

ROZSZERZONY ABSTRAKT

Niniejsza rozprawa doktorska, zatytułowana „Przewidywanie i analiza właściwości cieplnych i elektrycznych materiałów z wykorzystaniem zaawansowanych modeli uczenia maszynowego”, opracowuje ramy korekcyjne i predykcyjne dla charakteryzacji przewodnictwa cieplnego (TC) oraz przewodnictwa elektrycznego (EC) w cienkich warstwach, wykorzystując połączenie metodologii eksperymentalnej, modelowania opartego na prawach fizyki oraz zaawansowanego uczenia maszynowego (ML). Praca podzielona jest na dwie główne części. Pierwsza dotyczy wyznaczania TC metodą skaningowej mikroskopii termicznej (SThM) i koncentruje się na redukcji artefaktów wywołanych chropowatością poprzez integrację równoczesnego mapowania termiczno-topograficznego, strategii normalizacji oraz regresji ML. Druga dotyczy wyznaczania EC metodą czteropunktową (4PP) i skupia się na ograniczaniu zniekształceń wynikających z geometrii próbki przy użyciu symulacji metody elementów skończonych (FEM) oraz podejścia korekcyjnego ML opartego wyłącznie na danych eksperymentalnych.

Rozprawą kierują dwie główne hipotezy. Pierwsza hipoteza zakłada, że integracja mapowania termicznego SThM z szczegółową analizą topografii powierzchni, wraz z modelami ML trenowanymi na fizycznie znaczących deskryptorach, może przewyżżyć wrodzone ograniczenia analizy SThM i zapewnić dokładne oraz powtarzalne oszacowania TC cienkich warstw. Druga hipoteza zakłada, że zarówno FEM, jak i ML mogą generować efektywne współczynniki korekcyjne dla pomiarów przewodnictwa metodą 4PP poprzez kompensację zniekształceń geometrycznych, takich jak efekty brzegowe oraz wrażliwość na położenie sond. Oczekuje się, że FEM zapewni wysokiej wierności korekty oparte na modelu fizycznym, natomiast ML ma stanowić skalowalną alternatywę niewymagającą symulacji, zdolną do osiągnięcia porównywalnej dokładności przy treningu na reprezentatywnych danych eksperymentalnych.

1. Przewodnictwo cieplne: motywacja, ograniczenia istniejących metod i wyzwanie SThM

Przewodnictwo cieplne κ jest jedną z najbardziej fundamentalnych właściwości termofizycznych, opisującą efektywność transportu ciepła w materiale w warunkach gradientu temperatury. W urządzeniach o skali submikronowej pomiary TC są silnie zależne od topografii powierzchni.

Charakteryzacja TC jest zazwyczaj prowadzona metodami optycznymi pump-probe, takimi jak TDTR (Time-Domain Thermoreflectance) oraz FDTR (Frequency-Domain Thermoreflectance). Metody te oferują dokładną, bezkontaktową charakteryzację, pozwalają badać układy warstwowe oraz ukryte interfejsy i zostały szeroko zwalidowane w literaturze. W TDTR ciepło deponowane jest w cienkiej metalicznej warstwie transduktora, a odpowiedź chłodzenia monitorowana jest poprzez zmiany reflektancji. TC wyznacza się poprzez dopasowanie mierzonych czasowo krzywych chłodzenia do teoretycznych modeli dyfuzji, zwykle interpretowanych przez sygnały in-phase/out-of-phase detekowane metodą lock-in. Mimo wysokiej dokładności i uniwersalności, TDTR/FDTR cierpią na ograniczenia rozdzielczości przestrzennej wynikające z granicy dyfrakcyjnej światła, co ogranicza mapowanie przewodnictwa do skali mikronowej. W

rezultacie TDTR/FDTR nie są w stanie wiarygodnie uchwycić submikronowych zmian przestrzennych TC na powierzchniach próbek.

W przeciwieństwie do tego, SThM zapewnia submikronową rozdzielczość boczną poprzez połączenie skanowania AFM z sondą termiczną. SThM umożliwia jednocześnie pozyskiwanie topografii oraz sygnałów termicznych, co stanowi silną przewagę w lokalnej charakterystyce cieplnej układów złożonych.

