ニューラルネットワークによる
超微小押込み曲線を用いた多層薄膜材の機械的特性評価*結 城 宏 信^{*1}, 石 川 晴 雄^{*1}
多 田 真 一 郎^{*2}, 中 野 禪^{*3}Evaluation of Mechanical Properties of Multi-Layered Thin Films
Using Nano-Indentation Curves by Means of Neural NetworkHironobu YUKI^{*4}, Haruo ISHIKAWA,
Shin-ichirou TADA and Shizuka NAKANO^{**} Department of Mechanical Engineering and Intelligent Systems, The University of Electro-Communications,
1-5-1 Chofugaoka, Chofu-shi, Tokyo, 182-8585 Japan

This paper describes the application of neural network for nano-indentation testing to evaluate mechanical properties of multi-layered thin films. The properties of films are evaluated from a set of load-depth curves which is obtained by indentation using spherical indenters having different radii. In this study, finite element simulation of indentation is conducted to provide learning data of the network. Two multi-layered networks are independently used to identify the properties of films. By using the first network, the ranges of estimation are roughly estimated, and the appropriate properties can be determined by the second network. It is demonstrated that Young's moduli of 4-layered films can be successfully determined by the proposed method. It is also shown that both of Young's modulus and thickness can be identified 2-layered films.

Key Words: Material Testing, Elasticity, Neural Network, Finite Element Method, Nano-Indentation, Multi-Layered Materials, Thin Film

1. 緒 言

高エネルギーイオン注入は材料の機械的特性を局所的に変化させることができ、マイクロマシン要素を単一部材から作成するためなどに有効な方法として期待されている⁽¹⁾。イオン注入材において注入されたイオンは部材の深さ方向にガウス分布するため、その影響により部材の機械的特性は深さによって異なったものになる⁽²⁾。したがって、イオン注入材の評価には深さ方向の特性変化を調べることができる試験法が必要となる。

超微小押込み試験は圧子を極微小荷重で試料に押し込んでいくときの荷重と押込み深さとの関係(押込み曲線)を負荷から除荷に至るまで連続して測定する方法であり、様々な材料に対して任意の深さにおける機械的特性を調べるために用いられている^{(3)~(7)}。しかし、従来の解析方法⁽³⁾⁽⁴⁾では弾性特性を評価するため

に除荷直後の押込み曲線の接線を求める必要があるほか、試験を複数回行わなければ深さ方向の弾性特性の変化を調べることができない。

2層もしくは3層薄膜材を対象にした場合、薄膜の層厚とヤング率の一方が既知であれば、一回の試験で得た押込み曲線に特別な処理をすることなく、もう一方をニューラルネットワークを用いて推定することができる⁽⁸⁾。しかし、イオン注入材を多層薄膜材に近似して取り扱うには、イオン注入の影響が現れ始める層、影響が最も強く現れる層、影響が弱まり基板の特性に近づく層、基板層の4層を考える必要がある。また、層厚とヤング率の双方がともに未知である場合についても適用できることが望まれる。

本研究は超微小押込み試験で得られる押込み曲線を入力とするニューラルネットワークによって、層厚が既知である4層薄膜材の弾性特性を評価することを検討した。また、弾性特性と層厚がともに未知の2層薄膜材に対して、同様の方法でこれらが評価できるかについても検討した。

2. 4層薄膜材の弾性特性評価

* 原稿受付 2001年5月31日。

^{*1} 正員, 電気通信大学知能機械工学科(☎ 182-8585 調布市調布ヶ丘 1-5-1)。^{*2} 電気通信大学大学院。^{*3} 正員, 産業技術総合研究所(☎ 305-8564 つくば市並木 1-2-1)。

E-mail: yuki@mce.uec.ac.jp

Fig.1 Analysis model of 4-layered thin films

2.1 シミュレーション

2.1.1 学習データの作成 押込み曲線の解析などの逆問題に階層型ニューラルネットワークを用いるには、あらかじめ入出力間の関係をネットワークに学習させておく必要がある。学習には解の推定範囲にできるだけ均等に分布している既知の入出力データの組が必要であるが、そのような条件を満足する薄膜材をあらかじめ多数用意して超微小押込み試験を行うことは容易ではない。そこで本研究では有限要素法による解析結果から押込み曲線を作成し、ニューラルネットワークの学習における入力データに用いた。

