透過型電子顕微鏡におけるモアレ縞

竹口雅樹^{1,*}・杉山直之^{1,2}¹ 物質・材料研究機構電子顕微鏡ステーション ☎ 305-0047 茨城県つくば市千現 1-2-1² 株式会社東レリサーチセンター ☎ 103-0023 東京都中央区日本橋本町 1-1-1
MTTLIFE 日本橋本町ビル

(2018 年 8 月 5 日受付；2018 年 10 月 5 日掲載決定)

Moire Fringes in Transmission Electron Microscopy

Masaki TAKEGUCHI^{1,*} and Naoyuki SUGIYAMA^{1,2}¹Transmission Electron Microscopy, National Institute for Materials Science, 1-2-1 Sengen, Tsukuba, Ibaraki 305-0047²Toray Research Center Inc., 1-1-1 Nihonbashi-honcho, Chuo-Ku, Tokyo 103-0023

(Received August 5, 2018 ; Accepted October 5, 2018)

Moire fringes are observed when two (or more) crystal lattices are interfered in transmission electron microscopy (TEM). Typical application is the evaluation of epitaxial films grown on a substrate, in where their crystallographic orientation relationship could be investigated. Visualization of defects distribution using Moire fringes are also useful. Sometimes Moire fringes between crystal and digital pixel lattices are intentionally formed to visualize a strain map. In the present paper, some of those applications are introduced.

KEYWORDS : transmission electron microscopy, Moire fringe, epitaxial film, defect, strain

1. はじめに

複数の縞パターンを重ね合わせた時、それらの周期のずれによって生じる縞模様をモアレ縞と呼ぶ。透過型電子顕微鏡法 (TEM) では、複数の結晶格子の干渉によってしばしばモアレ縞がみられる。これを利用して基板結晶上のエピタキシャル膜の方位関係や界面整合の評価にしばしば用いられる。また結晶内の欠陥など周囲の結晶格子と欠陥部分の結晶格子のずれによってもモアレ縞が生じるため、欠陥評価にも用いられる。また結晶内の歪や欠陥分布を容易に可視化するために参照格子をデジタルに作って重ね合わせる場合もある。走査型透過電子顕微鏡法 (STEM) の場合は電子ビーム走査間隔と結晶像との間でも周期や角度の違いに応じたモアレ縞が生じる。本論文では、これらの事例について簡単に紹介する。

2. 結晶格子像によるモアレ

Fig. 1 (a) は 2 種類の格子間隔 d_1 , d_2 の格子縞が平行に重なる場合、式 (1) で示される間隔 D のモアレ縞がこれらの格子と同じ方向に現れる。このようなモアレは平行モアレと呼ぶ。

$$D = d_1 d_2 / (d_1 - d_2) \quad (1)$$

一方、Fig. 1 (b) のように格子間隔 d が同じで、わずかに角度 θ だけ回転している場合、式 (2) で示されるモアレ縞が 2 つの格子縞の方向の鈍角の 2 等分線方向に現れる。このようなモアレは回転モアレと呼ぶ。

$$D = d / 2 \sin(\theta/2) \doteq d / \theta \quad (2)$$

また、格子間隔が異なり、回転もしている場合は、式 (3) のように上記 2 種類の混合として

$$D = d_1 d_2 / ((d_1 - d_2)^2 + d_1 d_2 \theta^2)^{0.5} \quad (3)$$

なる間隔のモアレ縞が現れる。

* E-mail : takeguchi.masaki@nims.go.jp

Fig. 1. (color online). (a) Parallel and (b) rotational moiré fringes.

Fig. 2. (a) TEM image of incommensurate manganese silicide islands on Si(111) and (b) a part of electron diffraction pattern from an area of (a).

3. 透過型電子顕微鏡におけるモアレ縞を応用した解析例

3.1 Si(111)上エピタキシャル成長 MnSi アイランドの観察例

Fig. 2 は、超高真空中で Si(111) 基板上に室温で Mn を平均膜厚 15 ML 蒸着した後、大気にさらすことなく超高真空透過型電子顕微鏡 JEM-2000VF に搬送し、TEM 内で 400℃ でのアニールを行うことによって形成されたシリサイド (MnSi) アイランドの明視野 TEM 像および電子線回折パターンの一部である¹⁾。MnSi は Si(111) 状にエピタキシャルに成長し、 $(111)_{\text{Si}} // (111)_{\text{MnSi}}$, $[-101]_{\text{Si}} // [-12-1]_{\text{MnSi}}$ なる方位関係を持つが、格子間隔がそれぞれ

Fig. 3. Concept of damage layer formation by ion irradiation.

