



Title	ドロノキ材の結晶とその成長
Author(s)	李, 起泳
Citation	北海道大學農學部 演習林研究報告, 45(3), 717-788
Issue Date	1988-06
Doc URL	http://hdl.handle.net/2115/21275
Type	bulletin (article)
File Information	45(3)_P717-788.pdf



[Instructions for use](#)

ドロノキ材の結晶とその成長

李 起 泳*

Crystals and Their Growth in the Wood of

Populus maximowiczii

By

Kiyeong LEE*

要 旨

ドロノキ (*Populus maximowiczii*) は軽軟な材で、生長が早く、最近韓国や日本で多く植栽されているが、材の切削時に刃物の損耗が著しい。それは主に心材中に高い含有率で存在する無機物に起因している。これまでドロノキ心材中の無機物についての研究は極めて少なく、本研究ではSEM観察など多くの手法を用いて、その存在形式、結晶構造、成因及び成長について追究した。その結果、心材中の結晶は接線方向にリング状の配列をとって、道管、繊維状仮道管中に存在し、構造は炭酸カルシウムのカルサイトであることが分かった。この結晶が樹液から生成され、成長する機構に関しては以下のように推測した。まず、ドロノキ心材は、そこに存在する嫌気性ペクチン分解細菌により、壁孔壁等が破壊され、樹液の濃度差による浸透圧ポテンシャルによって水分を呼び込み、いわゆる水食い材になる。次にこの水食い材樹液中のカルシウムが、樹液のアルカリ化、細菌による炭酸ガスの供給及び晩秋の低温の条件により不溶化し、カルサイトの結晶構造をとって次第に成長していく。

キーワード：ドロノキ, SEM, カルサイト, 細菌, 水食い材。

目 次

第1章 緒論	719
1.1 本研究の目的及び意義	719
1.2 研究史	721
1.2.1 結晶の出現	721

1988年2月29日受理 Received February 29, 1988.

* 北海道大学農学部木材理学講座

Laboratory of Wood Physics, Dept. of Forest Products, Faculty of Agriculture, Hokkaido University.

1.2.2	結晶の成長	721
1.2.3	水食い材	722
1.3	ポプラ類について	723
1.3.1	ポプラ類の分類	723
1.3.2	ドロノキ, チョウセンヤマナラシ, ウラジロハコヤナギの組織及び性質	724
1.3.3	ポプラ材の問題点及び利用	725
1.4	本論文の構成	725
第2章	材中の結晶	726
2.1	序言	726
2.2	供試木	728
2.3	実験方法	729
2.3.1	肉眼観察及び軟X線透視	729
2.3.2	光学顕微鏡及び偏光顕微鏡観察	729
2.3.3	走査電子顕微鏡 (SEM) 観察	729
2.3.4	エネルギー分散型X線分析 (EDXA), 波長分散型X線分析 (WDXA) 及び酢酸処理による成分分析	730
2.3.5	X線回折測定	730
2.4	結晶の出現及び分布	730
2.4.1	肉眼観察	730
2.4.2	軟X線透視	730
2.4.3	光学顕微鏡及び偏光顕微鏡観察	731
2.4.4	SEM観察	731
2.5	結晶の形及び大きさ	731
2.5.1	結晶の形	731
2.5.2	結晶の大きさ	732
2.6	結晶の無機成分	732
2.7	結晶の構造	733
2.8	考察	733
第3章	水食い材と結晶との関連	735
3.1	序言	735
3.2	供試木	736
3.3	実験方法	736
3.3.1	軟X線透視	736
3.3.2	光学顕微鏡観察	736
3.3.3	SEM観察	737
3.3.4	エネルギー分散型X線分析 (EDXA)	737
3.3.5	灰分率及び無機成分の定量	737
3.3.6	シュウ酸アンモニウム抽出物の定性と定量	737
3.4	一般的性質と組織特性	737
3.4.1	含水率	737
3.4.2	辺・心材	740
3.4.3	好オスミウム性物質の分布	740
3.4.4	チロースの分布	740
3.4.5	バクテリアの出現	741
3.4.6	壁孔壁, 細胞間層, 細胞壁及びチロース壁等の破壊	742

3.4.7	沈着物の出現及び形態	742
3.5	化学的性質	743
3.5.1	辺・心材の木粉の無機成分の分布及び灰分率	743
3.5.2	沈着物の無機成分	744
3.5.3	シュウ酸アンモニウム抽出物の定性と定量	745
3.6	人工心材の形成と結晶化	746
3.7	考 察	747
第4章	樹液からの結晶生成及び成長	748
4.1	序 言	748
4.2	供試木	748
4.3	実験方法	749
4.3.1	結晶成長のモデル分析	749
4.3.2	顕微鏡観察	750
4.3.3	無機成分定量	750
4.3.4	WDXA 及び EDXA による成分分析	750
4.3.5	酢酸処理による成分分析	750
4.3.6	X 線回折分析	750
4.4	樹液の性質	750
4.5	樹液の季節的変化	753
4.6	樹液からの結晶の成長	754
4.7	樹液からの沈着物	758
4.7.1	光学顕微鏡及び位相差顕微鏡による観察	758
4.7.2	成分分析	758
4.8	樹液から成長した結晶	758
4.8.1	結晶の形と大きさ	758
4.8.2	結晶の無機成分	758
4.8.3	結晶の構造	759
4.9	考 察	760
第5章	総括と結論	761
	謝 辞	763
	文 献	764
	写真説明	769
	写 真	772

第1章 結 言

1.1 本研究の目的及び意義

ドロノキ, スオンハイブリドポプラ, チョウセンヤマナラシ, ウラジロハコヤナギはポプラの中でも数十年前から韓国と日本に沢山造林されている。ドロノキは外形的に通直・大径の良材が得られ, 軽軟な材であるが, むかしから刃物の損耗が著しいと言われていた。ドロノキを走査電子顕微鏡 (SEM) により微細構造の観察を行うと, 心材中の一部に大きな結晶が集中して存在するのが認められる。本研究はこの利用上問題となる結晶を取り上げたものである。

北海道栗山町の王子製紙(株)林木育種研究所ではドロノキの優良個体を選抜し、現在クローニングを行っている[千葉(1976, 1984)]。これらのドロノキの検定林は20年生で直径が30 cmに達し、すぐれたクローンは“北海ポプラ”の名称で商品登録がなされるようにまでなってきた。また、同研究所では有効利用の為パルプ及び加工適性試験も行っている。しかし単板加工ではロータリー切削の障害が起こっている。

刃物を傷める原因は材中に含まれる鉱物質、すなわち、結晶などがその原因であると考えられることができる。ポプラ類の材中の結晶についての日本及び韓国における研究は殆ど皆無であり、島地(1976)によるとドロノキはかなすじがあるとのみ記述されている。しかしながらCLEMENTら(1973)は28樹種のポプラ類について広範に結晶の有無を節に分けTable 1のように報告した。

ドロノキは日本や韓国に広く分布しているのに、前述のように利用の段階で刃物を傷める結晶についての報告が殆ど皆無であるのは、驚くべきことである。また著者が研究を初めて学会に発表したときも、ドロノキの結晶は問題があるほど存在しないと主張する学者も認められた。

本研究では、ドロノキのほかチョウセンヤマナラシ、ウラジロハコヤナギ等を供試木とした。ヤマナラシ属は、人工雑種も有り早成樹種として今後、大いに取り上げられるべき樹種と思われる。

研究の経過をたどると次のとおりである。

1. ドロノキ、チョウセンヤマナラシ、ウラジロハコヤナギの組織構造観察及び樹種の比較調査(主としてSEM観察)。
2. ドロノキを中心にして結晶の分布、形、成分分析を行い、その性質を明らかにした。
3. ドロノキで問題になるのは心材にある結晶、特に道管及び繊維状仮道管の内腔に沢山存在する結晶である。この心材結晶と水食い材形成との関連について、チロース、バクテリア、壁孔壁の破壊、心材物質などについて観察した。
4. バクテリアと水食い材の関連を問題にし、また、辺心材樹液からの結晶の生成と成長について考察した。

以上のように本論文では主としてドロノキの水食い材中の結晶について研究し、その存在状態、性質、形成についてほぼ明らかにした。研究を進めるうちで、ドロノキの水食い材の結晶はバクテリアの関連が大きいことを明らかにしたことは、今後の心材形成、水食い材とバクテリアの関係の研究に大きな示唆を与えると考えられる。SACHSら(1974)とSCHINK(1981)は培養とSEM観察によりポプラとニレの水食い材の成因は、道管放射組織間壁孔壁を破壊し腐食したバクテリアによると結論を下した。ペクチンを分解する*Clostridium* sp.と窒素固定力のある*Erwinia* sp.の2つのタイプのバクテリアはポプラとニレ樹木の水食い材の中にたくさんあると報告した。MURDOCH(1983, 1987)はニレの水食い材について報告し“Bacterial

wetwood” という用語を用いている。

本研究ではドロノキのほかチョウセンヤマナラシとウラジロハコヤナギについてしか言及していないが、研究史及び属の記述でも述べられている通り、節あるいは樹種についてももっと多くの研究が必要である。今後これらの研究を進めるに当たっても、本論文の結果は大きな意義があると思われる。

1.2 研究史

1.2.1 結晶の出現

材中にある結晶の出現及び成分分析については多くの報告がある。

須藤 (1970) のテキストには木材の細胞中にはシリカのほか炭酸石灰、シュウ酸石灰などの鉱物質が認められることがあり、シリカは南洋材の多数の科と属の放射組織、軸方向柔細胞、木部繊維、道管などの中に認められ、それが存在する細胞は種、属、科などにより差があり、それぞれの特徴となること、また温帯産にはシリカが認められないと記述されている。

CHATTAWAY (1956) は 40 科 182 属 678 種の熱帯材の柔細胞の中にある結晶について報告した。

平田、佐伯、原田 (1972) は熱帯材の柔細胞に存在するシリカ及びシュウ酸カルシウムを SEM により報告した。

GRAY, DE ZEEUW (1980) はアフリカ材のカルシウムとシリカの結晶について、RICHTER (1980) はフィリピンの Lauraceae の材中のシリカについて、MENNEGA (1983) は世界の Menispermaceae の道管にあるシリカについて、SAIKI (1985) は東南アジアの熱帯材 (15 科, 22 属, 41 種) のシリカについて観察、報告した。

FURUNO, CÔTÉ (1983) はパプアニューギニアの熱帯材を軟 X 線, SEM, EDXA 等を用いて放射柔細胞, 軸方向柔細胞にあるシリカの結晶について報告した。

SCURFIELD (1973) は *Populus deltoides* と *Polythia* sp. の炭酸カルシウム及びその他の材中 (熱帯材含む) にあるシュウ酸カルシウム等について、PARAMESWARAN (1979) は Spruce の材中の結晶を SEM により観察し、KELLOGG, ROWE (1982) は Hemlock の styloid 結晶について、WATTENDORFF (1978) は *Acacia senegal* の木部及び師部にあるシュウ酸カルシウムの結晶について報告した。

1.2.2 結晶の成長

著者らは本論文で樹液からの炭酸カルシウムの結晶の生成及び成長について試験管内 (in vitro) で調べ、バクテリア、無機イオン、pH、温度等の影響について記述した。黒田 (1984) は結晶成長というのは、熱力学的駆動力を受けて、気体、融液、溶液といった原子配列の乱れた環境相の中に秩序構造を持った結晶相が現れ、成長する現象であり、結晶成長には核生成及び成長機構などが問題であると記述している。

しかし、樹木細胞中の炭酸カルシウムの結晶の成長について木材関係者の研究は見つから

ない。したがって結晶成長については他の物理学部門、微生物学部門及び日本、オランダ等の結晶成長の専門誌の報告を参照した。RABIGERら(1951), IMAMURA(1954), TOGARIら(1955), MAYER(1979, 1984)は水溶液から試験管内で時間の経過, 温度, 濃度, 無機イオンなどによる炭酸カルシウムの成長及び構造等について報告している。和田(1985)は結晶の生成及び添加的石灰化の結晶形成, 季節(湿度)による二枚貝殻石灰の成長について, 七里(1985)は18種類の動物について研究し(その内イヌ, 鳥, カメ, カエル, 魚にはアラゴナイト及びカルサイト構造の炭酸カルシウム結晶が成長された), 血液やリンパ液のように恒常的にはほぼ一定の濃度を保っていると思われる溶液中で成長している結晶を取り上げ, 平衡石の成長時の形と成長速度, 結晶構造, 内リンパ液の過飽和度等について記している。更にそれらの成長と試験管中での炭酸カルシウム結晶の成長とを比較して平衡石の成長機構について考察した。SHICHIRI(1986)は金魚の平衡石について研究し, 時間の経過による結晶の出現, その結晶は炭酸カルシウムでアラゴナイトの構造であり, 微量のカルサイトの構造を含んでいたことを報告している。MONAGHAN, LYTLE(1956)は海水から蒸発, 沈澱物の付加, 黄酸塩を還元するバクテリアの増殖により炭酸カルシウムの結晶が海水から沈澱すると述べた。TALAIKOVA(1952)は結晶を形成するバクテリアを土壌から用いて, 大麻の根中のバクテリアによる炭酸カルシウムの結晶の沈澱について報告した。LOWENSTAM(1981)は炭酸カルシウム及びシリカは有機物により形成すると報告した。

一方シュウ酸カルシウムの結晶についてみると, 菌糸によるシュウ酸カルシウムの結晶の沈澱についてはCHATTAWAY(1952)により19科52属の心材から報告され, MUHAMMAD, MICKO(1984)はAspenの腐朽によるシュウ酸カルシウムの蓄積について報告した。

CODY(1982)は試薬を用いてpH, 時間の経過によるゲル状の凝集によるシュウ酸カルシウムの結晶の析出について報告した。

また, シリカの結晶化についてSCURFIELDら(1974)はSEMを用いて熱帯産の木材の結晶生成について観察し, 結晶化とは水溶液からの結晶物質の沈着と生長であり, コロイドの凝集によると考えられると報告した。

佐伯(1985)はシリカを粒子, 塊り, シリカの粒, ガラス状シリカ, 混合シリカ質の沈着物に分類した。また, シリカの粒は柔細胞の液胞の中で形成され, ケイ酸溶液はシリカ粒になる前, 隣接した細胞すなわち, 道管, 繊維に排泄または分泌すると溶液からの水の減少とともにガラス状シリカまたは沈着物として細胞壁に沈着されると報告した。

雪, 水晶, 氷等の結晶生長に関する全般的なことは黒田(1984)により結晶成長のアウトライン, 核の生成, 結晶の成長機構, 結晶の平衡形などについて詳しく報告されている。

1.2.3 水食い材

水食い材は英語ではwetwoodであり, 何らかの原因で生ずる高い含水率を持つ心材である。原因は樹種により異なり, いくつかの説がある。

Populus, *Ulmus* の水食い材については KNUTSON (1972), SACHS ら (1974), TIEDEMANN, BAUCH, BOCK (1977), SCHINK, WARD, ZEIKUS (1981 a, b), SCOTT (1984) 等により研究され、嫌気性ペクチン分解バクテリア (*Clostridium* のような) は道管に多く観察され、道管放射組織間壁孔壁、細胞間層、チロースバット等を分解させ水食い材を形成すると報告した。微生物学のテキストによると *Clostridium* は一般的な土壌微生物であり、淡水、塩水両水系の嫌氣的沈澱物中ではきわめてありふれている。これらの場所では、これはタンパク質やセルロースのような複合多糖を含む有機分子の初期分解に関与する主要微生物である。この *Clostridium* による発酵によって多種類のガス (特に H_2 と CO_2) と有機最終生産物が生成すると記載されている。

針葉樹の *Abies* は樹種により異なるが、トドマツの水食い材について PASSIALIS, TSOUIMIS (1984) は水食い材中に細菌の存在は認められなかったと報告した。また、トドマツの水食い材は凍裂の原因となることが知られている (石田 1966)。

その他、水食い材については、無機物と関連があると言う WORRAL, PARMETER (1982), FUKAZAWA ら (1985) の報告と、早材仮道管有縁壁孔壁の閉鎖によるとの BAUCH ら (1975), NOBUCHI, HARADA (1985) の報告等がある。石井ら (1987) はトドマツの水食い材についてバクテリアは余り関与せず、心材中の無機成分による浸透圧が水食い材発生の原動力となると推論している。

1.3 ポプラ類について

1.3.1 ポプラ類の分類

平井 (1980) によるとポプラ類はヤナギ科 (Salicaceae), ヤマナラシ属 (Genus *Populus*) の植物の総称で、北半球の温帯から亜寒帯にかけて約 30 種があり、英名で poplar, aspen, cottonwood, 独名で Pappel である。

日本の北海道で天然に分布するポプラとしてはチョウセンヤマナラシとドロノキがある。また、北海道栗山町の王子製紙(株)林木育種研究所では多くの交雑種を手掛けている。これらのドロノキを“改良ドロノキ”と呼んでいる (千葉 1984)。ドロノキは北海道主要早成樹種の 1 つで最近盛んに植栽されている。

韓国では韓国の玄が交雑開発したスオンハイブリッドポプラ (*Populus tomentiglandulosa* T. LEE) すなわち、スオンチョウセンヤマナラシとウラジロハコヤナギの交雑樹種がある。また、イタリヤポプラ (*Populus euramericana* GUINIER) が主要早成樹種として沢山造林されている。ヨーロッパでは black poplar 系の交雑種が名高い。

ヤマナラシは次のように大別する (HORA, 1981)。

第 1 は、Leuce sect. (ヤマナラシ節) で、white poplars と呼ばれるギンドロ、オオヤマナラシ等と、trembling aspen と呼ばれる日本産のヤマナラシ、チョウセンヤマナラシ、アメリカヤマナラシ、ヨーロッパヤマナラシと 2 つに細分されることがある。

第2は、Aegiros sect. (クロヤマナラシ節) で black poplars と呼ばれるヨーロッパクロヤマナラシ、セイヨウハコヤナギ、cotton wood と言っているアメリカクロヤマナラシなどである。

第3は、Tacamahaca sect. (ドロノキ節) で balsam poplars と呼ばれ、日本のドロノキ、韓国のチリメンドロ、中国のテリハドロ、アメリカのバルサムポプラ等である。

第4は、Leucoides sect. で chinese necklace poplar 等の4つの樹種の小さい節である。

第5は、交雑節 (Hybrides sections) 特にポプラ類は交雑種が多い。例えば、*P. nigra* × *P. alba*, *P. maximowiczii* × *p. berolinensis* 等である。

1.3.2 ドロノキ、チヨウセンヤマナラシ、ウラジロハコヤナギの組織及び性質

ドロノキ (*Populus maximowiczii* A. HENRY)

ドロノキ節に属し、名称はドロ、ドロノキ、ドロヤナギ、ドロボウ、デロと呼ばれ、ドロという名のもと材が泥のように柔らかいことによるといわれている。北海道では材を扱う場合に、普通ヤマナラシの方をワタドロと称し区別する (平井 1980)。

散孔材で辺材は淡黄白色、心材はくすんだ淡褐色、ときに同心円状の不明瞭な濃淡のむらを示す。多湿心材で、全細胞の種類に炭酸カルシウムの結晶を含み、これらの結晶は着色心材の色むらの所に多い傾向があった。辺材には結晶がほとんどない。構成要素は道管要素、繊維状仮道管、軸方向柔細胞、放射柔細胞である (李ら, 1985)。道管要素間は単せん孔である。軸方向柔細胞には著しいターミナル柔細胞があって、通常放射方向に1~2細胞層である。放射組織は単列のものばかりでほとんど目立たず、また平伏細胞のみからなる同性放射組織である。また、しばしば休眠芽の組織とピスフレック (髄斑) を含む。

チヨウセンヤマナラシ (*Populus tremula* L. var. *dauriana* SCHNEIDER)

ヤマナラシ節に属し、散孔材である。平井 (1980) によるとヤマナラシは心材に相当する部分でも材の色がほぼ白いのでシロドロ、一方、ドロノキはうす黒い心材があるのでクロドロと称して区別することもある。植物分類学上ではヤマナラシと別の種類とされるが、材の利用上では全く区別されない。

一般には辺材と心材の区別がないと記述されることが多いが、今回供試木の中には、クローンにより不規則な着色心材が見られるものと、見られないものがある。着色心材が見られるものは辺・心材の区別が明瞭であり、辺材は淡黄白色、心材はくすんだ淡褐色で、ときに不明瞭な濃淡のムラを示す。着色が見られないのは辺心材の区別が不明瞭で、辺材は淡黄白色、心材は淡褐色を示す。また、着色心材は水食い材で部分的に結晶があったが、着色がみられない心材と辺材には殆どない。ただし、辺材も部分的に着色斑点がある部分のみ含水率が高く結晶があった (李ら 1985)。構成要素はドロノキと同様である。また、時にピスフレックが認められた。

