



～至 Fig. 9) の如く見受けられるのである。又この Asterism の進行する形態はこれを段階的に考えると  $\alpha$  群の方向と  $e$  群の方向とに進行し、遂には両者を合して四方に分散する型に進行するものと思われる。かくの如く砂糖結晶の Laue spot を観察するとその Asterism 化並びにモザイク化は Table 1 の如き各段階が考えられる。

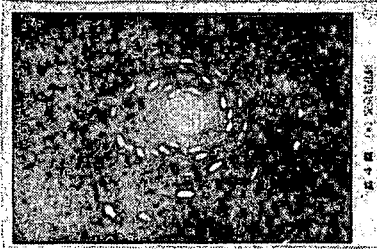


Fig. 2

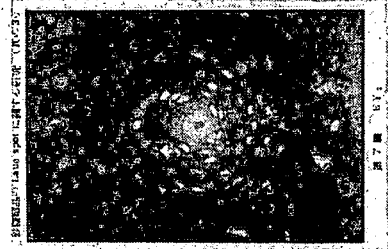


Fig. 3

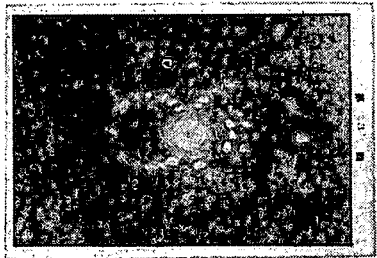


Fig. 4

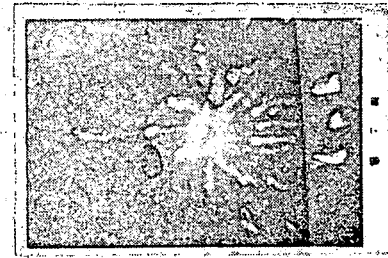


Fig. 5

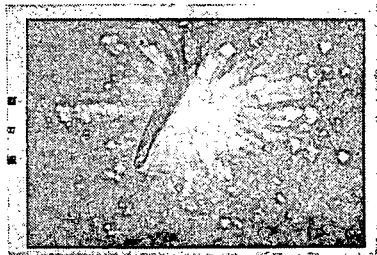


Fig. 6

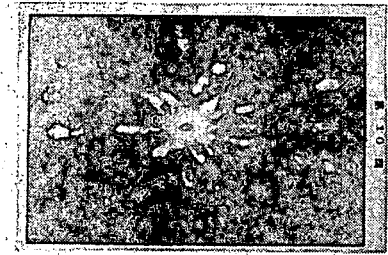


Fig. 7

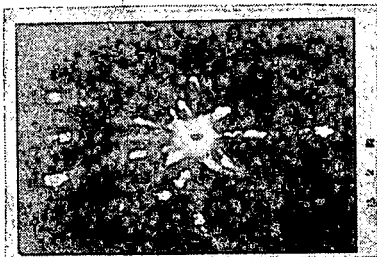


Fig. 8

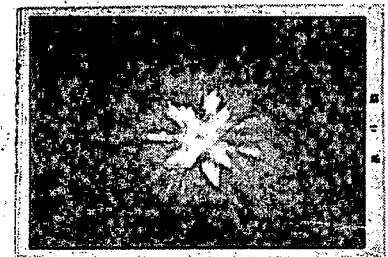


Fig. 9

さてこの各図について今少しのべて見ることにする。

Fig. 2 に示されるものは、完全なる Laue spot を示しており、かかるものは勿論内部格子に欠陥もなく stress も掛つていない様に見受けられる。これは Table. 1 の完全結晶型に属するものと思われる。

次に Fig. 3 に見受けられるものは、その Laue spot が位置に殆んど完全に出るのであるが、それ自身が稍乱れているものである。即ち Shift in positions of spots と peripheral widening とが起りかけている状態であると思われる。これを準完全結晶型ということにする。

