

# 光学薄膜表面复型电子显微照片 的计算机处理\*

吕中良 唐晋发  
(浙江大学光仪系)

## 提 要

用计算机处理薄膜表面复型电子显微照片, 得到表面高度轮廓, 提出了计算机定标方法, 并计算了薄膜表面微结构参量。

关键词: 光学薄膜, 表面粗糙度。

## 一、引 言

在假设薄膜是各向同性、均匀的理想条件下, 薄膜器件的设计和淀积工艺已取得了巨大进步, 但随着对薄膜器件的诸如稳定性、散射、吸收、抗激光损伤阈值等的要求不断提高, 薄膜微结构的研究引起了薄膜光学工作者的广泛重视和关注。

薄膜表面的微观形貌通常是以自相关函数  $G(x)$  来表征的, 通过自相关函数可以得到均方根粗糙度  $(\delta)$ 、自相关长度  $(\sigma)$ , 而且自相关函数  $G(x)$  的傅里叶变换就是表面功率谱密度  $g(k)$ , 这些参量对于计算表面等离子激元波和表面散射分布是必须的。Elson<sup>[1]</sup> 等人利用一级微扰理论推算了光子垂直入射在粗糙表面上产生表面等离子激元波的概率为

$$Q(\omega) = \frac{\delta^2}{\lambda^4} A(\omega) g(k) \quad (1)$$

式中,  $\lambda$  是光波长,  $A(\omega)$  是光频  $\omega$  的确定的函数,  $\delta$  为均方根粗糙度,  $g(k)$  为功率谱密度。此外  $p$  和  $s$  偏振光的角散射分布分别由下式给出

$$\begin{aligned} \left(\frac{dR}{d\Omega}\right)_p &= \delta^2/\lambda^4 B(\omega, \theta, \phi) g(k), \\ \left(\frac{dR}{d\Omega}\right)_s &= \delta^2/\lambda^4 C(\omega, \theta, \phi) g(k). \end{aligned} \quad (2)$$

式中,  $\phi$  和  $\theta$  是测量位置的方位角,  $dR/d\Omega$  是单位立体角内散射光的强度,  $B(\omega, \theta, \phi)$  和  $C(\omega, \theta, \phi)$  是  $\omega, \theta, \phi$  的确定的函数。

可以看出,  $\delta$  和  $g(k)$  是重要的参量。近年来已有许多关于表面等离子激元波和表面散射分布的测量, 并在假设  $g(k)$  为指数型或高斯型的前提下推算表面粗糙度和自相关函数。Bennett<sup>[2,3]</sup> 等人进而利用多光束等色序干涉条纹 (FECO) 和表面轮廓仪对表面微粗糙度进行直接测量。然而虽然这些直接测量方法的垂直方向(高度)分辨率很高, 但横向分辨率

收稿日期: 1987年5月25日; 收到修改稿日期: 1987年8月17日

\* 国家自然科学基金资助项目。

却在  $1000 \text{ \AA}$  左右,而电镜下能看到的薄膜表面微细节瘤的横向尺寸也在相同的数量级上甚至更小,因此限制了表面粗糙度的测量精度。薄膜一级投影复型的电子显微照片的横向分辨率能达几十埃,这是其它方法所不能比拟的。

薄膜显微照片的计算机处理方法是 Rassigni 在七十年代中提出来的,到八十年代初虽开始有了较满意的结果,但还存在一些实际问题有待改进,例如 Rassigni 在定标时必须要在照片上找特别大的灰粒或节瘤以量出它们的阴影长度,定标误差达 10%。此外,对底片逐行扫描进图时,原理上要求行扫描方向在投影蒸镀平面内,这个工作仅仅是在进图时靠人眼判断,而没有作进一步校正,由此而引入的误差也是很难避免的。国内自 1975 年拍到光学薄膜微观结构以来,还不曾有人就这些照片定量地对表面形貌进行研究。

本文除了利用 Rassigni 的方法得到表面高度轮廓和微观参量外,着重解决了定标的问题,使它更适用于不存在灰粒和节瘤的一般的情况,并使定标误差降低到小于 2%。

## 二、薄膜表面电子显微照片的计算机处理

首先的工作是对薄膜样品复型,过程如图 1 所示。先用 Pt-C 对样品以某一角度投影蒸镀,再在几乎占基板垂直的方向用 C 蒸镀加固,然后用酸腐蚀剥落,经清水漂洗就可放在透射电镜下观察了。我们使用透射式电子显微镜 JEM-2000x 得到薄膜表面显微照片,在进图仪 EIKONIX78/99 上对照片采样数字化。

