走査型エキソ電子顕微鏡を用いたアルミニウムの 引張変形・破壊過程の観察†

武藤 睦 治* 山田 尚 人** 岡崎 正 和*
服部 一 郎*** 中村 正 久*

Observations of Tensile Fracture Process in Aluminum by Using a Scanning Exo-Electron Emission Microscope

by

Yoshiharu MUTOH*, Naoto YAMADA**, Masakazu OKAZAKI*,
Ichiro HATTORI*** and Tadahisa NAKAMURA*

In the present study, observations of fracture process in aluminum were carried out by using a scanning exo-electron emission microscope. The distribution of the intensity of exo-electron emission near the notch root was also investigated.

The intensity of exo-electron emission increased gradually with an increase of tensile strain up to the strain at maximum load. A significantly rapid increase in the intensity of exo-electron emission was found near the maximum load point, and then the intensity was saturated. From the results for the notched specimens, it was found that the crack initiation point coincided almost with the intersection of two tangent lines of the intensity of exo-electron emission versus displacement curve, one of which is in the region where the intensity increases rapidly and the other is in the region where the intensity is saturated.

キー・ワード：エキソ電子，電子顕微鏡，引張試験，破壊過程，アルミニウム

1 緒 言

エキソ電子放射現象とは，機械的あるいは化学的処理をうけた表面から励起エネルギーの付与なしに，あるいは仕事関数以下の励起エネルギーを与えることにより電子放射を生じる現象である。種々の分野でこの現象の応用が試みられており，破壊に関連する分野においても，エキソ電子放射信号から塑性変形挙動やき裂の発生・伝ば挙動に関する情報を得ることが可能と考えられる。これまで引張変形にともなうエキソ電子放射挙動については多くの研究が行われている。それらによると，変形にともなうエキソ電子放射は変形の進行とともに新生面が露出することに起因し，エキソ電子放射 (EE) 強度は引張変形とともに増加する。新生面からエキソ電子放射を生ずる機構については，von Voss と Brotzen⁷⁾の表面に内部の空孔が拡散され酸化層に電子トラップを形成するという推察 (空孔拡散モデル)，Sujak⁹⁾らの試験片表面の酸化膜に発生・伝ばする微視き裂の電場放射 (field emission) に起因するという推察，および Arnott と Ramsey⁸⁾による露出した新生面に酸素や水蒸気が吸着することにより仕事関数が低下するという推察などがあげられる。しかし，

それらはそれぞれエキソ電子放射の一面をとらえているというのが現状であり，引張変形にともなうエキソ電子放射機構を明らかにするためには，種々の条件におけるエキソ電子放射挙動を明らかにしていくことが急務と思われる。

著者らは前報¹⁰⁾で二次元的 EE 強度分布が測定可能であり，かつ走査型電子顕微鏡 (SEM) との組合せが可能な走査型エキソ電子顕微鏡の試作について報告した。また，予備的に行った，室温・大気中で所定の引張変形を加えた試験片からのエキソ電子放射挙動の観察結果についても報告した。本報告では，真空中で変形を加え変形中のエキソ電子放射挙動を観察し，前報の大気中変形の場合と比較するとともに，変形速度の影響，変形中連続的に励起光を照射した場合と変形後照射した場合のエキソ電子放射挙動の相違等について調べた。さらに，エキソ電子放射挙動の工学的応用の可能性を検討するため，切欠き材の引張試験中のエキソ電子放射信号とき裂の発生との関連などについても調べた。

2 実験方法

供試材は厚さ 2 mm の工業用純アルミニウム圧延板である。試験片は Fig. 1 に示す 3 種類の形状のもの

† 原稿受理 昭和60年7月6日 Received July 6, 1985

* 正 会 員 長岡技術科学大学 長岡市上富岡町, Technological University of Nagaoka, Kamitomioka-cho, Nagaoka

** 長岡技術科学大学大学院 長岡市上富岡町, Graduate Student, Technological University of Nagaoka, Kamitomioka-cho, Nagaoka

*** 長岡技術科学大学 長岡市上富岡町, Technological University of Nagaoka, Kamitomioka-cho, Nagaoka

Fig. 1. Specimen geometry.

