることを第一の目的とした。その ための手段としての樹種識別は、ツールとしてきわめて重要な手法ではあるが、サ ンプリングに破壊を伴うために文化財の調査には不向きである。そこで、様々な非 破壊樹種検査法について木材学の立場から検討し、その文化財への応用を計ること を第二の目的とした。また、出土する文化財の保存も特に東アジアの発展途上国に おいては重要な課題となっているので、国際共同研究として熱帯有用材の保存技術 の開発に取り組んだ。

4. 研究の背景と目的

シルクロードの終着点でもある日本人の木の文化には、海外から伝来した文化、

宗教などの影響が強く影響したことは周知の事実であり、近隣諸国の文化財における樹種選択や木の文化に関する科学を追及し見識を広げることは、日本文化のよりよい理解につながると考えられる。このような立場から以下のテーマに沿って、研究に取り組んだ。それらは、①画像認識技術を用いた新しい木材識別技法の開発(九州国立博物館との共同研究)②韓国世界文化遺産海印寺所蔵、八萬大教典に使用された木材の材質調査のための非破壊調査法の開発(韓国慶北大学との共同研究)③ 黄腸木の材質評価(韓国江原大学との共同研究)④チベットシッキム地域の寺院用材の調査(Mechtild Mertz 博士、インド木材研究所らとの共同研究)⑤ベトナムタンロン遺跡等、出土木材の保存と材質調査(ベトナム林業大学、奈良文化財研究所との共同研究)⑥クスノキ科木材の画像識別(南京林業大学との共同研究)の6課題である。

5. 研究の結果および考察

5-1 画像認識技術を用いた新しい木材識別技法の開発

文化財の非破壊的な解析を行うための最も有力な手段のひとつに X 線 CT 測定がある. ただし,文化財に使用されている木材を解析するという観点でみると,得られる CT データの解像度は低く,通常木材の樹種を特定するために必要とされる組織構造を観察することはできない. しかしながら,各木材の CT 画像にはそれぞれ

の組織構造に基づいた特有の特 徴が現れており、これらを利用 して画像認識による自動樹種判 定システムを構築することがで きないか検討することにした.

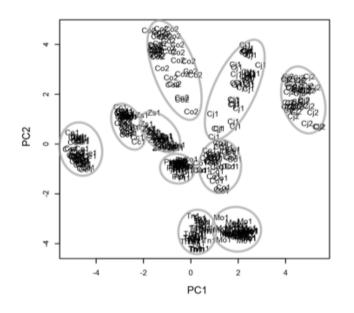


図1GLCMから計算した画像特徴量をもとに主成分分析をしたところ、樹種ごとのクラスターが形成され、 識別に利用可能であることは判明した.

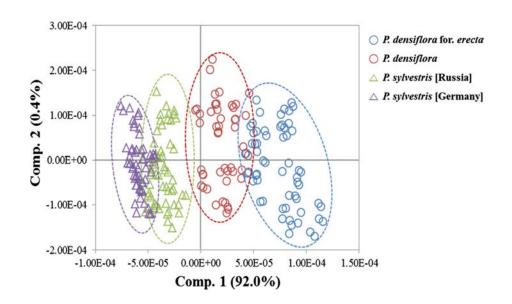


図 2 NIR によるアカマツとヨーロッパアカマツの PCA スコアプロット図【1】

別が可能であることから、文化財研究の分野において大きな威力を発揮することが期待された【 $\Re_{\mathbb{R}_{k}}$ 3】. 現在はデータ画像の前処理(ボクセル値の比重換算)や判別装置の改良(k-NN法から、SVMや階層的ニューラルネットシステムなどへの移行)を行い、識別精度の向上と実用化にむけた検討を進めている.

5-2 韓国世界文化遺産海印寺所蔵,八萬大教典に使用された木材の材質調査のための非破壊調査法の開発

韓国においても指定文化財に対して科学的分析の必要性が認識されるようになり、非破壊で材質評価を行う方法の開発に期待が高まっている. 慶北大との共同研究として、今年度は、交換留学制度を利用して大学院博士課程の院生を招聘し、NIRによる版木用木材識別の実験に取り組んだ.

対象木材として、アカマツ(黄腸木に区分される高品質のものと通常のアカマツ)、 チャンチン、ヤマザクラ、ナシ、イチョウ、ナツメなど、彫刻に古来利用されてき た木材について、ケモメトリクスによる識別の可能性について検討した.

また,南大門の修復に用いられたアカマツ材には日本のアカマツに加えて,ヨーロッパアカマツが利用されていたとの報告がある.この事実は年輪年代法によって

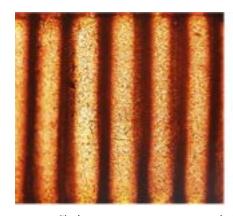
産地と樹種が特定されたことに基づくが、NIR-PLS-DA 法を用いた識別でもヨーロッパアカマツを日本や韓国産のアカマツとを区別することが可能であることがわかり(図2)、簡便な検討法として期待されている【_{発表論文}1】.

5-3 ラダック (西ヒマラヤ) 地域の寺院等用材の調査

インドの西ヒマラヤ地域のラダックにおいて、寺院やその地域固有の住居に使用される木材試料を収集した。この調査は Tibet Heritage Fund の協力のもと、インダス川渓谷の合流地点に位置する Kanji, Wanla, Alchi, Leh, Chumatang という 5つの地区でサンプリングが行われた。収集した 111 個のサンプルから、4 種類の木材が認められ、それらは、ヤマナラシ属またはハコヤナギ属 Populus sp.、ヤナギ属 Salix sp.、ビャクシン属 Juniperus sp.、ゴヨウマツ類(硬松類) Pinus subgen. Haploxylon であった。シッキム地方のデータ【発表論文9】の続編として、論文にまとめる予定である。

5-4 韓国黄腸木の物性

韓国におけるアカマツは日本のヒノキ、スギに匹敵する最も重要の建築用材として古くから利用されており、とくに朝鮮王朝の宮殿や文化財級の両班の住宅などに利用されている。なかでも黄腸木と呼ばれる特に朝鮮王朝が禁伐採区域を設けて保護した特殊なアカマツが高級材として重用されているが、その科学的根拠は明確にされていない。そこで、MOU 協定校の江原大学校との間で交換留学制度を利用した共同研究を実施した。研究においては、材質指標としてミクロフィブリル傾角に注目し、通常のアカマツとの差異を詳しく調べることとした。同時に、ミクロフィブリル傾角測定の簡便法として知られるヨウ素結晶沈着法とX線回折法とを比較検討し、両者の特徴ならびに精度について考察した。本研究の成果は韓国木材工学会において発表した。



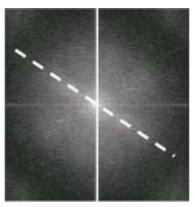


図3 IKI 染色によるミクロフィブリル傾角の可視化とその FFT 画像

5-5 遺跡出土木材の保存と材質調査

2002年に発掘が始まったタンロン皇城遺跡(ベトナム ハノイ市)において多数の木材が出土したことにより、ベトナム国内では出土木材の調査と保存に関する関心が高まった.しかしながら、東南アジアの熱帯産材は日本の温帯産材とは大きく性質が異なるため、既存の調査・保存処理法をそのまま熱帯材に適用することは難しい.そこで、文化庁からの委託事業として、ベトナム林業大学、奈良文化財研究所および京都大学生存圏研究所の3者が共同し、ベトナムで出土する木材の調査と保存処理の技術移転および人材育成を目的とした拠点交流事業を開始した.2014年度から、ベトナムおよびタイの遺跡を訪問して現地における出土木材管理の現状を把握し、共同でセミナーを開催して今後の課題と検討事項を整理している.主要な活動をまとめると以下の通りである.

2014年8月8日,ベトナム,ハノイのベトナム林業大学において,日越共同研究の経過報告として「遺跡出土木材の保存に関するセミナー」を開催した.日本側からは,保存処理の現状,樹種同定法の新規開発,一時保管の最適化などが,ベトナム側からは,タンロン遺跡の現状,同遺跡出土材の物理・化学特性などが報告された.

2015年1月19日、インドネシアはジョグジャカルタ特別州のガジャマダ大学において、「遺跡出土木材の存に関する国際ワークショップ」を開催した。日本からは、出土木材の保存科学に関する最先端の研究が紹介され、ベトナム、インドネシアからはそれぞれ出土木材の現状が報告された。インドネシアでは、ベトナムやタイとは異なり、文献や外国人研究者の指導を仰ぎながらも自分たちで出土木材にポリエチレングリコール処理を実施し、その評価を行っていた。また、新保存剤の開発に関する報告では、PEG は良い保存剤だが高価格なためインドネシアでの利用には適さないとし、自分たちで調達可能な低価格材料として、バイオ燃料の副生成物(廃棄物)であるグリセリンの利用を提案していた。本ワークショップには木材研究者だけでなく考古学者も参加しており、質疑応答も活発で、出土木材保存に関するインドネシア側の強い意欲が伺えた。

2015 年 9 月 25 日には、カンボジア、シェムリアップのアンコール・セントラル・ホテルにて、アンコール・シェムリアップ地域文化財保護管理機構 (APSARA) と奈文研、京大、ベトナム林業大学との共催で、出土木材保存に関する国際セミナーを開催した。奈文研より 2、京大 1、ベトナム林業大学 1、アプサラより 1、カンボジア文化庁より 1 名の合計 6 講演が行われた。

2016年1月21日,これまでベトナムをはじめとする5カ国の国立大学や政府機関との間で協議してきた「東南アジア圏で出土した木製遺物の保存処理技術の確立」に向け、一同が集結する初会合を生存圏研究所で開催した.ノウハウがまだ確立していない高温多湿地域での文化財保存技術の開発を進めるための人的ネットワー

クの構築に必要な研究網が立ち上がった.

5-6 クスノキ科木材の画像識別

古代中国においてクスノキ科の樹木の多くが棺材として利用されており樹種の特定が課題となっている。しかし、光学顕微鏡による形態的特徴の観察からは、属レベルの識別も困難な場合も少なくなく、樹種を特定できるかどうかは個人の能力や経験に大きく左右されている。そこで、顕微鏡画像のテクスチャー解析を行い、画像による判別が可能かどうか検討することとした。テクスチャー情報は、GLCMから求めるハラリック・パラメータ、ガボールパラメータ、ローカル・バイナリー・パラメーターなど、様々な画像情報ならびにそれらの組み合わせを検討している。その結果、目視では困難な「同属異種間の識別」が可能であることが示された。

現在,クスノキ科に加えて,モクレン科,ブナ科の木材の光学顕微鏡像ならびに 実体顕微鏡像のデータベースを作成し,様々なパラメータを用いた,画像情報の定 量化と樹種に固有の情報の抽出を進めている.

6. 今後の展開

非破壊樹種識別法として期待されるNIRならびに画像認識法について基礎研究と応用研究を平行してさらに展開する必要がある。また、ベトナム遺跡出土材については保存処理の確立(PEG、ケラチン、トレハロース保存処理)に向けた基礎データの蓄積が不可欠である。これらの研究は新しいミッション 5-4 の主要な研究課題として引き続き進展させる。

7. 付記

(論文発表)

- Hwang SW, Lee WH, Horikawa Y, Sugiyama J, Identification of *Pinus* species related to historic architecture in Korea by using NIR chemometric approaches, Journal of Wood Science, 62(1), 156-167, 2016/02
- Hwang SW, Lee WH, Horikawa Y, Sugiyama J, Chemometrics approach for species identification of *Pinus densiflora* Sieb. et Zucc. and *Pinus densiflora* for. erecta Uyeki (in Korean), J Kor Wood Sci Technol, 43, 6, 701-713, 2015
- 3. Kobayashi Kayoko, Akada Masanori, Torigoe Toshiyuki, Imazu Setsuo, Sugiyama Junji, Automated recognition of wood used in traditional Japanese sculptures by texture analysis of their low-resolution computed tomography data, Journal of Wood Science, 61(6), 630-640, 2015/09
- 4. 杉山淳司,韓国の祭祀と面 一古面の材質から一,繊維と工業,71(6),291-295,2015/06
- 5. 杉山淳司, 歴史や文化に関わる科学的調査, 海洋化学研究, 28(1),24-29, 2015/05

- 6. Rie Endo, Tsutomu Hattori, Makoto Tomii, Junji Sugiyama, Identification and conservation of a Neolithic polypore, Journal of Cultural Heritage, 16, 869-875, 2015/05
- 7. Ugai Watanabe, Hisashi Abe, Kazumasa Yoshida, Junji Sugiyama, Quantitative evaluation of properties of residual DNA in *Cryptomeria japonica* wood, Journal of Wood Science, 61(1), 1-9, 2015/01
- 8. Horikawa, Y., Mizuno-Tazuru, S., Sugiyama, J., Near-infrared spectroscopy as a potential method for identification of anatomically similar Japanese diploxylons, Journal of Wood Science, 61(3), 251-261, 2015
- 9. Mertz, M., Gupta, S., Hirako, Y., Azevedo P., Sugiyama, J., Wood selection of ancient temples in the Sikkim Himalayas, IAWA J, 35(4), 444-462, 2014

(学会発表)