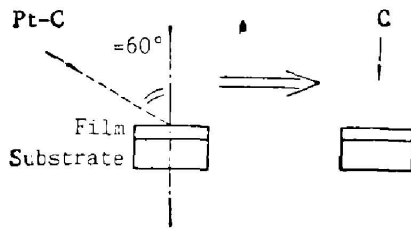


Fig. 1 Film surface replicating, with Pt-C shadow casting at an angle of  $60^\circ$

输入计算机的实际是电子显微照片的透过率  $T(x,y)$  信号,可以证明  $T(x,y)$  与表面元的斜率成正比<sup>[4,5]</sup>。图 2 是样品截面的示意图。图中符号的意义如下:  $\phi$  是倾斜角,即表面元与基板平面的夹角;  $\theta$  是投影角,即基板的法线与投影方向夹角;  $\beta$  是表面元的法线与投影方向的夹角;  $e_m$  是投影方向上度量的 Pt-C 膜的厚度,假设它为常数;  $G$  是在基板法线方向上度量的 Pt-C 膜的厚度;

$$P = \text{tg } \phi。$$

假设样品水平放在透射电镜的样品台上,电子垂直入射,对于倾角为  $\phi$  的表面元,电子需穿过的 Pt-C 厚度为

$$G = \frac{e_m \cos \beta}{\cos \phi} = \frac{e_m \cos(\theta - \phi)}{\cos \phi} = e_m (\cos \theta + \sin \theta \text{tg } \phi) = e_m (P \sin \theta + \cos \theta)。 \quad (4)$$

因  $\theta$  和  $e_m$  是常数,所以  $G$  与  $P$  成线性关系。

假设  $N_0$  为单位面积内垂直入射的电子数,  $N$  为相应穿过厚度为  $G$  的样品的电子数,则有<sup>[6]</sup>

$$N = N_0 \exp(-\mu G) \quad (5)$$

式中  $\mu$  为常数。

底片上的密度为<sup>[7]</sup>

$$d = \alpha \log N + \gamma。 \quad (6)$$

式中  $\alpha, \gamma$  为常数。

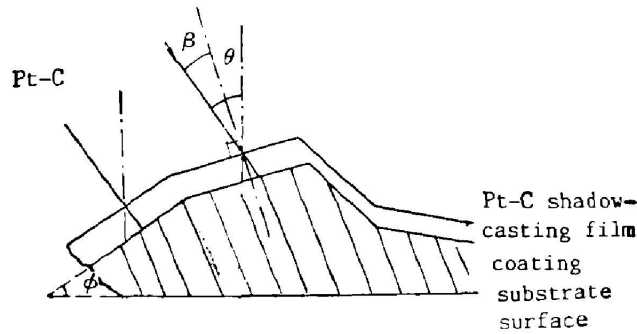


Fig. 2 The profile of surface elements

由式(4)、(5)、(6)可得

$$P = -a_1 d + b_1 \quad (7)$$

式中  $a_1, b_1$  是常数 ( $a_1$  为正数)。

假设  $T$  为底片的透过率, 则有  $d = \log 1/T$ , 于是

$$P = a_1 \log T + b_1 \quad (8)$$

即可以根据透过率信号计算表面元的斜率。

当底片上  $T$  的变化范围足够小时, 有

$$P \approx a_2 T + b_2 \quad (9)$$

式中  $a_2, b_2$  为常数。

如果知道  $a_2, b_2$  就可由(9)式计算斜率, 但事实上  $a_2, b_2$  难以确定。为此, 实际的计算是先任取  $a_2, b_2$ , 令  $P(x), Z(x)$  表示底片上某一行实际的斜率和表面轮廓, 认为  $P(x)$  是一个平稳随机过程, 即有  $\langle P(x) \rangle = 0$ , 并假设任取  $a_2, b_2$  计算所得的斜率和表面轮廓为  $P_1(x), Z_1(x)$ 。因为  $a_2, b_2$  是任取的, 所以

$$P_1(x) = kP(x) + b_0$$

令

$$P_2(x) \equiv P_1(x) - \langle P_1(x) \rangle = kP(x) \quad (10)$$

$\langle \rangle$  表示对所有的  $x$  取平均,

$$Z_1(x) = \int_0^x P_2(\xi) d\xi = k \int_0^x P(\xi) d\xi = kZ(x) \quad (11)$$

所以计算所得的表面轮廓  $Z_1(x)$  与实际的表面轮廓  $Z(x)$  成正比, 在计算得到  $Z_1(x)$  后, 通过定标确定  $k$  值, 定标过程如下:

