

Primjena umjetne inteligencije za karakterizaciju nanotriboloških svojstava tehnoloških tankih filmova

Marko Perčić^{1,2,3}, Saša Zelenika^{1,2,3}

¹Sveučilište u Rijeci - Tehnički fakultet, Vukovarska 58, 51000 Rijeka

²Sveučilište u Rijeci, Centar za umjetnu inteligenciju i kibernetičku sigurnost, Radmile Matejčić 2, 51000 Rijeka

³Sveučilište u Rijeci, Centar za mikro- i nanoznanosti i tehnologije, Radmile Matejčić 2, 51000 Rijeka

Sažetak: *Trenje na nanometarskoj razini ograničava preciznost i točnost mikro- i nanosustava. Doista, stohastička varijabilnost trenja otežava predviđanje ponašanja i regulaciju. Konvencionalni pristupi strojnog učenja omogućuju dobivanje većih točnosti, ali uz nedostatak objašnjivosti. U ovome se radu, stoga, koriste transparentni i interpretabilni algoritmi umjetne inteligencije (UI) da bi se dobio bolji uvid uz visoku prediktivnu učinkovitost. UI modeli testirani su na skupovima podataka dobivenih mikroskopijom s pretražnim osjetnikom na tankim filmovima ostvarenim naprednim postupcima taloženja. Trenje je mjereno varirajući istovremeno normalno opterećenje, brzinu klizanja i temperaturu. Eksperimentalnim su podacima trenirani modeli simboličke regresije temeljeni na evolucijskim algoritmima. Dobiveni modeli omogućili su utvrđivanje ovisnosti nanometarskog trenja o procesnim parametrima, vjerno reproducirajući eksperimentalne rezultate na nevidenim skupovima podataka uz dobivanje jednostavnih matematičkih korelacija.*

Ključne riječi: *nanotribologija, umjetna inteligencija, tanki filmovi, eksperimentalna mjerenja, pretražna mikroskopija s osjetnikom*

1. Uvod

Tribologija, zbog svoje važnosti u proizvodnim procesima, potrošnji energije, okolišnim učincima, zrakoplovnoj tehnologiji te, u novije vrijeme, mikro- i nanotehnologijama, osobito u proučavanju temeljnih fizikalno-kemijskih mehanizama koji određuju nastanak trenja na nanorazini, predstavlja izrazito dinamično područje istraživanja [1, 2]. U radu [3] je predstavljen inovativan i strukturiran pristup eksperimentalnom ispitivanju istodobnog utjecaja najvažnijih utjecajnih procesnih parametara na suho

trenje na nanometarskoj razini u kontaktima pojedinačnih neravnina. Postupak se temelji na naprednoj metodologiji planiranja eksperimenata (engl. *Design-of-Experiment* - DoE), pri čemu se koristi uzorkovanje temeljeno na centroidnoj Voronoi teselaciji (CVT) [4], kao i na pažljivo provedenoj karakterizaciji krutosti korištenih osjetnika za pretražnu mikroskopiju uz razmatranje utjecaja trošenja vrška i adhezije na dobivene rezultate.

Eksperimentalna su mjerenja pritom provedena pretražnom mikroskopijom s osjetnikom (engl. *Scanning Probe Microscopy* - SPM) u modalitetu rada "mikroskopija poprečnom silom" (engl. *Lateral Force Microscopy* - LFM), odnosno poprečnim skeniranjem površine dimenzija $500 \times 500 \text{ nm}^2$ na uzorcima tankih filmova aluminijske oksida (Al_2O_3) i titanijske dioksida (TiO_2) sintetiziranih taloženjem atomskih slojeva (engl. *Atomic Layer Deposition* - ALD), odnosno molibdenova disulfida (MoS_2) i aluminijske (Al) sintetiziranih taloženjem pulsirajućim laserom (engl. *Pulsed Layer Deposition* - PLD). Vrijednosti trenja na nanometarskoj razini F_f određene su u 50 diskretnih mjernih točaka u višedimenzijском prostoru definiranom materijalom tankog filma, normalnom silom ($F_N = 10\text{--}150 \text{ nN}$), brzinom klizanja ($v = 5\text{--}500 \text{ nm/s}$) i temperaturom ($\vartheta = 20\text{--}80 \text{ }^\circ\text{C}$). Primjenom osnovnih statističkih analiza prvog reda, temeljenih na Pearsonovim korelacijama (PPMC) [5], dobiveni su važni uvidi u opće trendove ovisnosti trenja na nanometarskoj razini o ispitivanim parametrima, potvrđujući da se njihove strukturne interakcije i međusobni utjecaji mogu u potpunosti razumjeti tek na atomskoj razini.

Kako bi se prevladala ograničenja postojećih modela u opisivanju procesa i fenomena koji se javljaju u nanometarskim kontaktima, te kako bi se dobili prediktivni modeli koji povezuju procesne varijable s vrijednošću nanometarskog trenja, rezultati mjerenja iz [3] se u ovome istraživanju numerički validiraju prema metodi razvijenoj u [6]. Za karakterizaciju vrijednosti trenja iz relativno ograničenog skupa eksperimentalnih podataka, primijenjen je, stoga, postupak metode simboličke regresije (SR) temeljene na umjetnoj inteligenciji (UI) [7]. Modeli su trenirani na eksperimentalnim podacima dobivenima u [3], dok se nova i neovisna mjerenja na prethodno neispitanim skupovima podataka koriste za provjeru njihove prediktivne učinkovitosti. Konačno, prikazana je detaljna usporedna statistička analiza razvijenih modela.

Unatoč izrazitoj složenosti analiziranih fenomena i inherentnoj raspršenosti mjerenja, razvijeni modeli omogućili su postizanje vrlo visoke točnosti predviđanja. Dobivena relativno jednostavna matematička formulacija ovisnosti nanometarskog trenja o ispitivanim procesnim parametrima predstavlja, pak, učinkovit alat za predviđanje trenja na nanorazini prikladan za praktičnu primjenu, dok istovremeno daje temeljni uvid u nanotriboško ponašanje u uvjetima istovremenog djelovanja više utjecajnih parametara.