- 1. 歴史的建造物におけるアスナロ属利用の一考察,田鶴寿弥子,杉山淳司,第 66 回日本木材学 会会,2016/3/26-28
- 2. 八萬大蔵経に用いられる版木の樹種同定に向けた画像認識システムの構築,小林加代子,杉山淳司,黄盛煜,李元熙,第66回日本木材学会大会,2016/3/26-28
- 3. 항성옥, 이원희, 小林加代子, 杉山淳司, 영상 분석 기반의 목재 수종 식별 방법 (木材を画像 に基づいて識別する方法について), 韓国木材工学会, ソウル, 韓国, 38-39, 2016/04
- 4. Yoko Ura, Satoshi Kimura, Kayoko Kobayashi, Izumi Kanai and Junji Sugiyama, Learning from Cherry Wood Works: Remarkable Mechanical Property and its Biological Significance, Korean Society of Wood Science and Technology, 14–15, 2016/04
- 5. 이애희, Junji Sugiyama, 장재혁, 김남훈, 황장목의 마이크로브릴 경사각 방사방향 변이성 (黄腸木のミクロフィブリル傾角の放射方向変動), 韓国木材工学会 春川, 韓国, 2015/04/11
- Kayoko Kobayashi, Masanori Akada, Setsuo Imazu, Junji Sugiyama, Toward automated wood identification by texture analysis of CT images, Annual Meeting of Korean Society of Wood Science and Technology Chuncheon, South Korea, 2015/04/11
- 7. 항성옥,이원희, Yoshiki Horikawa, Junji Sugiyama 목재문화재의 수종식별을 위한 새로운 접근 방법에 관한고찰 -근적외선분광법과 케모메트릭 분석을 이용한 수종분류- (木 材文化財の種の同定のための新しいアプローチに関する考察 -近赤外分光法とケモメトリクス分析を利用した種の分類),韓国木材工学会 春川,韓国,2015/04
- 8. R. Endo and J. Sugiyama, Improving the stability of archaeological waterlogged wood by adding multivalent-metal salt process in feather-keratin method, International Symposium on Wood Science and Technology 2015, Tokyo, 2015/03/01
- 9. Kobayashi K., Akada M., Imazu S., Sugiyama J., Pattern recognition system toward identification of culturally important wooden artifacts, International Symposium on

- Wood Science and Technology 2015, Tokyo, 2015/03/01
- 10. Kobayashi K., Akada M., Imazu S., Sugiyama J., Novel approach for wood identification by image recognition, 9th Joint Seminar of China-Korea-Japan on Wood Quality and Utilization of Domestic Species, Akita, 2014/10/29
- 11. Horikawa Y., Mizuno-Tazuru S., Sugiyama J, Near-infrared spectroscopy as a potential method for identification of anatomically similar Japanese diploxylons, 9th Joint Seminar of China-Korea-Japan on Wood Quality and Utilization of Domestic Species, Akita, 2014/10/29
- 12. Sugiyama J. Wood identification by image recognition technique, Special seminar at Kangwon National University, April, 17, 2014.
- 13. Sugiyama J., Novel technique for wood identification by means of image recognition, Workshop on the conservation of waterlogged wood, Vietnam Forestry University, August 8, 2014.
- 14. Kozuma Y., Conservation of archeological waterlogged wooden relics in Japan, Workshop on the conservation of waterlogged wood, Vietnam Forestry University, August 8, 2014.

講演会講師など

- 1. 田鶴寿弥子, 木質文化財の樹種調査における SPring-8の活用, 日本文化財科学会第 33 回企業 セミナー, 2016/06/04
- 2. 田鶴寿弥子, 生存圏科学におけるフィールドの活用と可能性, 林野庁近畿中国森林管理局、京 大大学院農学研究科、京大生存圏研究所、京大フィールド科学教育研究センター協定締結記念 講演会, 2016/04/15.
- 3. 田鶴寿弥子,マイクロCTを用いた木質文化財の樹種調査,SPring-8 木材科学ワークショップ 進歩する木のかがく/ 第 308 回生存圏シンポジウム, 2016/03/18.
- 4. 田鶴寿弥子,木づかいの匠、日本,第12回生存圏研究所公開講演会,2015/10/25
- 5. 杉山淳司, 高分解能 CT による植物のミクロな構造, 第 2 回 SPring-8 文化財分析技術ワークショップ, 高輝度光科学研究センター, 2016/01/30
- 6. 小林加代子, 杉山淳司, CT データによる木彫像の樹種推定,平成 27 年度九州国立博物館, 10 周年記念シンポジウム, X線 CT を用いた文化財の研究と活用, 九州国立博物館, 2015/12/19
- 7. 杉山淳司, X線イメージングの事例紹介, 第1回 SPring-8文化財分析技術ワークショップ 2015, 高輝度光科学研究センター, 2015/11/06
- 8. 杉山淳司,歴史と文化のかおる木のサイエンス,日本木材学会中部支部大会公開講演会,日本 木材学会中部支部,2015/10/3
- Sugiyama Junji, Introduction of the role and activity of RISH xylarium, Seminar on Conservation of Archaelogical Waterlogged Wood, Nara National Institute for Cultural Heritage, 2015/09/27

- 10. 小林加代子, 画像認識による文化財の自動樹種判定システム, 第 274 回生存圏シンポジウム 木の文化と科学 XIV, 生存圏研究所, 2015/02/23
- 11. Sugiyama Junji, Novel technique for wood identification by means of image recognition, Workshop on the conservation of waterlogged wood, Vietnam Forestry University, 2014/08/08
- 12. Suyako Tazuru, Wood culture in Japan and Korea -Wood identification using nondestructive methods-, International Symposium on Frontier Researches in Sustainable Humanosphere 2013, RISH, Kyoto University, 2013/11/27.
- 13. Sugiyama Junji, Non destructive and spectroscopic analysis of softwood used in cultural artifacts, 慶北大学校, ウルチン産金剛松に関する研究集会, 2013/08/09

(新聞報道)

- 1. 文化財傷めずに樹種判定(読売新聞 2015年8月15日)
- 2. 木製品の保存を考える 東南アジアの遺跡 (朝日新聞 奈良 2015年 10月2日)
- 3. 木の遺物保存技術東南アジア研究網 (産経新聞 2015年12月30日)

(共同研究員ならびに交換留学生の受け入れ)

- 1. Wang Feng, 南京林業大学 修士学生, 2015/08/11~2015/11/10 テーマ⑥
- 2. Zhang Jun, 南京林業大学 修士学生, 2015/08/11~2015/11/10 テーマ⑥
- 3. Zhai Shengcheng, 南京林業大学 准教授, 2015/07/31~2015/09/03 テーマ⑥
- 4. Hwang Sung Wook, 慶北大学校 博士学生 2015/06/01~2015/08/29 テーマ②
- 5. Nguyen Duc THANH, Vietnamese Academy of Forest Sciences, $2014/11/05 \sim 2015/02/28 \neq \checkmark$
- 6. Mechtild Mertz, フランス東アジア文化研究センター, 2014/10/10~2014/12/04 テーマ④
- 7. Zhai Shengcheng, 南京林業大学 講師, 2014/07/16~2014/08/26 テーマ⑥
- 8. Hwang Sung Wook, 慶北大学校 博士学生, 2014/05/24~2014/08/24 テーマ②
- 9. Lee AeHee, 江原大学大学校 修士学生, 2014/11/15~2015/03/15 テーマ③
- 10. Nam-Hun Kim, 江原大学大学校 教授, 2014/11/26~2014/11/28 テーマ③
- 11. Won-Hee Lee, 慶北大学校 教授, 2014/11/26~2014/11/29 テーマ②
- 12. Nam-Hun Kim, 江原大学大学校 教授, 2014/06/20~2014/08/20 テーマ③①
- 13. Zhai Shengcheng, 南京林業大学 助手, 2013/07/20~2013/09/27 テーマ⑥
- 14. Nam-Hun Kim, 江原大学大学校 教授, 2013/08/05~2013/09/27 テーマ③
- 15. Nam-Hun Kim, 江原大学大学校 教授, 2013/12/04~2014/01/11 テーマ③
- 16. Won-Hee Lee, 慶北大学校 教授, 2012/08/01~2012/08/04
- 17. Nam-Hun Kim, 江原大学大学校 教授, 2012/08/01~2012/08/04

(海外調査)

- 1. 杉山,遠藤,小林, Thanh, 出土遺跡木材調査,カンボジア,ラオス,2015年9月23日から2015年9月30日 テーマ⑤
- 2. 杉山, 共同研究実施, 南京林業大学, 中国, 2015年3月24日から28日 テーマ⑥
- 3. 杉山,遠藤,小林,出土遺跡木材調査,インドネシア,2015年1月17日から2015年1月21日 テーマ⑤
- 4. 杉山,遠藤,出土遺跡木材調査,ベトナム,タイ,2014年8月7日から2014年8月12日 テーマ⑤

圏間共同研究

1) 微細気泡水効果の原理解明と環境・材料・農業分野への応用

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(京都大学生存圈研究所) 共同研究者:杉山 暁史(京都大学生存圈研究所)

> 徳田 陽明 (滋賀大学教育学部) 伊藤 嘉昭 (京都大学化学研究所)

二瓶 直登 (東京大学大学院農学生命科学研究科)

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

震災復興連携支援研究、圏間共同研究 ミッション1:環境計測・地球再生

3. 研究概要

本研究では新たな可能性を持つ微細気泡水について、圏間を融合した大きな研究分野として確立する事を大目標とする。具体的には、分野横断型の多角的な応用研究として3つの個別テーマ(1:基礎特性、2:無機化学合成への応用、3:農業分野への応用)を設定し、微細気泡水が本来持つ特性について多角的な視点から捉え、その基礎原理を正確に解明する。

4. 研究の背景と目的

水と酸素や窒素などの気体という身近な存在である物を使い、より高機能な材料を創成する事を目的とする。具体的には、気体成分を気泡として水中に存在させ、その気泡径をマイクロメートル以下にする事で、特性を変化させた機能的な水として使用する(以下、微細気泡水)。これまでは微細気泡水の特性について、基礎原理等の解析と気泡存在の証明が問題となっていたが、我々の研究グループにおいては、各分野の専門家がそれぞれの分野において研究をすすめる事で、多角的な研究成果を挙げる事が期待される。

5. 研究の結果および考察

これまでの研究において、微細気泡が存在する水の特性として、純水と比較して

電気伝導度が下がり、気泡濃度との相関がある事が示された。微細気泡の生成装置によらず同様の結果を示している。また、新たな成果としては、電気伝導度の他にはテラヘルツ帯の周波数を用いた誘電率測定を行い、その結果として微細気泡が存在する水の誘電率が原水から変化している事が示された(Fig. 1)。この結果は、帯電した微細気泡が水の分子集団に影響を与えている事を示唆しており、成果報告も論文発表として既に行っている。

Fine bubble properties

Permittivity (@ 0.3 THz)

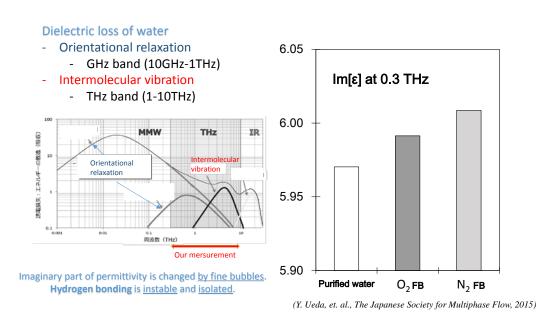
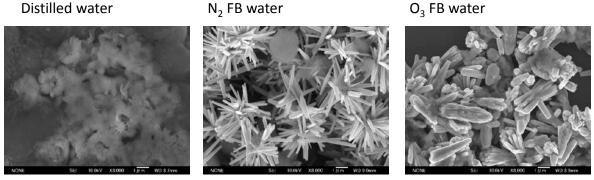


Fig 1. テラヘルツ波による微細気泡水の特性変化について

また、基礎と関連した微細気泡水の応用研究としては、これまでに無機化学合成への応用利用(Fig. 2)の他、花卉植物への利用、また大豆の初期生育時におけるイオンの吸収量についての放射性セシウムを用いた実験等も行ってきている(Fig. 3)。それぞれの実験から具体例としての実験結果を得ており、論文としての発表も行っている。

その他、震災復興研究の継続としては、セシウムの化学状態を固体 NMR によって評価し、今後の除染技術開発への基礎を固めている。また、福島県における農業復興のための基礎研究として、稲作における土壌中に含まれる放射性セシウムとの相関など、今後の幅広い応用研究にむけた研究を着実に進めている。



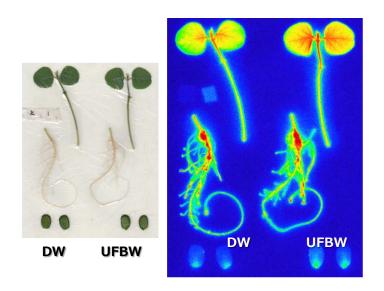
(Y. Tokuda, et. al., New Journal of Glass and Ceramics, 2014)

Distilled water : large and island-like
 N₂ FB water, O₃ FB water : needle crystal

•O₃ FB water : Low aspect ratio

→FB affects the morphology of crystals

Fig 2. 無機化学合成 (Zn0) の微細気泡水の利用 (窒素、オゾン) (FB: 微細気泡 (Fine Bubble)).



