

ヒノキのfenitrothion (Sumithion(R))による異常落葉現象の メカニズム (I)

誌名	日本林學會誌 = Journal of the Japanese Forestry Society
ISSN	0021485X
著者	田畑, 勝洋 大久保, 良治
巻/号	62巻7号
掲載ページ	p. 249-253
発行年月	1980年7月

論 文

ヒノキの fenitrothion (Sumithion®) による

異常落葉現象のメカニズム (I)

各種有機燐剤で処理したヒノキの落葉と内生エチレンの発生*

田畑勝洋**・大久保良治**

田畑勝洋・大久保良治：ヒノキの fenitrothion (Sumithion®) による異常落葉現象のメカニズム (I) 各種有機燐剤で処理したヒノキの落葉と内生エチレンの発生 日林誌 62: 249~253, 1980 Fenitrothion によるヒノキの異常落葉現象のメカニズムを究明するため fenitrothion (二, 三の分解代謝物を含む), 各種有機燐剤および methionine を fenitrothion に対する落葉感受性個体および非感受性個体に dipping および absorption 処理して, 落葉現象の観察と同時に内生エチレンの発生量を測定した。いずれの処理法でも fenitrothion によって感受性個体では多量の内生エチレンをともなった落葉現象が認められた。これと同じ現象は fenitrothion 以外の有機燐剤でも認められ, それらは主としてジメチル(チオ)燐酸型の有機燐剤であった。また, fenitrothion の分解代謝物である dimethylchlorothiophosphate や dimethylphosphate によっても同じ現象が観察された。しかし, *p*-nitroresol では落葉現象は認められなかった。これらの結果から, fenitrothion によるヒノキの落葉現象は fenitrothion およびジメチル(チオ)燐酸型の代謝物が内生エチレンの生成を促し, これによって落葉が誘起されると予想される。

TABATA, Katsuhiko & OKUBO, Ryoji: Mechanism of the abnormal leaf abscission phenomenon in Japanese cypress caused by fenitrothion (Sumithion®) (I) The leaf abscission and endogenous ethylene evolution in Japanese cypress treated with several OP-compounds J. Jap. For. Soc. 62: 249~253, 1980 To assess the mechanism of leaf abscission in Hinoki, Japanese cypress, *Chamaecyparis obtusa* S. and Z., caused by fenitrothion, the relationship between the leaf abscission and ethylene evolution was investigated in susceptible and non-susceptible Japanese cypress treated with fenitrothion and its metabolites, several OP-compounds, and methionine by dipping and absorption. When susceptible leaves were dipped and absorbed 0.5% Sumithion emulsion, it was found that leaf abscission occurred with ethylene evolution 4 or 5 days after treatment. This phenomenon was recognized in other OP-compounds except fenitrothion. These compounds were dimethyl(thio)phosphate type OP-compounds. Dimethylthiophosphate and dimethylphosphate, which are fenitrothion metabolites, also led to the same phenomenon described but *p*-nitroresol did not. It is presumed that fenitrothion and dimethyl(thio)phosphate type metabolites accelerate ethylene evolution and the abnormal leaf abscission then occurs.

I. はじめに

マツクイムシによる松類枯損防止のため, fenitrothion (Sumithion®) を空中散布した地域で, ヒノキの約 10% にあたる個体に著しい落葉をともなった異常現象が認められている。しかも落葉個体の一部は回復するが, 樹勢の衰えから枯死にいたる個体が多い(6)。この異常落葉現象は実験的には fenitrothion 処理後 4~5

日目であらわれ, 葉害で一般的にみられる葉斑や葉縁部のネクロシスをともなわないが, 先端の新芽(葉)をのこして, 個々の小鱗片葉またはこれらのかたまりが脱落するのが特徴である(6)。また, この現象は植物ホルモンの一種である内生エチレンによる落葉現象にきわめて類似している(1, 2)。

