

「粉末接合現象に関する研究（第一報）」に寄せて

京都大学 大学院理学研究科 化学教室 金相学研究室

吉村一良（出版・編集委員会委員）

出版・編集委員会が企画する「粉体および粉末冶金」誌の“アーカイブス”を始めるにあたり、記念すべき第一弾として、我が粉体粉末冶金協会の創始者であり、京大・金相学研究室（金相研）の私から三代前の教授であった岩瀬慶三先生（1894年～1976年、金相研第三代教授：1942年～1957年）らの論文が選ばれた。

粉体粉末冶金協会は、岩瀬慶三先生によって1958年に設立され、一昨年創立60周年を迎えたが、京大・金相研の場合は、京大・理学部化学教室無機化学講座（第二講座）教授であった近重真澄先生が1920年（1919年だという記録もある）に新たに化学教室第五番目の講座として金相学講座を立ち上げ、その初代教授（1927年まで無機化学講座と兼任、1925年から金相研が主、1927年～1930年：金相研の専任教授）に就任されて以来、来年で（または今年で）奇しくも創設100周年に当たる¹⁾。当協会は金属学的研究で成熟期に入った金相研から出来たと言えるのかもしれない。近重先生の頃より金相学研究室と東北大学金属材料研究所（金研）は大変深い関係があり、岩瀬先生も当初、両方の教授を兼任しておられた（1942年～1954年：東北大・金研の教授を兼任²⁾。その後、金相研の専任（1954年～1957年）になられるが、その際に京大・化学研究所（化研、1927年創立）に3つの講座（現在の島川研究室（固体化学）、小野研究室（ナノスピントロニクス）、寺西研究室（無機合成））を創られたとのことである（金相研出身で東北大金研元所長の鈴木謙爾先生談）。ちなみに京大・化研の初代所長は近重真澄先生（1927年～1930年（金相研教授と併任））であり、金相研と化研との関わりも深い。岩瀬先生は、金相研の学生時代、宇野（金相研第二代教授）・飯塚両氏と金相三羽鳥とならび称されたそうである。1921年、東北大・金研の前身である鉄鋼研究所の講師となり、高名なる本多光太郎教授に師事し、翌1922年に助教授に任ぜられ、1926年（大正15年）から欧州に留学された。挿絵は、その折りにパリの似顔絵師が描いた若かりし岩瀬先生の肖像画である³⁾。当時の先生のお姿が偲ばれる。1928年に帰国され、東北大金研の教授に任ぜられ、金相研第二代教授の宇野先生の急逝により、1942年から京大金相研の教授を兼任されることとなるのである。

本アーカイブ第一弾の論文は、岩瀬慶三、小川和彦共著、「粉末接合現象に関する研究（第一報）」³⁾である。岩瀬先生は、三元系平衡状態図論（三元金相論）など、著名な研究ご業績が数多く、著書も「三元金相論（岩波書店）」、「状態図論（内田老鶴圃）」などがある。本論文は京大・金相研と東北大・金研の教授を兼任されていた頃の作であり、先生の第72番目の論文で、創設されたばかりの「粉体および粉末冶金」誌では先生にとって初の論文であり、粉末冶金の黎明期の息吹が感じられる秀作である。この論文は「第一報」³⁾であり、「第二報」⁴⁾と「第三報」⁵⁾があるので、そちらも是非ご覧頂きたい。手書きの図面も含め、その時代・雰囲気など感じ取って頂ければ幸甚である。



パリ（パリ）の似顔絵師が描いた岩瀬先生のプロフィール（大正15年）。

文 献

- 1) 「日本の基礎化学の歴史的背景」, 京大理学部化学・日本の基礎化学研究会 (1984).
- 2) 「岩瀬先生の御業績と回想」, 岩瀬先生追悼記念事業会 (1983).
- 3) 岩瀬慶三, 小川和彦, 「粉末接合現象に関する研究（第一報）」, 粉体および粉末冶金 **1** (1), 43-50 (1947).
- 4) 岩瀬慶三, 小川和彦, 「粉末接合現象に関する研究（第二報）」, 粉体および粉末冶金 **1** (2), 70-77 (1947).
- 5) 岩瀬慶三, 小川和彦, 「粉末接合現象に関する研究（第三報）」, 粉体および粉末冶金 **2** (2), 148-152 (1948).

