

C-MHの生理作用と 植物体内の行動について

宇都宮大学農学部 竹内安智・竹松哲夫

1. は じ め に

MH(マレイン酸ヒドラジド)は、1895年に、Foesting, Crutisらによって合成された。それから約50年後の1949年に、SocheneとHoffmanにより、トマトに対する生長阻害作用が報告されてから多くの研究が行なわれ、MHに関する研究論文はすでに1,300を超えている。MHは現在タバコの腋芽防止剤として世界的に広範囲に利用されているが、そのほかに貯蔵タマネギ・バレイショの発芽防止、葉菜類のトウダチ防止、テンサイ・ダイコン・ニンジン等のトウダチ・す入り防止、根菜類のトウダチ防止、サツマイモのツルボケ防止、テンサイの発芽防止などの作用や雑草の矮化抑制作用など、農業上多岐にわたる有用な作用性をもっている。

筆者らは、1965年以降今日に至るまで、MHに関する研究を続けてきたが、多年生雑草木の防除剤として新しい用途を拓いたほか、新規の塩のコリン塩(マレイン酸ヒドラジドコリン塩, maleic hydrazide cholinesalt, 略称C-MH)を生長調節剤および除草剤として選抜した。C-MHは、すでに日本ではタバコの腋芽防止剤として実用化されているが、諸外国においても実用化の方向で検討がすすめられている。

C-MHは、従来の塩にくらべて植物生理活

性が著しく高く、かつ条件変動が小さいので、安定した効果を発現する。タバコの腋芽防止剤として活性は高いが薬害がなく、むしろ増収効果も確認されている。

C-MHの人畜に対する各種の毒性試験の結果、催奇性・発ガン性・慢性毒性など全く問題がないことが明らかになったので、さらに食用作物への利用についても検討をすすめている。

筆者らは応用研究と併行して、生理作用・植物体内および土壤中の挙動についても基礎研究を行ってきた。本文では生理作用と植物体内の挙動に関して、筆者らの研究結果を要約する。

2. コリン塩の選択

MHは各種の塩をつくる造塩化合物であるが、従来より市販品としてジエタノール・トリエタノール塩のアルコールアミン類、あるいはジメチル・トリメチル等の低級アミン類かナトリウム・カリウム等のアルカリ金属の塩が使用されている。

筆者らは、多くの塩のなかからコリン塩を選抜したが、他の塩との生理活性の対比を以下に示す。

(1)一年生植物：時無ダイコンの子葉展開直後に各塩の0.1%溶液を散布し、無処理区が4.5葉期に達した時、本葉重量を測定した。その結果、図1.に示したように本葉の生長に対する阻害効

果はコリン塩≫ジェタノールアミン塩>カリウム塩>ナトリウム塩の順であり、コリン塩が著しく高い活性を示した。

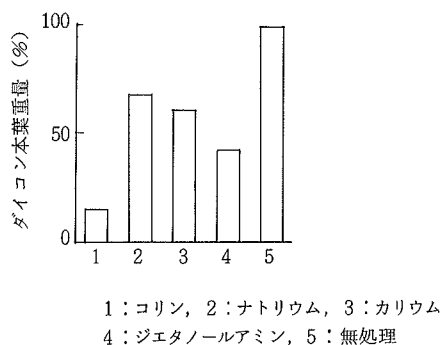


図1. MH各塩がダイコンの生長におよぼす影響

(2)多年生植物：バレイショを圃場で育成し、7月上旬に0.25%のMH溶液を茎葉全面に散布し、3週間後に塊茎を収穫した。11月上旬にこれをガラス室内で土耕し、3か月後に萌芽～生育した茎葉重量を測定した。表1.に示したように、萌芽防止効果はコリン塩が最も大きかった。

表1. MH各塩がバレイショの萌芽におよぼす影響

塩の形態	茎葉重量 (%) ^a		
	500	1,000	2,000 ppm
コリン	24	0	0
ジェタノールアミン	31	0	0
カリウム	87	44	12
ナトリウム	100	63	25

