

用 Sayre 等式复原高分辨电子显微象*

李方华 范海福
(中国科学院物理研究所)

随着高分辨电子显微学的迅速发展,用电子显微镜直接观察结构细节的工作已取得不少进展^[1].目前拍摄结构象需要从实验中选择最佳欠焦条件,为此还需要对试样的结构预先有个基本的了解,这就局限了结构象技术的应用.如果能够从一张显微图中设法求出离焦量、球差和色差等象差,则有可能免去上述限制,而且还有可能进一步改善结构象的质量.Uyeda 和 Ishizuka^[2]提出用尝试计算的办从一张显微图求出离焦量,然后使图象复原.本文建议用 Sayre 等式^[3]从一张显微图中同时求出各种象差以达到复原图象的目的.此方法是将 X 射线单晶体结构分析方法应用于高分辨电子显微图图象处理的一种尝试.

对于弱相位物体,物面波 $\phi_0(\mathbf{r})$ 与被观察试样沿入射电子方向的投影 $\varphi(\mathbf{r})$ 有如下关系:

$$\phi_0(\mathbf{r}) = 1 - i\sigma\varphi(\mathbf{r}), \quad (1)$$

式中 \mathbf{r} 为正空间的坐标矢量, $\sigma = \pi/\lambda U$, λ 为电子波长, U 为加速电压.

考虑到物镜的球差、色差、离焦和入射束发散度的影响,象面波 $\psi(\mathbf{r})$ 应为

$$\psi(\mathbf{r}) = \mathcal{F}^{-1}\{\mathcal{F}[1 - i\sigma\varphi(\mathbf{r})]W(H)\}, \quad (2)$$

式中 \mathcal{F} 和 \mathcal{F}^{-1} 分别表示傅里叶变换和反变换, $W(H)$ 为象差函数,它包括了物镜球差、色差、离焦和入射束发散度对象的影响,

$$W(H) = A(H)e^{i\chi_1}e^{-\chi_2} \frac{2J_1(\chi_3)}{\chi_3}, \quad (3)$$

此处 $A(H)$ 是物镜后焦面上的光阑函数, H 是倒易空间坐标矢量 \mathbf{H} 的长度. $e^{i\chi_1}$ 是象差函数中与球差系数 C_s 和离焦量 Δf 有关的部分,其中

$$\chi_1 = \pi\lambda H^2\Delta f - \frac{1}{2}\pi\lambda^3 H^4 C_s; \quad (4)$$

$e^{-\chi_2}$ 是与色差有关的部分^[4],

$$\chi_2 = \frac{1}{2}\pi^2\lambda^4 H^4 D^2, \quad (5)$$

D^2 为由色差而引起的离焦高斯分布函数的均方差; $2J_1(\chi_3)/\chi_3$ 则是与入射束发散度有关的部分^[5],

$$\chi_3 = |2\pi\alpha[H\Delta f + \lambda(\lambda C_s - i\pi D^2)H^3]|, \quad (6)$$

α 为入射束的半发散角.

象强度

* 1978年6月22日收到.

$$I(\mathbf{r}) = \phi(\mathbf{r})\phi^*(\mathbf{r}). \quad (7)$$

将(2)式代入(7)式并略去 $\phi(\mathbf{r})$ 的二次项得

$$I(\mathbf{r}) = 1 + 2\sigma\phi(\mathbf{r}) * \mathcal{F}^{-1}\{W'(H) \sin \chi_1\}, \quad (8)$$

此处 * 表示卷积, $W'(H)$ 为象差函数扣除球差和离焦影响的部分,

$$W'(H) = 2A(H)e^{-\lambda_2}J_1(\chi_3)/\chi_3. \quad (9)$$

或者象强度

$$I(\mathbf{r}) = 1 + 2\sigma\mathcal{F}^{-1}\{F(\mathbf{H})W'(H) \sin \chi_1\}, \quad (10)$$

$F(\mathbf{H})$ 是 $\phi(\mathbf{r})$ 的傅里叶变换. 对于周期性物体, $F(\mathbf{H})$ 就是结构振幅, \mathbf{H} 是倒易矢量. 对(10)式两端取傅里叶变换得

$$T(\mathbf{H}) = \delta(\mathbf{H}) + 2\sigma F(\mathbf{H})W'(H) \sin \chi_1. \quad (11)$$

若不考虑倒易空间原点, 上式可写成

$$F(\mathbf{H}) = \frac{T(\mathbf{H})}{2\sigma W'(H) \sin \chi_1}. \quad (12)$$

根据 Sayre 等式, 对于晶态物质, 如所含原子序数相差不大, 其结构振幅有如下关系:

$$F(\mathbf{H}) = \frac{A_{\mathbf{H}}}{V} \sum_{\mathbf{H}'} F(\mathbf{H}')F(\mathbf{H} - \mathbf{H}'), \quad (13)$$

$A_{\mathbf{H}}$ 为与 \mathbf{H} 有关的常量, V 为单胞体积. 对于非周期性物体(13)式仍可适用, 只是此时 \mathbf{H} 可以是倒易空间任意一点的坐标矢量, $F(\mathbf{H})$ 则是一个连续函数.