粉末接合現象に関する研究(第一報)*

篩別せられた粉末群の粒度、形状比重 充填度等より見たる性格

京都帝大理學部化學教室金相學研究室

教授 理博 岩 瀬 慶 三
小 川 和 彦

I) 緒 論

物のくつつきに関する研究は我々の日常生活に於ても或は亦種々の工業に於ても豊富に見出されるが此の科學的研究に関しては斷片的には立派な研究も發表せられて居るが系統的に此を取扱はんとする傾向は近年のものである。著者等は此れに關聯して粉末冶金に於ける粉末のくつつきの現象の解明に着手した、粉末金屬の焼結現象とは高度の分散状態にある粉末を或る形状の型に充填壓縮成型し此れを保護氣流中に於て加熱しくつつきを強固ならしめる事である。粉末は壞縮により一應のくつつき(この度合を成型の尺度とする)を示めし更に加熱する事に依つてくつつきの強さを促進するのであるがくつつきとしては壓縮のみでも或る程度迄は進行し亦壓縮せずとも加熱のみにて進行する。従つて我々はくつつきの現象を二つに分けて觀察して行く事にした。即ち

- i) 壓縮無加熱のくつつき。焼結とは言はず接着と呼ぶ。
- ii) 加熱無壓縮のくつつき。所謂の焼結現象に含まれる。

以上の分類化に依り介在する多數の條件を整理して焼結現象を比較的簡明化したのであるが、此等に関して著者等が今日迄に得た實驗結果は昭和19年以後の日本金屬學界講演會に於て發表して來た。その詳細に就ては逐次本誌に發表する豫定である。

先づ粉末のくつつきをとりあける場合に考慮する可きは使用粉末の外觀的性格粒度形状その分布状態に就いてである。依て本報に於ては其等の點に關する觀察結果を述べる。

粉末形状の觀察法粒度の篩別法(選別)に關しては現在迄に多くの報告があるが其等の方法を個々單獨に取り上げたものでは複雑な立體的の粉末群の性質を示し難い、従つて我々は通常用ひられる篩別法と一粒一粒の顯微鏡的觀察結果との對照及此れらと充填度の關聯性に就いて次の實驗への足場をつくるため本實驗を行つたのである。

* 京大理學部化學教室内金相學研究室

* 本報告は昭和19年9月東京地方講演會に發表せるもの

II) 實驗試料及び方法

A) 實驗試料

i) 鐵粉 電解鐵搗碎粉(施削後搗碎) 軟鐵搗碎粉(施削後搗碎) 電解鐵粉(電氣分解 = ヨルモ詳細ナル條件不明)

ii) 電着銀粉, (電氣分解) 電流密度 $1 \sim 1.2 \text{ Ad/cm.}^2$ 硝酸銀溶液回轉陰極使用.

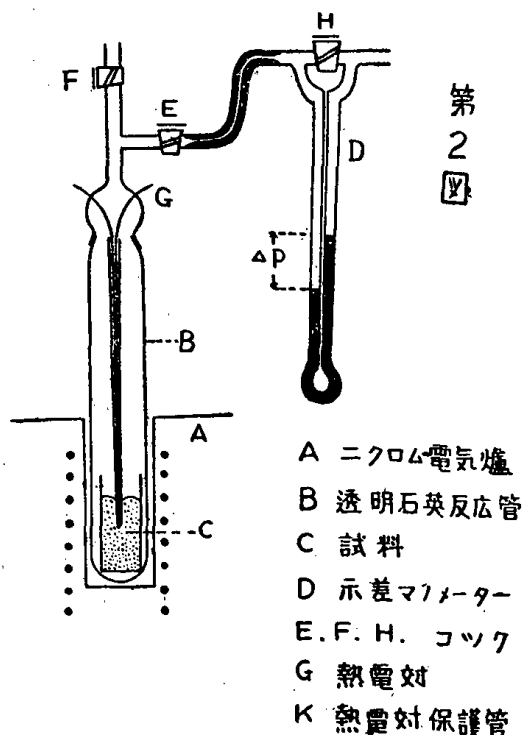
各粉末の形狀を顯微鏡にて觀察するに本實驗に使用せる搗碎粉末は一般に塊狀で角のある鋭い線を残す. 電解法に依るものは杉葉狀を示す.

