HOKKAIDO UNIVERSITY

| | |
|---|---|
| Title | In-Situ Brinellインデンテーションによる Mg-Y単結晶の塑性変形挙動観察 |
| Author(s) | 峯田, 才寛; 三浦, 誠司; 岡, 和彦 他 |
| Citation | 日本金属学会誌, 81(4), 196-205<br>https://doi.org/10.2320/jinstmet.JBW201601 |
| Issue Date | 2017-04-01 |
| Doc URL | https://hdl.handle.net/2115/75131 |
| Type | journal article |
| File Information | J. Jpn Inst. Metal 81(4) 196.pdf |

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

日本金属学会誌 第 81 巻 第 4 号(2017)196–205

# *In-Situ* Brinell インデンテーションによる Mg–Y 単結晶の塑性変形挙動観察

峯田才寛[1,*]　三浦誠司[2]　岡　和彦[3]　宮島達也[4]

[1]北海道大学大学院工学院材料科学専攻
[2]北海道大学大学院工学研究院材料科学部門
[3]北海道大学大学院工学研究院応用物理学部門
[4]産業技術総合研究所

J. Japan Inst. Met. Mater. Vol. 81, No. 4 (2017), pp. 196–205
© 2017 The Japan Institute of Metals and Materials

## Observation of Plastic Deformation Behavior of Mg-Y Alloy Single-Crystals by Using *In-Situ* Brinell Indentation

Takahiro Mineta[1,*], Seiji Miura[2], Kazuhiko Oka[3] and Tatsuya Miyajima[4]

[1]*Division of Materials Science and Engineering, Graduate School of Engineering, Hokkaido University, Sapporo 060–8628*
[2]*Division of Materials Science and Engineering, Faculty of Engineering, Hokkaido University, Sapporo 060–8628*
[3]*Division of Applied Physics, Faculty of Engineering, Hokkaido University, Sapporo 060–8628*
[4]*National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), Nagoya 463–8560*

In order to understand a plastic deformation behavior of pure Mg and Mg–Y alloy single–crystals under a complex stress condition, newly established in–situ Brinell indentation was conducted. The deformation morphology on the upper surfaces of the specimen around the indent could not been sufficiently observed by the previously reported in–situ indentation methods using an optically transparent indenter due to refraction of rays at a surface of the indenter. In this study, the space between the indenter and the specimen surface are filled with immersion liquids such as silicone oil and kerosene. This technique enables to observe the specimen surface during indentation. Using in–situ Brinell indentation on pure Mg and Mg–Y alloy single–crystals, it is found that the shape of the indents on them are not circle but elliptic even during the loading. The aspect ratio of the indents decreases with increasing Y content. Moreover, occurrences of plastic deformation mechanisms around and beneath the indent could be observed during loading and unloading process by using the in–situ Brinell indentation method. ［doi:10.2320/jinstmet.JBW201601］

(Received October 27, 2016; Accepted November 29, 2016; Published March 25, 2017)

***Keywords***: *in–situ indentation, Brinell indentation, magnesium, magnesium–yttrium, single–crystal, twinning*

## 1. 緒　　言

Mg 合金は次世代を担う軽量高比強度材料として注目を集めており，その主たる応用分野として自動車産業[1)]や航空宇宙産業[2)]が挙げられる．しかし Mg 合金は冷間加工性が乏しく，高コストな熱間加工を必要とするためにその普及が進んでいないのが現状である．Mg 合金における乏しい冷間加工性の原因として，各塑性変形機構間の臨界分解せん断応力(Critical Resolved Shear Stress: CRSS)の比が非常に大きいことが挙げられる[3–16)]．常温においては {0001}〈$1\bar{2}10$〉底面すべりと {$10\bar{1}2$}〈$\bar{1}011$〉双晶が支配的に活動し，その他の非底面塑性変形機構はほとんど活動しない．一方で，変形温度を上昇させることで非底面塑性変形機構の CRSS は減少する[15,16)]．そのため高温では複数の塑性変形機構の活動が容易となる，つまり von Mises の条件[17)]を満たすことが容易となるため塑性変形能が向上する．von Mises の条件が十分に満たされない場合，結晶粒界近傍等においては大きな応力集中が発生し，それが破壊の一因となる[18–22)]．汎用 Mg 合金である AZ61多結晶を用いた常温での引張試験後の TEM(Transmission Electron Microscopy)観察から結晶粒界近傍等において CRSS が非常に大きい非底面すべりの活動が確認されており[23)]，結晶粒界近傍での応力集中を緩和するためにそれらが活動したと考えられる．そのため Mg 合金の常温における塑性変形挙動の理解は，それらの冷間加工性向上のために必要不可欠となる．

これに対し，Mg–Y 固溶体合金多結晶は優れた常温延性を示すことが報告されている[24)]．Mg–Y 合金は底面すべりおよび {$10\bar{1}2$} 双晶に対して高い固溶強化を示す[4,13)]とともに，{$10\bar{1}0$}〈$1\bar{2}10$〉柱面すべりの CRSS を低下させる[3)]ことが知られている．そのため，Mg–Y 合金における各塑性変形機構間の CRSS 比は Pure Mg のそれに比べて 1 に近く，常温においても von Mises の条件を満たすことが容易となる．それにより各結晶粒間の結晶粒界近傍においても均一な変形が可能となり，結果として結晶粒界近傍における応力集中の軽減が期待される．これが Mg–Y 合金多結晶における優れた常温延性の一因として挙げられる[4)]．上述のように，多結晶体の変形時

* 北海道大学大学院生(Graduate student, Hokkaido University)

には結晶粒界近傍に応力集中が発生している．そのため，結晶粒界近傍で均一な変形が可能となり，応力集中を十分に回避できるだけの変形能の有無を評価することができる機械試験が必要である．

複雑な変形状況下における変形挙動を理解する一つの手法としてインデンテーション試験がある．インデンテーション試験では試験片を常に圧子と同様の形状に塑性加工することから，軸対称性の高い圧子を用いて単結晶のインデンテーション試験を実施した場合には一回の試験で様々な方位への塑性変形挙動の相対的な比較が可能となる．従来の Ex-situ であるインデンテーションにおいても，試験後の試験片表面観察から材料の塑性変形挙動を類推することが可能である．しかし材料の塑性変形挙動を理解する上で，塑性変形機構の荷重応答の情報は非常に重要である．これまで Pure Mg 単結晶を用いた Brinell インデンテーションおよび Vickers インデンテーションにより，圧痕形状が著しく [0001] へ伸長した異方性圧痕が観察されてきた[34-36]．しかしその観察は Ex-situ により行われたものである．Mg 合金において除荷時の Detwinning によりわずかにひずみが回復する擬弾性効果が報告されていることから[37-41]，圧痕形状の異方性に対するひずみ回復の影響は試験後の表面観察からは決定が困難である．一方，変形中の試験片表面変化を In-situ 観察することで塑性変形機構の荷重応答の詳細な情報を負荷過程のみならず除荷過程でも得ることが期待できる．これまで様々な In-situ インデンテーション法が提案されている[25-30]．近年，圧子押し込み中の圧痕投影接触面積を光学的に計測する In-situ 手法として，顕微インデンテーション法が提案されている[31-33]．顕微インデンテーション法は，ダイヤモンド製，もしくはサファイア製の光学的透明圧子と CCD カメラを組み合わせることにより，圧子の圧入に伴う圧子－試験片間の接触領域（以後，圧子接触領域）の拡張過程を透明圧子を通して In-situ 観察するものである．しかしこれら透明圧子の屈折率は非常に大きいため透明圧子と大気の界面において大きな光の屈折が生じ，圧子接触領域近傍で観察可能な試験片表面領域は著しく狭い．圧子接触領域近傍の試験片表面変化を In-situ 観察することは塑性変形機構の荷重応答を議論するために重要であり，そのため圧子接触領域の拡張過程に加えて圧子接触領域近傍における試験片表面変化を観察することのできる In-situ インデンテーション法の開発が望まれている．

本研究では，圧子接触領域および圧子接触領域近傍の試験片表面を同時に観察することが可能な In-situ インデンテーション法として，適切な透明圧子および Immersion liquid（以後，屈折率調整液）を用いる新規手法の開発を行い，この手法のうち軸対称性の高い In-situ Brinell インデンテーションを用いて Pure Mg および Mg-Y 合金単結晶における塑性変形挙動の異方性についての知見の収集とその理解を試みた．