を製作した。試験片は機械加工後その表面をエメリー紙で研磨し、400℃3時間の真空焼まなしを施した。焼まなし後電解研磨を行い、その後6日間放置し実験に供した。エキソ電子放射挙動の観察に用いた走査型エキソ電子顕微鏡は試作のものでその概要をFig.2に示すが、詳細は前報で述べたので省略する。今回、変形の進行にともなうエキソ電子放射挙動を連続的に観察するため、Fig.3にその概要を示すような送りねじを利用した鏡筒内引張試験装置を試作し用いた。この装置によれば試験片中央部は変形を加えても初期の位置を保つので、定点の観察が容易である。変形速度は0.5 mm/minで行ったが、変形速度の影響を調べるため一部1.7 mm/minの試験も行った。引張試験中のエキソ電子放射 (EE) 像の観察およびEE強度の測定に加え、随時同一箇所のSEM観察も行った。

Fig. 3. Schematic illustration of the tensile testing apparatus.

3 実験結果および考察

3・1 平滑試験片

Fig.1 (a)に示す平滑試験片を用いて、変形開始から破断まで励起光を連続的に照射した場合と、所定のひずみを与えた後に光照射した場合のEE強度と変位の関係をFig.4に示す。EE強度は試験片中央部での測

Fig. 4. Relationship between intensity of exoelectron emission and displacement for smooth specimen at the deformation rate of 0.5 mm/min.

Fig. 2. Schematic illustration of the scanning exoelectron emission microscope.

定値である。また、このときの変位速度は 0.5 mm/min であり、図中には荷重-変位曲線も同時に示してある。図より明かなように、両者とも定性的には同一のエキソ電子放射挙動を示している。すなわち変位が約 2 mm までは EE 強度の増加は顕著ではないが、その後次第に顕著な増加を示すようになり、最大荷重点あたりから急激に増加したのち飽和の傾向を示すようになる。定量的には変形後照射した場合の EE 強度が常に連続照射の場合のそれより大きい。Fig. 5 に種々のひずみ段階で変形を中断した後の EE 強度の時間的変化の様子を示す。図よりわかるように、ひずみが小さいほど減衰の度合いが小さく短い時間ではほぼ一定値を示している。また連続照射した場合の減衰は、破壊時の場合しか示していないが、変形後照射した場合に比べゆるやかに減衰していることがわかる。

Fig. 5. Intensity of exoelectron emission versus time after deformation at various strain levels. ($\dot{U}=0.5$ mm/min)

以上の結果から、平滑試験片の引張変形にともなうエキソ電子放射挙動は以下のように考えられる。一樣変形の段階では新生面は変形の進行とともに徐々に露出し、それにともない EE 強度も徐々に上昇する。また、新生面の増加は試験片の局所的なくびれが生じたところで急激となり、それにともない EE 強度も急激に増加すると考えられる。EE 強度が急激に増加した後飽和する傾向を示すのは、照射面積（本装置の励起光のスポット径は約 $30\mu\text{m}$ である）のかなりの部分が新生面となっており、その部分の減衰と新生面がさらに増加する割合が競合しているためと考えられる。連続照射した場合に比べ変形後照射した場合の EE 強度レベルが高い理由は以下のように考えられる。連続照射した場合、変形とともに次々と露出した新生面ではすでに照射により EE 強度が減衰しているのに対し、変形後照射した場合には励起エネルギーを加えていないので、新生面からのエキソ電子放射は自然放射のみで、

連続照射に比べ EE 強度の減衰はきわめて小さい。^{*1}したがって、変形後照射した場合の EE 強度は常に連続照射によるそれよりも大きい。

つぎにエキソ電子放射挙動におよぼす変形速度の影響について調べた。Fig. 6 に変形速度が 1.7 mm/min で連続照射した場合の EE 強度と変位の関係を示す。なお、図中には比較のため Fig. 4 中に示した変位速度が 0.5 mm/min の連続照射の場合が示してある。本実験程度の変形速度範囲であれば、全般的にはほぼ類似のエキソ電子放射挙動を示すと考えてよいようであるが、変形速度が大きくなると急激な EE 強度増加後に EE 強度が飽和する傾向が顕著でなくなる。Fig. 7 に変形速度が 1.7 mm/min の場合の EE 強度の減衰

Fig. 6. Relationship between intensity of exoelectron emission and displacement for smooth specimen at the deformation rate of 1.7 mm/min.

