

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 6 日現在

機関番号：11201

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25289119

研究課題名(和文) 傾斜磁区を有する高感度・超小型磁界センサ開発と局所領域の微小磁界計測への応用展開

研究課題名(英文) Development of miniaturized magnetic field sensor with higher sensitivity using inclined magnetic domain and its application for detection of localized weak field

研究代表者

菊池 弘昭 (Kikuchi, Hiroaki)

岩手大学・工学部・准教授

研究者番号：30344617

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,700,000円

研究成果の概要(和文)：磁性膜に高周波電流を直接通電し、磁界印加時の透磁率変化と表皮効果を利用した磁界センサの高感度・高機能・小型化について検討した。磁気異方性の方向がセンサ特性に及ぼす影響を系統的に調べ、傾斜磁区を有する素子で発生する不連続変化の要因を明らかにした。また、小型化で問題となる反磁界の影響について調べ、小型に適した形状を見出し、30ミクロン程度まで小型化したセンサの動作を実証した。非破壊検査応用を考慮し、Crの欠乏により局所的に腐食しやすくなるとステンレス鋼やインコネル合金が強磁性化する振る舞いを明らかにした。以上から局所的に強磁性化した箇所の磁気的非破壊評価の可能性を示した。

研究成果の概要(英文)：We tried to improve the sensitivity of a magnetic field sensor using thin-filmed ferromagnetic material and to miniaturize the sensor element. The effects of the anisotropy direction on the sensor behaviors were investigated, and the mechanism of discontinuous jump which is observed on the elements having inclined magnetic domain was clarified. The influence of demagnetizing effect was also investigated; the optimum shape was obtained and then the element having 30 micro-meters long were demonstrated. For the applications of nondestructive testing, the behaviors of transformations into ferromagnetic on SUS304 steel and Inconel600 alloy were clarified. The obtained results indicate a potential of local nondestructive testing using magnetism.

研究分野：計測工学

キーワード：磁界センサ 磁区構造 応力腐食割れ 強磁性

1. 研究開始当初の背景

原子力発電等のプラントの蒸気発生器細管においては応力腐食割れが問題となっている。応力腐食割れは、細管に用いられている SUS304 や Inconel600 といった材料が、高温化に晒されると Cr の欠乏を生じ、耐食性が低下するために生じる。通常、細管の材料は非磁性（常磁性）であるが、Cr 濃度の変化によりマルテンサイト変態温度やキュリー温度が変化し、局所的に強磁性化する。この磁性変化を起こす Cr 濃度と耐食性が低下する Cr 濃度範囲はおおよそ一致するため、磁気的非破壊評価の可能性がある。ただし、Cr 濃度低下は粒界に沿って局所的に生じるため、強磁性化も局所的であり、かつ、その磁界強度は微弱なものになる。よって、磁気的非破壊評価実現のためには、空間分解能が高く、かつ、高感度な磁界センサの開発が必要なる状況にある。

2. 研究の目的

本研究で用いる磁界センサにおいては、磁気異方性の方向が素子挙動に重要な役割を果たす。よって、系統的に異方性を制御し、素子の基礎的な振る舞いを明らかにするとともに、傾斜磁区を誘導した場合に観測される不連続特性のメカニズムを明らかにする。また、素子を小型化した場合、反磁界による感度低下が避けられない。そのため、反磁界の分布がセンサ特性に与える影響を定量的に検討し、小型化・高感度化の指針を得る。加えて、検査対象となる SUS304, Inconel600 において、熱時効した際の強磁性化の振る舞いを明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 試料準備

薄膜磁界センサ素子

フォトリソグラフィ技術及びスパッタ法により薄膜磁界センサ素子を作製した。用いた磁性体は CoZrNb アモルファス膜とし、磁性体の膜厚は 1-2 μ m とした。成膜後、磁界中熱処理により異方性の制御を行った。具体的には素子幅方向を 0 $^{\circ}$ として、磁化容易軸の方向を 0 から 90 $^{\circ}$ まで変化させた。電極には Cu を用いて、膜厚は 2 μ m とした。

SUS304, Inconel600 の熱時効材

SUS304, Inconel600 はそれぞれ溶体化処理を行った後、放電加工機を用いて 5mm \times 10mm \times 1mm の直方体試料に切り出した。試料は、真空中で熱時効を行い、熱処理後水急冷して、表面を研磨した。

(2) 薄膜磁界センサ素子の評価

ネットワークアナライザ (HP8752A) とウェ

ハープローブを用いて素子のインピーダンスを評価した。インピーダンス計測時には、ヘルムホルツコイルにより素子の長手方向に外部磁界を印加した。素子に通電する高周波電流の周波数は 1-1000 MHz とし、電力は -20~0 dBm とした。また、カー効果顕微鏡により素子の磁区観察を行った。

