

高分辨电子显微象准实空间象模拟方法

王元明 曲 华

(中国科学院金属研究所固体原子象实验室)

1986年1月16日收到

提 要

本文中提出了一种介于实空间法(RS)和多层法(MS)之间的新方法——准实空间法(QRS)。在QRS法中大部分数值计算在实空间进行,只有当电子波函数 ϕ 的归一化值超过预定的阈值,如 $\sum|\phi|^2 > 1.01$ 时,才转到傅氏空间进行低通滤波(LPF)和运算。在倒空间运算后,通过逆傅氏变换,运算仍然在实空间进行。本文详细研究了RS法发散的原因,并提出了QRS法,这种算法克服了RS法中的发散现象,又在不延长计算时间的前提下得到了和普遍采用的多层法相一致的计算结果。

一、引 言

目前通用的高分辨象模拟计算程序中的动力学衍射计算部分大都以 Cowley 和 Morodie^[1]提出的动力学分层计算方法为基础。早期的程序,运算次数正比于 N^2 ; N 是计算中所选取的动力学衍射束数目。后来 Ishizuka 和 Uyeda^[2]借用快速傅氏变换方法(FFT)把运算次数减少到正比于 $N\log_2 N$ 。通常称之为多层法(MS)。1980年左右, Van Dyck^[3]从定态 Schrödinger 方程出发,提出了一种运算次数正比于 N 的实空间算法(RS)。虽然从理论上讲,RS法是满意的,可是在实际的数值计算中是发散的^[4]。Kilaas 与 Grosky^[5]比较了RS法和MS法,并指出只有小心地选择分层厚度 ϵ 和在 x, y 方向上的最大取样点数 $g_{\max}$,使其满足他们给出的判据,才能避免发散。稍后, Van Dyck 和 Coene^[6,7]提出一个 S^2 误差判据,并得到了和 Kilaas 与 Grosky 相似的结论。总之,利用RS法进行象模拟计算时,为了得到满意的结果,在同样取样点数的条件下,RS法中所选取的片层厚度 ϵ 要比MS法中的薄,而片层厚度变薄就意味着增加运算时间,这是RS法不能和MS法抗争的主要原因^[8]。

本文提出的准实空间法(QRS)是基于RS法的一种新算法,绝大部分数值计算仍在实空间进行。QRS法和RS法不同在于使用低通滤波器(LPF)来抑制RS法的发散现象,因而在可减少片层厚度(即取与MS法相同的片层厚度)的条件下,得到满意的计算结果。QRS法比RS法和MS法都快,象模拟计算方法。LPF起着“物镜光阑”的作用。

二、RS 法的基本原理

RS 法是 Van Dyck 在 1980 年提出的^[3]. 其基本原理如下:

晶体中的电子波函数 $\Phi(\mathbf{r})$, 在入射电子能量 $E \gg U(\mathbf{r})$ (E 为入射电子能量, $U(\mathbf{r})$ 是晶体势场), 可以写成调制波函数形式 $\Phi(\mathbf{r}) = \phi(\mathbf{r}) \exp(2\pi i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$, 其中 $\mathbf{k}$ 为入射波矢, $\phi(\mathbf{r})$ 为调制波.

在忽略背散射电子贡献并假设电子沿垂直晶体表面 (x, y 平面) 的 z 方向入射时^[3,6],

$$\frac{\partial \phi(\mathbf{r})}{\partial z} = \lambda [\Delta + V(\mathbf{r})] \phi(\mathbf{r}), \quad (1)$$

其中

$$V(\mathbf{r}) = \frac{2me}{\hbar^2} U(\mathbf{r}), \quad \lambda = \frac{i}{4\pi k_z},$$

$$\Delta = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + 4\pi i k_x \frac{\partial}{\partial x} + 4\pi i k_y \frac{\partial}{\partial y}.$$

方程(1)的积分形式迭代解为

$$\begin{aligned} \phi(x, y, z + \varepsilon) = & \left\{ 1 + \int_0^\varepsilon [\Delta + V(x, y, z)] dz \right. \\ & + \int_0^\varepsilon [\Delta + V(x, y, z)] dz \int_0^z [\Delta + V(x, y, z')] dz' \\ & \left. + O^3[\Delta, V(x, y, z)] \right\} \phi(x, y, z), \end{aligned} \quad (2)$$

