

Cu-W 薄膜表面形貌的分形表征与电阻率^{*}

汪 渊¹⁾²⁾ 徐可为^{1)†}

¹⁾西安交通大学金属材料强度国家重点实验室,西安 710049)

²⁾兰州铁道学院机械与动力学院,兰州 730070)

(2003 年 3 月 21 日收到,2003 年 6 月 23 日收到修改稿)

磁控溅射制备铜钨薄膜,用原子力显微镜和功率谱密度法分析薄膜生长表面形貌的分形维数,发现频段的选择基本不影响分形维数与溅射时间的关系.随溅射时间延长,薄膜厚度增加,分形维数增大,电阻率随分形维数的增大而升高.分析分形维数与电阻率的关系,认为对同一物质的导电薄膜,其表面形貌与电阻率存在对应关系.

关键词:Cu-W 薄膜,分形维数,功率谱密度,电阻率

PACC:7215C,0555

1. 引 言

对薄膜表面和界面进行定量描述是薄膜研究的难点,薄膜的许多物理性质和化学性质与表面形貌相关,如电学^[1,2]、光学^[3]、摩擦学^[4]等,但是考察相互间关系的研究长期未见突破.

近年来,人们认识到分形几何和尺度的概念能够在相当程度上简化对粗糙表面的描述^[5].由 Mandelbrot^[6]提出的分形论认为,分形是指一类无规则、混乱而复杂,但其局部与整体存在自相似的体系.一个系统的自相似性是指某种结构或过程的特征从不同的空间尺度或时间尺度来看都是相似的,或者某系统或结构的局域性质或结构与整体相似.一般情况下自相似性有比较复杂的表现形式,不是局域放大一定倍数以后简单地和整体重合.但是,表征自相似系统或结构的定量性质如分形维数,并不会因为放大或缩小等操作而变化,即存在伸缩对称性^[7].体系的形成过程具有随机性,体系的维数 D 可以是分数.具有分形特征的粗糙表面,随观察尺度的降低,将不断呈现新的表面结构细节.对理想表面,维数与其所在空间的欧几里德维 d 相等, $D = d = 2$;对于粗糙表面, $D > 2$,表面越复杂, D 越大.因此,可以用分形维数定量描述粗糙表面的整体复杂

程度.

Meakin 等人^[8]发现远离平衡态的薄膜表面具有自相似性,是一种分形结构,可以用分形维的形式进行定量描述,但是否可用分形维数描述热力学非平衡状态等问题尚未及深究.

近年来,导电性良好的金属和难熔的过渡族金属组成的材料在微电子和电子器件中的潜在应用引起人们的关注^[9].本文用磁控溅射制备 Cu-W 薄膜,以表面分形为手段,探讨薄膜的表面完整性,力求提取薄膜生长过程中的表面特征信息,并分析其与电阻率的可能关系.

2. 实 验

2.1. 样品制备

设备为 JGP560V 型超高真空反应磁控溅射机,极限真空为 10^{-8} Pa,可分别使用射频电源和双向脉冲电源.本文实验采用射频电源.

靶材为 $\phi 75$ mm 金属 W(纯度为 99.95%),W 靶表面放置 Cu 片(纯度为 99.99%).为均匀镀膜,溅射时样品座旋转,旋转速率为 5r/min,样品台通循环水冷却.基片为单面抛光(111)单晶 Si 片,表面约有 8nm 厚的 SiO_2 ,可阻止 Si 与 Cu 的直接接触.

^{*} 国家自然科学基金重点项目(批准号:59931010)和国家教育部骨干教师计划资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: kwxu@mail.xjtu.edu.cn

溅射本底真空度为 6×10^{-5} Pa, 溅射前通入 Ar 气(纯度为 99.999%)清洗靶材 10min, 随后反溅射(功率为 50W)清洗样品 5min. 质量流量计控制 Ar 流量. 溅射功率为 50W, Ar 流量为 8sccm, 气压为 0.3Pa, 时间分别为 2, 5, 10 和 40min, 相应的样品编号分别为 1—4.

