

機関番号：16401

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2008 ~ 2010

課題番号：20580364

研究課題名 (和文) 日本・タイ両国における植林樹木ウッドスピリッツの新活用技術
開発に関する研究研究課題名 (英文) Study on new utilization methods of wood spirits from the artificial
forests in Japan and Thailand

研究代表者

大谷 慶人 (OHTANI YOSHITO)

高知大学・教育研究部自然科学系・教授

研究者番号：30253339

研究成果の概要 (和文)：日本国産ヒノキおよびタイ国産ユーカリの植林地から排出される間伐材あるいは枝葉などの林業廃棄物から樹木精油を抽出し、新たな用途を探ることを目的に4つの利用法を検討した。まず、ヒノキ精油と廃発泡ポリスチレンとの複合体を住宅用建材に塗布して防腐防蟻効果を調べ、現時点で野外においても3年間有効であることを明らかにした。第2にディーゼル排ガスなどの空気汚染物質を低濃度ヒノキ精油蒸気に接触させることにより大幅に汚染物質を軽減させることができた。第3にヒノキ精油、ユーカリ精油の抗酸化活性、抗菌活性を明らかにし、その用途に利用できることを明らかにした。第4に樹木精油の自律神経系に及ぼす効果を調べ、ヒノキ葉精油およびユーカリ精油は副交感神経を亢進する働きのあることを明らかにした。

研究成果の概要 (英文)：The new methods to utilize the essential oils, especially taken from the forest waste materials of hinoki (*Chamaecyparis obtuse* Endl.) and eucalypt (*Eucalyptus camaldulensis* Dehnh.) were developed in order to raise the total value of hinoki and eucalypt woods. Evaluation and value-added utilization of the essential oils was carried out based on the following four abilities, (1)antifungal and antitermitic agents composed of the waste expanded polystyrene (EPS) and the essential oil, (2) cleaning and detoxifying the polluted air like diesel exhausting gas with hinoki oil fumigant, (3) antioxidative and radical scavenging agents, (4)functional fragrance for human physiological behavior controlling.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	2,000,000	600,000	2,600,000
2009年度	700,000	210,000	910,000
2010年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：農学

科研費の分科・細目：境界農学・環境農学

キーワード：ウッドスピリッツ, ヒノキ油, ユーカリ油, 抗菌, 抗蟻, 天然防腐剤

1. 研究開始当初の背景

ヒノキは日本国内において広く植林されており、耐朽性の高い代表的な建材であること

は衆知の事実である。一方、ユーカリ属カム
ルドレンシスはタイ国において植林され、主
に紙パルプ原料として使われている。我々は、

長年、ヒノキの耐朽性に関する研究を続けてきており、その最大の理由が材に存在するヒノキ油にあることを明らかにした。および、ユーカリについてはタイ国の研究者と協力して未利用部分の活用法を検討している。ユーカリ属カマルドレンシスはタイ国最大の紙パルプ企業である Siam Forestry 社が独自に品種を開発してタイ国内で地域の林業家により広く植林されている。パルプ材としては不要な枝葉・樹皮部分などの処理が大きな問題となっている。ヒノキ、ユーカリともに、樹木各部にエッセンシャルオイル（ウッドスピリッツ）が豊富に含まれ、ヒノキ油、ユーカリ油として広くその価値が認められている。通常、材料の1～2%がエッセンシャルオイルとして採取可能であり、残り98%以上は地産地消型のバイオマスエネルギー原料として使用できる。なお、エッセンシャルオイルの採取装置も進歩しており、バイオマスの乾燥工程でも採取できるようになっている。すなわち、バイオマスエネルギープラントに併設するだけでオイルの採取が可能である。我々はこのようにして得られたウッドスピリッツの利用法として4つの利用法を着想し、それらの可能性を調べつつある。

2. 研究の目的

ウッドスピリッツとしてヒノキ・ユーカリ油を対象に、その利用法に関して、次の4項目を明らかにする。

- (1) ウッドスピリッツと廃発泡スチロールの複合物による木材の防腐・防蟻
- (2) ヒノキ油の排ガス等に対する空気清浄化機能の検討
- (3) ヒノキ油、ユーカリ油の抗酸化剤・抗菌剤としての機能
- (4) 樹木精油の自律神経系に及ぼす影響の評価

