

微晶与纳米硅薄膜表面形貌 分形特征的研究*

万明芳^{①③**} 何宇亮^{①②} 袁凯华^① 戎霭伦^① 魏希文^③

(^①北京航空航天大学非晶态物理研究室, 北京 100083; ^②南京大学物理系及固体微结构实验室, 南京 210008;

^③大连理工大学物理系, 大连 116023)

关键词 微晶硅 纳米硅 分形特征

对纳米硅薄膜的微结构研究一直是这个领域中令人感兴趣的问题. Mandelbrot 提出的分形理论^[1]可用于材料显微结构的定量表征, 而分形维数是描述分形结构特征的一个重要几何参量. 近年来, 人们利用光学显微镜和 SEM 等手段对薄膜材料和金属断口的表面形貌进行了很多研究^[2,3], 但由于实验手段的限制, 通常只能获得材料在微米尺度上的分形特征, 而且存在实验过程和数据处理繁琐等缺点. 80 年代初发展起来的 STM, 具有纳米量级乃至原子量级的分辨率, 能够非破坏性地直接获得样品表面形貌的实空间三维图象, 便于进行数据处理, 从而使人们可较方便地在纳米乃至原子尺度上对材料的表面进行研究. 我们首先采用 STM 在纳米尺度上对不同工艺条件下按常规 PECVD 技术制备的微晶及纳米硅薄膜的表面形貌进行了观测, 并结合分形理论计算了样品表面形貌的分形维数 D , 从而找到了 D 值与样品微结构参数之间的联系.

1 实验过程

实验所用的硅薄膜样品是在常规 PECVD 系统中, 使用高比例的高纯氢稀释的硅烷作为反应气体, 利用 RF + DC 双重功率源激励等离子体辉光放电制备得到的^[4,5]. 薄膜样品的厚度 $\sim 1 \mu\text{m}$, 衬底为普通的玻璃片. 样品表面微观形貌的观测是采用 CSTM-9000 型 STM (中国科学院化学研究所生产) 在常温和大气中完成的. 观测前, 样品在稀释的 HF 中漂洗, 以除去表面上的氧化层. 针尖用 Pt-Ir 合金丝, 其直径约为 0.1 mm, 用机械加工方法制成. STM 的扫描方式为恒流模式, 偏置电压 1.50 V (针尖为正), 隧道电流 0.2 nA. 样品表面的起伏是通过不同的灰度级别反映出来的. 由于 nc-Si:H 膜具有高电导性, 其室温电导率 $\sigma_{\text{rt}} = (10^{-3} \sim 10^{-1}) \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$, 适合于进行 STM 观测.

用图象软件对硅薄膜样品的表现微观形貌进行图象处理, 要以获得样品表面形貌的轮廓线, 由这些轮廓线可以计算出样品表面形貌的分形维数. 然而, 对这类曲线的分形维数的计算

1995-06-21 收稿, 1995-12-18 收修改稿

* 国家自然科学基金资助项目

** 现工作地点: 中国科学院上海技术物理研究所研究生部, 上海 200083

方法很多^[6],我们采用 Fourier 分析法对硅表面形貌的分形维数进行计算,具体步骤如下:

(1)利用图象软件对 STM 的观测得到的样品表面形貌图象进行处理,从而获得样品表面不同位置上的形貌轮廓线;

(2)将所得到的这些轮廓线进行 Fourier 变换,求出其相应的功率谱;

(3)为了减小图象处理误差,将所得功率谱曲线进行平均;

(4)将平均的功率谱曲线由频率高端向低端进行积分;

(5)在双对数坐标上作出积分后的功率谱曲线,用线性回归法求出其直线部分的斜率 m ,则样品表面形貌的分形维数 D 可由下式求得

$$D = 2.0 + m/2 . \quad (1)$$

通过上述步骤所求出的分形维数 D 作为随机表面粗糙度的一种度量,可以用来定量地描述样品表面形貌轮廓曲线的分形特性. 以上计算工作是采用 C 语言编写的程序,是在 AST-486 微机完成的.

2 实验结果

图 1 为一块典型的纳米硅 nc-Si:H 样品的高分辨电子显微镜(HREM)照像. 图 1(a)为原始照片,图 1(b)为其图象处理后的照片,可使一个个微晶粒及其界面结构显示的更加清楚.

