

# 半连续Ag纳米薄膜显微图像的多重分形谱研究

张德祥<sup>1,2</sup>, 高清维<sup>1,2</sup>, 钟维年<sup>2</sup>, 陈军宁<sup>2</sup>

(1. 安徽大学计算智能与信号处理重点实验室 合肥 230039; 2. 安徽大学电子科学与技术学院 合肥 230039)

【摘要】多重分形谱是分形理论中最基本的一个数学概念,也是分形理论应用中最重要的一个方面。在解决实际问题中多重分形谱主要用来描述物理量不均匀的随机概率分布,通过对半连续Ag纳米薄膜显微图像结构形貌的分析和处理,以及通过薄膜显微图像多灰度概率测度进行多重分形谱分析,用多重分形谱描述随薄膜厚度变化的Ag颗粒的空间分布的不均匀性。实验结果表明,多重分形谱是一种有意义的表征参数,能够从多分形角度对薄膜中Ag厚度的空间分布均匀性和尺寸分布进行量化的分析和解释。

关键词 分形; 纳米薄膜; 显微图像; 多重分形谱; 多灰度概率测度  
中图分类号 TB301 文献标识码 A

## Study on Multifractal Spectrum of Microscope Image of Semi-Continuous Ag Nanoparticle Films

ZHANG De-xiang<sup>1,2</sup>, GAO Qing-wei<sup>1,2</sup>, ZHONG Wei-nian<sup>2</sup>, CHEN Jun-ning<sup>2</sup>

(1. Key Lab. of Intelligent Computing and Signal Processing, Anhui University of China Hefei 230039;

2. School of Electronic Science and Technology, Anhui University of China Hefei 230039)

**Abstract** The multifractal spectrum is a basic mathematical conception in the fractal theory and it is one of the most important factors in the applications of the fractal theory. In engineering problems, the multifractal spectrum is mainly to describe the random probability distribution of physical phenomenon. In this paper the multifractal spectrum is calculated by multigray probability measures of the microscope image of semicontinuous Ag nanoparticle films. It is found that multifractal spectrum can characterize space distribution of Ag particles influence on nanoparticle film uniformity in different thickness films quantitatively. Experimental results show that the multifractal spectrum is an important characteristic parameter, which enables the quantitative analysis and explanation of the homogeneous space distribution and size distribution of Ag particles thickness of films from the multifractal issue.

**Key words** fractal; measures nanoparticle films; microscope image; multi-fractal spectrum; multi-gray probability

由纳米贵金属颗粒弥散于陶瓷基体中所构成的复合金属陶瓷纳米颗粒薄膜具有许多独特的光学和电学性质,但定量表征其微结构的变化规律对该薄膜材料的开发研究具有重大意义<sup>[1]</sup>。自从Mandelbrot在20世纪70年代提出分形概念以来,常用分数维来描述具有自相似结构的不规则几何形体的非线性过程的工作机理<sup>[2-3]</sup>。但简单的分形维数只能对研究对象作整体性、平均性的描述和表征,不能完全揭示出产生相应分形结构的动力学过程,为此人们提出了多重分形的概念<sup>[4]</sup>。多重分形可以用一个谱函数来描述几何图形或物理量在空间的概率分布以及自

相似或统计自相似性的某种度量,可以揭示不同局域条件或不同层次所导致的特殊结构行为与特征,是从系统的局部出发来研究其整体的特征,并借助统计物理学的方法来讨论特征参量的概率测度的分布规律<sup>[5]</sup>。

本文主要通过显微图像的多灰度处理方法来获得多重分形谱,从而利用多重分形的方法来研究半连续Ag纳米薄膜中,对于不同厚度的金属Ag纳米颗粒薄膜,Ag颗粒空间分布的均匀性和尺寸分布,揭示其分形结构以及定量分析和解释不同厚度金属Ag分布对复合纳米颗粒薄膜的均匀性影响。

收稿日期: 2005-09-19

基金项目: 安徽省教育厅基金项目资助(2005kj058)

作者简介: 张德祥(1968-),男,硕士,副教授,主要从事分形理论应用与数字图像处理方面的研究。

## 1 多重分形谱的计算理论

多重分形谱的计算首先统计物理量在相应分形结构上的概率测度分布<sup>[6]</sup>。为定量描述不均匀性,把研究对象的显微图像分成 $N$ 等份,每一等份的盒子线度记为 $\varepsilon$  ( $\varepsilon \ll 1$ ),表示网格的大小,则第 $(i, j)$ 个盒子里面金属含量的分布概率测度为:

$$P_{ij}(\varepsilon) = \frac{N_{ij}(\varepsilon)}{\sum_{ij} N_{ij}(\varepsilon)} \propto \varepsilon^\alpha \quad (1)$$

