

一种适用于非周期结构高分辨象模拟 计算的新方法

王元明 胡天宝 陈江华 曾晓彪

中国科学院金属研究所固体原子象开放研究实验室, 沈阳, 110015

1989 年 11 月 8 日收到

通常的 FFT 多片层法 (FFTMS) 动力学衍射计算中, 由于采用了边界采样点周期性延伸的假设, 从而导致非周期结构高分辨象模拟的严重失真. 在仔细研究这种误差成因的基础上, 本文提出了一种适用于非周期结构的高分辨象模拟计算新方法, 它基于实空间多片层 (RSMS) 象模拟计算方法, 但在势投影及传播因数计算中充分考虑了非周期结构的特点, 从而得到与实验符合较好的结果.

PACC: 6116D

一、实空间多片层非周期结构象模拟计算 (RSMSN) 简介

近代的电子显微镜使人们能够在电子显微镜中直接观察固体中原子尺度的微观结构, 并获得周期结构 (晶体) 和非周期结构 (晶体缺陷, 准晶等) 的高分辨电子显微象. 尽管基于在边界采样点周期性延伸的 FFTMS 法已经广泛地应用到周期结构的象模拟计算中, 并得到了满意的结果^[1-7], 但是这种方法原则上并不适用于非周期结构的象模拟计算, 因而有必要提出一种适用于非周期结构的新方法.

RSMS 法^[8-10]动力学衍射计算的基本公式可以由定态 Schrödinger 方程导出. 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) 入射, 晶体被分成非常薄的等厚度片层 ε , 而且这些片层平行入射平面时, 到达第 n 层的调制波函数 $\varphi_n(\vec{R})$ ^[11] 为

$$\varphi_n(\vec{R}) = P(\vec{R})[Q_n(\vec{R}) \cdot \varphi_{n-1}(\vec{R})]. \quad (1)$$

(1) 式中传播因数

$$P(\vec{R}) = \exp[i\lambda/4\pi \cdot \varepsilon\Delta],$$

$$\lambda = \frac{1}{k}, \quad \Delta = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2},$$

相光栅函数

$$Q_n(\vec{R}) = \exp[i\lambda/4\pi \cdot V_n^e(\vec{R})], \quad (2)$$

$$V_n^e(\vec{R}) = \int_{(n-1)\varepsilon}^{n\varepsilon} V(x, y, z) dz.$$

这里 ε 为片层厚度, k 为相对论电子波矢, $V_s^*(\bar{R})$ 为 $(n-1)$ 层至 n 层间势场沿入射电子束方向 (z 方向) 在第 n 层上的投影.

$V_s^*(\bar{R})$ 可用 Doyle-Turner 公式^[12]

$$f(g) = \sum_{i=1}^4 a_{ij} \exp\left(-\frac{1}{4} b_{ij} g^2\right),$$

在实空间中计算出来, 此公式定义了每个原子 j 在第 s 个倒易格点上的原子散射因数. 势投影 $V_s^*(\bar{R})$ 可以通过叠加贡献于片层 n 的所有处于 $\bar{R}_j = (x_j, y_j)$ 的原子 j 而获得^[8, 13],

$$V_s^*(\bar{R}) = \frac{16\pi^2 m \varepsilon}{m_0} \sum_j \sum_{i=1}^4 \frac{a_{ij}}{b_{ij}} \exp\left(-\frac{4\pi^2(\bar{R} - \bar{R}_j)^2}{b_{ij}}\right). \quad (3)$$

这里 m_0 为电子静止质量. 由于 $V_s^*(\bar{R})$ 的计算在实空间进行, 没有运用周期性延伸边界条件, 所以适合于非周期结构的要求.

