

电子叠层衍射成像技术的突破及应用*

陈震[†]

(中国科学院物理研究所 北京凝聚态物理国家研究中心 北京 100190)

2023-04-23 收到

† email: zhen.chen@iphy.ac.cn

DOI: 10.7693/wl20230509

Breakthrough and application of electron ptychography techniques

CHEN Zhen[†]

(Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

摘要 像差校正透射电子显微镜是材料微观结构和物态高分辨率表征最常用的工具之一,极大地推动了相关学科的发展。近年来,电子显微学领域一个新的突破是电子叠层衍射成像技术。它突破了常规成像技术分辨率的极限,实现了原子晶格振动决定的终极分辨率,并且能够实现纳米尺度电磁物态的高精度成像。文章主要简述了电子叠层衍射成像技术的发展历程、原理和最新进展,最后讨论其应用前景和未来展望。

关键词 电子显微学, 电子叠层衍射成像, 微结构表征, 磁织构成像

Abstract The aberration-corrected transmission electron microscope is one of the most widely used tools for high-resolution characterization of the microstructure and physical state of materials, and has greatly advanced the development of many scientific fields. One of the latest breakthroughs in electron microscopy is electron ptychography, which can achieve the ultimate resolution limited by atomic lattice vibrations, surpassing the resolution limits of all conventional imaging techniques. Moreover, it allows for high-precision imaging of nanoscale electromagnetic states. In this article, we review its history, principle, and recent progress, then discuss its potential applications and future directions.

Keywords electron microscopy, electron ptychography, microstructure characterization, magnetic texture imaging

1 引言

人类认识微观世界通常从“看到”开始。自从光学显微镜发明以来,新的显微成像工具和技术不断突破,推动着我们对微观世界认识的不断

深入,从微米、纳米再到更小的原子尺度。透射电子显微镜(简称透射电镜)是材料纳米到原子尺度微观结构表征最强大的工具之一,它充分利用高能电子短至几皮米的超短波长和带电荷而容易被电磁场调控的优势,实现了很高的空间分辨率。特别是近年来电子光学系统硬件快速发展,透射电镜成像系统从分辨率、稳定性和测量精度等多方面均有了长足的进步,逐渐发展出了丰富的显微表征技术,成为物理、化学、材料科学和结构

* 国家科技部重点研发计划(批准号: 2022YFA1405100)、国家自然科学基金(批准号: 52273227)资助项目, 广东省基础与应用基础研究重大项目(批准号: 2021B0301030003)

生物学等很多学科领域中不可或缺的工具。球差校正器的发明和广泛应用是其中最重要的一个硬件革新。它通过精密设计的多极电磁透镜，校正消除成像透镜的各阶像差(特别是球差)，大幅度提高了透射电镜的空间分辨率，使得我们从能看到原子推进到以极高的清晰度来精确定位原子，堪称一项里程碑式的发明。同时，球差校正器产生的亚埃尺度的高亮度电子探针，也极大地推动了微区显微分析技术的发展，实现了包括原子尺度化学成分、价态和电子结构等分析技术的广泛应用。球差校正器的发展也获得了科学界广泛的认可，其几位发明人曾获2011年沃尔夫(Wolf)物理奖和2020年卡弗里(Kavli)纳米科学奖等奖项。

电子显微学中与硬件并行发展但长久以来并未获得很大关注的一个领域为计算成像技术，本文主要介绍其中一种代表性技术——电子叠层衍射成像技术(electron ptychography)^[1, 2]。这类计算成像技术的主要思想和出发点是通过数学算法克服成像系统的不完美，提高成像质量，甚至实现无透镜成像或突破物理成像系统的极限。

计算成像技术被广泛用于可见光和X射线成像，特别是在可见光成像领域，应用非常普遍^[3]。在电子显微学领域，计算成像可用于去除成像系统对样品结构解析的影响和求解电子受样品散射的逆问题等方面。由于电子波函数为复数，而所有的电子探测器只能测量电子强度或振幅的分布，相位信息会丢失，与X射线衍射类似，存在经典的“相位问题”。在球差校正电镜发明前后，从20世纪90年代到21世纪初期，一个重要的方向是利用一系列不同离焦的平行束高分辨图像重构电子通过样品后的出射波函数，去除成像系统像差的影响，从而实现分辨率的提高^[4]，在部分材料体系中也获得了一些应用^[5]。然而，受限于仅能用于很薄的弱散射样品，一般样品的厚度不能超过几纳米，并且图像重构算法对实验误差和噪声容忍度不够高。同时，新的球差校正电镜将直接成像的分辨率提高到亚埃尺度，减弱了相位重构技术提高分辨率的研究动机。但是陈福荣和D. Van Dyck等人近年来进一步发展了出射波重构

或称共轴全息技术，实现了三维结构的分辨能力，提供了计算成像发展的一个新方向^[6, 7]。基于经典的相位恢复方法，即Gerchberg—Saxton算法^[8]，也发展出了很多对薄样品中电子散射求逆问题的方法，但这类方法的应用范围一般只局限于有限尺寸的纳米体系^[9]。

