摩砕物からの自然電子放射について*

On the Exo-electron Emission from Ground Powder

沢 昌 恭** 大 塚 陸 郎***
Yasushi Sawahata Rikuro Ōtsuka

阿久津 寿 一***
Juichi Akutsu

1. 緒 言

ある条件のもとで固体の表面から放射され、時間とともに減衰する、いわゆる Kramer 効果と呼ばれている自然電子放射 (exo-electron emission) は、金属関係に多くの研究をみることができなが¹⁻³⁾、非金属、ことに無機鉱物質の粉碎時における現象を取り扱ったものは、Kramer の報告⁴⁾ 以降その例に乏しい。

著者らは、粉体工学、電子線応用および放射線計測とそれぞれ異なった立場から、この現象の一端を解明する目的をもって、ケイ砂系粒子群を中心とする大気中常温摩砕粉体の自然電子放射に関する実験を行ない、若干の興味ある事実をみいだすことができた。実験は、予備的であり、結果に対する検討も定性的ではあるが、この種現象の解明に当っては、まず実験事実の忠実な記録が重要であり、かつ今後の詳細かつ精密な検討に対して示唆するところが少なくないと考えられるので、本報告に述

べるものである。

2. 実験の装置と方法

2.1 実験装置

図1は、本実験で粒子の摩砕に供した 130mmφ磁器乳鉢と乳棒の諸元、および乳棒の巡回軌道のおよその位置を示した。乳棒の自重は $W=145\text{g}$ で、一連の実験の過程での乳棒の摩耗量は、摩砕した試料の量に比して無視してさしつかえなかった。

放射電子の計数には、図2に構造を示すとき3孔たて形ガスフローカウンターを用いた。この装置は著者らの1人の設計により理化学研究において製作したものである。手動回転が可能な円板には、試料皿の装入、ガス置換および計数の操作が、順次ハンドルの操作によってできるように、 120° 配置で3孔が設けられている。

計数率計は、SHV-201 形高電圧発生装置を付設した

図1 摩砕に用いた乳鉢の諸元

図2 フローカウンターの構造

* 昭和44年7月30日受理

** 現・富山大学工学部 (高岡市中川園町1-1) TEL 0766-21-2510

*** 理化学研究所 (埼玉県北足立郡大和町広沢2)

TEL 0484-62-1111

理化学研究所製の PRM-601 形計数率計を、カウンターのフルスケール 300 cpm, 確率誤差 $\pm 5\%$ に設定して用いた。これに接続する記録装置は、日立製作所製 QPD-53 形レコーダーで、記録装置のチャート送り速度は、240cm/h とした。これらの設定は、放射電子数の予備的検討の結果として行なわれたもので、試料および計数管の性質によって当然変化されなければならないものである。

2.2 実験に供した試料

表1 7種類の試験用粉体とその特性

No.	種 類	特 長	備 考
I	JIS Z 8901 No. 1	$\text{SiO}_2 > 97.6\%$ $\rho_p = 2.65$ 粒度分布 $R = 100 \exp(-bD_p^n)$ の $b = 25 \times 10^{-6}$, $n = 1.94$	図 6, 7, 8
II	JIS Z 8901 No. 2	$b = 0.028$, $n = 0.95$ 組成, 比重は I に同じ。	図 8, 9
III	JIS Z 8901 No. 3	$b = 0.1405$, $n = 0.76$ 組成, 比重は I に同じ。	weak emission
IV	JIS Z 8901 No. 7	$\text{SiO}_2 = 38.35\%$, $\text{Al}_2\text{O}_3 = 31.33\%$, $\text{Fe}_2\text{O}_3 = 21.92\%$ $\rho_p = 3.00$, 関東ローム起原, 粒度は II に同じ	non-emission
V	JIS Z 8901 No. 8	組成, 比重は IV に同じ, 粒度は III に同じ	non-emission
VI	SAE, Air cleaner test code, Course grade	アリゾナ沙漠砂起原, 粒度は II, IV に同じ, 自己放射能 15 cpm を有す	図 9
VII	SAE, Air cleaner test code, Fine grade	粒度は III, V に同じ, 組成は VI に同じ, 赤カッ色の粉体。	weak emission

