

文章编号: 1000-6281(2016)03-0191-010

高分辨原子像中原子峰位置的精确自动判定与 电极化畴的快速可视化*

南 虎¹, 卢江波¹, 刘明¹, 井红梅¹, 汤少杰², 王大威^{1*}, 贾春林¹

(1. 西安交通大学电子与信息工程学院, 陕西 西安 710049;

2. 西安邮电大学自动化学院, 陕西 西安 710121)

摘 要 针对材料原子尺度的量化研究正变得日益重要, 而处理高分辨透射电子显微镜(HRTEM)像耗时耗力的现状, 对计算机自动提取 HRTEM 像原子尺度信息的算法进行了研究, 实现了 HRTEM 像中原子峰位置的自动准确提取; 并在此基础上完成了布拉维格子的自动构建。利用前述两项关键图像信息, 计算了钙钛矿氧化物中原子位置发生的周期性变化和铁电材料中电极化畴翻转等重要物理量, 实现了对材料中晶胞尺度晶格形变的量化分析, 以及形变和畴结构的快速可视化。当涉及大量图像处理时, 其所实现的晶胞尺度晶格形变和畴结构的定量测量与快速可视化方法为分析材料原子及纳米尺度性能提供了一种强有力的分析手段。此外, 自动提取 HRTEM 原子像信息也为后续探索模拟像和实验像的自动匹配及确定精确成像参数与真实原子位置打下了基础。

关键词 高分辨电子显微像; 图像处理; 单胞尺度晶格形变; 可视化; 定量表征

中图分类号: TG115.21⁺5.3; O766⁺.1; TM22⁺1 文献标识码: A doi: 10.3969/j.issn.1000-6281.2016.03.001

球差校正技术的出现使得高分辨透射电子显微镜(HRTEM)技术成为研究材料结构强有力的方法和手段^[1-2]。目前, 球差校正高分辨电镜在空间分辨率上已达到几十个皮米^[3]。利用这一研究工具, 晶格缺陷、界面纳米区域的原子位置和化学占位等重要信息都可以进行高精度的定量研究, 使得在原子尺度上进行凝聚态物理和材料科学的研究成为现实。

为实现这样高精度的实验研究, 一个重要的基础性工作是根据电镜照片中图像强度的分布精确地确定原子位置, 这是在原子尺度上将材料研究量化的基础^[4], 并已经在实践当中显示出其重要性。例如, 贾春林等利用负球差电镜成像技术, 精确量化研究了 Pb(Zr_{0.2}, Ti_{0.8})O₃ 外延薄膜 180°畴壁附近的原子排列方式, 测量了横向和纵向畴壁的宽度以及其中电偶极子的扭曲, 在此基础上计算了局部极化, 第一次报道了带电畴和非带电畴具有显著不同的原子排列方式^[5]。最近, 高分辨电镜成像手段在物质的三维重构中又展现出了重要的作用, 通过计算单张 MgO 图像的原子强度等信息, 仅用一张图像就重

构出了纳米尺度 MgO 的三维模型^[6]。这些结果的取得得益于 HRTEM 像能够记录原子柱坐标的重要信息, 从而直观地表征材料在纳米尺度的原子排列结构。通过对图像衬度信息的定量表征, 可以标定原子的真实位置, 准确获得有关材料的结构信息, 为进一步研究材料的其它原子尺度的结构特征奠定基础, 包括物质的晶格结构、缺陷组构、三维形貌等。另一个重要的例子是对催化反应中催化剂表面原子排列的研究。充当催化剂的纳米颗粒其作用不仅取决于其化学组份, 还极大地取决于纳米颗粒表面原子的排列方式, 因此对于纳米催化颗粒原子位置的定量测量就极为重要。基于负球差成像技术, 在最佳成像条件下, 原子像为亮的强度峰, 分布在较暗的衬底中。在扫描透射环形暗场像中(HAADF-STEM), 原子像表现为像中的亮点, 其强度近似与原子序数的平方成正比。在本文中, 亮衬度区域代表原子位置, 并称与原子对应的强度峰为原子峰。现阶段, 大部分获得图像中原子坐标的方法是通过图像中衬度分布的测量, 确定单个原子占据区域, 在此区域内采集一系列离散的数据点, 在认为原子峰

收稿日期: 2015-09-25; 修订日期: 2015-11-10

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(No. 51390472, No. 11574246, No. 51501143); 国家重点基础研究发展计划(973 计划)项目(No. 2015CB654903); 中国博士后科学基金资助(No. 2015M572554)。

作者简介: 南虎(1991-), 男(汉族), 甘肃人, 硕士。E-mail: nwanhu@163.com

* 通讯作者: 王大威(1978-), 男(汉族), 河南人, 副教授。E-mail: dawei.wang@mail.xjtu.edu.cn

具有高斯分布模式的前提下,通过高斯函数进行拟合,以得到符合高斯分布的光斑中心位置,此即为 HRTEM 像中原子峰中心的位置。实际上,研究工作往往涉及大量的上述图像处理过程,因此原子峰位置的拟合工作量十分庞大。此外,还应注意,对同一张 HRTEM 原子像,专家和初学者所能看到的信息相差很多。由于经验的积累,专家可以很敏锐地从图像中看出例如晶格应变、化学成份变化等信息,但初学者往往难以获得同样的判断。如果能以清晰、可见的形式将图中所蕴含的信息表现出来,则可以降低电镜图像分析的门槛,更为直观、形象的表征材料中的单胞尺度结构特点,使得这一材料研究中的有力工具获得更有效、更好地使用。

HRTEM 像中原子峰坐标精确判定所需的庞大工作量是制约此类研究的技术瓶颈之一。解决这一技术问题,准确、高效(最好是自动化)地得到图像中原子的坐标变得十分迫切。本文通过开发和运用计算机图像处理技术,结合近年来二维纹理图像处理领域的新进展,开发出了新颖、实用的算法,编制了适用于 HRTEM 原子像处理的专用计算机程序,实现了图像中原子精确位置判定的自动化。更进一步,利用这一方法实现了对 PbTiO_3 大范围的电极化畴的快速可视化和原子尺度晶格形变的定量表征,以及对钙钛矿结构钇氧化物中周期性晶格调制的定量分析。通过本文文中的解释和所给的例子,将不难看出这一方法可以帮助材料研究工作者快速验证猜想;帮助初学者更简便、直观的观察、理解图像所包含的信息,在一定程度上弥补初学者与专家之间的差距。

