

Сверточные нейронные сети для предсказания морфологических и нелинейно-оптических свойств тонких пленок квазидвумерных материалов

А. А. Попкова¹⁾, А. А. Федянин¹⁾

Физический факультет, МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 10 августа 2023 г.

После переработки 24 августа 2023 г.

Принята к публикации 26 августа 2023 г.

Двумерные материалы являются перспективными кандидатами для создания планарных фотонных устройств. Основной проблемой использования таких материалов для прикладных применений является сложность создания пленок заданных геометрических параметров. Так, пленки двумерных материалов, изготовленные методами отщепления или химического осаждения, обычно распределяются случайным образом по большой площади и имеют большой разброс толщин. В данной работе мы используем сверточные нейронные сети для предсказания толщины пленки квазидвумерного материала на основе данных оптической микроскопии. В качестве тестового материала был выбран гексагональный нитрид бора, активно использующийся при создании плоских электронных и оптоэлектронных устройств. Благодаря высокому пространственному разрешению микроскопии удается добиться большой точности в предсказании толщин ровных областей образца, что позволяет проводить быструю характеризацию структур. Кроме того, на примере сигнала третьей оптической гармоники, мы показываем возможность предсказания величины нелинейно-оптического отклика пленки, что расширяет область применимости метода.

DOI: 10.31857/S1234567823190072, EDN: xrdazh

1. Введение. Графен, дихалькогениды переходных металлов и гексагональный нитрид бора (ГНБ) – наиболее известные представители семейства двумерных материалов, привлекающие к себе большое внимание благодаря уникальным электронным и оптическим свойствам [1]. Перестраиваемая ширина запрещенной зоны [2], сверхбыстрая динамика носителей [3, 4], яркая фотолюминесценция [5], оптическая анизотропия [6] и насыщаемое поглощение [7], присущие двумерным материалам, являются перспективными свойствами для использования в прикладных устройствах фотоники и оптоэлектроники. На фоне активного развития устройств графеновой электроники [8], все большую популярность приобретает ГНБ. В то время, как большинство двумерных материалов являются металлами или полупроводниками, ГНБ – диэлектрик с шириной запрещенной зоны порядка 6 эВ [9], обладающий гладкой незаряженной поверхностью, что позволяет использовать его в качестве подложек и диэлектрических слоев композитных двумерных устройств [10]. Одной из основных проблем в изготовлении сложных многослойных структур на основе двумерных материалов является создание пленок заданной толщины в диапазоне

от единиц до сотен нанометров. Изготовление двумерных пленок чаще всего производится химическими методами, которые не обеспечивают прецизионного контроля толщины и качества пленки, или механическим отщеплением, в результате которого фрагменты пленок с различным количеством слоев оказываются случайным образом разбросаны по поверхности приемной подложки [11]. В последнем случае, невозможность изготовления пленок заданных параметров частично может быть скомпенсирована точным определением толщин изготовленных образцов. Существующие методы атомно-силовой микроскопии, комбинационного рассеяния света и фотолюминесцентной спектроскопии позволяют точно определить толщины пленок, однако они малоэффективны при работе с большими областями, так как требуют много времени для поиска и идентификации отдельной структуры [12]. Одним из выходов из сложившейся ситуации является совместное применение методов оптической микроскопии и искусственных нейронных сетей (ИНС), которые показали значительные преимущества в задачах компьютерного зрения, таких как сегментация изображений и классификация объектов [13, 14]. В последние годы была показана перспективность использования ИНС для анализа экспериментальных данных и ди-