## 2. 実　験　方　法

### 2.1 In-situ Brinell インデンテーション法

Mg の押し込み過程における圧子接触領域の変化および圧子接触領域近傍での試験片表面変化の In-situ 観察を行うために，In-situ インデンテーション法の開発を行った．圧子形状は JIS 規格（JIS B 7724）における Brinell インデンテーションに基づき，光学的に透明な半球状圧子（半径 r = 500 $\mu$m）を選択した．以後，半球状圧子を用いた In-situ インデンテーションを In-situ Brinell インデンテーションと呼ぶ．Fig. 1 に（a）In-situ インデンテーション装置の外観写真，（b）装置構成の模式図，および（c）共焦点レーザー顕微鏡における，半球状圧子と試験片表面の接触点に焦点がある場合の光路の模式図を示す．本研究における観察には He-Ne 共焦点レーザー顕微鏡（Lasertec（株），1LM21H，レーザー波長 $\lambda$ = 632.8 nm）および長焦点対物レンズ（焦点距離 200 mm）を用いた．コンピュータで制御されたピエゾ素子（Physik Insturumente GmbH & Co., N-214）により試験片を設置した装置駆動部を上下に移動させることで試験片上面に押し込み試験を行い，その際の押し込み荷重はフォースセンサー（Kistler Instrumemte AG, type 9193）により計測した．

上述の通り，従来の顕微インデンテーション法では透明圧子と大気の屈折率が著しく異なるため，スネルの法則に従いそれらの界面で大きな光の屈折が生じ，試験片表面の良好な観察像を得ることができない．良好な観察像を得るためには，「透明圧子」および「透明圧子と試験片表面間の空間」の屈折率を近づける，つまり屈折率比 $n_r/n_i$ を 1 に近づける必要がある．ここで，$n_r$ および $n_i$ は屈折率調整液および透明圧子の屈折率を意味する．屈折率比 $n_r/n_i$ を 1 に近づける目的のため，試験片と圧子の間は Immersion liquid（屈折率調整液）で満たした．Appendix に圧子接触領域および圧子接触領域近傍の試験片表面を観察するための本 In-situ インデンテーション法における光学モデルの詳細を述べる．

適切な屈折率調整液として，以下の条件を満たす物質を選択する．

1．屈折率が圧子のそれに近い．
2．光学的に透明である．
3．揮発性が少ない．

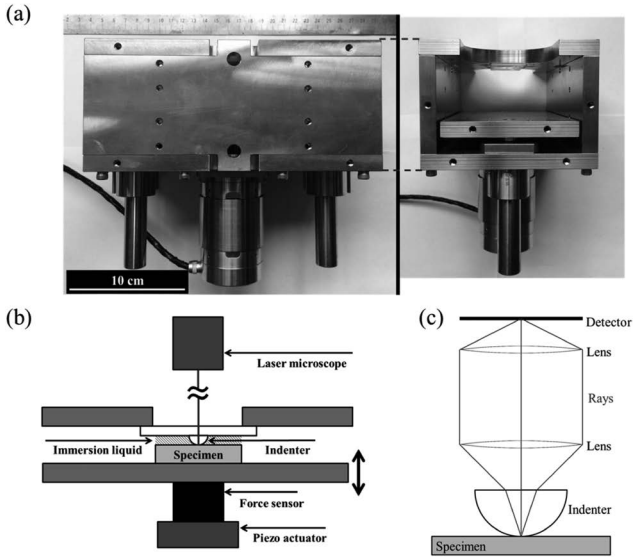


Fig. 1　(a) The in-situ indentation jig, (b) the schematic of in-situ indentation method and (c) the schematic of ray paths of the confocal laser microscope.

4．毒性が無い．
5．試験片および圧子と反応しない．
6．試験環境下において安定である．
7．入手が容易である．

以上の条件を満たす屈折率調整液として，ここではシリコーンオイル(TRUSCO，TO-SP10-N)およびケロシン(純正化学株式会社)を選択した．シリコーンオイルおよびケロシンの屈折率はそれぞれ1.51[42]，1.43[43]であり，且つ上記条件を満たす．また適切な圧子として，以下の条件を満たす物質を選択する．

1．屈折率が屈折率調整液のそれに近い．
2．光学的に透明である．
3．硬度が高い．
4．毒性が無い．
5．試験片および屈折率調整液と反応しない．
6．試験環境下において安定である．
7．入手が容易である．

以上の条件を満たす圧子として，ここではサファイアおよび石英ガラス(ともに Edmund Optics)を選択した．サファイアおよび石英ガラスの屈折率はそれぞれ1.77，1.46[44]である．従来の顕微インデンテーション法における理想的な透明圧子の一つとして高硬度であるダイヤモンドが用いられている．ダイヤモンドおよび大気の屈折率はそれぞれ $n_i=2.42$ および $n_r=1.00$ であり，それらの屈折率比は $n_r/n_i=0.41$ となるため，圧子接触領域近傍の試験片表面の In-situ 観察は困難である．Table 1 に本研究で用いた圧子および屈折率調整液の屈折率および試験を行った組み合わせにおける屈折率比 $n_r/n_i$ を示す．Table 1 に示す本研究における各屈折率比 $n_r/n_i$ は，ダイヤモンドと大気の屈折率比 $n_r/n_i=0.41$ に比べ 1 に近い．サファイア－大気(屈折率調整液なし)，石英ガラス－大気，サファイア－シリコーンオイルおよび石英ガラス－ケロシンの組み合わせをそれぞれ comb. 1，comb. 2，comb. 3，および comb. 4 とする．本研究における Mg 合金単結晶の In-situ Brinell インデンテーションでは，$n_r/n_i$ が比較的 1 に近く且つ圧子の硬度が高い comb. 3を選択して塑性変形挙動の In-situ 観察を行った．

### 2.2 Pure Mg および Mg-Y 合金単結晶の試験条件

Pure Mg，Mg-1.3 at.% Y および Mg-2.3 at.% Y 単結晶インゴットを Bridgman 法により作製した．作製した単結晶インゴットにエメリー紙およびコロイダルシリカ(粒径 0.04 $\mu$m)を用いて機械研磨を行った．EBSD(Electron Back Scatter Diffraction)法を用いて結晶方位解析を行い，$[1\bar{2}10]$ と平行な押し込み方向を有する試験片を作製した．全ての圧縮試験片をガラス管へ Ar 封入した後，サイクル焼鈍(373 K-423 K，1 サイクルあたり 4 h，18サイクル)を施した．その後 Mg-Y 合金単結晶試験片に対して 773 K，72 h の溶体化熱処理を施し，水冷をした．試験片の合金組成は蛍光 X 線分析(JEOL JSX-3220Z)を用いて測定した．本研究で新規開発した In-situ Brinell インデンテーションを，常温で実施した．変位速度は 1 $\mu$m/s とし，圧子－屈折率調整液の組み合わせとしてサファイア－シリコーンオイル(comb. 3，$n_r/n_i=0.85$，圧子半径 r＝500 $\mu$m)を選択した．最大押し込み荷重は 9.8 N とした．試験後に，FE-SEM(Field Emission Scanning Electron Microscopy: JEOL JSM 6500F)および EBSD 法による試験片表面観察を行った．

Table 1 Indenters, immersion liquids and their refractive indices.

| Combination | Indenter | $n_i$ | Immersion liquid | $n_r$ | $n_r/n_i$ |
|---|---|---|---|---|---|
| comb. 1 | Sapphire | 1.77 | No (air) | 1.00 | 0.56 |
| comb. 2 | Silica glass | 1.46 | No (air) | 1.00 | 0.68 |
| comb. 3 | Sapphire | 1.77 | Silicone oil | 1.51 | 0.85 |
| comb. 4 | Silica glass | 1.46 | Kerosene | 1.43 | 0.98 |

## 3. 結果および考察

上述の通り，Mg 合金の複雑な変形状況下における塑性変形挙動の理解は Mg 合金実用化に必須であり，本研究では，Pure Mg および Mg-Y 合金単結晶に軸対称性の高い半球状圧子を押し込むことで異なる応力軸方位でも同様の変形を必要とする In-situ Brinell インデンテーションを実施し，それら材料における塑性変形挙動の In-situ 観察から塑性変形の異方性の理解を試みた．

Fig. 2 に(a)Pure Mg，(b)Mg-1.3 at.% Y および(c)Mg-2.3 at.% Y単結晶を用いた各インデンテーション試験における In-situ 観察像を示す．また，Fig. 2(d)に Pure Mg 単結晶の押し込み荷重 9.8 N における In-situ 観察像に画像処理ソフト(ImageJ, ver. 1.45 l)を用いてコントラスト調整処理および二値化処理を施したものを示す．これらの画像処理により，圧子と試験片の接触領域を明確化することで，圧痕径を測定することが可能となる．一般に Brinell インデンテーションによ

