

Исследование структуры и свойств

Физические методы исследования и контроля

Исследование поверхности

УДК 539.211:681.723

СИСТЕМА ПАРАМЕТРОВ ДЛЯ АНАЛИЗА ШЕРОХОВАТОСТИ И МИКРОРЕЛЬЕФА ПОВЕРХНОСТИ МАТЕРИАЛОВ В СКАНИРУЮЩЕЙ ЗОНДОВОЙ МИКРОСКОПИИ¹

© П. А. Арутюнов², А. Л. Толстихина³, В. Н. Демидов²

Статья поступила 10 ноября 1998 г.

Дано обоснование системы метрических и фрактальных параметров для анализа шероховатости и локальной структуры поверхности различных материалов в сканирующей зондовой микроскопии. Параметры, многие из которых включены в международные стандарты, определены в терминах классической статистики, спектрального анализа и фрактальной геометрии. Статья состоит из двух частей. В первой части дана общая характеристика метрических (амплитудных, функциональных и пространственных) и фрактальных параметров, а во второй — приведены экспериментальные данные и численные результаты, иллюстрирующие применение некоторых параметров для анализа морфологии поверхности различных материалов.

Электроника и оптика выдвигают все новые требования к качеству поверхности материалов, добиваясь их исключительной гладкости. Это стимулирует развитие новых методов исследования поверхности и контроля ее качества. В настоящее время сканирующий зондовый микроскоп (СЗМ), в особенности атомно-силовой микроскоп (АСМ), является наиболее мощным и многосторонним инструментом в исследованиях поверхности вещества [1, 2]. АСМ позволяет получать в нанометровом диапазоне трехмерные изображения поверхности образцов с разным типом проводимости, действуя при этом на воздухе, в жидкости и в вакууме. Последующая цифровая обработка данных дает возможность глубокого анализа различных характеристик поверхности и открывает перспективу для широкого использования АСМ в электронике и оптике для изучения шероховатости и локальной структуры поверхности материалов.

В первые годы становления метода СЗМ исследователи при оценке шероховатости поверхности довольствовались традиционными измерениями первых че-

тырех двумерных моментов (двумерное среднее арифметическое и среднее квадратическое значение, двумерная асимметрия и эксцесс). Вычисление этих параметров осуществляется с помощью программного обеспечения C3M Solver P4-SPM-MDT и P7-SPM-MDT (Нанотехнология-МДТ, г. Зеленоград) [3]. Сегодня многие зарубежные фирмы для сертификации гладкости поверхности используют стандарты ISO 9000, включающие трехмерные параметры [4, 5]. В нашей работе показано, что регистрируемые массивы данных сканирования в СЗМ позволяют вычислить как интегральные, так и локальные трехмерные характеристики поверхности в соответствии с международными стандартами. Дополнительно нами предложены новые метрические параметры, а также рассмотрены методы вычисления фрактальных параметров поверхностей. Последние в сочетании с трехмерной евклидовой метрикой переводят на более высокий уровень исследования поверхности материалов.

Статья состоит из двух частей. В первой части дана общая характеристика метрических и фрактальных параметров. Аналитические выражения многих из них можно найти в работах [4 – 7]. Во второй части статьи приведены экспериментальные данные и численные результаты, иллюстрирующие применение некоторых параметров для анализа морфологии поверхности различных материалов.

¹ Настоящая работа выполнялась в рамках Государственной научно-технической программы «Перспективные технологии и устройства микро- и нанoeлектроники».

² Московский государственный институт электроники и математики.

³ Институт кристаллографии им. А. В. Шубникова РАН, Москва, Россия.

I. Характеристика параметров в методе СЗМ

Метрические параметры

Метрические параметры можно разделить на три группы: амплитудные, функциональные и пространственные. Перечислим эти параметры и укажем соответствующие международные стандарты и единицы измерения.

Амплитудные параметры

1. S_y — размах высот (peak to peak value, ISO 4287/1), нм.

Параметр S_y нужен, если использовать язык топографов, для общей оценки степени “пересеченности рельефа местности”.

2. S_a — средняя арифметическая шероховатость (average roughness, ISO 4287/1), нм.

Параметр S_a определяет шероховатость поверхности в виде двумерного среднего арифметического значения (т.е. первого начального момента μ_1) и центр распределения. При симметричном рельефе одной из возможных оценок центра распределения может служить абсцисса моды распределения высот рельефа. Однако встречаются распределения профилей, у которых не существует моды (равномерное распределение, распределение Коши). В этих случаях определение центра как моды распределения лишено смысла.

3. S_q — средняя квадратическая шероховатость (root mean square roughness, ISO 4287/1), нм. Параметр S_q (второй центральный момент μ_2) является определяющей характеристикой шероховатости. Различные его разновидности и алгоритм вычисления приведены во второй части статьи. Особенности расчета этого параметра с учетом погрешности установки образца изложены в работе [6].

4. S_z — десять точек по высоте (ten point height, ISO 4287/1), нм.

Параметр S_z выражает шероховатость поверхности (по аналогии с методом max – min) по выбранным пяти координатам максимальных высот и впадин по формуле: $S_z = 1/5 (z_{\max 1} + z_{\max 2} + z_{\max 3} + z_{\max 4} + z_{\max 5} - z_{\min 1} - z_{\min 2} - z_{\min 3} - z_{\min 4} - z_{\min 5})$.

5. S_{sk} — асимметрия (surface skewness, ISO 4287/1), нм.

Параметр S_{sk} (третий центральный момент μ_3) характеризует скошенность распределения профиля, когда один спад крутой, а другой — пологий. Для симметричных (относительно центра) распределений профиля $S_{sk} = 0$. Этот параметр имеет размерность куба случайной величины, поэтому для относительной характеристики асимметрии используют безразмерный коэффициент асимметрии, равный третьему моменту, деленному на куб среднеквадратического отклонения.

6. S_{ku} — эксцесс (surface kurtosis, ANSI B.46.1), нм.

Параметр S_{ku} (четвертый центральный момент μ_4) характеризует протяженность распределения профиля, а отнюдь не остроту его вершины, как это часто

ошибочно указывается. Его относительное значение μ_4/σ_4 называют эксцессом распределения.

7. S_{kku} — контрэксцесс (function of kurtosis), 1/нм.

Величину эксцесса удобнее нормировать, введя другую функцию от эксцесса, а именно: $S_{kku} = 1/\sqrt{S_{sk}}$, изменяющуюся для любых распределений профиля лишь в пределах от 0 до 1. Эту величину называют контрэксцессом.

Приведенные выше метрические параметры шероховатости, определяемые через моменты на основе статистики сканирования, не содержат информации о равномерности рельефа поверхности. Возможности СЗМ позволяют провести проверку гипотезы о равномерности распределения высот (“холмов”) в плоскости для выбранных координат z в ограниченной части пространства в интервале параметров S_y и S_z . Это важно для создания сверхгладких поверхностей с заданным уровнем плоскостности. Критерий плоскостности может быть полезен при проверке гипотезы о равномерности распределения каких-либо объектов в ограниченном пространстве (например, особей какой-либо биологической популяции в ее ареале и т.п.). Критерий можно построить на основе статистики μ_0 [8], равной числу полуинтервалов $(z_{k-1}, z_k]$, каждый из которых соответствует плоскостям, параллельным друг другу, и в которые не попало ни одного измерения. Алгоритм обработки строится таким образом, что данные измерений располагаются в ряд плоскостей, соответствующих координатам $z_{\min} < z_1 < z_2 \dots \dots < z_{N-1} < z_N$, чтобы разность функций распределения была равна $F(z_k) - F(z_{k-1}) = 1/N$, $k = 1, 2, \dots, N$. Этот критерий имеет следующий вид: если $\mu_0 \leq C$ (C — заданное число), то гипотеза H_0 принимается, если $\mu_0 > C$, то гипотеза H_0 отвергается.

8. $PSD(f)$ — спектральная функция шероховатости (power spectral density), 1/нм.

Параметр $PSD(f)$ связан с $ACF(r)$ (автокорреляционная функция) теоремой Винера – Хинчина. В этом преобразовании информация о фазе дискретной компоненты $z(r)$ теряется, когда мы рассматриваем $PSD(f) = |Z(f)|^2$. Традиционное название “спектр мощности” в нашем случае оправдывает себя, поскольку формула Парсеваля – Планшереля позволяет заменить среднее по длине средним по размерной частоте. $PSD(f)$ можно получить двумя путями: $z(r) \leftrightarrow Z(f) \rightarrow PSD(f)$ или $z(r) \rightarrow ACF(r) \leftrightarrow PSD(f)$. Двойные стрелки в схемах указывают на взаимно обратные преобразования.

В первой схеме на первом этапе используется двумерное преобразование Фурье, которое дает сумму “гармонических колебаний” различных частот (так называемых “гармоник”) — спектр распределения амплитуд (в координатах $z(r)$) по различным частотам; во второй схеме используется корреляционная операция двумерной свертки. Как видно, в обеих схемах на втором этапе вычисляется новая дискретная функция

$|Z(f)|^2$ на N точках. При этом абсцисса, обозначаемая символом f , имеет размерность, обратную длине. Интерпретация оси ординат зависит от природы измеряемого сигнала. Взяв двумерное преобразование Винера – Хинчина от $ACF(r)$, получим для Гауссова распределения: $PSD(f) = \pi^{1/2} \Delta^2 L_c \exp(-\pi^2 L_c^2 f^2)$, где L_c — длина корреляции, и для экспоненциального распределения: $PSD(f) = 2\Delta^2 L_c \{1/(\pi f L_c)^2 + 1\}$. Таким образом, рассматривая $PSD(f)$ как дисперсию от случайных амплитуд $z(r)$, можно построить распределение дисперсий по различным частотам. Параметр $PSD(f)$ означает, что энергия любого сигнала (в нашем случае координата $z(r)$) может быть представлена как результат суммирования вкладов от различных интервалов частотной оси. В этом случае мы имеем дело только с вещественными числами. Однако эта характеристика не является самостоятельной — она полностью определяется корреляционной функцией.

9. $ACF(r)$ — автокорреляционная функция (autocorrelation function), нм.

Функция используется для определения размеров зерен материалов.

10. S_{cs} — функция спектральной когерентности (spectral coherent function). Функция спектральной когерентности имеет определенные преимущества перед корреляцией в возможности распознавания сходных координат в исследуемых сигналах, даже если общее сходство является очень слабым [7, 9].