¹⁾e-mail: popkova@nanolab.phys.msu.ru

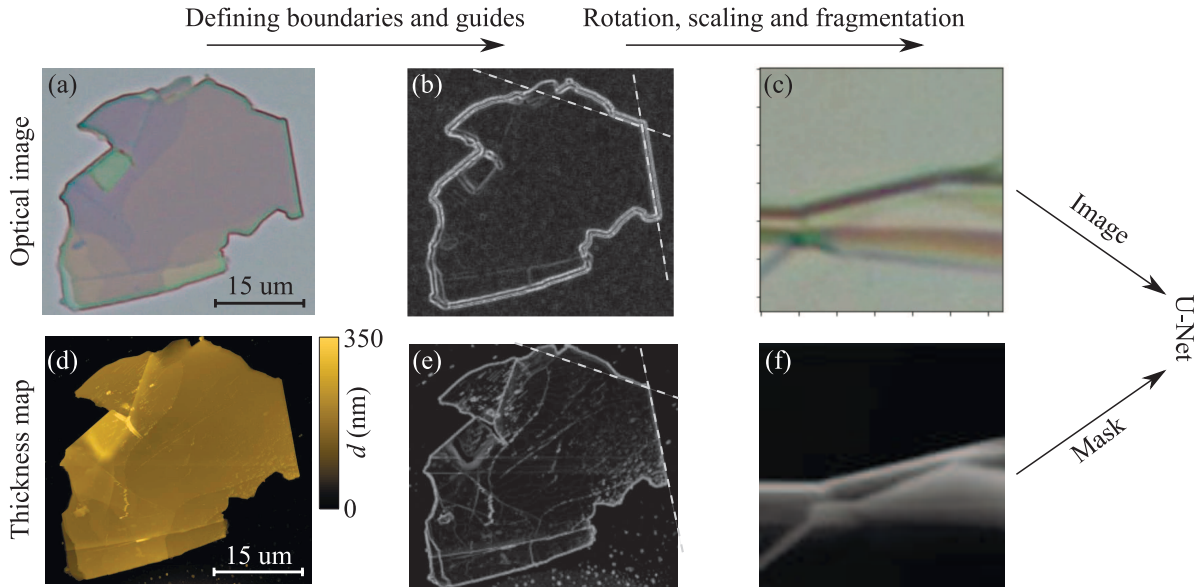


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема сборки датасета для обучения нейронной сети. Верхняя строка – оптические изображения флейков ГНБ: (а) – оригинальное изображение флейка ГНБ; (б) – карта границ флейка (белые кривые) и вычисленных направляющих (пунктирные линии); (с) – полученный после фрагментации элемент датасета. Нижняя строка – карты толщин, полученные методом атомно-силовой микроскопии: (д) – карта АСМ флейка ГНБ; (е) – карта границ флейка (белые кривые) и вычисленных направляющих (пунктирные линии); (ф) – полученная после фрагментации маска, соответствующая элементу (с)

зайна структур под требуемые свойства [15–18], а также физическая реализация ИНС на базе оптических структур [19, 20]. В ряде работ была показана возможность определения толщин тонких пленок двумерных материалов по измеренным гиперспектральным изображениям образца с использованием сверхточных нейронных сетей [21, 22]. Однако измерение гиперспектральных изображений требует применения сложного оборудования, которое зачастую не позволяет достичь высокого пространственного разрешения.

В данной работе, при помощи сверхточной нейронной сети архитектуры U-Net [23] показана возможность предсказания толщин пленок гексагонального нитрида бора по данным оптических изображений образца, что не только делает процесс характеристики быстрым и доступным, но и позволяет достичь высокого пространственного разрешения. Дополнительным преимуществом метода является возможность его использования для предсказания не только морфологических, но и оптических свойств образца, в том числе нелинейно-оптических, которые активно применяются для неинвазивной характеристики наноструктур [24]. Данный подход показан на примере сигнала третьей оптической гармоники и демонстрирует высокую точность предсказания.

2. Предсказание толщины пленок нитрида бора. Обучение нейросети производилось на оптических изображениях фрагментов тонких пленок (флейков) гексагонального нитрида бора, изготовленных стандартным методом механического отщепления с последующим переносом при помощи полиметилметакрилата (PMMA) на приемную подложку из плавленого кварца. В результате такого метода по поверхности подложки оказываются хаотически расположены флейки ГНБ различных толщин, латеральные размеры которых составляют десятки микронетров. Изображения образцов были получены при помощи оптического микроскопа Olympus BX53 в схеме освещения на просвет и на отражение. В качестве детектора использовалась цветная КМОП-камера, позволяющая получать RGB-изображения высокого разрешения разрядностью 8 бит. Пример изображения флейка с областями разных толщин показан на рис. 1а. Видно, что при освещении флейка белым светом части образца, имеющие различные толщины, оказываются окрашены в разные цвета, что обусловлено эффектом интерференции света в тонких пленках. Толщины флейков определялись при помощи атомно-силового микроскопа NT-MDT NTEGRA, работающего в полуконтактном режиме. Характерная толщина кантилевера, определяющая