为了计算方程(1)中的 $\varphi_n(\bar{R})$, 需要求出传播因数 $P(\bar{R})$, 在满足王元明等人^[14]导出的收敛判据时,

$$P(\bar{R}) = 1 + \frac{i\lambda}{4\pi} \varepsilon \Delta + \dots + \frac{1}{n!} \left(\frac{i\lambda}{4\pi} \varepsilon \Delta\right)^n, \quad (4)$$

$P(\bar{R})\phi(\bar{R})$ 中

$$\begin{aligned} \Delta\varphi(x) = D_2(x) &= \frac{1}{12\delta^2} \{16[\varphi(x+\delta) + \varphi(x-\delta)] \\ &\quad - \varphi(x+2\delta) - \varphi(x-2\delta) - 30\varphi(x)\}. \quad (5) \end{aligned}$$

$D_2(x)$ 与精确的二阶导数 $\frac{d^2\varphi}{dx^2}$ 的偏差约为 $\frac{8\delta^4}{6!} \frac{d^6\varphi}{dx^6}$, 其中 δ 为取样间隔. 为了简便起见, 本文仅给出 $\Delta\varphi(\bar{R})$ 的一维形式.

二、非周期结构高分辨象模拟计算的具体实现

为了实现非周期结构的象模拟计算, 关键在于精确地计算 $P(\bar{R})\varphi(\bar{R})$ ^[14], 也就是精确地计算 $\Delta\varphi(\bar{R})$, 以及避免在边界采样点上使用周期性边界条件.

在计算中, 对于边界采样点分别使用如下公式:

$$\Delta\phi(x) = D_1(x) = \frac{1}{\delta^2} [\varphi(x+\delta) + \varphi(x-\delta) - 2\varphi(x)], \quad (6)$$

$$\begin{aligned} \Delta\phi(x) = G(x) &= \frac{1}{12\delta^2} [35\varphi(x) - 104\varphi(x+\delta) + 114\varphi(x+2\delta) \\ &\quad - 56\varphi(x+3\delta) + 11\varphi(x+4\delta)]. \quad (7) \end{aligned}$$

(6)和(7)式与精确的二阶导数 $\frac{d^2\varphi}{dx^2}$ 的偏差分别约为 $\frac{\delta^2}{12} \frac{d^4\varphi}{dx^4}$, $\frac{20}{45} \delta^3 \frac{d^5\varphi}{dx^5}$.

为了形象地表明, $\Delta\varphi(x)$ 数值计算公式的不同以及在边界采样点上使用周期性延伸的影响, 计算了 $\frac{d^2 \sin(x)}{dx^2}$ ($0 \leq x \leq \pi$, 取样间隔 $\delta = \pi/48$), 并且列表 1.

表 1 $\frac{d^2 \sin(x)}{dx^2} = -\sin(x)$ 与 x 的关系, $x_i = \delta \cdot (i - 1)$, $\delta = \frac{\pi}{48}$

i	$\sin(x_i)$	$\frac{d^2 \sin(x_i)}{dx_i^2}$	方式 1		方式 2	
			结果	公式	结果	公式
1	0.00000	0.00000	30.53594	$D_1(x)$	0.00023	$G(x)$
2	0.06540	-0.06540	-0.06537	以下同上	-0.06537	$D_1(x)$
4	0.19509	-0.19509	-0.19502		-0.19509	$D_2(x)$
6	0.32143	-0.32143	-0.32132		-0.32143	以下同上
8	0.44228	-0.44228	-0.44213		-0.44228	
10	0.55557	-0.55557	-0.55537		-0.55557	
12	0.65934	-0.65934	-0.65911		-0.65934	
14	0.75183	-0.75183	-0.75157		-0.75183	
16	0.83146	-0.83146	-0.83117		-0.83146	
18	0.89687	-0.89687	-0.89655		-0.89687	
20	0.94693	-0.94693	-0.94659		-0.94693	
22	0.98078	-0.98078	-0.98043		-0.98078	
24	0.99785	-0.99785	-0.99750		-0.99785	
26	0.99785	-0.99785	-0.99750		-0.99785	
28	0.98078	-0.98078	-0.98043		-0.98078	
30	0.94693	-0.94693	-0.94659		-0.94693	
32	0.89687	-0.89687	-0.89655		-0.89687	
34	0.83146	-0.83146	-0.83117		-0.83146	
36	0.75183	-0.75183	-0.75157		-0.75183	
38	0.65934	-0.65934	-0.65911		-0.65934	
40	0.55557	-0.55557	-0.55537		-0.55557	
42	0.44228	-0.44228	-0.44213		-0.44228	
44	0.32144	-0.32144	-0.32132		-0.32144	
46	0.19509	-0.19509	-0.19502		-0.19509	$D_2(x)$
48	0.06540	-0.06540	-0.06538		-0.06538	$D_1(x)$
49	0.00000	0.00000	30.53593	$D_1(x)$	0.00023	$G(x)$

