

高分辨电子显微象实空间象 模拟方法的改进

王元明 陈江华 胡天宝

中国科学院金属研究所固体原子象实验室

1988 年 11 月 7 日收到

在深入研究高分辨实空间象模拟方法的基础上,本文导出了一个通用的收敛判据. 这个判据确定了实空间象模拟计算中,在 x - y 平面上的取样间距 δ 和在电子束入射方向上片层厚度 ϵ 的依赖关系,从而有效地克服了实空间法中存在的发散问题. 此外,还给出了精确计算传播因子的新公式,并在动力学衍射计算中获得了和传统的 FFT 多片层法符合很好的结果.

一、实空间多片层法简介

近代的电子显微镜使人们可以在电子显微镜中直接观察固体中原子尺度的微观结构,从而获得周期结构(晶体)和非周期结构(晶体缺陷,准晶等)的高分辨电子显微象. 为了正确地解释高分辨电子显微象(HREM 象),并建立迅速而可靠的象模拟计算方法,前人已经作过不少的工作^[1]. 1957 年, Cowley 和 Moodie^[2] 首先提出动力学衍射的多片层法(MS 法), MS 法的计算时间正比于 $N^2 \times M$, N 是计算中所选取的动力学衍射束数目, M 是多片层的片层数目. 后来, Ishizuka 和 Uyeda^[3] 借用快速傅里叶变换方法(FFT)把运算时间减少到 $N \log_2 N \times M$ (FFTMS 法). 1980 年左右, van Dyck 等人^[4-7] 从定态 Schrödinger 方程出发,提出了一种运算时间正比于 $N \times M$ 的实空间多片层法(RSMS 法). RSMS 法简介如下:

在高速电子入射情况下 ($E \gg U(\mathbf{r})$, E 为入射电子能量, $U(\mathbf{r})$ 为晶体势场), 晶体中的电子波函数 $\phi(\mathbf{r})$ 可以写成调制波函数形式

$$\phi(\mathbf{r}) = \varphi(\mathbf{r}) \exp(2\pi i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}),$$

式中 $\varphi(\mathbf{r})$ 为调制波函数. 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 , 而且这些片层平行于入射平面时, 定态 Schrödinger 方程的积分迭代解, 即到达第 n 层的调制波函数 $\varphi_n(\mathbf{r})$ 为^[8,9]

$$\varphi_n(\mathbf{r}) = \rho(\mathbf{r}) \cdot [q_n(\mathbf{r}) \cdot \varphi_{n-1}(\mathbf{r})]. \quad (1)$$

这里传播因子: $\rho(\mathbf{r}) = \exp(i\lambda/4\pi \cdot \epsilon \Delta)$,

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

相光栅函数: $q_n(\mathbf{r}) = \exp[i\lambda/4\pi \cdot V_n^p(\mathbf{r})]$,

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

这里 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 层间势场沿入射电子束方向 (Z 方向) 在第 n 层上的投影. (1) 式为 RSMS 法的基本公式, 从入射面出发, 通过 (1) 式反复迭代就可求出出射面的调制波函数.

二、对 RSMS 法的改进

从理论上讲, RSMS 法是完善的, 可是在实际的数值计算中是发散的^[10,11]. Kilaas 和 Gronsky^[12] 指出当片层厚度 ε , 倒空间中的最大取样范围 g_{\max} 满足关系式

$$\lambda \varepsilon g_{\max}^2 < 1/2$$

时, RSMS 法的计算才不会发散, 并能得到与 MS 法符合较好的结果. 稍后, van Dyck 和 Coene^[13] 又提出一个 S^2 误差判据, 并得到了与 Kilaas 和 Gronsky 相似的结论. 总之, 在传统的 RSMS 法中, 为了避免发散, 并取得满意的结果, 在同样取样点数的条件下, RSMS 法所选取的片层厚度要比 MS 法的薄得多, 而片层厚度变薄就意味着增加计算时间, 这是 RSMS 法不能完全代替 MS 法的主要原因之一. 1986 年作者与其合作者, 针对这一问题曾提出“准实空间象模拟方法”^[18,11], 但是象模拟计算结果, 仍不够理想, 为此我们又导出了如下实空间法的收敛判据, 并对传播因子的精确计算作了深入的研究.

