関西自然保護機構会報 13 (2)：77—86，1992

大気汚染と樹木の生理機能障害

——タンニン生合成および肥大生長の阻害——

加　藤　輝　隆（富山医科薬科大学医学部公衆衛生学）
河　野　昭　一（京都大学理学部，東北大学遺伝生態研究センター）

1. はじめに

農村地帯に新設された火力発電所の周辺地域で，17年間にわたって実施された樹木の活力に関する一連の調査によって，大気汚染と樹木の枯死との関連や，発生源対策の有効性などが明確に示された。本稿では樹木に対する低濃度大気汚染の生理的な影響として，おもにタンニン生合成阻害や肥大生長阻害の面から検討する。

2. 調査地域の大気汚染状況

調査地域は福井県北部に位置する坂井地域の東西約15 km，南北約20 km の範囲（図1）であり，その大部分を九頭龍川流域の沖積平野が占め，水田地帯の中に集落が点在している。大規模な大気汚染源は九頭龍川河口のＦ火力発電所（35万 kw）およびＫ火力発電所（25万 kw）以外には存在しない。Ｆ，Ｋ火力発電所はそれぞれ1972年９月および1978年７月より運転されているが，Ｆ火力発電所では1975年６月まで排煙脱硫が行われていなかった。1972～1977年には調査地域全体の重油使用量の82～88％，硫黄酸化物排出量の70～80％をＦ火力発電所が占めていた。排煙脱硫装置設置後の，1976年には硫黄酸化物排出量は1973年の15％程度にまで低下した。発生源対策を反映して大気中の硫黄酸化物濃度も1975～1977年には1972～1974年の約半分に急減している。

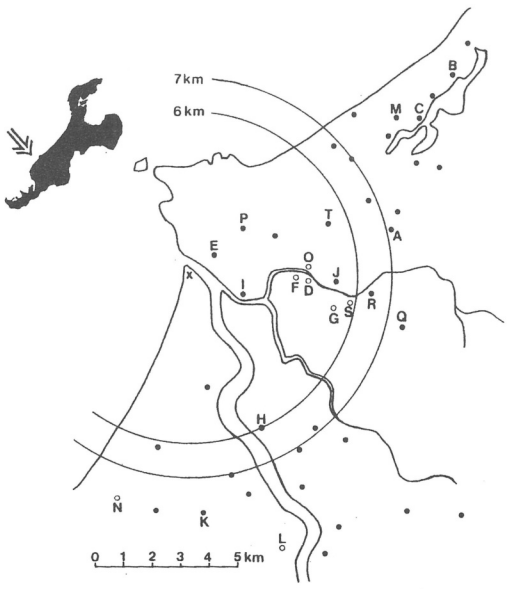


図1　調　査　地　域

二酸化窒素（NO_2）の年平均値は0.01 ppm 前後で推移しており，日平均値の98％値は0.02～0.03 ppm となっている。自動車の窒素酸化物排出規制が進む一方で交通量が増加し続けているため，近年の窒素酸化物濃度は横ばい状態である。

オキシダント（O_X）濃度は大都市周辺などに比べれば低く，0.06 ppm を超える１時間値は年間約300～400時間のみであり，0.12 ppm 以上の値は記録されていない。

雨水の pH については，1974～1979年にかけて急激に酸性化が進み，年平均が5.0以下になった。1975年以降の硫黄酸化物汚染の改善にもかかわらず，雨水の酸性化が進行し，年平均値4.5～5.2で推移している。この原因については大気汚染物質の長距離輸送のような広域的な問題を考える必要がある。

3. スギ葉中の水溶性硫黄含有量

気孔から侵入した硫黄酸化物はほとんど同化を受けず硫酸塩として葉中に蓄積することが知られており，大気汚染の指標として葉中の水溶性硫黄が測定されている。1975年10月に採取されたスギの１年葉について，生育期間の大気中の硫黄酸化物濃度と葉中水溶性硫黄含有量の間には有意の相関（$p < 0.05$）が認められ，葉中水溶性硫黄が硫黄酸化物による大気汚染の指標として有効であることが確認された（Katoh et al, 1989a）。また，図２には1976年６月に採取したスギ１年葉について水溶性硫黄含有量の地域差を示したが，大きな河川に沿った局地風の影響を受けやすい地域で高濃度の蓄積が認められた。一方，スギの活力衰退がほとんど見られない北部の北潟湖周辺や南部の山麓では水溶性硫黄が少ないという傾向であり，後述する年輪解析結果とも一致した。