B) 實驗方法

i) 比重の測定 これは一般法により Reischauer 比重瓶を用ひた, 此の場合水の溫度補正空氣の浮力補正は本實驗の値は小數點以下 2 桁目は誤差範圍なる故補正の要は認めなかつた.

ii) 粒度決定と篩別法 篩別せる各眼の粉末微量をスライドガラス上に粗に分散せしめマイクロメーター對眼レンズにより其の大きさを多數の粉末に就いて測定粒度分布統計多角形を求めた. 此の場合粉末は一般に不規則な形狀を有する故第 1 圖に示す如く比較的長き部分 (a) を標準に測定した. そして同時に略中央部でその線に直角に交叉する部分の長さ (b) を読み兩者の差又は比を以て粉末の形狀の平面的な不規則を統計的に現す様に試みた.

iii) 瓦斯放出量の測定 以上の實驗に併行して粉末の表面積を間接的に測定するため各篩眼のものに就いて第 2 圖の如き裝置で瓦斯放出量を測定した. 即ち容器 C に一定量の粉末を入れ常溫で充分排氣せる F 後のコックを閉じ溫度上昇に伴ふ瓦斯放出量を示差マノメーター D, 壓力差で讀んだ.



第 2 圖

iv) 充填度の測定 一定重量 (3 瓦) の粉末を測定筒中に入れてその容積が略一定になる迄振盪して單位容積内の粉末の重量即粉末群の緻密度を求めた. 此れは P. S. Roller²⁾ が求めた充填度の逆數を示す事にもなる.

III) 實驗結果

i) 比重の測定 電解鐵搗碎粉末— 300 眼及— 200 眼の比重測定結果は第 1 表の如くで微粉では多量の空氣吸着層の除去困難なるため亦その凝聚性により可成り低い値を示すかと豫想されたが何れも略純鐵塊 $7.86 (15^\circ\text{C})$ に

1947

粉末接合現象に関する研究(第一報)

45

第1表 電解鐵搗碎粉末の比重

採取粉末重量(-300)	比重(8°C)
0.491	8.61
1.026	7.65
2.803	7.72
5.849	7.82
7.364	7.76
9.143	7.71
15.082	7.78
20.841	7.73
採取粉末重量(-200)	比重(11°C)
1.612	7.75
2.412	7.76
5.379	7.76
7.529	7.76 7.86
22.712	7.77
54.968	7.72

第2表

種類	採取粉末重量	比重
鱗片狀鐵粉(搗碎)(-300)	2.528	7.28 (8°C)
〃 (〃)(-100)	6.151	7.64 (〃)
電着鐵粉(-300)	3.105	7.82 (〃)
〃 (-100)	5.205	7.67 (〃)
電解鐵搗碎粉(-300)	5.849	7.82 (〃)
〃 (〃)	7.364	7.76 (〃)
電着銀粉(-300)	1.940	7.8 (11°C)
〃 (-100)	5.08	9.8 (〃)

近い値を示した。これより粒度の大なる粉末では尙更比重は正常に近い値を示す。

唯し粉末の採取量による結果の不同は前表にみる如くその量1瓦以下の場合には注意して実験を反覆するも不同を免れず誤差を生じた。次に電着

銀粉の場合は粒度によりその比重は相違し粒度の小なるものは可成り低い値を示す(第2表)。以上の結果は兩粉末の吸着層表面状態の差が明確に掴まれねば結論は得られぬが電着銀粉は-300眼にては凝聚性強く振盪するも分散が困難であるが搗碎鐵粉にはかかる傾向が認められない。故に電着銀粉の場合は此の凝聚性により粉末間の氣泡を包含し見掛け體積大となるため測定値小になるものと考へられる。

