

基于小波变换 Cu-W 薄膜表面形貌表征 与硬度值分散性评价*

汪 渊^{1,2)} 白宣羽¹⁾ 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 7 月 10 日收到, 2003 年 11 月 30 日收到修改稿)

提出了一种基于小波变换描述薄膜表面形貌的方法. 运用离散小波变换法研究磁控溅射 Cu-W 薄膜表面特征随溅射时间的演变. 结果表明, Cu-W 薄膜在溅射时间超过 600s 时才达到稳定. 不同薄膜表面形貌的变化主要是由高频部分引起. 薄膜的粗糙表面会引起纳米压入硬度值的分散, 这种分散性可用基于小波变换的薄膜表面形貌多尺度分解评价.

关键词: Cu-W 薄膜, 表面形貌, 小波变换, 纳米压入

PACC: 6800, 0630C

1. 引 言

由于薄膜表面形貌变化的复杂性以及缺乏统一标准, 定量描述表面和界面历来是薄膜研究的难点^[1]. 在大多数情况下, 描述表面的往往是一些复杂的经验公式, 如 Nowicki^[2] 提出用 32 个参数来表征粗糙表面. 通常用灰度图像定性地展示粗糙表面的凹凸起伏. 图像的像素点越亮, 样品表面对应点的位置越高, 相应地, 越黑则对应点越低. 因此可用二维信号表征样品的表面形貌.

近年来, 微纳米尺度下使用的薄膜材料颇受关注^[3]. 薄膜表征也因此成为非常活跃的研究领域^[4-6]. 比如用纳米压入技术度量薄膜力学性能^[7]. 但纳米压入的体积非常小, 因此会有许多因素显著影响测量的可靠性, 样品的表面粗糙度即是关键因素之一^[8]. 粗糙表面使得压头与样品接触不完整, 导致压入初期硬度测量值不可靠.

本文用磁控溅射制备不同厚度的 Cu-W 薄膜, 运用小波变换, 在亚微尺度下分析 Cu-W 薄膜表面

形貌, 提取薄膜生长过程中的表面特征信息, 探讨薄膜的表面完整性, 并进一步考察了表面粗糙度对纳米压入硬度值的影响.

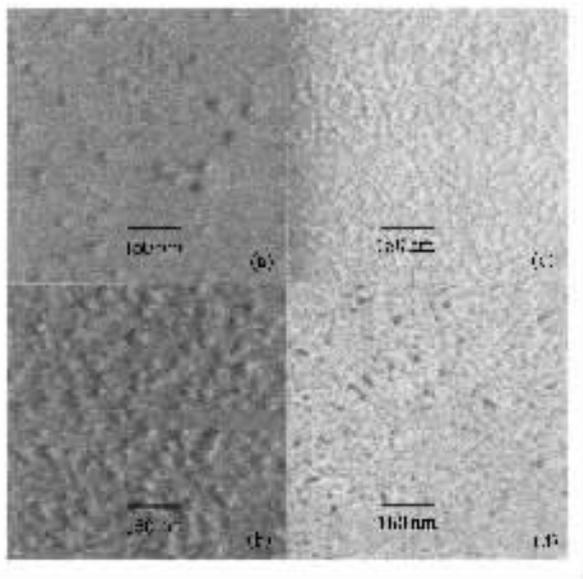


图 1 射频溅射 Cu-W 薄膜 AFM 图 (a) 为样品 1 (b) 为样品 2, (c) 为样品 3 (d) 为样品 4

* 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基金资助的课题.

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

2. 实 验

2.1. 薄膜制备

用国产 JGP560V 型超高真空反应射频磁控溅射机制备 Cu-W 薄膜. 本底真空优于 6×10^{-5} Pa. 靶材 $\phi 75$ mm 金属 W (纯度为 99.95%), W 靶表面放置 Cu 片 (纯度为 99.99%, 厚度为 1 mm). 基片为单面抛光 (111) 单晶 Si 片, 表面约有 8 nm 厚的 SiO_2 , 可阻止 Si 与 Cu 的直接接触.