Jednak ilościowe wyznaczanie TC z wykorzystaniem SThM pozostaje trudne. Mierzona odpowiedź termiczna jest silnie zależna od warunków oddziaływania sonda-próbka, w tym chropowatości powierzchni oraz zmienności kontaktu mechanicznego. Nawet niewielkie submikronowe zmiany topografii mogą zaburzać kontakt końcówki z próbką, zniekształcać ścieżki strumienia ciepła i generować artefakty termiczne. Asperyty powierzchniowe zmniejszają rzeczywistą powierzchnię kontaktu, tworząc lokalne szczeliny powietrzne zwiększające opór kontaktu termicznego (TCR) i modyfikujące efektywny opór termiczny „widziany” przez sondę. W rezultacie mapy termiczne SThM często stanowią złożoną konwolucję intrinsic TC, efektów kontaktowych zależnych od topografii oraz wkładu podłoża (szczególnie w cienkich warstwach o grubości poniżej 100 nm). Modele kontaktu mechanicznego, takie jak teoria DMT, mimo że fundamentalne, napotykają ograniczenia przy zastosowaniu do nieregularnych morfologii i asymetrycznych geometrii kontaktu typowych dla rzeczywistych powierzchni cienkich warstw.

W rozprawie wskazano, że kluczową przeszkodą jest brak wiarygodnej i skalowalnej metody korekcji, zdolnej rozdzielić intrinsic TC od artefaktów pomiarowych wywołanych topografią. Dlatego część termiczna niniejszej rozprawy została zaprojektowana w celu opracowania zintegrowanej metodologii łączącej mapowanie termiczne SThM, skorelowaną charakterystykę topograficzną, strategię normalizacji oraz regresję ML.

2. Metodologia termiczna: normalizacja, topografia i ML

2.1. Normalizacja względem kwarcu i definicja Γ_i

Jednym z centralnych elementów metodologicznych rozprawy jest implementacja procedury normalizacji odniesionej do kwarcu w celu ograniczenia zmienności zależnej od sondy oraz zwiększenia porównywalności pomiędzy próbkami. Jako materiał referencyjny wybrano amorficzny kwarc ze względu na jego stabilność termiczną i izotropowe właściwości przewodzenia ciepła, co umożliwia wiarygodną kalibrację bazową. Sygnał SThM jest przetwarzany poprzez porównanie różnicy pomiędzy dynamiczną i statyczną rezystancją elektryczną sondy mierzoną na próbce oraz na kwarcowej referencji w odpowiadających sobie współrzędnych przestrzennych. Daje to bezwymiarowy znormalizowany stosunek sygnału termicznego:

$$\Gamma_i = \frac{R_d^{Si} - R_s^{Si}}{R_d^{n_i} - R_s^{n_i}}.$$

Znormalizowany stosunek eliminuje wpływy specyficzne dla sondy i aparatury oraz opisuje efektywną interakcję termiczną sonda–próbka względem stabilnej referencji. R_d oraz R_s są odpowiednio dynamiczną i statyczną rezystancją elektryczną sondy. Γ_i jest parametrem o jednoznacznym znaczeniu fizycznym. W rozprawie potwierdzono to ilościowo analizą korelacji: surowa różnica rezystancji wykazuje znikome znaczenie predykcyjne, natomiast znormalizowane Γ_i staje się najsilniejszym czynnikiem wpływającym na predykcję TC.

2.2. Strategia mapowania wieloskalowego i struktura zbioru danych

Ramy eksperymentalne wykorzystują wieloskalową metodologię mapowania przestrzennego. Obszar $2 \times 2 \mu\text{m}^2$ każdej próbki jest dzielony na mikro-siatkę 16×16 (256 komórek). Podejście siatkowe zapewnia odporność przestrzenną na anomalie lokalne oraz generuje zbiór danych odpowiedni do treningu ML. W obrębie tego regionu analizuje się lokalne okna submikronowe o rozmiarze $375 \times 375 \text{ nm}^2$, dzielone następnie na siatki submikronowe 3×3 . Metodologia została zaprojektowana w celu utworzenia przestrzennie skorelowanego zbioru danych łączącego lokalną odpowiedź termiczną z odpowiadającą jej lokalną topografią. Mapy trace i retrace są rejestrowane i uśredniane w celu redukcji szumu oraz zwiększenia wiarygodności.

Rozprawa podkreśla, że celem nie jest wyłącznie mapowanie kontrastu termicznego, lecz generacja numerycznego zbioru danych, który tłumaczy rzeczywistą topografię powierzchni na ilościowe deskryptory możliwe do użycia jako wejścia ML. Takie podejście przekształca ograniczenie metrologiczne w ustrukturyzowany problem danych.