2. Metodologija primjene UI za karakterizaciju nanotriboških svojstava

Zbog izrazito nelinearne prirode trenja na nanometarskoj razini, obilježene stohastičkom raspodjelom i ograničenom količinom eksperimentalnih podataka, preliminarne analize provedene u radu [3] uobičajenim linearnim, nelinearnim i multivarijantnim regresijskim metodama, rezultirale su nezadovoljavajućom prediktivnom točnošću. Suvremene računalne metode - rudarenje podataka (engl. *data mining*), strojno učenje (engl. *machine learning* - ML) i umjetna inteligencija (UI) se, pak, često primjenjuju upravo u analizi složenih i/ili velikih skupova podataka [8, 9]. Doista, rudarenje podataka omogućuje dobivanje korisnih informacija i prepoznavanje obrazaca koji su, zbog složenih međuodnosa ili količine podataka, teško uočljivi ljudskom analitičaru [9]. Konvencionalni ML algoritmi za regresiju pružaju, pak, rješenja koja učinkovito uočavaju odnose između ulaza i izlaza iz sustava, ali ne daju eksplicitni matematički oblik tih odnosa te se, stoga, označavaju terminom “*black-box*” [9].

Kako bi se razvili prediktivni modeli koji povezuju utjecajne parametre karakteristične za promatrani fizikalni proces s vrijednošću trenja na nanometarskoj razini, eksperimentalni rezultati iz [3] u ovom se radu, koristeći metodologiju predloženu u radu [6], analiziraju zato UI metodama i to, kako bi se omogućilo dobivanje eksplicitnih matematičkih formulacija traženih međuovisnosti, primjenom metoda temeljenih na genetskom programiranju (GP) [10]. Doista, GP pristup se pokazao iznimno vrijednim alatom u rješavanju složenih problema u različitim područjima istraživanja i razvoja [11, 12]. U ovom se radu onda, s ciljem dobivanja modela koji najbolje opisuju dostupne podatke i postižu visoku prediktivnu točnost, istovremeno omogućujući dobivanje računalnih programa ili matematičkih izraza izravno primjenjivih u praksi, koristi oblik GP znan kao simbolička regresija (GP-SR) [9, 13].

Kako bi se osigurala neovisna testna baza za procjenu učinkovitosti korištenih UI modela, provedena su nova eksperimentalna mjerenja na istim materijalima tankih filmova korištenima u [3], i to u istom rasponu vrijednosti procesnih parametara (F_N , v i θ), ali potpuno odvojeno od izvornih mjerenja. Svaki je model potom vrednovan u odnosu na sposobnost predviđanja sile trenja F_f u nanometarskom području na tom novom testnom skupu podataka. Budući da pritom uzorci nisu sušeni prije mjerenja, dobiveni rezultati odražavaju realnije tehnološke uvjete i predstavljaju teži izazov za numeričke modele.

Testni podaci dobiveni su ponovo na SPM Bruker Dimension Icon uređaju primjenom LFM modaliteta rada, uz kalibraciju savojne i poprečne krutosti Brukerovih SNL-10 sonde, te uzimajući u obzir utjecaj sile adhezije F_A i njezinu ovisnost o temperaturi i o trošenju vrška osjetnika, kako je detaljno opisano u [3]. Mjerenja su provedena u zatvorenom prostoru SPM uređaja, uz stalno praćenje relativne vlažnosti, koja je tijekom cijelog postupka održavana na vrijednosti od $40,23 \pm 0,8 \%$.

U skladu s uobičajenom praksom u razvoja modela strojnim učenjem, cjelokupni skup podataka podijeljen je na skup za treniranje, validaciju i testiranje [8]. Skup za treniranje služi učenju modela i zahtijeva najveći broj podataka, validacijski skup koristi se za optimizaciju hiperparametara modela, dok je testni skup potpuno odvojen i služi isključivo za konačnu procjenu modela [8, 14]. Uobičajeno se oko dvije trećine podataka koristi za treniranje, a preostala trećina za validaciju i testiranje [9].

2.1 Korelacije i metrike

U ovome je radu, za svaki od četiri analizirana materijala, testni skup obuhvatio 15 mjernih točaka s pet ponavljanja mjerenja u svakome od njih, što približno odgovara jednoj trećini glavnog DoE skupa podataka iz [3]. Za odabir testnih točaka unutar granica raspona vrijednosti utjecajnih parametara F_N , v i θ , korišten je generator slučajnih brojeva (Monte Carlo – MC) [15], implementiran u softveru GoSumD [16]. Dobiveni učinci prikazani su, pak, pomoću Pearsonovih korelacijskih koeficijenata (PPMC) [5] kao statističke aproksimacije prvog reda (Tablica 1), pri čemu oznake + i – označavaju porast ili pad F_f ovisno o promjeni pojedinog utjecajnog parametra, dok “0” označava zanemarivu korelaciju. Dobiveni koeficijenti, na u Tablici 1 prikazanim podacima za TiO_2 kao primjer tankog filma dobivenog ALD metodom taloženja, te Al kao primjer tankog filma dobivenog PLD metodom taloženja, jasno ukazuju na utjecaj adhezije na vrijednosti nanometarskog trenja.

Tablica 1: Učinci utjecajnih parametara na F_f za uzorak tankog filma TiO_2 dobiven ALD te za uzorak Al tankog filma dobiven PLD metodom taloženja na testnom skupu podataka uzorkovanom MC metodom [6]

	F_N	F_A	v	J
TiO₂	+ (0,80)	- (-0,53)	+ (0,24)	+ (0,63)
Al	0 (-0,15)	+ (0,72)	- (-0,24)	- (-0,75)

Prije treniranja modela, podaci se, ovisno o korištenoj UI metodi, standardiziraju ili normaliziraju [14]. Eksperimentalni podaci dobiveni u ovdje korištenih 50 točaka uzorkovanja se za svaki analizirani tanki film koriste za treniranje modela te se za svaki materijal razvija poseban model. Normalna distribucija podataka procijenjena je pomoću parametara asimetrije i kurtoze [5, 8], pri čemu je utvrđeno da svi skupovi podataka pokazuju prihvatljivu normalnu distribuciju. Najbolje karakteristike distribucije su dobivene za Al tanke filmove, dok je kod ostalih uzoraka dobivena izražena pozitivna asimetrija.

Kako bi se ispitao potencijal razvoja jedinstvenog modela za sve materijale, ali i povećala količina podataka za učenje, svi algoritmi UI trenirani su i na objedinjenoj, tj. skupnoj (engl. *pooled*) bazi podataka od ukupno 200 mjerenja, koja uključuje sve

materijale, gdje je klasifikacija pojedine klase materijala uvedena pomoću tzv. *dummy* binarne varijable [9]. Kako bi se, pak, izbjegla prevelika pristranost modela u odnosu na podatke na kojima je treniran (tzv. *overfitting*), dio podataka je izdvojen i za validaciju hiperparametara, što je ostvareno primjenom metode unakrsne validacije (engl. *cross-validation*), odnosno slučajnim dijeljenjem izvornog skupa podataka na skup za treniranje i na skup za validaciju. Time je omogućena procjena sposobnosti modela da generalizira naučene trendove na neviđene podatke [8, 14].