注) SiO_2 その他の組成は、化学的定量分析によった。

実験に供した試料は、表1の7種類の試験用粉体、表2-1の11種のケイ砂系粒子群、表2-2の6種類の純粋な結晶および結晶質鉱物、および表3に示す7種類の試料の合計31種類で、特性欄にも示すごとく25試料の主成分が SiO_2 であり、比較参照のため Al_2O_3 を主成分とするもの数種と、若干の興味ある試料も併せて用いた。

2.3 実験の方法

実験は、(i)水晶片、(ii)紫水晶粒および(iii)人造ルビーの3種をのぞき、いずれも $W = 2.5\text{g}$ の試料を秤量して乳鉢に入れ、搗碎、摩砕ともに乳棒の自重のみが試料に働く荷重となるよう注意して、毎分 240 回 ($N = 240\text{ rpm}$ と記した)の速度で粉碎した。すべて、 $\theta = 1\text{min}$ の粉碎後、1.5g 平均の碎生物を 25mm ϕ の計数皿にとり、表層を平らにならしてフローカウンターに挿入し、ガス置換を行ってから計数に移行する。フローカウンターに流通するガスは、市販のQガス (99% $\text{He} + 1\%$ イソブタン, C_4H_{10}) で、その流量は毎分 100 バブル、約 18cm³/min である。

粉碎開始時間は記録紙上に印され、電子放射の時間的变化は、粉碎開始の時間を基準 ($t = 0$) として整理した。この場合、計数管がスイッチを入れてから定常化するに要する時間が約100sec

表 2.1 電子放射を計測した粒子系——ケイ砂

No.	粒 体 の 種 類	原 産 地	特 長	備 考
1	三河ケイ砂 Mikawa silica sand	岡崎市, 美合 Migo, Aichi	磁性粒を含まない 24/100 メッシュ程度の、少量の灰色粒を含む淡カッ色粒子。硬い。 $\text{SiO}_2 \approx 98\%^*$	図4, 15
2	白銀ケイ砂 Silver silica sand	岡崎市, 美合 Migo, Aichi	①よりも整美な 24/100 メッシュ程度の粒子系、磁性粒子は含まれていない。 $\text{SiO}_2 \approx 98.5\%^*$	図15
3	丹後ケイ砂 Tango silica sand	京都府, 網野 Amino, Kyoto	24/65 メッシュの粗粒子で、カッ色を呈し硬い。少量の磁性を有する黒色粒を含む。 $\text{SiO}_2 \approx 85\%^*$	図15
4	綾羅木ケイ砂 Ayaragi sand	山口県, 綾羅木 Ayaragi, Yamaguchi	36/100 メッシュ程度の黄カッ色粒子、0.2mm程度の磁性粒子を若干含有する。 $\text{SiO}_2 \approx 94\%^*$	図15
5	鳥取ケイ砂 Silica sand	鳥取砂丘 Tottori sand hill	32/100 メッシュの粒子で、砂鉄分に富む。1 mm 程度の粗粒も存在する灰色砂。 $\text{SiO}_2 \approx 85\%^*$	図15
6	釜山ケイ砂 Pusan sand	韓国釜山海岸 Pusan, Korea	36/100 メッシュ程度の硬い粒子。磁性粒を含まない白黄色の砂。 $\text{SiO}_2 \approx 97\%^*$	図15
7	ジョホールケイ砂 Silica sand	ジョホール海岸 Johore, Malasia	50/100 メッシュの硬い灰白色の微砂粒子。磁性をもつ粒子は含有されない。	図15
8	テルタオ島ケイ砂 Silica sand	タイ・テルタオ島 Terutao, Thailand	50/100 メッシュのきれいに整粒された淡紅灰色の微砂で、磁性粒子は含有されない。	図15
9	鳥島ケイ砂 Torishima sand	小笠原群島 Torishima Ise.	1~0.5mm の硬い粒子、10%程度の灰色磁性粒を含み、大部分は光輝ある透明粒。 $\text{SiO}_2 \approx 90\%^*$	図15, 17 表4
10	コニカルケイ砂 Conical sand	瀬戸市 Seto, Aichi	蛙目粘土中の粒子を浮選した、50/100 メッシュの銀白色粒子で磁性粒子を含まない。 $\text{SiO}_2 \approx 99\%^*$	図15
11	相馬銀砂 Sōma sand	福島県小高町 Odaka, Fukushima	1mm 程度の粒子をボールミルで粉碎し、50/100 メッシュに整粒したもの。 $\text{SiO}_2 \geq 97.6\%^{**}$ JIS 試験用粉体 2, 3 種の原料。	図4, 5, 15, 16

