



入門講座

鉄鋼の試験/評価-4

結晶粒度評価

Estimation and Determination of Grain Size

高山善匡

Yoshimasa Takayama

宇都宮大学 大学院工学研究科
機械知能工学専攻
教授

1 はじめに

「結晶粒度」は、結晶性材料の微細組織を扱う研究者・技術者にとって、最初に評価すべき対象である。この結晶粒度が、金属材料およびセラミックスの特性を支配する重要な因子の1つであることは言うまでもない。例えば、多結晶金属の降伏強度 σ_f と結晶粒度 d との間には次の式で表される Hall-Petch の関係^{1,2)} が成立する。

$$\sigma_f = \sigma_0 + k_y d^{-1/2} \dots\dots\dots (1)$$

ここで、 σ_0 は単結晶の平均降伏強度、 k_y は結晶粒界が降伏強度を高める効果を表すパラメータである。

上記の式 (1) の結晶粒度 d をとしてどのような量を測定すべきか、これが問題である。降伏強度と関係づけられるのは、当然ながら3次元 (以下、「次元」をDと略記することがある) 的に存在する結晶粒組織の3次元的な平均結晶粒度である。しかしながら、結晶粒度の概念は単純かつ明確に思われることから、十分な注意が払われておらず、本質的な定義は未だ統一されていないように思われる。よって、特性との関係を踏まえて結晶粒度として求めるべき量を吟味しなければならない。

翻って通常用いられている結晶粒度の評価法^{3,7)} をみてみると、普遍的な「結晶粒度」を求めたと言うよりは、結果的に結晶粒度をそれぞれに定義して評価したものとなっている。これは、結晶粒度の本質的な定義が不明確であることに加え、3D結晶粒度を2D断面組織から評価することの難しさにも起因していると考えられる。2D断面組織から3D組織を定量的に評価する試みは1950年代以降精力的になされておられ、Stereologyあるいは定量組織学としてまとめられている。

本稿では、材料特性と結晶粒度との関係を調べることを前提に、結晶粒度を合理的に評価する方法を整理して述べる。「結晶粒度」と「結晶粒径」は、明確に区別されない場合もあ

るが、ここでは厳密に区別して用いることにする。前者は、結晶粒の大きさを表す広い意味を持つ用語であり、後者は結晶粒度の表現の1つであると考えられる。筆者は、「grain size」の訳語として「結晶粒度」を、「grain diameter」の訳語として「結晶粒径」を用いている。また、いわゆる「結晶粒度測定法」に関しては、前述のように結晶粒度として測定すべき量が必ずしも明確でない状況であるとの認識から、測定する対象量を定め、その量を測定する方法という意味で、結晶粒度の「測定法」ではなく「評価法」と呼ぶことにする。

本稿の内容の主要な部分は、著者の結晶粒度評価に関する拙文⁸⁾ に依っている。必要に応じて参照いただければ幸甚である。

2 結晶粒組織

2.1 定量組織学的確認

3Dに存在する結晶粒組織と2D断面組織の関係を確認しておきたい。結晶粒組織は、しばしば生物の細胞組織や泡に類似したセル構造として説明される。しかしながら、実際に存在する結晶粒は典型的な細胞組織のようにほぼ同一の体積を持ったものではない。またほぼ等軸と見なし得る形状であっても、それにはさまざまなものがある。したがって、2D断面には結晶粒断面が現れるが、各結晶粒が断面に現れる確率は結晶粒のサイズに依存する。よって、2D断面組織はサイズ分布を考慮すれば、3Dサイズの各クラスをランダムに抽出したものではないと言える。また、結晶粒の形状はさまざまであるため、結晶粒度の定義が前提となる。

2.2 結晶粒界の判定

現在、結晶粒組織の評価は光学顕微鏡観察のみならずSEM/EBSDを用いる例が増加しつつある。このような状況では、結晶粒組織における粒界判定が重要となる。断面組織

に対する腐食液による粒界現出においては経験的に粒界と判断される境界を粒界と判定する。一方、SEM/EBSD解析装置による場合は、大角粒界 (large angle boundary or high angle boundary) を判定する粒界方位差角により結晶粒度が変化する。

図1は金属組織の平均結晶粒径 (面積等価直径) を粒界と判定する方位差を変化させてSEM/EBSD解析により調べた結果⁹⁾である。試料はAl-Mg系合金の4試料A、B、CおよびDであり、EBSD解析におけるstep sizeは1 μ mである。試料A、BおよびC、Dの化学組成は、それぞれAl-4.24% Mg、Al-4.70% Mg-0.65% Mn-0.10% Cr (mass%)である。AおよびBは、99.8%冷間圧延された0.1mm厚の薄板であり、それぞれ563K、5.6 $\times 10^4$ s⁻¹および573K、1.4 $\times 10^3$ s⁻¹の条件で引張試験されたものである¹⁰⁾。AおよびBの破断伸びはそれぞれ62%、156%である。C、Dは50パスの連続繰返し曲げ加工¹¹⁾ (真ひずみの計算値: 5.28) 後、それぞれソルトバス中および大気中で673K-3.6ksの熱処理を施した試料である。