Fig. 7. Intensity of exoelectron emission versus time after deformation at various strain levels. ($\dot{U}=1.7$ mm/min)

*1 本実験で変形を加えた後励起光照射までの間に測定される自然放射 (dark emission) 強度はきわめて小さく、励起光照射したときの EE 強度に比べ無視できた。

の様子を示す。この図と Fig. 5 の比較からわかるように、エキソ電子放射の減衰挙動には変形速度の影響が認められ、特にひずみの大きい範囲において変形速度が大きいほど減衰の度合いが大きいようである。このことは逆に言えば、変形速度が大きい方が変形中の減衰が小さいことを意味していると考えられ、これが変形速度が大きくなると EE 強度急増後の飽和傾向が顕著でなくなる主要因であろうと推察される。

大気中で変形を加えた場合と真空中で変形を加えた場合のエキソ電子放射挙動の相違を検討するため、前報で示した大気中で変形を加え 4 min 後にエキソ電子顕微鏡内に挿入し、EE 強度を測定した結果を改めて Fig. 8 に示す。図よりわかるように、大気中で変形を加えても、真空中で変形を加えても定性的には EE 強度と変位の関係は同一であるが、大気中で変形を加えた場合の方が若干 EE 強度レベルが低いようである。

Fig. 8. Relationship between intensity of exoelectron emission and displacement for smooth specimens deformed in air atmosphere.

Fig. 8 中に、大気中で変形を加え大気中放置時間を長くとり 10 min 後にエキソ電子顕微鏡内に挿入し EE 強度を測定した例を黒丸印で示した。大気中の放置により EE の減衰が進行し、EE 強度が低下している様子がわかる。Fig. 5 に示した真空中での EE 強度減衰曲線は、変形後直ちに励起光照射した場合である。そこで、変形後照射までの時間を大気中で変形を加えた場合と同一にして EE 強度の時間変化を測定し、大気中変形と真空中変形の場合の EE 強度の減衰挙動を比較した。Fig. 9 にその結果を示す。図よりわかるように、ひずみが小さい場合にはその差は顕著ではないが、ひずみが大きくなると真空中の方が大気中と比べ EE 強度レベルが高い。しかし、EE 強度減衰の特徴すなわち照射直後急速にその後ゆるやかに減衰するという様子には相違は認められなかった。このような大気中

Fig. 9. Intensity of exoelectron emission versus time after deformation at various strain levels for specimens stretched in air and in vacuum.

変形と真空中変形の場合のエキソ電子放射挙動の相違は、主として安定な酸化膜形成の程度に起因していると考えることができよう。すなわち、真空中に比べ大気中の方が酸化膜形成が顕著であり、励起光照射時の EE 強度は真空中の方が高い。しかし、その後の EE 強度の減衰はいずれも真空中であるので同様の挙動を示す。一方、von Voss と Brotzen⁷⁾は新生面に新たに生じる酸化層にエキソ電子放出源が形成されると考えており、また Arnott と Ramsey⁸⁾は新生面への酸素や水蒸気の吸着が仕事関数を低下させエキソ電子放射を生じていると報告している。このような主張に従えば、本実験のごとき大気中放置により安定な酸化膜が形成されていると考えられる場合は別にして、大気中で連続照射により EE 強度を測定すれば、真空中に比べ酸化層の形成あるいは酸素や水蒸気の吸着が活発と思われる大気中では、真空中よりもむしろ EE 強度が高くなることも予想される。品田¹⁰⁾の実験結果によれば、真空中に比べ大気中で変形を加えた方が小さな変形でエキソ電子放射が検出され、変形にともなう EE 強度の増加率も大きい (文献10)中の Fig. 5 と 8、および 9)。この結果は前述の推察と矛盾がないように思われる。しかし、エキソ電子放射挙動におよぼす雰囲気の影響については不明の点が多くさらに検討を加えるためには、酸素ならびに水蒸気等の分圧を制御した雰囲気での実験の積み重ねが望まれる。

3・2 表面切欠き試験片

Fig. 1 (b) に示す表面切欠き試験片を用いて切欠き底のエキソ電子放射挙動を調べるとともに、EE 像および SEM 像を観察しき裂発生源検出の可能性について検討した。Fig. 10 に EE 強度-変位曲線を荷重-変位曲線とともに示す。図より明らかなように、EE 強度は変形とともに徐々に増加し、その後急速に増加した

Fig. 10. Relationship between intensity of exoelectron emission and displacement for surface notch specimen.

