

# 1. 森林衰退の現状と原因

## 1.1. 森林衰退の現状

森林衰退は深刻な環境問題の一つであるが、衰退の原因は未だ十分に明らかになってはいない。森林更新説、自然災害説、乾燥・水分ストレス説、大気汚染説など、地域や樹種によって様々な議論がなされている。

ドイツ・シュバルツバルトをはじめ北欧や北米では、1960年代後半から、汚染された酸性度の強い雨水あるいは霧水によって湖沼や土壌 pH が低下し、魚類等の水中生物の死滅や森林枯死といった被害が広範囲にわたって生じた<sup>1, 2, 3)</sup>。そのなかでも“黒い三角地帯”として知られるチェコ西北部、ポーランド南部、ドイツ東部の山岳地帯では、硫黄酸化物(SO<sub>x</sub>)を含む排煙が森林へ大きな影響を与えた。図 1.1 に各国の森林衰退の現状を示す<sup>4)</sup>。この図のように落葉率で衰退状況を表すことが多いが、落葉の程度による樹木の外観を図 1.2 に示す。1990年代後半には欧米諸国で SO<sub>2</sub> 規制が始まり、大気環境の改善はみられたものの、森林や湖沼の生態系の回復には至っておらず、逆に窒素化合物の沈着による富栄養

化といった新たな問題を引き起こしている。降水の酸性化を中心とした問題は、アジア地域も例外ではなく、重慶近郊においては酸性汚染ガスによる森林被害ばかりではなく、人体への健康被害さえ起こっている<sup>5)</sup>。

わが国では、神奈川県丹沢山地のモミ<sup>6)</sup>およびブナ<sup>7)</sup>、群馬県赤城山のシラカンバ<sup>8)</sup>、栃木県奥日光のダケカンバ、シラビソ、オオシラビソ<sup>9)</sup>、関東地方のスギ<sup>10)</sup>、瀬戸内沿岸部におけるマツ<sup>11)</sup>など、各地で樹木枯損や森林衰退が顕在化している(図 1.3)。森林衰退の現状把握には背景となる環境要因を考慮する必要があり、各衰退域の環境汚染状況や樹木生育状況などに関する総合的な現地調査が必要不可欠である。しかし、その現状は極めて不十分な状況にある。

現在、国内の森林衰退域における原因究明調査は地域的に限られたものであり、これまで丹沢山地のモミ林衰退には酸性霧<sup>3)</sup>やオキ

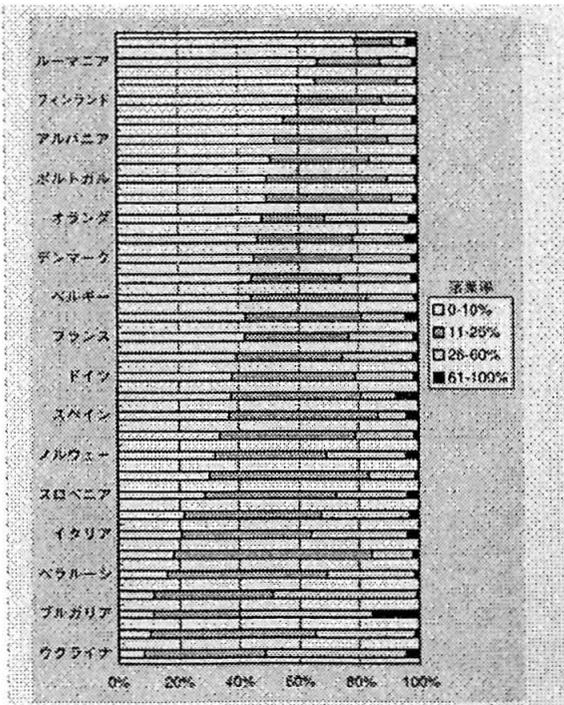


図 1.1 1998 年における欧州各国の森林の状況  
調査地点総数:5695 点、総調査個体数:127,455 本

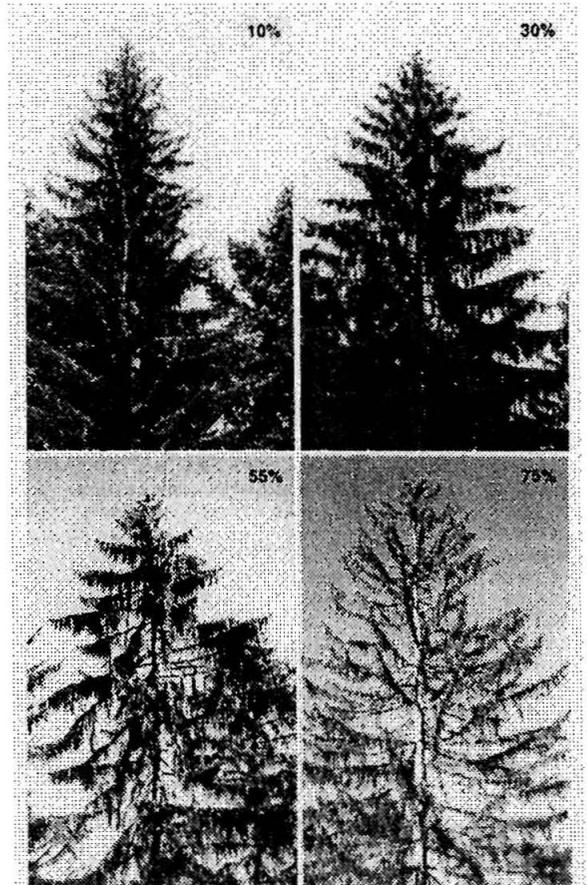


図 1.2 落葉の程度による樹木の外観(トウヒ)



シウム濃度によって、樹体内での極端なマグネシウム欠乏が起こる。酸性降下物は森林生態系に過剰な窒素を供給するが、土壌と葉からマグネシウムとカルシウムを溶脱し、樹木の生長にとっての養分のアンバランスが生じ、樹冠の直接の肥料効果によって根と枯葉との間の生長バランスが攪乱される。その結果、葉内のクロロフィル濃度が低下し、葉が黄化すると共に光合成速度が極端に低下する。

