Комплексный метод исследования корреляционных параметров самоорганизованных структур

© А.В. Алпатов, С.П. Вихров, Н.В. Вишняков, С.М. Мурсалов, Н.Б. Рыбин, Н.В. Рыбина

Рязанский государственный радиотехнический университет, 390005 Рязань, Россия

E-mail: pgnv@mail.ru

(Получена 6 апреля 2015 г. Принята к печати 6 апреля 2015 г.)

Исследованы корреляционные параметры самоорганизованных структур с использованием комплексного подхода — метода двухмерного флуктуационного анализа с исключенным трендом совместно с методом средней взаимной информации. В качестве самоорганизованных структур использованы модельные поверхности различной степени упорядоченности (упорядоченные, неупорядоченные, смешанные), а также пленки аморфного гидрогенизированного кремния и аморфного тетраздрического углерода. На тестовых структурах было продемонстрировано, что корреляционные векторы, определенные по перегибам на зависимости флуктуационной функции от масштаба методом двухмерного флуктуационного анализа с исключенным трендом, достаточно точно совпадают с заданными периодами гармонических составляющих поверхности. Метод средней взаимной информации целесообразнее использовать для неупорядоченных структур. Выявлено, что физический смысл максимальной взаимной информации заключается в том, что она характеризует информационную емкость системы. Применение комплексного метода позволяет наиболее всесторонне исследовать корреляционные параметры смешанных структур.

1. Введение

Одним из направлений наноэлектроники являются самоорганизованные структуры на основе полупроводниковых, органических и других соединений [1,2]. Успешное развитие технологии самоорганизованных структур неразрывно связано с методами исследования корреляционных свойств наноструктур и наноматериалов.

В работах [3,4] был предложен метод двухмерного флуктуационного анализа с исключенным трендом (two-dimensional detrended fluctuation analysis, далее 2D DFA) применительно к исследованию корреляционных параметров самоорганизованных структур. Метод 2D DFA был апробирован на тестовых структурах и экспериментальных образцах, продемонстрирована его работоспособность.

В работе [5] было предложено исследовать процессы самоорганизации структурообразования материалов по оценке степени упорядоченности структуры поверхности (метод средней взаимной информации — СВИ). Этот метод позволяет определить хаотическую, слабоорганизованную или упорядоченную структуру материала в зависимости от величины взаимной информации, но не позволяет численно определить модуль вектора корреляций. Для определения численного значения вектора корреляций более информативен метод 2D DFA.

Поскольку существуют структуры различной степени упорядоченности, необходимо знать, какой метод целесообразнее применять для тех или иных структур. Это позволит более детально изучить процессы самоорганизации структурообразования, что необходимо для решения обратной задачи — создания наноструктур и наноматериалов с заданными свойствами.

Цель данной работы заключалась в исследовании самоорганизованных структур с использованием ком-

плексного подхода — метода 2D DFA совместно с методом СВИ. Для этого был создан ряд модельных структур различной степени самоорганизации, для которых определялись корреляционные параметры. Также проведена апробация методов на экспериментальных полупроводниковых образцах — аморфном гидрогенизированном кремнии (*a*-Si:H) и аморфном тетраэдрическом углероде (t*a*-C).

2. Критерии выбора тестовых структур. Описание модельных поверхностей

Все поверхности можно условно разбить на 3 группы: упорядоченные, хаотические и смешанного типа. Таким образом, для создания базы данных корреляционных параметров необходимо синтезировать тестовые структуры трех типов, для которых определить параметры, характеризующие процессы самоорганизации структурообразования (корреляционный вектор, скейлинговый показатель, СВИ, максимальная взаимная информация (МВИ)). Метод 2D DFA позволяет определить корреляционный вектор, показывающий периодичность в структуре, и скейлинговый показатель, отражающий тип структуры. СВИ показывает предсказуемость того, насколько точно совпадают параметры точек массива данных (например, высоты шероховатостей поверхностей) при определенном векторе сканирования, а МВИ фактически показывает информационную емкость системы.

Объектом изучения была выбрана структура (шероховатость) поверхности, которую достаточно легко на наноуровне определять экспериментально с высокой достоверностью с помощью, например, растровой электронной микроскопии или атомно-силовой микроскопии.



