



酸性霧の樹冠への沈着と森林衰退

井川 学* 松本 潔** 大河内 博***

Acid fog deposition on canopy and forest decline

Manabu IGAWA* Kiyoshi MATSUMOTO** and Hiroshi OKOCHI***

1. 緒言

かつてわが国は、1960 年をピークとする高い二酸化硫黄濃度のために森林が衰退したが、その後は二酸化硫黄による激しい衰退は終了した。その典型例が丹沢大山のモミである。しかし、1980 年以降、これとは別の地域での新たな衰退が始まり、丹沢山塊には枯木のオブジェと化したブナ林の見られる地域も出現した。一方で、その山の裏側斜面では美しいブナ林が今も広がっており、衰退の地理的依存性は極めて大きい。森林衰退の影響は極めて大きく、生態系破壊、水資源の枯渇ばかりでなく、山塊の崩壊にもつながる。この地域では玄倉川での急な出水のために、多くの犠牲者を出した水難事故が記憶に新しいが、ブナは保水能力が大きいのでその衰退を放置するならこのような事故は今後もさらに頻発するであろう。このように森林衰退は極めて深刻な問題であるにもかかわらず、その原因解明はなされておらず、適切な改善策も得られていない。森林衰退の原因は様々に言われている。酸性雨とオゾン濃度の増大、鹿やブナ葉バチの食害、等である。このうち、鹿の食害は下草や幼木には影響すると思われるが、成木の樹皮は食害にあっていないため、原因とはならない。ブナ葉バチについては、一回葉を食べ尽くされても正常なブナはそのまま枯死することはないし、食害を受けるブナは点在しても一面に食べ尽くされることはない。オゾンの影響は、成長抑制要因として働くが、現状の高濃度オゾンレベルでの枯死は報告されていない。また、オゾンはガスなので濃度は一様であり、丹沢山で衰退は西側斜面に限られるといった

尾根の両側での極端な衰退度合いの違いを説明することはできない。酸性雨にも同様なことがあり、かつまたブナを枯らすほどの極端な酸性雨は降っていない。そこで考えられるのは窒素酸化物が原因となって生じた硝酸ガスで酸性化した霧の影響である。霧の酸性度は雨よりも高く、かつ風に乗って、樹冠に衝突してはじめて被害を及ぼすことから風向きへの依存性が高く、被害の斜面方位依存性は大きい。

研究代表者は既に、酸性霧の実態と森林衰退への影響に関する研究を 20 年近く続けているが、さらに最近はこれまで行ってきたモミだけでなくブナへの霧の影響についても研究を始めている。その結果、丹沢で起こりうる pH3 の酸性霧の長期暴露により、ブナが枯れることを明らかにした。このような事象の発生原因をより鮮明にするとともに、どのような地域で森林衰退が起こっておりまた今後起こり得るのか、これを止めるにはどうすればいいのかを解明することは極めて重要な課題であるため、この研究を工学研究所の共同研究として開始した。平成 19 年度の研究計画は、1. 酸性霧の成分分析と濃度支配要因の解明、2. 丹沢大山の林内雨と樹幹流の分析、3. 実験室における疑似酸性霧暴露実験、である。

この研究の遂行による到達点として、丹沢大山における大気汚染物質および酸性霧沈着実態の把握、発生源ごとの汚染の寄与度の解明、酸性霧による衰退のメカニズムの解明、樹種による酸性霧への抵抗性の違いの解明、汚染源からどのように酸性物質が生成し拡散しているか、その山岳地形依存性はどうなのか、丹沢山塊への汚染物質蓄積量の土壌や沢水の分析による解明、である。将来的には、丹沢にはこれまでにどれだけ汚染物質が沈着し生態系はこのままでは今後どのように変わるのか、健全な生態系を維持するためにどの程度まで大気汚染に対する規制を強めることが必要なのかについても明らかにし

