

令和2年度 江間忠研究助成 研究報告書

研究課題名：国産早生樹「コウヨウザン」に含まれる抽出成分の化学特性と抗シロアリ活性の解明

研究期間：令和元～2年度

研究代表者：国立研究開発法人森林研究・整備機構森林総合研究所 橋田 光

共同研究者：山形大学農学部 芦谷 竜矢

## 研究目的

日本の人工林は現在主伐期を迎えつつあり、森林の多面的機能の維持や森林資源の循環利用に向けて主伐後の再造林が必要とされている。再造林樹木の選択肢として、従来のスギ・ヒノキなどよりも成長が早く、より短時間で収穫可能な早生樹が注目されており、針葉樹では「コウヨウザン (*Cunninghamia lanceolata*)」が注目されている。コウヨウザンは中国南部地域及び台湾を原産とするヒノキ科コウヨウザン属の針葉樹であり、中国では中南部における主要造林樹木となっている（藤澤 2017）。一方、日本では江戸時代以前から渡来し、社寺などに導入されているが、材利用を目的とした造林は行われていなかった（近藤 2017）。しかし近年、国産コウヨウザンの系統調査、基礎的な苗木生産方法の検討、材質について調査・試験が実施されたことにより、コウヨウザンはスギより成長が早いこと、材質はヒノキと同程度であること等、早生樹造林に向けた有用性が明らかにされつつある（生方 2017）。

コウヨウザン材は、耐朽性に優れ、虫害は少なく、シロアリへの耐性も高いとされており、その要因として心材部にセドロール含有量が極めて高い精油成分を含有することが示されている（Wang ら 2011）。また、セドロールには抗菌・抗蟻性だけでなく、鎮静（リラックス）効果や入眠時間の短縮、睡眠効率の向上効果（山本ら 2003）など、人に対する有用機能があることが注目されている。しかしながら、コウヨウザン材の含有成分や抗シロアリ活性については海外の報告のみであり、国産コウヨウザン材の含有成分や、日本の木材加害虫であるイエシロアリ (*Coptotermes formosanus*) やヤマトシロアリ (*Reticulitermes speratus*) に対する含有成分の活性は明らかにされていない。さらに、中国ではコウヨウザンの枝葉や樹皮が民間薬として用いられており、含有するフラボン類の抗炎症作用や鎮痛作用が報告されているが（Xin ら 2012）、これらの部位の含有成分に関する報告は極めて限定的であり、ほとんど解明されていない。

本研究では、国産の早生樹「コウヨウザン」の含有成分に関する基礎的な知見を得ることを目的とし、材部及び伐採時に産出する枝葉や樹皮といった未利用部位に含まれる抽出成分を明らかにするとともに、含有成分のイエシロアリ及びヤマトシロアリに対する抗蟻性の評価及び活性成分の解明を行った。

## 実験方法

・試料の調製



図1 林木育種センターに植栽されたコウヨウザン

表1 コウヨウザン各個体の樹高及び胸高直径

系統名	樹高 (m)	胸高直径 (cm)
109	20.8	37.3
469	15.6	29.7
472	15.6	39.6

森林研究・整備機構森林総合研究所林木育種センター（茨城県日立市十王町）に1995年4月に植栽されたコウヨウザン3個体（1995年4月植栽）を対象とした（図1）。対象個体の樹高は15～20m、胸高直径は30～40cmであった（表1）。2019年9月に3個体を伐採し、各部位（葉、新梢、枝材、枝樹皮、球果、心材、移行部材、辺材、幹内樹皮、幹外樹皮）を分離して採取した。採取した各部位を新鮮な状態でクラッシュミルを用いて粉碎し、分析時まで凍結保存した。また、抗蟻性試験において最初に用いた試料については、東京都八王子市の民有林に植栽されたコウヨウザンから2018年9月に枝を採取し、枝心材、樹皮、葉を分離して用いた。

#### ・含有成分の分析

##### テルペン類の分析

試料を *n*-ヘキサンで抽出（室温で1日を3回）し、溶媒を除去して抽出物を調製した。抽出物について以下の条件でGC-MS分析を行った。分析条件：Sample soln.: 1 mg/mL in *n*-hexane cont. pentadecane (I.S., 0.05 mg/mL), Inject vol.: 1  $\mu$ L, Split: 1/20, Carrier: He, Flow rate: 2 mL/min, Column: DB-5MS UI (30m x 0.25 mm i.d., 0.25  $\mu$ m), Temp. Oven: 40°C (3

min) → 280℃ (7 min), 4℃/min, Inject temp.: 240℃, Detect temp.: 200℃, MS Lib.: NIST14, ADAMS, FFNSC3。また、試料に含有する樹脂酸類などの酸性成分を分析するため、トリメチルシリルジアンゾメタンを用いてメチルエステル化を行った後、GC-MS 分析を行った。GC-MS 分析で検出した主成分について、内部標準物質に対する検出量を算出し、抽出物及び抽出前の試料に対する含有率を算出した。

#### 総フェノール量の分析

試料を 70%アセトン水溶液で抽出（室温で1日を3回）し、抽出液を調製した。必要に応じて抽出液を水で希釈し、Folin-Ciocalteu 法により総フェノール量の測定を行った（Julkunen-Tiitto 1985）。標準物質として (+)-Catechin を使い、抽出液に含まれる総フェノール量を (+)-Catechin 相当として算出した。

#### ・抗シロアリ活性の評価

##### 抽出物の調製及び主成分の単離

試料を *n*-ヘキサン、酢酸エチル、メタノールの順に逐次抽出を行った後、溶媒を除去して抽出物を調製した。枝心材のヘキサン抽出物について主要成分の単離を行った。枝心材のヘキサン抽出物 (1.0g) をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開溶媒：ヘキサン/酢酸エチル= 100/0～50/50, v/v）で分離を行った。2つの主成分を含む画分を、活性化させた酸性シリカゲルを用いたカラムクロマトグラフィー（展開溶媒：ヘキサン/酢酸エチル= 100/0～90/10, v/v）で精製した後、さらに活性化酸性シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開溶媒：ベンゼン/クロロホルム= 100/0～90/10, v/v）で分離し、主成分である Cedrol (84mg, 99% GC) を単離した。別の主成分を含む画分をさらに活性化酸性シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開溶媒：ヘキサン/クロロホルム= 100/0～70/30, v/v）で分離し、Isoabienol (50mg, 98% GC) を単離した。単離物の同定は、GC-MS 分析によるライブラリ検索及び NMR 分析による文献値 (Adams ら 2010) との比較により行った。

##### 抽出物の抗蟻性試験

抽出物のイエシロアリ及びヤマトシロアリに対する抗蟻性を、ペーパーディスク法による強制摂食試験 (Kusumoto ら 2009) で評価した。各抽出物または単離化合物をアセトンもしくはメタノールに溶解させ、ペーパーディスク（直径 8mm, 厚さ 1.5mm, 約 30mg）に所定の重量比率で含浸させ、減圧乾燥により溶媒を揮発させて抽出物試料とした。また、比較対象として、アセトンおよびメタノールのみを含浸・揮発させたペーパーディスクを用いた。強制摂食試験の模式図を図 2 に示した。内径 45 mm のガラスシャーレ内に約 2.0g の海砂を敷き、水道水をスプレーし湿潤にしたものを試験区として用いた。試料ペーパーディスクを試験区中央に設置し、ヤマトシロアリの職蟻 10 頭を投入して試験を開始し、無給餌試験において生存数が 0 になった時点で試験終了とした。試験は各試料で 5 反復した。致死活性は平均致死率で評価し、摂食阻害活性は致死率推移とシロアリー匹当たりの 1 日の平均摂食量で評価した。