1. 实空间多片层法中的通用收敛判据^[9]

为了对方程 (1) 进行数值计算, 需要将传播因子 $\rho(\mathbf{r})$ 展开成级数形式. 在假设 $q_n(\mathbf{r}) = 1$ 的情况下, (1) 式可写成如下形式:

$$\varphi_n(\mathbf{r}) = \left[1 + \frac{i\lambda}{4\pi} \varepsilon \Delta + \cdots + \frac{1}{n!} \left(\frac{i\lambda}{4\pi} \varepsilon \Delta \right)^n \right] \varphi_{n-1}(\mathbf{r}). \quad (2)$$

在传统的 RSMS 中,

$$\begin{aligned} \Delta \varphi_{n-1}(\mathbf{r}) = & \frac{1}{\delta^2} \{ \varphi[x + \delta, y, (n-1)\varepsilon] + \varphi[x - \delta, y, (n-1)\varepsilon] \\ & - 2\varphi[x, y, (n-1)\varepsilon] \} \\ & + \frac{1}{\eta^2} \{ \varphi[x, y + \eta, (n-1)\varepsilon] + \varphi[x, y - \eta, (n-1)\varepsilon] \\ & - 2\varphi[x, y, (n-1)\varepsilon] \}. \end{aligned} \quad (3)$$

这里 δ, η 分别为 x, y 方向上的取样间距. 不难将 (3) 式 Fourier 变换成

$$\tilde{\Delta \varphi}_{n-1}(\mathbf{g}) = 2 \left[\frac{\cos(2\pi\delta u) - 1}{\delta^2} + \frac{\cos(2\pi\eta v) - 1}{\eta^2} \right] \tilde{\varphi}_{n-1}(\mathbf{g}) \quad (4)$$

式中 $\mathbf{g} = (u, v)$. 设 $\delta \leq \eta$, 显然

$$|\tilde{\Delta \varphi}_{n-1}(\mathbf{g})|_{\max} = 4 \left(\frac{1}{\delta^2} + \frac{1}{\eta^2} \right) \leq \frac{8}{\delta^2}. \quad (5)$$

从 (2) 式的 Fourier 变换形式, 得到 RSMS 法的收敛判据

$$\frac{1}{n!} \left[\frac{i\lambda}{4\pi} \varepsilon |\tilde{\Delta \varphi}_{n-1}(\mathbf{g})_{\max}| \right]^n \leq C. \quad (6)$$

这里 C 为一个大大小于 1 的常数。将 (5) 式代入 (6) 式, 就得到我们称之为 δ - ε 判据的 RSMS 法通用收敛判据

$$\delta^2 \geq \left(\frac{1}{C n!} \right)^{\frac{1}{n}} \cdot \frac{2\varepsilon\lambda}{\pi} \quad (7)$$

从 (7) 式可以看到, 当 x - y 平面上的取样间隔减小时, 为了保证 RSMS 法收敛, 必须减少 z 方向的片层厚度或增加传播因子 $P(\mathbf{r})$ 的展开级数 n 。为简便起见, 我们称满足 δ - ε 判据 (7) 的 RSMS 法为 n -RSMS 法。

表 1 在相同的取样点数 N 及片层厚度 ε 情况下, 用 n -RSMS 法 ((7) 式中的 $C = 1/24$ 时) 与 FFTMS 法进行动力学衍射计算时所花费的时间比

n	2	3	4	5	6
$N = 2 \times 10^2 - 10^3$	1/3	1/2	2/3	5/6	1
$N = 3 \times 10^3 - 3 \times 10^4$	2/9	1/3	4/9	5/9	2/3
$N = 4 \times 10^4 - 10^5$	1/6	1/4	1/3	5/12	1/2

表 1 列出在相同的取样点数 N 和片层厚度 ε 情况下, 用 n -RSMS 法与 FFTMS 法进行动力学衍射计算时所花费的时间比^[9]。实际计算表明^[9], $n = 2, 3, 4, 5$ 最多不会超过 6 时, 就可以获得与传统的 FFTMS 法符合较好的 n -RSMS 法的结果。从表 1 可见, 从运算时间来讲, n -RSMS 法还是有竞争力的。

2. 传播因子 $P(\mathbf{r})$ 的精确计算

实际计算表明^[8,9,12], 不论 RSMS 法或 n -RSMS 法, 动力学衍射计算所得到的振幅和位相与片层厚度变化曲线的‘周期’都小于 FFTMS 法的结果, 我们认为这是由于传播因子的数值计算不精确所致。从 (2) 式可见, 为了精确计算传播因子, 关键问题是尽量准确地求出 $\Delta\varphi(\mathbf{r})$ 的数值。在 RSMS 法中^[12] $\Delta\varphi(\mathbf{r})$ 用差分形式 (3) 式计算, 如果写成一维形式

