

森林衰退に係わる大気汚染物質の計測、動態、制御に関する研究

研究代表者 広島大学総合科学部 佐久川 弘

Study on the Measurement, Behavior and Regulation of Air Pollutants Causing Forest Decline

Hiroshi Sakugawa, *Research Director of CREST*

Graduate School of Biosphere Sciences, Hiroshima University

1. 研究の概要

森林衰退と大気汚染との関連性を調査している気象学、大気化学、分析化学、植物生態学、植物生理学、微生物学の各分野の全国各地の研究者を組織化し、共通の視点・手法でその原因解明を試みてきた。具体的には、樹木の衰退が見られる全国4地点（丹沢・大山，乗鞍岳，瀬戸内海沿岸山林，九州山岳地域）で調査をそれぞれ実施した。過去5年間（1996年～2001年）の研究結果をまとめると次のようになる。全ての地点で1) 大気汚染と湿性沈着（雨，霧および露）の輸送・拡散経路と気象要素の関連性を野外観測と数学的モデリングから検討するとともに，2) 森林生態系とくに樹冠部から土壌にかけての影響物質の沈着量と化学変化過程の野外における定量化と，3) 衰退過程にある野外の樹木の生育状態とくに光合成生産や葉内成分・生理活性の診断，そして4) 影響物質の樹木に対する曝露による衰退過程の実験的検証を行った。以上の結果から，大気汚染と酸性降水あるいはそれらに由来する二次的な有害物質が，森林衰退と明確な関連性があると判断された。しかし，樹木の衰退に直接関与する汚染物質は必ずしもすべての地域において共通ではなく，気象条件，人為汚染の程度，樹種により異なることがわかった。一方，大気汚染による衰退と，病虫害や林床管理の有無との相互作用に関する研究も実施し，相乗効果を評価した。

2. 現在までの成果報告

2.1 成果内容の要約

国内4地点の研究成果をそれぞれ述べる。

瀬戸内海沿岸山林（主にアカマツを対象）

1. アカマツの大気汚染による衰退原因解明のモデルケースとして，広島県廿日市市極楽寺山周辺および西条盆地周辺（東広島市など）を主な調査地として研究を行ってきた。大気汚染物質の計測，降水（林内雨，林外雨を含む），露の採取，各種無機および有機物，金属濃度の分析を行い，汚染物質の種類および濃度，そして酸性降水の負荷量を解明することを試みた。すなわち，乾性沈着（特に植物体上の硫酸や硝酸の負荷），ガス状汚染物質と乾性沈着を高濃度に濃縮した朝露中から植物体上で光化学的に発生するOHラジカル，あるいはその発生源である過酸化水素，金属元素，亜硝酸，有機炭化水素などによる影響がアカマツの衰退と関連があると示唆された。また，西条盆地において衰退区（八本松町，高速道路沿い）および非衰退区（福富町）において大気汚染物質の測定を行った。その結果，高速道路周辺の衰退区において極めて高い