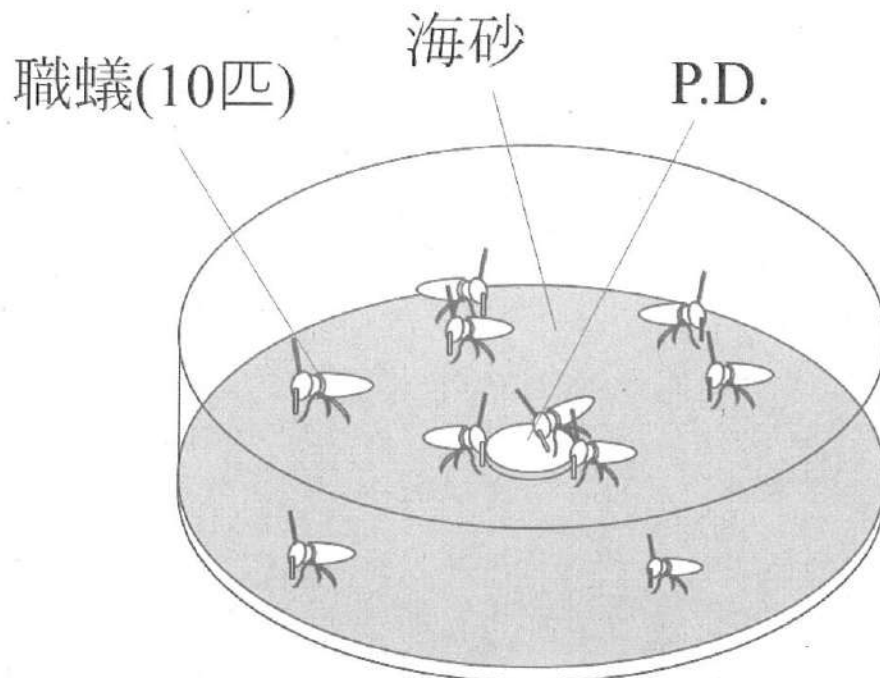


図2 ペーパーディスク法による強制摂食試験の模式図

## 結果と考察

### ・含有成分の分析

コウヨウザンに含有する抗蟻性等の活性成分を明らかにするという観点から、樹木における代表的な防御物質であるテルペン類及びフェノール成分を中心に分析を行った。まず、コウヨウザンに含有するテルペン類の分析を行うため、各部位におけるヘキサン抽出物を検討した。抽出物量を部位間で比較すると（図3上）、球果で平均7.5%と高く、次いで内樹皮3.9%、心材3.2%、枝樹皮3.1%、移行材2.1%であり、これら部位にテルペン類が多いことが示唆された。一方、外樹皮、葉、枝材では1.4~1.6%、辺材では0.4%であったことから、これら部位では少ないことが示唆された。個体間の差を検討するため、変動係数（標準偏差/平均値）を算出して比較したところ、枝樹皮0.44、球果0.33、移行材及び内樹皮0.30と比較的高い値を示したことから、これら部位でのばらつきが大きいことが示唆された。また、葉、枝材、外樹皮、辺材、心材では0.1程度であったことから、これら部位ではばらつきが小さいことが示唆された。

含有するフェノール成分を検討するため、コウヨウザン各部位における総フェノール量の測定を行った（図3下）。枝樹皮で平均5.5%、内樹皮4.9%、球果4.3%と比較的高く、次いで葉3.2%、外樹皮2.4%であり、材部（心材、移行材、枝材、辺材）では1%程度以下であった。一般に針葉樹では、特に内樹皮において縮合型タンニン等のフェノール成分が多く含まれ、スギやヒノキでは10%程度含有することが報告されている（鮫島ら1981）。このことから、これら樹種と比較するとコウヨウザン樹皮はフェノール成分が少ないことが示唆された。また、総フェノール量についても変動係数を比較したところ、全体的にヘキサン抽出物より値が大きく、特に枝樹皮では0.71であったことから個体間のばらつきが非常に大きいことが示唆された。



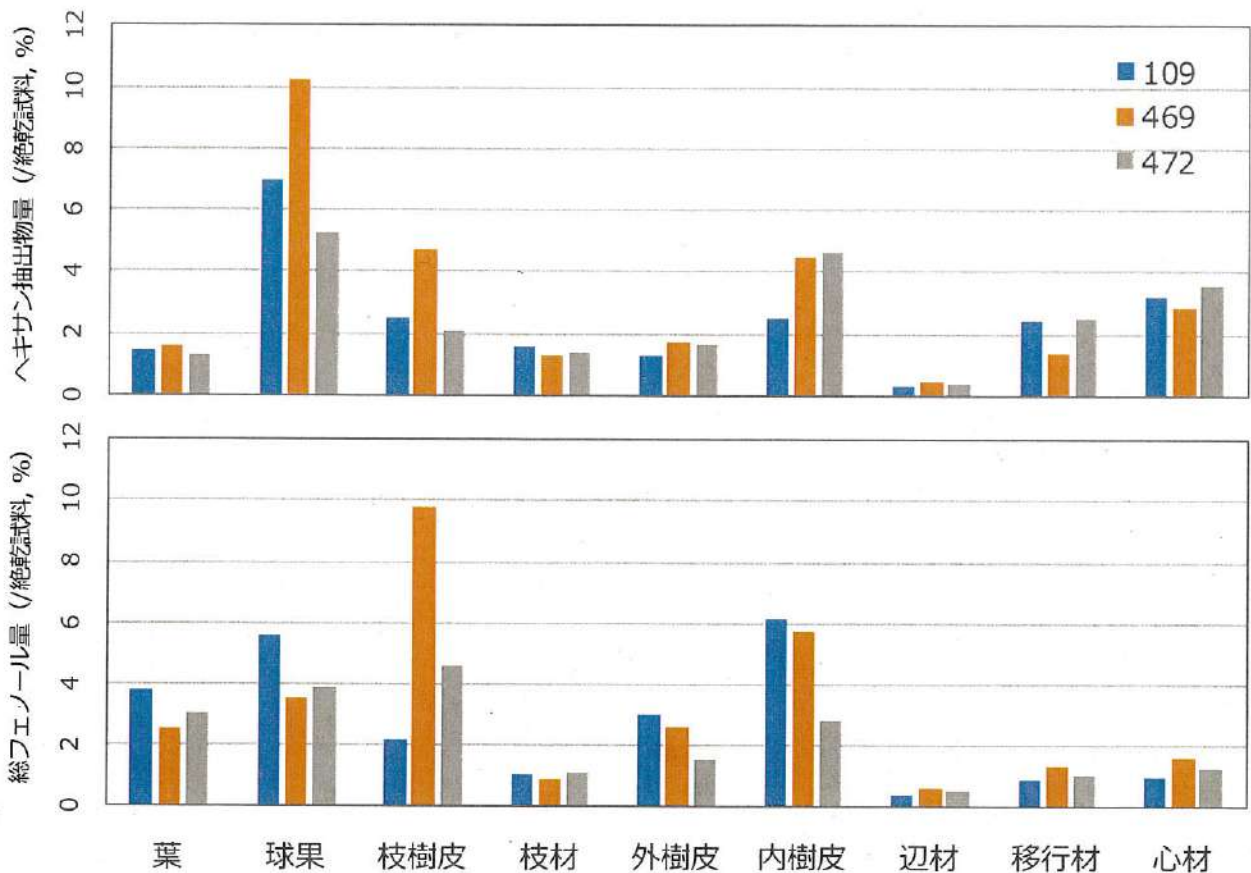


図3 コウヨウザン各部位に含まれるヘキササン抽出物量と総フェノール量

含有するテルペン類の詳細を明らかにするため、ヘキササン抽出物を GC-MS で分析した。系統 109 の各部位におけるヘキササン抽出物を直接 GC-MS 分析した結果を図 4 の左に示した。部位間で比較を行ったところ、大きく分けて材部（枝材、心材、辺材）と、その他の部位（葉、枝樹皮、球果、内樹皮、外樹皮）において、それぞれ共通する成分が含まれることが確認された。材部では、セスキテルペンである Cedrene、Cedrol、ジテルペンである Manool、Isoabienol、Abienol が検出された。中でも Cedrol と Isoabienol が多く存在しており、特に心材の Cedrol は抽出物に対して 38%と含有率が高かった。一方、その他の部位では、ジテルペンである Communol、Communic acid が主成分として検出された。

Communic acid などの樹脂酸類や酸性成分は、直接の GC-MS 分析では検出感度が低下することが知られているため、抽出物をメチルエステル化した後に GC-MS 分析を行った（図 4 の右）。材部においては、辺材部で Methyl hexadecanoate、Methyl Oleate が検出され、脂肪酸類の含有が示されたが、枝材や心材ではメチルエステル化物はほとんど検出されず、これら部位には酸性成分が少ないことが示された。一方、その他の部位においては、Methyl communate、Methyl sandaracopimarate が検出され、樹脂酸である Communic acid、Sandaracopimaric acid の含有が示された。特に Methyl communate は何れの部位においても強く検出され、球果、枝樹皮、内樹皮では抽出物に対して 10%以上の含有率であった。