Za usporedbu i procjenu kvalitete razvijenih UI modela potrebno je definirati i odgovarajuće metričke pokazatelje. Budući da se pouzdanost modela ne može ocijeniti jednom metrikom, u ovome je radu analizirano više aspekata: numerička metrika, grafički prikaz rezultata, reziduali (ostaci) i distribucija predikcija [17].

Jedna od najčešće korištenih numeričkih metrika je pritom srednja apsolutna pogreška (engl. *mean absolute error* - MAE), koja se može izračunati kao [14, 17]:

$$\text{MAE} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n |y_i - x_i| \quad (1)$$

Korijen srednje kvadratne pogreške (engl. *root mean square error* - RMSE) predstavlja standardnu devijaciju reziduala i mjeri prosječnu udaljenost predikcija od regresijske linije [14, 17]:

$$\text{RMSE} = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (y_i - x_i)^2} \quad (2)$$

RMSE je uvijek jednak ili veći od MAE, a što je razlika veća, to je veća varijabilnost pojedinačnih grešaka.

Koeficijent determinacije, odnosno određenja (engl. *coefficient of determination* - R^2) opisuje, pak, udio varijance objašnjen modelom i definira se kao [14, 17]:

$$R^2 = 1 - \frac{\sum_{i=1}^n (y_i - x_i)^2}{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x}_i)^2} \quad (3)$$

Vrijednosti bliže 1 označavaju bolju prilagodbu modela varijanci podataka.

2.2 Procjena kvalitete dobivenih modela

Za razliku od ML modela, a budući da se kod simboličke regresije dobivaju matematički izrazi, vrijednosti metrika MAE, RMSE i R^2 nisu dovoljne, nego je nužno procijeniti i složenost samih matematičkih izraza [10, 12]. Najbolji se model, stoga, bira kombinacijom maksimalnih vrijednosti parametra R^2 i minimalne složenosti izraza.

To se postiže metodom Paretoove granice (engl. *Pareto frontier*) [18, 19], kojom se identificiraju rješenja koja se mogu smatrati optimalnima prema više kriterija istodobno; u ovom su slučaju to ona koja istovremeno jamče minimalnu vrijednost $1-R^2$ i rezultiraju najmanjom složenošću dobivenih modela.

3. Genetsko programiranje temeljeno na UI - simbolička regresija

Iako ML modeli pokazuju visoku prediktivnu sposobnost, njihova praktična primjena u detaljnim analizama i numeričkom modeliranju je ograničena jer koriste velik broj parametara. Kako bi se postigla istovrsna razina prediktivne točnosti, ali uz dobivanje matematičkih izraza kojima se opisuje ovisnost nanometarskog trenja o utjecajnim parametrima, u ovom se radu zato primjenjuju evolucijski algoritmi (engl. *evolutionary algorithms* - EA) temeljeni na UI [14]. Doista, dobivanje analitičkih izraza ovisnosti vrijednosti trenja o procesnim parametrima predstavlja ne samo važan korak prema razumijevanju temeljnih fizikalnih zakonitosti, što je jedan od glavnih ciljeva provedenog istraživanja, nego omogućuje i integraciju u postojeće modele trenja, njihovu usporedbu i prilagodbu, kao i izravnu primjenu u predviđanju trenja te u adaptivnoj regulaciji sustava s trenjem.

Za razliku od klasičnih EA metoda, simbolička regresija (GP-SR) razvija populaciju čiji su rezultati simbolički izrazi, a ne samo numeričke predikcije. U ovom radu primijenjeno je više pristupa genetskog programiranja (GP) i to Kozaov pristup genetskom programiranju (engl. *Koza style* - KS GP) [11], gramatička evolucija (engl. *grammatical evolution* - GE GP) [20], genetsko programiranje s odabirom potomaka (engl. *offspring selection genetic programming* OS GP) [21], dobno-slojevita populacijska struktura (engl. *Age-Layered Population Structure* – ALPS GP) [10] te višegensko genetsko programiranje (engl. *Multi-Gene Genetic Programming* – MG GP) [10]. Ti algoritmi evoluiraju početnu populaciju slučajno generiranih izraza, istodobno vrednujući kvalitetu dobivenih jednadžbi prema definiranim metričkim kriterijima.

Dobiveni matematički modeli zatim su usporedno analizirani. Za procjenu njihove prediktivne učinkovitosti, modeli su trenirani na eksperimentalnim podacima uz deseterostruku unakrsnu validaciju [14], pri čemu je 30 % podataka korišteno za optimizaciju parametara, dok je konačna provjera provedena na neovisnom testnom skupu. U Tablici 2 prikazane su dobivene metričke vrijednosti za GP-SR modele trenirane na uzorcima tankih filmova TiO_2 dobivenih ALD taloženjem, te na uzorcima tankih filmova Al dobivenih PLD metodom taloženja, pri čemu se, uz vrijednosti MAE, RMSE i R^2 metrika, navode i duljina te dubina izraza, koje opisuju složenost modela (manje navedene vrijednosti označavaju jednostavnije i poželjnije modele). Iz prikazanih je rezultata vidljivo da se primjenom KS GP, OS GP i ALPS GP algoritama postižu slabiji rezultati, GE GP generira jednostavne matematičke izraze ali

opet uz slabiju metriku, dok MG GP metoda tendencijalno rezultira najboljim rezultatima. U radu je utvrđeno i da modeli trenirani na objedinjenoj bazi podataka svih materijala daju najbolje rezultate, što je u skladu s pravilom da veći skupovi podataka omogućuju bolju generalizaciju i točnija predviđanja [6].

Tablica 2: Usporedba prediktivnih svojstava UI modela na testnim skupovima podataka za TiO_2 (ALD) uzorke i za Al (PLD) uzorke tankih filmova [6]

Algoritam	Uzorak	RMSE	MAE	R ²	Duljina	Dubina
KS GP	TiO ₂	9,32	8,28	0,35	151	18
	Al	5,43	5,26	0,57	153	19
GE GP	TiO ₂	8,17	6,64	0,35	37	14
	Al	5,16	4,93	0,41	21	12
OS GP	TiO ₂	18,4	14,9	0,02	151	23
	Al	7,82	4,04	0,17	203	23
ALPS GP	TiO ₂	3,59	2,91	0,59	48	11
	Al	5,36	4,13	0,16	101	18
MG GP	TiO ₂	2,10	1,67	0,54	39	4
	Al	1,08	0,95	0,82	81	4

4. Validacija rezultata razvijenih UI modela

Na temelju gornje analize, MG GP model, treniran dodatno na objedinjenom skupu podataka za sva četiri analizirana materijala tankih filmova, odabire se kao najbolji te se dodatno ispituje na testnim skupovima pojedinih materijala. Dobiveni rezultati, prikazani u Tablici 3, pokazuju visoku prediktivnu točnost s vrijednostima koeficijenta determinacije R² u rasponu od 0,72 za TiO₂ do 0,91 za Al.