本文首先简要介绍进行原子峰精确位置自动判定的方法(第 1 章);然后,通过例子说明这一原子标记方法的应用(第 2 章),包括材料结构的量化研究和畴结构的可视化、定量表征等;最后,给出结论和简要的展望(第 3 章)。

1 通过图像处理实现原子精确位置判定

实现 HRTEM 像中原子峰精确位置的自动判定在本质上是利用计算机程序实现人类视觉的功能,而这是一件极具挑战性的任务。正如 Sonaka M 指出的“目前的情况仍然是我们自己的大脑是对‘视觉问题’的唯一解答!”^[1]。为了应对这一挑战,研究人员需要编制程序,通过几何、物理和学习理论进行建模,利用统计方法分析图像数据,得到有用的结

论,这实际上是在一定程度上模仿了人类的视觉能力^[1]。为了实现这一目标,需要在不同层次上对图像进行处理:(1) 低层处理方法关心图像本身而非图像蕴含的内容。一般包括图像压缩、滤波、边缘提取等相对简单的内容;(2) 高层处理取决于处理者的目标,已有知识等,是试图模仿人类认知的一个过程^[1]。毫无疑问,对 HRTEM 像的处理既包含了图像的低层处理,特别是图像的滤波、角点检测等,又包括了图像的高层处理,包括原子峰的识别、原子峰位置的确定,以及最终对电镜图像的分析、理解。

除了通常的低层图像算法之外,在研究过程中也认识到电镜图像处理的一个关键问题是物体(单个原子像)的识别和物体图像的分析、理解。为了实现这一目标,最一般的方法是模式识别,根据所寻求物体的一定特征将物体从图像中分离出来,并根据图像判定物体是否属于某一特定类别。

具体到 HRTEM 像的自动化处理,首先需要知道人脑是如何分辨出 HRTEM 像中的原子峰。一般认为,人脑是根据一系列的条件将像素组织起来而理解为物体的。这些条件包括相近度、相似性、占有共同区域、平行特性、连续性等^[1]。对于研究中出现最多的情况,也就是比较完整的晶体,本文认为人脑在认知原子尺度晶体材料的 HRTEM 像时是基于三个方面的信息实现单个原子峰从图中的切割(也就是分辨原子存在与否):(1) 像强度信息;(2) 轮廓(峰形状)信息;(3) 周期性假定。毫无疑问,在设计电镜图像信息自动提取算法时应该遵从这些原则实现原子峰的识别。

首先,利用图像的强度信息执行角点检测,检测出强度值(在图像中表现为亮度)在两个方向上均为极大值的点作为候选原子点;其次,是利用晶体物理学的基本理论,通过对候选原子点进行统计求出相应布拉维格子的基矢,之后利用周期性初步预测原子在整张图中的分布;最后,利用原子的像大多是圆形,且在强度上类似高斯分布的特点,以初步估计的原子峰位置为出发点,逐点进行高斯拟合,实现图像中原子峰位置的精确标定。在前面所有工作的基础上,对复杂图形,例如晶胞内存在两种以上原子的图像在晶胞内进一步搜索,获得所有原子峰点的精确位置。

自然界具有宏观对称性的晶体,其组成方式总共有 7 大晶系,14 种布拉维晶格^[2],当它们在电镜下成像于二维平面时,其所对应的所有的 HRTEM 像都具有二维周期性的结构特点。从这个角度说,

这些图像属于二维纹理图像的一个特殊类别, 因而 HRTEM 像原子峰坐标的提取问题可以归类于图像处理问题中二维纹理图像处理的范畴。然而, 值得注意的是, 二维纹理图像(特别是包含形变、缺陷的纹理图)处理本身也不是一个平凡的问题, 到目前为止并没有简单、普适的解决方案^[9-10], 因而需要采用不同的方案解决具体问题。下面本文逐一讨论根据这一思路获得原子精确位置的具体过程。在本文开发的程序中, 这一个过程已经被综合为一个整体, 不再需要人工干预, 因而能够实现对 HRTEM 像的快速分析。

1.1 初级布拉维格子的构建

原子峰能被人眼识别的一个首要条件是其与背景相比存在着较大的强度值变化。准确地说, 一个原子像会在 x, y 方向上从原子峰强度过渡到像的背景强度, 因而存在着强度值的变化。利用这一特点, 可以进行角点检测, 而角点检测返回的角点位置极有可能就是原子峰所在的位置^[11]。但实际的实验图像不可能有全局理想一致的性质(例如材料结构的变化、成像条件的影响、样品制备过程的影响和各种噪声等), 在角点检测中设定统一阈值不可能将所有原子点都检测出来, 而所检测出的角点也可能离原子峰位置较远。因而, 接下来在已经得到角点群的基础上, 应考虑这些点是整体布拉维格子的一个子集, 所以应具有布拉维格子的基本性质, 从而可以通过统计算法求得一组相对较好的布拉维基矢。具体过程如下: 对于每一个角点, 求出其他角点中距离此角点最近的两点并以此构建基矢, 并向外

延伸而覆盖整张电镜图像, 进而计算所检测出的角点与相邻格点的位置, 作为评价函数。对所有角点执行这样的操作时, 通过评价算法即可求出最优基矢。下面, 将这一最优基矢记为 (t_1, t_2) , 注意 t_1 和 t_2 是两个二维矢量。