ウラジロハコヤナギ (*Populus alba* LINNAEUS)

ヤマナラシ節に属し、名称はウラジロヤナギ、ウラジロハコヤナギ、ギンドロ、ハクヨウと呼ばれる。

散孔材であり、辺材は淡黄白色で、心材は黄～黄褐色である。結晶は辺・心材関係なく、着色されたピスフレックの一部柔細胞で認められた(李ら 1985)。構成要素、道管の管孔とその配列分布はドロノキ、ヤマナラシに似ている。ターミナル柔組織が有り、放射組織は単列で同性である。一般的にピスフレックが多く、その頻度はクローンにより異なり、またピスフレックが非常に多いものは心材率も高かった。

1.3.3 ポプラ材の問題点及び利用

加工は容易であるが、樹種とクローンにより切削の時刃物を傷め加工上問題があるものもあり、ケバ立ちが出やすいので表面仕上げはきれいになりにくい。乾燥は容易、耐朽性は低く、変色もしやすく、強度も劣る。

これらのポプラ類は庭園樹、街路樹用のほか、生長が早いので早成樹種として盛んに植栽され、交雑種も多く作られている。パルプ材のほか、材としての利用はベニヤ、割箸、折箱、マッチ軸木に用いられる。千葉(1985)によるとドロノキはパルプ材としては問題がないが付加価値を向上する為いくつかの加工適性試験を行っているという。

1.4 本論文の構成

本論文の構成と概要は以下のとおりである。

第2章では、ポプラ材を切削する時刃物を傷める原因は材中にある結晶であることを明らかにした。更に3樹種の材及び樹皮の中にある結晶の構造、形、大きさ、分布、成分などを明らかにした。

第3章では、1)含水率、木材と樹液の一般的な性質。2)材の構造、好オスミウム性物質の分布、チロースの分布、バクテリアの出現、壁孔壁・細胞間層・細胞壁・チロース壁の破壊、沈着物等の解剖学的性質を研究対象にして明らかにした。3)灰分率、無機成分、シュウ酸アンモニウム抽出物の定性と定量等を行った。4)コア採取により人工的に生じた心材(水食い材)について、結晶の形成及び形成時期などを観察した。

第4章では、辺・心材の樹液の性質を明らかにした後、炭酸カルシウムの結晶成長との関連について辺・心材から樹液を搾って、その樹液を用いて無菌、温度、無機物の濃度、pH等の変化による結晶の生成・成長、バクテリアの増殖等を観察し、また樹液から析出された結晶の構造・成分などは材中にある結晶と同じことを確認した。

第5章では、以上の結果を要約し、総合的に考察し結論とした。

第2章 材中の結晶

2.1 序 言

ポプラ類の材中にある結晶についての日本及び韓国における研究は殆ど皆無である。しかしながら、CLEMENTら(1973)はポプラ類の材中にある結晶の有無について節に分け報告した(Table 1)。彼らは Leuce 節の材中のみ結晶がないと報告したが、著者ら(1985)は Leuce 節に属するウラジロハコヤナギの材中にも結晶が存在することを確認した。著者ら(1985)は、

Table 1. The presence of crystals in woody tissues of *Populus* spp *

Section	Species	Crystal
Leuce	<i>P. alba</i>	—
	<i>P. x. canescens</i>	—
	<i>P. grandidentata</i>	—
	<i>P. tremula</i>	—
	<i>P. tremuloides</i>	—
	<i>P. tremula x tremuloides</i>	—
Aegiros	<i>P. nigra</i>	+
	<i>P. deltooides</i>	+
	<i>P. x. euramericana</i>	+
Tacamahaca	<i>P. angustifolia</i>	+
	<i>P. candicans</i>	+
	<i>P. koreana</i>	+
	<i>P. laurifolia</i>	+
	<i>P. maximowiczii</i>	+
	<i>P. simonii</i>	+
	<i>P. szechuanica</i>	+
	<i>P. tacamahaca</i>	+
	<i>P. trichocarpa</i>	+
	<i>P. yunnanensis</i>	+
	<i>P. maximowiczii x trichocarpa</i>	+
Leucooides	<i>P. lasiocarpa</i>	+
Hybrides	<i>P. acuminata</i>	+
	(<i>angustifolia x sargentii</i>)	
	<i>P. certinensis</i>	+
	(<i>nigra' italica' x laurifolia</i>)	
	<i>P. generosa</i>	+
	(<i>deltoides x trichocarpa</i>)	
	<i>P. jackii</i>	+
	(<i>deltoides x balsamifera</i>)	
	<i>P. manitobensis</i>	+
	<i>P. maximowiczii x berlinensis</i>	+
<i>P. nigra x alba</i>	+	

+ : presence - : absence

* CLEMENT A. and JANIN G (1973)

後述のようにドロノキ、チョウセンヤマナラシ、ウラジロハコヤナギには3樹種とも結晶は存在するが、樹種とクローンにより結晶の種類、出現頻度、分布、存在細胞等は異なることを明らかにした。

樹木で結晶が見られる細胞は多室結晶細胞、通常の細胞、鎖状結晶細胞、異形細胞に分かれる。またこれらの結晶細胞の中に含まれる結晶は、シュウ酸カルシウム、炭酸カルシウム、シリカであり、その形は柱晶、砂晶、集晶、束晶に分けられる。

CHATTAWAY (1955) によると、木本植物の結晶は次の6種類に分類されている。そのうち(2)-(6)の5種類は国際木材解剖用語集 (1964) にもっている。

- 1) Rhomboidal: 方形またはダイヤモンド型の結晶で全ての結晶のなかで最も一般的な形である。
- 2) Druse (集晶): 結晶の球状の集まりで往々有機物の芯を持ち、柄によって細胞壁に付着するかあるいは細胞内に遊離している。
- 3) Crystal sand (砂晶): 非常に細かい結晶の粒状の集まり。
- 4) Styloid(柱晶): 典型的にはおおよそ長さが幅の4倍ぐらいの細長い結晶で、先端が尖るかまたは四角ばっている。
- 5) Acicular (針晶): 細かい針状の結晶

Table 2. Description of sample trees

Species	Sample trees No.	Origin	D.B.H. (cm)	D.H (cm)	Height (m)	Age (year)	Time of felling
<i>P. maximowiczii</i>	D 1	kuriyama	25	13	22	20	1983, 12
"	D 2	"	23	14	23	20	"
"	D 3	"	13	8	19	20	"
"	D 4	"	18	9	20	16	1985, 6
"	D 5	"	28	15	25	23	1987, 3
"	D 6	"	26	13	—	23	1987, 8
"	D 7	Kameyama	15	7	—	22	1987, 3
"	D 8	Hiyama	15	13	10	13	1984, 9
"	D 9	Oketo	12	7	—	17	1985, 11
"	D 10	Biei	14	7	—	17	"
"	D 11	"	14	7	—	17	"
"	D 12	Tomakomai	15	9	—	18	"
"	D 13	"	12	6	—	18	"
<i>P. tremula</i> v. <i>dauriana</i>	Y 1	Kuriyama	10	6	11	16	1985. 6
"	Y 2	"	18	5	16	16	"
<i>P. alba</i>	A 1	Tomakomai	15	6	—	14	1983, 5
"	A 2	Kuriyama	22	20	18	16	1983. 8

D.B.H. : diameter at breast height

D.H : diameter of heartwood at breast height

6) Raphides (束晶) : 針状の結晶で, 典型的には密集した束状をなす。

2.2 供試木

供試樹種はドロノキの外チョウセンヤマナラシ, ウラジロハコヤナギである。

供試木の概要は Table 2 のとおりである。

ドロノキの供試木は北海道王子製紙(株)林木育種研究所 (D1, D2, D3, D4, D5, D6, D7), 北海道大学檜山地方演習林(D8), 北海道林木育種場提供(D9, D10, D11, D12, D13)の総計13本を使用した。これらの供試木は以下の3つの目的により採取した。

1) 結晶の出現を比較するため, 成長が良くて心材が多いクローン (D2), 心材が少ないクローン (D1) 成長が悪いクローン (D3) を使用した。

2) 産地による結晶の出現を調べるためには, 北海道の栗山6本 (D1, D2, D3, D4, D5, D6), 檜山1本(D8), 苫小牧2本(D12, D13), 美瑛2本(D11, D12), 置戸1本(D9)と三重県の亀山1本 (D7) 等から採取した。

3) 季節による無機物の変動を調べるためには, 3月 (D7), 6月 (D4), 9月 (D8), 12月 (D1) に採取した。

Table 3. Experiments

Species	Sample trees No.	Experiments
P.m.	D 1	MC, Soft X ray, LM, SEM, EDXA, WDXA, Acetic acid, X ray diffraction, minerals
"	D 2	MC, Soft X ray, LM, SEM, EDXA, WDXA, Acetic acid, X ray diffraction
"	D 3	MC, Soft X ray, SEM, EDXA,
"	D 4	MC, Soft X ray, Minerals, SEM,
"	D 5	MC, Soft X ray, LM, PM, SEM, EDXA, WDXA, Acetic acid, X ray diffraction Qualitative and quantitative of ammonium oxalate, Crystal growth from the sap
"	D 6	MC, Soft X ray, Minerals, SEM,
"	D 7	MC, Soft X ray, Crystal growth from the sap, Minerals
"	D 8	MC, Soft X ray, LM, SEM, EDXA, Crystal growth from the sap, Minerals
"	D 9	MC, Soft X ray,
"	D10	MC, Soft X ray,
"	D11	MC, Soft X ray,
"	D12	MC, Soft X ray,
"	D13	MC, Soft X ray,
P. d.	Y 1	MC, Soft X ray, SEM, EDXA, Acetic acid, Minerals
"	Y 2	MC, Soft X ray, SEM, EDXA, Acetic acid, Minerals
P. a.	A 1	MC, Soft X ray, SEM,
"	A 2	MC, Soft X ray, SEM, EDXA, Acetic acid, Minerals

P. m. : *P. maximowiczii*
P. d. : *P. tremula* v. *davidiana*
P. a. : *P. alba*

MC: moisture contents
LM: light microscope
PM: polarized light microscope

チョウセンヤマナラシは北海道栗山王子製紙(株)林木育種研究所から1985年6月に2本(Y1, Y2)を伐採した。そのうち栗山の林木育種研究所からのチョウセンヤマナラシはクローンにより心材に着色が見られるもの(Photo 58)と見られないもの(Photo 59)があった。成長錐で検査した上それぞれ1本ずつを供試木とした。

ウラジロハコヤナギは北海道大学苫小牧演習林から1983年8月に心材が少ないもの1本(A1)と栗山の王子製紙(株)林木育種研究所から1985年6月に心材が多いもの1本(A2)、計2本を採取した。

実験内容により供試木を整理するとTable 3のとおりである。

2.3 実験方法

2.3.1 肉眼観察及び軟X線透視

肉眼では材色、着色むら、結晶等について観察した。

大きな結晶の存在及び配列をマクロにみるためには主に軟X線による円板撮影に頼った。

全供試木は各地上高別に円板直径(長さ)×5 cm(幅)×5 mm(厚さ)の横断面の試料を採取し、または胸高部位の5 mmの厚さの横断面の円板及び5 cm(横)×10 cm(縦)×5 mm(厚さ)の板目面、柁目面の試料を凍結状態で鋸断した。これらは肉眼及び実体顕微鏡により材色及び結晶の観察、写真撮影等に供した。軟X線撮影は生材と気乾材の状態で行った。撮影には当木材理学講座の軟X線装置(Softex IE型)を使用した。撮影条件はX線源から試料までの距離100 cm、管電圧15 kV、管電流5 mA、照射時間2 minである。他にソフテックス(株)映像研究所で、TVカメラモニターシステム(Softex TV-PbO-1システム)により観察及び撮影を行った。撮影条件はSoftex CMB-2型、距離60 cm、管電圧17 kV、管電流3 mA、照射時間3 minである。

2.3.2 光学顕微鏡及び偏光顕微鏡観察

結晶の出現は光学顕微鏡ではよく見えないが、偏光をかけると結晶の観察が容易である。薄切片で結晶と周囲の細胞との関連を見るため次の実験を行った。

光顕用(厚さ20 μm の切片)にはドロノキ(D1, D2, D5, D8)、チョウセンヤマナラシ(Y1, Y2)、ウラジロハコヤナギ(A)等を用いて観察した。厚さ2 μm の薄切片用の光顕及び偏光顕用の試料はドロノキ(D5)を生立木の時、胸高部位から生長錐で直径1 cmのコアを形成層から髓まで1986年6月と8月、1987年1月に採取した。直ちに、3%のグルタルアルデヒドで固定後、一辺1~3 mmのブロックとし、リン酸緩衝液で洗浄した後、1%四酸化オスミウム溶液で再び固定、アルコールシリーズで脱水、エポキシ樹脂で包埋した。次にガラスナイフを装着したSorvall JB-4 ミクロトームで厚さ2 μm の横断面薄切片をつくり、サフラニンで染色して観察した。

2.3.3 走査電子顕微鏡(SEM)観察

結晶の形及び大きさなどを観察するため、各供試木(D1, D2, D3, D4, D5, D6, D8,

Y1, Y2, A)の地上高1.3mまたは2.3mから6m(横)×6mm(縦)×1mm(厚さ)の試料を形成層から髓まで柁目面,板目面,横断面を採取した。1)室内乾燥(結晶観察用試料),2)50%の酢酸に2~3時間浸してから水洗,室内で乾燥等をして(結晶の成分分析用),炭素と金の二重蒸着をした後当木材理学教室設置のSEM(JSM-35CFII)によって加速電圧15kVで観察した。

2.3.4 エネルギー分散型X線分析(EDXA),波長分散型X線分析(WDXA)及び酢酸処理による成分分析

結晶の無機イオンの点・面分析及び結晶の成分分析のため,EDXA用の試料(供試木No;D1, D2, D3, D5, D8)を作成した。室内乾燥,炭素蒸着して,日本電子のSEMの付属のEDXAによって点分析を行った。WDXA用の試料もEDXAの試料と同じ方法でCa, O, Cについて,同上SEM付属のWDXAによって面分析を行った。

EDXAにより材中に存在する結晶の主成分は後述のようにCaであることがわかり(Fig. 1),またシュウ酸カルシウムは酢酸に溶けないが炭酸カルシウムは溶けることから〔化学大辞典(1983),化学便覧(1966)],肉眼でも結晶が見えるSEMの試料を実体顕微鏡で確認して50%の酢酸に1分ほど浸した後,SEM及び偏光板をかけて結晶の有無を調査した。

2.3.5 X線回折測定

結晶構造の解釈は,新潟大学谷口教授に供試木D2の胸高部位を依頼した。細胞中の沈着物の存在を光学顕微鏡で確認した後,切片を紙製ホルダーにはさみX線回折分析に供した。分析はX線発生装置(理学電機㈱)ロータフレックスRu-300BUB型,Cu対陰極,Niフィルター使用,55kV,150mA)に設置した微小領域X線回折装置(MJ200DD5,30 μ mコリメータ)によって,透過回折線を写真法またはデフラクトメータ法で測定した。また,筆者は北海道大学工学部のX線回折装置(理学電機㈱)ガメガーフレックス,出力30kV,20mA)を用いて追試験を行った。

2.4 結晶の出現及び分布

2.4.1 肉眼観察

結晶の出現及び分布は樹種により異なる。ドロノキの心材の一部には肉眼でも注意してみると横断面では白い点,縦断面では白い線として確認でき,結晶を含むことが推定できる。

2.4.2 軟X線透視

横断面の軟X線写真の密度による判別で,ドロノキはどの供試木のどの地上高でも辺材にはなく,心材の中にリング状の着色されたムラにそって黒い点として局所に集中して,その出現頻度は髓に近い部位が多かった。縦断面で黒い線として見えるのは,後述のように主に道管内に結晶が連続してたくさんあるものである。

ドロノキの軟X線の写真から,軟X線が認められる結晶の出現及び分布をまとめると次の通りである。

- (1) 結晶は辺材に存在せず心材にある。
- (2) 年輪に沿って接線状に並ぶことが多い。
- (3) 心材中の着色ムラに沿って局所的に集中することがある。
- (4) 1つの年輪の中では晩材より早材に多い傾向がある。
- (5) 髓に近い部位に多い。1本の幹のなかでは地上高下部の古い材部に多く見いだされた。

チョウセンヤマナラシ (Y1) では着色心材とチョウセンヤマナラシ (Y2) 辺材も着色斑点があるところの一部に結晶が認められた。しかし、チョウセンヤマナラシの着色心材の結晶の出現頻度はドロノキの着色心材の結晶よりは少ない。一方、ウラジロハコヤナギは軟 X 線の写真では結晶が認められなかった。

2.4.3 光学顕微鏡及び偏光顕微鏡観察

細胞の内こうにある結晶は染色剤に染められず、光学顕微鏡ではよく見えないが(Photo 9, 11), 偏光をかけると結晶は白く光り、横断面の分布、すなわち、結晶が存在する細胞の種類及び細胞中での結晶の位置の観察が容易である(Photo 10, 12)。横断面の薄切片によりドロノキの放射組織中の結晶は量的に少ないが、道管と接している部位の一部に存在することが本法により明らかになった。

2.4.4 SEM 観察

軟 X 線の写真で黒線として認められた部分は細胞内腔に結晶がたくさんあることによることが分かった。ドロノキの材中の結晶は心材の全種類の細胞(道管要素, 繊維状仮道管, 放射柔細胞, 軸方向柔細胞, 休眠芽組織の柔細胞)の中に認められた(Photo 13~19)。しかし大部分の結晶は心材の着色濃い一部分のチロースがない道管と繊維状仮道管に存在した。しかし、チロースがある道管には非常に少ない。辺材中の結晶は低倍率では殆ど見えなく、存在しても道管, 繊維状仮道管, 柔細胞でのように1つあるいは数個がまばらに存在した(Photo 13)。チョウセンヤマナラシの材中の結晶は前述のとおり(Y1)では着色心材と、(Y2)では辺材の着色斑点の一部に多く認められたが、チロースがある道管に結晶が多い傾向があった(Photo 22)。以上の着色心材の結晶は細胞の内壁に散在, 固まり, 集まりまたはこれらの集まりが細胞の内壁に1つの層あるいは細胞の内壁にいっぱい集まっている等で多様であった(Photo 14~19, 22)。軟 X 線の横断面の写真では結晶の集まりが細胞の内壁に1つの層あるいは多量に集まっているのが、黒い点として現れた(Photo 1, 2, 5, 6, 56, 57)。

ドロノキ, チョウセンヤマナラシ, ウラジロハコヤナギの3つの樹種とも異常細胞すなわち、着色されたピスフレック及び休眠芽の組織の柔細胞の一部に結晶が認められた(Photos 23, 24) これらの結晶は辺・心材に関係ない傾向があった。

2.5 結晶の形及び大きさ

2.5.1 結晶の形

ドロノキの辺材中の結晶は1つあるいは数個の集団として存在していた(Photo 13)。また

ゲル状のような沈着物におおわれた不定形状の塊まりになっていた。これらの辺材中の結晶の出現頻度は非常に少ない。心材中の結晶は比較的辺材の結晶よりとがっていはっきりした結晶の形が多い。形は砂晶、方形、おおむね幾何学的な形、すなわち、方形と方形または方形と砂晶等の結晶が付着していろいろな形になって細胞の内壁に塊まり (Photo 14~18)、全面に1つの層及び内こうにいっぱい集まっていた (Photo 19)。非常に少ないながら針晶、束晶も認められた (Photo 18)。軟 X 線写真にも認められる道管あるいは繊維状仮道管の内壁に1つの層またはいっぱい集まっているものは、殆どこれらの結晶である。砂晶は細胞の内壁にちらばってあるいは塊まりになっている。休眠芽組織とピスフレック等の異常組織にまれに方形の結晶の固まり (Photo 23) と集晶等が認められた。

2.5.2 結晶の大きさ

これらの結晶の大きさは $1\ \mu\text{m}$ から数十 μm ほどであり、その中の砂晶は数 μm 以下の細かい結晶である。

2.6 結晶の無機成分

EDXA によりドロノキの道管中にある結晶あるいはこれらの集合についての点分析を行った結果、結晶の主成分はカルシウム (Ca) であり、また時々わずかにマグネシウム (Mg)、カリウム (K)、ケイ素 (Si)、リン (P) 等が検出された (Fig. 1)。

ポプラ類の材中にある Ca は炭酸カルシウム (CaCO_3) であるという報告 (JANIN, 1972) とシュウ酸カルシウムであるという報告 (MUHAMMAD, 1984) がある。化学大辞典 (1983) 及び日本化学会 (1966) のテキストにより、炭酸カルシウムは酢酸に溶けるが、シュウ酸カルシウムは溶けないことを引用して上記のことを調べた。結晶が多数ある1つの試料を半分に分けて、無処理と酢酸処理したものを SEM で観察した結果を Photos 19, 20 に示す。低倍率で見ると、無処理では Photo 19 のように2, 3の道管には結晶がよく見えるが、酢酸処理したものは Photo 20 のように結晶がなくなって細胞の内壁が比較的きれいに見えた。またピスフレック及び休眠芽組織の柔細胞の一部に存在する結晶は酢酸処理した結果、その中でも金平糖状の結晶は残っていた (Photo 24)。これらのことから心材中にある砂晶、方形及びおおむね幾何学的な不定形状である結晶等の主成分は炭酸カルシウムであり、辺材にあるピスフレックと休眠芽組織の柔細胞に存在する金平糖状である集晶の主成分はシュウ酸カルシウムであることが確認された。

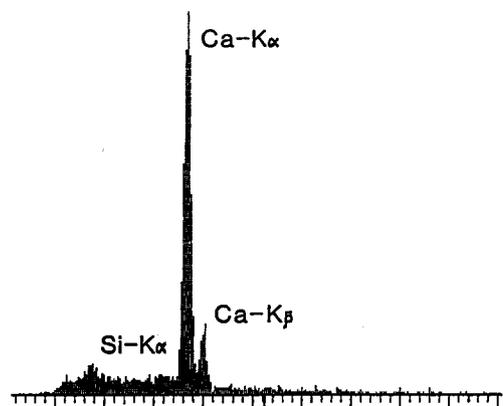


Fig. 1. Constituent in a part of the crystal (photo19) on the innersurface of a heartwood vessel element.