RSMS 法动力学衍射计算,实际上是从电子波入射平面开始不断地运用方程(1),直到出射面为止。从表 1 的计算可以预见,由于非周期结构所不允许的周期性边界延伸的运用,必然使边界点附近计算的波函数偏离实际值。随着多片层计算的进行,也就是电子波不断地“衍射”和“传播”,这种误差会不断地积累,其影响逐渐从边界向内部“扩散”。用 FFTMS 法^[15]的计算表明(如图 3(见图版 1)所示),这种影响是非常严重的。

在 RSMSN 法^[16]计算中,除了在相光栅计算中使用(3)式,从而保证结构模型的固有特点外,对边界采样点 p_1, p_2 (图 1)也采用不同于内部采样点的公式;对内部采样点使用(5)式,对 p_1 使用(6)式,对 p_2 使用(7)式。显然,对不同采样点使用不同公式的办法完全避免了在计算传播因数时对边界采样点所作的周期性延伸。为了进一步缩小边界采样点计算对结果的影响,在实际计算中采用扩大采样点的办法。其具体计算过程如下:首先在电子波入射面上取 $M + 12$ 个采样点(一维情况),然后反复运用方程(1)算出经过 N 层相光栅衍射并传播后的出射面波函数;不过,在最后的成象计算中,需要去掉边界上的 12 点,仅取中心的 M 点。图 1 给出 RSMSN 法动力学衍射 $\Delta\varphi(x)$ 数值计算中,如何实现

上述设想的示意图。

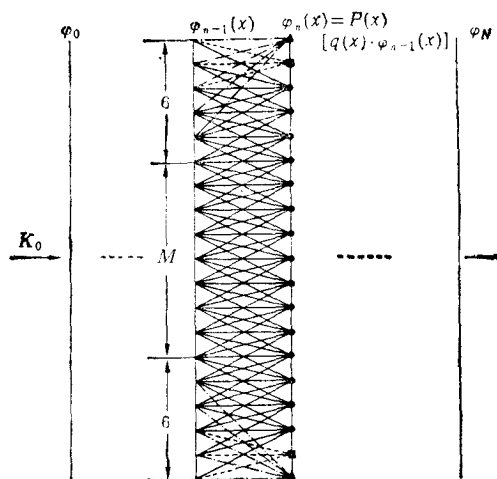
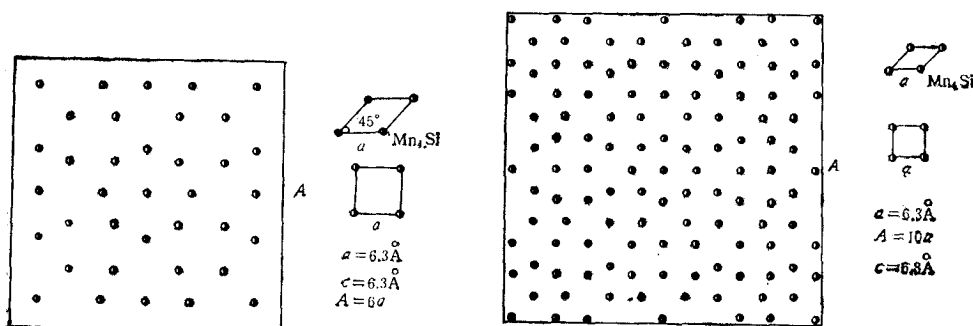


