解説

結晶粒度の評価法

高山 善匡*

Methods for estimation and determination of grain size

Yoshimasa TAKAYAMA*

1. はじめに

「結晶粒度」は、材料組織を扱う研究者にとって、最も頻繁に用いるありふれた量といえるだろう。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。しかしながら、結晶粒度の概念はあまりにも単純かつ明確に思えることから、あまり注意が払われておらず、本質的な定義は必ずしも統一されていないのが現状である。よって、通常用いられているさまざまな結晶粒度の評価法^{1)~4)}は結果的に結晶粒度の定義をも含んだものとなっている。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て、3次元に存在する組織の結晶粒度を2次元断面組織の測定結果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。

結晶粒が仮に等軸な同一の形状であり、ほぼ同じサイズであるとすれば、結晶粒度の評価は容易であるに違いない。しかし、実際に存在する結晶粒はたとえば等軸とみなし得る場合でもさまざまな形状を呈しており、また、いわゆる「整粒」組織でさえもすべての結晶粒が同一のサイズではなく、ある法則に従う結晶粒度の分布を持つことが知られている。したがって、結晶粒度を「精確に」評価することは、決して容易ではない。

本稿では、これまで極めて多くの提案がなされている結晶粒度の評価法を、結晶粒形状および結晶粒度分布を考慮したより精確な評価の観点から整理して、紹介する。「結晶粒度」と「結晶粒径」は、明確に区別されない場合も多いようであるが、ここでは厳密に区別して用いることにする。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にされてい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。

2. 結晶粒形状

まず、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。

2.1 平均的な結晶粒形状

Thompson⁵⁾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
- ② S/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

図1 空間を充填する多面体⁶⁾

* 宇都宮大学工学部 (宇都宮市). Faculty of Engineering, Utsunomiya University (Utsunomiya-shi, Tochigi).
受理日: 平成5年7月21日

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, Kaiser⁶⁾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1に示すように, 基本的に, (a)立方体(平行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^{7)*1}(Kelvin 14面体)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^{*2}, (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。

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する, 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2⁸⁾)⁹⁾。このことは, 異なる寸法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がその対象となる。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),9)}。

$$f - e + c = 2 \quad (1)$$

空間において, 各稜は3つの界面で共有され, 各隅で4つの稜が出会っているとすると。分離した1個の結晶粒についてみれば, 各稜は2つの表面で共有され, 各隅で3つの稜が出会っていることになる。稜は両端に隅を持ち, 隅から3本の稜が出ているから, 稜の数と隅の数との間には,

$$c = (2/3)e \quad (2)$$

*1 しばしば単に「正14面体」と呼ばれるが, 数学的には誤りである。ここでは, 「準正14面体」と呼ぶ。

*2 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。

図2 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⁸⁾

の関係が成立する。この関係と式(1)を用いると, 次のような式が得られる。

$$3f - e = 6 \quad (3a)$$

$$2f - c = 4 \quad (3b)$$

各稜は2枚の面に共有されるのだから, 分離した面を囲んでいる稜(すなわち辺)の総数は $2e$ である。よって, 面あたりの平均の稜の数 $\bar{e}$ は $2e/f$ で定義される。式(3a)から,

$$\bar{e} = 6 - (12/f) \quad (4)$$

となる。

多面体の集合体すなわち結晶粒組織について考えると, 面は2つの結晶粒により共有されているといえる。同様に, 各稜は3つの, 各隅は4つの結晶粒により共有されている。よって, 結晶粒組織における結晶粒1個あたりの面の数 f' , 稜の数 e' , 隅の数 c' は

$$f' = (1/2)f \quad (5a)$$

$$e' = (1/3)e \quad (5b)$$

$$c' = (1/4)c \quad (5c)$$

となる。したがって, 式(3a), (3b), (4)は次式のように書き換えられる

$$2f' - e' = 2 \quad (3a')$$

$$f' - c' = 1 \quad (3b')$$

$$\bar{e} = 6(f' - 1)/f' \quad (4')$$

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)数が5.1043, 結晶粒あたりの平均面数が13.394, 結晶粒あたりの平均稜数が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¹⁰⁾。この値を踏まえ, 式(4')において f' に正の整数を当てはめてみると, $f' = 7$ のとき $\bar{e} = 36/7 = 5.1429$ となり, 5.1043に最も近い値となることがわかる。この値を式(3a'), (3b'), (5a), (5b), (5c)に代