假设有一个表面包(图3), 在知道 Pt-C 蒸镀方向( $\theta$  角)和阴影长  $L$  (即 Pt-C 未能淀积到的区域)后, 就可计算它的实际高度

$$h = L / \text{tg } \theta \quad (12)$$

又:  $h = |Z(x_2) - Z(x_1)|$ ,

于是  $k = |Z_1(x_2) - Z_1(x_1)| / h$ 。

Rasigni 在照片上找特别大的节瘤或灰粒, 量出它的阴影长, 从而实现定标。但往往底片上根本就没有这样的点或只有很少这样的点, 测

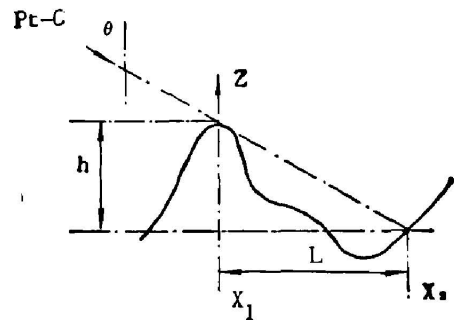


Fig. 3 The relation between the height of a nodule and its shadow

量随机误差很大,因此精确的定标是困难的。

许多薄膜呈柱状微结构,在 Pt-C 投影角  $\theta$  足够大时,柱状微结构的表面圆包有许多会产生阴影,即使不是柱状结构,表面的起伏也会有同样的效果。一张底片上有阴影的部分往往是相当多的(投影角  $\theta$  足够大时),这样就不必特意去找很大的节瘤或灰粒了。

没有镀上 Pt-C 的部分即阴影部分在进图时  $T$  是很小的,并且有相当长一段连续的点,从而可以用计算机对阴影部分进行识别,实现定标。首先进图后给出阴影部分的最大透过范围  $0 \sim T_t$ , 给出判为阴影的最少的连续点数  $L_t$ , 以及最少的阴影数  $n_t$ 。即是有连续的点数超过  $L_t$ 、透过率范围  $< T_t$  的部分认为是阴影。选择  $L_t$  和  $T_t$  使得阴影数超过  $n_t$ , 然后在表面轮廓分布的相应区域计算  $Z_1(x_2) - Z_1(x_1)$ , 从  $h_i = L_i / \text{tg } \theta$ , 这样就可算得  $k_i = |Z_1(x_2) - Z_1(x_1)| / h_i$ , 式中  $i$  表示第  $i$  个阴影。根据  $k_i$  的分布可以计算出  $k$  的均方根误差  $\Delta$ , 通过改变  $L_t$  和  $T_t$  使得  $\Delta$  为最小,从而可求得定标系数  $k$ 。

用上述方法可以使定标系数  $k$  的随机误差降到最小,实验结果在 2% 以内。 $k$  的系统误差主要由  $\theta$  角的不准确性带来,首先计算一下在观察的微观区域内  $\theta$  角的分布,底片大小是  $80 \times 50 \text{ mm}^2$ , 放大倍数在 15000 倍以上,蒸发源到样品距离为 100 mm 左右,  $\theta$  角为  $60^\circ$ , 则  $\Delta\theta < 0.002^\circ$ , 可以忽略。而  $\theta$  角的测量误差能做到在 1% 以内,也可以忽略。所以定标系数  $k$  的主要误差是随机误差。

本文假设显微照片是一个名态历经的平稳随机场,因此其统计量可在一张底片上计算。整个处理过程是逐行进行的。

二维中值滤波的作用是去除散粒噪音,假设未除尽的噪音以白噪音的形式出现,那么积分后就是一个低频的 Winner-Levy 随机过程,它可以用大窗口的一维中值或平均值滤波除去。

### 三、处理结果

图 4(a) 是一个 ZnS 样品的表面,基板是商业抛光的 K<sub>9</sub> 玻璃,膜的光学厚度为  $18600 \text{ \AA}$ , 烘烤温度  $150^\circ\text{C}$ , Pt-C 投影蒸镀角  $\theta$  为  $61^\circ$ , 电镜的放大倍数是 15000 倍,这张照片是进图后在监视屏上拍得的,有  $256 \times 256$  个像素,经处理后的立体投视图示于图 4(b),