### (3) オゾン説

Aschmore や Krause などが提唱している説で、オゾンによる葉の光合成阻害や細胞膜の透過性の増加などの生理機能障害が樹木の生長抑制をもたらしているとするものである<sup>20, 21</sup>。50~100 ppb のオゾンの長期曝露は葉の光合成を阻害する働きがあり<sup>22</sup>、光合成の減少と呼吸の増加および転流は生長を遅らせる。また、オゾンはクチクラワックス<sup>23</sup>や細胞膜に障害を与え、それによって膜の透過性を変

化させ葉から体内成分の溶脱を引き起こす<sup>24</sup>。これは害虫や病原菌による攻撃を受けやすくし、他のストレスによる症状を拡大する。

### (4) 窒素過剰説

植物は生育のために多くの元素が必要であるが、それらの多くは大気から供給され、根または葉から吸収される。しかしながら、産業の発展に伴い排出される様々な物質は森林域に高い負荷を与え、栄養過剰な状態にしている<sup>15</sup>。中でも大気中に排出された窒素酸化物やアンモニアに起因する窒素の過剰な負荷はそれまで窒素が制限要因であった森林に栄養のアンバランスを生じさせ、樹木の衰退と菌根菌の活力阻害と壊死を引き起こすと考えられる。

### (5) ストレス複合説

ストレス原因には競合ストレス、気候ストレス（低温、干ばつ、洪水、強風、低湿度）、

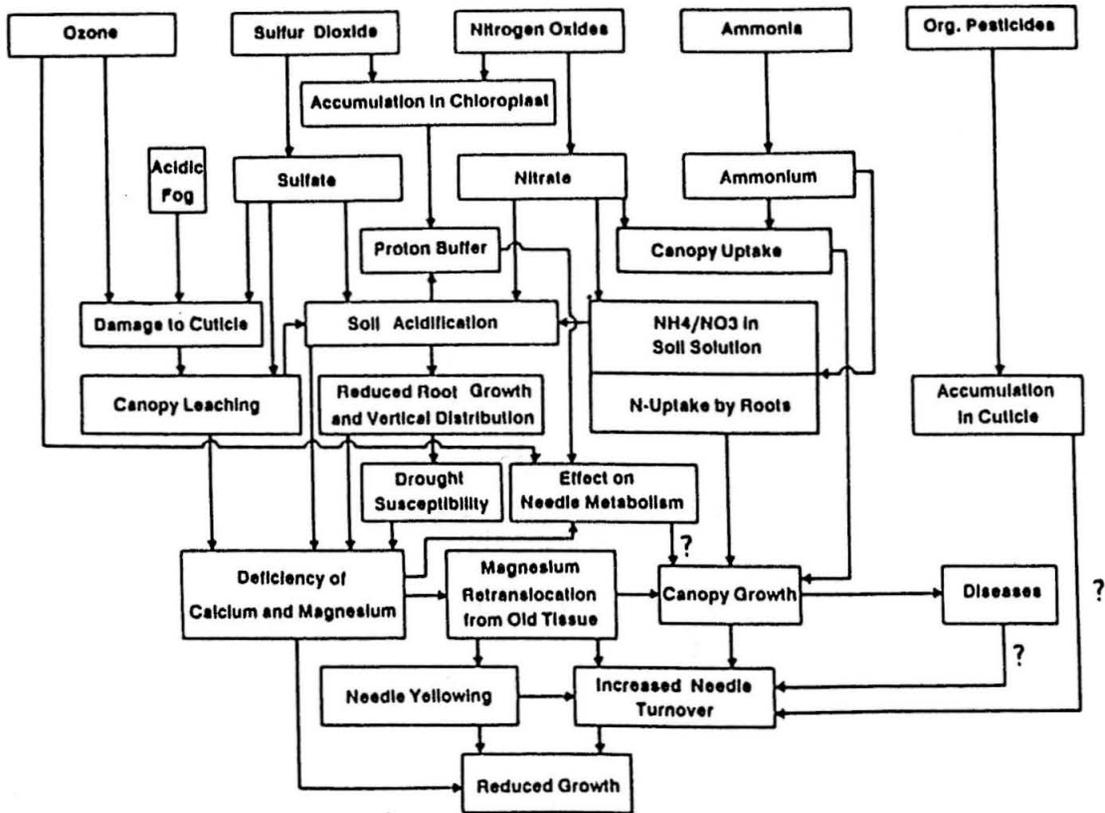


図 1.4 複合的な森林衰退の原因<sup>17)</sup>

生物的ストレス（寄生虫、病原菌、昆虫、線虫、細菌、寄生植物、有害動物）、化学的ストレス、攪乱ストレス（伐採、焼き払い）および大気汚染ストレス（SO<sub>2</sub>、オゾン）の6群がある<sup>25)</sup>。Hinrichsen や Likens らはこれらのストレスが複合して森林衰退を引き起こしていると考えている<sup>26, 27)</sup>。

(6) クロロエタン或いは光化学活性説

Frank<sup>28)</sup>は森林衰退の原因として新しく合成された大気汚染物質を挙げ、その当時、使用量が増加していたハロカーボンを探した。そして彼らはクロロエタン（トリクロロエタンとテトラクロロエタン）が森林衰退をもたらす植物毒物質であると結論を下した。この障害は特に、紫外線の280~320 nmに富んだ強い光で活性化される。クロロエタンが植物細胞の脂質層に蓄積し、紫外線がそれらを非常に反応性の高い原子状の塩素や植物毒のジクロロアセチレンなどのフリーラジカルに変換する。クロロエタンの光活性化フリーラジカルの第1次作用点は、クロロフィルやβ-カロチンを組み込んでいる葉緑体のチラコイド膜であり、特徴的な標白と黄色化症状を生じる。しかし、大気中のクロロエタン濃度は低いのでこの可能性は疑問視されている。

1.2.2 酸性沈着物の森林衰退に及ぼす影響と成分溶脱

森林域における降雨はその形態から林外雨、林内雨（樹冠通過雨）および樹幹流に分別される。図1.5にこれらを、それぞれの採取器と共に示す。ここで、林外雨は通常の降雨、林内雨は葉や枝に接触後に林床に達する降雨、樹幹流は樹木に接触し樹幹に沿って流下する降雨を指す。霧が頻繁に発生する地域では雨水に加えて霧水の寄与が大きくなり、林内雨降水量や樹幹流降水量が増加する現象が起こり<sup>29)</sup>、これを樹雨と呼んでいる。