точность сканирования, составляла примерно 10 нм. Карта толщин образца, соответствующая оптическому изображению флейка, показана на рис. 1d. Толщины всех исследованных образцов оказались лежащими в пределах от 2 до 180 нм, за исключением небольшой высокой области флейка, представленной на рис. 1, толщина которой составляет порядка 350 нм. Данная область была исключена из дальнейшей работы, так как выборка не имеет других элементов сходной толщины, в связи с чем искомое значение следует считать выбросом. Гистограмма распределения толщин пленок по структурам представлена на рис. 2. Наблюдаемое распределение не соответствует нормальному, однако достаточно полно охватывает исследуемый диапазон.

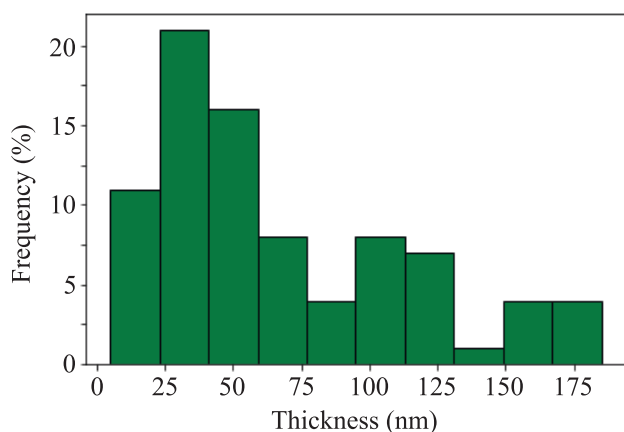


Рис. 2. (Цветной онлайн) Гистограмма распределения толщин образцов ГНБ по датасету

В качестве датасета для обучения нейронной сети был выбран вариант, состоящий из пары картинок типа изображение-маска. В качестве масок для обучения ИНС использовались карты толщин. Для сопоставления пар изображений между собой границы флейков находились при помощи градиентного метода, после чего определялись положения и углы поворота направляющих осей, относительно которых выполнялось масштабирование и поворот изображений (рис. 1b). Изображения масок подвергались дополнительному сглаживанию и выравниванию для компенсации дефектов, обусловленных методом измерения толщинных карт. Так как набор экспериментальных образцов ограничен и составляет около 80 штук, то для обучения ИНС требуется расширение датасета. Для этого был выбран метод фрагментирования при помощи квадратной сетки, в котором количество элементов датасета увеличивается при помощи разбиения имеющихся изображений

на более мелкие части с возможностью применения к ним дополнительной аугментации (случайного поворота или случайного вращения) (рис. 1c). Для выделения только целевых изображений был использован бинарный классификатор для масок, который на основании среднего значения пикселя на маске определял присутствие на нем флейка. Изображения со средним значением менее 1 нм, т.е. содержащие только подложку, отбрасывались. Размер элемента датасета подбирался для оптимальной скорости работы сети и составил 128 пикселей для предсказания толщины образца и 32 пикселя для предсказания нелинейно-оптического отклика. Итоговый размер датасета для предсказания толщины образца составил порядка 10^4 элементов. Так как интенсивность 8-битного RGB-изображения лежит в диапазоне от 0 до 255, то для удобства обучения изображения были масштабированы с использованием `min-max` нормализации так, чтобы целевой диапазон сигнала лежал в пределах от 0 до 1. Итоговый датасет был разделен на три части: тренировочную (train), тестовую (test) и валидационную (validate) – в отношении 70:20:10.

