アコヤガイ真珠における干渉色と光沢に及ぼす真珠層の 厚さ及び結晶構造の影響

青木 秀夫,^{1*} 鈴木 道生,² 田中 真二,¹
渥美 貴史,^{1a} 中内 茂樹,³ 古丸 明⁴

(2020 年 12 月 8 日受付, 2021 年 5 月 28 日受理, 2021 年 8 月 6 日 J-STAGE 早期公開)

¹三重県水産研究所, ²東京大学大学院農学生命科学研究科,
³豊橋技術科学大学大学院工学研究科, ⁴三重大学大学院生物資源学研究科

Influence of nacre thickness and crystal structure characteristics on interference color
and luster of cultured Akoya pearl

HIDEO AOKI,^{1*} MICHIO SUZUKI,² SHINJI TANAKA,¹
TAKASHI ATSUMI,^{1a} SHIGEKI NAKAUCHI³ AND AKIRA KOMARU⁴

¹Mie Prefecture Fisheries Research Institute, Shima, Mie 517-0404, ²Graduate School of Agricultural and Life Sciences, The University of Tokyo, Bunkyo, Tokyo 113-8657, ³Graduate School of Engineering, Toyohashi University of Technology, Toyohashi, Aichi 441-8580, ⁴Graduate School of Bioresources, Mie University, Tsu, Mie 514-8507, Japan

Interference color and luster are representative characteristics that determine the beauty and economic value of cultured Akoya pearls. To understand the mechanism of appearance, we investigated the influence of thickness of the whole nacreous layer (range: 0.28–1.57 mm) and crystal microstructure, i.e. the thickness of one CaCO_3 crystal tablet (0.32–0.42 μm) and the coefficient of variation of crystal thickness on the intensities of interference color and luster of pearls. A significant positive correlation between interference color and both whole thickness of nacre ($r=0.669-0.863$) and crystal tablets ($r=0.613$) was detected. A negative correlation between interference color and coefficient of variation of crystal thickness ($r=-0.651$) was also observed. On the other hand, no significant correlation was observed between luster and these crystal structure factors. Results of multiple regression analysis suggest that the degree of influence on the interference color is large in order of thickness of nacre, thickness of one crystal tablet, and coefficient of variation of crystal thickness. Our results will contribute to the development of a technique for producing high-quality Akoya pearls by enhancing their interference color.

キーワード：アコヤガイ, 干渉色, 光沢, 真珠, 真珠層結晶構造

わが国の代表的な海産真珠養殖であるアコヤガイ真珠養殖では, アコヤガイ *Pinctada fucata* (母貝) の生殖巣内に核とともに他のアコヤガイ (ピース貝) 由来の外殻膜片を挿入する挿核施術を行う。外殻膜とは貝殻の形成に関する物質代謝を行う器官であり, 呼吸で生じた二酸化炭素から代謝された炭酸イオン (CO_3^{2-}) や海水中から吸収したカルシウムイオン (Ca^{2+}) を外殻膜外液中に供給するとともに, 結晶形成を誘導する有機基質を外

殻膜外液中に分泌して炭酸カルシウム (CaCO_3) の沈着 (石灰化) に作用する。挿核施術後は, 外殻膜片の外面上皮細胞が伸長して一層の細胞シートが核を包囲して真珠袋を形成する。その後, 真珠袋を構成する上皮細胞から真珠袋内腔液中に対しても貝殻形成と同様の物質代謝がなされ, 有機基質の薄膜と炭酸カルシウム (アラゴナイト) 結晶 (以下, 「Ca 結晶」とする) が交互に積み重なった積層構造 (真珠層) が形成され, 真珠がつくられる。

このように真珠層は有機基質と炭酸カルシウム結晶(以下、「Ca 結晶」とする)による多層膜構造となる。自然界ではこのような多層膜構造は多くの生物で観察され、それらの一般的な特性として鮮やかな色彩を呈することが知られている。^{1,2)} この色彩は、多層膜構造に光が入射すると、透過した光が各層で反射することで、特定の波長が増幅あるいは減衰する干渉現象の結果みられる干渉色(構造色)である。多層膜構造を持つ真珠の場合も、積層された各 Ca 結晶で入射光が干渉、回折し、様々な色彩の美しい干渉色を呈する。また、真珠に入射する光の一部は真珠の表面で反射する。真珠表面における光源の反射光は光沢と呼ばれ、表面付近の Ca 結晶が整然と形成されてフラットな状態であれば光沢の輝度が高くなるとともに、周囲の環境の映り込みが鮮明となる。一方、何らかの原因で真珠表面に凹凸が形成された場合や、Ca 結晶の積層構造が不連続な状態の場合には、光沢の輝度は低くなり、映り込みの像はぼやける。

アコヤガイ真珠の品質を評価する要素としては、形、実体色(色素色)、干渉色、光沢、巻き(真珠層の厚さ)、シミ・キズ(突起)の有無があげられる。なかでも、干渉色と光沢は宝石としてのアコヤガイ真珠を特徴づける要素であり、その価値を決定するうえで最も重要となる。一般に養殖生産されたアコヤガイ真珠における Ca 結晶 1 層の厚さは $0.3\text{--}0.6\text{ }\mu\text{m}$ で、積層された Ca 結晶の層数は数百から千数百層程度となり、真珠の干渉色と光沢は結晶構造により大きな影響を受けると考えられる。³⁾ これまでアコヤガイ真珠の品質に及ぼす結晶構造に関する知見としては、Ca 結晶の厚さと真珠表面に発現する干渉色の色彩パターンや真珠の経済価値との関係が明らかにされている。^{4,5)} また真珠層の薄い真珠や Ca 結晶の厚さが不均一で整然とした結晶構造を成していない場合の干渉色・光沢は弱くなることが報告されている。³⁾ したがって、真珠の干渉色・光沢の強度は、真珠層の厚さ、Ca 結晶の厚さ及びそのばらつきの 3 要素の影響を受けると推察されるものの、それらの客観的な関係は明確ではない。そこで本研究では、アコヤガイ真珠の干渉色・光沢と上記の 3 要素の関係を明らかにするとともに、それらの強度に及ぼす各要素の影響の大きさについて検討した。また、得られた結果に基づいて、真珠の品質向上に向けた効率的な養殖技術について論じた。