樹木の葉、枝および幹には多量の大気汚染物質が沈着している。さらに、樹木からも水溶性物質が分泌し、これらは雨によって流される。樹木に接した雨はこれらの成分を溶解するため、林外雨に比して林内雨および樹幹流の化学組成はより複雑に変化する<sup>30)</sup>。このため森林樹冠を通過した雨水のpHは上昇するが、対照的にスギの林内雨、樹幹流のpHは低下し酸性が強まっている。これはスギの外樹皮（Outer bark）の特性によるものであり、採取場所や樹齢に依存せず常にpH3前後の酸性を呈する<sup>31)</sup>。

降水は樹冠上に蓄積した様々な成分を洗浄するが、先に述べたように樹冠自身から栄養塩類が流亡し、この現象を一般に溶脱と言う。

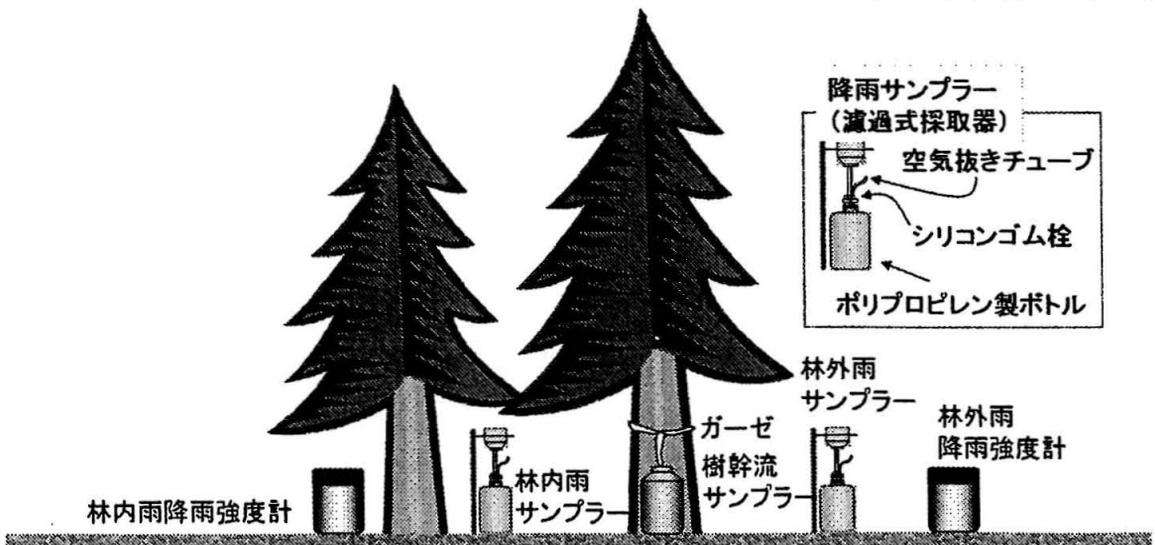


図 1.5 森林域における降雨形態の区別

樹冠における物質収支から、樹冠からの溶脱量  $Li$  は、林外雨沈着量  $Ri$ 、林内雨沈着量  $Ti$ 、樹幹流沈着量  $Si$ 、霧水沈着量  $Fi$  および乾性沈着量  $Di$  を用いて次の様に算出される。

$$Li = Ti + Si - Ri - Fi - Di \quad i : \text{各成分} \quad (1.1)$$

溶脱機構についてはなお不明な点が多いが、一般的に雨水および霧水中に含まれる水素イオンとアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオンとのイオン交換、もしくは有機酸塩や炭酸塩の樹冠からの溶脱と言われている<sup>32)</sup>。Tukey は、無機成分、微量元素、糖、ペクチン質、糖アルコール、アミノ酸および有機酸といった種が葉から溶脱することを確認した (Table 1.3)<sup>33)</sup>。これらの成分の溶脱量は、水への溶解度と代謝過程にも依存していると考えられるが、詳細は明らかになっていない。

### 1.2.3 森林衰退に係わる植物内成分

#### (1) 無機塩類

植物にとって必要な無機塩類は、C, O, H, Ca, Mg, K, N, S, P, Fe, B, Mn, Zn, Cu, Mo, Cl の 16 種であり、これらを必須元素と呼んでいる<sup>34)</sup>。このうち、C, O, H, Ca, Mg, K, N, S, P の 9 種は特に多量元素と呼ばれ、C, O, H を除く 6 種の元素は植物体の乾燥重量の約 2~10% を占める<sup>34)</sup>。これに対し、Fe, B, Mn, Zn, Cu, Mo, Cl の 7 種は微量元素と呼ばれる<sup>34)</sup>。中でもホウ素 (B) は植物の生育に必要な元素であり、次に詳しく述べる。

#### (2) 植物細胞壁におけるホウ素

ホウ素は地殻中では 37 番目に多い元素であり、天然には単体として存在せず、岩石にホウ砂 ( $Na_2B_4O_7 \cdot 10H_2O$ ) などの鉱物成分として含まれている。ホウ素のオキシ酸であるホウ酸は弱い毒性を持っており、ラットにおける LD50 (摂取した動物の半数が死に至る摂取量) は  $2.7 \sim 4.1 \text{ g kg}^{-1}$  で<sup>35)</sup>、このことから殺虫剤としても使用される。通常の雨水にはほとんど含まれないが、土壌または岩石から溶

出され、地域や季節による変動が大きいものの河川水や水道には通常  $0 \sim 0.5 \text{ ppm}$  程度の濃度で含まれる<sup>36)</sup>。また、大気中には約  $20 \text{ ng m}^{-3}$  程度存在していると言われている<sup>36)</sup>。

ホウ素が高等植物の生育に欠かせない元素であることは、1923 年に行われたソラマメの水耕栽培実験によって明らかにされた<sup>37)</sup>。欠如すると根端や頂芽が伸長せず、ハクサイやキャベツのような結球野菜では芯の部分が壊死する。ホウ素の要求量は、開花期などの生殖生長期に特に高くなるが、これは花粉の成熟と花粉管の伸長に特に必要とされるため、栄養生長期には顕在化しなかったホウ素欠如障害によって花粉が稔性を持たなかったり受精が正常に起こらず、種子を生じないこともある<sup>38)</sup>。