注) * は X 線分析, ** は化学分析による値を示した。

表 2.2 電子放射を計測した粒子系——結晶質粒子および鉱物

No.	粒体の種類	特 長	備 考
12	正長石 Feldspar (ortho.)	日本産、鉱物標本より。 $\left[\left(\frac{1}{2}\text{M}_2\text{O}\right)\left(\frac{1}{2}\text{Al}_2\text{O}_3\right)(3\text{SiO}_2)\right]\left[(\text{M}^{\text{II}}\text{O})(\text{Al}_2\text{O}_3)(2\text{SiO}_2)\right]$ 素材 (3×2×2cm) を 3~0.5mm, 平均 2mm の大きさに搗砕したもの。	図16
13	石英 Quartzite	日本産、鉱物標本より。SiO ₂ , 2×2×2cm の素材を 4~0.5mm, 平均 3mm の三稜形の圭角の多い粒子に搗砕したもの。白銀光沢を有す。	図16
14	熔融アルミナ $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$	Alundum 社製 R-44-24 の $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 。銅玉色を有する 1mm 程度に整粒された粒子で圭角多し。	図16
15	水晶片 Crystal quartz	1610 K C 用水晶発振片, 1.00×19.55×24.75mm, 1.31g の水晶片 (1940年12月, 明電舎製, 3号形水晶発振片)	図10, 11, 12, 表4
16	紫水晶粒 Amethyst	ペンダント用に研磨されたものを, 0.1~2mm, 平均 0.8mm の粒状に圧壊整粒した粒子。1.0g	図13
17	人造ルビー Ruby (artificial)	人造ルビーの結晶を, 0.2×0.5mm 程度の大きさの粒子に搗砕して整粒したもの。1.0g, 時計軸受用原石。搗砕時間は, 240回/分で4分間	図14 表4

表 3 電子放射の計測できなかった粒子系

粒体の種類	特 長
ガラス球 (Glass beads)	0.2mm ϕ 球形粒子, 搗砕および摩擦しても計測されない。
石英ガラス片 (Quartz glass)	石英ガラス管, 8mm ϕ × 0.5mm t 搗砕, 摩擦しても計測されない。
緑柱石 (Beryl)	3BeO·Al ₂ O ₃ ·6SiO ₂ , 結晶片を搗砕, 摩擦しても計測されない。
アラゴナイト (Aragonite)	南西諸島産サンゴ化石, CaCO ₃ 砕きやすい。計測されず。
白雲石 (Dolomite)	CaMg(CO ₃) ₂ , 白色光沢のある砕きやすい粒子, 電子放射せず。
砂糖 (Sugar)	1mm 角結晶, 摩擦を繰り返すも, 電子放射は認められない。
沙漠砂 (Desert sand)	Sahara desert sand. 0.2~1mm の淡黄色粒, 長方形粒子, 比較的硬いが摩擦による放射なし。

ガス置換に要する時間がおおよそ 90 sec を必要とすることを考慮すると, 粉碎開始後 3 min 以降の記録は信頼するに足り, 5min 以降の記録は十分に信頼しうることになる。実験結果の図示には, これら計数管の構造と特性に関する問題を将来検討する意味も含めて, 計数値の立上り部分も若干の図には併記しておいた。