11. $RCF(r)$ — функция корреляционной шероховатости (roughness correlate function), нм.

12. $RKF(r)$ — функция кинетической шероховатости (roughness kinetic function), нм.

13. $RHF(r)$ — функция иерархической шероховатости (roughness hierarchy function), нм. Аналитические выражения для функций $ACF(r)$, $RCF(r)$, $RKF(r)$, $RHF(r)$ подробно рассмотрены во второй части работы.

Функциональные параметры

Функциональные параметры в отличие от метрических характеризуют рельеф в локальной области и степень гладкости поверхности. К ним относятся:

1) S_{sc} — средняя кривизна вершины (mean summit curvature), $1/\text{нм}$;

2) S_{dq} — среднеквадратическое отклонение (с.к.о.) угла наклона вершины (root mean square slope, ISO 4287/1), $1/\text{нм}$;

3) S_{dr} — выделенный участок поверхности (surface area ratio), %;

4) S_{bi} — индекс основной поверхности (surface bearing index);

5) S_{ci} — индекс сохранения гладкости поверхности (core fluid retention index);

6) S_{vi} — индекс сохранения гладкости впадины (valley fluid retention index);

7) S_{pk} — приведенная высота вершины (reduced peak height, DIN 4776), нм;

8) S_k — шероховатость глубины впадины (core roughness depth, DIN 4776), нм;

9) S_{vk} — приведенная высота впадины (reduced valley height, DIN 4776), нм;

10) S_{ds} — плотность вершин (density of summits), $1/\text{мм}^2$.

Пространственные параметры

Эта группа параметров ориентирована на использование массива цифровых данных изображения поверхности, подвергнутого дискретному преобразованию Фурье. Они позволяют определить анизотропию поверхности и периодичность структуры. К ним относятся:

1) S_{rwi} — индекс направления радиальной длины волны (radial wavelength index);

2) S_{td} — направление текстуры (texture direction), град;

3) S_{tdi} — индекс направления текстуры (texture direction);

4) S_{rw} — радиальная длина волны (параметр периодичности структуры) (radial wavelength), нм.

Фрактальные параметры

Теория фракталов имеет дело с самоподобными и самоафинными множествами с непонятными геометрическими свойствами, т.е. с так называемыми фракталами или странными аттракторами. Фрактальные измерения в отличие от физических и технических имеют своей целью количественно оценить структуру поверхности, определить масштабную инвариантность и самоподобие формы, фрактальную размерность носителя меры, меру хаотичности структуры, выявить асимметрию структуры и особенности кинетики роста и т.п. Фрактальный объект может выглядеть одинаково, независимо от того, в каком масштабе мы его наблюдаем. Заметим, что оптическая плотность кристаллов и аморфных веществ близка к постоянной величине независимо от площади наблюдаемой структуры. Плотность фрактальных образований, напротив, уменьшается с увеличением наблюдаемой площади. В этом состоит одно из важных их отличий. Однако измерение фрактальных размерностей реальных веществ путем прямого применения математических определений на практике является чрезвычайно трудоемким процессом, что, в свою очередь, приводит к результатам, надежность которых не всегда удовлетворительна. Поэтому на практике очень часто фрактальные размерности (фрактальный размер) измеряют по физическим свойствам в виде определенных физических параметров [10]. В общем случае целесообразно использовать термин «фрактальный параметр», который выступает в качестве интегральной количественной меры структурности объектов и совместно с функциональными параметрами дает полное представление о структуре поверхности.

В настоящее время предложено несколько методов фрактального анализа изображений в СЗМ. Об-

шая идея, лежащая в основе этих методов, базируется либо на размерности Хаусдорфа – Безиковича (Х-Б) D_F , либо на спектре фрактальных размерностей D_q [10]. Например, рассмотрим множество N точек на плоскости. Мы хотим покрыть это множество квадратами с ребром, равным 1. Размерность Х-Б определяется как предел отношения:

$$D_F = \lim_{\varepsilon \rightarrow 0} \{\ln N / \ln(1/\varepsilon)\}. \quad (1)$$

То же самое можно сформулировать иначе. Минимальное число $N(\varepsilon)$ кубов (ε — сторона куба), которое необходимо для покрытия множества точек, зависит от ε как ε^{-D_F} . Если множество состоит из одной точки, то $N(\varepsilon) = 1$ и $D_F = 0$ (евклидова размерность точки также равна нулю). Если множество представляет собой отрезок линии длиной L , то $N(\varepsilon) = L\varepsilon^{-1}$ и $D_F = 1$, тогда как для поверхности с площадью S — $N(\varepsilon) = S\varepsilon^{-2}$ и $D_F = 2$. Как видно, целочисленные значения параметра D_F соответствуют евклидовой метрике и с позиций фрактальной геометрии являются как бы реперными точками. На примере канторовского множества можно убедиться, что размерность Хаусдорфа является обобщением обычной геометрической размерности, позволяющей характеризовать фрактальные объекты. Действительно, если организовать итерационный процесс так, чтобы на каждом шаге удалялась средняя треть из отрезков, то можно показать, что

$$D_F = \lim [\ln 2^m / \ln 3^m] \sim 0,63.$$

Фрактальная размерность не является метрической и выражается безразмерным дробным числом, которое для поверхности в СЗМ лежит между числами 2 и 3. Главная особенность фрактальной размерности состоит в том, что она, во-первых, связана не с топологией, а с метрикой, т.е. со способом построения рассматриваемого множества, и, во-вторых, она описывает пространство с дробной размерностью.

В настоящее время наиболее эффективными, на наш взгляд, являются три метода фрактального анализа изображений в СЗМ: область-периметр, вариационный и структурной функции [11]. Дадим им краткую характеристику.

Метод область-периметр

В методе область-периметр оценка фрактального размера связана с использованием свойства самоафинности и с наличием корреляционной связи между периметром L и фрактальной областью: $L \propto A^{(D_F-1)/2}$. Этот метод проверялся рядом исследователей для различных поверхностей [11]. В каждом исследовании было использовано порядка 100 “уровней” в интервале параметра S_y . Для каждой плоскости горизонтального сечения рельефа подсчитывалось число точек, образующих периметр, и область островков. При этом островки, касающиеся краев изображения, и островки с областью меньшей, чем 30 точек, не принимались во внимание.

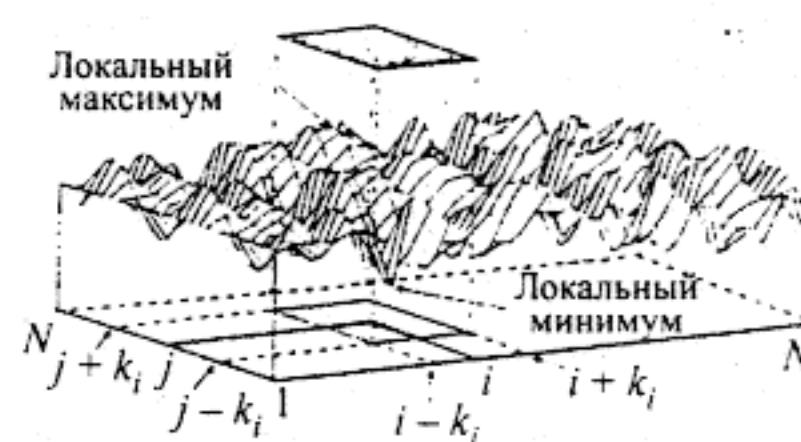


Рис. 1. Графическая иллюстрация метода вариаций

Фрактальный размер $D_{AP} = D_F$ рассчитывался по среднеквадратической линии регрессии в масштабе $\log - \log$ периметра к области [11].

Вариационный метод

Этот метод также основан на свойстве самоафинности и на самоподобии фракталов. Проиллюстрируем его следующим примером. Пусть поверхность, показанная на рис. 1, описывается $2D$ -рядами точек $p(i, j)$; при этом $i, j \in [1, \dots, N]$ и каждой точке соответствует координата z рельефа поверхности [12]. Выделим квадратную область-ячейку с центром в точке $p(i, j)$ и с размерами сторон $\pm k_i$. Как видно из рис. 1, внутри области всегда можно выделить по высоте локальные максимум и минимум рельефа. Интервал между этими двумя экстремумами принято называть осцилляцией, которая является фундаментальным понятием в вариационном алгоритме.

Таблица 1. Параметры шероховатости поверхности образцов меди после их полировки алмазными порошками с размером зерна 1, 3, 6 мкм (в числителе дроби — среднее значение, в знаменателе — с.к.о.)

Параметр	Размер зерна					
	1 мкм	3 мкм	3 мкм	6 мкм	6 мкм	6 мкм
S_a	6,6/2,4	20,1	3,2	50	11	
S_q	8,2/2,9	25,2	3,8	64	12	
S_y	59/19	179	13	435	54	
S_z	54/18	163	14	369	40	
S_{sk}	0,250/0,47	-0,10	0,16	0,43	0,21	
S_{ku}	3,09/0,49	3,07	0,38	3,42	0,64	
S_{sc}	0,00018/0,00012	0,00054	0,00015	0,0014	0,0018	
S_{dq}	0,164/0,096	0,305	0,016	0,537	0,182	
S_{dr}	102,05/2,03	104,56	0,50	111,78	4,39	
S_{bi}	0,589/0,062	0,631	0,029	0,565	0,032	
S_{ci}	1,67/0,20	1,51	0,08	1,73	0,11	
S_{vi}	0,096/0,027	0,122	0,011	0,094	0,016	
S_{pk}	9,9/3,7	26,7	4,1	88	14	
S_k	19,1/7,1	64	10	153	43	
S_{vk}	6,4/4,0	24,4	6,0	44	14	
S_{ds}	21,6/194	25,9	4,4	14,1	4,8	
S_{td}	34/59	50	5	50	47	
S_{tdi}	0,52/0,07	0,58	0,10	0,57	0,12	
S_{rw}	4690/131	4150	214	3150	803	
S_{rwi}	0,0171/0,0064	0,039	0,011	0,042	0,008	