*教授 物質生命化学科

Professor, Dept. of Material and Life Chemistry

**准教授 山梨大学

Associate Professor, Yamanashi University

***教授 早稲田大学

Professor, Waseda University

ていきたい。

2. 実験

霧水試料は関東平野南西部に位置する丹沢山塊の東端、大山(標高 1252m)の中腹に位置する大山阿夫利神社下社(標高 680m)で、自動霧水採取装置とパッシブ霧水採取装置を用いて採取した。得られた試料は吸引ろ過(孔径 $0.2\mu\text{m}$ メンブランフィルター)した後、電気伝導度、pH を測定した。主要無機イオン濃度についてはイオンクロマトグラフを用いて測定した。また、気象状況を把握するため、中腹において降雨強度、風向風速、気温、湿度を観測した。麓の大気汚染物質濃度については伊勢原市役所の常時監視測定データを用いた。また、大山の南東斜面、標高 400m~1252m (山頂)間の各標高において、林外雨、スギおよびモミの林内雨と樹幹流、霧、ガスを約 1 ヶ月毎に採取した。また、890m 地点ではモミ林内雨の方角による沈着量差について検討するため、1 本のモミの樹幹の周囲の 3 ヶ所(北、南、西)に林内雨採取器を設置した。680m 地点では沢水を約 1 週間毎に採取した。試料は吸引ろ過後、pH、電気伝導度、主要溶存イオン濃度、溶存有機炭素濃度、Si 濃度(沢水のみ)を常法により測定した。また、気象場の把握を行なうために、風向風速、降雨強度、温湿度の観測も行なった。

暴露実験については2004年7月中旬より生育を開始した7年生ブナ(*Fagus crenata*)苗木に対し2004年9月から2006年7月(1~3月、8月を除く)まで、硝酸でpHを調整した溶液を大型チャンパー(1.8 m×1.5 m×1.6 m 高さ)内で週2回、2時間噴霧した。その影響については、樹高、幹直径、葉数、葉面積、炭素蓄積量および乾物生長量を測定することにより評価した。2004年7月中旬より生育を開始した9年生モミ(*Abies firma*)苗木に対し2007年5~11月(8月を除く)まで、硝酸でpH調整した溶液を大型チャンパー(2.4 m×2.4 m×1.8 m 高さ)内で週2回、2時間噴霧した。また、比較検討のために大山で衰退が確認されていないスギ(7年生苗木、*Cryptomeria japonica*)についても同様な処理を行った。酸性霧処理した生葉は、ミクロトームにより断面厚 $50\mu\text{m}$ 程度にカットし、この断面を蛍光プローブであるクロルテトラサイクリン(CTC)により染色した。画像撮影は、一定条件下で正立型蛍光顕微鏡システムと自動露光制御備えたカメラにより行い、画像解析ソフトで撮影した画像の蛍光輝度を測定することにより葉内のmCa変化を評価した¹⁾。また、tCaについては湿式分解法により測定した²⁾。細胞壁内成分に対する影響を調査するために、10年生ブナ苗木 および15年生モミ苗木から採取し

た枝葉に対して、硝酸でpH調整した溶液を小型チャンパー(0.6 m×0.6 m×0.9 m 高さ)内で噴霧した。酸性霧処理した葉の細胞壁内のホウ素存在形態を石井らの方法に従い示差屈折率計を接続したサイズ排除クロマトグラフ(SEC/RI)により測定した³⁾。

3. 結果と考察

3.1 酸性霧の成分分析と濃度支配要因

酸性雨による森林衰退、土壌や湖沼の酸性化、建造物の腐食などが欧米を中心に報告されてきたが、雨と同じ湿性沈着物である霧は雨に比べて大気中水分量が少なく、地表近くに発生して長時間大気中に滞留するため汚染物質を効率良く吸収し、高い酸性度を有することが多い。そのため森林衰退の原因の1つとして雨よりも強く影響していると考えられている。都市近郊山間部における酸性霧の発生は欧米で多く報告されているが、日本では丹沢大山、赤城山、筑波山などの報告がある⁴⁾。当研究室では1988年より丹沢大山で発生する霧水について観測を続けてきた^{5,6)}。標高とともに霧の発生頻度は上昇し、山頂付近では一年の40%以上が霧で覆われている。霧は雨と同様に主要な降水現象であり、酸性霧の影響は各地で報告されている。しかし、霧の化学組成に関する研究は雨に比べてかなり少なく、これは、霧の発生場所が山間部や沿岸部など特殊な場所に限られていること、採取装置が雨のように簡便でなく採取が困難であることなどによる。本研究のフィールドである関東平野南西部に位置する丹沢大山でも、モミ原生林の立ち枯れが顕著に見られ、酸性度の高い霧が頻繁に発生している。酸性霧の影響は大きいと予想されるが、霧水組成の支配要因には未解明の点が多い。

