

学位論文題名

多面体複合モデルによる

結晶粒形状の評価と粒成長解析への応用

学位論文内容の要旨

金属やセラミックなどの多結晶材料の諸性質を正しく評価するためには、結晶粒の平均径のみならず粒径分布の情報が重要である。また、多結晶材料の再結晶や変態などの動的挙動を明らかにするためには、2つの結晶粒の接界面と3つ以上の結晶粒の接線(稜)および接点(角)の量などの、結晶粒の形状に関する情報も必要である。しかしながら、結晶粒の立体的な大きさや形を実際に測定することは、個々の結晶粒を分離しなければならないなどの困難を伴う。それゆえ本論文では、立体としての結晶粒の大きさと形の分布を、材料の切断面上で観察される結晶粒の断面の大きさの分布から評価するための、新しい方法を提案する。論文は全10章で構成されており、それぞれの章の内容は以下の通りである。

第1章は緒論であり、結晶粒の大きさや形の分布を評価する方法の重要性など、本研究の背景および目的について述べた。

第2章では、種々の複雑な形状を持つ結晶粒を扱う前に、形状が同一で大きさのみが異なる粒子について、材料の切断面上で観測される粒子断面の大きさ分布(2次元粒径分布)から、この粒子の立体的な大きさの分布(3次元粒径分布)を推定する方法を述べた。

まず、大きさも形も同一である粒子が材料中に多数分散する場合、この材料の任意切断面上においてどの大きさの粒子断面がどの確率で現れるかという分布は、この粒子の大きさと形により定まる。この確率分布を基本分布と呼ぶ。次に、材料中に種々の大きさの粒子が混在する場合、材料の任意切断面上には、それぞれの大きさの粒子に関する基本分布が合成された分布が現

れる。それゆえ、この合成分布を、材料の切断面上で測定される2次元粒径分布と比較して、両者を一致させるような合成比を求めることにより、それぞれの大きさの粒子の存在頻度が計算できる。

第3章では、第2章で論じた計算方法の妥当性について、実験的に検証した。すなわち、大きさ分布が既知の球形および六角柱形の鉄粒子をアルミニウム合金中に分散させ、鑄造により模型材料を作製した。次に、この鑄塊の切断面上で測定した分散粒子の2次元粒径分布から、第2章の計算方法により粒子の3次元粒径分布を推定し、鑄造前の粒子の大きさ分布と比較した。様々な種類の大きさ分布について実験したところ、いずれの場合も計算結果は真の大きさ分布と高い精度で一致した。これにより、第2章で検討した計算方法の妥当性を確認した。

第4章では、多結晶材料を構成する結晶粒について、材料の切断面上で観測される2次元粒径分布から3次元粒径分布を評価する方法を論じた。

第2章で扱った分散粒子とは異なり、結晶粒の場合には大きさだけでなく形も多様である。それゆえ、基本分布は個々の結晶粒で異なる。第2章の方法と同様に、基本分布を合成して、これと2次元粒径分布の比較から3次元粒径分布を推定するためには、個々の結晶粒ごとに異なる基本分布の間に規則性を見だし、これらを統一する必要がある。そのため、多面体複合モデルと呼ぶ新しい結晶粒モデルを導入した。これは、「多結晶材料を構成する結晶粒の形は多種の多面体に近似でき、どの結晶粒がどの種類の多面体の形を取るかは粒径から規定される。」というものである。このモデルにより、粒径をパラメータとして、任意の形の結晶粒の基本分布の関数が導かれる。

第5章では、前章で述べた方法により多結晶材料の結晶粒径分布を求め、その結果の精度について検討した。

実用SUS304ステンレス鋼を粒界選択腐食により分離し、約1000個の結晶粒を採集した。これらの結晶粒の質量を測定し、ステンレス鋼の密度を用いて体積等価直径の分布を求めた。一方で、同じ材料について、第4章で述べた方法により粒径分布を評価した。両者はきわめて高い精度で一致したので、本方法により結晶粒径分布が正しく評価できることを確認した。