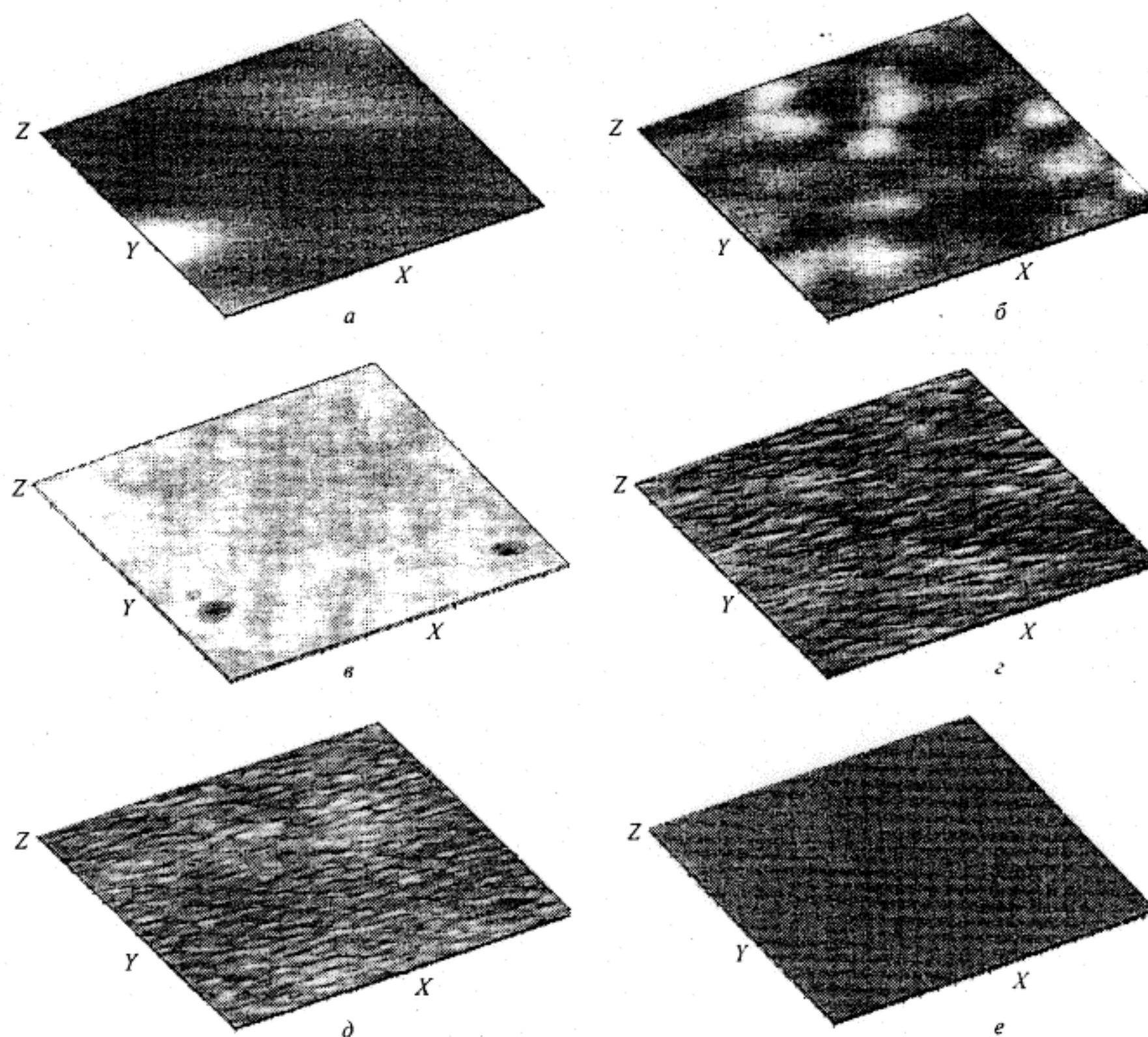


Рис. 2. Топографические изображения поверхности термических пленок SiO_2 , полученные в резонансном модуляционном режиме. Области сканирования с длиной L (нм): 53 (а), 156 (б), 600 (в), 870 (г), 3800 (д) и 19000 (е)

В вариационном методе для последовательности самоподобных расширяющихся ячеек площадью $2k \times 2k$ с центром в точке $p(i, j)$ вычисляется средняя по N^2 точкам вариация максимальных и минимальных высот (см. рис. 1):

$$V_k = (1 / N^2) \sum [z_{i, j \max}(k) - z_{i, j \min}(k)]. \quad (2)$$

После этого строится график зависимости $\ln[(N/k)^3 V_k]$ от $\ln(N/k)$ для $k = 1, 2, \dots, k_{\max}$. Угловой коэффициент линии регрессии к оси $\ln(N/k)$ дает величину D_F . Важно подчеркнуть, что концепция масштабной инвариантности значительно упрощает описание поверхности, так как параметр D_F не зависит от длины в фрактальном пространстве в диапазоне примерно до пяти порядков величины.

Метод структурной функции

Двумерная структурная функция определяется выражением:

$$S(k, m) = S(\tau) = (1 / (N - k)(N - m)) \times \sum_{i, j=1}^{N-k, N-m} [z(i, j) - z(i + k, j + m)]^2, \quad (3)$$

$k, m = 0, 1, 2, \dots, N - 1$, где N — число точек в каждом направлении; $\tau = |\tau|$ — расстояние между точками (i, j) и $(i + k, j + m)$. Формула (3) позволяет построить карту структурной функции для исследуемой поверхности. На этой карте обнаруживаются любые анизотропии поверхности.

При проведении расчетов $S(\tau)$ усредняется для всех τ в различных направлениях. С возрастанием величины τ в расчете используется все большее количество углов. Так, при заданном $|\tau|$ для двухсот точек используется около 400 различных углов в интервале $0 - 180^\circ$. Структурная функция допускает аппроксимацию на языке фрактальной геометрии в виде масштабного соотношения

$$S(\tau) \propto |\tau|^{2(3-D_F)}. \quad (4)$$

Фрактальный размер $D_F = D$ рассчитывается над линией регрессии в $\log - \log$ зависимости $S(\tau)$ от τ . Примеры расчета структурной функции даны во второй части статьи.

В заключение этого раздела отметим, что суждение о качестве поверхности при использовании фрактального размера D_F делается на основании того, насколько близко значение D_F к числу 2: чем оно ближе к 2, тем поверхность более гладкая.

II. Эксперимент и численные результаты

Расчет двадцати метрических параметров для полированных образцов меди

Методом АСМ была изучена поверхность трех образцов меди после полировки в течение двух минут алмазными порошками с размером зерна 6 мкм (при давлении с силой в 30 Н), 3 мкм (30 Н) и 1 мкм (20 Н) [5]. Измерения параметров шероховатости были сде-

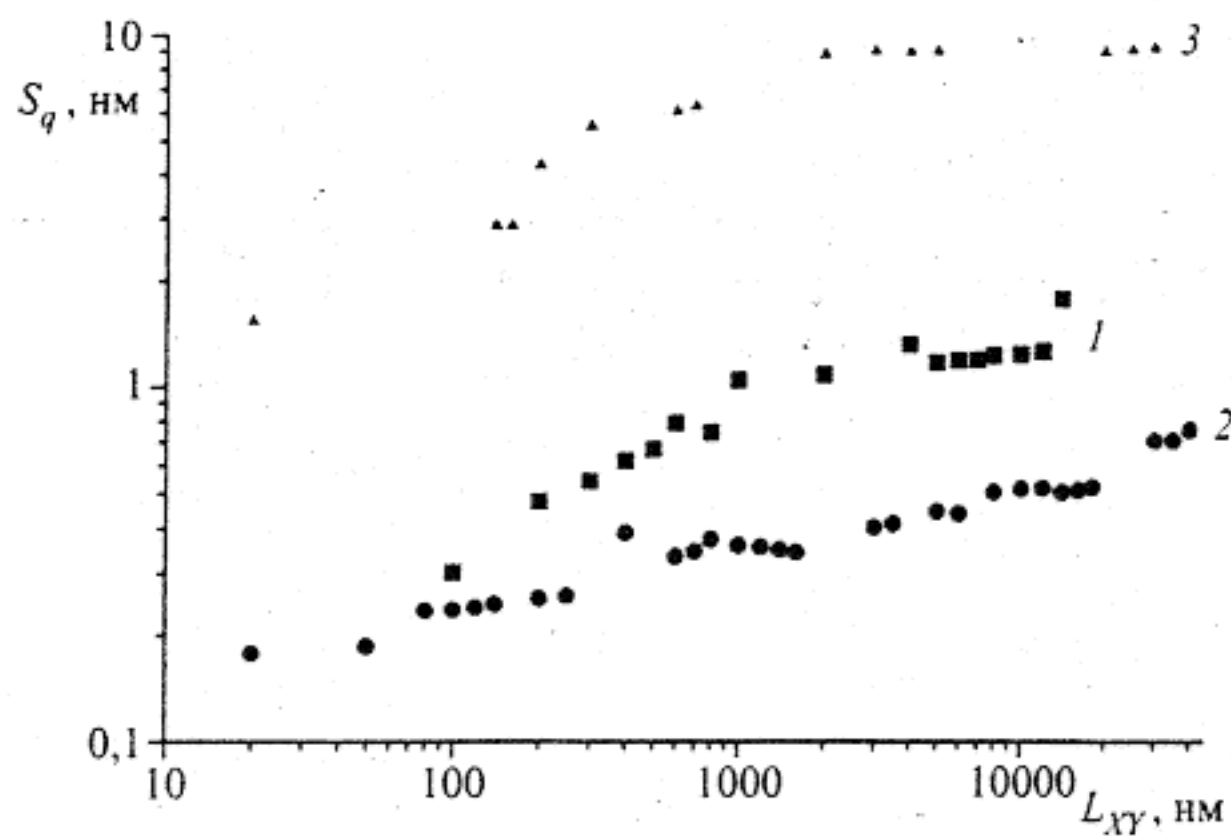


Рис. 3. Графики зависимости шероховатости S_q от L_{XY} для поверхностей пленок: polySi (1), SiO_2 (2), целлюлозы (3)

ланы в десяти точках поверхности (область сканирования 5×5 мкм, разрешение 256×256 точек, скорость сканирования 81,7 мкм/с). Результаты измерений представлены в табл. 1.

Анализ данных табл. 1 позволяет нам сделать следующие выводы:

- 1) параметры $S_a, S_q, S_y, S_z, S_{sc}, S_{pk}, S_k$ и S_{vk} с увеличением размеров зерен увеличиваются в 6,8 – 8,88 раз;
- 2) параметры S_{sk}, S_{dq} и S_{td} увеличиваются незначительно — в 1,5 – 3,2 раза;
- 3) параметры $S_{ku}, S_{dr}, S_{bi}, S_{ci}, S_{vi}$ и S_{tdi} практически не изменяются;
- 4) параметры S_{ds} и S_{rw} — с уменьшением размеров зерен увеличиваются, т.е. периодичность структуры поверхности с уменьшением размеров зерна алмаза увеличивается.