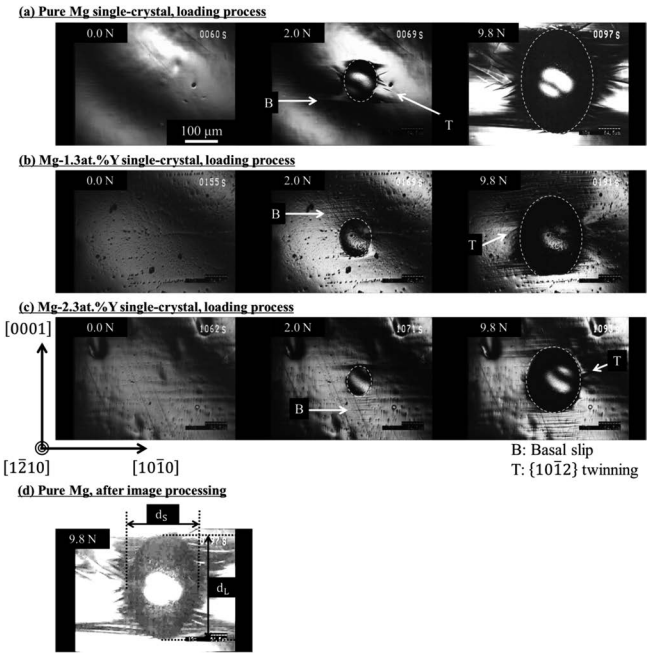


Fig. 2 The in-situ images of (a) pure Mg, (b) Mg-1.3 at.% Y and (c) Mg-2.3 at.% Y single-crystals during loading process with $n_r/n_i=0.85$. (d) An in-situ image processed to measure the major and the minor diameters of the indent on pure Mg single-crystal at 9.8 N.

る圧痕投影形状は圧子形状を反映し円形となるが，Pure Mg 単結晶を用いた In-situ Brinell インデンテーションでは押し込み過程の In-situ 観察から楕円形の圧痕形成過程が確認された．楕円形圧痕の長径は [0001] と平行であった．長径の端部から左右に向けたすべり線の導入が確認され，これは底面すべりであると考えられる．一方，短径の端部付近からは $\{10\bar{1}2\}$ 双晶の発生が確認され，Pure Mg では大きく発達するが，Y 添加材ではあまり現れない．同様の結果が Ex-situ での Brinell インデンテーションおよび Vickers インデンテーションを用いた研究において報告されている[34-36]．以降，圧痕形状において長径，短径に明瞭な差があることを圧痕形状異方性と呼ぶ．圧痕形状異方性は Y 濃度が増加するに伴い減少し，圧痕形状は円形に近づく．同様の結果が Vickers インデンテーションからも確認されている[35]．

圧痕投影形状を楕円形と考えることで，長径と短径を定義する．Fig. 3 に Pure Mg，Mg-1.3 at.% Y および Mg-2.3 at.% Y を用いた各インデンテーション試験の各押し込み荷重における長径（$d_L$）および短径（$d_S$）を示す．また，Fig. 4 に各押し込み荷重における長径と短径の比（$d_L/d_S$）を示す．$d_L/d_S$ が 1 に近いことは，圧痕形状異方性が小さいことを意味する．押し込み過程における $d_L$ および $d_S$ は In-situ 観察像より測定した．圧子接触領域では圧子－屈折率調整液間の界面が存在しないため，そこでの光の屈折は生じない．Y 濃度の増加に伴い同一荷重における $d_L$ および $d_S$ が減少していた．圧痕径が小さくなることは硬さの増加，すなわち Y 固溶による強化を意味する．また，圧痕形状異方性を表す長径と短径の比 $d_L/d_S$ は全ての押し込み荷重において Y 添加により 1 に近づいた．これは，上述の Y 添加による圧痕形状異方性の減少を意味する．既に述べたように，In-situ Brinell インデンテーション中に活動した塑性変形機構として，底面すべりおよび $\{10\bar{1}2\}$ 双晶が確認され，$\{10\bar{1}2\}$ 双晶の活動量は Y 濃度の増加に伴い減少する（Fig. 2）．この結果は先行研究とよく一致する[35,36]．Mg-Y 合金単結晶を用いた Ex-situ である Vickers インデンテーションによる先行研究[35]において，圧痕近傍での柱面すべりの活動が確認されている．その際，Y 濃度の増加に伴い Vickers 圧痕の形状異方性が減少し且つ $\{10\bar{1}2\}$ 双晶の活動量が減少していることが報告されており，Mg-Y 合金単結晶においては $\{10\bar{1}2\}$ 双晶のみならず柱面すべりも圧痕形成に大きく寄与し，その結果，圧痕形状異方性が減少していると結論付けている．本研究における Y 添加による圧痕形状異方性の減少は，Vickers インデンテーションによる先行研究と同様の理由に因るものであることと推測される．

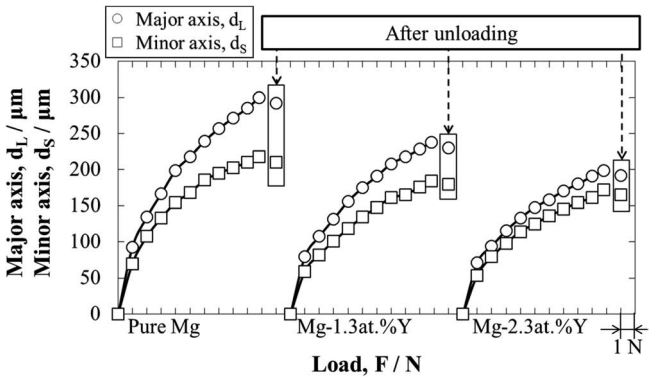


Fig. 3　The major axis length $d_L$ along [0001] and the minor axis length $d_S$ along $[10\bar{1}0]$ of the indents on various single-crystals as a function of applied load.

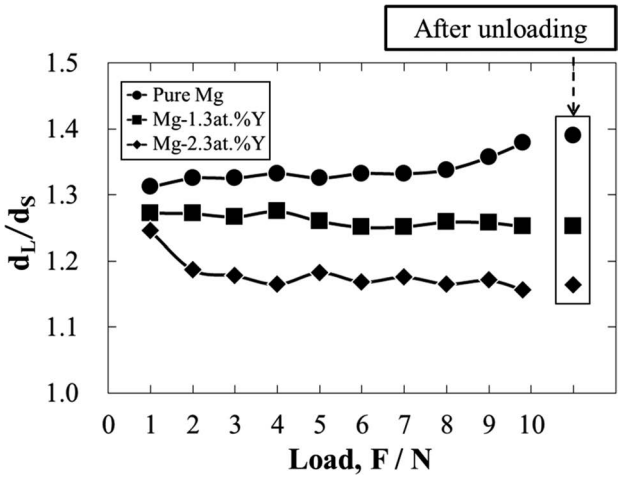


Fig. 4　The ratio between the major axis $d_L$ and the minor axis $d_S$ of the indents（$d_L/d_S$）on various single-crystals as a function of applied load.

Figs. 5(a)(b)(c)に圧痕形状異方性を示す圧痕の模式図を示す．Pure Mg 単結晶において，荷重 9.8 N での押し込み中における押し込み深さは $h = 28\,\mu m$ であった．半球状圧子が材料に押し込まれ際に Sink-in や Pile-up を伴わず且つ等方的に圧痕が形成した場合，圧痕径 d と押し込み深さ h の関係は以下の式で示される．

$$d = 2r\cos\left[\mathrm{Arcsin}\left\{(r-h)/r\right\}\right] \qquad (1)$$

ここで r は半球状圧子の半径である．Eq.（1）より，$h = 28\,\mu m$ において $d = 330\,\mu m$ となる．この値は，Fig. 3 に示した 9.8 N での押し込み中における Pure Mg 単結晶の $d_L = 301\,\mu m$ と矛盾しない．したがって，長径 $d_L$ よりはるかに短い短径 $d_s$ 側の圧痕近傍の試験片表面には弾性的な振る舞いをして圧痕としては永久変形を残さない大きな Sink-in 領域が生じたと予想される（Fig. 5(c)）．Fig. 5(d)に Pure Mg 単結晶の押し込み荷重 9.8 N における短径側圧痕近傍の In-situ 観察像を示す．圧痕最外縁部近傍に同心円状のニュートンリングが観察された．これは，圧痕最外縁部より外側で圧子と試験片表面の間の間隔が徐々に変化していることを示しており，したがって，短径側の圧痕近傍の試験片表面に Sink-in が生じていると結論される．上述の通り，これまで報告されてきた Pure Mg 単結晶における圧痕形状異方性[34-36]は Ex-situ で観察されたものであったが，本手法を用いた In-situ 観察より楕円形圧痕の形成過程を明らかにすることができた．