式中  $N_{ij}(\varepsilon)$  为第 $(i, j)$ 个盒子里面金属含量,  $\sum_{ij} N_{ij}$  表示图像内总的金属含量;  $\alpha$  一般称为奇异性标度指数,并且在无标度区域内是某一有限指数。对于不同盒子的尺寸,  $\varepsilon$  有不同组的概率测度  $P_{ij}(\varepsilon)$ 。

在无标度区域内,概率测度  $P_{ij}(\varepsilon)$  与网格大小尺寸  $\varepsilon$  间存在如下形式的标度关系:  $P_{ij}(\varepsilon) \propto \varepsilon^\alpha$ 。其中,  $\alpha$  一般称为奇异性标度指数,并且是某一有限指数,即  $\alpha \in [\alpha_{\min}, \alpha_{\max}]$ , 它反映了分形图像在各个盒子尺寸  $\varepsilon$  下概率测度  $P_{ij}(\varepsilon)$  随  $\varepsilon$  变化的各个子集的性质。 $\alpha$  愈大,子集的概率就愈小;这里  $\alpha$  表示当  $\varepsilon$  较小时,概率测度  $P_{ij}(\varepsilon)$  与网格大小尺寸  $\varepsilon$  之间成正比。

如果把在分形上具有相同  $\alpha$  值的小盒子数目记为  $N_\alpha(\varepsilon)$ , 则  $N_\alpha(\varepsilon)$  在无标度区域内也存在着标度关系  $N_\alpha(\varepsilon) \propto \varepsilon^{-f(\alpha)}$ 。显然,  $f(\alpha)$  相当于具有尺度  $\varepsilon$  为  $\varepsilon^\alpha$  的区域的分形维数,即多重分形维数谱函数。一个复杂的分形体,它的内部可分为一系列不同  $\alpha$  值所表示的子集,这样  $f(\alpha)$  就给出了这一系列子集的分形特性。因此  $f(\alpha)$  的物理意义就是表示具有相同  $\alpha$  值的子集的分形维,是对分形结构上的复杂程度、不规则程度以及不均匀程度的一种量度。

为了了解这一系列子集分布特性,借助于统计物理中矩表示方法,为此,多重分形中定义了一个配分函数  $\chi_q(\varepsilon)$  :

$$\chi_q(\varepsilon) = \sum_{ij} P_{ij}^q(\varepsilon) \propto \varepsilon^{\tau(q)} \quad q \in (-\infty, +\infty) \quad (2)$$

式中  $\chi_q(\varepsilon)$  为概率测度为  $P_{ij}(\varepsilon)$  的  $q$  阶矩,它是对各个小盒子的概率测度加权求和,  $q$  为权重因子,可以从  $-\infty$  到  $+\infty$  范围内取值,但在实际中总是取有限值范围。当  $q > 1$  时,表示大的概率测度  $P_{ij}(\varepsilon)$  对配分函数  $\chi_q(\varepsilon)$  的贡献占优势;当  $q < -1$  时,表示小的概率测度  $P_{ij}(\varepsilon)$  对配分函数  $\chi_q(\varepsilon)$  的贡献占优势。

因此,配分函数  $\chi_q(\varepsilon)$  给出了概率测度  $P_{ij}(\varepsilon)$  的另一种分布形式<sup>[7]</sup>。所以,加权处理把一个分形分成许多具有不同奇异程度的区域来研究,多重分形

正是这样的一个由有限几种或大量具有分形行为的子集叠加而形成的非均匀分维分布的奇异集合。因此多重分形的概念是原始分形概念对于非均匀分形的自然推广,能够分层次地了解分形内部的精细结构。其中在无标度区域内  $\tau(q)$  为质量指数,它是权重因子  $q$  的函数,同时是关于  $q$  严格单调递增的函数。此时质量指数  $\tau(q)$  可以表示为:

$$\tau(q) = \frac{\ln(\chi_q(\varepsilon))}{\ln(\varepsilon)} \quad \text{和} \quad \alpha(q) = \frac{d\tau(q)}{dq} \quad (3)$$

