# コウゾおよびミツマタのじん皮繊維壁の構造

### 高橋善雄・今村祐嗣・佐伯 浩・原田 浩

## Cell Wall Structure of Bast Fibers in Kozo (Broussonetia Kazinoki SIEB.) and Mitsumata (Edgeworthia papyrifera SIEB. et ZUCC.)

## Yoshio TAKAHASHI, Yuji IMAMURA, Hiroshi SAIKI and Hiroshi HARADA

目

次

旨

要	旨	163	3.	結果および考察	164
1.	はじめに・・・・	163	引用	文献	166
2.	材料と方法	164	Rés	umé	167

#### 要

和紙の諸特性はその原料であるじん皮繊維の性質や構造が関与しているものと考えられるが, その構造についての知見は乏しい。そこでコウゾおよびミッマタのじん皮繊維壁について光学顕 微鏡,走査型ならびに透過型電子顕微鏡を用いて観察し次の結果を得た。

(1) コウゾとミツマタのじん皮繊維壁はともに外層と内層からなり、木化度は低い。

(2) 外層はさらに4層に分かれ、外側から、ミクロフィブリル配向がランダムな層、概して軸 方向の層、横巻きの層、横巻きから徐々に30~45°までかわる層が見られた。

(3) 内層は厚く,数層のラメラからなり、ミクロフィブリルは全層にわたって軸方向に対して 小さい角度でらせんを描いて配向しており、木化度の低い点とあわせて広葉樹あて材のゼラチン 層に似た構造をもつことを確認した。

#### 1 は じ め に

コウゾ,ミツマタ,ガンピ等のじん皮繊維(師部繊維)を原料として製造される和紙は,木部 繊維を原料とする洋紙とくらべて強じん性,光沢,保存性などの点において異なる性質をもって いる。これら和紙の特性の原因はもちろん化学成分の違い,あるいは製紙条件にもよるといえる が,じん皮繊維自体の構造,性質もまた重要であると考えられる。すなわち木部繊維に比してリ グニンははるかに少なく,光沢に関係があるといわれている灰分,エーテルおよびアルコール抽 出分が多い。また長繊維であっても「ネリ」によって均質な紙層が得られるので,叩解度は低く てよく,抄造された和紙の強さが大であるといわれている。しかし,じん皮繊維壁の微細構造に ついての知見は乏しく,樹木から得られる繊維であるからといって木部繊維と同様に考えてよい のか疑問が残っている。それゆえに、ここではコウゾおよびミツマタのじん皮繊維壁の構造を明 らかにしようとした。

本研究の実施にあたり終始御協力下さった木材構造研究室の各位に深く感謝致します。
なお、本報告の概要は第23回日本木材学会大会(1973年4月、京都)において発表した。

#### 2 材料と方法

材料は京都市内に生育していたコウゾ (Broussonetia Kazinoki SIEB.) およびミツマタ (Edgeworthia papyrifera SIEB. et Zucc.) の枝で,採取後,冷凍庫またはホルマリンを少量加えた水中 に保存した。試料作製の際は凍結をもどすため,あるいはホルマリンを除くため,しばらく流水 中においた後蒸留水で洗浄した。

観察は、光学顕微鏡、走査型電子顕微鏡 (SEM)、あるいは透過型電子顕微鏡 (TEM) により 行なった。

(1) 光学顕微鏡観察: 試料より切り出した小片をグルタールアルデヒドー四酸化オスミウム 固定し LUFT 法でエポキシ樹脂に包埋したものから、ウルトラミクロトームで約2µ厚の木口、 柾目切片を作製し、位相差顕微鏡、偏光顕微鏡、および螢光顕微鏡で観察した。また木化の度合 をしらべるためには、スライディングミクロトームで20~30µの厚さに切った師部の三断面の 切片を、サフラニン・ライトグリーンの二重染色と塩化亜鉛ヨード、フロログルシン塩酸による 染色を行ない観察した。

(2) SEM 観察: 試料を6日間水中浸漬して解離し、約 0.2% NaOH で洗浄、アルコール 系列で脱水後真空乾燥したじん皮繊維をカーボンと金の蒸着をしてから観察した。

(3) TEM 観察: レプリカは無処理および 17.5% NaOH で処理をした 40 µ 厚の柾目切 片, さらに Jeffrey 氏液によって解離した試料から常法の1段レプリカ法で作製した。また, 超 薄切片は, 固定後 KMnO4 で染色しエポキシ樹脂に包埋したものから作製し, そのまま観察し た。