Y 濃度の増加に伴ない圧痕形状異方性が減少し，それに伴って $\{10\bar{1}2\}$ 双晶の活動量が減少した理由を，Nix-Gao モデル[45]および各塑性変形機構の CRSS に基づき以下のように説明する．Figs. 5(a)(b)(c)に本研究での結晶方位における Nix-Gao モデルの模式図を示す．Nix-Gao モデルより，[0001] への圧痕拡張には $(0001)[1\bar{2}10]$ せん断ひずみ，$[10\bar{1}0]$ への圧痕拡張には $(10\bar{1}0)[1\bar{2}10]$ せん断ひずみの導入が必要となる．$(0001)[1\bar{2}10]$ は底面すべり，$(10\bar{1}0)[1\bar{2}10]$ は柱面すべ

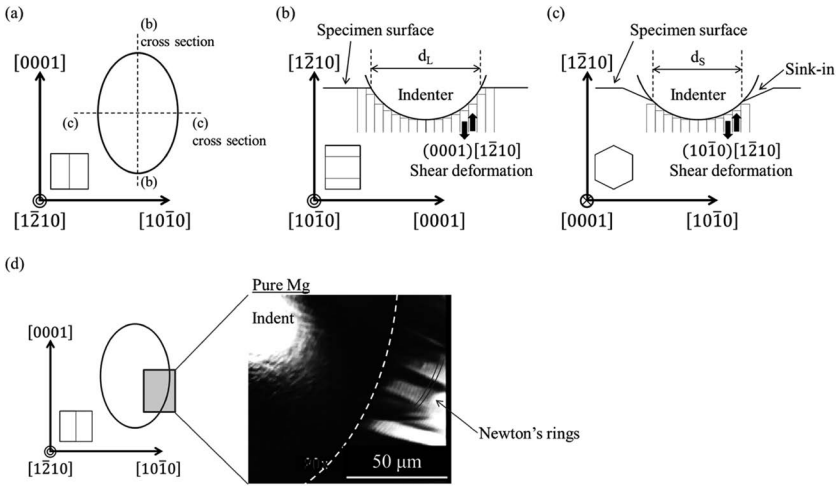


Fig. 5 (a-c) The schematics of the Brinell indent along [1$\bar{2}$10] based on Nix-Gao model and (d) the magnified in-situ image of pure Mg single-crystal at 9.8 N.

りのせん断面およびせん断方向と一致する．一方，{10$\bar{1}$2} 双晶の活動により導入されるせん断ひずみは(0001)[1$\bar{2}$10] および(10$\bar{1}$0)[1$\bar{2}$10] 両方の成分を有している．Pure Mg においては柱面すべりの CRSS が {10$\bar{1}$2} 双晶のそれに比べ著しく高いため，[10$\bar{1}$0] への圧痕拡張は主として {10$\bar{1}$2} 双晶の活動に帰される．これに対し Mg-Y 合金は底面すべりおよび {10$\bar{1}$2} 双晶に大きな固溶強化を示す一方で[4,13]，柱面すべりの CRSS が減少する[3]．結果として各塑性変形機構の CRSS 比が減少し，Mg-Y 合金では底面すべり，{10$\bar{1}$2} 双晶および柱面すべりの三つの変形機構間の活動性の差が Pure Mg に比べ小さくなる．Fig. 2 に示す In-situ 観察像より，Pure Mg 単結晶に比べ Mg-Y 合金単結晶の {10$\bar{1}$2} 双晶の活動量は小さいことから，{10$\bar{1}$2} 双晶と柱面すべりの活動性の差は減少しており，これによって Mg-Y 合金単結晶においては塑性変形の異方性が小さく，圧痕形状異方性が減少したと考えられる．

Pure Mg 単結晶の除荷過程における In-situ 観察像を Fig. 6(a)に，試験後の FE-SEM/EBSD 観察結果を Fig. 6(b)に示す．また，それらの拡大図を Fig. 6(c)に示す．Figs. 6(b)(c)において，母相と {10$\bar{1}$2} 双晶の界面を黒線で示している．Fig. 6(a)から，押し込み荷重の減少に伴い圧子直下において細い領域を持つ表面起伏発生が観察された．同様の細い領域を持つ表面起伏が Fig. 6(b)に示す試験後の FE-SEM/EBSD 観察からも観察されており，この領域は母相と同じ結晶方位であることがわかった．したがって，この領域は除荷時における {10$\bar{1}$2} 双晶の収縮，つまり Detwinning に起因するものであり，押し込み試験中の圧痕直下における変形の様な複雑な変形状況下においても Detwinning が生じることがわかった．Mg 合金を用いた圧縮試験および引張試験による先行研究において，除荷時もしくは圧縮応力負荷後の引張応力負荷のような逆応力の負荷時における {10$\bar{1}$2} 双晶の Detwinning が報告されている[46-49]．しかし押し込み試験中における除荷時の Detwinning を In-situ で観察した報告はほとんど無く，Mg における双晶変形の過程や detwinning 過程に考慮すべき点が多数あることを明らかにできた．このように，本 In-situ Brinell インデンテーション法は圧子直下および圧子接触領域近傍の試験片表面における塑性変形挙動の In-situ 観察を可能

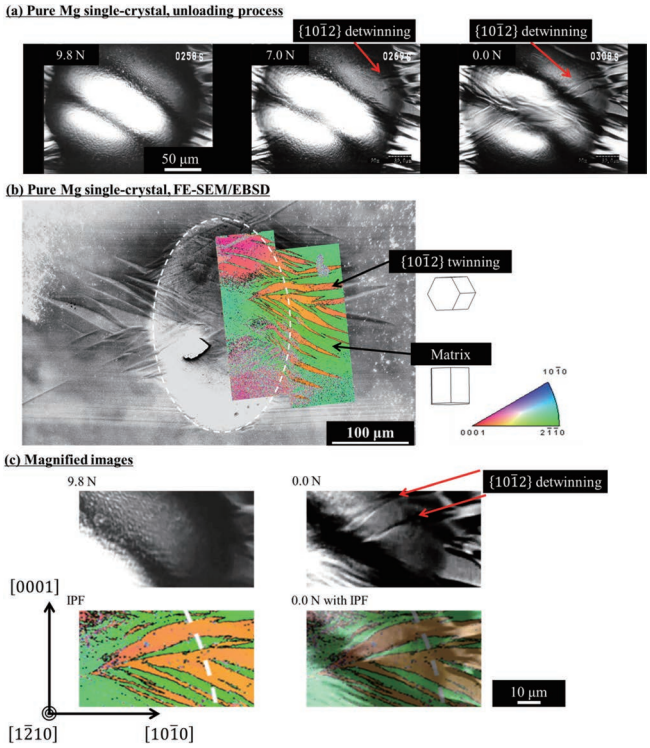


Fig. 6 (a) The in-situ images of pure Mg single-crystal during unloading process, (b) the FE-SEM image and the IPF of pure Mg single-crystal after indentation and (c) the magnified images.

とし，材料の塑性変形挙動を議論する上で非常に有効なアプローチであることが明らかとなった．

## 4. 結　　論

複雑な変形状況下における Pure Mg および Mg-Y 合金単結晶の塑性変形挙動を理解するために，圧子接触領域の変化および圧子接触領域近傍での試験片表面変化を In-situ で観察することのできる Brinell インデンテーションを開発および実施した．In-situ Brinell インデンテーション試験では適切な透明圧子および屈折率調整液を用いそれらの屈折率比 $n_r/n_i$ を 1 に近づけることで，圧子接触領域の変化および圧子接触領域

近傍での試験片表面変化を同時に In-situ 観察することが可能となった．Pure Mg および Mg-Y 合金単結晶に対する In-situ Brinell インデンテーションの結果から，負荷過程および除荷過程において活動した塑性変形機構を観察することが可能であること，また圧痕形状異方性は負荷過程において生じていることが明らかとなった．またその圧痕形状異方性は Y 濃度の増加に伴い減少することが In-situ 観察結果からも確認された．その理由として，Y 添加により底面すべり，$\{10\bar{1}2\}$ 双晶および柱面すべりの活動性の差が減少することが挙げられる．さらに，除荷過程において Detwinning が In-situ 観察されたことから，Brinell インデンテーションの様な複雑な変形状況下においても Detwinning が生じることが明らかとなった．

押し込み試験実施中における材料の変形を考えるうえで，圧痕形状や活動する塑性変形機構と押し込み荷重との関係性を理解するのは非常に重要な課題であった．本手法は圧子接触領域の変化および圧子接触領域近傍での試験片表面における変形過程を In-situ 観察することが可能であり，材料の変形挙動を理解するための非常に有効な手法となることが，Mg 単結晶の試験を通じて確認された．

本研究の遂行にあたり，北海道大学大学院工学研究院，池田賢一准教授および滝沢聡助教に御助言，御支援を頂きましたことを記して謝します．本研究成果の一部はトヨタ自動車(株)先端技術共同研究プログラムの一環として行ったものであります．