式(3)表示对于确定的  $q$ ,  $\tau(q)$  描述的是  $\ln(\chi_q(\varepsilon))$  与  $\ln(\varepsilon)$  是否具有近似的线性关系。要得到准确的多重分形谱,首先就需要考察配分函数  $\chi_q(\varepsilon)$  的标度不变性,即对数-对数图中配分函数和测量尺度之间的线性关系。如果  $\ln(\chi_q(\varepsilon))$  与  $\ln(\varepsilon)$  的关系近似为线性关系,则满足分形的无标度性(也称无标度域),否则不能用多重分形模型来表示,其中  $\alpha(q)$  定义为奇异性指数。

现在将描述同一物理对象的几个标度指数之间的内在联系进行统计物理中的Legendre变换<sup>[8]</sup>,就可以由式(1)~(3)得到分形维数  $f(\alpha)$  与  $\alpha$  之间的关系式:

$$f(\alpha) = a(q)q - \tau(q) \quad (4)$$

式中  $f(\alpha)$  为多重分形维数的谱函数,它给出了比简单分维更丰富的结构信息。多重分形谱宽度  $\Delta\alpha = \alpha_{\max} - \alpha_{\min}$  的大小反映了整个分形结构上概率测度分布的不均匀性的程度。 $\Delta\alpha$  越大,概率测度分布越不均匀。

## 2 半连续Ag薄膜显微图像多重分形谱计算与分析

### 2.1 半连续Ag薄膜显微图像的获取与定性分析

用直流溅射法制备了厚度分别为1.5、6、12、67、98、190 nm的半连续Ag膜,厚度由溅射时间控制,并由椭圆仪测试计算。基片为覆碳Formvar膜铜网,基片温度为室温,Ag靶材的纯度为99.999%,本底真空度为  $5 \times 10^{-3} \sim 6 \times 10^{-3}$  Pa,氩气分压为3 Pa,溅射电压为DC 550V,溅射电流为0.15 A,溅射功率为16 W/cm<sup>2</sup>。用JEM-100 SX型透射电镜(TEM)可观察半连续Ag膜的形貌<sup>[9]</sup>。

TEM观察半连续Ag膜的形貌如图1所示,形貌图中的暗区代表Ag覆盖区域,亮区代表未被Ag覆盖的区域。从图(1)可知,在厚度很薄的Ag膜中,Ag小岛的分布具有随机性。随着厚度增加,小岛长大,分布密度增大,由分离的小岛逐渐向联并、网络状态过渡,小岛分布的这种随机性无法预测。由于多

重分形谱在描述随机分布的物理参量方面已有很好的表现, 所以用多重分形谱来定量分析显微图像中Ag颗粒的分布均匀性。

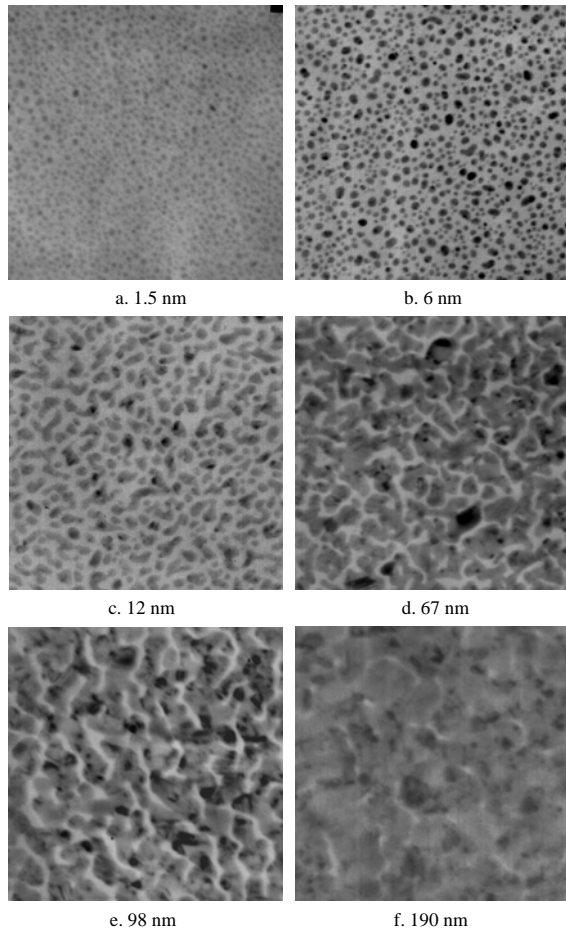


图1 不同厚度的半连续Ag纳米薄膜的TEM显微图像

2.2 薄膜显微图像的多重分形谱分析<sup>[10-11]</sup>

图(2)是对应图(1)的半连续Ag薄膜中不同厚度的显微图像多重分形谱。表1给出了多重分形谱中的 $\alpha_{\min}$ 、 $\alpha_{\max}$ 、 $\Delta\alpha$ 、 $f(\alpha_{\min})$ 、 $f(\alpha_{\max})$ 、 $\Delta f$ 等参数。