溅射前通入 Ar (纯度为 99.999%) 反溅 (功率为 100 W) 清洗样品 10 min, 随后预溅清洗靶材直至等离子体辉光稳定. 靶与样品座距离为 50 mm. 为使膜层均匀, 溅射时样品座自转, 速率为 5 r/min, 样品台通循环水冷却. 质量流量计控制 Ar 流量. 溅射功率为 50 W, Ar 流量为 8 sccm, 气压为 0.3 Pa. 溅射时间分别为 120, 300, 600, 2400 s, 膜厚依次为 60, 160, 300, 1100 nm, 样品编号依次为 1—4.

2.2. 薄膜表征

薄膜从真空室取出即用原子力显微镜 (AFM) 观察表面形貌. 所用设备为国产 AFM-II 型原子力显微镜, 测试条件为室温非接触模式. 每个样品扫描多个不同区域, 区域间距足够大, 选取典型图像进行分析. AFM 横向分辨率 ≤ 5 nm, 纵向分辨率优于 1 nm. 扫描范围为 $2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$, AFM 图像分辨率为 400×400 像素. 图 1 为 Cu-W 薄膜 AFM 图像. x 射线能量散射谱 (EDS) 确定薄膜成分 (见表 1).

表 1 Cu-W 薄膜成分 (EDS) 单位: at%

元素	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

薄膜硬度用 MTS nanoindenter-XP 型纳米压入仪测定. 使用 Berkovich 压头, 压头尖端曲率半径为 50 nm. 图 2 为典型的纳米压入加载-卸载循环过程的载荷-位移曲线. 加载到预定深度, 保持载荷稳定 10 s 后卸载. 90% 卸载处载荷稳定 50 s, 计算热漂移. 每个样品至少 20 个压痕. 薄膜硬度取压入深度为膜厚的 1/10—1/7 附近较为稳定分布时的平均值. 样品 1—3 硬度分别为 4.76, 5.37, 5.54 GPa.

2.3. 表面形貌的小波变换

小波变换在信息处理领域称为“数学显微镜”,

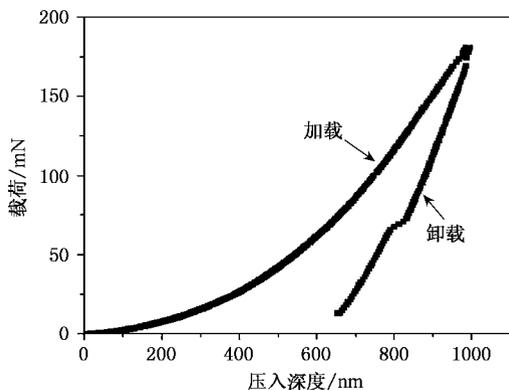


图 2 纳米压入载荷-位移曲线

它在时域和频域同时具有良好的局域化性质, 可以聚焦到任意细节. 在分析含有不连续和突变尖峰信号时, 如粗糙表面等, 小波分析比传统的傅里叶方法更有优势. 小波分析的基本思想是用小波函数族分析信号, 小波函数族是由基小波 (或母小波) 在不同尺度的平移和伸缩构成, 即^[9]

$$\psi_{a,b}(t) = \frac{1}{\sqrt{a}} \psi\left(\frac{t-b}{a}\right), \quad a, b \in \mathbf{R}, \quad a \neq 0, \quad (1)$$

式中 a 和 b 分别为伸缩因子和平移因子, t 为空间变量, $\psi(t)$ 为基小波, 则函数 $f \in L^2(\mathbf{R})$ 的连续小波变换 (CWT) 为

$$W_\psi[f](a, b) = \frac{1}{\sqrt{a}} \int_{-\infty}^{\infty} f(t) \psi\left(\frac{t-b}{a}\right) dt. \quad (2)$$

在实际应用中, 往往使用快速小波分解算法, 需要对连续小波变换进行离散化. 一般用 a_0^m ($a_0 \neq 0, 1$) 和 $nb_0 a_0^n$ ($b_0 \neq 0$) 分别代替 a 和 b , 其中 m 和 n 为整数. 通常情况下, 设 $a_0 = 2, b_0 = 1$, 函数 f 的离散小波变换 (DWT) 定义为

$$\begin{aligned} \bar{f}(m, n) &= W_\psi[f](m, n) \\ &= a_0^{-m/2} \int_{-\infty}^{\infty} f(t) \psi\left(\frac{t - nb_0}{a_0^m}\right) dt. \end{aligned} \quad (3)$$

