



## 1. 組織観察

## 1-4 光学顕微鏡, SEM 観察のための試料の調整

高田尚記\*



## 1-4-1 はじめに

金属組織学という学問分野があるように金属系材料にとっては組織に関する知見を得ることが極めて重要です。その組織観察の際に不可欠な技術が、試料の形状調整と表面研磨技術です。どんな顕微鏡の達人でも、表面状態の劣悪な試料では意味のある組織観察はできません。本項では、光学顕微鏡や SEM を用いた組織観察時に必要となる試料形状の調整や研磨方法についての初歩を概説します。

## 1-4-2 試料形状の調整

## 1-4-2-1 試料ステージ駆動と対物レンズとの関係

組織観察が必要となる試料の大きさは、溶解・凝固させたようなインゴット状の大きなものから、僅かに合成できた微粒子状まで様々でしょう。ある程度の大きさを有する試料の場合には、観察に用いる顕微鏡のステージ範囲内となるように最終的な試料形状を決めてから以下に述べる切断加工を行います(図1参照)。特に、試料の高さ、試料表面の凸凹に配慮が必要です。例えば、光学顕微鏡の場合には、ステージ Z 軸の最大移動距離から作動距離(Working distance: WD)を差し引いた長さが、試料表面にピントを合わせられる最大高さとなります。WD は用いる対物レンズに依存しますので注意してください。SEM の場合には、取り扱い説明書などに試料高さの制限値が明記されていますので、確認しておきましょう。試料表面の凸凹については、平面であることが最適ですが、試料全面を平面状に加工できない場合もあります。光学顕微鏡では、対物レンズレボルバーの回転時に、横方向から直接視認できない SEM の場合には試料移動時に、接触の危険性が高くなります。いずれの場合にも、ステージの動きや対物レンズとの位置関係を事前に確認しておくことが必要です。ステージを最上位位置から下限位置まで移動させたり、XY 方向の最大値まで移動させたりしてみま

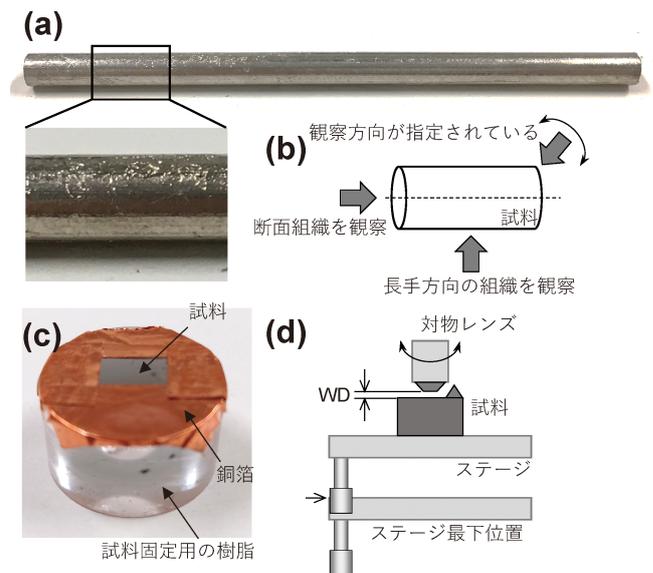


図1 試料のどの箇所を観察するのかを認識してから切断加工を行うことが必要です。

(a)は棒状の試料、(b)はその加工方向を模式的に示しています。例えば、(b)に示すように、長手方向に沿った組織変化を見るのであれば、その方向が表面に現れるように切断、研磨を行っていきます。特定の方向から組織を観察しないと、目的とする解析ができない場合もあります。この場合にはその方向が表面に現れるように傾けて切断し、研磨加工を行います。断面組織の場合、試料の内部ではなく、表面のごく近傍を観察したいときには、切断後、試料を樹脂に包埋してから研磨加工を行って表面近傍の組織を出していきます。樹脂包埋することで、研磨ダレも防げます。(c)は樹脂包埋した試料の一例です。SEM 観察を行う場合には、(c)に示すように導電性の高い Cu 箔で周囲を覆うと便利です。