^a 茎葉重量は無処理区を100%とした。

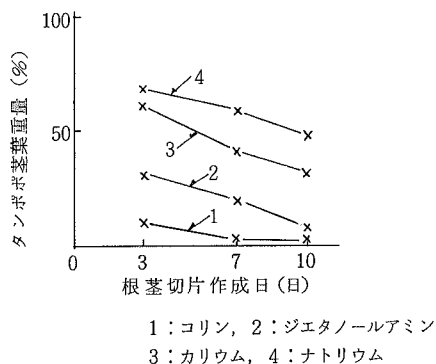


図2. MH各塩がセイヨウタンポポの根茎の再生におよぼす影響

次にセイヨウタンポポを被検植物にして多年生植物の分化・再生におよぼす影響を比較した。0.5%のMH溶液を茎葉に散布し、7日後に根茎を2cmの厚さに切断してバーミキュライト中に移植し、20日後に各切片から分化・生育した茎葉重量を測定した。図2.に示したように、阻害効果は明らかにコリン塩が大きい。また植物体内への吸収・移行速度も、コリン塩≫ジェタノールアミン塩であった。

(3)一年生植物(タバコの腋芽防止力): タバコに対する腋芽抑制効果を比較するため、2～3輪開花時に摘芯してMH溶液を散布し、1か月後に調査した。その結果、腋芽防止効果は、コリン塩≫ジェタノールアミン塩>カリウム塩>ナトリウム塩であった。コリン塩の活性は著しく高く、在来種やバーレー種には低濃度でも卓効がある。

表2. MHの塩の形態とタバコの腋芽防止効果

塩の形態	濃度 (%)		
	0.125	0.25	0.5
コリン	72	100	100
ジェタノールアミン	53	96	100
カリウム	38	56	100
ナトリウム	23	42	78

品種：ブライトイエロー

以上のように、MHではコリン塩の生理活性が最も高いが、他の生理活性物質に関して、筆者らの実験結果によれば、フェノキシ系(2,4 PA, MCPAなど)、ナフタレン系(NAA)、アリファティック系(DPA)やその他の系列化合物でも生理活性はコリン塩>カリウム塩、ナトリウム塩、ジェタノールアミン塩であった。特に低温環境下では、MCPAの場合、コリン塩はナトリウム塩の3～4倍高い除草効果を発揮した。このようにコリン塩化は多くの除草剤の茎葉面からの侵入・移行に大きく寄与している

が、この原因として、コリンの植物表皮組織とのアフィニティーが著しく高いことも一因と考えられる。

薬物が施用部位から植物体内の作用点により効率的に選ばれることが作用発現の第一段階であり、特に茎葉処理剤では塩類の選抜は製剤処方と同様に活性成分の有効利用に連なるものであり、きわめて重要である。

3. C-MHの理化学性と動物に対する安全性

C-MHは、マレイン酸ヒドラジドをコリン溶液にモル比で1:1となるように溶解して得る。タバコに使用されている製剤は、マレイン酸ヒドラジドコリン塩58%(MHとして30%)を含有する液剤である。化学構造と性状は以下の通りである。

MHは発ガン性などの毒性に関してしばしば疑いをもたれてきたが、MHそのものには催奇性・発ガン性など全くなき、きわめて安全な化合物である。しかし、その一つの塩であるジエタノールアミン塩の場合には、動物にきわめて多量に投与したときは問題がみられたとの報告も一部にある。このような状況のなかで、筆者らは毒性の恐れのない天然物のコリンに着目した。

コリンは動植物体内に広く存在し、水溶性のビタミンB群に分類され、磷脂質の一種レシチンの一成分でもある。現在、飼料添加物として利用されているように、安全性の高い化合物である。

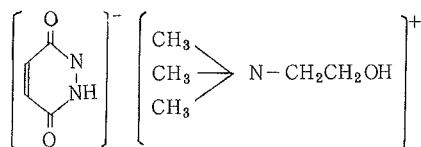
人畜毒性に関する試験結果は、表3の通りである。

また¹⁴C-MH(コリン)をラットに経口投与した場合、1日位でMHの大部分は、未変化

表3. C-MHの化学構造と毒性

有効成分の種類と含有量

マレイン酸ヒドラジド・コリン塩……………58%
(マレイン酸ヒドラジドとして……………30%)



性状 淡褐色水溶性液体(pH 9.7)