材料と方法

真珠サンプル 本研究で使用した真珠は、三重県水産研究所(三重県志摩市)が真珠養殖業者にアコヤガイ(母貝)への挿核施術を依頼して生産された真珠で、生産年の異なる 2 サンプル(A, B)とした。これらの母貝は、いずれも三重県水産研究所において日本産アコヤガイを両親として人工交配により生産され、三重県英虞

湾内で育成されたアコヤガイ(2 才貝)である。また挿核施術に用いたピース貝は、各サンプルにおいて同一ロットの真珠層白色系⁶⁾の日本産アコヤガイとした。両サンプルとも、変形真珠、シミ・キズの形成された真珠、有機質真珠、稜柱層真珠等を除外して、白色系の真珠層真珠のみを試料とした。

1. サンプル A 2010 年 6 月に全湿重量 $43.9 \pm 2.5\text{ g}$ (平均 $\pm$ 標準偏差, $n=10$)のアコヤガイ 200 個体に直径 6.13 mm の核を挿入して三重県英虞湾の漁場で飼育し、同年 12 月に取り出した真珠 40 検体とした。

2. サンプル B 2012 年 6 月に全湿重量 $31.8 \pm 3.9\text{ g}$ (同, $n=10$)のアコヤガイ 150 個体に直径 6.22 mm の核を挿入して同湾の漁場で飼育し、同年 12 月に取り出した真珠 20 検体とした。

真珠層の厚さの計測 真珠の直径をデジタルノギス(0.01 mm 単位)を用いて 1 検体あたり部位を変えて 3 回計測し、その平均値から核の直径を差し引いて真珠層の厚さを算出した。すなわち、本研究における真珠層の厚さの値は、核の両側に形成された真珠層の厚さを示す。

干渉色と光沢の定義 本研究では、アコヤガイ真珠において真珠層の多層膜構造により発現する色彩のことを干渉色、表面にみられる光源の反射光のことを光沢とする。真珠表面では、光沢の部分の周りにグリーン系やレッド(ピンク)系の干渉色が観察される(Fig. 1)。本研究では干渉色と光沢の強度を、それぞれ干渉色度と光沢度として数値で表した。なお、干渉色度と光沢度は、いずれも数値が高いほど真珠の品質が優れる。

干渉色度の計測 ヒト(真珠鑑定士)による真珠の目視観察では、中心部がグリーン系、周縁部がレッド系の色彩パターンを呈する場合に干渉色が良好と評価され、この色彩パターンが不明瞭な真珠では価値が低くなる。⁷⁾ この真珠の干渉色の空間変化のパターンをふまえ、本研究では Toyota and Nakauchi⁸⁾の方法に従って干渉色を演算処理する装置を用いて干渉色度を計測した。真珠に下方から LED 白色光をあて、上方から透過光をデジタルカメラで撮影した画像を基準画像(白色透過画像)とし、真珠の干渉色発現の原理である多層膜干渉の空間変化が最も顕著に表れる波長の光(LED 緑色光: 波長 520 nm)をあてた透過画像との差分画像を抽出した。抽出された真珠の差分画像における、中心部と周縁部の画像コントラスト比(輝度の比)を求め、この値を干渉色度とした。中心部がグリーン系、周縁部がレッド系の輝度の差がよく表れ、鮮やかな干渉色を呈した真珠ほど、画像コントラスト比が高くなり干渉色度も高くなる。

光沢度の計測 真珠の光沢度は中内、豊田⁹⁾の方法に従って演算処理する装置を用いて計測した。真珠に上方から LED 白色光をあて、多重露光による高輝度ダイナ

Fig. 1 Schematic diagram of nacreous layer of pearl. The thickness of crystal tablets at three different layers was measured on each pearl ($n=3$): (a) near surface, (b) middle, (c) near nucleus.

ミックレンジイメージングにより、デジタルカメラでハイライト部が白飛びすることのない真珠の画像を取得した。画像中の真珠像領域の画素ごとの輝度値のヒストグラムの歪み具合を表す歪度 (skewness) を求め、この値を光沢度とした。輝度ヒストグラムの歪度は、ヒトの主観的な材質感知覚 (光沢感) と比例関係にあることが明らかにされている。^{10,11)}

Ca 結晶の厚さの計測 上記の計測に加え、サンプル A のうち任意に抽出した 20 検体の真珠については、真珠層の Ca 結晶 1 層の厚さの計測も行った。真珠の中心線を切断し、断面を研磨した試料を走査電子顕微鏡 (SEM: HITACHI, S-4500) の観察に供した。真珠層の表面付近領域、中央領域、核近傍領域の 3 部位について、真珠 1 検体あたり 3 か所を倍率 10,000 倍で撮影した (Fig. 1)。取得した SEM 画像に表示されたスケールをもとに、Ca 結晶 12–15 層について 1 層あたりの厚さを計測した。このような手順により 3 部位の Ca 結晶の厚さの平均値を計算した。また全ての計測値をまとめて平均値と変動係数 (coefficient of variation, CV) を算出し、これを真珠 1 検体のデータとした。

干渉色度に及ぼす要因の解析 SEM を用いて真珠層の Ca 結晶 1 層の厚さを計測した上記のサンプル A の真珠 20 検体のデータを用いて、干渉色度を目的変数とし、「真珠層の厚さ」「Ca 結晶の厚さ」「Ca 結晶の厚さの変動係数」を説明変数として重回帰分析を行い、それらの要因の影響度について検討した。分析ソフトには Microsoft Office Excel 2013 を使用した。

