

MerlinEM

Application Note

4D-STEM による透過型電子顕微鏡内での電磁場の測定

Key methods:

- Ptychography
- 4D-STEM
- Atomic resolution imaging

MerlinEM は、透過型電子顕微鏡用の高速電子計数ピクセル検出器です。そのダイナミックレンジ、耐放射線性、汎用性の高い読み出しシステムにより、科学研究のためのエキサイティングなツールとなっています。

MerlinEM は、スキャンの各ポイントで完全な回折パターンを取得する 4D-STEM カメラとして使用できます。4D-STEM イメージングの応用範囲は広く、明視野イメージング (BF)、高角度環状暗視野イメージング (HAADF)、環状明視野イメージング (ABF)、微分位相コントラスト (DPC) などの確立された手法が、後処理によって簡単に利用できます。タイコグラフィー、モーメントムトランスファーイメージング、パターンマッチングなどのエキサイティングな新技術は、MerlinEM のようなピクセル検出器による完全な回折情報へのアクセスなしでは実現できません。4D-STEM および MerlinEM データの解析には、さまざまなオープンソースソフトウェアが用意されています¹。

MerlinEM の主な仕様：ノイズレス読み出し、ダークカウントゼロ、1 ビット (18800fps)、6 ビット (3200fps) または 12 ビット (1600fps) イメージングでデッドタイムなし、30keV~300keV 動作、ピクセルサイズ 55×55µm、アクティブエリア 14 x 14 mm (256 x 256 ピクセル) または 28 x 28 mm (512 x 512 ピクセル)

LiberTEM <https://libertem.github.io/LiberTEM/index.html>
 HyperSpy <https://hyperspy.org/>
 pixelatedDPC <https://github.com/matkrj/pixelatedDPC>
 pixSTEM <https://pixstem.org/index.html>
 py4DSTEM <https://github.com/py4dstem/py4dstem>
 fpd <https://gitlab.com/fpdpy/fpd>

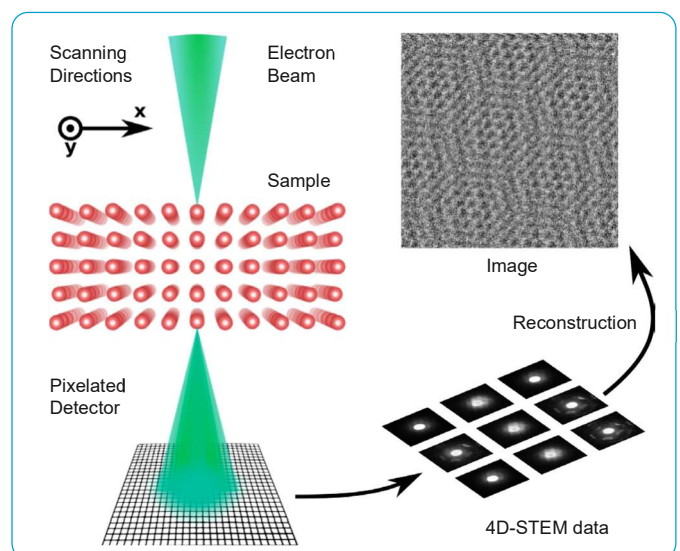


図 1：4D-STEM タイコグラフィーの概略図。
 ピクセル化された検出器で 4D データを取得し、得られた画像をコンピュータで再構成する。
 グラフェン二重層の再構成画像 (Christopher S. Allen 氏提供)。
 Allen, ePSIC, Diamond Light Source, Harwell Oxford, UK)



このノートでは、STEM による電磁場の定量的なイメージングについて紹介します。電磁界は 2 つの長さのスケールに分けることができます。

1. Nanobeam diffraction

回折したビームが重ならないナノビーム回折モードでは、ローレンツ力によって透過した電子が偏向します。

$$\mathbf{F} = -e\mathbf{E} - e(\mathbf{v} \times \mathbf{B}),$$

ここで、 e は電子の電荷、 E は電界、 v は電子の速度、 B は磁場を表します。透過した電子は、試料の厚さ方向に積分された運動量を得ます。

ここでは、磁場のイメージングに焦点を当てますが、基本的には PN 接合を持つバイアスされたサンプルなどの長距離電場の分析にも同じ手法を用いることができます。

磁場の場合、測定は電子軌道に垂直な磁場の成分に対して感度があります。大半の磁性体試料の計測では無磁場の状態で行わなければならない、そうしないと TEM の対物レンズが作る高磁場で試料の磁化が飽和してしまいます。試料中の磁場によって変化した運動量は、検出器上の中央のプローブ（ディスク）のシフトにつながり、これを定量的に測定することができます。