0.193 nm, 0.186 nm とわずかに異なるため、このずれに伴うモアレ縞 (平行モアレ) が観察されている。小さい MnSi アイランドは平行モアレが 3 方向に観察されているが、大きい MnSi アイランドはモアレ縞が歪んでおり、上記のような方位関係に乱れが生じていることが分かる。このようにモアレ縞は TEM を用いた基板結晶上のエピタキシャル膜の方位関係や界面整合の評価法としてよく用いられる。なお、Si 基板部分にみえる縞は等厚干渉縞である。

3.2 FIB による加工ダメージの検出

TEM/STEM 観察のための薄膜試料作製に広く用いられている収束イオンビーム装置 (FIB) は、非常にスループット良く加工が行える反面、イオンビームの衝突による加工ダメージが生じて像にアーティファクトが生じることが問題視されていた (Fig. 3 参照, 現在は、低加

Fig. 4. TEM images of a damage layer of several semiconductor materials. (a)–(c) are taken from conventional TEM observation direction and (d)–(f) are vertical to them for detecting inside damage layer.

速加工や後処理により劇的に改善されてきた)。半導体材料の中では、Siでは主にこのダメージ層は非晶質化であるが、化合物半導体のような、低融点元素およびイオンビームに対するスパッタレートが大きく異なる元素が共存する材料では、熔融による再付着、結晶欠陥の生成などが認められ、TEM像の像質低下に対する影響が顕著である。

Fig. 4に加速電圧30 kVで加工したSi、GaAsおよびInPのTEM写真を示す。Siでは直径5 nm程度のやや海島状のコントラスト分布が観察されるのみだが、化合物半導体2種では様々な間隔・方向のモアレ縞が観察され、特にInPでは頻度が高いことがわかる。この材料間の差異を明らかにするために同一サンプルの断面方向からの観察を試みた。

この結果より、3サンプル共に結晶領域（左側の黒色領域）とダメージ層（右側のグレー色領域）の界面に比較的大きな凹凸が存在していることがわかる。一方、Siではダメージ層内は一様に非晶質化しているのみであるのに対し、GaAsでは表面に結晶欠陥が形成され、ダメージ層には格子縞が観察される領域（微結晶）が点在している。さらに、InPではほぼ全域にわたってランダムに格子縞が観察されており、GaAsよりも微結晶の密度が高いと言える。

上記のダメージ層の断面結果より、①Siで観察されたコントラスト分布は界面の凹凸を反映している、②GaAs、InPで観察されたモアレ縞はダメージ層内の微結晶の存在を反映しているといえる。

InPはInの融点が低く（約157℃）、さらにPが選択スパッタを受けやすいことが知られている。つまり、ダメージ層は熔融・再結晶化の過程が反映されている可能

性が高い。GaAsもInPほどではないが同様の現象を反映していると推測される。

ここでは半導体材料における事例を示したが、その他の結晶性材料についても、モアレ縞の有無がFIB等による加工ダメージの大小を判断する基準の一つになると言える。

3.3 GaN/SiC エピタキシャル構造におけるモアレ縞の観察

GaNは、その特性から光デバイスからパワーデバイスまで広く応用が期待される材料であるが、その他の化合物半導体のように良質で大口径の単結晶を作成することが難しく、通常は他の単結晶基板を用いてエピタキシャル成長膜として得られたものを用いる。他方、GaNの格子定数（ $a=0.318$ nm）に近く容易に単結晶基板が得られる材料がなく、現在はサファイアやSiCなどを基板に用いているが界面における格子ミスフィットに由来する貫通転位が高密度で生じ、良質な単結晶膜を得るのは現在でも困難である。

ここでは、4H-SiC基板（格子定数： $a=0.307$ nm）を用いて作成したGaN膜について、界面におけるエピタキシャル性を評価するためにモアレ縞を利用した結果を紹介する。

Fig. 5 (a)に、この試料の断面TEM写真を示す。基板とGaN膜界面を起点として表面方向に延びる黒線状のコントラストが多数観察されるがこれらは転位である。この構造の界面近傍を詳細に評価するため、界面を含む領域、および界面を含まないGaN膜領域をそれぞれサンプリングし、Plane-view観察を実施した。

界面を含む領域では、ほぼ正六角形状のコントラスト（**Fig. 5** (d) 参照）が観察される一方で、GaN膜内では線状のコントラストのみが観察される。後者は断面TEM像にも認められる転位のコントラストである。

