真珠の微細構造と色沢

和田 浩 爾*

Colour and Fine Structure of Pearls

Koji WADA*

Abstract

This is a review of color of pearls. It is evident on the base of studies that the color of pearls is the sum of iridescence and body color. The iridescence occurs by the interference of light reflected from the superficial and internal laminar structure of nacre, which is made of the accumulation of crystal layer and thinner organic sheet parallel to the surface of pearls. The crystal layer is from 0.3 to 0.8 μm thick and consists of a definite aggregate of many small tabular crystals of aragonite in a row. On the other hand, the body color is due to the absorption of light by pigment, nacreous matter and other matters.

はじめに

真珠および貝殻真珠層の真珠光沢については、1935年から1950年代にかけて Raman および彼の共同研究者らによる一連の詳細な研究がある。第二次世界大戦後、日本においてもアコヤガイ養殖真珠の真珠光沢に関する研究が化学および光学分野から活発に進められた。これまでの研究結果から、真珠光沢は赤、緑、青などいろいろな色彩をもった光沢色と、真珠の中から出てくる色づいた物体色とが重なったものであるとの結論には現在異論はない。

* 水産庁養殖研究所
三重県志摩郡阿児町神明 726-8
National Research Institute of Aquaculture
726-8, Shinmei, Ago-chō, Shima-gun, Mie Prefecture

1. 真珠光沢に関する研究

従来、真珠光沢に関する研究には二つの流れがある。一方は真珠の表面および内部の層状構造において起こる光の反射・屈折・干渉と光沢色との関係を調べた研究であり、他方は真珠に含まれている微量の無機元素や色素成分と物体色との関係を調べた研究である。

真珠層の光沢色については、Raman (1935)、大森 (1948)、内田・上田 (1947)、福田ら (1954)、岡田・川畑 (1953)、Raman and Krishnamurti (1954)、金井 (1958)、和田 (1962) らの研究がある。それらによると、結晶層と有機質シートとがくりかえして積み重なった平行層による反射光の干渉、結晶層を構成する結晶粒による拡散反射光の干渉などが真珠層に固有の光沢色を与えていると言える。

真珠の物体色については、神前 (1947) は金属ポルフィリンとポルフィリンの含有量が、内田・上田 (1947)、高岡 (1955) および八坂ら (1956) は微量無機元素の種類と含有量が関係すると報告した。しかし、その後の研究 (沢田, 1957; 田中・波多野, 1957; 堀口, 1959) では、物体色と無機元素との間には特別の関係は認められていない。沢田 (1961) はアコヤガイの黄色系真珠から黄色色素を抽出し、この黄色色素はロイシン、アラニン、グリシン、グルタミン酸、アスパラギン酸などのアミノ酸より構成されたペプチドと鉄との錯化合物であり、真珠の物体色の主因の一つであると報告した。また黄色色素については、カロチノイド色素や糖とコンキオリン様タンパク質とから成る着色物質など少なくとも二種類以上の成分からなると指摘されている (Koizumi and Nonaka, 1970)。そのうち、カロチノイド色素は真珠中に時々介在する異物質に含まれるもので、黄色色素本来の成分ではないと言われており (矢野, 1975)、黄色系真珠の主な色素はコンキオリン様タンパク質と糖との間のアミノ・カルボニル反応生成物であると言う (赤松ら, 1977)。現在、ウグイスガイ科に属する二枚貝によって作られる黄色系真珠、クロチョウガイの黒真珠、イケチョウガイの鮭桃色真珠などからも色素が抽出されており、これらの色素もタンパク色素の一種と考えられている。

一方、真珠形成初期に核を包んで形成された黒褐色の有機物や稜柱層などの異物質が真珠色の主因となることがある (金井, 1957; 和田, 1962)。しかし、異物質が真珠色の主因となるのは、ブルーなどきわめて特殊な色に限ら

Table 1. Characteristics of each structure of bivalved shell

Type of structure	Iridescence	Crystal form	Crystal shape	Aggregation
prismatic	non	calcite or aragonite	grain or needle	aggregation of prisms
nacreous	strong	aragonite	tablet	stratum of crystal layers
foliated	weak	calcite	elongate tablet	stratum of elongate tablets
crossed lamellar	non	aragonite	rectangular rod	aggregation of rods inclined in opposite directions
complex	non	aragonite	rectangular rod	aggregation of rods in block
composite prismatic	non	aragonite	rectangular rod	aggregation of rods in prism or cone
homogeneous	non	aragonite	grain	irregular aggregation