試料の高さや、表面の凸凹は、例えば(d)に示す光学顕微鏡の場合、ステージを最も下げた位置から対物レンズ下端までの距離から、用いている対物レンズの WD の値を、差し引いた距離が試料の最大高さとなります。対物レンズを切り替えるレボルバー回転時に、レンズと試料表面が接触しないかも確認が必要です。

試料加工においては、最終的な形状を念頭において、部材から加工していくことが重要です。

\* 名古屋大学大学院工学研究科 物質プロセス工学専攻; 准教授

Keywords: optical microscope, scanning electron microscope, microstructure, sample preparation, polishing

(光学顕微鏡, 走査電子顕微鏡, 組織, 試料調整, 研磨)

2021年11月12日受理[doi:10.2320/materia.61.101]

しょう。SEM の場合には、これ以外にも、回転、傾斜機構もあります。特に傾斜については注意が必要です。ステージを動かすときには、ぜひ、くしゃくしゃにした小さなアルミホイルを置いて試してみてください。試料表面とステージ調整の関係や、レボルバーを回転させたときなどの状況がよく理解できますし、万が一の場合にも、対物レンズに対するダメージは高くありません。

#### 1-4-2-2 試料の大まかな形状調整<sup>(1)(2)</sup>

観察対象となる組織を考慮し、試料のどの箇所を観察すべきなのかについて十分検討してから、形状調整を始めましょう。インゴットであれば部材の表面近傍は避けるべきでしょうし、単結晶であれば切り出し方位を考慮しなくてはなりません。目的とする観察箇所が最終的に試料表面位置となるように、後述する研磨加工も含めて、形状の調整を行います。金属系材料の場合には、切断加工によって歪や変質層が現れます。このことを念頭において試料の加工法を選択します。

大型の部材から切り出すときには、バンドソー、ジグソー、金ノコなどが使えます。鉄鋼系の材料や硬度・強度に優れた合金の場合には、鉄鋼系の切断刃(工具材料)は適しません。アルミナなどの砥粒が含まれている回転刃を用いた切断機を用います。加工対象が薄板状の場合で、かつ、アルミニウム合金などのように切断しやすい場合には、カッター、強力ニッパー、糸ノコなどで手軽に切断することも可能です。1 mm 程度のアルミニウム合金の薄板であれば、カッターで十分切断可能です。ただし、これらのラフな切断方法を用いると、切断面近傍の加工変質層だけではなく、切断時に部材を曲げてしまったり、応力をかけてしまうことで生じる転位組織の変化や歪、相変態なども誘起されますので、留意ください。以下は、ラフな加工を経て 20 mm 程度にまで調整された試料の加工について説明します。この程度の大きさであれば、小型の切断機が適しています(図 2 参照)。この切断機は、回転刃を用いて、ステージ移動による強制で、もしくは、重力(調整用の重りも含めて)で、試料を切断刃に対して移動させて切り込んでいきます。回転刃(一般にブレードと呼ばれます)には、ブレード全体が刃として機能するもの、座金部分の外周部に砥粒が結着されているもの、また、切断に使用する砥粒が、ダイヤモンド、アルミナ、SiC、BN、など様々な種類が用意されています。研磨剤などを取り扱っているメーカーのカタログなどを確認すると、ブレードがどの材料に適しているかなど明記されていますので、ぜひ参考にしてください(Web で多数検索できます)。金属材料の場合には、ブレードが目詰まりしやすいため、ブレードのフラッシング(砥石のようなもの)を定期的に行います。ブレードの切断具合が劣化してきたからと言って、すぐにブレードを交換する必要はありません。小型棒状のフラッシング部材が用意されていますので、定期的はこの部材を切断することでブレードの切れ具合を良好に保つことができます。試料の固定は、ネジで絞めこんで固定する場合や、例えば、厚めのスライドガラスに専用樹脂を用いて試料を固定し、そのガラス