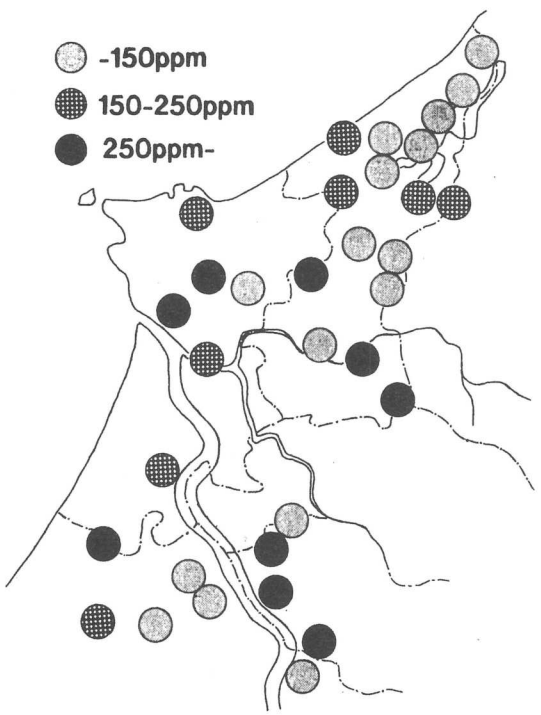


図２　スギ葉中の水溶性硫黄含有量の地域差
（1976年，１年葉）

4. スギ葉中のタンニン合成阻害と虫害の増加

1975年に調査地域内でスギ葉中の水溶性硫黄を定量した際に，前処理で除かれるタンニンの量に著しい地域差が認められた。タンニンは，酸化・腐朽・虫害などに対する植物の重要な防御因子と考えられている（Dickinson, Lucas, 1982）。したがって，タンニン含有量の低下によって，環境要因に対する樹木の抵抗性が減少する可能性が考えられた。そこで，タンニン生合成中間代謝産物の定量などによって，生合成阻害機構の推定を試みた。さらに，スギドクガ幼虫による食害とタンニン含有量との関連についても検討した。

4.1　スギ葉中タンニン含有量の地域差

1976年６月に採取されたスギ１年葉中の水溶性硫黄とタンニンの含有量との間には明らかな逆相関関係（$p < 0.001$）が示された（図３）。1977年には10地点で同一個体から３回にわたって当年葉を採取し，タンニン含有量の季節変動を調べた。対照地域では６月から11月にかけて急増したが，被害地域では一般に小さな増加率であった（図４）。

4.2　スダジイ葉中タンニンの分別定量

タンニンは没食子酸などのフェノールカルボン酸のエステルよりなる加水分解性タンニンおよび，数分子のカテキン類が縮合した縮合タンニンに大別される。縮合タンニンの基本骨格はすべて，シキミ酸経路によって合成されるのに対し，加水分解性タンニンの場合には中間代謝産物の３－デヒドロシキミ酸から直接誘導される経路も存在する（図５）。

したがって，これらのタンニンの分別定量によって生合成阻害部位を推定できる可能性がある。ところが，スギなどの裸子植物には加水分解性タンニンは含まれない（Bate-Smith, 1962）。そこで，調査地域内に比較的広く生育する被子植物として