A. 人体毒性

- 1) 急性経口毒性 ラット♂ LD₅₀ 成分7150mg/kg
マウス♂ LD₅₀ " 6810 "
- 2) 急性経皮毒性 ラット♂ LD₅₀ 成分10,210mg/kg
- 3) 亜急性経口毒性(3か月) 最大無作用量 ラット
製剤1.0ml/kg/日
- 4) 慢性経口毒性(2か年) ラット 最大無作用量
200mg/kg/日
- 5) 次世代におよぼす試験 マウス 催奇性なし
- 6) 突然変異性試験 Rec-assay 代謝活性化を含む
復変異試験において陰性

B. 魚毒性

- 1) ヒメダカ 48時間 T. L. M. 2300ppm
- 2) コイ 48時間 T. L. M. 1300ppm

のまま主として尿中に、あるいは一部糞中に排出されて、体内への蓄積はない。

4. 植物に対する作用

1) 除草作用

夏生一年生雑草の生育初期に0.25~0.5%のMHを処理すると、その後の生育を矮化抑制できる。

しかし、1m以上に伸長した雑草に対する処理では、頂芽優勢打破などの形態変化は観察できるものの、草丈抑制・重量抑制が小さく、除草効果はほとんど認められない。冬生一年生雑草も生育初期(秋季)に処理すればやはり矮化~枯殺できるが、春季(早春)の処理ではその後広葉雑草はロゼット状態を続け、イネ科雑草は幼穂の抽出・展開がなく、矮化状態を続ける。

多年生雑草の場合、夏季に0.5～1%のMHを処理すると、若干の生育抑制はみられるが、その後次第に回復して、除草効果に結びつかない。しかし、MH処理後7日位に地ぎわ部で刈取るかパラコートやその他の茎葉処理除草剤で地上部を枯殺すれば、その後地下部からの再生を防止できる。秋季(降霜一か月前)に処理すれば、多くの雑草(例えば、クズ・クローバー・ギシギシ・スイバ・イタドリ・ヤブガラシ・ヒルガオ・タンポポ・ハルジョーン・セリ・ミズガヤツリ・オモダカ・ウリカワ・ヒルムシロなど)は翌春、地下部の栄養・繁殖器官からの再生が防止される。また、ハルジョーン・タンポポ・ヨモギ・スイバなどに対する早春の処理は、その後の生育を著しく抑制する。

木本植物に対する夏季の処理は、頂芽優勢打破などの現象が観察されるものの、除草効果はほとんど認められない。しかし、秋季に0.5～2%溶液を処理すれば、翌春のかん木の萌芽が阻害される。なお、有用木本植物のなかでは、ヒノキ科のヒノキ・サワラ・アスナロ・イブキなどが耐性を示すのに対し、スギ・ヒノキ・アカマツ・カラマツなどは感受性である。

2) 作物の生長調節

タバコ：定植後5～6週間で茎頂に花序をつける。この頃、葉を成熟させ成分の蓄積をはかるため、通常15葉位を残して花と上部の小さな茎葉を除去する摘芯(芯止め)作業を行なう。各節(黄色種：約15節、在来・バーレー種：20～25節)は3個の芽の原基を有するので、これらの腋芽を除去し、残された葉を拡大・成熟させる。MHは、細胞の分裂阻害力は大いだが、伸長阻害力は小さいので、かなり生長した葉の拡大には悪い影響を与えることなく、腋芽の伸長を阻止できる。ジェタノールアミン塩の場合、葉焼け

や葉の拡大への影響がみられることもあるが、コリン塩ではそのような現象は観察されない。

タマネギ：収穫後自然条件下では、1～2か月で休眠が覚醒して内部の芽が動きはじめ、徐々に萌芽してくるが、0.25%のC-MHを収穫の1～2週間前に散布すると、萌芽防止が可能である。しかし、濃度が高すぎると腐敗球が出る。
バレイショ：通常の品種では、収穫3か月後位から萌芽がはじまるが、収穫の2～3週間前に0.1～0.2%のC-MHを散布すれば、6か月後でも萌芽はない。

ニンニク：収穫後乾燥貯蔵すると、12月頃から発根し、翌春早く発芽する。0.25%のC-MHを収穫の2週間前に散布すると、常温貯蔵でも目減りがなく、翌春5月末まで発芽・発根を防止できる。