若已知离焦量 Δf 、球差系数 C_s , 由色差引起的离焦高斯分布函数的均方差 D^2 以及入射束的半发散角 α , 则可以按(12)式从象强度的傅里叶变换算出整个倒易空间除原点以外的 $F(\mathbf{H})$. 将这套 $F(\mathbf{H})$ 值代入(13)式右端, 又可以重新求出一套 $F(\mathbf{H})$. 把从(12)式求出的 $F(\mathbf{H})$ 记作 $F_I(\mathbf{H})$, 从(13)式求出的 $F(\mathbf{H})$ 记作 $F_S(\mathbf{H})$. 如果 $\Delta f, C_s, D, \alpha$ 的值都比较准确, 则

$$\sum_{\mathbf{H}} \Delta F^2(\mathbf{H}) = \sum_{\mathbf{H}} [F_S(\mathbf{H}) - F_I(\mathbf{H})]^2$$

应趋近于零. 据此, 我们可以首先近似地给出 $\Delta f, C_s, D, \alpha$ 的初值, 然后用最小二乘法加以修正. 一旦获得比较准确的 $\Delta f, C_s, D$ 和 α , 就可以从(12)式解出较为准确的 $F_I(\mathbf{H})$, 而从 $F_I(\mathbf{H})$ 的傅里叶反变换可求出 $\phi(\mathbf{r})$, 这就等于从显微象复现出被观察物体的结构图象 $\phi(\mathbf{r})$ (图1).

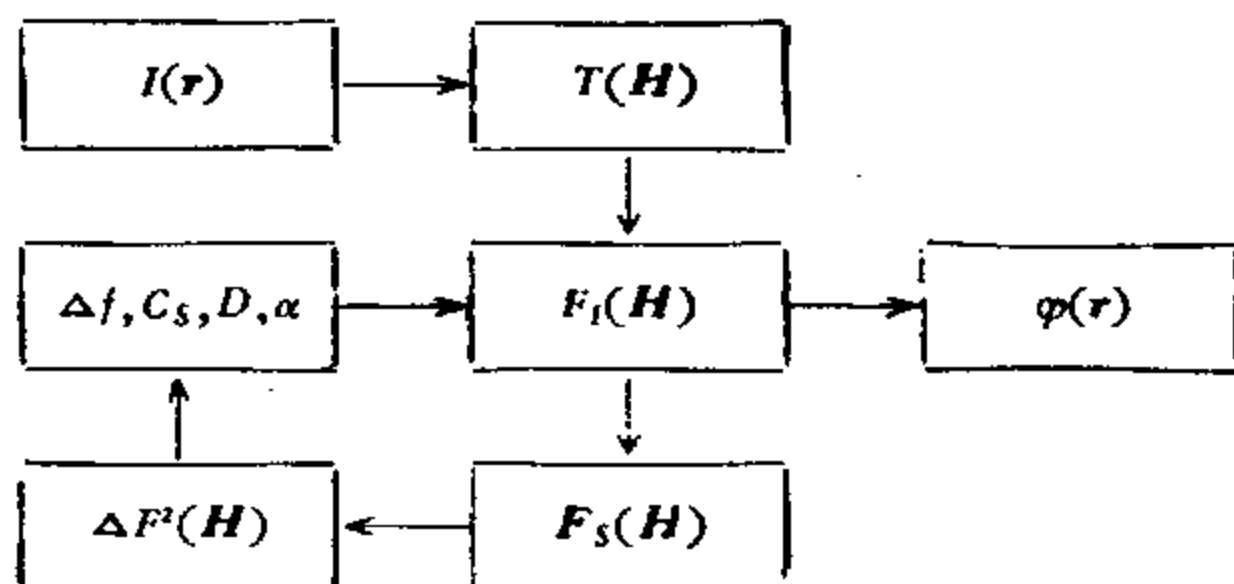


图1 计算框图

与其他方法相比较,本方法的主要特点是可以相当方便地同时处理多种象差,而且计算量较小。此外,在通常的实验条件下,例如当加速电压为 100 千伏,球差系数为 2 毫米,离焦值为 1000 埃时,在倒易空间中 H 等于零至 0.4 埃⁻¹ 的区间内,传递函数 $\sin \chi_1$ 有近十处等于零。Misell 和 Childs^[6] 建议把 $\sin \chi_1$ 等于和接近于零的信息弃去,以抑减由此引进的误差。但这相当于丢弃了一部分结构振幅。而使用 Sayre 等式则还可以从已知的结构振幅推导出被丢弃的部分^[7],这是其他方法不易做到的。

作者对 S. Iijima 博士就本文进行讨论表示感谢。

参 考 文 献

- [1] J. M. Cowley, S. Iijima, *Physics Today*, **30** (1977), 32.
- [2] N. Uyeda, K. Ishizuka, 8th Intern. Congr. Electron Microscopy (1974), vol. 1, p. 322.
- [3] D. Sayre, *Acta Cryst.*, **5** (1952), 60.
- [4] P. L. Fejes, *Acta Cryst.*, **A33** (1977), 109.
- [5] S. Iijima, *Optik*, **48** (1977), 193.
- [6] D. L. Misell, P. A. Childs, *J. Phys. D.*, **5** (1972), 1760.
- [7] 范海福、郑启泰, *物理学报*, **24** (1975), 97.

IMAGE DECONVOLUTION IN HIGH RESOLUTION ELECTRON MICROSCOPY BY MAKING USE OF SAYRE'S EQUATION

LI FANG-HUA FAN HAI-FU

(Institute Physics, Academia Sinica)