窒素酸化物濃度が見られ、アカマツの衰退を助長している可能性が示唆された。

2. 過去 20 年間の広島県の汚染物質発生量、大気中濃度、気象条件を考慮して数学モデルを構築し、極楽寺山周辺大気における汚染物質の輸送状況の解明を試みた。その結果、海陸風による汚染物質の輸送の重要性、そして接地逆転層形成による汚染物質の低標高地域における蓄積が森林衰退と関連性があることが示唆された。
3. 極楽寺山のアカマツ林衰退地（南側）と非衰退地（北側）において、露成分の測定結果から、アカマツ林衰退地のアカマツ葉表面ではカリウムイオンが葉から溶脱し、これにより露の pH が中和されていることが明らかとなった。
4. 人工衛星（ランドサット）データ解析から、森林衰退が市街地周辺あるいは道路沿いに集中していることがわかった。さらに、広島市を中心とする森林衰退が過去十数年前から進行していることが明らかになった。また、熱画像撮影装置（サーモグラフィー）による観測から、個々の樹木の衰退度評価あるいは、接地逆転層形成過程の解明が可能であることが示唆された。
5. 極楽寺山衰退地におけるアカマツ針葉の気孔開度の低下による光合成の制限が極楽寺山のアカマツ衰退に関わっていることが判明した。葉内の炭素同位体識別からは、葉内への ^{13}C 取り込み量の減少が衰退地の気孔開度低下の状況を裏付けている。衰退地における葉からのエチレン放出は葉の老化を促進していると考えられ、葉の加齢にともなう葉面のクチクラワックス量、葉内のクロロフィル含量の低下がこれを支持した。
6. 極楽寺山において、携帯用根系解析装置（ミニライゾトロン）によってパイプ側面の土壤中の根系・菌根を画像として記録した結果、表層の細根の密度は極楽寺山の都市側と山地側で同様の値であったが、より深い層（15-25cm）では、山地側の林分のほうが細根の密度が高い傾向があった。
7. 広島県極楽寺山でパイプモデル理論を応用した年間の光合成生産量を概算した。衰退モデルによる成長の予測値と衰退地の実測値は非常に良く対応し、衰退地における光合成生産の低下が樹木の成長の抑制を招くことを野外のデータを基に理論的に説明できた。成長の抑制は急速な枯死を招くほど劇的なものでは無かったが、必ずしも可視的ではない微弱な衰退を長期間にわたって継続させることを示唆する。
8. 樹木（ヤマサクラ、ヒサカキなど）の樹勢とフェノロジーの計測を行った。極楽寺山の都市側山林では、アカマツ以外の樹木衰退も並行して生じていることが判明した。西条盆地において、高速道路や市街に面したアカマツ林の針葉の光合成・気孔開度は郊外の健全なアカマツより幼木と成木でともに低下しており、汚染地での衰退は極楽寺山と類似した過程で様々な地域にわたって進行していることを示唆する。また、西条盆地の地形の特性（接地逆転層の形成）を考慮した気象と窒素酸化物の濃度の分布は、アカマツの年輪成長の現象との対応を示した。
9. 様々な状況下にあるマツ林分の群落構造を調査した。近年のマツの衰退は、必ずしも遷移を促進させるとは限らず、遷移を逆行させたり、停滞させたりする可能性もあることが示唆された。とりわけ、日当たりが良くマツ以外の高木性樹種の優占度が低い林分では、マツの衰退に伴い、ヒサカキ等の小高木・低木類が繁茂して高木類の実生や萌芽幹の更新を阻害す

る可能性があることが推察された。

10. 圃場において、オープントップチェンバーおよび簡易ハウスを建設し、曝露実験を行い、亜硝酸や過酸化水素を含んだ衰退地の朝露を模した溶液を週3回の頻度で早朝に葉面に噴霧した。過酸化水素(+鉄+シュウ酸)溶液を処理したアカマツ苗ではラジカル処理葉からはエチレンが発生しており、衰退地と同様に葉の寿命の短縮などが生じうる。これに合わせて、葉の光合成活性、気孔開度、クロロフィル濃度などが低下することが実験的に確かめられた。この光合成活性の低下は極楽寺山衰退地で観察できるものと対応している。また、枝先の莖量や個体基部の肥大成長の低下も実験下で観察され、数値計算の結果は将来の個体の死亡を予測した。

丹沢・大山研究 (主にモミを対象)