第6章では、多面体複合モデルを用いて結晶粒の形（面、稜、角）の数量的分布を求める方法を述べた。さらに、模型材料を用いてこの方法の妥当性を実験的に検討した。その結果、多結晶材料を構成する結晶粒の面、稜、角

のいずれについても、その分布が精度よく評価できることを確認した。

第7章では、結晶粒径分布を推定する従来の方法を詳しく述べ、これらと本方法を比較した。その結果、本方法は、精度、簡便性、迅速性、汎用性のいずれにおいても優れていることが明らかとなった。また、従来法では結晶粒の形の分布を求めることが不可能であり、それが可能な本方法の有用性が明らかとなった。

第8章は、本方法による結晶粒径分布評価法を粒成長挙動の解析に応用した結果について述べたものである。

種々の温度において、SUS310ステンレス鋼の結晶粒成長過程を追跡した。従来は、試料切断面上で測定される2次元的な結晶粒径が粒成長の解析に用いられた。しかし、粒成長は結晶粒が3次元的に成長する過程であるので、その解析には立体としての粒径を用いるべきと考えた。それゆえ、従来のように2次元粒径を用いる場合と、本評価法で求めた3次元粒径を用いる場合で、粒成長の解析結果にどのような差が生じるかを検討した。その結果、3次元粒径を用いた場合の結晶粒成長速度の方が大きく、また、活性化エネルギーも大きいことがわかった。また、これによる活性化エネルギーは粒界拡散の活性化エネルギーにほぼ等しく、粒成長の素過程は粒界を横断する原子の拡散であるとするTurnbullの粒成長速度式を補強する結果となった。

第9章は、本研究の多面体複合モデルで推定可能となった結晶粒の形に関する情報を、結晶粒成長のシミュレーションに応用したものである。

粒成長速度を計算するには、実際の結晶粒界の面積を精度高く推定しなければならない。すなわち、粒界移動の駆動力は隣接粒間の粒界エネルギー差に比例するので、単位体積当たりの結晶粒界面積の評価の精度が計算結果の精度に影響する。従来は、結晶粒の形を球に近似した。この従来モデルでは、粒界移動の駆動力は隣接しあう2つの結晶粒の大きさだけの関数である。これに対し、多面体複合モデルでは、結晶粒の大きさの相違は形の相違でもあるので、粒成長速度式に結晶粒の形の違いに基づくエネルギー項を付け加えることができ、実際の結晶粒組織に対応した条件での粒界移動計算が可能となった。このようにして粒成長のシミュレーションを行った結果、粒径分布を平均粒径と変動係数および尖度で表現するとき、それぞれが粒成長速度に影響する程度を初めて定量的に記述することができた。

第10章は本論文の総括である。

学位論文審査の要旨

主査	教授	石井邦宜
副査	教授	鈴木朝夫
副査	教授	成田敏夫
副査	教授	高橋平七郎
副査	助教授	伊藤洋一

学位論文名

多面体複合モデルによる結晶粒形状の評価と粒成長解析への応用

金属やセラミックなどの多結晶材料は、それを構成する結晶粒の大きさ（粒径）と形状およびそれらの分布によって諸種の性状が異なる。しかし、実際の材料について、結晶粒の真の形状や大きさを非破壊的に知ることは困難であり、便法として材料の2次元切断面上に現れる情報からそれらを推定する方法がとられる。2次元切断面上の粒径から真の粒径を推測する場合、これまでは、結晶粒を大きさだけが異なる球あるいは正14面体で近似する単一形状モデルが用いられてきた。これに対し本研究では、実際の結晶粒が粒ごとに形状の異なる多面体であるとして、多面体複合モデルという新しい結晶粒モデルを提案した。本論文の成果は以下のようにまとめられる。