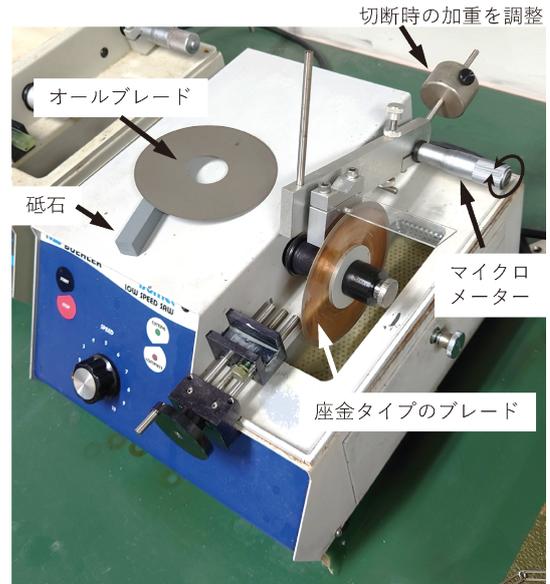


図 2 小型精密切断機の一例(ブレードとの位置関係を見えやすくするために、スライドガラスを取りつけている)。一度、スライドガラスを取りつけて少し切り込んでみると、切断位置を確認することができます。図中矢印で示した試料位置調整のためのマイクロメーターを動かす場合には、必ず、一定方向にのみ回転させていくようにして、試料を移動させます。

ごと切断する方法があります。切断する幅が決められている場合には、一度、試料端を切断して初期のブレード位置を決めてから、ブレード厚さ+指定の厚さ、だけ試料を移動させていきます。この時に、試料の位置駆動のためのマイクロメーターやハンドルは必ず一定方向へ動かす習慣をつけておきましょう。試料の移動中に回転方向を変える(反転させる)と、誤差が非常に大きくなります。切断できる試料厚さは、0.5 mm 程度が限界と考えてください。加工歪などを考慮すると、もっと厚めに切断して、その後は、後述する研磨加工で調整していくことを強く薦めます。

#### 1-4-2-3 その他の切断方法

前項で紹介した方法は、ごく一般的に使用されている切断加工方法でした。これ以外にも、より高度な切断方法が知られています。

- **ワイヤーソー**：加工変質層を低減できる方法として用いられます。回転する糸に砥粒を垂らして、その砥粒で切断していく方法です。細い領域を研磨しながら切断していくというイメージでしょうか。切断には時間を要しますが、例えば、上述したブレード回転型とは比較にならない程度まで、加工変質層を低減できます。ワイヤー切断機では、切断に使用する研磨砥粒の種類が加工変質層の程度に影響します。切断対象と用いる砥粒についてはメーカーで参考資料が用意されていますので、参照ください。

- **放電加工**：名称の通り、放電させながら切断していく設備です。ごく狭い範囲を放電させて溶解していきます。溶解させますので、切断面近傍には、溶解・急冷されたときの変質層が形成されます(回転刃での切削よりも変質層は大きく増加します)。ここまで述べた切断法での加工変質層への配慮

だけでなく、切断時の熱の影響もより広い範囲に及ぶ可能性があるので注意が必要です。類似の手法として、YAGや炭酸ガスレーザーなどを用いて、局所的に溶解させながら切断していく方法もあります。

- ・オシレーション切断：回転刃に対して試料が移動する切断機の場合には、切り込み量を小さくして、何度も試料を往復させて切り込み深さを増加させていくオシレーション切断法が利用できます。この方法を用いると、一回で切断させる場合と比較して、切断面の加工変質層を薄くすることが可能となる場合があります。

### 1-4-3 研磨

#### 1-4-3-1 機械研磨<sup>(2)</sup>

光学顕微鏡を用いた金属組織観察用の試料表面は、一般に粗研磨、精研磨、仕上げ研磨(一般にバフ研磨ということが多い)の工程を経て研磨されます。粗研磨や精研磨は、固定した研磨紙を用いて乾式もしくは水で濡らした湿式にて手で研磨するのが一般的です。研磨紙(エメリー紙と称されることが一般的です)は、紙の上にアルミナ系(または炭化ケイ素)の砥粒をバインダーに混ぜて塗り、固めた研磨紙のことを指します(砥粒は固定されているので固定砥粒となります)。研磨砥粒の大きさに従って分類されており、研磨紙の番号  $n$  は、砥粒の粒子径が  $25.4/n$  mm を意味しています。研磨紙番号が大きいほど砥粒が細かくなります。したがって、小さい番号のエメリー紙を用いて粗研磨を行い、徐々に大きい番号のエメリー紙に変えて精研磨していくことになります。その後、回転する研磨盤(バフと呼ばれる研磨布を敷いている場合が多い)の上に、金属試料を手で保持し、研磨剤を滴下(補充)しながら仕上げ研磨を行います。この研磨剤は含まれている粒子の大きさと分類され、数  $\mu\text{m}$  のものから徐々に微細な粒子のものに変えていきます。粒子の材質はアルミナ、ダイヤモンド、酸化ケイ素粒子(コロイダルシリカと呼ばれる水溶性懸濁液)など種々用意されています。研磨剤の適切な濃度や滴下量は材質だけでなく、研磨盤上のバフ布(布の柔らかさ、毛の長さ)によっても変化するため、その最適化には試行錯誤する必要があります。