Fig. 4 以下に於ては一部の spot の群のみが出で、他群が不鮮明となつて来るものであり、Laue spot 自身も上述の準完全結晶型よりも Shift in positions of spots 及び peripheral widening が稍大きいように見受けられるし、又現われていない spot も相当ある。而してこれ等を位置判明型とよぶことにすると Fig. 4 は、 $\alpha_1$  および  $\alpha_2$  の群に属する面の位置のみ現われて來ているのでこれ等を  $\alpha$  群位置判明型ということにする。又 Fig. 5 は、 $\alpha$  群と  $\epsilon$  群とが稍出ているので  $\alpha$ - $\epsilon$  群位置判明型ということにし、Fig. 6 は  $\epsilon$  群のみ現われているので  $\epsilon$  群位置判明型に属すると考えられる。而してこの Fig. 6 の如きは、アスベストの X 線寫真とよく似ている点がある。又 Czochralski 氏の撮影した gypsum 結晶の Asterism 化の寫真ともよく似た点がある。<sup>(2)</sup> これ等のものは上述の完全結晶型や準完全結晶型に比べて結晶内部に stress がより多く加わつてゐること及び結晶格子が稍々不完全化してモザイク構造を示している様に思われる。

次に Fig. 7 であるが、之は前の Fig. 5 に比べて spot の位置の現われも少なく従つてこれを  $\alpha$ - $\epsilon$  群位置褪跡型ということにする。これになると X 線を反射して spot を現わす様な面が減少しているということが特に加わつて考えられる様に思われる。勿論かゝる結晶に対して stress が掛つてゐることも当然考えられる。

かかる双目糖でも外見上は完全結晶型と同様であつて区別がつかないのである。而してかゝる型に属する双目糖結晶は各社製品中最も多いのである。

次に Fig. 8 を見ると、之も前述の  $\alpha$ - $\epsilon$  群位置褪跡型に属するのであるが、これより  $\alpha$  群が多く消失して殆んど  $\epsilon$  群ばかり残つてゐる様に見受けられるのである。この  $\alpha$ - $\epsilon$  群位置褪跡型は特に  $\alpha$  群の面よりの反射が殆んどなくなるのであつて、これはモザイク構造がもつとすゝみ、かかる方面の結晶排列に欠陥を生じてゐるのではないかと思われる。

次に Fig. 9 を見ると、上述の  $\alpha$ - $\epsilon$  群位置褪跡型のものが  $\epsilon$  群のみを残しその他を大分消失している。この状況が最早分散放射状であり又は  $\epsilon$  群位置褪跡型といえよう。

而してこれを  $\epsilon$  群位置褪跡型又は分散型と称するのであるが、これに属する双目糖結晶もしばしば見受けられるのであるが、外見上は完全結晶型のものと同様と区別することは困難である。以上各型は食塩及礫石等によく見受けられる(仮晶の如き)現象とよく類似する。即ち小さい結晶粒が集まつて外見上大結晶の如き觀を呈する現象であつて、内部には恐らくモザイク組織が出來てゐるものと思われる。

さて、W. L. Bragg<sup>(3)</sup> 並びに G. L. Clark<sup>(4)</sup> は Asterism に関し格子の配列が弾性的の stress により變化されたことに起因して面が曲げられこの幾つかの組から異なつた波長のものを反射するために起るものと考えられると述べてゐる。又この加わる stress が少ない場合、例えば彈性極限内であると (Laue spot の變形が始まる前に) 粒子の廻轉が起つてその点の配列し直しが起るが、これは殆んどもとの位置に戻り得る様なものである。そしてこれよりもより大なる stress が起つた時に永久的の變化が起るものである。これについては Clark 及び Dunn 両氏が述べてゐる。<sup>(5)</sup>

それから stress を加えると Laue spot がのびたり、かすんだり又はそれにくつついたりすることがある。これを peripheral widening という。

以上のべたこの 3 つの現象が砂糖結晶の Laue spot では觀察される。而して、この 3 つの中、shift in position of spots は準完全結晶型の変化より起つており、而して  $\alpha$  群位置判明型にも見受けられる。次に peripheral widening は、準完全結晶型より起り各種位置判明型、各種位置褪

