



入門講座

專門用語-鐵鋼材料編-3

## 結晶粒度番号と結晶粒径

梅本 実

Minoru Umemoto

豊橋技術科学大学工学部生産システム工学科 教授

## Grain Size Number and Grain Diameter

1 はじめに

金属を適当な腐食液で腐食して光学顕微鏡で見ると、網目に似た組織が観察される。これは結晶粒界と呼ばれるものであり、それに囲まれた部分が結晶粒である。1つの結晶粒は、1個の単結晶であって、それぞれの結晶粒の中で原子は規則正しい配列をしている。

一般的の金属は多くの結晶粒からなる多結晶体である。金属の機械的、物理的、化学的性質の多くは結晶粒の大きさに依存するので、多くの材料において結晶粒径を制御する努力がなされている。例えば材料の強度と韌性は結晶粒径が小さくなる程向上する。特に降伏強度が結晶粒径の $-1/2$ 乗に比例することはホール・ペッチの関係として良く知られている。また結晶粒径を小さくすると粒界すべりにより超塑性が発現する場合がある。一方高温用材料では粒界すべりのためクリープが起こりやすくなるので、結晶粒を大きくする努力がなされている。また機能材料においても結晶粒径は熱伝導や、残留磁束密度などの物理的性質にも影響を与えることが知られている。最近では結晶粒径をナノサイズにすることにより、これまでにない新しい特性をもった材料を作ろうという試みが盛んになされている。このように金属材料にとって結晶粒径は最も身近で重要な組織因子の一つである。

さて“結晶粒径”というと、その意味は非常に明解のように思える。しかし、結晶粒径を定量的に表現しようとすると、その寸法のとり方には種々な方法がありえることがわかる。例えば結晶粒径を結晶粒1個の平均の体積に等しい球の直径にするとか、多結晶体を同じ大きさの14面体の集合と考えて結晶粒径を14面体の相対する正方形の間の長さとするなどである。したがって材料の技術者や研究者が“結晶粒径”を扱う場合、共通の定義に従う必要がある。

本稿では結晶粒径の規格に関する話などをまとめてみた。まず結晶粒径の測定方法と、それに関連して定義され

た粒度番号、公称粒径などについて述べ、次に計量形態学から導かれる結晶粒に関したいくつかの幾何学上の関係式を紹介する。そして結晶粒に関係した種々の量の間の相互関係についてまとめた。最後に光学顕微鏡以外の結晶粒径測定方法を紹介した。ただし本稿で取扱ったのは単相で等軸的で、大きさのだいたい揃った整粒の場合である。その他の場合については文献<sup>1)</sup>を参照されたい。なお本稿は著者らが以前に熱処理協会機関誌に書いた技術解説<sup>2)</sup>に加筆修正したものである。

 ASTMおよびJISにより規定された結晶粒度測定方法

## 2.1 ASTMにより規定された粒度測定方法

ASTMは結晶粒度の測定に関してつぎの3つの方法を規定している<sup>3)</sup>。

(1) 比較法：100倍の倍率で試料の顕微鏡写真をとり、これを標準粒度図と比較することにより決定する。これは半定量的な方法である。

(2)求積法 (Jeffries法<sup>4)</sup>、面積計量法)：顕微鏡写真または顕微鏡のすりガラスのスクリーン上に面積既知の円もしくは矩形を描き、適当な倍率で、円もしくは矩形の周線と交わる粒の数と、図形内に完全に含まれる粒の数を別々に数える。周線と交わる粒の数の1/2と、内部に含まれる粒の数との和を、その面積内に含まれる粒の数とする。用いた倍率における平方インチ当たりの粒の数を計算し、次式によりASTM粒度番号に換算する。

二二四

G : ASTM粒度番号

*n*: 倍率100倍における1平方インチ当たりの粒の数  
つまりASTM粒度番号は倍率100倍において1平方インチ  
当たりに粒が1つある場合を粒度番号1とし、粒の数が2