Можно заметить, что параметры асимметрии и эксцесса в данном эксперименте мало информативны.

Масштабные свойства характеристик поверхности

В результате многочисленных исследований поверхности различных пленок методом АСМ было установлено, что при изменении размеров области сканирования наблюдается изменение шероховатости [13 – 16]. В общем случае шероховатость поверхности можно характеризовать двумя масштабными длинами L_{XY} и L_z , где L_{XY} — размер зоны сканирования в плоскости XY (напомним, что сканирование зонда имеет место вдоль оси X или Y) и L_z — масштаб по вертикали (координата z). Установлена масштабная зависимость $L_{XY} \propto L_z^\alpha$.

При изменении масштаба для шероховатости (S_q) пленок заметно выделяются две области, финитные соотношения для которых имеют вид:

$$S_q(L_{XY}) \propto L_{XY}^\alpha \text{ для } S_a \gg L_{XY}, \alpha = 0,4 - 1,5; \quad (5)$$

$$S_q(L_{XY}) \propto L_{XY}^\alpha \sim \text{const для } S_a \ll L_{XY}, \alpha = 0,05 - 0,2. \quad (6)$$

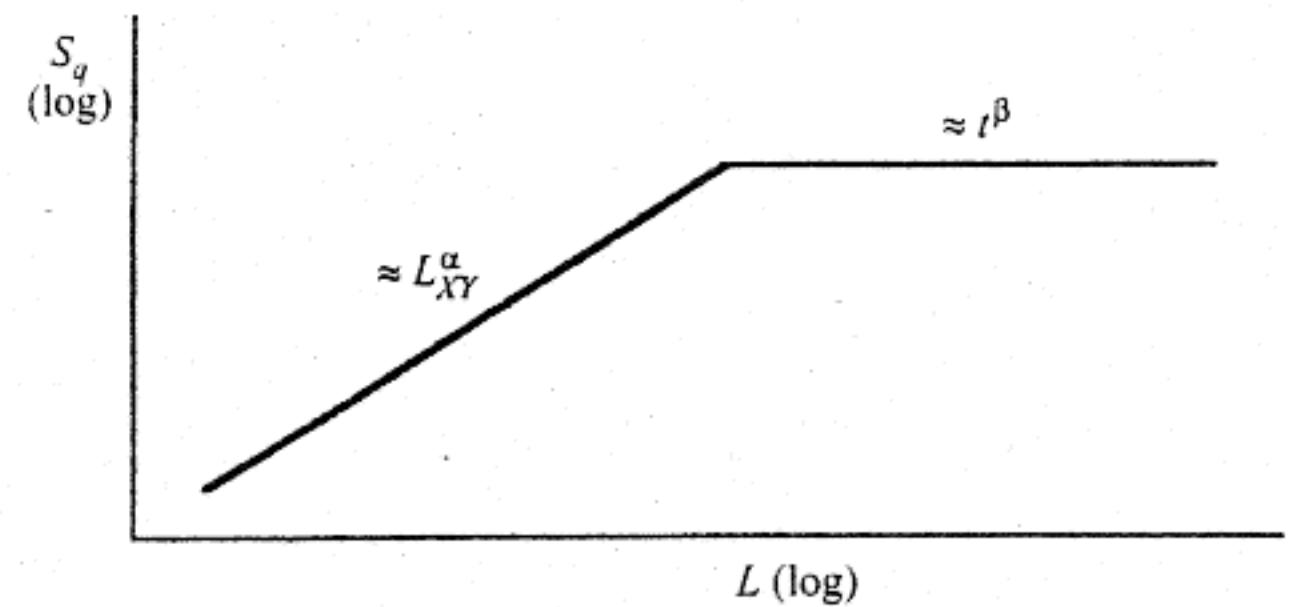


Рис. 4. Схематическая зависимость шероховатости поверхности S_q от L_{XY} (двойной логарифмический масштаб)

На рис. 2 приведены топографические изображения поверхности аморфных пленок SiO_2 , сформированных термическим окислением Si (111), с различными размерами областей сканирования L (нм): 53 (a), 156 (б), 600 (в), 870 (г), 3800 (д) и 19000 (е). Изображения были получены на сканирующем зондовом микроскопе Solver P7-SPM-MDT в резонансном модуляционном режиме с помощью кремниевых кантилеверов [17]. Измерения шероховатости пленок SiO_2 выявили ее зависимость от L_{XY} (рис. 3, кривая 2). Аналогичным образом зависит от масштаба шероховатость пленок поликристаллического кремния (poly-Si), полученного осаждением из газовой фазы на кремнии (кривая 1), и пленок целлюлозы, полученных из ацетовалерата целлюлозы по методу Ленгмюра – Блуджета (кривая 3). Из рис. 3 следует, что величина S_q возрастает по степенному закону, а затем наступает насыщение, и она практически не изменяется. При этом параметр α имеет значения: 0,24 для SiO_2 , 0,63 для polySi и 1,34 для целлюлозы. Эти эксперименты подтверждают существование единой закономерности в зависимости шероховатости поверхности от L для пленок различных материалов, полученных в разных условиях. Сопоставление экспериментальных и теоретических масштабных зависимостей шероховатости поверхности пленок позволяет сделать заключения о механизмах их роста [13 – 16].

В работах [13 – 16] показано, что в процессе роста пленки наблюдаются масштабная и временная зависимости шероховатости. Масштабная зависимость $L_{XY} \propto L_z^\alpha$, где $\alpha = 0,2 \div 0,8$, характеризует степень гладкости поверхности. Временная зависимость S_a (рост границы раздела) от кинетических параметров представлена выражением

$$\partial S_a / \partial t = \gamma \nabla^2 z_{\text{сред}}(r) + v/2 (\nabla z_{\text{сред}}(r))^2 + \eta(r, t), \quad (7)$$

где первый член в правой части описывает релаксацию границы раздела при поверхностном давлении γ , а второй член учитывает скорость роста пленки v . Третий член добавляет шум $\eta(r, t)$, имеющий гауссово

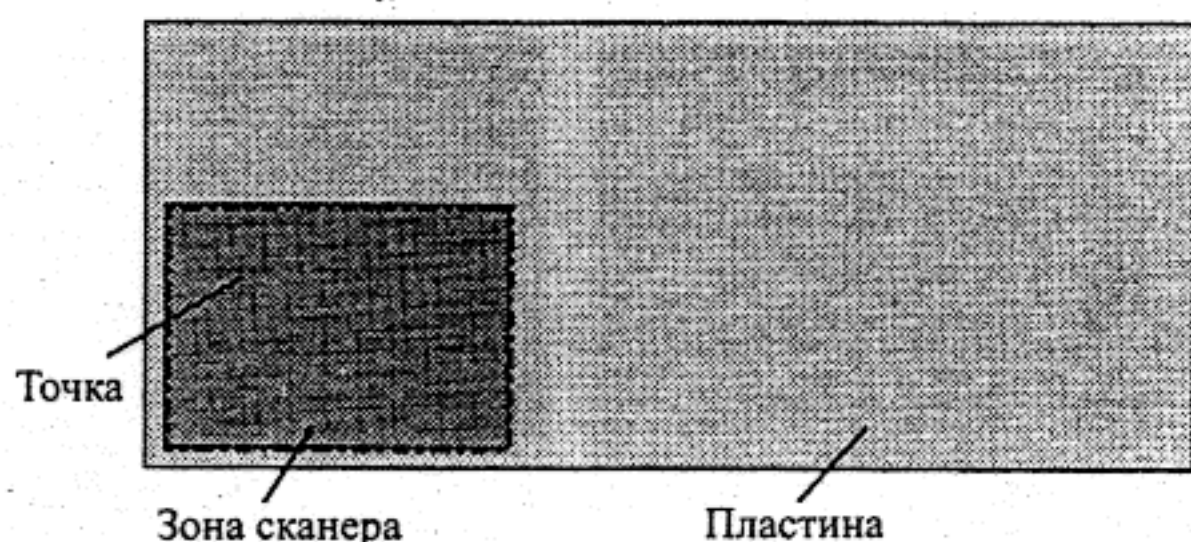


Рис. 5. Система «точка – зона сканера – пластина» для расчета иерархической шероховатости

распределение с нулевым средним [13 – 16]. Установлены временные финитные соотношения:

$$S_q(L_{XY}, t) \propto L_{XY}^\alpha \text{ для } L_{XY} \ll \xi_{XY}; \quad (8)$$

$$S_q(L_{XY}, t) = \Delta(t) \propto t^b \text{ для } L_{XY} \gg \xi_{XY}, \quad (9)$$

где $\xi_{XY} \sim t^{1/z}$ и $z = \alpha/\beta$.

В этом случае зона сканирования соотносится с корреляционной длиной ξ_{XY} , потому что величина S_a имеет сложную зависимость от кинетики процесса. Обобщенная масштабная зависимость кинетической шероховатости представлена на рис. 4 [16].

Иерархическая шероховатость в схеме «точка – зона сканера – пластина»

Фундаментальным принципом физических наук является требование многократной повторяемости эксперимента и убедительной воспроизводимости его результатов. Многократная повторяемость и воспроизводимость понимаются в физической метрологии в определенных и нормируемых границах неопределенности полученного значения измеряемой величины. При этом учитывается погрешность прибора (и принятый алгоритм измерения и обработки данных) как определенное свойство, для описания которого используют соответствующие правила. Последние могут быть определены при испытаниях и занесены в его паспорт.