离散小波变换具有时频局域化和多分辨的特性, 在分析粗糙表面的多尺度特征方面有很大潜力^[10]. 应用离散小波变换, 原始信号可由一个近似信号和一组不同尺度细节信号 $\{A_d, D_n\}_{n=1, 2, \dots, d}$ 表示, 其中 n 为小波分解级数. 本文使用 Daubechies 4 小波, 对薄膜表面形貌进行六级塔式递归分解. 图 3 即为 AFM 图像的六级离散小波变换过程, 其中 A_0 为原始图像, A_n 和 D_n 分别为相应尺度下的近似和

细节图像. 若规定原始图像 A_0 归一化频率范围为 $0-1$, 基于小波分析理论, 细节图像 $D_1, D_2, D_3, D_4, D_5, D_6$ 归一化频率范围将分别为 $0.5-1, 0.25-0.5, 0.125-0.25, 0.0625-0.125, 0.03125-0.0625, 0.0156-0.03125$.

样品 2 细节图像离散小波变换的分解结果如图 4 所示. Daubechies 小波是正交小波基, 故小波分解后叠加子图像即可获得原始图像. 图 5 为样品 2 的原始图像和重获图像. 在重获图像中未见有明显的信息丢失.

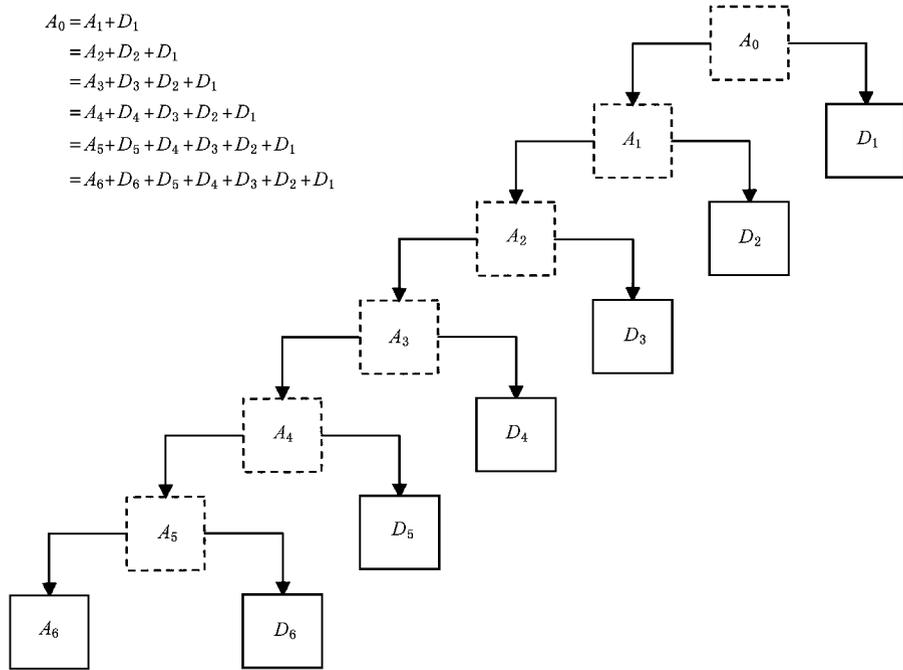


图 3 小波变换塔式分解结构

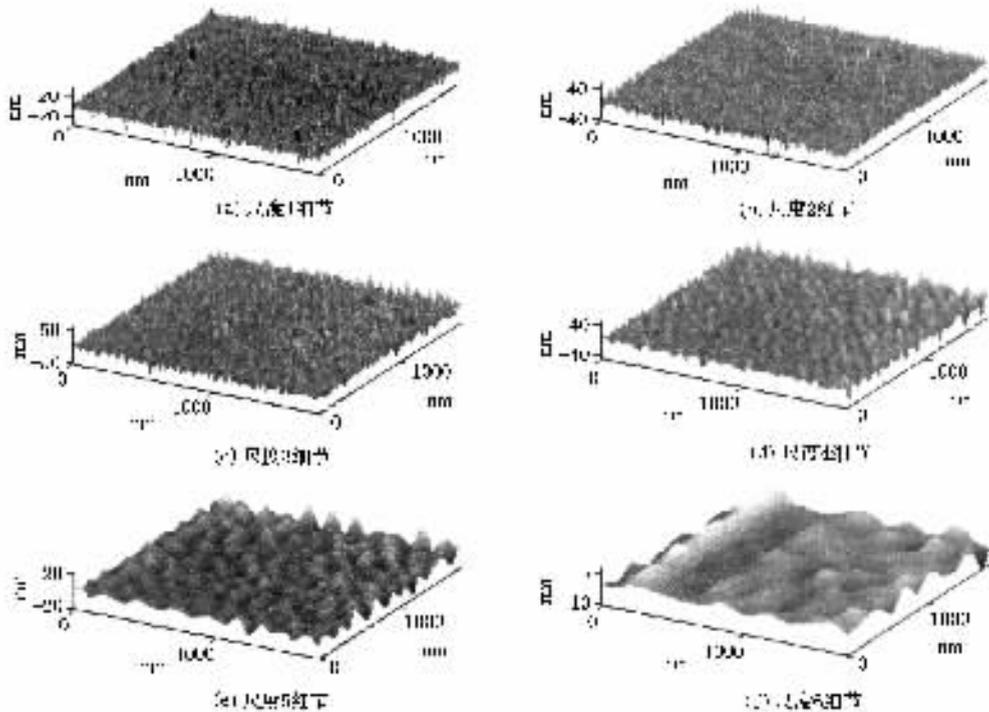


图 4 样品 2 小波变换六级分解细节图像

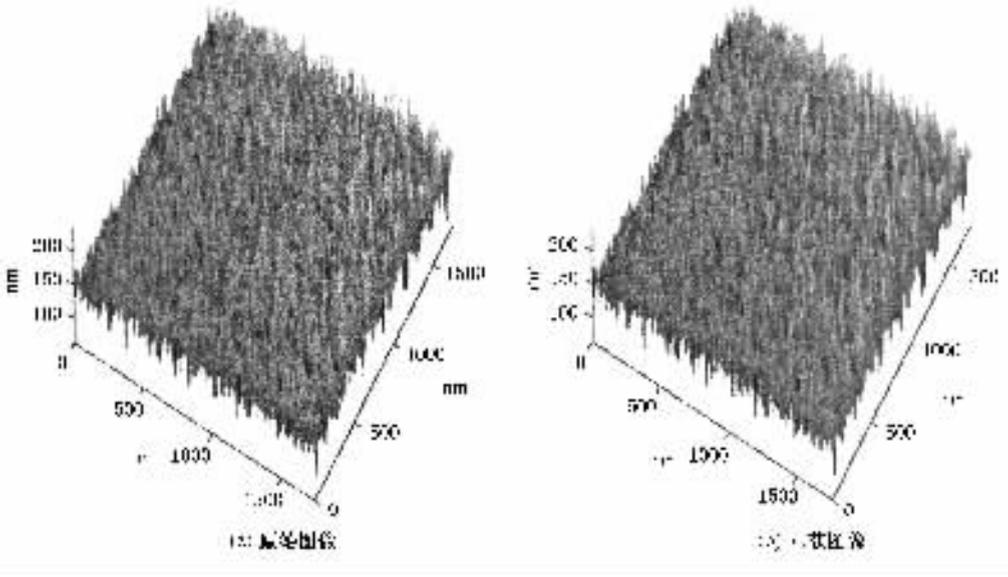


图5 样品2的原始图像和重获图像

图像在尺度 n 的能量 E_n 可表示薄膜在相应尺度下的表面凹凸起伏程度,如

$$E_n = \frac{1}{M_n} \sum_{i,j=0}^{M_n-1} y_n^2(i,j), \quad n = 1, 2, \dots, 6 \quad (4)$$

其中 $y_n(i,j)$ 为像素点 (i,j) 的灰度值, M_n 为相应尺度 n 的像素数.

3. 讨 论

3.1. 薄膜表面形貌

薄膜表面特征随溅射时间的演变如图1所示. 沉积初期的薄膜表面由一些稀疏的岛状小颗粒组成, 颗粒平均尺寸约为30nm. 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, 颗粒平均尺寸以及颗粒之间的空洞体积不断减小, 但缺陷数目则增加.