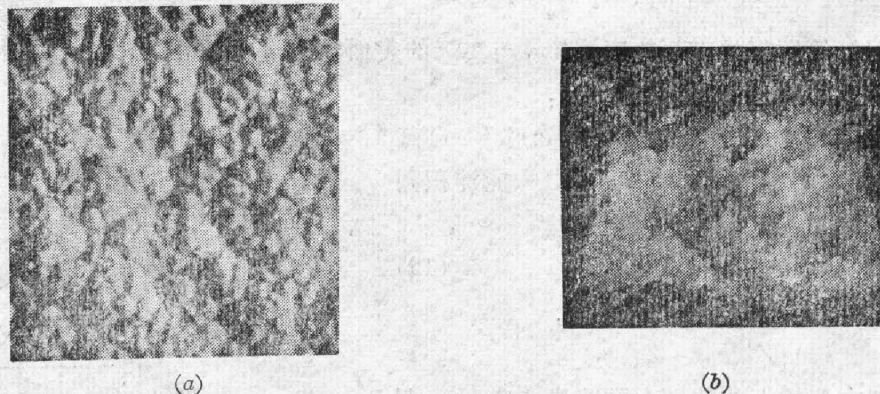


Fig. 4

- (a) TEM micrograph of ZnS film surface replica;  
 (b) The perspective view of the topograph of (a)

它与(a)符合得相当好。

图5表示的是图4(a)某一行的处理过程。可以看出,原始信号经二维中值滤波之后并没有去掉所有的噪音,积分之后表现出来的是很大的起伏,所以要用一维大窗口的平均值(或中值)滤波器滤波得到低频噪音,减去它后才是真正的高度分布。

根据以上处理结果计算的自相关函数

$$G(x) = \lim_{a \rightarrow \infty} \frac{1}{a} \int_0^a Z(x')Z(x'+x)dx' \quad (13)$$