入すれば、 $f'=7$, $e'=12$, $c'=6$, $f=14$, $e=36$, $c=24$ となる。これらの数値は、準正14面体の特徴に対応するものになっている。

このような位相幾何学的な形状の特徴は、いくつかの実験結果によっても裏打ちされている。Desch¹¹⁾は、バルク試料を水銀に浸すことにより液体金属脆性を利用して、 β 黄銅の結晶粒を分離し、実際の結晶粒の形状をはじめて研究した。粒界破壊させ分離した結晶粒の測定により、結晶粒あたりの面の数は11から20の間で変化し、その平均は14.5であることが明らかとなった。また、Williams と Smith¹²⁾は、3次元微細X線撮影法 (stereoscopic microradiography) により、Al-Sn 合金について調べ、結晶粒あたりの面の数 f 、面あたりの稜 (辺) の数 e が、それぞれ平均12.48および5.08であるとの実験結果を得ている。さらに、Rhines と Craig⁸⁾は、純度99.99%のアルミニウムの定常的な粒成長過程において焼なまし時間に伴い、 f' , e' , c' の平均値がそれぞれ7, 12, 6に近づいていくことを報告している。

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^{13)~17)}。

2.2 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 Craig⁸⁾の研究によれば、アルミニウム試料の結晶粒の面の数は、定常粒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 Patterson¹⁸⁾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、結晶粒の大きさと形状の関係を明らかにした。図3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、両対数軸上では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 Smith¹²⁾により最初に指摘され、Okazaki と Conrad¹⁹⁾によっても確認されている。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、最近、形状因子が結晶粒体積に依存しないとする、前述の関係を矛盾するように思われる例外的な報告もなされている²⁰⁾。

図3 結晶粒の質量と結晶粒あたりの面の数の関係 (両対数軸)¹⁸⁾

3. 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つであると考ええる。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。

3.1 1個の結晶粒の結晶粒度の表現

Schückher¹⁾によれば、表1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、2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_4 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³⁾。たとえば、 d_4 については、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Feret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。

表1 結晶粒度を表現する変数 (例: 球形結晶粒)¹⁾

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

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次元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。

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

この表現は、Schückher¹⁾とExner³⁾により紹介されており、すでに粒成長²¹⁾および結晶粒位相幾何学 (grain topology)²²⁾の研究において採用されている。

3.2 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

図4 対数正規分布

x_g : 幾何平均, σ_{gx} : 幾何標準偏差

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 $\bar{a}$ および (算術) 平均結晶粒体積 $\bar{V}$ 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つと考えてよいだろう。

3.3 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、より精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。結晶粒度分布の表現は、3.1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。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)^{1), 3)}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)^{1)~3), 23)} (図4) 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、

$$f_x(x) = \frac{1}{\ln \sigma_{gx} \sqrt{2\pi}} \frac{1}{x} \exp \left\{ -\frac{(\ln x - \ln x_g)^2}{2(\ln \sigma_{gx})^2} \right\} \quad (7)$$

である。あるいは、 $\ln x$ の確率密度関数として、

$$f_{\ln x}(x) = \frac{1}{\ln \sigma_{gx} \sqrt{2\pi}} \exp \left\{ -\frac{(\ln x - \ln x_g)^2}{2(\ln \sigma_{gx})^2} \right\} \quad (8)$$