れている。

真珠光沢の全般を論ずる場合、すべての因子が同等に影響するのではなく、どの因子が主因となるかによって真珠色の系統が決ってくる(和田, 1962)。

2. 真珠光沢のある貝殻

真珠光沢はごく少数の貝殻にしか見られない。殻質層は内部構造的にみて、Table 1 に示してあるように、七つの基本型に分類できる(小林, 1973)。このうち、真珠光沢のある貝殻は真珠構造あるいは葉状構造の殻質層からできている。真珠光沢のある貝殻の結晶は可視光線の波長範囲の厚さの板状であり、有機質シートと交互に積み重なって貝殻内面に平行な層状構造を形成している。

これに対して、真珠光沢のない貝殻の結晶は微顆粒状ないし細長い針状で、長軸を貝殻表面に傾斜して集合したり、有機質の厚い鞘で囲まれた多角形ないし亜円形の柱状に集合したり、でたらめに集合している。

3. 真珠層の構造

真珠構造は真珠層とも呼ばれ、葉状構造に比べて非常に美しい真珠光沢を示す。真珠構造の層状構造では、板状のアラレ石結晶が石畳状に敷きつめられてできた結晶層が高屈折率の強靱な有機質シートと交互に整然と積み重なっている。結晶層を構成するアラレ石結晶はc軸を層に垂直に配向している。これに対して葉状構造の層状構造では、細長い板状の方解石結晶が平行に並んで結晶層を形成する。しかし、結晶の配向はかなり自由に变化し、また隣

Fig. 1 Fine structure of pearl nacles of bivalve (left) and gastropod (right). X 4,000

接結晶におおいかぶさり、真珠構造に比べて雑然としている。有機質シートの屈折率は真珠層のものに比べてかなり低い。

ところで、二枚貝と巻貝の真珠構造では結晶の積み重なり方が異なっている (Fig. 1)。アラレ石結晶は二枚貝では交互にずれながら積み重なり、巻貝では柱状に積み重なる。また結晶粒は、二枚貝ではb軸も方位配列しており、巻貝では双晶であると言われる。(Rajagopalan, 1936)。一方、結晶層の厚さや結晶の形、大きさなどは貝の種類によって変化し、貝の生理状態によっても変化する (Wada, 1974)。

4. 真珠の内部構造

真珠は真珠層が真珠の中心に対して同心円状に形成されたもので、結晶層と有機質シートとが真珠の中心を囲んで交互にくり返し重畳した同心円層からなる。その結果、アラレ石結晶のc軸は真珠の中心から全表面へ向って放射状に配列し、b軸は真珠の中心を囲んで同心円状に配向する。

真珠のアラレ石結晶粒は形態的にはなんの変哲もない板状の単結晶であるが、細胞が代謝した有機物質を内包している。有機物質は結晶内部を幅 $0.2 \sim 0.5 \mu\text{m}$ 、長さ $1 \mu\text{m}$ ほどの小さなブロックに分割するように分布するとも言われ (Watabe, 1965)、また泡状のインクルージョンとして結晶中に封入されているとも言われている (Towe and Thompson, 1972)。

真珠は真珠層以外の異物、例えば黒褐色の有機物質や稜柱層をしばしば内包する。通常異物質は真珠の中心、養殖真珠の場合は挿入した核をおおって形成され、真珠色に影響する。

5. 真珠の光沢色と表面構造

真珠の光沢色は真珠を収穫した季節によって全く異なる (Fig. 2)。平滑な平面で囲まれた大きな結晶が成長する時期に収穫した真珠は光沢の強い美しい干渉色を示す。この時期は結晶層の厚さも比較的均一となり、整然とした層状構造が形成される。大小の様々な形の結晶が混在して成長する時期の真珠は、光沢感が劣り美しい干渉色をほとんど示さない。もし真珠表面が腐食したり、不定形の非常に微細な結晶が沈着したりして、不規則な細かい凹凸が生じている真珠は光沢感にはぶく白色不透明となる。

真珠表面には、結晶層の成長前線が露出してできる微細な縞模様がある。

Fig. 2 Seasonal changes of luster, crystal size and shape of pearl and shell nacre of *Pinctada fucata*.

この縞模様の状況がまた真珠の光沢感を左右する。縞の間隔は通常 30~100 μm で、平行な縞模様はよい光沢感を与え、不規則な縞模様は光沢感が劣る。

6. 真珠光沢色と層状構造

真珠にバフをかけて磨くと、真珠の光沢感は一般に非常によくなる。ところが、真珠表面にバフをかけて鏡面のような平面に磨きあげたとしても、真珠の光沢感是个々の真珠で異なっている。これは真珠に入射した光が表面で反射すると共に透過して内部にはいり、真珠層内で反射して再び表面から外にでるからである。真珠層は可視光波長程度の厚さのアラレ石結晶と、厚さ 0.02 μm 以下の有機質シートとが交互に重畳した多重層からなり、空間的な光学格子を形作っていると言える。しかし、生物が作るため厳密な光学格子ではない。