試料を手で保持して研磨する場合、試料が研磨盤の回転に引っ張られて、持っていけない程度の力で保持しながら、研磨盤の中心から外周までの幅を有効に使って研磨するとよいと思います。試料の保持に過度の力を入れると、研磨面に傾きを生じ、平坦性が失われることによって研磨面が丸みを帯びること(しばしば「ダレる」と表現されます)がありますので、注意してください。順に砥粒の粒径を細かくしていく作業のことを、番手を変えていく、と表現したりします。精研磨時に、この番手を変えるときには、必ず、光学顕微鏡を用いて、研磨傷を確認していきましょう。一つ手前の研磨傷が残っている状態で、次の番手に移っても研磨時間が長くなるだけです。例えば、番手を変えるごとに試料を直角に持ち替えるようにすると、番手ごとの研磨傷の残りを確認しやすくなります。試料表面に観察される機械研磨で導入された傷

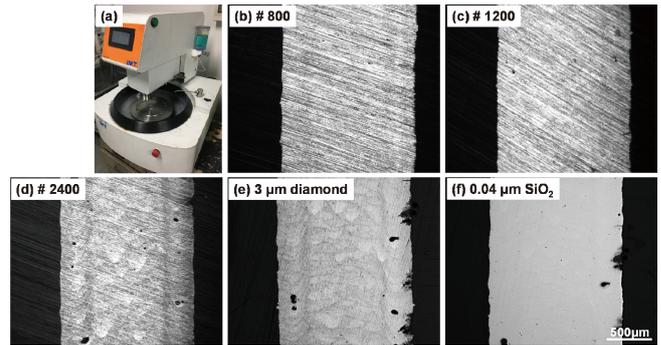


図3 アルミニウム合金の研磨面と研磨工程の一例。(a)自動回転研磨装置の外観、(b)800番エメリー紙、(c)1200番エメリー紙、(d)2400番エメリー紙、(e)粒子径  $3\mu\text{m}$  のダイヤモンド粒子を含む研磨剤、(f)粒子径  $0.04\mu\text{m}$  の二酸化ケイ素粒子を含む研磨剤  
研磨に用いる砥粒が細かくなるにつれて、線状の研磨傷がなくなっていくことが分かります。(f)のような研磨面状態を鏡面と呼びます。鏡面状態の表面は非常に平滑度が高いため、内部の組織は、このままでは観察できません。組織を現出させるための腐食(エッチング)が必要となります。

が全く見えなくなれば、研磨は終了です。図3に、研磨を行う人の技術の差が出ない自動回転研磨装置(図3(a))を用いたアルミニウム合金の試料表面の機械研磨に伴う研磨面状態の変化(光学顕微鏡像)を示します。エメリー紙の番号を800番から2400番に増やしていくと、研磨による試料表面の傷が徐々に細かくなり、金属組織に由来するコントラストが見えるようになってきます(図3(b)-(d))。更に微細な粒子の研磨剤を用いた仕上げ研磨後、機械研磨による傷が見えなくなる(しばしば「鏡面になる」と表現されます)のがわかります(図3(e), (f))。この「鏡面」状態では、光学顕微鏡を用いた組織形態の観察は困難です。そのため、機械研磨を施した試料表面に腐食(エッチング)処理を行い、試料表面に金属組織に由来する凹凸を付けた表面を観察します。腐食(エッチング)処理の条件は材料によって様々ですので、先行研究や他の専門書<sup>(3)-(5)</sup>を参考に自分の試料に適した条件を模索する必要があります。