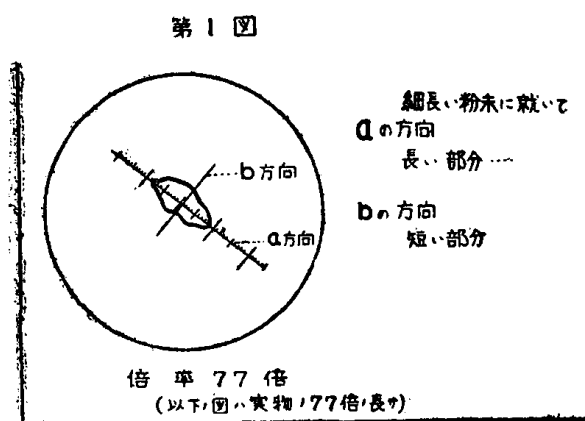
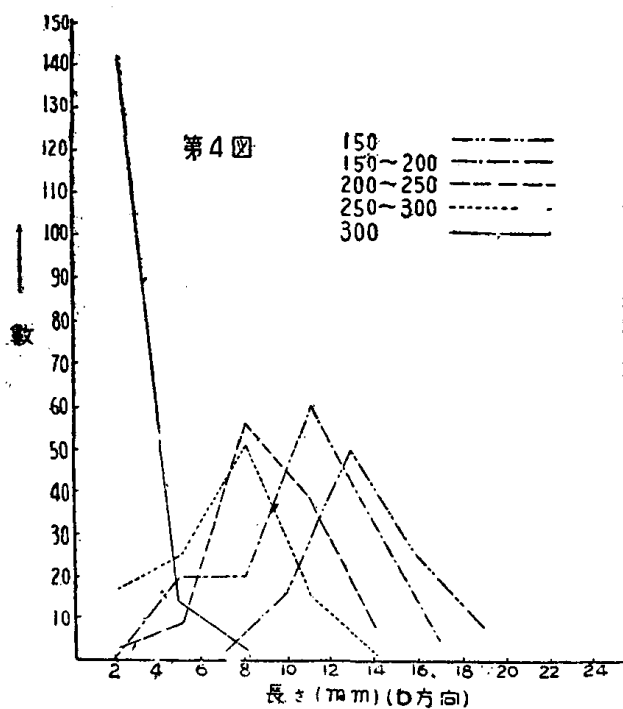
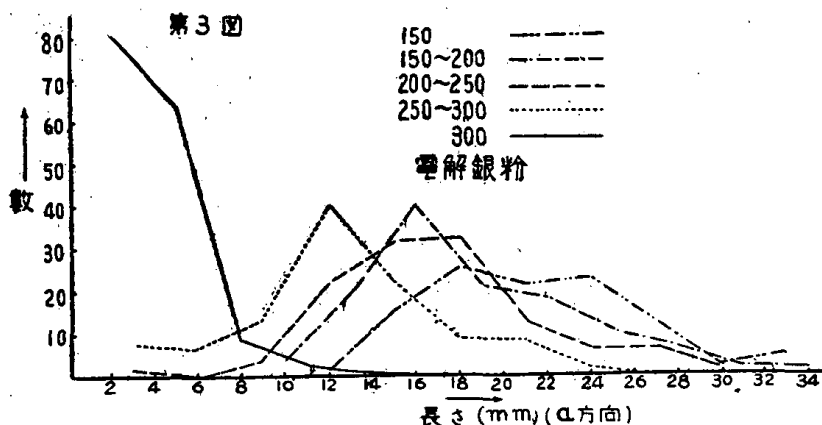
形状と比重の関係後に述べる如く搗碎鐵粉の形状は一定せるものではなく亦電着粉末は前述の如く杉葉状であるが此の形状の差異は比重に餘り影響しない(第2表)。