Cs-137 absorption in soybean germination (DW: Distilled Water, UFBW: Ultra fine bubble water)

(Y. Ueda, et. al., The Japanese Society for Multiphase Flow, 2015)

Fig 3. 植物への応用利用

6. 今後の展開

本研究課題においては、融合研究という事で様々な分野からの微細気泡研究を行う事ができ、研究成果も多彩な結果となった。また、新たな研究チームとして、京都大学、滋賀大学、北海道大学、東京理科大学、千葉工業大学など多数の大学ネットワークを構築し、新たな学術分野として研究分野を切り開いている。また、国際研究活動としても、ドイツ(University of Applied Sciences and Arts, Studieren in Dortmund)やポーランド(Warsaw University of Life Sciences)との共同研究を開始しており、非常に活発な活動グループとして発展してきている。

7. 成果論文 (すべて査読付き)・受賞・著書

成果論文

- 1. Yomei Tokuda, Shun-ichi Kaneko, Yuya Takahashi, Hirokazu Masai, Yoshikatsu Ueda, Kenji Hara, Shigeto Fujimura, Yuji Ono, Toshinobu Yoko, Local structure of alkalis in mixed alkali borate glass to elucidate the origin of mixed-alkali effect, Journal Of Asian Ceramic Societies, 185, 10.1016/j.jascer.2015.09.002, 2015/09,
- 2. UEDA Yoshikatsu, TOKUDA Yomei, GOTO Hiroshi, Cesium decontamination using a microbubble-treated aqueous solution of sodium metasilicate, Proceedings of Radiological Issues for Fukushima's Revitalized Future, 2015/12
- 3. 徳田陽明, 法川勇太郎, 正井博和, 上田義勝, 二瓶直登, 藤村恵人, 粘土鉱物 に吸着したCsのNMR研究, 福島の復興に向けての放射線対策に関するこれから の課題 国際シンポジウム2015, 2015/05
- 4. 上田 義勝,徳田 陽明,後藤 裕,マイクロバブル処理を施したケイ酸ナトリウム洗浄剤によるセシウムの減容化について,福島の復興に向けての放射線対策に関するこれからの課題 国際シンポジウム2015,2015/05
- 5. 上田 義勝, 徳田 陽明, 二瓶 直登, 杉山 暁史, 小川 雄一, 白神 慧一郎, 微 細気泡水の電気化学的特性の定量的評価及び応用実験との相関について, 日本 混相流学会,28,5,555-562,2015/03
- 6. 上田 義勝、徳田 陽明、二瓶 直登、杉山 暁史、小川 雄一, 気液界面の 「接着剤」としての微細気泡技術, 日本接着学会,50,2,58-65, 2015/02
- 7. T. Minami, Y. Tokuda, H. Masai, Y Ueda, Y Ono, S. Fujimura, and T Yoko, Structural analysis of alkali cations in mixed alkali silicate glasses by 23Na and 133Cs MAS NMR, Journal of Asian Ceramic Societies, 2,4,333-338, 2014/12
- 8. Shigeto FUJIMURA, Yasuyuki MURAMATSU, Goshi Ono, Masaaki SAITOU, Yasukazu SUZUKI, Tomoyuki KOBAYASHI, Yoshikatsu UEDA, Kunio YOSHIOKA, Relationship between the transfer of 137Cs from soil to brown rice and exchangeable 137Cs in soils collected in Fukushima, Journal of Environmental Radioactivity,140,59-64, 2014/10
- 9. 上田 義勝, 徳田 陽明, 二瓶 直登, 矢島 豊, 矢吹 隆夫, 微細気泡水を用いた 切り花の鮮度保持効果について, 日本混相流学会,28,3,340-344, 2014/09
- 10. Yomei Tokuda, Hiroaki Matsuki, Yoshikatsu Ueda, Hirokazu Masai, and Toshinobu Yoko, Crystal Growth of ZnO Microneedles in Water Containing Microbubbles, New Journal of Glass and Ceramics, 4,49-54, 2014/07
- 11. Akifumi Sugiyama, Yoshikatsu Ueda, Takahiro Zushi, Hisabumi Takase, Kazufumi

- Yazaki, Changes in the bacterial community of the soybean rhizosphere during growth in the field, PLoS ONE 9(6): e100709. doi:10.1371/journal.pone.0100709, 2014/06
- 12. Yoshikatsu Ueda, Yomei Tokuda, and Takahiro Zushi, Electrochemical Performance of Ultrafine Bubble Water, ECS transactions, 58(19): 11-19; doi:10.1149/05819.0011ecst
- 13. Yoshikatsu Ueda, Yomei Tokuda, Hiroshi Goto, Tomoyuki Kobayashi, and Yuji Ono, Removal of radioactive Cs using aqueous sodium metasilicate with reduced volumes of waste solution, ECS transactions, 58(19): 35-41; doi:10.1149/05819.0035ecst
- 14. Yoshikatsu Ueda, Yomei Tokuda, Hiroshi Goto, Tomoyuki Kobayashi, and Yuji Ono, Removal of radioactive Cs from nonwoven cloth with less waste solution using aqueous sodium metasilicate, J. Soc. Remed. Radioact. Contam. Environ., pp.191-195, Vol1. No.3, 2013

受賞

第2回新化学技術研究奨励賞(特別課題) 「福島県復興のための微細気泡水技術の利用(除染・農業)」(公益社団法人 新化学技術推進協会) 2013.5

著書

- 1. 徳田 陽明, 上田 義勝, 放射性物質の吸着・除染および 耐放射線技術における材料・施工・測定の新技術,技術情報協会,2014/11
- 2. 上田 義勝, 徳田 陽明, 二瓶 直登, 微細気泡の最新技術 vol. 2, NTS, 2014/08
- 3. 微細気泡水のもつ電気諸特性と理論的な考察,京都大学電気関係教室技術情報誌,No.31,P.33,2014.03
- 4. 上田 義勝, 福島県における復興支援研究の現状, 生存圏だより, no. 13, p. 11, 2013.10

圏間共同研究

2) 低炭素居住圏の確立に資する植物由来脂溶性生理活性成分の耐虫・耐朽性評価と大量生産デザイン」

矢崎 一史 京都大学生存圏研究所

1. 研究組織

代表者氏名:矢崎一史(京都大学生存圈研究所) 共同研究者:吉村剛(京都大学生存圈研究所)

> 髙梨 功次郎(京都大学生存圈研究所) 小野 和子(京都大学生存圈研究所)

豊岡 公徳 (理化学研究所)

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

生理活性、環境未来千年居住圈

ミッション1:環境計測・地球再生

3. 研究概要

本研究では、住宅居や文化財の原料である木材の耐虫・耐朽性を担う物質を、石油資源によらない脂溶性の植物生理活性成分に求め、その活性の定量評価と応用に向けた大量生産を目指している。材料としてナフトキノン系脂溶性生理活性物質(シコニン類)を生産するムラサキ科ムラサキ (Lithospermum erythrorhizon) の培養細胞に着目し $^{1-3}$)、昨年度はムラサキ抽出物のイエシロアリ (Coptotermes formosanus) に対する耐虫性、および2種の木材腐朽菌 (Trametes versicolor および Tyromyces palustris) に対する耐朽性の評価を行った。平成26年度までの研究により、硬紫根のメタノール抽出物が示すシロアリに対する殺虫活性には、ロット間の格差が非常に大きいことが実験

的に示されていた。そこで、最終年度にかけて、広く民間用法として対虫性薬剤として利用された生薬にも探索の範囲を広げて、実用に適した生薬のスクリーニングと活性成分の同定を試みた。詳細は論文にて公表するが、試験した生薬のうち2種で高い殺蟻活性あるいは



図1 石油資源によらない木材の長寿命化

忌避作用が認められた。

また、抗菌活性に対してはシコニン誘導体が有効であることが示されたため、平成 25 年度から 26 年度にかけては大量生産デザインに必要な基盤情報の取得を目的として、当初の計画であった次世代シーケンサーを用いた大規模な RNA-Seq 解析を行い、最終年度 (H27 年度) にかけてはさらに網羅的なプロテオーム解析を行った。これらを総合して、分泌機構に関与する遺伝子のカタログ化と優先順位付けを行った。

4. 今後の展開

上記で得られた結果から、ヒトの疾病治癒に対してのみ研究が進められてきた民間生薬の中に、人間の居住空間を保護する抗シロアリ活性を示すものが存在する事が示された。これらの植物種は、明確な殺蟻活性あるいはシロアリの忌避作用を示すが、現時点ではまだその活性本体までは明らかにできていない。ただし、いずれの場合も推定される生理活性成分は一定の脂溶性を示す化合物群である事から、ムラサキをモデル系として進めている脂溶性分子の大量生産デザインから得られる分子情報と遺伝子リソースの応用が可能である事考えている。今後は、ムラサキ培養細胞の培養系から得られる、モデル化合物シコニンの大量生産に必要な遺伝子の機能証明を積み重ね、有用物質の効率的な生産に適用可能なプラットフォームの構築を試みる。

5. 引用文献

- 1. Yazaki, K. (2001). Root-specific production of secondary metabolites: regulation of shikonin biosynthesis by light in *Lithospermum erythrorhizon*. *Natural Medicines*, 55, 49-54.
- 2. Fujita Y, Tabata M, Nishi A, Yamada Y: Plant Tissue Culture 1982. In: Fujiwara A (ed), pp. 312-313. Maruzen (1982).
- 3. Yamamoto, H., Zhao, P., Yazaki, K., and Inoue, K. (2002). Regulation of lithospermic acid B and shikonin production in *Lithospermum erythrorhizon* cell suspension cultures. *Chem. Pharm. Bull.*, 50(8), 1086-1090.

6. 付記

学会発表 (ポスター)

- 1. 上撫健太、高梨功次郎、杉山暁史、矢崎一史、次世代シークエンサーを用いたムラサキの網羅的遺伝子発現解析、第32回日本植物細胞分子生物学会、盛岡、2014年8月21日-22日
- 2. 上撫健太、高梨功次郎、杉山暁史、矢崎一史、ムラサキのシコニン輸送・分泌に関 与する遺伝子のRNA-seq法による探索日本農芸化学会岡山大会、岡山、2015年3月26 日-29日
- 3. Kazufumi Yazaki, Lipid bulk transport involved in pigment secretion Shikonin secretion as a model system -, Annual Meeting of Japanese Society of Plant Physiology, 18th March, 2016 (Morioka)
- 4. 異 奏、岡 洋三、斎藤和季、上撫健太、杉山暁史、矢崎一史、ムラサキ培養細胞を 用いたシコニン分泌機構に関わる脂質の探索、日本農芸化学会2016年度大会、3月29 日 2016年(札幌)

圏間共同研究

3) ヒトと動物に対するリグニンの生理機能の解明と利用

梅澤 俊明 京都大学生存圏研究所

1. 研究組織

代表者氏名:梅澤 俊明(京都大学生存圈研究所)

共同研究者: 吉村 剛 (京都大学生存圈研究所)

河田 照雄(京都大学大学院農学研究科)

奥西 智哉 (農研機構食品総合研究所)

柴田 大輔(かずさDNA研究所、京都大学大学院農学研究科)

飛松 裕基(京都大学生存圈研究所)

鈴木 史朗(京都大学生存圈研究所)

山村 正臣(京都大学生存圈研究所)

青柳 秀紀(筑波大学大学院生命農学研究科)

坂本 正弘(京都大学大学院農学研究科)

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

バイオマスの生理活性、リグニン、食品機能、未利用芳香族資源、シロアリ、木材 保存、圏間共同研究

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

木化した二次細胞壁の大きな塊とみなすことができる樹木の幹や大型イネ科植物の茎は、いわゆる木質として世界のバイオマスの大半を占めている。地球環境問題やエネルギー問題など人類を取り巻く状況は年々厳しくなっており、今後人類が生存を続けていくには、化石エネルギーに対する依存度を下げ、再生可能エネルギーに対する依存度を大幅に上昇させることが必須である。そして、再生可能エネルギー資源の中で、とりわけ生産・蓄積量の多い木質の持続的生産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。木質の成分利用研究は、端的には、その多糖成分の有効利用とリグニンの有効利用に大

別される。これらの研究をリグニンの側から見ると、1)木質多糖(セルロース、へミセルロース)の有効利用を図るためのリグニンの減量・効率的除去・分解に関する研究と2)リグニンそのものの有効利用の研究に分けられる。木質多糖成分の利用においては、リグニンは、パルプ化、酵素糖化、あるいは飼料消化における阻害的成分として、負の印象を以て語られることが多かった。しかし近年では、その芳香族バイオマスとしての重要性が再認識され、有効活用が社会的に強く求められるに至り、研究代表者らも代謝工学による有用リグニンの増加を図る研究を進めている。

以上で扱う木質は、維管束植物の体を支える構造材料であり、その中で、リグニンは、セルロースミクロフィブリルを固着しセルロースミクロフィブリルが持つ力学特性を細胞壁レベルで発揮できるようにする、細胞壁からの水の散逸を防ぐ、病原菌等の侵入に対し物理的障壁となるなどの機能を持つことが知られている。リグニンの機能としては、古くから上記のものが指摘されてきたが、木化あるいはリグニン生合成は、単に維管束植物を物理的に支える構造材料の構築という面ばかりでなく、維管束植物が生存する上で必須の精緻な制御装置としての側面を持っている。