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

这里 δ 为 x 方向的取样间隔。解析计算表明, $D_1(x)$ 与精确的二阶导数值 $\frac{d^2\varphi}{dx^2}$ 的偏差约为 $\frac{\delta^4}{12} \cdot \frac{d^4\varphi}{dx^4}$ 。实际上更精确的数值计算公式为

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

$D_2(x)$ 与精确的二阶导数值 $\frac{d^2\varphi}{dx^2}$ 的偏差约为 $\frac{8\delta^4}{6!} \frac{d^6\varphi}{dx^6}$ 。显然, 作为二阶导数的近似表达式, $D_2(x)$ 比 $D_1(x)$ 精确得多。从物理上讲, $D_2(x)$ 表示, 在电子波从一个片层向下一个片层传播过程中, 某一片层的球面波阵面上的电子波振幅和位相与上一片层的五个次级波源有关, 这似乎符合小角衍射的实际情况。

图 1 给出用 $D_2(x)$, $D_1(x)$ 计算 $\Delta\varphi(x)$ 时, 对 Cu[001] 晶体, 用 5-RSMS 法获得

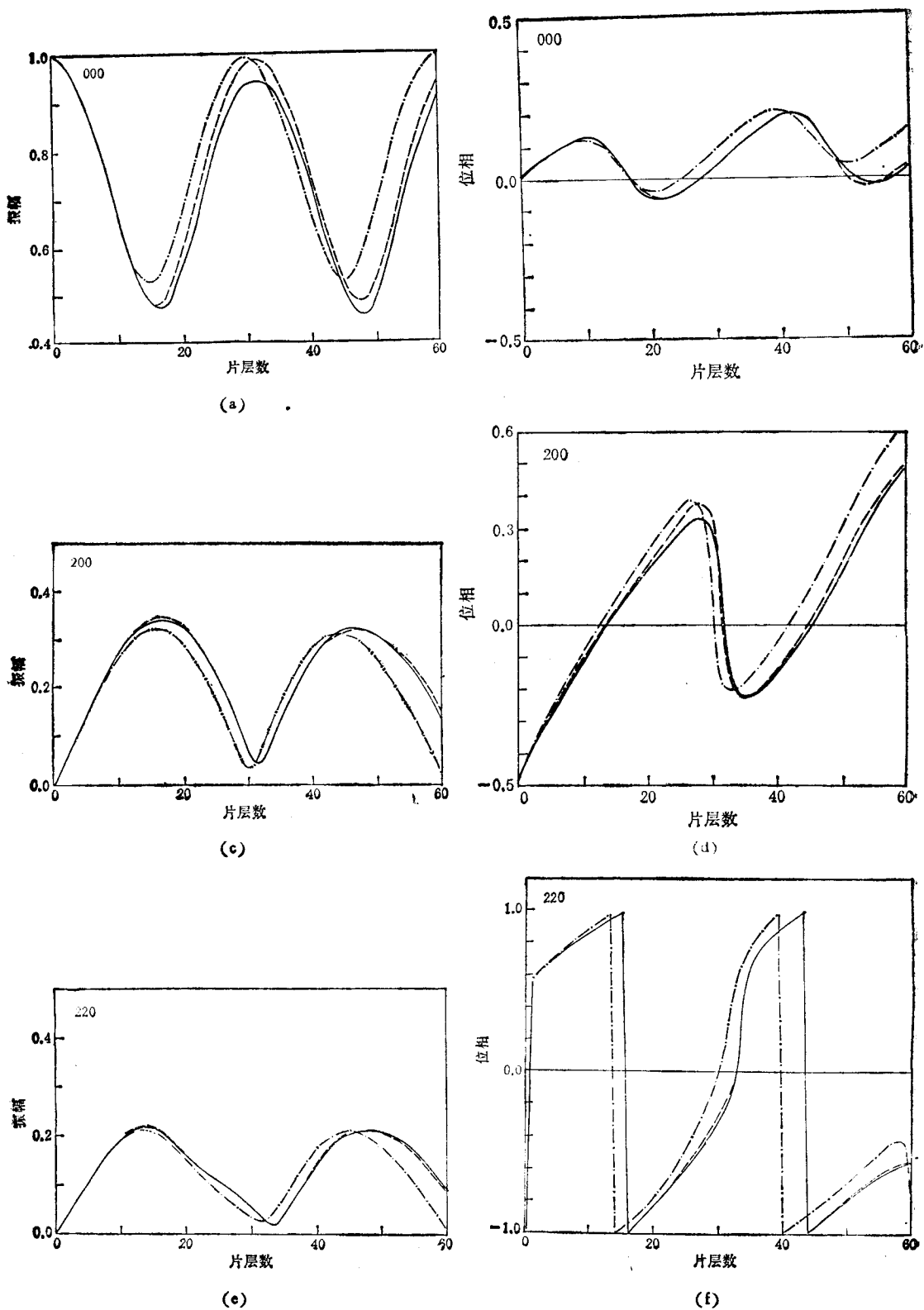


图1 在满足(7)式所给出的 δ - s 判据情况下,用 n -RSMS法和FFTMS法所计算的Cu[001]晶体的动力学衍射束(000),(200),(220)的振幅和位相(单位为 π)与片层的关系曲线。入射电子束波长为 $\lambda = 0.0251 \text{ \AA}$,在[001]方向即电子束入射方向的片层厚度为 $s = 3.6153 \text{ \AA}$,取样点数为 32×32 ;——表示FFTMS法;---表示 n -RSMS法在 $\Delta\varphi = D_1$ 时;-·-表示 n -RSMS法在 $\Delta\varphi = D_2$ 时的计算结果

的(000), (200), (220)衍射束的振幅和位相与片层数关系曲线, 以及它们与常规 FFTMS 法^[13]相应结果的比较。从上述结果可以发现, 在 n -RSMS 法中, 只要满足 δ - ϵ 收敛判据(7)式, 并在数值计算中用 $D_2(x)$ 计算 $\Delta\varphi(x)$, 就可以获得和传统的 FFTMS 法符合很好的结果。

三、结 论

1. 通用收敛判据 (δ - ϵ 判据) 规定了 RSMS 法象模拟计算中取样间隔 δ , 片层厚度 ϵ 和传播因子 $P(r)$ 展开级数 n 的取值范围和它们之间的相互制约关系。只要遵循这个判据就可以有效地抑制 RSMS 法数值计算中存在的发散现象, 并在较少的运算时间内得到与常规的 FFTMS 法几乎相同的结果。 δ - ϵ 判据易于编程序, 有利于实空间理论的实用化。

2. 实际的计算结果表明, 用 $D_2(x)$ 代替 $D_1(x)$ 计算 $\Delta\varphi(x)$, 从而计算传播因子, 不仅在数学上是精确的, 而且在物理上也是合理的。

作者衷心感谢郭可信教授的指导和有益的帮助。

- [1] P. G. Self, M. A. O'keefe, P. R. Buseck and A. E. C. Spargo, *Ultramicroscopy*, **11**(1983), 35.
- [2] J. M. Cowley and A. F. Moodie, *Acta Cryst.*, **10**(1957), 609.