### 3 結果および考察

じん皮繊維は両樹種とも壁は厚く、コウゾにおいてはいくつかが集合し、それが柔細胞や師管の間に散在している (Fig. 1)。ミッマタにおいてもほぼ同様であるが、板目面において繊維は軸方向に全く平行ではなく波状に配列している。サフラニン・ライトグリーンで二重染色すると緑色を呈し、木化していないことが推定できるが、これは木化している木部の要素と対照的である。コウゾやミッマタのじん皮繊維が木化していないことは化学成分分析によっても知られているが、ここではフロログルシン塩酸、あるいは螢光顕微鏡によっても確かめられた。木化していない層をもつという点で木部中の引張あて材のゼラチン繊維と似ており、このことはすでに指摘されている。また引張あて材のできる側の師部の厚さが厚いという傾向もあった。しかし、じん皮繊維は師部のあらゆる側にできるという点で、一般に傾斜した幹や枝の上側に形成される引張あて材とは異なっている。

じん皮繊維の大きさは同じ樹体においても採取する個所によって異なると考えられるが、本実 験に用いた試料では、コウゾで径 20  $\mu$  前後、長さ 6~17 mm、ミツマタで径 15  $\mu$  前後、長さ 2~5 mm であった。 Fig. 2 はコウゾの師部を4日間水中浸漬して解離したじん皮繊維のSEM 写真であるが、薄い 外層が破れて内層が見えている。内層は外層から剝離しており、偏光顕微鏡を用い直交ニコル下 で柾目切片を見ると、内層のミクロフィブリルはほぼ軸方向に配向していることがわかった。こ のように2層構造をとり、内層が外層から剝離していることは供試したじん皮繊維すべてに共通 していた。従来、じん皮繊維にも引張あて材のゼラチン層と同様な層を有するものがあり、外層 から剝離しているといわれてきたが、この厚い内層がそれに相当するといえる。内層の剝離は固 定、包埋作製した切片でも見られ (Figs. 1, 3) 試料作製に伴なうアーティファクトと考えるより は、樹体中ですでに剝離していたと考えるのが妥当であるがなお検討を要する。

以下コウゾを中心にその繊維壁構造について述べていくが、ミツマタにおいても同様の観察結 果を得られたのでコウゾに準じて考えることができよう。Fig.4 は無処理の柾目切片のレプリカ 写真で、じん皮繊維を外側より見ている。繊維壁は外層と配向のよい内層で構成されている。外 層(以後O層と呼ぶ)にはミクロフィブリル配向の異なる4層が見られるので、外側より仮に O1, O2, O3, O4 と名付けた。O1 はランダムなミクロフィブリル配向の層、O2 はミクロフィブ リルが比較的立っているが相互に交差している層、O3 は繊維軸に直角な横巻き配向の層、O4 は O3 より傾角が小さくある角度で配向している層である。内属はC層と呼ぶことにするが、ミク ロフィブリル相互の平行性は大変よくしかも軸方向に配向している。

**Fig. 5**は **JEFFREY** 氏液で解離したじん皮繊維の外表面で、ミクロフィブリルの配向が明瞭に 観察される。外側にランダムな配向の層がありこれが **O**<sub>1</sub> で非常に薄く、容易に剝離する。その 下に配向は比較的よいがミクロフィブリルが相互に交差している層が現われている。 これが **O**<sub>2</sub> である。この **O**<sub>2</sub> が剝がれると、繊維軸に対して横巻きに、しかも波状にミクロフィブリルが配 向している層が見られる (Fig. 6)。 これに続いて横巻き配向を示す **O**<sub>3</sub>、さらに繊維軸にある角 度で配向する **O**<sub>4</sub> が観察されるわけである。 **O**<sub>2</sub> から波状の横巻き配向の層 **O**<sub>3</sub> への移りかわり は、仮道管壁の **P** から **S**<sub>1</sub> への移りかわりによく似ている。したがって横巻きでしかも波状に配 向した層は **O**<sub>2</sub> から **O**<sub>3</sub> への移行部分と考えられ、ミクロフィブリルの配向状態を見た限りでは、 **O**<sub>1</sub> と **O**<sub>2</sub> は一次壁的で **O**<sub>3</sub> 以後は二次壁的だといえる。 **O**<sub>4</sub> は **O**<sub>3</sub> の横巻き配向から 徐々に 傾 角を小さくしていく。Fig. 7 は **O**<sub>4</sub> を内側から観察しており、不定形な物質が付着しているが、 ミクロフィブリルは 30~45°の傾角で配向している。このように **O**<sub>3</sub> の横巻き配向の層から順次 **傾**角を変えてミクロフィブリルが堆積している様子は **D**UNNING のいう仮道管壁の **S**<sub>1</sub> から **S**<sub>2</sub> へ **O**移行に似ている。