本研究は上述のようなヒノキの異常落葉現象のメカニズムを究明する手がかりをうるために, fenitrothion や

* 本研究の一部は第3回日本農薬学会で発表した。

** 林業試験場 For. & For. Prod. Res. Inst., P. O. box 16, Tsukuba Nôrinkenkyu-danchi, Ibaraki 305

その他の有機燐剤さらには fenitrothion の分解代謝物などの化合物をヒノキの切枝に処理して、異常落葉の発生の有無と内生エチレンの生成を調べた。

II. 材料および方法

1. 供試ヒノキ

林試構内に植栽されている約 16 年生ヒノキ 50 個体の切枝におおの 0.5% の Sumithion® 乳剤を葉面処理後、水さしし、4~5 日後に異常落葉が観察された個体 2 本を fenitrothion 感受性個体 (以下 S 個体と呼ぶ) とし、処理後 10 日以降においても異常落葉が認められなかった個体 5 本を fenitrothion 非感受性個体 (以下 R 個体と呼ぶ) として実験に供試した。

2. 供試薬剤および処理方法

27 種の有機燐剤およびその他の化合物を下記のように類別し、供試薬剤とした。

ジメチル (チオ) 燐酸型—fenitrothion, malathion, dimethoate, fenthion, trichlorfon, nailed, vamidothion, phenthoate, cyanofos, thiometon, methidathion, ESP, dichlorvos, methyl parathion, pirimiphos methyl, oxidemeton methyl

モノメチル (チオ) 燐酸型—salithion, leptophos

モノおよびジメチル (チオ) 燐酸型—isoxathion, diazinone, piridafenthion, chloropirifos, EPN, disulfoton, parathion, cyanofenfos, chlorofenvinfos

Fenitrothion 分解代謝物および methionine-*p*-nitroresol (3-methyl-4-nitrophenyl), dimethylthiophosphate (本実験では dimethylchlorothiophosphate を用いた), dimethylphosphate, DL-methionine (和光純薬株式会社)

処理は dipping および absorption 法で行なった。dipping 法では上記化合物の 0.5% 乳液にヒノキ S および R 個体の切枝を各化合物につき 3~5 本 (生重約 5g) を 2~3 秒間浸漬し、余分の薬液を除去した後、水さしし、室内 (約 25°C) に放置した。absorption 法では、ヒノキ S および R 個体の切枝 (生重約 2g) を各化合物につき 3 本ずつ、0.5% 乳液 100 ml 中にさし、乳液の気散防止のため、基部を綿でまき、綿栓後、実験室内に 10 日間放置した。化合物のうち、*p*-nitroresol は本実験に供試するに十分な量の入手が困難であったため、内生エチレンの測定はできなかった。

3. 落葉と内生エチレン測定法

ヒノキ S および R 個体の切枝に各化合物を処理して 2~10 日後まで、毎日、細目の棒で枝を軽くたたくことによって肉眼的に落葉の有無を観察した。処理して 4~5

日後に顕著な落葉が認められた場合を “+”, そうでない場合を “-” で表示した。一方、落葉測定用の切枝とは別に、各化合物を処理したヒノキ S および R 個体の切枝をそれぞれ 150 ml のガラス容器内に入れ、密閉後、25°C の室内で明中におき、5 日後にこれらの容器内の気相からガスサンプリング用マイクロシリンジ (Termo microsylinge, GN-5.0) によって 2 ml 採気し、ガスクロマトグラフ (島津 5A 型, FID 検出器, カラム温度 70°C, 充てん剤 80~100 メッシュ, アルミナ) に注入して内生エチレン量を測定した。ただし、absorption 法による場合は 3 日間、乳液をヒノキ個体に吸い上げさせた後、ガラス容器に入れ、密閉した。また、対照区として無処理のヒノキ S および R 個体の切枝を同じようにガラス容器内に入れ、密閉したものをを用いた。これらの実験は少なくとも 3 回繰返しで行なった。

III. 結果

表-1 に示すように fenitrothion の dipping および absorption 処理のいずれの場合においてもヒノキの S 個体では顕著な落葉が認められ、内生エチレンが多量に発生した。とくに absorption 処理の場合に発生量は著しく多かった。一方、R 個体については dipping 処理では落葉は誘起されず、内生エチレンの発生も少なかったが、absorption 処理では内生エチレンに若干の増加がみられ、落葉も観察された。次に fenitrothion 以外の各種有機燐剤について落葉の有無と内生エチレン発生を調べた (表-2)。S 個体に対する dipping 処理では、fenitro-

表-1. Fenitrothion 処理に対するヒノキの感受性および非感受性個体の落葉と内生エチレンの発生

Leaf abscission and ethylene evolution of fenitrothion susceptible (S) and non-susceptible (R) Japanese cypress, treated with fenitrothion

Treatment ^a	Susceptibility	Leaf abscission ^b	Ethylene ^c evolution
Fenitrothion			
Dipping	S	+	0.47
	R	-	0.12
Absorption	S	+	2.04
	R	+	0.15
None			
Dipping	S	-	0.06
	R	-	0.09
Absorption	S	-	0.09
	R	-	0.06

^a Fenitrothion susceptible (S) and non-susceptible (R) Japanese cypress were dipped into and absorbed fenitrothion (0.5% emulsion).