図1に1988年から2007年までに自動霧水採取装置で採取された霧水の化学組成、および採取時の大山中腹と伊勢原(麓)の大気汚染物質濃度の経年変化を示した。1990年以前は霧の多い時期だけ試料を採取していたので1991年以降について検討すると、1999年まではLWC(大気中の霧液滴体積)が大きく、霧水中の成分濃度も低かった。しかし、2000年を境にLWCは減少し、成分濃度は増加した。その原因の1つに霧生成時に凝結核となるSPMの濃度が伊勢原において年々減少していることが考えられる。発生頻度に大きな変動がないことから、霧水量の多い濃い霧が発生しにくくなり、薄い霧が多くなったといえる。大山と伊勢原の大気汚染物質濃度はほとんどが減少傾向にあるが、霧水のpHは4以下のことが多く、 $[\text{NO}_3^-]/[\text{ss}-\text{SO}_4^{2-}]$ はおおよそ1.5程度であり、硝酸の寄与が大きい。

図2に2007年に自動霧水採取装置で採取された霧水の化学組成、および採取時の伊勢原の大気汚染物質濃度をpH毎に示した。霧水試料のpHは2.47から7.36と幅広く、発生頻度はpH3-4が最も高くなった。光化学反応で生成される NO_x および Ox は濃度の時間変動が大きいいためばらつきが見られるが、低pHの霧採取時の伊勢原の大気汚染物質濃度は高くなる傾向が見られた。

霧は空間的不均一性のため、液滴径の違いが化学組成に影響を与える可能性がある。そこで本研究では、霧液滴の個数濃度粒径分布とその化学組成との関係について検討した。霧が発生していないときの大気中の粒子数は粒径が小さいものほど多く、粒径が大きくなるにしたがって減少する。一方、霧が発生すると粒径3-30 μm の粒子数が増加し、特に粒径10-20 μm の粒子数が大幅に増加し、発生した霧液滴の粒径がこの範囲にあったといえる。なお霧発生時は湿度がほぼ100%、風向もほとんどが谷風(東～南風)だった。次に、粒子数が大幅に増加した粒径10-20 μm の粒子に着目し、その個数濃度が高いとき(14

サンプル)と低いとき(26 サンプル)の霧水の化学組成を検討した。その結果、成分割合はほぼ同じだったが成分濃度は粒子数の多いときに若干高くなった。粒径10-20 μm の液滴が多いときは液滴成長が遅く、LWCが低くなったことが影響していると考えられる。

自動霧水採取装置で採取された霧水濃度とパッシブ霧水採取装置で採取された霧水濃度を比較したところ、表1に示すように粗大粒子に多い Na^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} および Ca^{2+} 濃度はAF、PFともにほぼ同じだったが、微小粒子に多い NH_4^+ 、 NO_3^- および SO_4^{2-} 濃度はPFで極端に低くなった。このことから、風を利用して採取するPFでは微小粒子が凝結核となった小さな液滴の採取が困難であることが示唆される。しかしPFは山奥など電源のない地域での使用も可能であり、このため広く用いられている。そこで、PFによる霧水採取量の支配要因を検討した。PFによる霧水採取量は標高が高くなると増加したが、これは霧の発生頻度、霧の濃さおよび風速が影響していると考えられる。しかし、風速と採取量の関係にはばらつきがあった。そこで、採取量に関する因子を風速とLWCとして重回帰を行い、得られた式より算出した予測値と実測値の関係を求めたところ、高い相関関係が得られた。したがってこれらの因子によってPFによる霧水採取量が予測できると考えられる。