1. 丹沢山系の大山付近において、モミ林の衰退機構を調査・検討した。過去数年の調査より、酸性霧による酸性物質の沈着量が、特に高標高地域では、降雨のそれと同等か、あるいは上回る量であることが明らかになり、酸性霧がモミ枯れに関与する可能性を示唆した。また、霧底標高の観測のために大山の麓に暗視カメラを設置して観測した結果、麓の大気汚染度、霧底の位置、霧水量が重要であり、これらの要因を把握することにより、霧組成を予測できることを明らかにした。
2. 大山に運ばれる大気汚染物質は関東平野で発生した汚染物質が直接、あるいは相模湾に運ばれた後に吹き戻される場合の他に、関西あるいは中京地域で発生した高濃度の汚染物質が輸送されてくるケースが多くあることが後方流跡線解析によって明らかになった。
3. 丹沢山系におけるモミ林衰退地(大山)と非衰退地(札掛)において、葉面積あたりの窒素・マグネシウム・クロロフィル含有量はいずれも衰退地で小さく、葉の光合成の制限を引き起こしている可能性を示唆する。また、酸性物質が葉内の有用元素を葉から流出していると考えられる。葉内の活性酸素消去系酵素活性は衰退地で低く、ストレスを処理できない状態まで葉の活力が低下していることを示唆する。さらに、同齢の枝の乾物量は衰退地で小さく、光合成産物の減少が枝先の発育を不十分にしていると思われる。モミの細根の発達には衰退地で減少しており、この点からも光合成産物量の低下が根の発達を抑制している可能性が支持される。土壌中の細菌および糸状菌起源の有機分子の解析は、土壌劣化の指標「バイオマーカー」として微生物の定量が有効であることを示唆した。
4. 室内実験において、pHが3以下の酸性霧をモミ苗木に暴露した場合、新芽の成長抑制等が起こることが明らかになった。さらに、酸性霧によりカルシウムやホウ素が溶脱することが暴露実験とフィールド観測の両面から確認された。フィールド観測では細胞壁を構成する酸性糖の溶脱がカルシウムとともに起こっていることも明らかになった。モミの衰退は、主に硝酸によって酸性化した霧が、栄養分を溶脱させることが原因となっている可能性が高い。
5. モミ林衰退地(大山)と非衰退地(札掛)にモミ苗木を植栽し、葉内の活性酸素消去系酵素の活性を経時的に測定した結果、大山区で札掛区よりも低い傾向が見られた。成木については99年、00年ともSOD活性が大山区で札掛区よりも低下したが、APX活性は逆の傾向を示した。CAT活性は両地区でほとんど差は見られなかった。クロロフィル a/bは大山区で札掛区よりも低下した。植栽土壌では大山区は札掛区と比較してpH値の低下やCa・Mgといった栄養塩類の溶脱が大

きかった。一方、苗木の酵素活性、成木の SOD 活性は大山区で札掛区よりも低下していた。以上のことから大山のモミ林衰退は樹木の防御機構を越えた過剰なストレスにより樹木の生理活性が低下していることが原因であることが示唆された。

6. 圃場における酸性霧の曝露実験において、活性酸素消去系酵素（カタラーゼ）の活性が乾燥ストレス下で有意に低下することが見出された。また、酸性霧の曝露は、乾燥ストレス状態において気孔開閉のメカニズムに影響を与えることが明らかになった。

乗鞍岳（ヒノキ他を対象）

1. 乗鞍岳山頂付近（高度 2,770m）でエアロゾルと霧水を採集し、それらの化学組成を分析した。エアロゾル及び霧粒粒径別化学組成から、霧粒形成期における SO_2 の H_2O_2 による液相酸化による過程が重要であった。 $\text{SO}_2 \cdot \text{NO}_x$ 濃度の観測を夏から秋にかけて行った結果、これらのガスは晴天日の日中、局地循環に伴う谷風によって濃度が増加することが見出された。 $\text{SO}_2 \cdot \text{NO}_x$ 濃度と CO 濃度に良い相関が見出された。さらに、森林衰退の程度に差が見られる岐阜県側と松本側で、硫黄化合物に関する同時観測を行った結果、ガス濃度だけでなく、エアロゾル粒子及び霧水中で、硫黄化合物の濃度が岐阜県側で松本側より高いことが観測された。
2. 山頂付近でオゾン濃度の日変動を調べた結果、晴天日などでは夜間山風によって増加し、約 25~45ppb に達することが見出された。これらの濃度変動に加え、オゾン濃度は谷風によって日中にも増加することが見出された。さらに、約 1,850m の高度でもオゾン濃度の観測を行った結果、この高度付近で夏季に約 80~100ppb と極めて高い値にあることが見出された。
3. ギ酸・酢酸などの有機酸とそれらの前駆物質であるカルボニル類の挙動を調べた。その結果、カルボニル類の濃度は、赤城山（高度：1,400m）よりかなり高かった。これらの起源としては、ガス状ギ酸・酢酸の都市部からの長距離輸送や炭化水素の光化学反応による大気中生成などが推察される。
4. 室内実験（暴露実験）により、汚染物質の樹木への影響に関する生理・生化学的診断や、汚染物質の土壌劣化に関する有機化学的診断などを行った結果、オゾン、有機酸、アルミニウムなどをヒノキなどを樹木に処理した場合に、葉内の活性酸素消去系酵素群の活性が変化することが明らかになり、大気汚染や酸性霧によるストレスが生理活性に影響をもたらしていることが考えられた。