3. 研究の方法

(1)の項目については、廃発泡スチロールはエッセンシャルオイルに非常に溶けやすいため、減容化が可能で、ポリスチレンの再資源化も容易なことを見出した。また、溶液の状態で木質材料に塗布すると耐朽性、特にシロアリに対する抗蟻性に優れることを明らかにし、平成17年度には発泡スチロール再資源化協会より研究助成金を受けて、基礎研究を行った。平成18年度には特許申請を行っており、現在、手続き進行中。更に、実際の施用方法および廃棄物の処理方法などを検討する必要があるため、野外における実証試験を進行中である。現在、試験を開始して3年が経過している。

i) 発泡スチロールのエッセンシャルオイルへの溶解性の検討

樹木のエッセンシャルオイルは採取場所、採取時期により、その性状はかなり異なる。それぞれのオイルの発泡スチロール減容化の能力を検討し、防腐防蟻剤としての能力を調べる。

ii) エッセンシャルオイル・スチロール溶液の塗布木材の生物劣化試験

エッセンシャルオイル・スチロール塗布木材試料の生物劣化耐朽性能を行う。耐シロアリ試験と木材腐朽試験については野外において長期間行う。

iii) 種々の添加剤による機能向上の検討

防腐防蟻剤として用いるための機能向上および低価格化のための検討を行う。

(2)の項目については、ヒノキ油がディーゼル排気ガスの浄化に効果があることを見出したことに基づく。ヒノキ油の希薄蒸気中にディーゼル排気ガスを通すと、ナノオーダーの微粒子（DEP：Diesel Exhaust Particulate：粒子状浮遊物質）がろ過可能なレベルまで凝集することおよびCO_x、NO_xが

著しく減少することを明らかにし、これらの現象およびヒノキ油が元来有する殺菌性・殺ダニ性などを利用して排気ガスも含めた一般汚染大気の浄化に使用するというものである。空気汚染物質などのヒノキ油蒸気処理による物理化学的挙動の変化を明らかにし、空気清浄化能力を検討する。その一部は、平成18年度のJ S Tシーズ開発研究に採択されており、その成果を発展させる。

ディーゼル排気ガスなど汚染空気中に含まれるDEP、CO_xとNO_x抑制効果を調べるために簡易的な排気ガス抑制装置を作成し、実用化に向けた基礎的なデータを収集する。更に、ディーゼル排ガス処理と並行して、室内汚染空気の清浄化を行うために、ヒノキ油を用いた簡易的な汚染空気清浄化装置を作成し、種々の浮遊粒子の除去効果、CO_x、NO_xなどの汚染物質の除去効果を調べる。排気ガスの臭いおよび室内空気の清浄化については、ヒノキ油方式により抑制効果および清浄化効果があるのかをGCMSおよび簡易試験などを用いて研究する。

(3)の項目については、ヒノキ油を研究するなかで、ヒノキ酸と呼ばれる化合物が純粋な形で比較的容易に単離できることを明らかにしたことに基づく。ヒノキ酸は、分子内にシクロプロパン環、 α - β 不飽和カルボキシル基を有する複雑な構造のセスキテルペンである。現在までの研究において比較的高い抗菌性および抗蟻性を有することを明らかにしている。ヒノキ油ばかりでなく、ユーカリ油も研究対象に加え、今後は、抗菌・抗蟻薬剤はもとより、人体に対する効果などを検討する予定である。なお、これらの一部は平成19年度地域資源活用企業化コーディネート活動等支援事業にも採択され、企業化の観点から3年間の予定で研究が続けられた。ヒノキ油よりヒノキ酸の効率的な分離・精製

法を確立する。ヒノキ油およびヒノキ酸を用いて、食品・住宅カビ、木材腐朽菌などに対する抗菌性試験を行うとともに、抗蟻性試験を行う。ユーカリ油についても同様の研究を行う。

ヒノキ油、ユーカリ油の研究の過程で、精油に抗酸化活性およびラジカル捕捉能の存在を明らかにし、食品・化粧品添加物あるいは消臭剤などとしての可能性を示した。そのメカニズムについては安全性とともに更に詳しく解明する必要がある。この課題については前もって検討を進めており、DPPH法、 β -カロチン法による抗酸化性を調べ、ユーカリ油・ヒノキ油は抗酸化性、ラジカル捕捉性を有することを明らかにしている。