依比重の値は凝聚性を左右する粉末の粒度、表面状況に影響される事が推測される。

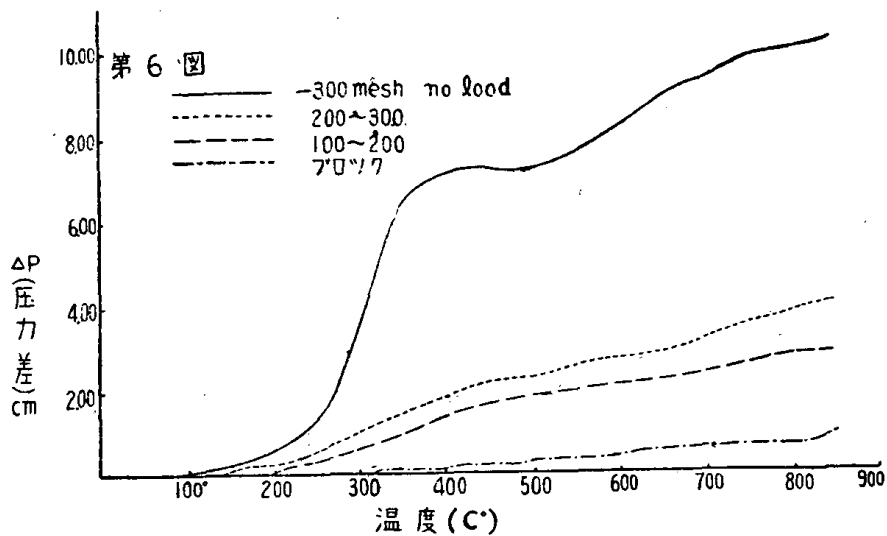
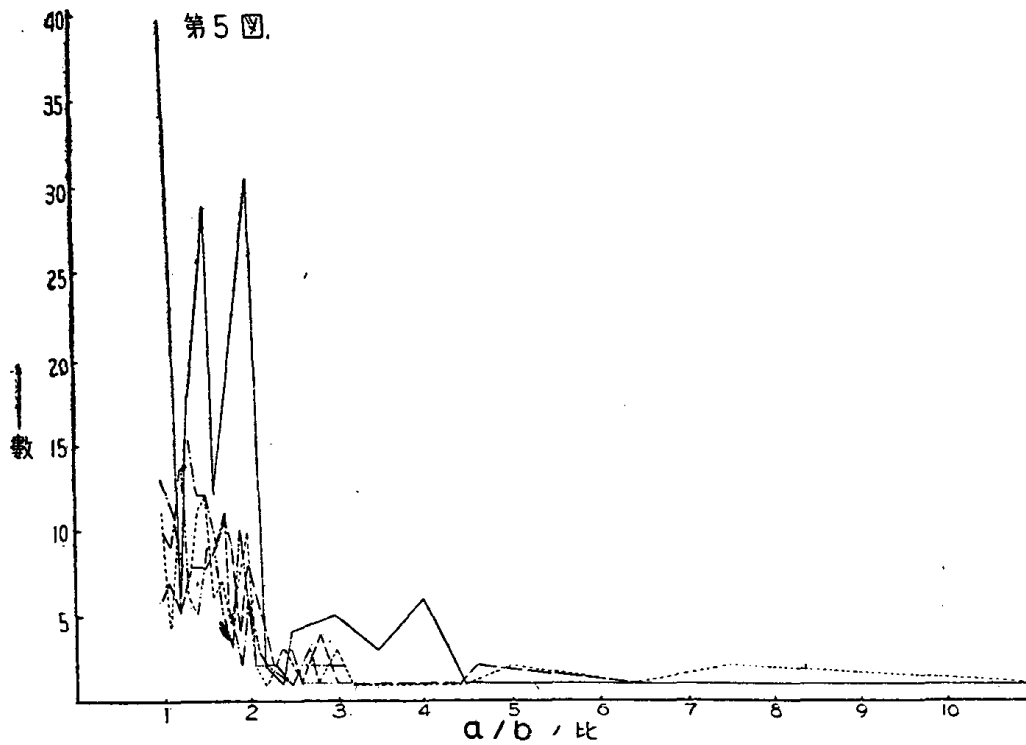
ii) 篩別の意味 篩別法は大まかにその大きさを區別する手段と考へられて居るが次の點を明確にする必要がある。即ち篩別された粉末群は正確に如何なる大きさの分布状況にあるかと言ふ點並びに平面的な篩眼に對して立體的な粉末は都合良く此の眼を通るに過ぎないのであるから形状が異なる場合には必ずしも篩別によつて同じ大いさの粉末が分別されて居るとは限らないが此の篩別法の不備なる點、以上二つの點に就いて我々が認識する事が篩別法の意味を知る事になるのである。

今電着銀粉末を30瓦づつ採取320, 300, 250, 200, 150, 及100眼の篩ひによつて20分間づつ篩ひ分けて各群の粉末を微量スライドガラス上に分散せしめ前述の方法で顯微鏡により個々の粉末の大きさを測定しその多數の値から粒度分布統計多角形第3乃至6圖を得た。此の圖は或る範圍の大きさをもつ粉末の數を縦軸にとりその範圍の平均の大きさ^{*}を横軸にとつ