粉碎の条件は, 数種の試料について, 装入量や粉碎時間を変化させ, 作業の定常性, 難易の度合いと電子放射の関係を事前に十分に比較検討し, 最もよい条件として試料の量 $W=2.5\text{g}$, 乳棒の自重を利用する粉碎速度 $N=240\text{rpm}$, 粉碎時間 $\theta=1\text{min}$ を設定した。ただし, 水晶片, 紫水晶粒, 人造ルビーの3者は, 試料の量が限られているため, 全量粉碎 ($W=1.0\sim1.3\text{g}$) 全量計数とした。

粉碎時間の増加は, 最初の 1 min ごとの粉碎による電子放射が充分バックグラウンドにまで減衰した数時間のうち, 再び粉碎を 1 min 与えることによって計測し, またこれを繰り返すという方法によった。図中 $\Sigma\theta$ と記したのがこの方法による積算粉碎時間である。

図 3 は, 本実験に用いた図 2 のフローカウンターのプラトー特性を示す。勾配 6%/100V は, 実用的には充分

図 3 フローカウンターのプラトー特性

な特性とみなしてよい。実験室の自然のバックグラウンドは 18 cpm であった。図示した放射電子の計数値 I は, すべてこの自然のバックグラウンドと, 粉碎前の試料のもつバックグラウンドを差し引いてある。ただし, 試料自体の有する自己放射能は, 表 1 に示した SAE, Air cleaner test code の粉体, VI および VII の 2 試料で, 平均 15 cpm であった。また, 乳棒の摩耗量が各試料の粉碎ごとに無視してさしつかえない程度であったように, 乳棒の摩耗によるバックグラウンドの上昇は, Kramer の報告にみられる陶器のそれが搗砕 1 min 後に 0.4 cpm であったごとく⁴⁾, 数種の試料について検討した結果, ほとんど無視できる程度のものであった。

なお, 粉碎は昼光色蛍光灯 40W 2 灯の直下 1.5m の位置で, 関係湿度 $50\pm5\%$, 室温 $25\pm0.5^\circ\text{C}$ の大気中で行なわれた。

3. 実験の結果と考察

実験結果は, 表 1 ないし 3 に示した試料を, 特性に応じて組分けして示し, 簡単な考察を与えることにする。放射電子の計数値そのものは, 計数管の構造, 寸法およびその特性によって異なるものと考えられるので, 結果の検討は電子放射の傾向について主たる関心を示したい。

3.1 電子放射の態様と再現性

図 4 は, 電子放射の時間的変化の記録を 2 種類の試料

図4 摩砕時間と電子放射の時間的変化の例

図5 再現性の検討結果の一例

について例示した。図中 θ とある右側の線が粉碎開始線で、左側の線との間隔が $\theta=1\text{min}$ を示す。カウンターに挿入（粉碎終了後約 20 sec）された試料は、ガス置換の進行とともに計測電子数が上昇してゆくが、一方では放射電子の減衰があるため、グラフはある時間の後にピークを示し、ついで正常な減衰過程を示すことになる。やがて、ピークの高さに応じた時間の経過にしたがって、計数値はバックグラウンド (B.G.) に漸近してゆく。計数値 I は、この過程を平滑曲線化してバックグラウンドとの差を求め、各時間について求められることになるが、結果の再現性は図5に1例を示すごとく、粉碎条件が一定である場合には図示するバラツキの程度に納まる。この結果の再現性は、著者らの1人の長期にわたる訓練によって、各試料の粉碎操作ごとに保存されているものとみなしてよいであろう。

3.2 各種試験用粉体における電子放射

実験は、粒度分布と化学組成の明らかな、表1に示す7種の試験用粉体から検討を進めることにした。

図6は、JIS Z 8901の1種が粉碎操作の回数の増加に従って示す電子放射の変化である。図7は、これを積算粉碎時間 $\Sigma\theta$ でプロットしたものである。粉碎回数の増加、すなわち、 $\Sigma\theta$ の増加とともに放射電子数は増加し、 $\Sigma\theta=2\sim3\text{min}$ でピークを示した後、再び低い側に移行する。すなわち、試料の粒度とそれに対する粉碎の効果の度合い、ないしは、砕生物における新生面の増加、比表面積の増加の状況が電子放射の増減に対して考慮される必要のあることが示されている。