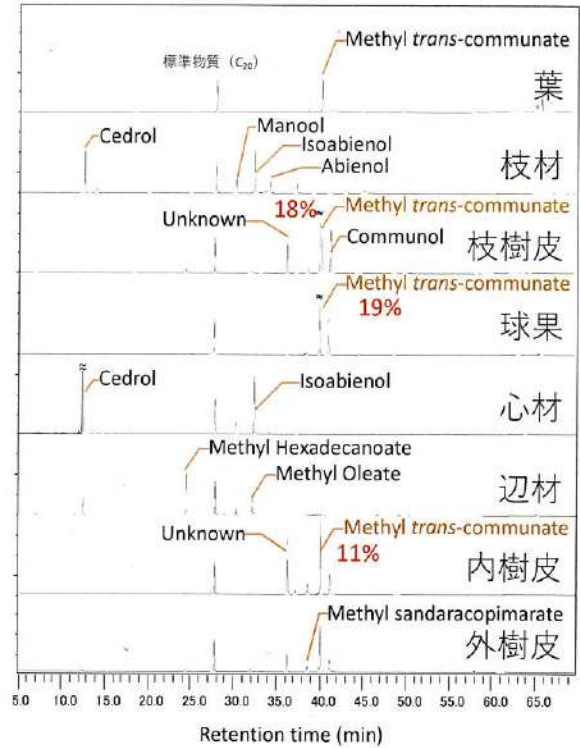
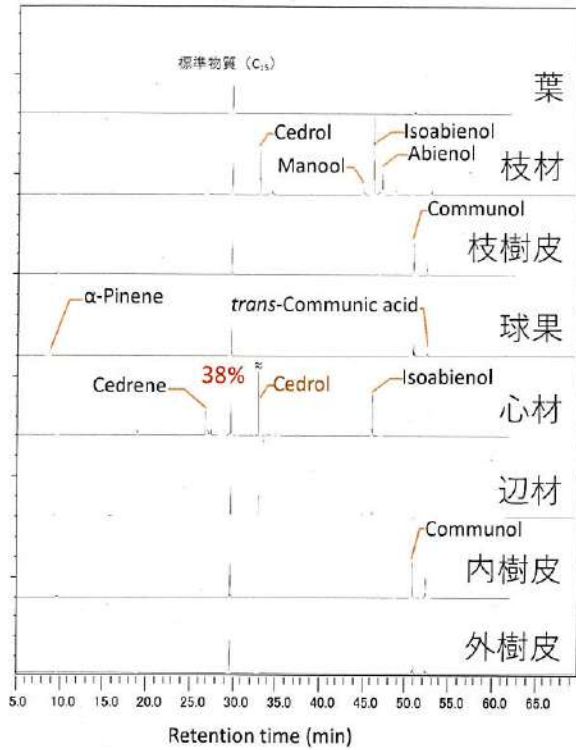


図4 コウヨウザン系統 109 各部位ヘキサン抽出物の GC-MS 分析結果

※左図：抽出物を直接分析，右図：抽出物のメチルエステル化物を分析

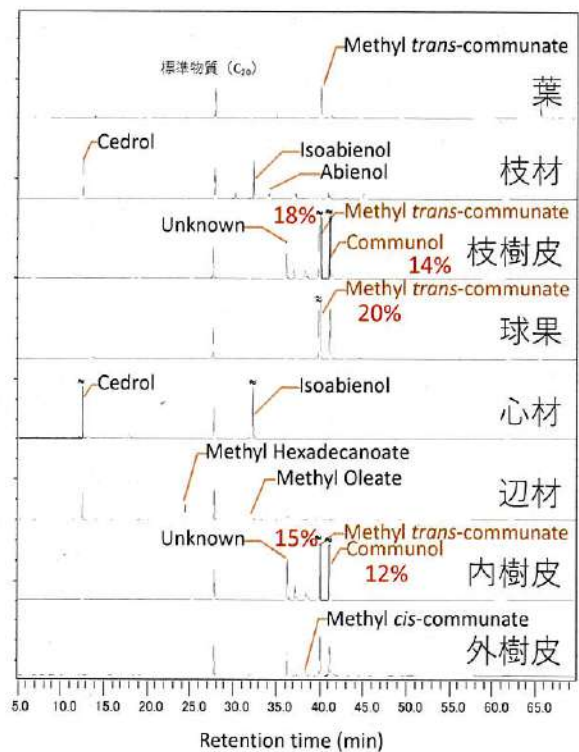
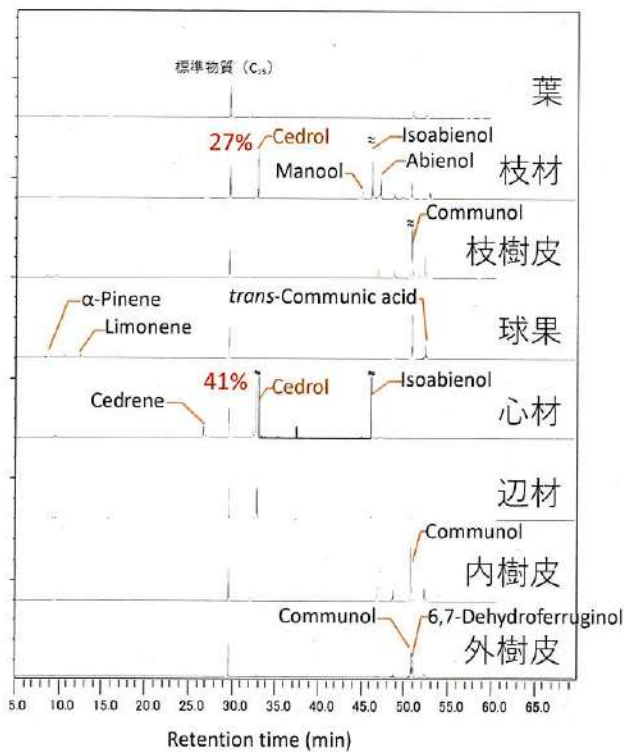


図5 コウヨウザン系統 469 各部位ヘキサン抽出物の GC-MS 分析結果

※左：抽出物を直接分析，右：抽出物のメチルエステル化物を分析



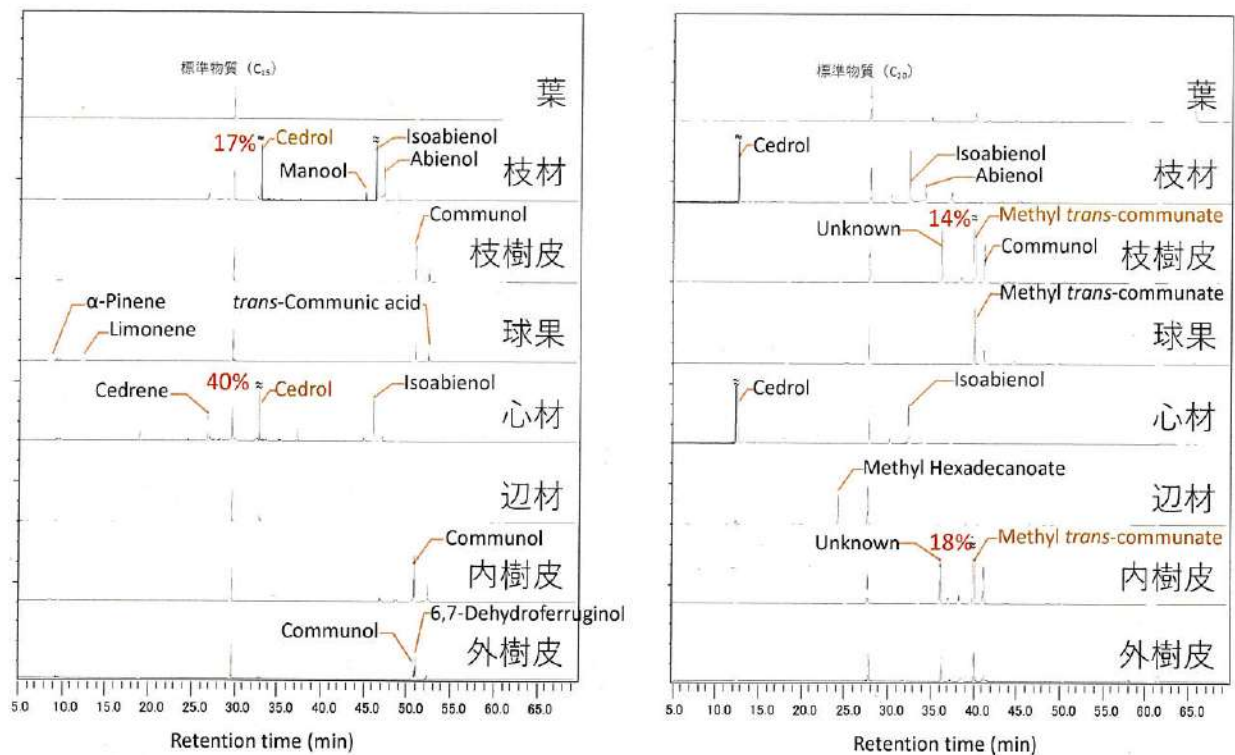


図6 コウヨウザン系統472各部位ヘキサン抽出物のGC-MS分析結果

※左：抽出物を直接分析，右：抽出物のメチルエステル化物を分析

個体間での含有テルペン類の違いを検討するため、GC-MS 分析結果を比較した（図4～6）。系統109では僅かであった6,7-Dehydroferruginolが系統469と472では明確に検出されるなどの違いは見られたが、各部位における主成分や組成の全体的な傾向は一致していた。材部の主成分であるCedrolとIsoabienol、その他部位の主成分であるCommunic acidとCommunolについて、各個体における各部位での含有率を表2に示した。材部においてはCedrolの含有率が高く、特に心材では抽出物に対して平均39.5%であり、絶乾試料に対しては1.3%であったことから、単独の含有化学成分としては非常に高かった。その他部位においてはCommunic acidの含有率が高く、枝樹皮、球果、内樹皮では抽出物に対して14.5～16.6%、絶乾試料に対しては0.53～1.29%であった。各成分含有率の変動係数を検討したところ、心材のCedrol(0.11)とIsoabienol(0.16)では値が小さく、ばらつきが少ないことが示された。他の部位では全体的に値が大きい傾向にあり、CommunolやCommunic acidにおいては、含有率の低かった外樹皮のCommunic acid(0.09)を除き、何れも0.5以上でありばらつきが大きいことが示唆された。