其中 $O^3[\Delta, V(x, y, z)]$ 表示三重积分之后的多重积分项之和. 为了得到(2)式的解析形式, 我们作如下简化: 把晶体“分割”成 N 个等厚度 ε 的片层, 每个片层都平行于入射平面并具有相同的物理内容, 认为片层的几何中心和片层内的势场中心相重合. 定义沿入射方向 (z 方向) 的投影势 V_p 为

$$V_p = V_p(x, y, \varepsilon) = \int_z^{z+\varepsilon} V(x, y, z) dz,$$

用 Δ 和 V_p 函数的交替形式 $f_1(\Delta)f_2(V_p)f_3(\Delta)f_4(V_p)\cdots$ 去逼近方程(2), 在二级项符合最好时, 函数的形式为

$$\phi(x, y, z + \varepsilon) = \exp\left(\frac{\lambda}{2} V_p\right) \cdot \exp(\lambda \varepsilon \Delta) \cdot \exp\left(\frac{\lambda}{2} V_p\right) \cdot \phi(x, y, z). \quad (3)$$

在 RS 法的数值计算中只取到 $\exp(\lambda \varepsilon \Delta)$ 展开式的二级项, 即认为

$$\exp(\lambda \varepsilon \Delta) \simeq 1 + \lambda \varepsilon \Delta + \frac{1}{2} \lambda^2 \varepsilon^2 \Delta^2. \quad (4)$$

将(4)式代入方程(3)可以得到

$$\begin{aligned} \phi(x, y, z + \varepsilon) = & \exp\left(\frac{\lambda}{2} V_p\right) \cdot \left(1 + \lambda \varepsilon \Delta + \frac{\lambda^2}{2} \varepsilon^2 \Delta^2\right) \\ & \cdot \exp\left(\frac{\lambda}{2} V_p\right) \cdot \phi(x, y, z). \end{aligned} \quad (5)$$

利用(5)式,可以容易地写出在电子束垂直入射条件下,出射面的波函数为(厚度为 $N\varepsilon$ 时)

$$\phi(x, y, N\varepsilon) = \left[\exp\left(\frac{\lambda}{2} V_p\right) \cdot \left(1 + \lambda\varepsilon\Delta + \frac{\lambda^2}{2} \varepsilon^2 \Delta^2\right) \cdot \exp\left(\frac{\lambda}{2} V_p\right) \right]^N \phi(x, y, 0), \quad (6)$$

其中 $\phi(x, y, 0)$ 为入射面的波函数.

三、对 RS 法的讨论

以下从相光栅函数和传播因子出发,讨论一下数值计算发散的成因以及它的影响.

1. 相光栅函数 $\exp\left(\frac{\lambda}{2} V_p\right)$ 的影响

显然,方程式(5)仅在

$$\Delta \cdot \exp\left(\frac{\lambda}{2} V_p\right) \gg \Delta^2 \cdot \exp\left(\frac{\lambda}{2} V_p\right) \gg \dots$$

时近似成立.然而在投影势 V_p 变化大的地方,相光栅变化也大,上述不等关系难以满足,故对于 V_p 变化大的地方,(5)式的计算误差比较大.换句话说,截断 $\exp(\lambda\varepsilon\Delta)$ 到二级项时,对势场变化大的晶体的影响要比势场变化小的晶体大,因而对前者导致较大的计算误差.对同一晶体来说,原子核附近,势场变化大,入射到这个区域的电子被散射到较大 Bragg 角的地方,可以预见,截断对大角度衍射束的计算强度带来较大的误差.

总的来说,原子散射本领弱的晶体,其势能变化也较小,因而从方程(2)到(5)的过程中仅忽略了高阶小量,方程(5)对 $\exp(\lambda\varepsilon\Delta)$ 的截断也不敏感.这就是说,要使象模拟计算的准确度高,必须合理地选取片层厚度 ε ,使其满足如下的弱场条件: $\lambda V_p \ll 1$,弱场条件和弱相位体的概念是一致的.