电子显微学界一直致力于改进成像系统的物理电磁透镜质量，追求直接获取图像的更高分辨率，而对计算成像通常持更审慎的态度，特别是对于处理后图像获得的分辨率提高认可度不高。这种情况出于多方面的考量，主要原因在于透射电镜中高能电子和材料内静电势场的相互作用很强，很容易出现相干效应和多次散射，因此很多处理后图像对应的空间频谱不一定能代表真实的分辨率指标。随着球差校正器的进一步发展，高阶像差系数已得到很好的校正，空间分辨率在2009年左右达到了0.5 Å^[10, 11]，然而，最近十多年来分辨率几乎没有进一步提高。相关研究发现，透射电镜成像系统保持高分辨率状态的时间随着分辨率的提高越来越短，且维持起来越来越困难。例如，保持1 Å分辨率状态的时间一般仅有几分钟^[12]，并且更高分辨率的实现要求大幅度减小产生高能电子的加速电压和成像用的电磁透镜电源等的微小波动。又如，保持0.5 Å的分辨率需要电子枪高压信号的稳定性优于0.1 ppm^[12]，同时透射电镜主要的放大部件即物镜和球差校正器本征的热扰动电流产生的噪音磁场也会制约分辨率的进一步提高^[13]。这些因素使得实现优于0.5 Å的分辨率变得非常困难，并且相应的大幅提升实现成本，因此，用户使用的透射电镜分辨率通常无法超越0.5 Å的瓶颈。虽然固体材料原子间距一般都大于1 Å，但是投影原子间距可以非常小，室温下原子本征热振动展宽一般也在0.1—0.3 Å量级。同时，实空间对原子间成键和价电子电荷密度分布等成像是凝聚态物理学和化学非常关心的，但是价电子对原子整体电势场的贡献非常小，一般仅千分之一量级。真正获取与物理或化学性质密切关联的价电子密度的实空间分布图，需要尽量减小成像系统对图像本身的展宽。因此，非常有必要进

一步提高成像的空间分辨率。

电子叠层衍射成像提供了一条提高分辨率的新途径。近期,结合新发展的高性能电子探测相机,笔者与合作者通过开发新的算法和优化成像条件,利用电子叠层衍射成像技术成功突破了透射电镜物理透镜的分辨率极限^[14, 15],实现了优于0.2 Å的分辨率,这也是人类首次实现主要由原子本征热振动极限决定的图像分辨率^[15]。该技术除了能提高图像的分辨率以外,还具有很多独特的成像优势,在不同材料结构解析和凝聚态物理微观物态测量方面具有广泛的应用前景,在电子显微学和材料学研究领域具有重要影响。

2 叠层衍射成像技术的基本原理

叠层衍射成像技术是一种相位恢复技术,但它与常用的全息技术不同,它不需要固定的参考光来形成干涉条纹,其最早的思想来自于W. Hoppe。1969年,他最初提出晶体样品的布拉格衍射点的干涉可以提供部分相对相位的信息^[1],并与合作者进一步将该方法拓展到非周期结构样品中^[16]。然而,在接下来的近四十年里,该技术几乎没有关注。现在回过来看,该技术对成像系统的相干性、稳定性和探测器等硬件条件以及数学算法和计算机性能等较高的要求在当时均无法满足。

现代叠层衍射有很多种不同类型,本文主要介绍目前应用最广和透射电镜中最常用的循环迭代方法,其他方法包括基于维格纳分布的解卷方法和傅里叶叠层衍射方法等,可以参考相关综述^[17]。这种技术的基本原理是使用局域有限大小的照明束斑,一般为会聚的电子束,采集多个来自样品不同位置的衍射强度分布图,利用不同散射波的相干叠加产生的干涉现象,通过数学算法实现入射电子波函数和样品物函数的重构,原理示意图如图1所示。

最初,叠层衍射成像基于薄样品的乘积近似,即衍射 $I_j(\mathbf{u})$ 为电子经过样品散射后的出射波函数在倒空间的强度分布,而出射波可以近似为样品

物函数 $O(\mathbf{r})$ 和入射波函数 $P(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j)$ 的乘积:

$$I_j(\mathbf{u}) = \left| \mathcal{F}[O(\mathbf{r})P(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j)] \right|^2, \quad (1)$$