鉱物に含まれるホウ素は風化によってオキシ酸であるホウ酸の形で大気中に放出され、植物によって吸収される。ホウ酸は  $pKa$  9.24 の酸であり、解離したホウ酸イオンはシスジオールとエステル結合を形成する。高等植物細胞壁はセルロース、ヘミセルロースおよびペクチンから構成された多糖に富むため、ホウ酸もジオールまたはジエステルの形で存在し細胞壁多糖と会合した形で存在すると考えられている。

#### (3) ペクチン多糖

生長中の樹木の形成層組織や分裂組織の細胞は一次壁から構成されている。一次壁はセルロース、ヘミセルロース、ペクチンなどの多糖類が 90% 以上占め、その他に少量のタンパク質やフェノール性化合物などから構成され、リグニンは存在しない<sup>39, 40)</sup>。

高等植物細胞壁は、骨格をなすセルロースとマトリックスを埋めるペクチンなどの多糖から構成されており、ペクチンにはホモガラクトツロナン (Homogalacturonan, HG)、ラムノガラクトツロナン-I (Rhamnogalacturonan-I, RG-I) およびラムノガラクトツロナン-II (Rhamnogalacturonan-II, RG-II) の 3 種があ

ることが知られている<sup>41)</sup>。HGはガラクトロン酸 ( $\alpha$ -D-Galp A)が直鎖に1, 4-結合した多糖で、カルボキシル基の一部はメチルエステル化されている。RG-Iは二糖を繰り返す単位とする主鎖から構成されている。RG-IIはRG-Iとは構造的に全く異なっており、 $\alpha$ -D-GalpA残基が直鎖状に1, 4-結合した主鎖に4種類の側鎖が結合している<sup>42)</sup>。

細胞壁中でホウ素と密接な関係にあるRG-IIは、1978年にシカモアカエデ培養細胞の細胞壁から初めて単離された(分子量5000~10000)。RG-IIには12種類の糖残基が存在し、少なくとも20種類以上のグリコシド結合から構成されていることが明らかとなり、また、アセリン酸やKdo、Dhaといったこれまで単離されたことがない糖も単離された<sup>43)</sup>。

植物における多糖の分子レベルでの機能について、次のような提案がなされている。LoomisとDurst<sup>44)</sup>は、ホウ酸がcisのOH基を持つフラノース環と安定なホウ酸ジエステルを形成することから、RG-IIなどの細胞壁多糖の構成糖として知られていたアピオースとホウ酸が細胞壁内で架橋構造を形成する、とした。その後、Matohらはダイコン根細胞壁のペクチン分解酵素処理液からホウ素-多糖複合体を単離した。さらに、この多糖部分はRG-IIであること、ホウ素はホウ酸ジエステルを形成していること、および希塩酸処理で

ホウ酸が脱離して分子量が約半分になることが分かった。これらのことから、この複合体はホウ酸が2分子のRG-IIをホウ酸ジエステル結合によって架橋したRG-II-ホウ酸複合体(dRG-II-B)であることを明らかにした(図1.6)<sup>45, 46)</sup>。しかしながら、生体外で起こるdRG-II-Bの形成は、生体内で必ずしも反映されないことから何か別の因子が働いていると考えられた。最近の研究により、この因子が $Sr^{2+}$ 、 $Ba^{2+}$ 、 $Pb^{2+}$ および $Ca^{2+}$ であることが判明し、なかでも細胞壁において $Ca^{2+}$ の結合したdRG-II-Bがペクチン安定化に寄与していると結論付けた<sup>47)</sup>。

植物葉は、雨や霧水中に多く存在するプロトン( $H^+$ )が自身に付着すると、イオン交換作用により酸を中和する物質を葉表面に分泌する、いわゆるバッファー化を起こすことが知られている<sup>48)</sup>。植物細胞壁に多く含まれ、かつペクチンの形成に関わり深い $Ca^{2+}$ やホウ素はこのために溶脱し、植物全体の生理的機能の低下を招くことが予想される。このようなイオン交換反応は、主に表皮細胞の外側に位