Первые измерения шероховатости на приборах АСМ подтвердили, что погрешности адекватности, градуировки и воспроизводимости являются неоднозначными. Опыт производства СБИС подсказывает, что характеристики поверхности должны обладать иерархической структурой. Мы классифицируем данные на трех уровнях иерархии: «точка – зона сканера – пластина». Таким образом, дисперсия шероховатости разлагается на три части. Это касается всех амплитудных параметров для СЗМ. Однако необходимо проверить статистическую значимость результатов расчета по приведенным ниже формулам. Для этого проверяется нулевая гипотеза о бесструктурности выборки по распределению дисперсионного соотношения (F -распределение Фишера) и вычисляется наблюдаемое значение критерия $F_{\text{набл}}$ (как отношение наибольшего значения шероховатости к наименьше-

му). Затем по заданному уровню значимости α и числам степеней свободы $k_1 = n_1 - 1$, $k_2 = n_2 - 1$ находилось критическое значение критерия $F_{\text{кр}}$. Если $F_{\text{набл}} < F_{\text{кр}}$ — нет оснований отвергнуть нулевую гипотезу (табл. 2), что подтверждается расчетами. Ниже даны численные значения критерия $F_{\text{набл}}$ и $F_{\text{кр}}$:

Образец	pSi/Si	pSi/Si	Ni/Si	Ni/Si
Критерий	$F_{\text{набл}}$	$F_{\text{кр}}$	$F_{\text{набл}}$	$F_{\text{кр}}$
Значение	1,01	2,38	1,039	2,738

Феноменологическое описание способа представления данных, обладающих иерархической структурой, выполнено нами в духе дисперсионного анализа [6]. Пусть метрический параметр S_{ijk} имеет трехступенчатую иерархическую структуру (рис. 5):

$$S_{ijk}, \text{ где } i = 1, 2, \dots, I; j = 1, 2, \dots, J; k = 1, 2, \dots, K. \quad (10)$$

Из выражений (10) следует, что проведено IJK измерений (объем выборки). Очевидно, что характеристики среднего будут иметь иерархическую структуру и, соответственно, определяться выражениями: для точек

$$\bar{S}_{ij} = (1/I) \sum_i S_{ijk}; \quad (11)$$

для зоны

$$\bar{S}_{i..} = (1/JK) \sum_{k,j} S_{ijk}; \quad (12)$$

для пластины

$$\bar{S}_{...} = (1/IJK) \sum_{i,j,k} S_{ijk}. \quad (13)$$

Тогда

$$Q = \sum (S_{ijk} - \bar{S}_{...})^2 = Q_p + Q_z + Q_w, \quad (14)$$

где

$$Q_p = \sum_{i,j,k} (S_{ijk} - \bar{S}_{ij})^2; Q_z = \sum_{i,j} K(S_{ij.} - \bar{S}_{i..})^2;$$

$$Q_w = JK \sum_i (S_{i..} - \bar{S}_{...})^2. \quad (15)$$

Можно показать, что дисперсия общей средней величины параметра (шероховатости) в иерархической модели имеет вид

$$\bar{D}(S_{...}) = \sigma_p^2 / I + \sigma_z^2 / IJ + \sigma_w^2 / IJK. \quad (16)$$

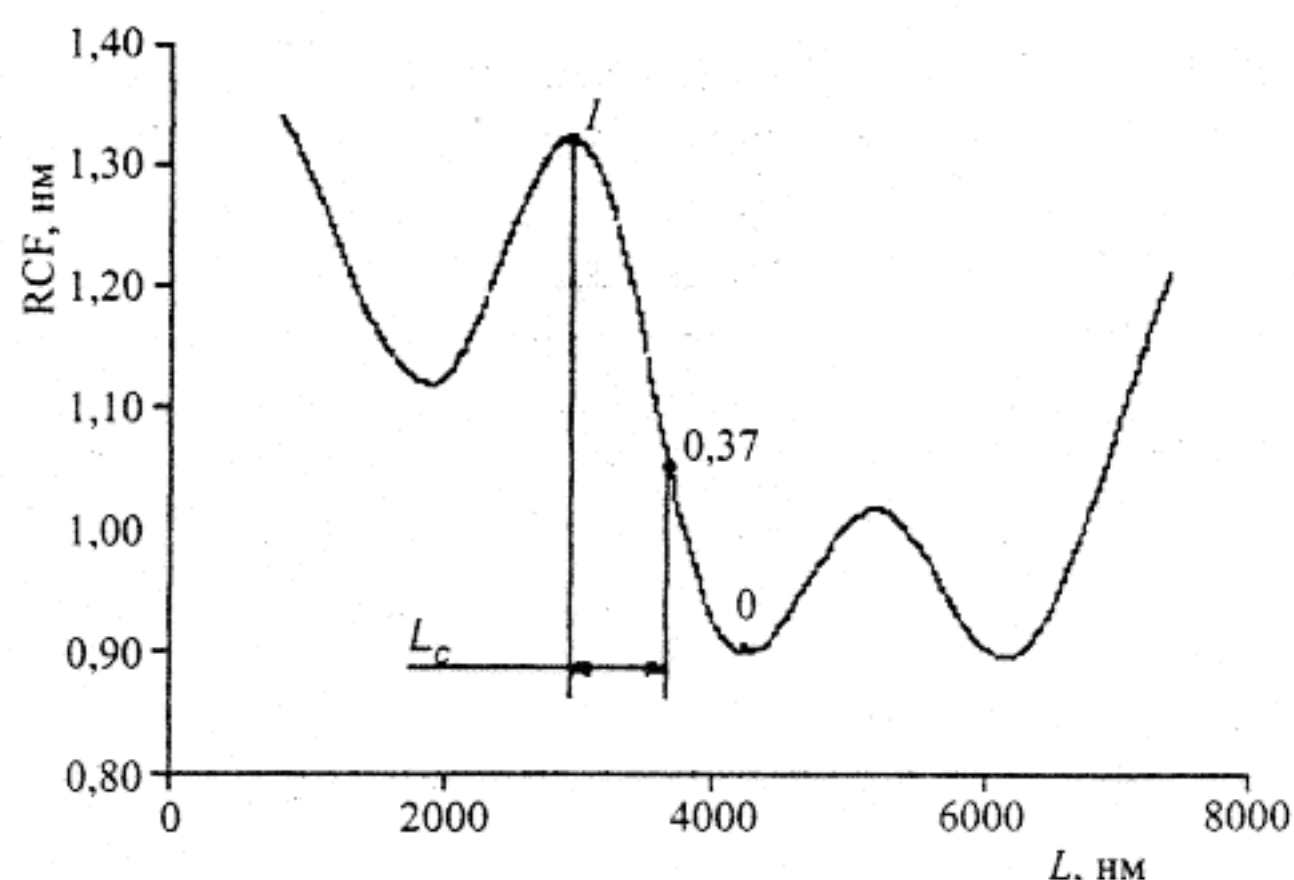


Рис. 6. График корреляционной функции шероховатости $RCF(L)$

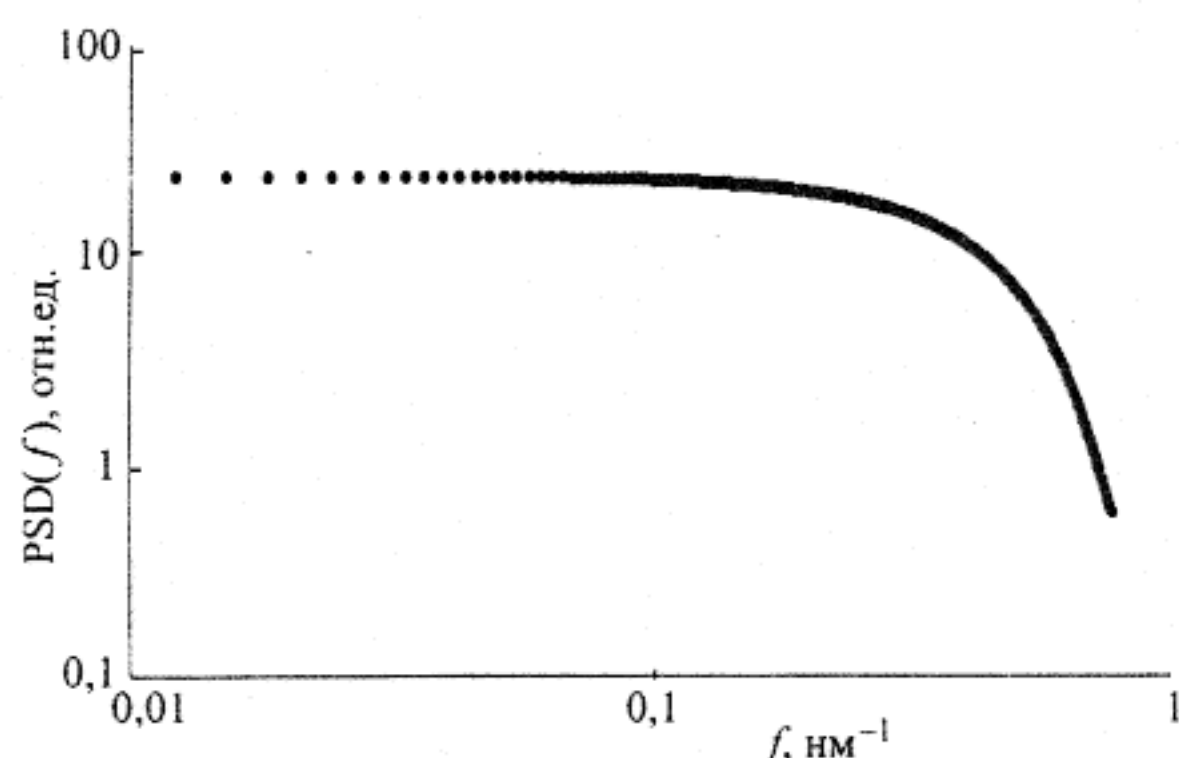


Рис. 7. Спектральная функция шероховатости поверхности пленок polySi

Ценность соотношения для иерархической модели (шероховатости) состоит в том, что исследователь обычно проводит не одну серию экспериментов, а несколько. При этом вполне вероятно появление некоторой невоспроизводимости от одной серии к другой. Целесообразно вначале проверить нулевую гипотезу по критерию Фишера, что между сериями нет существенного отличия. Если оно есть ($F_{\text{набл}} > F_{\text{кр}}$), то это означает, что имеется ценная информация о наличии какого-то источника невоспроизводимости, поиском которого и следует заняться в первую очередь. Аналогично сравниваются эксперименты различных исследователей или различные методы. Здесь статистический анализ может выявить источники невоспроизводимости и помочь их устранить.

