

氏名(本籍)	おお  ひら  たつ  ろう 大 平 辰 朗 (愛知県)
学位の種類	博 士 (農 学)
学位記番号	博 乙 第 1,138 号
学位授与年月日	平 成 7 年 12 月 31 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 2 項該当
審査研究科	農 学 研 究 科
学位論文題目	樹木抽出成分の生物活性と効率的抽出に関する研究
主 査	筑波大学教授 農学博士 山 口 彰
副 査	筑波大学教授 農学博士 富 田 文一郎
副 査	筑波大学教授 農学博士 黒 田 健 一
副 査	筑波大学助教授 農学博士 小 沢 哲 夫

## 論 文 の 要 旨

本研究は森林植物に含まれる化学成分を単離し、その生物活性を調べ、それら天然物質の有効利用を図る事を目的としている。

アオモリトドマツは本州中・北部山地の寒冷地だけに生育する樹木で、耐寒性樹種として生態学的にも興味を持たれている。樹皮抽出物より5種類のテルペン類が単離され、この内ネオアビエスラクトンは新規化合物であった。精油成分の分析により32成分が同定された。葉部抽出物よりマルトール、n-ヘントリアコンタン等が得られた。含有量の多いマルトールは香料、食品添加物等に利用される物質だが、抗菌活性、植物成長制御活性の検定の結果、供試菌に対し成長抑制活性を、ハツカダイコン、レタス、アルファルファ、モヤシに対し幼根、胚軸の成長抑制効果を示した。マツ科の樹木10種についてマルトールの含有量を調べたところ、モミ属のシラビソ、アオモリトドマツの2樹種のみがそれぞれ3%程度を含有する事が知られた。いずれも耐寒性樹種である事は興味深い。

小笠原諸島に約80年前に移入されたアカギという樹木が異常繁殖し、島固有の植物を駆逐する恐れがあるため問題になっている。本植物のアレロパシー原因物質の解明を行った。アカギ葉部のメタノール抽出物よりフリーデリンが単離された。材部のn-ヘキササン抽出物よりスティグマステロール、 $\beta$ -シトロステロール等のステロイドが単離された。幼植物検定によりこれら物質の植物成長制御活性を調べたところ、フリーデリンが強い活性を示した。アカギ各部位メタノール抽出物のハツカダイコンに対する成長制御活性を調べたら、葉部>根部>材部>樹皮部の順に強かった。自然界に存在する溶媒は雨水であることから、葉部の室温水抽出物を分画し分析した結果、活性の強い画分よりフェノール酸類としてp-ヒドロキシ安息香酸、バニリン酸、シリング酸、プロトカテキユ酸、没食子酸が、桂皮酸類としてp-クマル酸、フェルラ酸、シナピン酸が確認された。新鮮葉、枯葉、樹体の周辺土壌の活性を比較したら、枯葉>周辺土壌>新鮮葉の順で活性が強かった。枯葉、周辺土壌にもこれらフェノール性物質が含まれていることが明らかとなった。フェノール類の植物成長制御活性を比較したら、クマリン類>桂皮酸類=フェノール酸類>タンニン類>フラボノイド類の順であった。これらの結果から、アカギのアレロパシー原因物質は枯葉から容出するフェノール類であると結論された。アレロパシー活性を調べる方法として幼植物検定が用いられるが、植物の個体差によるバラツキや検定時間などが問題となる。ブラインシュリンプ幼生を用いる検定法は卵の入手が容易で安価であり、検定時間が短いなどの特徴がある。上記フェノール性

化合物による本幼生の50%致死濃度と植物成長制御活性を比較したところ、活性の傾向は一致しており、ブラインシュリンブ幼生致死活性検定法はフェノール性化合物のアレロパシー活性検定法として使用できると考えられた。

植物に含まれる生物活性物質の抽出法としては、前抽出物中に占める目的物質の相対収率が高いものが望ましい。水蒸気蒸留法、溶媒抽出法、超臨界二酸化炭素抽出法（SFE）を比較し、抽出選択性の高い方法を検討した。SFEは抽出温度が常温に近く抽出物の変質が少ない、溶媒の残留が皆無で無毒、火災の危険がない等の特色がある。本法によりアオモリトドマツ葉部からマルトールが高選択的に抽出された。トドマツ樹皮からは cis-アビエノールが高選択的に抽出されることが示された。ヒバ材部からヒノキチオールを抽出する場合、溶媒抽出法は収量の絶対値は高いが相対収率が低く、水蒸気蒸留法は収量が低かった。SFEは抽出選択性が極めて高く最も優れていると認められた。米スギ材部からのトロポロン、トロポンの抽出においても、SFEは最も優れていた。以上の結果から、SFEは樹木から生物活性物質を抽出する方法として最も適しており、今後工業的な応用が進むものと期待される。

## 審 査 の 要 旨

植物は種々の生物活性を示す成分を含有することが知られ、古くから生薬や殺虫・防菌等に利用されてきた。天然物は自然環境下では分解され、環境汚染物質として蓄積することがない。合成薬剤ほど強力な効果がなくても、天然生物活性物質の利用は今後ますます必要性が高まると思われる。著者は生態学的に特異な性質を示すアオモリトドマツおよびアカギの成分を精査し、それぞれの物質の生物活性を検定した。

アオモリトドマツにおいては化学構造既知のトリテルペン、アビエスラクトンと構造が類似した新物質、ネオアビエスラクトンを見出した。また、香料、食品添加物等として利用されるマルトールが本樹木に多く含まれることを見出した。モノテルペン類についても精査を行った。マルトールの生物活性試験は新たな知見である。

アカギのアレロパシー原因物質としてフェノール酸類、桂皮酸類等のフェノール物質を確認した。このほか本植物に含まれる成分としてフリーデリンと数種のステロイドを見出し、フリーデリンが強い生物活性を示すことを確認した。

生物活性を有する物質の抽出法を検討し、超臨界二酸化炭素抽出法が選択性が高く、効率的であることを見出した。本研究は、工業的に天然物を利用するための新規な知見を提供した。

上記の成果は、天然物化学の発展および天然物の工業的利用に貢献するもので高く評価される。

よって、著者は博士（農学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。