* 顯微鏡倍率77倍故横軸の大きさは實物の77倍

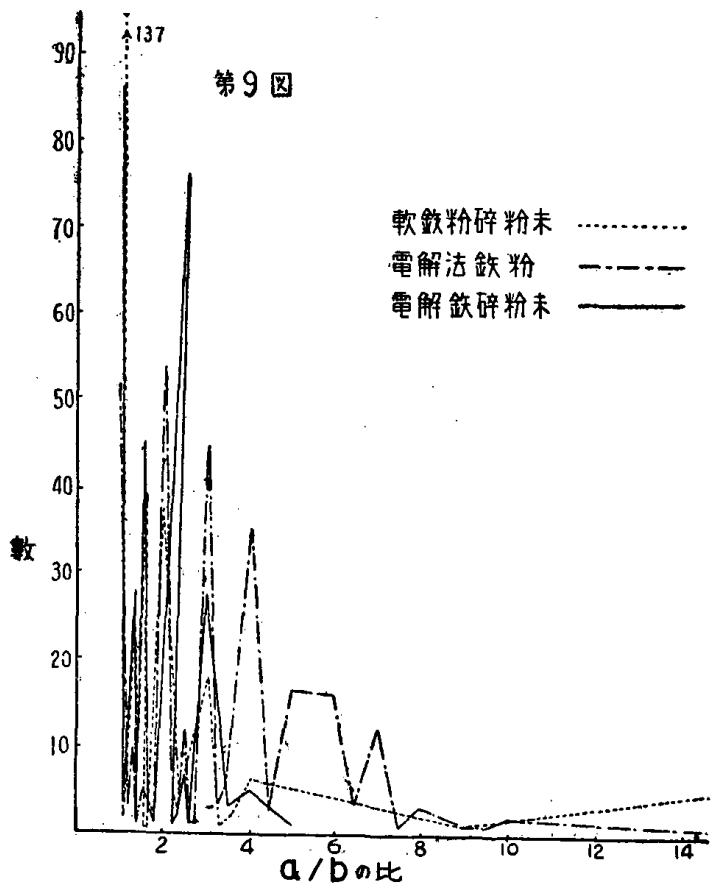
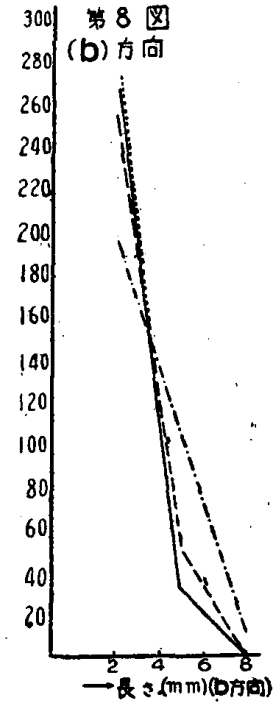
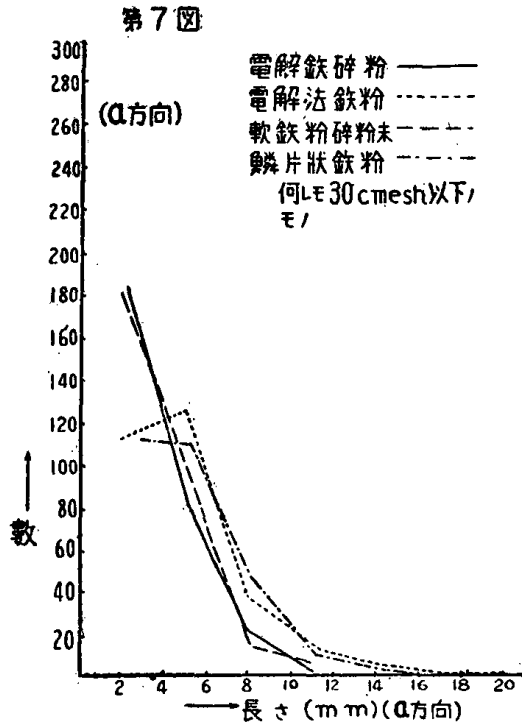