## 文　献


1）T. Ito and H. Shirai: JJILM **42**（1992）707-719.
2）T. Nakamura: JJILM **62**（2012）249-256.
3）T. Mineta, S. Miura, T. Mukai, M. Ueda and T. Mohri: J. Japan Inst. Met. Mater. **77**（2013）466-472.
4）T. Mineta and S. Miura: MRS proc. **1741**（2015）aa02-04.
5）R. Sànchez-Martìn, M. T. Pèrez-Prado, J. Segurado, J. Bohlen, I. Gutièrrez-Urrutia, J. Llorca and J. M. Molina-Aldareguia: Acta Mater. **71**（2014）283-292.
6）H. Yoshinaga and R. Horiuchi: Trans. JIM **4**（1963）134-141.
7）T. Obara, H. Yoshinaga and S. Morozumi: Acta Metall. **21**（1973）845-853.
8）S. Ando, K. Nakamura, K. Takashima and H. Tonda: JJILM **42**（1992）765-771.
9）A. Couret and D. Caillard: Acta Metall. **33**（1985）1447-1454.
10）H. Yoshinaga and R. Horiuchi: Trans. JIM **5**（1964）14-21.
11）H. Yoshinaga, T. Obara and S. Morozumi: Mater. Sci. Eng. **12**（1973）255-264.
12）T. Uesugi, M. Kohyama, M. Kohzu and K. Higashi: Mater. Sci. Forum **419**（2003）225-230.
13）S. Miura, S. Imagawa, T. Toyoda, K. Ohkubo and T. Mohri: Mater. Trans. **49**（2008）952-956.
14）A. Akhtar and E. Teghtsoonian: Acta Metall. **17**（1969）1351-1356.
15）H. Yoshinaga: JJILM **59**（2009）450-457.
16）H. Yoshinaga and R. Horiuchi: Trans. JIM **4**（1963）1-8.
17）R. v. Mises: J. Appl. Math. Mech. **8**（1928）161-185.
18）D. Ando and J. Koike: J. Japan Inst. Met. Mater. **71**（2007）684-687.
19）D. Ando, J. Koike and Y. Sutou: Acta Mater. **58**（2010）4316-4324.
20）D. Ando, J. Koike and Y. Sutou: Mater. Sci. Eng. A **600**（2014）145-152.
21）R. Gehrmann, M. M. Frommert and G. Gottstein: Mater. Sci. Eng. A **395**（2005）338-349.
22）J. Koike, T. Kobayashi, T. Mukai, H. Watanabe, M. Suzuki, K. Maruyama and K. Higashi: Acta Mater. **51**（2003）2055-2065.
23）J. Koike and R. Ohyama: Acta Mater. **53**（2005）1963-1972.
24）S. Sandlöbes, S. Zaefferer, I. Schestakow, S. Yi and R. Gonzalez-Martinez: Acta Mater. **59**（2011）429-439.
25）R. F. Cook and G. M. Pharr: J Am. Ceram. Soc. **73**（1990）781-817.
26）R. F. Cook and E. G. Liniger: J Am. Ceram. Soc. **76**（1993）1096-1105.
27）M. Sakai and Y. Nakano: J. Mater. Res. **17**（2002）2161-2173.
28）S. Basu, Z. Wang and C. Saldana: Acta Mater. **105**（2016）25-34.
29）J. K. Deuschle, G. Buerki, H. M. Deuschle, S. Enders, J. Michler and E. Arzt: Acta Mater. **56**（2008）4390-4401.
30）G. Laplanche, J. Pfetzing-Micklich and G. Eggeler: Acta Mater. **78**（2014）144-160.
31）N. Hakiri, M. Sakai and T. Miyajima: Journal of the Society of Materials Science, Japan **56**（2007）510-515.
32）M. Sakai: Journal of the Society of Rheology, Japan **39**（2010）7-15.
33）M. Ikeyama, J. Choi, S. Nakao and T. Miyajima: Surface and Coatings Technology **15**（2009）2571-2574.
34）H. Kitahara, T. Mayama, K. Okumura, Y. Tadano, M. Tsushida and S. Ando: Acta Mater. **78**（2014）290-300.
35）T. Mineta, S. Miura and K. Ikeda: The abstract of TMS,（2016）P-2.
36）H. Kitahara, Y. Takamatsu, M. Tsushida and S. Ando: Collected Abstracts of the 2014 Autumn Meeting of the Japan Inst. Metals and Materials,（2014）No. 583.
37）C. H. Cáceres, T. Sumitomo and M. Veidt: Acta Mater. **51**（2003）6211-6218.
38）G. E. Mann, T. Sumitomo, C. H. Cáceres and J. R. Griffiths: Mater. Sci. Eng. A **456**（2007）138-146.
39）M. A. Gharghouri, G. C. Weatherly, J. D. Embury and J. Root: Philos. Mag. A **79**（1999）1671-1695.
40）X. Y. Lou, M. Li, R. K. Boger, S. R. Agnew and R. H. Wagoner: International Journal of Plasticity **23**（2007）44-86.
41）J. Koike, N. Fujiyama, D. Ando and Y. Sutou: Scr. Mater. **63**（2010）747-750.
42）TRUSCO NAKAYAMA CORPORATION: *product catalog*,（TRUSCO NAKAYAMA CORPORATION, Japan, 2015）.
43）JUNSEI CHEMICAL CO., LTD.: personal communication（2015）.
44）Edmund Optics, Inc.: *Master Source Book*,（Edmund Optics, Inc., Japan, 2016）.
45）W. D. Nix and H. Gao: J. Mech. Phys. Solids **46**（1998）411-425.
46）D. Drozdenko, J. Bohlen, S. Yi, P. Minárik, F. Chmelík and P. Dobron: Acta Mater. **110**（2016）103-113.
47）L. Wu, A. Jain, D. W. Brown, G. M. Stoica, S. R. Agnew, B. Clausen, D. E. Fielden and P. K. Liaw: Acta Mater. **56**（2008）688-695.
48）Y. Xin, X. Zhou, H. Chen, J. Nie, H. Zhang, Y. Zhang and Q. Liu: Mater. Sci. Eng. A **594**（2014）287-291.
49）J. H. Lee, T. Lee, S. W. Song, S. H. Park and C. S. Lee: Mater. Sci. Eng. A **619**（2014）328-333.
50）S. Kobayashi, S. Masui and S. Miura: Journal of the Society of Materials Science, Japan **51**（2002）780-787.
51）P. J. Burnett and T. F. Page: J. Mater. Sci. **19**（1984）3524-3545.
52）K. Oda and T. Yoshio: J. Ceram. Soc. Jpn. **97**（1989）1493-1497.
53）M. Yoshino, S. Aravindan and N. Fujii: Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers C **70**（2004）2548-2554.
54）W. C. Oliver and G. M. Pharr: J. Mater. Res. **19**（2004）3-20.


## Appendix A. In-situ インデンテーション法の光学モデル

以下に，圧子接触領域および圧子接触領域近傍の試験片表面を観察するための本 In-situ インデンテーション法における光学モデルを述べる．なお，圧子押し込み中には元々平面であった試験片表面と圧子の接触領域近傍で Sink-in もしくは Pile-up 等を生じ，これにより試験片表面は複雑な曲面となるが，ここでは単純化の為に，圧子押し込み時でも試験片表面を平坦と仮定したモデルを適用する．顕微インデンテーション法[31-33]で用いられる光学的に透明な圧子の屈折率は，大気の屈折率に比べ非常に大きい．そのため従来の顕微インデンテーション法では透明圧子と大気の界面で光が大きく屈折し，広範囲の試験片表面に焦点を合わせることが困難であり，圧子接触領域近傍における試験片表面の広範囲での良好な観察像は得られない．これは「透明圧子」および「透明圧子と試験片

