

低角度斜め面出し加工による界面の分析手法の開発

Development of interface analysis method using low-angle oblique surface polishing

材料技術部 分析・化学科 杉原輝俊

多層膜等の表層や界面の分析の有効な前処理法として、深さ方向へ斜めに研磨または切削して拡大露出する方法が知られている。本研究では、低角度で斜め方向に表層を削って界面を拡大露出し、広領域化させた分析面の作製手法を検討したので、その結果を報告する。この結果、イオンミリングを用いた斜め研磨による界面拡大に成功し、湿式研磨法との比較を行った。また、SAICASによる斜め切削面についても検討した。

Key words: 斜め研磨、斜め切削、薄膜

1. 緒言

工業製品の開発において、成膜や劣化試験後の表層や埋もれた界面の化学的構造や結合状態を分析するニーズは多い。しかし、非常に薄く多層を成す表面～界面の分析は一般的に容易ではない。破壊的な手法でアプローチする場合、必要な分析領域を確保しながら、本来の状態が保たれる方法であるか十分に検討する必要がある。試料表面から内部への深さ方向分析は、先端デバイスや先端材料の分析において重要な役割を占めている^[1]。例えば、界面へのアプローチには断面出しや研磨が最も一般的である。非常に薄い層及びその界面を観察または化学分析する場合、断面研磨の発展的手法として、「斜め研磨」が用いられる場合もある。これは研磨機等により、試料観察面を斜めに傾けて研磨することで、界面を拡大露出及び広領域化させる手法である。この「斜め研磨」によって拡大露出させた面の観察や分析は、従来から報告されているが^{[1]~[5]}、異なる試料について同じような拡大露出面を作製するのは容易ではないと考えられる。しかしながら、試料面へのダメージや材質に応じた注意点をまとめた参考文献は見当たらない。そこで、本研究では各手法で低角度に斜め方向へ表層を削って界面を拡大露出させた分析面の作製手法を検討するとともに、それらの界面を分析評価したので報告する。

2. 実験

2. 1. 試験片の作製

斜め研磨に用いる試験片は、ガラス基板上にスパッタリングを重ねることによって金属薄膜を積層させたものを用いた。図1に試験片作製の様子を示す。当所保有のRFスパッタ装置(株)東栄科学産業 PT-4STD)を用い、顕微鏡観察用スライドガラス(ホウケイ酸ガラス)に、まずクロム層を成膜し、続いて銅層を成膜した。これら金属薄膜層を断面観察により、ガラス上にはクロムが150[nm]、銅が350[nm]程度の厚みで均一に成膜されていることを確認した。こうして作製した

試験片を割断し、斜め研磨に供した。



図1 試験片の作製
(左: RFスパッタ装置 右: 作製した試験片)

2. 2. イオンミリングによる斜め研磨

まず、イオンミリング装置(株)日立ハイテック IM4000Plus)を用いて、アルゴンイオンビームによる斜め研磨法を検討した。図2にその様子を示す。イオンミリング装置は、真空チャンバー内で試料面に対してアルゴンイオンビームを照射する装置であり、一般的に試料観察面の平面加工や断面加工のために使用される。今回は平面加工用のセッティングを応用して斜め研磨を行った。通常の手順では、ある程度の面積に対してイオンビームで均一にスパッタエッチングしながら少しずつ表層を除去するような操作を行う。これはイオン銃に対して試料を一定角度に傾け、イオンビームを試料へ斜めに照射しながら試料の回転やスイングも行うというものである。今回はこの回転機構を使用せず、偏心させた試料に対して一方向からイオンビームを照射することとした。まずはイオン銃の加速電圧や試料の角度(イオンビーム入射角度)等を検討し、今回の最適条件で分析試料の斜め研磨を行った。本検討において、イオン銃の引出電圧は1.5[kV]、アルゴンガス流量は0.08[cm³/min]、加工時間は5分とした。

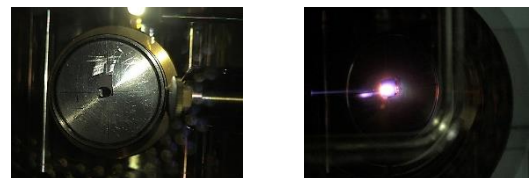


図2 イオンミリング装置を用いた斜め研磨の様子
(左: 試料の設置 右: ビームの照射)