結 果

真珠層の厚さと干渉色度、光沢度の関係 サンプル A ($n=40$), B ($n=20$) における干渉色度、光沢度と真珠層の厚さの関係を Fig. 2 に示した。真珠層の厚さはサンプル A では 0.21–1.57 mm, サンプル B では 0.23–0.93 mm の範囲で、前者の平均 ± 標準偏差は 0.737 ± 0.319 mm, 後者では 0.536 ± 0.174 mm であった。干渉色度はサンプル A では 0.0101–0.205, サンプ

ル B では 0.062–0.209 の範囲で、平均 ± 標準偏差は前者では 0.105 ± 0.050 , 後者では 0.082 ± 0.057 であった。サンプル A, B とも真珠の干渉色度は真珠層が厚いほど高くなる傾向を示した (Fig. 2a,c)。相関分析の結果、サンプル A では両者の間には有意な正の相関関係がみられた ($r=0.669$, $p<0.001$)。サンプル B では有意な強い正の相関関係がみられた ($r=0.863$, $p<0.001$)。一方、光沢度はサンプル A では 0.129–0.305, サンプル B では 0.167–0.296 の範囲で、平均 ± 標準偏差は前者では 0.215 ± 0.036 , 後者では 0.241 ± 0.039 であった。光沢度と真珠層の厚さについては、サンプル B では弱い負の相関関係がみられた ($r=-0.437$) もの、サンプル A では相関係数は $r=0.213$ で、両サンプルに共通した傾向はみられなかった (Fig. 2b,d)。また、両サンプルとも相関関係は有意ではなかった ($p>0.05$)。

干渉色度と光沢度の関係 サンプル A ($n=40$) における干渉色度と光沢度にはほとんど相関がみられず、両者の関係は有意ではなかった ($r=0.161$, $p>0.05$)。サンプル B ($n=20$) では両者の間に弱い負の相関関係がみられたが、両者の関係は有意ではなかった ($r=-0.318$, $p>0.05$)。

Ca 結晶の厚さと干渉色度、光沢度の関係 Ca 結晶の厚さを計測したサンプル A ($n=20$) における干渉色度と Ca 結晶の厚さの関係を Fig. 3 に示した。Ca 結晶の厚さ (全領域の平均値) は $0.315\text{--}0.424\text{ }\mu\text{m}$ で、干渉色度は Ca 結晶が厚いほど高くなる傾向がみられた。Ca 結晶の厚さと干渉色度の相関分析の結果、両者には有意な正の相関関係がみられた ($r=0.613$, $p<0.01$)。真珠層の表面付近領域、中央領域、核近傍領域の 3 部位における Ca 結晶の厚さと干渉色度の相関係数は、それぞれ $r=0.476$ ($p<0.05$), $r=0.589$ ($p<0.01$), $r=0.402$ ($p>0.05$) で、中央領域における相関係数がやや高かった。

同サンプルにおける光沢度と Ca 結晶の厚さの関係を Fig. 4 に示した。光沢度と Ca 結晶の厚さ (全領域の平均値) にはほとんど相関がみられず、両者の関係は有意

Fig. 2 Relationship between thickness of nacre and intensities of interference color (a, c) and luster (b, d) of pearls produced by *Pinctada fucata*: (a, b) sample A ($n=40$), (c, d) sample B ($n=20$).

Fig. 3 Relationship between thickness of crystal tablet and intensity of interference color of pearls produced by *Pinctada fucata* (sample A, $n=20$): (a) near surface, (b) middle, (c) near nucleus.

ではなかった ($r = -0.235$, $p > 0.05$)。表面付近領域、中央領域、核近傍領域の部位ごとの Ca 結晶の厚さと光沢度の相関係数は、それぞれ $r = -0.197$, $r = -0.238$, $r = -0.120$ (いずれも $p > 0.05$) で、中央領域における値がやや高かったもののほとんど相関はみられなかった。

Ca 結晶厚さの変動係数と干渉色度、光沢度の関係
サンプル A ($n=20$) における干渉色度と Ca 結晶厚さの変動係数の関係を Fig. 5 に示した。各真珠の Ca 結晶厚さの変動係数 (全領域の平均値) は 0.130–0.250 で、干渉色度は変動係数が大きいほど低くなる傾向がみられた。両者の間には有意な負の相関関係がみられた ($r =$

Fig. 4 Relationship between thickness of crystal tablet and intensity of luster of pearls produced by *Pinctada fucata* (sample A, $n = 20$): (a) near surface, (b) middle, (c) near nucleus.

Fig. 5 Relationship between coefficient of variation of crystal thickness and intensity of interference color of pearls produced by *Pinctada fucata* (sample A, $n = 20$): (a) near surface, (b) middle, (c) near nucleus.

-0.651 , $p < 0.01$)。真珠層の部位別の Ca 結晶厚さの変動係数は、表面付近領域では 0.125 ，中央領域では 0.086 ，核近傍領域では 0.092 ，領域全体では 0.080 で、表面付近領域における値が高かった。表面付近領域、中央領域、核近傍領域の Ca 結晶の厚さと変動係数の相関係数は、それぞれ $r = -0.575$ ($p < 0.01$)， $r = -0.477$ ($p < 0.05$)， $r = -0.503$ ($p < 0.05$) で、Ca 結

晶の厚さの変動係数が最も高かった表面付近領域における値が高かった。

同サンプルにおける光沢度と Ca 結晶の厚さの変動係数の関係を Fig. 6 に示した。光沢度と変動係数（全領域の平均値）には弱い正の相関関係がみられたが、両者の関係は有意ではなかった ($r = 0.324$, $p > 0.05$)。表面付近領域、中央領域、核近傍領域における光沢度と変動

Fig. 6 Relationship between coefficient of variation of crystal thickness and intensity of luster of pearls produced by *Pinctada fucata* (sample A, $n=20$): (a) near surface, (b) middle, (c) near nucleus.