2.2. 样品分析

用 AFM-Ⅱ型原子力显微镜(AFM)观察样品表面形貌, 测出薄膜表面高度数值用于分形维计算. 每个样品至少扫描 4 个不同区域, 选取典型图像进行分形分析. 原子力显微镜横向分辨率 ≤ 5 nm, 纵向分辨率优于 1nm. 最大扫描范围为 $2\mu\text{m} \times 2\mu\text{m}$. 用日本理学 D/max-3A 型 x 射线衍射仪($\text{CoK}\alpha$)检测薄膜的物相结构, 石墨单色器滤波. 用四点探针测量电阻. 用扫描电子显微镜(SEM)电子穿透深度数据和薄膜与基底的 x 射线能量散射谱(EDS)数据计算薄膜厚度^[10]. 计算值与 SEM 观测值相差不足 50nm. 样品 1—4 分别对应薄膜厚度 60, 160, 300 和 1100nm.

2.3. 分形维的计算

分形维的计算方法有多种, 如盒子法^[11]、功率谱密度法^[12]、面积-尺度法^[2]、变分法^[13]等. 本文采用傅里叶变换功率谱密度法计算 AFM 图的分形维数. 傅里叶变换(FT)是图像分析的有力工具. 傅里叶图以狭窄的波峰反映重复的图案, 其突出优点是对噪声不敏感, 即使噪声高达 25%(信噪比 3:1), 也不会使傅里叶变换产生明显偏差. 特别地, 设备噪声与信号频谱不重叠, 其对傅里叶变换后表征信号的频谱系数影响不大, 对最终分形维计算结果的影响可忽略不计^[5].

分形维数值通过 $\lg S(k) - \lg k$ 的斜率得出. 功率谱密度 $S(k)$ 和频率 k 之间存在以下关系^[14]:

$$S(k) \propto k^{-\beta}, \quad (1)$$

分形维数 D 与斜率 β 存在以下关系:

$$D = 4 + \frac{\beta}{2}. \quad (2)$$

AFM 图像的功率谱密度通过二维傅里叶变换获得, 为 $N_x \times N_y$ 大小的 AFM 图像高度函数 $Z(x, y)$, 二维傅里叶变换为

$$F(u, \nu) = \frac{1}{N_x N_y} \sum_{x=0}^{N_x-1} \sum_{y=0}^{N_y-1} Z(x, y) \exp\left[-j2\pi\left(\frac{ux}{N_x} + \frac{\nu y}{N_y}\right)\right], \quad (3)$$

$$u \in \{0, \dots, N_x-1\}, \nu \in \{0, \dots, N_y-1\},$$

u, ν 为频率变量, 相应图像的功率谱密度可由(4)式获得:

$$S(k) = |F(u, \nu)|^2. \quad (4)$$

本文计算时未对原始数据进行任何过滤或平滑处理.

3. 结果与讨论

3.1. 薄膜的表面分形

4 个样品的成分基本相同, 如表 1 所示. 图 1 为 x 射线衍射(XRD)谱图, 样品 1 和 2 的 XRD 谱线与样品 3 相似, Cu 衍射峰峰形宽化明显. 样品 4 则出现较尖锐的 Cu 衍射峰. 由图 6 可知, 除样品 4 以外, 其余样品的电阻率很高, 均在 $100\mu\Omega \cdot \text{cm}$ 左右, 与一般的非晶金属电阻率处于同一数量级^[15], 远大于纯 Cu 和纯 W 的电阻率.

表 1 Cu-W 薄膜成分(EDS)

元素/at%	样品 1	样品 2	样品 3	样品 4
Cu	89.69	89.03	91.29	86.03
W	10.31	10.97	8.71	13.97

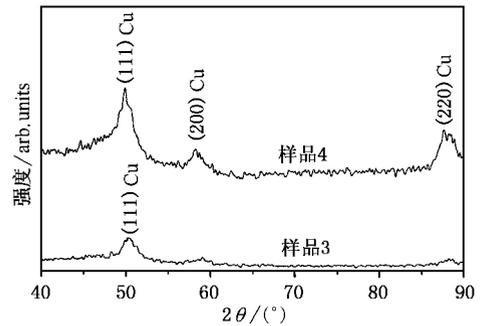


图 1 不同溅射时间 Cu-W 薄膜的 XRD 谱图

图 2 为 Cu-W 薄膜不同溅射时间的 AFM 图. 沉积初期的薄膜表面由一些稀疏的岛状小颗粒组成, 随后这些岛状颗粒数量增多, 开始聚合、长大. 随溅射时间的延长, 薄膜厚度增加, 颗粒数目越来越多, 颗粒之间的空洞体积不断减小, 但缺陷数目则增加.