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 1) 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 次元的な結晶粒度分布は、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については、Conrad ら^{(19), (24) ~ (26)} によりチタンの実験結果に対してほぼ対数正規分布であるとした取扱いがなされているものの、Schückher⁽¹⁾ 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^{(27) ~ (31)} 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 次元的な結晶粒度分布は、多くの研究者により調べられており^{(1), (3), (28), (30)}、単相金属で様な等軸結晶粒組織の場合には対数正規分布で近似できるとされている⁽¹⁾。しかし、一部には、酸化マグネシウムおよびいくつかの hcp 金属について平面的な結晶粒径の平方根が正規分布に従うとした報告もなされており^{(32) ~ (34)}、対数正規分布ではないとの解釈もみられる⁽³⁾。

3 次元的な結晶粒度分布は、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^{(1), (3)} が、直接的に測定することは極めて困難である。よって、3 次元的な分布の結果は、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^{(1), (35) ~ (40)} 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^{(12), (18), (19), (41), (42)}。これらの直接的および間接的な結果のいずれから、3 次元的な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 次元的な分布は 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⁽¹⁾。また、最近では、2, 3 の粒成長理論において、「3 次元の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^{(21), (43)}。

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といえる。

4. 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得

る。したがって、結晶粒度は多くの表現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。結晶粒度番号は、歴史的には、ASTM 規格 (ASTM E 112-82) により次のように定義されてきた⁽⁴⁾。

$$n = 2^{G-1} \quad (9)$$

ここで、 n は倍率 $\times 100$ での 1 in.^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。

$$G = (\log n / \log 2) + 1 \quad (10)$$

日本の規格 (JIS G0551-1977, G0552-1977) 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。

$$m = 2^{G_m+3} \quad (11)$$

ここで、 m は倍率 $\times 1$ での 1 mm^2 あたりの結晶粒断面の数、 G_m は結晶粒度番号である。

スイス (SIS 11 11 01)、イタリア (UNI 3245)、ロシア (GOST 5639)、フランス (NF A04-102) および国際標準機構 (ISO/R643) においても、JIS と全く同等な結晶粒度番号の定義がなされている。

最近の ASTM 規格 (E 112-88) では、式 (9) および (10) で示されるもとの定義の前に、後述の切片法による定義が加えられている。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。

$$G = -3.2877 + 6.6439 \log N_L \quad (12)$$

$$G = -2.9542 + 3.3219 \log N_A \quad (13)$$

ここで、 N_L は倍率 $\times 1$ での 1 mm あたりの結晶粒の切片の数、 N_A は倍率 $\times 1$ での 1 mm^2 あたりの結晶粒断面の数である。式 (13) 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 (12) 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 (13) 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 (12) と (13) は一般に同一の結晶粒度番号を与えないものといえる。

Schückher⁽¹⁾ 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、3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、この体積等価直径を「結晶粒径」の定義とするのが妥当であると考えられる。ここで、「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」と定義したものとなっている。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。

5. 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。

5.1 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。

5.2 面積計量法 (planimetric method: Jeffries 法, 求積法)

面積計量法は、Sauveur⁴⁴⁾により最初に提案され、Jeffries^{45), 46)}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)平均結晶粒断面面積 $\bar{a}$ を算出する。これより、 $\sqrt{\bar{a}}$ 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、

$$\sqrt{\bar{a}} = \sqrt{A/n_A} \quad (14)$$

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。

Gokhale⁴⁷⁾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。

$$L_V = 4N_A \quad (15)$$

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。

5.3 切片法 (intercept method: Heyn 法, 切断法)