其中 \mathbf{u} 为倒空间的波矢, \mathbf{r} 为实空间波矢, \mathbf{R}_j 为第 j 个衍射来自样品的位置坐标, \mathcal{F} 表示傅里叶变换。叠层衍射成像和其他相位恢复解逆问题的算法类似,基本思想是通过实验测量具有一定冗余的数据和施加一些限制条件,通过循环迭代算法获得和实验测量吻合的最优解。目前应用最广泛的算法源于J. Fienup经典的杂化输入—输出相位恢复方法思想^[18],由J. Rodenburg等人在2004年提出^[2, 19],并经过进一步发展,可以实现同时获得样品的物函数 $O(\mathbf{r})$ 和入射波函数 $P(\mathbf{r})$ ^[20, 21],基本算法流程如图2所示。其中物函数为

$$O(\mathbf{r}) = A(\mathbf{r}) \exp[i\phi(\mathbf{r})], \quad (2)$$

振幅 $A(\mathbf{r})$ 来自于样品内吸收势,相位 $\phi(\mathbf{r})$ 可以理解为样品对入射电子波函数产生的相位改变,

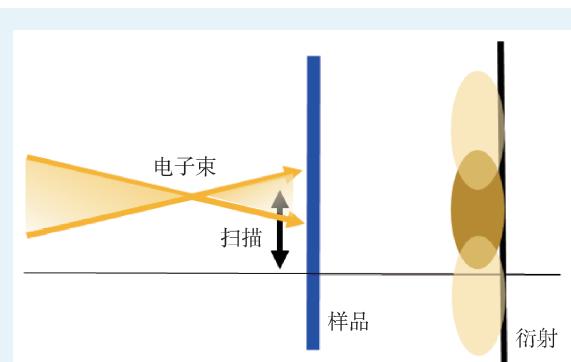


图1 叠层衍射成像技术的基本原理示意图。叠层衍射成像利用有限尺寸的电子束斑照明样品,通过移动电子束位置实现连续空间区域的照明,并使用二维相机收集每个照明空间位置的衍射图

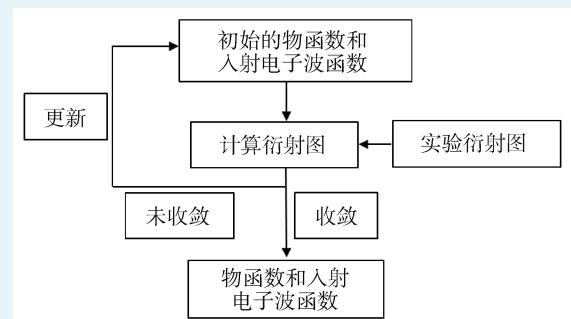


图2 叠层衍射成像算法基本流程图

主要包含样品内静电势场和磁矢势的贡献^[22]:

$$\phi(\mathbf{r}) = \frac{e}{\hbar v} \int_{-\infty}^{\infty} V(\mathbf{r}, z) dz - \frac{e}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} A_z(\mathbf{r}, z) dz, \quad (3)$$

其中 $V(\mathbf{r}, z)$ 为沿电子束方向 z 平面的静电势, 在满足原子分辨率的条件下表示为原子静电势场, $A_z(\mathbf{r}, z)$ 为磁矢势的 z 分量, 在一般的微结构成像中没有贡献, 而在磁性样品中会有贡献, e 和 v 分别是电子的电荷和速度, \hbar 为约化普朗克常数。叠层衍射重构出来的物函数相位原则上包含样品结构和电磁物态的信息。

虽然最早提出叠层衍射成像是为了提高透射电镜的分辨率, 但是现代叠层衍射成像发展的主要推动因素却在 X 射线成像领域。这源于 21 世纪初常规光学元件的提高无法满足新的 X 射线同步辐射光源对更高分辨率的追求, 而叠层衍射成像技术是提高分辨率的一种途径。因此, 叠层衍射成像目前已成为同步辐射高分辨率 X 射线成像的通用技术^[23]。但是, 在透射电子显微学领域, 现代叠层衍射发展的同时期正是球差校正器发展的黄金时代, 人们追求的超高分辨率成像正在逐步实现。而在透射电镜中, 电子叠层衍射成像的质量和分辨率反而受限于当时电子探测相机的读写速度和探测效率, 远远无法和球差校正电镜直接成像的图像质量相媲美^[24]。因此, 电子叠层衍射成像技术当时在国际上仅有有限的几个课题组在关注和发展。

早期的工作受限于电子探测相机的读写速度, 一般实验上只能采集数十张衍射图, 因此, 该阶段主要是对电子叠层衍射成像进行原理性的实验验证。首先, F. Hüe 等人首次在透射电镜中利用电子叠层衍射成像尝试定量确定纳米颗粒的静电势场分布, 分辨率约为 1 nm^[24]。其次, M. J. Humphry 等人在扫描电子显微镜中利用类似于透射电镜的透射成像模式, 在孤立的金纳米颗粒上实现了 2.4 Å 左右的晶格像, 比直接成像本身的分辨率提高了约 5 倍^[25]。这个实验结果是一个重要突破, 然而这个实验使用了带有有限边界的纳米颗粒, 与常规的相干衍射成像仍有一定的相似性, 人们可能对于该技术能否用于无边界样品成像存

疑。第三, S. Gao 等人进一步利用拓展的多片层电子叠层衍射成像技术实现了单次投影实验条件下两个交叉碳纳米管的深度分辨, 深度分辨率约为 30 nm^[26]。这些早期的实验在很大程度上展示了电子叠层衍射成像的潜力。然而, 相比于球差校正透射电镜中常规成像技术, 这些结果并没有明显优势, 因此没有获得很多关注。