表面間の空間」で屈折率が大きく異なることに起因する．一般に屈折率の異なる二つの物質の界面を光が通過する際に，光は屈折する．物質 1 と物質 2 の屈折率をそれぞれ $n_1$および $n_2$，それらの界面を光が物質 1 から物質 2 へ通過する際の入射角を $\theta_1$，出射角を $\theta_2$とした際にその関係は

$$n_1 \times \sin\theta_1 = n_2 \times \sin\theta_2$$

$$\sin\theta_1 = {n_2}/{n_1} \times \sin\theta_2 \quad \text{(A1)}$$

として表される(スネルの法則(Fig. A1(a)))．また，入射角 $\theta_1$が以下の式で示される臨界角 $\theta_0$を超えた場合，入射光は全反射し界面を通過しない．

$$\sin\theta_0 = {n_2}/{n_1} \quad \text{(A2)}$$

本試験装置において物質 1 および物質 2 はそれぞれ圧子(屈折率 $n_i$)，屈折率調整液(屈折率 $n_r$)に対応する．屈折率が透明圧子より大きい屈折率調整液の選択肢は少ないことから，本研究では $n_r/n_i < 1$ となる圧子－屈折率調整液の組み合わせにおける観察像を比較し議論を行うこととする．Eq. (A1)より，圧子と屈折率調整液の屈折率比 $n_r/n_i$ が 1 に近いほど入射角 $\theta_1$と出射角 $\theta_2$の差が小さくなる．ここで，光路の表面落射位置が半球状圧子と試験片の接触点から離れるに伴い，圧子－屈折率調整液界面に対する入射角 $\theta_1$は増加する(Fig. A1(b))．Eq. (A2)より，圧子－屈折率調整液界面に対する入射角 $\theta_1$が臨界角 $\theta_0$を超えた際に全反射が生じる．故に圧子の縁近傍の領域において全反射が生じ，観察像を得ることができなくなる．Eq. (A2)より，$n_r/n_i$ を 1 に近づけることで $\theta_0$は90° に近づき，全反射により観察像を得ることができない領域(以後，不可視領域(Invisible area))を減少させることができる．したがって良好な試験片表面の観察像を得るためには $n_r/n_i$ を 1 に近づける必要がある．なお Eq. (A2)より，$n_r/n_i > 1$ の場合には全反射は生じない．Table 1 に示すように，適切な圧子－屈折率調整液の組を選択することで，ダイヤモンド圧子を用いた従来の顕微インデンテーション法に比べ $n_r/n_i$ を 1 に近づけることが可能である．JIS 規格(JIS B 7724)では，圧子に用いる材料の硬度は 1500 HV 以上であることとしている．サファイアおよび石英ガラスの硬度はおおよそ 2000 HV[50,51]および 1200 HV[52,53]である．屈折率の小さな石英ガラスの硬度は JIS 規格により規定されているそれに比べ小さい．しかし Table 1 に示す通り石英ガラス圧子を用いることで $n_r/n_i$ をより 1 に近づけることが可能であるため，低硬度の材料における In-situ インデンテーションでは石英ガラス圧子を用いることでより良好な観察像を得ることが可能である．

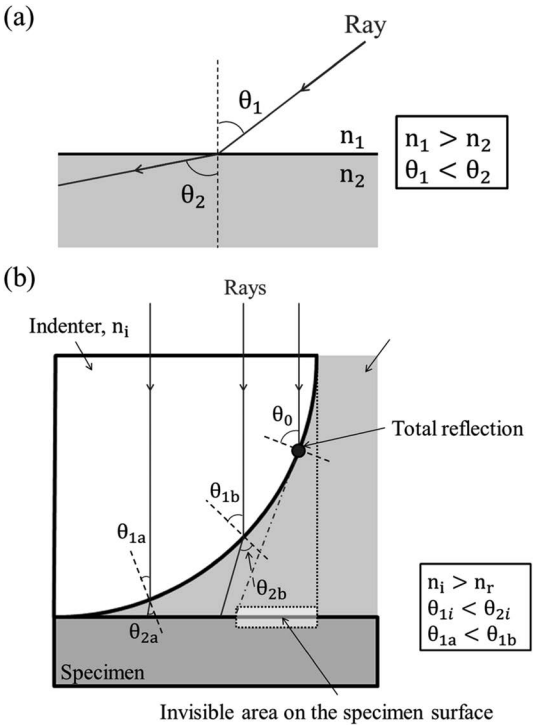


Fig. A1 The schematics of (a) Snell's law and (b) the relationship between incident angle and positions.

Table 1 に示す圧子－屈折率調整液の各組を用いた In-situ Brinell インデンテーションにおける観察像の比較に先立ち，それぞれの屈折率比 $n_r/n_i$ を用いた光路に関するシミュレーションを行った．試験片に入射する光は，試験片に対する垂直落射光に加えて角度を持つ成分があり(Fig. 1(c))，その角度の大きさは対物レンズの開口数 NA(本研究では NA＝0.16)から求められる．単色レーザー光を用いた顕微鏡は色収差が無いため，レンズと平滑な試験片表面との間が一様な屈折率の媒質で占められているならば，全観察領域において焦点位置を試験片表面と一致させることが可能である．しかし本装置において，レーザー光は大気，圧子，屈折率調整液という異なる屈折率を有する三種類の媒質の中を通ることとなる．光は屈折率が異なる二種類の物質の界面を通過する度に屈折するため，本装置の構成において焦点位置は観察位置によって異なり，半球状圧子と試験片表面の接触点に焦点を合わせていても，そこから w だけ移動した位置では焦点位置は試験片表面と一致しなくなる(Fig. A2(a))．この不一致を，圧子－屈折率調整液の組として屈折率比が最も 1 に近くなる石英ガラス－ケロシン(comb. 4，$n_r/n_i$＝0.98)の屈折率を用いて計算した．共焦点光学系におけるレーザー光検出器で同一の位置に対応する Ray 1 および Ray 2 を考える．Ray 1 を対物レンズ中心を通過する光，Ray 2 を焦点位置側の対物レンズ端を通過する光とする(Fig. A2(a))．なお，Ray 1 および Ray 2 以外にも落射光が存在するが，試験片表面と焦点位置の差が最大となる Ray 1 および Ray 2の組み合わせを用いて計算を行った．Ray 1 および Ray 2 の交点として求められる焦点位置と圧子－試験片の接触点間の，試験片表面と平行方向の距離を w とし，Fig. A2(b)に各 w における焦点位置 f を示す．f＝−500 $\mu$m において焦点位置は試験片表面と一致する．w の増加に伴い，焦点位置 f と試験片表面位置(f＝−500 $\mu$m)の距離は増加していくことがわかる．また焦点位置 f が −500 $\mu$m から離れることで，異なる試験片表面から反射された光により観察像が結像されることとなる(Fig. A2(a))．各 w におけるその試験片表面上での位置の差 dw を Fig. A2(c)に示す．w の増加に伴い dw も増加することがわかる．一方，光学顕微鏡における分解能 $\delta$ は Rayleigh の式より

$$\delta = 0.61 {\lambda}/{\mathrm{NA}} \quad \text{(A3)}$$

として表され，本研究における値($\lambda$＝632.8 nm，NA＝0.16)を代入することで $\delta$＝1.76 $\mu$m を得る．Fig. A2(c)により dw＝1.76 $\mu$m では w＝399 $\mu$m となるため，圧子中心からの距離が

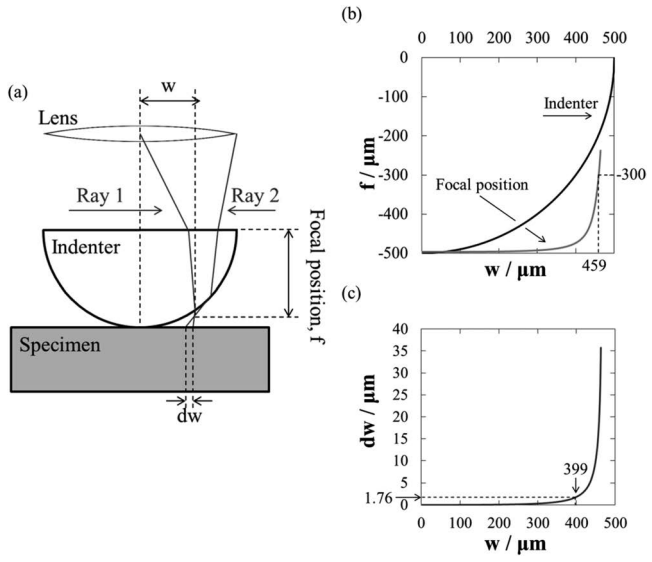


Fig. A2　(a) The schematic of ray paths, (b) focal positions "f" and (c) "dw" as a function of positions "w" with $n_r/n_i = 0.98$.

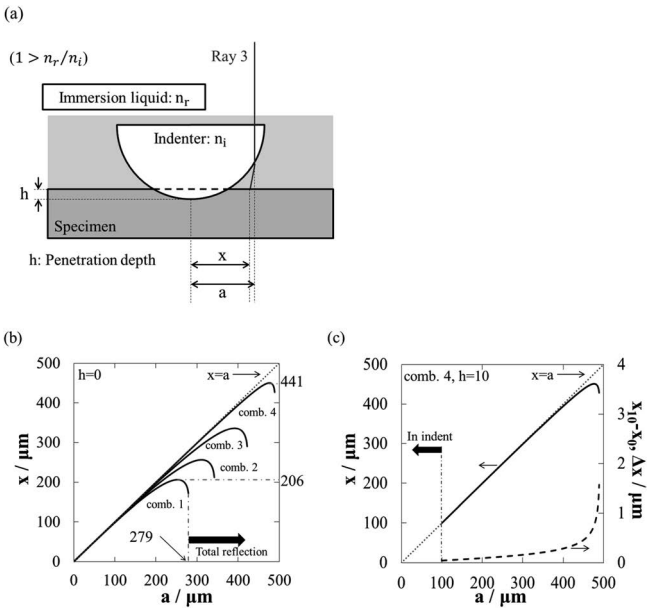


Fig. B1　(a) The schematic of the laser ray refraction and the relationship between x and a under each indenter-immersion liquid combination with (b) penetration depth h = 0 $\mu$m and (c) h = 10 $\mu$m. A dotted line in (b) and (c) indicates x = a, i. e., $n_r/n_i = 1$.