Рис. 1. Примеры модельных поверхностей.

Критерием выбора тестовых структур являлось наличие различной степени их организации. Для упорядоченных структур характерно периодическое расположение каких-либо особенностей рельефа. В качестве упорядоченных структур выбраны поверхности типа "Кубы", "Конусы" и синусоидальные поверхности. Поверхности "Кубы" представляют собой упорядоченные фигуры в форме кубов на гладкой поверхности с различным периодом. Данная поверхность характеризуется резким спаданием высоты от максимума до нуля (ступенчатая функция). Поверхности "Конусы" представляют собой упорядоченные фигуры в форме конусов на гладкой поверхности с разными периодами. В данном случае рельеф высот меняется по линейному закону (линейно-ступенчатая функция). Для синусоидальных поверхностей характерен нелинейный закон изменения рельефа высот (синусоидальная функция). В качестве неупорядоченных структур были выбраны поверхности с шумовой составляющей (гауссов шум, белый шум). Поверхность смешанного типа представляла собой наложение синусоидальной составляющей и гауссова шума. В данном случае синусоидальная составляющая выбиралась исходя из плавного изменения рельефа высот. Примеры поверхностей показаны на рис. 1. Зададим физический размер поверхностей 1 × 1 мкм при размере в пикселях 512 × 512. Максимальная высота выступов выбрана равной 7 нм.

Таким образом, модельные структуры представляли собой массив данных, по которому происходила обработка с помощью комплексного метода исследования самоорганизованных структур. Метод 2D DFA позволяет находить корреляции в структуре поверхности, выявлять период гармонических составляющих (корреляционный вектор) в структуре. Сначала исходный массив данных разбивается на сегменты различного масштаба и на каждом исследуются флуктуации. В результате получается график зависимости флуктуационной функции *F* от масштаба *s*. Тангенс угла наклона флуктуационной функции является скейлинговым показателем [3].

Суть метода СВИ заключается в том, что для каждой пары точек высот производится расчет взаимной информации (в основе лежит теория информации). Взаимная информация определяется как количество информации, которое становится известным о значении случайной функции в точке *A*, когда становится известным ее значение в точке *B*. Диапазон допустимых значений взаимной информации от 0 до 1, размерность информации — биты. Иными словами, значения взаимной информации меняются от нуля до максимальной средней энтропии полного хаоса. Соответственно, чем более упорядоченная структура, тем больше значение CBИ [5].

3. Нормировка и кластеризация взаимной информации

При исследовании реальных материалов и структур число возможных значений высоты точек поверхности и число состояний системы могут быть очень велики, а следовательно, и энтропия, и информация системы могут стремиться к бесконечности. Для того чтобы изучать эти объекты методами теории информации, производится квантование системы, т.е. сведение области значений некоторых величин к конечному множеству.

Например, если высота точек профиля поверхности, полученных сканирующим микроскопом, находится в диапазоне [A; B], то можем разбить его, например, на

2⁸ = 256 интервалов, а высоту в каждой точке округлить до середины интервала.

После такой процедуры квантования энтропия и информация становятся конечными измеримыми величинами. Максимальная энтропия системы из одной точки равна логарифму от числа состояний, в данном случае 8 бит, этому же равна взаимная информация в случае, когда до измерения величина была полностью не определена, а после — определена однозначно.

Выбранная дискретность квантования является компромиссом между огрублением результата, вызванным малым числом уровней, и сложностью вычислений. В методе СВИ было показано, что дискретизация значений, по числу уровней сравнимая с дискретизацией линейных координат, является достаточной, и дальнейшее их увеличение не приводит к существенному изменению результатов.

Для устранения произвольности этого выбора все величины, имеющие размерность информации, нормируются по максимальной энтропии системы и для одной точки в данном случае делятся на 8. После нормализации значение энтропии системы обретает физический смысл и изменяется от нуля (состояние известно) до единицы (состояние полного хаоса с равновероятными состояниями). Взаимная информация также изменяется от нуля (известность одной величины ничего не сообщает о значении другой) до единицы (значение было полностью неопределенным, а теперь точно известно).