$\bar{\ell}_1, L_2/(M_2)$ は2方向の平均結晶粒切片長さ $\bar{\ell}_2$ である。今、 $\bar{\ell}_1 \times \bar{\ell}_2 = \bar{\ell}^2$ とすると倍率1倍における1平方mm当たりの粒数 $n_0$ は $\bar{\ell}^2$ を使って表すと、付録に示す関係から

$$n_a = 1/\bar{a} = \pi/(4\bar{\ell}^2) \dots \dots \dots \quad (11)$$

これを使って倍率100倍の写真上で25mm<sup>2</sup>あたりの結晶粒数は

従って倍率 $M$ 倍の写真上で総和の長さが $L_1$ と $L_2$ の直線による切断法を行った場合の $n$ を求める式は

$$n = \left(\frac{M}{100}\right)^2 \times 25^2 \times \frac{(I_1 \times I_2)}{(L_1 \times L_2)} \times \frac{\pi}{4} \quad \dots \dots \dots \quad (13)$$

となる。ここで $\pi/4=0.785$ であるので、これを0.8と近似し、 $25^{\circ}\pi/4=500$ とすると(13)式は(10)式になる。(JISの解説<sup>8)</sup>には「ただし、0.8の係数については明確ではなくASTMに問い合わせても返事は得られなかった」とある。0.8を用いる理由は本稿の付録でも明らかなように、求積法と切断法で求めた結晶粒度番号を同じにするために導入した係数である。)

以上のようにJIS規格では結晶粒度番号を決めるのを主体に規格が作られている。結晶粒度番号は単位面積当たりの粒数、つまり結晶粒の平均面積を基準にしている。そしてこれを補完する形で切断法が規定されている。しかし、切断法によって求められる平均結晶粒切片長さはその測定が容易であるだけでなく、次に述べるように、結晶粒界面積を厳密に与えることが出来るので、物理的意味も結晶粒面積より明確である。近年画像解析装置の発達によって、結晶粒の定量化がおこなわれているが、そこでは切断法が主流となっている。従って、平均結晶粒切片長さを基準として、結晶粒径や粒度番号を規定する新しいJIS規格が必要と思われる。

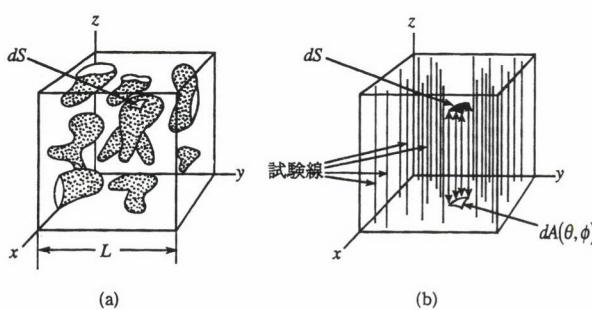


図2 平行な直線群による3次元構造の標本抽出。  
(試験線はこの体積中の表面要素の投影を意味している(文献<sup>1)</sup>より))

## 3 単位体積当たりの粒界面積と 粒数の求め方

結晶粒の大きさは上述のようにその基本寸法の取り方に任意性があるが、単位体積当たりの粒界面積や粒数は一義的に決定できる物理量である。ここでは計量形態学的に求められる粒界面積 $S_V$ と平均結晶粒切片長さ $\bar{\ell}$ との関係、そして単位体積当たりの粒数 $N_V$ と切断面上での平均結晶粒面積 $\bar{a}$ との関係について述べる。