图1 RSMSN 法中 $\Delta\varphi(x)$ 数值计算过程示意图 $\varphi_n(x)$ 可由 $\varphi_{n-1}(x)$ 的相应点通过(5)式(内部采样点●), (6)式(边界采样点 p_1 , ■), (7)式(边界采样点 p_2 , ▲)求出

三、RSMSN 法对非周期结构的象模拟计算结果与 FFTMS 法计算结果的比较

为了验证 RSMSN 法的正确性,对最近发现的 Mn_4Si 二维准晶体^[17]的高分辨电子显微象进行了象模拟计算。这种准晶体具有 8 次对称的 c 轴,沿 c 轴方向具有 6.3 \AA 的周期结构。由于 Mn_4Si 二维准晶体的原子模型尚不太清楚,只能采用图 2 所示的原子团结构模型。



(a) 对于采样点 32×32 , $A = 6a$

(b) 对于采样点 64×64 , $A = 10a$

图2 Mn_4Si 二维准晶体原子团格点“单胞”模型, c 轴为 8 次对称轴, 沿 c 轴方向具有 6.3 \AA 的周期结构

构模型。图 3(见图版 I)对 Mn_4Si 二维准晶体结构模型(图 2)用 FFTMS 法象模拟计算结果。电子束沿 8 次 c 轴方向入射, $\lambda = 0.0251 \text{ \AA}$, $\varepsilon = 6.3 \text{ \AA}$, $C_s = 1.2 \text{ mm}$, $\Delta = 50 \text{ \AA}$, $\alpha = 1.2 \text{ mrad}$, $\Delta f = 0 \text{ \AA}$ (a), $\Delta f = -670 \text{ \AA}$ (b), 对于(a)和 (b) 采样点为 32×32 ,

$\Delta f = -670 \text{ \AA}$ (c), 对于(c)采样点为 64×64 , (c) 为用 INTELLECT-200 (英国) 的“CELLS”软件包象模拟计算的结果。一系列的厚度和欠焦量的模拟象都呈现(b)和(c)的相似结果,除零欠焦外,仅能表现出四次对称性。

图 4(见图版 1) 给出 Mn₃Si 二维准晶体的高分辨电子显微象以及用 RSMSN 法象模拟计算的结果。

图 4 Mn₃Si 二维准晶体的高分辨电子显微象 (b), (d)^[12], 电子束沿 8 次对称 *c* 轴方向入射。利用图 2 所示的结构模型用 RSMSN 法计算的模拟象 (a), (c), $\lambda = 0.0251 \text{ \AA}$, $\varepsilon = 6.3 \text{ \AA}$, $C_s = 1.2 \text{ mm}$, $\Delta = 50 \text{ \AA}$, $\alpha = 1.2 \text{ mrad}$, $\Delta f = -1400 \text{ \AA}$, 对于(a)采样点为 $(32 + 12) \times (32 + 12)$, 对于(c)采样点为 $(64 + 12) \times (64 + 12)$ 。为了形象地突出成象的结构特点(如 8 次对称性等),在白象点上画了○,在(b), (d)中,还用白线将它们联结起来。

比较图 3 与图 4, 容易发现,就 Mn₃Si 模拟计算结果来看, RSMSN 法比通常所用的 FFTMS 法好得多。由于在边界采样点上使用了周期性边界条件, FFTMS 法的象模拟结果呈现 4 次对称性,这显然是不符合实际情况。