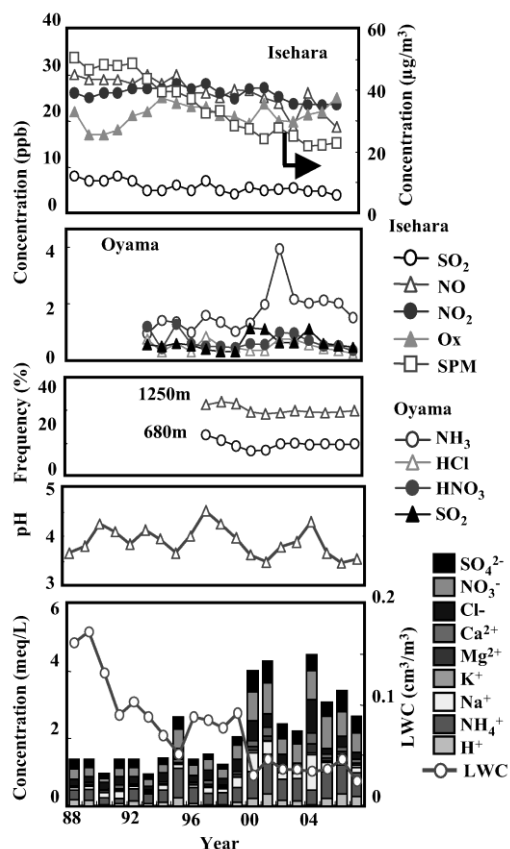


Fig. 1 Air pollutants concentrations, fog event frequency, LWC and chemical characteristics of fogwater from 1988 to 2007.

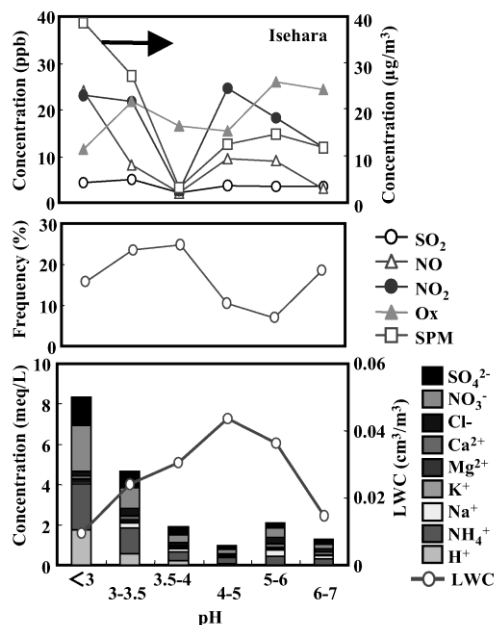


Fig. 2 Comparison of air pollutants concentrations, fog event frequency, LWC and chemical characteristics of fogwater with fogwater pH in 2007.

Table 1. Chemical composition offogwater collected with active and passive samplers.

	pH	H ⁺	NH ₄ ⁺	Na ⁺	Concentration (meq/L)						NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
					K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	Cl ⁻				
Activesampler	3.53	0.29	0.70	0.17	0.04	0.06	0.12	0.21	0.56	0.48		
Passive sampler	4.93	0.01	0.04	0.17	0.03	0.06	0.13	0.15	0.12	0.11		

3.2 丹沢大山の林内雨と樹幹流の分析

神奈川県西部に位置する丹沢大山ではモミ原生林の立ち枯れがみられ、その原因の一つとして酸性沈着物の影響が考えられる。本研究では、大山の各標高にて採取した降水、霧、ガスの分析および風向風速、降雨強度等の気象観測結果より、大気汚染物質の山岳地域における沈着挙動について検討した。