2.3. Deskryptory topografii w skali mikro i submikronowej

Ramy uwzględniają deskryptory topograficzne w skali mikro oparte o statystyczną metrologię powierzchni, głównie chropowatość RMS R_{rms}^S oraz skośność powierzchni R_{sk}^S . Chropowatość RMS odzwierciedla amplitudę nieregularności powierzchni i wpływa na efektywne pole kontaktu. Skośność opisuje asymetrię rozkładu wysokości i pozwala rozróżniać powierzchnie zdominowane przez piki oraz zdominowane przez doliny, które narzucają różne ograniczenia transportu cieplnego.

W skali submikronowej z lokalnych siatek 3×3 wyznaczane są deskryptory takie jak nachylenie powierzchni M^{Si} , zmienność peak-to-valley μ^{Si} oraz lokalna zmienność rozkładu wysokości. Deskryptory te wprost reprezentują lokalne efekty geometryczne,

które silnie wpływają na mechanikę kontaktu końcówki z próbką. W rozprawie parametry submikronowe wskazano jako kluczowe dla wyjaśnienia zmienności obserwowanej w mierzonej odpowiedzi rezystancji termicznej.

2.4. Współczynnik podłoże–grubość C

Kluczową innowacją rozprawy jest opracowanie czynnika podłoże–grubość C jako wejścia ML pozwalającego odróżniać zachowanie objętościowe od zachowania cienkowarstwowego oraz uwzględnić wpływ podłoża. Rozróżnienie to jest krytyczne, ponieważ cienkie warstwy wykazują zasadniczo odmienne reżimy transportu cieplnego, a wkład podłoża dominuje szczególnie poniżej progu grubości porównywalnego ze skalą oddziaływania SThM (~ 100 nm). Rozprawa definiuje C jako funkcję przedziałową:

$$C = \begin{cases} \left(\frac{b-d}{b}\right) \frac{\kappa_{sub}}{\kappa^n}, & d < b \\ 0, & d \geq b \end{cases}$$

gdzie d jest grubością warstwy, b grubością progową, κ_{sub} to TC podłoża, a κ^n to TC kwarcu użytego do normalizacji. Ta postać matematyczna koduje przejście od transportu zdominowanego przez układ warstwowy (podłoże) do transportu typu bulk.

3. Definicja celu ML dla przewodności cieplnej i znaczenie cech

Zamiast przewidywać TC bezpośrednio jako pojedynczą wartość z pomiarów lokalnych (co może być niestabilne wskutek zmienności kontaktu), rozprawa definiuje ciągłą zmienną celu:

$$\chi = \frac{\kappa^S}{\sigma^{S_i}}.$$

Tutaj $\sigma^{(S_i)}$ jest odchyleniem standardowym wysokości powierzchni w obrębie lokalnej komórki submikronowej. Wybór ten przekształca problem predykcji TC w zadanie regresji ciągłej o lepszej zdolności uogólniania, umożliwiając modelowi interpolację pomiędzy wartościami oraz uczenie się znaczących zależności z wielowymiarowych cech.

Selekcji cech dokonano przy użyciu współczynnika korelacji rang Spearmana. Rozprawa wykazuje, że Γ_i charakteryzuje się najsilniejszą odwrotną korelacją z χ ($r_s = -0.726$), co potwierdza, że znormalizowana interakcja termiczna jest dominującym predyktorem. Deskryptory topografii submikronowej, takie jak μ^{S_i} (-0.609) oraz M^{S_i} (-0.572), również wykazują silne relacje ujemne, co wzmacnia wniosek rozprawy, że efekty chropowatości nie są drugorzędnymi zakłóceniami, lecz dominującymi źródłami zniekształceń pomiarowych. Czynniki C również wykazuje istotną ujemną zależność (-0.518). Natomiast różnica fazowa $\Delta\phi_i$ wykazuje znikomą korelację (-0.022), a zatem wnosi niewielki wkład do zdolności predykcyjnej w analizowanych warunkach.

Ta ilościowa analiza istotności cech wspiera kluczową tezę rozprawy, że TC nie może być wiarygodnie wyznaczana bez jawnego uwzględnienia morfologii powierzchni oraz reżimu transportu zależnego od podłoża.