2. 传播因子 $\exp(\lambda\varepsilon\Delta)$ 的影响

为了清楚地说明 $\exp(\lambda\varepsilon\Delta)$ 截断的影响,将(4)式两边同时作傅氏变换,并作用在继过第一层相光栅衍射的倒空间波函数 $\Psi(\mathbf{g}, 0)$ 上,

$$\exp(-i\pi\lambda\varepsilon g^2) \cdot \Psi(\mathbf{g}, 0) \simeq \left(1 - i\pi\lambda\varepsilon g^2 - \frac{\lambda^2}{2} \pi^2 \varepsilon^2 g^4\right) \Psi(\mathbf{g}, 0), \quad (7)$$

其中 $\mathbf{g}$ 为二维倒易矢量.很显然,上式等号左边是一个纯相位因子,它只改变 $\Psi(\mathbf{g}, 0)$ 的位相;但是右边并非纯相位因子,它不仅改变波函数的位相,而且改变波函数的振幅.这种影响随着倒易矢量 $\mathbf{g}$ 的绝对值加大而增大.从上面的分析我们很容易得出这样的结论:截断到 $\exp(\lambda\varepsilon\Delta)$ 的二级项,会给高指数衍射的强度带来较大的影响.

3. 截断 $\exp(\lambda\varepsilon\Delta)$ 对数值计算的影响

从1和2节的分析可以预见到,数值计算误差主要表现在高指数衍射束的计算中,下面的具体例子更证明了这一点.

表 1

传播因子		$f = 1 - iu - \frac{1}{2}u^2$		$F = e^{-iu}$		$(F - f)/F$	
晶体	衍射束	强度	位相	强度	位相	强度	位相
Si	8,0,0	1.19	-1.02	1.00	-0.93	-19%	-9.7%
Si	12,0,0	5.77	1.05	1.00	-2.09	-477%	150%
Cu	8,0,0	1.96	-1.56	1.00	-1.40	-96%	-7%
Cu	10,0,0	6.76	1.00	1.00	-2.19	-576%	146%

表 1 根据公式 $F = e^{-iu}$ (未截断) 及 $f = 1 - iu - \frac{1}{2}u^2$ (截断) 所计算出来的强度和位相。这里 $u = \pi\lambda\epsilon g^2$, $g^2 = \frac{1}{a^2}(h^2 + k^2)$, $\lambda = 0.0251\text{\AA}$, 分层厚度 ϵ 选取为相应晶体沿入射方向的晶格常数 a 。 $a_{\text{Si}} = 5.435\text{\AA}$, $a_{\text{Cu}} = 3.6\text{\AA}$ 。表 1 也列出了每种情况下强度与位相的偏离。表 1“截断”强度和位相根据(7)式求得, 并假设 $\psi(\mathbf{g}, 0)$ 强度为 1, 位相为零。在 x, y 平面上的取样点数为 32×32 , 电子束沿 z 方向入射。

从表 1 我们可以明显地看出, 截断导致高指数衍射计算强度的严重发散, 这种发散对铜来说比硅更严重, Si(12, 0, 0) 衍射束强度为 5.77, Cu(10, 0, 0) 衍射束强度为 6.76。这和 1 与 2 节的结论是一致的。需要强调说明的是: 因为 $u = \pi\lambda\epsilon g^2$, 所以, “截断”发散不仅和衍射指数 (g^2) 有关, 而且和沿电子束入射方向的分层厚度 (ϵ) 有关。