図3に標高890m地点で行ったモミ林内雨沈着量の方角依存性を示す。降水量は山側に位置する北が少なく、谷側に位置する南で多かった。北で少ない要因は、谷側から昇る滑昇霧の影響を受けにくいためである。林外雨と林内雨の沈着量を比較すると、林内雨は5~7倍も大きい、これは霧や大気汚染物質の林冠への沈着などの影響と考えられる。3カ所の林内雨沈着量を比較すると、谷風の影響を最も受ける南が多かった。次に、標高による中和の影響を検討するために酸性物質由来のNO₃⁻とSO₄²⁻の濃度の和と中和物質由来のCa²⁺濃度との相関を取ったところ、林外雨では酸性物質濃度とCa²⁺濃度の相関が低いが、モミ林内雨では標高の増加に伴い酸性物質濃度が増加し、Ca²⁺濃度も増加し相関も高くなった。同様の傾向はスギ林内雨でも認められたが、標高が高くなるほど葉に多くの酸性物質が霧により付着し、Ca²⁺が溶脱することによるものと考えられる。なお、林内雨や霧のNH₄⁺濃度には標高による違いがほとんどないことが確認されており、標高が高い地点での酸性成分の負荷に対応するNH₄⁺による中和の影響は小さいといえる。

3.3 酸性霧に対する苗木の生理学的応答

丹沢山地の標高800 m以上に生育するブナ林は、衰退が依然として進行している。丹沢山地には、大気汚染物質が首都圏から移流し、特にO₃は樹木への影響が考えられる濃度である40ppbをはるかに超える高濃度で出現していることから、衰退の原因として見なされている。また、ブナ苗木へのO₃の人工的な曝露実験では、O₃が乾物生長量やクロロフィル合成量を低下させることが示されている。しかしながら、O₃は植物の生長を抑制するものの、森林衰退との因果関係には不確かな点が多い。本研究では、酸性霧とブナ林衰退との関連性について検討す

るため、2004年9月より大型チャンバーを使用して疑似酸性霧(SAF)のブナ苗木への噴霧を開始し、その影響について様々な角度から調査した。

pH3処理区の一部には、葉密度の低下や葉の変形といった兆候が見られ、かつ2本の苗木が枯死した。そこで、各処理区の1個体当たりの葉数を測定したところ、pH3処理区で有意に減少していた。これより、葉数の減少は酸性霧処理による生長点の壊死が原因と考えられる。また、pH3処理区のブナ苗木は、9月頃から落葉が加速し始めており、その時点の落葉速度は3.04 day⁻¹と対照区に比べ約2倍高く、葉数は7月当初の8割程度となった。さらに、同じく8割となった時期を比べると、pH3処理区で落葉は約1.5ヶ月早まっていた。

植物葉は霧水中に多く存在するプロトンが付着すると、イオン交換作用によりCaを葉表面に分泌する、いわゆる

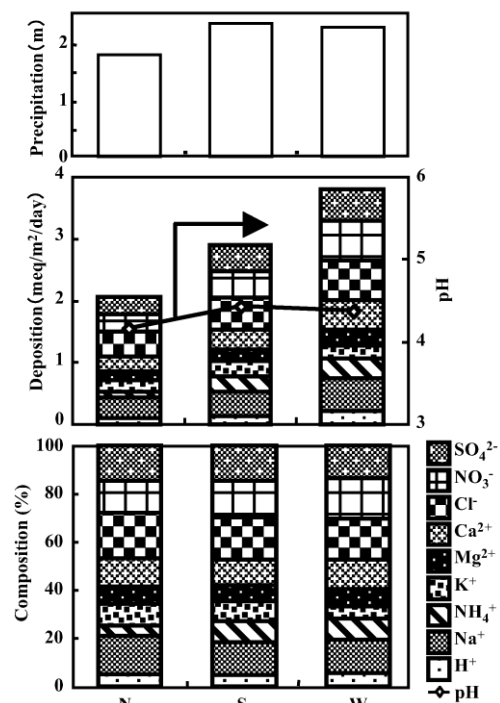


Fig. 3 Effect of the direction of a canopy on the deposition.