2.7 結晶の構造

結晶構造の細部について新潟大学谷口教授に分析を依頼し、次の結果を得た。心材道管中の結晶について、X線回折を行ったもので、これらの回折写真の1つは鋭い回折点が同心円状に広がり、微細な単結晶が無配列に集まった状態を示唆し、他の1つは鋭い回折点が点在し、大きな単結晶が集まった状態を示唆する。また両回折写真で観察される主な回折点の回折角 2θ は 23.075° , 47.513° , 48.510° で、それぞれに対応する面間隔 d は 3.851 , 3.035 , 2.490 , 2.282 , 2.095 , 1.912 , 1.875 \AA である。これらの面間隔を、炭酸カルシウムの結晶多形、すなわち、カルサイト、バテライト、およびアラゴナイトと対比すると、観察される回折点はすべてカルサイトと極めてよい一致を見る。したがって、ドロノキ心材道管中の結晶は炭酸カルシウムであり、かつカルサイト構造であると考えた。また回折写真で観察されるラウエ斑点の形が鋭く、菱形であることから、これらの結晶はその大小及び集合数にかかわらず、個々の結晶は極めてよい結晶状態にある、すなわち単結晶であると推定された(谷口, 李他, 1987)。また上記と同じ方法で、筆者が北海道大学の工学部で追試験を行った回折写真は Photo 21 のとおりであり、カルサイトの構造であることを確認した。

2.8 考 察

ドロノキ, チョウセンヤマナラシ, ウラジロハコヤナギの材中の結晶の出現と成分をまとめると Table 4 のとおりである。

ドロノキ及びチョウセンヤマナラシの心材のみ形成される結晶は機能を停止した道管及び繊維状仮道管の中に多く生じ、これは炭酸カルシウムであった。これは主にこれらの材中の物理的, 化学的条件が結晶の生成に最適であったことを示すと考えてよい。材中の無機物, 有機物, バクテリアの存在による結晶の核となる物質の生成, pH 等が結晶生成の条件として考えられるが、これらについての調査結果は次章以下で論じていく。また、先に述べたように結晶が成長輪のように接線方向にリング状に並ぶことがあることは結晶の生成が全くランダムに起こるのではなく、ある時期に一度に生ずるということを示しているように思われる。このことは

Table 4. 結晶の出現と成分

節	樹 種	心 材	結晶出現状況	結晶主成分
Tacamahaca (ドロノキ節)	ド ロ ノ キ	着 色 心 材	着色心材の全種類の細胞にあるが多くの結晶は道管と繊維状仮道管に存在する。 休眠芽柔細胞の一部	炭酸カルシウム (カルサイト)
Leuce (ヤマナラシ節)	チ ヨ ウ セ ン ヤ マ ナ ラ シ	不 規 則 的 な 着 色 心 材	着色心材の一部のチロースがある道管。辺心材のピスフレックの一部。	炭酸カルシウム (カルサイト) シュウ酸カルシウム (1水塩)
Leuce (ヤマナラシ節)	ウ ラ ジ ロ ハ コ ヤ ナ ギ	着 色 心 材	辺心材のピスフレックの一部	シュウ酸カルシウム (1水塩)

心材形成に伴う2次代謝に関連があると思われ、季節要因、温度、樹液の成分と関連が深い。有機酸の放射組織における生成ということで考えれば心材の形成と大いに関連があると考えられる。

樹木の生きている細胞(柔細胞)に形成される結晶は主にシュウ酸カルシウムであった。いわゆる結晶細胞または異形細胞で結晶を含む柔細胞は、細胞が生きている間に何らかの機構により結晶を形成したもので、これはシュウ酸カルシウムが多い。

JANNINら(1972)とCLEMENTら(1973)はLeuce節の6樹種(*P. alba*を含む)については、土壌あるいは育成立地にかかわらず結晶は存在しないと報告している。本報告でウラジロハコヤナギ(*P. alba*)については軟X線で検出されるほどの炭酸カルシウムの結晶は存在しなかった。北海道産のウラジロハコヤナギには多くのピスフレックが存在し、樹種識別の参考になることは教科書にも記載されているが、ピスフレックのいわゆる傷害柔組織に結晶が存在することは報告されていない。同じくLeuce節のチョウセンヤマナラシ(*P. tremula* var. *davidiana*)では上記のように結晶は着色心材と辺材の着色斑点の結晶がチロースのある道管の一部に部分的に多数存在した。一方、MUHAMMAD他(1984)はLeuce節に属する *Populus tremuloides* で *Fomes ignarius* に侵された材中の道管中にシュウ酸カルシウムが存在し、健康な材では見られなかったことを報告している。

JANINら(1972)とCLEMENTら(1973)は *P. tremula* (ヨーロッパヤマナラシ)について同じく結晶が存在しないことを報告している。MUHAMMADら(1984)の報告を合わせて考えるとヤマナラシ節(Leuce節)の場合、通常は結晶は存在しないが、傷害柔細胞や菌に侵されたものまたは水食い材になると結晶が成長する要因が生ずるであろう。

辺・心材のピスフレック柔細胞の結晶はシュウ酸カルシウムの結晶であり、またX線回折分析の結果、シュウ酸カルシウム1水塩であることがわかった。生きている細胞の中でシュウ酸カルシウムが生成・成長する過程は次のように推測してみた。ストレスを生じた柔細胞が分泌細胞となり一次代謝により多量の分泌物(有機酸、結晶など)を生じ、また同時にストレスにより無機イオン(Ca及びK)の集積が生じ、有機酸を中和して結晶を生成していくと考えた。カルシウムはタンパク質と結合したり、また一種の解毒剤としても働く(生物学辞典、1960)。樹木において傷害を受けた部位における無機イオンの集積については多くの文献が報告されている(MUHAMMAD, 1984)。CODYら(1982)は、植物内のシュウ酸カルシウム1水塩の結晶成長を調べるための実験を行っているが、これについては後述する。

炭酸カルシウムのカルサイト構造のものが、心材のすでに機能を停止した道管、繊維細胞の中に多量に見いだされた。炭酸カルシウムにはカルサイト構造、バテライト、アラゴナイトの構造がある。自然界では動物の平衡石の炭酸カルシウムの成長はアラゴナイトであり、岩石の炭酸カルシウムの成長がカルサイトである。ポプラ類の炭酸カルシウムがカルサイト構造であることがわかったのは大きな前進であると考えられる。このことからドロノキ心材のカルサイト

の成長は海中からのカルサイト成長と同じく樹液成分の堆積沈殿と考えてよいと思われる。

ドロノキ材中の結晶は水食い材の着色の濃いところ、すなわち含水率が高い部分でチロースがない道管と繊維状仮道管に多く存在した。チョウセンヤマナラシは通常は認められないが何等かの原因で生じた不規則の水食い材の一部のチロースがある道管に多い傾向があった。ウラジロハコヤナギはピスフレックが多い。ほかの樹種にもピスフレックはあるがウラジロハコヤナギより少ない。これらのピスフレックの一部の柔細胞には辺・心材に関係なく少ないながら結晶が認められた。

これらの結果は基本的には CLEMENT ら (1973) の報告を裏付けるものであるが、クローンや病虫害により結晶の出現の仕方が変わってくるのが明らかにされた。今後ポプラ類の組織的な特徴及び識別に応用できると期待できる。

第3章 水食い材と結晶との関連

3.1 序 言

ドロノキ、チョウセンヤマナラシ、ウラジロハコヤナギの全体の水分分布は生材の軟 X 線写真でよく識別できた。

ドロノキは規則的な同心円状の着色心材の全体が多湿心材になっている (Photo 1, 58)。チョウセンヤマナラシ (Y 1) の心材は部分的に着色し、この部分が水食い材となっていた (Photo 3, 59)。チョウセンヤマナラシ (Y 2) は中心に無着色の水食い材を形成し、生材の時のみ辺材よりやや濃く見られた (Photo 5, 60)。ウラジロハコヤナギ (Photo 7, 61) は同心円状の規則的な着色心材を持っていたが色に濃淡があり、濃色部が部分的に水食い材を示した。樹種またはクローンにより着色材部のあらわれ方が異なるが、大部分の着色部は辺材より高い含水率を示した。材質に関する組織用語集 (1972) では心材について着色心材、無色 (淡色) 心材、多湿心材、水食い材、偶発着色心材、偽心材、外傷心材、黒心にわけ区別し、多湿心材は辺材より含水率の高い心材を持つ樹種、水食い材は通常含水率の低い心材を持つ樹種であるのになんらかの原因で、心材およびときには内側の辺材が隣接の辺材部より高い含水率をしめすものと定義されている。YAZAWA ら (1965) はハルニレ、ヤチダモなどの着色心材はすべて年間を通して、辺材より高い含水率を示したことで、水食い材とは呼ばず多湿心材と呼び、英文の Wetwood と区別して Wet-heart wood として報告した。しかし多くの文献ではこれらの材もトドマツの水食い材と同じく wetwood の用語で用いられている。

水食い材に起因する材の変色については多くの研究があるが、SHIGO ら (1973) は 3 つの段階に区分して説明している。1) 樹木が傷を受けるとフェノールなどの生成と空気による酸化によって材中にわずかな変色が起こる 2) 腐食微生物、特に帽菌類が侵入して材中の生活細胞との相互作用により 3) これらが細胞壁成分を分解するときに起こると報告した。

ドロノキとチョウセンヤマナラシ (Y1) の着色多湿心材は後述のようにバクテリアに冒されたのが原因で高い含水率を示したと思われ、その中にはチロース、壁孔壁の破壊、結晶等が認められた。チョウセンヤマナラシ (Y2) は着色心材は見られず、辺材の組織と似ている。ウラジロハコヤナギは外傷により生じた心材、例えば上部の枝が切られたり、昆虫の傷害により形成されたピスフレック等が原因で形成された心材と考えられる。

本章ではこれらの辺・心材のでかた及び性質と結晶の関連について述べるが、着色多湿心材の用語については英文の多くの報告と同様の wetwood (水食い材) を使用することにした。

3.2 供試木

ドロノキの供試木は北海道大学檜山地方演習林に植栽されていた13年生の1本 (D8) と北海道栗山の王子製紙(株)林木育種研究所の検定植栽林の16年生1本、20年生3本、23年生2本で計7本 (D4, D1, D2, D3, D5, D6) である。その内人工心材の観察用試料は栗山の23年生の1本 (D5) の生立木の胸高部位から生長錐で直径1 cmのコアを形成層から髓まで1986年6月と8月に採取して人工心材をつくり、1987年1月に伐採した。チョウセンヤマナラシ2本 (Y1, Y2)、ウラジロハコヤナギ1本 (A2) は1985年6月に北海道栗山の王子製紙(株)林木育種研究所の検定植栽林から伐採した。供試木の記号はすべてTable 2に示したとおりである。

3.3 実験方法

3.3.1 軟X線透視

各樹種別 (D4, D5, Y1, Y2, A2) の胸高部位の5 mmの厚さの横断面の円板を使用した。軟X線撮影は水分の分布を調べるため、生材と気乾材の状態で行った。撮影には当木材理学講座の軟X線装置 (Softex IE型) を使用した。撮影条件はX線源から試料までの距離100 cm、管電圧15 kV、管電流5 mA、照射時間2~10 minである。

3.3.2 光学顕微鏡観察

核の有無により辺・心材を確認するため、1985年6月に採取した各樹種 (D1, D4, Y1, Y2, A2) の胸高部位の円板から3断面をマイクロームで厚さ15 μm の切片をつくりサフラニン及びファストグリーンで染色して観察した。また細胞組織及び沈着物、好オスミウム性物質の分布等を観察するため、ドロノキ1本 (D5) の生立木の胸高部位から生長錐で直径1 cmのコアを形成層から髓まで採取した。直ちに、3%のグルタルアルデヒドで固定後、一辺1~3 mmのブロックとし、リン酸緩衝液で洗浄した後、1%四酸化オスミウム溶液で脱水、エポキシ樹脂で包埋した。次にガラスナイフで厚さ2 μm の横断面薄切片をつくりサフラニンで染色して観察した。

バクテリアの試料は、グラム陽性菌から陰性菌かを確認するため檜山演習林から1984年に伐採した供試木 (D8) の胸高部位から得た。心材の一部を軽く火の中を通して表面を滅菌後、雑菌が入らないようにプレスして材から樹液とともにバクテリアを採取してグラム染色を行っ

た。樹液は火の中を通したスライドガラスの上のせて乾燥後、スライドガラスの裏側から再び軽く火を当てて固定し、ゲンチアナバイオレットに1分間染色した。次いでルゴール液(ヨウ素+ヨウ化カリウム水溶液)を加え1分後に、直接試料にあたらないように軽く水洗、再び5秒ほどフクシンで染色した。乾燥後検鏡するとグラム陽性菌は青紫色にグラム陰性菌は桃色に染まる。

3.3.3 SEM 観察

材の構造、チロースの分布、バクテリアの出現、壁孔壁、細胞間層、チロースの破壊等を観察するため、SEMの試料は各樹種(D1, D2, D3, D4, D5, D6, D8, Y1, Y2, A1, A2)の胸高部位を用いて半径方向に髄から形成層まで小材片(6mm×6mm×1mm)を採取した。これらを室内乾燥したものと、水洗、アセトン脱水、臨界点乾燥したものを、炭素と金の蒸着をしてSEMで観察した。

3.3.4 エネルギー分散型X線分析(EDXA)

EDXA用の試料は室内乾燥、炭素蒸着して、日本電子のSEMの付属のEDXAによって点分析を行った(2.3.4参照)。

3.3.5 灰分率及び無機成分の定量

各供試木(D4, Y1, Y2, A2)の胸高部位の樹皮、外側から分割した辺・心材別のブロック及び地上高11mの枝を無機物の分析用試料とした。採取した各材部の木(樹皮)粉はJIS法(JISP 8003-1959)により灰化し、灰分定量後10%の塩酸に溶かした。樹液と灰分中のCa, K, Mg, Naを原子吸光光度計(SEIKO.SAS 721)により分析した。

3.3.6 シュウ酸アンモニウム抽出物の定性と定量

ペクチン質と水食い材あるいは結晶の出現との関係をもとめるためシュウ酸アンモニウムによる抽出物と中性糖を分析した。栗山から1985年6月に採取したドロノキ(D4)の円板と、1986年10月ドロノキ(D5)から取った胸高部位の直径1cmのコアを使用した。辺・心材をそれぞれ内側、中央、外側の3つの部分に分け計6ヵ所から木粉として1gずつを取り、0.5%シュウ酸アンモニウム50ml中で加熱抽出した。この抽出物をアルコール沈澱法で精製を繰り返した。精製した抽出物を酸加水分解した後、アルジートルアセテート法によりガスクロマトグラフィーでラムノース、アラビノース、キシロース、マンノース、ガラクトース、グルコース等を定量した。

3.4 一般的性質と組織特性

3.4.1 含水率

栗山産のドロノキ(D4)、チョウセンヤマナラシ(Y1, Y2)、ウラジロハコヤナギ(A2)の各供試木の地上高による辺・心材の含水率はTable 5に示した。これらの供試木の各地上高における南北の方向の含水率の分布をFigs 2~5に示した。また、同じ試料の4本(D4, Y1, Y2, A2)の胸高部位の軟X線写真は含水率が多いほど黒く現われた(Photo 1, 3, 5, 7)。

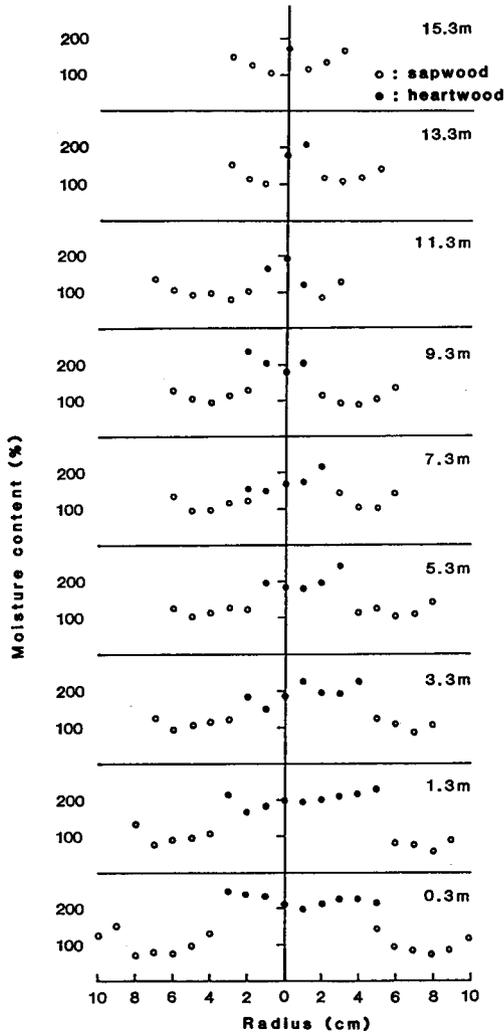


Fig. 2. Distribution of moisture content by height above ground of *P. maximowiczii* (D4).

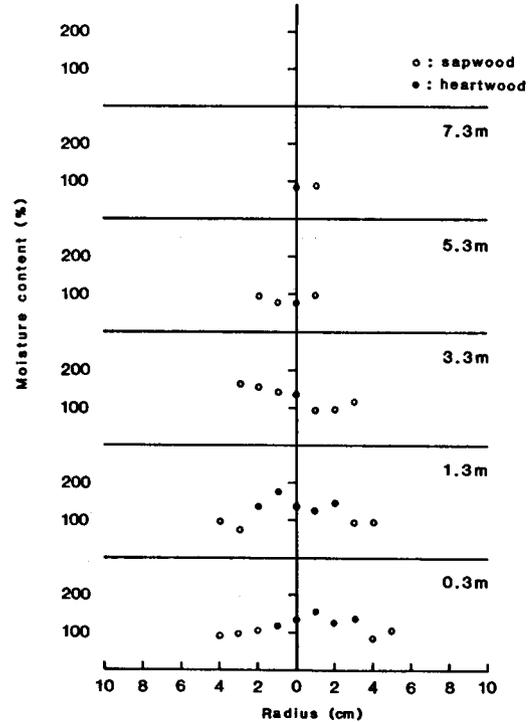


Fig. 3. Distribution of moisture content by height above ground of *P. tremula v. davidiana* (Y1).