3 电子叠层衍射成像技术的突破

随着透射电镜中新一代快速读取直接电子探测相机技术的发展, 我们已经可以对电子衍射图像进行快速采集, 目前可以实现每秒采集一千到十万帧图像。因此在扫描透射模式下, 快速采集每个束斑位置的二维会聚束电子衍射成为可能, 由此使得四维扫描透射电子显微术(4D-STEM)相关技术蓬勃发展, 在纳米尺度物相分析、应变测量和电磁场分布测定等方面应用广泛^[27]。4D-STEM 包含被样品散射电子的实空间和动量空间分布的所有信息。除了可以合成常规的各种成像模式以外, 还可以利用不同衍射束间的相干效应, 产生很多新的成像模式, 这是常规成像技术无法实现的。因为常规扫描透射电子显微成像技术, 例如高角环形暗场像和环形明场像等, 通常只能利用大面积点探测器, 实现衍射即动量空间内一定散射角度范围的积分信号采集。不同的收集角度范围对应不同的成像模式, 用来获得样品不同方面的结构信息, 但是这样就丢失了动量空间包含的大量结构信息。4D-STEM 的发展使得学界对扫描透射电子显微术下的相位衬度成像技术重新产生了浓厚兴趣。

电子叠层衍射技术可以充分利用 4D-STEM 的大量数据, 获取样品更多的结构信息。利用新开发的高动态范围、单电子灵敏度和快速读取直接电子探测相机, 姜毅和笔者以及合作者首次在二维材料体系成功实现了超高分辨率的电子叠层衍射成像^[14]。如图 3 所示, 新的电子叠层衍射成像获取的图像相比于常规的环形暗场像技术, 可以分辨出投影距离更接近的原子, 获得更多的样品

结构信息。该工作展示了在 80 kV 的较低电压下约 0.39 Å 的超高空间分辨率, 与相同条件下的常规成像技术相比, 分辨率提高了约 2.5 倍。这是在透射电镜中首次突破物理电磁透镜的分辨率极限, 当然, 这种突破是计算成像技术和硬件发展结合起来实现的, 并非直接成像的结果。同时, 该分辨率也是所有成像技术新的分辨率世界纪录^[28]。这种分辨率的提高主要原因在于, 高灵敏度和高动态范围的相机测得的电子衍射具有高空间频率的信息, 而电子叠层衍射能够更有效地利用这些信息, 同时又去除了入射电子束光阑和像差对分辨率的限制。

电子叠层衍射成像除了可以突破分辨率极限以外, 还可以更高效率地利用成像的电子, 减小所需的电子剂量, 提高图像的信噪比^[14, 29, 30], 这在容易辐照损伤的样品中应用广泛。例如, 利用低剂量成像的优势, 我们成功实现了低剂量下原子位置测量精度的显著提高^[30]。L. Zhou 等人还进一步展示了电子叠层衍射成像在生物样品成像中相对于常规透射电镜成像的优势^[31]。同时, 该技术最后获得的样品图像分辨率不直接取决于入射电子束斑的大小, 因此可以使用大离焦的大尺寸束斑实现更大的扫描步长, 从而提高数据采集效率和实现大视场高分辨率成像^[30]。另外, 入射电子因发射点源有限大小产生的部分相干性, 可以通过引入混合量子态来替代完全相干的纯态模型来考虑入射电子波函数, 从而进一步提高图像质量, 这样做也可以同时获取电子波函数的不同组态的信息^[30, 32, 33]。

4 三维结构解析

由于通常的电子叠层衍射成像基于薄样品的乘积近似, 参见方程(1), 一般需要将样品的厚度加工到几纳米厚, 这对于很多类型的样品很难实现。由于电子和样品内原子静电势场强的相互作用, 发生多次散射, 使用厚样品获得的图像分辨率会极大降低。其实, 这种多次散射问题是从 1929 年 H. Bethe 建立散射理论^[34]以来就困扰电子

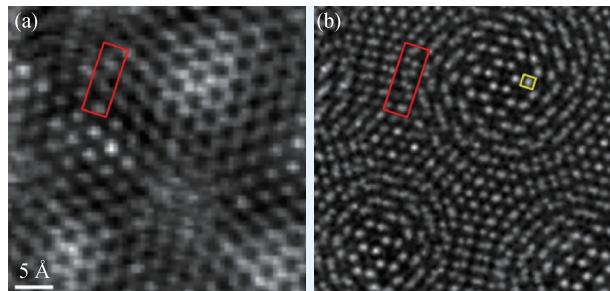


图 3 常规的环形暗场图像(a)和电子叠层衍射成像(b)的对比。图像采集自扭转角约 6.8° 的双层 MoS₂ 材料^[14]。红色框标出了样品同一个区域在两种图像中的结果, 展示出电子叠层衍射图像分辨率的显著提高, 黄色框对应原子结构模型预测的投影间距约 0.2 Å 的两个原子, 电子叠层衍射成像尚无法分辨