バッファー化を起こすことが知られており、このような溶脱は生理学上重要である。mCa は、細胞膜構造とその機能を維持する上で重要な役割を担い、また環境ストレスに対して強い応答を示すことも報告されている。このような Ca が酸性霧によりどの程度減少するかを調査することは重要である。ここで使用した CTC は、生体膜と結合している Ca と特異的な親和性を有する選択的蛍光キレーターである。図 4A と B の写真の大きな違いは、CTC 蛍光強度が SAF 処理により大きく減少することを示している。なお、併せて表示したダイアグラムから、正常な葉肉細胞の細胞膜上で蛍光は強くなることが判る。2007 年 7 月から 11 月までの SAF 処理したモミおよびスギ針葉の当年生あるいは 1 年生針葉の葉肉細胞中 mCa レベルの季節変化と、湿式分解法で測定した tCa についても測定した。当年生モミ針葉中の mCa レベルは、対照区に比べ pH 3 処理区で減少しており、9 月以降その差は著しく大きくなった。一方、スギ針葉中の mCa レベルは酸性霧処理の有無に関わらずほぼ一定という興味深い結果が得られたが、mCa と tCa との相関関係はモミ、スギ共に確認されなかった。Jiang らは米国メイン州で赤トウヒ (*Picea rubens* Sang.) を対象に酸性霧を噴霧し、霧水酸性度の低下に伴う mCa の減少を報告したが⁷⁾、今回モミで得られた測定結果はこれと一致する。以上より、酸性霧に対する応答が樹種によって大きく異なることが明らかとなった。

膜からの Ca の溶脱は、次のような過程を経て起こって

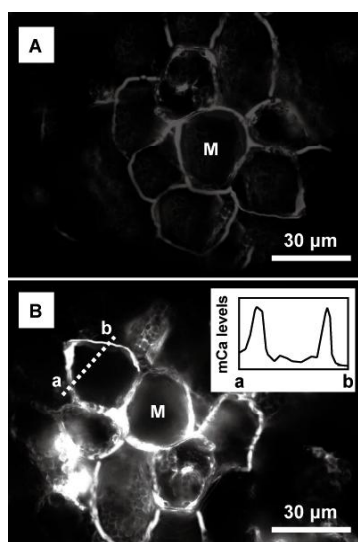


Fig. 4 Digitally acquired images showing treatment effects on mCa (Ca^{2+} -CTC fluorescence intensity) in current-year fir needles sampled on November 2007. (A) pH 3; (B) pH 5 as control.

いると考えられる。

葉への酸性霧の沈着⇒葉表面ワックスの流亡⇒mCa の溶脱⇒ストレス障害の増加

この過程で重要なのは、葉表面ワックスの流亡である。葉面は通常、エピクチクラワックスで覆われており、水分、イオン、ガスなどが失われるのを防ぐ重要な働きを担っている。そこで、表面ワックスの層厚が酸性霧によりどの程度減少するかを調査するために、針葉断面切片 ($50\mu\text{m}$) を 10% ホルマリン溶液で化学固定し、次いで Sudan III 溶液に浸漬させることによりワックス存在部位を橙に染色した。また、エピクチクラワックス量の測定はクロロホルム抽出-重量測定法により行った⁸⁾。その結果、モミ針葉中のワックスの層厚に変化は見られない

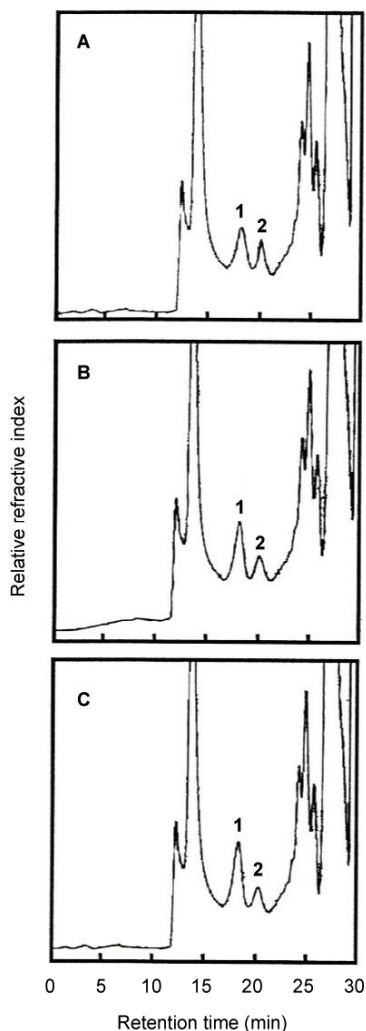


Fig. 5 SEC chromatogram of the material solubilized by EPG treatment in the AIR from the fir leaves. A; pH 2 SAF treatment, B; pH 3 SAF treatment, (C); control.