Для предсказания толщин пленок была построена, обучена и протестирована сверточная ИНС типа U-Net [22], решающая задачу попиксельного предсказания маски образца. Варьируемыми параметрами сети служили количество слоев сети, размер используемого ядра свертки и количество данных, подаваемое на вход (размер батча). ИНС моделировалась в программной среде Python с использованием пакетов PyTorch, Numpy и Matplotlib. В качестве функции потерь использовалось попиксельное среднеквадратичное отклонение (MSE) значений толщин предсказанной карты от маски. Для оценки точности предсказания использовалась средняя по изображениям батча доля пикселей, для которой отклонение толщины между предсказанной и заданной составляла не более 2 нм:

$$Q = \frac{1}{N} \sum_i i \Big|_{|d_t - d_{pr}| < 2}, \quad (1)$$

где N – общее количество пикселей изображения, d_t и d_{pr} – заданное и предсказанное значение толщины пикселя соответственно. Значение отклонения в 2 нм было взято как максимальное значение флуктуаций толщины, получаемое при определении толщины маски методом атомно-силовой микроскопии. Для оценки способности сети обобщать независимый набор данных использовался подход кросс-валидации, поочередной исключаяющей одну из подвыборок. Типичный вид кривой обучения сети, а также зависи-

мость точности предсказания от номера эпохи (итерации обучения на полном датасете) для ИНС с 10 слоями, использующей ядра свертки размером 3×3 , показаны на рис. 3а. Монотонная спадающая кри-

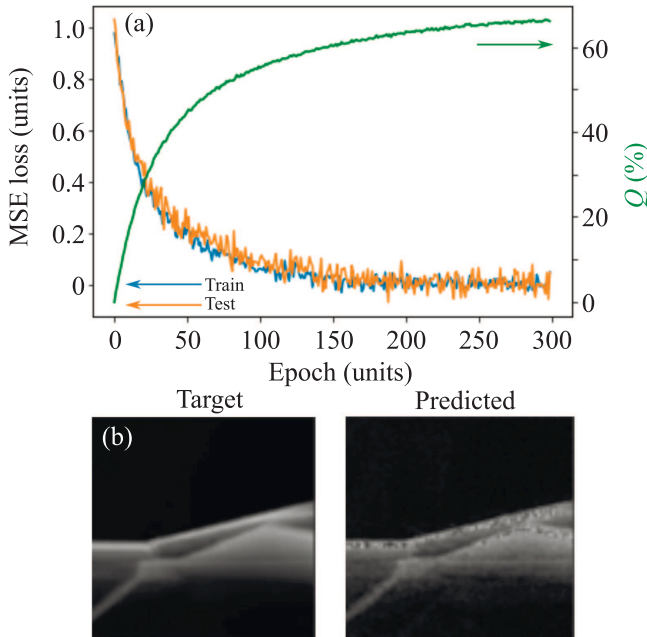


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Зависимость функции потерь для обучающего (синяя кривая) и тестового (оранжевая кривая) наборов и качества предсказания (зеленая кривая) от номера эпохи. (б) – Изображение заданной маски для элемента датасета (слева) и результат соответствующего предсказания ИНС (справа)

вая функции потерь, постепенно выходящая в насыщение, и соответствующая ей кривая увеличения точности предсказания толщины по мере обучения сети свидетельствует о хорошей способности к обучению модели. Максимально достигнутые значения точности предсказания сетей различных конфигураций приведены в табл. 1. Наибольшей точности предсказания в 88 % удалось достичь для ИНС, состоящей из 16 слоев и использующей ядра свертки размером 5×5 . Типичный вид заданной и предсказанной карты толщин для данного случая показан на рис. 3б. Анализ вида толщинных карт позволяет сделать вывод, что наибольший вклад в функцию ошибок вносят элементы датасета, обладающие существенными перегибами. Исключение из датасета элементов, содержащих перепады высот более чем на 15 нм, позволило повысить точность предсказаний ИНС до 95 %. Сравнение полученной точности на всем датасете и датасете, не содержащем перегибов, демонстрирует повышение точности предсказа-

ний для всех конфигураций ИНС, что подтверждает влияние качества изображений датасета. Отдельное внимание заслуживает тот факт, что для оптимального датасета оказывается достаточно эффективными конфигурации сети, состоящие из слоев с ядрами свертки размерами 1×1 , что демонстрирует возможность упрощения применяемой архитектуры.