2. 3. 湿式研磨による斜め研磨

湿式研磨による斜め研磨は、自動研磨装置（ITW ジャパン（株） エコメット+オートメット）を用いて行った。一般的に、斜め研磨は機械研磨で行われている。例えば、試料を角度可変ホルダーに固定して上面から低荷重を加えて斜め研磨を行う方法が最も容易と考えられる。しかし、当所の装置はそういった機能を備えていないため、回転研磨盤に対して、研磨ヘッドを使用せずに手で保持して研磨することになるが、こうした手研磨では研磨時の荷重やバフに当てる角度やタイミングに熟練を要する。また、予め試料の樹脂包埋をする方法も考えられる。樹脂包埋試料は樹脂の硬化前に上手く調整できれば、角度の固定が容易であるが、包埋している樹脂が観察や分析の妨げになってしまうこともある。そこで、今回は以下のような手法で研磨を行った。

今回の斜め研磨の模式図を図3に示す。まず、予めエポキシ樹脂を成形して平滑な面を出した円柱を用意し、この平面の中心にサンプルを固定した。固定にはサリチル酸フェニル（融点44度）を用いた。固定後には試料面の後ろ半分に粘着力の弱い試料保護テープを貼り付け、この上に直径約0.3[mm]のワイヤを添え、更に上からセロハンテープで固定した。荷重は一定に制御できないものの、ワイヤを支点とする本法ではバフへの沈み込みを考慮してもある程度は研磨角度を一定にできるものと考えた。また、固定に使用する接着剤を工夫することで、研磨後の樹脂汚れを低減することを目指した。研磨剤は多結晶ダイヤモンドサスペンションとコロイダルシリカを用い、研磨剤に合ったバフを使用しながら短時間で一方向から斜め研磨を行った。本来であれば、研磨面を回転させる等しながら小傷が消えるまで丁寧に研磨した方が綺麗な研磨面になる。しかし、研磨中に観察・分析箇所を通り過ぎる、薄膜の剥離や汚染が発生するといった恐れがあったため、今回はこのような形で研磨を行った。研磨直後に中性洗剤と水道水で汚れを洗い流し、99.5[%]エタノール（富士フィルム和光純薬（株））で超音波洗浄を数分行った後にデシケータ中で保管した。

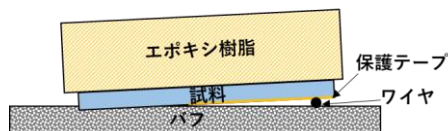


図3 湿式研磨による斜め研磨 模式図

2. 4. 低角度斜め切削

表面切削装置（ダイプラ・ウインタス（株） SAICAS EN型 以下、SAICAS）は本来薄膜等の密着度を評価する装置であるが、速度を精密に制御しながら低角度に切削する特徴を活かし、分析の前処理として使用され

る例が報告されている^{[6][7]}。今回は当所のSAICASを用いて、樹脂の低角度斜め切削を行った。図4に切削イメージを示す。試験片は市販のポリエチレンテレフタレート（PET）シート（厚み200[μm]）を用いた。このシートに対してSAICASの切刃（人工ダイヤモンド製、すくい角20度、にげ角10度）を用い、水平速度1[μm/sec]、垂直速度0.1[μm/sec]で切削した。併せて、実際に即した例として、3層の塗膜をもつ樹脂板についても同様に斜め切削を行った。この試料はアクリル樹脂板にシルバーメタリック塗装、カラークリアー、つや消しトップコート順に吹き付け塗装を行って作製した。