これらの4試料について、粒界と判定する結晶方位差を5°~30°まで変化させて、平均結晶粒径 (面積等価直径) d_n を求

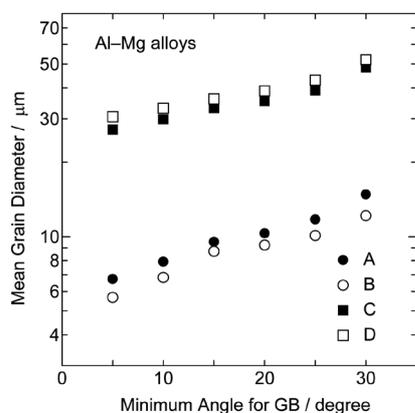


図1 SEM/EBSD法による結晶粒径と粒界判定方位差の関係⁹⁾

めた。当然ながら、図のように粒界判定方位差の増加に伴い、4試料の平均結晶粒径は増加している。より詳細にみると、A、Bでは小角粒界の割合が多いため設定方位差の影響が大きいのに対し、C、Dでは設定方位差の影響が比較的小さい。その傾向は10°近傍で特に顕著である。そこで、5°~15°の範囲について、各試料の1°当りの平均結晶粒度変化率を計算した。その結果、試料C、Dでは2.0% /deg., 1.7% /deg.であるのに対し、A、Bは3.5% /deg., 4.4% /deg.と、約2倍変化が大きいことがわかる。したがって、A、Bのような小角粒界が多い試料では、粒界判定方位差の影響が大きく、よりその設定に注意を払う必要があるといえる。また、粒界判定方位差の影響が大きい試料では、結晶粒組織に関わる小角粒界の割合が大きいため、従来法とSEM/EBSD法による評価値の関係が一般的な試料とは異なることが示唆される。

3 結晶粒形状

次に、結晶粒度の定義あるいは評価の前提となる結晶粒形状についてまとめておく。結晶粒形状を考察する上では、平均的な形状と形状の分布とに分けて考えなければならない。

3.1 平均的な結晶粒形状

Thompson¹²⁾は、結晶粒形状の検討において次のような3条件を提示している。

- ①空間を充填する
- ②S/V (表面積/体積) が最小、すなわち表面エネルギーが最小である
- ③結晶粒あたりの面の数、面あたりの辺の数が金属組織学的な観察と合致する

①の空間充填性に関しては、Kaiser¹³⁾により同一寸法の平行多面体について検討がなされている。その結果、空間を充填し得るものは、図2に示すように、基本的に、(a) 立方体 (平

表1 空間を充填する多面体の性質

多面体	体積, V	表面積, S	S/V ^{1/3}	(S/V) _N ^{1/2}	面の数, f	稜の数, e	隅の数, c
立方体	a^3	$6a^2$	$\frac{3}{a}$	3.000	6	12	8
六角柱	$\frac{3\sqrt{3}a^2h}{8}$	$\frac{3\sqrt{3}a^2}{4} + 3ah$	$\frac{1}{h} + \frac{4\sqrt{3}}{3a}$	2.860	8	18	12
斜方12面体	$\frac{a^3}{4}$	$\frac{3\sqrt{2}a^2}{4}$	$\frac{3\sqrt{2}}{a}$	2.673	12	24	14
準正14面体	$\frac{a^3}{2}$	$\frac{3(1+2\sqrt{3})a^2}{4}$	$\frac{3(1+2\sqrt{3})}{4a}$	2.657	14	36	24

*1 表面が2つの結晶粒で共有されることを考慮してS/Vを計算。

*2 体積の3乗根の逆数V^{-1/3}で規格化したS/V、(S/V)_N=(S/V)V^{-1/3}を導出。ここで、六角柱については、(S/V)_Nが最小となるh=($\sqrt{3}/2$)aの形状の値である。

行6面体の代表として)、(b) 六角柱、(c) 斜方12面体および (d) 準正14面体 (Kelvin14面体、しばしば「正14面体」と呼ばれるが数学的には「準」をつける) の4つに限られるとされている。

②の表面エネルギーの条件は、組織全体としては、結晶粒の体積に対する表面積の比が小さいこととして表すことができる。(1) の条件を満たす4つの多面体について、表面が2つの結晶粒で共有されることを考慮して S/V を計算してみると、それぞれ (a) $3/a$ 、(b) $1/h + (4\sqrt{3}/3)/a$ 、(c) $3\sqrt{2}/a$ 、(d) $\{3(1+2\sqrt{3}/4)\}/a$ となる。同じ体積の多面体として比較する必要があるから、 $V^{1/3}$ で規格化した S/V 、 $(S/V)_N$ として表せば、それぞれ (a) 3.000、(b) 2.860、(c) 2.673、(d) 2.657となる。4つの形状のなかで、準正14面体の $(S/V)_N$ が最も小さいことがわかる。表1に4つの多面体の S/V と面、稜および隅(頂点)の数を整理した。

この条件は、局所的には、2つの結晶粒の面が1つの界面を形成し、稜は3つの界面の交線であり、頂点(隅)で4つの稜、6つの面と4つの結晶粒が出会っている形態を導く。よって、表面エネルギーが均一であると仮定すると、稜における3つの交差面間の角度は 120° となり、頂点(隅)における稜の間の角は4面体角 $\cos^{-1}(-1/3)$ 、すなわち $109^\circ 28'$ となる(図3¹⁴⁾ ¹⁵⁾。このことは、異なるサイズの結晶粒が隣接するとき、小さい結晶粒は凸に、大きい結晶粒は凹に結晶粒界面が湾曲することを意味している。

③は位相幾何学 (topology) の問題である。結晶粒形状の議論においては、幾分湾曲した面よりなる多面体はその対象となる。Eulerは単純な多面体の、面 (face) の数 f 、稜 (edge) の数 e 、隅 (corner) の数 c の間にある重要な関係式を導いた^{8,14,15)}。(式の詳細は参考文献参照) 種々の形状に対する界面の総面

積の考察から、面あたりの平均稜(辺)数 $2e/f$ が5.1043、結晶粒あたりの平均面数 f が13.394、結晶粒あたりの平均稜数 e が34.195、結晶粒あたりの平均隅数が22.789であるとき、全界面積は最小になることが知られている¹⁶⁾。この値を踏まえ、前述の空間を充填する多面体を当てはめてみると、準正14面体では $f=14$ 、 $e=36$ 、 $c=24$ で面あたりの平均稜(辺)数 $2e/f=5.1429$ となり、5.1043に最も近い値となることがわかる。このように、位相幾何学的な特徴量は、準正14面体のそれに対応するものになっている。