Таблица 1. Сводная таблица качества предсказаний Q (в процентах) толщин образца ИНС для различных ее конфигураций на всем датасете и датасете, не содержащем элементов с существенными перегибами

Количество слоев/ размер ядра свертки	Весь датасет	Датасет без перегибов
10 / (1×1)	65	91
10 / (3×3)	68	92
16 / (1×1)	85	94
16 / (3×3)	83	95
16 / (5×5)	88	95

3. Предсказание нелинейно-оптического сигнала от пленок нитрида бора. Второй частью работы являлось предсказание нелинейно-оптического отклика (НЛО) пленок ГНБ по оптическим изображениям. В качестве нелинейно-оптического отклика был выбран сигнал третьей оптической гармоники, генерируемый образцом. В качестве масок в данном случае использовались карты распределения мощности третьей оптической гармоники по поверхности образца, полученные при помощи сканирования флейков сфокусированным пучком фемтосекундного титан-сапфирового лазера [25]. Величина фокусной перетяжки составляла 2 мкм, шаг смещения образца, определяющий разрешение итогового изображения, – 0.3 мкм. Для сборки датасета разрешение карт повышалось при помощи взятия взвешенного среднего от имеющихся элементов, а разрешение оптических изображений понижалось при помощи взятия среднего от соседних пикселей (AveragePool). В итоге был собран датасет, состоящий из пар “изображение-маска” с пространственным размером элемента 32 пикселя. Пример маски датасета показан на рис. 4а. Видно, что на элементе присутствуют перегибы, нелинейный отклик от которых существенно превышает среднее значение по образцу. Данный эффект обусловлен возникновением стрессовых напряжений, приводящих к деформации кристаллической решетки материала и локальному усилению эффективности нелинейно-оптических эффектов [26].

На данном датасете было проведено обучение ИНС, аналогичных тем, что использовались для

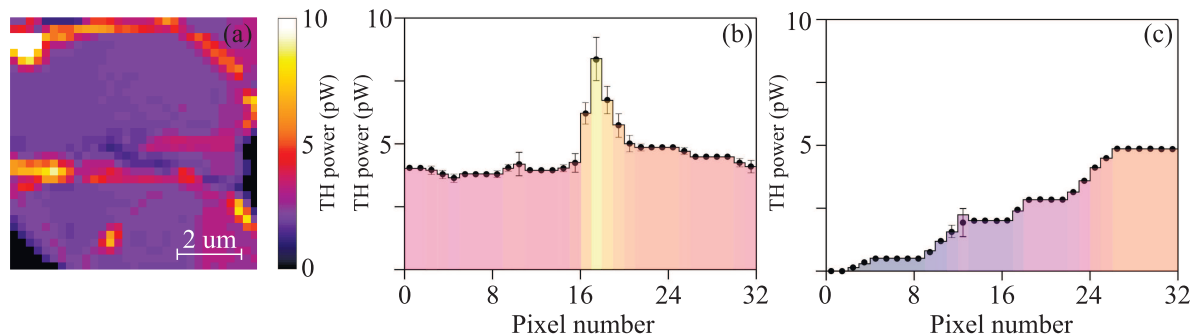


Рис. 4. (Цветной онлайн) (а) – Элемент датасета для предсказания величины сигнала ТГ (ненормированный). (b) и (с) – Зависимость мощности ТГ от номера пикселя для среза двух элементов датасета, содержащих (b) и не содержащих (с) существенных перегибов. Линиями показаны экспериментальные данные, точками – результаты предсказания сети, усредненные по 10 попыткам

предсказания толщин образцов. В качестве меры точности предсказания использовалась доля пикселей, для которых заданная и предсказанная мощности отличаются не более чем на 0.5 пВт. Полученные точности предсказания приведены в табл. 2 (колонка “НЛО”) и оказываются ниже, чем аналогичные значения для задачи предсказания толщин. Чтобы проанализировать полученные результаты, были построены зависимости распределения мощности ТГ от номера пикселя в срезе элемента датасета. Для элемента датасета, имеющего перепад толщины в 25 нм (рис. 4b) основная погрешность в предсказании нелинейного отклика наблюдается в области перепада высот. Погрешность в предсказании сигнала с ровного участка образца при этом пренебрежима мала. Для элемента, имеющего ступенчатую структуру с монотонным изменением толщины (рис. 4c) точность предсказания отклика оказывается существенно выше, что обусловлено отсутствием в датасете элементов, вносящих значительную погрешность.