ドロノキの含水率は Table 5 のように辺材 99~140%であり、心材は 192~222%の典型的な水食い材である。軟 X 線写真では同心円上の着色心材の全体が一様に含水率が高い部分として黒く示され、水食い材になっている (Photo 1)。心材では髓の部位が低く、辺材では形成層の部位が高い含水率を示す傾向があった。

チョウセンヤマナラシ (Y1) の含水率は辺材 88%, 心材 115%である。心材の片方が着色を示し、軟 X 線写真では着色心材のみ水食い材になっている (Photo 3)。地上高 3.3 m の上の心材の幅は 2 cm 以下で心材は辺材より低い含水率を示した。チョウセンヤマナラシ (Y2) の含水率は辺材 115%, 未着色心材 129%であり、心材率は少なく、同心円状の辺材より若干

Table 5. Moisture contents within a tree

(Unit : %)

Species	Sample	0.3m	1.3m	3.3m	5.3m	7.3m	9.3m	11.3m	13.3m	15.3m	Average
P. m. (D4)	S	101	91	110	120	117	112	104	122	133	122
	FH	222	201	194	201	172	207	160	192	178	192
P. d. (Y1)	S	95	90	76	91	86					88
	H	135	148	102	74	—					115
P. d. (Y2)	S	99	118	120	135	134	112	106	97		115
	LH	185	161	117	101	81	—	—	—		129
P. a. (A2)	S	118	124	89	109	111	100	107	93	102	106
	FH	144	122	125	110	91	95	95	—	—	112

S : sapwood P. m. : *P. maximowiczii*
 H : heartwood P. d. : *P. tremula v. davidiana*
 LH : light heartwood P. a. : *P. alba*
 FH : facultative colored heartwood

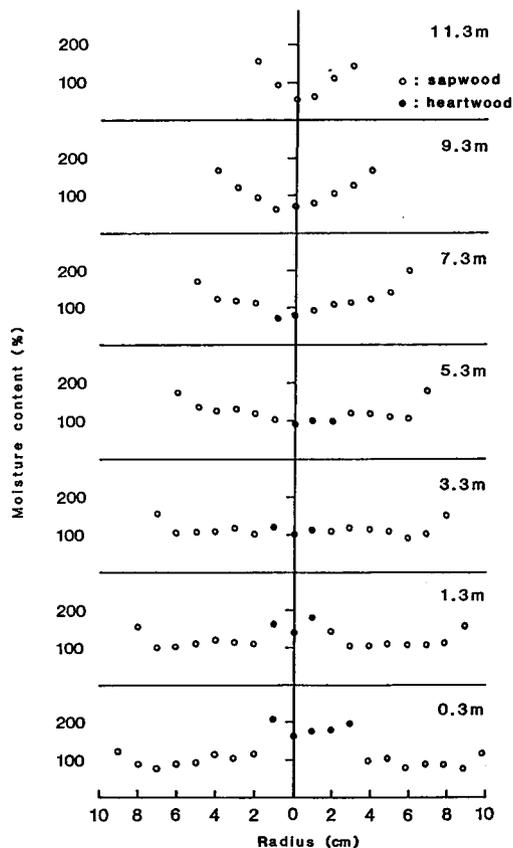


Fig. 4. Distribution of moisture content by height above ground of *P. tremula v. davidiana*(Y2).

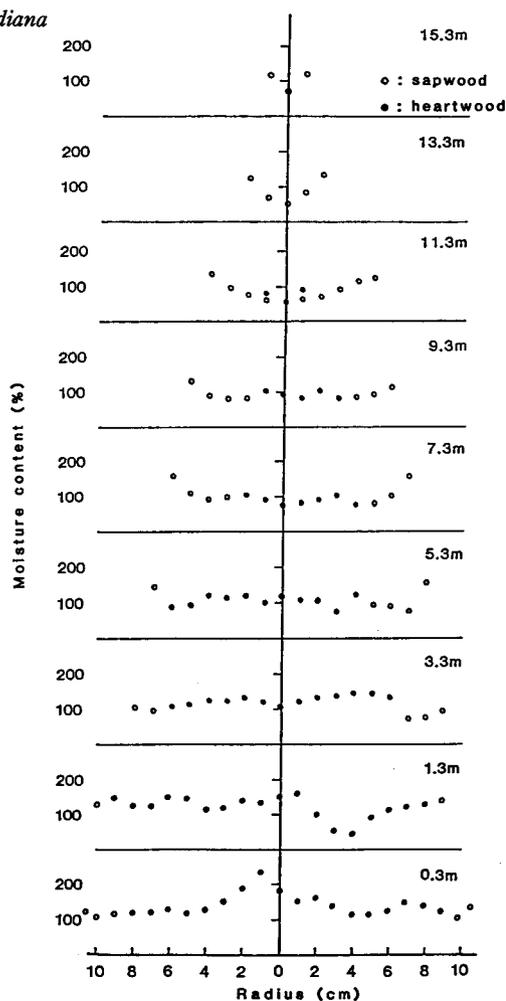


Fig. 5. Distribution of moisture content by height above ground of *P. alba* (A2).

高い含水率を示した。軟 X 線写真では辺材の着色斑点と節のある部分は心材よりさらに高い含水率を示し部分的な水食い材であった (Photo 5)。また、地上高 3.3 m 以上の心材の含水率は上にいくほど辺材より少ない傾向があった。チョウセンヤマナラシ (Y 1, Y 2) の辺材も形成層の付近が高い含水率を示した。

ウラジロハコヤナギの含水率は辺材 106 %, 心材 112 % であり、軟 X 線の写真のように心材は部分的に水食い材を示したり、また辺材より乾いているところも認められた (Photo 7)。Table 5 から認められるように、地上高の低い部分の心材の一部は水食い材となっていたが、全体的には心材は辺材と同じ程度の含水率を示した。また地上高 1.3 m までは心材の比率が非常に多いが、地上高が高くなるほど心材率が減少した。

3.4.2 辺・心材

ドロノキの辺材の放射組織の柔細胞の中には核が存在したが、心材には外側から 1 年輪ほどは核の残がいのようなものが見られるのみで核は存在しなかった。また、ドロノキの心材は前述のように水食い材であるがその中には結晶、沈着物、チロース、バクテリア、壁孔壁及び細胞壁の破壊等が認められた。

チョウセンヤマナラシ (Y 1) は辺材には核が認められたが、不規則に現れた着色心材には認められなかった。しかし着色心材の反対側の髓から近い部分で辺材の色と異なる淡灰色である部分があったが、この部分にも核が見られなかったので未着色心材とした。着色心材は水食い材を示し、その中には結晶、沈着物、チロース、バクテリア、壁孔壁の破壊が認められ、チロースがある道管に結晶及びバクテリアが多いことからチロース壁も破壊されたと考えられる。

チョウセンヤマナラシ (Y 2) は全体が未着色であるが、核がみられない同心円状の心材が存在した。この部分は乾燥すると辺・心材の区別ができないが、生材のときは辺材よりやや濃色を示す。少しながら辺心材に関係なくチロース、結晶が認められた。

ウラジロハコヤナギも辺材には核がみられ、着色心材には核がみられなかった。チロースは心材に多い傾向があり、少ないながら結晶は辺心材関係なく認められた。

3.4.3 好オスミウム性物質の分布

ドロノキ材のみ 2 μ m の横断面の薄切片をつくり観察した結果、単列の放射組織とターミナル柔細胞の中に黒く染色された好オスミウム性物質が観察された。これは辺材 (Photo 25) の外側ほど多く、心材 (Photo 26) の内側ほど少なくなる傾向があった。

辺材の柔細胞中の好オスミウム性物質は主に脂質であると考えられる。また、心材中の好オスミウム性物質は心材形成に関するフェノール性物質であると考えられる。心材細胞中の沈着物の一部は放射組織に存在した物質が心材化に伴う壁孔壁の破壊により、道管及び繊維状仮道管などの内こうに移動し沈着したと思われた。

3.4.4 チロースの分布

ドロノキ、チョウセンヤマナラシ、ウラジロハコヤナギにはいろいろなチロースがはしご

状 (Photo 33~36), 泡状, チロースバッド (Photo 31, 32) として存在し (島地他, 1982), 樹種により出現頻度, 形態などが異なり, またチロースと結晶が共存するものと共存しないものとがあった。

チロースは I.A.W.A (国際木材解剖学会) の用語集 (1975) によると道管の側壁の壁孔をととして, 隣接する放射柔細胞または軸方向柔細胞が膨大し, 道管の細胞内こうの一部あるいは全部をふさいだものとなっている。

ドロノキ材中のチロースの出現は辺材には殆どなく, 辺心材の境界において突然現れ, 内側に向かって径断面の観察では数列の道管に出現, 消失を繰り返して分布しているのが認められた。チロースが多い道管の中には結晶はほとんど含まれていなかった。

チョウセンヤマナラシの辺材にはほとんどないが, 辺材中の着色斑点の中には心材のように多くのチロースが見られた。心材中のチロースの出現は着色心材及び未着色心材ともドロノキと似ている。また, 辺材の着色斑点のチロースのあらわれる道管と着色心材中のチロースのあらわれる道管の一部には結晶が含まれた (Photo 22)。

ウラジロハコヤナギのチロースの出現は心材に多く, チロースのある道管中に結晶は含まれなかった。ピスフレックの出現頻度はウラジロハコヤナギ>チョウセンヤマナラシ>ドロノキの順であるが, 3つの樹種ともピスフレックの周囲のわずかの道管に辺・心材に関係なく, チロースが見られた。

以上の3つの樹種の道管内におけるチロースの形態は道管の一杯に縦に数個が一行に並び, はしご状 (Photo 33~36) のものが多く, わずかに泡状のもの, 発達途中のチロースらしきもの, またチロースバッド (Photo 31, 32) が認められた。

3.4.5 バクテリアの出現

SEMによるとバクテリアはドロノキの心材中とチョウセンヤマナラシの一部にみられた着色心材中の外側に多く観察された。また, 多くのバクテリアの道管の内こうおよび道管放射組織の壁孔壁に多く存在した (Photo 37~42)。ドロノキ心材の外側の道管と放射組織の壁孔壁には時々バクテリアの固まりと Ca の成分が認められる粒子が観察された (Photo 40~43)。これらはバクテリアによる結晶の成長と関連あるものと思われた。

バクテリアの種類は光学顕微鏡や SEM の観察だけでははっきり同定できなかった。バクテリアの同定のためには培養実験が必要になるが, 本研究では実行できなかった。これらのバクテリアの大きさは $1\mu\text{m}$ ほどで桿菌や球菌, また形態および胞子囊の形から *Clostridium* とされるものが認められた。*Clostridium* 属もこのグラム陽性菌に属し, 土壤中に多く存在し, 嫌気性ペクチン分解酵素を持っている (STANIER ら, 1980, 相田ら, 1981)。

ポプラ類の水食い材の生成とバクテリアの関連については多くの文献が認められる。これらは WARD ら (1980) のグループの研究が有名である。

SACHS ら (1984) の文献によると *Clostridium* のような嫌気性ペクチン分解バクテリアは

道管に多く観察され、道管放射組織間壁孔壁、細胞間層、チロース等を分解し、水食い材を形成すると推察している。

MUHAMMADら(1984)は *Fomes igniarius* に侵されたアスペン (*Populus tremuloides* MICHX.) を無機分析し、陽イオン特にCaの集積を見だし、これは菌の代謝活動かまたは防御システムと関係があるのではないかと述べている。

3.4.6 壁孔壁、細胞間層、細胞壁及びチロース壁等の破壊

すべてのドロノキの心材とチョウセンヤマナラシ(Y1)の不規則着色心材とチョウセンヤマナラシ(Y2)の辺材の着色斑点には道管放射組織間の壁孔壁、繊維状仮道管間の有縁壁孔、柔細胞間の単壁孔、細胞間層、及び一部の細胞壁などがしばしば破壊されたのが認められた。採取してから気乾にした試料はいろいろな沈着物におおわれているので細胞内こうの表面などがよく見えなかった。これに対し水洗、アルコール脱水、酢酸イソアミル、臨界面乾燥した試料はこれらの状態がよく認められた。チョウセンヤマナラシ(Y1)の不規則着色心材およびチョウセンヤマナラシ(Y2)の辺材の着色斑点にはチロースがある道管に結晶が多いのが認められた。これはドロノキの心材道管と全く異なる。

これらの壁孔壁、チロース壁の破壊は前述のようにバクテリアとの関連があることは多くの観察から認められた。しかしながら、酢酸処理したドロノキの心材の道管と繊維状仮道管の内こうに結晶がいっぱい満ちた細胞の一部がPhoto 48, 49のように破壊されているのは、結晶の成長その他物理的な応力によると思われる。

3.4.7 沈着物の出現及び形態

すべてのドロノキの心材とチョウセンヤマナラシ(Y1)の不規則着色心材の細胞の内壁にはいろいろな形と大きさの沈着物があり、それらは結晶と区別された。沈着物の形は存在位置によって異なっており、そのことについてはPhoto 50~55に示すとおりである。

ドロノキの辺材はSEMの低倍率ではきれいに見えるが、倍率を上げて観察すると、全種類の細胞の内壁がきれいになっているものと、辺材の内方は放射柔細胞を中心にして全面あるいは一部にゲル状のような沈着物からおおわれているもの(Photo 50)があった。

一方、心材でも結晶があまりない細胞の内壁は全面あるいは一部がゲル状のような沈着物で覆われていた。また心材の外側から1ないし数年輪までの細胞の内壁に、ゲル状のような沈着物の一部が結晶になる進行過程とみなされるものとして見られた。すなわち、細胞の内壁の上にゲル状に見えたり、小さな粒子またはあらい粒子(Photo 51, 52)として、また不定形の沈着物(Photo 53)などが観察された。これらの沈着物の無機成分については後述する。

チョウセンヤマナラシ(Y2)の辺材の着色斑点はチョウセンヤマナラシ(Y2)の不規則な着色心材と似ている。また、チョウセンヤマナラシ(Y2)及びウラジロハコヤナギの材中には沈着物はあまり目立たない。

3.5 化学的性質

3.5.1 辺心材の木粉の無機成分の分布及び灰分率

木(樹皮)粉の灰分率および無機成分の量は Table 6 と Table 7 に示した。

樹皮の灰分率は 3.66~5.44 % で非常に多い。辺材の灰分率は 0.33~0.46 % であった。心材はウラジロハコヤナギ (0.28~0.39 %) < チョウセンヤマナラシ (Y 1 の無着色部は 0.38 %, 着色部は 0.71~0.90 % ; Y 2 の未着色心材すなわち, 水食い材は 0.71 %) < ドロノキ (1.8~2.4 %) の順である。

ウラジコロハコヤナギの着色心材及びチョウセンヤマナラシ (Y 2) の淡色心材の灰分率は辺材とあまり差がなかった。しかしドロノキ及びチョウセンヤマナラシ (Y 1) の着色心材は辺

Table 6. Inorganic constituents of the wood (bark) meal

(Height : 1.3 m)

Species	Sample	M. C. (%)	Ash (%)	Ca (ppm)	K (ppm)	Mg (ppm)	Na (ppm)
P. m. (D4)	Bark	155	4.87	13550	4370	1150	69
	S 1	91	0.36	580	430	80	10
	S 2	124	0.37	950	550	130	13
	H 1	211	1.80	4870	2110	570	41
	H 2	198	2.40	6550	2610	660	33
	Br-S	97	0.44	1000	600	200	20
	Br-H	124	3.40	10070	3780	940	79
P. d. (Y1)	Bark	134	5.54	20410	2430	1460	49
	S 1	96	0.33	810	540	170	23
	S 2	84	0.33	810	440	150	23
	H1-L	87	0.38	590	660	150	7
	H1-F	144	0.90	2250	1650	450	65
	H2-F	152	0.71	1500	1300	300	15
P. d. (Y2)	Bark	150	4.31	13700	3650	910	55
	S 1	125	0.40	1100	500	200	20
	S 2	112	0.41	1170	420	200	18
	S 3	115	0.46	1120	520	240	15
	H1-W	161	0.71	1600	750	250	15
	Br	124	0.50	1180	1230	260	33
P. a. (A2)	Bark	102	3.66	11390	4030	1400	47
	S 1	124	0.37	580	850	170	52
	H 1	129	0.33	700	640	180	27
	H 2	111	0.28	620	540	150	18
	H 3	125	0.39	820	780	210	21
	Br	115	0.49	700	1150	400	20

P. a. : *P. maximowiczii*P. a. : *P. alba*

H : heartwood

F : facultative colored heartwood

1, 2, 3, : connected number from outside of wood

M. C. : moisture content

P. d. : *P. tremula* v. *davidiana*

S : sapwood

L : light heartwood

W : wetwood

Br : branch

Table 7. Ash and its inorganic constituent in the inside of heartwood

(P. maximowiczii)

Ash (%)	Inorganic constituents							
	in ash (%)				in wood as oxide (%)			
	Ca	K	Mg	Na	CaO	K ₂ O	MgO	Na ₂ O
3.82	25	12	1.3	0.08	1.3	0.6	0.04	0.04

材より多い傾向があった。特に、ドロノキの着色心材は、1.8~2.4%として、国産材の灰分率はほとんどが0.1~1%であるのに比べて(木材化学, 1983)非常に多い。枝はいずれも材部より若干多い傾向があった。

Ca, K, Mg, Na以外の無機物は定量していない。どの樹種ともCaは灰分の約半分を占め、Ca>K>Mg>Naの順である。Caの量は辺材は580~1170 ppmで樹種により多少差があった。しかし、心材のCaの量はドロノキの着色心材(4870~6550 ppm)>チョウセンヤマナラシ(Y1)の不規則着色心材(1500~2250 ppm)>ウラジロハコヤナギの心材とチョウセンヤマナラシの淡色心材(700~1600 ppm)の順で、特にCaの量は灰分率と比例する傾向があった。

ドロノキの心材の内側の比較的結晶がたくさん認められた部分の木粉の灰分分析結果はTable 6のとおりである。

灰分率は3.82%であり、非常に多い。無機物の中では、Ca(25%)>K(12%)>Mg(1.3%)>Na(0.08%)の順でCaとKが非常に多い傾向があった。

3.5.2 沈着物の無機成分

ドロノキの辺材及び心材の沈着物をEDXAにより点分析した結果はFigs 6~10のとおり

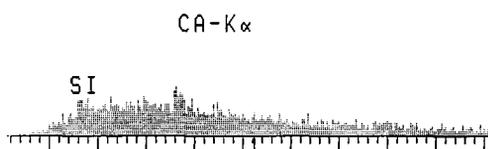


Fig. 6. Constituent in a part of gelatinous deposit on the innersurface of a sapwood ray parenchyma.

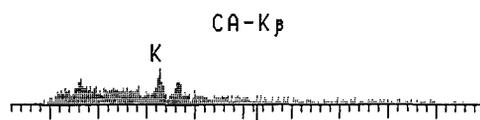


Fig. 7. Constituent in a part of gelatinous deposit on the innersurface of a heartwood vessel element.

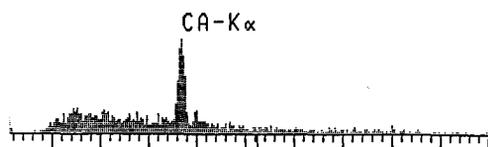


Fig. 8. Constituent in a part of amorphous deposit on the innersurface of a heartwood vessel element.

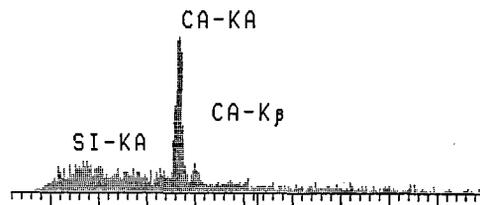


Fig. 9. Constituent in a part of small granular deposit in heartwood V-R pit.

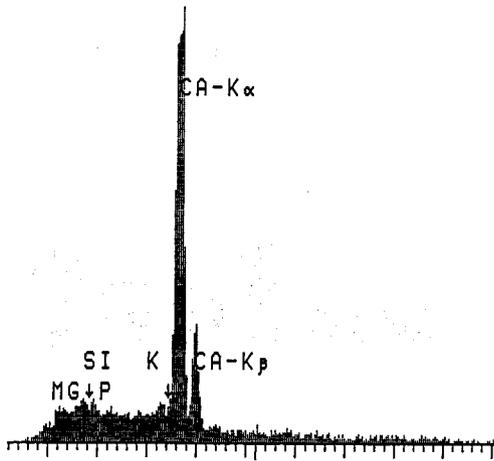


Fig. 10. Constituent in a part of deposit on the innersurface of a heartwood vessel element.