サツマイモ：処理時期によって、生理作用は著しく異なる。定植1か月後位の場合、地上部および地下部の生長が阻害され、塊根の形成が妨げられる。2か月後以降の塊根肥大期の場合、茎葉の伸長はやや抑制されるが、地下部の塊根の肥大が促され、また収穫後休眠して萌芽がみられない。このような現象は、多年生雑草のミズガヤツリなどでも認められる。たとえば、8月中～下旬までの施用は塊茎の形成を阻止するが、9～10月の施用は塊茎の翌春の再生を防止する。

その他：根菜類のトウダチ防止、カンキツの耐霜性など、農業上有用な作用を保持している。

5. 作用機構

MHは、オーキシン活性物質と相互に拮抗作用を示す。すなわち一年～多年生植物にC-MHを施用した時に発現する生長阻害効果は、生理的濃度のオーキシン活性物質の投与で回復し、

逆にオーキシン活性物質の過剰施用による生長阻害は、C-MHの添加で回復する。MHは、植物体内のオーキシンレベルを低下させ、細胞分裂・細胞伸長を阻害するが、後者に対する作用が著しく弱いことが特徴であり、これが生長調節剤として他にはない特異な現象である。

また、分化に対する影響をセイヨウタンポポを被検植物として調べたところ、MHを投与された根茎からは新しい芽や根の原基は全く形成されなかった。2.4 P Aの過剰投与根茎でも発芽・発根は阻害されるが、この場合、細胞分裂はかなり盛んに行なわれているのが観察される。MH処理区では、染色体の異常により細胞分裂は全く停止している。このMH処理根茎に微量のオーキシン活性物質を与えると、芽や根の原基が形成され、正常に生育するのが観察される。

MH施用により植物体内で誘起される生理的变化は、後で述べるように植物の種類と処理時期によって著しく異なる。たとえば、タバコに腋芽防止剤として散布した場合、葉の拡大生長にともなってMHは急速に希釈～濃度低下するので、除草剤施用によりもたらされるようなドラスチックな生理的異常がなく、同化・呼吸作用もほとんど正常に機能する。一方、多年生植物の生長末期に散布した場合、地下部の栄養繁殖器官内に集積し、翌年再生する部位（生長点付近）に徐々に移行する。ここでは、核酸代謝・蛋白合成の阻害・各種酵素活性の異常やリン酸代謝の変化等が誘起され、呼吸作用が阻害される。

6. 植物による感受性差異

C-MHを植物に施用したときの生長阻害効果は、植物の種類によりかなりの違いがある。表4.に秋季処理した多年生雑草の翌春(5月)の

表4. C-MH (0.5%) の各種植物におよぼす影響
(秋季茎葉処理)

科 名	和 名	地上部重量(%)
ユ リ	ノ ビ ル	0
タ デ	エゾノギシギシ	0
"	イ タ ド リ	0
マ メ	ク ズ	0
"	シロクロバー	0
ヒ ル ガ オ	コ ヒ ル ガ オ	0
カヤツリグサ	ミズガヤツリ	8
"	ハ マ ス ゲ	64
イ ネ	スズメノヒエ	0
キ ク	セイヨウタンポポ	15
"	ハ ル ジ ョ ン	14
"	ア キ タ ブ キ	45

影響を示した。一般的にC-MHの阻害効果は、ユリ科・タデ科・マメ科・ナス科・ヒルガオ科・イネ科の植物には大きく、カヤツリグサ科とキク科には小～中程度である。しかし、カヤツリグサ科とキク科は、同一の科内でも種により感受性に差があり、たとえばカヤツリグサ科のミズガヤツリ(感受性)とハマスゲ(耐性)の差は8倍もみられる。なお、この感受性差異は、水耕処理によって比較しても同傾向である。