四、结 论

1. 目前对非周期结构的象模拟计算大都采用 FFTMS 法,为了克服 FFTMS 法固有的周期性边界条件的影响,往往选取相当大的“单胞”,同时在单胞内选取相当多的取样点,这不仅大大地延长了象模拟计算的时间,而且从原理上讲也是不合理的。

2. RSMSN 法提供了一种用于非周期结构象模拟计算的新方法。从图 4 可见,即使在采样点较少的情况下,如在 32×32 或 64×64 点时,仍然与实验得到的高分辨电子显微象符合较好,结果是令人满意的。

3. 由于(1)~(7)式对周期结构也是适用的,所以 RSMSN 法也可以用于周期结构的象模拟计算。

曹巍硕士为本文提供了 Mn₃Si 二维准晶体高分辨电子显微象,郭可信教授进行了指导,作者表示衷心感谢。

- [1] P. Goodman and A. F. Moodie, *Acta Cryst.*, **A30** (1974), 280.
- [2] J. M. Cowley and A. F. Moodie, *Acta Cryst.*, **10** (1957), 609.
- [3] J. M. Cowley and A. F. Moodie, *Proc. R. Soc., London*, **71** (1958), 533.
- [4] J. M. Cowley and A. F. Moodie, *Acta Cryst.*, **12** (1959), 353.
- [5] J. M. Cowley and A. F. Moodie, *Acta Cryst.*, **12** (1959), 360.
- [6] K. Ishizuka and N. Uyeda, *Acta Cryst.*, **A33** (1977), 740.
- [7] P. G. Self *et al.*, *Ultramicroscopy*, **11** (1983), 35.
- [8] D. Van Dyck and W. Coene, *Ultramicroscopy*, **15** (1984), 29.
- [9] W. Coene and D. Van Dyck, *Ultramicroscopy*, **15** (1984), 41.
- [10] W. Coene and D. Van Dyck, *Ultramicroscopy*, **15** (1984), 287.
- [11] 王元明、陈江华、胡天宝, *物理学报*, **38**(1989), 1521.
- [12] P. A. Doyle, P. S. Turner, *Acta Cryst.*, **A29** (1968), 390.
- [13] A. F. De Jong *et al.*, *Ultramicroscopy*, **23** (1987), 3.

- [14] Wang Y. M. (王元明) and Chen J. H. (陈江华), *Phil. Mag.*, **A58** (1988), 817.
[15] Zeng X. (曾晓彪), Wang Y. (王元明) and Jing Z. (金世雄), *J. Appl. Cryst.*, **21**(1988), 369.
[16] Wang Y. *et al.*(王元明等), *Phil. Mag. Letters*, **61** (1990), 29.
[17] Cao W. (曹巍) and Ye H. Q. (叶恒强), *Phys. Status Solidi*, (a) **107** (1988), 511.

A NEW METHOD FOR SIMULATING HIGH RESOLUTION ELECTRON MICROSCOPE IMAGES FROM NON-PERIODIC OBJECTS

WANG YUAN-MING HU TIAN-BAO CHEN JIANG-HUA ZENG XIAO-BIAO

*Laboratory of Atomic Imaging of Solids,
Institute of Metal Research, Academia Sinica, Shenyang, 110015*

(Received 8 November 1989)

ABSTRACT

It is shown that the dynamical diffraction calculation using periodic extension of the sampling boundary points leads to serious and artificial errors in the High Resolution Electron Microscope (HREM) image simulation for a non-periodic object in FFT Multi-Slice (FFTMS) method which is now routinely used for the simulation of HREM images from periodic objects.

In a systematic study of the problem of induced numerical artifacts, a new method has been proposed for the HREM image simulation of non-periodic objects. It is based on some improvements in the calculation of the phase grating and the propagation operator to the Real Space Multi-Slice (RSMS) method, which are compatible with a non-periodic object.

It can be seen from the comparison with the experimental HREM images that much more better agreement can be obtained by using Real Space Multi-Slice method for Non-periodic objects (RSMSN).

PACC: 6116D