显微学界的难题。经过近百年的发展, 电子与厚样品的多次散射可以通过正向的电子传播过程精确地模拟, 计算方法主要包括多片层理论^[35]和布洛赫波理论^[36]。然而, 较厚样品的电子显微图像解释更复杂, 特别是用于轻元素成像的相位衬度成像技术, 衬度随样品厚度会出现复杂的依赖关系, 甚至出现完全偏离样品原子排列的情况。因此, 搭建结构模型然后进行大量模拟, 进而与实验结果匹配的试错方法被大量使用^[37], 严重制约了透射电镜高分辨率结构解析能力。

最佳的策略是通过测量的实验图像或衍射直接逆向解出样品的原子结构。然而, 由于电子在样品内的多次散射, 这种逆问题的求解涉及复杂的非线性问题, 很难实现数值上足够的鲁棒性。近期, 利用基于布洛赫波的散射矩阵方法, 人们在厚样品晶体材料结构解析中做了一些尝试^[38, 39]。然而, 这些方法获取的图像质量或者适用条件均有限, 从而限制了其实用性。

多片层电子叠层衍射成像技术是通常电子叠层衍射成像技术的拓展, 通过引入深度依赖的不同片层的物函数, 基于多片层散射理论的思想, 求解电子在厚样品中多次散射的逆问题^[40]。该方法最早的实验实现是利用光学显微镜可见光的成像^[40], 后续在 X 射线成像领域应用广泛^[41]。在透射电镜中, 正如上文提到的, 多片层电子叠层衍射成像首次实验展示是被用于分离不同深度的碳纳米管^[26]。然而, 在该工作中, 碳纳米管是弱散

射物体，多片层电子叠层衍射成像主要考虑了电子波函数在样品内近似于真空的传播效应，与常规的光学深度切片方法非常类似，获得的深度分辨率约为30 nm，与入射电子束的焦深即光学深度切片方法对应的深度分辨率也很相近。而通常固体材料的厚样品除了电子波函数的传播以外，还存在强的多次散射问题，因此，反解常用厚样品的结构要困难得多。

我们通过反复尝试，优化算法和实验条件，最终成功实现了普通的厚样品的三维原子结构解析^[15]。早期我们发现，相比于单片层电子叠层衍射，利用多片层电子叠层衍射成像可以对较厚样品的结构解析能力有所提高^[42]。然而多片层电子叠层衍射需要求解的未知变量显著增加，算法稳定性很差，并且对于稍厚的样品，重构出来的图像质量不高，也会出现很多假象。笔者经过反复思考和探索，最终发现需要考虑三个关键因素。首先，入射电子具有部分相干性，在算法中必须使用混合量子态来考虑这种部分相干性。当然，由此也会增加算法的复杂度。其次，用于成像的电子束焦深不是无穷小而是几纳米，因此无法实

现沿电子束方向的原子分辨率。而沿电子束方向的原子间距一般仅有几埃，远小于几纳米，因此原子近似于连续排列。这样在分离电子波函数和样品物函数之间存在一定的不确定性，特别是样品面内低空间频率的信息，沿电子束入射方向能够分辨的结构信息更少。我们需要向样品物函数不同层结构之间引入一定的依赖关系，模拟焦深相关的深度方向物函数展宽。这样也同时增加了额外的限制条件，减少了未知变量，提高了重构算法的鲁棒性。第三，在现有透射电镜成像系统中，能够成功实现厚样品三维结构解析的实验参数空间是很窄的，在数据采集时必须严格控制各种实验参数。这些关键因素导致了我们早期的很多尝试都不成功。笔者通过改进算法程序和大量的仿真模拟，最终找到了关键的参数，进而在早期采集的大量测试实验数据中找到了满足条件的数据，从而在畸变钙钛矿氧化物钪酸镨(PrScO₃)中实现了厚样品的三维结构重构，典型的结果如图4所示。当然，在首次成功实现后，实际应用该技术时，实验过程和参数选择还是比较容易控制的，可以说没有太大的门槛。这个结果实现了投影间距为0.59 Å的两个镨原子的成功分辨，并且对原子序数小的氧原子也可以清晰地分辨出来。进一步分析发现，从实验数据中获得的原子静电势函数分布主要受限于实验所用室温条件下原子本征的晶格振动展宽，成像系统额外引入的展宽小于原子本征热展宽。这是成像技术历史上首次实现接近原子本征大小的终极分辨率。

除了分辨率进一步提高以外，多片层电子叠层衍射成像技术还有很多显著的优势。首先，该方法可以通过校正成像系统不稳定性引起的样品漂移，并提高图像的信噪比，使得我们能更精确测量原子中心位置，从而实现亚皮米的原子位置的定位精度。需要