一方、リグニンの機能として従来ほとんど看過ごされてきたのが、ヒトを始めとする動物に対する生理機能である。リグニンは食物繊維に随伴する形で野菜などに含まれ、莫大な量ヒトによって摂取されている。野菜の摂取量を一日 200~300g(生重量)とした場合、一日あたりのリグニン摂取量は錠剤 1 粒程度にもなると見積もられる。リグニンがもつ食品機能については様々な推測がなされているものの、実証的研究は殆ど報告されていない。さらに、言うまでもなく草食動物やシロアリなどの昆虫も木質を主要な栄養源として摂取しており、大量のリグニンを摂取している。シロアリの成長に及ぼす餌の影響は、新規シロアリ防除システムの開発などに向けて重要である。しかし、ヒトや動物に及ぼすリグニンの生理機能については、リグニンのピノレジノール型サブストラクチャー構造を持つ低分子のリグナン類が、乳がん発症抑制作用などの生理活性を示すことが知られているものの、ほとんど未解明である。食物繊維中のリグニンの生理機能の解明は、リグニン摂取の経常性や大量性、さらに研究例に乏しい状況に鑑み、緊急且つ展開性の大きい課題であると考えられる。

本研究では、食物リグニンをマウスに給餌し、リグニン摂取後の腸内細菌叢の経時的な変動解析および代謝物解析を行い、動物の腸内環境に対するリグニンの影響を検証した。また、シロアリに対しても数種の植物を与え、シロアリ体内でのリグニン構造の変化についても詳細に解析した。

圏間共同研究

4) 樹木年輪と歴史・古環境 「アジア赤道域における季節スケールの気候・環境変遷の復元」

渡邊 裕美子京都大学理学研究科

1. 研究組織

代表者氏名: 杉山 淳司(京都大学生存圈研究所)

共同研究者: 津田 敏隆 (京都大学生存圈研究所)

田鶴 寿弥子(京都大学生存圈研究所)

反町 始(京都大学生存圈研究所)

田上 高広(京都大学理学研究科)

渡邊 裕美子(京都大学理学研究科)

大山 幹成 (東北大学学術資源研究公開センター植物園)

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

圈間共同研究

ミッション1:環境計測・地球再生

千年居住圈

3. 研究概要

本プロジェクトでは、インドネシア産 熱帯樹のマルチ樹木年輪データと気象観測データの系統的な比較から、熱帯樹の古気候指標としての信頼度を評価し、熱帯域における季節スケールの気候/環境変遷復元のための基盤を確立 することを目指した。

インドネシア・西部ジャワ産のスンカイ 1 個体について複数の年輪構成要素(年輪幅・孔圏道管面積・ δ^{18} O・ δ^{13} C)を計測し、気象観測データとの系統的な比較から、スンカイの古気候指標としての信頼度を評価した【Watanabe et al., 2013】。さらに、同種の異なる個体についても同様の分析をし、重ねて信頼度を評価した【Harada et al., in press】。

また、中部ジャワ産のチーク試料 4 個体と西部ジャワ産のチーク試料 6 個体について、過去約 70 年間 (59 あるいは 29 年間のものを含む) にわたり年々スケールで炭素・酸素同位体比を分析し、個体間相関や空間代表性を検証した。さらに、チーク δ^{18} O と降水量と相関解析することにより、チークの古気候指標としての信頼度を評価した。

上記の研究に加えて、インドネシア産の樹木サンプルに関する情報収集を行い、数 多くの樹木ディスク(主にスンカイとチーク)を収集することに努めた。

4. 研究の背景と目的

地球環境の現在を知り、近未来における変化に備えるためには、近い過去にどのような気候/環境の変動があったかを詳細に復元し、その変動要因を探ることが必要不可欠である。とりわけ、大気と海洋の相互作用として注目されている ENSO は、熱帯域の旱魃や洪水などの直接的な災害を与えるばかりでなく、熱移送を通して中・高緯度における気象にまで大きな影響を及ぼすことが知られている【Hastenrath, 1991】。そこで、過去に遡って ENSO の発生頻度やその規模を正確に復元することは、未来の気候/環境を予測するために非常に重要である。これまで、過去百年ほどに渡り蓄積された気象データを用いて、十年オーダーの気候変動の解析がなされているが、気候変動の未来予測をより正確に行うためには、さらに長期的な百年から千年オーダーでの解析が必要である。このような長期的な気候の解析をするためには、気象観測記録と同等に扱える古気候指標を確立することが急務である。

本プロジェクトでは、正確な年代決定ができ、年/季節単位での気候復元が可能という優れた特長をもつ樹木年輪に着目し、インドネシア産 熱帯樹(スンカイ・チーク)のマルチ樹木年輪データと気象観測データの系統的な比較から、古気候指標としての信頼度を評価し、熱帯域における季節スケールの気候/環境変遷復元のための基盤を確立 することを目指した。

5. 研究の結果および考察

- ◆ 熱帯樹サンプルの収集:
- ◆ インドネシア産の熱帯樹サンプルに関する情報収集を行い、産地・樹齢の情報のある樹木ディスク(主にスンカイとチーク)を数多く収集した【図1】。
- ◆ 名古屋大学博物館の西田研究室を訪問し、名古屋大学博物館が所有する熱帯樹標本に関して情報収集した。
- ◆ スンカイを用いた研究:
- ◆ インドネシア・西部ジャワ Serang 産の熱帯樹(スンカイ 1 個体; SungkaiNAN7) からセルロースを抽出する化学処理過程を検討し、その分析手法を確立した 【Harada et al., 2014】。
- ◆ Harada et al. (2014) で確立した分析手法に基づいて、上記のスンカイ (SungkaiNAN7)について過去15年分の炭素・酸素同位体比を分析した。加えて、その他の年輪構成要素(年輪幅、孔圏道管面積)の計測も行い、得られたマルチ 樹木年輪データと、気象データとの相関解析を行った。その結果、「スンカイの年

- 輪構成要素を複数分析することは、熱帯域の季節オーダーの気候を復元していくのに有効な方法である」ことを示した【Watanabe et al., 2013】。
- 中 Harada et al. (2014) で確立した分析手法に基づいて、Serang 産のスンカイ 2 個体 (SungkaiNAN7; SungkaiNAN8) について過去約 20 年にわたり炭素・酸素同位体比を分析し、個体間の再現性等を検証した。2 個体の δ^{18} O 時系列データは有意な相関 (r=0.80; P<0.001) があり、スンカイ δ^{18} O は気候情報を反映している可能性が高い【Harada et al., in press】。また、SungkaiNAN7 の δ^{18} O は 気温・日照時間・大気圧と正相関、相対湿度・SOI とは負相関があることを確認できた。さらに、1997-1998 年のエルニーニョ・イベント前後の 3 年輪を 58 分割して、その同位体比を分析した。その結果、1997 年の晩材に δ^{18} O の最大値があり、その最大値はタイムラグがあるものの降水量・相対湿度の最小値、気温・日照時間・大気圧の最大値に対応していることを確認できた【Harada et al., in press】。

◆ チークを用いた研究:

- ◆ 2014 年度に収集したインドネシア産のチーク試料の中から、年輪同定がしやすい 円盤状のディスクを 4 個体(中部ジャワ Cepu 産 Nago1-2, Nago2-3, Nago6-2; Dungus area 産 DGS-215) 選定し、過去約 70 年にわたり年々スケールで炭素・酸素同位体 対比を測定した【図 2】。図 2 のように 1 mm 厚の厚片を作成し、その厚片ごと α - セルロース抽出した後、顕微鏡下で年輪ごとにサンプルを切り出し、同位体比測 定を行った。その結果、4個体の $\delta^{18}O$ 時系列データは有意な相関があり、ジャワ 島のチークに関する先行研究 Schollaen et al. (2013) や Breen (2011) とも有意な相 関があることから、チーク δ^{18} O は共通の気候情報を保持している可能性が非常に 高い。さらに、降水量データ (http://www.cru.uea.ac.uk/data を参照) と相関解析 した結果、生長期直前乾季降水量と有意な正相関があった。この結果は、Schollaen et al. (2013) と整合的であり、チークの δ^{18} O は生長期直前乾季降水量の代替指標 となる可能性が示唆された。今回、南方振動指数 (SOI) とチーク δ^{18} O の相関解 析も行ったが、有意な相関は得られなかった。これは、Schollaen et al. (2013) で指 摘されているように、ジャワ島の年輪は Cold Tongue (eastern Pacific) El Niño とい うより Warm Pool (central Pacific) El Niño event の影響を受けやすいことに起因す るもので、今後、ENSO の種類を考慮してチーク δ¹8O の指標評価を慎重に行う必 要がある。
- チーク $\delta^{18}O$ のジャワ島内での空間代表性を検証するため、西部ジャワの Sumedang 産 4 個体(T15-1, T16-1, T21-4, T23-4)、Indramayu 産 2 個体(jatiNAN1, jatiNAN2)について、過去 59 年あるいは 29 年にわたり年々スケールで炭素・酸素同位体比を 測定した。これらのチーク $\delta^{18}O$ の時系列データは、先に示した Cepu 産、Dungus area 産の結果や Schollaen et al. (2013)の先行研究と有意な相関があるので、チーク $\delta^{18}O$

は空間代表性が高く、ジャワ島広域における共通の気候情報を反映していると言える。 現在、チーク δ^{18} O が気候を記録するプロセスをより詳細に理解するため、同位体比のモデル化に取り組んでいる。



図 1: 収集したインドネシア産 熱帯樹の写真。(左) 名古屋大学・農学研究科・山本研究室からの提供材。(右) インドネシア・Gadjah Mada 大学・Marsoem 教授からの提供材。

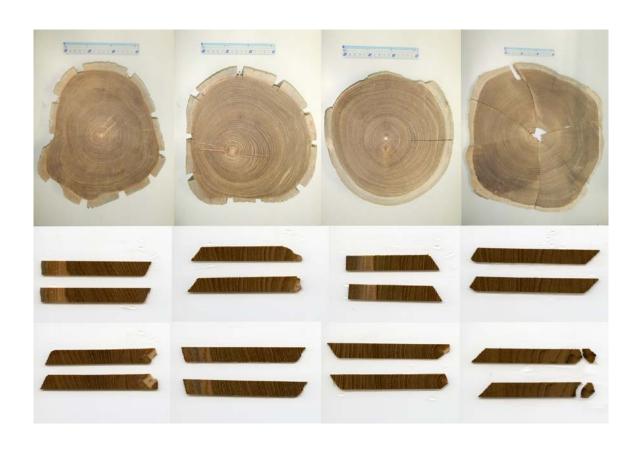


図 2: インドネシア産 チーク試料の写真。左から Nago6-2、Nago1-2、Nago2-3 (Cepu 産; 名古屋大学・農学研究科・山本研究室からの提供材)、DGS-215 (Dungus area 産; インドネシア・Gadjah Mada 大学・Marsoem 教授からの提供材)。下段のような厚片(1 mm 厚)を作成し、その厚片ごと α - セルロース抽出した後、顕微鏡下で年輪ごとにサンプルを切り出し、同位体比測定を行った。

6. 今後の展開

スンカイについては、複数の年輪構成要素を分析することにより、季節オーダーの気候復元が可能であることを示唆できた。チーク δ^{18} O については、ジャワ島広域においてその同調性を確認でき、共通の気候情報を記録していることを明示できた。今後、チーク δ^{18} O のモデル化に取り組み、チーク δ^{18} O が気候を記録するプロセスをより詳細に理解することにより、より厳密な古気候指標としての評価をしていきたい。また、スンカイについても同様のモデル化を行い、気候応答に対する樹種間の差異についても検証する予定である。

7. 引用文献

- 1) Y. Watanabe, S. Tamura, T. Nakatsuka, S. Tazuru, J. Sugiyama, B. Subiyanto, T. Tsuda, T. Tagami, Comparison of sungkai tree-ring components and meteorological data from western Java, Indonesia, Journal of Disaster Research, vol. 8, pp. 95-102. 2013.
- 2) M. Harada, Y. Watanabe, T. Nakatsuka, S. Tazuru-Mizuno, Y. Horikawa, J. Sugiyama, T. Tsuda, T. Tagami, Alpha-cellulose extraction procedure for tropical tree sungkai (Peronema canescens Jack) by using an imporoved vessel for reliable paleoclimate reconstruction, Geochemical Journal, vol. 48, pp. 299-307. 2014.
- 3) M. Harada, Y. Watanabe, T. Nakatsuka, S. Tazuru-Mizuno, Y. Horikawa, B. Subiyanto, J. Sugiyama, T. Tsuda, T. Tagami, Assessment of Sungkai tree-ring $\delta^{18}O$ proxy for paleoclimate reconstruction in western Java, Indonesia, Quaternary International, in press.

8. 付記

- 1) M. Harada, Y. Watanabe, T. Nakatsuka, S. Tazuru-Mizuno, Y. Horikawa, J. Sugiyama, T. Tsuda, T. Tagam, Estimation of alpha-cellulose extraction time for tropical tree for reliable paleoclimate reconstruction and its applications, INQUA Early Career Researcher inter-congress meeting, Wollongong, Australia, 2-6 December, 2013.
- 2) 原田麻央, 渡邊裕美子, 中塚武, 田鶴寿弥子, 堀川祥生, バンバンスビヤント, 杉山淳司, 津田敏隆, 田上高広, インドネシア西ジャワにおける古気候復元のためのスンカイの年輪の d¹⁸O プロキシの評価, 日本地球惑星科学連合 2014 年大会, 横浜パシフィコ国際会議場, 神奈川, 2014 年 4 月 28 日 5 月 2 日.
- 横浜パシフィコ国際会議場,神奈川,2014年4月28日-5月2日. 3) 渡邊裕美子,原田麻央,田上高広,中塚武,田鶴寿弥子,杉山淳司,津田敏隆,樹木年輪と歴史・古環境:アジア赤道域における季節スケールの古環境復元に向けて,生存圏科学の新領域開拓シンポジウム -ロングライフイノベーション共同研究-,京都大学,2014年11月26日.
- 4) Y. Watanabe, Y. Nishida, M. Sano, T. Nakatsuka, S. Tazuru, J. Sugiyama, T. Tsuda, T.