切片法⁴⁸⁾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数 n_L を求める。直線の端がその内部にある結晶粒は、(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。

$$\bar{l} = L/n_L \quad (16)$$

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以下のような方法が提示されている。

$$D = 1.5\bar{l} \quad (\text{Fullman}^{49}) \quad (17)$$

$$D = (4/\pi)^{1/2}\bar{l} = 1.62\bar{l} \quad (\text{Hensler}^{50}) \quad (18)$$

$$D = (4/\pi)\bar{l} = 1.27\bar{l} \quad (\text{Fryxell \& Chandler}^{51}) \quad (19)$$

$$D = (4/\pi)^{1/2}\bar{l} = 1.13\bar{l} \quad (\text{ASTM E112-60T}) \quad (20)$$

$$D = 1.78\bar{l} \quad (\text{Rostoker \& Dvorak}^{52}) \quad (21)$$

$$D = 1.68\bar{l} \quad (\text{Miller et al}^{53}) \quad (22)$$

$$D = 1.74\bar{l} \quad (\text{Thompson}^{54}) \quad (23)$$

これらの方法も広義の切片法とみなし得る。式(17)は、球形に対する幾何学的な解として求められる。式(18)も球形についての式であるが、切片長さ-断面の円の直径-球の直径という2段階の関係から導出された。式(19)および(20)は、2次元断面組織についての関係式である。前者は円の直径と切片長さの関係であり、後者は円の面積 $(\pi/4)D^2$ と $\bar{l}^2$ が等しいとみなしている。式(21)および(22)は、準正14面体に対する関係式である。前者は D を内接する球の直径と定義し、式の導出はKaiser⁶⁾とGulliver⁵⁴⁾の近似式を基礎としている。後者は D を正方形面間の距離と定義したときの幾何学的な解である。式(23)は、形状を準正14面体を幾分歪ませた β -tetra-kaidecahedronとした、式(22)の改良版である。これらの式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^{55), 56)}。

$$S_V = S/V = 2N_L \quad (24)$$

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、粒界の密度とより厳密に関係づけられる値であるといえる。

5.4 N_V の推定

単相等軸結晶粒組織については、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¹³⁾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、Underwood⁵⁷⁾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。

$$N_V = \alpha (N_A^2 / N_L) \quad (25)$$

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。

Hanson⁵⁸⁾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関係を証明した。

$$N_V = [(2.4150 / N_A^{1/2}) - (1.4552 / N_L)]^{-3} \quad (26)$$

5.5 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⁵⁹⁾。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、測定された次元が3次元、2次元、1次元と小さくなるほど標準偏差の影響が大きくなることが示されている。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. 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が必要としたため、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、近年廉価でしかも大容量の画像フレームメモリを有する高分解能の画像処理装置が市販され、この問題点はほぼ解決されつつある。

3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^{1), 2), 3), 55), 60) ~ 70)}。DeHoff⁷¹⁾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。

従来の多くの研究は、結晶粒のみならず第2相粒子等を含めた粒子サイズ分布を対象としている。最も単純な粒子形状の仮定は、球形である。この仮定による方法はSheil^{66), 68)}により最初に研究された。彼は球形の仮定を用い、結晶粒断面積分布から3次元的な分布を求めている。この方法はJohnson⁶⁹⁾により改良された。また、球形の仮定のもとに、切片長さ分布から3次元分布を求める方法も検討されて来た^{60) ~ 65)}。しかし、2章で述べたように、結晶粒形状を球形と仮定するのは不合理であろう。

Paulus³⁵⁾およびSchückher¹⁾は、結晶粒形状を正12面体と仮定して2次元分布から3次元分布を算出している。Schückher¹⁾は、最も適切な結晶粒の近似形状である準正14面体についても3次元分布を算出している。さらに、最近、MatsuuraとItoh⁷²⁾により12種類の多面体をもとにしたモデルによる評価法が提案されている。

一方、前述のように、単相金属で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、DeHoff⁷³⁾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ている。また、高山ら⁷⁴⁾は結晶粒形状を準正14面体と仮定し、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、2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、現在のところ提案されていない。

7. おわりに

本稿では、結晶粒度をより正確に評価する立場から、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、画像処理装置の適用等に関しても多くの有用な検討がなされている。それらの詳細は、本稿でしばしば引用した優れた解説^{1) ~ 4)}あるいはASTM E 112-88に述べられている。