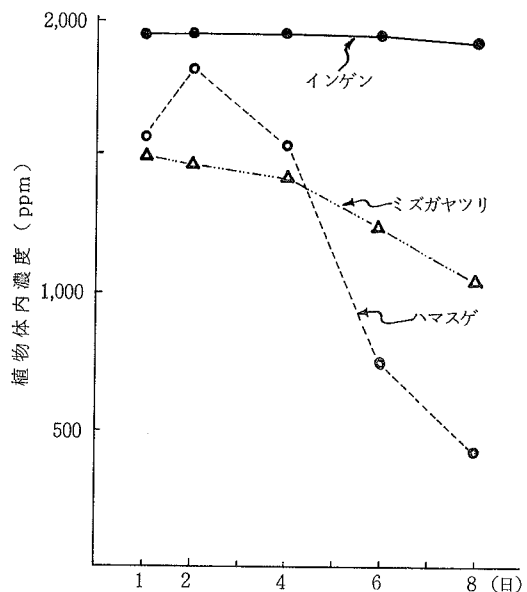


図3. 茎葉浸漬後の植物体内のMHの変化

各種植物にC-MHを茎葉部浸漬または根部浸漬によって授与し、経時的に体内の残留を調べたところ、感受性植物（たとえばマメ科・イネ科・ナス科・タデ科など）においてはMHは長く安定であるのに対して、耐性のハマスゲにおいてはMHがかなり速やかに分解することがわかった。このように植物による感受性の差は体内におけるMHの残存量にもとづくもので、感受性植物はMHを容易に分解できない。

感受性中位のセイヨウタンポポに茎葉処理した場合、MHが徐々に分解されて生長阻害効果が低下してくる。しかし、C-MH施用後1週間位で地上部茎葉を切除すれば、その後根茎内のMH濃度が高く維持され、再生防止効果が持続する。

7. 植物体内の分布

2.5葉期のインゲンの茎葉部を0.5%のC-MH溶液に20秒間浸漬した後、経時的にMHの含有量を測定した。その結果は、表5に示したように、茎葉への付着量の50%位が4時間以内、65%が8時間で吸収された。地下部への移行は、1日以降徐々に増加し、4日以降は急激に多くなった。MHの総含有量は、4～8時間以降はほとんど変わらず、きわめて安定であった。

タバコ（MC）の茎葉全面に0.5%のMH溶液を散布し、経時的にMHの吸収量を調べた。タ

表5. C-MHのインゲン体内での物質収支

時間 (hr)	MHの含有量 (ppm)			MHの総量 (mg)
	地上部	地下部	総 計	
2	1283.4	< 5	1011.7	0.7
4	1838.0	7.8	1387.4	1.0
8	2209.0	10.9	1760.0	1.2
24	2207.8	44.6	1838.6	1.2
96	2392.7	53.8	1945.5	1.3
192	2162.6	446.3	1859.4	1.2

※ 付着量：1.9 mg

バコ葉面への付着量はコリン塩の方がやや多い程度であったが、植物体内への吸収速度は図4に示したようにコリン塩がきわめて速く6時間で90%が吸収されているのに対して、ジェタノールアミン塩では4倍以上の時間を必要とした。

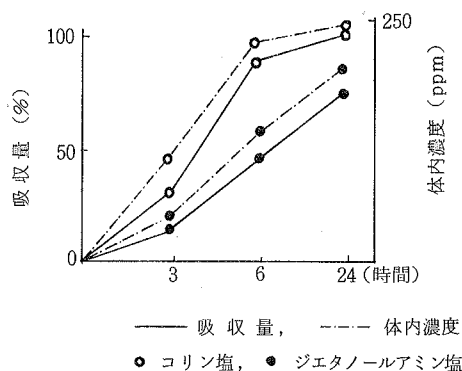


図4. MHのタバコ体内の吸収量と濃度

タバコ（MC）に0.5% C-MH溶液を散布し、21日間のMHの挙動を調べた。図5. 6.に示したようにMHは2日後では中～下位葉に多いが、その後急激に根に移行し、再び地上部の特に上位葉に多く集積していることが明らかになった。また、MHはタバコの葉面積の拡大、重量の増加にともない、希釈と分解によって、1か月後には初濃度の $\frac{1}{20} \sim \frac{1}{100}$ に低下した。