九州山岳地域（主にモミ、ヤクタネゴヨウを対象）

1. 屋久島において土壌の酸性化と渓流水の水質を継続的にモニタリングし、また、堆積土壌を採取し、土壌 pH、含水率、全有機炭素量、全窒素および全リン量を測定した。さらに、電子顕微鏡による粒子の形状観察、粒径分布、構成元素の分析、樹水、雪、降水中溶解成分の pH、電気伝導度の測定、イオン成分分析を行った。その結果、大陸に起源を持つ汚染物質を同定・定量し、遠距離由来物質の山岳地域への負荷量を見積もることができた。
2. ヤクタネゴヨウの立ち枯れが見られる屋久島西部林道周辺において、二酸化窒素および二酸化硫黄の測定、オゾン及び窒素酸化物濃度の測定を行った結果、窒素酸化物はいずれにおいても低濃

度で推移していた。一方、オゾン濃度は、日中、50ppb程度で推移した。

3. ランドサット画像から植生状況を解析した結果、屋久島北西部で植生に変化が認められ、さらに、赤外線熱画像を用いた地上観測でも同様な結果が得られ、植生の衰退が北西部において近年に顕著になっていることが判明した。
4. 屋久島における絶滅危惧植物ヤクタネゴヨウの葉内成分は、この離島の極端に多い降水による流出が顕著であることを示唆した。また、この傾向は島の北西部において顕著であり、大気汚染物質との関連性が示唆された。
5. 福岡県宝満山におけるモミ枯れの植生調査を実施し、大気汚染との因果関係を調査した。平成10年時点でのモミ枯れの分布および進行度は約10年前の調査した際とほぼ同様であることがわかった。

2.2 発表論文等の記載：主な発表論文

平成12年度

1)

Trees, 14, pp. 305-311 (2000) (A. Kume, N. Tsuboi, T. Satomura, M. Suzuki, M. Chiwa, K. Nakane, N. Sakurai, T. Horikoshi and H. Sakugawa)

"Physiological characteristics of Japanese red pine, *Pinus densiflora* Sieb. et Zucc., in declined forests at Mt. Gokurakuji in Hiroshima Prefecture, Japan"

アカマツ林の大気汚染による生理生態的な衰退機構を広島県極楽寺山で調べた。NO₂濃度は針葉寿命と負、針葉からのエチレン放出と正の相関を示した。衰退地の最大気孔開度(*gl*)、飽和光合成速度(*Pn*)、葉内CO₂濃度は、非衰退地よりも50%、30%、20%ほどそれぞれ低かった。*Pn*の低下は、*gl*の減少によって説明できた。衰退地と非衰退地で土壌pH、窒素含有量、窒素C/N比には差はなく、O₃やSO₂の影響も検出できなかった。*Pn*の低下と針葉寿命の短縮は、衰退地域におけるアカマツ衰退の要因と考えられ、NO₂の重要な役割が示唆された。

2)

Microchemical Journal, 68, pp. 257-264 (2001) (M. Koga, Y. Hanada, J. Zhu and O. Nagafuchi)

"Determination of ppt levels of atmospheric volatile organic compounds in Yakushima, a remote south-west Island of Japan"