^b The leaf abscission phenomenon was observed 5 days after treatment; +: abscission, -: non-abscission.

^c μ l/g (dry weight). Ethylene was measured by GC 5 days after treatment.

表-2. 各種有機燐剤処理による fenitrothion 感受性および非感受性個体の落葉と内生エチレンの発生

Leaf abscission and ethylene evolution of fenitrothion susceptible (S) and non-susceptible (R) Japanese cypress, treated with several OP-compounds^a

Compound	Leaf abscission ^b				Ethylene evolution ^c			
	S		R		S		R	
	Dip. ^d	Ab. ^e	Dip.	Ab.	Dip.	Ab.	Dip.	Ab.
Dimethyl type OP-compounds								
malathion	+	+	-	-	0.27	1.02	0.06	0.27
dimethoate	+	+	-	+	0.30	2.24	0.03	0.08
trichlorfon	+	+	-	+	0.44	1.26	0.24	0.26
fenthion	-	-	-	-	0.23	0.74	0.11	0.14
nailed	+	+	-	+	0.83	2.10	0.12	0.24
phenthoate	+	+	-	-	0.29	1.17	0.21	0.24
cyanofos	+	+	-	-	0.51	0.65	0.12	0.21
thiometon	+	+	-	-	0.26	0.41	0.12	0.18
methidathion	+	+	-	-	0.30	1.89	0.11	0.09
ESP	+	+	-	-	0.17	1.25	0.12	0.15
dichlorvos	+	+	-	+	0.24	1.26	0.44	0.26
methyl parathion	+				0.33			
vamidothion	+				0.42			
pirimifos methyl	+				0.33			
oxidemeton methyl	+				0.47			
Monomethyl type OP-compounds								
salithion	-	-	-	+	0.18	1.43	0.09	0.17
leptophos	-	-	-	+	0.11	0.53	0.08	0.09
Mono or diethyl type OP-compounds								
isoxathion	-	+	-	+	0.17	0.69	0.15	0.08
diazinone	-	+	-	+	0.26	0.99	0.06	0.26
piridafenthion	-	-	-	-	0.12	0.45	0.06	0.09
chloropirifos	-	-	-	-	0.15	1.97	0.09	0.09
EPN	-	-	-	-	0.20	0.20	0.14	0.18
disulfoton	-	+	-	+	0.26	1.73	0.12	0.26
parathion	-				0.18			
cyanofenfos	-				0.29			
chlorofenvinfos	-				0.14			
None	-	-	-	-	0.06	0.09	0.09	0.06

^a Fenitrothion susceptible (S) and non-susceptible (R) Japanese cypress were dipped into and absorbed several OP-compounds (0.5% emulsion).^b The leaf abscission phenomenon was observed 5 days after treatment; +; abscission, -; non-abscission.^c $\mu\text{l/g}$ (dry weight). Ethylene was measured by GC 5 days after treatment.^d Dipping, ^e Absorption

thionと同じ $(\text{CH}_3\text{O})_2\text{P}(\text{S})\text{O}-$ を骨格にもつジメチルチオ燐酸 (fenthion を除く), あるいはジメチル燐酸型の有機燐剤によって明らかに異常落葉が認められたが, モノメチル(チオ)燐酸やモノおよびジエチル(チオ)燐酸型の有機燐剤では落葉は誘起されなかった。また, 内生エチレン発生量もジメチル(チオ)燐酸型の有機燐剤ではモノメチルやモノおよびジエチル(チオ)燐酸型の化合物より有意に高かった。また, S 個体に対する absorption 処理では, dipping 処理とくらべると傾向としてはほぼ同じであったが, 相違点はいずれの化合物についても内生エチレンの発生は著しく多いこと, モノおよびジエチル燐酸型の化合物のなかで落葉を誘起するものが観察されたことであった。しかし, 内生エチレンの発生は化合物によって変動が大きく, chloropirifos のように