解析に使用したモデルを拘束条件とともに図1に示す。基板のヤング率 E_0 は 206 GPa, 基板の厚さ t_0 は 9.4 μm , 薄膜の厚さはすべて 0.2 μm とした。圧子には実験にダイヤモンド球圧子を用いることを想定し、球面の一部を接触面とするヤング率が 1 000 GPa, ポアソン比が 0.1 の円柱とした。モデルは2次元軸対称で、4節点アイソパラメトリック要素を用い、圧子と試料部分を合わせた要素数を 2 464, 節点数を 2 649 とし、構造解析用有限要素法プログラム(MARC)により弾性解析を行った。要素分割にあたっては接触域近傍における要素が接触域の寸法に対して十分小さくなるよう注意した。図2に圧子の曲率半径が 3 μm のときの接触域近傍の要素分割図を示す。なお、薄膜のヤング率がすべて基板のヤング率と等しい場合の解析結果とヘルツの弾性接触理論による結果との差は 3 % 未満であったことから解析モデルは妥当なものと判断した。

押込み曲線は荷重を 1 mN まで 0.1 mN ずつ増やしながら静的に負荷したときの圧子の移動量を押込み深さとして求めることで作成した。解析にあたっては金属に数 MeV のエネルギーでイオンを注入すること想定し、押込み曲線が均等に分布するように各薄膜の

Fig.2 Finite element mesh around the contact region (radius of indenter: 3 μm)

ヤング率は 20, 40, 60, 100, 200, 400 GPa の中から選び、ポアソン比はすべて 0.3 とした。また、圧子の曲率半径が大きくなるとヤング率の組み合わせが同一であっても荷重の変化に対する押込み深さの変化が小さくなるので、圧子には曲率半径が 3, 10, 20, 30 μm の 4 種類を用いるものとした。

以上の解析から各層のヤング率の組み合わせが異なる 216 種類の 4 層薄膜材それぞれに対し、異なる圧子による 4 本の押込み曲線が得られる。そこで、ニューラルネットワークの入力情報を多くしてヤング率の推定精度を上げるため、ネットワークの入力には 4 本の圧子による押込み曲線を並べて与えることにした。なお、学習の収束を容易にするため、押込み曲線は全学習データの最大値で正規化した。

2.1.2 ヤング率の推定 使用したニューラルネットワークは 3 層の階層型で入力層 40 ユニット、中間層 60 ユニット、出力層 3 ユニットのものである。ネットワークには荷重 0.1 mN ごとの押込み深さを圧子ごとに並べて入力し、各薄膜のヤング率が対応するユニットの出力値として得られるようにした。ただし、出力値 O_i は学習が収束しやすいようにヤング率 E_i を次式で正規化した。

$$O_i = \frac{\log(E_i - E_{\min})}{\log(E_{\max} - E_{\min})} \cdot 0.8 + 0.1 \quad (1)$$

ここで、 $E_{\max}$, $E_{\min}$ は学習データの中の最大値と最小値である。本研究ではニューラルネットワークを構成するユニットの出力関数にシグモイド関数を用いているため、ユニットの出力値は 0 から 1 の間に正規化するよりも 0.1 から 0.9 の間に正規化したほうが収束がしやすくなる。また、出力値はこの範囲にできるだけ分散していたほうが好ましいため、分子と分母それぞれで対数をとることにした。

前節に述べたデータを用いてバックプロパゲーション

(a) Before imposing restrictions on estimated range

(b) After imposing restrictions on estimated range

Fig.3 Estimated results of Young's moduli (for simulation data)

ンによって学習を行ったあと、学習に用いていない組み合わせの薄膜のヤング率を推定した結果を図 3 (a) に示す。図には押込み曲線をシミュレートするために用いたヤング率の値も併せて示してある。ニューラルネットワークで推定した解は学習データに対しては十分に収束したにもかかわらず、未学習データに対しては Case 4 の E_3 のように組み合わせによって推定誤差が非常に大きくなり、ヤング率を正しく評価することができていない。