Fig. 7 Relationship between thickness of nacre and crystal tablet of pearls produced by *Pinctada fucata*. Data are shown as mean $\pm$ SD (sample A, $n=20$): (a) near surface, (b) middle, (c) near nucleus.

係数の相関係数は、それぞれ $r=0.020$, $r=0.275$, $r=0.124$ (いずれも $p>0.05$) で、3 部位ともほとんど相関はみられなかった。

真珠層の厚さと Ca 結晶の厚さの関係 サンプル A ($n=20$) における真珠層の厚さと表面付近領域、中心領域、核近傍領域の Ca 結晶の厚さの関係を Fig. 7 に示した。表面付近領域の Ca 結晶の厚さ (平均 $\pm$ 標準偏差) は $0.361 \pm 0.045 \mu\text{m}$, 中央領域では $0.352 \pm 0.030 \mu\text{m}$,

核近傍領域では $0.375 \pm 0.035 \mu\text{m}$ で、領域全体では $0.363 \pm 0.029 \mu\text{m}$ であった。部位別にみると核近傍領域の値が他領域に比べてやや厚い傾向がみられた。真珠層の厚さと Ca 結晶の厚さとの間には、各部位ともほとんど相関がみられなかった。

重回帰分析 サンプル A ($n=20$) について、干渉色度を目的変数 (Y), 真珠層の厚さ (X_1), Ca 結晶の厚さ (X_2), Ca 結晶厚さの変動係数 (X_3) を説明変数と

Table 1 Results of multiple regression analysis of the intensity of interference color (Y) of pearls produced by *Pinctada fucata* (sample A, $n=20$)

	Partial regression coefficient	Standardized partial regression coefficient	t-Value
X_1	0.0874	0.4955	2.999**
X_2	0.6745	0.3172	2.213*
X_3	-0.4450	-0.2440	-1.514
Constant term	-0.1309		
F		14.84***	
Adjusted r^2		0.6861	

X_1 , thickness of nacre; X_2 , thickness of crystal tablet; X_3 , coefficient of variation of crystal thickness.

* $p < 0.05$, ** $p < 0.01$, *** $p < 0.001$.

して実施した重回帰分析の結果を Table 1 に示した。分散分析の結果、回帰は 0.1% の水準で有意であることが示された (F 値 = 14.84)。回帰式の決定係数 (自由度調整済み) は $r^2 = 0.686$ で良好な精度を示した。説明変数相互の相関係数の絶対値は $r = 0.363 - 0.589$ で、重相関係数は $r = 0.442 - 0.628$ であったことから、多重共線性は発生していないと判断された。各説明変数の t 値は $t^2 > 2$ であったことから、全て変数として適切であると判断された。以上のことから、干渉色度を $X_1 - X_3$ の説明変数で表すと以下の式が得られた。

$$Y = 0.0874X_1 + 0.6745X_2 - 0.4450X_3 - 0.1309$$

また各説明変数の標準偏回帰係数 (β) の値から、干渉色の強度に影響する要素は、真珠層の厚さ、Ca 結晶の厚さ、Ca 結晶厚さの変動係数の順で影響度が大きいと推定された。

考 察

真珠の干渉色・光沢に及ぼす真珠層の厚さ及び結晶構造の影響 真珠の干渉色は、多層膜構造である真珠層によって発現する物理現象であり、その強度は真珠の価値を決定する重要な要素となる。Ca 結晶と有機基質から構成される真珠層は半透明を呈し、真珠の表面から入射した光は真珠層内に透過して各 Ca 結晶層で反射するとともに、反射光の特定の波長の光が増幅あるいは減衰する。この増幅された光のうち可視光領域にある波長が干渉色として発現して、真珠表面の中心部から同心円状に周縁部までにみられる色彩パターンに影響する。⁴⁾

干渉色の評価については、これまで真珠鑑定士の目視観察による定性的な評価が一般的であり、客観的な評価は困難であった。本研究では物体に対するヒトの嗜好や価値判断に関係する感性的質感認知¹²⁾の手法を活用し、真珠鑑定士の目視評価による干渉色の美しさと相関する無次元量⁸⁾を計測するとともに、その強度に及ぼす

要素について検討した。その結果、真珠層の厚さ、Ca 結晶の厚さ、Ca 結晶厚さの変動係数が、いずれも干渉色度に影響する要素であることが明らかとなった。重回帰分析の結果、干渉色度に及ぼす影響度が最も大きいと推測された要素は真珠層の厚さであった。本研究において真珠層の厚さと Ca 結晶の 1 層あたりの厚さには明確な関係はなかったことから、真珠層の厚い真珠では薄いものに比べて Ca 結晶の層数が多いと推測される。したがって、Ca 結晶の厚さやばらつきの影響を考慮する必要があるものの、真珠層が厚く Ca 結晶層数が多いほど特定の波長の光が増幅し、その結果として干渉色度が高くなる傾向を示すことには妥当性がある。多層膜干渉モデルの演算処理の結果でも、層数が多いほど反射率が高くなることが報告されている。^{1,2)}

サンプル A ($n=40$) において、真珠層の厚さと干渉色度には正の相関関係がみられたが (Fig. 2a)、検体個別のデータをみると、真珠層の厚さが 1 mm 程度までは、ばらつきはあるものの真珠層の厚さに比例して干渉色度が高くなる傾向を示す一方で、1 mm より大きくなると干渉色度があまり変わらないようにも見せる。真珠層の厚さと干渉色度の相関係数をサイズ別にみると、1 mm 未満 (0.21 - 0.93 mm, $n=31$) の検体では $r = 0.560$ であったのに対して、1 mm 以上 (1.02 - 1.57 mm, $n=9$) では $r = 0.483$ 、1.1 mm 以上 (1.14 - 1.57 mm, $n=4$) では $r = 0.217$ と、サイズの大きい検体において相関係数は低下している。干渉色は多層膜構造である真珠層に光が入射し、透過した光が各 Ca 結晶層で反射して発現する。そのため、真珠の干渉色は光が透過して反射する距離までの層の構造においてみられる物理現象であり、それ以上の光が到達しない層による影響は少ないと考えられる。このことから、真珠層の厚さと干渉色度の関係において、両者にみられる正の相関関係には制限があり、真珠層の厚さが一定以上の場合には、干渉色度はほぼ変化しないことが推察される。光が真珠層中を透過する距離は、光源の明るさのほか真珠層の構造に影響されるため一概には定められないが、本研究でみられた真珠層の厚さが 1 mm より大きい場合に干渉色度があまり変わらないようなデータが得られた要因としては、真珠層中の光の到達距離の制限による可能性がある。他方、この要因には、真珠層の厚さが一定以上に大きくなると、真珠層の構造によって生じる干渉色度のばらつきが大きくなることに起因する可能性もある。今後、真珠層の厚さが 1 mm より大きい真珠をサンプルとして、真珠層の厚さと干渉色度の関係性についてより詳細な検討が望まれる。