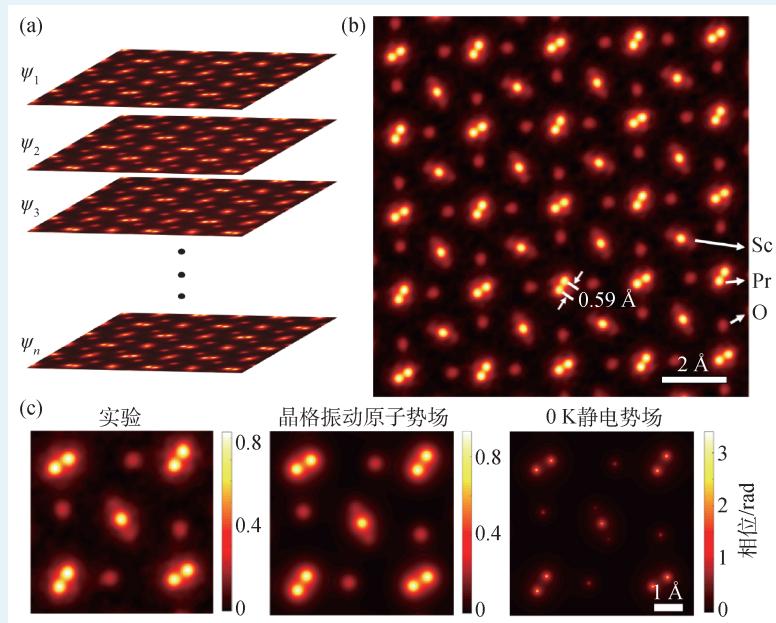


图4 多片层电子叠层衍射成像获取的PrScO₃的高分辨率原子结构^[15] (a)多片层电子叠层衍射重构获得的不同深度片层的结构示意图，其中样品的结构信息主要由透射函数的相位(ψ)确定；(b)所有片层相位线性叠加图；(c)比较了实验获得的相位图、考虑室温原子热振动和绝对零度下原子的静电势场对应的相位分布图

指出的是，这里的亚皮米精度是确定原子中心位置的统计可靠性，并非空间分辨率。亚皮米的原子位移通常可以与凝聚态物理关心的很多电子、轨道和自旋态关联起来。其次，该方法可以同时获得轻重元素的高质量原子图像。第三，它可以从单次投影测量中获得三维结构解析，并且可以突破成像系统限制的深度分辨率，目前实验实现了优于3 nm的深度分辨率。模拟显示，使用更大会聚角的成像条件甚至有望实现三维原子分辨率的结构解析^[43]。利用这种三维结构解析的优势，我们可以实现样品局域畸变引起的晶体学取向偏离的校正和测量^[15, 44]、单原子掺杂的三维测定和表面结构解析^[43]等常规成像技术不具备的成像能力。同时，该方法进一步提高了成像电子的利用率，在低剂量成像上具有非常明显的优势^[15, 45, 46]。这些成像优势使得多片层电子叠层衍射成像应用潜力巨大，最近在氧化物和分子筛等材料中已经有了一些初步的应用^[47-49]。

5 纳米尺度量子态成像

正如公式(3)所示，电子叠层衍射成像除了可以解析静电势场对应的原子结构以外，还可以对样品中存在的电磁相关物态成像。这里主要介绍笔者主导的首次实现近零磁场下自旋织构的洛伦兹电子叠层衍射成像的工作^[50]。

在透射电镜中，常规微结构观测需要使用强的磁透镜对电子聚焦，因此样品处于1—2 T的强磁场下。对于铁磁或亚铁磁样品，这种强磁场一般会将磁畴完全磁化，从而破坏可能存在的自旋织构。其中，磁斯格明子作为拓扑保护的准粒子，有望用于下一代自旋电子学或磁存储器件，因此获得了很大关注^[51]。高分辨率的磁成像技术对探测和调控尺寸更小的磁斯格明子至关重要，是研发相关磁存储器件的基础。洛伦兹电镜技术是常用的高分辨率磁成像技术，这类技术采用零磁场或近零磁场的成像模式，从而保持磁性材料本征的磁畴结构。一般分为洛伦兹透射电子显微术、电子全息和洛伦兹扫描透射电子显微术等三种。

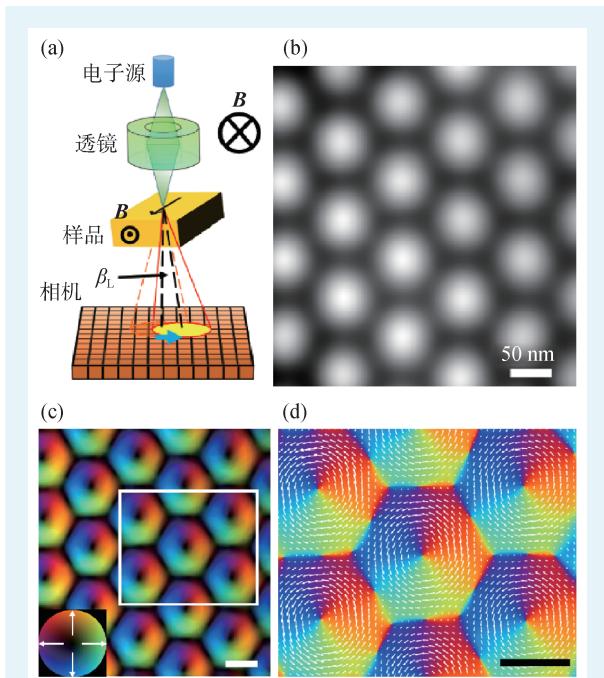


图5 洛伦兹电子叠层衍射对磁斯格明子晶格成像^[50] (a)洛伦兹电子叠层衍射实验设置示意图；(b)重构出的相位；(c)样品的磁场分布图；(d)图(c)中白框区域放大的磁场的矢量表示。样品的局域磁场可以通过测定电子束在洛伦兹力下的偏转角度(β_L)精确确定。其中图(c)左下角色轮图表示磁场方向和颜色的对应关系，样品为FeGe，成像条件在94 K的温度和130 mT外加磁场下，图(c)和(d)中标尺均为50 nm