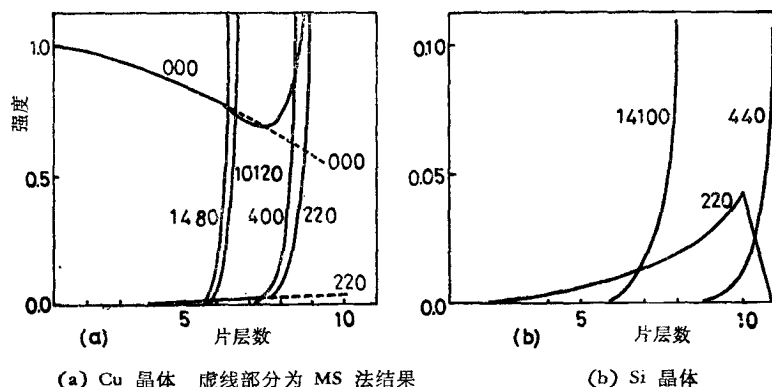


图 1 利用 RS 法和 MS 法计算的强度和厚度 (以片层数表示) 的关系 计算条件与表 1 相同

从图 1 我们注意到, 对 Cu 晶体来说, 衍射束 (14, 8, 0) 和 (10, 12, 0) 的 RS 法计算强度在片层厚度为 5 (差不多 6) 附近就开始迅速发散, 而用 MS 法计算的强度近似为零。对 Si 晶体来说, 衍射束 (14, 10, 0) 的强度在大致相同的片层厚度开始发散。

为了给出一个由截断引起的衍射束计算强度的形象概念, 我们在图 2 中描绘出在片层数为 5 时, 利用 RS 法计算的 Cu 晶体衍射束强度分布图。

从图 2 我们清楚地看到, 随着 Bragg 角的增加, 由于发散, 计算的衍射束强度迅速增加, 某些衍射束的强度与入射束强度量级相同, 尽管这些衍射束的实际强度为零。衍射束

的总强度是入射束强度的 19 倍。衍射束强度的这种反常增加并非由于动力学衍射所引起的能量转移造成,而是由于所选择的算法导致(截断影响)。

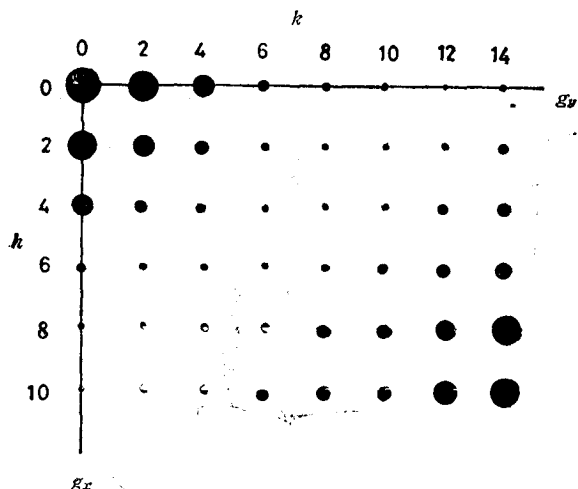


图 2 在片层数为 5 时,利用 RS 法计算的 Cu 晶体衍射束强度与倒易矢量 (h, k) 的示意关系 计算参数见表 1

四、准实空间法 (QRS)

利用 MS 法计算的高指数衍射强度或实际的电子衍射照片上高指数衍射斑点强度都是很弱的。通常,在实际的电子显微镜操作时,需要加一定大小的物镜光阑,在照片上所形成的像只是光阑内光束相互动力学干涉的结果。这就意味着高分辨象模拟计算中要充分地注意低指数衍射束计算的准确性。

从图 2 中可发现,靠近透射束的低指数衍射束受到截断的影响比

较小;图 1 也表明,在发散之前,这些低指数的衍射束都接近于用 MS 法计算的结果,如果 RS 法继续进行下去,由于高指数衍射束的发散,就会导致低指数衍射束的失真。

准实空间法吸取了 RS 法与 MS 法的优点,绝大多数运算在实空间进行,因而具有 RS 法运算快的特点。在 QRS 法中,通过适时、合理地使用低通滤波器 (LPF) 消除高频(高指数衍射)的发散。

详细地说,在 QRS 中仍然遵守几率归一判据,当电子波函数 $\sum |\phi|^2 > 1.01$ 时,数值计算不再采用 $\sum |\phi|^2 \leq 1.01$ 时所采用的 RS 法,而是对 ϕ 进行傅氏变换,然后在倒空间进行低通滤波,并通过 MS 法迭代一层,此后再通过逆傅氏变换到实空间继续 RS 法,直到下一次 $\sum |\phi|^2 > 1.01$; 这样的过程反复地进行着,直到整个动力学衍射计算完结。