表2 コウヨウザン各部位における主要テルペン類の含有率

	抽出物に対する含有率 (%)							絶乾試料に対する含有率 (%)								
	葉	枝材	枝樹皮	球果	心材	辺材	内樹皮	外樹皮	葉	枝材	枝樹皮	球果	心材	辺材	内樹皮	外樹皮
Cedrol	109		8.3		37.8	4.1			0.13				1.22	0.01		
	469		26.6		40.5	8.2			0.34				1.17	0.03		
	472		16.5		40.3	1.4			0.22				1.43	0.00		
	平均		17.2		39.5	4.5			0.23				1.28	0.02		
Isoabienol	109		7.1		8.7				0.11				0.28			
	469		15.7		11.6				0.20				0.33			
	472		8.4		6.7				0.11				0.24			
	平均		10.4		9.0				0.14				0.28			
Communic acid	109	5.7	18.0	19.3		11.2	7.7	0.08	0.46	1.35				0.28	0.10	
	469	5.2	17.8	19.8		14.6	6.9	0.08	0.83	2.02				0.65	0.12	
	472	1.4	13.9	9.2		17.7	6.0	0.02	0.29	0.49				0.82	0.10	
	平均	4.1	16.6	16.1		14.5	6.9	0.06	0.53	1.29				0.59	0.11	
Communol	109		8.1	5.7		3.6	2.2		0.21	0.40				0.09	0.03	
	469		14.1	9.3		11.7	5.0		0.66	0.95				0.53	0.09	
	472		6.2	2.7		7.6	2.0		0.13	0.14				0.35	0.03	
	平均		9.5	5.9		7.6	3.1		0.33	0.50				0.32	0.05	

・抗シロアリ活性の評価

ヤマトシロアリに対する抗蟻性

コウヨウザン含有成分の抗蟻性を評価するため、最初に東京都八王子市産コウヨウザンの枝から採取した枝心材、樹皮、葉を用いて検討を行った。各部位においてヘキササン、酢酸エチル、メタノールの順で逐次抽出を行った。ヘキササン及び酢酸エチル抽出物の収量は何れの部位においても2%程度であり差が小さかったが、メタノール抽出物は心材（約3%）よりも葉と樹皮（約8%）で収量が多かった。

得られた抽出物を用い、ヤマトシロアリに対する抗蟻性を強制摂食試験で評価した。抽出物濃度5%での致死活性（平均致死率）を図7に示した。多くの抽出物において致死活性が認められたが、3部位の中では心材、逐次抽出物の中ではヘキササン抽出物において活性が高い傾向があった。次に抽出物濃度1%での結果を図8に示す。より低濃度の1%では心材ヘキササン抽出物で致死活性が高く、平均致死率は無給餌試験（nofeed）と同等であることが示された。また、心材酢酸エチル、葉ヘキササン、樹皮ヘキササン抽出物にもある程度の致死活性が認められたことから、テルペン類等の低極性成分が抗蟻性に寄与することが示唆された。

ヤマトシロアリに対する抗蟻性をより詳細に評価するため、幹心材（茨城県日立市産，系統109）と枝心材（東京都八王子市産）の抽出物を用いて検討した。抽出物濃度0.5～2%とした場合の平均致死率を図9に示す。試験開始から20日目の時点では全体的に致死活性は低かったが、幹心材ヘキササン抽出物2%においては比較的高い致死率を示した。40日目では、枝心材の酢酸エチル抽出物及びメタノール抽出物以外は明確な致死活性を示し、特に幹心材ヘキササン抽出物2%、枝心材ヘキササン抽出物2%では、無給餌試験と同程度の顕著な活性を示した。また、ヘキササン抽出物1%を比較すると幹心材では約80%と高い活性を示したのに対し、枝心材では56%であり、抽出物



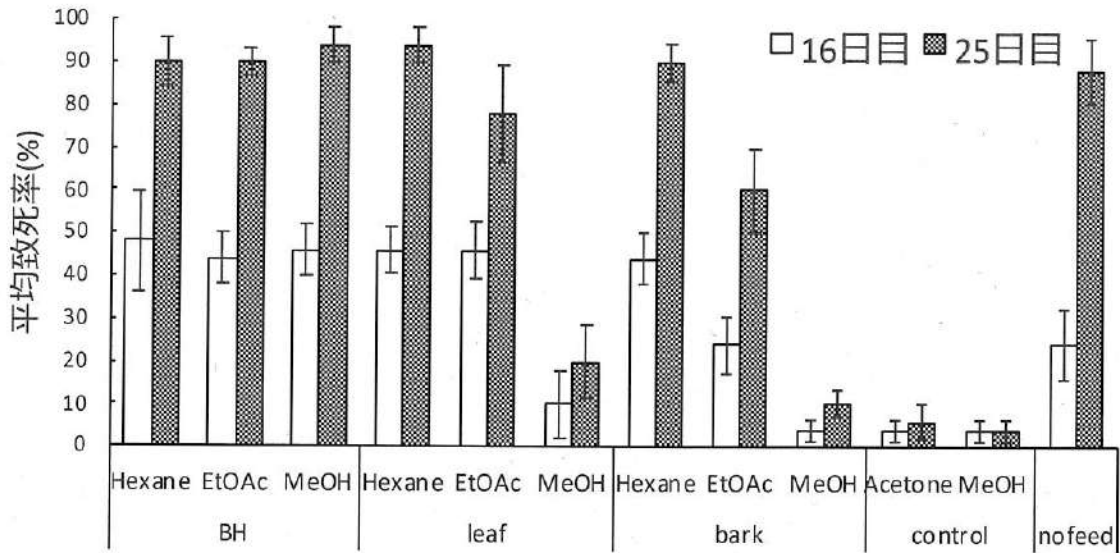


図7 ヤマトシロアリ強制摂食試験における抽出物濃度5%での平均致死率

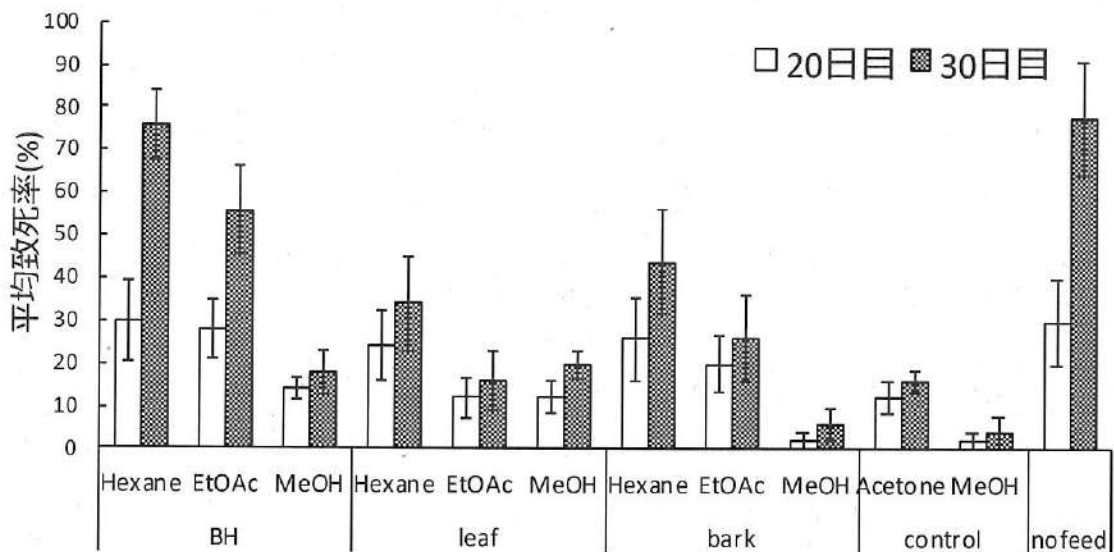


図8 ヤマトシロアリ強制摂食試験における抽出物濃度1%での平均致死率

※Hexane：ヘキサン，EtOAc：酢酸エチル，MeOH：メタノール，Acetone：アセトン，  
 BH：枝心材抽出物，leaf：葉抽出物，bark：樹皮抽出物，control：対象（溶媒のみで調製），nofeed：無給餌