ニューラルネットワークの推定精度を上げるには中間層の層数やユニット数を増やすことがよく行われるが、その数を決定するための確立した指針はない。そこで本研究では二つの独立したニューラルネットワークを用いることで推定精度の向上を試みた。すなわち、一つ目のネットワークは推定範囲を決めるために使用し、その出力値の $\pm 50\%$ の範囲により適当な解があると考え、次に、この範囲のみを学習させた新たなネットワークを用いてヤング率の値を最終的に推定する。このような方法を用いれば、一つ目のネットワークはヤング率の概略値が求めればよいので高い推

Fig.4 Examples of load-depth curve (Ti-Au-Ti-SK5, radius of indenter: $3\ \mu\text{m}$)

定精度は必要なくなる。また、二つ目のネットワークは解の範囲が絞り込まれているために内挿関係の学習が容易になると考えられる。

ニューラルネットワークを二段階に分けて求めたヤング率を図 3 (b) に示す。特定の層だけに注目すると推定誤差がやや大きくなるものもあるが、全体としてはどの層に対しても推定誤差が 10% 未満と図 3 (a) に比べて十分に小さくなり、多層薄膜材のヤング率が正しく評価できるようになったといえよう。

なお、本研究で提案するようにニューラルネットワークを二段階に分けて用いると、二つ目のネットワークの学習に用いるデータは一つ目のネットワークの推定結果に基づいて選択されることになる。そのため、あらかじめ二つ目のネットワークを学習しておくことは難しく、推定作業に要する時間が長くなるという欠点がある。しかし、学習データ数は一つ目のネットワークに比べて少なくなっているので学習パラメータが適切であれば一つ目より早い時間で学習が終了することが期待できるほか、多層薄膜材の評価にリアルタイム性が要求されることはほとんど考えられないため、大きな問題にはならない。

2.2 超微小押込み試験

2.2.1 実験方法 鏡面状に研磨された炭素工具鋼 (SK5, $\phi 25\ \text{mm} \times 5\ \text{mm}$) にスパッタリングにより薄膜を生成し、超微小押込み試験機 (アカシ, MZT-3) を用いて押込み荷重と押込み深さとの関係を測定した。薄膜の厚さはすべて $0.2\ \mu\text{m}$ で、表面から順にクロム、チタン、クロムを成膜したもの、チタン、金、チタンを成膜したもの、チタン、クロム、チタンを成膜したものを試料とした。また、圧子にはシミュレーションと同じ条件になるように、半径が $3, 10, 20, 30\ \mu\text{m}$ の 4 本のダイヤモンド球圧子を使用した。

負荷、保持、除荷時間をそれぞれ $1\ \text{s}$ として荷重 1

(a) Before imposing restrictions on estimated range

(b) After imposing restrictions on estimated range

Fig.5 Estimated results of Young's moduli (for experimental data)

mN までの試験を10回行ったが、得られた押込み曲線は十分に再現性のあるものであった。図4に半径3 μm の圧子を用いたときのチタン、金、チタンを成膜させた試料に対する押込み曲線を一例として示す。負荷と除荷のデータは一致しており、弾性域内の変形ということができる。

2.2.2 ヤング率の推定 本研究で用いた試験機の変位分解能は1 nm であるため、押込み深さが微小である場合、得られる押込み曲線が図4のように階段状となってしまう。また、実験値には誤差が含まれていることも考えなければならない。そこで本研究では実験データを次式で近似し、この曲線上の値をニューラルネットワークの入力とした。

$$h = \left(\frac{a}{P-b} + c \right) P^{\frac{2}{3}} \quad (2)$$

ただし、 h は押込み深さ、 P は荷重であり、 a 、 b 、 c は最小二乗法で決定する定数である。

2.1.1 節で作成したデータを用いてネットワークの学習を行ったあと、試験によって得られた値を式(2)で近似した曲線から求めたヤング率の値を図5(a)に、図5(a)の結果の $\pm 50\%$ の範囲に対象を絞り込んで