半径 399 $\mu$m 以下の範囲における dw は本研究での共焦点レーザー顕微鏡の分解能より小さく，観察上大きな障害にならないと考えられる．すなわち，押し込み荷重が十分小さく，In-situ 観察域半径が 399 $\mu$m 以下である場合は，観察対象域に対して明瞭な画像が得られることとなる．よって以降では，試験片表面に対する垂直落射光のみを用いた計算に基づきさらに検討を進めることとする．

## Appendix B.　光学モデルと検証実験

圧子と屈折率調整液の屈折率比 $n_r/n_i$ は 1 ではないため，それらの界面で光は屈折する．また，屈折率が大きい物質から小さい物質へ光が通過する際に入射角 $\theta_1$が臨界角 $\theta_0$を超える場合，光は全反射を起こすため観察ができない．それらの議論を行うために，光学モデルに基づいた計算および Pure Ag を用いた In-situ Brinell インデンテーション試験を行い，本 In-situ インデンテーション法から得られる観察像の妥当性を評価した．Pure Ag は鏡面研磨が容易であり，また耐酸化性が良いことから，試験中に良好な試験片表面状態を保つことができる．また Pure Ag は比較的硬度が低く，対称性の良い FCC 構造であるため等方的な塑性変形となり評価しやすいことが期待される．これらの理由より，Pure Ag を試験片として選択した．

圧子－屈折率調整液の組み合わせごとに得られる像の変化を考察するために，以下に示す光学モデルに基づいた計算を行った．垂直落射光 Ray 3 において，圧子先端から被観察位置までの距離を x，レーザー光の検出器において結像される位置を a と定義する(Fig. B1(a))．Eq. (A1)より，各条件における x と a の関係を計算した(Figs. B1(b)(c))．光の波長として，$\lambda = 632.8$ nm(He-Ne レーザー)を用いた．レンズと試験片表面との間が一様な屈折率の媒質で占められているならば，x = w となる．ここでの w は Fig. A2(a)で示したものであり，$n_r/n_i$ が 1 に十分近い場合は x ≈ w と近似される．comb. 1，comb. 2，comb. 3，および comb. 4は Table 1 に示す圧子－屈折率調整液の組み合わせである．Figs. B1(b)(c)中の点線は x = a，つまり圧子と屈折率調整液の屈折率比 $n_r/n_i$ が 1 で光の屈折が起こらない状態を意味し，屈折率比 $n_r/n_i$ が 1 に近い組み合わせほど x が a に近い(点線で示した x = a に近い)ことがわかる．また，a がある値(例として comb. 1 において a = 279 $\mu$m)を超えると，a に対応する x は存在しない．これは上述した光の全反射に起因する．圧子は半球状であるため，圧子と試験片の接触点から離れるほど入射角 $\theta_1$は大きくなり(Fig. A1(b))，a がある値以上に大きい位置では全反射が起こる．Eq. (A2)より $n_r/n_i$ が 1 未満の組み合わせでは，$n_r/n_i$ が 1 に近づくほど臨界角 $\theta_0$が90° に近くなり，球面での全反射が起きる条件が満たされ難くなる．よって屈折率調整液を用いることで全反射による不可視領域を減少させることができ，観察可能な領域が大きくなる．各組み合わせにおける観察可能な試験片表面の範囲は x の最大値から知ることができ，例として comb. 1 および comb. 4 における x の最大値はそれぞれ 206 $\mu$m および 441 $\mu$m である．また，各組み合せにおいて一つの x に対して二つの a が存在する領域がある．これはある位置の試験片表面が二か所で結像されることを意味する．しかし Fig. A2(b)に示した通り，観察位置が圧子の縁に近づくに伴い焦点位置 f と試験片表面(f = -500 $\mu$m)の距離が大きくなるため圧子の縁では明瞭な観察像を得ることができない．これらについては後述する．そのため，ある試験片表面位置が二か所で結像される現象は本研究において観察されなかった．

圧子圧入に伴い各位置における圧子－試験片表面間の距離が減少するため，圧入過程において x-a の関係が変化する．Fig. B1(c)に，圧子を試験片へ h = 10 $\mu$m 押し込んだ際の x-a 曲線を示す．ここで h は押し込み深さであり，h = 0 は試験片と圧子底の接触を，h>0では試験片に圧子が押し込まれている状態を意味する．圧子および屈折率調整液の屈折率として石英ガラスおよびケロシン(comb. 4，$n_r/n_i = 0.98$)のそれを

選択し，実線は h＝10 μm における x–a 曲線を，破線は各 a に対する h＝10 μm での x($x_{10}$)と h＝0 μm での x($x_0$，Fig. B1(b))の差 Δx＝$x_{10}$–$x_0$を示す．Δx の最大値は Δx＝1.73 μm であり，観察像に明瞭な変化は与えないものと考えられる．

以上の検討結果を，Pure Ag を用いた In-situ Brinell インデンテーション結果と比較した．Pure Ag 鋳造材にエメリー紙およびアルミナ研磨剤(粒径 0.1 μm)を用いた機械研磨を施した．その後 EBSD 法により平均結晶粒径を測定した．圧子－屈折率調整液の組み合わせとしてサファイア－大気(comb. 1，$n_r/n_i$＝0.56)，石英ガラス－大気(comb. 2，$n_r/n_i$＝0.68)，サファイア－シリコーンオイル(comb. 3，$n_r/n_i$＝0.85)および石英ガラス－ケロシン(comb. 4，$n_r/n_i$＝0.98)を選択し，In-situ Brinell インデンテーションを常温で行った．変位速度は 1 μm/s，最大押し込み荷重は 4.9 N もしくは 9.8 N とした．Fig. B2に各条件における In-situ Brinell インデンテーションの観察結果を示す．EBSD 解析から測定された Pure Ag の平均結晶粒径は mm オーダーの非常に粗大なものであった．In-situ 観察像からわかるように押し込み荷重 9.8 N における圧子接触領域の直径は約 240 μm であり，平均結晶粒径は圧子接触領域の直径と比較して十分に大きいものであった．Fig. B2より，本手法は押し込み荷重の増加に伴う圧子接触領域の拡張過程および圧子接触領域近傍での試験片表面を In-situ 観察することが可能であることがわかった．圧子押し込み中には試験片表面の圧子接触領域近傍で Sink-in もしくは Pile-up 等を生じ，それらに起因する試験片表面の変位量は圧子接触領域から離れるほど小さくなる[54]．そのため，試験片表面は曲面となる．Sink-in もしくは Pile-up により試験片表面が曲面となることで焦点位置が試験片表面から離れることは観察の障害となり得る．しかし Fig. B2の comb. 4 に示す観察像より，圧子接触領域近傍から圧子最外縁近傍までの広範囲で良好な観察像を得ることができていることがわかる．そのため，Pure Ag の In-situ Brinell インデンテーション観察において Sink-in もしくは Pile-up の観察像に対する影響は非常に小さいものであると考えられ，試験片表面を平坦とした計算モデルは検討に対し十分な精度を有するものであると言える．また $n_r/n_i$＝0.56(comb. 1)ではほぼ圧子接触領域とそのすぐ外側のみの In-situ 観察しか可能ではないが，$n_r/n_i$＝0.68(comb. 2)では圧子接触領域の拡張過程とともに圧子接触領域近傍の試験片表面を同時に In-situ 観察することが可能となり，$n_r/n_i$ が 1 に近づくに従い観察可能な試験片表面の領域が拡大していくことがわかった．これは上述の計算結果と整合するものである．