以上のようなThompsonの3条件についての検討からわかるように、平均的な結晶粒形状としては、準正14面体が、最も適切な近似形状であるとされており、しばしば採用されてきている¹⁷⁻²³⁾。

3.2 結晶粒形状分布

前節の考察は、結晶粒の平均的な形状に関するものであったが、実際の組織においては、1個1個の結晶粒の形状は実にさまざまである。たとえば、前述のRhinesとCraig¹⁴⁾の研究によれば、アルミニウム試料の結晶粒の面の数は、定常成長過程の一般的な組織にもかかわらず、3~50という想像以上に広い範囲に分布している。また、このような形状の特徴は結晶粒の相対的な大きさに依存することが報告されている。RhinesとPatterson²⁴⁾は、ガリウムによる液体金属脆性を利用して、再結晶したアルミニウム多結晶体を結晶粒1個1個に分離し、結晶粒の大きさや形状の関係を明らかにした。図4は、結晶粒の面の数 F_G と結晶粒の質量 W の関係である。図のように、面の数が多い結晶粒ほど質量すなわち体積が大きいことがわかる。また、面の数と質量は、両対数軸上でほぼ直線関係にある。「大きい結晶粒ほど多くの面を持つ」というごくあたりまえに思える事実は、WilliamsとSmith²⁵⁾により最初に指摘され、OkazakiとConrad²⁶⁾によっても確認され

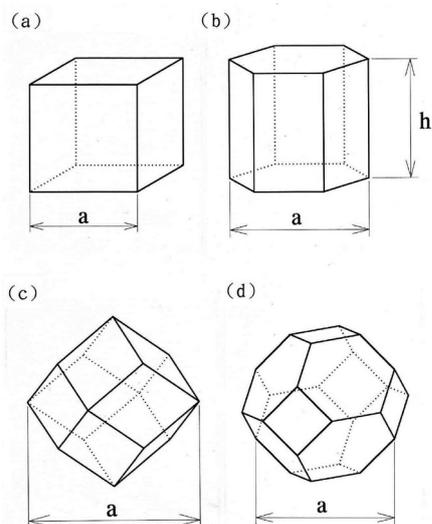


図2 空間を充填する多面体¹³⁾

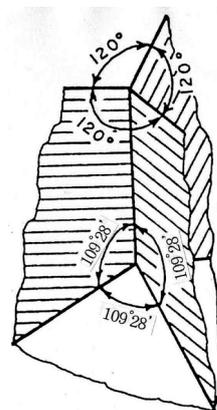


図3 表面エネルギー最小となる角度で4つの結晶粒が出会う平衡状態の隅の状況¹⁴⁾

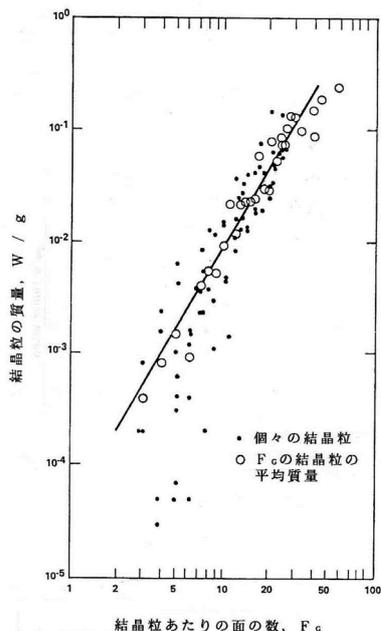


図4 結晶粒の質量と結晶粒あたりの面の数の関係 (両対数軸)²⁴⁾

ている。

このように、結晶粒形状は結晶粒の大きさと密接にかかわるものである。しかしながら、結晶粒の大きさと形状の関係については、形状因子が結晶粒体積に依存しないとす、前述の関係と矛盾するように思われる例外的な報告もなされている²⁷⁾。

4 結晶粒度の表現

1章でも述べたように、本稿では、「結晶粒度」と「結晶粒径」を区別して用いる。前者は、結晶粒の大きさを表す広い意味を持つ用語であり、後者は結晶粒度の表現の1つであるとする。筆者は、"grain size"の訳語として「結晶粒度」を、"grain diameter"の訳語として「結晶粒径」を用いている。

本章では、結晶粒形状に関する検討を踏まえて、結晶粒度の表現方法を整理する。

4.1 1個の結晶粒の結晶粒度の表現

Schuckher³⁾によれば、表2に示すように、1個の球形結晶粒について結晶粒度は、何次元の値で「表現」するか、および何次元において「測定」するか、により数通りに表現される。結晶粒度を仮に1次元の値、すなわち長さで表現するとしても、表のように3通りの表現が考えられる。さらに、3章で詳述したように、現実組織中に存在する結晶粒は球形ではないため、前述の3通りのうち、 d_A および D に対応する値としてそれぞれ数通りの定義が可能である⁵⁾。たとえば、 d_A につ

表2 結晶粒度を表現する変数 (例：球形結晶粒)³⁾

何次元で結晶粒度を表現するか	何次元で測定するか		
	(1) 直線	(2) 平面	(3) 空間
(1) 直線	l , 球により切られた切片長さ	d_A , 円形断面の直径	D , 球の直径
(2) 平面		a , 円形断面の面積	S , 表面積
(3) 空間			V , 球の体積

いては、ある方向に対して定まる値として、形状をはさむ2直線間の距離であるFerret径、正射影の長さである投影直径等がある。方向に依存しない値としては、同じ面積を持つ円の直径である円相当径が挙げられる。このように、結晶粒度は1個の結晶粒についてでさえも多くの値で表現し得る。