Вычисление корреляционной функции шероховатости

Корреляционная функция шероховатости $RCF(r)$ дает количественное представление о вариациях высот и корреляционной связи между выбранными областями в широком диапазоне изменения масштаба сканирования. Эту функцию мы используем для измере-

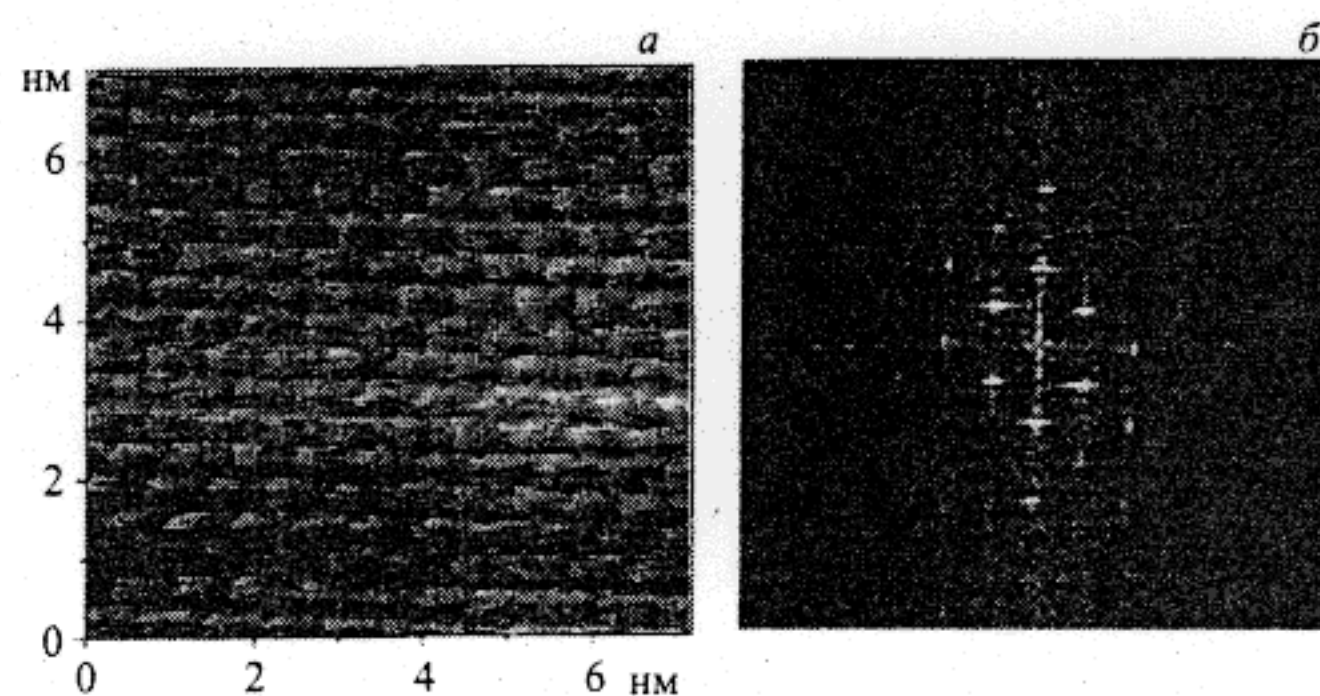


Рис. 8. АСМ-изображение поверхности слюды (а) и его Фурье-трансформанта (б)

ния размеров зон корреляции и оценки равномерности рельефа поверхности. По определению:

$$RCF(r) = \overline{q(r_o + r)q(r_o)}; ACF(r) \subset RCF(L_p, L_1), \quad (17)$$

где $q(r) = h(r) - h_{av}$ — высота холма относительно среднего арифметического;

$$RCF(L_p, L_1) =$$

$$= \sqrt{\frac{1}{N_{sp}N_{sl}} \sum_{i,j=1}^{N_S(L)} |(z_{i,j} - z_{\text{средн}})|_{sp} * |(z_{i,j} - z_{\text{средн}})|_{sl}}. \quad (18)$$

По графику функции $RCF(L_p, L_1)$ определяется корреляционная длина L_c , а затем спектральная функция шероховатости $PSD(f)$. Пример расчета функции корреляционной шероховатости и длины корреляции дан на рис. 6.

Вычисление спектральной функции шероховатости

$PSD(f)$ — параметр, отображающий гармонические составляющие спектра (амплитуды спектра дисперсии) функции корреляционной шероховатости. Он рассчитывался по схеме $q(r) \rightarrow ACF(r) \leftrightarrow PSD(f)$:

$$PSD(f) = 4 \sum_{m=0}^{N-1} ACF(m) \cos(2\pi / N)mf, \quad (19)$$

где f — размерная частота, N — количество секций поверхности; $ACF(m)$ — нормированная функция корреляционной шероховатости. Результаты расчета $PSD(f)$ для поверхности пленок polySi представлены на рис. 7. Как видно, это фильтр нижних частот.

Вычисление пространственных параметров

Программное обеспечение микроскопа Solver позволяет получать Фурье-трансформанту сканируемой поверхности. Так, на рис. 8 приведено АСМ изображение поверхности слюды с атомным разрешением (а) и соответствующая Фурье-трансформанта (б). В этом случае ее анализ позволяет более точно определить параметры периодической структуры поверхности. На

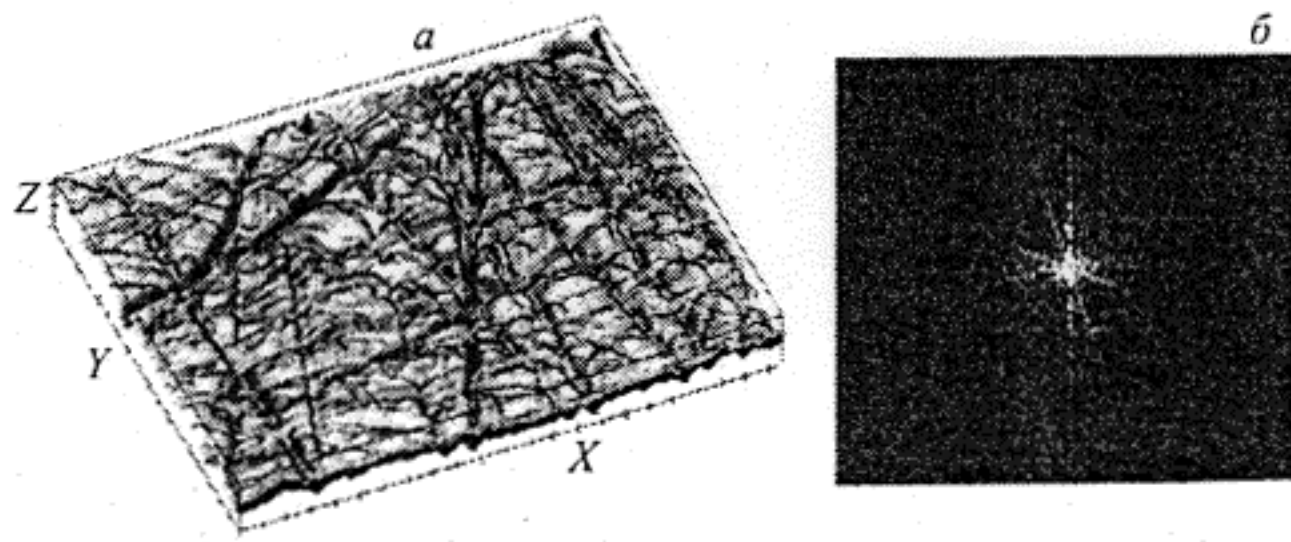


Рис. 9. АСМ-изображение поверхности кремниевой пластины, подвергнутой обработке (а), и его Фурье-трансформанта (б)

рис. 9 приведено АСМ изображение специально обработанной поверхности кремниевой пластины (а) в нанометровом диапазоне размеров и его Фурье-трансформанта (б). В таких случаях из Фурье-трансформанты сканируемой поверхности расчетным путем можно получить четыре пространственных параметра: S_{td} — направление текстуры поверхности, S_{tdi} — индекс направления текстуры, S_{rwi} — радиальная длина волны, S_{rwi} — индекс радиальной длины волны. Поскольку Фурье-спектр имеет сопряженную симметрию, достаточно проводить анализ верхней половины изображения. Методика обработки спектра сводится к следующему. Проводим M радиальных линий от центра изображения из точки $(0, 0)$ (рис. 10, а) под углом $\alpha = \pi i / M$, где $i = 0, 1, \dots, M-1$. Сумма амплитуд $A(\alpha)$ вдоль радиальной линии под углом α определяется как:

$$A(\alpha) = \sum_{i=1}^{M/2-1} |F(u(i \cos \alpha), v(i \sin \alpha))|. \quad (20)$$

Здесь под знаком суммы стоят Фурье-преобразования координат u и v исходной числовой матрицы (оригинала). Направление $\alpha_{\max}$, которому соответствует максимальная амплитуда $A_{\max}$, указывает направление текстуры. Поэтому $S_{td} = \alpha_{\max} - 90^\circ$.

Индекс направления текстуры S_{tdi} показывает ее относительное значение (от 0 до 1) для заданного угла $\alpha = \pi i / M$ и определяется как:

$$S_{tdi} = (1 / M) \sum_{i=0}^{M-1} A(i\pi / M) / A_{\max}. \quad (21)$$

Формула (21) определяет отношение средней амплитуды к максимальной $A_{\max}$. Если направление текстуры доминирует, то параметр S_{tdi} близок к нулю. На рис. 10, б приведен график зависимости $A(\alpha)$ от угла α для образца полированной меди, из которого видно направление текстуры на поверхности $S_{tdi} = 42^\circ$ [5]. Радиальная длина волны S_{rwi} также характеризует структуру поверхности, т.е. периодичность структуры. Для ее определения необходимо провести $M/2 - 1$ полукругов (рис. 10, в) с центром в точке $(0, 0)$. Радиусы r полукругов имеют значения $r = 1, 2, \dots, M/2 - 1$.