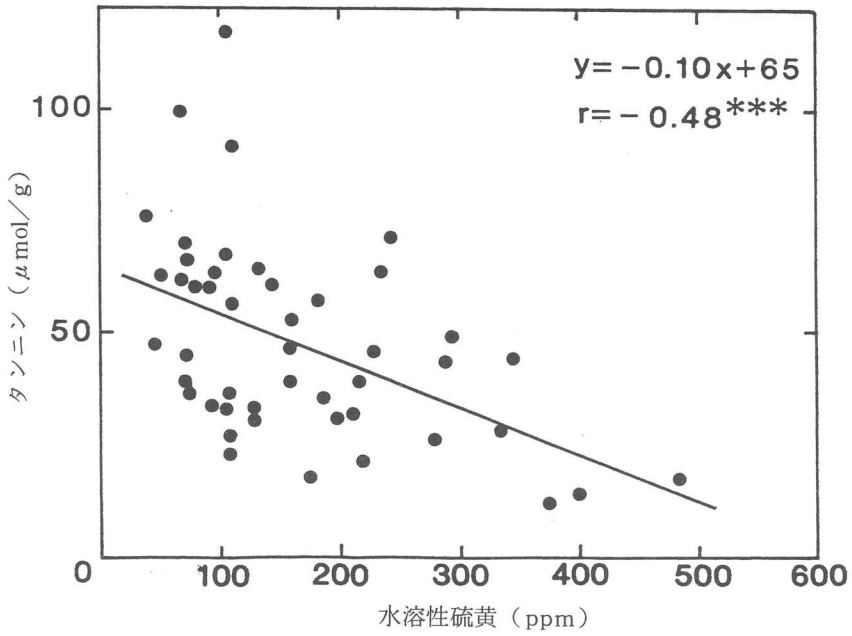


図 3　スギ葉中の水溶性硫黄とタンニン

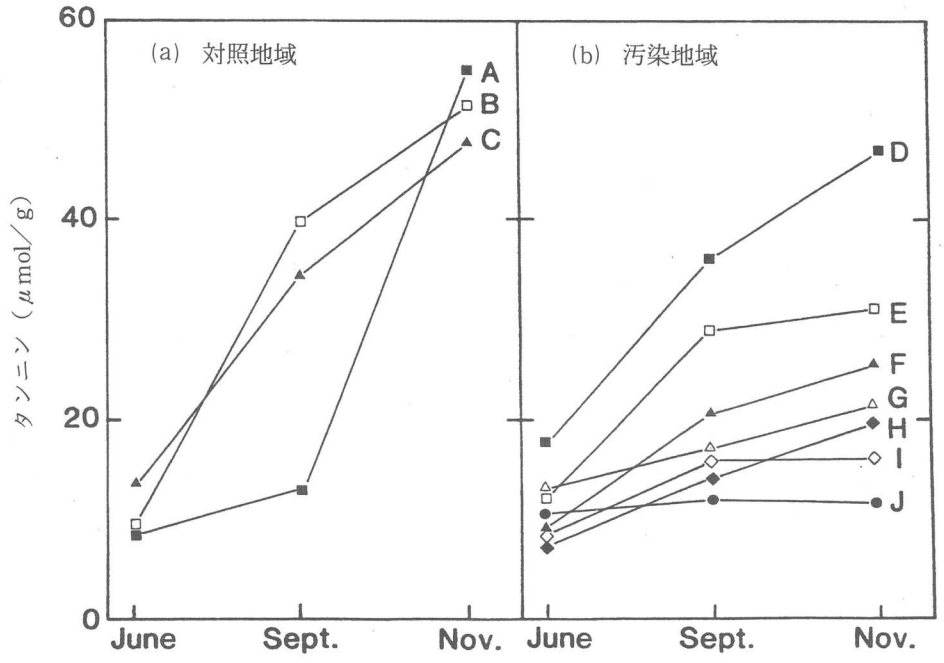


図 4　スギ葉中タンニン含有量の季節変動（1977年，当年葉）

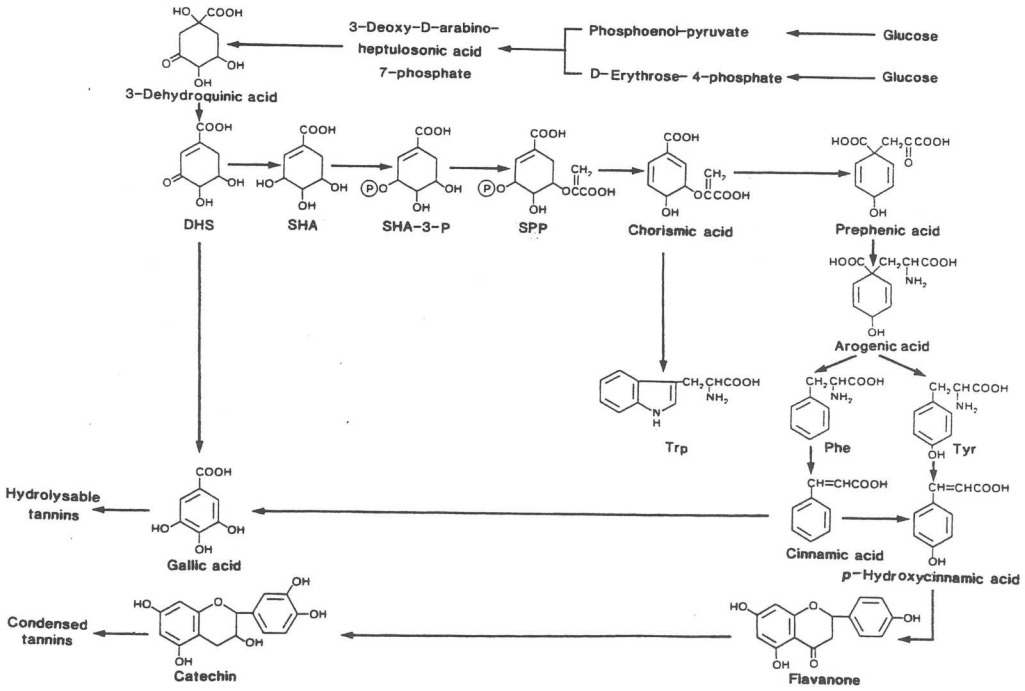


図5　タンニン生合成経路

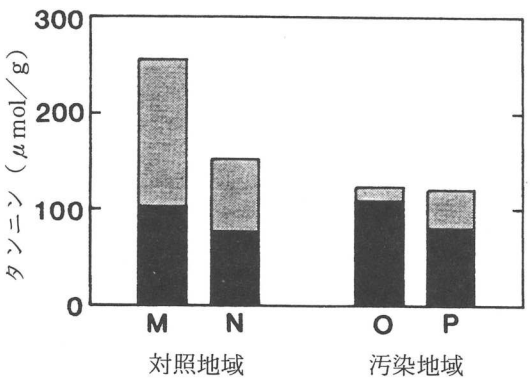


図6　スタジイ葉中タンニンの構成比
黒塗りは加水分解性タンニン，メッシュは縮合タンニンを示す。

スダジイを選び，葉中タンニンの分別定量を行った。その結果，被害地域では縮合タンニンが特異的に減少している可能性が高かった（図6）。したがって，タンニン生合成の阻害部位がシキミ酸より後の段階の反応であると考えられた。

4.3　スギ葉中タンニン合成前駆体の定量

1976年6月に採取された41検体のスギ1年葉について3種類のタンニン生合成前駆体（グルコース，シキミ酸，フェノール性化合物）を定量し，水溶性硫黄との関連を検討した。その結果，グルコースと水溶性硫黄との間には明らかな逆相関（$p < 0.001$）が認められ，水溶性硫黄の多いスギでは光合成活性が低下していることが示された。また，フェノール性化合物についても同様の逆相関が認められたが，シキミ酸の場合には他の成分