图 3 为样品 2 的功率谱密度 $S(k)$ 和频率 k 的双对数图, 其他样品有类似的曲线关系. 将图 3 中频率范围分成 1, 2, 3 个频段, 发现对应不同频段存在不同的斜率值, 说明分形维数的准确估计依赖于数据点的多寡^[14], 最终估算的斜率值与选取的频率范

围有很大关系.然而从图 4 可看出,尽管不同频段所估计的分形维数不同,但总体上它们随溅射时间的变化趋势还是一致的.即随溅射时间延长,薄膜厚度

增加,分形维数呈上升趋势.说明分形维数的变化趋势对频段的选择不敏感.

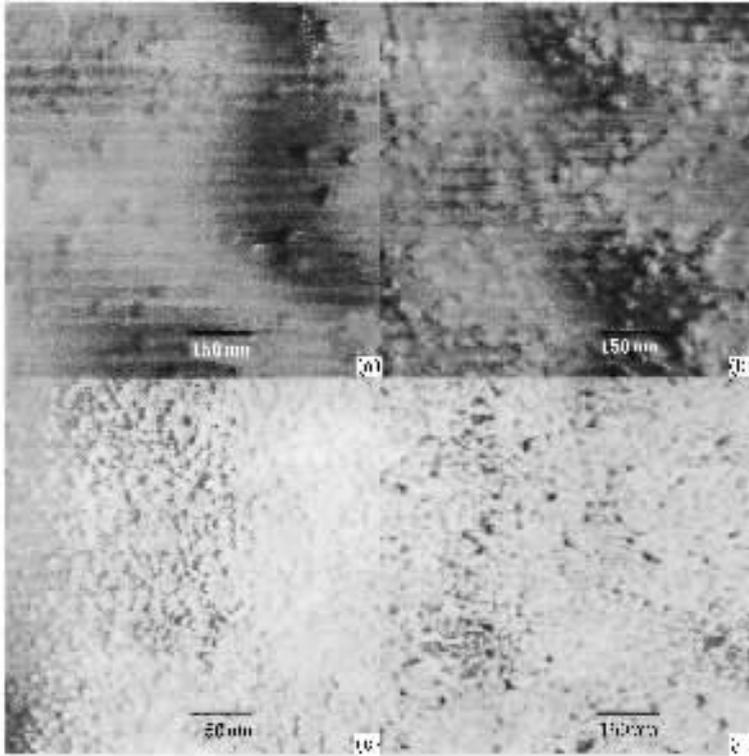


图 2 射频溅射 Cu-W 薄膜 AFM 图 (a)为样品 1 (b)为样品 2 (c)为样品 3 (d)为样品 4

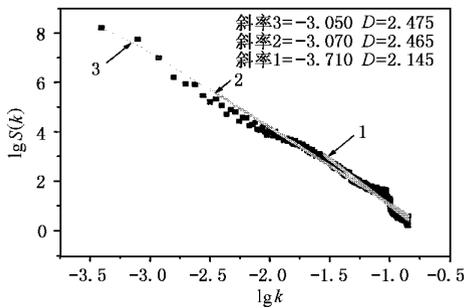


图 3 样品 2 的 $\lg(S(k))-\lg k$ 关系曲线不同频段的斜率分析

需要探讨究竟是何种因素导致不同生长阶段的薄膜具有不同的粗糙度?一般认为薄膜生长的表面形貌和动力学受两个相反效应控制,即粗化和平滑化.最终的表面形貌是两种效应互相竞争权衡的结果.粗化效应由与入射粒子相关的散射噪音产生^[16],平滑化效应则包括表面扩散、体扩散和蒸发-凝聚等作用.Liu 等人^[17]认为薄膜表面的粗化是由低频部分,即不相关白噪声引起.

本实验的薄膜制备工艺完全相同,溅射粒子的能量只在一个很小的范围内波动,故表面粗化程度相差不大.体现在功率谱密度与频率的双对数曲线上,低频和中频段曲线形状基本类似.然而曲线在高频段却呈现出不同的变化趋势(见图 5 区段 A).一般认为,分析图像信号频谱特性时,信号的高频分量反映的是图像本身的细节,而大面积的背景区则代表图像信号的低频分量^[18].因此样品 AFM 图像的高频段直接反映了薄膜表面的细节信息,体现薄膜表面的整体复杂程度.也即图 5 高频段曲线的变化程度预示着薄膜精细结构的不同.可以认为高频段