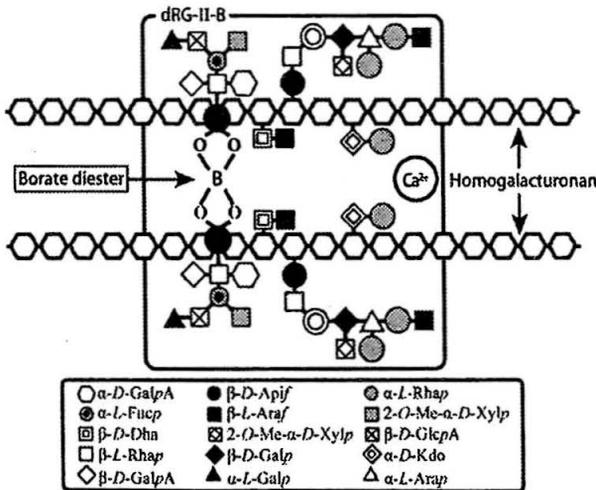


図 1.6 RG-II-ホウ酸複合体のモデル図

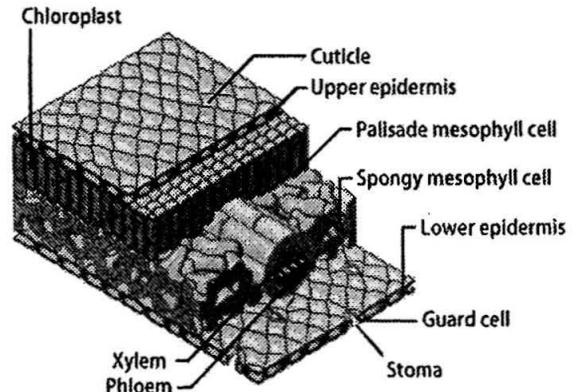


図 1.7 葉の断面図

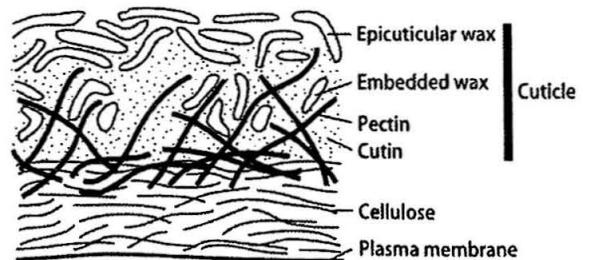


図 1.8 クチクラの構成

置するクチクラで行われている<sup>49)</sup>。

#### 1.2.4. 酸性沈着物が植物葉に及ぼす影響

植物の葉は、光合成によって養分を生産し、それを植物全体に供給することで生長する。最外層の表皮系は表皮細胞で、蠟のようなクチクラで保護されており（図 1.7）、水分やイオン、ガスなどが植物体から失われるのを防ぐ働きを担う<sup>50)</sup>。クチクラは表皮細胞の細胞壁から外側へペクチン層、クチン層、ワックス層、エピクチクラワックス層の順で構成されている（図 1.8）。特にエピクチクラワックス（以下 ワックス）は、クチクラ上に分泌された板状、リボン状、チューブ状の結晶状ワックスであり、葉表面の性質を決定する上で重要なものである。また、これまでの多くの研究から、ワックスの主成分は二級アルコール、アルカン、二価アルコールおよびアルキルエステルであることが報告されている<sup>51)</sup>。ワックスは外気に曝されて劣化するが、それは通常不可逆的である。ドイツトウヒのような針葉樹では、葉が9年にわたって着葉している場合があり、そのため、葉面に沈着する汚染物質は相当量に達し、ワックスの量や性質を変化させるだけでなく気孔機能なども阻害して、結果的に樹木全体の生理活性に影響を与える。特にワックスの劣化は、葉面からの養分流出や蒸散の増大、菌類の感染などを引き起こして森林衰退の原因となる<sup>52)</sup>。

ワックスの表面状態や結晶構造の評価は、葉面の濡れ性の測定や走査型電子顕微鏡（Scanning electron microscope, SEM）を用いた観察によって行われる。葉面の濡れ性は通常、水滴と葉面の接触角を測定して調べる。接触角度  $0^\circ$  は濡れやすさが最大、 $180^\circ$  は全く濡れないことを示す。また、SEM によるワックスの結晶構造の観察は、酸性沈着物などの葉面に及ぼす影響を調査する方法として一般的である。葉面ワックスは、葉齢が進むにつれて化学的もしくは物理的に流亡して、結晶構造が変質することが知られている<sup>53)</sup>。

この影響により、葉面の濡れ性も加齢に伴い増大し、また、酸性雨やオゾン<sup>54)</sup>、酸性霧<sup>55)</sup>は流亡速度を速める。

#### 1.2.5 樹木に対するオゾンの影響

オゾン層のある成層圏では、オゾン濃度の減少が問題となっているが、地上から約 10 km までの対流圏では逆に濃度が増加し続けている。オゾンは、自動車や工場から排出された窒素酸化物や揮発性有機化合物などの汚染物質が太陽光線によって光化学反応を起こして発生するが、アジア域の窒素酸化物が急速に増加していることを考慮すると、対流圏オゾン濃度はますます増加すると予想される。オゾンは、対流圏に生育する植物にとって有害な大気汚染ガスの一つとして今日まで知られている。欧州では、森林生態系における最も危険な大気汚染ガスであると考えられており、それに関する研究が野外および実験的条件下で数多く行われている<sup>56, 57)</sup>。これに対してわが国では、主に 1990 年代から森林を構成している樹木に対するオゾンの影響に関する実験的研究が開始された<sup>58)</sup>。

欧米諸国では森林生態系の保護のためのガス状大気汚染物質のクリティカルレベルを評価する試みがなされている。ここで言うクリティカルレベルとは、それ以上の濃度で存在すると、植物、生態系および物質（建造物など）に対して直接的な悪影響を及ぼすガス状大気汚染物質の限界濃度を指す。最近では、植生保護のためのオゾンのクリティカルレベルの評価の際に、40 ppb を超えたオゾンの積算ドースが注目されており、これは AOT40（Accumelated exposure over a threshold of 40 ppb）と呼ばれている。

植物に対するオゾン影響に関する研究が始められた当初は、葉に発現する可視障害に関する研究が中心であった。比較的高濃度のオゾンに曝露された植物の葉には可視障害が生じるが、その症状は極めて多様である。また、可視障害を指標としたオゾン感受性の樹種間

差異や系統間差異が数多く報告されている。オゾンは主に気孔から葉内に侵入し、植物の葉緑体機能を低下させ、それに伴い気孔拡散コンダクタンスや純光合成速度、暗呼吸速度も低下する。

わが国の代表的な樹種であるスギの苗木の生長は 100 ppb 以下のオゾンに対してある程度の耐性を持っている。しかしながら、スギ苗木に数ヶ月間 150 ppb を超える比較的高濃度のオゾンを曝露すると、根の乾重量は減少し、地上部と地下部の乾重比が増加したことが報告されている<sup>59)</sup>。

### 1.3 本研究の目的

この研究では、丹沢大山を主なフィールドにした井川のグループの調査研究およびモミを中心とした衰退機構の研究と櫻井のグループの植物生理学的な衰退機構の検討からなっている。この研究の背景となる、丹沢大山のモミ原生林の衰退状況とその原因についてのこれまでの研究結果を最初に述べよう。