のような明瞭な関係は見られなかった。

これらの中間代謝産物の相互関係を解析したところ，グルコースからシキミ酸を生成する段階の反応やベンゼン環の水酸化はほとんど阻害されていないのに対し，シキミ酸からフェノール性化合物に至る反応が何らかの要因によって乱されていると考えられた。

この点を大気汚染との関連で検討したところ，水溶性硫黄の多いスギでは，シキミ酸からフェニルアラニンに至る間のベンゼン環形成反応の阻害によって葉中タンニン含有量が低下したという機構が推定された（Katoh et al, 1989b）。

なお，スギ苗木を用いた低濃度SO_2の長期暴露実験や，緑豆めばえのコリスミン酸ムターゼを用いた酵素学的実験をおこなったところ，いずれも大気汚染物質が上記の生合成反応を阻害するという可能性を示唆した（加藤ほか，1991）。

4.4　スギドクガ幼虫による食害と葉中タンニン含有量の関連

1977年11月に調査地域で採取されたスギ葉の一部にスギドクガの幼虫による食害が見られた。そこで，各地点ごとに約200～400枚の葉の食害状況を記録し，スギドクガ（*Dasychira abietis argentara*）による食害が全く認められないものを（－），食害を受けた針葉が10%未満，10～30%，30%以上のものをそれぞれ，（±），（＋），（＋＋）と区分した。各階級別の頻度に0，5，20，40の重みをつけた加重平均によって食害指数（predation index）を定義した。