Fig.6 Expression of output value for Young's modulus

新たに学習したネットワークで求めたヤング率の値を図5(b)に示す。範囲を絞り込むことによってどの試料に対しても各薄膜のヤング率が正しく求まっており、提案する方法は多層薄膜材の弾性特性評価に実際に有効であることがわかる。

3. 2層薄膜材の弾性特性および層厚評価

3.1 シミュレーション

3.1.1 ニューラルネットワークの入出力 イオン注入材では一般に注入領域の弾性特性と注入深さはどちらも未知であり、押込み曲線からこれらの二つを評価できることが望まれる。そこで次に、イオン注入材の第一次近似として2層薄膜材を考え、薄膜層のヤング率と厚さを同時に推定する方法を検討した。

ここでは前章に比べてより多くの情報を押込み曲線から求めなくてはならないので、ニューラルネットワークの入力には出力に対してできるだけ感度のよいものを用いることが望ましい。そこで本研究では、表面に薄膜のない部分が存在するように試料を作成し、2層薄膜材に対する押込み深さと基板のみに対する押込み深さととの差(以後、押込み深さの変化量と呼ぶ)を入力データに用いることで出力値に対する入力値の感度を高くすることにした。

また、解の推定範囲の絞り込みがより効果的に行えるように、一つ目のニューラルネットワークでは i 番目の出力ユニットが $R_i \sim R_{i+1}$ という範囲を表すものと考え、学習時に教師信号を図6に示すように範囲の中心で0.9を、境界で0.5を出力するように与えた。このようにすることで、範囲の推定時に複数の出力ユニットの値を用いることができる。いま、 m 番目の出力ユニット O_m が最大の値をもつとき、以下のように推定範囲を R_s から R_e に絞り込むことができる。

• $O_m \geq 0.9$ のとき

$$R_s = R_m \quad (3)$$

$$R_e = R_{m+1} \quad (4)$$

Fig.7 Analysis model of 2-layered thin films

- $O_m < 0.9$ かつ $O_{m-1} > O_{m+1}$ のとき

$$R_s = \left(1 - \frac{O_{m-1} - 0.1}{0.8}\right) (R_m - R_{m-1}) + R_{m-1} \quad (5)$$

$$R_e = \frac{O_m - 0.1}{0.8} (R_{m+1} - R_m) + R_m \quad (6)$$

- $O_m < 0.9$ かつ $O_{m-1} < O_{m+1}$ のとき

$$R_s = \left(1 - \frac{O_m - 0.1}{0.8}\right) (R_{m+1} - R_m) + R_m \quad (7)$$

$$R_e = \frac{O_{m+1} - 0.1}{0.8} (R_{m+2} - R_{m+1}) + R_{m+1} \quad (8)$$

- $O_m < 0.9$ かつ $O_{m-1} = O_{m+1}$ のとき

$$R_s = \left(1 - \frac{O_{m-1} - 0.1}{0.8}\right) (R_m - R_{m-1}) + R_{m-1} \quad (9)$$

$$R_e = \frac{O_{m+1} - 0.1}{0.8} (R_{m+2} - R_{m+1}) + R_{m+1} \quad (10)$$

3.1.2 学習データの作成 ニューラルネットワークの学習データは前章と同様に球圧子による押込みを有限要素法によって弾性解析し作成した。使用した解析モデルを拘束条件とともに図 7 に示す。基板のヤング率 E_0 は 206 GPa, 薄膜の厚さ t_1 は 0.01 から 2 μm とした。モデルは2次元軸対称とし, 4 節点アイソパラメトリック要素を用い, 圧子と試料部分を合わせた要素数を 4 923, 節点数を 5 253 とした。

学習に用いる層厚の値は 0.01, 0.075, 0.225, 0.45, 0.5, 0.8, 1, 1.25, 1.5, 2 μm の 10 通り, ヤング率の値は 20, 40, 60, 100, 130, 200, 260, 400 GPa の 8 通りとした。層厚の値は薄膜のヤング率を 20 GPa としたときに, ヤング率の値は薄膜の層厚を 2 μm としたときに, 半径 3 μm の球圧子で得られる押込み深さの変化量ができるだけ均等に分布するように選んだものである。なお, ネットワークには学習データごとに最大値で正規化した押込み深さの変化量を入力として与えることにした。