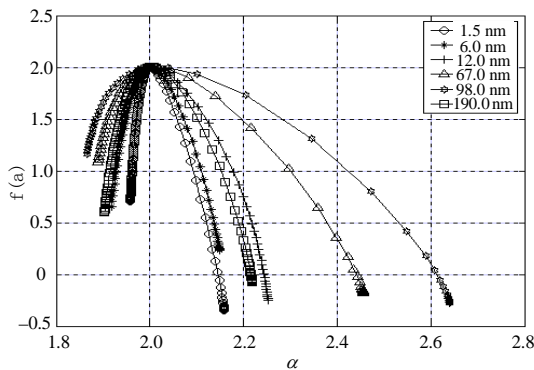


图2 不同厚度的半连续Ag薄膜显微图像的多重分形谱

由式(1)可知,  $\alpha_{\min}$  越小, 表示最大的分布概率

$P_{ij}(\varepsilon)$  就越大;  $\alpha_{\max}$  越大, 表示最小的分布概率  $P_{ij}(\varepsilon)$  就越小。即不同厚度的薄膜中Ag的概率分布均匀性程度可以用  $\Delta\alpha = \alpha_{\max} - \alpha_{\min}$  来表示。  $\Delta\alpha$  越大表示薄膜中Ag的分布就越不均匀;  $\Delta\alpha$  越小表示薄膜中Ag的分布越均匀; 当  $\Delta\alpha = 0$  时则表示薄膜中Ag的分布是完全均匀的。由图(2)可以看出, 多重分形谱的  $\Delta\alpha$  随着半连续Ag薄膜厚度的增加而增加, 说明薄膜中Ag的厚度较小时, 薄膜中Ag主要以小岛形式的颗粒状均匀存在; 当厚度增加时, 薄膜中Ag开始由分离的颗粒状实现联结, 出现网状结构, 但不是均匀联结, 表现出随机、部分联结与分布, 从而表现不均匀性; 但当薄膜中Ag的厚度再增加时, 薄膜中Ag的颗粒会长大, 分布密度增加, 联结得就越均匀, 从而表现出相当的均匀性。在多重分形谱图中可以看出厚度为67 nm和98 nm的薄膜中Ag的分布处于最不均匀状态; 当薄膜中Ag的厚度超过某临界值时, 薄膜中Ag的分布又趋于均匀, 如多重分形谱图中厚度为190 nm的薄膜中Ag的分布比较均匀。

表1 不同厚度半连续Ag膜多重分形谱的主要参数

薄膜厚度/nm	$\alpha_{\min}$	$\alpha_{\max}$	$\Delta\alpha$	$f(\alpha_{\min})$	$f(\alpha_{\max})$	$\Delta f$
1.5	1.958 4	2.158 7	0.200 4	0.706 5	-0.346 1	1.052 6
6.0	1.917 8	2.148 5	0.230 6	0.651 4	0.230 8	0.420 6
12.0	1.922 3	2.252 5	0.330 2	0.938 9	-0.252 0	1.190 9
67.0	1.889 4	2.455 7	0.566 3	1.079 2	-0.175 9	1.255 1
98.0	1.865 4	2.640 2	0.774 8	1.159 8	-0.276 6	1.436 4
190.0	1.903 3	2.218 2	0.314 9	0.597 9	-0.070 8	0.668 7