調査地点ＪやＨの食害指数は大きく，これらの地点ではスギドクガの幼虫による食害は針葉全体の約3～4%に達すると推定された（表1）。火力発電所からの距離によって調査地点を2群に分け，χ^2検定を行ったところ火力発電所に近い地域のスギは大きな被害を受けているという傾向が示された（$p<0.001$）。また，葉中タンニン含有量によって調査地域を2群に分けた場合には，タンニン含有量の少ないスギは食害の影響が大きいという傾向が認められた（$p<0.01$）（Katoh et al, 1989b）。

表1　スギドクガによる食害の地域差と葉中タンニン含有量

採取地点	火力発電所からの距離 [km]	食害状況別の針葉数 (－)	(±)	(＋)	(＋＋)	食害指数	タンニン含有量 [μmol/g]
E	1.2	303	8	10	0	0.75	30.8
F	3.7	203	6	10	1	1.26	24.4
G	5.2	262	3	13	3	1.42	21.3
J	5.2	140	18	18	2	2.97	11.2
H	6.0	140	19	24	4	3.91	20.6
A	7.2	272	5	10	0	0.79	54.1
K	8.7	285	3	2	0	0.19	19.2
C	9.2	203	4	11	0	1.11	47.5
L	10.3	386	2	7	1	0.51	15.5
B	11.5	249	6	7	1	0.82	51.7

5. スギ年輪解析による大気汚染の影響評価

スギの活力度調査が開始された1974年にはすでに，顕著な可視被害が見られていた。そこで，被害発現の時期や大気汚染との関連などを過去にさかのぼって検討するため年輪解析を実施した。

5.1 試料の採取と標準化年輪指数の算出

1980～1983年の間に51地点から直径5mmのスギ年輪コアサンプルを270本採取し，ソフトX線のネガフィルムから年輪幅を計測した。年輪幅は樹齢や気象条件によって大きく左右されるため，スギの生育環境の推移を評価するためには，これらの影響の補正が必要となる。そこで，樹齢の影響を補正するために火力発電所の操業開始前のデータにもとづいて，個体ごとの年輪幅の経年変化パターンを指数曲線で近似し，各年度の年輪幅の期待値に対する実測値の比として年輪指数を計算した。

次に，火力発電所の操業開始前の41年間について季節別の気象条件と年輪指数との関連を重回帰分析によって検討した。さらに，重回帰式から計算される各年の年輪指数の期待値に対する実測値の比として標準化年輪指数を定義した。したがって，標準化年輪指数は樹齢ならびに気象条件の相違による変動を補正した年輪幅の指標と考えることができる（加藤ほか，1988a）。

5.2 標準化年輪指数の経年変化

火力発電所操業前の41年間の標準化年輪指数は，1.00±0.08（平均±標準偏差）となっており，1960年代の末に漸減傾向が見られるが，いずれも0.8～1.2の範囲内に入っている。ところが，発電所の操業後には初めて0.7以下となり，1973年には0.54という最低値を記録した（図7）。なお，1977年以降，回復傾向が認められ，1980年には0.73になっており，火力発電所で実施された排煙脱硫などの対策の効果が表れたものと考えられる。

標準化年輪指数の変動係数は1970年頃までは30～40%と比較的小さな値で推移したが，1972年以降は急増し，1980年には70%を超えている。これは発電所の運転開始後，スギの生育環境の地域差が急増したことを示すものと考えられる。

5.3 標準化年輪指数の経年変化の地域特性

火力発電所から半径7km以内の地域では1972年あるいは1973年に標準化年輪指数が急減した。特に5km以内の地域ではその後も一貫して低い値が続いたが，5.1～7kmの地域では回復傾向も認められた。一方，7.1～9kmの範囲については1972年以降の減少はわずかであった。さらに9.1km以遠の地域になると，この時期の減少傾向は見られなかった（図8）。

肥大生長の阻害が最も著しかった1973～1976年の標準化年輪指数の地点別の平均値と火力発電所からの距離との間には（図9）のような関係が示された。火力発電所から約10km離れた地点の標準化年輪指数は約1.0と計算され，生育阻害がみられない。一方，7kmおよび4kmの地点では標準化年輪指数はそれぞれ，約0.7および0.5となり，明らかな生育阻害が示された。