図6から明らかであり、かつ、後述するケイ砂系粒子

図6 試験用粉体1種の電子放射

図7 積算粉碎時間と電子放射の関係（試験用粉体1種）

群の場合もそうであるごとく、純粋でない粒子系における電子放射の時間的変化は、計数値がピークに達して以降、(1)式によって表わすことができる。

$$I = I_0 t^{-n} \quad \dots\dots (1)$$

ここで、冪数 n の値はほとんど $n=1.0$ とみなしてさしつかえない。この結果は、真空中でブラッシングを与えた Al 材の電子放射⁵⁾、あるいはエメリー紙研磨された Cr, Ni, 不銹鋼の電子放射⁶⁾ と同一傾向を示すものであり、ケイ砂系における電子トラップのエネルギー分布が連続的であることを示すものとみなされる⁷⁾。

図8は、JIS Z 8901の2種を、同一粉碎条件のもとに1種と比較したもので、電子放射の粒度依存性を図6とともに示している。図9は、同一粒度分布で組成ないしは結晶構造が異なるものとみられる、SAE, Air cleaner test code の Course grade と前記2種とを比較したもので、SAEの粉体の勾配は大である。これは、後述する水晶片の場合を考えると、SAEの粉体の主成分である SiO_2 の結晶構造が水晶質であって、共存する不純物が電子放射にあづからないのではないかと推定される。

図 8 試験用粉体 2 種と 1 種の比較

この種、アリゾナ沙漠原産の粉体が 15 cpm 平均の自己放射能を有していることとともに、今後検討されるべき事実であろう。

図 9 SAE 試験用粉体と試験用粉体 2 種の比較

図 10 水晶片の電子放射

関東ロームを 800°C に焼成して粉碎した、JIS Z 8901 の 7 種および 8 種では全く電子放射が認められなかった。その原因は、加熱処理と化学組成のいずれかか、あるいは双方と考えられるが、SAE の粉体の着色原因とともに検討すべき必要が認められる。JIS Z 8901 の 3 種と SAE の Fine grade は、双方ともに電子放射は微弱であった。これが原因は、粒度の微細なことによる粉碎効果の著しい減殺と考えてよいであろう。

3.3 純粋な結晶物質における電子放射

図 10 は、水晶片の粉碎回数にともなう電子放射の変化を、図 11 は、同じく積算粉碎時間 $\Sigma\theta$ と電子放射との関係を示した。 $\Sigma\theta = 2 \sim 3$ min におけるピークの存在は、JIS Z 8901 の 1 種の場合と同様である。しかし、ここで問題とすべきは、電子放射の時間的減衰の過程であって、この減衰の状態は、明らかに 2 種の核種が共存する場合の放射崩壊と全く軌を一にするものであるとみることができる。図 10 を、図 12 に示すごとく片対数プロットすればより明りょうであろう。

ここで、図示したすべての曲線の終末に近い部分を対象として、すべてに共通な遅い減衰を推定し、これをもとの減衰過程から差引けば、速い減衰を分離することができる。図 12 に示すごとく、すべてに共通な遅い減衰の減衰定数を $\alpha_2 = 0.034$ と仮定して速い減衰過程を導出した結果は、すべてに共通な減衰定数 $\alpha_1 = 0.137$ が求められ、差し引きの電子数の値は勾配 $\alpha_1 = 0.137$ の直線の周辺にきわめて近く分布する。これらの値は、表 4 に示した。