图 3,图 4 表示 QRS 法的操作过程。

从图 3,图 4 可见, $\sum |\phi|^2$ 小于规定的阈值时, LPF 不起作用,所有光束均可通过它(如图 4(b₁) 所示),此时衍射强度分布如图 4(a₁) 这时 RS 法所导致的发散尚不严重。当 $\sum |\phi|^2 > 1.01$ 时,即高频(高指数衍射)发散严重到可能影响低频(低指数衍射)时, LPF 立即“工作”,滤掉高指数衍射成分(如图 4(b₂), 图 4(a₂) 所示)。滤波后的衍射束强度分布如图 4(a₃), 这时 LPF 再次失去作用(如图 4(b₃))。LPF 并不影响多束动力学衍射过程,在未进行 LPF 前,所有光束都进行动力学衍射,施加 LPF 时,仅去掉那些由于“截断效应”人为加强的高指数衍射(其实际衍射强度近似为零),其后,所有光束的动力学衍射过程又继续进行,这是 QRS 法的计算结果可以和考虑了所有光束动力学衍射的 MS 法相比拟,并且符合得很好的根本原因。一般说来, LPF 可选取和实验中的物镜光阑相同量级或略大些。

以下四点说明 QRS 法立据的正确性:

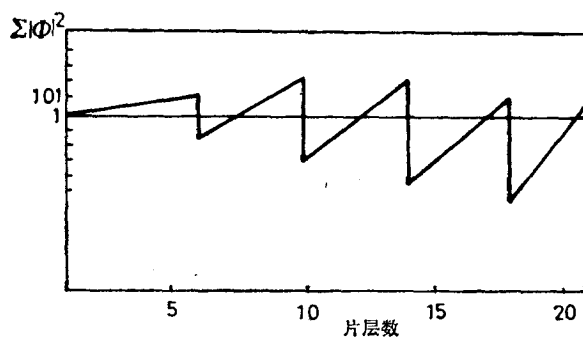


图3 表示在 QRS 法中 $\sum |\phi|^2$ 与片层厚度(片层数)的关系 关系曲线呈锯齿形; 某些片层数时 $\sum |\phi|^2$ 的下落是由于在滤波前 $\sum |\phi|^2$ 逐渐增大, 直到 $\sum |\phi|^2 > 1.01$, 这时实行 LPF, 截掉所有不在滤波窗口内的, 由于截断误差人为地加强了的高指数衍射所造成的

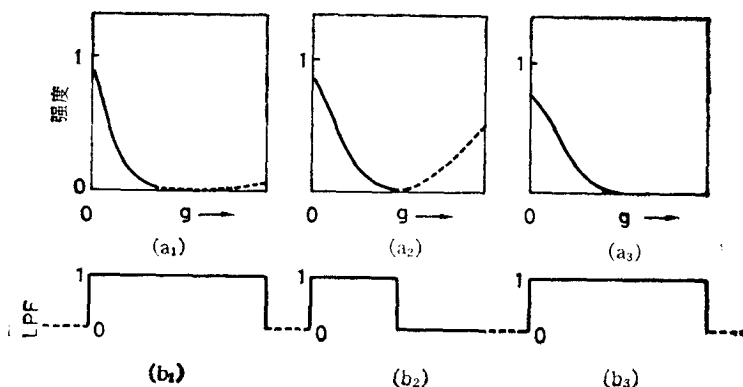


图4 表示在图3中几率 $\sum |\phi|^2$ “下跌”前, “下跌”时, “下跌”后, 衍射束强度与倒易矢量 g 的示意关系 ((a₁), (a₂), (a₃)) 与相应的LPF 形状 ((b₁), (b₂), (b₃))

第一, 实际的电子显微镜成象过程仅仅和物镜光阑所限制的有限电子束(通常是低指数衍射)有关。因此, “截掉”某些高指数衍射束在实验上是允许的。

第二, 截断传播因子 $\exp(\lambda \varepsilon \Delta)$ 到二级项所造成的发散对大角度的衍射束的影响要比小角度衍射束严重, 这种现象可以通过 LPF 截掉高指数衍射束来克服。