Чем хороша и чем плоха такая нормировка? Для реальных систем такой выбор нормировки удачен. Высоты точек профиля принимают все возможные промежуточные значения, и даже, если эти значения не равновероятны, это не приводит к существенному уменьшению энтропии, поэтому наличие корреляции в образцах надежно выявляется, как было показано в работах ранее [5,6].

Иная ситуация для искусственных модельных поверхностей. Рассмотрим двумерную поверхность из $N \times N$ прямоугольных столбиков. Заметим, что высоты принимают всего 2 возможных значения из 256, вероятности которых относятся как 1:3. Тогда средняя энтропия такой системы E_m для скважности 2 определяется:

$$E_m = -\frac{\sum_{N^2} p(x) \cdot \log_2(p(x))}{N^2}$$

= $-\frac{1}{4} (-2) - \frac{3}{4} (\log_2(3) - 2) \approx 0.81,$

где p(x) — вероятность наличия одной из высот в точке x.

Полученное значение энтропии существенно меньше энтропии полного хаоса, которая равна 8. Поэтому максимальная взаимная информация в такой системе при данной нормировке хаосом не может превышать 0.1. При скважности, равной 4, взаимная информация еще ниже, не более 0.04. Физический смысл этого эффекта в том, что величина взаимной информации — это не степень упорядоченности системы, а оценка той ее части, которая обусловлена корреляцией значений высот профиля в разных точках. Поэтому если система и так существенно определена, то информация, полученная от известных значений в других точках, не велика.

Тем не менее максимум СВИ, который получаем в тестах на фазовом пространстве трансляционных векторов, сохраняет свою интерпретацию, но оценивать его сравнением с единицей некорректно. В этой связи можно нормировать информацию не средней энтропией хаоса, а средней энтропией той поверхности, которую обрабатываем.

Средняя взаимная информация, подсчитанная для всех пар точек образца, численно равна полной энтропии со знаком плюс, поэтому, нормируя СВИ энтропией образца, явно определяем единицу как абсолютное среднее.

Вероятно, при такой нормировке можно использовать какие-то абсолютные критерии для оценки наличия, например, корреляции по трансляционному вектору. Это требует дополнительных исследований.

Далее рассмотрим, какой еще может быть кластеризация взаимной информации. Средняя взаимная информации для трансляционного вектора определена как усредненная сумма взаимной информации всех пар точек, составляющих на области образца данный трансляционный вектор. Это можно интерпретировать иначе: трансляционный вектор порождает кластер из пар точек образца, и на этих кластерах определяем интеграл СВИ. Само множество кластеров образует фазовое пространство, в данном случае двумерное.

Наличие экстремумов на кластерном фазовом пространстве можно интерпретировать как наличие на образце каких-либо структур дальнодействия, переноса информации и т.п.

Другая, уже исследованная нами кластеризация по расстоянию между точками. Кластер в этом случае образует множество пар точек, находящихся на одном и том же расстоянии друг от друга. Фазовое пространство в этом случае линейно.

Для определения наличия в образце линейных структур кластерами можно считать множество точек, находящихся на одной прямой. Для каждого такого кластера отдельно считается СВИ. Фазовое пространство в этом случае двумерно. Такая кластеризация сможет выявлять различные линейно-протяженные структуры, в том числе волны и решетки.

В реальных образцах часто наблюдаются кольцевые структуры. Для идентификации таких структур кластерами следует считать множество точек, находящихся на произвольной окружности. Фазовое пространство трехмерно и отображать его сложно, но можно, например, усреднять СВИ на кластерах по всем окружностям одного радиуса, получая одномерное фазовое пространство, выявляя распределение СВИ по радиусам кольцевых структур.