Fig.8 Output units of neural network

Table 1 Estimated ranges of thickness and Young's modulus (for simulation data)

Actual value		Estimated range	
t_1 μm	E_1 GPa	$\bar{t}_1$ μm	$\bar{E}_1$ GPa
0.2	110	0.00 ~ 0.50	30 ~ 160
	250	0.00 ~ 0.50	190 ~ 330
	320	0.00 ~ 0.50	260 ~ 400
0.7	110	0.54 ~ 1.00	50 ~ 180
	250	0.48 ~ 0.97	200 ~ 330
	320	0.48 ~ 0.97	220 ~ 370
1.2	110	0.97 ~ 1.48	40 ~ 170
	250	0.97 ~ 1.48	190 ~ 330
	320	0.97 ~ 1.48	220 ~ 370
1.8	110	1.40 ~ 1.90	40 ~ 170
	250	1.45 ~ 1.94	190 ~ 330
	320	1.40 ~ 1.90	230 ~ 370

3.1.3 ヤング率と層厚の同時推定 ニューラルネットワークは入出力間の複雑な写像関係を学習することが3層よりも容易な4層の階層型を用いた。解の推定範囲を絞り込む一つ目のネットワークは, 入力層37ユニット, 第1中間層80ユニット, 第2中間層50ユニット, 出力層7ユニットのものである。出力ユニットは図 8 に示すように, 層厚の範囲を絞り込むために4ユニット, ヤング率の範囲を絞り込むために3ユニットを用いた。ネットワークには前章と同じ球圧子4本で得られる押込み深さの変化量を 0.2 mN から 1 mN になるまで 0.1 mN ごとに計算して正規化した値と各学習データでの最大押込み深さの変化量を入力として与え, ヤング率と層厚の範囲が出力されるようにした。

ニューラルネットワークの出力値が0.1から0.9の範囲でできるだけ分散するように, ヤング率は式(11)を, 層厚は式(12)を用いて正規化し, 前述した80組のデータを用いてバックプロパゲーションにより学習を行った。ヤング率の正規化の方法が前章と異なるのは二つの物理量をできるだけ均等にばらつかせるためである。

$$d' = \frac{\log E - \log E_{\min}}{\log E_{\max} - \log E_{\min}} 0.8 + 0.1 \quad (11)$$

$$d' = \frac{t - t_{\min}}{t_{\max} - t_{\min}} 0.8 + 0.1 \quad (12)$$

学習終了後, 未学習データを入力して薄膜のヤング率と層厚の範囲を求めた結果を表 1 に示す。表 1 から一つ目のニューラルネットワークにより適切な範囲

Fig.9 Estimated results of thickness and Young's modulus (for simulation data)

Fig.10 Examples of load-depth curve (Ti 0.2 μm , radius of indenter: 3 μm)

に解の推定範囲が絞り込まれていることがわかる。表 1 の範囲に学習データを限定した新たなネットワーク (入力層 37 ユニット, 第 1 中間層 40 ユニット, 第 2 中間層 20 ユニット, 出力層 2 ユニット) により求めたヤング率と層厚の値を図 9 に示す。推定範囲を絞り込むことで, 薄膜のヤング率と層厚の値が 10 % 未満の誤差で評価できていることがわかる。

3.2 超微小押込み試験

3.2.1 実験方法 2 層薄膜材に対して 2.2 節と同様に超微小押込み試験を行った。試料は炭素工具鋼 (SK5) にスパッタリングでチタンとクロムをそれぞれ 0.2 μm 成膜したものと, 0.4 μm 成膜したものの 4 種類である。得られた押込み曲線の一例として, チタンを 0.2 μm 成膜した試料で半径 3 μm の球圧子を用いた場合のものを図 10 に示す。2.2 節と同様に負荷と除荷のデータは一致しており, 弾性域内の変形といえることができる。