Tablica 3: Prediktivne metrike MG GP modela razvijenog na skupnim podacima razmatranih tankih filmova [6]

	RMSE	MAE	R ²
TiO ₂	2,19	1,51	0,725
Al	1,04	0,774	0,909

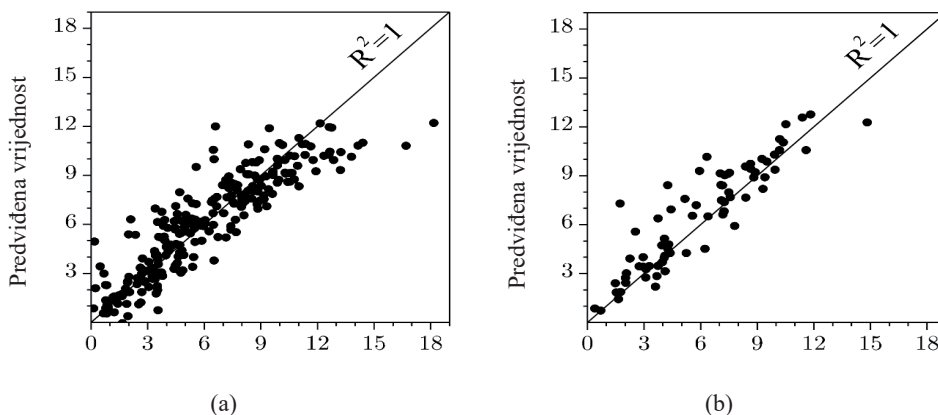
Rezultirajući MG GP modeli odabrani su kao najbolji pojedinci iz populacije od 5.000 modela u svakom ciklusu treniranja, što odgovara deset ponavljanja deseterostruke unakrsne validacije, s 50 gena korištenih u višegenskom programiranju. Kako bi se istodobno minimizirala složenost modela i vrijednost 1-R², odabir optimalnog rješenja proveden je onda pomoću Paretoove granice. Dobiveni optimalni model daje matematički izraz koji uključuje tri utjecajna procesna parametra (F_N , ϑ i ν) te binarne

(*dummy*) varijable (x_4 – x_7) koje označavaju materijale uzorka. Odgovarajuća jednadžba (4), koja odgovara dobivenim prediktivnim rezultatima, predstavlja optimalno rješenje koje povezuje nanometarsku silu trenja F_f s navedenim varijablama. Unatoč relativnoj složenosti, model je kompaktan, prediktivno vrlo učinkovit te, u usporedbi s konvencionalnim (*black-box*) ML modelima, znatno jednostavniji za praktičnu primjenu.

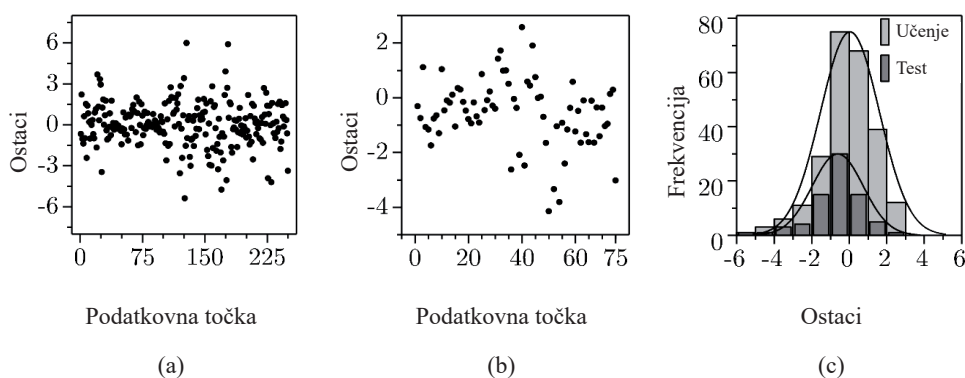
$$\begin{aligned}
 F_f = & 0,04559 \cdot F_L - 0,0008751 \cdot v - 0,1808 \cdot \vartheta + 2,824 \cdot x_4 + 4,512 \cdot x_5 - \\
 & -15,67 \cdot x_6 - 21,07 \cdot x_7 - 0,3031 \cdot \vartheta \cdot x_5 + 0,02764 \cdot (\vartheta + x_4 + x_5)^3 + \\
 & + 0,02599 \cdot (\vartheta + x_6 + x_7 + 3,994)^3 - 0,03376 \cdot F_L \cdot x_5^2 + \\
 & + 0,07963 \cdot \vartheta \cdot x_7^2 + 0,0005558 \cdot (\vartheta + 2 \cdot x_5 + 3,944)^3 - \\
 & -0,4198 \cdot \vartheta^2 - 0,05406 \cdot \vartheta^3 + 0,4198 \cdot x_4^3 - 0,0001781 \cdot F_L \cdot \vartheta \cdot x_4 - 15,92
 \end{aligned} \quad (4)$$

Prošireni oblik jednadžbe (4) predstavlja regresijski model koji je detaljnije analiziran kako bi se utvrdila njegova pouzdanost u predviđanju sile trenja [6]. Prvi korak u tom postupku je procjena raspršenosti između predviđenih i eksperimentalno izmjenjenih vrijednosti. Model koji je dobro prilagođen eksperimentalnim podacima trebao bi idealno biti blizak liniji $R^2 = 1$ na kojoj bi sve eksperimentalne točke ležale kada ne bi bilo odstupanja u mjerenjima te kada bi model savršeno opisivao promatrani fizikalni fenomen. Na Slici 1 je vidljivo da razvijeni model pokazuje vrlo malu raspršenost predviđanja kod skupa za učenje (Slika 1a) kao i kod skupa za testiranje (Slika 1b). Predviđanja testnog skupa posebno su važna jer odražavaju sposobnost modela da predviđa nove, prethodno neviđene podatke, bez utjecaja pristranosti iz faze učenja. Prikaz na Slici 1b pokazuje izraženu linearnu povezanost i gusto grupiranje točaka oko linije $R^2 = 1$, što upućuje na vrlo dobru prediktivnu funkcionalnost.