次にC層について述べる。じん皮繊維のO層が剝がれて露出したC層の外表面を見たところ, ほぼ軸方向にミクロフィブリルが配向しており, Fig. 7 にしめしたのと同じような不定形の物質 が付着していた。この付着物は 17.5% NaOH で除去することができ, Fig. 8 の様に非常に平 行性のよいミクロフィブリル配向をもった層が観察された。じん皮繊維のいわゆるゼラチン層は 全く均質ではなく数層のラメラからなるといわれているが, ここで観察したC層においてもこの ことが確認された (Fig. 3)。 しかもどのラメラに おいても ミクロフィブリル 配向は 同じであ り, 内腔側においてもほぼ軸方向であった。またこのようなラメラ構造は広葉樹の引張あて材の <sup>11)</sup>

以上のようにC層は引張あて材のゼラチン層に似ている。そこで、同じコウゾのあての部分の ゼラチン層のできている木部繊維壁の構造を観察した(Fig. 9)。 壁構成は  $S_1, S_2$  に続いてその 内側に軸方向に配向しているゼラチン層が見られた (a)。しかし、ゼラチン層では外側から内 腔に続いている膜孔道が見られ、ミクロフィブリルはこれを迂回するように配向している(b)。



Fig. 11. Schematic representation of the cell wall organization of a bast fiber of Kozo or Mitsumata.

これに対してじん皮繊維のC層には膜孔道らしき ものは観察されなかった。Fig. 10はじん皮繊維を 外側から見たレプリカ写真である。層構造上では O2 から O3 への移行部であるが、中央に孔があり ミクロフィブリルが孔を迂回して走っている。 と ころがこの孔の中に軸方向に配向している層が見 られる。これはC層にあたり、C層には孔は見ら れなかった。O層がC層と剝離しているためずれ たとも考えられるが、他の供試した試料において もC層には膜孔道とみられる孔も、また孔の存在 によるミクロフィブリル配向の乱れもなかった。 したがってこの孔を構造的に二次壁の欠落した部 分ということで定義されている膜孔と呼べるかど うか疑問があるが、このような孔がO層にのみ存 在するのは興味深いところである。

レプリカ法を中心に壁構造の観察結果を述べて

きたが、超薄切片法によっても同様の結果を得た。それをまとめて模式図にしたのが Fig. 11 である。

ところで Fig. 12 はコウゾの C層の外表面を見たものであるが、ミクロフィブリルがざ屈して 12 いる。これは KEITH と Côté によっていわれている compression failure に似ているところ から同様のものと考えられ、また従来より「結節」と呼ばれている構造的弱点に相当すると思わ れる。このようなざ屈は C層の木化度が低いこととミクロフィブリルが軸方向にきわめて良好な 平行性をもって配向していることに起因することが容易に推定できる。したがってこの部分は機 械的、化学的処理に対する弱点として働くことが予想される。

このようにコウゾ, ミツマタのじん皮繊維は通常の仮道管や木繊維などの壁構造とは異なり, あたかも引張あて材のゼラチン繊維に似た構造をしている。この点から, 壁形成の過程あるいは 圧縮や引張等によるミクロフィブリルの挙動を検討する上にも, じん皮繊維は興味ある材料であ ると思われる。

#### 引用文献

- 1)小栗捨蔵・武井宗男:日本紙に関する研究,工業化学雑誌,42,609,(1939)
- 2) 加藤晴治: 和紙に関する研究(14)(15), 紙パ技協誌, 16, 835, 838, (1962)
- 3) 太田隆之・八十島治雄・水元正宏・武祐一郎:紙の強度に関する研究(第2報)繊維長の影響について、紙パ技協誌, 16, 195, (1962)
- 4) 堀 洸: 和紙紙料の調式, 紙パ技協誌, 20, 461, (1966)
- 5) LUFT, J. H.: Improvements in Epoxy Embedding Method, J. Biophys. Biochem. Cytol., 2, 499, (1961)
- 6) MOHL, H. V.: Einige Bemerkungen über den Bau der Vegelabilischen, Zell Bot. Ztg., 2, 323, (1844)
- 7) LIESE, W. and HÖSTER, H. R.: Gelatinöse Bastfasern im Phloem einiger Gymnospermen, Planta, 69, 338, (1966)
- 8) WARDROP, A. B. and HARADA, H.: The Formation and Structure of the Cell Wall in Fibers and Tracheids, J. Exp. Bot., 16, 356, (1965)
- 9) DUNNING, C. E.: The Structure of Longleaf-Pine Latewood, 1. Cell Wall Morphology and the Effect of Alkaline Extraction, Tappi, 52, 1326, (1969)
- 10) ROELOFSEN, P. A.: The Plant Cell Wall, Gebrüder Borntraeger, Berlin, 105, (1959)