4. Rozwój modelu ML dla TC i wyniki

W analizie wykorzystano zbiór danych obejmujący 3,332 pomiary termiczne, w tym 2,352 pomiary do budowy modelu i walidacji krzyżowej oraz 980 pomiarów do niezależnej walidacji. Zestaw danych obejmuje wyżarzane cienkie warstwy ITO osadzone na podłożach szklanych oraz cienkie warstwy ZnO osadzone na podłożach krzemowych, a

także materiały objętościowe referencyjne obejmujące szeroki zakres TC od 0.17 do $450 \text{ W m}^{-1}\text{K}^{-1}$. Pomiary termiczne realizowano z użyciem AFM-based SThM (Park Systems XE-70) z kalibrowanymi prądami sondy oraz wzmacniaczem lock-in w celu zapewnienia stabilności sygnału. Omówiono dwa typy sond w celu wzmocnienia powtarzalności, a wszystkie eksperymenty przeprowadzono w komorze tłumiącej drgania w temperaturze 25°C .

Rozprawa porównuje modele Random Forest regression oraz Gradient Boosting regression. Strojenie hiperparametrów wykonano poprzez rozbudowany grid search połączony z walidacją krzyżową, co doprowadziło do oceny 279 różnych modeli. Podejście Random Forest konsekwentnie przewyższa Gradient Boosting pod względem dokładności predykcyjnej i uogólnienia, dlatego najlepszy model Random Forest został wybrany jako Model 'a'. Raportowane właściwości predykcyjne Modelu 'a' wskazują na wysoką wiarygodność, charakteryzującą się wysokim R^2 i niskim RMSE. Model końcowy, wytrenowany na połączonych danych z walidacji krzyżowej, został zwalidowany na niezależnym zbiorze testowym 980 nieobserwowanych wcześniej pomiarów, potwierdzając zdolność uogólniania.

Na podstawie przewidzianego χ wyznaczano wartości TC i porównywano je z wartościami referencyjnymi dla 17 materiałów (cienkich warstw i materiałów objętościowych). Przewidywane TC wykazały wysoką zgodność w zakresie kilku rzędów wielkości. Materiały o niskiej i średniej TC cechowały się szczególnie wysoką precyzją, z niemal idealną zgodnością dla szkła oraz YAG i doskonałą dokładnością dla PMMA. Układy o wysokiej TC, takie jak SiC oraz objętościowe ZnO, wykazują nieco większe odchylenia, lecz pozostają w akceptowalnych granicach, co jest zgodne z obserwacją rozprawy, że czułość modelu spada dla skrajnych wartości χ ze względu na rozkład danych treningowych.

5. Przewodność elektryczna: motywacja, ograniczenia i potrzeba korekcji

Dokładne wyznaczanie EC w cienkich warstwach jest skomplikowane przez zniekształcenia geometryczne, szczególnie efekty brzegowe, które zaburzają rozkład prądu i unieważniają idealne założenia teoretyczne. Dwie powszechnie stosowane techniki to metoda van der Pauw (vdP) oraz technika 4PP. vdP umożliwia wiarygodne wyznaczanie oporu powierzchniowego dla jednorodnych izotropowych warstw, lecz wymaga spełnienia rygorystycznych warunków, takich jak jednorodna grubość, pomijalne rozmiary kontaktów oraz umieszczenie kontaktów na granicach próbki. Jest również czasochłonna oraz w praktyce destrukcyjna ze względu na konieczność wykonania kontaktów. Dlatego choć vdP jest stosowana w rozprawie jako technika referencyjna, nie jest optymalna dla rutynowej, skalowalnej charakteryzacji.

Metoda 4PP jest prostsza i bardziej uniwersalna, jednak wykazuje silną wrażliwość na geometrię próbki, rozstaw sond oraz pozycję pomiaru. Bez korekcji zmierzona EC może znacznie odbiegać od intrinsic przewodności. Stąd konieczne jest opracowanie wiarygodnych ram korekcji.

6. Metodologia elektryczna: ramy eksperymentalne, korekcja FEM oraz korekcja ML

6.1. Zbiór danych eksperymentalnych i protokół pomiarowy

Pomiary elektryczne przeprowadzono przy użyciu dedykowanego stanowiska 4PP zbudowanego w trakcie prac doktorskich. Wykorzystano źródła prądowe Keithley oraz

nanowoltomierz do pomiaru odpowiedzi napięciowej przy kontrolowanej iniekcji prądu. Zbiór danych obejmuje 553 pomiary w zróżnicowanych warunkach obejmujących wymiary próbki, pozycje sond oraz rotacje próbki. Próbki obejmują nieregularne czworokątne warstwy ITO osadzone na podłożach szklanych oraz próbki metaliczne (Cu, W, Ni, Fe, Sn). Dla próbek ITO pomiary wykonywano w wielu pozycjach $A_1 - A_4$ i powtarzano po systematycznych rotacjach próbki przeciwnie do ruchu wskazówek zegara, co umożliwia uchwycenie wielu reżimów efektów brzegowych. Dla próbek metalicznych pomiary wykonano jednokrotnie w określonych pozycjach sond bez rotacji.