材料特性の結晶粒度依存性を把握するには、結晶粒度の精密かつ正確な評価が是非とも必要である。そのためには、結晶粒形状および結晶粒度分布を適切に考慮する

ことが不可欠であろう。この観点から、これまでのすべての評価法はそれぞれ問題を残しており、いずれも完全なものとは言えない。今後、より洗練され完成された結晶粒度の評価法が提案されることを期待したい。

最後に、本稿の内容の多くは、宇都宮大学の杜澤達美教授、加藤 一助教授、帝京大学の堀 茂徳教授および大阪大学の古城紀雄助教授との結晶粒度分布に関する共同研究の過程で調査されたものであることを付記し、各先生に改めて心より感謝致します。

参 考 文 献

- 1) F. Schückher: Quantitative Microscopy, ed. 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.
- 2) E. E. Underwood: Quantitative Stereology, Reading, Mass., and London, Addison-Wesley, (1970), Chap. 5.
- 3) H. E. Exner: Intern. Met. Rev., **17** (1972), 25.
- 4) G. F. Vander Voort: "Grain Size Measurement", Practical Applications of Quantitative Metallography, ASTM, Philadelphia, PA, (1984).
- 5) A. W. Thompson: Metallography, **5** (1972), 366.
- 6) H. F. Kaiser: Metals Alloys, **9** (1938), 23.
- 7) 細矢治夫: セラミックス, **22** (1987), 1037.
- 8) F. N. Rhines and K. R. Craig: Metall. Trans., **5** (1974), 413.
- 9) J. F. McNutt: ref. 1) Chap. 8.
- 10) C. S. Smith: Metall. Rev., **9** (1964), 1.
- 11) C. H. Desch: J. Inst. Metals, **22** (1919), 241.
- 12) W. M. Williams and C. S. Smith: Trans. AIME, **194** (1952), 755.
- 13) J. J. B. Rutherford, R. H. Aborn and E. C. Bain: Metals Alloys, **8** (1937), 345.
- 14) F. C. Hull and W. J. Houk: Trans. AIME, **197** (1953), 565.
- 15) J. W. Cahn: Acta Metall., **4** (1956), 449.
- 16) G. A. Miller, D. H. Avery and W. A. Backofen: Trans. Met. Soc. AIME, **236** (1966), 1667.
- 17) M. Umemoto, H. Ohtsuka and I. Tamura: Acta Metall., **34** (1986), 1377.
- 18) F. N. Rhines and B. R. Patterson: Met. Trans., **13A** (1982), 985.
- 19) K. Okazaki and H. Conrad: Trans. JIM, **13** (1972), 198.
- 20) C. Núñez and S. Domingo: Metall. Trans., **19A**, (1988), 2937.
- 21) S. Kurtz and F. M. A. Carpay: J. Appl. Phys., **51** (1980), 5725.
- 22) R. T. DeHoff and Gua Quan Liu: Metall. Trans., **16A** (1985), 2007.
- 23) 鈴木義一郎: 統計解析法の原理, 現代人の統計 1, 林知己夫編, 朝倉書店, (1977), 108.
- 24) K. Okazaki and H. Conrad: Metall. Trans., **3** (1972), 2411.
- 25) P. Ganesan, K. Okazaki and H. Conrad: Metall. Trans., **10A** (1979), 1021.
- 26) H. Conrad, M. Swintowski and S. L. Mannan: Met. Trans., **16A** (1985), 703.
- 27) Y. Takayama, T. Tozawa and H. Kato: Trans. JIM, **28** (1987), 631.
- 28) 高山善匡, 杜澤達美, 加藤 一, 加藤慎一, 古城紀雄, 堀 茂徳: 日本金属学会誌, **52** (1988), 465.
- 29) K. J. Kurzydowski and K. J. McTaggart: Trans. JIM, **29** (1988), 928.
- 30) 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, **53** (1989), 164.
- 31) 高山善匡, 杜澤達美, 加藤 一, 勝又千尋, 古城紀雄, 堀 茂徳: 日本金属学会誌, **53** (1989), 579.
- 32) E. N da C. Andrade and D. A. Aboav, Proc. Roy. Soc., **291A** (1966), 18.
- 33) D. A. Aboav and T. G. Langdon, Metallography, **1** (1969), 333.
- 34) D. A. Aboav and T. G. Langdon, Metallography, **2** (1969), 171.
- 35) M. Paulus: Metaux-Corrosion-Ind., **38** (1963), 14.
- 36) W. Stober: Lab. Invest., **14** (1965), 892.
- 37) H. E. Exner: Z. Metallkunde, **57** (1966), 755.
- 38) M. F. Ashby and R. Ebeling: Trans. Met. Soc. AIME, **236** (1966), 1396.
- 39) H. E. Exner: Metall., **21** (1967), 431.
- 40) W. E. Stumpf and C. M. Sellars: Metallography, **1** (1968), 25.
- 41) M. Ojala: Pract. Metallog., **11** (1974), 83.
- 42) 高山善匡, 杜澤達美, 加藤 一, 白井 寛: 軽金属, **40** (1990), 612.
- 43) C. S. Pande: Acta Metall., **36** (1988), 2161.
- 44) A. Sauveur: Trans. AIME, **167** (1894), 546.
- 45) Z. Jeffries, A. H. Kline and E. B. Zimmer: Trans. AIME, **57** (1916), 594.
- 46) Z. Jeffries: Trans. Faraday Society, **12** (1916), 40.
- 47) A. M. Gokhale: Trans. Indian Inst. Metals, **35** (1982), 595.
- 48) E. Heyn: Metallographist, **6** (1903), 37.
- 49) R. L. Fullman: Trans. AIME, **197** (1953), 447.
- 50) J. H. Hensler: J. Inst. Metals, **96** (1968), 190.
- 51) R. E. Fryxell and B. A. Chandler: J. Am. Ceram. Soc., **47** (1964), 283.
- 52) W. Rostoker and J. R. Dvorak: Second Edition Interpretation of Metallographic Structures, Academic Press, New York, (1977), chap. 6.
- 53) G. A. Miller, D. H. Avery and W. A. Backofen: Trans. AIME, **236** (1966), 1667.
- 54) G. H. Gulliver: J. Inst. Metals, **19** (1918), 145.
- 55) S. A. Saltykov: Stereometric Metallography, 2nd Edition, Metallurgizdat, Moscow, (1958), 446.
- 56) C. S. Smith and Guttman: Trans. AIME, **197** (1953), 81.
- 57) ref. 2) Chap. 4.
- 58) K. L. Hanson: Acta Metall., **27** (1979), 515.
- 59) 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.