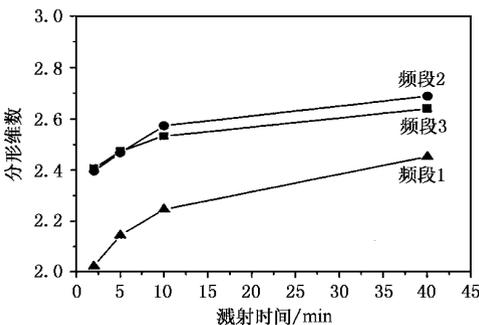


图 4 Cu-W 薄膜分形维数随溅射时间的变化

曲线与低中频曲线的线性度越接近,所拟合的直线斜率就越小,相应的分形维数越大,预示着薄膜的精细结构较多,体现在本文 Cu-W 薄膜上,主要反映的是表面的小岛和缺陷数量不断增多.这与 Liu^[17]的观点有一定差异.

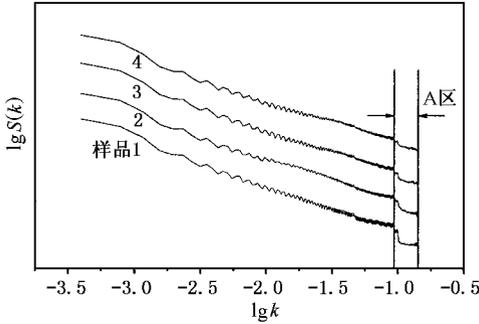


图 5 不同样品的功率谱密度 $S(k)$ 与频率 k 双对数曲线比较

3.2. 薄膜电阻与分形维数

Cu-W 薄膜的电阻率与分形维数(全频段拟合值)的关系见图 6. 随分形维数增加,电阻率呈现不同变化趋势.存在一个临界分形维数,在此之前,电阻率随分形维数的增加而增大;之后,电阻率出现明显下降.

Wang 等人^[1]认为薄膜的阻抗特性与分形维数值有密切关系,并用“隧道结网络”模型加以解释,指出薄膜电阻率随分形维数减小而单调下降. Tang 等人^[19]也认为,薄膜电阻与其表面形貌有关,电阻率随薄膜表面粗糙度增加呈线性增加.

结合文献 [1] 的观点,可推断认为:Si 基底上的 Cu-W 薄膜是由若干岛状团簇组成,不相连的岛状团簇及其周围的缺陷形成导体-绝缘体-导体结,每个结有一个势垒,整个薄膜由相连的金属部分和一系列这种结串并联构成.薄膜电阻率与结的数目及其势垒的大小有关.薄膜的分形维数越大,缺陷和小岛就越多,则这种结的数量也随之增加,表现为薄膜电

阻率升高.而溅射时间 40min 的薄膜,分形维数最大,电阻率却是最低.我们认为这种反常情况恰恰反映了薄膜晶体组态的变化,其可能的原因存在于长时间溅射的离子轰击,可能导致薄膜晶化,使金属趋于较低的能量状态.随金属结构趋于稳定化,其电阻率将发生不可逆变化,表现为电阻率突然下降^[15].因此,我们认为,文献的观点应稍作修改或强调,即仅仅对于同一物质结构的导电介质,薄膜的电阻率与分形维数大致呈正比关系.

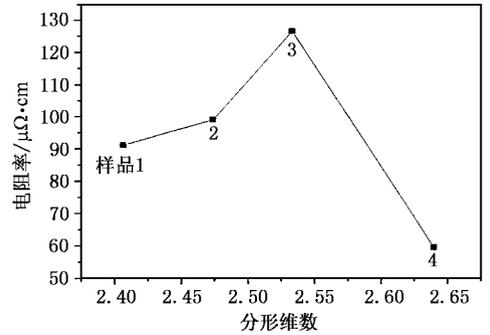


图 6 Cu-W 薄膜电阻率与分形维数的关系

4. 结 论

1. 分析 AFM 图像,用功率谱密度法估算 Cu-W 薄膜的分形维数,发现分形维数的变化趋势对频段的选择不敏感.
2. 溅射时间延长,Cu-W 薄膜厚度增加,薄膜的分形维数相应增大.
3. 对于同一物质结构的导电介质,表面形貌与电阻率有对应关系,电阻率随分形维数的增加而升高.

北京工业大学博士生李晓华与作者之一(汪渊)就分形计算进行过多次有益的讨论,谨致衷心感谢.

