

实空间高分辨象模拟计算中的动态收敛判据*

朱仕学 王元明 王少青 阎德勤 金志雄

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

1992年1月10日收到

给出实空间多片层(RSMS)法的动态收敛判据(RSMSD法), 利用与晶体结构有关的截断条件, 动态地确定了每两片层间传播因子的展开级数, 完全克服了RSMS法固有的发散问题。RSMSD法的计算结果与快速傅里叶变换多片层(FFTMS)法的相应结果符合很好, 这说明动态收敛判据是正确、有效的。

PACC: 6116D

一、RSMS法存在的问题

高分辨象模拟计算是正确诠释高分辨电子显微象的必要手段。目前, 国际上通用的FFTMS^[1,2]法由于采用了在边界采样点周期性延伸的假设, 原则上不能用于非周期结构, 而RSMS法固有的发散问题^[3], 又阻碍了这种理论上是正确的, 而实际数值计算中难以得到圆满结果方法的普及。

RSMS法动力学衍射计算的基本公式^[4-7]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 $\varphi_n(\mathbf{R})$ ^[4,13]为

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

式中传播因子

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

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

相光栅函数

$$Q_n(\mathbf{R}) = \exp[i\lambda/4\pi \cdot V_n^p(\mathbf{R})],$$

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

式中 ε 为片层厚度, k 为相对论电子波矢, $V_n^p(\mathbf{R})$ 为 $(n-1)$ 层至 n 层间势场 $V(x, y, z)$ 沿入射电子束方向(z 方向)在第 n 层上的投影。

* 国家自然科学基金资助的课题。

为了计算方程(1)中的 $\varphi_n(\mathbf{R})$, 需要求出传播因子 $P(\mathbf{R})$, RSMS 法 $P(\mathbf{R})$ 取有限级数近似形式, 如何决定展开阶数, 是 RSMS 法成功与否的关键. Sturkey^[8,9] 较早提出的散射矩阵法 (scattering matrix) 也遇到同样的问题. 为了得出合理的收敛判据, 前人做了不少工作^[5,10-13], 由于这些判据没有考虑波函数传播过程中随厚度的变化细节, 因而, 对不同原子或原子团构成的不同结构的晶体动力衍射计算结果可信度差别很大, 一般而言对轻原子或原子团构成的晶体结果较好, 重原子或原子团构成的晶体结果较差.

二、RSMS 法动力衍射计算中的动态收敛判据

RSMS 法动力衍射计算已发表的收敛判据, 均未仔细地考虑由于原子或原子团的散射因子和晶体结构的不同, 波函数在传播过程中的变化, 以及束发射角对 x, y 方向取样间隔的制约等对数值计算的影响, 因而缺乏普适性. 这是实空间法难以普及的主要原因.

在我们的动力衍射计算中, 采用

$$DP_m = \left| \frac{[P_m(\mathbf{R}) - P_{m-1}(\mathbf{R})]Q_n(\mathbf{R})\varphi_{n-1}(\mathbf{R})}{P_m(\mathbf{R})Q_n(\mathbf{R})\varphi_{n-1}(\mathbf{R})} \right| \leq C, \quad m = 2, 3, \dots \quad (2)$$

作为收敛判据, 式中 C 为大大小于 1 的常数, 通常取 0.01 或 0.001 即可. $P_m(\mathbf{R})$ 为传播因子展开式的 m 级近似表达式. 一旦 C 确定后, m 即可求出.

从动态收敛判据(2)式中可以看出, m 随 $\lambda, \varepsilon, Q_n(\mathbf{R}), \varphi_{n-1}(\mathbf{R})$ 的改变而变化, 这就是说即使 λ, ε 确定后, 对于不同的片层由于相光栅的不同, 波函数的改变, m 可能取不同的值, 以满足收敛判据的要求, 这就保证了入射波, 经衍射、传播的交替过程全程中, 数值计算的收敛性.

在选取沿电子束入射方向片层厚度 ε 和晶体表面 (x - y 平面) 取样间隔 δ 时要考虑构成晶体或非晶体结构原子或原子团散射因子的大小, 还应满足束发射角 α 的制约,

$$\varepsilon \leq \frac{\delta}{\alpha}.$$

给出 δ 后, ε 的上限.