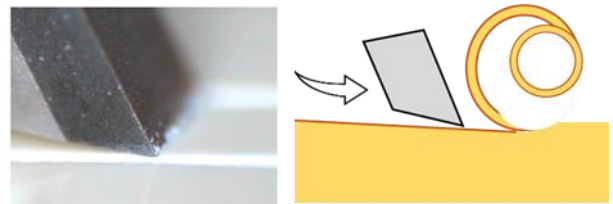


図4 SAICASの切削イメージ

2. 5. 斜め面出し加工した界面の評価

本研究における斜め研磨面の評価方法を表1に示す。斜め研磨面の光学顕微鏡観察は、デジタルマイクロスコープ（（株）ハイロックス RH-2000）を用いた。走査型電子顕微鏡観察（以下、SEM）は、走査型電子顕微鏡（（株）日立ハイテクノロジーズ SU1510）を用いた。SEMでは二次電子像と反射電子像を取得し、表面形態や組成分布情報を得た。また、一部EDSポイント分析を行った。更に、形態情報をマイクロ～ナノスケールで捉えるため、走査型プローブ顕微鏡（パークシステムズジャパン（株）XE7）による原子間力顕微鏡観察（AFM）を3[μm]角の視野で行った。今回の検討では、ノンコンタクトモードで表面形状像を取得した。また、各層最表面の元素分析及び状態分析は、X線光電子分光分析（XPS）装置（サーモフィッシャーサイエンティフィック（株）K-Alpha）で行った。各測定は、長径50μm程度のX線スポットを用いた。

表1 斜め研磨面の評価手法

手法	目的
光学観察	各層の面出し状況の確認
SEM	各層の面出し状況や表面形態等の観察
AFM	各層の表面微細形態の観察
XPS	各層の表面分析および表面汚染等の確認

3. 結果及び考察

3. 1. 各手法による低角度斜め研磨

3. 1. 1. イオンミリングによる斜め研磨

本手法では、イオンビーム照射点の中心から外側へ広がるように低角度に積層界面が拡大露出された。照射点中央から離れるほどスパッタエッチングされにくくなるため、照射点の中心が最下層（基材側）となり、その周辺へ広がるように徐々にエッチングされたような形態となった。

イオン銃の加速電圧は、基本的に試料の材質、加工面の荒れや熱ダメージ、加工時間といったことを考慮して決定する必要がある。今回の検討で加速電圧を変えて試行したところ、高加速電圧ほどイオンビームが細く収束しやすくなるため、より短時間かつ高角度の斜め研磨となった。また、イオンビーム入射角度を変えながら斜め研磨を検討した結果、加工範囲や試料面の拡大状況も異なった。これはアルゴンイオンビームの当たり方が異なるためと考えられた。加工範囲や拡大倍率（表出幅/膜厚）等を検討した結果、研磨面の評価で用いた試料は全て設定加速電圧 3[kV]、イオンビーム照射角を 60 度とした。

イオンミリングによる斜め研磨の評価用試料を光学顕微鏡観察した結果を図 5 に示す。結果として、研磨面には明確な研磨痕や界面のダレ等は無く、平滑に斜め研磨されていた。例えば、クロム層では約 1~2[mm] 以上の拡大露出を確認した。概算では、断面観察の結果から約 6,000~13,000 倍に拡大されたことが分かった。なお、材質によりスパッタレートは異なるため、厳密には各層の傾斜角度等は同一ではないと考えられた。ただし、同じ試料を同一条件で複数回試行したところ、完全に同一の界面拡大はできなかった。その理由は、元来イオンミリング装置は位置的な精密さは求められておらず、イオンビームの照射点中心や試料の位置関係を厳密に合わせこむことが難しいためである。しかしながら、本研究では界面の拡大を目的としているため、問題はないと判断した。