[1] Wang J S, Ye G X, Xu Y Q and Zhang Q R 1994 *Acta Phys. Sin.* **43** 1688 (in Chinese) [王劲松、叶高翔、许宇庆、张其瑞 1994 物理学报 **43** 1688]
 [2] McRae G A, Maguire M A, Jeffrey C A, Guzonas D A and Brown C A 2002 *Appl. Surf. Sci.* **191** 94
 [3] Jong C A and Chin T S 2002 *Mater. Chem. Phys.* **74** 201

[4] Wang J H, Lu X C, Qian L M, Shi B and Wen S Z 1998 *Tribology* **18** 60 (in Chinese) [王吉会、路新春、钱林茂、史兵、温诗铸 1998 摩擦学学报 **18** 60]
 [5] Russ J 1994 *Fractal Surfaces* (New York and London: Plenum) pp77—156
 [6] Mandelbrot B B 1982 *The Fractal Geometry of Nature* (San Fran-

- cisco : Freeman)pp1—56
- [7] Liu Y J 2002 *PhD Thesis* South China University of Technology (in Chinese) [刘亚俊 2002 博士学位论文(华南理工大学)]
- [8] Meakin P 1998 *Fractal , Scaling and Growth Far from Equilibrium* (London : Cambridge University Press)pp404—425
- [9] Barmak K , Lucadamo G A , Cabral C , Lavoie C and Harper J M E 2000 *J. Appl. Phys.* **87** 2204
- [10] Zhao J Z and Xu T 1996 *Handbook of Electron Microscope Analysis* (Yingchuan : Ningxia People Education Press) p89 (in Chinese) [赵家政、徐 洮 1996 分析电子显微实用手册(银川 : 宁夏人民教育出版社)第 89 页]
- [11] Sarkar N and Chaudhuri B B 1994 *IEEE Trans. Syst. Man Cybernetics* **24** 115
- [12] Almqvist N 1996 *Surf. Sci.* **355** 221
- [13] Dubuc B , Quinion J F , Tricot C and Zucker S W 1989 *Phys. Rev. Lett.* **67** 1759
- [14] Tayfun B and Kayhan D 2001 *Fractal* **9** 105
- [15] Dai D S and Han R Q 1989 *Non-Crystalline Solid Physics* (Beijing : Electronics Industry Press)pp 282—289(in Chinese) [戴道生、韩汝琪 1989 非晶态物理(北京 : 电子工业出版社)第 282—289 页]
- [16] Eklund E A , Bruninsma R and Rudnick J 1991 *Phys. Rev. Lett.* **67** 1759
- [17] Liu Z J and Jiang N 2002 *J. Appl. Phys.* **92** 3559
- [18] Ruan Q Q 2001 *Digital Image Processing*(Beijing : Electronics Industry Press)p200(in Chinese) [阮秋崎 2001 数字图象处理学(北京 : 电子工业出版社)第 200 页]
- [19] Tang W , Xu K W , Wang P and Li X 2002 *Acta Metall. Sin.* **38** 449(in Chinese) [唐 武、徐可为、王 平、李 弦 2002 金属学报 **38** 449]

Cu-W Thin film characterized by surface fractal and resistivity^{*}

Wang Yuan^{1,2)} Xu Ke-Wei¹⁾

¹⁾ State Key Laboratory for Mechanical Behavior of Materials ,Xi 'an Jiaotong University ,Xi 'an 710049 ,China)

²⁾ Department of Mechanical Engineering ,Lanzhou Railway Institute ,Lanzhou 730070 ,China)

(Received 21 March 2003 ; revised manuscript received 23 June 2003)

Abstract

Thin films of Cu-W were deposited on Si wafers by magnetron sputtering ,and characterized by atomic force microscopy (AFM). Power spectra density was used to calculate the fractal dimension of the AFM images . The results show that the fractal dimension values increase with the film thickness and there is a relationship between the fractal dimension and the resistivity of the films . The change of resistivity is directly proportional to the fractal dimension .

Keywords : Cu-W thin film , fractal dimension , power spectra density , resistivity

PACC : 7215C , 0555

* Project supported by the Major Program of the National Natural Science Foundation of China(Grant No.59931010) ,and the Foundation for University Key Teachers from the Ministry of Education of China .

† Author to whom correspondence should be addressed . E-mail : kwxu@mail. xjtu. edu. cn