で、Ca と Si 等が検出された。また、心材の道管要素の内壁にあるゲル状の沈着物も点分析した結果は Fig. 10 のとおりで、Si, Ca, K, Mg, P 等を含むことが認められた。着色がみられるチョウセンヤマナラシ道管の内壁にある沈着物も Ca 等を含むことが分かった。

以上のように沈着物の中には Ca の外に K, Si, Mg, P 等を含め、その内 Ca のイオンは沈着物が厚く、大きいほど高いピークを示した。したがって沈着物は前述の炭酸カルシウムの結晶もかなり含んでいることが想定される。

また、他の無機類は後述の樹液からの沈澱物と考えられるし、多くの沈着物はオスミウム酸にも染色されることから多量の有機成分(フェノール等)を含んでいることがわかる。

3.5.3 シュウ酸アンモニウム抽出物の定性と定量

沈澱物の有機成分の詳細が問題になるが、ここではシュウ酸アンモニウムの抽出成分を予備的に調べてみた。シュウ酸アンモニウムの抽出物は主にペクチン質といわれるものである(細胞表層の糖質と機能, 1976)。予備実験の目的はペクチン質は細胞間層, 壁孔壁に多く、その分解が水食い材の形成と関係があること、またそれらと結晶の生成と関連がないかと考えたことによる。

シュウ酸アンモニウム抽出物の定性と定量は、ドロノキ (D5) のみで行った。

Table 8. Content of ammonium oxalate extracts and their neutral sugar composition

(Unit: %)

Sample	Based on wood		Based on extracts					
	extracts	Neutral sugar	Rhamnose	Arabinose	Mannose	Galactose	Xylose	Glucose
S1	3.5	1.3	1.2	5.3	4.3	4.0	16.8	4.7
S2	2.3	0.9	1.4	6.7	2.0	2.2	22.3	2.6
S3	2.5	0.7	0.9	4.9	2.0	1.6	15.2	2.4
H1	2.5	1.3	0.6	31.1	3.5	2.1	12.6	3.5
H2	3.9	0.6	0.3	3.6	1.6	1.1	6.2	1.9
H3	3.7	0.5	0.3	3.3	1.0	1.3	5.2	1.4

S: sapwood H: heartwood 1,2,3: connected number from outside of wood.

ドロノキの樹液中にある有機物の量は次の第4章で述べるように辺材の外側1850~2040 ppm, 内側640~780 ppmで, 心材の外側2940~2970 ppm, 内側2220~2300 ppmで, 辺材より心材に多く, 辺材とも内側より外側の量が多い傾向がある。

辺・心材の6部位からのシュウ酸アンモニウム抽出量, 及びフラクションの中性糖(ラムノース, アラビノース, マンノース, ガラクトース, キシロース, グルコース)の量をTable 8に示した。またFig. 11に棒グラフでシュウ酸アンモニウム抽出物量とそこに含まれる中性糖の量を示した。

辺材中のシュウ酸アンモニウム抽出物量, 中性糖の量は一番外側が最も多かった。心材中の抽出物量は中央と内側に多く外側に少なかったが, 中性糖は心材でも外側に多い傾向があった。

辺・心材の抽出物中に含まれる中性糖における構成糖の割合は一般にキシロース>アラビノース>グルコース=マンノース>ガラクトース>ラムノースの順であった。心材の外側で抽出物の量が少ないのに中性糖の割合の多いこと, 中性糖のうちアラビノースが31.3%も高い値を示したことは特筆される。

これらの役割については不明なところも多く, その検討は十分になされていない。心材外側で細菌によるペクチン物質の分解がなされたことや, それがアラビノースの増加と結び付いているのかどうかについては今後の検討が必要であろう。これらについては何の文献も見あたらない。数値だけでも提示できたことは一つの前進であろうと思われる。

3.6 人工心材の形成と結晶化

成長錐コアの季節別採取により, ドロノキ(D5)に人工心材の形成が認められた(Photo 56)。

横断面から観察したドロノキ人工心材の放射方向の当年度の形成幅は1~6 cmほどで, 特にコアで採取した付近が広い。人工心材のSEMの観察は内側から外側に行くほど沈着物が増加していた。すでに3.4.7で述べたようにドロノキの心材の外側と似ているパターンでいろいろな沈着物がみられた。すなわち, ゲル状, 粒の固まり, 不定形の沈着物として観察された。

また, 人工心材の一番外側の不規則な輪郭に沿ってPhoto 56のように着色ムラが見え, 軟X線写真ではその着色ムラの中には部分的に集中して多くの結晶が認められた(Photos 55, 56)。

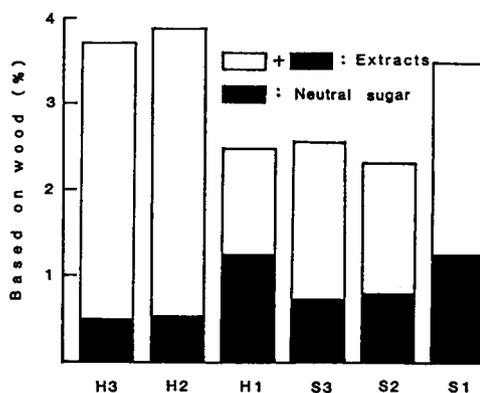


Fig. 11. Content of ammonium oxalate extracts and their neutral sugars based on wood. H: heartwood S: sapwood 1,2,3: connected number from outside of wood

このことは結晶が心材形成の終わりの時期にいつべんに生成されたことを証明するものとして重要である。

3.7 考 察

本章の結果を1つの表にまとめてみると Table 9 のとおりである。本研究はドロノキの心材を多湿心材の用語を使わず、水食い材“wet wood”とした。これはドロノキのチロースの形成経過の観察から、いったんは通常の心材になる過程をとろうとしたことが推定されたことによる。チョウセンヤマナラシの淡色心材及びウラジロハコヤナギの着色心材の一部は辺材と変わらない含水率を持つ。これは水食い材と定義されないように思われる。一方、チョウセンヤマナラシのようにクローンにより現れた不規則な着色心材はドロノキと同様水食い材と定義できるようである。

Table 9. Wood characteristics of the *Populus* spp

Species	P. m. (D4)		P. d.(Y1)		P. d.(Y2)		P. a.(A2) P.		
	S	H	S	L	F	S	H	S	H
M.C. (%)	109	205	90	87	148	118	161	124	122
pH	5.9	8.6	5.8	6.1		5.8	5.6	5.2	4.2
Ash (%)	0.37	2.10	0.33	0.38	0.81	0.42	0.71	0.37	0.33
Crystals	(+)	++	(+)	(+)	+	(+)	(+)	(+)	(+)
Tyloses	-	+	(+)	+	+	(+)	+	(+)	+
Bacteria	-	+	-	(+)	+	-	(+)	-	(+)
Nuclei	+	-	+	-	-	+	-	+	-

P. m. : *P. maximowiczii*

P. a. : *p. alba*

L : light heartwood

M. C. : moisture content

P. d. : *P. tremula* v. *dauriana*

S : sapwood H : heartwood

F : facultative colored heartwood

チロースの出現は樹種により異なり、チョウセンヤマナラシ及びウラジロハコヤナギの辺材及びピスフレック近辺に現れるチロースの形成は昆虫、菌などの侵入をうけた後、保護メカニズムにより生産されたと思われる。しかし、ドロノキの心材のチロースは心材形成における正常な放射組織の代謝活動と関係があると推定される。チロースが発達すると道管を閉塞するので、水分流動は減少し含水率は辺材と同様もしくは辺材よりは低下することが想定される。しかしながらドロノキの心材は辺材より高い含水率を示した。これらの水食い材の成因はチロースバッド、またはチロースができてからも、バクテリアによって壁孔壁、チロース壁等の破壊がおこって水の通路が出来ることによると考えられる。またこれがひきがねとなって、圧力により土壌から水が上がり、機械的な壁破壊も生じることが考えられる。

SCOTT (1984) は wetwood と関係したバクテリアは *Enterobacter* と *Clostridium* 属と同定した。嫌気状態で *Enterobacter* はヘミセルロースを分解し、*Clostridium* 系はペクチンを分解す

る。これらのバクテリアはポプラ類の水食い材の発達に重要な役割をするだろうと述べている。

ドロノキの心材においてチロースのない道管が多いことは、チロースは心材形成の初期のチロースバッドの段階でバクテリアにより破壊され、また水分の素早い侵入によりチロースの発達が阻害されたものと考えられる。またそれらの道管に多くの結晶がみられたことは、これらの結晶が樹液に由来したものであることを示している。

しかしながら、チョウセンヤマナラシはチロースがある一部の道管に多くの結晶、バクテリアが見えた。これはバクテリアによるチロースの分解、結晶の生成が、ドロノキの場合と違ったメカニズムによると考えることもできるが、はっきりとしたことはいえない。チョウセンヤマナラシは通常規則的な着色心材を示していないが、この樹種特性の違いはこのようなメカニズムの違いによるのかもしれない。

灰分率は辺材0.33~0.46%で3樹種とも似ている。しかし、ドロノキの水食い材は1.8~2.4%で非常に多く、次にチョウセンヤマナラシは0.71~0.90%で、ウラジロハコヤナギは0.28~0.30%で辺材とあまり変わらなかった。また灰分率の約半分はCaが占め、成分分析によりCaは結晶及び沈着物に多いのが分かった。これらのことはJANINとCLEMENT (1972, 1973)によっても明らかに示され、材中の結晶物と関連があることを示している。

ドロノキの心材形成さらにそれに続く水食い材の形成は一般の心材形成と同様、一生長期の後期(晩夏から秋)に形成されると推察される。炭酸カルシウム(カルサイト)の成長は、水食い材形成の比較的后期に円周方向に沿ってでいっぺんに起こることが人工心材の形成実験から確かめられた。このことからドロノキの円板上で現れた結晶(カルサイト)のリング(軟X線写真)は、一般の材の年輪と同様に心材の形成年輪とみることができる。これらの結果から、次章で検討したような結晶成長のモデル実験を考えてみた。

第4章 樹液からの結晶生成及び成長

4.1 序 言

本章はドロノキの樹液から炭酸カルシウムの結晶を析出、成長するための条件を究明するために行った。ドロノキの辺心材から搾った樹液の性質を調べると共に種々の条件下におき結晶の成長について時間を追って追跡した。結晶の成長は樹液中の無機物、有機物の濃度、バクテリアの有無、温度、pH等により異なると考えられる。また結晶の源泉を説明する機構の中でバクテリアとの密接な関連が注目される。

4.2 供試木

北海道栗山の王子製紙(株)林木育種研究所の検定植栽林から20年生~25年生のドロノキ4本(D1, D4, D5, D6)と北海道大学檜山地方演習林に植栽されていた13年生のドロノキ1本(D8)の計5本を供試木とした。そのうち一部は季節的な無機物の変動を調べるため、3月

(D5); 6月(D4), 9月(D8), 12月(D1)に採取した。チョウセンヤマナラシは上記の栗山の16年生のチョウセンヤマナラシ(Y1, 着色心材を持つ), チョウセンヤマナラシ(Y2, 着色心材を持たない)を1本ずつ2本を採取した。ウラジロハコヤナギも栗山の16年生1本(A2)を採取した。各供試木はFig. 12のように伐採後, 直ちに胸高部位より厚さ5cmの円板を採取し, 辺・心材の外側・内側計4つに分けて3×5×5cmほどの大きさのブロックを取り出した。万能強度試験機(木材加工学講座所属)を用いて各材部のブロックに縦方向に圧力40-100 kg/cm²をかけ, 約100 ccの樹液を搾り取って, 直ちに以下の実験を行った。一部の樹液(D8)については, 伐採後山元において万力を使用して採取, 直ちに冷凍して実験室に持ち帰った。

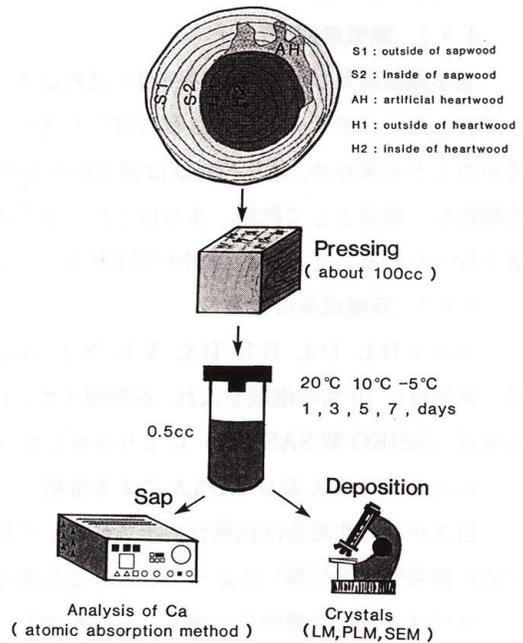


Fig. 12. Experimental procedure

4.3 実験方法

4.3.1 結晶成長のモデル分析

バクテリアの有無, 樹液の濃度, pH, 温度及び時間の経過が結晶の生成・成長にどのように関連しているのかを調べるため, 以下の条件を設定した。樹液は3月(D5), 8月(D6)に採取したものを使用した。

(1) バクテリアの有無: バクテリアは辺・心材の樹液に最初からすでにあった。これらのバクテリアの数は部位により異なり, 辺材は極めて少数が含まれた。

無菌の樹液にするためには, 使われるすべての実験道具をオートクレーブ(温度; 120°C, 圧力; 1.2 kg/cm², 時間; 10 min)で滅菌した後, クリーンベンチの中で樹液を0.25 μmのメンブレンフィルターで濾過させ, 各試験管に0.5 ccずつ取って蓋をした。

(2) 温度: -13°C, -5°C, -10°C, 20°Cの温度別に各々0.5 ccの量を8個ずつ取り蓋をして放置した。

(3) 濃度: ロータリーエバポレータを用いて40°C以下で原液を30%, 50%, 70%等に濃縮した。

(4) pH: 酸性である辺材の樹液にはKOHを加えてアルカリ性に, アルカリ性の心材の樹液はHClを加えて酸性にした。

(5) 時間: 以上の(1)~(4)の条件別に放置された試料は最初, 6時間, 1日, 3日, 5日,

7日の時間等の経過により結晶の生成・成長を肉眼、光学顕微鏡、SEM、X線分光分析、X線回折分析等により調べた。

4.3.2 顕微鏡観察

光学顕微鏡及び位相差顕微鏡用の試料はスライドガラスの上に樹液中の沈殿物を一滴落として行った。バクテリアは第2章に詳しく述べているようにグラム染色によりグラム陽性か陰性かのことを確かめ、結晶の確認は偏光板をかけ再確認した。SEM用試料は試料台に樹液中の沈殿物を一滴落として乾燥、またはこれらを水洗いして再び乾燥してから、炭素と金の二重蒸着を行った。そしてSEM (JSM-35 CF II) により加速電圧 15 kV で観察した。

4.3.3 無機成分の定量

供試木 D1, D4, D7, D8, Y1, Y2, A2 を使用した。樹液中の Ca, K, Mg, Na の定量は原樹液に 10% の塩酸を入れ、各無機イオンに原樹液また 10 倍, 100 倍に希釈して原子吸光度計 (SEIKO 製 SAS-721) により分析した (3.3.4 参照)。

4.3.4 WDXA 及び EDXA による分析

樹液からの沈殿物は試料台の上で乾燥して固定し、炭素蒸着後、SEM 付属の WDXA (農学部作物栄養学室付属) によって結晶の元素構成を加速電圧 15 kV で点分析を行った。またマイクログリットに沈殿物を一滴落として乾燥して固定し、金蒸着後、TEM (日立 H 700 H) 付属の EDXA (工学部超高压電子顕微鏡室付属) によって、微小領域 (粘性の沈殿物、バクテリア等) を加速電圧 200 kV で点・面分析を行った。

4.3.5 酢酸処理による成分分析

供試木は D6 を使用した。WDXA 及び EDXA により樹液から生成された結晶の主成分は後述のようにカルシウムであることが分かったが、これが炭酸カルシウムであるか、シュウ酸カルシウムであるかを確認するために、結晶を酢酸処理した後、偏光顕微鏡で結晶の有無を確認した。

4.3.6 X線回折分析

供試木は D5, D6 を使用した。結晶はアルミニウム試料板に 100 mg 入れ、X線回折装置 (理学電気 Ru 200, 工学部応用化学第四講座所属) により出力 30 kV, 20 mA で平板写真を撮り X線回折図反射法による X線回折を行った。

4.4 樹液の性質

ドロノキ 1 本, チョウセンヤマナラシ 2 本, ウラジロハコヤナギ 1 本計 4 本は (D4, Y1, Y2, A2), 栗山から採取した。辺・心材の樹液からしぼり取った樹液の pH, 有機物, 無機物の量等は樹種クローン, 辺・心材の部位により異なり, これらは Table 10 に示した。

辺材, 心材, 樹皮の樹液の色は Photo 62~65 に示した。樹皮及び辺材からの樹液の pH は酸性 (5.2~6.0) であり, 心材はドロノキはアルカリ性 (8.5~8.7) であり, チョウセンヤマナラシは弱酸性 (5.6~6.2) であり, ウラジロハコヤナギは辺材より酸性 (4.1~4.2) である。

Table 10. Properties of the sap

Species	Sample	Moisture content (%)	pH	Organic matter (g/l)	Inorganic matter (g/l)	Ca (ppm)	K (ppm)	Mg (ppm)	Na (ppm)
P. m. (D4)	Bark	155	5.2	48	4.8	400	1500	151	5
	S 1	91	5.5	3	1.0	36	130	11	2
	S 2	124	6.2	1	0.4	28	85	7	3
	H 1	211	8.5	1	1.3	10	230	7	2
	H 2	198	8.7	1	1.4	8	330	7	1
	Branch	111	8.4	2	1.5	57	340	26	2
P. d. (Y1)	Bark	134	5.6	99	5.0	440	730	260	4
	S 1	96	5.6	11	0.8	86	260	37	2
	S 2	84	6.0	2	0.3	26	73	6	3
	H 1	144	6.0	3	0.6	36	190	10	2
	H 2	152	6.2	5	1.2	76	440	30	2
	Bark	150	5.6	97	4.4	62	240	30	2
P. d. (Y2)	S 1	125	6.0	3	0.7	30	84	8	1
	S 2	112	5.7	1	0.3	16	34	4	2
	S 3	115	5.7	2	0.3	32	70	11	2
	H	161	5.6	2	0.5	72	290	20	2
	Branch	124	6.2	13	1.6	34	500	17	3
	P. a. (A2)	Bark	102	5.6	100	6.5	260	730	150
S		124	5.2	10	0.8	70	280	24	2
H 1		129	4.2	28	0.8	112	330	35	2
H 2		111	4.2	13	0.8	68	280	18	3
H 3		125	4.1	9	0.8	102	430	35	3
Branch		115	5.4	4	1.4	54	420	38	3

P. m. : *P. maximowiczii*P. d. : *P. tremula v. davidiana*P. a. : *P. alba*

S : sapwood

1, 2, 3, : connected number from outside of wood

H : heartwood

枝は各辺・心材より多少高い値を示した。

樹液の色は樹皮は黒褐色である。ドロノキとチョウセンヤマナラシの樹液の辺材の色は外側が濃く、内側が薄い反面、心材はその中間ほどであった。一方、ウラジロハコヤナギは辺材はオレンジ色で、心材は濃褐色で辺材より心材の樹液の色が濃い。ドロノキ着色心材の樹液の色は意外に薄い傾向がある。

有機物の量は樹皮は48~100 g/lで材に比べ非常に多い。材はドロノキ(辺材1~3 g/l, 心材1 g/l) < チョウセンヤマナラシ (辺材1~11 g/l, 心材2~5 g/l) < ウラジロハコヤナギ (辺材10 g/l, 心材9~28 g/l)の順である。一方、ドロノキとチョウセンヤマナラシの有機物は辺材の外側 > 心材 > 辺材の内側の順であり、ウラジロハコヤナギは辺材より心材が多い。これらのことから樹液中の有機物の量は樹液の色と比例する傾向があると考えられる。

樹液中の全無機物の量は樹皮が4.4~6.5 g/lでもっとも多く、次に着色心材を持つドロノ

キとチョウセンヤマナラシ (Y 1) の心材の内側は 1.2~1.4 g/l で、その他は 1 g/l 以下で樹種により多少差がある。無機成分の内 Ca, K, Mg, Na イオン以外の無機イオンは定量していない。これらの無機成分はどの樹種でも $K > Ca > Mg > Na$ の順であり、これらの各々の成分の量はウラジロハコヤナギに多く、樹液の全無機物の量と比例しない傾向がある。特に Ca の量は一番少ないが、無機物の量はドロノキの着色心材に一番多い。

栗山の外、檜山演習林のドロノキ (D 8) についても同様の試験を行った。檜山演習林のドロノキの含水率は、地上高 0.3 m と 1.3 m で辺材 100 % 内外、心材 200 % 内外であった。このような辺心材のブロックからしぼり取った樹液の pH, 色, 濃度, 有機物の量, 無機物の量を Table 11 に示した。

Table 11. Characteristics of the sap (D8, Sep.)