fenitrothion の場合と同様に著しい内生エチレンの発生を促したにもかかわらずまったく落葉が観察されない化合物も存在した。R 個体については dipping 処理によって落葉を引き起こし, 多量の内生エチレンの発生を促す化合物は認められなかった。しかし, absorption 処理では, 例えば dimethoate, nailed のようにジメチル(チオ)燐酸型のなかにも落葉を誘起する化合物が観察された。他の燐酸型化合物の場合も同じであったが, いずれも内生エチレンの発生は, S 個体にくらべて著しく少なかった。以上をまとめると, fenitrothion 以外の有機燐剤にも落葉反応と内生エチレン生成反応を促す化合物が存在し, それらは主にジメチル(チオ)燐酸型の化合物であった。しかし, 処理方法によってこれら反応のあらわれ方がちがう化合物もみられた。次に, fenitro-

表-3. Fenitrothion 分解代謝物および methionine 処理による fenitrothione 感受性および非感受性個体の落葉と内生エチレンの発生

Leaf abscission and ethylene evolution of fenitrothion susceptible (S) and non-susceptible (R) Japanese cypress, treated with fenitrothion metabolites and methionine^a

Compound	Leaf abscission ^b				Ethylene evolution ^c			
	S		R		S		R	
	Dip. ^d	Ab. ^e	Dip.	Ab.	Dip.	Ab.	Dip.	Ab.
<i>p</i> -nitrocresol	-							
Dimethyl-phosphate	+	+	-	-	0.27	1.68	0.11	0.12
Dimethyl-chlorothio-phosphate	+	+	-	-	0.29	3.24	0.02	0.15
DL-methionine	-	+	-	-	0.11	1.67	0.14	0.21

^a Fenitrothion susceptible (S) and non-susceptible (R) Japanese cypress were dipped into and absorbed fenitrothion related compounds and DL-methionine (0.5% solution).

^b The leaf abscission phenomenon was observed 5 days after treatment; +: abscission, -: non-abscission.

^c μ /g (dry weight). Ethylene was measured by GC 5 days after treatment.

^d Dipping, ^e Absorption

thion の分解代謝物のうち、*p*-nitrocresol, dimethylthiophosphate (本実験ではその塩化物を用いた), および dimethylphosphate や内生エチレン発生機構に関与すると考えられている methionine について落葉と内生エチレンの発生を調べた (表-3)。*p*-nitrocresol の S 個体に対する dipping 処理では落葉は観察されなかったが dimethylchlorothiophosphate や dimethylphosphate では fenitrothion と同様に顕著な落葉と内生エチレンの発生を認めた。methionine では S 個体の absorption 処理で内生エチレンの発生をとまらぬ異常落葉が観察された。また、これらの化合物の R 個体に対する処理では落葉は生ぜず、内生エチレンの発生もきわめて少なかった。

IV. 考 察

Fenitrothion 処理によるヒノキの落葉反応は、fenitrothion の特有な作用ではなく、多くのジメチル (チオ) 燐酸型の有機燐剤によっても生じることがわかった。また、宮本ら(4,5)がイネなどで調べた結果では、fenitrothion は植物体内で fenitrooxon, *p*-nitrocresol, dimethylthiophosphate, dimethylphosphate, desmethylfenitrothion, desmethylfenitrooxon および *p*-nitrocresol の glucose 抱合体などに分解代謝される。ヒノキについても同じ分解代謝物が同定されている(7)。これらの分解代謝産物のうちで dimethylthiophosphate や dimethylphosphate は落葉を誘起し、fenitrothion のエステル結合の解裂によって生成される *p*-nitrocresol は誘起しなかった (表-3)。また、fenitrothion の酸化体である fenitrooxon はジメチル燐酸型であるため落葉を誘起する可能性が強く、モノメチル (チオ) 燐酸に属する desmethylfenitrothion やその酸化体である

desmethylfenitrooxon は誘起しないと考えられる。しかし、*p*-nitrocresol の glucose 抱合体については、この実験結果からは考察できない。Dimethylthiophosphate や dimethylphosphate の生物体内における動向は明らかでないが H_3PO_4 や H_3PO_3 などにすみやかに分解される(5) ため生物体に対して無影響であると考えられる。しかし、ここでの結果は、これら化合物の作用性についてさらに検討を加える必要のあることを示唆している。