(4) 樹木精油の自律神経系に及ぼす影響の評価

ヒノキ油、ユーカリ油を嗅いだ時の自律神経系の変化を血圧、心拍数、ストレス度(アミラーゼ活性)の指標で測定するとともに、脳波(α 、 β 、 θ 波)の変化を測定する。これらの測定結果を基に精油の及ぼす生理的影響を検討する。

4. 研究成果

(1) ウッドスピリッツと発泡スチロールの複合物による木材の防腐・防蟻

この研究結果の一部は第138回、第166回生存圏シンポジウム(DOL/LSFに関する全国・国際共同利用研究成果発表会、京都大学生存圏研究所)において報告している。

ヒノキ精油に25%重量になるように発泡スチロールを溶かした溶液を調製した。スギの黒心材、赤心材、ヒノキ辺材、ヒノキ心材を用いて、住宅用の土台角(120mm×120mm×380mm)および杭(30mm×30mm×350mm)を準備した。それぞれに無処理のものと上記精油溶液を塗布したものを準備し

て、野外において設置した（平成 20 年 1 月設置、試験地：鹿児島県）。土台角はブロック上に設置し、杭は 2/3 を地中に打ち込んだ。

1 年ごとに試験材の被害状況を調べた。被害度は目視により表 1 の 5 段階に分けた。

表 1 目視による被害度区分

被害度	
0~1	被害なし、痕跡
1~2	部分的に軽い被害
2~3	部分的に激しい被害
3~4	全体的に激しい被害
4~5	被害により形が崩れる

表 2 と表 3 に 2 年後、3 年後における土台角材および杭の被害状況を示した。

ヒノキ精油発泡スチロール複合体を塗布したスギ黒心材の土台角では 2 年後においても全く被害を受けていない。3 年後においても表面に僅かに軟腐朽の痕跡が見られるものの、シロアリによる被害は全く見られなかった。スギ黒心材、赤心材ともにヒノキ精油塗布により被害度は著しく低下している。

杭についても土台角よりも幾分被害が見られるものの、スギ赤心材にヒノキ精油を塗布したものはヒノキ心材とほぼ同等の効果を示している。

この試験は更に連続して行う予定である。

表 2 住宅用土台角の野外被害試験

建築材土台角	2年後		3年後	
	被害度	標準誤差	被害度	標準誤差
スギ辺材	0.4	±0.2	0.8	±0.2
スギ黒心材	0.8	±0.2	1.0	±0.0
スギ赤心材	0.8	±0.2	0.8	±0.2
スギ黒心材(精油塗布)	0.0	±0.0	0.4	±0.2
スギ赤心材(精油塗布)	0.2	±0.2	0.6	±0.2
ヒノキ辺材	0.6	±0.3	0.6	±0.2

表 3 杭の野外被害試験

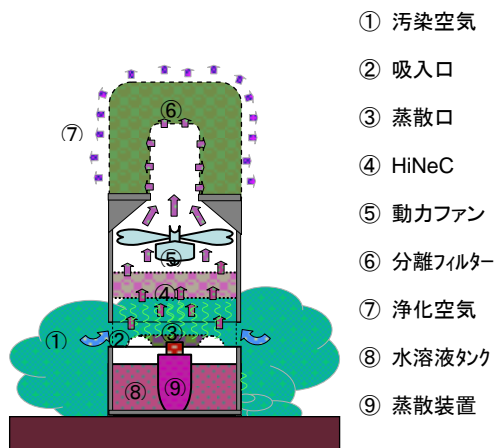
杭	2年後		3年後	
	被害度	標準誤差	被害度	標準誤差
スギ辺材	2.0	±0.8	2.0	±1.0
スギ黒心材	1.4	±0.2	2.3	±1.0
スギ赤心材	1.7	±0.5	2.0	±0.6
スギ黒心材(精油塗布)	0.0	±0.0	0.3	±0.4
スギ赤心材(精油塗布)	0.3	±0.3	1.0	±0.0
ヒノキ辺材	2.3	±1.0	2.3	±1.3
ヒノキ心材	0.7	±0.3	0.8	±0.3