ところで、比較的等間隔の厚さの結晶層が 30 μm 、層数にして約 60~100 枚ほど真珠表面に形成されると、光沢感のよい美しい干渉色を生ずる。結晶層の厚さが一定しないと色彩を失ない、光沢も悪くなる。また光沢感のにお

い白色不透明な真珠は、結晶層の厚さが一定でないうえ、可視光波長よりもかなり厚いか薄い。

結晶層は有機基質に囲まれた板状結晶が一平面の中で互いに特別な関係で配位しながら集合した粒状構造からなる。入射光は真珠内部へ侵入するにともない反射光の干渉効果は結晶粒の大きさ、形、配列状態などの影響を受けて微妙に変わると考えられる。

7. 真珠色に及ぼす異物質

褐色ないし黒色の有機物質や黄土色の稜柱層が真珠内部に存在すると、入射した光の特定の波長域がこれらの物質によって吸収され、反射された残りの光に真珠層の色光が加味された真珠色が生ずる。

この着色機構からわかるように、異物質により色づく真珠色は異物質の色と真珠層の色との和で決まる。銀白色の真珠層が黒褐色の有機物をおおって形成されると真珠はブルーに色づき、稜柱層をおおって形成されるとピンクがかって見える。一方、黄色系真珠層が有機物質や稜柱層をおおって形成されると真珠はグリーンに色づく。

8. む す び

真珠の光沢色は真珠層の表面構造、粒状構造によって決まり、真珠層中に含まれる色素成分や介在異物質の色によって更に多様化する。真珠と貝殻の真珠層の構造は互いに類似はしているが、真珠は球形で、内部結晶層は湾曲するのに対し、貝殻真珠層は通常平面で、内部結晶層は直線からなる。この違いによって、真珠表面の輝きと色の見え方に特色があらわれ（岡田・川畑, 1953）、反射光のスペクトルは貝殻真珠層ほど鮮明でなくなる（Raman and Krishnamurti, 1954）。

文 献

- 1) 赤松 蔚, 小松 博, 小泉千秋, 野中順三九: 日水誌, 43, 773-777 (1977)
- 2) 福田 保, 山田照三, 岩田 稔: 大工試報告, 3, 141-145 (1954)
- 3) 堀口吉重: 日水誌, 25, 392-396 (1959)
- 4) 金井昌邦: 応用物理, 26, 203-206 (1957)
- 5) 金井昌邦: 応用物理, 27, 473-481 (1958)
- 6) 小林厳雄: 海洋科学, 5, 768-774 (1973)

- 7) 神前武和：生理生態，1，247-250 (1947)
- 8) Koizumi, C. and J. Nonaka：Bull. Jap. Soc. Sci. Fish. 36, 1054-1058 (1970)
- 9) Koizumi, C. and J. Nonaka：Bull. Jap. Soc. Sci. Fish. 36, 1059-1066 (1970)
- 10) 岡田喜義，川畑寛一：電試彙報，17 (12)，1-11 (1953)
- 11) 大森啓一：地質学雑誌，54，33-38 (1948)
- 12) Rajagopalan, V.S.：Proc. Ind. Acad. Sci. A, 3, 372-385 (1936)
- 13) Raman, C. V.：Proc. Ind. Acad. Sci. A, 1, 574-589 (1935)
- 14) Raman, C. V.：Proc. Ind. Acad. Sci. A, 1, 859-870 (1935)
- 15) Raman, C. V. and D. Krishnamurti：Proc. Ind. Acad. Sci. A, 39, 1-12 (1954)
- 16) Raman, C. V. and D. Krishnamurti：Proc. Ind. Acad. Sci. A, 39, 215-222 (1954)
- 17) Raman, C. V. and D. Krishnamurti：Proc. Ind. Acad. Sci. A, 39, 265-271 (1954)
- 18) Raman, C. V. and D. Krishnamurti：Curr. Sci. 23, 173-176 (1954)
- 19) 沢田保夫：国立真珠研報，2，68-73 (1957)
- 20) 沢田保夫：国立真珠研報，7，865-869 (1961)
- 21) 高岡 斉：自然，10，48-52 (1955)
- 22) 田中正三，波多野博行：水産増殖，3 (4)，38-45 (1957)
- 23) Towe, K. M. and G. R. Thompson：Calc. Tiss. Res. 10, 38-48 (1972)
- 24) 内田洋一，上田正康：生理生態，1，171-177 (1947)
- 25) 内田洋一，上田正康：京都帝国大学総合研究体制研究報告書 No. 13 (1947)
- 26) 和田浩爾：国立真珠研報，8，948-1059 (1962)
- 27) 和田浩爾：国立真珠研報，16，1949-2027 (1972)
- 28) Watabe, N.：J. Ultrastructure Res. 12, 351-370 (1965)
- 29) 矢野 勲：国立真珠研報，19，2149-2151 (1975)
- 30) 八坂 茂，宮原昭二郎，田端義明：長大水産研報，4，45-48 (1956)