後飽和している。このようなエキソ電子放射挙動と破壊過程の関係を検討するため、種々の変位においてエキソ電子顕微鏡、SEM および光学顕微鏡 (OM) 観察を行った。その結果を Fig. 11, 12 および 13 に示す。なお観察位置は試験片中央部であり、OM では試験片を引張方向に縦割りにして切欠き底を観察した。Fig. 11 に示すように $U=1.23$ mm まで変形した場合、EE 像により切欠き底に塑性変形を生じていることはわかるが、き裂が発生しているかどうかは判別できない。そこで同一場所の SEM 像を観察すると小さなすべりステップが認められる程度であり、OM による観察でもき裂の発生は認められなかった。変形が進行し Fig.

Fig. 11. Micrographs of notch root for the specimen deformed up to $U=1.23$ mm.

Fig. 12. Micrographs of notch root for the specimen deformed up to $U=1.66$ mm.

Fig. 13. Micrographs of notch root for the specimen deformed up to $U=1.77$ mm.

12 に示す $U=1.66$ mm 程度になると、EE 像からエキソ電子放射領域が広がり、またその強さも増加していることがわかる。SEM 像を観察すると切欠き底にすべりステップが集中し、明らかではないがき裂が発生しているように見える。OM による観察の結果、切欠き底でき裂が発生していることが確認され、その深さは約 $10\mu\text{m}$ 程度であった。さらに変形が進行すると

Fig. 13 に示すように, OM による観察のみならず SEM 像においても明確なき裂が認められる. 以上のごとき観察結果より, き裂発生は $U=1.66$ mm 程度で生じていると推定される. 一方, Fig. 10 に示すように, EE 強度-変位曲線で曲線が急速に立ち上がっている部分と飽和している部分にそれぞれ接線を引き, それらの交点を求めると, 荷重-変位曲線上の×印の位置 ($U=1.65$ mm) となり, 観察結果より推定されるき裂発生点とほぼ一致した.

3・3 円孔切欠き試験片

Fig. 1 (c) に示す円孔切欠き試験片を用いて, 上述のき裂発生点検出法についてさらに検討を行った. Fig. 14 に円孔切欠き試験片の EE 強度-変位曲線を荷重-変位曲線とともに示す. なお, このときの EE 強度は引張軸に直角方向の円孔端部に励起光スポットを当て測定した値である. 図より明らかなように, 円孔切欠き

Fig. 14. Relationship between intensity of exoelectron emission and displacement for circular hole specimen.

試験片においても表面切欠き試験片の場合と全く類似の EE 強度-変位関係が得られた. そこで種々の変形段階において SEM による円孔切欠き近傍の観察を行った. その結果図中の B 点 ($U=1.55$ mm) まではき裂は発生していないが C 点 ($U=1.95$ mm) に至るとわずかにき裂が発生しており, き裂発生点は C 点の若干手前の $U=1.90$ mm 程度と推定される. Fig. 14 の EE 強度-変位曲線から前述の表面切欠き試験片の場合と同一の方法でき裂発生点を求めると, 荷重-変位曲線上の×印の位置 ($U=1.88$ mm) となり, 観察結果から推定されるき裂発生点とほぼ一致した. このように EE 強度-変位曲線からき裂発生点を推定することが可能のように思われる. しかし, その推定精度, さらには雰囲気によっては EE 強度-変位曲線の形状が異なる場合もあるようなので, 10) そのような場合にも同様な手法の適用が可能かどうか等今後検討を要しよう.