### 3.1 単位体積当たりの粒界面 $S_V$ と平均結晶粒切片長さ $\bar{\ell}$ の関係

単位体積当たりの粒界面積は金属のさまざまな性質に大きな効果を及ぼす。例えば相変態や析出においては粒界が優先的な核生成場所となるので、粒界面積の大小は核生成速度に大きな影響を与える。また結晶粒界が障害として作用するような諸性質、例えば硬さ、降伏強度、あるいはクリープのような結晶粒界の移動と結びついた性質にとっても粒界面積は重要な因子である。ここでは単位体積当たりの粒界面積  $S_V$  が平均結晶粒切片長さ  $\bar{L}$  を使って粒の形や分布によらず厳密にかつ簡単に表現できることを示す。

$S_V$ と $\ell$ の関係はSaltykov<sup>9)</sup>によって最初に導かれた。いま図2に示すような実体 $dS$ の $xy$ 面上への投影を $dA(\theta, \phi)$ とする。試験線が標本空間中に一様に分布しているとすれば試験線が粒界要素 $dS$ と交わる確率 $P_r$ は

$$P_r = dA(\theta, \phi) / L^2 \quad \dots \dots \dots \quad (14)$$

となる。試験線の数を  $F$  とすれば、粒界要素  $dS$  との交点の数は  $F[dA(\theta, \phi)/L^2]$  で与えられる。また試験線の全長は  $FL$  であるから、試験線の単位長さ当たりの交点の数は

$$dN_L(\theta, \phi) = \frac{1}{FL} \left[ \frac{FdA(\theta, \phi)}{L^2} \right] = \frac{dA(\theta, \phi)}{L^3} \quad \dots \dots \dots (15)$$

となる。また上の図より

$dN_L$ を方位に関して平均すれば、位置および方位に関して一様に分布した試験線の単位長さ当たりにできる交点の数の平均値について次式を得る

$$d\bar{N}_L = \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \frac{dS}{L^3} |\cos \theta| \frac{\sin \phi d\theta d\phi}{4\pi} = \frac{1}{2} \frac{dS}{L^3} \quad \dots (17)$$

この結果は組織のサンプル内の各面積要素に対して適用できるから組織中の全部の面でできる交点の数は

$$\bar{N}_L = \iint_s \frac{1}{2} \frac{dS}{L^3} = \frac{1}{2} \frac{S}{L^3} \quad \dots \dots \dots \quad (18)$$

右辺の  $S/L^3$  は単位体積当たりの全粒界面であり、これを  $S_v$  で表わせば

また



ろにそれぞれの列の物理量を行の物理量で表現した場合の結果が示してある。例えば  $n$  の行の  $G$  の列のところには  $n$  を  $G$  で表現したもの、つまり  $n = 2^{G-1}$  が与えられている。この表を使って、ある量から他の量への変換ができる。

## 5 光学顕微鏡以外の 結晶粒径測定方法

ASTM規格やJIS規格では結晶粒度を求める方法としては光学顕微鏡を念頭においている。しかし、光学顕微鏡による観察は試料の研磨と腐食という操作が必要なため、オンラインでは使えない。また最近の研究はサブミクロンやナノサイズの結晶粒径が対象となっている場合が多く、光学顕微鏡はこのサブミクロンの領域には適用できない。ここで光学顕微鏡以外の結晶粒径の測定方法の主な物をまとめておく。

### 1) 走査型電子顯微鏡 (SEM)

光学顕微鏡では可視光を使っているので、分解能は可視光の波長である $0.5\mu\text{m}$ が限界である。したがって結晶粒径が数 $\mu\text{m}$ 以下になると、光学顕微鏡ではもはや観察できなくなる。走査型電子顕微鏡 (SEM: Scanning Electron Microscope) では $0.1\mu\text{m}$ 程度の結晶粒径のものまで測定が可能である。ただし結晶粒によって化学組成が異なる場合は2次電子のコントラストの違いから粒界を比較的容易に判断できるが、同一組成の場合は粒界を腐食しておく必要があり、結晶粒径が小さくなるほど腐食は難しくなる。