ここで、最も理想的な結晶粒度の表現を考えてみると、「表現」する次元としては、視覚的あるいは感覚的に認識しやすく、また、他の次元への変換が容易であることから、1次元の値が適当であろう。一方、「測定」する次元については、3次元に存在する多結晶材料の諸性質が3つの次元全体にかかわっていることは明らかであるから、理想的には3次元において測定されるべきであるといえる。したがって、最も理想的な結晶粒度の表現は、「3次元で測定された1次元の値」であると考えられる。しかしながら、組織を3次的に測定することは通常極めて困難であるため、一般には2次元断面における測定値が用いられている。

結晶粒度の理想的な表現が「3次元で測定された1次元の値」とすれば、球形結晶粒については、表1に示される球の直径 D となる。球形でない通常の結晶粒に対しては、結晶粒と同体積の球の直径である「体積等価直径」が最も適切な表現であると考えられる。体積等価直径は結晶粒体積 V により次式のように表される。

$$D = (6V / \pi)^{1/3} \dots\dots\dots (2)$$

この表現は、Schuckher³⁾とExner⁵⁾により紹介されており、すでに粒成長²⁸⁾および結晶粒位相幾何学 (grain topology)²⁹⁾の研究において採用されている。

4.2 平均結晶粒度の表現

結晶粒組織の平均結晶粒度は、言うまでもなく多くの結晶粒の結晶粒度の平均値である。しかしながら、それぞれの値の単純な算術平均のみを意味する訳ではない。平均結晶粒断面面積に対する円相当径のように、結晶粒度の平均値を基に簡単な関係式により算出された値であることもある。また、後述の結晶粒度分布との関係から、算術平均ではなく幾何平均を用いることもある。したがって、「平均結晶粒度」の「平均」

は、本来その意味を明確にし、「算術平均」、「幾何平均」あるいは「平均的」などと表現して厳密に使い分ける必要があるといえる。

その他、定量（金属）組織学（Quantitative Metallography or Stereology）の分野でしばしば用いられるものとして、単位長さあたりの切片の数 N_L 、単位面積あたりの結晶粒（断面）の数 N_A および単位体積あたりの結晶粒の数 N_V が挙げられる。これらの値は、それぞれ（算術）平均切片長さ \bar{l} 、（算術）平均結晶粒断面積 \bar{V} および（算術）平均結晶粒体積の逆数であり、サイズそのものを意味する量ではないが、平均結晶粒度の表現の1つと考えるとよいだろう。

4.3 結晶粒度分布の表現

一様な組織については、各結晶粒の大きさはほぼ等しいから、結晶粒度を表すために平均値のみを用いれば充分であると考えがちである。しかし、前述のように、いわゆる「整粒」組織でさえもある結晶粒度の分布を持っている。また、この分布状態は、加工熱処理等によりさまざまに変化する。したがって、より正確な結晶粒度の表現のためには、結晶粒度を結晶粒度分布として表現する必要があるだろう。結晶粒度分布の表現は、4.1節で述べた1個の結晶粒の結晶粒度を表現するそれぞれの変数の分布として表現される。

結晶粒度分布に関する研究は1930年代からこれまで数多くなされ、いくつかの重要な知見が得られている⁸⁾。これらの研究における基礎的な結果として、結晶粒度分布は変数の大きい側によく広がり変数の小さい側に限りがある、いわゆる正のひずみを持つ（positive-skew）^{3,5)}分布であることが知られている。このような分布の最も単純な形のものとして、対数正規分布（log-normal distribution）^{3,5,8)}が挙げられる。この分布は変数 x の自然対数 $\ln x$ が正規分布に従う分布であり、その頻度を表す確率密度関数は、

$$f_x(x) = \frac{1}{\ln \sigma_{gx} \sqrt{2\pi}} \frac{1}{x} \exp \left\{ -\frac{(\ln x - \ln x_g)^2}{2(\ln \sigma_{gx})^2} \right\} \dots \dots \dots (3)$$

である。あるいは、 $\ln x$ の確率密度関数として、

$$f_{\ln x}(\ln x) = \frac{1}{\ln \sigma_{gx} \sqrt{2\pi}} \exp \left\{ -\frac{(\ln x - \ln x_g)^2}{2(\ln \sigma_{gx})^2} \right\} \dots \dots \dots (4)$$

と表される。ここで、 x_g は x の幾何平均、 $\ln x_g$ は $\ln x$ の算術平均であり、 $\ln x$ の分布のピークを示す値である。よって、ある変数が対数正規分布しているとすれば、幾何平均は重要な平均値であるといえる。また、 σ_{gx} は x の幾何標準偏差であり、 $\ln \sigma_{gx}$ は $\ln x$ の（算術）標準偏差である。これまでの結晶粒度分布の研究においては、この対数正規分布との関係が基本的な議論の対象とされてきている。

結晶粒度分布は測定するあるいは求める次元（表2）により、異なる分布形態を呈する。以下に、各次元の結晶粒度分布に関する従来の研究を概観しておく。

1次元の結晶粒度分布は、直線と粒界との交点間の距離である切片長さの分布として表される。この分布は比較的簡便に測定できる分布であり、いくつかの多結晶材料について測定されている。切片長さ分布の形態は、ほぼ対数正規分布であるとした取扱いがなされている例もあるが、Schuckher³⁾の銅、 α 黄銅、 β 黄銅、アルミニウムおよびオーステナイト鋼の実験結果をはじめとする数多くの報告において、対数正規分布ではないとする結論が得られている。

2次元の結晶粒度分布は、多くの研究者により調べられており、単相金属で一様な等軸結晶粒組織の場合には一般的には対数正規分布で近似できるとされている³⁾が、これと異なる解釈も見られる⁵⁾。