获得 (t_1, t_2) 基矢以后, 对于晶体原子像, 任何一个原子峰位置都可以从原子峰点 O 通过平移用基矢找到。其位置矢量可以表示为 $r = O + mt_1 + nt_2$, 这里 m 和 n 是整数。特别是, 满足 $m^2 + n^2 = 1$ 的 4 个 r 对应于原子峰点 O 附近的 4 个最近邻原子峰点。本文使用黑色小原点表示原子峰点在图上的位置, 并用白线把最近邻的原子峰点连接起来, 就能从原始图像(图 1a)得到图 1b 所示的布拉维格子。仔细观察图 1b 可以看到, 即便对于看起来比较规则的晶体结构, 这一方法也不完美, 许多原子峰点的位置未能正确标出, 因而需要进一步的拟合与矫正过程。

1.2 拟合与矫正过程

如上所述, 布拉维格子的构建依赖于基矢的选择, 根据最优基矢 (t_1, t_2) 延展而覆盖整个图像的做法只能获得对原子位置的一个估计。随着离原点位置的增加, 利用 (t_1, t_2) 确定的位置和原子精确位置的偏差越来越大, 是一个线性放大的过程。为了克服这个缺点, 可以利用原子像的另一个基本特征, 即其亮度从中心向边缘逐渐减弱, 具有类高斯分布的形式。基于此特点, 在第二阶段加入搜索过程, 即从每一个原子点按基矢 (t_1, t_2) 移动后, 立即进行高斯

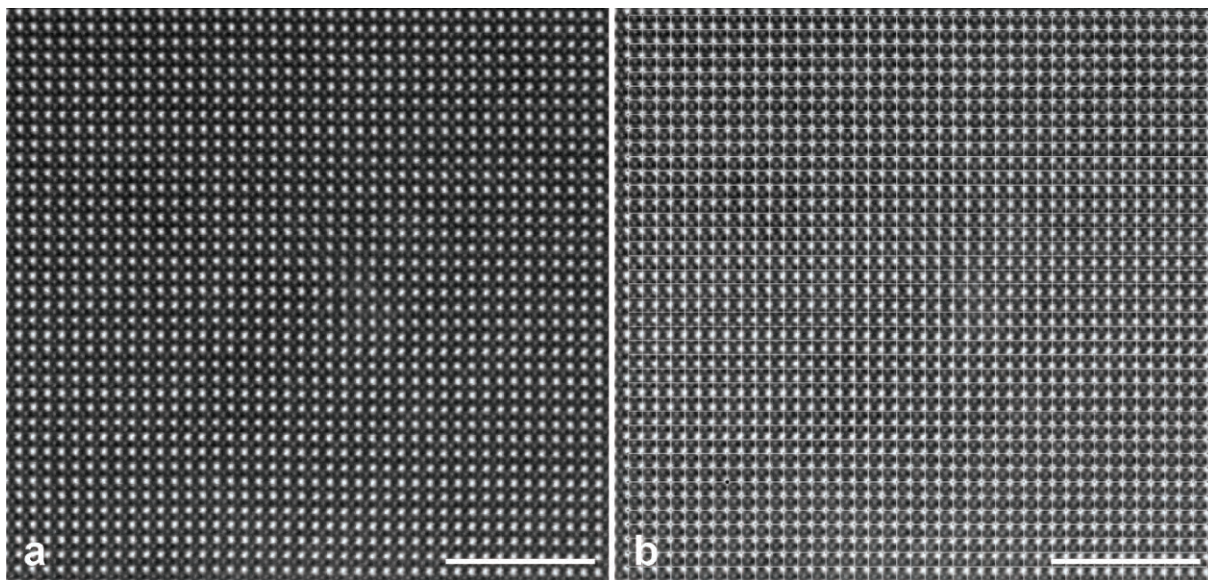


图1 a. PbTiO_3 的 HAADF-STEM 像; b. 标出布拉维格子之后的图像。a, b: Bar = 4 nm

Fig. 1 a. The original HAADF-STEM image of PbTiO_3 ; b. The processed image showing Bravais lattice of PbTiO_3 .

拟合。例如,当到达 $r = O + t_1$ 后,即以 $O + t_1$ 为中心选择合适区域利用高斯分布:

$$f(x, y) = a \exp \left[-\frac{(x - x_0)^2}{2\sigma_x^2} - \frac{(y - y_0)^2}{2\sigma_y^2} - \frac{(x - x_0)(y - y_0)}{2\sigma_{xy}} \right] + b$$

进行拟合,从而获得高斯分布的中心 r' 。上式中 a 、 x_0 、 y_0 、 σ_x 、 σ_y 、 σ_{xy} 、 b , 是拟合参数。以此作为原子位置的精确坐标(可以迭代几次高斯拟合以确定这一位置),并将其作为下一次利用 (t_1, t_2) 进行移动的出发点。这样,在每一步的搜索中,都重新矫正了原子的坐标,因而不会出现误差线性累积的情况。在实践中,发现这一方法确实可以获得很好的效果。图 2 显示了经过拟合与矫正过程之后得到的布拉维格点,可以看到,图 1 中的误差得到了修正,所获得的原子位置反映了 HRTEM 像所呈现的结果。值得注意的是,晶格微小的畸变已经可以通过所画出的布拉维网格而观察到。

1.3 原胞内原子的搜索

在找出布拉维格点之后,对于每个晶胞内有多于一个原子的晶体还需要进行进一步处理。如图 2 所示,每 4 个亮点组成的晶胞内部有一个较弱的点没有被标记出来。针对这种情形,本文对每个晶胞

内的区域进行搜索,并用高斯函数在每一个被搜索的点上尝试进行拟合。当某一位置附近的像素具有高斯分布的情形时,拟合能够成功。在实践中发现,这一看似简单的方法适用于尝试处理的大部分图像,并可以获得不错的结果。例如,对图 2 进一步处理即可得到所需的结果,图 3 所示 HRTEM 像中所有原子峰点都已经标记了出来。

2 原子精确位置自动判定的应用

利用第 1 章的方法获得原子的精确位置之后,即可根据需要高效率的对 HRTEM 像进行各种相关分析。下面通过在研究工作中实际遇到和解决的问题来说明原子精确位置自动判定的应用。