Fig. 15 に E 点まで変形させたときの円孔中心を通り引張軸に垂直な方向の EE 強度分布を示す. 図よりわかるように, EE 強度は切欠き底に近づくにつれ急速に増加するが, 切欠き底近傍で一定値を示している. 同一試験片を SEM で観察すると, Fig. 16 に示すようにき裂が発生しており, その長さは EE 強度が一定値を示す領域とほぼ一致していた. 著者らは前報¹¹⁾において, 大気中で片側切欠き試験片に引張変形を加えた場合の切欠き底近傍における EE 強度分布を調べ, 本実験結果と同様に EE 強度分布の一定値を示している部分の長さが, 切欠き底に発生したき裂の長さに対応していることを示した. このようなことから, EE 強度分布を調べることでき裂長さの推定も可能と思われる.

Fig. 15. Distribution of intensity of exoelectron emission for the circular hole specimen deformed up to the point E in Fig. 14.

Fig. 16. A scanning electron micrograph of the circular hole specimen deformed up to the point E in Fig. 14.

4 結 言

試作の走査型エキソ電子顕微鏡ならびに鏡筒内引張試験装置を用い, アルミニウム試験片の引張変形時のエキソ電子放射挙動について調べた. 得られた主たる結論は以下の通りである.

(1) EE 強度は試験片が一樣変形する段階では変形の増加とともに徐々に増加するが、局部的なくびれが起ると急激に増加し、その後飽和の傾向を示す。

(2) このような EE 強度と変形の関係は大気中で変形を加えても、真空中で変形を加えても、真空中で EE 強度を測定する本実験の場合、強度レベルに若干差があるものの定性的には同様であった。

(3) 本実験での変形速度範囲では EE 強度-変位曲線には全般的にはほとんど影響がないようであるが、変形速度が大きくなると EE 強度の急激な増加後の飽和の傾向が顕著でなくなる。

(4) 変形後に励起光を照射した場合の方が変形中連続照射して EE 強度を測定した場合よりも強度レベルは高かったが、定性的には両者とも同一の EE 強度-変位曲線を示した。

(5) 切欠き試験片を用いた実験結果によると、き裂発生点は EE 強度-変位曲線で曲線の急激に立ち上がっている部分と飽和している部分のそれぞれに引いた接線の交点とほぼ一致し、このような手法によりき裂発生点の検出が可能であると考えられる。

(6) き裂が発生した切欠き底近傍における EE 強度分布を調べると、切欠き底に強度一定の領域があり、その長さは発生したき裂長さにはほぼ対応していた。

おわりに、本研究の遂行にあたりご高配賜った長岡

技術科学大学一ノ瀬幸雄教授に謝意を表す。また、本研究は昭和57年度文部省科学研究費の援助を受けた。

(昭和58年6月24日 第2回破壊力学シンポジウムにて講演)

参 考 文 献

- 1) W.J. Baxter, Met. Trans., **6A**, 749 (1975).
- 2) R.A. March and E. Rabinowicz, Proc. 31st. ASLE Annual Meeting in Philadelphia, May 10-13, p.1 (1976).
- 3) 駒井謙治郎, 日本金属学会誌, **40**, 964 (1976).
- 4) S. Yamamoto, Japanese Journ. of Appl. Physics, **16**, 2157 (1977).
- 5) 本間恒夫, 品田 豊, 斉藤安俊, 日本金属学会誌, **41**, 523 (1977).
- 6) 例えば, W.J. Baxter, Vacuum, **22**, 571 (1972); J. Appl. Phys., **44**, 4400 (1973); **45**, 4692 (1974).
- 7) W.D. von Voss and F.R. Brotzen, J. Appl. Phys., **30**, 1639 (1959).
- 8) D.R. Arnott and J.A. Ramsey, Surface Sci., **28**, 1 (1971).
- 9) A. Gieroszynsky and B. Sujak, Acta Phys. Polon., **28**, 337 (1965).
- 10) 品田 豊, 斉藤安俊, 本間恒夫, 日本金属学会誌, **41**, 517 (1977).
- 11) 武藤睦治, 服部一郎, 岡崎正和, 中村正久, 大西祥作, 材料, **34**, 468 (1985).