它的离散形式为

$$G(mt) = \frac{1}{N-m} \sum_{j=1}^{N-m} Z_j Z_{j+m} \quad (14)$$

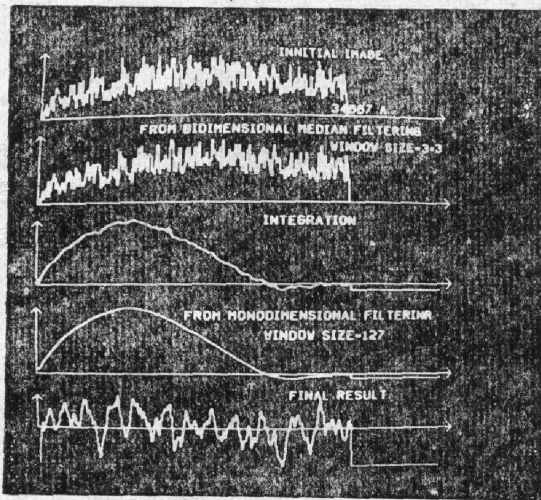


Fig. 5 Steps of calculation for a line in the micrograph of ZnS film

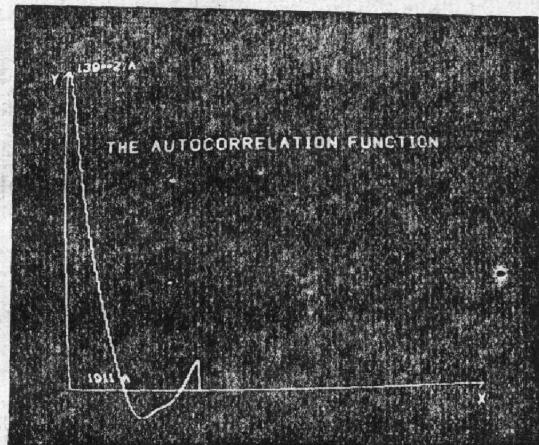


Fig. 6 The autocorrelation function  $G(x)$  for a surface of ZnS film

Table 1 Computational results of the calibration coefficients

		ZnS															
$k_i$		3.567	3.481	3.399	3.225	3.277	3.453	3.453	3.574	3.753	3.785	3.722	3.665	3.915	3.594	3.380	3.174
$\bar{k}$		3.483															
$\Delta_i =  k_i - \bar{k} $		0.129	0.045	0.039	0.213	0.161	0.015	0.015	0.126	0.315	0.347	0.284	0.227	0.477	0.096	0.058	0.264
$\Delta = \sqrt{\sum \Delta_i^2/n}$		0.271															
$[\Delta/\sqrt{n}]/\bar{k}$		0.018															
		ZnS							Al								
$k_i$		3.089	2.897	2.988	1.075	1.102	1.194	1.000	1.032	1.027	1.020	1.056	1.053	1.000	1.075	0.992	0.992
$\bar{k}$		3.438							1.048								
$\Delta_i =  k_i - \bar{k} $		0.355	0.541	0.450	0.027	0.054	0.146	0.048	0.016	0.021	0.028	0.008	0.005	0.048	0.027	0.056	0.056
$\Delta = \sqrt{\sum \Delta_i^2/n}$		0.271							0.054								
$[\Delta/\sqrt{n}]/\bar{k}$		0.018							0.014								

式中  $t$  是两个采样点之间的距离,  $N$  是一行中总的采样个数。由图 4 ZnS 样品处理得到的自相关函数示于图 6。它的均方根粗糙度  $\delta = [G(0)]^{1/2} = 139 \text{ \AA}$ 。

对商品 K<sub>9</sub> 玻璃上的 Al 膜样品的处理结果, 均方根粗糙度为  $33 \text{ \AA}$ , 这基本上反映了基片表面的粗糙情况。从前面的结果可以看到, ZnS 表面粗糙度有了较大的增加, 这可能是薄膜厚度较厚引起的。

对以上两个样品 (ZnS 和 Al 膜) 的定标结果见表 1。ZnS 膜的定标系数是 3.438, 误差为 1.8%, 这是在  $1024 \times 20$  图像面积中定标的结果, 相邻像素的间距是  $33.9 \text{ \AA}$ , 总共找到 19 个阴影; Al 膜的定标系数 1.048, 误差 1.4%, 也是在  $1024 \times 20$  图像面积中定标, 相邻像素间距  $18 \text{ \AA}$ 。可见, 误差都在 2% 以内, 相比于 Rasigni 的结果 10% 有了很大的改进。

## 四、结 论

通过对薄膜复型电子显微照片的计算机处理得到了薄膜表面的高度轮廓及其微观参量, 本文解决了计算机自动定标的问题, 使得这个方法的精度有了进一步的提高。进图时底片的定向和自动校正尚有待改进, 薄膜断面电子显微照片的计算机处理也正在进行之中, 我们希望不久会有方面工作的报告。

本课题曾得到浙江大学中心试验室图像处理室和电镜室同志的帮助, 在此表示衷心的感谢。

## 参 考 文 献

- [1] J. M. Elson, R. H. Ritchie; *Phys. Lett.*, 1970, **33A**, No. 4 (Jul), 255~256, *Phys. Rev.*, 1971, **B4**, No. 12 (Dec), 4139~4138; *Phys. Status Solidi*; 1974, **B62**, No. 2 (Feb), 461~468.
- [2] J. M. Bennett; *Appl. Opt.*, 1976, **15**, No. 11 (Nov), 2705~2721.
- [3] J. M. Elson, J. M. Bennett; *J. O. S. A.*, 1979, **69**, No. 1 (Jan), 31~47.
- [4] M. Rasigni, G. Rasigni *et al.*; *J. O. S. A.*, 1981, **71**, No. 9 (Sep), 1124~1133.
- [5] M. Rasigni, G. Rasigni *et al.*; *J. O. S. A.*, 1981, **71**, No. 10 (Oct), 1230~1237.
- [6] C. Magnan; *«Traité de Microscopie Électronique»*, (Hermann, Paris, 1961).
- [7] J. F. Hamilton, J. C. Marchant; *J. O. S. A.*, 1967, **57**, No. 2 (Feb), 232~239.

## Computer analysis of TEM micrographs of thin film surface replicas

LU ZHONGLIANG, TANG JINFU

(*Zhejiang University, Hangzhou*)

(Received 25 May 1987; revised 17 August 1987)

### Abstract

The thin-film surface topographs have been obtained with the computer analysis of micrographs of surface replicas. A new method of calibration with the aid of computer is given. The statistical properties of optical surfaces, such as r. m. s roughness, autocorrelation length and autocorrelation function are also calculated.

**Key words:** optical thin film; surface roughness.