在传播因子的 $\Delta\varphi$ 计算中, 仍然沿用王元明^[14]等人导出的精确数值求导公式, 其一维形式的表达式为

$$\Delta\varphi(x) = \frac{1}{12\delta^2} \{16[\varphi(x+\delta) + \varphi(x-\delta)] - \varphi(x+2\delta) - \varphi(x-2\delta) - 30\varphi(x)\}. \quad (3)$$

(3)式与精确的二阶导数 $\frac{d^2\varphi}{dx^2}$ 的偏差约为 $\frac{8\delta^4}{6!} \cdot \frac{d^6\varphi}{dx^6}$ (RSMS 中常规使用的差分方法^[11]与精确的二阶导数偏差值为 $\frac{\delta^2}{12} \cdot \frac{d^4\varphi}{dx^4}$).

三、计算结果

图 1 至图 4 分别给出 Si, Ge, Cu, Au 采用动态收敛判据的 RSMS 法动力衍射计算

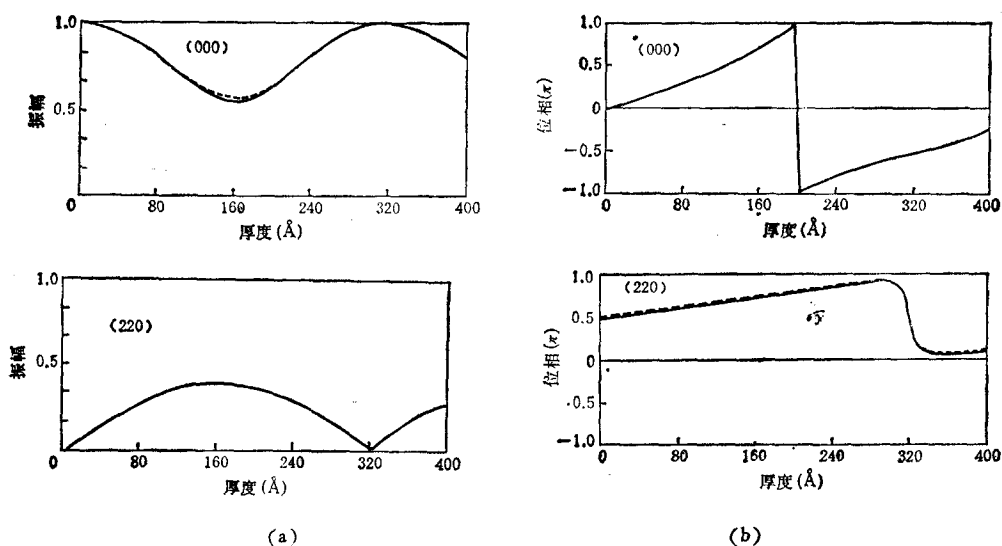


图1 Si[001] 晶体的动力学衍射束(000),(220)的振幅 (a) 和位相 (b) (单位为 π) 与片层厚度的关系曲线 $\lambda = 0.0251 \text{ \AA}$; $s = 5.43059 \text{ \AA}$; 取样点数为 32×32 , 虚线为 FFTMS 法; 实线为 RSMDS 法