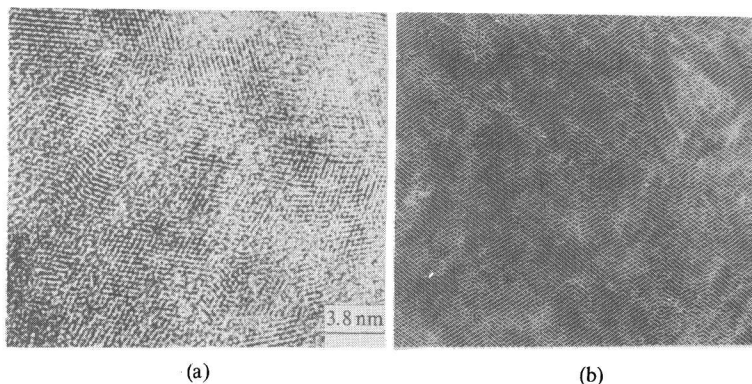


图 1 一块典型 nc-Si:H 膜的显微结构
(a) HREM 照片, (b)经图象处理后的 HREM

图 2 为具有不同结构参数(晶态体积百分比 X_c 值)的硅薄膜,使用 STM 技术所观测到的表面微观形貌图,扫描范围为 $400 \text{ nm} \times 400 \text{ nm}$. 对某一硅薄膜样品表面取 10 个不同位置的轮廓线,经 Fourier 分析法分析后得出其平均功率谱并绘在双对数坐标图中得图 3. 图 3 示出,在整条曲线的中间部分具有很好的线性,并给出直线的斜率 $m = -1.362$,线性拟合的相关系数 0.993. 这说明该样品的表面微观形貌确实呈现出分形特征,由(1)式得出其分形维数为 $D = 1.319$.

在分形数学理论中,自相似性具有无穷嵌套结构,但在物理实体和过程中,无穷嵌套一般是不存在的. 换言之,物理实体仅在一定尺度上呈现出分形特征. 图 3 中的曲线仅在中间部分呈现出很好的线性,其对应的尺度范围为 $2 \sim 6 \text{ nm}$,正说明了这一点.

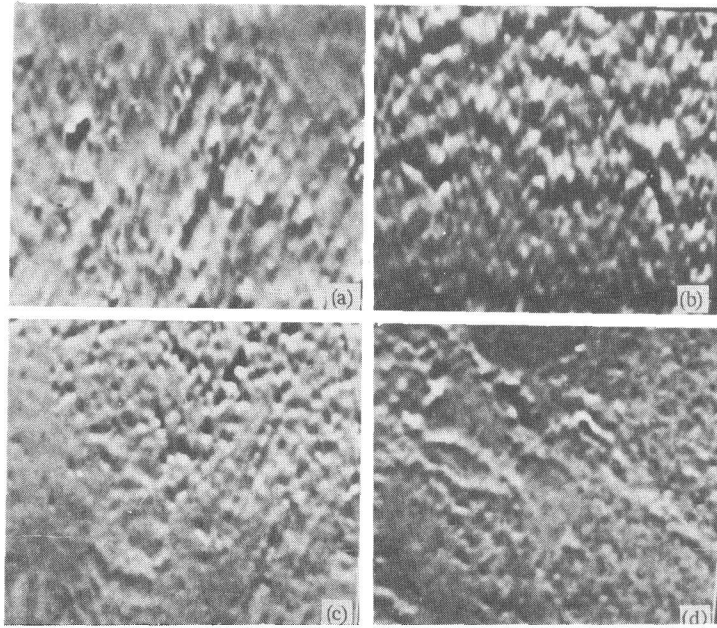


图 2 纳米硅薄膜的 STM 表面形貌(320 nm × 320 nm)

(a) $X_c = 0.51, D = 1.43$, (b) $X_c = 0.57, D = 1.43$, (c) $X_c = 0.66, D = 1.33$, (d) $X_c = 0.70, D = 1.31$

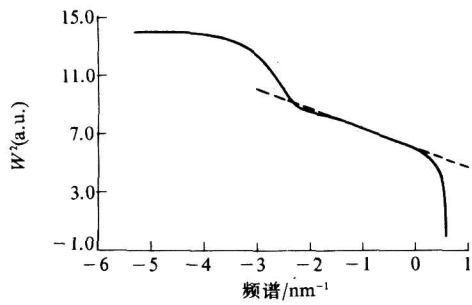


图 3 使用 STM 技术获得的表面形貌的积分功率谱图

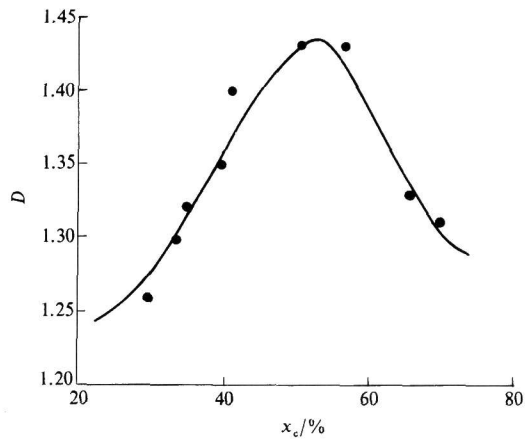


图 4 硅薄膜分形维数 D 随其晶态百分比 X_c 的变化

表 1 给出了实验所得微晶及纳米硅薄膜表面形貌的分形维数 D 与其晶态体积百分比 X_c 之间的关系。

表 1 硅薄膜分形维数 D 与结构参数 X_c 之间的关系

$X_c / \%$	29.4	33.4	35.0	40.0	41.3	51.0	57.0	66.0	70.0
D	1.26	1.30	1.32	1.35	1.40	1.43	1.43	1.33	1.31

3 实验结果与讨论

上面已提到,用来定量描述样品表面形貌的分形维数 D 作为一种随机粗糙度量其本身就带有一定随机性. 为了很好地研究纳米硅薄膜表面微观形貌分形维数 D 与有关样品微结构参数 X_c 之间的内在联系,我们使用 STM 技术对样品表面的不同位置进行观测. 对所得到的每一幅样品表面微观形貌图象,求出若干个分形维数. 由于表面形貌的实际分形维数不应该小于其中的任何一个,故取其中的最大者为所测样品的实际分形维数. 这样,我们就得到列表 1 的实验结果并把它绘入图 4 中.