ディスクシフトの測定には、4 象限検出器と環状 4 象限検出器が確立された検出方法です。MerlinEM では、さまざまな信号解析が可能です。バーチャル DPC およびアナログ DPC 検出器を用いてデータを処理することで、迅速な解析が可能になりますが、スキャンの各ポイントで完全な回折情報を得られないという難点があります。完全な回折図形を収集するというアプローチの利点は、適切な検出器の形状とその中心を実験後に設定できることです。

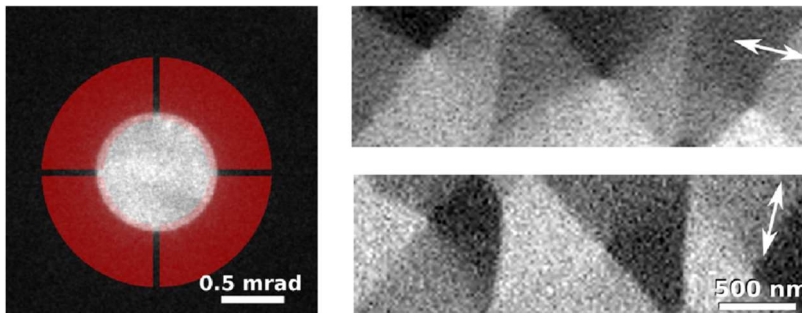


図 1: (左) 仮想 4 象限環状検出器を重ね合わせた回折パターンの画像。右) 左で指定した仮想検出器からのプローブシフトを解析した結果。試料は厚さ 8 nm の $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ 。2 つの画像は、ビームの直交する 2 つの偏向であり、矢印は磁場成分の向きを示している²。

MerlinEM は、高速取り込み、電子カウント、ノイズレス読み出しにより、ダイナミック TEM イメージングに最適なツールです。ポンププローブ実験では、100 ナノ秒以下のタイムスケールが報告されています³。6 ビットのダイナミックレンジで最大 2400fps の in-situ ダイナミックプロセスのイメージングが可能です。EM フィールドの場合、TEM をフレネルモード（デフォーカス照明）で使用し、高速フィールドダイナミクスをイメージングすることができます。MerlinEM はバイナリモードでも使用でき、最大 14400fps、70 μ s で各フレームを取得できます。

- 2 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ sample was made by Azzawi Sinan and Del Atkinson from University of Durham, UK.
- 3 Patterson G.W. et al, preprint <https://arxiv.org/abs/1905.11884>



4D-STEM データは、検出器上のパターンの質量中心 (CoM) の計算にも使用できます。この方法には、プローブのシフトが直線的に測定されるという利点があります。これは、パターンの中心の選択が重要で、ビームのシフトが一定の範囲内であればならない象限法とは異なります。

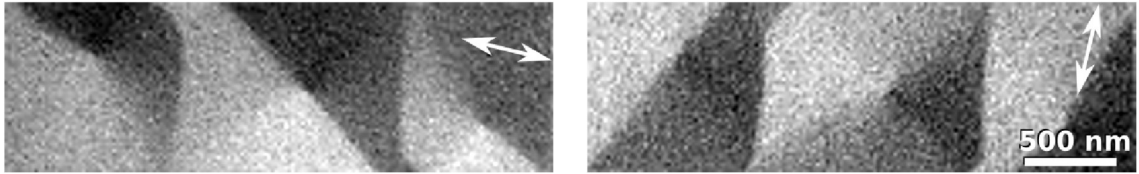


図 2: 上の画像と同じ sme データセットから生成された重心画像。異なる方法で計算された図 1 と図 2 の間の信号の小さな不一致は、象限法における仮想検出器の不完全な配置に関連するアーティファクトである。