跡型及び分散型にまで及んでいる。

而して Asterism のよく観察せられるのは、主として  $\alpha$ - $\epsilon$  群位置判明型及び  $\epsilon$  群位置判明型であるが、これより先の各種位置褪跡型及び分散型に於ても観察されている。

次に Laue spot の消失であるが、結晶構造のモザイク化を想像すると位置判明型に於て始まりその後の各種位置褪跡型及び分散型に於ては、段々と進んで行く様に見受けられる。三宅静雄氏は結晶構造中に fault のあることを示してモザイク構造について説明しているが、これはこの砂糖結晶の場合にも該当するものと思われる。<sup>(6)</sup>

以上よりして推察せられることは、筆者が仮りに分類した砂糖結晶の Laue spot の各型を考える時、準完全結晶型に於ては、結晶構造に於て内部的に稍 stress が掛つたという状態であるが、これが各種位置判明型、各種位置褪跡型とすゝむにつれて、stress が漸次多くかゝつて行く様と思われる。特にこれは  $\alpha$  群の面よりも、 $\epsilon$  群の面の方に於て Asterism 化が著しいのを見ると、この方向に関する stress の方が大きくかゝつて来る様にも推察される。又かくの如く進むにつれて Laue spot の消失も進み結晶構造のモザイク化が進んで行くことも察せられる。

#### 4. 煎糖操作よりの考察

上述の如く殆んど双目糖結晶は、製糖工程中に於て多かれ少なかれ結晶構成面内に stress を受け且結晶構造がモザイク化している処も見受けられる様であるが、これにつき先づ製糖操作を述べ、これよりして砂糖結晶の Asterism 化を考察して見たいと思つている。

さて製糖工程に於て清浄され高濃度に煮つめられた糖汁は、結晶罐中に入れられて真空加熱により濃縮せられ、その折に結晶として晶出せられるのである。而して結晶罐中にて煮つめられたものは、罐中より放出せられ、遠心分離機により振蜜と結晶とに分けられ、この結晶は散糖室に運ばれ乾燥され、而る後篩で篩別されて製品ボックス中に入るのである。

尙双目糖を作るには、先づ糖汁を煮つめて粉糖を入れ、これより結晶を出し、これより出来た砂糖を糖汁と混和 (magma) してこれを結晶罐中に吸い込み、又これを煮つめるのであるが、この時は結晶を時々罐内より取り出して硝子板上にて検し、結晶の間に小さい結晶 (偽晶, false grain) の出来ないう様にしながら、糖汁と水との混入を加減して結晶を成長させつゝ煮つめて行くのである而して斯様にすること 2 内至 3 段階を経て最後に双目糖製品を出すのである。又この双目糖の煎糖方法は、粗糖工場、耕地白糖工場並びに精製糖工場の何れに於ても大体同様に行われているのである。

さてかゝる製糖工程として砂糖結晶の Asterism 化を考察する場合に、先づ結晶成長の過程に於て考える時、Tamman 氏の理論からいうと、先づ分子が集まつて小さい結晶を生じ、この小さい結晶が集まつて大きくなり、恰かも大磁石に小磁石が引きつけられる如く、大結晶に小結晶が吸いつけられてそれが生長するといわれている。而して上述の双目糖の結晶中に stress が加わつていゝというのは、かゝる生長過程に於て相当無理がかかつていゝのではないかと思われる。即ち真空蒸発と加熱による急激なる成長、而かも相当 viscus な液体中の流動をしながらの生長であるので小結晶より大結晶へと成長して行く過程も静止せる液中にて成長せる結晶と異なり、結晶格子形成にも欠陥を生じ、従つてモザイク組織を生ずることも考えられるし、又結晶生長中に於ても stress を受けることは当然予想せられる。特に煎糖操作の最終段階に於て、罐内の糖塊を煮つめて放出 (strike) する直前に於てはこれが特に甚しく、ゆつくりした結晶構成をする間もあたえず結晶を生長肥大せしめる様、事態を起さしめる確率が大であると思う。尙煎糖後に於て遠心分離機で分離せられ、それが掻き出され、ホッパー及びエレベーターで散糖室に送られ、又乾燥用ドライヤーを通り篩で篩別せられるのであるが、この間に於ても砂糖結晶中には物理学的衝撃を受けるものも相当あり、幾分斯様にして破碎せられるものもある。<sup>(3)</sup>