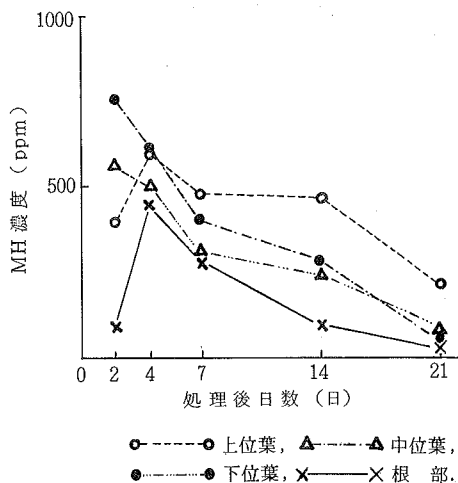


図5. タバコ体内中におけるMHの変化

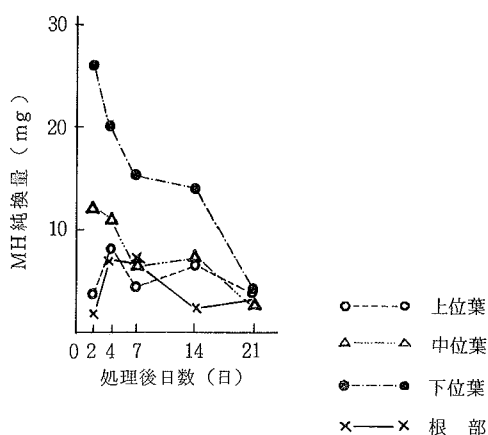


図6. タバコ体内におけるMH純換量の変化

次に多年生植物体内でのMHの挙動を調べた。大型化したエゾノギンギンに11月上旬、0.5%のC-MH溶液を散布し、1～9か月後の根茎内のMH残存量を測定した。MHの濃度は、1か月後で94.2 ppm、9か月後で75.2 ppmであり、20%位の低下がみられた程度で、いまだ生理活性を発現するのに十分な量が含まれており、再生は全くない。1か月後の根茎内のMHの分布は、表6.に示したように、再生力の大きい部位である根冠部に濃密に分布しており、中央部から下端部へと濃度が低下している。

表6. 0.5% C-MH茎葉処理1か月後のエゾノギンギン根茎中のMH残存濃度

根 茎 の 部 位	MH 濃 度 (ppm)
上 部 (0～5 cm)	111.8
中央部 (5～10 cm)	51.0
下端部 (10～20 cm)	41.6
総 計	94.2

秋季(10月)にサツマイモの茎葉に0.5%のC-MHを処理し、3週間後に塊根を収穫して1～4か月後にMHの濃度を調べた。表7.に示したように、収穫後4か月を経過してもMHの濃度はほとんど低下していなかった。塊根中のMHの分布は、1か月後も4か月後でも塊根内部よりも皮層に多く、しかも新芽が展開する先端～

表7. 0.5%のC-MH茎葉処理後のサツマイモ塊根中のMH残存濃度

分 析 部 位	MH 濃 度 (ppm)	
	1 カ 月 後	4 カ 月 後
全 体	51.0	48.2
外 部 ^a	75.6	95.6
内 部	64.0	88.6
先 端 部	160.9	108.6
中 央 部	39.2	74.0
下 端 部	99.4	31.0

^a 表層0～1 cm

中央部に多く、このようにMHは次に再生がみられる部分に多く集積していた。

以上のように、MHを夏季生育中の植物に散布した場合、希釈・分解によりMHの濃度は著しく低下するが、秋季に散布して地下部の栄養繁殖器官に移行せしめた場合には、希釈・分解がなく、長期間安定であることがわかった。

8. 植物体内における代謝

MHの3位と6位の炭素を¹⁴Cで標識した¹⁴C-MH(コリン塩)を使用して、タバコ植物体内の挙動を調べた。ワグネルポットで土耕により育てたタバコ(MC)が12葉位展開した時、1葉当たり2.0 mlの2,000 ppm液を表面に塗布するか、または葉面にスポットする方法によった。その結果、処理後4時間で塗布部位から根へ移行しており、24時間では植物体全体にわたって移行・分布したが、特に上位葉の第9葉(地際の葉より順次数える)以上に多かった。また、茎ではほぼ全体に分布し、48時間ではさらに上位の9葉以上の葉に多いが、茎では頂芽部と腋芽に顕著に集積がみられた。7～14日後にはさらに茎や上部の葉、あるいは分裂組織中でMHの濃度が高まったが、21日後では14日後にくらべていずれも減少した。