分析の結果、真珠層の厚さの次に干渉色度への影響が大きかった要素は、Ca 結晶の厚さであった。Ca 結晶に入射した光は、下層の結晶からの反射光として光路差を

生じ、多層膜干渉を示す次式の波長 λ の光が増幅される。

$$2nd \cos \theta = m\lambda \quad (1)$$

ここで、 n = 屈折率（真珠のアragoナイトの場合は $n = 1.53^3$ ）、 d = 薄膜（Ca 結晶）の厚さ、 θ = 屈折角、 m = 次数、 λ = 波長、 $2nd \cos \theta$ = 光路差

(1)式より、増幅される波長 λ は Ca 結晶の厚さ d によって影響を受けることは明確である。また球体である真珠では光が入射する角度が半球面で $0-90^\circ$ となるため、部位によって屈折角 θ が異なる。そのため、増幅される波長 λ が真珠の中心部や周縁部などの部位によって異なり、表面には様々な色彩のパターンが発現する。⁴⁾ 本研究で試料とした真珠の Ca 結晶の厚さは約 $0.32-0.42 \mu\text{m}$ の範囲にあり、この範囲では Ca 結晶が厚いほど干渉色度は高くなる傾向がみられた。すなわち、Ca 結晶が厚いほど真珠表面の色彩パターンは、中心部がグリーン系で、周縁部がレッド系のパターンのコントラスト比が高くなる傾向を示した。小田原ら⁵⁾の研究でも、真珠の Ca 結晶の厚さが $321-406 \text{ nm}$ ($= 0.321-0.406 \mu\text{m}$) の範囲では、Ca 結晶が厚いほど経済価値が高くなる傾向をみており、本研究と真珠の品質面で同様の結果が報告されている。ただし、上述したとおり、Ca 結晶の厚さが同程度でも真珠層の厚さや Ca 結晶厚さの均一性の影響を受けて干渉色度にもばらつきが生じることから、Ca 結晶の厚さと干渉色度は単純な比例関係ではないことに留意する必要がある。

アコヤガイ真珠の干渉色に及ぼす Ca 結晶の厚さの影響として、和田³⁾は強い光沢感を伴うピンクを呈する真珠、すなわち良好な干渉色のみられる真珠の Ca 結晶の厚さは約 $0.35-0.43 \mu\text{m}$ で、それより干渉色の劣る真珠の値は約 $0.45-0.58 \mu\text{m}$ と良好な真珠の値と比べて大きいことを報告している。本研究で使用した真珠の Ca 結晶の厚さは約 $0.32-0.42 \mu\text{m}$ で、 $0.45 \mu\text{m}$ 以上の検体はなかったため、干渉色の度合いについて和田³⁾の結果と比較することはできない。一方、和田³⁾の結果は、Ca 結晶の厚さが $0.45 \mu\text{m}$ 以上の真珠では、干渉色度が低下する可能性のあることを示唆している。和田³⁾が指摘しているとおり、Ca 結晶の厚さが大きくなると反射する光のスペクトル中で増幅する波長と減衰する波長が接近するため真珠の干渉色の強度が低下するほか、増幅する波長が変化することで、真珠表面に発現する干渉色の色彩パターンが変化してその経済価値も低下する可能性がある。すなわち、本研究で用いた真珠の Ca 結晶の厚さが最高値である $0.42 \mu\text{m}$ より大きくなった場合、それに比例して干渉色度が高くなることはなく、逆に低下する傾向を示す可能性がある。

また、Ca 結晶の厚さと干渉色度・光沢度の関係を真珠層の部位別にみると、干渉色度では中央領域の相関係数が表面付近領域と核近傍領域の値よりやや高く、影響

度が大きいことが示唆された。一方、光沢度については、3 部位の相関係数は $r = -0.120-0.238$ で全体的に低いものの、干渉色度と同様に中央領域の相関係数が高かった。本研究において部位別の Ca 結晶厚さの変動係数は、表面付近領域では 0.125 、中央領域では 0.086 、核近傍領域では 0.092 と、中央領域の値が最も小さかった。このことから、干渉色度、光沢度ともに中央領域の相関係数が最も高かったのは、その領域の Ca 結晶厚さの変動係数が最も小さかったことによる影響の可能性が考えられた。

このほか、真珠の干渉色度に影響を及ぼす 3 番目の要素は、Ca 結晶厚さの変動係数であった。本研究では、変動係数の値が大きいほど干渉色度が低下する傾向がみられた。和田³⁾は多層膜構造を有する真珠において光の干渉を弱める要因として、Ca 結晶の層構造の乱れや不均一、積層する結晶面の凹凸の存在、散乱層の形成等を挙げている。これらの要因はいずれも Ca 結晶の不均一性や不連続性を伴うものであり、こうした特徴を有する真珠の干渉色の低下は、本研究における干渉色度と Ca 結晶厚さの変動係数の関係と矛盾はないと考えられる。換言すれば、多層膜構造をなす Ca 結晶の厚さの均一性が高いほど、特定の波長の光が増幅されることになり、干渉色度が高くなる傾向を示すと推察される。また、Ca 結晶厚さの変動係数と干渉色度・光沢度の関係を真珠層の部位別にみると、干渉色度では表面付近領域の相関係数が中央領域と核近傍領域の値よりやや高く、影響度が大きいことが示唆された。この結果は、部位別での Ca 結晶厚さの変動係数が表面付近領域で最も高かったことが関係している可能性があるものの、詳細については今後のさらなる検討が必要である。一方、光沢度との相関係数は 3 部位とも全体的に低いものの、干渉色度と同様に中央領域における相関係数が高かった。