图6为样品六级尺度分解的细节图像能量归一化分布, 以细节图像总能量为归一化基点. 样品3和样品4的能量随分解尺度的变化趋势趋于一致. 这意味着Cu-W薄膜在溅射时间超过600s时, 其表面形态趋于稳定, 其余样品则仍处于薄膜生长的初期阶段, 它们的能量分布差别较大. 这与图1所示Cu-W薄膜表面形貌变化态势相符合. 图1(c)和(d)表面的颗粒形态与尺寸几乎一样, 只是数量不同, 其余两个图则与之相差明显. 因此生长薄膜的粗化演变可用离散小波变换法表征. 不同样品在同一尺度下

的能量差值随频域的增大而变大. 作者此前曾证明^[11], 高频部分可反映薄膜表面的差异性. 样品3和样品4表面有更多的小颗粒[图1(c)和(d)], 表明高频部分的能量主要来自薄膜表面散布的小颗粒(即突变信号).

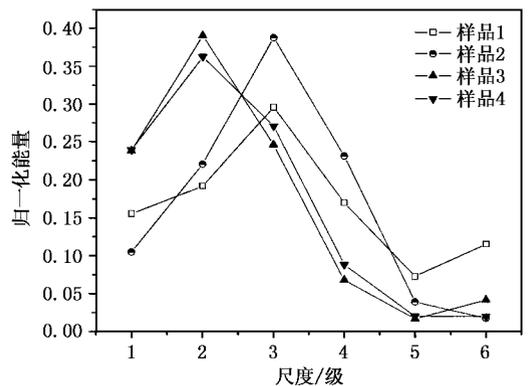


图6 归一化能量在不同尺度下的分布

3.2. 表面形貌和硬度值分散

材料的表面特性通常定义为三部分, 即表面粗糙度、波度和轮廓, 分别代表三个不同频率范围的表面特性^[12]. 因此, 使用 Daubechies 小波分解, 可将薄膜表面相应分为三个频段, 即对于六级小波分解, $D_1 + D_2$ 为表面粗糙度, $D_3 + D_4 + D_5$ 为波度, $D_6 + A_6$ 为轮廓^[13].

压头压入粗糙表面时, 接触面积的形状不同, 导

致随后硬度计算出现误差,如图 7 所示.粗糙表面会使压载随压入深度发生额外变化,引起硬度值数据波动^[14].薄膜表面凸起颗粒尺寸大于压头尖端直径不会影响测量,因为这相当于给压头提供了一个良好的压入平面[图 7(b)].然而若表面散布的颗粒尺寸小于压头直径,会显著影响压入结果.特别是在压入初期阶段,压头实际只接触样品表面几个突起点,压入的有效接触面积将小于理论模型计算值.

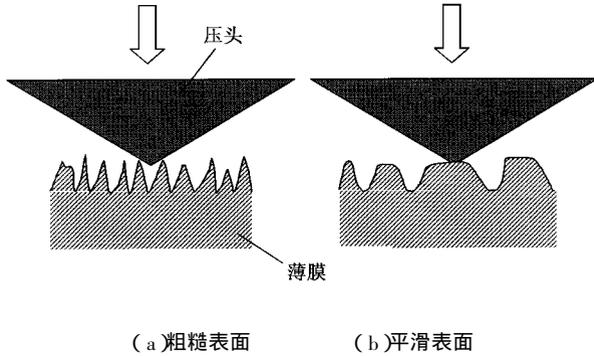


图 7 薄膜表面粗糙度对纳米压入的影响

已经证明,纳米压入硬度值受表面颗粒尺寸影响^[15].图 8 为硬度值标准差随压入深度的变化,可

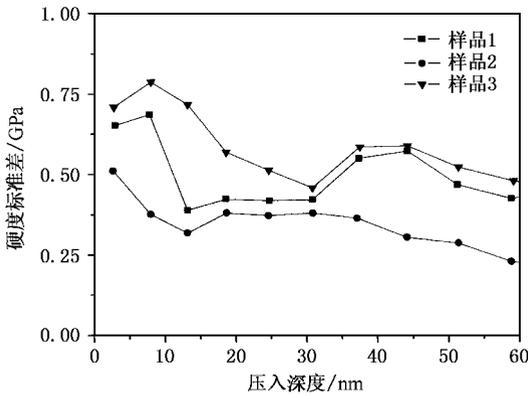


图 8 硬度标准差随压入深度变化

反映硬度测量值的分散程度.若数据分散性低,则标准差曲线趋近于零.这种数据分散性可利用工程表面粗糙度定义来评价,如图 9 所示.表面粗糙度(即归一化能量 $D_1 + D_2$)随溅射时间的变化趋势与硬度值分散程度相一致.因此可用基于小波变换的薄膜表面形貌多尺度分解,考察其归一化能量分布,评价薄膜纳米压入硬度值的分散度.