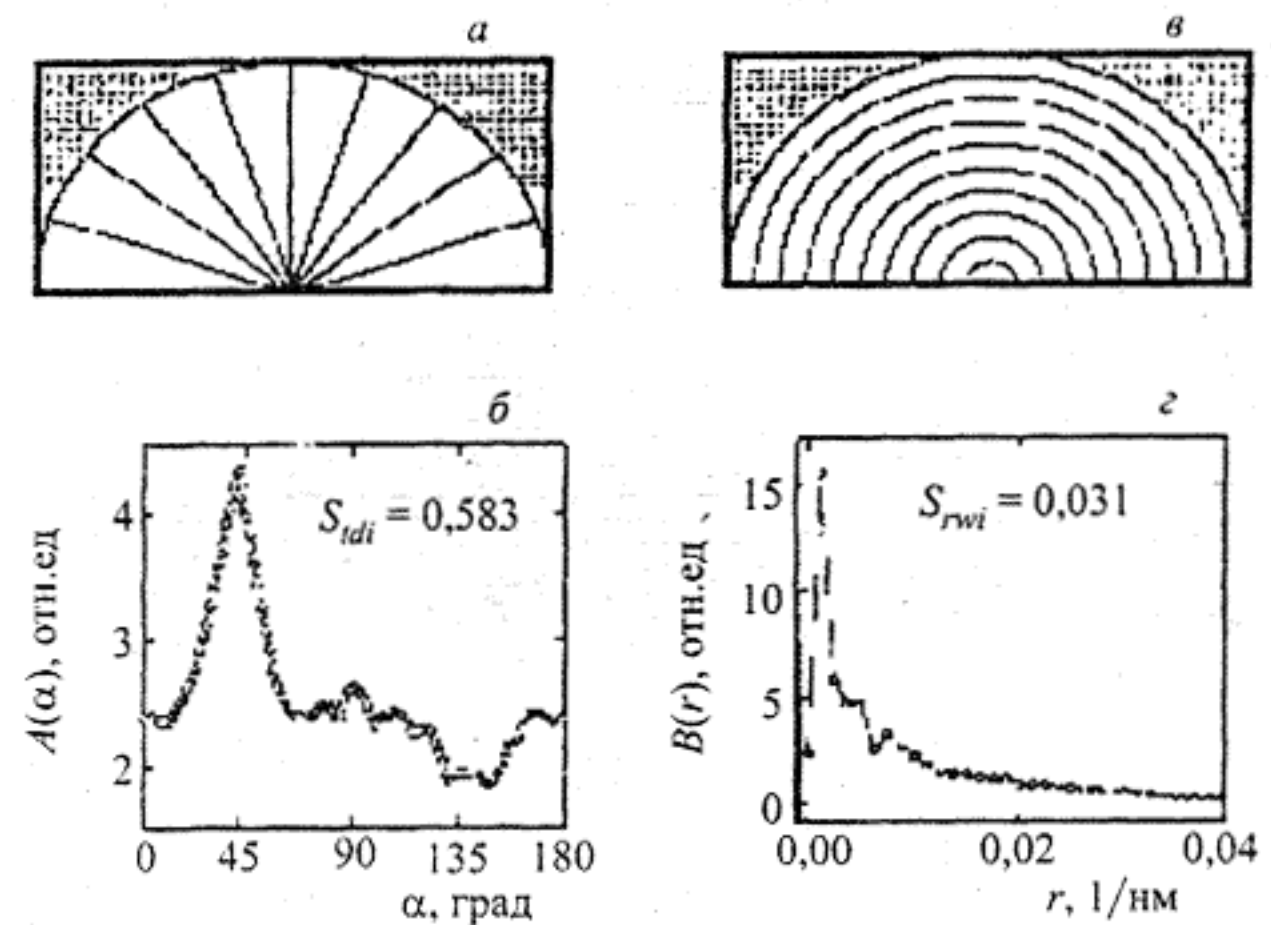


Рис. 10. Анализ Фурье-спектра поверхности образца полированной меди [5]: а — фрагмент построения линий для вычисления $A(\alpha)$; б — угловая зависимость $A(\alpha)$; в — фрагмент построения полукругов для вычисления $B(r)$; г — зависимость $B(r)$

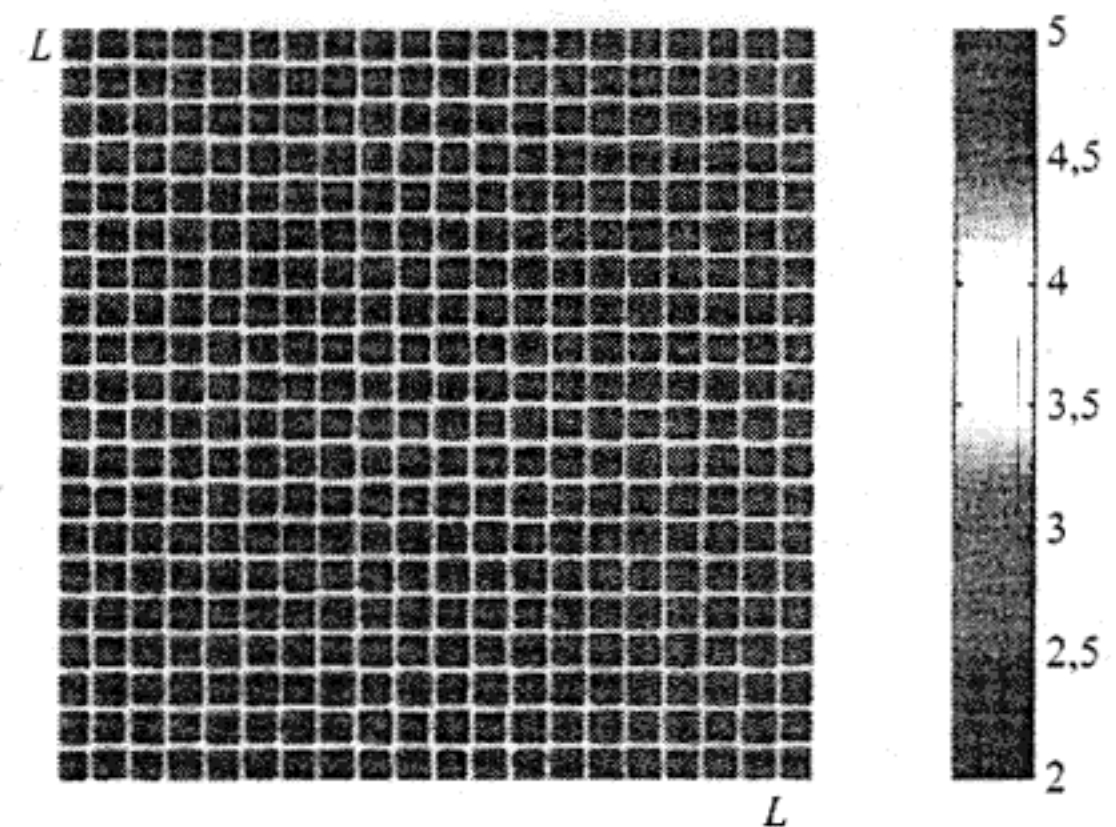


Рис. 11. Тестовая структура для расчета структурной функции

Далее рассчитывается суммарная амплитуда вдоль для каждого радиуса с переменным углом:

$$B(r) = \sum_{i=0}^{M-1} |F(u(r \cos(i\pi / M)), v(r \sin(i\pi / M)))|. \quad (22)$$

Радиусу $r_{\max}$ соответствует максимальная амплитуда $B_{\max}$. Радиальная длина волны рассчитывается как

$$S_{rwi} = \Delta x (M - 1) / r_{\max}, \quad (23)$$

где Δx — величина шага при сканировании СЗМ изображения. Индекс радиальной волны показывает ее относительный вес (от 0 до 1) для данного радиуса и определяется из выражения

$$S_{rwi} = (1 / M / 2) \sum_{i=1}^{M/2-1} (B(i) / B_{\max}). \quad (24)$$

Эта формула определяет отношение средней амплитуды к максимальной $B_{\max}$. Если радиальная длина волны доминирует, то параметр S_{rwi} близок к нулю.

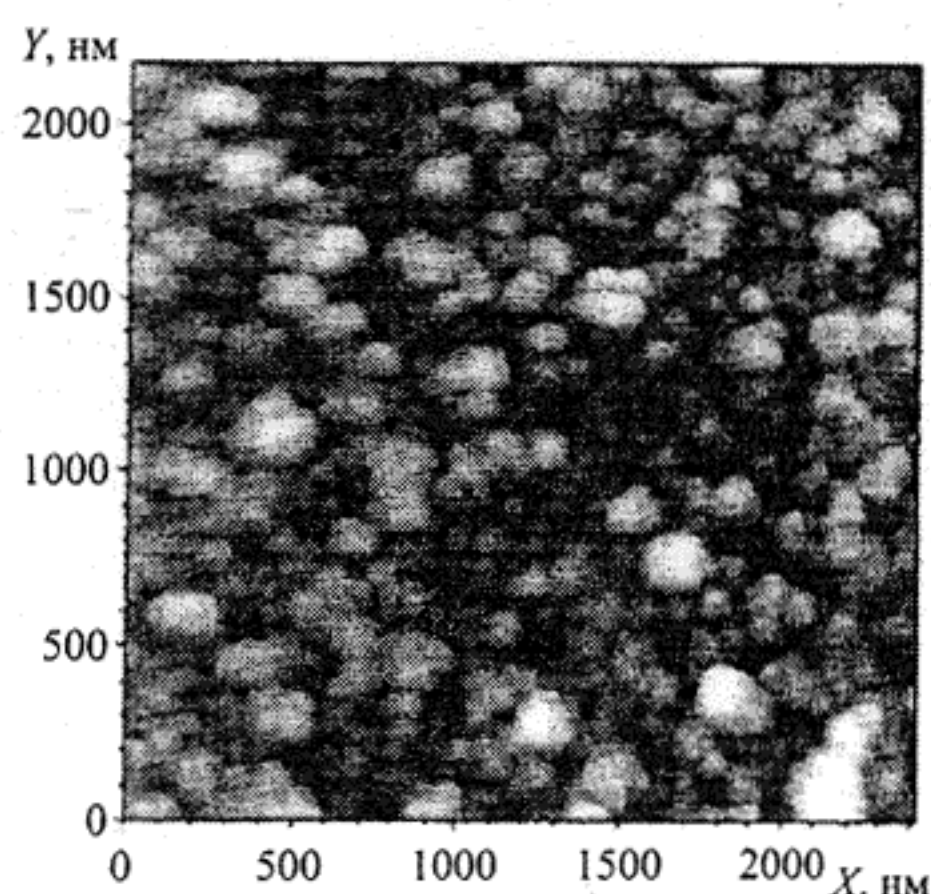


Рис. 12. Топографическое изображение поверхности пленок polySi, полученное в контактном режиме АСМ

Вычисление структурной функции

Вычисление структурной функции для тестовой структуры в виде шахматной доски (рис. 11) и реальной поверхности пленок polySi (рис. 12) проводилось по формуле (3). Были выбраны три области с различными размерами стороны квадрата (L): $1/4L$, $1/2L$, L . Результаты расчетов структурной функции для тестовой структуры и пленок polySi представлены на рис. 13. Можно заметить, что существует сходство в закономерности поведения структурных функций в зависимости от параметра τ . Вначале функция линейно зависит от параметра τ , затем по достижении критического значения не изменяется. После вычисления структурной функции можно рассчитать фрактальную размерность.