- [3] K. Ishizuka and N. Uyeda, *Acta Cryst.*, **A33**(1977), 740.
- [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] Qu Hua (曲 华) and Wang Yuan-ming (王元明), *Phil. Mag.*, **B56**(1987), 361.
- [9] Wang Yuan-ming (王元明) and Chen Jiang-hua (陈江华), *Phil. Mag.*, **A58**(1988), 817.
- [10] P. G. Self, *J. Microscopy*, **127**(1982), 293.
- [11] 王元明、曲华, *物理学报*, **35**(1986), 1489.
- [12] R. Kilaas, R. Gronsky, *Ultramicroscopy*, **11**(1983), 289.
- [13] Xiaobiao Zeng (曾晓彪), Yuanming Wang (王元明) and Zhixiong Jing (金世雄), *J. Appl. Cryst.*, **21**(1988), 369.

A NEW DEVELOPMENT IN THE REAL SPACE HIGH RESOLUTION ELECTRON MICROSCOPE SIMULATION METHOD

WANG YUAN-MING CHEN JIANG-HUA HU TIAN-BAO

Laboratory of Atomic Image of Solids, Institute of Metal Research, Academia Sinica, Shenyang

(Received 7 November 1988)

ABSTRACT

In a detailed study of the problem of induced numerical artifacts in the Real Space (RS) High Resolution Electron Microscopy (HREM) image simulation, a δ - ε criterion in the RS method for simulating HREM images has been derived. This condition imposes a practical limitation in choosing the sampling interval δ and the slice thickness ε for the RS method. It has been found that when the δ - ε condition is satisfied and a much more accurate formula is used for calculating the propagating factor $p(r)$, the RS method gives results in satisfactory agreement with the conventional FFT multi-slice (FFTMS) method, but saving computational time and avoiding the computing divergence that may arise in the RS method.