この現象は、つぎのごとく考えられる。すなわち、水晶のごとき純粋な結晶においては、粉碎操作によって励起される電子のトラップのエネルギー準位が明りょうに

定まっており、水晶の場合には 2 カ所にトラップの準位が存在するものと考えられる⁷⁾。図 12 に示された水晶片からの電子放射は、したがって (2) 式の形で示されることになる。

$$I = I_1 \exp(-\alpha_1 t) + I_2 \exp(-\alpha_2 t) \dots (1)$$

2 種類の減衰定数 α_1, α_2 の値は、この場合水晶の特性値とみなすことができる。

純粋な結晶であっても、紫水晶粒の場合は図 13 に示すごとく、電子放射の態様は (1) 式に従う。幂数

図 11 積算粉碎時間と電子放射の関係 (水晶片)

図 12 水晶片の電子放射の片対数プロットによる減衰定数の決定

表4 純結晶質の減衰定数(半減期)

粒 子 系	α_1 [min^{-1}] ($t_1 \cdot 1/2$ [min])	α_2 [min^{-1}] ($t_2 \cdot 1/2$ [min])
水 晶 片 Quartz crystal	0.137 (5.0)	0.034 (20.0)
人 造 ル ビ ー Ruby, artificial	0.199 (3.5)	0.0013 (530)
鳥 島 透 明 粒 子 Torishima transparent particles	0.130 (5.3)	0.028 (25.0)

図13 紫水晶粒の電子放射

n の値は、 $n \approx 1.0$ とみてよい。これが原因は、紫水晶を特長づける着色によるものと解釈されよう。紫水晶の着色原因が明らかにされれば、電子放射が(1)式の形態をとる理由も明らかにされるであろうし、逆に、電子放射の機構が解明されれば、現在不明にされている紫水晶の着色原因の一端が明らかにされるともいえる。

図14は、人造ルビーの場合を示す。 $\Sigma\theta \leq 4 \text{ min}$ の範囲においては、図示しう程度の電子放射はみられず、 $\Sigma\theta = 5 \text{ min}$ 以降で急激に大となった。図14に示すルビーの態様は、水晶の場合とは逆の傾向を示すかのごとくであるが、これもまた水晶の場合と全く同様に遅速2種の電子放射に分解できることを示している。図12に示したと同様の作業によって、減衰定数を求めた結果は表4に示すごとく、 α_2 の値はきわめて小であり、したがって半減期は大となる。表4に示したルビーの、速い定数 α_1 と遅い定数 α_2 (半減期 $t_1 \cdot 1/2$, $t_2 \cdot 1/2$)もまたルビーの特性値とみなしてよく、ルビーの場合は水晶に比較して、一方の電子トラップのエネルギー準位が、より深い位置にあるものと推定される。

3.4 ケイ砂系粒子群における電子放射

表2.1に示した11種類のケイ砂の電子放射の状況を図15に示す。減衰の時間的経過は(1)式によって表わすこ

図14 人造ルビーの電子放射

図15 試料①～⑪の電子放射

とができる。

図から明らかなごとく、これらの試料は、試料⑪を境にして2群に分別できるような傾向を示しているが、この傾向を試料の特性と、試験用粉体および純粋な結晶の結果とを参照して考えれば、

- 1) 粒子の硬度が大きいほど
- 2) 粒子の粒度が大きいもののほうが
- 3) 粒子の主成分含有量が大なるほど

電子放射が大になるものとみなされる。粉碎操作と自然電子放射との関係は、これらの要因に関する検討が重要な問題となろう。

3.5 鉱物における電子放射

図16は、3種類の結晶質鉱物の電子放射を、ケイ砂⑪と比較した。ただし、⑪の試料は天然鋼玉に代えて、結晶の形がそれに近い $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ を用いた。(天然の鋼玉についての実験では、電子放射のピークが10 cpm程度しかえられなかった。)図から明らかなごとく、⑪ α -

Al_2O_3 は図14の人造ルビーの場合に、⑫長石、および⑬石英は水晶片の場合に、電子放射の態様が類似していることが知られる。しかし、純粋な結晶に比較して減衰過程に特長的な鋭さがみられないのは、結晶の純度に関係するのではないかと考えられる。