Sample	Height (m)	Moisture content (%)	pH	Color	Turbidity	Organic matter (ppm)	Inorganic matter (ppm)
S1	0.3	98	6.3	Light Gray	Clear	1850	610
S2	"	92	6.8	"	"	780	460
H1	"	211	7.5	Brownish Gray	Turbid	2940	4470
H2	"	192	7.5	"	"	2300	3690
S1	1.3	110	6.4	Light Gray	Clear	2040	900
S2	"	96	6.9	"	"	640	750
H1	"	206	7.6	Brownish Gray	Turbid	2970	4840
H2	"	199	7.7	"	"	2220	4070

S1: outside of sapwood
S2: inside of sapwood

H1: outside of heartwood
H2: inside of heartwood

辺材の樹液の色は淡灰白色、心材は淡褐色であり、濁度は 9 月と 6 月に採取したのは心材の樹液は濁っている反面辺材は透明であるが、12 月に採取したのは心材が透明で辺材が濁っており、季節により異なった。

樹液の pH は辺材は 6.3~6.9 の範囲で弱酸性であり、心材は 7.5~7.7 の範囲で弱アルカリ性である。有機物は、辺材の外側 1850~2040 ppm, 内側 640~780 ppm, 心材の外側 2940~2970 ppm, 内側 2200~2300 ppm の範囲であり辺材より心材で多く、辺心材とも内側より外側に量が多い傾向があった。無機物は、辺材では有機物より少ない反面心材では有機物より多かったので、無機物は心材で急激に増加することがわかる。またこの無機物の原子吸光分析を行った結果を Table 12 に示した。

Ca, K, Mg, Na 以外の無機物は定量していないが特に注目したいのは K が多いことである。すなわち、K は辺材ではおよそ 100~500 ppm の範囲で Ca, Mg, Na より約 10 倍多く、一方心材はおよそ 1200~1500 ppm の範囲で他の Ca, Mg, Na より約 10~100 倍多い傾向があった。K, Mg をはじめ全体の無機物は、辺材より心材で相当の量が増加する傾向があったが、

Table 12. Inorganic constituents of the sap

(D8, Sep.)

Sample	Height (m)	Ca (ppm)	K (ppm)	Mg (ppm)	Na (ppm)
S 1	0.3	37	102	10	31
S 2	"	60	460	40	46
H 1	"	53	1287	93	15
H 2	"	151	1276	104	16
S 1	1.3	20	139	12	25
S 2	"	60	500	31	32
H 1	"	36	1594	123	17
H 2	"	15	1230	84	11

S1: outside of sapwood
S2: inside of sapwood

H1: outside of heartwood
H2: inside of heartwood

Na の場合はむしろ心材で少なく、また Ca は辺・心材の量が一定ではなかった。

4.5 樹液の季節的变化

季節による樹液中の無機物 (Ca, K, Mg, Na) の変動結果は Table 13 と Fig. 13 のとおりである。ドロノキについて、3月 (D5)、6月 (D4)、9月 (D8)、12月 (D1) の4時期に

Table 13. Inorganic constituents in the sap

(Height: 1.3 m)

Season	Sample	Ca (ppm)	K (ppm)	Mg (ppm)	Na (ppm)
March (D7)	S 1	43	70	9	3
	S 2	43	120	11	4
	H 1	16	500	30	4
	H 2	30	510	24	5
June (D4)	S 1	36	130	11	2
	S 2	28	85	7	3
	H 1	10	230	7	2
	H 2	8	330	7	1
September (D8)	S 1	20	139	10	25
	S 2	60	500	31	32
	H 1	36	1594	123	17
	H 2	15	1230	84	11
December (D1)	S 1	32	100	11	4
	S 2	36	120	13	3
	H 1	41	750	26	4
	H 2	16	700	15	5

S1: outside of sapwood
S2: inside of sapwood

H1: outside of heartwood
H2: inside of heartwood

ついて調べた。

樹液中には4時期ともKがもっとも多く、Naは9月を除きごくわずかの量が含まれている。K、Mgのイオンは辺材より心材に多く、一方CaとNaはむしろ心材より辺材に多い。また、季節による全般的な無機物の量は9月にもっとも多く、6月にもっとも少ない傾向があった。

4.6 樹液からの結晶の成長

濃度を一定にしてバクテリアの有無、温度、時間を追って追跡された結果を Fig. 14~Fig. 17 に示した。

辺・心材の樹液は次のようにいろいろな条件を設定した。バクテリア(有・無)、温度

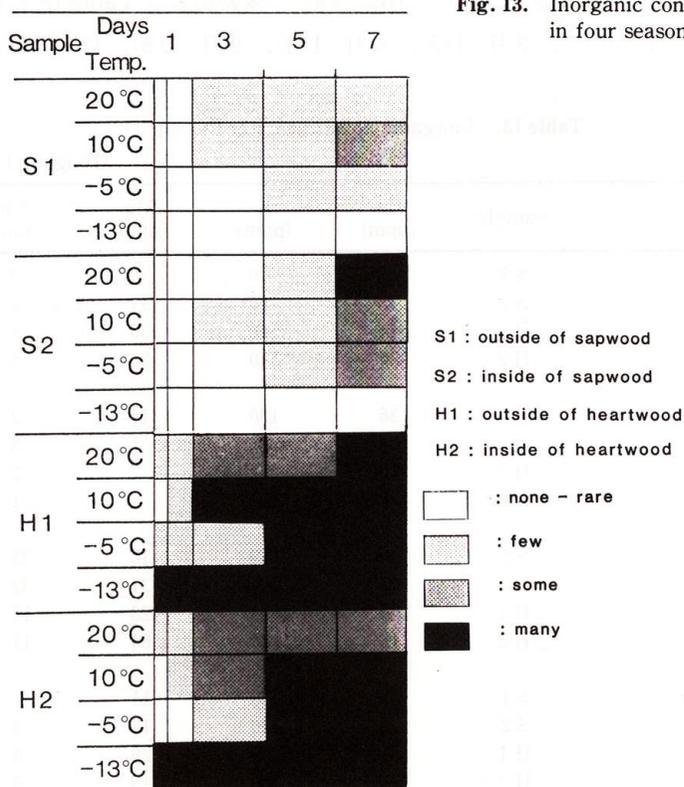


Fig. 14. Growth of crystal number appeared in the sap which were placed under various temperatures without sterilizing.

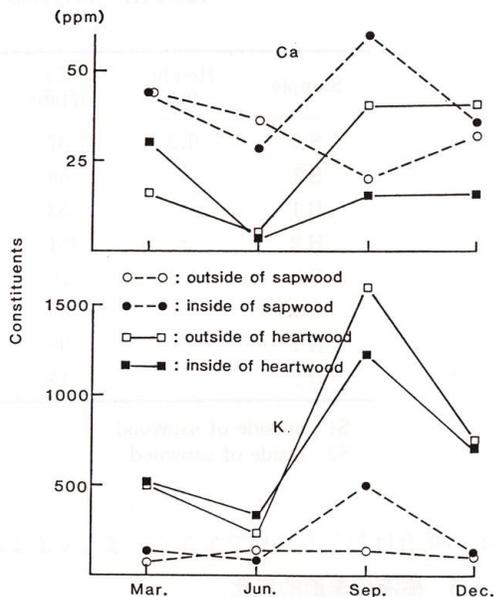


Fig. 13. Inorganic constituents of the sap in four seasons.

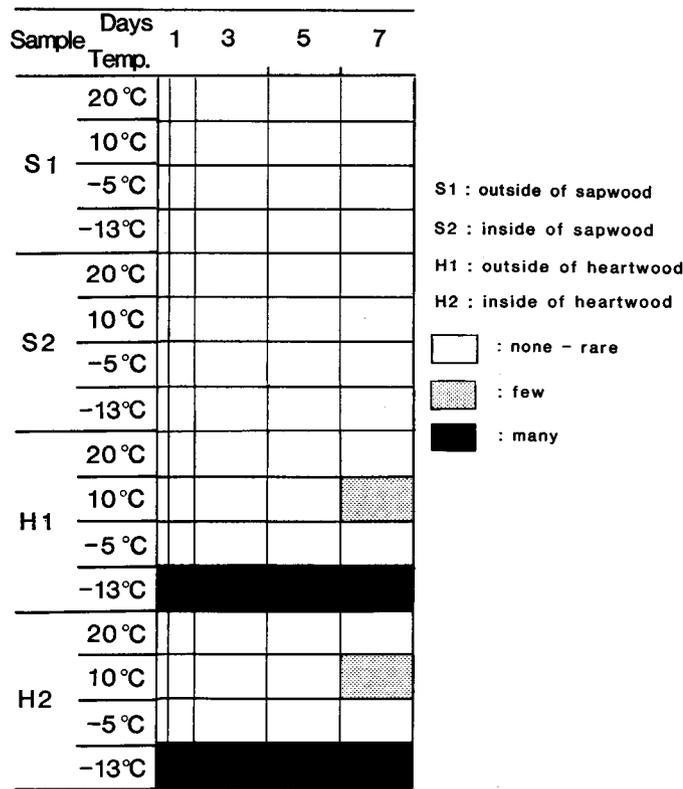


Fig. 15. Growth of crystal number in the sap which were placed under various temperatures after sterilization.

(-13°C, -5°C, 10°C, 20°C), 濃度(原液, 原液の30%, 50%, 70%濃縮), pH(酸性である辺・心材の原液はアルカリ性に, アルカリ性である心材の原液は酸性に), 時間の経過(6時間, 1日, 3日, 5日, 7日)等である。結晶の数の成長は Fig. 14, 15 のとおりである。

辺・心材の樹液は-13°Cで放置すると, 30分以内に全部凍る。一方-5°Cではただ辺材の一部が部分的に氷になっていた。

辺材の樹液には最初バクテリアが殆どない。さらに, これらの辺材の樹液を直ちに無菌にすると, Fig. 15 のようにどの条件でも結晶は生成されない。しかし無菌処理をほどこしていない辺材の樹液は Fig. 14 のように温度と時間の経過により結晶の生成が異なった。すなわち, -13°Cでは時間が経過しても結晶は生成されなかった。しかし-5°Cから20°Cでは5日までわずかの結晶が生成され, 7日目は突然温度と部位により結晶の生成頻度が目立ち, 特に辺材の内側の20°Cでは結晶の粒子が非常に数多く生成された。

心材の樹液には最初からある程度バクテリアがあったが, 無菌にすると Fig. 15 のように, -13°Cに冷凍した樹液のみ結晶が数多く生成及び成長され, ほかの温度にしたものは殆ど

結晶が生成されなかった。 -13°C にした樹液のみ結晶が多く析出されたことは、冷凍の時、樹液の中でも濃度が低いものが先に凍るため、樹液が完全に凍る前過飽和度の濃度になったのが瞬間的に結晶になったと考えられる。

無菌処理を施していない心材樹液では、Fig. 14のように時間が経過するとどの温度でも結晶が生成され、その成長は温度、時間の経過により異なった。すなわち、 -13°C では1日から、 20°C と 10°C では3日から、 -5°C では5日から結晶が数多く見られた。時間の経過によると、 -13°C では変わらず、 20°C 、 10°C 、 -5°C では時間が経過すると増えるが、温度が高い順にそれぞれある時期になると殆ど結晶が増加しなくなる傾向があった。 -13°C では樹液が完全に凍る前に結晶になり、氷になった後は分子、バクテリア等も活動できないので結晶の生成も停止すると思われる。従って時間が経過しても結晶の生成はされないと考えられる。

上記の条件の辺・心材の樹液から成長された結晶の大きさは Fig. 16, 17 のとおりである。

辺材の樹液から析出された結晶の大きさはどの温度でもまた、時間が経過しても $1\mu\text{m}$ から数 μm の粒子ばかりである。一方、心材の樹液から 20°C で析出された結晶の大きさは時間が経過しても $1\mu\text{m}$ 以下から数 μm のほどである粒子ばかりであった。 10°C 、 -5°C に放置した心

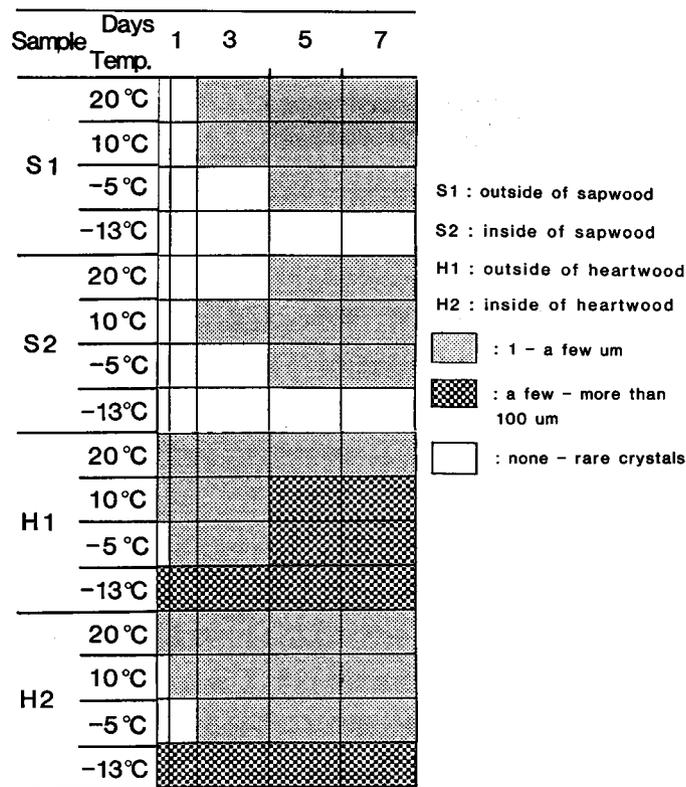


Fig. 16. Growth of crystal size appeared in the sap which were placed under various temperatures *without sterilizing*.

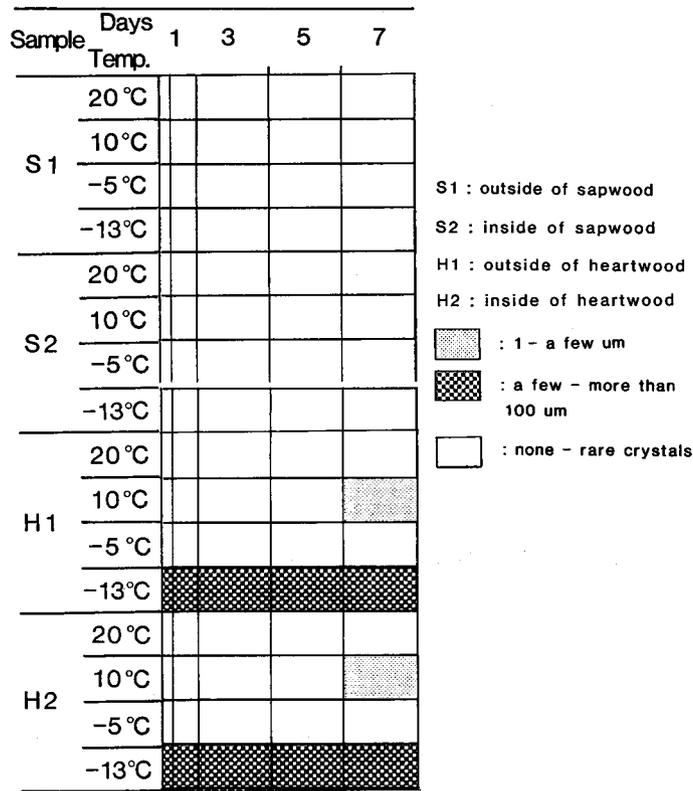


Fig. 17. Growth of crystal size in the sap which were placed under various temperatures after sterilization.

材の樹液は3日までは析出されても、同じような粒子ばかりであったが、5日目から心材の外側の樹液で析出されたものは1 μm から 100 μm ほどで突然大きく成長した。しかし、心材の内側で析出された結晶の大きさは細かい粒子ばかりで、あまり結晶の成長が見られなかったのは Fig. 18 のように最初の Ca の量が少ないことによるのであろう。また、-13°C に放置したのは心材の内側より外側の樹液から析出された結晶の大きさが大きい傾向があり、これらの大きさは 1 μm から 100 μm ほどである。

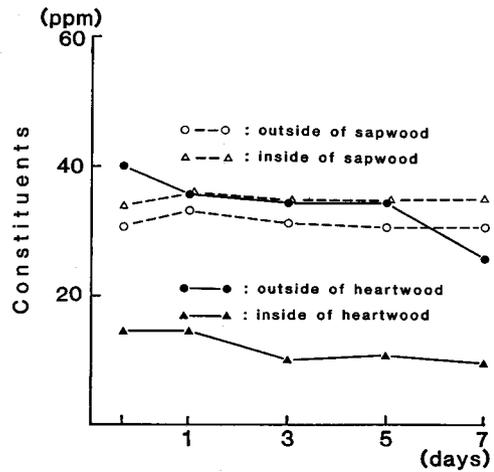


Fig. 18. Calcium constituents in sap on the passage of time.

無菌処理を施していない辺・心材の樹液のカルシウムの最初の量と時間の経過によるカルシウムの量の変動は Fig. 18 のとおりである。最初のカルシウムの量は、心材の内側がおよそ 14 ppm と少なく、心材の外側と辺材では 30~40 ppm ほどであった。また、これらの樹液中にあるカルシウムの量は、時間の経過により結晶が多く析出した樹液の順に減少する傾向がみられた。

図、表には示していないが、濃度は高いほど結晶の成長が早い。また辺材の酸性の樹液には KOH を加えてアルカリ性にしても結晶の成長はほとんど変わらず、一方、心材のアルカリ性の樹液には HCl を加えて酸性にすると結晶の成長が悪くなる傾向があった。

4.7 樹液からの沈着物

試験管に樹液をいれてから数日が経過すると 20°C 次に 10°C、の順、またある程度の期間が過ぎると -5°C で放置した試験管の壁に白い粘性の沈着物が形成された。これらの沈着物の最初の形成速度は辺材より心材が速い傾向があった。

4.7.1 光学顕微鏡及び位相差顕微鏡による観察

光学顕微鏡では粘性の沈着物の中には 1 μm ほどのバクテリアの群がもっとも多く観察され、グラム染色によりグラム陽性であることが確認された。

位相差顕微鏡ではこれらのバクテリアの群がもっと鮮明に観察された。バクテリアの先端にはしばしば糸状のようなものと結晶が付着しているのが認められた (Photo 74)。結晶は偏光板を掛けてさらに確認した。またバクテリアのようなものが光るのがしばしば観察された (Photo 75)。

4.7.2 成分分析

粘性の沈着物及びバクテリアの EDXA による無機成分分析の結果 Ca, Si, Al, Fe, K, Mn 等が検出された。しかし粘性の沈着物には、無機物のほかバクテリア、有機物などが含まれると考えられる。バクテリアはタンパク質と思われるが、その他、有機物については研究されていない。

4.8 樹液から成長した結晶

4.8.1 結晶の形と大きさ

樹液から析出された結晶の形は方形、砂晶または方形のものに方形及び砂晶が付着しているものであった。粘性の沈着物に覆われている結晶は偏光顕微鏡で確認できた (Photo 68)。SEM によると結晶が沈着物に覆われたものは全体が大きな 1 つの固まりになって結晶の形はよく見られなかった。結晶の大きさは 1 μm から 100 μm ほどであり、これらは前述のように樹液の条件により、異なる大きさの結晶が析出された (Photo 66~70)。

4.8.2 結晶の無機成分

樹液から析出された結晶は EDXA により点・面分析した結果主成分は Ca であり、また、時々わずかの Si, Al, Fe, K, Mn などが検出された。

筆者は2章で炭酸カルシウムは酢酸に溶けるが、シュウ酸カルシウムは溶けないことからドロノキの着色心材中にあるカルシウムの結晶が炭酸カルシウムであることを確認した。樹液から析出された結晶も上記の方法で試験した結果、同じ炭酸カルシウムであることが判明した。

4.8.3 結晶の構造

樹液から析出された結晶及び沈着物はX線ビームを照射し、X線回折分析を行った。これらの回折写真は鋭い回折点が同心円状に広がり、微細な単結晶が無配列に集まった状態を示唆した。また、X線回折図反射法による主な回折点の回折角 2θ は41.0, 35.6, 34.0, 32.5, 31.6, 30.1, 29.2, 28.1, 26.9, 24.1, 14.4, 13.9で、それぞれに対応する面間隔 d は2.200, 2.520, 2.639, 2.753, 2.830, 2.967, 3.057, 3.174, 3.313, 3.691, 6.148, 6.368 Åである。これら

Table 14. Comparison of X-ray diffraction data of mineral deposits in vessel elements of Japanese poplar heartwood, and those of calcium carbonate listed in JCPDS file

Observed d-spacing	Values of CaCO ₃		
	Calcite	Vaterite	Aragonite
3.691	3.86		
3.313		3.577	
3.174			3.396
		3.296	
3.057	3.035		3.273
2.967		2.735	
2.830			2.700
2.753	2.495		
2.639			
2.520			2.481
			2.409
			2.372
			2.341
2.200	2.285		2.188
			2.106
	2.095		
		2.065	
			1.977
	1.913		
			1.882
			1.877
	1.875		
		1.825	
			1.814