本研究では軸対称な半球状圧子による Brinell 試験を用いることから，圧子接触中心からの距離にのみ依存した歪のみが存在する．よって以下では，これまでに検討してきた光学モデルに基づいて二次元観察像の歪みについて検討・解釈する．このとき，二次元的な歪を可視化するために，試験片表面に 25 μm 間隔で存在するマーキング点を考える(Fig. B3(a))．圧子および屈折率調整液の屈折率として $n_r/n_i$ が最も 1 に近い石英ガラスおよびケロシン(comb. 4，$n_r/n_i$＝0.98)のそれを選択し，試験片表面に対して垂直な波長 λ＝632.8 nm(He-Ne レーザー)の落射光を用いて観察するものとした．Fig. B3における x および a は Fig. B1で定義されたものであり，屈折率比 $n_r/n_i$ が 1 に近い本条件下では x ≈ w と近似される．Figs. B3(b)(c)に得られる観察像の計算結果を示す．ここでの h は Fig. B1で定義したものであり，圧子の試験片への押し込み深さを示す．圧子の縁に近い点ほど，像の歪，つまり x と a の差が大きい．加えて，圧子の縁付近では光の全反射によりマーキング点が観察されない．当然であるが，これらの結果は同じ仮定で求めた Fig. B1と一致する．以上の計算結果を，Pure Ag を用いた In-situ Brinell インデンテーション結果と比較した．

上述の方法で作製した Pure Ag 試験片に，マーキング点としてナノインデンター（HYSITRON TI950 TriboIndenter)を用いて押し込み試験片の表面に 25 μm 間隔で縦40点×横40点，計1600点のナノインデントを付けた．圧子－屈折率調整液の組み合わせとして石英ガラス－ケロシン(comb. 4，$n_r/n_i$＝

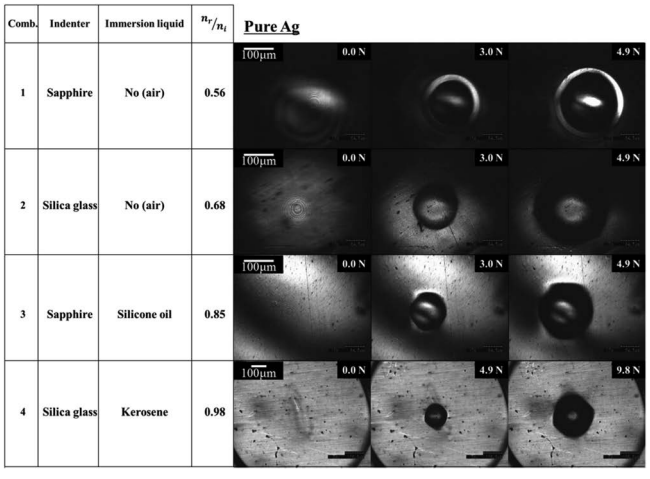


Fig. B2　The in-situ images of various combinations of the indenter and the immersion liquid on pure Ag.

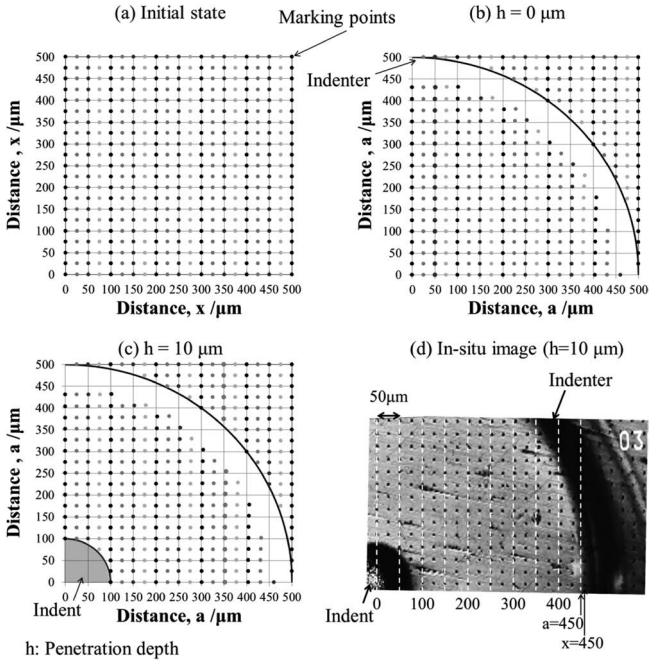


Fig. B3　The theoretical images of (a) initial state, (b) h＝0 and (c) h＝10, and (d) the experimental in-situ image of pure Ag with $n_r/n_i$＝0.98. The marking points were plotted every 25 μm.

0.98)を選択し，In-situ Brinell インデンテーションを常温で行った．変位速度は 1 $\mu$m/s とした．この結果を Fig. B3(d)に示す．Fig. B3(d)に目印として白破線を 50 $\mu$m 間隔で描いた．観察されたマーキング点は目印の白破線より外側に位置しており，実験結果と計算結果は良く一致している．

圧子の縁付近では，a の増加に伴い徐々に実験観察像が暗くなることがわかった．この原因として，二つの理由が挙げられる．一つは光の入射角度である．Fig. A2(a)および Fig. B1(a)に示す通り，試験片に入射する光は試験片表面に対する垂直落射光 Ray 3 に加えて，Ray 3 とは異なる入射角 $\theta_1$を持つ光がある．それらの光路ごとに圧子－屈折率調整液界面に対する入射角 $\theta_1$の大きさが異なるため，光路により全反射を起こす a 位置が異なることとなる．Eq. (A2)より，Fig. B1(a)における試験片表面に対する垂直落射光 Ray 3 および Fig. A2(a)における Ray 2 の，全反射を起こす a 位置はそれぞれ 489 $\mu$m および 459 $\mu$m と計算された．したがって，圧子の縁に近づくに伴い，全反射を起こす落射光の割合が増加することがわかる．落射光の一部が全反射することにより，レーザー光の検出器において検出される光量が減少するため，観察像が暗くなる．このように，実際の観察像における像が徐々に暗くなる領域は各落射光の一部が全反射している領域と矛盾しない．もう一つの理由は，透明圧子界面における光の屈折による焦点位置の変化である．Fig. A2(b)に示したように，圧子中心からの距離 w が増加にする伴い焦点位置 f は試験片表面(f = −500 $\mu$m)から大きく離れることとなる．焦点位置と試験片表面位置の差がレーザー光の検出器において検出される光量に及ぼす影響を調べるため，各焦点位置における Pure Ag の表面観察を行った結果を Fig. B4(a)に示す．ここで対物レンズと Pure Ag の間は大気のみで占められており，圧子および屈折率調整液は存在しない．Fig. B4における f は Fig. A2と同一であり，f = −500 $\mu$m において焦点位置は試験片表面と一致する．また Fig. B4(b)に画像処理ソフト(ImageJ, ver. 1.45 l)を用いた観察像の Intensity 解析結果を示す．高い Intensity であることは，観察像が明るいことを意味する．全ての Intensity に対して f = −500 $\mu$m における観察像の Intensity

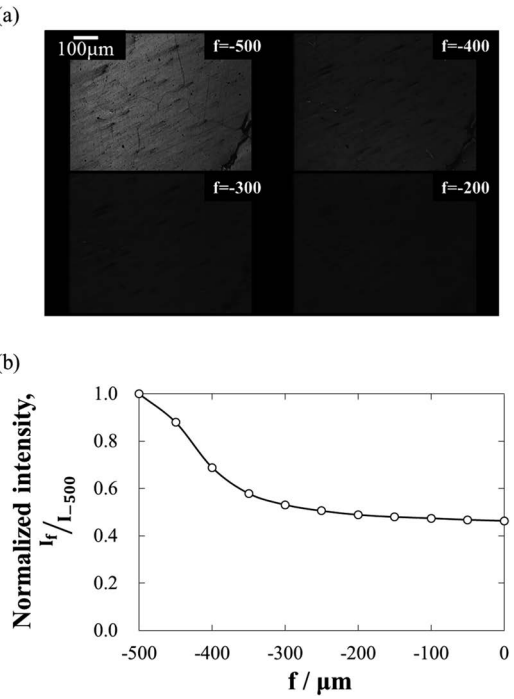


Fig. B4　(a) The laser micrographs of pure Ag under various focal positions and (b) normalized intensity of experimentally observed images as a function of focal positions "f" estimated by ImageJ software.

で規格化を行った．焦点位置 f が試験片表面(f = −500 $\mu$m)から離れるに伴い規格化 Intensity は減少し，観察像は暗く且つ得られる試験片表面の情報が減少することがわかる．Fig. B4 より，f = −300 $\mu$m，規格化 Intensity がおおよそ0.5以下で試験片表面の観察像がほとんど得られなくなることがわかる．Fig. A2(b)に示す計算より，屈折率比 $n_r/n_i$ が 1 に近い comb. 4 ($n_r/n_i$ = 0.98)では w = 459 $\mu$m において f = −300 $\mu$m となる．屈折率比が 1 に近い場合おおよそ w と x は等しいと近似できるため，この位置(w = 459 $\mu$m)は実際の観察像における像が徐々に暗くなる領域とよく一致する．したがって，これらが圧子の縁近傍で観察像が徐々に暗くなっていくことの原因である．