である。第3圖は前述の如く粉末の比較的長い方向の長さを測定せるもので第4圖は短い部分第5圖はその兩者の比を示す故比が1ならば球形1より大なら形状の細長き事を示して居る。以上3圖の結果から-300眼のものは可成り粒度が揃つて居るが-250、及びそれ以上の篩目で篩別された粉末群は色々の大いさのものが可成り含まれて居り最も多い粉末の大いさが篩目に依り大なる方に寄るに過ぎない。而も-150以上の粒度のものはその粒度範圍が更に著しくなつて居り如何なる大いさの粉末が最も多いかも判らない。以上-300のものが比較的粒度の小なるもので揃つて居る事、亦更に微粉末を含有して居る事は粉末表面積の間接的測定からも判る。即ち前述の方法に依る各眼の一定量の粉末の瓦斯放出量を求めたのが第6圖である-300のものは他のものに比較して瓦斯放出量が著しく大である。第5圖は各眼の粉末群の形状の分布状態を示すものであるが-300の如き微粉



末に於ても比1より大なるもの多く細長いものが可成り含まれて居る事が此の結果から判る。粒度の大なる粉末群も矢張り細長い粉末を同様に多数含んで居る。

次に形状の異なる電着鉄粉、電解鉄、軟鉄搗碎粉、搗碎鱗片状粉に就ての結果を第7~9、圖に示す。粒度は何れも-300眼のものである圖に見る如く電解鉄軟鉄搗碎粉末の塊状のものは略々同じ傾向を示して居るが、此等と著しく形状の異なる電着鉄粉と鱗片状搗碎粉末とは稍々これ等と相違を示して居る。而して此の形状分布の差は第9圖のの比を横軸にとる統計分布多角形により或る程度は知り得る。即ち、電解鉄軟鉄搗碎粉末は球形に近似す



るものが多いが電着鉄粉は細長い粉末を多数含んで居る事が判る、亦同じ搗碎粉でも電解鉄の方が軟鉄のそれより球形類似のものが多くなって居る。

以上要するに篩ひによつて粉末を夫々或る大きさの範囲に區分した場合に同じ篩を通つた粉末群の中には細いものとしからざるものゝが夫々種々の割合に含まれて居りその分布状態は一様ではない依て-300の如きに於ては-100と-200との相違から考へて-200と-300に存在すると考へられる相違が必ずしも存在し

ない事になる。亦形状の異なる各種の粉末群を篩別する場合には同じ目の篩ひで分けられて

もその粒度分布状態に差を示す。以上の事は顕微鏡に依り多数の個々の粉末に就いてその大きさを測定し分布統計を取る事により初めて知り得るのである。篩別せる粉末群を取扱ふ場合に充填度成形難易等色々の現象を観察する上に於て此等の點を考慮に入れる必要がある。

iii) 充填度の測定とその意義 篩別法は顕微鏡的觀察によりその意味を明確化されたのであるが、顕微鏡的方法自體立體的な粉末を平面的に觀察すると言ふ點と測定技術上極めて小さな微粉を見逃し易いと言ふ點に缺點がある。依て吾々が粉末群の性格を判断する上に於て平面的な測定法である篩別法、顕微鏡的觀察の外に、粉末の立體性、大さの分布状態も同時に現れる充填度(粉末群の鐵密度)を併用する事がある。依て顕微鏡的觀察と充填度の關係から充填度自體の意味を探つてゐる。

製造履歴従つて形状も異つた粉末群の-300のものに就いて充填度を測定すれば第3表の結果になる。電解鐵搗碎粉と軟鐵搗碎粉末とは第7~9圖に示す如く顕微鏡的觀察に於ては粒度分布は略等しく形状の分布も少々少し異つて居るが大體類似して居るのに充填度には大なる差が現れて居る。而るに電着鐵粉と軟鐵搗碎粉は形状に著しい相違があり粒度分布にも差があるに拘らず充填度は略一致して居る。此の様な顕微鏡的觀察により求められた粒度分布の状態に認められない差が充填度に大きく現れるのは如何なる理由によるのであらうか。充填度なるものは見掛けの密度を示すもので一定の容積内に入り得る質量であるから形大いさの分布が粒と粒との隙間をつめるのに都合の良いものが充填度が大となる譯である。粉度分布を求める場合には便宜上形状を平面的に換算したが此の場合には粉末の立體的な厚み、凸凹等が問題になる。要するに平面的觀測では見逃された點が集積して充填度に影響してくる。