産業界に関連する研究の多くは多結晶材料に適用されていますが、その場合、CoM 法は理想的なアプローチではないかもしれません。これは、特徴 (結晶粒) の大きさがビームの大きさに匹敵する場合に起こります。このような条件では、中央の回折ディスクの強度は平坦ではなく、異なる回折条件を満たす結晶粒による変動があります。そのため、CoM や象限に基づくアプローチでは、最終的な画像にはプローブの偏向とは関係のない回折コントラストが含まれます。この問題を解決するには、コンピュータビジョンに基づいた方法で、テンプレートマッチングアルゴリズムによってプローブの位置を分析します。4D-STEM データセットの各回折パターンは、理想的なマスクパターンと相互に関連付けることができます。さらに高い S/N を実現するために、相互相関の前にデータに 2 次元グラデーションを適用します。このようにして、磁気コントラストと短距離静電結晶コントラストを分離した、優れたイメージングモードを実現することができます。

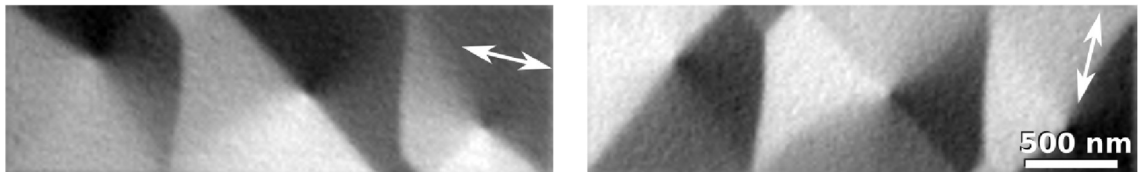


図 3: 同じ 4D-STEM データセットを用いた相互相関 (CC) ベースの解析。図 1 および図 2 と比較して、CC 法の優れたコントラストが明らかになっている。解析コードは GPU アクセラレーションを利用しており、自由に利用することができます⁴。処理と方法論の詳細は、Krajnak M. et al, Ultramicroscopy 2016 に掲載されています。

非常に複雑なサンプル (例: 垂直に磁化された多層膜の多結晶フィルム) でも、相互相関法により定量的に画像化することができます。以下にその画像の例を示します。

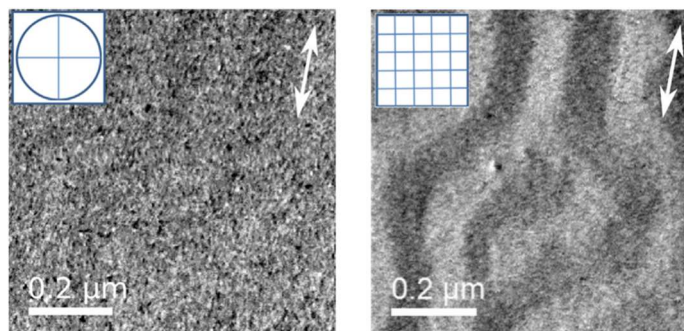


図 4: セグメンテーション法 (左) と相互相関法 (右) による磁気像の比較。このサンプルは、上面が Pt (2.4)、下面が Ta (10) | Pt (8) で覆われた [Co (1.6) | Ru (1.4) | Pt (0.6)] を 15 回繰り返した層で構成されている (括弧内の数字は、指定された層の厚さをナノメートルで表したもの)。このような複雑な構造の場合、DPC 検出では磁気コントラストが全く得られず、相互相関のみが利用可能となる。この場合、サンプルは平面外で磁化されているため、コントラストを示すためにはサンプルを傾ける必要がありました。驚くべきことに、有効な磁気の厚さがサンプルの厚さの 17% しかなくても、多層の多結晶構造の中でコントラストを回復することができるのです。画像提供: Kayla Fallon、詳細は Fallon K. et al, preprint <https://arxiv.org/abs/1901.03652> に掲載されています。