Kako bi model uspješno predviđao buduća mjerenja, mora također odražavati i stohastička svojstva podataka [6]. To se statistički provjerava analizom grafičkih prikaza ostataka (reziduala) prikazanih na Slici 2, gdje je, s ciljem utvrđivanja slijede li prikazane točke slučajajan (stohastički) obrazac, prikazana razlika između predviđenih i eksperimentalnih vrijednosti. Pojava pravilnosti, poput zakrivljenog ili linearnog trenda, ukazivala bi na pristranost modela i činila bi ga nepouzdanim za predikciju. Na Slikama 2a i 2b vidljivo je da reziduali ukazuju na dobru slučajnost, bez vidljivih obrazaca. Sa Slike 2c je, pak, vidljivo da distribucija reziduala za oba skupa podataka slijedi Gaussovu raspodjelu, što potvrđuje normalnu raspodjelu ostataka i statističku valjanost modela.

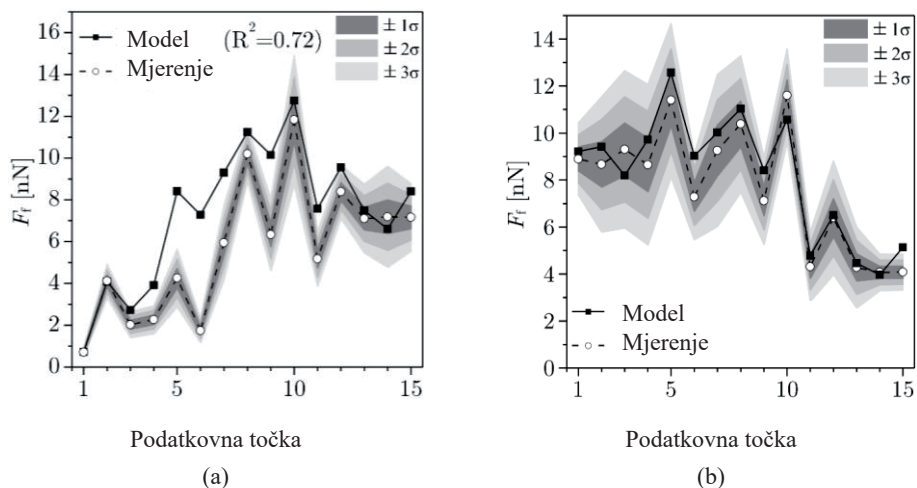


Slika 1: Predviđene vrijednosti modela iz jednadžbe (4) u odnosu na eksperimentalne podatke za skupove podataka za učenje (a) i za testiranje (b) [6]

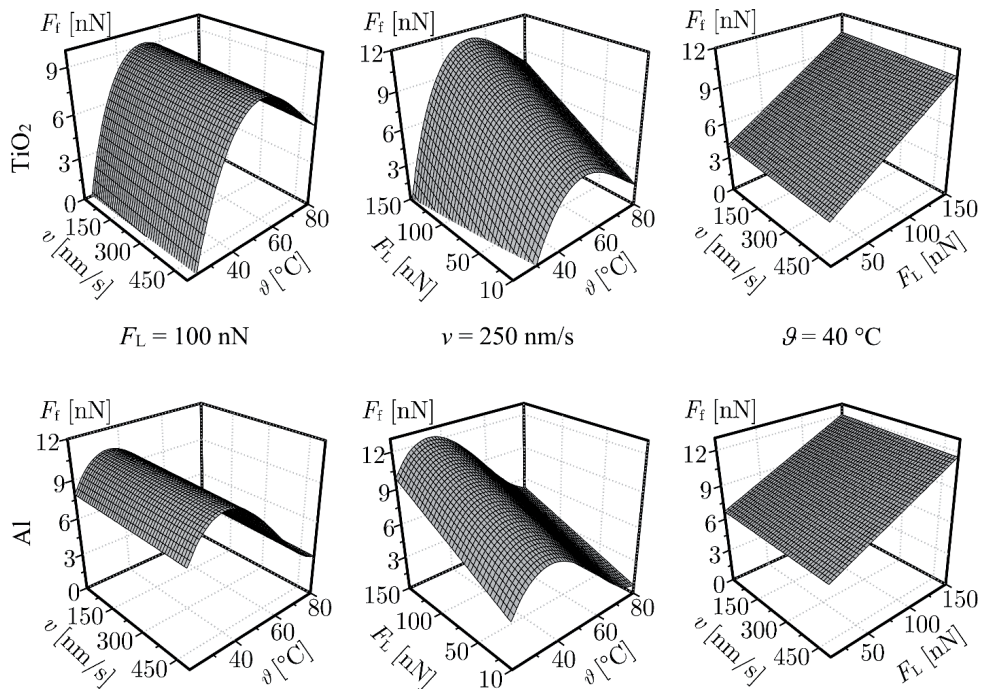


Slika 2: Reziduali (ostaci) modela iz jednadžbe (4) na podacima iz faze učenja (a) te na testnom skupu podataka (b), s odgovarajućim distribucijama (c) [6]

Razmatra se potom i prilagođenost razvijenog optimalnog UI MG GP modela za svaku od analiziranih vrsta materijala u testnom skupu podataka, odnosno sposobnost modela da pouzdano predvidi neviđene eksperimentalne podatke o nanometarskoj sili trenja F_f u ovisnosti o promatranim procesnim parametrima F_N , v i \mathcal{G} , unatoč njihovoj stohastičnosti [6]. Na Slici 3a prikazana su predviđanja i eksperimentalni podaci za ALD-om sintetizirani uzorak TiO_2 tankog filma. Vidljivo je da, iako je podudarnost na prvih nekoliko točaka gotovo savršena, predviđanja djelomično pokazuju određena odstupanja od eksperimentalnih vrijednosti. To je uočeno kod gotovo svih razmatranih modela, a proizlazi iz specifične prirode distribucije podataka za ovaj uzorak. S druge strane, prilagođenost modela iz jednadžbe (4) na testnom skupu za PLD-om sintetizirani Al tanki film prikazana na Slici 3b pokazuje iznimno visoku kvalitetu, te je za sve eksperimentalne točke gotovo u potpunosti unutar dvostruke standardne devijacije.



Slika 3: Prediktivna sposobnost optimalnog razvijenog MG GP modela na testnom skupu podataka za TiO_2 (a) i Al (b) [6]



Slika 4: Vizualizacija rezultata optimalnog MG GP modela za konstantne varijable u stupcima (slijeva na desno) F_L , v i ϑ , za TiO_2 (gornji red) i Al (donji red) [6]

Na Slici 4 prikazane su, pak, vrijednosti nanometarske sile trenja F_f dobivene primjenom modela iz jednadžbe (4) pri variranju dvaju procesnih parametara, dok se treći drži konstantnim, i to na vrijednosti $F_N = 100$ nN, $v = 250$ nm/s te $\vartheta = 40$ °C [6]. Za ALD-om sintetizirani uzorak TiO_2 tankog filma (gornje slike), utjecaj brzine klizanja na trenje je gladak, uz negativan linearni učinak u odnosu na temperaturu. Utjecaj temperature je nelinearan i ostaje relativno stabilan pri promjeni brzine klizanja i normalne sile. Učinci brzine klizanja i normalne sile pokazuju, pak, izrazito linearnu ovisnost. Slične su korelacije vidljive na donjim slikama za PLD-om sintetizirani uzorak Al, što je snažna indikacija da je prilagođenost modela općem trendu fizikalnog fenomena izvrsna.