此等の點も考慮に入れて電解鐵軟鐵、搗碎粉末の充填度の差を考れば、電解鐵の軟鐵に比較して脆性に富む點が搗碎された個々の粒形その分布に充填度を大ならしめる様な性格を與へて居る様に考へられる。第9圖に於ても軟鐵搗碎粉は電解鐵搗碎粉より稍細長いものが多い様に考へられるが、更に前者は後者のものと比較して箔狀の粉末が介在少くその脆性のため極微粉の存在する

第3表 粉末の見掛け密度

種 類	密 度
電解鐵搗碎粉末	3.0g/cm ²
鐵 線	1.8
電 着 鐵 粉	1.7
酸 化 鐵	1.0
修 酸 鐵	1.9

第4表 粉末の種類による充填度の差

種 類	粒 度	充 填 度
電解鐵搗碎粉	-300	3.0g/cm ²
〃	-200	3.1
〃	-100	3.3
鐵 線 粉	-300	1.8
〃	-200	2.0
〃	-100	2.4
〃	+100	3.2
電 着 鐵 粉	-300	1.7
〃	-100	2.7
〃	+100	3.0

のが綿密に観察すると判るが、此の點に關する詳細は後報に述べる。要するに此等の電解鐵搗碎粉の形狀、大いさの分布が細長い盤狀粉より球形にして而もその隙間を埋める様な微粉の介在して充填度を高める分布状態に接近して居る様に推測出来る。

次に第5表に示す如く兩者の粉末とも、粗粉になると充填度が大になつて居る此れは粒度が大になれば隙間の數が減つてくると、その隙間を埋めるに都合の良い様に粒度形狀の分布に廣い幅がある爲めの様に考へられる。

結 論

粉末冶金に於ては多くの場合選別に篩別法を採用し成型燒結等の現象の細かな觀察に際し、同じ眼の粉末群は略同じ性格を備へて居るものの集合の如くに假定して考察を下し勝ちであるが、粉末の履歴によつて又履歴は等しくも同じ眼のもので粒度形狀の分布状態等粉末の性格が異つて居る場合がある。又眼の相違が單なる粒度の相違のみでなく形狀その他の相違を包含して居る。依つて此等の點は成型燒結等くつつきの微細機構を考へるに當つて等閉視し得ないものである故、先づ比重、粒度、形狀、その分布状態充填度等より見たる粉末の性格に關する觀察結果を報告したその主要點を列擧すれば

i) 各種の粉末の比重を比重瓶の一般法で測定し、鐵粉に就ては採取量1瓦以上の時は粒度形狀の如何に關せず純鐵塊に近い値を示す事を知つた。微粉凝聚性による粉末比重測定上の困難は實驗試料の大さの程度では現れなかつた。但電着銀粉はその程度の粒度で凝聚性を示し銀塊より可成り低い値を示した。

ii) 粒度決定法として篩別法と顯微鏡による粒度分布統計多角形を比較觀察し更に瓦斯放出の測定により篩別された各粉末群の實際の性格を示し-300のものが他の眼のものとは著しい差を有しその他の篩別は明確な粒度差を與へず可成り廣い範圍の粒度のものを混合する事を示した。

iii) 平面的な篩別法が立體的な形狀の異なる粉末を篩ひ分けた場合に粒度選別として如何なる誤差を生ずるかを明らかにした。iii) 粒度分布統計多角形で同一の傾向をたどるものに就ても、充填度の異なる事實から前述の方法丈では粉末の立體性を充分に表さない事を示し粒度決定には篩別、ii) 粒度分布多角形と充填度を併用する可き事を推測した。

終りに臨み實驗試料に就いて御便宜を御量り下さつた京大荒勝教授、古河理研石川正氏並びに實驗に協力された毛利雅子氏に感謝の意を表す。本實驗は日本學術振興會の研究補助によるもので同會に感謝の意を表す。

参 考 文 献

- i) P Skapny; Metallkoramik, (1943)
- ii) P. S. Roller; Ind. Eng. Chem. (1930) 22 1200~8