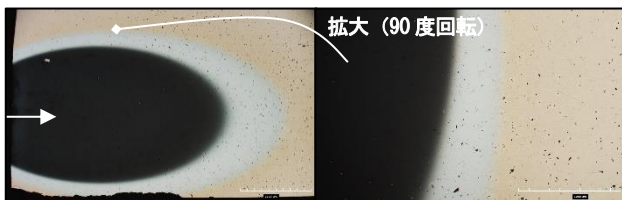


図 5 イオンミリングによる斜め研磨後の試験片
矢印はビーム照射方向

この拡大露出した各層及びその界面について、SEM で観察した結果を図 6 と図 7 に示す。反射電子像では、ガラス、クロム、銅の層がそれぞれ確認できた。ただ

し、特にクロム層とガラスとの界面付近では、層の薄さから電子線が下まで透過し、ガラス基板の情報が重なって見えている可能性があった。

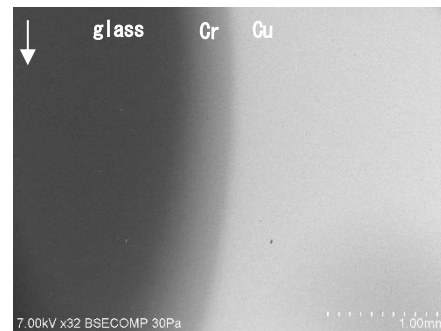


図 6 イオンミリングによる斜め研磨面の反射電子像
(低真空雰囲気で観察)
矢印はビーム照射方向を示す

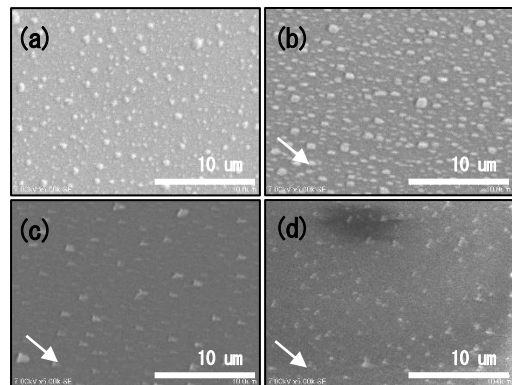


図 7 イオンミリングによる斜め研磨面の二次電子像
a. 銅層表面（非照射面）、b. 銅層とクロム層の界面付近、
c. クロム層、d. ガラス基板
矢印はビーム照射方向を示す

光学顕微鏡観察や SEM の反射電子像観察では、斜め研磨面は広く平滑で、目立った表面汚染等も見受けられなかった。一方で、二次電子像で各層及び界面の表面形態観察を行うと、イオンビーム照射の影響で形成したと考えられる微小構造が多く見られた。例えば、銅層とクロム層の界面付近では方向性を持って削られた銅の粒子が見られ（図 7 b）、ガラス基板にはガラスの非対称な突起が確認された（図 7 d）。これらはイオンビームの照射方向に従っているものと推測された。

図 8 に AFM で取得した表面形状像を示す。AFM では、SEM より微小な形態（スパッタ粒子等）も観察された。銅層やクロム層表面ではスパッタ粒子の酸化物と推定されるナノオーダーの微粒子が確認され、本法によって研磨ダレ等なく露出できたものと考えられた。また、SEM と同様に、方向性を持った比較的大きな構造が確認された。これらは一定方向から照射したイオンビー

ムによるリデポジション及びアーティファクトと考えられた。

なお、SEM では薄く拡大露出したクロム層内 (図 7 c) に電子線が透過し、下地ガラス由来のコントラストや形態の情報 (図 7 d) が重なっているように見えたが、AFM においてもクロムのスパッタ粒子にしては比較的大きい約 1[μm]幅の微小構造が確認された。こちらもイオンビームによるリデポジションと考えられた。

続いて、XPS で表面分析をしたところ、最表面に有機物やガラス粉による顕著な汚染等は見られなかった。これは SEM 観察の結果と同様だった。ただし、クロム層表面では試料やその分析点により、Si、Na、Ca 由来の光電子スペクトルが検出されることがあった。これはイオンビーム照射の上流側にあるガラスのリデポジションなのか、微視的にクロム層とガラスが混在して露出している部位が存在するのか、現時点では区別がつかなかった。また、成膜由来か、拡散か不明だが、クロム層では明確に Cu 由来の光電子スペクトルが見られた。なお、イオンミリング後に大気中で保管していたため、銅層やクロム層の最表面には一様に酸化物が生成していた。