## 5. 氷糖結晶との比較について

さて上述のことより懸念されることはこの液が化学的に純粹なりや否やということ、換言すれば糖度純率高きこと（糖分含量大なること）である。而して転化糖の含有量が大きくなると、液が粘性を帯びてくるので結晶罐中に於ける液の循環も鈍り、そのために結晶の生長速度にも影響するといわれている。勿論転化糖の含有量の大きなるために、結晶の生長速度及び発生度の妨げられることは筆者も既に研究しているところであり、又製糖工場に於ても転化糖<sup>(9)</sup>含量多き糖汁は、含量少なき糖汁よりも煎糖に長時間を要することによつても裏書きされている。

成程 Fig. 2 に見られる双目糖結晶は完全に近い Laue spot を有し、Fig. 3 以下に属する各種双目糖結晶は、大なり小なり stress を受けていることが分る。而しながら筆者はこの点を解明する一助として、我が国産の精製双目糖を溶解して作った氷糖結晶と粗糖をとかして作った氷糖結晶との Laue spot を撮影したところが Fig. 10 及び Fig. 11 の如くであつた。Fig. 10 は精製糖をとかして作った双目糖の X 線寫真であり、Fig. 11 は粗糖をとかして作った双目糖の X 線寫真であるが、これ等 2 つは何れも完全な Laue spot を示しており、かかる氷糖の晶出過程に於ては結晶に stress が掛らないということが分つた。



Fig. 10

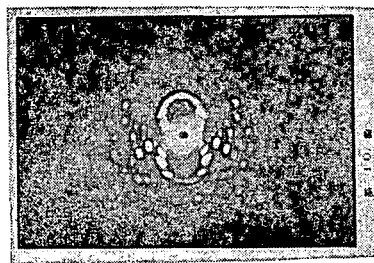


Fig. 11

それ故結晶罐内に於ての真空蒸発中の circulation に於て、結晶生成中は stress が起り、又結晶内にモザイク組織を生じるといふことは、主としてかかる物理学的原因によるものと考えられ、化学的原因は副次的なものと考えられる。即ち糖度低きことによる粘性の増加のための糖内の循環の不円滑等がこれであろうと思われる。

## 6. 結晶粒の大きさと Asterism 化について

次に筆者は結晶の小なると大なるものとの X 線寫真を撮してその Laue spot の状態の変化を見たのである。

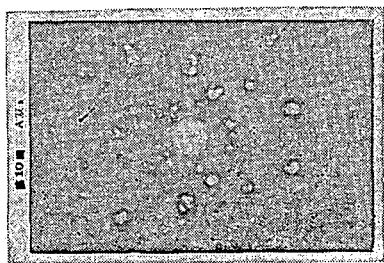


Fig. 12

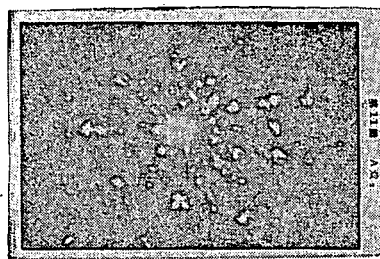


Fig. 13

即ち Fig. 12 は耕地白糖双目製品の種子となる結晶について X 線撮影を行つたものであり、Fig. 13 は耕地白糖双目製品の X 線撮影をしたものである。

さてこのX線写真によると、双目糖種子を撮影したX線写真である Fig. 12 は上述の  $\alpha$  群位置判明型に属するものと思われる。次に製品結晶のX線写真をとつた Fig. 13 は  $\alpha$ - $\epsilon$  群位置判明型に属し、又 Fig. 14 は精製糖双目の種子結晶のX線写真であるが、これは矢張り上述の如く  $\alpha$  群位置判明型に属し、Fig. 15は 同製品結晶についてであるが、これは  $\alpha$ - $\epsilon$  群位置腿跡型となつて