SEMとelectron channelingを組み合わせたEBSD (electron Back Scattering Diffraction) は各結晶粒の方位が測定でき、亜粒界と大傾角粒界を区別しながら結晶粒径を決定することができる。原理としては1μm程度に絞った電子ビームを試料にあて、その部分の結晶方位をchanneling patternによって決定する。この操作を試料上である間隔で行うことにより、試料面上での結晶方位の分布図ができ、同一方位の場所を一つの結晶粒とみなすことにより、亜粒界と大傾角粒界を区別した結晶粒径が決定できる。識別できる結晶粒の最小の大きさは、ビーム径と測定場所の密度で決まるが、現在市販されている装置では1μm程度である。

## 2) 透過電子顯微鏡

(TEM: Transmission Electron Microscope)

従来の透過電子顕微鏡および高分解能透過電子顕微鏡はサブミクロンの結晶粒径の測定には最も信頼性の高い方法である。ただし透過電子顕微鏡では結晶粒のコントラストを得るにはBragg条件を満足させる必要があり、すべての結晶粒が同時に明瞭に見えるのはまれである。また、粒界が投影された形で観察されるため、試料表面に対して斜め

に入った粒界は幅を持って見え、観察場所の上下方向に複数の結晶粒がある場合は粒界同士の重なりが起こる。

### 3) X線回折

X線を利用して結晶粒径を測定する方法には2つの方法がある。その一つはデバイ-シェラー環のX線強度の相対標準偏差を測定して粒径を求める方法で、数十 $\mu\text{m}$ 程度の粒径測定に使用される。複数の検出器を特定の結晶面からの反射位置に配置し、各検出器には少なくとも数個の斑点が入るようにしておく。各検出器で回折強度を測定し、計測値の相対標準偏差 $D_m$ を求める。粒径 $d$ と $D_m$ にはよい相関関係があり、これを利用して粒径を求める<sup>11)</sup>。もう一つの方法は回折線の拡がりから結晶子の大きさを求める方法で0.2~0.002 $\mu\text{m}$ の粒径測定に使用される。結晶子(crystallite)が0.2 $\mu\text{m}$ より小さくなると回折線の幅が拡がる。そしてこれが20 $\text{\AA}$ 程度以下になると、いわゆる非晶質の回折図形を示す。したがって結晶子がそれらの中間の大きさであれば、回折線の幅を測定して結晶子径を求めることができる<sup>12)</sup>。Scherrerは結晶に歪がなくて結晶子の大きさが均一で、回折線の幅の拡がりが結晶子の大きさだけによると仮定して次式を導いた。

ここで $D_{hkl}$ は( $hkl$ )面に垂直方向の結晶子の大きさ(Å)、 $\lambda$ はX線の波長(Å)、 $\beta$ は回折線幅(rad)、 $\theta$ は回折角(°)、 $K$ は定数である。ただし、多結晶体の個々の結晶粒は一般に複数の結晶子の集合体であるから、電子顕微鏡などで観察する粒径に比べて小さい場合が多い。

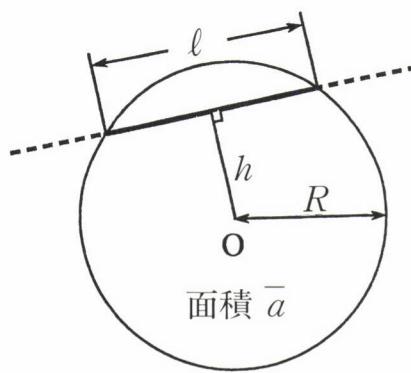
#### 4) 超音波

超音波は多結晶材料内を伝搬する際、結晶の弾性異方性のため、結晶粒界面による散乱をうけてエネルギーを失い、振幅が小さくなる。この原理を使って縦波超音波パルス多重反射法により3~35MHzの周波数域で減衰定数を測定することにより、結晶粒径を測定することができる<sup>13)</sup>。