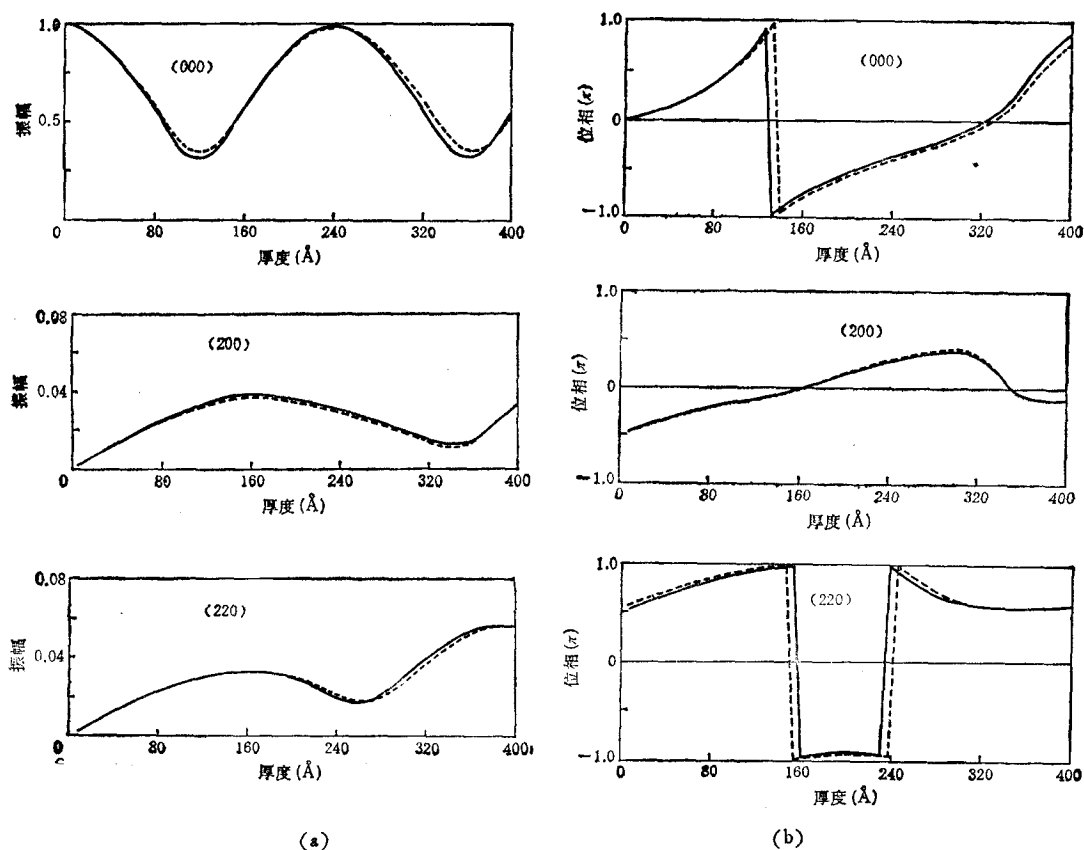


图2 Ge[001] 晶体的动力学衍射束(000),(200),(220)的振幅 (a) 和位相 (b) (单位为 π) 与片层厚度的关系曲线 $s = 6.98 \text{ \AA}$; 其余图注同图1