N⁰	Описание	МВИ	СВИ	α	<i>d</i> , нм
	Уп	орядоченные повер	охности		
		І. Синусоидальн	ые поверхности		
1	Период <i>T</i> = 333 нм	0.727	0.126	2; 0	332
2	Период $T/2 = 167$ нм	0.731	0.127	2; 0	168
3	Период $T/4 = 84$ нм	0.730	0.129	2; 0	83
4	Период $T/8 = 42$ нм	0.718	0.123	2; 0	41
5	Периоды $T/2 + T/4$	0.672	0.079	2; 0.7; 0	170; 84
6	Периоды $T + T/8$	0.651	0.070	2; 0.6; 0	333; 41
		II. Поверхное	сти "Конусы"		
7	Период 104 нм	0.243	0.020	1.75; 0	111
8	Период 78 нм	0.355	0.035	1.75; 0	84
9	Период 62 нм	0.553	0.058	1.63; 0.13	59
10	Период 48 нм	0.640	0.066	1.63; 0.10	53
	·	III. Поверхн	ости "Кубы"		
11	Период 115 нм	0.101	0.004	1.64; 0	106
12	Период 80 нм	0.167	0.008	1.75; 0	78
13	Период 58 нм	0.278	0.014	1.9; 0	59
14	Период 35 нм	0.484	0.019	1.84; 0.4	32
	x	аотические поверх	ности		
15	"Гауссов шум"	0.542	0.002	0.5	_
16	"Белый шум"	0.752	0.001	0.5	-
	Пов	верхность смешанн	ого типа		•
17	"Гауссов шум + синусоида" с периодом <i>T</i> /2	0.542	0.009	1.1; 0.1	195

Таблица 1. Параметры тестовых структур, определенных с помощью СВИ и 2D DFA

4. Экспериментальные результаты и их обсуждение

В табл. 1 приведены результаты расчета средней и максимальной взаимной информации, скейлингового показателя α и корреляционного вектора d для тестовых структур.

Сначала проведем анализ результатов, полученных методом 2D DFA. При исследовании методом 2D DFA тестовых структур с одной гармонической составляющей на зависимости флуктуационной функции от масштаба должен наблюдаться один перегиб, значение тангенса угла наклона (скейлингового показателя) до перегиба должно быть равным 2, после перегиба — 0. Если в структуре поверхности содержится несколько гармонических составляющих, то количество перегибов на графике 2D DFA должно соответствовать количеству этих составляющих. Результаты исследования синусоидальных модельных поверхностей методом 2D DFA полностью это подтверждают. При уменьшении периода синусоиды уменьшается вектор корреляций [3,4].

Для второй группы поверхностей ("Конусы") на графике флуктуационной функции от масштаба также наблюдался один перегиб, что указывает на присут-

ствие гармонической составляющей в структуре. Таким образом, методом 2D DFA было выявлено, что исследованная структура "Конусы" упорядоченная. При уменьшении периода вектор корреляций уменьшался.

Аналогичные результаты были получены методом 2D DFA для модельных поверхностей "Кубы".

Для хаотических поверхностей "гауссов шум" и "белый шум" на зависимости флуктуационной функции от масштаба перегибов не наблюдалось, величина скейлингового показателя составила 0.5. При наложении синусоидальной составляющей и "гауссова шума" метод 2D DFA выявил наличие перегиба, подтверждающего существование гармонической составляющей в структуре. Значение тангенса угла наклона (скейлинговый показатель), равное 1.1 до перегиба и 0.1 после перегиба, соответствует наличию шумовой составляющей.

Как видно из таблицы, полученные по перегибу значения корреляционных векторов достаточно хорошо совпадают с размерами периодов на модельных поверхностях. Наиболее точные величины корреляционных векторов получены для синусоидальных модельных поверхностей. Для других профилей (поверхности "Конусы" и "Кубы") появляется небольшая погрешность в величине вектора корреляций. При наложении синусоиды и "гауссова



Рис. 2. Средняя взаимная информация в фазовом пространстве по ненаправленному вектору для поверхностей "Кубы" для периодов, нм: *a* — 115, *b* — 80, *c* — 58, *d* — 35.

шума" погрешность еще несколько выше (величина корреляционного вектора получилась равной 195 нм при исходном периоде синусоиды 167 нм), поскольку перегиб на зависимости флуктуационной функции был размыт. Таким образом, метод 2D DFA позволяет выявлять гармонические составляющие в структуре, определять конкретные значения корреляционного вектора. Далее рассмотрим результаты, полученные с помощью метода СВИ.

Самая большая величина МВИ, равная 0.752, получена для "белого шума". "Белый шум" — это пример полностью хаотической системы, т.е. где отсутствуют корреляции между точками этой системы. Следовательно, энтропия такой системы максимальна. Поскольку энтропия, согласно формуле Шеннона, прямо пропорциональна натуральному логарифму от информации, то МВИ (фактически информационная емкость системы) стремится к максимуму.