Mitchell 等人曾提出^[7],在使用 Fourier 变换法计算分形维数的进程中,决定误差的主要因素为 Fourier 变换的精度. 由于 Fourier 变换的精度与所取数据点的数目密切相关,所以如果描述轮廓线的数据点过少,所求得的分形维数 D 的误差也就会大一些. Mitchell 曾给出,当采用 100~200 个数据点时, D 值的误差可高达 35%. 然而,在我们的计算中,所取的描述样品表面形貌轮廓线的数据点为 1 600 个,其误差应小于 3%. 所以,表 1 列出的实验结果完全能说明对硅薄膜材料,当其结构随着晶态体积百分比值 X_c 进入纳米相时($X_c = 0.51 \sim 0.57$)分形维数 D 呈现出最大,这是本工作的一个重要发现.

图 4 示出,当硅薄膜的晶态体积百分比值 $X_c < 0.50$,分形维数 D 随 X_c 减小而单调下降,外推到 $X_c \rightarrow 0$ (α -Si:H 薄膜)其 D 值趋于 1.20. 另一方面,当 $X_c > 0.57$, D 值陡然下降. 当 $X_c \simeq 0.54$ 时 D 出现极大值. 这是我们从分形结构方面观测到的纳米硅薄膜材料的又一特殊性质. 本文指出,硅样品表面形貌的分形维数 D 是随机表面粗糙度的一种度量. 虽然,非晶态薄膜在其整体结构上是无序的,但在一定的尺寸范围内(小尺寸)其表面形貌却显得更为平坦,反不如有一定数量的细微晶粒镶嵌在表面结构中来得粗糙. 正如一马平川的沙漠表面的起伏在一定范围内反不如偶有光秃秃的石块点缀在其中更为粗糙. 图 2(b) ($X_c = 0.57$, $D = 1.43$ 为最大)的表面形貌最为粗糙,直接说明了这一特性. 另一方面,我们曾多次指出,硅薄膜一旦进入纳米相就构成了具有最大浓度的界面组织 ($X_c \sim 50\%$),从而使纳米硅薄膜的表面具有更为突出的复杂性,当 X_c 值继续增大,又使界面浓度 X_i 降低,无疑这是使 D 值变小的重要原因. 如同在早期工作中我们曾发现 $X_c \simeq 50\%$ 时薄膜中的氢含 C_H 值^[8]以及压力灵敏度 K 值^[9]呈现出极大一样. 这些,都反映出纳米硅薄膜的特殊性.

4 结论

本文指出:把 STM 技术和分形理论结合起来,是研究薄膜材料表面形貌的分形特性的一种非常有力的手段. 硅薄膜材料的表面形貌具有分形特征,其分形维数 D 当硅薄膜处于纳米态时具有最大值,充分地反映了纳米硅薄膜的结构特征. 我们认为,进一步的研究有可能在分形维数 D 与结构参数 X_c 之间建立起一种函数,如 $X_c = f(D)$ 或 $D = f'(X_c)$ 关系.

参 考 文 献

- 1 Mandelbrot B. Fractal Geometry of Nature. San Francisco: W H Freeman & Co, 1982
- 2 Mandelbrot B, Passoja D E, Paullay A J. Fractal character of fracture surface of metals. Nature, 1984, 308:721

- 3 Lung C W, Mu Z Q. Fractal dimension measured with perimeter-area relation and toughness of materials. *Phys Rev B*, 1988, 38(16):11 781
- 4 何宇亮,刘湘娜,王志超等. 纳米硅薄膜的研制. *中国科学, A 辑*, 1992, (9):995
- 5 He Yuliang, Yin Chenzheng, Cheng Guangxu *et al.* The structure and properties of nanosize crystalline silicon films. *J Appl Phys*, 1994, 72(2):797
- 6 Feder J. *Fractals*. New York: Plenum Press, 1988
- 7 Mitchell M W, Bonnel D D. Quantitative topographic analysis of fractal surfaces by STM. *J Mater Res*, 1990, 5(10):2 244
- 8 余明斌,何宇亮,刘洪涛等. 纳米硅薄膜退火特性的研究. *物理学报*, 1995, 44(4):634
- 9 何宇亮,武旭辉,林鸿溢等. 纳米硅薄膜的压阻效应. *科学通报*, 1995, 40(7):605