電子回折パターンとの比較から、界面を含む領域で観察される格子状のコントラストは、GaNおよびSiCの{11-20}面に平行に出現していることが分かった。また、電子回折パターンにおいては、基本格子反射の近傍に高次の衛星反射が存在していることが確認されるが（**Fig. 5** (e)の右肩部に拡大図を示す）、これは電子の多重回折および基板／エピ膜間の格子定数・結晶方位の差異に起因するものである。この衛星反射が対物絞り内に含まれた状態で結像されたことで、今回のようなモアレ縞が可視化されている。

Fig. 6に高倍率での格子像観察結果を示す。この観察結果からも、六角格子状のモアレ縞と結晶格子面が90度（30度）回転していることがわかる。また、この観察サンプル内には、奥行き方向にGaN膜とSiC基板両

Fig. 5. TEM micrograph of GaN epitaxial film on 4H-SiC substrate. (a) Cross sectional image, (b) plane-view image taken from area including interface, (c) plane-view image taken from GaN film near interface, (d) enlarged image of central area of (b), (e) selected area electron diffraction pattern corresponding to (b).

Fig. 6. High-resolution TEM micrograph of inside of large hexagonal moiré fringe. (b) Corresponds to white square in (a).

者を含むが、モアレ縞の原因となっている格子面の僅かなずれは、この像中で確認することは困難である。

一連の観察結果より、今回観測されたモアレ縞は、その方位から SiC 基板と GaN 膜の僅かな結晶方位のずれによって生じた回転モアレが主成分と思われる。そこで基板／エピ膜間の回転角について、簡単な解析を実施してみた。

Fig. 7. (color online). (a) Scanning Moiré fringe image formed by interference between scanning grating and sample's lattice spacing and (b) inverse Fourier-filtered image of the area in red-rectangle in (a).

Fig. 6 (a) から、モアレ縞の間隔を見積もると約 15 nm となる。一方で、今回の系は、格子面間隔も異なり、かつ回転しているため、回転角の導出には、混合系である前出の式 (3) に代入し、GaN と SiC の (10-10) 面の格子面間隔 (GaN : 0.2754 nm, SiC : 0.2669 nm) を用いて計算すると、傾斜角 $\theta = 1.47^\circ$ と算出することができる。

このように、モアレ縞を利用することで、接合界面における基板とエピタキシャル膜の僅かな結晶方位のずれを算出することができる。

3.4 STEM Moiré 法による結晶性評価

これまで結晶同士の干渉によるモアレ縞の例を紹介してきたが、ここでは結晶 (格子縞) とデジタルな画素格子との干渉の応用例を紹介する。

Fig. 7 (a) は、サファイア基板上に成長させた AlN 膜の断面試料を円環暗視野 (High angle annular dark field ; HAADF) STEM により観察したものである。観察する結晶の格子間隔に近い走査間隔になるように倍率を調整することで、STEM の電子ビーム走査間隔と結晶像との間の周期や角度の違いに応じたモアレ縞が生じるが、この場合は、サファイアおよび AlN の C 面を走査方向と概ね平行にしており、平行モアレが観察されている。サファイア基板部分ではモアレ縞は歪なく水平方向に平行に並んでいる。Fig. 7 (b) は (a) の赤枠内の逆 FFT 像であり、モアレ縞を明瞭化している。これにより AlN 膜内において欠陥における歪の状況が良くわかる。このように STEM 画像のみならず TEM 画像でも格子像を何らかの参照縞を干渉させることで歪を容易に可視化することが可能となるので、半導体デバイスの歪や成長膜の欠陥分布の評価に有力なツールとして用いられている^{2, 3)}。

4. ま と め

透過型電子顕微鏡において、モアレ縞を使った応用例をいくつか紹介した。歪や欠陥は低空間周波数な対象であるため、高空間周波数である結晶格子そのものを使うよりもモアレ縞を使ったほうが広範囲にわたる歪や欠陥分布を精度よく評価できる。そのため、結晶同士のモアレ縞を有効に利用してきたが、最近ではデジタルな処理が容易になってきたため、結晶格子縞とデジタルな画素格子との干渉をコンピューター上で形成し、可視化することも行われるようになってきている。

文 献

- 1) Q. Zhang, M. Takeguchi, M. Tanaka and K. Furuya : [J. Cryst. Growth](#) **237–239**, 1956 (2002).
- 2) S. Kim, S. Lee, Y. Oshima, Y. Kondo, E. Okunishi, N. Endo, J. Jung, G. Byun, S. Lee and K. Lee : [Appl. Phys. Lett.](#) **102**, 161604 (2013).
- 3) Q.H. Wang, S. Ri, H. Tsuda, M. Kodera, K. Suguro and N. Miyashita : [Nanotechnology](#) **28**, 455704 (2017).