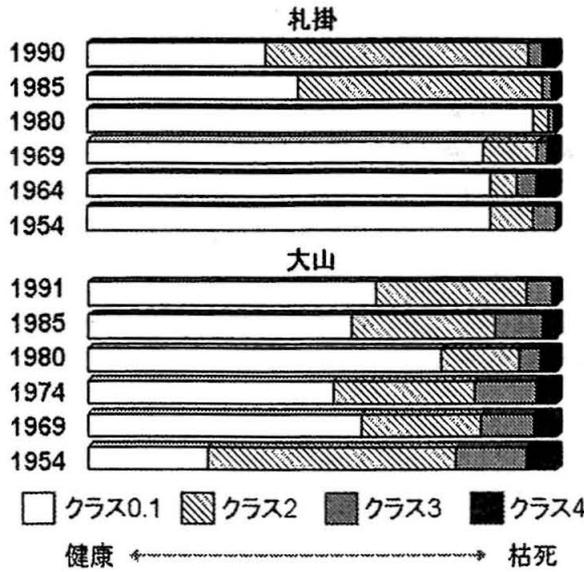


図 1.9 神奈川県内のモミの衰退状況

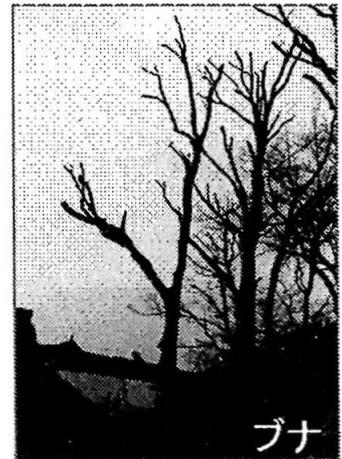
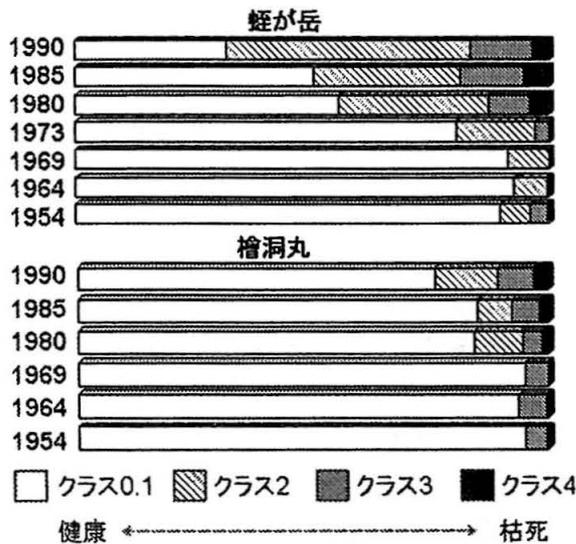


図 1.10 神奈川県内のブナの衰退状況

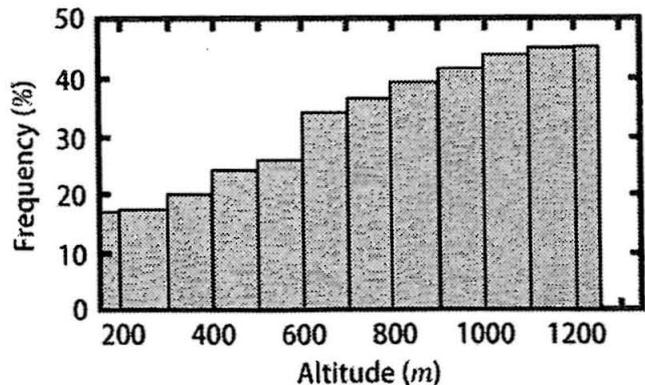


図 1.11 標高別霧の発生頻度

図1.9と図1.10は神奈川県による神奈川県内のモミおよびブナの衰退状況の経年変化を示すが、1970年をピークにモミが衰退し、1980年以降はブナの衰退が年ごとに進行していることがわかる。我々の研究において主なフィールドとしている大山では、標高400m~1000mの南東斜面域にモミ林は存在し、その生育区域面積は約100haである。神奈川県は1954年、1964年、1969年、1974年、1980年、1985年に行った航空写真解析から、1954年の時点で1ha当たり5.2本であった枯損木がその約3倍にまで急増し、1970年頃に新たな発生が多く見られたと報告している<sup>60)</sup>。大山は日本最大の汚染排出源である関東平野に面しているため、大気汚染物が多量に沈着する。また、1年の1/3程度が霧で覆われており、pH3以下の極めて酸性度の高い霧も頻繁に発生している。霧の発生頻度は標高とともに増加し(図1.11)、そのことが、他の樹木よりも樹高が高いモミに大きな影響を与えていると考えられる。pH3の霧水は植物に悪影響を及ぼすことから<sup>61)</sup>、大山の森林生態系が酸性霧の影響を受けていることは容易に予想される。

これまでのフィールド研究において、大山中腹で採取されたモミ林内雨の主要無機イオン組成は、林外雨に比べ $K^+$ 、 $Ca^{2+}$ の占める割合が高く、樹冠からの溶脱の影響を受けていることが明らかになっている。酸性沈着物は、葉からの $Ca^{2+}$ 溶脱を促進させる。葉に対するCaの供給の余剰分は、クチクラ、表皮細胞壁および葉肉細胞壁中に、生理学的不活性なシュウ酸塩の結晶として析出する<sup>62)</sup>。このようなプールからの溶脱損失は通常問題ないが、断続的に酸が流入しCaの溶脱が進行した場合、耐寒性が著しく衰えるなどの障害が生じる<sup>63)</sup>。これは、Caが膜結合カルシウム(Membrane associated calcium, mCa)として細胞壁構造とその機能の安定化に寄与しているためである。

大山で観測された霧の組成をもとにしたモ

ミ苗木への擬似酸性霧(pH3)噴霧実験から、次のことが明らかになっている。実験開始から数ヶ月間は $NH_4^+$ 、 $NO_3^-$ などの無機態窒素が高濃度に含まれているため、これが栄養源となり生長速度は大きくなったが、次第に枝からの異常な発芽や新芽の不完全展開、先端部の白化、葉の厚みの減少といった生長障害が生じた。長期の擬似酸性霧噴霧実験においては、葉表面のクチクラ層が侵食されることによる水分損失などの影響も大きくなる<sup>64)</sup>。このように、酸性沈着物は様々な影響をもたらすことが考えられるが、実際のフィールドにおける生育環境ではこれらによる単独影響は考え難く、幾つかの要因が複雑に絡み問題の解決を困難なものにしている。

この研究は先に述べたように、丹沢大山を主なフィールドにした井川のグループの研究と櫻井のグループの植物生理学的な衰退機構の検討からなっている。井川のグループでは丹沢大山の大気汚染および霧の現状をまず明らかにし(第2章)、ついでその影響をフィールドでの林外雨と林内雨の測定値の比較と擬似酸性霧の暴露試験により、衰退機構を検討した(第3章)。特にその植物生理学的検討においては、大気環境化学を主な研究分野とする井川のグループは植物生理学を専門分野とする櫻井と緊密にディスカッションを行った。また、櫻井のグループでは、霧の発生しない地域でも枯れが見られることから、植物葉上で発生する露の中に溶け込む酸化性物質の影響について検討した(第4章)。