由图(2)和表1可以看出, 除了多重分形谱的奇异性指数  $\alpha$  的宽度  $\Delta\alpha$  不同以外, 多重分形谱的形状也不尽相同。虽然分形谱均表现为钩状, 但多重分形谱的  $f(\alpha_{\min})$ 、 $f(\alpha_{\max})$ 、 $\Delta f$  均存在差异, 表现出不同的物理意义。  $f(\alpha_{\min})$  描述最大概率元素含量多少;  $f(\alpha_{\max})$  描述最小概率元素含量多少; 而  $\Delta f = f(\alpha_{\min}) - f(\alpha_{\max})$ , 对应最大概率元素含量与最小概率元素含量的比值, 反映的是薄膜中Ag颗粒的分布取决于Ag颗粒的疏密程度。薄膜多重分形谱呈向左的钩状, 此时  $f(\alpha_{\min}) > f(\alpha_{\max})$ , 表示描述大概率元素数目较之描述小概率分布的元素数目要大;  $\Delta f > 0$ , 说明薄膜中颗粒的尺寸分布是由体积最大的Ag颗粒为主导分布, 即分布密度加大, 出现Ag颗粒的联网分布。同时可以看出薄膜中不同厚度薄膜的多重分形谱函数  $f(\alpha)$  曲线的左半部  $q > 0$  的部分  $f(\alpha_{\min})$  的大小并不完全相等, 说明在薄膜的不同厚度金属Ag颗粒的分布存在差异。薄膜的多重分形谱函数  $f(\alpha)$  曲线的右半部  $q < 0$  的部分差别较大, 说

明不同厚度Ag膜图像中含有Ag颗粒堆积的情况,  $\varepsilon$  下降时  $P_{ij}(\varepsilon)$  减小的程度不同, 从而引起  $f(\alpha)$  曲线的右半部差异较大, 同时说明薄膜中金属Ag颗粒并没有完全分布均匀, 不同厚度薄膜中的小颗粒分布存在差异。

由以上的分析, 可以对不同厚度薄膜中Ag颗粒含量的纳米材料的均匀性程度以及尺寸分布情况进行定量的表征, 实现随机过程的定量分析与测定。

### 3 结论

通过对半连续Ag纳米颗粒薄膜中不同厚度的显微图像研究发现, 多重分形谱可以用来定量描述不同厚度Ag纳米薄膜中Ag金属颗粒的随机分布特性, 可以通过分形谱了解分形结构的内部精细结构和生长过程。当Ag膜厚度较小或较大时, 均表现为一定程度的均匀性; 而Ag膜厚度在一范围时, 表现出较强的不均匀性, 表现为由颗粒状向泡沫状到网状分布的变化趋势。通过对显微图像的多重分形分析, 定量表征复合金属陶瓷纳米颗粒薄膜的微结构在不同工艺条件下的形成机理, 结合相应微结构的复合金属陶瓷纳米颗粒薄膜的物理性能的研究, 建立复合金属陶瓷纳米颗粒薄膜微结构与物理性能之间的对应关系, 从而为复合金属陶瓷纳米颗粒薄膜的设计、微相结构的控制以及制备条件等提供重要的理论依据。

### 参 考 文 献

- [1] DAVID A L, HAMLIN M J, SSURENDRA P S. Relationship between fracture surface roughness and fracture behavior of cement paste and mortar[J]. J Am Ceram Soc, 1993, 76 (3): 589-597.
- [2] MANDELBROT B B. The fractal geometry of nature[M]. San Francisco: Free man W. H, New York, 1982: 18-47.
- [3] FALCONER K J. Fractal geometry mathematical foundations and application[M]. John Wiley and Sons, 1990: 42-54.
- [4] BROWN G, MICHON G, PEYRIERE J. On the multifractal analysis of measures[J]. Journal of Stat Phys., 1992, 66(3):775 ~ 790.
- [5] FICKER T. Normalized multifractal spectra within the box-counting method[J]. Czech. J. Phys., 2000, 50: 389- 403.
- [6] FICKER T. Electron avalanches. II. Fractal morphology of partial microdischarge spots on dielectric barriers[J]. IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, 2003, 10(4): 700-707.
- [7] 李 平, 胡可乐, 汪秉宏. 多重分形谱在材料分析中的应用研究[J]. 南京航空航天大学学报, 2004, 36(1): 77-81.
- [8] 孙 霞, 熊 刚, 傅竹西. ZnO薄膜原子力显微镜图像的多重分形谱[J]. 物理学报, 1999, 49(5): 854-862.
- [9] 蔡 琪, 王 磊, 王佩红, 等. Au-MgF<sub>2</sub>复合纳米颗粒薄膜的制备和微结构[J]. 真空科学与技术学报, 2004, 24(3): 169-172.
- [10] 谢淑云, 鲍征宇. 多重分形方法在金属成矿潜力评价中的应用[J]. 成都理工大学学报, 2004, 31(1): 28-33.
- [11] 于会生, 孙 霞, 罗守福. 非晶Ni-Cu-P合金化学沉积过程的多重分形谱研究[J]. 物理学报, 2002, 51(5): 999-1003.

编 辑 张 俊