以上のことをふまえ、Ca 結晶 1 層の厚さの計測を行ったサンプル A の 20 検体について、干渉色度の違いに対して真珠層の厚さ、Ca 結晶の厚さ、Ca 結晶厚さの変動係数の各要素にどのような関係性があるか、個別のデータをもとに具体的に比較してみる。Table 2 に示した Case 1 では、真珠層の厚さが同レベルであるにもかかわらず干渉色度が 0.1756 (#12, #14, #16 の平均) と 0.0725 (#13, #15, #17) と差のある検体を比較した。その結果、Ca 結晶の厚さの値は、前者では $0.391 \mu\text{m}$ 、後者では $0.357 \mu\text{m}$ で、変動係数については前者の方が小さかった。Case 2 では、いずれも Ca 結晶の厚さが $0.35 \mu\text{m}$ 程度で、干渉色度が 0.1791 (#16, #19) と 0.0718 (#7, #9, #11, #15) の検体を比較した。その結果、真珠層の厚さは、前者では 1.165 mm 、後者では 0.765 mm であった。Case 3 でも Ca 結晶の厚さが $0.39 \mu\text{m}$ 程度で、干渉色度が 0.2000 (#18, #20) と 0.1060 (#4,

Table 2 Comparison of the intensity of interference color based on the thickness of nacre, thickness of crystal tablet and coefficient of variation of crystal thickness of pearls produced by *Pinctada fucata* (mean value, sample A)

Individual number of pearl sample	Thickness of nacre (mm)	Thickness of crystal tablet (μm)	Coefficient of variation of crystal thickness	Intensity of interference color ($\times 10^{-2}$)
<i>Case 1 (thickness of nacre of the same level)</i>				
#12, #14, #16	0.993	0.391	0.142	17.56
#13, #15, #17	1.003	0.357	0.185	7.25
<i>Case 2 (thickness of crystal tablet of the same level)</i>				
#16, #19	1.165	0.353	0.156	17.91
#7, #9, #11, #15	0.765	0.352	0.200	7.18
<i>Case 3 (thickness of crystal tablet of the same level)</i>				
#18, #20	1.355	0.391	0.150	20.00
#4, #10	0.550	0.387	0.198	10.60

#10)の検体の真珠層の厚さは、それぞれ1.355 mm, 0.550 mmで、干渉色度の高い検体の方が真珠層が厚かった。Cases 2, 3とも、干渉色度の高い検体では、Ca結晶厚さの変動係数も低かったため、干渉色度が優れた要因が真珠層の厚さのみの影響であるとは断定できないものの、上述した重回帰分析の結果もあわせると、干渉色度には真珠層の厚さが大きく影響していることは明確である。以上のCases 1-3の結果は、本研究で得られた真珠層の厚さ、Ca結晶の厚さ、Ca結晶厚さの変動係数と干渉色度の関係に基づいており、本研究結果の合理性が確認された。

一方、光沢についてみると、本研究では真珠層の厚さ、Ca結晶の厚さ、Ca結晶厚さの変動係数のいずれの要素とも光沢度との間ではほとんど相関関係はみられなかった。また、Ca結晶の厚さとCa結晶厚さの変動係数については、真珠層の表面付近領域、中央領域、核近傍領域のいずれの部位でも、同様に相関係数は低く、明確な関係はみられなかった。以上のことから、本研究の条件において、光沢は真珠層の厚さ及び結晶構造による大きな影響を受けないものと考えられた。

和田¹³⁻¹⁵⁾は真珠の光沢度について、表面あるいは表面から15-30 μm までのごく表層の真珠層の構造に影響され、母貝の衰弱や漁場環境によって、表面に光を散乱させるような小さいCa結晶の不規則な沈着や凹凸が形成された場合に光沢が劣ることを報告している。またアコヤガイが形成する結晶の大きさや形状は季節により変化し、低水温期には高水温期に比べて結晶面が平坦で大型のCa結晶が形成され、真珠表面には凹凸が少なくなり光を正反射させるため、光沢が良好となる傾向のあることを示している。本研究で試料としたサンプルA, Bの真珠の光沢度の平均値は、それぞれ0.215 ($n=40$), 0.241 ($n=20$)と同程度であったほか、変動係数も前者では0.166、後者では0.162とほぼ同じであった。これは、両サンプルの真珠については、生産年は異なるも

の、挿核に使用した母貝・ピース貝の系統や、飼育漁場及び真珠の取り出し時期等の養殖履歴が共通していたことが要因の一部になったと考えられる。Ca結晶の厚さの影響に関して、和田³⁾は光沢感の良好な真珠の表面付近を構成している層の厚さは0.35-0.45 μm で、光沢感が低下するほど厚くなり、反射像がぼやけるものでは0.5-0.6 μm となることを報告している。本研究で使用した真珠のCa結晶の厚さは約0.32-0.42 μm であり、和田の研究結果の区分ではすべて光沢の良好なCa結晶サイズの範囲に入るため、光沢度に大きな差が生じることなく、光沢度とCa結晶厚さの明確な相関関係がみられなかった可能性もある。