3.6 鳥島ケイ砂透明粒子と

灰色粒子の電子放射

表2.1にも示したごとく、鳥島ケイ砂を構成する大部分の粒子群は、無色透明清美なもので、他のケイ砂粒に比較して硬い。ここで、この透明粒子と残余の灰色粒とに分別して、それぞれの電子放射の態様を検討した結果が、

図17である。透明粒子群の減衰に対しては(2)式が、灰色粒子群に対しては(1)式が、それぞれ適用できる。

透明粒子群の減衰の過程を、水晶片、人造ルビーの場合と同じく片対数プロットして、全く同様な作業をへて2種類の減衰定数(半減期)を求めた結果は、表4に比較されるごとく、水晶の特性値にほぼ近似している。すなわち、鳥島透明粒は、 SiO_2 含有量、外観および減衰定数を比較し、ほぼ水晶に近い結晶と判断してさしつかえあるまい。

3.7 電子放射の認められなかった粒子群

表3に示した粒子群では、再三の粉碎を繰り返したにもかかわらず、電子放射は認められなかった。したがって、少なくとも常温状態では、これらの物質は電子放射をしないか、あるいは計測困難なほどのピーク値しか示さなかったものである。

Kramerの指摘にもあり、また、著者らが SiO_2 を主成分とする粒子系を主として実験を進めたのも、 SiO_2 は結晶質状態においてのみ電子放射がみられ、高温処理をしてガラス化したもの、すなわち、ガラス球と石英ガラスでは全然みとめられない。砂糖において電子放射がみられないのもKramerの場合と同じである⁴⁾。

アラゴナイト、白雲石のごとき炭酸塩鉱物で認められなかったという点は、ケイ酸塩鉱物系で明りょうな電子放射がみられることと比較して興味深い。サハラ沙漠砂における電子放射がみとめられないのは、これが外観からみて炭酸石灰系に属する粒子であるためとみられる。

長石と緑柱石とでは、構成成分が同じであるにもかかわらず、長石の電子放射は大であり、緑柱石では皆無である。もちろん、加熱高温状態における電子放射については別途検討を進めつつあるが、これらの現象は、単に

図16 結晶質鉱物からの電子放射

図17 鳥島ケイ砂を分別したときの電子放射

化学成分の組成の問題のみではなく、結晶組織、結晶構造あるいは原子結合の状態が関与する問題として考えねばならないことを示唆している。

3.8 異常計数のみられた物質

物質の表面で吸着現象が生じている場合にも、自然電子放射がみられる³⁾。著者らが行なった、つぎの2種類の実験は、1は碎生物の新生面における吸着現象の問題として検討される必要のあることであろうし、他の1はこの種実験面で注意を要する現象として、本項に記録しておく。

まず、試料⑪の相馬砂の表面に、フルオレセンソーダ ($\text{C}_{20}\text{H}_{10}\text{O}_5\text{Na}_2$) とエオシン ($\text{C}_{20}\text{H}_6\text{O}_5\text{Br}_4\text{Na}_2$) の両色素を水溶液の状態から吸着させたものについて、粉碎後の電子放射を計測した。結果は、初期の減衰が生じて後、数時間にわたってバックグラウンドより十数カウント高い計測値が示され、バックグラウンドへの回復がみられなかった。この種の課題については、さらに検討を進めることとして、結果の図示は省略した。

つぎは、シリカゲル ($\text{SiO}_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$) の碎生物における異常繫続放電で、計数管への試料挿入後数分以上にわたって 10^5 を超過する計数値が記録されたことである。この原因は、多分つぎに示すごときのものであろう。すなわち、シリカゲルは炭化水素の分離吸着剤として用いられるごとく、炭化水素の吸着能が大きい物質である。したがって、これを挿入するときは Q ガス中のイソブタン (C_4H_{10}) を吸収し、その結果として計数管のプラトー特性の劣化をおこし、同一電圧における計数値の異常増加を招来するものと考えられる。