- Tagami, Oxygen isotopic variations over the last 70 years of javanese teak trees, INQUA, Nagoya, Japan, 26 July 2 August, 2015.
- 5) 新井貴之,渡邊裕美子,久持亮,津田敏隆,田上高広,インドネシアジャワ島のチーク年輪幅を用いた古気候復元の基礎研究,日本地球惑星科学連合 2016 年大会,幕張メッセ国際会議場,千葉,2016 年 5 月 22 日 26 日.
- 6) 久持亮, 渡邊裕美子, 栗田直幸, 佐野雅規, 中塚武, 松尾美幸, 山本浩之, 杉山淳司, 津田敏隆, 田上高広, 年輪 d¹⁸O によるインドネシア・ジャワ島の古気候復元の可能性, 日本地球惑星科学連合 2016 年大会, 幕張メッセ国際会議場, 千葉, 2016年5月22日-26日.

新研究醸成支援プログラム

1) 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(京都大学生存圈研究所) 共同研究者:杉山 暁史(京都大学生存圈研究所)

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、通常の大きさ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 m1 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)」)を使っての 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 μ mol m-2 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。

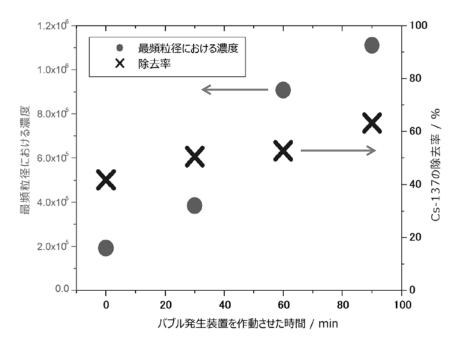


図1. ナノバブル発生装置の稼働時間と, 最頻粒径における濃度(1ml中の個数),砂礫からのCd-137の除去率の関係

トルコキキョウの染色傾向の違い(黄色)

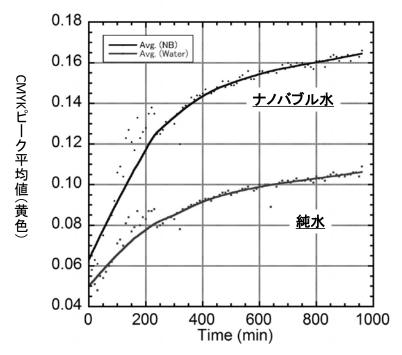


図2. ナノバブル水を用いた際の花き類の着色度合いの違い。着色にはパレス化学「ファンタジー(オレンジ)」を用い、CMYK解析は計算機上で行った。

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、それに応じ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

- 1) 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
- 2) 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
- 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, 「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 2 0 1 2 0 0 0 7 6 3 「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回京都大学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)

新研究醸成支援プログラム

2) 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(京都大学生存圈研究所) 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。そのうちディ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、毎年に大学院生・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/

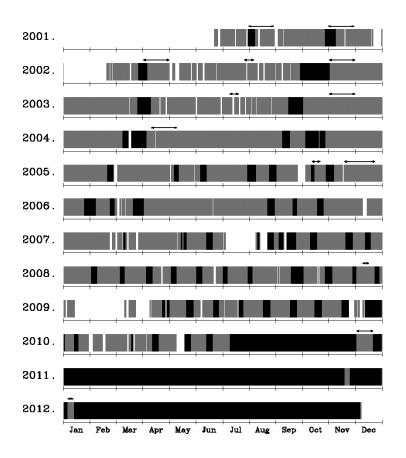


図1 EAR 完成以来の観測状況。薄い色は大気風速観測モード、濃い色は電離圏を含む観測モードに対応している。2010年7月以降は本課題に関する観測を継続している。

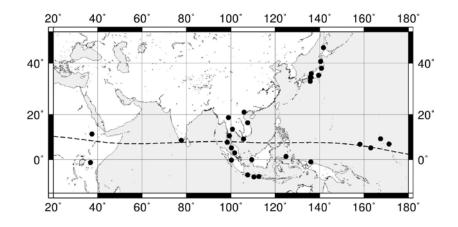


図 2 衛星ビーコン受信機 GRBR 観測網の広がり。東南アジアを中心として 低緯度地域に約 20 点、日本を含めると約 30 点に達している。 (図中の点線は磁気赤道を示す)

新研究醸成支援プログラム

3) 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(京都大学生存圈研究所) 共同研究者: 杉山 淳司(京都大学生存圈研究所)

堀川 祥生(京都大学生存圈研究所)現:東京農工大学農学研究院

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

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。

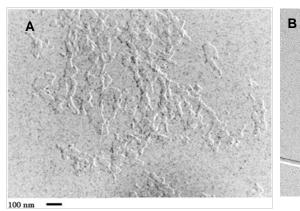
一方、天然のセルロースは生物の細胞膜で合成される。そこには溶解・再生の過程は存在せず、高分子量化の過程の直後に構造形成過程が存在すると考えられている。そして大変興味深いことに、ほぼ例外なくI型結晶かつ微小繊維(ミクロフィブリル)の形態を持つことから、セルロース合成酵素には、特殊な構造形成機構が存在すると推察される。したがって、その機構の実体に変異を導入することができれば、分子集合構造の改変が原理上可能となる。そこで本研究課題では、組換え体セルロース合成酵素を使ったセルロース合成系の開発を行い、部位特異的変異を導入した合成酵素を使用することで、de novo 構造制御による新規セルロース性材料の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

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、例外なくミ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、セルロースミ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ミクロフィブリルとなるのではなく、セルロースをミ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。



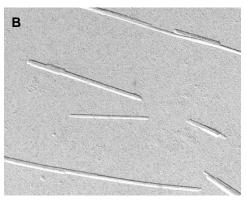


図1 人工・天然セルロースの電子顕微鏡像

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、ミ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)

新研究醸成支援プログラム

4) 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試み

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)

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2:太陽エネルギー変換・高度利用

ミッション 4:循環型資源・材料開発

3. 研究概要

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、静電容量型脱イオン(CDI)法を用いた放射性汚染の低減を提案する。CDI 法では海水から Na イオンを回収した後、電圧を減少することによって Na イオンを放出し回収する。一方、多孔質炭素電極は使用後再生され、再び使用することができるので新たな公害源とはならない。

CDI 法において塩イオンは一時的に多孔質炭素電極の中に吸着され、その後脱着される。使用後再生される多孔質炭素電極において吸着と脱着は連続的に行われ、何度も繰り返し多孔質炭素電極を使用することが可能である。多孔質炭素電極はCDI 用セルの一部であり、塩イオンの吸着において重要な役割を果たす。多孔質炭素電極の内部表面積、つまり、多孔質炭素電極表面の吸着サイトの特性次第で塩イオンの除去量が決まる。現在電極合成市場において、活性炭が多孔質炭素電極用に主として用いられているのは、その高い内部表面積にあるといえる。一方、活性炭よりも大きい吸着量をもち、持続使用可能で高効率な多孔質炭素電極の開発が求められている。ここでは、木質系多孔質炭素電極を用いた CDI 法を適用する予備的検討のため、セシウムイオンではなく比較が容易な Na イオンを用い、木質系多孔質炭素電極の基本的な性能を調べた。

スギ炭で 1.2V の電圧をかけたところ、異なる種類のサンプルの中で、イオン吸着容量は最大値 0.56mg/g、充電効率は最大値 0.49 であった。これらの値は文献値の炭素電極と比較して小さく、実用に供するためには木質系炭素電極の結晶構造、および空隙構造に起因する特性をさらに向上させることが必要である。木質由来の多孔質炭素材料を CDI 法で用いるには、現段階では炭素の結晶構造や空隙構造の最適化が十分ではないと考えられる。

低温熱分解と金属錯体の併用による触媒熱分解によって炭素材料の結晶構造や空隙構造を最適化し、電気伝導性やイオン吸着性能を向上させることが必要である。炭素化物表面に形成される金属錯体の微細構造を調べたところ、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、それらの酸性官能基とセシウムイオンが錯体を形成することにより、セシウムの吸着が起こることが共同研究者の研究で明らかにされている。CDI法と炭素電極表面へのイオン交換性官能基付加の両方の効果により、セシウムイオンの吸脱着効果がより向上すると思われる。

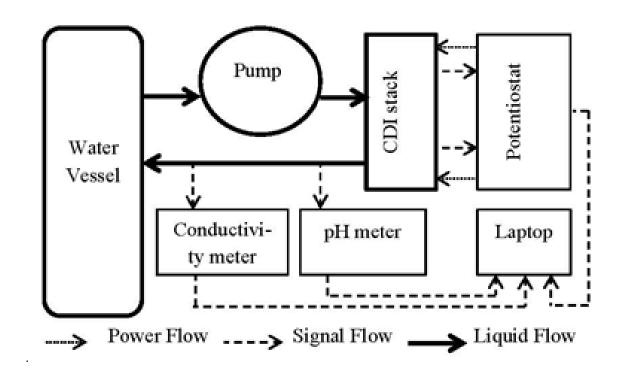


図1:イオン交換膜 CDI 単セルの模式図

新研究醸成支援プログラム

5) 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 生存圈研究所) 共同研究者:山本 衛 (京都大学 生存圈研究所)

山本 真之(京都大学 生存圈研究所)

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ため、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ことができれば、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なっており、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。

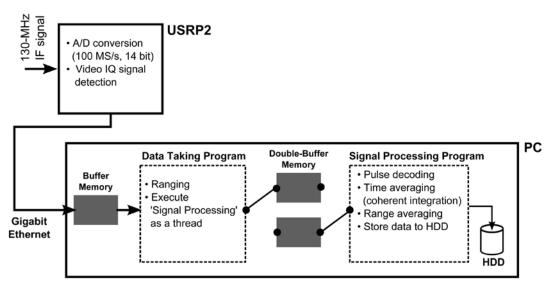


図 2. 新開発のコンフィギュラブル受信機におけるオンライン信号処理

6. 付記

関連業績

- 中城智之・小倉佑基・佐々木健治・齋藤陽一朗・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 ウインドプロファイラー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,傾斜型ウインドプロファイラーと 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,傾斜型ウインドプロファイラーと 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・岩渕真海・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.

6) 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(京都大学生存圈研究所)

共同研究者:樫村 京一郎 (京都大学生存圈研究所) 現:中部大学工学部

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砕断面,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・廃プラスティ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。

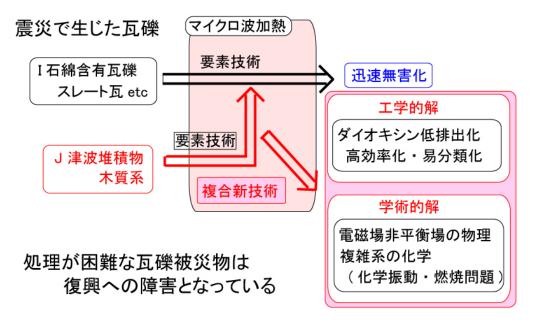


図1 本研究の概要

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。

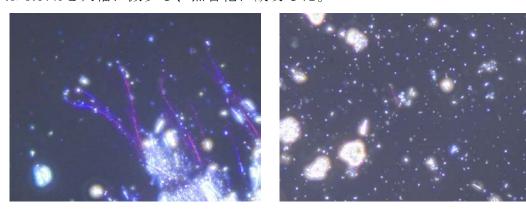


図 2 (a) マイクロ波処理前の瓦礫の顕微鏡写真 (b) 処理後の顕微鏡写真

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)

7) 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)

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、また大気の HO_x 濃度に重要な影響を与えている。しかし、その大気で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、また大気の HO_x 濃度に重要な影響を与えている。しかしその大気で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

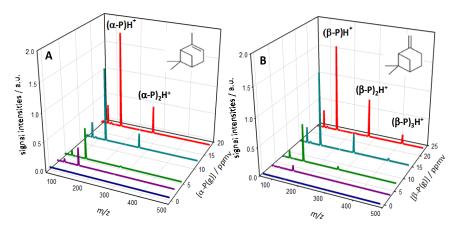


図 1 : 新規界面反応測定装置で得られた酸性表面(pH 2.6)に吸着した α -ピネン (A)と β -ピネン(B)の質量スペクトル

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 $^{6,7)}$ 。本研究から得られたテルペンの $^{6,7)}$ 。本研究から得られた。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 $^{6,7)}$ の $^{6,7)}$ 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 $^{6,7)}$ の 6,7

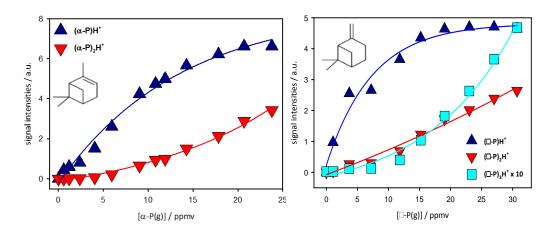


図 2 : 酸性表面に沈着した α -ピネンと β -ピネンがカルボカチオン (上向き三角)、ダイマー (下向き三角)、トリマー (四角) になる収率の気体濃度依存性

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**, 10.1029/2006g1028468, 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.