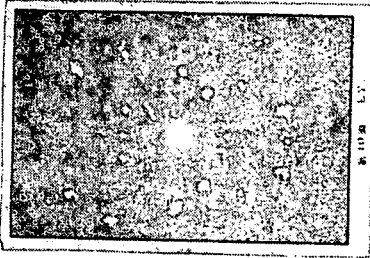


Fig. 14

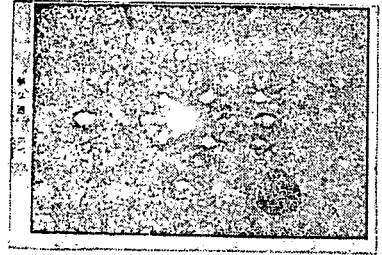


Fig. 15

以上により双目糖を作る場合、その種子結晶をX線により撮影した場合と、その製品結晶をX線により撮影した場合と比べて見ると、前述の砂糖結晶の Asterism 化の段階に則して進んでおり、種子結晶の場合には何れも shift in position 並びに periferal widening 程度の stress が加わつた状態であるが、これが製品結晶となると、何れも Asterism が現われて来る様になり、又 Spot. の消失も甚しくなつて来ており、所謂種子結晶の場合よりも強い stress が加わると共に、より多くの結晶の不完全化（モザイク化）が現われているということが推察される。

#### 7. 双目糖、煎糖に関する一つの試み

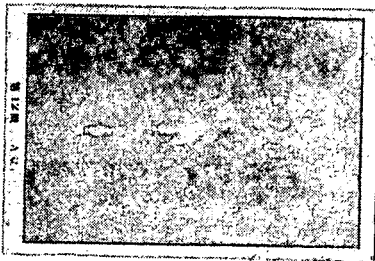


Fig. 16

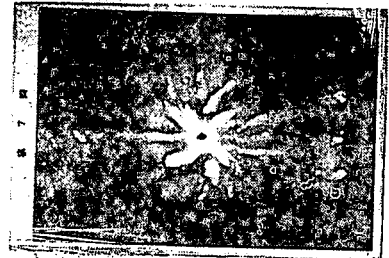


Fig. 17

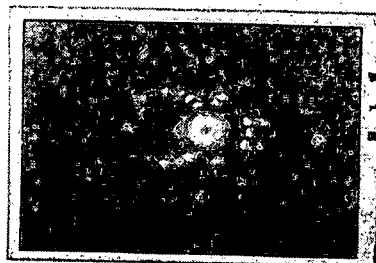


Fig. 18

さて Fig. 16, 17, 18 は精製糖工場に於て双目糖を煎糖する場合に、その種子となる砂糖結晶を色々変えてやり、その出来た製品のX線写真を撮影したのであつて、Fig. 16 は精製糖双目製品を篩別して篩の下に残つたものの中より双目糖の種子結晶となる様な大きさのものをえらび、これを用いて煎糖して出来た製品のX線写真を撮影したものであつて、上記 Asterism 化の各型中の分

散型に属する。Fig. 17 は普通行われている方法で煎糖して作った双目糖種子結晶を以て煎糖して作つて製品の X 線寫眞を撮影したものであつて、 $\alpha$ - $\epsilon$  群位置穂跡型に属する。又 Fig. 18 は精製糖工場に於て煎糖した 2 番糖 (1 番糖を煎糖しその振蜜を以て煎糖した砂糖、純率が 1 番糖より低い) より作つた種子結晶を以てこれより双目糖製品結晶を煎糖し、これが X 線寫眞を撮影したものであつて、大体  $\alpha$  群位置判明型に属する。