2.1 材料中原子位移研究

钙钛矿结构钴氧化物(Ln, AE) $\text{Co}_2\text{O}_{5.5+\delta}$ (Ln = 镧系金属, AE = Ca, Sr, Ba) 具有独特的物理性能,在氧化催化剂、能量收集和转换器件等方面具有潜在的应用前景。图 4a 显示的是 $\text{LaBaCo}_2\text{O}_{5.5+\delta}$ 材料中具有调制结构的一张 STEM-HAADF 原子像。仔细观察此图像可以看到,原子行之间的行间距并不是均一的,这一变化是由于调制结构导致的晶胞尺度的晶格拉伸所引起。这一变化可以通过人眼直接

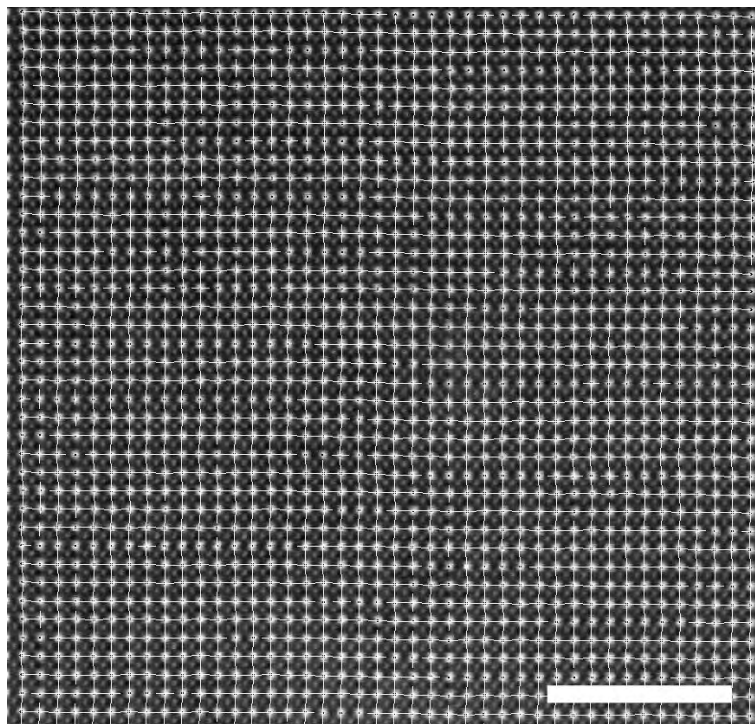


图 2 在原子峰的判定过程中加入拟合与矫正可以获得很好的结果。

图中可见晶胞上的原子峰位置都被正确的标记了出来。Bar = 4 nm

Fig. 2 Introducing the fitting-and-correcting procedure improves the determination of atom peaks.

In this figure, peak positions of atoms are correctly identified.

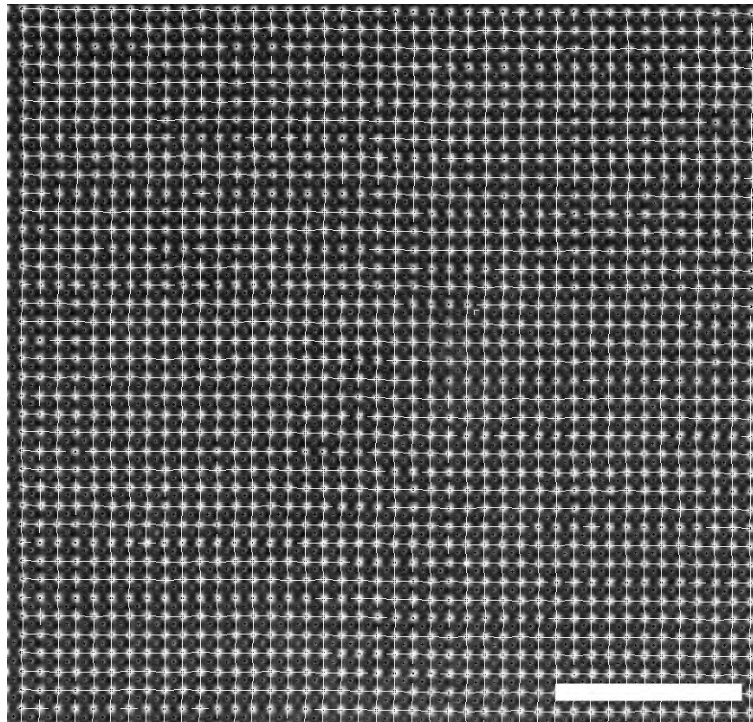


图 3 在每个晶胞内进行搜索可以获得 HRTEM 像内所有原子峰的位置。Bar = 4 nm

Fig. 3 Searching inside each unit cell enables us to obtain peak positions of all atoms.