#### 1-4-3-2 電解研磨

アルミニウムのような軟らかい金属では、上述したように切断加工や機械研磨によって試料表面に加工変質層が発生しやすいことが知られています。加工変質層は組織観察に影響するばかりではなく、例えば、試料表面近傍の結晶方位情報を取得する電子線後方散乱回折(EBSD)法を実施する場合などの表面に敏感な計測を行うときにも、しばしば問題となります。加工変質層の除去法の一つとして、試料表面の電解研磨が効果的です。この加工変質層の除去は、試料表面における局所的な力学特性を評価するナノインデンテーション試験<sup>(6)</sup>やマイクロ機械試験<sup>(7)(8)</sup>に供する場合も必須となるでしょう。

電解研磨を試料に施す前処理として、機械研磨による試料表面の「鏡面」仕上げは必ずしも必要ありません。最適化された条件での電解研磨は、試料表面を平坦にします。電解研磨装置の外観を図4(a)に示しますが、電流計と電圧計が付

### 1-4-3-3 イオン研磨

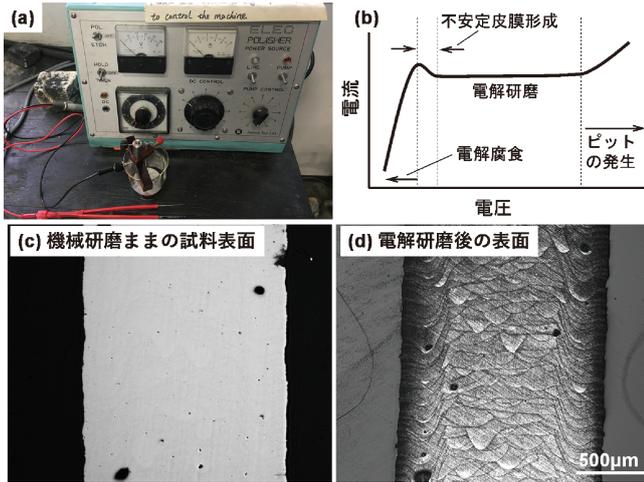


図4 (a)汎用の電解研磨装置の外観、(b)電解研磨時の電圧と電流の関係の模式図、(c)粒子径0.04 μmの二酸化ケイ素粒子を含む研磨剤で仕上げたアルミニウムの表面と(d)それに過塩素酸を用いた電解研磨を施した試料表面の光学顕微鏡組織写真

条件にも依存しますが、電解研磨時に慎重に電圧を高くしていくと、(b)に示すように電流が一定となる条件が現れます。一般的な電解研磨はこの条件の範囲内で行います。

いた直流電源装置とワイヤーにつながる陰極板、試料(試料表面は陽極となる)をつかむピンセットから成る単純な装置構成です。電解槽(多くの場合ビーカー)内に電解研磨溶液(材料によって研磨液は異なります)を入れ、陰極板と試料を溶液に浸し、通電します。その際、電圧を徐々に上昇させ、電流の変化を見ることが重要になります。最初は電圧を上げると、それに伴って電流値も上がります。この電流値が、試料表面から金属が溶けている量に依存する値です。更に電圧を上昇させていくと、電流が電圧の増加にかかわらず一定になる値が見つかります。この状態が良好な電解研磨の電流・電圧条件と一般に理解されています。図4(b)に、電解研磨時の電圧と電流の関係の模式図<sup>5)</sup>を示します。実際、著者も未知の材料の電解研磨の条件を探るとき、この電流一定の条件を見出すようにしています。一般の電解研磨は試料表面を平坦にしますが、いくつかの相から成る組織(複相組織)である場合、溶解速度の差を利用して試料表面に組織形態に由来する凹凸をつけることも可能です(図4(c), (d))。そのため、組織形態を反映した明瞭なコントラストを得ることが可能となり、美しい光学顕微鏡像を撮影することができます。図4(c), (d)で示した光学顕微鏡像は、金属3Dプリンタ技術のひとつであるレーザー粉末床溶融結合法で積層造形したAl-Si合金の組織形態<sup>9) (10)</sup>を示しています。レーザー照射による局所溶融・急冷凝固した溶融池(Melt pool)の形状が明瞭に観察されています。この溶融池境界近傍の比較的粗大なSi相が母相との凸凹を生み出し、コントラストを生み出しています。なお、電解研磨を施すと試料表面に機械研磨による研磨傷が現れてくることもあります(図4(d))(この理由は機械研磨時に生成した加工変質層に由来する金属の溶解速度の局所的な違いと思っていますが、正確な理由はわかりません)。電解研磨条件の最適化は慎重に決める必要があります。