真珠の干渉色の向上に向けた養殖技術の開発 本研究では真珠層の要素として、真珠層の厚さ、Ca結晶の厚さ、Ca結晶厚さの変動係数が、いずれも干渉色度に影響することを実証した。本研究で使用した真珠サンプルの干渉色度を計測した結果から導かれた、干渉色度が高い真珠とは、(1)真珠層が厚いこと、(2)Ca結晶の厚さが0.4 μm 程度と厚いこと、(3)Ca結晶の厚さの変動係数が小さいことである。これらの知見をもとに、真珠の干渉色の向上に向けた養殖技術について以下に考察する。

本研究の結果、干渉色に及ぼす最も影響の大きい要素は「真珠層の厚さ」(巻き)であると評価されたことから、養殖現場では巻きを厚くする技術の重要性が高いと判断される。アコヤガイによる真珠層の形成は、真珠袋を構成する上皮細胞におけるカルシウム代謝能力に依存し、そのカルシウム代謝能力は、代謝に必要な生体内の物質の供給に関する母貝の生理状態や環境の影響を受けることが報告されている。^{13,15)}したがって、巻きの厚い真珠を生産するには、こうした真珠物質分泌能力に関する生理状態が優れたアコヤガイの養殖技術や育種技術の開発が求められる。

真珠の巻きに関係するアコヤガイの形質としては、母

貝の貝殻重量と真珠の重量に正の相関関係がみられることが報告されている。¹⁶⁾ また筆者らは、母貝の閉殻筋により貝殻を閉じる力である「閉殻力」と生産された真珠の巻きの厚さの関係を調査し、閉殻力が強い個体ほど巻きが厚く、真珠物質分泌能力が優れる傾向がみられることを明らかにした。¹⁷⁾ こうした結果から、挿核用アコヤガイの選抜や閉殻力に基づく養殖管理は、真珠の巻きの改良に有効な技術的対策の一つになると考えられる。挿核施術後の真珠の巻きの増加量は水温による影響を受けることから、増加量の大きい高水温期における養殖管理が特に重要になると考えられる。¹⁸⁾ アコヤガイの真珠物質分泌能力の改良を目標とした育種の可能性については、これまで生産された真珠の真珠層の厚さを指標とした選抜による効果が報告されているほか、^{19,20)} 閉殻力についても遺伝形質であることが確認されている。²¹⁾ これらの知見から、アコヤガイの真珠物質分泌能力は遺伝形質であり、育種による真珠の巻きの改良も有効であると考えられる。

次に、真珠の干渉色に及ぼす重要な要素である「Ca 結晶の厚さ」については、近年、ピース貝及び母貝の貝殻真珠層の Ca 結晶との関係性について研究が進められている。ピース貝では、貝殻真珠層の Ca 結晶の厚さが、それを用いて生産された真珠の Ca 結晶の厚さに反映されることが明らかにされている。^{5,22,23)} また小田原ら²⁴⁾ は、アコヤガイ親子間の貝殻真珠層の Ca 結晶の厚さに強い正の相関関係が認められることから、Ca 結晶の厚さは遺伝形質であり、Ca 結晶の厚さを指標としたピース貝系統の選抜育種や系統管理の実現可能性を報告している。さらにピース貝から採取する外套膜片の部位によっても、生産される真珠の Ca 結晶の厚さとその変動係数が異なることが示されている。²⁵⁾ 一方、Muhammad *et al.*¹⁸⁾ は母貝による影響として、親貝の異なる 2 系統（日本産貝系統、日本と中国系の交雑貝系統）のアコヤガイに挿核した後、真珠の Ca 結晶の厚さと巻きを月別に計測したところ、8 月から 10 月の高水温期において日本産貝系統では、Ca 結晶の厚さ及び巻きとも交雑貝系統の値より有意 ($p < 0.01$) に厚い結果をみている。また藤村, 古丸²³⁾ は、母貝の貝殻真珠層の Ca 結晶とその母貝が生産した真珠の Ca 結晶の厚さには弱い正の相関関係（相関係数約 0.3）が認められたことを報告している。ピース貝と母貝に関するこれらの結果は、真珠の Ca 結晶の厚さ及び巻きがアコヤガイの遺伝的な生理状態により影響される形質である可能性を示唆している。さらに、真珠の Ca 結晶の厚さは、漁場の水温による影響を受けることも考えられる。^{15,18)} これらの結果をふまえ、今後、真珠の Ca 結晶の厚さとピース貝・母貝の生理状態、漁場環境との関係を詳細に検討するとともに、貝の生理状態や環境の特性に基づいた、

真珠の Ca 結晶の厚さをコントロールする挿核・養殖技術及び育種技術の開発が望まれる。

以上、本研究ではアコヤガイ真珠の品質を決定する重要な要素である干渉色について、真珠層の厚さ、Ca 結晶の厚さ及びその変動係数がその強度に影響を与えることを客観的に示した。中でも真珠層の厚さは干渉色に大きく寄与することが明らかとなり、良好な干渉色の発現には真珠の巻きが厚いことが必要な条件となると考えられる。今後は、現在明らかにされている真珠層の厚さと Ca 結晶の厚さをコントロールするアコヤガイの養殖方法や育種の知見をふまえ、干渉色の良好な高品質真珠を効率的かつ安定的に生産するための実用的な技術体系を構築することが望まれる。またアコヤガイが分泌・形成する Ca 結晶の厚さや形状は、上述したとおり水温等の漁場環境の影響を受けることが明らかにされているほか、¹⁵⁾ 近縁種のクロチョウガイ *Pinctada margaritifera* では養殖の水深によっても異なることが報告されている。²⁶⁾ こうした結果もふまえ、上述した技術体系の構築にあたっては環境に応じた適切な技術とする必要がある。一方、光沢については、本研究で実施したヒトの主観的な材質感知覚メカニズムを取り入れた評価手法に基づき、真珠の表面に形成された Ca 結晶の構造と光沢度との客観的な関係について検討するとともに、光沢度の向上に向けた養殖技術を開発することが望まれる。