Rezultati dobiveni primjenom razvijenog optimalnog MG GP modela pokazuju, dakle, vrlo jasno sličnost u utjecaju razmatranih istovremeno djelujućih utjecajnih parametara na nanometarsko trenje, što je u ranijim istraživanjima ovog tipa bilo praktički nemoguće utvrditi. Nakon svih provedenih testova i evaluacija može se, stoga, zaključiti s relativno visokim stupnjem sigurnosti da razvijeni model ne samo vjerno reproducira eksperimentalne rezultate za razmatrane tanke filmove, nego i (što je još važnije) pruža robusan prediktivni alat, pa čak i matematičku formulaciju ovisnosti vrijednosti F_f o promatranim varijabilnim procesnim parametrima. Dokazano je, dakle, da predložena MG GP matematička formulacija omogućuje vrlo precizno i pouzdano predviđanje vrijednosti nanometarskog trenja za različite tanke filmove, kao i predviđanje utjecaja najvažnijih procesnih parametara na tu vrijednost [6].

Izraz u obliku danom jednadžbom (4) može se algebarski dodatno pojednostaviti u odnosu na razmatrane varijable, zamjenom binarnih kodnih parametara karakterističnih za svaki od korištenih materijala tankih filmova. Dobiva se tako gotovo zapanjujuće jednostavni izraz dan jednadžbom (5), kojom se izražava prediktivni model vrijednosti nanometarske sile trenja F_f u nN i njegova ovisnost o ukupnoj normalnoj sili $F_L = F_N + F_A$ (nN), brzini klizanja v (nm/s) i temperaturi ϑ (°C) [6]:

$$F_f = a \cdot F_L - 87,51 \cdot 10^{-5} \cdot v + b \cdot \vartheta - c \cdot F_L \cdot \vartheta - d \cdot \vartheta^2 + 12,58 \cdot 10^{-5} \cdot \vartheta^3 - e \quad (5)$$

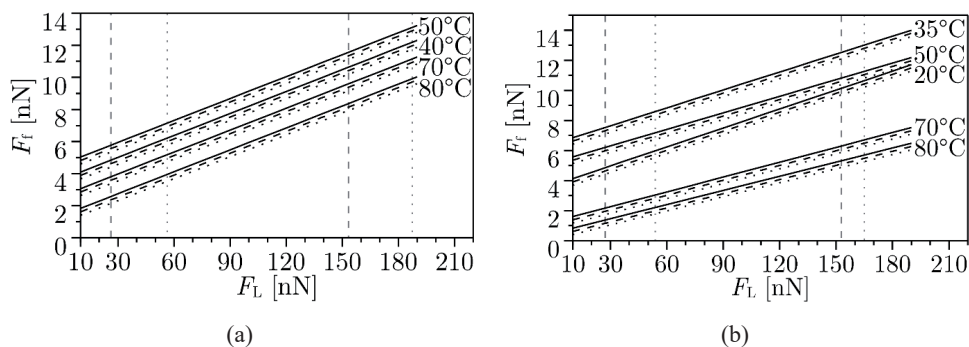
Za ovdje razmatrane materijale su pripadajuće konstante a do e prikazane u Tablici 4, gdje je jasno vidljiva visoka razina sličnosti utjecaja sile F_L i brzine klizanja v na F_f za TiO_2 i Al. Vidljiva je pritom snažna linearna ovisnost F_f o F_L kroz istovrijedni faktor a , slabi linearni učinak brzine klizanja v kroz drugi član jednadžbe, te snažan nelinearan karakter utjecaja temperature, koji ima članove prvog, drugog i trećeg reda, uz intrigantnu interakciju s F_L putem koeficijenta c [6].

Tablica 4: Konstante koje definiraju prediktivni model jednadžbe (5) za razmatrane uzorke TiO_2 i Al tankih filmova [6]

	a	b	c	d	e
TiO₂	0,04559	1,831	0	0,02774	33,81
Al	0,04559	1,141	0,0001781	0,02279	11,02

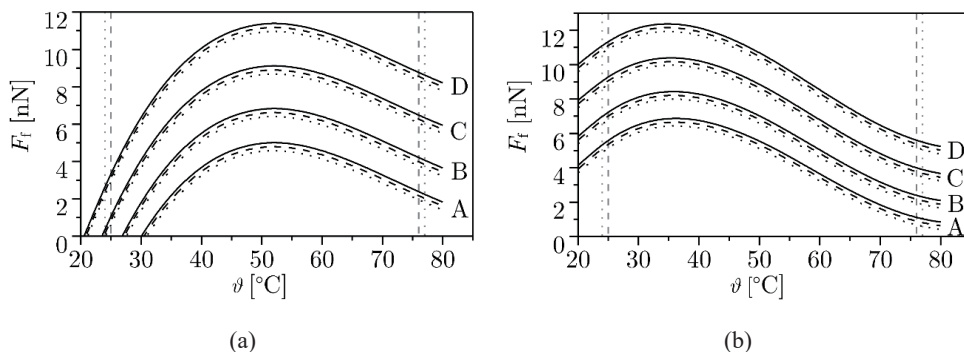
Dobivena matematička formulacija izražena jednadžbom (5), sa svojom visokom prediktivnom učinkovitošću u izražavanju ovisnosti trenja na nanometarskoj razini o promatranim varijabilnim parametrima, iskorištena je potom za proučavanje utjecaja svakog razmatranog parametra zasebno, kao i za određivanje interakcije istovremenog utjecaja dvaju učinaka na nanometarsko trenje. Dobivena rješenja se dodatno grafički analiziraju kako bi se sagledale implikacije i učinci promatranih procesnih parametra na trenje.