3次元の結晶粒度分布は、理想的な結晶粒度の表現の検討から明らかなように3つの次元の分布のうち最も重要な分布である^{3,5)}が、直接測定することは極めて困難なため、1次元あるいは2次元の分布から、ある仮定のもとに間接的に求められたもの^{3,8)}がほとんどである。しかし、特殊な方法により直接的に求められた結果もいくつか得られている^{24,26,30,31)}。液体金属脆性を利用してアルミニウムの結晶粒体積分布を直接的に調べた実験結果³¹⁾を図5に示す。これらの直接および間接的な結果のいずれから、3次元の結晶粒度分布はほぼ対数正規分布に従うとの同一の結論が得られている。さらに、3次元の分布は2次元の分布に比べて理論的な対数正規分布に近いとの指摘もなされている³⁾。また、2、3の粒成長

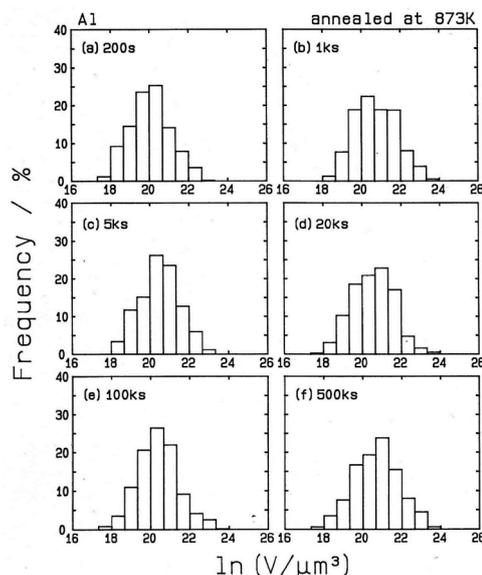


図5 種々の時間焼鈍されたアルミニウムの結晶粒体積分布³¹⁾

理論において、「3次元的な結晶粒度分布は対数正規分布に従う」という仮定が採用されている^{28,32)}。最近では、薄膜の2D組織の結晶粒度分布が対数正規分布に従うとする報告がなされている³³⁻³⁵⁾。

このように、結晶粒度分布は測定する次元により極めて重要な影響を受ける。したがって、結晶粒度分布の表現においては、測定する次元が明示される必要がある。

5 結晶粒度の定義

前章のように、結晶粒度はさまざまな方法で表現しうするため、それらのうちのいずれにも定義され得ることになる。結晶粒度評価の目的を想起すれば、材料の諸性質との相関を表すことができるように定義するべきであるといえる。よく知られた(平均)結晶粒度の定義は、各国の規格に定められた結晶粒度番号である。結晶粒度番号 (grain size number) は、歴史的には、ASTM規格 (ASTM E112-12) により次のように定義されてきた⁶⁾。

$$N_{AE} = 2^{G-1} \dots\dots\dots (5)$$

ここで、 N_{AE} は倍率×100での1in.²あたりの結晶粒の数、 G はASTM結晶粒度番号である。この関係は次のようにも表現できる。

$$G = (\log N_{AE} / \log 2) + 1 \dots\dots\dots (6)$$

日本の規格 (JIS G0551-2013) も、このような従来のASTM規格とほぼ同等であり、次式で定義される。厳密には、JIS結晶粒度番号の方がASTM結晶粒度番号に比べ0.046程度小さい。

$$m = 8 \times 2^{G_m} \dots\dots\dots (7)$$

ここで、 m は倍率×1での1mm²あたりの結晶粒の数、 G_m は結晶粒度番号である。

最近のASTM規格 (E112-12) では、後述の切片法 (切断法) および面積計量法による定義が付属書として加えられている。すなわち、結晶粒度番号 G は、基本的に次の2式により定義されている。

$$G = -3.2877 + 6.6439 \log \bar{N}_L \dots\dots\dots (8)$$

$$G = -2.95426 + 3.3219 \log \bar{N}_A \dots\dots\dots (9)$$

ここで、 N_L は倍率×1での1mmあたりの結晶粒の切片の数、 N_A は倍率×1での1mm²あたりの結晶粒断面の数である。式(9)は、本来の定義をメートル単位に書き改めたものであり、後述のように面積計量法と密接に関係する。また、式(8)は、

均一なサイズと形状をもつ多角形結晶粒断面を仮定した場合の N_L と N_A の関係を用いて、式(9)を変換したものであると考えられる。よって、実際の組織の結晶粒形状との差異および結晶粒度分布を考慮すれば、式(8)と(9)は一般に同一の結晶粒度番号を与えないものといえる。

Schuckher³⁾は、簡単に測定でき、また単位体積あたりの結晶粒界面積 S_v の簡単な関数であることから、後述の平均切片長さ \bar{l} が最も実用的な結晶粒度の定義であると結論づけている。結晶粒度の表現のうち、結晶粒の大きさを最も的確に表現し得るものとして、「結晶粒径 (grain diameter)」が挙げられる。結晶粒径は結晶粒の凹凸をならした平均的な直径を意味するものと思われるが、統一的な定義がなされている訳ではない。一方、1個の結晶粒の結晶粒度の理想的な表現は、4章で述べたように「体積等価直径」であろう。体積等価直径は、結晶粒の3次元的な凹凸をうまく平均化した値であり、またその値から体積を求めることも容易である。よって、ここでは結晶粒径を「体積等価直径」と定義することをお勧めしておく。

その他、次章で述べるように、これまでの平均結晶粒度評価法は、結果として結晶粒度の表現の1つを「平均結晶粒度」と定義したもとなっている。これらの定義は、必ずしも普遍的な1つの値を基礎としたものにはなっていないことに注意が必要である。

6 平均結晶粒度評価法

結晶粒度は通常平均結晶粒度により評価されている。その評価方法は数多く提案されているが、重要なものとして、比較法、面積計量法、切片法に加えて N_V の推定を挙げることができる。

6.1 比較法

比較法は、前章のように定義された結晶粒度番号と実際の組織を比較することにより、求められる。具体的には、試料の顕微鏡像と各結晶粒度番号に対応した比較図表を見比べることにより、結晶粒度番号を決定する。したがって、当然ながら、この方法はある程度判定者の主観に依存することになる。