第1章は緒論であり、本研究の背景と目的について述べた。

多結晶材料の変形、再結晶、変態など動的挙動を明らかにするには、二つの結晶粒の接界面、三つ以上の結晶粒の接線（稜）および接点（角）それぞれの量に関する情報が必要である。これを知るには、多結晶体を構成する結晶粒の形状分布を定量的に把握することが不可欠である。

第2章は同一形状を有する結晶粒の新しい評価法について述べた。

任意の粒径分布をもつ同一形状の粒子をマトリックス中に分散させ、これを様々な断面で切断したときに計測される二次元粒径分布と真の粒径分布との関係を計算機実験によってもとめた。両者の関係は普遍的かつ未知の確率関数として精度良く表現でき、その計算方法を確立した。

第3章は前章の計算方法の妥当性を実験的に検証したものである。

粒径分布が既知の球および六角柱形の鉄粒子を、アルミニウム合金中に分散させ、鑄造により模型材料を製作した。この鑄塊の切断面上で測定された粒径分布から、真（三次元）の粒径分布を計算により推定し、鑄造前粒子の

分布と比較した。8種類の粒径分布について実験したところ、計算結果はいずれも真の粒径分布と高い精度で一致することが明らかになった。

第4章は多種形状の粒子群について粒径分布の評価方法を述べた。

大きさと形状の異なる結晶粒に対して、多面体複合モデルと呼ぶ新しい結晶粒モデルを考案した。これは、「実際の材料を構成する結晶粒は多種の多面体から構成されており、粒径が大きいほど多数の隣接粒で囲まれた面数の多い多面体となる」とするものである。多面体結晶粒の面数 m はその粒子の体積等価直径 D との間に $m = 17(D/D_{av}) - 3$ の関係がある。ここで、 D_{av} は平均粒径である。このモデルに基づき、2次元切断面上で測定される粒径分布から真の粒径分布を評価する関係式を計算機実験によって導出した。

第5章は前章で述べた方法を実験によって確認したものである。

実用SUS310ステンレス鋼を粒界選択腐食して、約1000個の結晶粒を採集し体積等価直径の分布を測定して計算値と比較した。両者はきわめて高い精度で一致し、本方法が正しい粒径分布を与えることを確認した。

第6章は粒子の形状分布を評価する方法について述べた。

多面体複合モデルに基づき、面数と稜数、面数と角数の間に一定の関係が存在することを見いだした。これにより、粒径分布から結晶粒の面数(形状稜数、角数の分布が推定可能であることを実験的に確認した。

第7章は本研究になる新しい方法と従来方法を比較検討したものである。

既存の球モデルや正14面体モデルでは粒子形状の分布をもとめることが不可能であり、また、精度、簡便性、迅速性、汎用性のいずれにおいても新しい方法が優れていることを明らかにした。

第8章は本法を粒成長の解析に応用した結果について述べた。

種々の温度におけるSUS310ステンレス鋼の結晶粒成長過程を追跡し、従来法と本方法二つの方法で推定した結晶粒径に基づき成長速度を解析した。その結果、本方法による方が結晶粒成長速度が大きく、活性化エネルギーは粒界拡散のそれにほぼ等しくなった。これは粒成長の素過程が粒界を横断する原子の拡散である、とするTurnbullの粒成長モデルに一致する。

第9章では構成粒子の面、稜、角の定量情報を取り込んで結晶粒成長をシミュレーションした結果についてのべた。

粒界移動の駆動力は粒界エネルギーの隣接粒間の差に比例する。本方法では、粒成長速度式に結晶粒形状の差に基づくエネルギー項を付け加えることができ、より実際に即した条件で粒界移動の駆動力が計算可能である。結晶粒成長のシミュレーションを行った結果、出発時の粒径分布と形状分布が粒成長速度にあたえる影響をはじめて定量的に明らかにすることができた。

第10章は本論文の総括である。

これを要するに、本論文は、多結晶材料を構成する結晶粒の、真の粒径分布と形状分布を推定するための新しい方法を確立したものであり、材料工学の進歩に寄与するところ大である。

よって、著者は北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格あるものと認める。