(2) ヒノキ油の空気清浄化機能の検討

ディーゼル排ガスに対するヒノキ精油の効果を調べるとともにタバコ煙に対する効果を調べた。ここでは後者の結果を示す。

図 1 の装置を試作して煙草の煙を用いてヒノキ油の効果を調べた。ヒノキ精油水溶液は底部の⑧に設置し、ファン⑤で蒸散させる。煙草の煙は図 1 の②から吸入してタバコ煙吸入後、フィルター⑤でヒノキ精油水溶液蒸気 (HiNeC) と接触させる事により CO などガス成分、タールなど粒子成分を高効率に削減し、ヒノキ精油によりタバコ煙臭を軽減させる。

空气中浮遊微粒子濃度はデジタル微粒子カウンター (Dustmate LD-3K2, 富士理化製)、NOx, COx, SOx 濃度は検知管 (Gastech 製) で測定した。



- ① 汚染空気
- ② 吸入口
- ③ 蒸散口
- ④ HiNeC
- ⑤ 動力ファン
- ⑥ 分離フィルター
- ⑦ 浄化空気
- ⑧ 水溶液タンク
- ⑨ 蒸散装置

図 1 ヒノキ精油による空気清浄化装置

各空気汚染物質の本装置による削減効果を表 4 に示した。

タバコ煙中の微粒子および NOx は本装置により 80% が除去でき、CO についても 30% の除去能力が見られた。更に、浄化された空気はヒノキのほのかな香りがして、タバコの厭な臭いを消す働きがあった。

表 4 空気汚染物質の除去

	微粒子	CO	CO ₂	NOx
除去率(%)	80	30	10	80

この実験のほかにディーゼル排ガスの処理およびトンネル内の排ガス処理などの実験を行ったところ、いずれもかなりの排ガス浄化能力が得られた。

(3) ヒノキ油、ユーカリ油の抗酸化剤・抗菌剤としての機能

樹木精油のラジカル捕捉能および抗酸化性能はそれぞれ DPPH 法およびβ-カロチン法で測定した。

表5にユーカリ属カマルドレンシス葉精油のラジカル捕捉能および抗酸化活性を示した。0.25 mM /10 ml の DPPH ・エタノール溶液に各種精油を添加して、DPPH ラジカルを50%捕捉する精油濃度 IC₅₀を測定した。更に、0.2 mgのβ-カロチンと 20 mgのリノール酸の系において、エタノール中で煮沸後にβ-カロチンの50%を分解阻止する精油濃度を IC₅₀とした。

ユーカリ精油は植林樹種クローン 3 種 (S1, S2, S3) からそれぞれ2回ずつ採取した6種類を供試した。なお、比較としてBHA(ブチル化ヒドロキシアニソール)、α-トコフェロール、チモール、カルバクロールを用いた。植林木のクローン種により採取した精油のラジカル捕捉能、抗酸化能が異なることが分かった。ラジカル捕捉能はS2-1、抗酸化能はS3-1の精油が最も高かった。同時に行った化学分析結果によると、精油中のチモール、カルバクロールの含有量が両能力に密接に関係していることが分かった。

表5 ユーカリ精油のラジカル捕捉能および抗酸化能

試料	DPPH 法 IC ₅₀ (mg/ml)	β-carotene 法 IC ₅₀ (μg/ml)
BHA	11.46 x 10 ⁻³	0.16
α-Tocopherol	24.19 x 10 ⁻³	0.19
Thymol	0.65	2.83
Carvacrol	0.70	3.05
S1-1	7.80	42.60
S1-2	12.62	118.55

S2-1	1.75	36.29
S2-2	8.18	19.16
S3-1	2.52	14.30
S3-2	6.34	44.63

表6にヒノキ葉精油とユーカリ属カマルドレンシスの葉精油のカワラタケ (*Trametes versicolor*) とオオウズラタケ (*Fomitopsis palustris*) に対する抗菌活性を示した。10 mg / m¹ の精油を用いた結果であるが、どちらかというヒノキ葉精油はカワラタケに、ユーカリ精油はオオウズラタケに抗菌効果が見られた。

表6 カワラタケ、オオウズラタケに対するヒノキ葉精油またはユーカリ葉精油の抗菌効果

	抗菌性指標 (%)	
	<i>Trametes versicolor</i>	<i>Fomitopsis palustris</i>
ヒノキ葉精油	57.5 ± 2.3	48.5 ± 12.1
ユーカリ葉精油	39.5 ± 3.9	84.9 ± 2.3