Zmienne wejściowe ML obejmują wymiary próbki L_1, L_2, L_3, L_4 , przekątną $L_{(diag.)}$, współrzędne położenia sond L_h, L_v oraz przyłożony prąd I .

6.2. Ramy korekcji FEM

W celu walidacji i korekcji efektów geometrycznych opracowano trójwymiarowy model FEM w COMSOL Multiphysics. Symulacje odtwarzają geometrię eksperymentalną: cienką przewodzącą próbkę na dielektrycznym podłożu osadzoną w powietrzu. Wyznaczono rozkłady potencjału elektrycznego dla różnych położenia sond, co wizualnie pokazuje, jak zniekształcenia prądu rosną w pobliżu krawędzi. FEM dostarcza współczynnik korekcyjny na podstawie relacji pomiędzy symulowaną pozorną przewodnością σ_{num} a przewodnością intrinsic σ_a , dając FEM-korygowaną przewodność:

$$\sigma_{FEM} = \left(\frac{\sigma_a}{\sigma_{num}} \right) \sigma_{exp}.$$

Rozprawa pokazuje, że σ_{FEM} konsekwentnie zbliża się do σ_a , co potwierdza poprawność fizycznego podejścia korekcyjnego.

6.3. Ramy korekcji ML i definicja Θ

W celu opracowania podejścia korekcyjnego opartego wyłącznie na eksperymencie, rozprawa wprowadza sformułowanie ML definiujące ciągłą zmienną celu Θ , co umożliwia uczenie regresyjne mimo ograniczonej liczby różnych wartości EC. Korzystając z idealnej zależności analitycznej pomiędzy prądem, napięciem i przewodnością w prostokątnej geometrii 4PP, rozprawa definiuje model ML jako:

$$F_{ML}(L_1, L_2, L_3, L_4, L_{diag.}, L_h, L_v, I) = \Theta,$$

a następnie oblicza przewodność wyznaczoną z ML przez:

$$\sigma_{ML} = \frac{\ln(2)}{2\pi Vd} \Theta.$$

Takie sformułowanie przekształca problem z dyskretniej predykcji klas przewodności na ciągłe zadanie regresji fizycznie uwarunkowanej.

Analiza korelacji rang Spearmana dla zbioru elektrycznego potwierdza, że prąd I ma najsilniejszą monotoniczną relację z Θ ($r_s = 0.96$), zgodnie z powyższą konstrukcją. Wybrano Random Forest regression i zoptymalizowano poprzez ewaluację 170 kombinacji hiperparametrów. Najlepszy model (Model 'a') zidentyfikowano na podstawie metryk walidacji krzyżowej.

7. Wyniki elektryczne: porównanie FEM vs ML oraz predykcja EC

Rozprawa porównuje wyniki skorygowane FEM i wyniki uzyskane metodą ML zarówno dla próbek metalicznych, jak i ITO, wykorzystując analizę Relative Difference percentage (RD%) oraz rozkłady reszt. Oba podejścia wykazują wysoką skuteczność w trudnych warunkach pomiarowych, celowo skoncentrowanych na regionach brzegowych, gdzie artefakty są najsilniejsze.

Dla próbek metalicznych FEM wykazuje średnie RD% równe +5.66%, natomiast ML –3.15%, przy podobnej zmienności. Oznacza to, że oba podejścia są porównywalnie wiarygodne, lecz charakteryzują się przeciwnymi kierunkami obciążenia błędu (bias). Dla próbek ITO FEM wykazuje średnie RD% równe –4.30%, a ML –2.93%, przy czym ML demonstruje węższe rozkłady błędów.

Końcowe porównanie EC dla dziewięciu próbek pokazuje, że predykcje ML pozostają w granicach około $\pm 15\%$ względem wartości referencyjnych i wykazują szczególnie spójną skuteczność dla próbek ITO. Wyniki FEM również wykazują wysoką zgodność, choć zmienność może rosnąć w zależności od geometrii oraz warunków brzegowych.

Komponent elektryczny potwierdza hipotezę, że zarówno FEM, jak i ML mogą skutecznie redukować błędy indukowane geometrią w pomiarach 4PP. FEM dostarcza korekcji opartej o fizykę o wysokiej interpretowalności, natomiast ML wykazuje silny potencjał jako skalowalne, wolne od symulacji ramy korekcji — pod warunkiem treningu na dostatecznie reprezentatywnych danych eksperymentalnych.