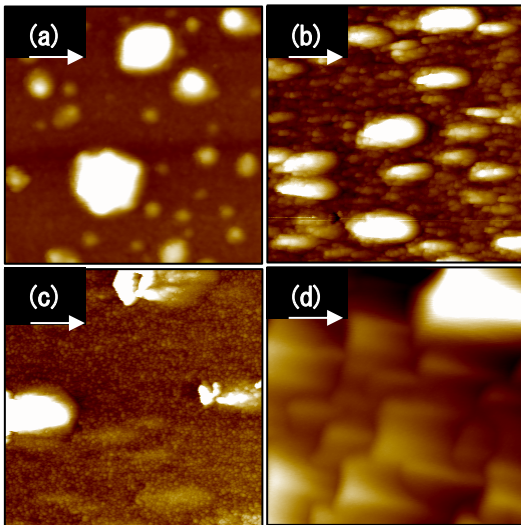


図 8 AFM で取得した表面形状像 (一辺 3[μm])

a. 銅層表面 (非照射面)、b. 銅層とクロム層の界面付近、
c. クロム層、d. ガラス基板 矢印はビーム照射方向

3. 1. 2. 湿式研磨による斜め研磨

湿式研磨によって作製した斜め研磨面の光学顕微鏡観察写真を図 9 に示す。この方法では概算で 1,500 倍程度の拡大露出になった。複数回試行した結果、手で優しく均等に荷重をかけてバフに当てることができれば、均等な幅の斜め研磨面を作製することが可能と分かった。今回設置したワイヤを支点にすることで、バフに接するタイミングも捉えやすかった。光学顕微鏡観察すると、斜め研磨面には研磨盤の回転方向に研磨

痕が多数確認された。このことから、湿式研磨法では、やはり研磨剤や荷重といった研磨条件を詳細に検討する必要があると分かった。ただし、今回の試験片の金属薄膜は、傷つきやすい材質あるいは膜質であった可能性が高い。



図 9 湿式研磨による斜め研磨後の試験片
矢印は研磨盤の回転方向

図 10、11 に SEM の反射電子像及び二次電子像を示す。光学顕微鏡観察と同様に、SEM でも銅及びクロム層が明瞭に観察された。今回の検討においては、イオンミリング法よりも拡大倍率が小さい斜め研磨面であり、反射電子像のコントラストも鮮明だった。したがって、イオンミリング法に比べ、各層が厚めに拡大露出されているものと推定された。研磨面内の形態は、ほぼ全て研磨痕のみであると考えられた。

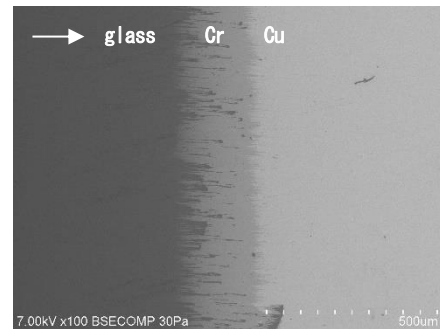


図 10 湿式研磨による斜め研磨面の反射電子像
(低真空雰囲気観察) 矢印は研磨盤の回転方向

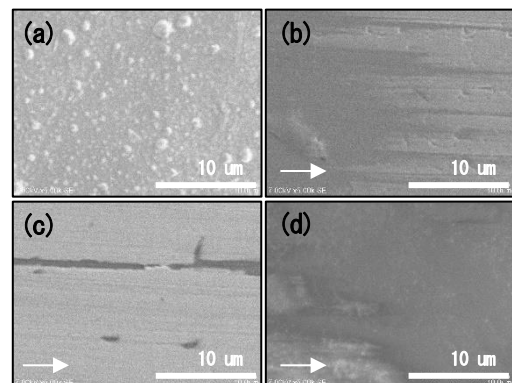


図 11 湿式研磨による斜め研磨面の二次電子像
a. 銅層表面 (非研磨面)、b. 銅層とクロム層の界面付近、
c. クロム層、d. ガラス基板
矢印は研磨盤の回転方向

AFM で表面形態の観察をした結果を図 1 2 に示す。SEM と同様に研磨痕が支配的であった。加えて、微小な粒子が大小に凝集した状態で表面を覆っていることが分かった。これは研磨時に付着し、洗浄しきれなかったシリカ等の微粒子と考えられた。

XPS では、研磨面の全体に Si、Na、Ca が確認された。AFM の結果も踏まえると、やはり研磨剤やガラス基板由来の汚染と考えられた。また、イオンミリング法と同様、クロム層で明確に銅が確認された。