の面間隔を、炭酸カルシウムの結晶多形、すなわちカルサイト、バテライト及びアラゴナイトと対比すると (Table 14), 観察された回折点はカルサイトが多いが、カルサイト以外の回折点もみられた。筆者は2章でドロノキの材中にある結晶は炭酸カルシウムでカルサイトの構造であると記述した。しかし、材中の結晶は結晶のみの分析であり、樹液から析出した結晶は粘性の沈着物とともに分析したので、ほかの不純物も入ったためピークがきれいに出なかったと思われる。

4.9 考 察

9月におけるK, Caの心材における増加は、水食い材の形成及び結晶の成長と大きく関係があると思われる。このようなミネラルの集積が先か、水分の上昇が先か問題は残るが、次のように考えてみた。

ドロノキの落葉の前に葉の中に蓄えられた無機質は枝の組織を通じて木部の内部に降りてくる。これは無機質の自然系における循環として重要である。この無機質が土壌に戻れば循環系としては保たれるのであるが、ドロノキの場合、材中にとどまり、特に心材形成時の材部に次のような影響を与える。

- 1) 浸透圧上昇のため水の移動が生じる。

浸透ポテンシャル説: WORRAL(1987), 石井 (1987)

- 2) 有機酸の中和, もしくはアルカリ性にする

水分の移動とバクテリアの因果関係もどちらが先かはっきりしないが、バクテリアの壁孔壁破壊による水食い材の形成については前章で考察した。

樹液からの結晶が成長するための条件をいろいろ調べてみた結果、次の4つが主要な要因となることが分かった。

すなわち, 1) 樹液の無機濃度 (Ca, K) が高いこと

- 2) アルカリ性であること
- 3) バクテリアが存在すること
- 4) 温度が低いこと, である。

1), 2)は樹液の基本的な性質の条件であり, 前述したとおり秋期 (9月頃) になり, またこの時期は樹木の心材形成時期と一致する (山本, 1982)。

バクテリアの存在と結晶成長への関与は炭酸源という見方から有力である。中国南部における炭酸カルシウム (カルサイト) からなる岩石の堆積は有名であるが, これは太古の時代の海中のCaと微生物によるCO₂との結合であり, それが堆積したものとされている (NHK TV)。

温度が低いという条件は結晶の成長の上で過飽和の状態を作り出すことにある。1), 2), 3)の条件の存在下で比較的低温となる季節のある時期に樹液から結晶成長がいつに速やかに生ずることが考えられる。このように考えると当年形成された水食い材の最外側にリング状

に結晶を含む細胞列が並ぶ理由が説明されそうであり、かつ前章に述べた人工心材の形成実験からも立証されると考えられる。

第5章 総括と結論

ドロノキは軽軟な材であるが、昔から経験的に刃物の損耗が著しいといわれ、利用上難点を持つ樹種とされてきた。本論文でその原因は主に心材中にある炭酸カルシウムの結晶であることを明らかにした。

本研究はドロノキ、チョウセンヤマナラシ、ウラジロハコヤナギの材中にある結晶の分布、構造及び性質、組織構造特性あるいは水食い材との関連について調査し、炭酸カルシウムの結晶の生成及び成長についてモデル実験を行ったものである。

第2章では、ドロノキ、チョウセンヤマナラシ、ウラジロハコヤナギの材中にある結晶について調査した。

結晶の出現とその頻度、形、成分等は次のように樹種、クローンにより異なっていた。

ドロノキの心材中にある結晶は注意して見ると肉眼でも白く見えるほど多く、どの供試木のどの地上高でも心材の中に一部の年輪に沿って濃く着色されたムラの一部に集中して、リング状に現れ、髓に近いほど、また一つの年輪の中では晩材より早材に多い傾向があった。結晶は全種類の細胞（道管要素、繊維状仮道管、放射柔細胞、柔細胞など）の中に認められたが、その中でも大部分の結晶は道管と繊維状仮道管に存在した。結晶の形はおおむね幾何学的な不定形状でこれらの結晶が固まりになっているのが多く、一つ一つ散在している結晶は方形、砂晶等であった。一方、ドロノキの辺材にはまばらにガラスが割れたような結晶または結晶の固まり等が認められた。

これらの全ての結晶の裏側は平らな沈着物で細胞の内壁の構造の跡型が写された。結晶の大きさは $1\mu\text{m}$ から数 $10\mu\text{m}$ である。着色心材にある結晶はカルサイトの構造の炭酸カルシウムであり、樹皮及び辺材の柔細胞にある結晶はシュウ酸カルシウム一水塩であることが分かった。

第3章では、ドロノキ、チョウセンヤマナラシ、ウラジロハコヤナギ材の組織構造や無機成分を主体にした化学成分を明らかにし、特に水食い材の特性と結晶との関連について考察した。

樹種またはクローンによる着色心材部の現れるのが異なるが、大部分の着色部は水食い材を形成した。

ドロノキは同心円状の着色心材の全体が水食い材になっている。チョウセンヤマナラシはクローンにより異なる。すなわち、不規則な着色心材を持つものは着色心材のみ部分的に水食い材であり、同心円状の淡色心材を持つものは心材が少ないながら全体が水食い材であった。

ウラジロハコヤナギの心材は連続的な濃淡のムラがある同心円状で、濃色部が部分的に水食い材を示した。

ドロノキの水食い材には結晶、チロース、バクテリア等が多く認められ、バクテリアによる壁孔壁及び細胞間層、チロースパッドの破壊などが観察され、またチロースがある道管には結晶が非常に少ない傾向があった。一方、チョウセンヤマナラシは着色心材のチロースがある道管の一部に結晶が集中する傾向があり、ウラジロハコヤナギは辺・心材に関係なく、ピスフレックの一部に結晶が認められた。

第4章では、ドロノキ辺・心材中の結晶化の過程について樹液からの結晶生成及び成長のモデル実験を行って考察した。

ドロノキの樹液は試験管の中での時間が経過すると壁に白い粘性の沈着物が見え、その中に結晶が成長されるのが今回の実験で明らかになった。粘性の沈着物の中には多数のバクテリアのほか結晶などが見られ、これらはSEMの観察によると材中の沈着物と形が似ている。また、樹液から成長した結晶の成分も材中の結晶と同じく、カルサイト構造の炭酸カルシウムであることを確認した。

結晶の生成及び成長経過は伐採後直ちに搾った辺・心材の樹液をいろいろの条件下に置き時間を追って追跡された。バクテリア(有, 無), 温度(-13°C, -5°C, 10°C, 20°C), 時間の経過(1日, 3日, 5日, 7日), 濃度(30%, 50%, 70%濃縮, pH(酸性はアルカリ性に, アルカリ性は酸性に)などである。

バクテリアが殆ど存在しない辺材の樹液は無菌にすると、どの条件でも結晶は生成しない。しかしながら無菌処理を施していない樹液では、20°Cで時間の経過により結晶が多数成長した。心材の樹液には最初からある程度バクテリアがあったが、無菌にするとただ-13°Cに冷凍した樹液のみ結晶が数多く成長し、これは、冷凍の時、樹液の中でも濃度が低いのが先に凍るため、樹液が完全に凍る前過飽和度の濃度になったのが瞬間的に結晶になると考えられる。無菌処理を施していない心材樹液では、どの温度でも結晶が成長され、その成長は温度、時間の経過により異なった。-13°Cではかわらず、20°C, 10°C, -5°Cでは時間が経過すると増えるが、温度が高い順にそれぞれある時期になると殆ど一定になる傾向があった。-13°Cでは樹液が完全に凍る前に結晶になり、氷になった後は分子、バクテリア等が動けないので結晶の生成及び成長も停止するので時間が経過しても変わらないと考えられる。

結晶の大きさは樹液の温度、濃度、部位により異なった。20°Cまたは辺材の樹液から析出した結晶の大きさは1 μm から数 μm の粒子ばかりであるが、10°C以下または心材の樹液から析出したのは1 μm から100 μm ほどで大きい。

ドロノキの樹液に含む無機物の濃度は秋が最も高く、夏が最も低い傾向があった。また、結晶になるカルシウムのイオンは樹液には心材の内側が最も少ないが、材では一番多い。これは樹液にあるカルシウムのイオンが、炭酸カルシウムの結晶になり樹液には検出されないこと

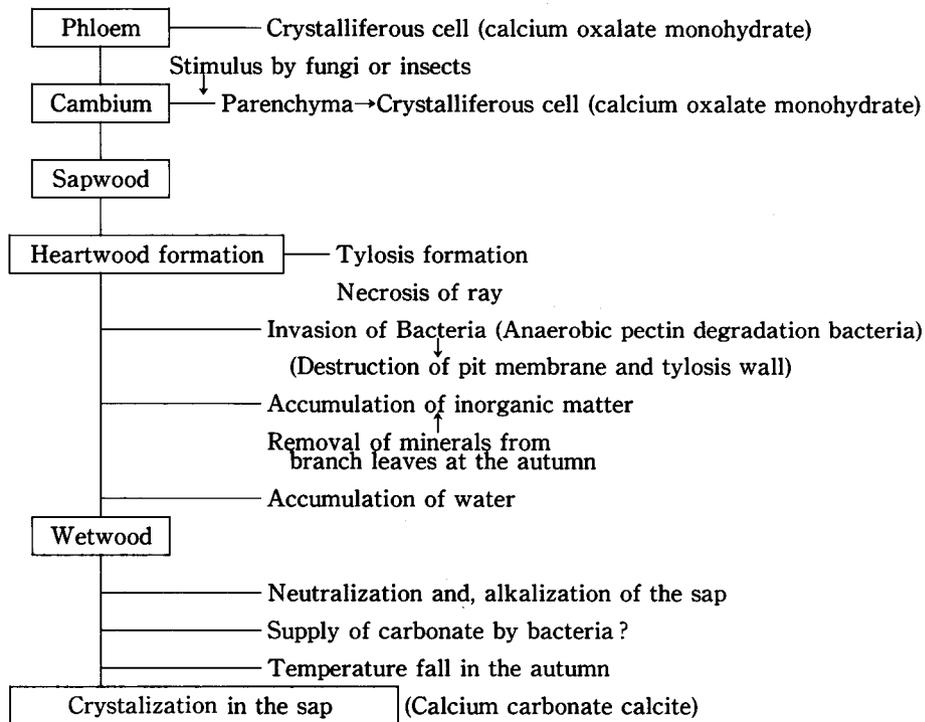
を示している。

ドロノキ心材はバクテリアによる壁孔壁などの破壊と無機質の浸透圧ポテンシャルを原因とする水食い材と定義される。この水食い材は主に晩夏から秋に形成されると思われるが、その当年形成部の外側に樹液中のカルシウムとバクテリアによる炭酸ガスの供給及び低温の条件により全く物理的にほぼ同じ時期に結晶が生成及び成長することが明らかになった。

モデル実験から結晶成長条件が分かり、季節の変化、すなわち温度、無機物の濃度等から時期的に多くの結晶は秋以後に析出されると推測でき、これらはさらに人工心材の形成から確認された。

本研究の結果ハルニレ、ヤチダモ等の多湿心材の形成、水食い材の研究、及び多くの樹種の材中の無機物の集積（結晶、シリカ）の研究などに応用できるものと考えられる。

最後にドロノキ心材のカルサイト成長を1つの模式図としてまとめてみた。



The calcite growth in the wetwood of *Populus maximowiczii*

謝 辞

本研究は、昭和57年9月から昭和63年1月にわたり行ったものである。その間、終始懇篤な御指導を賜った北海道大学農学部林産学科木材理学講座の深沢和三教授並びに石田茂雄名

誉教授に対し、謹んで感謝の意を表す。また、同講座の大谷諄助教授、今川一志前助手(現、農林水産省林業試験場東北支場造林第1研究室長)、高部圭司助手には、具体的研究手法について多大な御協力を頂いた。研究を進めるにあたり、専門的な立場から御指導頂いた新潟大学教育学部谷口隼教授、北海道大学農学部附属演習林研究部氏家雅男教授、同大学低温科学研究所黒田登志雄助教授、同大学農学部農芸化学科応用菌学講座吉田忠助教授、同学部林産学科林産製造学講座小島康夫助手、寺沢実助教授、三浦清助手に対し、厚く謝意を表す。

供試木の入手については、栗山町王子製紙株式会社林木育種研究所所長千葉茂氏、野堀嘉裕氏、永田義明氏に終始御世話になった。記して感謝の意を表す。その他、研究の遂行にあたり御協力頂いた北海道大学農学部附属檜山地方演習林林長工藤弘助教授、農林水産省北海道林木育種場育種課長片寄隼氏、北海道大学農学部農芸化学作物栄養学講座但野利秋教授、同大学工学部応用化学科第4講座高井光男助手、同大学農学部林産学科木材加工学講座上田恒司助教授、同大学共同利用施設超高压電子顕微鏡室の各位、日本電子株式会社、ソフテックス株式会社の関係各位に感謝する。

さらに、終始御協力頂いた北海道大学農学部林産学科木材理学講座の佐藤真由美氏、呉晋氏を始めとする大学院生、学生諸氏、前川悦子事務員及び常に励まして下さった友人諸氏に対し、深謝する。

文 献

- 1) 相田 浩他4名：応用微生物学，第1巻，朝倉書店，22，23 (1981)。
- 2) BAUCH, J.; HOLL, W.; ENDEWARD, R.: Some Aspects of Wetwood Formation in Fir. *Holzforschung*, **19** (6), 198-205(1975).
- 3) BERTI, R. N.: SEM-EDXA and Inclusions in the Wood of Iroko, Moabi and Odoko. *Cellulose Carta*, **31** (2): 35-48 (1980).
- 4) BLANCHARD, R. O.; SMITH, D.; SHIGO, A. L.; SAFFORD, L. O.: Effects of Soil-applied Potassium on Cation Distribution Around Wounds in Red Maple. *Canad. J. For. Res.*, **8**, 228-231 (1978).
- 5) CHATTAWAY, M. M.: The Occurrence of Heartwood Crystals in Certain Timber. *Aust. J. Bot.*, **1**(1), 27-38 (1952).
- 6) CHATTAWAY, M. M.: Crystals in Woody Tissues Part 1. *Tropical Woods*, **102**, 55-74 (1955).
- 7) CHATTAWAY, M. M.: Crystals in Woody Tissues Part 2. *Tropical Woods*, **104**, 100-124 (1956).
- 8) 千葉 茂：山地造林用ポプラの育種の経過と現況。王子林木育種研究所研究報告，**3**，1-14 (1976)。
- 9) 千葉 茂：山地造林用ポプラ，ドロノキの育種。林木の育種，**130**，22-24 (1984)。
- 10) CLEMENT, A.; JANNIN, G.: Etude Complementaire de la Presence de Cristaux de Carbonat de Calcium dans le Bois des Peupliers Existence de Cing Zones Fonctionnelles Reernnuées a Partir de Leurs Teneurs en Phosphore. *Ann. Sci. For.*, **30**(1), 63-81 (1973).
- 11) CODY, A. M.; HORNER, H. T.; CODY, R. D.: SEM Study of the Fine Surface Features of Synthetic Calcium Oxalate Monohydrate Crystals. *Scanning Electron Microscopy*, vol. 1982 Part 1, 185-197 (1982).
- 12) COSENZA, B. J.; MCCREARY, M.; BUCK, J. D.; SHIGO, A. L.: Bacteria Associated with Discolored

- and Decayed Tissues in Beech, Birch and Maple. *Phytopathology*, **60**, 1547-1551 (1979).
- 13) ELLIS, E. L.: The Effects of Environment and Decay on the Mineral Components of Grand Fir Wood. In *Marine Boring and Fouling Organisms* (Ray, D. L. Ed.). Friday Harbor Symposia., Univ. of Wash. Press, Seattle, (1959).
 - 14) ELLIS, E. L.: Inorganic Constituents. *For. Prod. J.*, **12**, 271-274 (1962).
 - 15) FAHN, A.: *Plant Anatomy*. Second Ed. Pergamon Press, 24-26 (1974).
 - 16) FRANK, E.; JENSEN, William A.: On the Formation of the Pattern of Crystal Idioblasts in *Canavalia ensiformis* DC. *Planta* (Berl.), **95**, 202-217 (1970).
 - 17) FUKAZAWA, K.; UJIE, M.; LEE, K. Y.; ISHII, T.: Inorganic Constituents in Wood in Relation to Wetwood and Crystal Formation. *Proc. Symp. For. Prod. Res. Int. Achiev. and the Future*, (1985).
 - 18) 深沢和三, 李 起泳, 石田茂雄 ポプラ材中の結晶. *軟 X 線の科学*, **1** (2) : 17-24 (1985).
 - 19) FURUNO, T.; CÔTÉ, W. A.: Observation of Cell Inclusions in Papua New Guinea Woods by Means of SEM/EDXA. *I. A. W. A. Bull. n. s.*, **4**(4), 219-236(1983).
 - 20) GRAY, R. L.; ZEEUW, C. H.: *Anatomical Studies in the Genus Vitex* Hagglund E. K. (1951). *Chemistry of Wood.*, Academic Press, 347(1980).
 - 21) GREAVES, H.: The Bacterial Factor in Wood Decay. *Wood Sci. Technol.*, **5**, 6-16(1971).
 - 22) 平井信二: 木の事典, 第 5 巻. ドロノキ①~⑤かなえ書房 (1980).
 - 23) 平田友信, 佐伯 浩, 原田 浩: 南洋材の柔細胞中の結晶及びシリカの走査電子顕微鏡による観察. *京大農演習林報告*, **44**, 194-205 (1972).
 - 24) HOFFMANN, G. C.; TIMELL, T. E.: Polysaccharides in Ray Cells of Normal Wood of Red Pine (*Pinus resinosa*). *Tappi*, **55**(5), 733-736(1972).
 - 25) HORA, B.: *The Oxford Encyclopedia of Trees of the World*. 164-167(1981).
 - 26) IMAMURA, M.: Riboflavine Formation by *Clostridium acetobutylicum*. I. Spectrophotometric Investigation of the Culture. *J. Fermentation Technol. (Japan)*, **32**, 85-90(1954).
 - 27) 石井哲男, 深沢和三: トドマツ水食い材の水分移動に関する研究. *北大演研報*, **44**(4) : 1277-1305(1987).
 - 28) 石田茂雄: トドマツ樹幹の凍裂の発生機構, 特にその水食い材との関連について. *北大演研報*, **22** (2), 273-374. (1963).
 - 29) JANIN, G.; CLEMENT, A.: Mise en Evidence de Cristaux de Carbonate de Calcium dans le Bois des Peupliers. Consequences sur la Repartition des Ions Mineraux Liee a la Duraminisation. *Ann. Sci. Forest*, **29**(1), 67-105(1972).
 - 30) JENSEN, W. A.: *Botanical Histochemistry*. W. H. Freeman and Company, 261(1962).
 - 31) JONGEBLOED, W. L.; JOTTE, C. M.: X-Ray Projection Microscopy of Crystals in Tropical Heartwood. *Holzforschung*, **19**, 36-42(1965).
 - 32) 化学大辞典編集委員会編: “化学大辞典” 共立出版, 1983, 第 4 巻, p.635, 第 5 巻, p.722.
 - 33) 金子勝治, 新井義夫訳: Staining Procedures (第 4 版), Biological Stain Commission 編. 藤田企画出版, 1985, p.295-298.
 - 34) KELLOGG, R. M.; ROWE, S.: An Anatomical Method for Differentiating Woods of Western and Mountain Hemlock, A Research Note. *Wood and Fiber*, **13**(3), 166-168(1981).
 - 35) KENNEDY, R. W.; SASTRY, C. B. R.; BARTON, G. M.; ELLIES, E. L.: Crystals in the Wood of the Genus *Abies* Indigenous to Canada and the United States. *Can. J. Bot.*, **46**, 1221-1228 (1968).
 - 36) KONSTANTINOV, V. V.: Microscopic Investigation of the Reaction of Ground Quicklime with Water. *Izvest. Akad. Nauk Kazakh. S. S. R., Ser. Gornogo Dela, Met. i Stroimaterial.*, **5**, 58-62(1955).
 - 37) 国際木材解剖学者連合用語委員会: 国際木材解剖用語集, 木材学会誌, **10** (4), 154 (1964).
 - 38) 黒田登志雄: 結晶は生きている, サイエンス社, 46-82 (1984).