ものの、その質量は対照区に比べ pH 3 処理区で有意に減少していた ($P < 0.05$)。このことは、ワックス成分のうち特に低分子量領域の物質が特異的に流亡したことを示している。

これまでの研究で、SAF の室内曝露実験により植物葉からホウ素 (B) が溶脱することは確認されていたが⁹⁾、細胞壁成分がどのような影響を受けているかは確認していない。ホウ素はペクチン質多糖であるラムノガラクトナン II (RG-II) に会合して細胞壁に存在し、生理学上重要な機能を持っている。これらの成分についても、酸性沈着物に含まれる H⁺ とのイオン交換反応により樹冠から溶脱することが考えられる。そこで、6 時間 SAF 処理した後のモミ葉から細胞壁をアルコール不溶性画分 (AIR, alcohol-insoluble residue) として分離し、次いでペクチン分解酵素 (EPG, endo-poly-galacturonase) で処理することにより RG-II を可溶化させた。図 5 に SEC/RI による RG-II のクロマトグラムを示す。いずれの条件下でも dRG-II-B (二量体、約 12 kDa) と mRG-II (単量体、約 6.2 kDa) のピークが 18.5、20.5 min にそれぞれ検出された。しかしながら、全 RG-II に占める dRG-II-B の割合は、対照区で 82% であるのに対し pH 2、3 処理区ではそれぞれ 80、76% と霧水 pH の低下と共に減少し、逆に mRG-II の割合が増加した。このことは、dRG-II-B から B が取り除かれ構造が不安定となり、mRG-II に構造変化したことを示しており、実際に分子量も半分程度に低下していた。また、SEC/RID を通過した溶離液を一定体積毎に分画採取し、イオンクロマトグラフ (IC) により Ca を測定したところ、Ca のピークは dRG-II-B の溶出位置とほぼ一致し

た。dRG-II-B 溶出時における Ca 含有量を調べたところ、霧水 pH の低下に伴い Ca 含有量は減少傾向を示し、この減少が dRG-II-B の割合を低下させていると推測される。

以上、2007 年度の研究成果についてまとめて示した。引き続き、2008 年度にも同趣旨の共同研究が実施されているので、継続した結果のまとめは次年度以降に述べる。なお、この研究は当研究室構成員全員でサンプリングや分析を協力して行っており、この報告は 2007 年度の小倉一晃君の修士論文、伊藤 肇君の卒業論文、鳴原亜土君の博士論文 (中間発表) によっている。また、採取やデータ取得に当たっては大山阿夫利神社や伊勢原市役所のご協力を頂いた。ここに記して謝意を表する。

【参考文献】

- (1) C.H. Borer, D.H. DeHayes, Tree, 12, 21-26 (1997).
- (2) M. Igawa et al., Environ. Pollut., 119, 375-382 (2002).
- (3) T. Ishii et al., Plant Physiol., 126, 1698-1705 (2001).
- (4) S. Ohta, T. Okita, C. Kato, J. Meteor. Soc. Japan., 59, 892-901 (1981)
- (5) M. Igawa, Y. Tsutsumi, T. Mori, H. Okochi, Environ. Sci. Technol., 32, 1566-1572 (1998).
- (6) M. Igawa, K. Matsumura, H. Okochi, Environ. Sci. Technol., 36, 1-6 (2002).
- (7) M. Jiang R. Jagels, Tree physiol., 19, 906-916 (1999).
- (8) T. Takamatsu, H. Sase, J. Takada, Can. J. For. Res., 31, 663-672 (2001).
- (9) M. Igawa et al., J. Forest Res., 7, 213-215 (2002).