Для синусоидальных модельных поверхностей значения МВИ получились несколько меньше, чем для "белого шума". При этом значения СВИ были максимальными по сравнению со всеми тестовыми поверхностями.

Для поверхности "гауссов шум" МВИ равна 0.542, что соответствует слабоорганизованной структуре. На самом деле, исходя из принципов построения, структура хаотическая. В данном случае это подтверждает значение СВИ. Точно такой же результат МВИ (0.542) получен для поверхности "гауссов шум+синусоида", а значение СВИ также попадает в категорию хаотических структур. Для группы поверхностей "Кубы" значения МВИ получились самыми низкими. На самом деле эти структуры упорядоченные, с определенным периодом. Упорядоченность структуры в этом случае может быть определена при рассмотрении значений взаимной информации и наличия пиков распределения СВИ в фазовом пространстве. Из рис. 2 видно, что в распределении СВИ для всех четырех поверхностей наблюдаются ярко выраженные пики. Такие характерные особенности говорят о присутствии дальнодействующих корреляций в структуре, что в свою очередь может свидетельствовать о наличии порядка в структуре, являться результатом процессов самоорганизации.

Анализ пространственного распределения СВИ для поверхностей "Конусы" показал аналогичные с поверхностями "Кубы" результаты. На поле СВИ также наблюдались ярко выраженные пики, поэтому поверхность "Конусы" представляет собой упорядоченную структуру.

5. Примеры исследования корреляционных параметров структуры полупроводниковых материалов с помощью комплексного метода

Структура полупроводниковых материалов очень разнообразна и поэтому корреляционные параметры структуры поверхности представляют интерес для исследования. Изучаемые в данной работе модельные поверхности имеют аналоги в полупроводниковых материалах. В предыдущих работах [3-7] с помощью методов 2D DFA и СВИ в основном исследовались неупорядоченные полупроводники. Неупорядоченные полупроводники формируются в неравновесных условиях с нарушением симметрии, в термодинамически открытой нелинейной системе, что в будущем позволит создавать на их основе самоорганизующиеся системы. Примером могут служить пленки a-Si:Н и ta-C (рис. 3). Данные образцы были получены методом импульсного лазерного напыления. Пленка a-Si: Н осаждалась на подложку из ситалла в течение 7 мин при частоте повторения импульсов лазера 10 Гц, плотности энергии лазерного излучения 11.8 Дж/см² и температуре подложки 200°С. Пленка ta-С осаждалась на подложку кремния [100], легированную фосфором, в течение 36 мин 40 с при частоте повторения импульсов лазера 10 Гц, плотности энергии лазерного излучения 14.4 Дж/см² при комнатной температуре подложки.

Визуально изображения экспериментальных образцов, полученные с помощью атомно-силовой микроскопии, показывают наличие конусообразных и синусоидальных структур с шумовой составляющей на поверхности.

В табл. 2 представлены полученные с помощью методов 2D DFA и CBИ параметры экспериментальных образцов. Совместное применение методов 2D DFA и CBИ показало, что исследованные образцы *a*-Si:H и *ta*-C обладают корреляционным вектором, а по значению CBИ принадлежат к структурам хаотического типа. Значение MBИ для пленки *a*-Si:H получилось достаточно низким. Если сравнивать их с значениями MBИ, пред-



Рис. 3. Изображения, полученные с помощью атомно-силовой микроскопии, поверхности пленок *a*-Si: H и *ta*-C.

Таблица 2. Параметры поверхности экспериментальных образцов, определенных с помощью СВИ и 2D DFA

Образец	МВИ	СВИ	<i>d</i> , нм
a-Si:H	0.146	0.017	234
ta-C	0.447	0.010	490

ставленными в табл. 1, то это близко к поверхностям "Конусы" с высокой скважностью конусообразных структур. Таким образом, образец *a*-Si:H, исследованный в данной работе, принадлежит к структурам с низкой информационной емкостью поверхности. Значение МВИ для пленки *ta*-C получилось значительно выше, что близко к модельной поверхности "Конусы" и смешанной поверхности "синусоида+шум". Пленка *ta*-C обладает высокой информационной емкостью поверхности.