硬い相と軟らかい相が混在する複相組織で構成される材料や全く異なる機械的特性を有する材料を組み合わせた複合材料などにおいて、均一に研磨された試料表面を作製するには、熟練の研磨技術が必要でした。近年、イオン研磨(イオンミリングと呼ばれます)技術は飛躍的な進歩を遂げ、複合材料や難加工材料においても、ほとんど物理的損傷等を伴うことなく試料表面を均一に研磨仕上げることが可能になっています。特に、金属材料の表面に硬質もしくは軟質材料がコーティングされているような試料の断面を観察する場合に有効です。コーティング材と母材の研磨特性が異なるため、機械研磨による平滑な試料表面の作製は機械研磨では実現できません。しかし、このイオン研磨技術の進歩はその問題を解決し、例えば著者の溶融アルミニウムめっき<sup>(11)</sup>や亜鉛めっき<sup>(12)</sup>鋼板の研究に不可欠な研磨技術となっています。

市販のイオン研磨装置であるクロスセクションポリッシャ<sup>(13)</sup>(日本電子株式会社、図5(a)参照)を例に挙げて、イオン研磨によるSEM観察用試料の作製方法を述べていきます。高真空下のチャンバー内にてアルゴンイオンビームを照射し、試料と同時に遮蔽板(シールドプレート)と呼ばれる試料を押しさえる板の断面を加工する装置です。加速電圧が可変なアルゴンイオンビームを用いて、試料断面表層部を比較的精密に加工することができ、平滑かつ加工変質層が極めて少ない試料表面を得ることができます。溶融アルミニウムめっき鋼板の断面観察を行うために、イオン研磨を施した試料のSEM

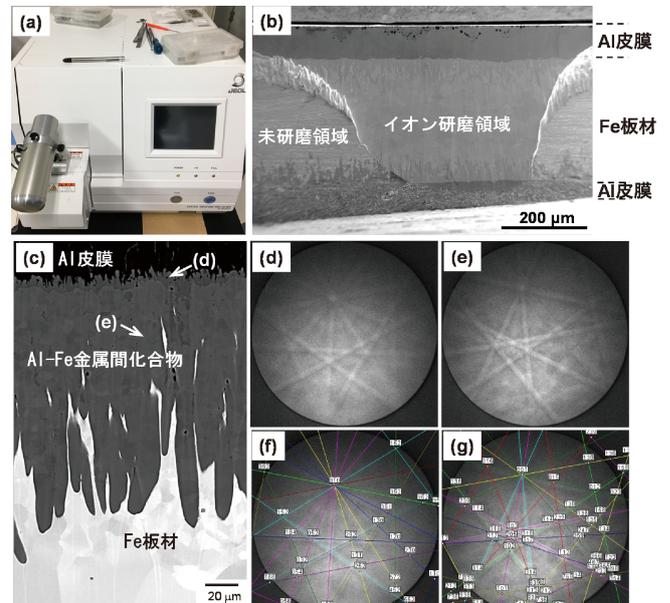


図5 (a)汎用SEMでの観察用試料調整に有用なイオン研磨装置の外観、イオン研磨によって加工された試料表面の、(b)低倍率、(c)高倍率のSEM像、および、(d)-(g)イオン研磨表面から取得したEBSDパターンと指数解析結果((d), (f)は(c)中に示した(d)の箇所、(e), (g)は(e)の箇所から取得)。(c)に示すように研磨が非常に困難なAlめっき皮膜と金属間化合物との界面近傍においても、(d)に示すような明瞭なEBSDパターンが得られている。