Rješenja jednadžbe (5) dana su, stoga, grafički na Slici 5 da bi se vizualno prikazala ovisnost nanometarske sile trenja F_f o ukupnoj normalnoj sili F_L , pri varijabilnoj temperaturi ϑ i brzini klizanja v . Vidljiva je tu linearna ovisnost o opterećenju, što je u skladu i s predviđanjima kontaktne mehanike kada se u obzir uzmu učinci adhezije [22]. Dobivene linearne ovisnosti pokazuju također blagi oslabljujući učinak brzine klizanja v , što je eksperimentalno potvrđeno i u ranijim radovima [23], pri čemu se pad sile trenja s porastom brzine klizanja najčešće pripisuje mazivom učinku sloja vodene pare adsorbiranog na površini uzoraka. Može se uočiti i složeni međudnos sile adhezije i trenja, gdje prikazane linije, kao posljedica dominantnog utjecaja adhezije, pokazuju promjenu nagiba i presjeka s osi y pri promjeni temperature. Kako je već primijećeno u radu [3], budući da u nanometarskom području utjecaj vodenog meniskusa postaje značajan te povećava ukupne kontaktne sile, ovaj se učinak superponira učinku normalne sile. Promjena temperature mijenja, pak, količinu adsorbirane vode, odnosno utječe na stanje meniskusa, mijenjajući sile adhezije pa time i ukupna normalna opterećenja koja djeluju na površinu tankih filmova.



Slika 5: Ovisnost F_f o F_L dobivena iz razvijenog MG GP modela za različite vrijednosti v (puna linija: $v = 5$ nm/s, isprekidana linija: $v = 255$ nm/s, točkasta linija: $v = 500$ nm/s) i ϑ za TiO_2 (a) i Al (b) [6]

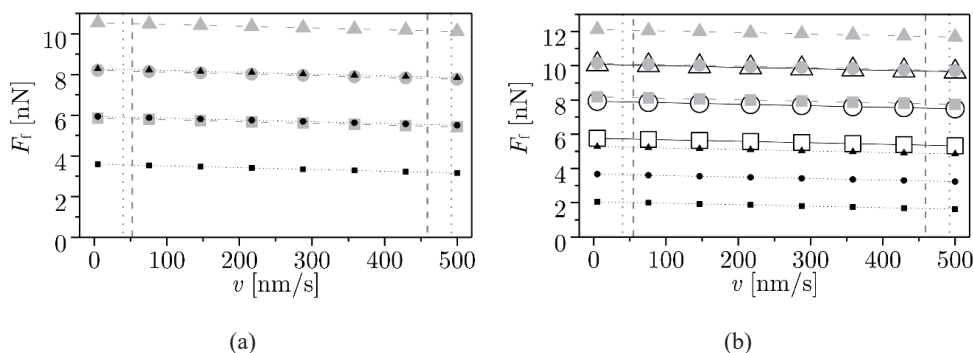
Varijabilnost utjecaja temperature vidljiva je i na dijagramima na Slici 6, što se može uočiti iz razmaka između prikazanih linija trenja. Veći razmak uzrokovan promjenom temperature ϑ ukazuje pritom na izraženiji temperaturni učinak.



Slika 6: Ovisnost F_f o θ dobivena iz razvijenog MG GP modela za različite vrijednosti v (puna linija: $v = 5$ nm/s, isprekidana linija: $v = 255$ nm/s, točkasta linija: $v = 500$ nm/s) i F_L (A: $F_L = 10$ nN, B: $F_L = 50$ nN, C: $F_L = 100$ nN, D: $F_L = 150$ nN), za TiO_2 (a) i Al (b) [6]

Utjecaj brzine klizanja na vrijednost nanometarskog trenja prikazan je, konačno, za razmatrane tanke filmove na Slici 7. Tu je vizualizacija nešto zahtjevnija zbog dvaju snažnih preklapajućih učinaka u preostale dvije dimenzije. Ipak, jasno je da je utjecaj v uglavnom malen i, kao što je već više puta navedeno, oslabljujući, dok jači nelinearni utjecaj temperature θ mijenja apsolutnu vrijednost učinka brzine, ali ne i trendove niti intenzitet tog učinka. Utjecaj F_L također je vidljiv kao linearni pomak skupina linija F_f u odnosu na v , što uzrokuje povećanje vrijednosti F_f .

Grafovi na Slikama 5, 6 i 7 prikazuju, dakle, vrijednosti nanometarske sile trenja F_f dobivene korištenjem funkcionalnih ovisnosti iz jednadžbe (5) za razmatranu skupinu materijala tankih filmova i sve analizirane varijabilne procesne parametre. Ovi se grafovi mogu koristiti kao grafički alat za određivanje očekivanih vrijednosti F_f . Na dijagramima su također prikazane okomite isprekidane i točkaste granične linije koje označavaju granice razmatranih varijabli u glavnom i testnom skupu podataka. Budući da su modeli korišteni za dobivanje grafova trenirani i testirani isključivo unutar tih granica, ove linije određuju svojevrsnu marginu njihove valjanosti.



Slika 7: Ovisnost F_f o v dobivena iz razvijenog MG GP modela za različite vrijednosti F_L (kvadratna oznaka: $F_L = 50$ nN, krug: $F_L = 100$ nN, trokut: $F_L = 150$ nN) i θ (bijela ispunjena: $\theta = 20$ °C, siva ispunjena: $\theta = 40$ °C, crna ispunjena: $\theta = 80$ °C) za TiO_2 (a) i Al (b) [6]

5. Zaključak i buduća istraživanja

Na temelju strukturirane metodologije za eksperimentalno određivanje trenja na nanometarskoj razini pod istodobnim utjecajem više parametara, normalne sile, brzine klizanja i temperature, razvijene na naprednom DoE postupku i odgovarajućem postavljanju mjernog procesa, u ovom je radu prikazan sustavan proces rudarenja podataka s ciljem dobivanja dubokih i metodičnih uvida u nanometarsko trenje. Metodologija se temelji na primjeni više suvremenih metoda UI, s ciljem dobivanja jednostavne matematičke formulacije koja povezuje sve promatrane utjecaje. Primijenjeni su algoritmi UI genetskog programiranja metodom simboličke regresije (GP SR). Dobiven je tako iznimno jednostavan matematički izraz, s vrlo visokim prediktivnim svojstvima, razvijen primjenom višegenskog genetskog programiranja (MG GP).

Razvijenim je modelima potvrđen mali utjecaj brzine klizanja, snažan pozitivan utjecaj ukupne normalne sile te izraženo nelinearan utjecaj temperature na trenje na nanometarskoj razini. Dobivene korelacijske funkcije, koje povezuju promatrane procesne varijable s vrijednošću nanometarskog trenja, pružaju ne samo vrlo detaljan uvid u proučavane pojave složenih interakcija, već i izuzetno koristan i originalan doprinos području nanotribologije. Procjena velikog broja eksperimentalnih rezultata primjenom suvremenih numeričkih metoda, sustavna evaluacija njihovih prediktivnih svojstava te inovativni predloženi model s jednostavnom implementacijom, prikladan za praktičnu primjenu, predstavljaju važne doprinose provedenog istraživanja.