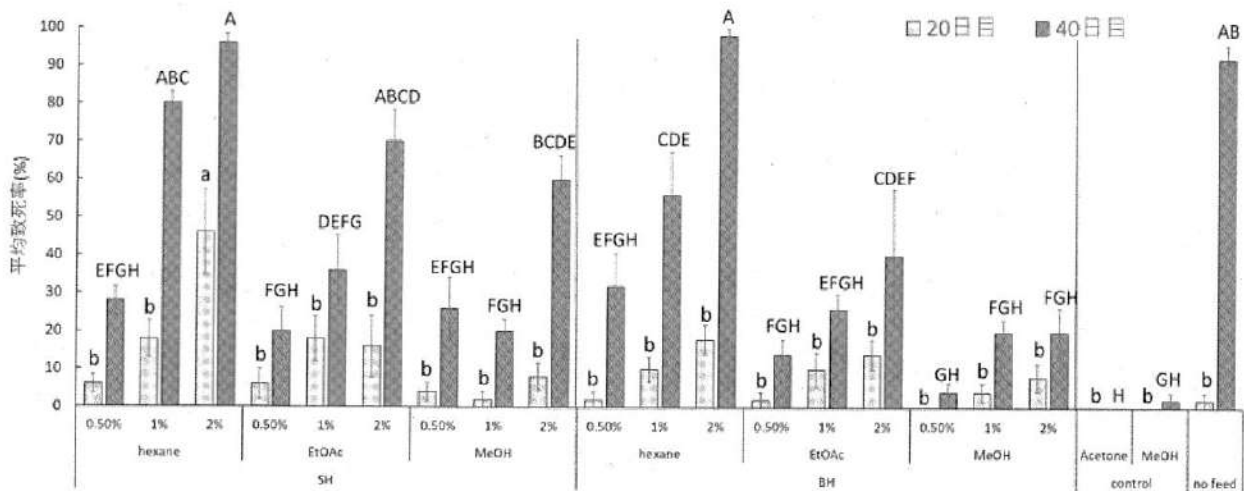


図9 ヤマトシロアリ強制摂食試験における幹心材及び枝心材抽出物の平均致死率

※Hexane：ヘキサン，EtOAc：酢酸エチル，MeOH：メタノール，Acetone：アセトン，  
SH：幹心材抽出物，BH：枝心材抽出物，control：対象（溶媒のみで調製），  
no feed：無給餌

濃度 2%と比べて大きく低下することが示された。ヘキサン抽出物 0.5%では、幹心材・枝心材ともに活性の程度に大きな差は見られなかった。また、幹心材の酢酸エチル及びメタノール抽出物は 2%で比較的高い活性を示したが、これと比べて枝心材の酢酸エチル及びメタノール抽出物では活性が低かった。

致死活性が高かった幹心材ヘキサン抽出物及び枝心材ヘキサン抽出物の平均致死率推移を図 10 に示す。無給餌が示す餓死の傾向は試験後期に急激に致死率が上昇するのに対し、幹心材ヘキサン抽出物では、高濃度（2%）では試験初期から致死活性を示した。一方で枝心材ヘキサン抽出物では、無給餌と同様に試験後期から致死活性を示した。このことから、幹心材ヘキサン抽出物は、高濃度では試験初期から殺蟻活性を示すのに対し、枝心材ヘキサン抽出物は高濃度であっても初期に顕著な殺蟻活性は示さず、試験後期での餓死によって殺蟻活性が示されたと考察された。

強制摂食試験における一日当たりのシロアリ 1 匹の平均摂食量を図 11 に示した。枝心材メタノール抽出物 0.5%を除き、全てにおいて摂食阻害活性が確認された。特に、幹心材及び枝心材ヘキサン抽出物は濃度に関わらず摂食量が少なかった。このことから、摂食阻害活性を示す成分は、心材及び枝心材ともにヘキサン抽出物に多いことが示唆された。

以上の結果から、コウヨウザン幹心材及び枝心材のヘキサン抽出物に、ヤマトシロアリに対する顕著な抗蟻性があることが示された。ヘキサン抽出物にはテルペン類などの低極性成分が含まれるが、「含有成分の分析」において、心材に含有する主なテルペン類は Cedrol と Isoabienol であることを明らかにしている。そこで、抗蟻性試験に用いた幹心材及び枝心材の抽出物についても GC-MS による主成分の分析を行った。「含有成分の分析」での結果（図 4～6）と同様、主成

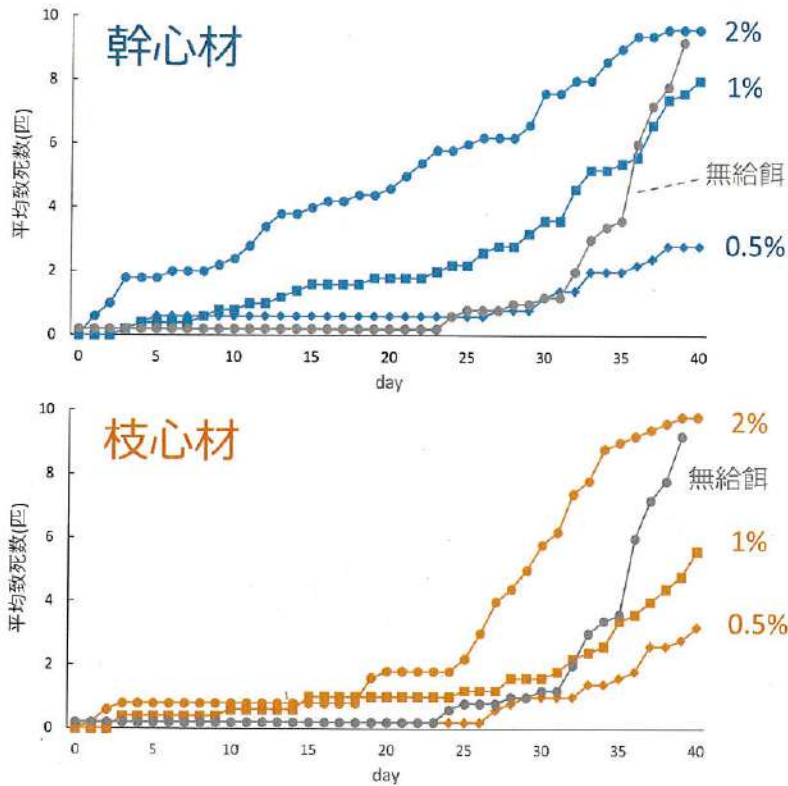


図 10 ヤマトシロアリ強制摂食試験における幹心材及び枝心材へキサン抽出物の平均致死率推移

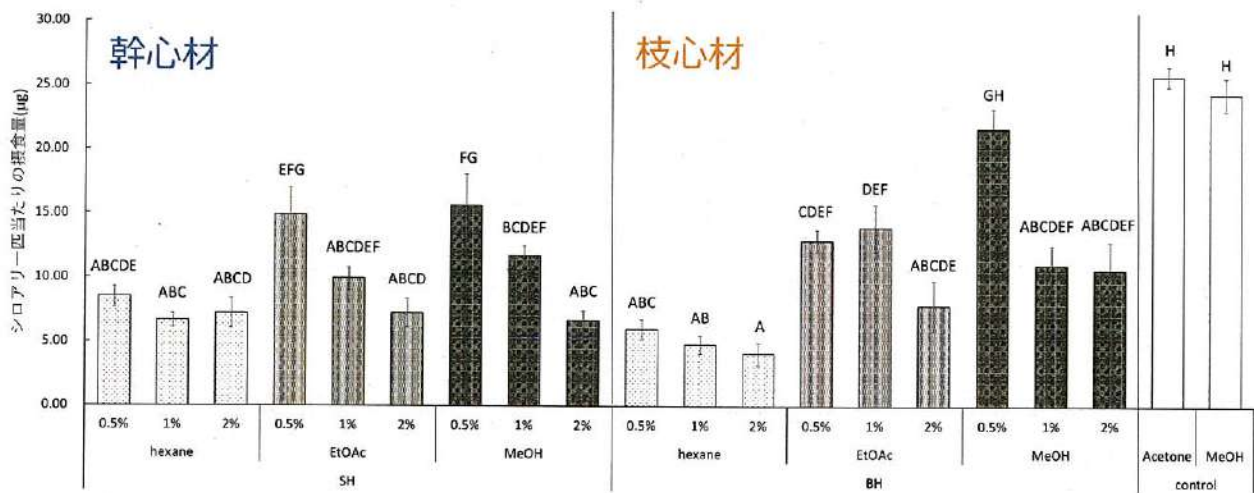


図 11 ヤマトシロアリ強制摂食試験における1日当たりのシロアリ1匹の平均摂食量

※Hexane：ヘキサン，EtOAc：酢酸エチル，MeOH：メタノール，Acetone：アセトン，  
SH：幹心材抽出物，BH：枝心材抽出物，control：対象（溶媒のみで調製）