6.2 面積計量法 (planimetric method: Jeffries法、求積法)

面積計量法は、Sauveur³⁶⁾により最初に提案され、Jeffriesら^{37,38)}により洗練された。この方法では、まず、対象となる試料表面に面積 A の円あるいは長方形を描き、円内あるいは長方形内の結晶粒数 n_A を求める。この際、対象面積の境界線上に位置する結晶粒は(1/2)個と数える。次に、 A と n_A から(算術)平均結晶粒断面積を算出する。これより、 \sqrt{a} または

$\sqrt{4\bar{a}/\pi}$ として平均結晶粒度を得る。ここで、より単純な前者を採用すれば、平均結晶粒度 $\sqrt{\bar{a}}$ は、

$$\sqrt{\bar{a}} = \sqrt{A/n_A} \dots\dots\dots (10)$$

と表される。このように、この方法は、単位面積あたりの結晶粒(断面)の数 N_A を基礎としているので、比較法と関係が深く、 $\sqrt{\bar{a}}$ は結晶粒度番号の関数として表わすことができる。

Gokhale³⁹⁾は、単位面積あたりの結晶粒の数 N_A は、単位体積あたりの結晶粒の稜の長さ L_V と次式の関係にあることを示した。

$$V_V = 4N_A \dots\dots\dots (11)$$

よって、面積計量法による平均結晶粒度および比較法による結晶粒度番号は、 L_V と明確に関係づけられるといえる。

6.3 切片法 (intercept method: Heyn法、切断法)

切片法⁴⁰⁾では、対象となる試料断面に全長 L の何本かの直線(線分)を引き、この直線が横切った結晶粒の n_L を求める。直線の端がその内部にある結晶粒は、数(1/2)個と数える。この n_L の値より、次式を用いて平均結晶粒度(平均切片長さ) \bar{l} を算出する。

$$\bar{l} = L/n_L \dots\dots\dots (12)$$

この方法では、直線が必ずしも結晶粒の中央部を横切らないため、切片長さが結晶粒径(定義は必ずしも明確でない)と比べて小さい値を与えると考えられる。そこで、 \bar{l} にある定数を掛けた値を真の平均結晶粒径とする数種の方法が提示された⁸⁾。これらの方法はすべて同一寸法の結晶粒の集合体を前提としており、結晶粒度分布はまったく考慮されていない。

定量組織学の分野では、単位長さあたりの結晶粒の数 $N_L (=1/\bar{l})$ が単位体積あたりの粒界面積 S_V と次式の関係にあることはよく知られている^{41,42)}。

$$S_V = S/V = 2N_L \dots\dots\dots (13)$$

すなわち、

$$S_V = S/V = 2/\bar{l} \dots\dots\dots (14)$$

$$\text{or } \bar{l} = 2/S_V = 2V/S \dots\dots\dots (14)'$$

したがって、 \bar{l} は結晶粒の大きさの1つの指標でもあるが、粒界密度とより厳密に関係づけられる値であるといえる。

6.4 N_V の推定

単相等軸結晶組織については、単位面積あたりの結晶粒の数 N_A と単位長さあたりの結晶粒の数 N_L により、 N_V を推定

するいくつかの方法が提案されている。

Rutherfordら¹⁷⁾は、結晶粒形状を準正14面体と仮定したモデルについて、 N_V を結晶粒度番号の関数として表している。また、Underwood⁴³⁾は、球形、準正14面体を含めた多くの形状について、 N_V が次式で表されることを示している。

$$N_V = \alpha(N_A^2/N_L) \dots\dots\dots (15)$$

ここで、球形について、 $\alpha = \pi/4$ 、準正14面体については、 $\alpha = 0.744$ である。

Hanson⁴⁴⁾は、次式を提案し、コンピュータによりシミュレートされた多くの微細組織と空間充填性の幾何学との比較検討から次式の間係を証明した。

$$N_V = [(2.4150/N_A^{1/2}) - (1.4552/N_L)]^3 \dots\dots\dots (16)$$

6.5 平均結晶粒度評価と結晶粒度分布

平均結晶粒度評価において結晶粒度分布は考慮すべき対象である。本来、平均結晶粒度により結晶粒度を評価する場合には、結晶粒度分布が無視し得るか、あるいは分布状態を把握できているか、いずれかでなければなるまい。明らかに「混粒」すなわち結晶粒度が大きく異なる部分がかなりの面積を占める状態にある場合には、JIS G0551に定められているように、大きい結晶粒度の部分と小さい結晶粒度の部分とを別々に評価することが必要である。

混粒でない場合でも、前述のように結晶粒度分布はみられるから、その影響を知ることは重要である。平均結晶粒度評価に及ぼす結晶粒度分布の影響は、結晶粒組織モデルにおいて考察されている⁴⁵⁾。モデル計算により、各平均結晶粒度が平均結晶粒径と標準偏差の関数として定式化され、図6に示すように各平均結晶粒度は結晶粒径(体積等価直径)分布の広がり $\ln\sigma_g$ に強く依存し、結晶粒径の幾何平均 D_g との関係が大きく変化することがわかる。また、測定する次元が3次元、2次元、1次元と下がるにつれて、 $\ln\sigma_g$ 依存性は大きくなっている。モデル計算の結果から、 d_A と平均切片長さ \bar{l} は、 D_g と $\ln\sigma_g$ を用いて次式のように記述される。

$$\bar{l} = 0.60661D_g \exp\{5(\ln\sigma_g)^2/2\} \dots\dots\dots (17)$$

$$d_A = \sqrt{4/\pi} \sqrt{\bar{a}} = \sqrt{4/\pi} 0.69721D_g \exp\{2(\ln\sigma_g)^2\} \dots\dots\dots (18)$$