1. Шероховатость поверхности (как двухмерное распределение) можно изучать, используя два подхода: либо на основе евклидовой метрики в терминах классической статистики (двухмерное матожидание, двухмерное с.к.о., асимметрия, эксцесс, контрэксцесс и производные характеристики: корреляционные и спектральная функции), либо на основе размерности Хаусдорфа в терминах фрактальной геометрии. Оба подхода независимы, имеют свои особенности и области применения. Параметры шероховатости в классическом определении практически все зависят от масштаба сканирования в рамках определенных финитных соотношений. В то же время фрактальные параметры шероховатости, обладая масштабной инвариантностью, могут быть отнесены к метрической шкале либо путем использования гибридных параметров, либо используя прямые измерения фрактальных размерностей по физическим свойствам. На практике очень часто фрактальные размерности (фрактальный размер) измеряют по физическим свойствам в виде определенных физических параметров [10]. Поэтому в общем случае целесообразно использовать термин «фрактальный параметр», который выступает в качестве ин-

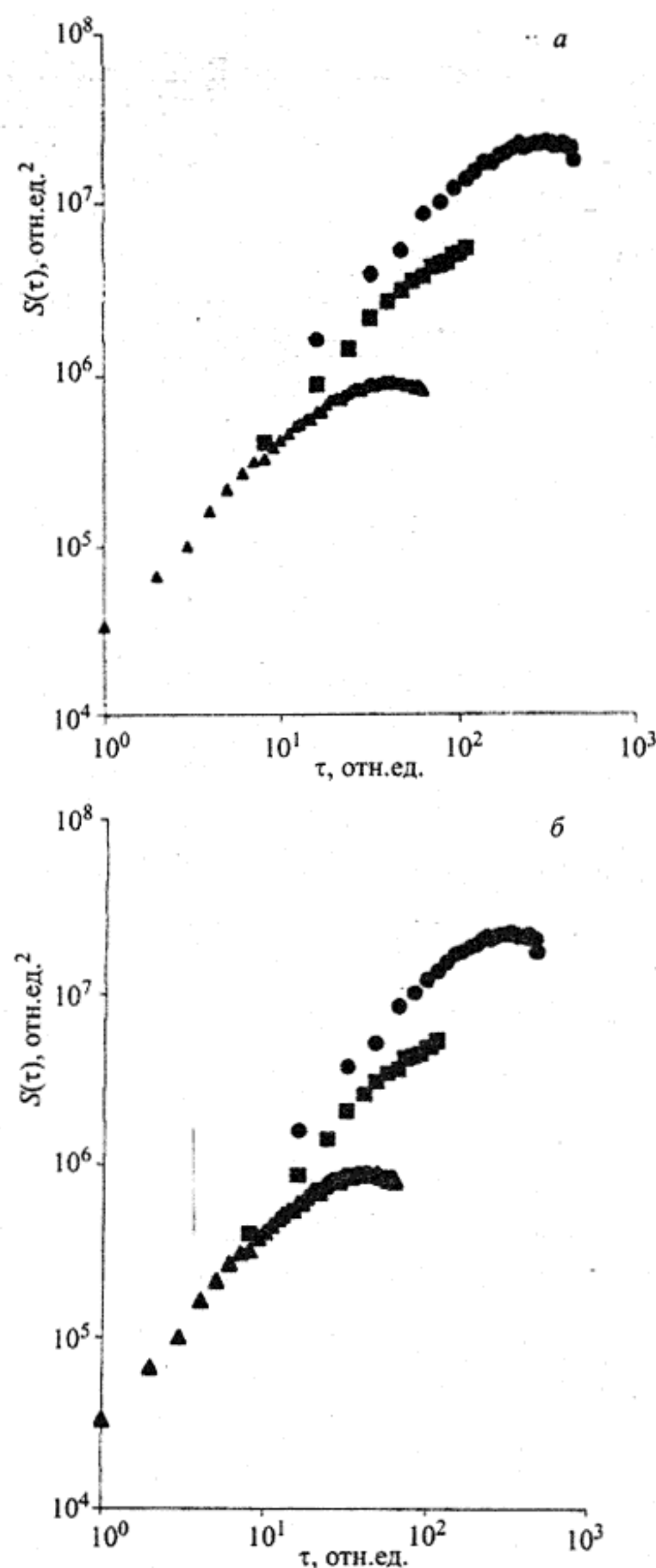


Рис. 13. Структурные функции для тестовой структуры (а) и пленок polySi (б)

тегральной количественной меры структурности объектов. Совместно с функциональными фрактальные параметры дают полное представление о морфологии поверхности.

2. Применение термина «фрактальное измерение» требует дальнейшего детального обсуждения, поскольку речь идет об измерениях, во-первых, по шкале рациональных чисел и, во-вторых, об измерениях посредством эмпирических шкал чисто геометрических размерностей. Измеримость или неизмеримость явлений, а тем самым проблема единиц измерения, представляет собой основную проблему не только классической метрологии, но и всех точных наук, где исследование соотношений имеет не только качественный, но и количественный характер. Это замечание касается также и правомочности использования

термина «фрактальное измерение» в фрактальной метрологии.

3. Классифицированные нами три группы параметров (метрические, фрактальные и пространственные) достаточно всесторонне характеризуют не только шероховатость поверхности, но и ее морфологические особенности. Эта система параметров для анализа поверхности твердых тел методом СЗМ может быть использована как проект сертификата при аттестации пленок и материалов с очень малыми значениями шероховатости.

ЛИТЕРАТУРА

1. Scanning Tunneling Microscopy / Ed. Wiesendanger R., Guntherodt H.-J. Berlin, New York: Springer-Verlag, 1992, 1993. V. 1 – 3.
2. Magonov S. N., Whangbo M.-H. Surface analysis with STM and AFM. Weinheim. 1996. — 323 p.
3. Руководство пользователя Р4-SPM-MDT. — М.: Гос. НИИ физ. проблем. 1996. — 58 с.
4. Jorgensen J. F., Carneiro K., Madsen L. L. / Nanotechnology. 1993. V. 4. P. 152 – 158.
5. Carneiro K., Jensen C. P., Jorgensen J. F., Garnoes J. / Annals of the CIRP. 1995. V. 44. P. 517 – 522.
6. Арутюнов П. А., Толстихина А. Л. / Микроэлектроника. 1997. Т. 26. № 6. С. 426 – 439.
7. Арутюнов П. А., Толстихина А. Л. / Кристаллография. 1998. Т. 43. № 3. С. 524 – 534.
8. Колчин В. Ф., Севастьянов Б. А., Чистяков В. П. — В кн.: Случайные размещения. — М.: Наука, 1976. С. 224.
9. Арутюнов П. А., Толстихина А. Л., Красивский И. Н. / Микроэлектроника. 1997. Т. 26. № 4. С. 309 – 315.
10. Цаллис К. — В кн.: Фракталы в физике. — М.: Мир, 1988. С. 98 – 105.
11. Almqvist N. / Surface Sci. 1996. V. 355. № 1 / 3. P. 221 – 228.
12. Spanos L., Irene E. A. / J. Vac. Sci. Technol. A. 1994. V. 12. № 5. P. 2646.
13. Tong W. M., Williams R. S. / Annu. Rev. Phys. Chem. 1994. V. 45. P. 401 – 438.
14. Collins G. W., Letts S. A., Fearon E. M. et al. / Phys. Rev. Lett. 1994. V. 73. № 5. P. 708 – 711.
15. Krim J., Palasantzas G. / Int. J. Modern Physics B. 1995. V. 9. № 6. P. 599 – 632.
16. Iwasaki H., Iwamoto A., Yoshinobu T. / Mem. Inst. Sci. Res., Osaka Univ. 1994. V. 51. P. 35 – 43.
17. Арутюнов П. А., Толстихина А. Л. / Микроэлектроника. 1998. Т. 27. № 4. С. 304 – 316.

УДК 620.193.01:530.145:535.8

СКАНИРУЮЩАЯ ЭЛЛИПСОМЕТРИЯ В КОРРОЗИОННЫХ ИССЛЕДОВАНИЯХ¹

© В. А. Котенев, С. Д. Стучебрюков, М. В. Перепелкин, Ю. В. Казарин²

Статья поступила 22 декабря 1998 г.

Описан метод сканирующей эллипсометрии для бесконтактных исследований локализованных коррозионных и других деструктивных поверхностных процессов. Он позволяет исследовать локализованные коррозионные разрушения поверхности (щелевая коррозия, питтинг, коррозионное растрескивание, гальваническая, селективная межкристаллитная, микробиологическая коррозия и др.) в случаях, когда процесс неравномерен вдоль поверхности и недоступен для исследований стандартными коррозионно-электрохимическими методами.

Одной из причин резкого увеличения скорости окисления металлов и сплавов в жидких и газовых средах является нарушение их пассивного состояния, сопровождаемое (либо обусловленное) во многих важных с точки зрения практики случаях началом протекания локализованных химических либо электрохимических реакций [1 – 3]. В случае зарождения питтинговой коррозии локальность обусловлена микрогетерогенностью поверхности окисляющегося металла или сплава с последующим сосредоточенным разделением на анодные и катодные участки в системе поверхностных микрогальванических коррозионных элементов. При щелевой коррозии локализация обусловлена формированием концентрационных макрогальванических

коррозионных элементов, дифференцирующих поверхность металла на локальные аноды (очаги растворения) и катоды.

В случае высокотемпературного газового окисления интенсификация и локализация протекания процесса может быть связана с обусловленным внутренними напряжениями растрескиванием растущего коррозионного слоя и результирующим ростом локальной скорости окисления в области трещин. Результатом протекания таких локализованных реакций должно являться изменение степени неоднородности состава, структуры, толщины вдоль поверхности исходного оксидного слоя. Очевидно, исследование степени неоднородности состава и структуры оксидного слоя на различных (и особенно начальных) стадиях процессов пассивации и депассивации может способствовать выявлению специфических особенностей протекания этих процессов.

¹ Работа была выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований по гранту № 97-03-32362.

² Институт физической химии РАН, Москва, Россия.