大気中 ppt レベルで存在する揮発性有機化合物 (VOC) の定量を行なった。方法はキャニスターサンプリング、3段階濃縮、GC/MS分析からなるUS-EPA法TO-14に準拠した。分析対象物質はフロン化合物(4種)、ベンゼンおよびその誘導体(14種)、ハロゲン化炭化水素(20種)およびその他(3種)とした。最少検出限度は0.016から0.040ppbの範囲であった。回収率は77~113%(相対変動係数:3.0~6.0%)と良好な結果が得られた。本方法を人為汚染源が極めて少ないと考えられる屋久島において大気中VOCの定量に応用し、VOCの存在レベルおよび季節変動を明らかにした。

3)

Journal of Forest Research, 5, pp. 259-263 (2000) (T. Ogawa, C. Takenaka and T. Tezuka)

"Responses of antioxidant enzymes in the needles of Hinoki Cypress (*Chamaecyparis obtusa*)"

seedlings to nutrient solutions containing various calcium/ aluminum ratios”

Al 濃度一定 (5 mM) で、Ca/Al 比を変えた培養液に対するヒノキ葉内活性酸素消去系酵素の応答についての実験を行った。より低い Ca/Al 比の培養液処理に対して、スーパーオキシドを過酸化水素 (H_2O_2) に変換する SOD は 7 日間を通じてより高い活性を示したが、 H_2O_2 を消去するアスコルビン酸ペルオキシダーゼは処理初期に高い活性を示すものの、処理後期に活性減少を示した。これらの結果から葉内での H_2O_2 蓄積が示唆された。

4)

Atmospheric Environment, 34, pp. 2937-2945 (2000) (H. Okochi, H. Kameda, S. Hasegawa, N. Saito, K. Kubota and M. Igawa)

”Deterioration of concrete structures by acid deposition—an assessment of the role of rainwater on deterioration by laboratory and field exposure experiments using mortar specimens”

酸性沈着物によるコンクリートの劣化について調査した。屋内暴露実験によると、モルタル中カルシウム水和物の溶出量は、疑似酸性雨暴露溶液の酸性度の増加および暴露流量の減少と共に増加した。同じ酸性度の疑似酸性雨を暴露した試料では、暴露後の処理温度によるカルシウムの溶出量に違いは見られなかった。しかし、中性化は室内放置条件に比べて乾燥および冷凍条件で進行した。また、日本における 15 年分の降水量に相当する疑似酸性雨を 90 日間暴露したところ、日本の平均雨水 pH である pH4.7 の疑似酸性雨によって中性化が促進されることが分かった。屋外暴露実験によると、カルシウム水和物の炭酸化と、炭酸カルシウム以外の腐食物質の生成はモルタル試料の表層に限られることが明らかになった。中性化は湿性沈着物よりも乾性沈着物によって進行することが分かった。

3. 森林衰退の制御に関する提言

以上の野外観測および曝露実験より、多くの大気汚染物質のうち、特定の物質が直接的に樹木の衰退に関与することが明らかとなった。また、衰退の過程もほぼ推定できた。

近年の大気汚染による樹木衰退は、70 年代頃の硫黄酸化物による急激で可視的な衰退とは異なり、窒素酸化物からの二次的な生成物による外部からは判断しにくいゆるやかな過程を含んでいる。本プロジェクトで対象としている樹種以外の針葉樹および広葉樹の衰退に関する調査は不十分であり、早急に調査を開始する必要がある。

ここで、大気汚染以外の諸要因も含めた森林の衰退機構を解明することが重要である。すなわち、大気汚染によって生理機能が低下した樹木に対し、病虫害の発生、人為管理の有無や植生遷移の進行の影響などを総合的に評価していかなければならない。大気汚染が他の衰退要因と相補的に森林の衰退に作用する場合、土砂崩れなどの災害発生、生態系の機能の安定性（水源涵養機能など）と生物多様性の減少、風致の低下などの諸問題が助長される可能性が高い。したがって、衰退の抑制には、林床管理や病虫害の制御はもちろん、窒素酸化物などの汚染物質の制御があらためて重要になるだろう。