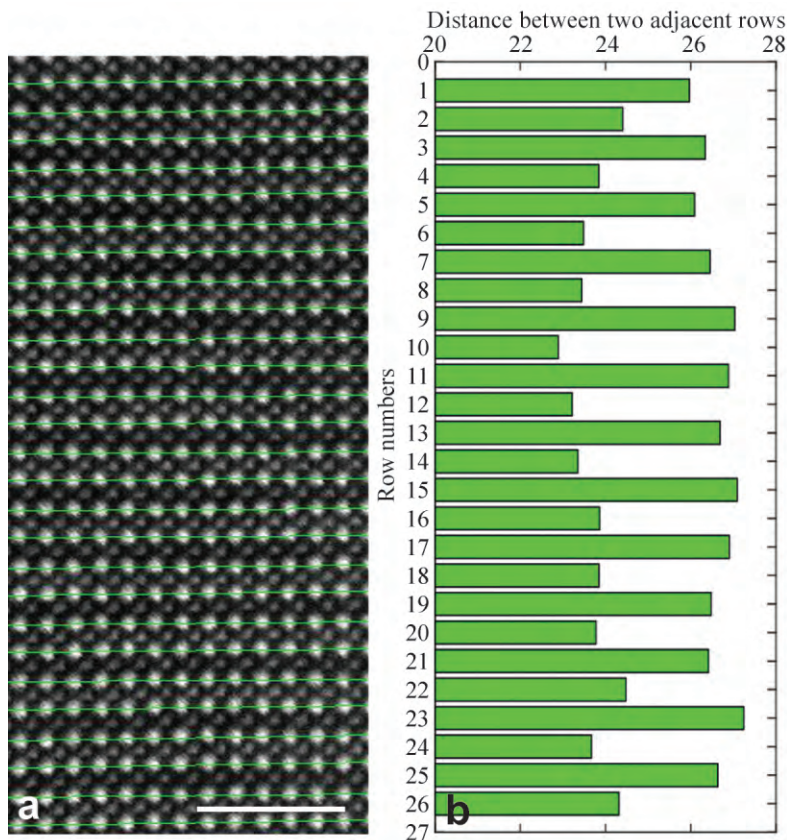


图 4 $\text{LaBaCo}_2\text{O}_{5.5+\delta}$ 材料中的原子间距因为调制随层数而呈现有规律的变化。a. 用直线公式 $y = kx + b$ 拟合每一行原子峰的坐标位置, 从而得到一条平均直线; b. 将每一原子层之间的间距以柱状图的形式画出。Bar = 2 nm

Fig. 4 In $\text{LaBaCo}_2\text{O}_{5.5+\delta}$, the distances between adjacent atom layers show periodic changes. a. Atoms in each line are fitted with $y = kx + b$ according to their peak positions; b. The distances of adjacent rows of atoms are represented by the histogram.

观察而感知到。作为例子,应用上述方法对这一 HRTEM 像进行量化研究。

首先,利用第 1 章的方法确定 HRTEM 像中所有原子峰的位置,然后按照纵轴坐标位置从小到大的顺序对所有这些原子峰进行分类排序,通过这一过程把属于同一行的原子峰归于一组。对于每一行原子峰,它们的位置可能存在微小的上下起伏,因而需要用直线公式 $y = kx + b$ 拟合每一行原子峰的坐标位置,从而得到一条平均直线,如图 4a 中绿色线条所示。

不难发现所有得到的直线其斜率 k 的绝对值都 < 0.01 ,因而可以近似认为所有直线都平行于 x 轴。画出代表每行原子的平均位置的直线之后,很容易注意到原子行之间的距离是非均一的。为了将这一现象量化,将 $x = 0$ 处的直线间的距离在图 4b 中以

柱状分布图的形式画出。图 4b 清楚地显示原子行之间的距离是交替变化的。这一现象说明,由于某种原因(例如成份的交替,氧八面体转动等)材料中出现了调制结构,单胞尺度的原子层间距出现了明显差异,需要用更大的结构(例如两倍原来晶胞)来描述这一新的结构。

2.2 畴结构的快速可视化

晶体结构中原子相对于理想位置的位移是决定材料物理性质的一个重要参考。例如在铁电材料中,原子的位移和局域的电极化直接相关。在准确确定原子峰位置之后,就可在大范围内对 HRTEM 像中存在的信息进行快速、定量化的研究。PbTiO₃ 具有良好的铁电、光电、热释电和非线性光学性能,是一类重要的功能材料,受到人们广泛关注。图 5a 显示一张 PbTiO₃ 材料沿 $[100]$ 方向的 HRTEM 像。