8) 光合成微生物を用いた太陽エネルギーによる イソプレン生産技術の開発

矢崎 一史 京都大学生存圏研究所

1. 研究組織

代表者氏名:矢崎一史(京都大学生存圈研究所) 共同研究者:杉山 暁史(京都大学生存圈研究所)

> 福澤 秀哉 (京都大学生命科学研究科) 梶川 昌孝 (京都大学生命科学研究科)

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

バイオエネルギー、循環型材料

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

イソプレンは工業原料として、世界的に 100 万トンレベルで利用されている揮発性の炭化水素である。特に、合成ゴムはイソプレンを原料とする代表的な製品であり、車のタイヤや車両補体の緩衝材などとして世界中で利用されている。その原料は、100%化石資源に依存しているため、原油価格の高騰は直接合成ゴムなどの製造業にとって大きな打撃になっている。実際、2005 年前後の石油価格の高騰時、我が国のみならず、世界の大手石油化学工業が、生物素材からイソプレンを生産させる試みについて模索を行った。実際に米国では、タイヤ大手のグッドイヤーが大腸菌を使った遺伝子組み換え技術で特許を取得するなど、生物にイソプレンを生産させる研究はここ最近、低酸素社会の意識の高まりと連動してきているところである。

一方、植物の中にはイソプレンを大量に葉から放出する種が多くあり、その量は、年間 100~Tg~carbon~cも上る $^{1)}$ 。特に温帯から熱帯域に生育する広葉樹や大型の草本が、大気中にイソプレンを大量に放出する現象は大気化学の研究分野では早くから報告がなされてきた。また植物や藻類におけるイソプレンの生産は、葉緑体において MEP 経路で供給される dimethylallyl diphosphate (DMAPP)を直接の基質にして合成されていることも報告されている $^{2)}$ 。矢崎らは、植物生理学的な観点からイソプレン放出の植物にとっての意義ついての分子生物学研究を行い、これまでに研究成果を数報の論文と

して報告した ^{3,4})。本研究はその応用展開として、光合成微生物を使ってイソプレンを 生産させ、従前の様々な問題点を解決すべく、培養器のヘッドスペースからイソプレンを効率よく回収する生産系を構築することを目的とする。イソプレンはその全てを 石油資源に依存しているマルチパーパスの化学原料として、石油の枯渇と同時に供給 を考えねばならない重要化合物である。

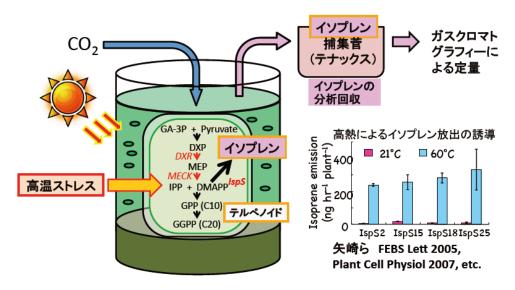


図 1. 緑藻をつかったイソプレン生産のスキーム IspS, イソプレン合成酵素: DMAPP, ジメチルアリルジリン酸

本研究は研究所が推進する生存圏の科学において、生命科学と大気化学の融合研究で行った植物からのイソプレン放出研究を、さらに一歩問題解決型の研究の方向に発展させるものであり、研究所の現ミッションの発展型を目指すものとして位置づけられる。新領域開拓研究においては、光合成微生物による化学原料の生産技術開発に取り組むものであり、脱石油資源社会における人間生活の QOL の維持向上を、有用化学資源の供給面から下支えする研究としてのポテンシャルを有する。

活動の期間を通して、光合成微生物への形質転換、遺伝子導入ラインの確立と培養、ペプチド抗体の検定、複数の高発現クローンを用いたヘッドスペースのイソプレンのGC-MSによる解析を行った。得られた成果に関しては現在特許出願の書類を準備中である。

4. 今後の展開

イソプレンの重要性は世界中で認識され、その供給は石油価格の高騰に直接リンク した喫緊の課題でもある。世界的にはバイオエネルギーとしてのバイオエタノールや、 ブタノールの生産が主流であるが、類似の低分子量炭化水素としてイソプレンは、化 学原料としての重要性が高いため、燃料とするよりも高付加価値の化合物として認識 されている。したがって、生物によるイソプレンの生産研究は企業側からも、大学の研究としても高い新奇性と有用性のある研究であり、遺伝資源の種類、発現デザインの構築、ホスト生物の選定、培養技術の至適化、イソプレンの回収技術の開発など、取り組むべき技術要素は多く、一定の成果を元に国家プロジェクトとしての提案も視野に入れられる、大きな研究領域に発展するポテンシャルがある。実際、最近でも様々な発現コンストラクトを用いた藍藻でのイソプレン生産の報告がなされたばかりでもあり、世界的に高まりを見せている研究でもある50。

研究所のミッションと照らし合わせても、化学物質の生産工場としての植物の能力を新たに光合成微生物に求める本研究は、次期ミッションの一つの中核的テーマの一つに育つものと期待される。

5. 引用文献

- 1. Guenther, A. Chemisphere, 49, 837-844 (2002)
- 2. Schwender J, Zeidler J, Gröner R, Müller C, Focke M, Braun S, Lichtenthaler FW, Lichtenthaler HK. Incorporation of 1-deoxy-D-xylulose into isoprene and phytol by higher plants and algae. *FEBS Lett.*, 414, 129-34 (1997)
- 3. Sasaki, K., Ohara, K., Yazaki, K. Gene expression and characterization of isoprene synthase from *Populus alba*, *FEBS Lett.*, 579, 2514-2518 (2005).
- 4. Sasaki, K., Saito, T., Lämsä, M., Oksman-Caldentey, K-M., Suzuki, M., Ohyama, K., Muranaka, T., Ohara, K., Yazaki, K. Plants utilize isoprene emission as a thermotolerance mechanism, *Plant Cell Physiol.*, 48, 1254-1262 (2007)
- 5. Pade, N., Erdmann, S., Enke, H., Dethloff, F., Dühring, U., Georg, J., Wambutt, J., Kopka, J., Hess, W. R., Zimmermann, R., Kramer, D., Hagemann, M., Insights into isoprene production using the cyanobacterium Synechocystis sp. PCC6803, Biotechnol. Biofuels. 9, 89 (2016)

9) LED 光環境と形質発現の相関解析による人工光栽培植物の生産性向上

鈴木 史朗 京都大学生存圏研究所

1. 研究組織

代表者氏名: 鈴木 史朗(京都大学生存圈研究所)

共同研究者: 柘植 知彦(京都大学化学研究所)

肥塚 崇男(山口大学農学部)

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

人工光利用型植物工場、光形熊形成

ミッション1:環境計測・地球再生

3. 研究概要

本研究は、LED 光環境が植物の香気成分や器官形態などの重要な農業形質発現に及ぼす影響を明らかにし、LED 光源によって栽培した植物の生産性向上を目指すものである。

省エネルギーや収益性向上という観点から、LEDを光源に用いた植物工場による作物栽培が 今後盛んになると予想されている。しかし、LED照明では、高成長・高品質を達成できない植 物種が多く、商用栽培される作物は、数種の葉物野菜やハーブなどに限定されている。

近年、植物の光情報伝達経路を解明する研究は大きく進展し、フィトクロムやクリプトクロムなどの光受容タンパク質によって光が受容され、植物の様々な形質発現に関わる遺伝子の転写が制御されて、最終的に形質発現(光形態形成・光応答性代謝物生産)が生じるモデルが提唱されているり。しかし、LED 照明による作物栽培は歴史が浅く、様々な LED 光環境がどのように光受容タンパク質によって感知され、色、形、香り、歯ごたえ、機能性成分等の有用形質が変化するのか未知の点が多い。したがって、上述の LED 照明下において、高成長・高品質を達成できない植物種は、LED 光による形質発現が最適化されていない可能性が高い。そこで、LED 光環境と各々の形質発現との関係が明らかとなれば、より精密な光環境制御や、LED 栽培に適した品種の作出を行なうことができ、多くの植物種が LED 利用型植物工場で栽培可能となると考えられる。

そこで、本研究では、LED 栽培作物のモデルとして、キャベツ、ダイコン、コマツナなど作物種が多く含まれているアブラナ科に属するシロイヌナズナ(*Arabidopsis thaliana*)を用い、光受

容体変異株と野生株とをLED照射下および蛍光灯照射下で栽培し、重要な農業形質(器官形態、香気成分、細胞壁成分・形態など)の変化を比較解析することにより、LED光環境と形質発現の相関関係を明らかにする。

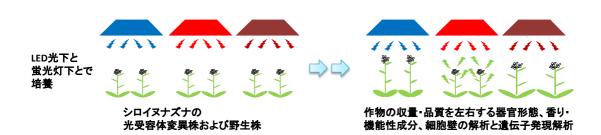


図1. 本研究の概要

4. 引用文献

1. 柘植知彦, 安喜史織, 「第1章 光受容体と光情報伝達」, 「最新 植物生理化学」(長谷川宏司、 広瀬克利 編), 大学教育出版, 23-50, 2011.

10) マイクロ波照射によるバイオマスからのグラフェン合成に 関する研究開発動向調査

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(京都大学生存圈研究所) 共同研究者:三谷友彦(京都大学生存圈研究所)

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

電磁場の生体影響、新研究醸成支援プログラム

ミッション2:太陽エネルギー変換・高度利用

ミッション4:循環型資源・材料開発

3. 研究概要

グラフェンは二次元の平面材料であるため化学的には非常に単純だが、極めて強度があり、電気を通し、熱を放散し、透明性が高い。次世代コンピューターの半導体や、タッチスクリーン、電気機器などへの応用に関心が高まっている。持続可能な生存圏を実現する上でキーとなっているグラフェンのイメージを図1に示す。グラフェンの実用化を進めるためには製品の低価格化と性能向上の両方からの取り組みが必要であるが、グラフェン合成には高度な技術とで高価格とがネックとなり実用化が進んでいないのが現状である。

グラフェンの基本単位である単層グラフェンは、炭素原子がベンゼン環構造に緻密に圧縮された炭素からなる層で、カーボン繊維、ナノチューブおよびフラーレンなどの基本構造である。2010年、この単層グラフェンに関する革新的な実験を行った研究者にノーベル物理学賞が授与された。単層グラフェンには六角形の網構造をもつ炭素原子が平面に存在する。しかし量産技術の確立が遅れている。熱分解によりSiC上に生成する方法や触媒金属層上に化学的気相法で成長させる従来法があるものの大量生産には解決すべき問題が多い。一方、木材は難黒鉛化材料といわれ結晶化しにくい材料と考えられていて、木質からのグラフェンの合成は不可能と考えられていた。

ここでは、木質から多層グラフェンを合成し、電子顕微鏡と顕微ラマン分光装置を用いて組織構造の観察と構造解析を行った。木質バイオマスから多層グラフェンを合成し、電子エネルギー損失分光装置付属透過電子顕微鏡(TEM-EELS)と顕微ラマン分光装置を用い、木質系多層グラフェンサンプルのキャラクタリゼーションを行った。高温焼結により得られたバイオマス系グラファイトに酸化処理とマイクロ波照射処理を行い、得られた多層グラフェンを分析装置により元素分析や化学結合状態を調べた。さらにフランスオルレアン CNRS の CRMD 部門において、ヨーロッパにおけるグラフェンの研究・開発動向について調査した。実験の結果、木質バイオマスから得られたグラフェンは多層グラフェンであることがわかった。また、ヨーロッパの動向を調査したところ、単層グラフェンの新用途開発について国家プロジェクトが組まれ進められていた。単層グラフェンと多層グラフェンは別物であり、日本は多層グラフェンの用途開発で優位な位置にある。再生可能な木質からの多層グラフェンの開発とその応用に早急に取り掛かるべきである。

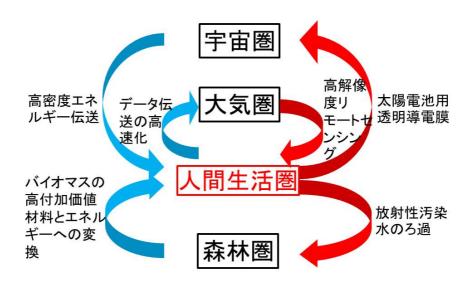


図1:グラフェンを介した持続可能な生存圏の実現

11) 植物揮発性物質が駆動する植物・植食生昆虫・捕食性昆虫の 共進化

高林 純示 京都大学生態学研究センター

1. 研究組織

代表者氏名:高林 純示 (京都大学生態学研究センター)

共同研究者:矢崎一史(京都大学生存圈研究所)

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

3. 研究概要

植物は植食性節足動物(植食者)の食害に応答して、植食者誘導性植物揮発性物質 (Herbivore-Induced Plant Volatiles: HIPVs)と呼ばれる揮発性物質群の生産を開始する。 HIPVs は植食者の捕食者・捕食寄生者 (天敵)を誘引する機能があることが実証されている。これは、植物と天敵との共生的な相互作用と言うことができる。かかる共生関係は、どのように進化してきたのか、に関して HIPVs の中でも緑のかおりと呼ばれる一連の化合物に焦点を当て研究を行った。