Следует отметить, что комплексный метод исследования корреляционных параметров самоорганизованных структур, основанный на методах 2D DFA и CBИ, информативен не только для неупорядоченных материалов. Среди кристаллических полупроводников существует также множество интересных объектов для изучения, например, текстурированный кристаллический кремний с пирамидальными структурами на поверхности, применяющийся в настоящее время в солнечных элементах.

6. Заключение

В работе показано, что наиболее информативным для структур, содержащих гармоническую составляющую, является метод 2D DFA. Если исследуются хаотические структуры, то достаточно использовать метод СВИ, поскольку он позволит оценить степень неупорядоченности. Также далеко не всегда подходит применение в вычислениях максимальной взаимной информации. Как было выявлено, если поверхность представляет собой структуру, где нельзя выделить точки максимума (минимума), то сравнивать МВИ с единицей некорректно. Некорректно также производить оценку свойств структуры по значению МВИ для хаотических поверхностей, где отсутствует определенный вектор корреляций; в таких случаях целесообразнее применять среднюю взаимную информацию. Если же исследуются сложные самоорганизованные поверхности с неизвестной структурой, где могут присутствовать как гармонические, так и хаотические составляющие, то наиболее эффективно будет совместное применение методов 2D DFA и СВИ.

На тестовых структурах было продемонстрировано, что метод 2D DFA позволяет достаточно точно определять период гармонических составляющих по перегибам на зависимости флуктуационной функции от масштаба. В методе СВИ было выявлено, что физический смысл максимальной взаимной информации заключается в том, что она характеризует информационную емкость системы: чем выше МВИ, тем выше информационная емкость. Применение комплекса методов 2D DFA и CBИ позволяет наиболее всесторонне исследовать корреляционные параметры структуры материалов. Эти знания дают возможность управлять информационной емкостью и степенью упорядоченности самоорганизованных структур при их создании. В свою очередь это позволит синтезировать сложные структуры с заданными свойствами.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки РФ, с использованием оборудования Регионального центра зондовой микроскопии коллективного пользования (РЗЦМкп) при Рязанском государственном радиотехническом университете.

Список литературы

- [1] А.А. Щука. *Наноэлектроника* (М., Физматкнига, 2007) с. 464.
- [2] В.А. Карасев, В.В. Лучинин. Введение в конструирование бионических наносистем (М., Физматлит, 2011) с. 463.
- [3] А.В. Алпатов, С.П. Вихров, Н.В. Гришанкина. ФТП, 47 (3), 340 (2013).
- [4] А.В. Алпатов, С.П. Вихров, Н.В. Гришанкина, С.М. Мурсалов. Вест. РГРТУ, 4 (42), ч. 2, 12 (2012).
- [5] С.П. Вихров, Т.Г. Авачева, Н.В. Бодягин, Н.В. Гришанкина, А.П. Авачев. ФТП, 46 (4), 433 (2012).
- [6] Т.Г. Авачева, Н.В. Бодягин, С.П. Вихров, С.М. Мурсалов. ФТП, 42 (5), 513 (2008).
- [7] А.В. Алпатов, С.П. Вихров, Н.В. Рыбина. ФТП, 49 (4), 467 (2015).

Редактор А.Н. Смиронов

Complex method used to study the correlation parameters of self-organized structures

A.V. Alpatov, S.P. Vikhrov, N.V. Vishnyakov, S.M. Mursalov, N.B. Rybin, N.V. Rybina

Ryazan State Radio Engineering University, 390005 Ryazan, Russia

Abstract Correlation parameters of self-organized structures were investigated by the complex approach — the detrended fluctuation analysis in combination with the method of average mutual information. As the self-organized structures model surfaces with different degree of ordering (ordered, disordered, and combined) and also amorphous hydrogenated silicon and amorphous tetrahedral carbon films were used. On the test structures, it was demonstrated that the correlation vectors determined from the bends of the fluctuation function dependence on the scale by two-dimensional detrended fluctuation analysis sufficiently coincide with the given periods of the harmonic components of the surface. The method of average mutual information should be used for disordered structures. It's elicited that the physical sense of maximum mutual information is that it characterizes the informative capacity of the system. Application of the complex method allows most comprehensively investigating the correlation parameters of combined structures.