- 11) WARDROP, A. B.: in The Formation of Wood in Forest Trees, M. H. Zimmermann ed., Academic Press, N.Y., 405, (1964)
- 12) KEITH, C. T. and Côté, W. A. Jr.: Microscopic Characterization of Slip Line and Compression Failures in Wood Cell Walls, F.P. J., 18(3), 67, (1968)

#### Résumé

Japanese paper is made from bast fibers of Kozo (Broussonetia Kazionoki SIEB.) and Mitsumata (Edgeworthia papyrifera SIEB. et ZUCC.) and so on. In this study the cell wall structure of bast fibers of the two species, which had not been fully understood, was investigated using optical microscope, scanning electron microscope and transmission electron microscope. The results obtained are as follows:

1. No noticiable difference in cell wall structure was found between *Kozo* and *Mitsumata*. The cell wall was found to consist of a thin outer layer (O layer) and a thick inner layer (C layer) which is detached from the former, as noted in several papers (Figs. 1, 2 and 3).

2. The O layer includes four sub-layers;  $O_1$ ,  $O_2$ ,  $O_3$ , and  $O_4$ . The  $O_1$ , whose fibrils run in random orientation, is easily torn away, allowing a view of the randomly but more steeply arranged microfibrils of  $O_2$  (Fig. 5). Hence the  $O_1$  and  $O_2$  are thought to be the primary wall. The underlying  $O_3$  has its fibrils oriented perpendicularly to the fiber axis. The  $O_4$  has many lamellae which go through a gradual transition from the orientation of the  $O_3$  to a fibril angle of about  $30^\circ-45^\circ$  against the fiber axis (Figs. 4 and 7).

3. The C layer is like the gelatinous layer of tension wood fibers, as noted by LIESE, showing well oriented microfibrils nearly parallel to the fiber axis (Figs. 4 and 8). The microfibrils in the C layer have a uniformity of orientation from the exterior to the lumen surface, though several concentric lamellae are observed (Fig. 3). The compression failure is shown in Fig. 12.

168



Fig. 1. Transverse section of the secondary phloem of *Kozo* photographed with phase contrast. Bast fibers are shown by arrows.



Fig. 3. Electron micrograph of the transverse section of bast fibers of *Kozo* stained with KMnO<sub>4</sub>. Note some lamellae in the central layer (C) which is detached from the outer layer (O).



Fig. 2. Scanning electron micrograph of a single bast fiber of *Kozo* macerated by water soaking.



Fig. 4. Direct carbon replica of the bast fiber of *Kozo*, showing the overall view of the O and C layer. This micrograph is reversed. In this and following figures, the fiber axis is vertical except Figs. 8 and 12.



Fig. 5. Direct carbon replica of the exterior surface of a Kozo bast fiber treated with Jeffrey's solution. Note the microfibrillar orientation in the O<sub>1</sub> and the underlying O<sub>2</sub>.



Fig. 6. Similar to Fig. 5, but showing the wavy orientation of microfibrils underneath the O<sub>2</sub>.



Fig. 7. Direct carbon replica of the inner surface of the O layer from an untreated *Kozo* bast fiber, showing the microfibrillar orientation similar to that of the S<sub>2</sub> layer of tracheid walls.



Fig. 8. Direct carbon replica of the external surface of the C layer of a *Kozo* bast fiber treated by NaOH solution. Note the well oriented microfibrils nearly parallel to fiber axis. Fiber axis is shown by the long arrow.



Fig. 9. (a) Direct carbon replica of a tension wood fiber of Kozo, showing the S<sub>1</sub>, S<sub>2</sub> and gelatinous lyer (G). (b) Microfibrillar orientation in the G layer showing the pit canal as viewed from the external surface.



Fig. 10. Direct carbon replica of a pit-like pore of a *Kozo* bast fiber as viewed from the exterior surface, showing the C layer through the pore.



Fig. 12. Direct carbon replica of the external surface of the C layer, in a *Kozo* bast fiber showing the compression failure.