## 第1章参考文献

- 1) 環境庁長官官房総務課編集, “地球環境キーワード事典”, 中央法規, pp.42-43 (1990).
- 2) R. F. Wright, E. T. Gjessung, “Acid precipitation changes in the chemical composition of lakes”, *AMBIO*, **5**, 216-223 (1976).
- 3) 石 弘之, “酸性雨”, 岩波新書, p.242 (1992).
- 4) 河野吉久, 松村秀幸, “樹木への影響評価”, 電中研レビュー No.43, p.57-70 (2001)
- 5) 畠山 史郎, “酸性雨 誰が森林を傷めているのか? シリーズ 地球と人間の環境を考える 3”, 日本評論社, pp.181-205 (2003).
- 6) 井川 学, “酸性霧とその環境影響”, 森林立地学会誌, **34**, 36-39 (1992).
- 7) 丸田 恵美子, 志摩 克, 堀江 勝年, 青木 正敏, 土器屋 由紀子, 伊豆田 猛, 戸塚 績, 横井 洋太, 坂田 剛, “丹沢・檜洞丸におけるブナ林の枯損と酸性降下物”, 環境科学会誌, **12**, 241-250 (1999).
- 8) 宮下 正次, “ブナの放流”, 北斗出版, p.206 (1995).
- 9) 谷本 丈夫, 劉岩, 里道 知佳, 大久保 達弘, 二瓶 幸志, “奥日光・足尾・赤城山地における森林衰退と立地環境”, 森林立地学会誌, **38** (1), 1-12 (1996).
- 10) 高橋 啓二, 沖津 進, 上田 洋匡, “関東・甲信地方におけるスギの衰退と大気二次汚染物質の分布”, 森林立地学会誌, **28**, 11-17 (1987).
- 11) K. Nakane, Y. Kimura, “Assessment of pine forest damage by blight based on landsat TM data and correlation with environmental factors”, *Ecological Res.*, **7**, 9-18 (1992).
- 12) 神奈川県丹沢大山自然環境総合調査団, “丹沢大山自然環境総合調査”, 中間報告会資料 (1994).
- 13) 松本 陽介, 丸山 温, 森川 靖, “酸性雨によるスギ衰退の原因を考察する水ストレス説”, 資源環境対策, **29** (2), 150-166 (1993).
- 14) 小川 和雄, 松本 利恵, 高野 利一, “埼玉県東部におけるスギの衰退とその原因”, 人間と環境, **18** (2), 61-69.
- 15) P. Schutt, E. B. Gowling, “Waldsterben, a general decline of forest in central Europe; symptoms; development and possible cause”, *Plant Disease*, **69**, 548-558 (1985).
- 16) S. B. McLaughlin, “Effect of air pollution on forests, A critical review”, *J. Air Pollut. Control Assoc.*, **35**, 512-534 (1985).
- 17) E. -D. Schulze, R. Oren, O. L. Lange, “Processes Leading to Forest Decline: A Synthesis”, In : E.-D. Schulze, O. L. Lange, R. Oren, Forest decline and air pollution, Springer-Verlag, Berlin, p.459-468 (1989)
- 18) B. Ulrich, “Soil acidity and its relation to acid deposition” In : Effects of accumulation of air pollutants in ecosystems, ed. B. Ulrich and J. Pankrath, Dordrecht, Reidel Co., pp.207-218 (1983).
- 19) K. E. Rehfuess, “Walderkrankungen und immissionen-eine zwischenbilanz”, *Allg. Forstzeitschr.*, **38**, 601-610 (1983).
- 20) M. Ashmore, N. Bell, J. Rutter, “The role of ozone in forest damage in West Germany”, *AMBIO*, **14**, 81-87 (1985).
- 21) G. H. M. Krause, U. Arndt, C. J. Brandt, J. Bucher, G. Kenk, E. Matzner, “Forest decline in Europe, Development and possible causes”, *Water, Air and Soil Pollut.*, **31**, 647-668 (1986).
- 22) P. B. Reich, “Quantifying plant response to ozone, A unifying theory”, *Tree Physiol.*, **3**, 63-91 (1987).
- 23) J. D. Barnes, A. W. Davison, T. A. Booth, “Ozone accelerates structural degradation of epicuticular waxon Norway spruce needles”, *New Phytol.*, **110**, 309-318 (1988).
- 24) R. L. Heath, “Biochemical mechanisms of pollutant stress”, In : Assessment of crop loss from air pollutants, ed. W. W. Heck, O. C.