¹⁴C-MHを葉面に施用した後の残留量は、

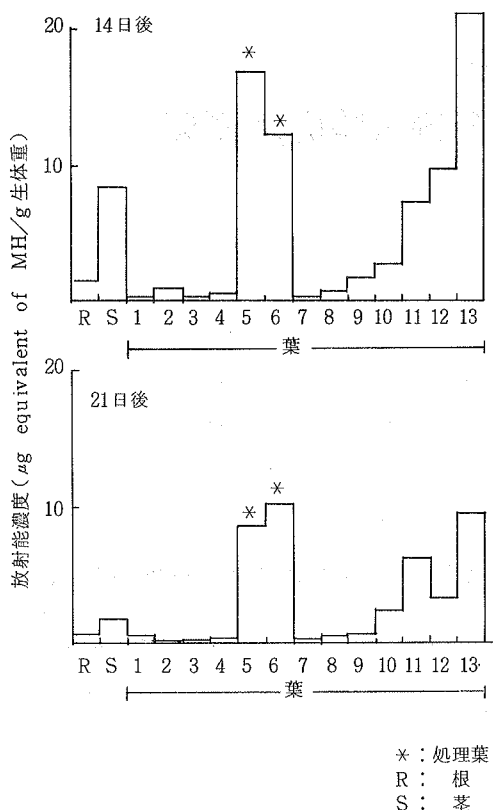


図7. ^{14}C -MH処理したタバコ体内におけるMHの分布(濃度2,000 ppm/葉)

コールで抽出してTLCで分析した場合、Rf値0.58(MH)に最も放射エネルギーが多く、7~21日後でも70%近くをしめた。また、TLC上で確認されたスポットは、14日後でRf 0.07:2.3%, Rf 0.24:3.0%, Rf 0.41:12.4%, Rf 0.47:8.0%であった。これらの化合物の同定に関しては、現在検討中である。 ^{14}C -MHを処理したタバコ植物から $^{14}\text{CO}_2$ の放出がほとんどみられないことから、MHの開環がないことがわかる。大部分は未変化のまま、 β -D-グルコサイドの形で存在している。植物体内での代謝物としてフマル酸やマレイン酸の誘導体などの提案もあるが、未だ確認されていない。抵抗性植物(ハマスゲ)体内ではMHは短期間で分解されるが、これらの代謝物とその機構についても検討をすすめている。

なお、MHはタバコの根を通して体外に排出されるとの報告もみられるが、筆者らの研究では根から土壌への排出はみられなかった。MHの土壌中での半減期は1週間以内であり、MH

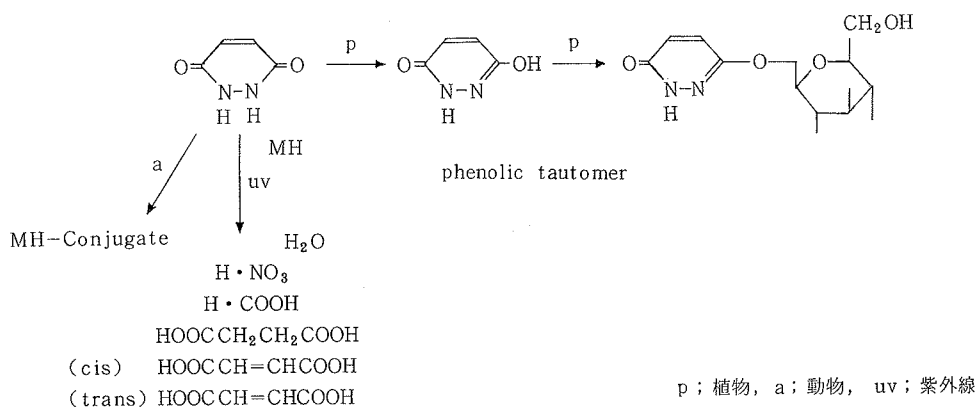


図8. MHの分解・代謝経路

塗布葉を除いた場合は塗布量に対して14日後で6.31%, 21日後で2.47%であった。

また代謝物を知るため、塗布葉をメチルアル

の窒素は $\text{N} \rightarrow \text{NO}_3^+ \rightarrow \text{NO}_3^-$ の形で、炭素は $\text{C} \rightarrow \text{CO}_2$ の形で短期間で無機化される。

(文献省略)