分として Cedrol と Isoabienol が検出されたが、幹心材と枝心材のヘキサン抽出物では成分組成が異なっており、幹心材では Cedrol 42%、Isoabienol 28%に対し、枝心材では Cedrol 14%、Isoabienol 29%であった（図 12）。また、酢酸エチル及びメタノール抽出物にも Cedrol 及び Isoabienol が含まれており、ある程度の致死活性が認められた幹心材の酢酸エチル及びメタノー



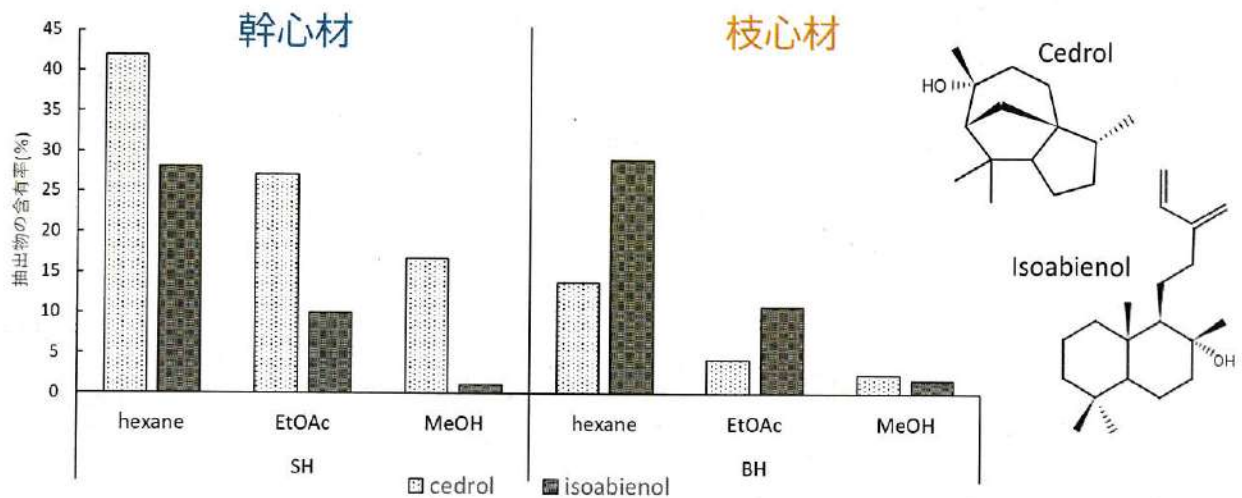


図 12 抽出物に含まれる Cedrol と Isoabienol の含有率

※Hexane : ヘキサン, EtOAc : 酢酸エチル, MeOH : メタノール, Acetone : アセトン,  
SH : 幹心材抽出物, BH : 枝心材抽出物

ル抽出物では、Cedrol が 15~30%程度含有することが示された。

幹心材及び枝心材のヘキサン抽出物の主成分である Cedrol と Isoabienol を抽出物から単離し、ヤマトシロアリに対する抗蟻性を評価した。図 13 に強制摂食試験における平均致死率を示した。20 日目の時点で Cedrol は 1%で 98%, 0.5%で 52%, 0.25%で 10%と濃度依存的に顕著な活性を示した。一方 Isoabienol は濃度に依らず活性が低かった。39 日目では、Cedrol は 0.5~1%で 100%に近く、0.25%で 66%と濃度依存的に顕著な活性を示した。一方、Isoabienol は 0.25%で 88%、1%で 80%と高い活性を示したのに対し、0.5%では 54%と比較的低く、濃度に非依存的な活性を示した。

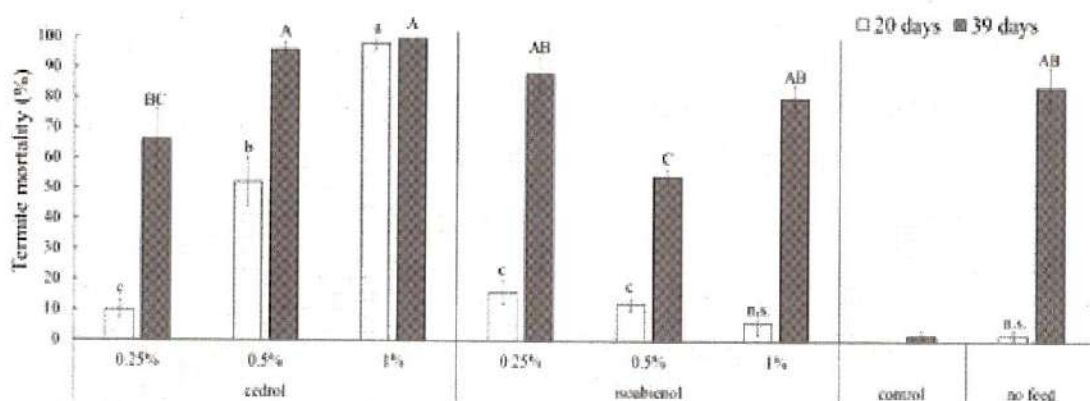


図 13 ヤマトシロアリ強制摂食試験における Cedrol, Isoabienol の平均致死率

※control : 対象 (溶媒アセトンのみで調製) , no feed : 無給餌

Cedrol 及び Isoabienol の平均致死率の推移を図 14 に示す。Cedrol では (図 14 上)、1%及び 0.5%の推移は 無給餌と異なり、何れも試験初期より活性を示し、1%でより顕著であった。一方、0.25%では無給餌と同様の致死率推移を示した。このことから、Cedrol は高濃度では試験初期から顕著な殺蟻活性を示すが、低濃度では試験後期から致死活性が高まることが示された。Isoabienol の致死率推移では (図 14 下)、何れの濃度においても無給餌と同様の致死率推移を示し、試験後期での餓死によって活性が高まったことが示唆された。これらの結果から、幹心材へキサン抽出物において示された摂取による毒性は、高濃度で含有する Cedrol に起因することが示唆された。一方、枝心材へキサン抽出物には低濃度の Cedrol と Isoabienol が含まれており、これら成分によって摂取による毒性は示さずに、餓死による活性の高まりを示したと推察された。

Cedrol 及び Isoabienol を用いたときのシロアリ一頭の平均 P.D. 摂食量を図 15 示す。摂食量が対象 (control) に比べ、何れの濃度でも 2 成分ともに顕著に少なかったことから、これら成分は濃度に関係なく顕著な摂食阻害活性を示すことが明らかとなった。このことから、幹及び枝心材へキサン抽出物の示す摂食阻害活性においては、Cedrol および Isoabienol が主な活性成分として関与していることが示唆された。