结果以及与 FFTMS 多片层法的对比实验,从图中可见,不论振幅或位相,两种方法结果都符合很好。

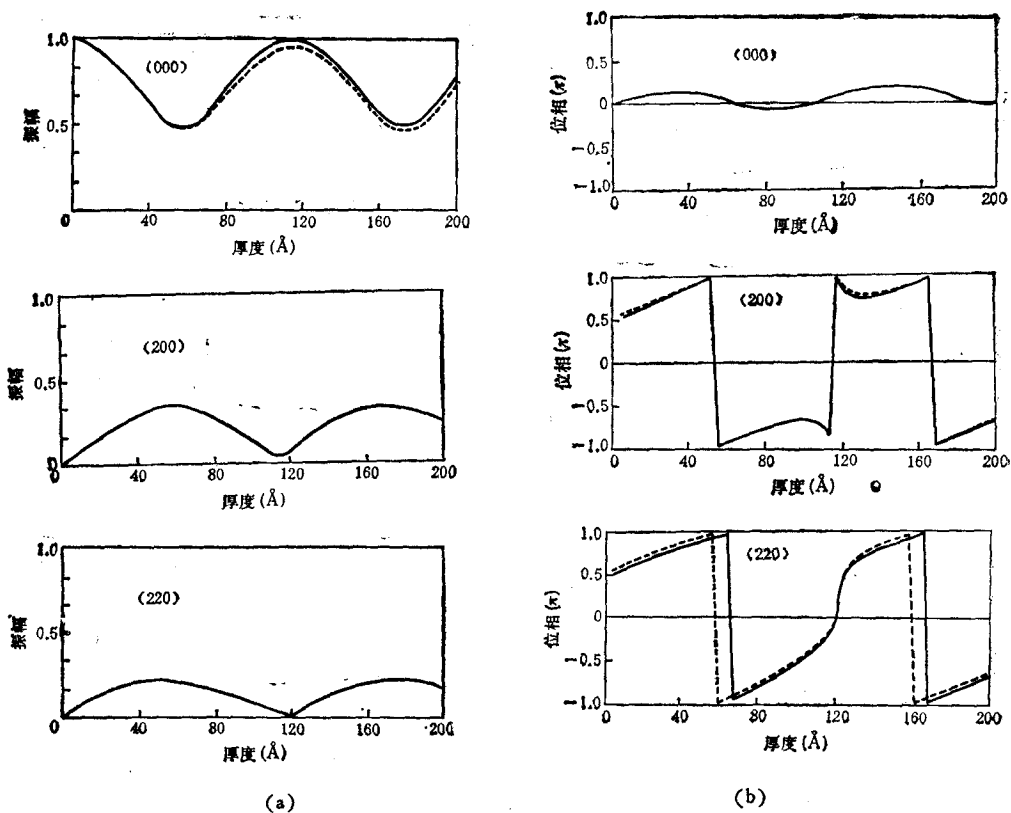


图3 Cu[001] 晶体的动力学衍射束 (000) , (200) , (220) 的振幅 (a) 和位相 (b) (单位为 π) 与片层厚度的关系曲线, $s = 3.6153 \text{ \AA}$; 其余图注同图 1.

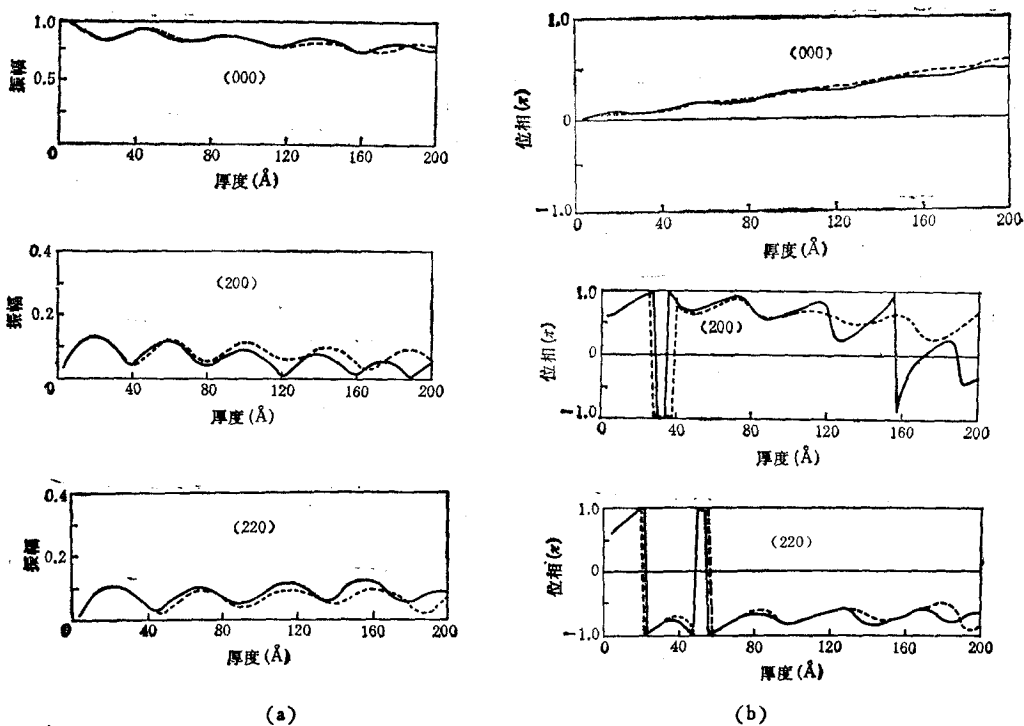


图4 Au[001] 晶体的动力学衍射束 (000) , (200) , (220) 的振幅 (a) 和位相 (b) (单位为 π) 与片层厚度的关系曲线 $s = 2.03915 \text{ \AA}$; 取样点数为 64×64 ; 其余图注同图 1