6 おわりに

“結晶粒の大きさ”は金属組織を扱っているものにとつては非常に身近な量であり、その概念があまりにも単純で明確に思えることから、普段はほとんど注意が払われていないようである。しかし、よく調べてみると、粒径は定義をして初めて意味をもつこと、結晶粒の大きさは測定方法から規格化されていること、単位体積当たりの粒界面積は簡単に測定でき、粒径よりも物理的に明確な量であることなど、に気付かされる。

今回粒径の話をまとめてみたが、JIS規格では結晶粒度



付図 平均結晶粒切片長さ  $\bar{\ell}$  と平均結晶粒面積  $\bar{a}$  との関係

による表現が主流であり、結晶粒径についての規格は見あたらない。実用材料にとって粒径よりも粒度の方がなじみがあり、おそらくそれで支障がないものと思われる。しかし、研究の分野ではサブミクロンやナノサイズの結晶粒径が対象となっており、光学顕微鏡を主な道具として測定する結晶粒度は、このサブミクロンの領域には適用できない。サブミクロンの結晶粒径に対する規格の制定がいずれ必要になろう。現状では世界の研究者の間で、結晶粒径の算定方法を少なくとも統一しておく必要がある。本稿が結晶粒径を測定するときの参考になれば幸いである。

#### 付録

##### 試料面上での平均結晶粒切片長さ $\bar{\ell}$ と平均結晶粒面積 $\bar{a}$ との関係

この問題は面積  $\bar{a}$  の円に任意に引いた直線が交わってできる弦の長さの平均値を求める問題に近似できる。いま付図のように面積  $\bar{a}$  の円の半径を  $R$  とすると、中心から  $h$  の距離を通る弦の長さ  $\ell$  は

$$\ell = 2\sqrt{R^2 - h^2} \quad (\text{付-1})$$

中心から  $h$  と  $h+dh$  の間を直線が通る確率は  $dh/R$  であるから、弦の平均長さ  $\bar{\ell}$  は

$$\bar{\ell} = 2 \int_0^R \frac{\sqrt{R^2 - h^2}}{R} dh = \frac{\pi}{2} R \quad (\text{付-2})$$

円の面積は  $\bar{a}$  であるから  $R = (\bar{a}/\pi)^{1/2}$  であり、したがって

$$\bar{\ell} = (\pi \bar{a}/4)^{1/2} \quad (\text{付-3})$$

ところで  $\bar{\ell}$  と  $\bar{a}$  に式 (付-3) の関係が成立すると  $G$  と  $\bar{L}$  の関係は

$$G = 1 + \log_2 \frac{(0.254)^2}{\bar{a}} = 9.985 - 2 \log_2 \bar{L} \quad (\text{付-4})$$

となり本文の(6)式が近似できる。

#### 参考文献

- 1) 例えば、計量形態学、牧島邦夫監訳、内田老鶴圃新社
- 2) 梅本実、田村今男：熱処理、24 (1984), p.334
- 3) ASTM Designation E 112-82
- 4) Z. Jeffries, A. H. Kline and E. B. Zimmer : Trans. AIME, 54 (1917), p.594
- 5) E. Heyn : Metallographist, 5 (1903), p.37
- 6) 例えば、J. Hilliard : Metal Progress, 85 (1964), p.99
- 7) JIS G 0551-1977
- 8) JIS G 0552-1977
- 9) S. A. Saltykov : "Stereometric Metallography" 2nd ed. (1958), p.446, Metallurgizdat, Moscow
- 10) G. H. Gulliver : J. Inst. Metals, 19 (1918), p.145
- 11) 星野和夫, 伊藤健次郎, 藤岡外喜夫, 円山弘, 荒木宏侑, 熊沢昭二：鉄と鋼, 73 (1987), p.621
- 12) 加藤誠軌：X線回折分析、内田老鶴圃(1990), p.247
- 13) 関口昭一, 井内徹, 松田昭一, 高藤英生：鉄鋼協会第3回ミクロ組織センター研究部会, (1992)

(1997年7月31日受付)