- 60) A. G. Specter: *Zavod. Lab.*, **16** (1950), 173.
- 61) G. W. Lord and T. F. Willis: *ASTM Bull.*, **177** (1951), 56.
- 62) H. Klemm: *Metall.*, **5** (1951), 337.
- 63) H. Munzer and I. Schneiderhohn: *Heidelberger Beit Mineral. Petrog.*, **3** (1953), 456.
- 64) 堀川映二：鉄と鋼, **40** (1954), 991.
- 65) J. W. Cahn and R. L. Fullman: *Trans. AIME*, **206** (1956), 610.
- 66) E. Scheil: *Z. Anorg. Allgem. Chem.*, **201** (1931), 259.
- 67) H. A. Schwartz: *Metals Alloys*, **5** (1934), 139.
- 68) E. Scheil: *Z. Metallkunde*, **27** (1935), 199.
- 69) W. A. Johnson: *Metal Prog.*, **49** (1946), 87.
- 70) 西村 章, 川野 豊：軽金属, **30** (1980), 121.
- 71) R. T. DeHoff: *J. Microscopy*, **131** (1983), 259.
- 72) K. Matsuura and Y. Itoh: *Mater. Trans., JIM*, **32** (1991), 366.
- 73) R. T. DeHoff: *Trans. AIME*, **233** (1965), 25.
- 74) 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.