- 39) LAMBERT, M.J.: Inorganic Constituents in Wood and Bark of New South Wales Forest Tree Species. For. Commission of N. S. W. Res. Note, **45**, 1-42(1981).
- 40) LAMBERT, M.J.; TURNER, T.; KELLY, J.: Nutrient Relationships of Tree Species in a New South Wales Subtropical Rainforest. Aust. For. Res., **13**, 91-102(1983)
- 41) 李 起泳, 深沢和三, 石田茂雄: ドロノキ材及び樹皮中の結晶の存在・形態と成分. 北大演研報, **42**(3): 595-608 (1985).
- 42) 李 起泳, 深沢和三, 氏家雅男: ドロノキの無機物と結晶生成との関連. 日本木材学会北海道支部講演集, **16**, 69-72 (1984).
- 43) 李 起泳, 深沢和三, 氏家雅男: チョウセンヤマナラシ, ウラジロハコヤナギ, ドロノキの水食い材, 日本木材学会北海道支部講演集, **17**, 45-48 (1985).
- 44) 李 起泳, 深沢和三: ドロノキ材の結晶と細胞組織及び有機物との関連. 日本木材学会北海道支部講演集, **18**, 1-4 (1986)
- 45) LOWENSTAM, H. A.: Minerals Formed by Organisms. Science, **211**, 1126-1131(1981).
- 46) MAYER, H. J.: Wach Stumsgeschwindigkeit von Calcit aus Wasserigen Losungen. J. Crystal Growth, **47**, 21-28(1979).
- 47) MAYER, H. J.: The Influence of Impurities on the Growth Rate of Calcite. J. Crystal Growth, **66**, 639-646(1984).
- 48) MENNEGA, A. M. W.: Stem Structure of the New World Menispermaceae. J. Arnold Arbor., **63**(2), 145-171(1982).
- 49) 微生物研究法懇談会: 微生物学実験法, 講談社, 444, 445 (1976).
- 50) MONAGHAN, P. H.; LYTLE, M. L.: The Origin of Calcareous Ooliths. J. Sediment. Petrol. **26**(2): 111-118(1956).
- 51) MUHAMMAD, A. F.; MICKO, M. M.: Accumulation of Calcium Crystal in the Decayed Wood of Aspen Attacked by *Fomes igniarius*. I. A. W. A. Bull. n. s., **5**(3), 237-241(1984).
- 52) MURDOCH, C. W.; CAMPANA, R. J.: Bacterial Species Associated with Wetwood of Elm. Phytopathological Society, **73**(9), 1270-1273(1983).
- 53) MURDOCH, C. W.; CAMPANA, R. J.; BIERMANN, C. J.: Physical and Chemical Properties of Wetwood in American Elm (*Ulmus americana*). Can. J. Plant Pathol., **9**, 20-23(1987).
- 54) 中野準三, 樋口隆昌, 住本昌之, 石津 教: 木材化学. ユニ出版, 11-13 (1983)
- 55) NANKO, H.; SAIKI, H.; HARADA, H.: Cell Wall Development of Chambered Crystalliferous Cells in the Secondary Phloem of *Populus euramericana*. Bull. Kyoto Univ. For., **48**, 167-177(1976).
- 56) NICHOLLS, J. W. P.: Wood Qualities in Poplar from northern Victoria. Australian Forestry, **36** (2), 91-99(1973).
- 57) 日本化学会: 化学便覧基礎編. 丸善, 第1巻, 101, 262 (1966).
- 58) 西田屹二: 木材化学工業, 朝倉書店, 上巻, 32 (1946)
- 59) NOBUCHI, T.; HARADA, H.: Ultrastructural Changes in Parenchyma Cells of Sugi (*Cryptomeria japonica* D. Don) Associated with Heartwood Formation. Mokuzaï Gakkaishi, **31**(12), 965-973 (1985).
- 60) ODA, K.; NAKASONE, H.: Crystals and Crystalliferous Cells in Okinawan Hardwoods. Sci. Bull. Coll. Agric. Univ. Ryukyus, **22**, 713-720(1975).
- 61) ODA, K.; NAKASONE, H.: Distribution of Calcium Oxalate Crystals in the Stem of Some Species Grown in Okinawa. Mokuzaï Gakkaishi, **22**(12), 703-706(1976).
- 62) PARAMESWARAN, N.; LIESE, W.: Crystal-Containing Walls of Spicular Cells in Welwitschia. I. A. W. A. Bull. n. s., **4**, 87-89(1979).
- 63) PERNG, W. R.; BREBNER, K. I.; SCHNEIDER: Aspen Wood Anatomy and Fluid Transport. Wood

- and Fiber Sci., 17(2), 281-289(1985).
- 64) PHELPS, J.; MCGINNES, E. A. Jr.; SANIEWSKI, M.; PIENIAZEK, T.; SMOLINSKI, M.: Some Anatomical Observations on the Effect of Morphactin IT 3456 and Ethrel on Wood Formation in *Salix fragilis* L. For. Prod. Abstr., 3, 1221(1980).
- 65) RABIGER, F. H.: Untersuchungen an Einigen Acanthaceen und Urticaceen zur Funktion Dercystolithen. Planta, 40, 121-144(1951).
- 66) RICHTER, H. G.: Occurrence, Morphology and Taxonomic Implications of Crystalline and Siliceous Inclusions in the Secondary Xylem of the Lauraceae and Related Families. Wood Sci. Technol., 14(1), 35-44(1980).
- 67) 理学電気株式会社: X線回折手引, 1981, 75-95.
- 68) RIRIE, D.; TOTH, S. J.: Plant Studies with Radioaction Calcium. Soil Sci., 73: 1-10(1952).
- 69) ROSSEL, S. E.; ABBOT, E. G. M.; LEVY, J. F.: Bacteria and Wood a Review of the Literature Relating to the Presence, Action and Interaction of Bacteria in Wood. (1971).
- 70) SABASTIAN, L. P.; SASTRY, C. B. R.: Vessel Closures in Sugar Maple. Wood Sci., 6(3), 237-244(1974).
- 71) SACHS, I. B.; WARD, J. C.; KINNEY, R. E.: Scanning Electron Microscopy of Bacterial Wetwood and Normal Heartwood in Poplar Trees. Scanning Electron Microscopy (Part II). Proc. Work. S. E. M. Plant. Sci., Chicago, 453-460(1974).
- 72) SAIKI, H.: SEM Studies on Silica Inclusions in Woods from Tropical Asia. Mem. Coll. Agric. Kyoto Univ., 127, 13-27(1985).
- 73) 島地 謙, 須藤彰司, 原田 浩: 木材の組織, 森北出版, 1976, 166, 175.
- 74) 島地 謙, 伊東隆夫: 図説木材組織, 地球社, 1982, 32, 33.
- 75) SCHINK, B.; WARD, J. C.; ZEIKUS, J. G.: Microbiology of Wetwood. Role of an Anaerobic Bacterial Populations in Living Trees. J. General Microbiology, 123, 313-322(1981).
- 76) SCHINK, B.; WARD, J. C.; ZEIKUS, J. G.: Microbiology of Wetwood. Importance of Pectin Degradation and *Clostridium* Species in Living Trees. Appl. Environ. Microbiology, 42(3), 526-532(1981).
- 77) SCOTT, E. S.: Populations of Bacteria in Poplar Stems. Eur. J. For. Path., 14, 103-112(1984).
- 78) SCURFIELD, G.; MICHELL, A. J.; SILVA, S. R.: Crystals in Woody Stems. Botan. J. Linnean Soc., 66(4), 277-289(1973).
- 79) SCURFIELD, G.; SENGNIT, E. R.; ANDERSON, C. A.: Silicification of Wood. Scanning Electron Microscopy (Part II). Proc. Work. S. E. M. Plant. Sci., Chicago, 389-396(1974).
- 80) SHIGO, A. L.; HILLIS, W. E.: Heartwood, Discolored Wood, and Microorganisms in Living Trees. Phyto-pathology, 11, 197-222(1973).
- 81) 七里公毅: 平衡石の成長, 日本結晶成長学会誌 12 (1 & 2), 42-56 (1985).
- 82) SHICHIRI, T.: Growth of Statoliths in Goldfish. J. Crystal Growth, 78, 493-501(1986).
- 83) STEWART, C. M.: Detoxication During Secondary Growth in Plants. Nature, 186, 374-375(1960).
- 84) TANIGUCHI, T.; HARADA, H.; NAKATO, K.: Mineral Deposits in Some Tropical Woody Plants. Ann. Bot., 50: 559-562(1982).
- 85) 谷口 麟, 李 起泳, 深沢和三, 原田 浩: ドロノキ細胞中のカルシウム沈澱物の構造, 木材学会誌, 33(1), 1-6 (1987).
- 86) TIEDEMANN, G.; BAUCH, J.; BOCK, E.: Occurrence and Significance of Bacteria in Living Trees of *Populus nigra* L. Eur. J. For. Path., 7, 364-374(1977).
- 87) TOGARI, K.; TOGARI, S.: Conditions Controlling the Crystal Form of Calcium Carbonate Minerals (1). J. Fac. Sci. Hokkaido Univ., 4(1), 55-65(1955).
- 88) TULAIKOVA, K. P.: The Separation of Calcium Carbonate Crystals by Bacteria of the Rhizosphere.

- Agrobiologiya, 4, 43-51(1952).
- 89) WARD, J. C.; ZEIKUS, J. G.: Bacteriological, Chemical and Physical Properties of Wetwood in Living Trees. Mitteilung des Bundesforschungsanstalt für Forstu., 131, 133-166(1980).
- 90) WARD, J. C.: Influence of Wetwood on Pulsed Current Resistance in Lumber Before and During Kiln-drying. Wood and Fiber Sci., 16(4), 598-617(1984).
- 91) 和田浩爾: 二枚貝殻石灰化における CaCO_3 結晶の成長. 日本結晶成長学会誌, 12(1, 2), 57-70(1985).
- 92) WATTENDORFF, J.: Fine Structure and Development of Calcium Oxalate Crystal Cells with Suberin-like Crystal Sheaths in the Bark and Secondary Xylem of *Acacia Senegal* Willd. Protoplasma, 95(3), 193-206(1978).
- 93) der WELLE, B. Jr.; MENNEGA, A. M. W.: On the Presence of Large Styloids in the Secondary Xylem of the Genus *Henriettea* (Melastomaceae). I. A. W. A. Bull. n. s., 2, 31-35(1977).
- 94) WISE, L. W.; JAHN, E. C.: Wood Chemistry. vol. 1. Second Ed. Reinhold Pub., 656(1952).
- 95) 山田常雄他編: 岩波生物学辞典, 岩波書店, 443, 648 (1960).
- 96) 山本幸一: マツ属放射柔細胞成熟の経年的・季節的経過. 北大演研報, 39(2), 245-296 (1982).
- 97) YAZAWA, K.; ISHIDA, S.; MIYAJIMA, H.: On the Wet-heartwood of Some Broad-leaved Trees Grown in Japan (1). J. Japan Wood Res. Soc., 11(3), 71-76(1965).
- 98) WORRALL, J. J.; PARMETER, T. R.: Formation and Properties of Wetwood in White Fir. Phytopathology, 72, 1209-1212(1982).
- 99) YAZAWA, K.; ISHIDA, S.: On the Wet Heartwood of Some Broadleaved Trees Grown in Japan. (2). Seasonal Moisture Content of Yachidamo and Harunire by Months. J. Facul. Agr. Hokkaido Univ., 54(2), 123-136(1965).
- 100) ZEIKUS, J. G.; WARD, J. C.: Methane Formation in Living Trees; a Microbial Origin. Science, 84, 1181-1183(1974).

Summary

Since Doronoki (*Populus maximowiczii*) grows rapidly and the wood is soft and light in weight, it has been recently planted in Korea and Japan to be used for pulpwood, lumber, boxes, matches and other miscellaneous articles. However, when the wood is processed, the edge of the sawing machinery and tools is easily worn away and spoiled due to the crystals of inorganic matter contained in the wood.

The study deals with crystals in the wood of *Populus* species, especially Doronoki: the distribution and location, the identification and structure, as well as the origin and growth. This paper is summarized as follows.

Chapter 1 is the introduction, including the object and the history concerning the study.

In Chapter 2, the appearance, distribution, constituents and structure of the crystals in the woods of *P. maximowiczii*, *P. tremula* v. *davidiana* and *P. alba* are described. The result of the crystals in *P. maximowiczii* wood is summarized as follows: observed carefully with the naked eye, the crystals in the heartwood are colored mostly white. With regard to the location, they existed in the heartwood and were arranged in a tangential direction, contained in various cells mainly in vessels without tyloses or in fiber-tracheids.

In Chapter 3, the structure of tissue and inorganic constituents in the woods of *P. maximowiczii*, *P. tremula* v. *davidiana* and *P. alba* are investigated. In particular, the relationship between the wetwood and the crystals is considered. In the case of the discolored wetwood of

P. maximowiczii, the crystals, and certain anaerobic bacteria, furthermore, the destructed material of pit membrane and tyloses were observed. In a part of the heartwood of *P. tremula* v. *dauriana* and *P. alba*, the moisture content was lower than in the sapwood.

In Chapter 4, crystal growth is investigated with the sap in *P. maximowiczii*. The sap showed weak alkalinity in the wetwood, while it was weakly acid in the sapwood. The mineral content of the sap was the highest in autumn. From the model experiment the crystals proved to be calcite of calcium carbonate.

Finally, Chapter 5 is the summary and conclusion. In conclusion, how the crystals of the calcite grew physically in the sap under the conditions of alkalinity, bacteria existence and temperature fall, and through carbon dioxide supplied by the bacteria, while other crystals were calcium oxalate existed in the living cells is described. This could be the reason why the crystals grew ringlike in the late wetwood formed during the year.

写真説明

- Photo 1.** ドロノキ (Photo 58) 生材の軟X線写真
Photo 2. Photo 1 と同一試料の気乾材の軟X線写真
Photo 3. チョウセンヤマナラシ (Photo 59) の生材の軟X線写真
Photo 4. Photo 3 と同一試料の気乾材の軟X線写真
Photo 5. チョウセンヤマナラシ (Photo 60) の生材の軟X線写真
Photo 6. Photo 5 と同一試料の気乾材の軟X線写真
Photo 7. ウラジロハコヤナギ (Photo 61) の生材の軟X線写真
Photo 8. Photo 7 と同一試料の気乾材の軟X線写真
Photo 9. x 190. ドロノキの心材の光学顕微鏡写真 (厚さ 2 μm の薄片)
Photo 10. x 190. Photo 9 と同一部分の偏光顕微鏡写真 (偏光顕微鏡によると結晶が白く光り, 結晶の観察が容易である。)
Photo 11. x 760. ドロノキの心材の光学顕微鏡写真
Photo 12. x 760. Photo 11 と同部分の偏光顕微鏡写真
Photo 13. ドロノキの辺材の繊維状仮道管の中に見られた結晶
Photo 14. ドロノキの道管と放射組織の間の壁孔及びその付近にある結晶
Photo 15. ドロノキの道管と放射組織の間の壁孔及びその付近にある結晶
Photo 16. ドロノキの道管の内壁に見られた結晶
Photo 17. ドロノキの道管の内壁に見られた2つのタイプの結晶の固まり
Photo 18. ドロノキの心材の道管の内壁に見られた束晶
Photo 19. ドロノキの辺材の一部で, 連続して結晶が多量に集積している道管
Photo 20. Photo 19 のように多量の結晶が集積している試料を酢酸処理したもの
Photo 21. ドロノキの心材の結晶のX線回折図。ラウエ斑点からはこの結晶がカルサイトの構造を持つことが示される。
Photo 22. チョウセンヤマナラシのチロース及び軸方向柔細胞に見られた結晶
Photo 23. ウラジロハコヤナギのピスフレックの柔細胞に認められた結晶
Photo 24. チョウセンヤマナラシの柔細胞に認められた集晶
Photo 25. x760. ドロノキの辺材
Photo 26. x190. ドロノキの心材
Photo 27. x760. ドロノキの心材の道管の中にあるチロース

- Photo 28.** x760. ドロノキの心材の道管の中にあるチロース
- Photo 29.** x1000. ドロノキの心材の道管・放射組織間の壁孔壁が破壊されている部分
- Photo 30.** x190. ドロノキの心材の道管に見られた沈着物
- Photo 31.** ドロノキの心材の道管の道管放射組織間壁孔に見られたチロースパッド
- Photo 32.** ドロノキの心材の道管の道管放射組織間壁孔に見られたチロースパッド
- Photo 33.** ドロノキの心材の複合道管の中に見られたはしご状のチロース
- Photo 34.** ドロノキの心材の孤立道管の中に見られたはしご状のチロース
- Photo 35.** チョウセンヤマナラシの心材の複合道管の中に見られたはしご状のチロース
- Photo 36.** チョウセンヤマナラシの心材の複合道管の中に見られたはしご状のチロース
- Photo 37.** ドロノキの心材の内壁に認められた球菌
- Photo 38.** ドロノキの心材の内壁に認められた桿菌と糸状の物質
- Photo 39.** ドロノキの心材の内壁に認められた桿菌と菌糸
- Photo 40.** ドロノキの人工心材の道管の内壁に認められた桿菌及び沈着物
- Photo 41.** ドロノキの人工心材の道管に認められた球菌と覆っている沈着物
- Photo 42.** ドロノキ人工心材の道管の道管放射組織間壁孔に認められた桿菌及び沈着物
- Photo 43.** ドロノキ心材の道管に認められた桿菌及び沈着物
- Photo 44.** ドロノキの心材の道管放射組織間壁孔壁の破壊
- Photo 45.** ドロノキの心材の道管放射組織間壁孔壁の破壊
- Photo 46.** ドロノキの心材の軸方向柔細胞の壁孔壁の破壊
- Photo 47.** ドロノキの心材の繊維状仮道管の有縁壁孔の破壊
- Photo 48.** ドロノキの心材の道管の物理的な破壊
- Photo 49.** Photo 48 の拡大
- Photo 50.** ドロノキの心材の内壁にあるゲル状の沈着物
- Photo 51.** ドロノキの心材の道管放射組織間壁孔壁に認められる粒子の沈着物
- Photo 52.** ドロノキの心材の道管の内壁に認められる粒子の沈着物
- Photo 53.** ドロノキの心材の道管放射組織の壁孔壁の内壁に見られた不定形の沈着物
- Photo 54.** ドロノキの心材の道管の内壁に認められたひび割れたような沈着物
- Photo 55.** ドロノキの心材道管の結晶の裏側にある沈着物。道管放射組織間壁孔壁の跡型が写されている。
- Photo 56.** コアを採取して人工心材を作ったドロノキ (D5) の胸高部位の生材の軟X線写真。
- Photo 57.** Photo 56 と同一試料の気乾材の軟X線写真
- Photo 58.** ドロノキ (D4) の胸高部位の円板のカラー写真 (D.B.H.18 cm, 試料厚さ 5 mm)
- Photo 59.** チョウセンヤマナラシ (Y1) の胸高部位の円板のカラー写真 (D.B.H.10 cm, 試料厚さ 5 mm)
- Photo 60.** チョウセンヤマナラシ (Y2) の胸高部位の円板のカラー写真 (D.B.H.18 cm, 試料厚さ 5 mm)
- Photo 61.** ウラジロハコヤナギ (A2) の胸高部位の円板のカラー写真 (D.B.H.22 cm, 試料厚さ 5 mm)
- Photo 62.** ドロノキ (D4) の木部, 樹皮の樹液
- Photo 63.** チョウセンヤマナラシ(Y1)の木部, 樹皮の樹液
- Photo 64.** チョウセンヤマナラシ (Y2) の木部, 樹皮の樹液
- Photo 65.** ウラジロハコヤナギ (A2) の木部, 樹皮の樹液
- Photo 66.** x76. ドロノキの樹液から成長した 1—100 μm ほどの炭酸カルシウムの結晶の光学顕微鏡写真

- Photo 67.** x76. ドロノキの心材の樹液から1—100 μm ほどの炭酸カルシウムの結晶の光学顕微鏡写真
- Photo 68.** x76. ドロノキの辺材の樹液から1—数 μm ほどの炭酸カルシウムの結晶と粘性物質の偏光顕微鏡写真
- Photo 69.** x76. ドロノキの心材の樹液から成長した1—100 μm ほどの炭酸カルシウムの結晶の偏光顕微鏡写真
- Photo 70.** ドロノキの心材樹液から成長した結晶のSEM写真
- Photo 71.** ドロノキの心材樹液から成長した結晶のX線回折写真
- Photo 72.** x760. ドロノキの心材の樹液から採取した桿菌のバクテリアの光学顕微鏡写真
- Photo 73.** ドロノキの辺材の樹液から採取した桿菌のバクテリアと沈着物
- Photo 74.** x380. ドロノキの辺材の樹液中の粘性の沈着物から採取したバクテリアの位相差顕微鏡写真
- Photo 75.** x380. Photo 74と同じ試料の偏光顕微鏡写真