はじめに述べたように、fenitrothion によるヒノキの異常落葉現象は植物ホルモンの一種の内生エチレンによる落葉作用にきわめて類似している。また、この内生エチレンはアミノ酸の一種の methionine が peroxidase などの酸化酵素によって酸化され、methional を経て生成されると推論されている(3,8)。DL-methionine を S 個体に吸上げさせた場合、内生エチレンの発生が増加し、著しい落葉現象が認められたことから、methionine がエチレンに分解代謝され、落葉を誘起したものと推察される。また、fenitrothion による dipping 処理でみられたように R 個体は S 個体にくらべて内生エチレンの発生はきわめて少なかった。これらの結果から、fenitrothion の空中散布によるヒノキの異常落葉は葉面からとり込まれた fenitrothion やその代謝物である dimethylthiophosphate や dimethylphosphate などが直接または間接的にヒノキ体内に存在する内生エチレン発生機構に作用し、内生エチレンの発生を促し、その結果、落葉が誘起されるものと予想される。しかしながら、absorption 処理でみられたように (表-2)、落葉の発生と内生エチレン生成の多少とは必ずしも対応しない例もあるので両者を直接結びつけるかどうか今後の検討課題である。いずれにしても異常落葉の有無や内生エチレン発生

量の多少には fenitrothion のヒノキ S および R 個体への取り込みの違いや、両個体間の fenitrothion の dimethylthiophosphate あるいは dimethylphosphate への分解代謝能力の差、さらにはこれら化合物に対する methionine 分解酵素または離層形成に関与するセルロース分解酵素(1)などの作用点での感受性の差が相互に関連しているものと推察される。

引用文献

- (1) ABELES, F. B.: Role of RNA and protein synthesis in abscission, *Plant physiol.* **43**: 1577~1586, 1968
- (2) JACKSON, M. B. & OSBORNE, J.: Ethylene, the natural regulator of leaf abscission, *Nature* **225**: 1019~1022, 1970
- (3) LIEBERMAN, M., KUNISHI, A. T., MAPSON, Z. W. & WARDALE, D. A.: Ethylene production from methionine, *Biochem. J.* **97**: 449~459, 1965
- (4) MIYAMOTO, J. & SATO, Y.: Determination of insecticide residue in animal and plant tissues (II) Metabolic fate of Sumithion in rice plants at preheading stage and its residue in harvested grains, *Botyu-Kagaku* **30**: 45~49, 1965 a
- (5) ——— & ———: Determination of insecticide residue in animal and plant tissues (III) Determination of residual amounts of Sumithion in Cocoa beans grown in Nigeria, *Botyu-Kagaku* **30**: 49~51, 1965 b
- (6) 大久保良治・田畑勝洋: フェニトロチオンによるヒノキの落葉現象. 第3回日農薬講要集, 224, 1978
- (7) 田畑勝洋・大久保良治: ヒノキの fenitrothion (Sumithion®) による異常落葉現象のメカニズム (II) ¹⁴C-fenitrothion [O, O-Dimethyl-4-nitrophenyl phosphorothioate] のヒノキ葉における代謝. 日林誌, 投稿中
- (8) YANG, S. F.: The chemistry and biochemistry of plant hormones, *Recent advances in phytochemistry* **7**: 131~164, 1973

(1979年3月10日受理)

学会記事

- 第31回日本林学会関西支部・日本林業技術協会関西・四国支部連合会合同大会開催予定
- 会期: 昭和55年10月23日(木)~25日(土)
- 会場: 鳥取市立文化ホール(鳥取市吉方温泉3丁目701)
- 白兔会館(鳥取市末広温泉町556)
鳥取大学農学部(鳥取市湖山町4-101)
- 日程: 10月23日 日本きのこセンター, 智頭林業視察

10月24日 総会, 特別講演(文化ホール)

10月25日 研究発表(鳥取大学農学部)

シンポジウム(10月24日)

第1会場(文化ホール)

スギの材質低下の原因について

第2会場(白兔会館)

しいたけの生産について

懇親会(白兔会館)

大会事務局: 〒680 鳥取市東町1-220

鳥取県農林水産部造林課林業専門技術員室

電話 0857-29-7307(直通)