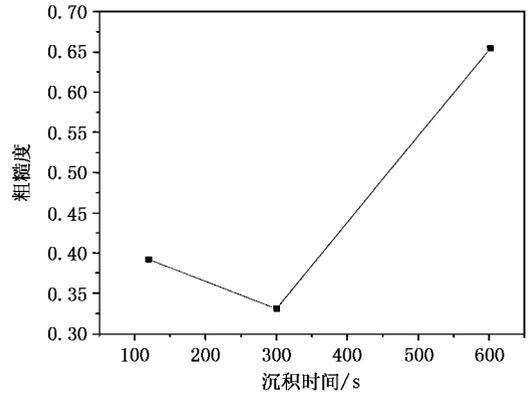


图 9 粗糙度随沉积时间变化

4. 结 论

本文运用离散小波变换法研究了 Cu-W 薄膜表面形貌的多尺度特征.离散小波变换法可以对薄膜 AFM 图像同时进行空间和频率局部化变换.生长薄膜的形貌粗化演变可用离散小波变换法描述.结果表明,当溅射时间超过 600s 时,薄膜表面特征趋于一致.高频部分的能量主要表征散布在薄膜表面的小颗粒,这些颗粒导致了纳米压入硬度值的分散.这种分散度可用基于小波变换得到的能量分布来评价.因此,用离散小波变换法表征薄膜表面形貌是可行的.

[1] Paul M 1998 *Fractal, Scaling and Growth Far from Equilibrium* (London: Cambridge University Press) pp404—425
 [2] Nowicki B 1985 *Wear* **102** 161
 [3] Nix W 1989 *Metall. Trans. A* **20** 2217
 [4] Kitty W et al 2003 *Surf. Coat. Technol.* **168** 57
 [5] Lim Y Y, Chaudhri M M and Enomoto Y 1999 *J. Mater. Res.* **14** 2314
 [6] Kriese M D and Gerberich W W 1999 *J. Mater. Res.* **14** 3019
 [7] Ohmura T, Matsuoka S, Tanaka K and Yoshida T 2001 *Thin Solid*

Films **385** 198

[8] Bouzakis K D, Michailidis N and Hadjiyiannis S 2003 *Mater. Characterizat.* **49** 149
 [9] Debnath L 2002 *Wavelet Transforms and Their Applications* (New York: Birkhauser Boston) pp12—14
 [10] Raja J, Muralikrishnan B and Fu S Y 2002 *Precision Eng.* **26** 222
 [11] Wang Y and Xu K W 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 900 (in Chinese)
 [汪 渊、徐可为 2004 物理学报 **53** 900]
 [12] British Standard Institution 1982 *Introduction to Surface Texture*

(London : British Standards Publishing Limited)

[15] Bobji M S , Biswas S K and Pethica J B 1997 *Appl. Phys. Lett.* **71**

[13] Bruno J , David B and Michael L 2002 *Wear* **252** 491

1059

[14] Mencik J and Swain M V 1995 *J. Mater. Res.* **10** 1491

Morphological characterization and nanoindentation hardness scatter evaluation for Cu-W thin films based on wavelet transform *

Wang Yuan^{1 2)} Bai Xuan-Yu¹⁾ Xu Ke-Wei^{1)†}

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 10 July 2003 ; revised manuscript received 30 November 2003)

Abstract

A strategy based on wavelet transform to describe surface morphology of thin films is presented in this paper. The evolution of surface morphology of Cu-W thin films with deposition time on silicon wafers was investigated by discrete wavelet transform (DWT) method. The results show that the surface morphology of the thin films is unstable until the sputtering time exceeds 10 min. The surface morphology variation of different thin films can be distinguished primarily by high frequency signals. A scattering of the nanoindentation hardness values , which results from the roughness of the thin films surface , can be characterized by the roughness defined by the surface texture based on wavelet transform.

Keywords : Cu-W thin films , surface morphology , wavelet transform , nanoindentation

PACC : 6800 , 0630C

* 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.

† Corresponding author. E-mail : kwxu@mail.xjtu.edu.cn