2. Atomic scale electric fields

電界は MerlinEM を用いて原子スケールで測定することもできます。横電界からの平均的な運動量の伝達を、薄いサンプルの CoM アルゴリズムで測定できることが示されました。運動量の伝達は次のように記述できます：

$$\langle \mathbf{p}_\perp \rangle = \iint \mathbf{p}_\perp \cdot \mathbf{I}(p_x, p_y) dp_x dp_y$$

ここで、 \mathbf{p} は試料によってビームに伝達される平均横運動量、 $\mathbf{I}(p_x, p_y)$ は記録された回折パターン（正規化されたもの）で、成分は運動量空間の座標系を表しています。この式は基本的に、測定された回折パターンの CoM 計算を表しています⁵。このシナリオでは、プローブのサイズは原子間隔よりも小さくなります。仮に長距離電磁場によるプローブのシフトがあったとしても、このシフトは原子電場の効果によって克服されるでしょう。ナノディフラクションにおけるプローブのシフトは、通常、数十マイクロラジアン以下の範囲ですが、原子分解能イメージングでは、プローブの開口部の大きさに近い平均的なシフトが予想されます（例：5/10 ミリラジアン以上（約3桁大きい））。

最近の論文^{6,7}では、急速に発展している研究分野である原子電場の測定に MerlinEM が使用されました。興味深いことに、一度取得した 4D-STEM データは、複数の種類の解析に使用することができます。集束プローブ・プティコグラフィと原子電場イメージングは、基本的に同じ種類のデータを必要とします。下の画像では、2D 材料である MoS₂ の 4D-STEM データを用いて、位相画像（プティコグラフィによる）、横電界画像（CoM による）、電荷分布画像（CoM の発散による）を生成しています。このように、1つのデータセットから得られる情報の豊富さを示しています。

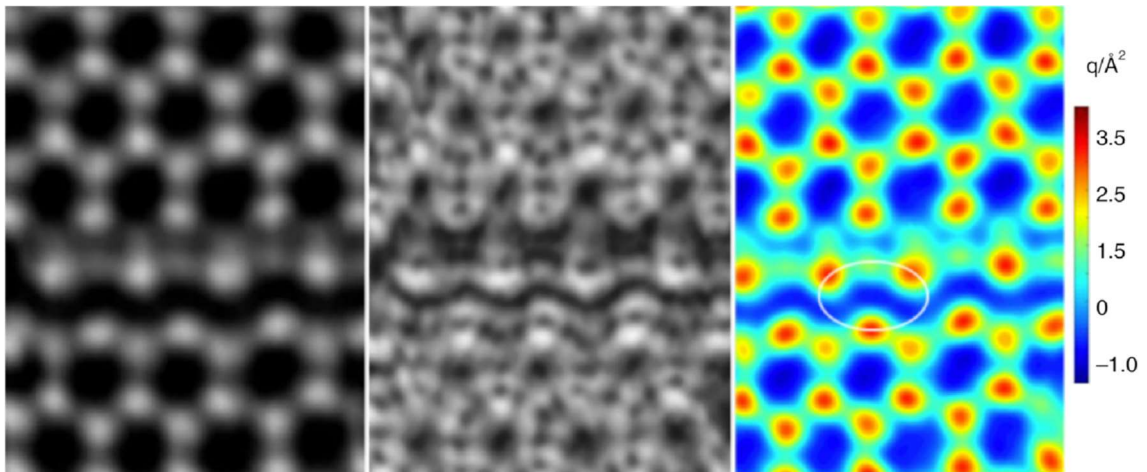


図 5：画像の中央に水平方向の欠陥が存在する MoS₂ において、MerlinEM 検出器で取得した同じ 4D-STEM データセットから生成された位相（左）、電場の大きさ（中）、電荷分布（右）の画像。この画像は、Fang S. et al, Nature Communications volume 10, 1127 (2019) から CC BY 4.0 licence で入手した。

- 5 Müller-Caspary K. et al, Nature Communications (2014)
- 6 Fang S. et al, Nature Communications volume 10, 1127 (2019).
- 7 Müller-Caspary K. et al, Ultramicroscopy, Vol 203, (2019)