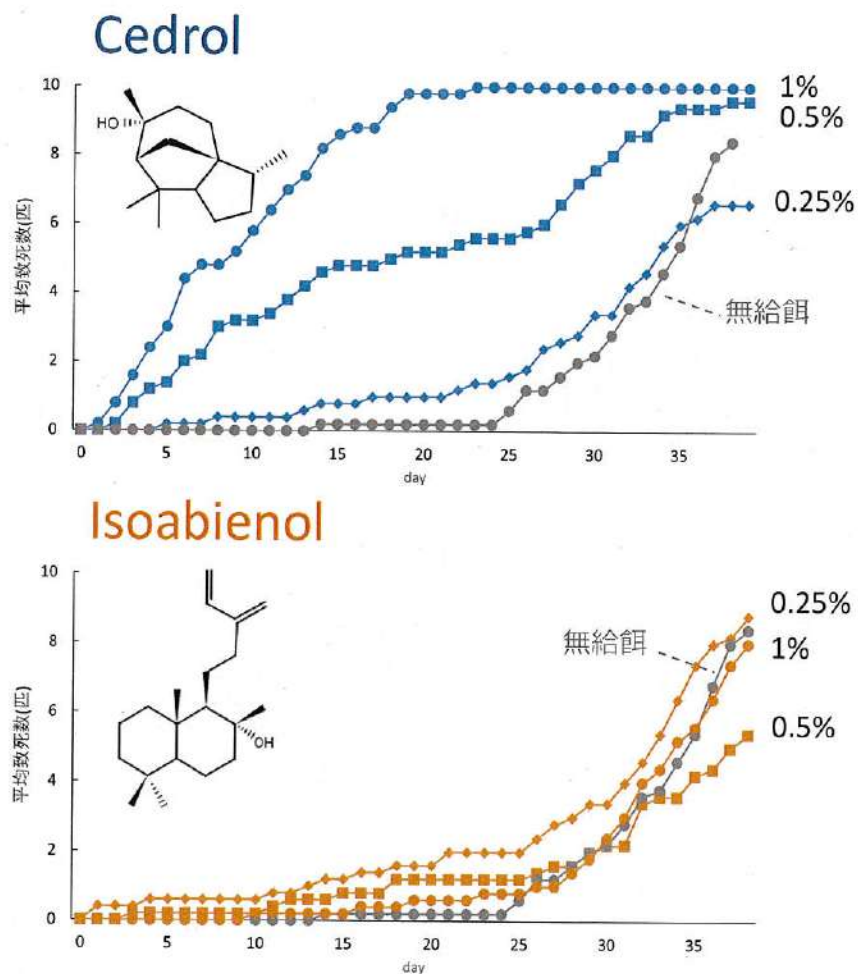


図 14 ヤマトシロアリ強制摂食試験における Cedrol 及び Isoabienol の平均致死率推移

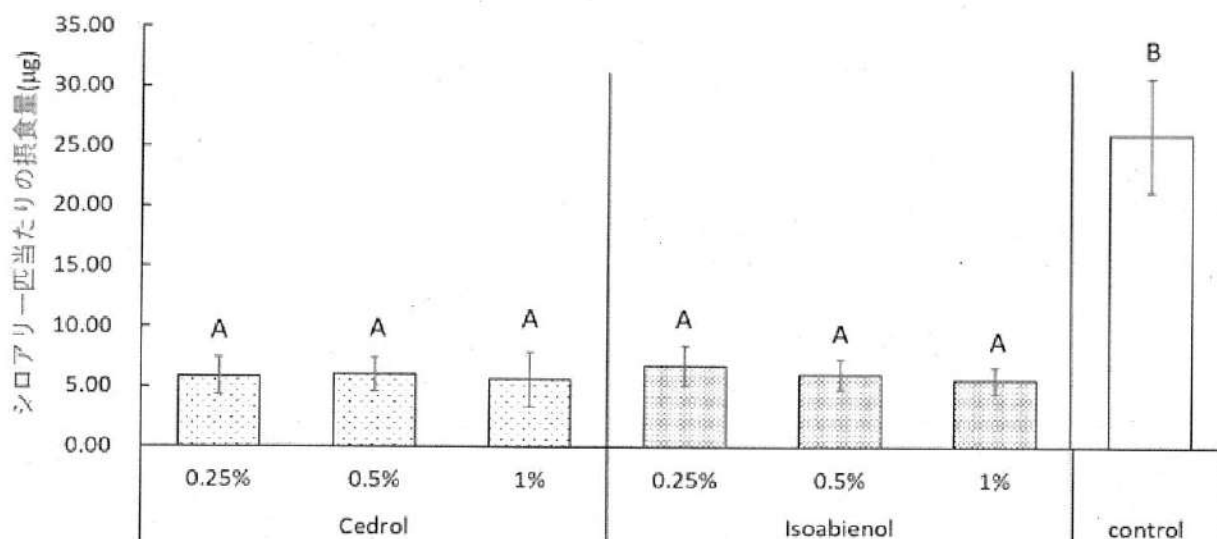


図 15 ヤマトシロアリ強制摂食試験における 1 日当たりのシロアリ 1 匹の平均摂食量

※control : 対象 (溶媒アセトンのみで調製)

### イエシロアリに対する抗蟻性

ヤマトシロアリと同様に、コウヨウザン抽出物のイエシロアリに対する抗蟻性を強制摂食試験で評価した。各抽出物及び単離した Cedrol と Isoabienol について、試料濃度 0.5~2%とした場合の平均致死活率を図 16 に示す。ヤマトシロアリの結果と比較して明確ではなかったが、25 日目において幹心材のヘキササン抽出物、枝心材のヘキササン及び酢酸エチル抽出物の致死活性が比較的高いことが示された。単離化合物で試験を行った結果、Cedrol では 25 日目で高濃度 (1%) においてある程度活性が上昇するのみであったのに対し、Isoabienol では 25 日目で明確な濃度依存的致死活性が認められた。

イエシロアリ強制摂食試験においても、一日当たりのシロアリ 1 匹の平均摂食量を検討した (図 17)。抽出物については、幹心材、枝心材の何れもヘキササン及び酢酸エチル抽出物で、特に濃度 1%以上において、対象より摂食量が低く、摂食阻害活性が認められた。単離化合物については、Cedrol では 1%で摂食量の低下が認められるものの、0.5%以下では摂食阻害は認められなかった。一方、Isoabienol では 0.5%以上で摂食阻害活性が認められた。これらの結果から、Cedrol はヤマトシロアリに対して顕著な殺蟻活性や摂食阻害活性を示したが、イエシロアリに対してはこれら活性が低いことが示され、相対的に Isoabienol の活性の方が高いことが示唆された。

イエシロアリに対する抗蟻性は、幹心材のヘキササン抽出物、枝心材のヘキササン及び酢酸エチル抽出物で高かったことについて、抽出物中の Cedrol 及び Isoabienol 含有率 (図 12) と比較して考察を行った。イエシロアリでは Cedrol の活性は低いが Isoabienol の活性は高いため、幹心材及び枝心材ヘキササン抽出物では、含有率が高い Isoabienol が抽出物の活性に寄与すると考えられる。一方、これらと同等の活性を示した枝心材の酢酸エチル抽出物は Isoabienol 含有率が低かったことから、抽出物の活性には Cedrol や Isoabienol 以外の成分が関与することが示唆された。