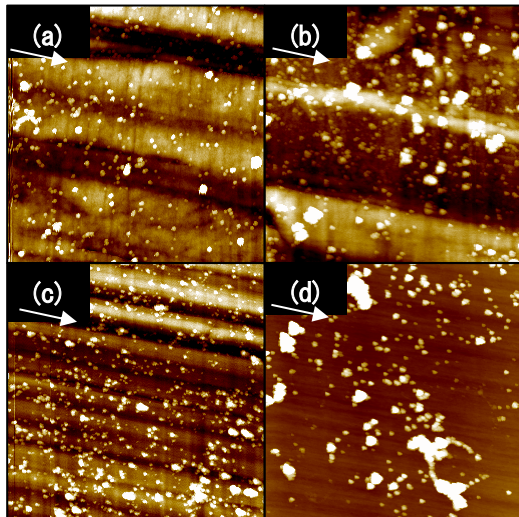


図 1 2 AFM で取得した表面形状像（一辺 3[um]）
a. 銅層（研磨面）、b. 銅層とクロム層の界面付近、
c. クロム層、d. ガラス基板
矢印は研磨盤の回転方向

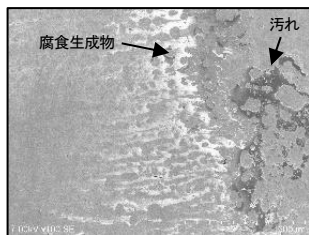


図 1 3 斜め研磨（湿式研磨）後の銅表面 二次電子像

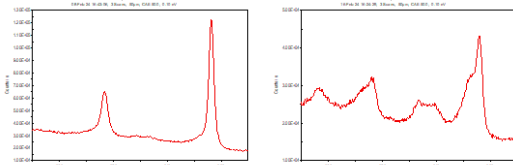


図 1 4 非研磨面の Cu2p スペクトル
（左：イオンミリング法、右：湿式研磨法）

湿式研磨後の試料表面には際立った変色は視認できなかったが、光学顕微鏡観察を行うと、特に研磨面後方の銅表面には汚れのようなものが見られた。この部分の SEM や XPS の分析結果を図 1 3、図 1 4 に示す。一部は有機物の汚れであったが、主に銅の腐食生成物である塩基性炭酸銅^[8] $[\text{Cu}_3\text{CO}_3(\text{OH})_4]$ と推定された。なお、XPS 表面分析結果により、研磨面を含めた銅層の表面全体が同様の化学状態と分かった。したがって、化学分析に供する試料では洗浄や保管方法も十分な検討を要すると分かった。

3. 2. 各手法による低角度斜め研磨面の比較

3. 2. 1. 斜め研磨の拡大露出面

イオンミリング法と湿式研磨法による斜め研磨手法の比較を図 1 5 に示す。イオンミリング法の方が、湿式研磨法よりも平滑に高拡大倍率の斜め面出しが可能であると分かった。通常イオンミリングと同様、表面分析に適した平滑な面が作製でき、本来の構造を反映した観察が可能と考えられた。ただし、図 5 のとおり小さな楕円形の外側に広がるようにエッチングされ、部位によって拡大倍率も異なるため、この広がりを考慮してビーム照射位置を決める必要がある。また、イオンビームによるアーティファクト等に注意を要する。

一方、湿式研磨法は、工夫と熟練次第で適用可能性が広がる手法と考えられた。ただし、材質や膜厚によっては、研磨面が傷つきやすいため、試料への荷重やバフへの接触角度の調整が大きな難点となる。今回はワイヤを下に設置し、バフへの接触角度及び面積を調整することで試料面を作製することができた。更に小さな直径のワイヤを用いるか、加工部とワイヤ間の距離を調整することで、界面をより大きく表出できる可能性がある。

対象となる試料のサイズは、イオンミリング法の場合、直径 50[mm] 程度まで検討可能である。イオンビーム照射条件により、加工範囲に 2~10[mm] 以上の広がりが出てしまうものの、ある程度狙った位置に斜め研磨が可能と分かった。一方、湿式研磨法の場合は、加工対象の試料は剛直で加工面が平滑でなければならない。また、水または油中で状態が変化する可能性のある試料、柔らかく伸びやすい試料又は硬くて脆い試料は難しいと考えられた。