緑のかおりは組織が障害を受けた際に生じるリノール酸、リノレン酸を基質としてフィトオキシリピン経路を経て速やかに作られる。最初に生産される青葉アルデヒド((E)-2-hexenal)は α,β -不飽和アルデヒドと呼ばれ、反応性が高く障害を受けた部分での微生物に対する直接防衛機能を有すると考えられる。青葉アルデヒドは毒性が高いため、植物組織において自家中毒を起こすと考えられ、過剰分は直ちに周辺組織で毒性のない青葉アルコール、青葉アセテートに変換された後、大気中へ放出される。本研究では、青葉アルデヒド、青葉アルコール、青葉アセテートに対して誘引される天敵の反応性から、「障害→直接防衛→解毒→系外放出」プロセスが植物-天敵間の共生関係を媒介する化学情報に利用される進化過程を考察する。

4. 研究の背景と目的

植物は植食性節足動物(植食者)の食害に応答して、植食者誘導性植物揮発性物質 (Herbivore-Induced Plant Volatiles: HIPVs)と呼ばれる揮発性物質群の生産を開始する。 HIPVs は植食者の捕食者・捕食寄生者 (天敵)を誘引する機能があることが実証され

ている。これは、植物と天敵との共生的な相互作用と言うことができる。かかる共生 関係がどのように進化してきたのかに関しては、これまでにも議論されてきている が、確たる関連データを持った議論はなされてこなかった。

我々は、シロイヌナズナを用いて、緑のかおりの生合成とその生態機能について研究を行ってきている。緑のかおりは機械的傷でもチョウ目幼虫の食害でも誘導的に生産される。モンシロチョウ幼虫が食害したアブラナ科植物株から放出されるHIPVsにスペシャリスト天敵であるアオムシサムライコマユバチが誘引されるが、この誘引には緑のかおりが関与している $^{1)}$ 。またシロイヌナズナにおける緑のかおりの生態機能として、病原菌に対する直接防衛能を報告している $^{2)}$ 。さらに、シロイヌナズナにおいては、緑のかおりの出発物質となる青葉アルデヒドは毒性が高いため、植物組織において自家中毒を起こすと考えられ、過剰分は直ちに周辺組織で毒性のない青葉アルコール、青葉アセテートに変換された後、大気中へ放出されることも示した $^{3)}$ 。

5. 研究の結果および考察

他の植物における緑のかおりの放出特性(健全時、機械的障害時、食害時)を文献で検索した。また、様々な植物-植食性節足動物-捕食性節足動物からなる三栄養段階相互作用系における緑のかおりの生態機能を解析・検索した。これまでの研究成果を踏まえ、直接防衛物質として植物が装備したと考えられる緑のかおりが、間接防衛機能(植物と天敵との共生的相互作用)へと発展的に進化したと考察した。

6. 今後の展開

結果を原著論文としてまとめる。

7. 引用文献

- 1) Shiojiri et al. J. Chem. Ecol. 32,969-679, 2006
- 2) Shiojiri et al. Proc, Nat. Acad. Sci. 103: 16672-16676, 2006
- 3) Matsui et al. PLoS One, e36433, 2012

12) 化石資源の代替としての植物根共生微生物群および竹笹類のイソプレン放出

奥村 智憲 京都大学農学研究科

1. 研究組織

代表者氏名:與村智憲(京都大学農学研究科) 共同研究者:矢崎一史(京都大学生存圈研究所)

鶴田 健二 (京都大学農学研究所)

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

大気質、植物二時代謝産物

ミッション1:環境計測・地球再生

3. 研究概要

本研究では世界的に 100 万トンレベルで利用されている揮発性の炭化水素であり、合成ゴムの原料であるイソプレンの化石資源以外からの獲得をめざし、微生物および竹笹類のイソプレン生成能について調査する。微生物や植物の中にはイソプレンを大量に生産し放出する種が存在し、たとえば植物の全球での総放出量は人間活動由来揮発性有機ガスの総放出量よりも多いことが知られている 1)。本研究では矢崎研と共同して、多くが高いイソプレン放出能をもつ竹笹類および培養毛状根に共生させた様々な微生物のイソプレン放出量の有無を計測することで、高イソプレン放出種の同定とそれらの放出能について明らかにする。

4. 研究の背景と目的

イソプレンは工業原料として有用であり、特に合成ゴムはイソプレンを原料とする代表的な製品として車のタイヤや緩衝材などとして世界中で利用されている。その原料は多くが化石資源である石油に依存しているため、原油価格の高騰や将来の枯渇は直接合成ゴムなどの製造業にとって大きな打撃となる。一方、植物の中にはイソプレンを大量に葉から放出する種があり、その量は全球で年間 100 Tg carbon にも上ると推定されている。そこで本研究は将来の枯渇が明らかである化石資源の代替としての天然資源獲得のひとつとして、合成ゴムの原料となるイソプレン生産を植物・微生物群に求めることを目指し、植物根に共生する微生物群および竹笹類のイソプレン放出能力を調べ、それらの工業利用への可能性を模索する。本研究はこれまで多くの植物

体や微生物のイソプレン放出能の測定に豊富な経験がある代表者と、イソプレノイド系代謝工学で多くの実績を上げてきた矢崎研との新しいコンセプトに基づいた融合研究であり、生命科学と大気化学の融合研究である植物のイソプレン放出研究を、さらに一歩問題解決型の研究の方向に発展させ、植物と微生物による化学原料の生産技術開発を目指すものである。なお今回の発表では主に竹笹類のイソプレン放出能について発表を行う。

5. 研究の結果および考察

まず竹笹類のイソプレン放出能を調査するために、日本(森林総合研究所)と台湾 (国立台湾大学)の見本園にて、改良した携帯型光合成測定装置 LI6400 (Li-Cor 社) を用いて (0kumura et al., 2008^{2),3)})、それぞれ日本 (20種) および台湾 (30種) の 葉のイソプレン放出速度を光合成速度や蒸散速度、日射量、葉温などとともに計測し、

種毎のイソプレン放出特性とそれぞれの環境因子との関係を明らかにした(G93 放出モデルを適応、Guenther et al., 1993¹⁾)。なお捕集したイソプレンは加熱脱着装置(ATD)を備えたガスクロマトグラフ分析計(GCFID、GCMS)を用いて定量した。次に日本を代表する竹である孟宗竹と真竹のイソプレン放出能を京都(亀岡市)の竹林において測定を行っている。孟宗竹林と真竹の樹齢毎のイソプレン放出速度をLI6400を用いて計測している。



図 1. 調查対象地

6. 今後の展開

今後は竹笹類のイソプレン放出能の測定種数を増やし、また微生物群の中からイソ プレン放出能の特に高い種を同定し、将来の工業利用としての基礎的データとして取 りまとめてゆく。

7. 引用文献

- 1) Guenther, A., Zimmerman, P. R., Harley, P. C., 1993. Isoprene and monoterpene emission rate variability: model evaluations and sensitivity analysis. *Journal of Geophysical Research* **98**, 12609–12617.
- 2) Okumura, M., Tani, T., Kominami, Y., Takanashi, S., Kosugi, Y., Miyama, T., and Tohno, S., Isoprene emission characteristics of Quercus serrata in a deciduous broadleaved forest. *Journal of Agriculture Meteorology*, **64**, 49-60, 2008.

13) 根端分裂組織における細胞膜の弾性率測定とエキソサイトーシス機構との関係

木村 俊作 京都大学大学院工学研究科

1. 研究組織

代表者氏名:木村 俊作(京都大学大学院工学研究科) 共同研究者:矢崎 一史(京都大学生存圈研究所)

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

植物二次代謝産物、植物微生物相互作用、生存圈 QOL

ミッション1:環境計測・地球再生

3. 研究概要

植物の作る生理活性物質の中には、自らの根組織を土壌中の病原性微生物や食植昆虫から守るため、根表面に化学バリアーを形成する、あるいは土壌中に生理活性物質を分泌することが知られる。これらの代謝産物は土壌中の微生物との軍備競争に関与するものも多いと考えられるが、土壌中における植物と微生物との相互作用は、根粒菌や菌根菌等の共生研究を除き、その具体的な実体は大部分が未知である。本研究では、植物の根組織の作る生理活性物質の分泌機構に焦点を置き、細胞膜の物理的特性を明らかにすること、さらにそこに関わる分子の生理機能を解明する方法論の確立を目指す。

4. 研究の背景と目的

植物と表在性微生物とは共生関係、あるいは攻撃/防御の関係にあり、それぞれが生産する化合物を介して、お互いの生命活動に大きな影響を与えている。本研究では、根組織において防御機能を担っているナフトキノン類をモデルとして ¹⁾、その未解明の分泌機構について工学的な手法を適用し、そのマシナリー解明の糸口をつかむ。本研究では、分泌を担う細胞の膜の硬さを、液中 AFM を用いた弾性率測定により評価し、植物細胞膜におけるエンドサイトーシスの機構に関する知見を得ることを目標としている。また、リポソームを用いた分泌機構の評価系構築を試みる。

5. 研究の方法及び結果

ナフトキノン形跡色色素を分泌するムラサキ培養毛状根を試料とし、培養液中で

atomic force microscopy (AFM) 測定をすることにより、膜の弾性率測定を行う ²⁾。 細胞全体の弾性率測定を行い、複数の成分で構成される条件下での膜解析を行う。また、細胞壁を除去して弾性率測定を行い、細胞の各部位での弾性率を明確にする。また、リポソームを用いた根端細胞への蛋白質あるいは遺伝子の導入系を確立し、分泌機構に関わるメンバーの機能解明の技術基盤を構築したい。



フラスコ培養の毛状根

シコニン (赤色) の分泌

表皮細胞特異的分泌

6. 今後の展開

植物の生産する高付加価値の生理活性物質は、植物自体にも毒性を示すことも少なくなく、液胞内に隔離、あるいは細胞外に放出することでそれを生産する植物は生育することができる。液胞ない隔離と異なり、こうした生理活性物質の分泌機構は、好適なモデル系が少ないこともあり、ほとんど研究が進んでいない。特に脂溶性の生理活性物質破砕妨害に放出され、アポプラストで蓄積することも多い。本研究がブレイクスルーとなることで、この研究分野の解明に向けた足がかりとなる基礎知見が得られることが期待される。将来的には、こうした分泌過程に関わる蛋白質のメンバーが明らかとなり、植物の有用物質生産の制御技術に貢献できることが期待される。

7. 引用文献

- 1) Yazaki, K. (2001). Root-specific production of secondary metabolites: regulation of shikonin biosynthesis by light in Lithospermum erythrorhizon. (Review) Natural Medicines, 55, 49-54.
- 2) Ueda M, Makino A, Imai T, Sugiyama J, Kimura S. (2011) Temperature-triggered fusion of vesicles composed of right-handed and left-handed amphiphilic helical peptides, Langmuir. 27(8), 4300-4304.

研究集会:1) 植物アロマのメタ代謝科学 「生態学、大気科学、植物科学の融合」

杉山 暁史 京都大学生存圏研究所

1. 研究組織

代表者氏名:杉山 暁史(京都大学生存圈研究所)

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

新研究醸成支援プログラム

ミッション1:環境計測・地球再生

3. 目的と具体的な内容

植物が放出する様々な揮発性有機化合物(植物アロマ)は、大気微量成分として大気質の変動に大きなインパクトを持ち、森林圏と大気圏を繋ぐインターフェースとしての役割を持つと見なされる。植物アロマに関する研究は、これまで主に生態学や植物生理学の分野で行われ、生存圏研究所や生態学研究センター、農学研究科においても研究が進められている。一方、大気化学の分野では放出された後の植物アロマの化学研究が主体であって、両方を包括して生存圏全体の生物圏構造を、植物アロマを介した生物間相互作用により理解しようとする試みはこれまでになされていない。

そこで、植物アロマを共通のキーワードとし、地球環境の将来変動を異分野融合の元で議論できる研究会を企画した。植物アロマに関して、大気科学、植物科学、生態学の研究者が一堂に会し講演とディスカッションを行った。森林圏と大気圏を繋ぐ鍵分子である植物アロマの動態に関して相互の理解が深まった。

4. 生存圏科学の発展や関連コミュニティの形成への貢献

今回、大気科学、生態学、植物生理学の研究者が、個体レベルでは微量ながら地球レベルでは大きなインパクトを持つ植物アロマを共通のキーワードに一堂に会して議論し、生存圏の生物間相互作用を駆動する植物アロマを正確に理解するための方向性についての意見交換を行った。これにより、これまでにない大気圏と森林圏を融合した共同研究の芽が生み出されたと期待できる。

将来の地球環境を予測し、持続可能な生存圏を構築するためには、大気科学、生態学、植物科学の研究者が、ミクロレベルからマクロレベルまでの統合した解析を行う必要がある。これまで、大気科学、生態学、植物生理学の3分野を統合した解析がな

されていなかった植物アロマの研究を推進することにより、生存圏科学のさらなる発展が期待される。

5. プログラム

- 10:00-10:10 開会挨拶・趣旨説明 杉山暁史 (京都大学)
- 10:10-10:40 バイオビッグデータに挑む:メタボロミクスから化学生態学に向けた ビッグデータ・サイエンスの展開 中村由紀子、森田(平井)晶、小野直亮、佐藤哲大、金谷重彦 (奈良 先端科学技術大学院大学)
- 10:40-11:10 生合成工学からみる揮発性テルペンの植物細胞内代謝イベント 矢崎一史、杉山暁史 (京都大学)
- 11:10-11:40 植物による植物アロマのリクルート 松井健二、肥塚崇男 (山口大学)
- 11:40-12:10 植物から放出される C1 化合物と微生物-植物間相互作用による炭素 循環 由里本博也、阪井康能 (京都大学)
- 13:10-13:40 レーザー分光計測で探る植物由来揮発成分の大気化学過程 高橋けんし (京都大学)
- 13:40-14:10 植物アロマの大気化学 ~不均一反応の分子レベルでの解明~ 江波進一 (京都大学)
- 14:10-14:40 植物が放出する VOC と吸収する VOC 奥村智憲 (京都大学)、谷晃 (静岡県立大学)
- 14:40-15:10 太陽光植物工場における植物アロマの活用 -植物診断と高度ガス環境 制御-