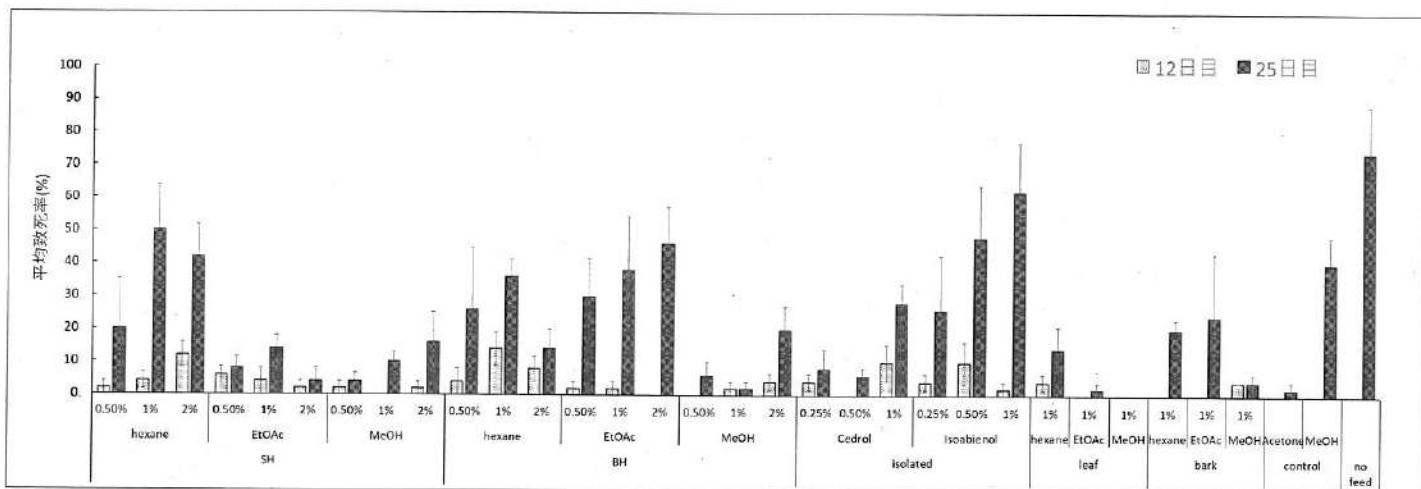


図 16 イエシロアリ強制摂食試験における抽出物及び単離化合物の平均致死率

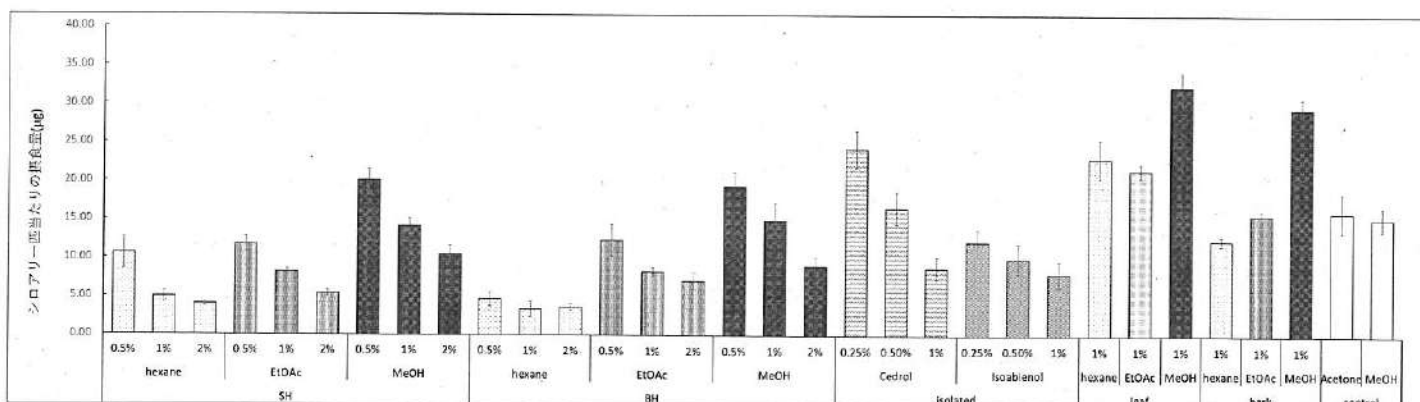


図 17 イエシロアリ強制摂食試験における 1 日当たりのシロアリ 1 匹の平均摂食量

※Hexane : ヘキサン, EtOAc : 酢酸エチル, MeOH : メタノール, Acetone : アセトン,  
 SH : 幹心材抽出物, BH : 枝心材抽出物, isolate : 単離化合物, leaf : 葉抽出物,  
 bark : 樹皮抽出物, control : 対象 (溶媒のみで調製) , nofeed : 無給餌

## 本研究の総括

国産の早生樹「コウヨウザン」の各部位に含まれる抽出成分を明らかにするとともに、含有成分のヤマトシロアリ及びイエシロアリに対する抗蟻性の評価及び活性成分の解明を行った結果、以下のことを明らかにした。

### 含有抽出成分の特性について

- テルペン類を主としたヘキサン抽出物が、球果、内樹皮、心材、枝樹皮に多く含有するが (3~7.5%)、心材以外では個体によるばらつきが大きかった。
- フェノール成分が、枝樹皮、内樹皮、球果に 4~5%程度含有するが、スギやヒノキなどの樹皮では 10%程度含有することから、これらと比較して少なかった。

- ・含有するテルペン類は部位によって異なり、材部の主成分は Cedrol と Isoabienol であり、その他の部位では Communic acid と Communol であった。
- ・心材の Cedrol 含有率は特に高く、抽出物に対して 40%、絶乾試料に対して 1.3%であった。

#### ヤマトシロアリに対する抗蟻性について

- ・部位では幹心材及び枝心材、抽出溶媒ではヘキサンによる抽出物で致死活性が高かった。
- ・幹心材ヘキサン抽出物は抗蟻性試験初期から致死活性を示したのに対し、枝心材ヘキサン抽出物では餓死と同様の活性（試験後期に致死率が上昇）を示した。
- ・ヘキサン抽出物には主成分として Cedrol と Isoabienol を含有するが、幹心材では Cedrol 42%、Isoabienol 28%に対し、枝心材では Cedrol 14%、Isoabienol 29%と含有率が異なっていた。
- ・Cedrol 及び Isoabienol は何れも致死活性が高く、顕著な摂食阻害活性を示したが、Cedrol では高濃度において試験初期から致死活性を示した。

#### イエシロアリに対する抗蟻性について

- ・ヤマトシロアリと比較して明確ではなかったが、幹心材のヘキサン抽出物、枝心材のヘキサン及び酢酸エチル抽出物の致死活性が高かった。
- ・Isoabienol の致死活性は高かったのに対し、Cedrol の活性は低かった。

本研究により、国産コウヨウザンの含有成分に関する基礎的な知見を得ることができた。含有抽出成分については、コウヨウザンの特徴として心材に Cedrol と Isoabienol、特に Cedrol を多く含有することを明らかにした。Cedrol は本研究でも明らかにした抗シロアリ活性以外にも、抗菌性 (Wang ら 2011)、人に対する鎮静効果や入眠時間の短縮及び睡眠効率の向上効果 (山本ら 2003)、発毛促進作用 (Zhang ら 2016) など、様々な有用機能が報告されていることから、コウヨウザン心材は Cedrol の抽出原料として有用であると考えられる。また、樹皮、特に内樹皮には Communic acid と Communol が比較的多く含有しており、これらには抗炎症作用 (Shimizu ら 1988) や老化防止効果 (Huh ら 2015) などが報告されていることから、これら成分の有用機能を活かした用途開発が期待できる。

シロアリに対する抗蟻性については、日本の木材加害虫であるヤマトシロアリやイエシロアリに対し、心材のヘキサン抽出物が抗蟻性を有することを明らかにするとともに、主成分である Cedrol と Isoabienol が活性に大きく寄与していることを明らかにした。また、Cedrol はヤマトシロアリに対しては高活性であるが、イエシロアリに対しては活性が低いことを見出し、シロアリの種類によって含有成分の活性が異なることも明らかにした。近年、早生樹として植林が試みられている国産のコウヨウザンについて、材利用に向けた強度や材質などが報告されているが (涌嶋ら 2017)、抗蟻性などの耐久性に関わる知見は現状ではまだ少ない。本研究では抗蟻性に関わる基礎的な知見を得ることができたことから、今後さらに検討を行うことで、実用に向けたコウヨウザン材の耐久性を明らかにし、普及へと繋げていくことが期待される。

## 引用文献

- Adams, R.P., Beauchamp, P.S., Dev, V., Bathala, R.M. (2010) The leaf essential oils of *Juniperus communis* L. Varieties in North America and the NMR and MS data for isoabienol, *J. Essential Oil Res.*, 22:23-28.
- Huh, W.B., Kim, J.E., Kang, Y.G., Park, G., Lim, T., Kwon, J.Y., Song, D.S., Jeong, E.H., Lee, C.C., Son, J.E., Seo, S.G., Lee, E., Kim, J.R., Lee, C.Y., Park, J.S., Lee, K.W. (2015) Brown pine leaf extract and its active component *trans*-communic acid inhibit UVB-induced MMP-1 expression by targeting PI3K, *PLOS ONE*, 10(6):e0128365.
- Julkunen-Tiitto, R. (1985) Phenolic constituents in the leaves of northern willows: methods for the analysis of certain phenolics, *J. Agric. Food Chem.*, 33:213-217.
- Kusumoto, N., Ashitani, T., Hayasaka, Y., Murayama, T., Ogiyama, K., Takahashi, K. (2009) Antitermitic activities of abietane-type diterpenes from *Taxodium distichum* Cones, *J. Chem. Ecol.*, 35:635-642.
- Shimizu, M., Tsuji, H., Shogawa, H., Fukumura, H., Tanaami, S., Hayashi, T., Arisawa, M., Morita, N. (1988) Anti-inflammatory constituents of topically applied crude drugs. II. Constituents and anti-inflammatory effect of *Cryptomeria japonica* D. Don, 36(10):3967-3973
- Wang, J., Li, J., Li, S., Freitag, C., Morrell, J.J. (2011) Antifungal activities of *Cunninghamia lanceolata* heartwood extractives, *Bioresources*, 6(1):606-614.
- Xin, H.L., Zhai, X.F., Zheng, X., Zhang, L., Wang, Y.L., Wang, Z. (2012) Anti-inflammatory and analgesic activity of total flavone of *Cunninghamia lanceolata*, *Molecules*, 17:8842-8850.
- Zhang, Y., Han, L., Chen, S.S., Guan, J., Qu, F.Z., Zhao, Y.Q. (2016) Hair growth promoting activity of cedrol isolated from the leaves of *Platycladus orientalis*, *Biomed. Pharmacother.*, 83:641-647.
- 生方正俊 (2017) 「コウヨウザン」について (1), *林木育種情報*, 23:2-3.
- 近藤禎二 (2017) コウヨウザン研究の現状, *森林遺伝育種*, 6:143-147.
- 鮫島正浩, 善本知孝 (1981) 針葉樹樹皮のフェノール性抽出成分の特徴について, *木材学会誌*, 27(6):491-497.
- 藤澤義武 (2017) 【特集】これからの林業とコウヨウザン, *森林遺伝育種*, 6:132-136.
- 山本由華吏, 白川修一郎, 長嶋義直, 大須弘之, 東條聡, 鈴木めぐみ, 矢田幸博, 鈴木敏幸 (2003) 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):25-29.
- 涌嶋智, 渡辺靖崇 (2017) コウヨウザンの材質, *森林遺伝育種*, 6:148-154.