Таблица 2. Сводная таблица качества предсказаний Q (в процентах) ИНС для задачи определения толщины (столбец “толщина”) и нелинейного отклика (столбец “НЛО”) образца

Количество слоев/ размер ядра свертки	Толщина	НЛО
10 / (1×1)	65	56
10 / (3×3)	68	64
16 / (1×1)	85	72
16 / (3×3)	83	75
16 / (5×5)	88	78

Стоит отметить, что полученные точности, вероятно, могут быть увеличены дальнейшей оптимизацией параметров используемой ИНС, однако даже имеющиеся на данный момент значения обладают достаточной точностью для практических применений.

4. Заключение. Таким образом, показана возможность предсказания морфологических и нелинейно-оптических характеристик тонких пленок гексагонального нитрида бора при помощи сверточных нейронных сетей архитектуры U-Net. Максимальная достигнутая точность предсказания толщины образца для экспериментального датасета составила 88 %. Показано, что полученное значение может быть улучшено до 95 % при помощи очистки датасета от элементов, содержащих значительный перепад толщины, которые являются также неактуальными для практических применений. Кроме того, продемонстрирована возможность предсказания нелинейно-оптического отклика образца, в частности интенсивности сигнала третьей оптической гармоники, с точностью до 78 %. Более низкая точность предсказания интенсивности третьей оптической гармоники по сравнению с толщиной обусловлена меньшим размером датасета, а также имеющейся неоднозначностью в зависимости сигнала нелинейного отклика от толщины образца [25].

Полученные результаты показывают перспективность использования сверточных нейронных сетей для быстрой оптической и нелинейно-оптической характеристики образцов квазидвумерных материалов, что необходимо как для фундаментальных научных задач, так и для практического использования таких структур при создании более сложных электронных и оптоэлектронных приборов.

Авторы выражают благодарность И. М. Антропову и В. О. Бессонову за помощь в проведении измерений и полезные дискуссии.

Работа выполнена при поддержке некоммерческого Фонда развития науки и образования “Интеллект” и Фонда развития теоретической физики и математики “Базис” (грант # 19-2-6-28-1).

Код работы и примеры используемого датасета доступны по ссылке https://github.com/AnyPopkova/JETP_2D.git.