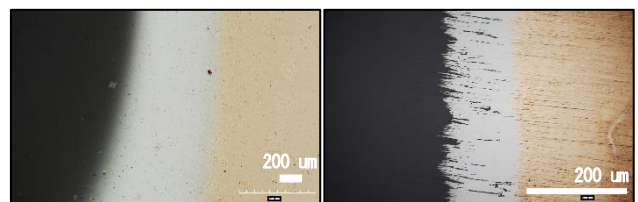


図 1 5 各手法で作製した低角度斜め研磨面の比較
（左：イオンミリング法、右：湿式研磨法）

3. 2. 2. 研磨面の荒れ

イオンリング法と湿式研磨法の斜め研磨面では、研磨痕に由来する表面の凹凸に明確な差が見られた。今回の検討で拡大露出されたクロム層表面を AFM で測定したところ、付着物等のない 1[μm]角の領域において、イオンリング法では Ra 3[nm]、湿式研磨法では Ra 7[nm]程度であった。ただし、前者は図 8 (c)のように高さ 100[nm]以下の凸部が散見され、後者は微小領域の平坦部でも研磨痕によって高低差 70[nm]程度の規則的な形態や大きなうねりが存在し、確かな面粗度の評価は困難だった。一般的に電子線や X 線といったプローブの侵入深さや信号強度は表面粗さに影響される。測定に十分な信号強度を得るには、表面粗さがプローブサイズより十分小さくなくてはならない。したがって、微量元素を対象にする場合や定量的な数値を計算するには可能な限り平滑であることが望ましい。例えば、SEM は加速電圧や真空度等によって電子線の収束径は変化するが、タングステンフィラメントの汎用 SEM で数十[nm]程度と言われる^[9]。また、今回の XPS では長径 50[μm]程の X 線スポットを用いた。したがって、今回の湿式研磨による斜め研磨試料でも、観察や定性分析は十分に可能である。なお、特に XPS では研磨面で得られたスペクトル強度が非研磨面と比較して半分程に低下した点が気になった。これはどちらの手法でも同様であった。今回の検討回数では統計的に判断できず、試料の固定方向等も検討すべきところだが、研磨による面の荒れが影響しているものと推定している。

3. 2. 3. 研磨面の汚染

イオンリング法では試料面内での飛散やハンドリングに注意する必要があるが、外来の表面汚染や変質は生じないと分かった。一方で、水を使用した湿式研磨法では、水や研磨剤による表面汚染や変質に注意する必要がある。両手法には、研磨面への研磨剤の残留、銅表面の腐食といった点で差異が見られた。斜め研磨面で拡大露出させた内在層やその界面に対して、表面分析的な手法でアプローチする場合、こうした表面の汚染や変質に十分注意を払う必要があると考えられる。

なお、観察や分析手法の選択によっては、表面汚染等の影響を受けにくい可能性がある。例えば、AFM (図 1 2) では全面に付着物の影響を受けたが、AFM より空間分解能の劣る光学顕微鏡 (図 9) や SEM (図 1 0 や 図 1 1) ではこのような付着物を気にせずに観察できていた。表面敏感な XPS では表面汚染や変質によって分析に支障をきたしたが、SEM-EDS では問題にならなかった。図 1 4 に示したように XPS ではスペクトル形状が変化した分析点付近でも、SEM-EDS 分析では CuK α 線以外の情報は得られなかった。また、図 6 に示した部位では、EDS 分析に適した加速電圧下の観察では下

地のガラスの情報が重なり、拡大露出で薄くなったクロム層を認識できなかった。調査の目的や粒度に応じ、「情報深さ」を考慮した適切な分析手法を選択すべきと考えられた。

3. 3. SAICAS による低角度斜め切削面の評価

図 1 6 に PET シートを斜め切削した様子を、図 1 7 に切削面の表面観察を行った結果を示す。この切削面を SEM 観察したところ、研磨面の顕著なダレや荒れは見られなかった。また、AFM では一定周期に高低差 30[nm]程度の筋が確認されたが、非常に平滑に切削できていると分かった。