よって、 d_A と平均切片長さ \bar{l} の関係は、

$$\bar{l} = 0.77106d_A \exp\{(\ln\sigma_g)^2/2\} \dots\dots\dots (19)$$

$$d_A = 1.2969\bar{l} \exp\{-(\ln\sigma_g)^2/2\} \dots\dots\dots (20)$$

となる。通例、 $\ln\sigma_g$ は、0.3~0.9の値をとるが、一般的な一様な

結晶粒組織では0.5程度の値をとるとみなされる。よって、式(20)より、 d_A は \bar{l} の1.1~1.2倍程度の値をとると見積もられる。この結果は、AlとCuに関する実験結果⁴⁵⁾と矛盾しない。

したがって、結晶粒度分布の広がり、すなわち標準偏差に明らかな違いがみられるような複数の組織の結晶粒度を平均結晶粒度のみにより評価し比較することは望ましくないといえる。

6.6 結晶粒度分布の評価法

従来、結晶粒度分布の評価は極めて長い時間と労力を必要としたため、特別な場合を除いてあまり評価がなされていなかった。しかしながら、SEM/EBSD解析装置等の発達により比較的容易に統計的に十分なデータを得ることが可能となっており、この問題はほぼ解決されたと言ってよい。

4章で述べたように、結晶粒度分布の評価もまた3次元的な分布が最も重要な対象である。これまで、定量組織学の分野では、3次元的な結晶粒度分布の重要性が認識され、2次元断面における分布の測定結果から3次元的な分布を求める手法が数多く提案されてきた^{3,5,8,41)}。DeHoff⁴⁶⁾が述べているように、3次元のサイズ分布は本来定量組織学的に推定し得ない幾何学的特性の1つであり、その推定には仮定を必要とする。したがって、これまでの3次元的な分布評価法はすべて粒子あるいは結晶粒の形状に関する仮定のもとに、構築されている。一方、前述のように、単相金属で一様な等軸結晶粒組織の場合には、3次元的な結晶粒度分布は対数正規分布に従うことが知られている。そこで、DeHoff⁴⁷⁾は、これを前提として、粒子および結晶粒のサイズ分布を解析した。また、高山ら^{48,49)}は結晶粒形状を準正14面体と仮定し、1次元の切片長さ分布から対数正規分布を前提にした3次元的な分布の評価法を提案した。この方法の適用により、アルミニウムおよび鉄の3次元的な結晶粒度分布が調べられ⁵⁰⁾、図7のよう

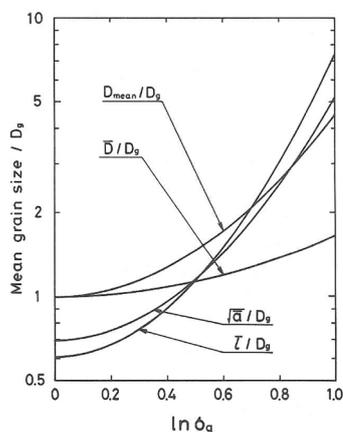


図6 結晶粒組織モデルにおける平均結晶粒度に及ぼす結晶粒度分布の幾何標準偏差の影響⁴⁵⁾

に分布の広がりを表す標準偏差 $\ln\sigma_g$ がアルミニウムでは粒成長とともに減少した後増加に転じ、鉄では粒成長過程で減少することが明らかとなっている。

以上のように、3次元的な結晶粒度分布の評価法に関しては、さまざまな仮定に基づくアプローチがなされている。しかし、3章で述べた結晶粒形状の幾何学的特徴およびその結晶粒度との関係をも適切に考慮した方法は、提案されていない。

7 おわりに

本稿では、結晶粒度を材料特性との関係を調査する立場から、これまでの結晶粒度評価法を整理して紹介した。結晶粒度の評価法としては、他にもここでは取り挙げていないいくつかの方法が提案されている。また、非等軸結晶粒組織の平均結晶粒度、結晶粒度測定のための試料調整方法、結晶粒度測定における精度、半自動および自動画像解析による平均結晶粒度の決定法 (ASTM E1382) 等についても多くの有用な検討がなされている³⁻⁷⁾。

最近の材料組織解析方法の発展は目を見張るものがあり、特に3D解析に関する多くの研究成果が報告されている。しかしながら、3D解析には経済的・時間的に多くのコストを要し、材料特性の結晶粒度依存性を議論する観点からは2D解析結果に基づく3D組織パラメータの把握が現実的な選択肢となることも多い。このような意味から、定量組織学に基づ