5.4 大気汚染物質濃度と標準化年輪指数

二酸化硫黄（SO_2）および二酸化窒素（NO_2）の年平均値と標準化年輪指数の関連を図10に示したが，両者の汚染レベルの高いところほど肥大生長の阻害が著しいことが明らかになった。この関係は式(1)で示され，SO_2とNO_2の年平均値（ppb）によって標準化年輪指数の変動の約70%が説明可能であった。

$$SRI = \frac{1.45}{1 + \exp(0.75 \log SO_2 + 2.37 \log NO_2 - 2.46)} \quad (1)$$

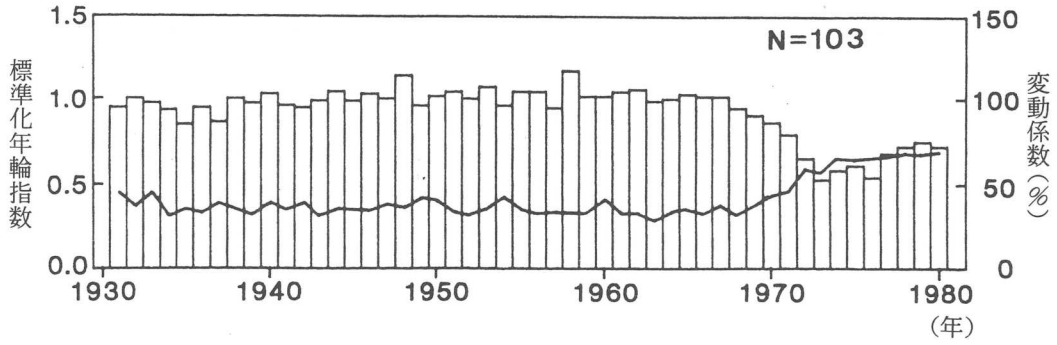


図 7　標準化年輪指数の推移（全地区）
柱状グラフは標準化年輪指数，折れ線グラフは標準化年輪指数の変動係数を示す。

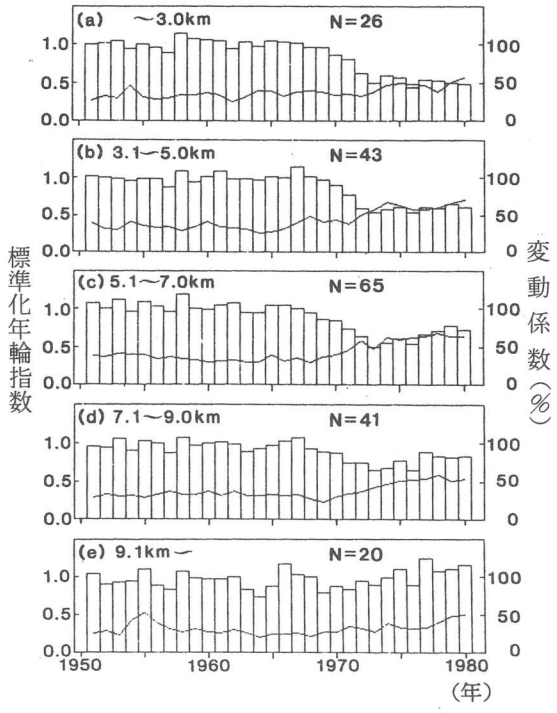


図 8　火力発電所からの距離階級別にみた標準化年輪指数の推移
柱状グラフは標準化年輪指数，折れ線グラフは標準化年輪指数の変動係数を示す。

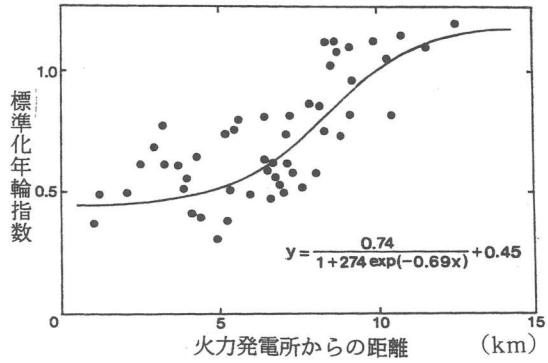


図 9　火力発電所からの距離と標準化年輪指数
（1973～1976年の平均値）

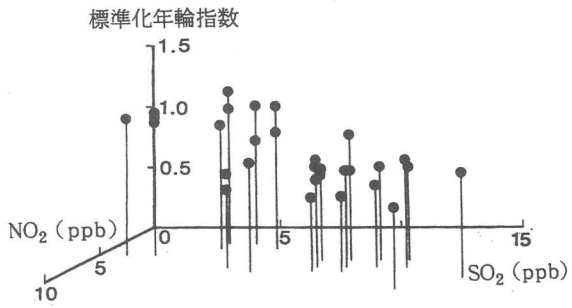


図10　二酸化硫黄，二酸化窒素の年平均値と標準化年輪指数

式(1)より，年平均値として5 ppbのNO_2と1,10および20 ppbのSO_2が共存する場合の標準化年輪指数は，それぞれ1.00，0.75および0.66と推定され，比較的低濃度のSO_2やNO_2による生育阻害が示唆された。