实际上,即使在弹性散射假设的前提下,电子束与晶体动力衍射过程也不是严格的能量守恒过程,随着电子波的衍射和传播其能量逐渐损失。而 FFTMS 法本身假设上述过程是能量守恒的,显然,FFTMS 法动力衍射计算的结果难以与采用传播因子级数展开,也就是假设有能量损失的 RSMS 法结果相一致。当构成晶体的原子或原子团散射因子增大时,这种不一致性就更加明显,Au 的动力衍射结果就说明了这一点。目前,还不能定量地描述动力衍射中电子束能量损失过程,因而也难以从两种方法结果的不一致性(如 Au)来判明哪一种方法更正确。

四、结 论

1. 第三节给出的计算结果和对比实验表明,在 RSMS 法动力衍射计算中,只要满足动态收敛判据,数值计算就不会发散,即使对重原子或原子团组成的结构(如 Au),RSMS 法与 FFTMS 法的对比实验结果也是令人满意的,这比 Kilaas^[11]等人,Self^[10]等人, Van Dyck^[4]等人给出的结果好得多。

2. 本文给出的动态收敛判据,不仅合理、有效,而且易于编程,有利于 Van Dyck 提出的实空间法动力衍射理论的实用化。

3. 由于常规 RSMS 法固有的发散问题,目前国际上,仍然沿用 FFTMS 法进行非周期结构(如准晶)的象模拟计算,实验证明^[14,15] FFTMS 法在边界采样点上使用周期性边界条件的假设会对象模拟结果带来严重的误差。相反,RSMS 法并不需要对边界条件作特殊的假设,因而满足动态收敛判据的 RSMS 法提供了一种用于非周期结构(包括周期结构)象模拟计算的新方法。

- [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] P. G. Self, *J. Microscopy*, **127**(1982), 293.
- [4] D. Van Dyck, *J. Microscopy*, **119**(1980), 141.
- [5] D. Van Dyck and W. Coene, *Ultramicroscopy*, **15**(1984), 29.
- [6] W. Coene and D. Van Dyck, *Ultramicroscopy*, **15**(1984), 41.
- [7] W. Coene and D. Van Dyck, *Ultramicroscopy*, **15**(1984), 287.
- [8] L. Sturkey, *Acta Cryst.*, **10**(1957), 858.
- [9] L. Sturkey, *J. Phys. Soc. Japan* **17 Suppl.**, BII(1962), 92.
- [10] P. G. Self, M. A. O'keefe, P. R. Buseck and A. E. C. Spargo, *Ultramicroscopy*, **11**(1983), 35.
- [11] R. Kilaas and R. Gronsky, *Ultramicroscopy*, **11**(1983), 289.
- [12] Qu Hua (曲华) and Wang Yuan-ming (王元明), *Phil. Mag.*, **B56**(1987), 361.
- [13] Wang Y. M. (王元明) and Chen J. H. (陈江华), *Phil. Mag.*, **A58**(1988), 817.
- [14] 王元明、胡天宝、陈江华、曾晓彪, *物理学报*, **39**(1990), 1407.
- [15] Wang Yuan-Ming (王元明) *et al.*, *Phil. Mag. Lett.*, **61**(1990), 29.

A DYNAMICAL CONVERGENCE CRITERION FOR THE REAL-SPACE MULTI-SLICE IMAGE SIMULATION METHOD

ZHU SHI-XUE WANG YUAN-MING WANG SHAO-QING YAN DE-QIN JIN ZHI-XIONG

Laboratory of Atomic Imaging of Solids,

Institute of Metal Research, Academia Sinica, Shenyang 110015

(Received 10 January 1992)

ABSTRACT

This paper gives a new dynamical convergence criterion (RMSD) in the real space multi-slice (RSMS) method, which imposes a practical restriction in choosing dynamically the expansion order for the propagator between each pair of slices by using a structure-dependent truncation condition, so as to avoid the intrinsic computational divergence problem of the original RSMS method. The validity of the RMSD method for dynamical diffraction calculation in HREM has been rigorously examined. It has been found that, when the dynamical criterion is satisfied, the RMSD method gives results in good agreement with those obtained by using fast Fourier transform multi-slice (FFTMS) method but avoiding the computing divergence which can arise in the RSMS method.

PACC: 6116D