3.2.2 ヤング率と層厚の同時推定 実験で得られた値を式 (2) で近似してニューラルネットワークの入

Table 2 Estimated ranges of thickness and Young's modulus (for experimental data)

	Actual value		Estimated range	
	t_1 μm	E_1 GPa	t_1 μm	E_1 GPa
Ti	0.2	110	0.00 ~ 0.50	30 ~ 160
Cr	0.2	250	0.00 ~ 0.50	190 ~ 330
Ti	0.4	110	0.16 ~ 0.66	40 ~ 170
Cr	0.4	250	0.16 ~ 0.66	200 ~ 350

Fig.11 Estimated results of thickness and Young's modulus (for experimental data)

カデータを作成し, 3.1 節と同じネットワークにより薄膜のヤング率と層厚の推定を行った。表 2 に二つのネットワークにより絞り込まれた推定範囲を, 図 11 に範囲を限定して学習した二つ目のネットワークにより求めた推定値を示す。超微小押込み試験で得られるデータに対しても, シミュレーションと同様に薄膜のヤング率と層厚の値が適切に評価できていることがわかる。したがって, ヤング率と層厚の双方が未知である場合にも本研究で提案する手法は有効であり, イオン注入材の機械的特性を近似評価するためにも適用できるといえよう。

4. 結 言

超微小押込み曲線から多層薄膜材の機械的特性をニューラルネットワークを用いて評価する方法を検討した。有限要素法によって半径の異なる球圧子ごとに押込み荷重と押込み深さとの関係を求め、これらをネットワークの学習に使用した。単一のネットワークを用いた場合には推定精度が十分ではなく、層厚を既知とした4層薄膜材では、一つ目のネットワークでヤング率の推定範囲を絞り込み、二つ目のネットワークでその値を求めることが有効なことを示した。また、弾性特性と層厚がともに未知な2層薄膜材では、押込み深さの変化量を入力に用いることで同様にヤング率と層厚の範囲を絞り込んだあと、二つ目のネットワークで両者をともに正しく推定できることを示した。提案した方法はイオン注入材の近似特性評価にも適用することができ、超微小押込み試験の結果の解析に有効なことが明らかになった。

文 献

- (1) Nakano, S., Yamanaka, K., Ogiso, H. and Koda, T., "Functional Fabrication for Micro-Machine Elements Using High Energy Ion Implantation Technique", *Proc. 3rd Int. Symp. Micro Machine and Human Science*, (1992-10), 51-57.
- (2) Picraux, S.T. and Choyke, W.J., eds., *Metastable Materials Formation by Ion Implantation*, Elsevier Science, (1982).
- (3) Doerner, M.F. and Nix, W.D., "A method for interpreting the data from depth-sensing indentation instruments", *J. Mater. Res.*, 1-4, (1986), 601-609.
- (4) Pharr, G.M., Oliver, W.C. and Brotzen, F.R., "On the generality of the relationship among contact stiffness, contact area, and elastic modulus during indentation", *J. Mater. Res.*, 7-3, (1992), 613-617.
- (5) 加藤雄大, 室賀健夫, 岩井岳夫, 本島 修, "微小押込み試験技術を用いた MeV イオン照射材の硬度評価", 日本金属学会誌, 61-3, (1997), 191-198.
- (6) 杉浦眞佐, "ナノインデンテーションによるプラスチックとゴムの測定例", 非破壊検査, 47-6, (1998), 382-388.
- (7) 涌井 隆, 二川正敏, 田辺裕治, 衛藤基邦, "微小押込み試験法によるセラミックス腐食表層の力学特性評価", 機論, 65-640, A (1999), 2399-2404.
- (8) 多田真一郎, 石川晴雄, 結城宏信, 今井秀和, 中田 豊, "ニューラルネットワークを用いた超微小押込み曲線による多層積層材の機械的特性評価", 第1回マイクロマテリアルシンポジウム講演論文集, (2000), 19-20.

(1) Nakano, S., Yamanaka, K., Ogiso, H. and Koda,