第三, 如果忽略吸收效应, 在多层迭代过程中, 电子出现在单位体积内的几率 $\sum |\phi|^2$ 或衍射束的总强度应该是归一的。 $\sum |\phi|^2$ 的不守恒是由于所选取算法(截断影响)而引起的, 所以利用 $\sum |\phi|^2$ 大于某个阈值作为 LPF 是否工作的判据是合理的。

第四, 一些作者^[9,10]指出, 衍射束之间的相对关系对几率归一值的选取不太敏感, 他们指出即使 $\sum |\phi|^2 \approx 70\%$ 时, 衍射束强度之间的比例关系仍然正确。

QRS 法和 MS 法计算结果的比较

图5 表明, 在计算参数相同的条件下, 除了 (4, 4, 0) 衍射束位相有些差异外, QRS

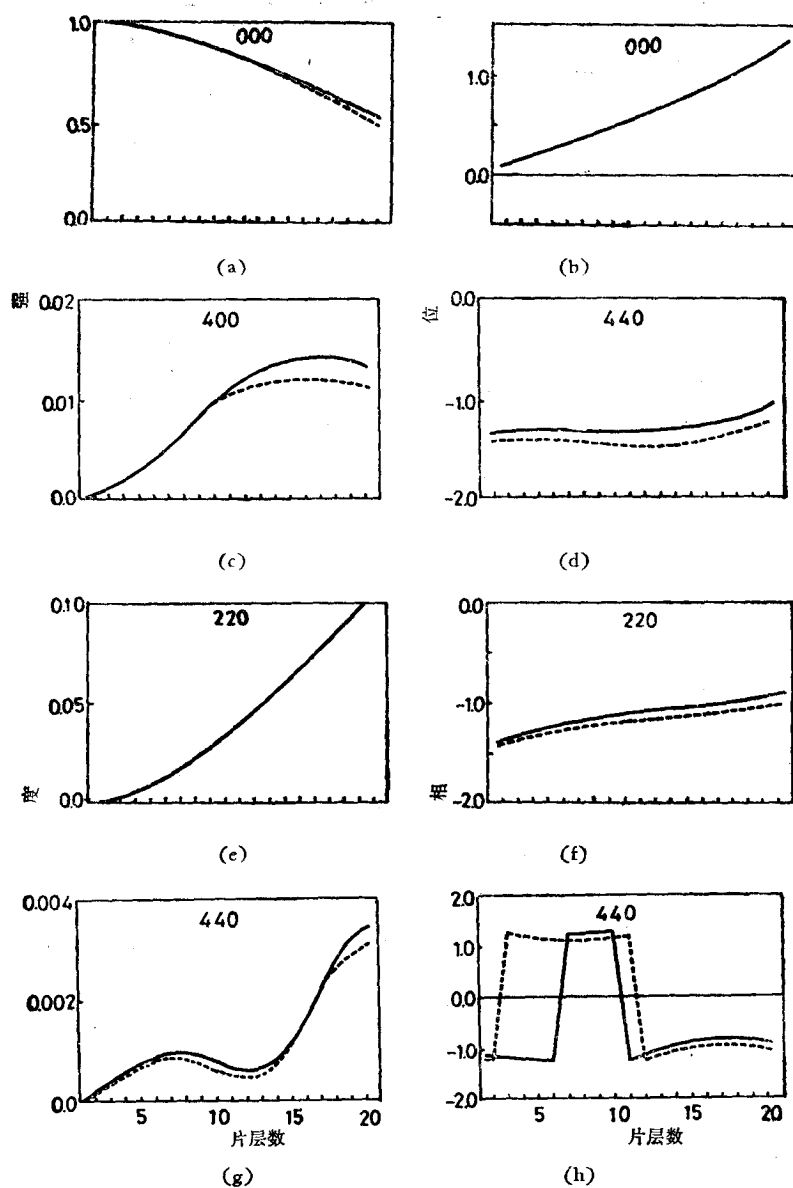


图 5 Si 晶体,沿 $\langle 001 \rangle$ 晶带轴入射时的 $(0, 0, 0)$, $(2, 2, 0)$, $(4, 0, 0)$, $(4, 4, 0)$ 衍射束强度和位相随片层数变化曲线 LPF 选择刚好让 $(4, 4, 0)$ 衍射束通过; $\sum |\phi|^2 > 1.01$ 作为 LPF 工作判据; 实验参数如表 1; 实线表示 QRS 法结果; 虚线表示 MS 法结果