- Taylor and D. T. Tingey, London, Elsevier Applied Sci., pp.259-286 (1988).
- 25) E. B. Cowling, "Recent changes in chemical climate and related effects on forests in north America and Europe", *AMBIO*, **18**, 167-171 (1989).
  - 26) D. Hinrichsen, "Multiple pollutants and forest decline", *AMBIO*, **15**, 258-265 (1986).
  - 27) G. E. Likens, "Some aspects of air pollutant effects on terrestrial ecosystems and prospects for the future", *AMBIO*, **18**, 172-178 (1989).
  - 28) H. Frank, "The new forest decline. Destruction of pigments by UV-activation of chloroethanes, A possible cause of forest decline", US Environmental protection agency newsletter (April / June), 7-13 (1985).
  - 29) 小林 禧樹, 中川 吉弘, 玉置 元則, 平木 隆年, 藍川 昌秀, "六甲山におけるスギ樹冠への酸性沈着の標高分布", 兵庫県立公害研究所研究報告, **30**, 41-50.
  - 30) 吉田 聡, 一國 雅巳, "森林を通じての元素の移動—とくに樹冠の役割について—", 環境科学会誌, **1** (1), 31-38 (1988).
  - 31) 佐藤 一男, 高橋 章, "スギ樹幹からの水素イオンの溶脱と樹幹近傍土壌の酸性化", 環境科学会誌, **9** (2), 221-230 (1996).
  - 32) C. S. Coran, "Biogeochemical responses of forest canopies to acid precipitation". In R. A. Linthurst (ed.), Acid precipitation series Volume 5- Direct and indirect effect of acid rain on vegetation, Butterworth Publisher, 65-79 (1984).
  - 33) P. C. Kozel, H. B. Tukey, Jr., "Loss of gibberellins by leaching from stems and foliage of chrysanthemum morifolium 'Princess Anne' ", *Amer. J. Bot.*, **55** (10), 1184-1189 (1968).
  - 34) 増田 芳雄, "植物生理学", 培風館, p.141 (1977).
  - 35) S. A. Hubbard, "Comparative toxicology of borates", *Biol. Trace. Elem.*, **66**, 343-357 (1998).
  - 36) P. E. Howe, "A review of boron effects in the environment", *Biol. Trace. Elem.*, **66**, 153-166 (1998).
  - 37) K. Warrington, "The effect of boric acid and borax on the broad bean and certain other plants", *Ann. Bot.*, **27**, 629-672.
  - 38) 間藤 徹, "ホウ素の植物生理学—最近の展開—", *RADIOISOTOPES*, **49** (5), 279-281 (2000).
  - 39) T. Ishii, K. Shimizu, "Wood and cellulosic chemistry", second ed, Hon, D. N.-S. and Shiraishi, N. ed., Marcel Dekker, New York, 2000, pp.174-212.
  - 40) N. C. Carpita, D. M. Gibeaut, "Structural models of primary cell walls in flowering plants: Consistency of molecular structure with the physical properties of the walls during growth", *Plant J*, **3**, 1-30 (1993).
  - 41) M. A. O' Neill, M. A. Albersheim, P. A. Darvill, "The pectic polysaccharides of primary cell walls", *Plant Biochem*, **2**, 415-441 (1990).
  - 42) B. L. Ridley, M. A. O' Neill, D. Mohnen, "Pectins : structure, biosynthesis, and oligogalacturonide-related signaling", *Phytochemistry*, **57**, 929-967 (2001).
  - 43) 石井 忠, 松永 俊朗, "植物細胞壁多糖ラムノガラクトツロナン II の化学構造と機能", 木材学会誌, **49** (3), 153-160 (2003).
  - 44) W. D. Loomis, R. W. Durst, "Chemistry and biology of boron", *Biofactor*, **3**, 229-239 (1992).
  - 45) M. Kobayashi, T. Matoh, J. Azuma, "Two chains of rhamnogalacturonan II are cross-linked by borate-diol ester bonds in higher plant cell walls", *Plant Physiol*, **110**, 1017-1020 (1996).
  - 46) T. Ishii, T. Matsunaga, "Pectic polysaccharide rhamnogalacturonan II is covalently linked to homogalacturonan", *Phytochemistry*, **57**,

- 969-974 (2001).
- 47) M. Kobayashi, H. Nakagawa, T. Asaka, "MaBorate-Rhamnogalacturonan II bonding reinforced by  $\text{Ca}^{2+}$  retains pectic polysaccharides in higher-plant cell walls", *Plant physiol.*, **119**, 199-203 (1999).
- 48) C. M. Adams, T. C. Hutchinson, "A comparison of the ability of leaf surfaces of three species to neutralize acidic rain drops", *New phytol.*, **97**, 463-478 (1984).
- 49) L. S. Evans, "Acidic precipitation effects on terrestrial vegetation", *Ann. Rev. Phytopath.*, **22**, 397-420 (1984).
- 50) O. Klemm, "Leaching of cations by acid rain from twigs and single needles", In : E.-D. Schulze, O. L. Lange, R. Oren, Forest decline and air pollution, Springer-Verlag, Berlin, pp.221-225 (1989).
- 51) 佐竹 研一編, "酸性雨研究と環境試料分析—環境試料の採取・前処理・分析の実際—", 愛智出版, pp.128-143 (2000).
- 52) M. Turunen, S. Huttunen, "A review of the response of epicuticular wax of conifer needles to air pollution", *J. Environ. Qual.*, **19**, 35-45 (1990).
- 53) H. Sase, T. Takamatsu, T. Yoshida, K. Inubushi "Changes in properties of epicuticular wax and the related water loss in Japanese cedar (*Cryptomeria japonica*) affected by anthropogenic environmental factors", *Can. J. For. Res.*, **28**, 546-556 (1998).
- 54) K. E. Percy, K. F. Jensen, C. J. McQuattie, "Effects of ozone and acidic fog on red spruce needle. epicuticular wax production, chemical composition, cuticular membrane ultrastructure and needle. Wettability", *New Phytol.*, **122**, 71-80 (1992).
- 55) K. E. Percy, R. Jagels, S. Marden, C. K. McLaughlin, J. Carlisle, "Quantity, chemistry, and wettability of epicuticular waxes on needles of red spruce along a fog acidity gradient", *Can. J. Bot.*, **23**, 1472-1479 (1993).
- 56) A. H. Chappelka and B. I. Chevone, "Tree responses to ozone. In A. S. Lefohn, eds., surface level ozone exposures and their effects on vegetation". Lewis publishers, MI, USA, 271-324 (1992).
- 57) H. Sandermann, A. R. Wellburn and R. L. Heath, "Forest decline and ozone" Synopsis. In H. Sandermann, A. R. Wellburn and R. L. Heath, eds. Forest decline and ozone, Springer-Verlag, Berlin. pp.369-377.
- 58) T. Izuta, M. Umamoto, K. Horie, M. Aoki, T. Totsuka, "Effect of ambient levels of ozone on growth, gas exchange rates and chlorophyll contents of *Fagus crenata* seedlings, J. Jpn. Soc". *Atmos. Environ.*, **31**, 95-105 (1996).
- 59) 三輪 誠, 伊豆田 猛, 戸塚 績, "スギ苗の生長に対する人工酸性雨とオゾンの単独および複合影響", 大気汚染学会誌, **28**, 279-287 (1993).
- 60) 鈴木 清, "神奈川県大山のモミ枯損経緯とその周辺地域の年輪幅の変化", 神奈川県林業試験所研究報告, **19**, 23-42 (1992).
- 61) K. Mengel, A. M. R. Hogrebe, and A. Esch, "Effect of acidic fog on needle surface and water relations of *Picea abies*", *Physiol. Plant.*, **75**, 201-207 (1989).
- 62) S. Fink, "The micromorphological distribution of bound calcium in needles of Norway spruce (*Picea abies* L. Karst)", *New Phytol.*, **119**, 33-40 (1991).
- 63) M. Jiang, R. Jagels, "Detection and quantification of changes in membrane-associated calcium in red spruce saplings exposed to acid fog", *Tree Physiology*, **19**, 909-916 (1999).
- 64) 井川 学, "酸性降下物と生態系影響—丹沢・大山における森林衰退と酸性霧", 環境科学会誌, **12**, 233-240 (1999).