高山弘太郎 (愛媛大学)

休憩

休憩

15:20-15:50 シロイヌナズナ-アザミウマ間の相互作用とスイポウイルス媒介に関する研究

安部洋 (理化学研究所)、富高保弘 (中央農業総合研究センター)、瀬尾茂美 (農業生物資源研究所)、下田武志 (中央農業総合研究センター)、釘宮聡一 (農業環境技術研究所)、櫻井民人 (東北農業研究センター)、津田新哉 (中央農業総合研究センター)、小林正智 (理化学研究所)

15:50-16:20 植物の匂いを介した植物、植食性ハダニ、捕食性天敵の相互作用の分

子メカニズム

有村源一郎 (東京理科大学)、小澤理香 (京都大学)

16:20-16:50 植物アロマのメタ代謝の視点で生物間相互作用を考える

高林純示 (京都大学)

16:50-17:00 閉会挨拶

高林純示 (京都大学)

6. 参加者数

生存研: 8名(うち、学生2 名) 合計40名

他部局: 7名(うち、学生1 名)

学外: 25名(うち、学生0 名、企業関係 4名)

研究集会: 2) 次世代超高層大気研究検討会 「新規衛星計画にむけたブレーンストーミング」

山本 衛 京都大学生存圏研究所

1. 研究組織

代表者氏名:斎藤 昭則(京都大学理学研究科)

(生存圈研究所担当者:山本衛)

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

新研究醸成支援プログラム

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. 目的と具体的な内容

本研究集会は、地球電磁気・地球惑星研学会(SGEPSS)の分科会である中間圏・ 熱圏・電離圏(MTI)研究会を中心とする日本の超高層大気研究分野の若手・中堅研 究者が集まり、新規衛星計画を中心としたブレーンストーミングを行って、次世代超 高層大気研究の長期計画立案の端緒を開く事を目的として、平成 26 年 2 月 14 日に京 都大学東京オフィスにて開催された。

研究集会では、国内外で現在運用・計画中の中・大型衛星ミッションのレビュー、計画されている小型・超小型衛星についての現状紹介や実現可能性、これらの衛星計画を利用したサイエンスターゲットについて講演が行われた。その後のブレーンストーミングでは、100-300kmをカバーする極軌道衛星や大気光・オーロラ撮像衛星、マイクロ衛星による多点電離圏・磁気圏観測などの具体的なアイディアが出され、衛星観測実現までのスケジュールや戦略なども含めて活発に議論された。

4. 生存圏科学の発展や関連コミュニティの形成への貢献

近年、竜巻等の対流圏の活動や地震・津波などが高度 300km 付近に広がる電離圏(超高層大気の弱プラズマ部分に相当する)を大きく変調することが明らかになり、地表面から超高層大気までの結合過程の研究が重要視されるようになってきた。すなわち、超高層大気の研究は、地球大気全体の変動を捉える上で必要不可欠なものであり、生存圏科学の重要な一部分である。本研究集会で出された次世代超高層大気観測衛星のアイディアや戦略は、生存圏科学の発展に大きく寄与すると考えられる。

また、本研究集会では、これまで比較的小規模の研究チームにより進められていた 衛星計画だけでなく、次期 JAXA イプシロン衛星ミッション募集へ提案すべき総合的 な衛星の検討も行われ、MTI 研究会のみならず SGEPSS の他分野を含めて衛星計画を 考える研究者コミュニティ形成の必要性についても議論された。

5. プログラム

日時: 平成 26年 2月 14日 13:15-16:50

場所:京都大学 東京オフィス 第2会議室

(東京都港区港南 2-15-1 品川インターシティ A 棟 27 階)

13:15-13:20 「研究集会の目的・経緯」 津川卓也 (NICT)

13:20-13:50 「衛星計画紹介」斉藤昭則 (京大理)

SWARM, ICON, GOLD, SLATS, ELMOS, Cubesat, QB50

極域電磁気圏探査超小型衛星

イプシロン搭載宇宙科学ミッション提案について

2/18 次期地球電磁気圏探査検討会について

13:50-14:20 「マイクロサテライト (超小型衛星) によるスーパーコンステレーション」 高橋幸弘 (北大)

14:20-14:30 休憩

14:30-15:00 「次期 MTI 衛星計画案」渡部重十(北大)

15:00-15:30 「多点同時観測衛星に関する情報」横山竜宏 (NICT)

15:30-16:00 「CubeSat を利用した MTI 観測衛星計画」山本衛 (京大 RISH)

16:00-16:50 総合討論

6. 参加者数

生存研: 1名(うち、学生 0名) 合計10名

他部局: 1名(うち、学生 0名)

学外: 8名(うち、学生0 名、企業関係 0名)

国際共同研究「エステル型リグニン糖複合体酵素分解反応の解析」

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 (京都大学生存圈研究所) 共同研究者: 渡辺 隆司 (京都大学生存圈研究所)

片平 正人 (京都大学エネルギー理工学研究所) 永田 一真 (京都大学エネルギー理工学研究所)

Gunnar Westman (Chalmers 工科大学) Lisbeth Olsson (Chalmers 工科大学) Jenny Arnling Bååth (Chalmers 工科大学)

Johan Larsbrink (Chalmers 工科大学) Filip Nylander (Chalmers 工科大学)

Hampus Sunner(Chalmers 工科大学)他

2. 新領域開拓のキーワードと関連ミッション

新研究醸成支援プログラム

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

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注目されている。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三次元の高分子を形成している。この高分子ネットワークで特にリグニンと糖の結合構造は、その存在量は少ないもののバイオマスの高分子ネットワークを"ほどく"ための鍵となる構造であり、バイオマスの成分分離、変換反応を開発する上で重要である。植物細胞壁中で、リグニンはヘミセルロースと共有結合して Lignin Carbohydrate Complex (LCC) を形成しており、細胞壁の強度や分解性に大きな影響を与えている。バイオマス変換において、このリグニン・糖間結合の切断を高効率で行えれば、主要3成分の分離効率は大きく上昇すると期待される。本研究では、リグニン・糖間結合を直接切断する酵素に着目して、エステル型 LCC モデル化合物の合成と酵素による分解反応を行い、LCC の分析と構造解析、酵素の反応

特性と分解反応を詳細に解析するとともに、実際の植物細胞壁成分と反応させて起こる構造変換への応用を目指す。本国際共同研究ではリグニンと糖の結合構造のモデル化合物の合成グループ(スウェーデン・チェルマース工科大 Gunnar 教授ら)、微生物由来の糖の結合構造分解酵素研究グループ(スウェーデン・チェルマース工科大 Olsson 教授ら)、分解反応・構造解析グループ(京都大生存研、エネ研)が連携して糖リグニン複合体分解反応を解析する。本研究は、植物バイオマス中で、糖リグニン複合体の分子構造に関する基礎知見を与えるとともに、特異的な酵素によるバイオマス成分分解反応を解析する新しい試みである。

4. 研究の目的と結果

バイオマスを有効利用する上でリグニンと糖の分離は重要な課題となっている。植物細胞壁中で、リグニンはヘミセルロースと共有結合して Lignin Carbohydrate Complex (LCC) を形成しており、細胞壁の強度や分解性に大きな影響を与えている。バイオマス変換において、このリグニン・糖間結合の切断を高効率で行えれば、主要3成分の分離効率は大きく上昇すると期待される。本研究では、リグニン・糖間結合を直接切断する酵素に着目して、エステル型 LCC モデル化合物の合成と酵素による分解反応を行い、LCC の分析と構造解析、酵素の反応特性と分解反応を詳細に解析するとともに、実際の植物細胞壁成分と反応させて起こる構造変換をNMR 法によって観測することを目的とした。

リグニン・糖間結合を直接切断する酵素に着目して、エステル型 LCC モデル化合物の合成と酵素による分解反応を行い、LCC の分析と構造解析、酵素の反応特性と分解反応を解析した。LCC の部分構造として、 β -O-4 型リグニン二量体にグルクロン酸がエステル結合した LCC モデルの合成を行い酵素分解性について検討を行った。次に、実際の植物細胞壁成分と反応させて起こる構造変換への応用を見据え、その基盤としてLCC 画分との反応解析を行った。まず、天然木材から LCC 画分を抽出し、エステル型構造を含む LCC フラクションの濃縮を行った。得られた LCC 画分について酵素処理前後における 2 次元 1 H- 13 C HSQC NMR 解析を行い、天然 LCC 結合に対する反応性を解析した。微生物由来の新規エステラーゼ処理の有無とへミセルラーゼ処理の併用の効果について検討を行った。その結果、ヘミセルラーゼ処理後の LCC 画分にエステラーゼ処理を行った試料について、LCC エステル結合の挙動解析を行った。スウェーデンから研究者を招聘し国際セミナーを開催した。(図)

5. 付記

 H. Nishimura, A. Kamiya, M. Katahira, T. Watanabe, NMR study of Lignin-carbohydrate Linkage in Milled Wood, *Polyphenols Communications* 2014, 331-332, 2014.

- 2) Watanabe, T., Nishimura, H., Okamura, H., Sakai, H., Nakamura, M., Nakamura, H., Takaya, M., Katahira, M., Structural analyses of lignin using ultra-high sensitivity NMR for biorefinery, 5th Int. Symp. Adv. Energy Sci., Kyoto, 2014.9.30-10.2.
- 3) Filip Nylander, Benzyl esters in lignocellulosics synthesis and enzymatic hydrolysis, Organikerdagarna 2014, 10-13 June 2014, Djurönäset, Stockholm
- 4) H. Nishimura, A. Kamiya, M. Katahira, T. Watanabe, Structural analysis of lignin-carbohydrate complex., Lignobiotech III, 3rd Symp. Biotechnol. Appl. Lignocelluloses: 39, 2014.
- 5) 西村裕志, Filip Nylander, Hampus Sunner, Gunnar Westman, Lisbeth Olsson, 片平正人, 渡辺隆司, リグニン糖複合体の分析と酵素分解, 第65回日本木材学会大会, 東京, 2015.3.18
- 6) 西村裕志, Bååth Jenny Arnling, 永田一真, Klaubauf Sylvia, Olsson Lisbeth, Nylander Filip, Westman Gunnar, 片平正人, 渡辺隆司, 木質中のリグニン糖複合体とその酵素分解反応の解析, 日本農芸化学会2016, 札幌, 2016/3/29
- 7) Hiroshi Nishimura, Structural analysis for lignocellulosic biomass, 6th Int. Symp. Adv. Energy Sci., Kyoto, 2015.9.1 [invited]
- 8) Nishimura H., Kamiya A., Katahira M., Watanabe T., Characterization of lignin-carbohydrate complex linkages using nuclear magnetic resonance spectroscopy, Pacifichem 2015, Hawaii, USA, 2015.12.19
- 9) Hiroshi Nishimura, NMR analyses of wood cell wall structures and the biodegradation, WWSC special seminar, Wallenberg Wood Science Center, Sweden, 2016.1.28
- 10) Hiroshi Nishimura, Characterization of lignin and lignin-carbohydrate linkages in wood, RISH International seminar-Chemistry and Biotechnology for Lignocellulose, Uji, 2016.2.18
- 11) Jenny Arnling Bååth, The action of glucuronoyl esterases on lignin-carbohydrate ester bonds, RISH International seminar-Chemistry and Biotechnology for Lignocellulose, Uji, 2016.2.18
- 12) Johan Larsbrink, Bacterial degradation of complex carbohydrates by polysaccharide utilization loci, RISH International seminar-Chemistry and Biotechnology for Lignocellulose, Uji, 2016.2.18
- 13) Takashi Watanabe, Biorefinery study to utilize plant cell wall components for 2nd generation biofuels and chemicals, RISH International seminar-Chemistry and Biotechnology for Lignocellulose, Uji, 2016 年 2016.2.18
- 14) 永田一真, 西村裕志, 片平正人, 渡辺隆司, NMR 法を用いた木質バイオマスに おけるリグニン-糖結合の解析, 第 66 回日本木材学会大会, 名古屋大, 2016/3/27
- 15) Filip Nylander, Hampus Sunner, Lisbeth Olsson, Paul Christakopoulos, Gunnar

Westman, Synthesis and enzymatic hydrolysis of a diaryl benzyl ester model of a lignin-carbohydrate complex (LCC), *Holzforschung*. 70, 5, 385–391, 2015.9.

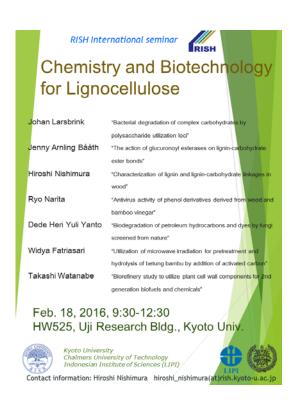




図 スウェーデンからの招聘研究者を迎えて国際セミナーを開催。

平成27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 最終成果報告

発行日平成28年8月25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