法和 MS 法的计算结果符合得很好。

五、结 论

在取样点和片层厚度相同的条件下, 用 QRS 法可以得到和 MS 法符合得很好的计

算结果, 但 QRS 法的运算速度远比 MS 法快. QRS 法中利用 LPF 在不减小片层厚度的条件下, 即不增加运算时间的条件下, 有效地抑制了由于传播因子截断而引起的计算发散. Van Dyck^[11] 曾提出在实空间适当地平滑势函数以消除计算发散, 但在实空间平滑势函数不仅对高指数衍射有影响, 而且对成象有重要作用的低指数衍射也有影响.

QRS 法的最长运算时间是每两层实施一次低通滤波, 这时运算次数正比于

$$\frac{1}{2} (N + N \log_2 N) = \frac{N}{2} \log_2 N,$$

几乎相当于 MS 法运算时间的一半.

为了更有效地抑制发散, 可以对不同的晶体, 选用传播因子 $\exp(\lambda \varepsilon \Delta)$ 不同级数的展开, 例如, 对晶体势场变化大的晶体, 选取四级展开或更高, 对晶体势场变化小的晶体, 选取二级展开. 根据这种设想, 我们计算 Cu, Si 晶体并得到了和 MS 法符合得很好的结果; 为了选择最佳的展开级数, 也给出了通用判据.

作者感谢郭可信教授的指导性建议和有益的帮助.

参 考 文 献

- [1] J. M. Cowley and A. F. Moodie, *Acta Cryst.*, **10**(1957), 609.
- [2] K. Ishizuka and N. Uyeda, *Acta Cryst.*, **A33** (1977), 740.
- [3] D. Van Dyck, *J. Microscopy*, **119** (1980), 141.
- [4] P. G. Self, *J. Microscopy*, **127** (1982), 293.
- [5] R. Kilaas and R. Gronsky, *Ultramicroscopy*, **11**(1983), 289.
- [6] D. Van Dyck and W. Coene, *Ultramicroscopy*, **15** (1984), 29.
- [7] W. Coene and D. Van Dyck, *Ultramicroscopy*, **15** (1984), 41.
- [8] P. G. Self, M. A. O'Keefe, P. R. Busek and A. E. C. Spargo, *Ultramicroscopy*, **11**(1983), 35.
- [9] D. F. Lynck, *Acta Cryst.*, **A27**(1971), 399.
- [10] M. A. O'Keefe, *Acta Cryst.*, **A29**(1973), 389.
- [11] D. Van Dyck, *Advances in Electronics and Electron Physics* Vol. 65.

QUASI REAL SPACE (QRS) IMAGE SIMULATION IN HIGH RESOLUTION ELECTRON MICROSCOPY

WANG YUAN-MING QIU HUA

(Laboratory of Atom Image of Solids, Institute of Metal Research, Academia Sinica, Shenyang)

ABSTRACT

This paper reports a study of the quasi real space (QRS) method. It is an intermediate procedure between the real space (RS) and multislice (MS) methods. With this technique, most of the numerical calculations are done in real space except that the normalization is imposed beyond some threshold value, for example $\sum |\phi|^2 > 1.01$ where ϕ is the wave function of the electron. It is also shown why truncation of the propagation operator $e^{\lambda \varepsilon \Delta}$ to second order in the RS method can lead to computational divergencies and how they can be avoided by using the QRS method. Finally, results calculated by the QRS method are compared with other existing slice methods. The QRS method gives results similar to the conventional MS calculation with competitive computational speed.