国内では硫黄酸化物による汚染は1960年代にすでに深刻な問題となっていたため測定の歴史が長いが，窒素酸化物は数年遅れて測定が始められていることが多い。ところで，式(1)をNO_2について解けば，式(2)が得られ，SO_2の年平均値と標準化年輪指数の値をもとに過去のNO_2の年平均値を推定することも可能となる。

$$\log NO_2 = \frac{1}{2.37} \cdot \ln \frac{1.45 - SRI}{SRI \cdot \exp(0.75 \log SO_2 - 2.46)} \quad (2)$$

5.5　雨水のpHと標準化年輪指数の関連

調査地域では火力発電所への排煙脱硫装置の設置などによる大気環境の改善にもかかわらず，雨水の酸性化が年々進んだため，標準化年輪指数と雨水のpHとの間には全く相関が認められなかった（加藤ほか，1988b）。葉の可視被害発現の閾値はpH3.4と報告されているが，調査地域内の降水のpHの最低値は3.9であり，可視被害をもたらすほどの酸性雨は降っていないと考えられた。また，酸性雨の影響としては植物に対する直接作用のほか，土壌の酸性化による二次的な影響が指摘されている。しかしながら調査地域には酸性化を受けにくいタイプの土壌が多く，ほとんどの地点の土壌pHはスギの生育に好適とされる範囲内となっている。したがって，少なくとも1980年の時点では，調査地域のスギの生育を酸性雨が阻害している可能性は小さい。

6. 要　約

農村地帯に新設された火力発電所周辺の低濃度大気汚染地域で，スギの年輪解析を実施したところ，著しい生長阻害は火力発電所から約7 km以内の平野部で見られた。火力発電所から比較的離れた地点では公害防止対策による大気環境の改善によって，年輪幅がある程度回復しているのに対し，5 km以内の地点では生育阻害が持続した。また，過去の大気汚染物質濃度の一部を年輪年代学的な手法によって推定し得ることも示された。

大気汚染の指標として，葉中の水溶性硫黄含有量を定量したが，その際に見い出された，葉中タンニン含有量の低下という現象を端緒として，大気汚染によるシキミ酸経路の阻害が示された。さらに，タンニン含有量の低下とスギドクガの幼虫による食害増大との関連も示唆された。

野外の生態系の中で長く生き続ける樹木は外敵に対して，さまざまな防御機構を備えている。本研究では，このような役割の一端を担うタンニンの生合成が，大気汚染によって影響を受けるということが示された。なお，木材中に30%近く含まれ，細胞壁の強度を高めているリグニンもシキミ酸経路に依存しており，大気汚染によって合成阻害を受ける可能性が高い。タンニンやリグニンの含有量が低下すれば，昆虫の食害による葉量の減少のほか，木材腐朽菌の繁殖や木材強度の減少による材の脆弱化がもたらされ，樹木の抵抗性が全般的に低下し，大気汚染などの影響を受けやすくなるものと考えられる（図11）。

SO_2やO_3に暴露された葉はステロールや脂肪酸の組成が変化し，細胞の透過性が高くなることが報告されている（Grunwald, Endress, 1985）。また，大気汚染によって葉面のクチクラ層のワックス構造も変化するため，葉面の表面張力が低下し，酸性雨の影響を受けやすくなるということも知られている（Rinding, Percy, 1985）。