謝 辞

本研究を取りまとめるにあたり有益なご助言を賜った東京理科大学理工学部の吉岡伸也博士に御礼申し上げます。

文 献

- 1) Kinoshita S, Yoshioka S. Structural colors in nature: The role of regularity and irregularity in the structure. *Chem. Phys. Chem.* 2005; **6**: 1442-1459.
- 2) Kinoshita S, Yoshioka S, Miyazaki J. Physics of structural colors. *Rep. Prog. Phys.* 2008; **71**: 1-29.
- 3) 和田浩爾. 真珠形成機構の生鋳物学的研究. 国立真珠研究所研報 1962; **8**: 948-1059 (in Japanese with English abstract).
- 4) 小松 博. 「真珠に現れる光の干渉現象 (「てり」) の研究」真珠科学研究所, 東京. 2006.
- 5) Odawara K, Ozaki R, Takagi M. Influence of the thickness of the nacreous elemental lamina of the pearl oyster *Pinctada fucata* used as donor oysters on the pearls. *Nippon Suisan Gakkaishi* 2017; **83**: 981-995 (in Japanese with English abstract).
- 6) 青木秀夫, 渥美貴史, 古丸 明. アコヤガイの改良と新しい養殖技術. 「真珠研究の最前線」(淡路雅彦, 古丸明, 船原大輔編) 恒星社厚生閣, 東京. 2014; 23-37.
- 7) 中内茂樹. 熟練者が作り出す質感. 「質感の科学」(小松英彦編) 朝倉書店, 東京. 2016; 142-153.
- 8) Toyota T, Nakauchi S. Optical measurement of interference color of pearls and its relation to subjective quality. *Optical Review* 2013; **20**: 50-58.

- 9) 中内茂樹, 豊田敏裕. 真珠の評価方法及び評価装置, 特許第 5637399 号, 2011.
- 10) Motoyoshi I, Nishida S, Sharan L, Adelson EH. Image statistics and the perception of surface qualities. *Nature* 2007; **447**: 206–209.
- 11) Motoyoshi I. Visual perception of surface qualities and materials. *J. Inst. Image Inform. TV. Engnr.* 2012; **66**: 338–342 (in Japanese).
- 12) Komatsu H. Perception of material and surface quality. *J. Inst. Image Inform. TV. Engnr.* 2012; **66**: 332–337 (in Japanese).
- 13) 和田浩爾. 真珠養殖過程中におけるアコヤガイの生活活動の変化が真珠形成に及ぼす影響Ⅰ. 衰弱した貝での真珠形成. 国立真珠研究所研報 1959; **5**: 381–394 (in Japanese with English abstract).
- 14) 和田浩爾. 真珠養殖過程中におけるアコヤガイの生活活動の変化が真珠形成に及ぼす影響Ⅱ. 表面構造と光沢の季節的变化. 国立真珠研究所研報 1961; **6**: 586–606 (in Japanese with English abstract).
- 15) 和田浩爾. 真珠袋の Ca 代謝機構と真珠の品質形成. 国立真珠研究所研報 1972; **16**: 1949–2027 (in Japanese with English abstract).
- 16) Wada KT, Komaru A. Color and weight of pearls produced by grafting the mantle tissue from a selected population for white shell color of the Japanese pearl oyster *Pinctada fucata martensii* (Dunker). *Aquaculture* 1996; **142**: 25–32.
- 17) Aoki H, Tanaka S, Atsumi T, Abe H, Fujiwara T, Kamiya N, Komaru A. Correlation between nacre-deposition ability and shell-closing strength in Japanese pearl oyster *Pinctada fucata*. *Aquacult. Sci.* 2012; **60**: 451–457.
- 18) Muhammad G, Atsumi T, Sunardi, Komaru A. Nacre growth and thickness of Akoya pearls from Japanese and Hybrid *Pinctada fucata* in response to the aquaculture temperature condition in Ago Bay, Japan. *Aquaculture* 2017; **477**: 35–42.
- 19) 林 政博, 青木秀夫. アコヤガイ母貝の選抜育種による巻き(真珠の厚さ)の改良について. 全真連技術研究会報 2001; **15**: 1–7.
- 20) 林 政博, 青木秀夫. アコヤガイ母貝の選抜育種による真珠の巻きの改良について—Ⅱ. 全真連技術研究会報 2004; **18**: 27–31.
- 21) Ishikawa T, Okamoto C, Hayashi M, Aoki H, Isowa K, Komaru A. The heritability of the shell-closing strength in the Japanese pearl oyster, *Pinctada fucata martensii*. *Aquacult. Sci.* 2009; **57**: 77–82 (in Japanese with English abstract).
- 22) Odawara K, Ozaki R, Takagi M. Characterizing the utility of pearl oysters, *Pinctada fucata*, for piece-oysters and akoya pearls, by measuring nacreous elemental lamina thickness nondestructively. *J. Fisheries Technol.* 2017; **9**: 9–20 (in Japanese with English abstract).
- 23) Fujimura T, Komaru A. The influence of nacreous crystal thickness of donor oysters on interference color appearance and crystal thickness of pearls in *Pinctada fucata* (Japanese pearl oyster). *Nippon Suisan Gakkaishi* 2017; **83**: 971–980 (in Japanese with English abstract).
- 24) Odawara K, Ozaki R, Takagi M. Inheritance and characteristics associated with growth of the thickness of the nacreous elemental lamina of pearl oysters *Pinctada fucata*. *Nippon Suisan Gakkaishi* 2018; **84**: 221–232 (in Japanese with English abstract).
- 25) Liu X, Sato Y, Komaru A, Atsumi T, Awaji M, Yamamoto T, Higuchi K, Iwahashi Y, Nagai K. Characteristics of pearls produced by implantation of different mantle area pieces. *Aquacult. Sci.* 2006; **65**: 61–71 (in Japanese with English abstract).
- 26) Rousseau M, Rollion-Bard C. Influence of the depth on the shape and thickness of nacre tablets of *Pinctada margaritifera* pearl oyster, and on oxygen isotopic composition. *Minerals* 2012; **2**: 55–64.