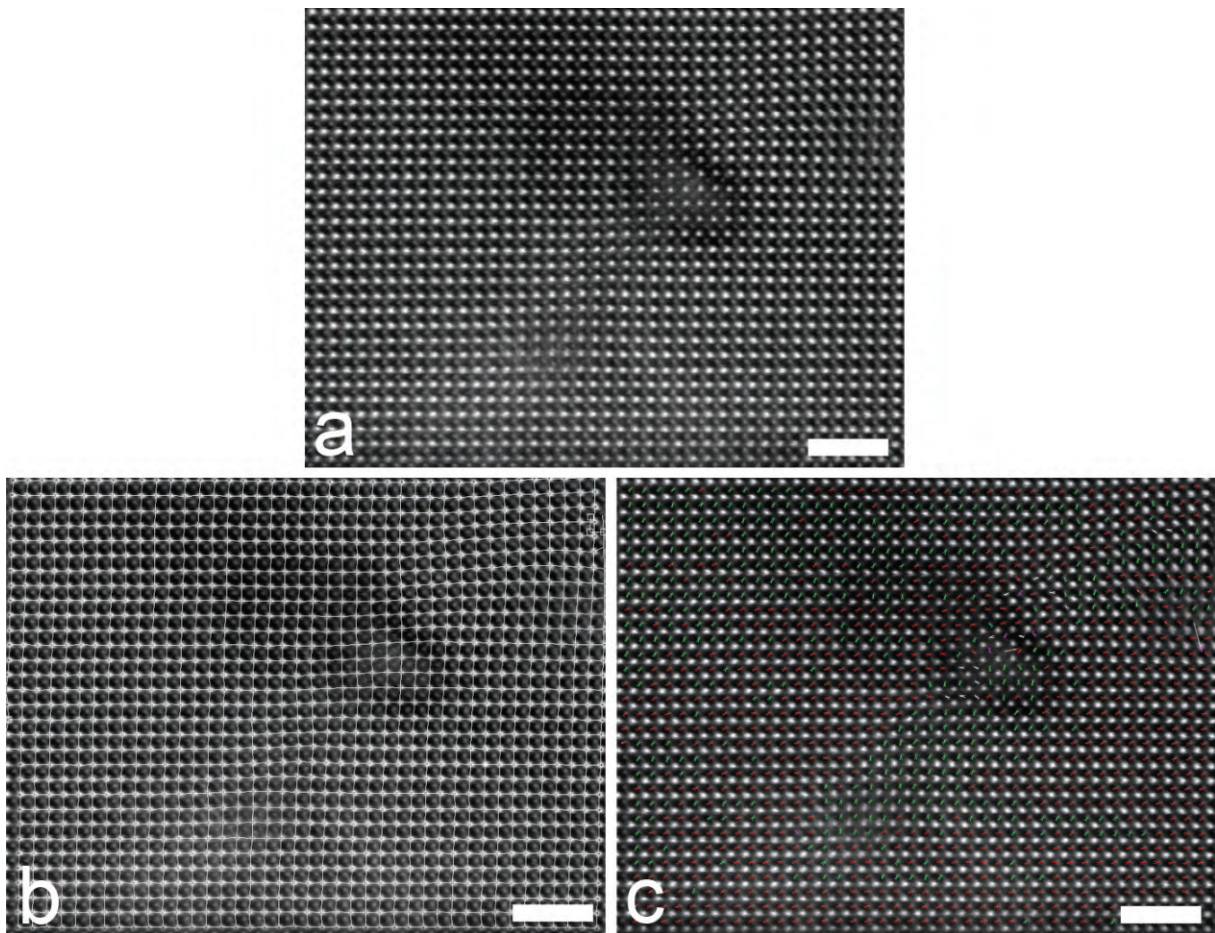


图 5 PbTiO₃ 材料的 HAADF-STEM 像。a. 未经处理的 HRTEM 像; b. HRTEM 像中的原子峰坐标与格子已标出; c. 显示出了原子之间的相对位移,箭头的大小和方向分别表示位移的大小和方向,而其中的颜色用来区分位移方向不同的原子。a ~ c: Bar = 2 nm

Fig. 5 Atom-resolved HAADF-STEM image of PbTiO₃. a. The original image; b. Peak positions of atoms and unit cells are superimposed on the original image; c. Relative displacements of atoms in each unit cell are calculated and shown as small arrows in the image, where the direction and magnitude of the displacement of Ti atoms are indicated by the arrows with their colors indicating displacements of very different directions(see the text 2.2).

可以直观地看到, 这一 HRTEM 像中存在着丰富的信息。例如(1)有些区域强度值明显的要比其余区域大一些;(2)一些区域存在着明显的晶格扭曲。分析造成这些现象的原因, 并将其与材料的结构信息联系起来是最重要的目标。在这一分析过程中, 不可避免地要做一些假设并进行一系列的尝试, 而本文所实现的程序是检验假设和进行快速尝试的一个重要手段。利用所开发的程序, 在图 5b 中将原子峰的准确位置和近邻原子峰之间相连而形成的网格进行了标记, 通过网格可以更容易看出晶胞的形变。

图 5c 将原子峰的准确位置和相对位移进行了标记, 图像中的红、绿箭头显示了大范围内原子峰位移。在具体实践中, 对于每一个晶胞, 以 4 个顶点的 Pb 原子峰为参照, 确定了 Ti 原子峰的相对位移。每个单胞中的位移在图中以箭头的形式进行标注。箭头的大小和方向分别表示位移的大小和方向, 而其中的颜色用来区分位移方向不同的原子。其中绿色箭头表示相对图的水平方向逆时针转动 $> 45^\circ$ 的位移, 而红色箭头表示 $< 45^\circ$ 的位移。从整体看, 图 5c 显示明显的畴结构, 在图的中央附近有一块沿图的对角线方向分布的、极化基本处于竖直方向的畴(由绿色箭头表示), 而这一区域的两边是大块主要由指向水平方向的极化形成的区域(由红色箭头表示)。对比图 5b 与图 5c 可以看到图像扭曲的区域可以和畴出现交替的区域大致对应起来。此外, 可以发现图像灰度值比较大的区域也正是红、绿色箭头混合比较均匀的地方, 这一可能存在的联系值得在未来进行更为深入地研究。

2.3 材料晶胞尺度形变的可视化研究

除了确定材料中的畴结构之外, 利用这一精确判定原子坐标点的程序还可以对 HRTEM 像进行其他分析。图 6 显示了对晶胞高宽比 (c/a) 的值所进行的分析。在图 5b 中, 已经可以通过晶胞网格观察到图像的变形, 但这种变形的区域和大小难以精确地描述。为了清楚看到变形区域, 并进行定量描述, 这里通过紧邻两个原子峰的距离计算出图形中每个晶胞的 c/a 的数值。然后, 对所获得的 c/a 值进行统计, 按照 c/a 值的统计分布特性可以选取合适的阈值, 根据 c/a 的值是大于阈值还是小于阈值而将每一个晶胞标记为不同的颜色(注意这里对每一个晶胞, 选择标记两条边的颜色)。

图 6a 显示了对 c/a 的值所做的统计结果, 可以清楚看到其中所存在的两个高斯峰。通过使用 $f(x) = a_1 \exp[-(x - x_1)^2/\sigma_1^2] + a_2 \exp[-(x -$

$x_2)^2/\sigma_2^2]$ 进行拟合(这里 x 是 c/a 的值), 得到 $a_1 = 67.8$, $x_1 = 1.03$, $\sigma_1 = 0.046$, 而 $a_2 = 8.77$, $x_2 = 0.933$, $\sigma_2 = 0.033$ 。在图 6a 中, $f(x) = a_1 \exp[-(x - x_1)^2/\sigma_1^2] + a_2 \exp[-(x - x_2)^2/\sigma_2^2]$, $f_1(x) = a_1 \exp[-(x - x_1)^2/\sigma_1^2]$ 和 $f_2(x) = a_2 \exp[-(x - x_2)^2/\sigma_2^2]$ 分别以红线、绿线和黄线画了出来。这些结果显示, 在所研究的材料当中, 晶格主要是以两种方式分布(表现为两个高斯峰), 而 c/a 的中心值分别为 $x_1 = 1.03$ 和 $x_2 = 0.933$ 。由于 $x_1 \neq 1/x_2$, 说明两个区域不是简单的互换 c 与 a 的值而形成的, 因而不能认为其中一类晶胞是另一类晶胞旋转 90° 而形成。通过统计还可获知, 在这一张 HRTEM 像中两类不同晶胞个数之比大致是 $a_1/a_2 \approx 7.73$, 这一信息可以用于和 X 光衍射所获得的结构信息相互印证。最后, 通过令 $f_1(x = x_t) = f_2(x = x_t)$ 计算获得 $x_t = 0.959$, 可以用作 c/a 的阈值来区分这两类晶胞。