これ等より見て大体考察されることは、Fig. 17 のものが Fig. 16 のものより Asterism 化のすすんでいることは、種子結晶自体が Asterism 化の進んでいるものをもとにしたという理由よりして当然と考えられる。又 1 番糖の結晶を作るより 2 番糖の結晶を晶出させる方が液の純率も低く従つて煎糖時間もゆつくりかゝり、且生成する結晶粒数も少ない。即ち結晶生長速度が遅い。(罐内加熱も 2 番糖の方が 1 番糖よりも緩かである。) 而してこの種子のもとになる結晶として考える時に 2 番糖のものより 1 番糖のものの方が結晶の生長のしかたが早く促進させる様になり、結晶内に stress のかゝり來ることも多くなり、モザイク組織の出來る度合も多くなる様に考えられる。かかる根源的に異なつたものを種子として煎糖する場合にも、二番糖より生じたものを種子として煎糖したもののの方が、Asterism 化及びモザイク化の度の少ない製品を生じているのではないかと推察される。

## 8. 結 論

以上のことより考察すると次のことが言えると思う。

(1) 數種の双目糖製品結晶の X 線寫眞をとり、100 面に垂直に Laue spot を撮影したのであるが、その大部分は完全なる Laue spot を示さず、sift in position of spots, peripheral widening 並びに Asterism を示している。而してこの状況により、筆者はこれを 7 個の類型に分類し、且これを Asterism 化の進むと思われる段階に従つて並べた。而してこれと平行して Laue spot の消失が漸次多くなり結晶内にモザイク組織化の段階を生ずるといふことが推察された。

(2) 次にこれを筆者は煎糖操作中より考察し、かゝる急激化された結晶生成過程と、もつとゆるやかな冰糖結晶生成過程を考え、純率の異なつた砂糖をとかして冰糖結晶を作りこれが比較をしたところ、かゝる結晶の Laue spot の乱れは、冰糖結晶には起らなかつたので、これは主として物理学的原因により起ることが考えられる。而して転化糖量の多少等は副次的の原因であることが推察される。

(3) 次に双目糖製品結晶とその種子となる結晶とを共に X 線寫眞をとつて比較したところ、精製糖、耕地白糖を問わず、何れも上述の Asterism 化進展の段階に従つて生長していることが分つた。

(4) 尙三種の異なつた種子を以て煎糖した双目糖製品結晶の X 線寫眞よりして矢張り製品の篩かすを種子とした製品結晶の Laue spot が最も Asterism 化が進んでいた。

(5) 以上 (2), (3), (4) の事柄を併せ考える時は、結晶罐内に於ける煎糖操作中に於て結晶は、生長するとき (1) に於てのべた砂糖結晶 Asterism 化の各段階が現われると共に、生長につれてこれが進むことがいえるし、又これに伴つて結晶のモザイク化の進むこともいえる。而してこの原因としては、冰糖結晶生成の緩漫なる過程に比し、はるかに急激なる結晶生成過程に起因するものと思われる。勿論糖汁の純率も影響するが、これは副次的なものと思われる。

以上の研究をなすにあたり、御懇切なる御指導を賜つた東北大学理学部名誉教授大久保準三博士、大阪大学理学部教授仁田勇博士並びに徳島大学々藝部教授大沢興美博士の 3 氏に深甚の謝意を表する次第である。

## 9. 文 献

- ① 竹山説三：日本學術協会誌，昭和10年

- ② Clark : Applied X-rays P. 512
- ③ L. Bragg : The Crystalline State
- ④ ②に同じ
- ⑤ ③に同じ
- ⑥ 三宅静雄：日本物理学会誌，5，57，1950.
- ⑦ 浜住松次郎著：金相学
- ⑧ 著者：工務部報（塩水港製糖発行）4，119，1943.
- ⑨ Prinsen Heerig : Cane sugar and its manufacture.

（昭和30年6月23日受理）

### Summary

In sugar factory, the author had taken photographs of Laue Spots for hard sugar crystals, the results showed shift in position, peripheral widening and asterisms, occurred in various orders, and then specified these photographs seven orders with the degree of asterisms.

Then the author to research one of these causes, solved two kinds of sugars which had different purities and maked crystals in bekars, these crystals had almost perfect crystal structure.

The author took photographs of X-rays for the hard sugar crystals and their seed crystals, then these Laue spots showed that the crystallization goes with the steps of asterisms.