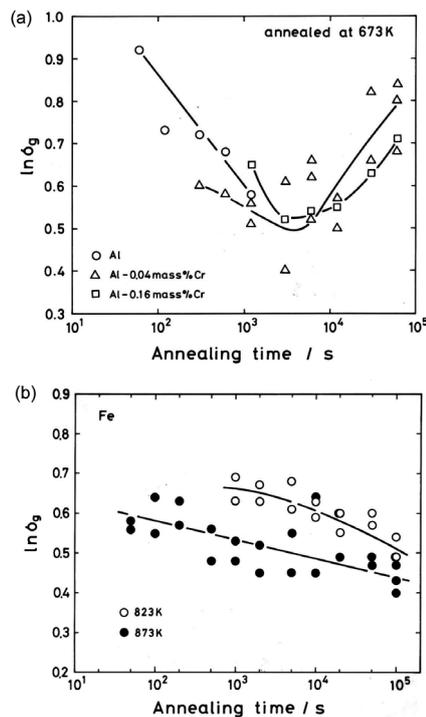


図7 アルミニウムおよび鉄の粒成長過程における結晶粒度分布の標準偏差の変化⁵⁰⁾

く3D組織解析の重要性がますます高まるものと考えられる。今後、3D組織パラメータによる材料特性の解析がより洗練されることを期待したい。

参考文献

- 1) E.O.Hall : Proc.Phys.Soc., Ser.B, 64 (1951), 747.
- 2) N.J.Petch : J.Iron Steel Inst., 173 (1953), 25.
- 3) F.Schuckher: Quantitative Microscopy, eds.by R.T.DeHoff and F.N.Rhines, New York, McGraw-Hill, (1968), Chap.7.; 牧島邦夫, 篠原靖忠, 小森尚志 共訳: 計量形態学 (訂正版), 内田老鶴圃, (1983), 第7章.
- 4) E.E.Underwood : Quantitative Stereology, Reading, Mass., and London, Addison-Wesley, (1970), Chap.5.
- 5) H.E.Exner : Intern.Met.Rev., 17 (1972), 25.
- 6) G.F.Vander Voort : Grain Size Measurement, Practical Applications of Quantitative Metallography, ASTM, Philadelphia, PA, (1984)
- 7) K.J.Kurzydowski and B.Ralph : The Quantitative Description of the Microstructure of Materials, CRC Press, (1995), Chap.6.
- 8) 高山善匡 : 軽金属, 44 (1994), 48.
- 9) 高山善匡 : 第4回スーパーメタルシンポジウム講演集, JRCM, (2001), 219.
- 10) Y.Takayama, S.Sasaki, H.Kato, H.Watanabe, A.Niikura and Y.Bekki : Mater.Sci.Forum, 357-359 (2001), 165.
- 11) Y.Takayama, M.Yamaguchi, T.Tozawa, H.Kato, H.Watanabe and T.Izawa : Proc.ReX'99 (JIMIS-10), JIM, (1999), 321.
- 12) A.W.Thompson : Metallography, 5 (1972), 366.
- 13) H.F.Kaiser : Metals Alloys, 9 (1938), 23.
- 14) F.N.Rhines and K.R.Craig : Metall.Trans., 5 (1974), 413.
- 15) J.F.McNutt : Quantitative Microscopy, ed. by R. T. DeHoff and F. N. Rhines, New York, McGraw-Hill, (1968), Chap.8.
- 16) C.S.Smith : Metall.Rev., 9 (1964), 1.
- 17) J.J.B.Rutherford, R.H.Aborn and E.C.Bain : Metals Alloys, 8 (1937), 345.
- 18) F.C.Hull and W.J.Houk : Trans.AIME, 197 (1953), 565.
- 19) J.W.Cahn : Acta Metall., 4 (1956), 449.
- 20) G.A.Miller, D.H.Avery and W.A.Backofen : Trans.Met. Soc.AIME, 236 (1966), 1667.
- 21) M.Umemoto, H.Ohtsuka and I.Tamura : Acta Metall., 34 (1986), 1377.
- 22) R.T.DeHoff, B.R.Patterson, C.A.Sahi and S.Chui : Acta Mater., 100 (2015), 240.
- 23) M.Pushkareva, J.Adrien, E.Maire, J.Segurado, J.Llorca and A.Weck : Mater.Sci.Eng., A671 (2016), 221.
- 24) F.N.Rhines and B.R.Patterson : Met.Trans., 13A (1982), 985.
- 25) W.M.Williams and C.S.Smith : Trans.AIME, 194 (1952), 755.
- 26) K.Okazaki and H.Conrad : Trans.JIM, 13 (1972), 198.
- 27) C.Nunez and S.Domingo : Metall.Trans., 19A, (1988), 2937.
- 28) S.Kurtz and F.M.A.Carpay : J.Appl.Phys., 51 (1980), 5725.
- 29) R.T.DeHoff and Gua Quan Liu : Metall.Trans., 16A (1985), 2007.
- 30) M.Otala : Pract.Metallog., 11 (1974), 83.
- 31) 高山善匡, 杜澤達美, 加藤一, 白井寛: 軽金属, 40 (1990), 612.
- 32) C.S.Pande : Acta Metall., 36 (1988), 2161.
- 33) S.P.Donegan, J.C.Tucker, A.D.Rollett, K.Barmak and M.Groeber : Acta Mater., 61 (2013), 5595.
- 34) R.Backofen, K.Barmak, K.E.Elder and A.Voigt : Acta Mater., 64 (2014), 72.
- 35) X.Liu, A.P.Warren, N.T.Nuhfer, A.D.Rollett, K.R.Coffey and K.Barmak : Acta Mater., 79 (2014), 138.
- 36) A.Sauveur : Trans.AIME, 167 (1894), 546.
- 37) Z.Jeffries, A.H.Kline and E.B.Zimmer : Trans.AIME, 57 (1916), 594.
- 38) Z.Jeffries : Trans.Faraday Society, 12 (1916), 40.
- 39) A.M.Gokhale : Trans.Indian Inst.Metals, 35 (1982), 595.
- 40) E.Heyn : Metallographist, 6 (1903), 37.
- 41) S.A.Saltykov : Stereometric Metallography, 2nd Edition, Metallurgizdat, Moscow, (1958), 446.
- 42) C.S.Smith and Guttman : Trans.AIME, 197 (1953), 81.
- 43) E.E.Underwood : Quantitative Stereology, Reading, Mass., and London, Addison-Wesley, (1970), Chap.4.
- 44) K.L.Hanson : Acta Metall., 27 (1979), 515.
- 45) 高山善匡, 杜澤達美, 加藤一, 古城紀雄, 堀茂徳 : 日本金属学会誌, 52 (1988), 835.
- 46) R.T.DeHoff : J.Microscopy, 131 (1983), 259.
- 47) R.T.DeHoff : Trans.AIME, 233 (1965), 25.
- 48) 高山善匡, 杜澤達美, 加藤一, 古城紀雄, 堀茂徳 : 日本金属学会誌, 51 (1987), 907.
- 49) Y.Takayama, N.Furushiro, T.Tozawa, H.Kato and S.Hori : Mater.Trans., JIM, 32 (1991), 214.
- 50) Y.Takayama, T.Tozawa, H.Kato, N.Furushiro and S.Hori : Mater.Sci.Forum, 94-96 (1992), 325.

(2016年7月25日受付)