随着新的高动态范围像素电子探测相机的发展，近年来洛伦兹扫描透射电子显微术在分辨率、信噪比和定量化等方面展现出了明显的优势^[52-54]。然而洛伦兹扫描透射电子显微术分辨率一般只能达到5 nm左右量级，因此电子叠层衍射成像可以被用来进一步提高磁成像的分辨率。

由于洛伦兹扫描透射模式在常用透射电镜上不是标准模式，在成功实现洛伦兹电子叠层衍射对自旋织构进行成像之前，我们经过了很多图像畸变调节和参数精确校正。我们选择经典的B20相FeGe样品，研究在约94 K下的磁斯格明子周期性晶格态，展示洛伦兹电子叠层衍射成像对磁结构的成像性能^[50]。图5展示了利用洛伦兹电子叠层衍射成像技术实现的磁斯格明子的图像。这里获得的图像分辨率约为2 nm，比直接成像的分辨率提高了约2.5倍。这种分辨率的提高也减小了成像系统展宽引起的磁场测量的误差，提高了测

量的准确度。同时，电子叠层衍射成像可以提高磁成像的灵敏度，获得的相位测量精确度比最好的电子全息结果提高了大概2倍，有望用于弱磁场信号的测量，特别是在低电子剂量成像条件下易辐照损伤样品磁结构的测量。

这种利用电子衍射强度直接实现样品内电磁场相关物态测量的方法，有望用于凝聚态物理领域关心的多种量子态成像，例如可以对超导材料中和超导电性密切相关的磁通涡旋态成像^[55]。同时，利用叠层衍射成像原理，类似于使用混合量子态来模拟多种相互独立的入射电子态，我们同样可以在物函数中引入混合量子态，这样就可以探测样品内的量子纠缠态。例如，使用X射线作为成像手段，模拟显示叠层衍射成像可以实现伊辛模型下自旋形成的混合量子态的探测和分离^[32]。广义上讲，叠层衍射成像也是一种量子态断层重构技术，有望用于研究量子信息领域关键量子态的探测^[56]。而透射电镜中的电子叠层衍射成像具有高空间分辨率和高探测灵敏度的优势，在微观尺度量子态测量上具有很大潜力。

6 展望

电子叠层衍射成像技术作为一种计算成像技术，已经获得了电子显微学界广泛的认可。该技术的很多新成像功能在解决凝聚态物理、化学和材料科学等领域的科学问题上的应用才刚刚开始，具有广阔的应用前景。但是，其方法本身在鲁棒性、效率和可靠性等方面还有很多问题亟需解决，

特别是目前计算速度还远不足以在数据采集的同时实现实时图像重构，严重制约了该技术的应用。因此，结合新的大数据和人工智能等方法，进一步改进电子叠层衍射成像技术，是该技术获得更广泛应用的关键。同时，结合系列倾转样品的断层重构技术，有望突破现有基于高角环形暗场像的三维原子解析仅能用于有限重元素组成的简单纳米体系的局限，实现同时含有轻重元素的复杂结构样品的三维原子结构解析，甚至实现多元无序非晶材料的三维原子位置的精确确定^[57, 58]。除了原子结构解析以外，对于凝聚态物理更关心的电荷、轨道和自旋等多自由度的高分辨率和高灵敏度探测也将是接下来的研究热点。在对与高能电子耦合较弱的电磁物态的探测上，电子叠层衍射成像技术可能也具有独特的优势。

最近这些进展揭示了计算成像可以在物理硬件条件的基础上，进一步提高透射电镜图像的解析能力，更好地认识微观世界。从历史发展来看，人们对透射电镜硬件的改进和图像处理技术的发展实际上是相辅相成的^[59]。球差校正器的成功也受益于精确确定像差系数和实时反馈调节复杂电磁元件的算法。电子叠层衍射成像方法可以利用数学算法对成像透镜不完美所引入的像差进行校正。这种将计算成像技术和物理硬件的集成，可以大大降低对硬件性能提高所需的高成本，特别是避免进一步提高分辨率所需的高阶球差校正器需要的极为苛刻的高稳定性条件。可以说这种方法也为低成本的高分辨率透射电镜研发提供了新的思路。