在图 6b 中, 设定阈值大小为 0.959, 对每一个晶胞根据 c/a 的值进行染色。 $c/a > 0.959$ 的格子被标记为绿色, 而 $c/a < 0.959$ 的格子被标记为红色。通过这种方法, 图 6b 清楚地显示了具有两类不同晶胞所在的区域。比较图 5 与图 6 还可以看到, 晶格形变的特点与极化方向形成的畴具有一定关联, 具有垂直方向极化的畴与 $c/a < 0.959$ 的区域大致重合。更为重要的是, 通过这一方法, 将晶胞形变不同区域的边界和走向清晰的画了出来, 这对后续 HRTEM 像和材料生长特点的分析会有所帮助。值得注意的是, 在这样样品中, 大部分晶胞的 $c/a \approx 1.03$, 略小于理论计算中所获得的值 1.045^[2], 但另外的一部分晶胞具有超大的 c/a , 达到了 $1/x_2 \approx 1.07$ 。

为了更客观地显示形变的特征, 本文又采取另一种研究方法, 也就是以 c/a 的数值为依据, 利用伪彩色图将 c/a 的值按大小选择不同颜色, 并在相应的坐标位置显示出来, 结果如图 7 所示。从这一图中可以清晰地看到形变大小的全局分布, 并且可以认定确实存在着 c/a 值非常不同的区域(注意图中浅蓝色区域), 而这一区域的存在与图 6b 中所做出的结果是一致的。

3 结论与展望

本文开发了用于精确测定 HRTEM 原子像中原子峰位置的算法, 通过实现原子峰精确位置的判定, 可以对 HRTEM 像中原子尺度的微结构进行定量表

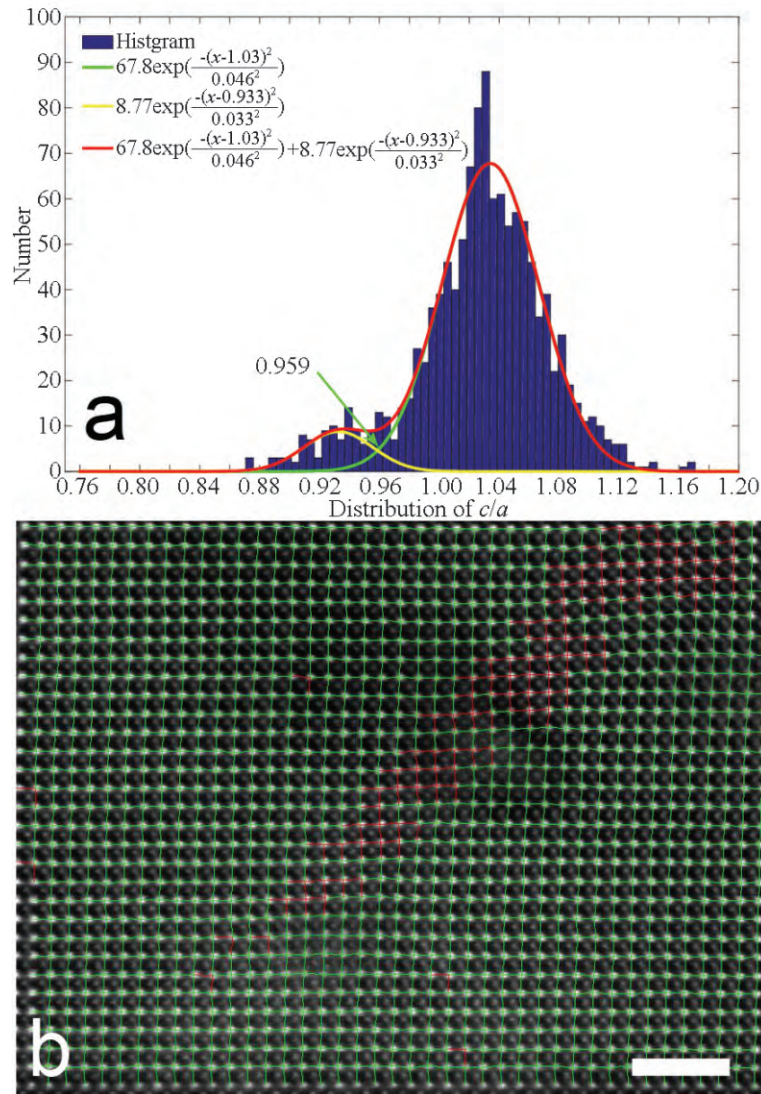


图6 利用 c/a 值对图像进行分析,显示材料的晶格形变特性。a. 对 c/a 的值进行统计分析,可以看到两种不同结构晶胞的存在; b. 设定 c/a 的阈值,在图像中精确显示两种不同晶胞。Bar = 2 nm

Fig. 6 The analysis of the image using c/a values shows the deformations of each unit cell. a. Statistical analysis of c/a values shows the existence of two types of unit cells; b. Choosing proper c/a threshold will accurately distinguish the two types of unit cells.

征。这一方法有下述几个好处: (1) 能快速对 HRTEM 像进行处理,避免大量重复性的劳动; (2) 能在不失去细节信息的前提下关注更大的区域,获得更多的信息; (3) 如同本文举例所说明的,在获得原子峰位置的信息之后可以快速进行大量计算,验证各种猜想,协助进一步进行模拟像与实验像的对比,去除假像以获得正确结论。

通过本文中的例子,可以看到作者发展的这一专用程序可以在实际当中应用,处理相对完整(原子分布没有跳跃性畸变等)的 HRTEM 像。在实际应用中发现即使对于部分区域存在较大形变

的图像,这一算法依然能够准确、迅速地搜索并标记原子点,充分体现了算法的实用性。在此基础上对原子尺度极化畴结构和晶格形变的定量测量与可视化研究,提高了 HRTEM 像分析工作的精度与速度。未来,这一工作将在两个不同的方向上继续开展: (1) 研究新的算法以处理存在缺陷与位错等结构的 HRTEM 像的系统处理; (2) 通过将实验中获得的 HRTEM 像与计算像进行比较,实现电镜成像参数判定的自动化。相信随着工作开展,这一方法将成为 HRTEM 原子像定量分析的一个有力工具。