1. F. Xia, H. Wang, D. Xiao, M. Dubey, and A. Ramasubramaniam, *Nat. Photonics* **8**(12), 899 (2014).
2. S. Susarla, A. Kutana, J.A. Hachtel, V. Kochat, A. Apte, R. Vajtai, J.C. Idrobo, B.I. Yakobson, C.S. Tiwary, and P.M. Ajayan, *Adv. Mater.* **29**, 1702457 (2017).
3. J.M. Dawlaty, S. Shivaraman, M. Chandrashekar, F. Rana, M.G. Spencer, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 042116 (2008).
4. А. А. Попкова, А. А. Чезежгов, М. Г. Рыбин, I. V. Soboleva, E. D. Obraztsova, V. O. Bessonov, and А. А. Федянин, *Adv. Opt. Mater.* **10**(4), 2101937 (2022).
5. Y. Chen, J. Xi, D. O. Dumcenco, Z. Liu, K. Suenaga, D. Wang, Z. Shuai, Y.-S. Huang, and L. Xie, *ACS Nano* **7**, 4610 (2013).
6. Л. В. Котова, Л. А. Алтынбаев, М. О. Жукова, Б. Т. Хоган, А. Балдычева, М. А. Калитеевский, В. П. Кочерешко, *Известия РАН. Серия физическая* **86**(7), 976 (2022).
7. C. Ma, C. Wang, B. Gao, J. Adams, G. Wu, and H. Zhang, *Appl. Phys. Rev.* **6**, 041304 (2019).
8. Y. Wu, D. B. Farmer, F. Xia, and P. Avouris, *Proc. IEEE* **101**(7), 1620 (2013).
9. G. Cassabois, P. Valvin, and B. Gil, *Nat. Photonics* **10**, 262 (2016).
10. Е. Н. Опарин, М. О. Жукова, В. Г. Булгакова, С. А. Позднякова, А. Н. Цыпкин, *Фотоника* **14**(3), 264 (2020).
11. R. Frisenda, E. Navarro-Moratalla, P. Gant, D. P. De Lara, P. Jarillo-Herrero, R. V. Gorbachev, and A. Castellanos-Gomez, *Chem. Soc. Rev.* **47**, 53 (2018).
12. A. Crovetto, P.R. Whelan, R. Wang, M. Galbiati, S. Hofmann, and L. Camilli, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **10**, 25804 (2018).
13. E. Moen, D. Bannon, T. Kudo, W. Graf, M. Covert, and D. van Valen, *Nat. Methods* **16**, 1233 (2019).
14. A. Garcia-Garcia, S. Orts-Escolano, S. Oprea, V. Villena-Martinez, P. Martinez-Gonzalez, and J.A. Garcia-Rodriguez, *Appl. Soft Comput.* **70**, 41 (2018).
15. К. Р. Сафронов, В. О. Бессонов, А. А. Федянин, *Письма в ЖЭТФ* **114**(6), 360 (2021).
16. X. Han, Z. Fan, Z. Liu, C. Li, and L. J. Guo, *InfoMat* **3**(4), 432 (2021).
17. S. An, C. Fowler, B. Zheng, M. Y. Shalaginov, H. Tang, H. Li, L. Zhou, J. Ding, A. M. Agarwal, C. Rivero-Baleine, K. A. Richardson, T. Gu, J. Hu, and H. Zhang, *ACS Photonics* **6**(12), 3196 (2019).
18. Р. Ш. Минязев, А. А. Румянцев, С. А. Дыганов, А. А. Баев, *Известия РАН. Серия физическая* **82**(12), 1685 (2018).
19. А. И. Мусорин, А. С. Шорохов, А. А. Чезежгов, Т. Г. Балуйян, К. Р. Сафронов, А. В. Четвертухин, А. А. Грунин, А. А. Федянин, *УФН* **66** (2023); <https://doi.org/10.3367/UFNr.2023.07.039505>.
20. T. Yan, J. Wu, T. Zhou, H. Xie, F. Xu, J. Fan, L. Fang, X. Lin, and Q. Dai, *Phys. Rev. Lett.* **123**(2), 023901 (2019).
21. Y. Saito, K. Shin, K. Terayama, S. Desai, and M. Onga, Y. Nakagawa, Y. M. Itahashi, Y. Iwasa, M. Yamada, and K. Tsuda, *npj Comput. Mater.* **5**, 1 (2019).
22. X. Dong, H. Li, Z. Jiang, T. Grünleitner, I. Güler, J. Dong, and A. W. Koch, *ACS Nano* **15**(2), 3139 (2021).
23. O. Ronneberger, P. Fischer, and T. Brox, *U-net: Convolutional networks for biomedical image segmentation*, in *Medical Image Computing and Computer-Assisted Intervention—MICCAI 2015: 18th International Conference*, Munich, Germany, Proceedings, Springer International Publishing (2015), part III 18, p. 234.
24. М. Ю. Еремчев, *Письма в ЖЭТФ* **118**(4), 282 (2023).
25. А. А. Попкова, I. M. Antropov, J. E. Froch, S. Kim, I. Aharonovich, V. O. Bessonov, A. S. Solntsev, AND А. А. Федянин, *ACS Photonics* **8**(3), 824 (2021).
26. X. S. Kong, X. Y. Wu, L. Geng, and W. D. Yu, *Front. Phys.* **10**, 1032671 (2022).