参考文献

- [1] Hoppe W. *Acta Cryst. A*, 1969, 25:495
- [2] Rodenburg J M, Faulkner H M L. *Appl. Phys. Lett.*, 2004, 85: 4795
- [3] Mait J N *et al.* *Adv. Opt. Photon.*, 2018, 10:409
- [4] Hsieh W K *et al.* *Ultramicroscopy*, 2004, 98:99
- [5] Coene W *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 1992, 69:3743
- [6] Van Dyck D *et al.* *Nature*, 2012, 486:243
- [7] Chen F R *et al.* *Nat. Commun.*, 2016, 7:10603
- [8] Gerchberg R W, Saxton W O. *Optik*, 1972, 35:237
- [9] Zuo J M *et al.* *Ultramicroscopy*, 2011, 111:817
- [10] Erni R *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2009, 102:096101
- [11] Sawada H *et al.* *J. Electron Microsc.*, 2009, 58:357
- [12] Schramm S M *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2012, 109:163901
- [13] Uhlemann S *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2013, 111:046101
- [14] Jiang Y *et al.* *Nature*, 2018, 559:343
- [15] Chen Z *et al.* *Science*, 2021, 372:826
- [16] Hegerl R, Hoppe W. *Berichte der Bunsengesellschaft für physikalische Chemie*, 1970, 74:1148

- [17] Rodenburg J, Maiden A. Ptychography. In: Hawkes P W, Spence J C H edited. *Springer Handbook of Microscopy*. Springer, 2019. p.819
- [18] Fienup J R. *Opt. Lett.*, 1978, 3:27
- [19] Faulkner H M, Rodenburg J M. *Phys. Rev. Lett.*, 2004, 93:023903
- [20] Thibault P *et al.* *Ultramicroscopy*, 2009, 109:338
- [21] Maiden A M, Rodenburg J M. *Ultramicroscopy*, 2009, 109:1256
- [22] Lichte H, Lehmann M. *Rep. Prog. Phys.*, 2008, 71:016102
- [23] Pfeiffer F. *Nat. Photonics*, 2017, 12:9
- [24] Hüe F *et al.* *Phys. Rev. B*, 2010, 82:121415
- [25] Humphry M J *et al.* *Nat. Commun.*, 2012, 3:730
- [26] Gao S *et al.* *Nat. Commun.*, 2017, 8:163
- [27] Ophus C. *Microsc. Microanal.*, 2019, 25:563
- [28] Rodenburg J. *Nature*, 2018, 559:334
- [29] Song J *et al.* *Sci. Rep.*, 2019, 9:3919
- [30] Chen Z *et al.* *Nat. Commun.*, 2020, 11:2994
- [31] Zhou L *et al.* *Nat. Commun.*, 2020, 11:2773
- [32] Thibault P, Menzel A. *Nature*, 2013, 494:68
- [33] Cao S *et al.* *Phys. Rev. A*, 2016, 94:063621
- [34] Bethe H. *Ann. Phys.*, 1928, 392:55
- [35] Cowley J M, Moodie A F. *Acta Cryst.*, 1957, 10:609
- [36] Humphreys C J. *Rep. Prog. Phys.*, 1979, 42:1825
- [37] Hýtch M J, Stobbs W M. *Ultramicroscopy*, 1994, 53:191
- [38] Brown H G *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2018, 121:266102
- [39] Donatelli J J, Spence J C H. *Phys. Rev. Lett.*, 2020, 125:065502
- [40] Maiden A M *et al.* *J. Opt. Soc. Am. A*, 2012, 29:1606
- [41] Tsai E H *et al.* *Opt. Express*, 2016, 24:29089
- [42] Jiang Y *et al.* *Microsc. Microanal.*, 2018, 24:192
- [43] Chen Z *et al.* *Microsc. Microanal.*, 2021, 27:2146
- [44] Sha H *et al.* *Sci. Adv.*, 2022, 8:eabn2275
- [45] Chen Z *et al.* *Microsc. Microanal.*, 2022, 28:376
- [46] Li G *et al.* *ACS Central Science*, 2022, 8:1579
- [47] Sha H *et al.* *Nat. Commun.*, 2023, 14:162
- [48] Sha H *et al.* *Sci. Adv.*, 2023, 9:eadfl151
- [49] Zhang H *et al.* 2022, arXiv:2212.08998
- [50] Chen Z *et al.* *Nat. Nanotechnol.*, 2022, 17:1165
- [51] Fert A *et al.* *Nat. Nanotechnol.*, 2013, 8:152
- [52] Krajinak M *et al.* *Ultramicroscopy*, 2016, 165:42
- [53] Nguyen K X *et al.* *Phys. Rev. Appl.*, 2022, 17:034066
- [54] Xu T *et al.* *Phys. Rev. Mater.*, 2021, 5:084406
- [55] Harada K *et al.* *Nature*, 1992, 360:51
- [56] Galindo A, Martín-Delgado M A. *Rev. Mod. Phys.*, 2002, 74:347
- [57] Chang D J *et al.* *Phys. Rev. B*, 2020, 102:174101
- [58] Ding Z *et al.* *Nat. Commun.*, 2022, 13:4787
- [59] Hawkes P W. *Philos. Trans. R. Soc. A*, 2009, 367:3637