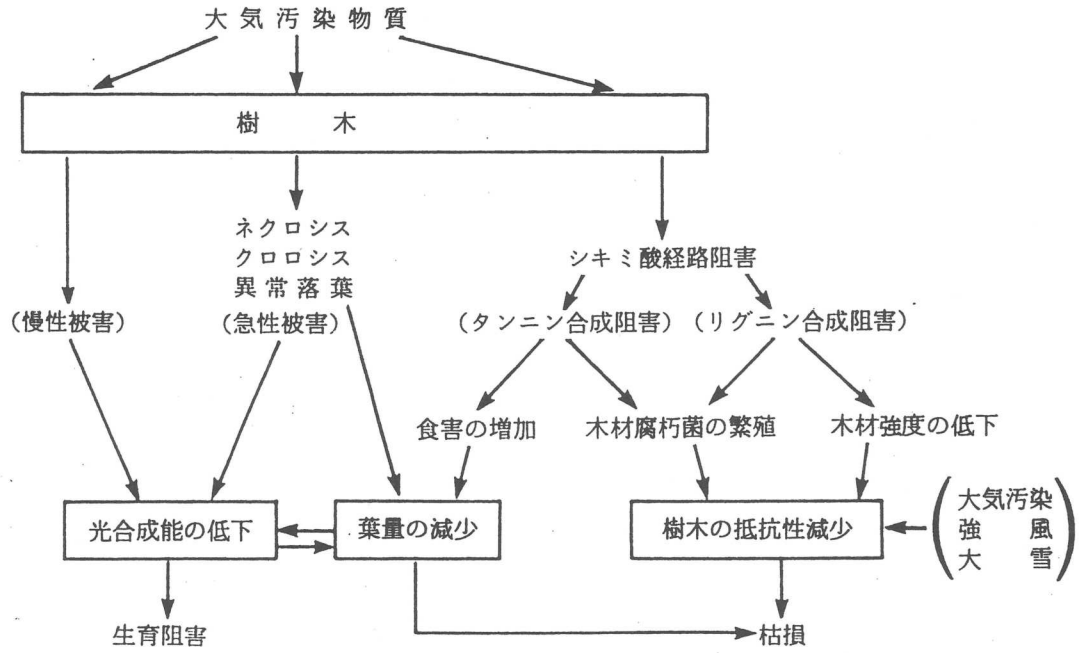


図11　大気汚染による樹木の活力衰退とシキミ酸経路阻害

比較的低濃度の大気汚染が樹木におよぼす影響としては，生体防御機構の異常による抵抗性の減少，二次的な樹勢の衰退を十分に考慮する必要がある。

本研究は芦原町公害対策植物調査の一環として行われたものであり，永年にわたり現地調査などで多大のご尽力をいただいた芦原町企画課，環境保健課の皆様に深謝いたします。

文　献

Bate-Smith, E. C. 1962. The phenolic constituents of plants and their taxonomic significance, 1. Dictyledons, J. Linnean Soc. Botany, **58**: 95－173.

Dickinson, C. H., Lucas, J. A. 1982. Plant pathology & plant pathogens. 2nd Ed., Blackwell Scientific Publications 168pp.

Grunwald, C., Endress, A. G. 1985. Foliar sterols in soybeans exposed to chronic levels of ozone. Plant Physiol., **77**: 245－247.

加藤輝隆・加須屋　実・鏡森定信・河野昭一・狐塚　寛. 1988. スギの年輪幅に及ぼす大気汚染の影響評価，Ⅰ．火力発電所の操業と標準化年輪指数の推移．大気汚染学会誌，**23**：311－319.

――――・――――・――――・――――・――――. 1988. スギの年輪幅に及ぼす大気汚染の影響評価，Ⅱ．火力発電所周辺地域における標準化年輪指数と大気中 SO_2，NO_2 濃度との関連．大気汚染学会誌，**23**：320－328.

Katoh, T. Kasuya, M. Kagamimori, S. Kozuka, H. Kawano, S. 1989. Effects of air pollution on tannin biosynthesis and predation damage in *Cryptomeria japonica* Phytochemistry., **28**: 439－445.

Katoh, T. Kasuya, M. Kagamimori, S. Kozuka, H. Kawano, S. 1989. Inhibition of the shikimate pathway in the leaves of vascular plants exposed to air pollution. New Phytol., **112**: 363－367.

加藤輝隆・加須屋　実・鏡森定信・狐塚　寛・河野昭一. 1991. 低濃度大気汚染の植物指標についての化学生態学的研究. 日本化学会誌, **1991**：656－666.

Riding, R. T., Percy, K. E. 1985. Effects of SO_2 and other air pollutants on the morphology of epicuticular waxes on needles of *Pinus strobus* and *Pinus banksiana*. New Phytol., **99**: 555－563.