粉体表面に吸着された水分量が多量であることも、フローカウンターを用いる計測上問題となることではある

が、それとともに、クエンチングガスに対する吸着能がきわめて大きい粉体に関する実験においては、この種現象があることを注意すべきである。

4. 総 括

SiO₂を主成分とするケイ砂系粒子群を中心に、純粋な結晶、鉱物質粒子 および 若干の入手可能な試料を加えて、摩砕生成物からの常温自然電子放射を、実験的に検討した。実験の方法も予備的であり、結果に対する検討も定性的であるが、一連の実験結果の忠実な記録の意味は果していると考えられる。

これらの実験結果のうち、明らかに結論づけられる点は、

1) 砕生物からの自然電子放射は、原物質の純度が高く、硬度が大であって適当な粒度を有するとき、大きい計数値が示される傾向が認められる。この場合、原物質に介在する不純物の影響によって、電子放射の時間的変化は、次式の関係を示す。

$$I = I_0 t^{-n}$$

ケイ砂質粒子における冪数 n の値は、ほぼ $n=1.0$ とされる。

2) 純粋な結晶においては、結晶に特有な減衰過程を示し、水晶および人造ルビーにおいては次式によって表わされる。

$$I = I_1 \exp. (-\alpha_1 t) + I_2 \exp. (-\alpha_2 t)$$

これらの結晶については、遅速2種類の減衰定数(半減期)が求められ、これらの値は結晶自体の特性値とみなすことができる。

この結果は、鳥島透明粒子にも適用され、鳥島透明粒子が示す減衰の態様からみて、この粒子が水晶に近似したものであると推定された。結晶性鉱物質粒子の電子放射の態様は、同じ成分の純粋な結晶のそれに類似する。

3) 実験結果に対して、簡単な検討と考察は与えた。しかし、試料全般にわたっての詳細な化学組成、粒度分布、比表面積、結晶構造の決定などについては、未だ充分な結果をえていない。また、フローカウンター自体にも検討の余地があり、現在新しい構造の計数管の特性試験を進めつつある。したがって、本報では、ここに記述した実験の結果のみに止め、明確な結論を理論的検討とともに示すのは、機会をえて続報にゆずることにする。本報に記した内容が粉体工学の分野への新しい問題提起の一端ともなりうれば幸いである。

〔付記〕本実験に供した各種試料のうち、①～⑩のケイ砂は名工試山内史朗技官に、⑫⑬⑭は沢島裕君の国産鉱物標本集より、⑮はシチズン時計の辻寧信氏に、⑯は理研水野万亀男研究員、サハラ沙漠砂は理研竹下博研究員から提供していただいた。また、本共同実験は、化学工学研井上一郎主任、セラミックス研阿刀田徹三主任、放射線研浜田達二主任の御厚意に負うところが大きい。付記して感謝の意を表したい。

なお、本研究の一部は、第1回日米粉体工学セミナー(1969・京都)で発表されたことを付記する。

記 号

I : 自然電子放射の計数(カウント)値	[min^{-1}]	w : 粉碎した試料の量	[g]
n : ケイ砂系粒子群の減衰過程の冪数 (≈ 1.0)	[—]	W : 乳棒の自重 ($=145\text{g}$)	[g]
N : 乳棒の搗碎もしくは摩砕の回数	[min^{-1}]	α : 放射電子の減衰定数	[min^{-1}]
t : 粉碎開始後の経過時間	[min]	θ : 搗碎もしくは摩砕の時間	[min]
$t \cdot 1/2$: 放射電子の半減期	[min]		

引 用 文 献

- 1) 木村一治: *J. Phys. Soc. Japan*, **6**, 141 (1951)
- 2) 井上勝也: 表面, **5**, 223 (1967)
- 3) 佐藤教男: 金属学会報, **7**, 313 (1968)
- 4) Kramer, J.: *Z. Phys.*, **128**, 538 (1950)
- 5) Lohff, J.: *Z. Phys.*, **146**, 436 (1956)
- 6) 文献3) の p. 314 の第5図参照
- 7) Scharmann, A.: *Exo-electron Emission in "Thermoluminescence of Geological Materials"*, ed. by D.J. McDougall, p. 281, Academic Press (1968)