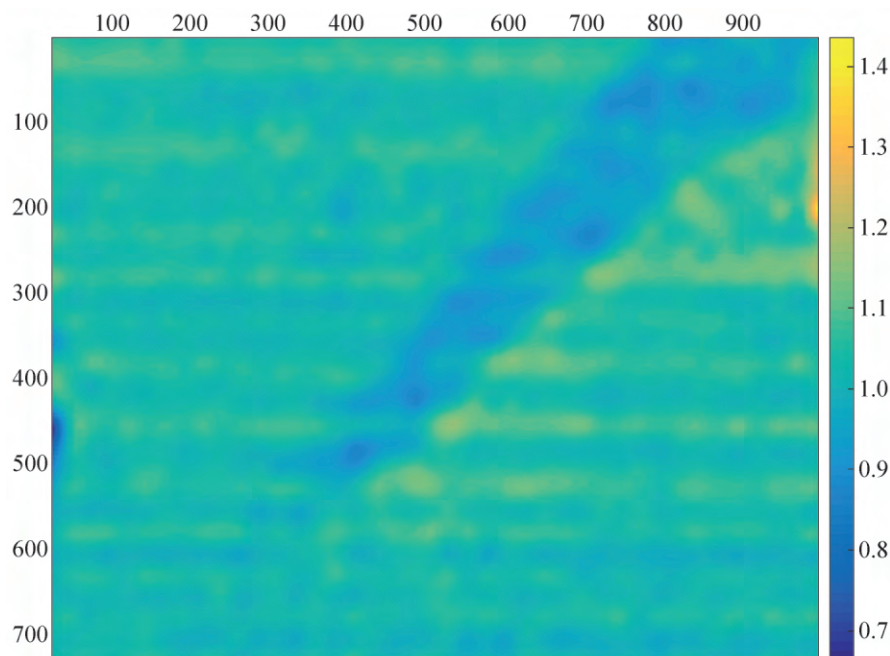


图7 c/a 的值在图像中分布的伪彩色图。

Fig. 7 Pseudo-color plot of the c/a values across the whole image.

致谢: 感谢李超, 路璐, 杨光, 米少波等在程序开发过程中给予了诸多鼓励和支持; 感谢杜红初博士的讨论对研究工作的启发。

参考文献:

- [1] URBAN K. Studying atomic structures by aberration-corrected transmission electron microscopy [J]. *Science*, 2008, 321: 506 – 510.
- [2] JIA C L, LENTZEN M, URBAN K. Atomic-resolution imaging of oxygen in perovskite ceramics [J]. *Science*, 2003, 299: 870 – 873.
- [3] BILLINGE S J L, LEVIN I. The problem with determining atomic structure at the nanoscale [J]. *Science*, 2007, 316: 561 – 565.
- [4] JIA C L, MI S B, URBAN K W, et al. Atomic-scale study of electric dipoles near charged and uncharged domain walls in ferroelectric films [J]. *Nature Materials*, 2008, 7 (1): 57 – 61.
- [5] JIA C L, MI S B, BARTHEL J, et al. Determination of the 3D shape of a nanoscale crystal with atomic resolution from a single image [J]. *Nature Materials*, 2014, 13(11): 1044 – 1049.
- [6] SONAKA M, HLAVAC V, BOYLE R 著. 艾海舟, 苏延超, 等译. 图像处理、分析与机器视觉 [M]. (3版). 北京: 清华大学出版社, 2011: 6.
- [7] FORSYTH D A, PONCE J. Computer vision: a modern approach [M]. (2nd ed). New Jersey: Pearson Education Inc, 2012: 540 – 545.
- [8] 黄昆原著. 韩汝琦改编. 固体物理学 [M]. 北京: 高等教育出版社, 1985: 33 – 35.
- [9] THOMMEN K, CHRISTOPHER R. 2D lattice extraction from structured environments [C]. *IEEE International Conference on Image Processing*, USA Texas: San Antonio, 2007, 2: 61 – 64.
- [10] PARK M, BROCKLEHURST K, COLLINS R T, et al. Deformed lattice detection in real-world images using mean-shift belief propagation [J]. *IEEE Transactions on Pattern Analysis and Machine Intelligence*, 2009, 31: 1804 – 1816.
- [11] LAGANIERE R. OpenCV 2 computer vision application programming cookbook [M]. Birmingham: Packt Publishing Ltd, 2011: 192 – 202.
- [12] STENGEL M, SPALDIN N A, VANDERBILT D. Electric displacement as the fundamental variable in electronic-structure calculations [J]. *Nature Physics*, 2009, 5(5): 304 – 308.

Automatic and accurate determination of atom peak location in high-resolution electron microscopy image and fast visualization of polarization domains^{*}

NAN Hu¹, LU Jiang-bo¹, LIU Ming¹, JING Hong-mei¹, TANG Shao-jie²,
WANG Da-wei^{1*}, JIA Chun-lin¹

(1. School of Electronics and Information Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an Shaanxi 710049;

2. School of Automation, Xi'an University of Posts and Telecommunications, Xi'an Shaanxi 710121, China)

Abstract Quantitative analysis of high-resolution (scanning) transmission electron microscopy images is becoming increasingly important. Here, we develop computer programs for efficiently processing high-resolution micrographs, automatically constructing Bravais lattice and extracting peak positions of atoms, and therefore substantially reduced the workload in analyzing such images. The program has been applied to (i) estimating the periodic displacements of atoms in $\text{LaBaCo}_2\text{O}_{5.5+\delta}$; (ii) visualizing the nanoscale domain structures of ferroelectric PbTiO_3 ; and (iii) obtaining the distribution of the tetragonal ratio c/a of individual cells in PbTiO_3 . We demonstrated that such a tool is useful for the study of materials on the nano and atomic scale, and for comparing simulated and experimental images, which also constitutes the basis for future automatic matching of experimental and simulated high-resolution electron microscopy images.

Keywords high-resolution electron microscopy image; image processing; distortion on the atomic scale; visualization; quantitative characterization

* Corresponding author