ユーカリ葉精油については上記2種類の菌に加えて *Aspergillus niger*, *Cladosporium cladosporioides*, *Chaetomium globosum*, *Penicillium citrinum*, *Fusarium oxysporum*, *Thanatephorus cucumeris*, *Rhizopus oryzae* の7種に対する抗菌性も測定した。その中で、植物病原菌である *F. oxysporum* と *T. cucumeris* に対して効果の高いことを見出した。

更に、ヒノキ葉精油にはヒノキ酸と呼ばれる独特なセスキテルペンが含まれており、この化合物の抗菌性、抗蟻性を測定した。

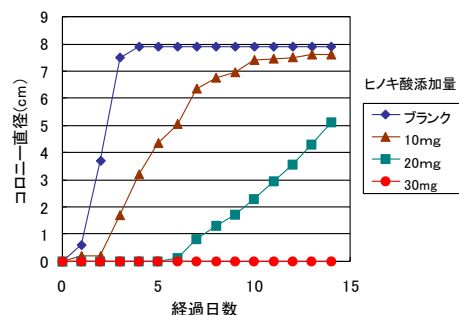


図2 ヒノキ酸の *Chaetomium* 属菌に対する

る抗菌効果

図2よりヒノキ酸はカビに対する抗菌効果を有することが分かった。抗蟻性も見られたが、結果は省略する。

(4) 樹木精油の自律神経系に及ぼす影響の評価

樹木精油を嗅いだ前後の最高・最低血圧、脈拍数の変化、唾液中のアミラーゼ活性の変化、脳波(α 、 β 、 θ 波)の占有面積の変化を調べた。

図3に各種樹木精油を嗅いだ後の脳波の変化を示した。評価得点は脳波に占める α 波、 θ 波の存在割合により計算したもので、数値が大きいほど両波の割合が多い、すなわちリラックスしていることを示す。明らかにヒノキ葉油、スギ材油、ユーカリ葉油を嗅いだ後にリラックス、すなわち副交感神経が亢進していることを示した。

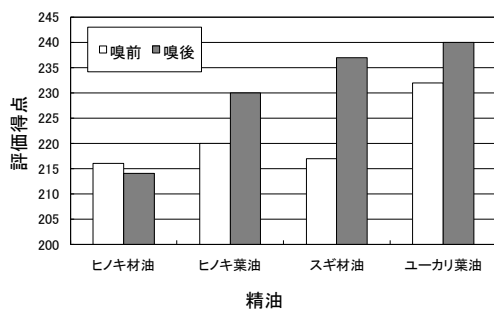


図3 男性27名の被験者に対する樹木精油の脳波変化に及ぼす効果

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計3件)

- 1) Siramon P., Ohtani Y., Ichiura H., Biological performance of *Eucalyptus camaldulensis* leaf oils from Thailand against the subterranean termite *Coptotermes formosanus* Shiraki, Journal of Wood Science, (2009) 55:41-46 (査読有)
- 2) Ohtani Y., Siramon P., Pujiarti R.,

Ichiura H., New Utilization Methods of Essential Oils from Woody Biomass, Transactions of the Materials Research Society of Japan, 34, 4, 715-718 (2010) (査読有)

- 3) Pujiarti R., Ohtani Y., Ichiura H., Physicochemical properties and chemical compositions of *Melaleuca leucadendron* Linn. leaf oils taken from the plantations in Java, Indonesia, Journal of Wood Science, (2011) in press (査読有) [学会発表] (計3件)

- 1) Pujiarti R., Ohtani Y., Ichiura H., Quality, chemical compositions and antifungal activity of *Melaleuca leucadendron* Linn. leaf oils from Java, Indonesia, 日本木材学会中国四国支部研究発表会, 2010年9月13日, 高知市

- 2) Ohtani Y., Siramon P., Pujiarti R., Ichiura H., Utilization of wood essential oils to raise the value of woody biomass, The International Conference in Asia 2008 for IUMRS, December 11, 2008, Nagoya, Japan

- 3) Siramon P., Ohtani Y., Ichiura H., Antifungal and antitermitic activities of *Eucalyptus camaldulensis* leaf oils from Thailand, The International Symposium on Wood Science and Technology 2008, September 27, 2008, Harbin, China

6. 研究組織

(1) 研究代表者

大谷 慶人 (OHTANI YOSHITO)

高知大学・教育研究部自然科学系・教授

研究者番号: 30253339