Sve navedeno stvara preduvjete za temeljno razumijevanje i praktična poboljšanja u području nanotribologije, te donosi novi uvid u ovaj fundamentalni fizikalni i inženjerski fenomen. To bi u konačnici trebalo omogućiti proširenje formulacije postojećih modela trenja na nanometarsku domenu, čime se stvaraju temelji za razvoj proširenih modela trenja i naprednih zakonitosti upravljanja, što sve doprinosi povećanju preciznosti konstrukcijskih komponenti i preciznosti pozicioniranja strukturnih elemenata i sustava u nanometarskom području. Rezultati provedenog istraživanja omogućuju također višeskalarni pristup povezivanju nanotribologije s mikro-, mezo-, na gornjem kraju dimenzijske skale, makroskopskim sustavima s trenjem, čime se u inženjerskoj praksi otvara mogućnost razvoja i modificiranja postojećih algoritama upravljanja i numeričkih modela.

6. Literatura

- [1] Bhushan, B. (ur.): *Handbook of micro/nanotribology* - 2nd ed., u The mechanics and materials science series, Boca Raton: CRC Press (1999).
- [2] Bhushan, B.: *Introduction to tribology* - 2nd ed., u Tribology series, Chichester, West Sussex, UK: John Wiley & Sons Inc. (2013).

- [3] Perčić, M.; Zelenika, S., Mezić, I., Peter, R., Krstulović, N.: An experimental methodology for the concurrent characterization of multiple parameters influencing nanoscale friction, *Friction*, **8** (2020) 3, 577-593, <https://doi.org/10.1016/10.1007/s40544-019-0289-z>
- [4] Du, Q.; Faber, V., Gunzburger, M.: Centroidal Voronoi Tessellations: Applications and Algorithms, *SIAM Rev.*, **41** (1999) 4, 637-676, <https://doi.org/10.1137/S0036144599352836>
- [5] Mandel, J.: *The Statistical Analysis of Experimental Data*, Courier Corporation (2012).
- [6] Perčić, M.; Zelenika, S., Mezić, I.: Artificial intelligence-based predictive model of nanoscale friction using experimental data, *Friction*, **9** (2021) 6, 1726-1748, <https://doi.org/10.1007/s40544-021-0493-5>
- [7] de Silva, B. M.; Higdon, D. M., Brunton, S. L., Kutz, J. N.: Discovery of Physics From Data: Universal Laws and Discrepancies, *Front. Artif. Intell.*, **3** (2020) 1-25, <https://doi.org/10/ggw4nr>
- [8] Kecman, V.: *Learning and soft computing: support vector machines, neural networks, and fuzzy logic models*, u *Complex adaptive systems*, Cambridge, Mass: MIT Press (2001).
- [9] Billard, L.; Diday, E.: *Symbolic Data Analysis: Conceptual Statistics and Data Mining*, Chichester (UK): John Wiley & Sons (2012).
- [10] Riolo, R.; Worzel, B. (ur.): *Genetic Programming Theory and Practice*, u *Genetic Programming*, Springer US (2003), <https://doi.org/10.1007/978-1-4419-8983-3>
- [11] Koza, J. R.: Human-competitive results produced by genetic programming, *Genet Program Evolvable Mach*, **11** (2010) 3, 251-284, <https://doi.org/10/bz8br8>
- [12] Langdon, W. B.; Poli, R.: *Foundations of Genetic Programming*. Berlin Heidelberg: Springer-Verlag (2002), <https://doi.org/10.1007/978-3-662-04726-2>
- [13] Schmidt, M.; Lipson, H.: Distilling Free-Form Natural Laws from Experimental Data, *Science*, **324** (2009) 5923, 81-85, <https://doi.org/10.1126/science.1165893>
- [14] Hastie, T.; Tibshirani, R., Friedman, J.: *The Elements of Statistical Learning: Data Mining, Inference, and Prediction - 2nd ed.*, u *Springer Series in Statistics*, New York: Springer-Verlag (2009).
- [15] Gentle, J. E.: *Random Number Generation and Monte Carlo Methods*, u *Statistics and Computing*, New York: Springer-Verlag (1998), <https://doi.org/10.1007/978-1-4757-2960-3>
- [16] "GoSUMD", AIMdyn. <https://aimdyn.com/gosumd/>, *Pristupljeno*: 15. 05 2018.
- [17] Draper, N. R.; Smith, H.: *Applied Regression Analysis - 3rd ed.*, John Wiley & Sons (1998).
- [18] Knowles, J.; Corne, D., Deb, K. (ur.): *Multiobjective Problem Solving from Nature: From Concepts to Applications*, u *Natural Computing Series*. Berlin Heidelberg: Springer-Verlag (2008), <https://doi.org/10.1007/978-3-540-72964-8>
- [19] Lotov, A.; Bushenkov, V. A., Kamenev, G. K.: *Interactive Decision Maps: Approximation and Visualization of Pareto Frontier*, u *Applied Optimization*. Springer US (2004), <https://doi.org/10.1007/978-1-4419-8851-5>
- [20] Ryan, C.; O'Neill, M., Collins, J. J. (ur.): *Handbook of Grammatical Evolution*. Springer Int. Publ. (2018), <https://doi.org/10.1007/978-3-319-78717-6>
- [21] Affenzeller, M.; Wagner, S.: Offspring Selection: A New Self-Adaptive Selection Scheme for Genetic Algorithms, u *Adaptive and Natural Computing Algorithms*, Ribeiro, B.; Albrecht, R. F., Dobnikar, A., Pearson, D. W., Steele, N. C. (ur.), Vienna: Springer (2005), 218-221, <https://doi.org/10/bj3s8g>

- [22] Derjaguin, B. V.; Muller, V. M., Toporov, Y. P.: Effect of contact deformations on the adhesion of particles, *J. Colloid & Interface Sci.*, **53** (1975) 2, 314-326, <https://doi.org/10/dnf7ks>
- [23] Dagdeviren, O. E.: Exploring load, velocity, and surface disorder dependence of friction with one-dimensional and two-dimensional models, *Nanotechnology*, **29** (2018) 31, 315704, <https://doi.org/10.1088/1361-6528/aac43b>

Zahvale

Ovaj je rad napisan zahvaljujući potpori osiguranoj istraživačkim projektima Sveučilišta u Rijeci uniri-zi-25-256 “Višeskalarno interdisciplinarno nanotriboško istraživanje nanomaterijala” i uniri-mzi-25-4 “Praćenje stanja okoliša mrežom autonomnih senzora (EMAS)” koje financira Europska unija – NextGenerationEU.