また、塗膜の斜め切削加工を行い、SEM で観察した結果を図 1 8 に示す。トップコートから下地樹脂板まで、ダレや欠けの少ない切削面が得られたことが分かった。このことから、SAICAS では樹脂等で構成される多層膜の界面拡大が可能であると確認された。今後は、複数回連続で斜め切削した際の切削面の汚染や荒れについて検討する予定である。

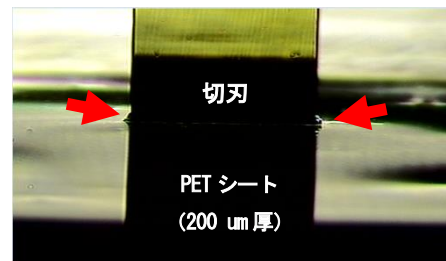


図 1 6 SAICAS 試験の様子

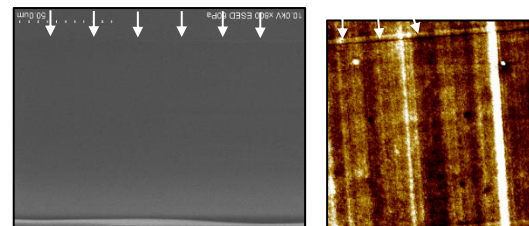


図 1 7 SAICAS 試験後の斜め切削面
(左: SEM 観察、右: AFM 観察)

白矢印は切り込み開始位置及び切削方向

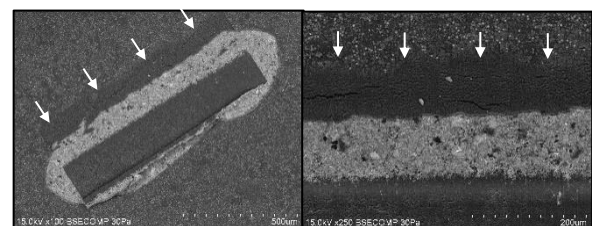


図 1 8 塗膜の斜め切削面 反射電子像
白矢印は切削方向

4. 結言

本研究では、以下の知見を得た。

イオンミリングによる低角度斜め研磨の検討では、簡便かつ清浄に約 10,000 倍の拡大露出を行うことに成功した。ただし、表面の構造解析に当たっては、アルゴンイオンビームの照射に伴う影響に十分注意する必要がある。

湿式研磨による低角度斜め研磨は均等な面出しが可能であるものの、作業者に経験や工夫を要するものと考えられた。また、材質によっては傷や腐食等に注意する必要がある。

SAICAS による樹脂表面の低角度斜め切削では、比較的平滑な切削面を作製できることが分かった。

参考文献

- 1) 石田英之. 表面・微小部の分析技術の最近の進歩と今後の課題. *Panasonic Technical Journal*. 2013, vol.59, No.1. pp.45-50.
- 2) 江端潔, 松田丈, 他. 破砕層評価に基づく石英ガラスと高密度セラミックスの低損傷研削. 山形県工業技術センター報告. 2013, No.45, pp.5-10.
- 3) 若林忠男. X線マイクロアナリシス. *材料と環境*. 1992, 41, pp.764-773.
- 4) 中島信一, 三谷武志, 他. ラマン散乱分光法によるシリコンのひずみ・応力評価. *応用物理*. 2006, 第75巻, 第10号, pp.1224-1231.
- 5) Hiroyuki Yamane, et al. Physical and chemical imaging of adhesive interfaces with soft X-rays. *Communications Materials*. 2021, volume2, No. 63.
- 6) Naoto Nagai. Depth Profile Analysis by Infrared Spectroscopy. *ANALYTICAL SCIENCES*. 2001, vol.17.
- 7) 低角斜め切削法による中間薄膜層の組成分析. 山崎秀樹. *日本接着学会誌*. 2008, Vol.44, No.4, pp.124-131.
- 8) 藤井哲雄. 64の事例からわかる金属腐食の対策. 森北出版. 2016, p.46.
- 9) 徳永智春. 実学講座 金属材料実験の手引き 1. 組織観察 1-2 汎用走査型電子顕微鏡を用いた組織観察. までりあ. 2021, 第60巻, 第4号, pp.225-233.