(3) SUS304, Inconel600 の評価

SUS304, Inconel600 の磁気特性評価には振動試料型磁力計 (VSM) を用いた。最大印加磁界は 20 kOe とした。局所的な強磁性化の様子は磁気力顕微鏡により観察した。その他、EMPA による組成分析や EBSD による内部組織観察を行った。

4. 研究成果

(1) 磁気異方性の方向と磁界センサ特性

図 1(a)には磁化容易軸の方向を変化させた場合の素子 (幅 20 μ m, 長さ 2mm, 膜厚 2 μ m) のインピーダンスの外部磁界依存性を示した。測定周波数は 100 MHz とした。容易軸角度が 0~40 $^{\circ}$ の時には 2 つのインピーダンスのピークが観測された。60 $^{\circ}$ 以上では磁界 0 の時にインピーダンスは最大となり、磁界印加とともにインピーダンスは低下した。図 1(b)はインピーダンスがピークを持つ磁界強度を磁化容易軸角度に対してプロットした図で、磁化容易軸角度の増加とともにピークを持つ磁界強度は低下した。図中ブルーで示した角度の範囲で不連続なインピーダンス変化が確認された。この不連続特性については単純磁区モデルを用いて説明できる。図 2

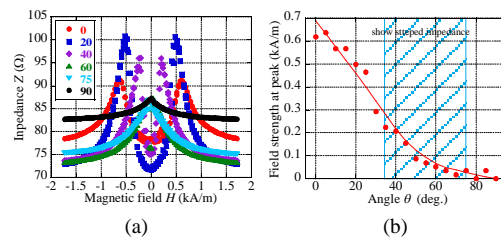


図 1 (a)インピーダンスの外部磁界依存性 (b) ピークを取る磁界強度の容易軸角度依存性

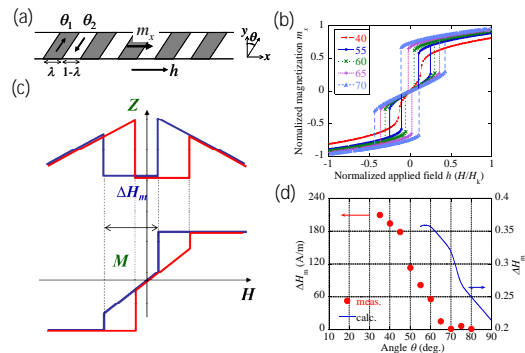


図 2 単純磁区モデル(a)とモデルを用いた磁化曲線の計算(b). 磁化曲線とインピーダンスの不連続との関係(c). 磁化曲線の不連続磁界強度の計算値とインピーダンスの不連続磁界強度の実測値(d).

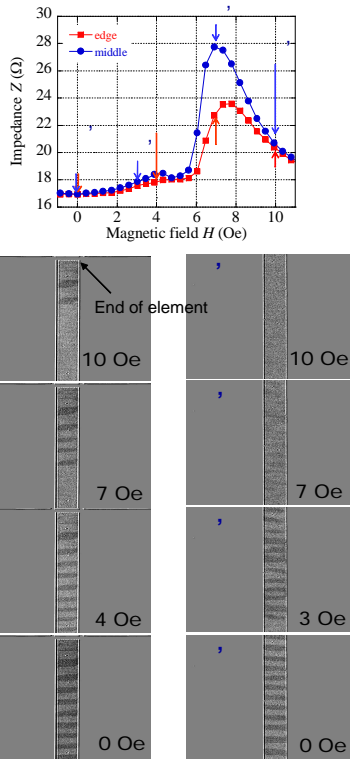


図 3 素子端部及び中央部におけるインピーダンスの外部磁界依存性と磁区観察(容易軸角度 0°)

にその概要をまとめる。(a)は単純磁区モデルの模式図を示したものである。180°磁区を持ち、各々の磁区の磁化は素子幅方向とそれぞれ θ_1, θ_2 の角度を有する。(b)は、単純磁区モデルを基に計算した磁化曲線を示した結果であり、磁化容易軸の角度の変化とともに磁化曲線にも変化が現れる。(c)は磁化曲線とインピーダンス変化の対応を模式的に示したものである。磁化曲線上で不連続が発生する磁界強度とインピーダンスの不連続が発生する磁界強度が対応する。(d)は単純磁区モデルから算出した不連続が発生する磁界強度とインピーダンスの不連続が発生する磁界強度の実験値を比較して傾斜磁区角度に対して示した図である。両者の変化の傾向は、定性的にはよく一致した結果となった。磁化曲線上で不連続が発生するのは、一方の磁区の磁化が一斉反転することに起因する。

(2) 反磁界が磁界センサ特性に及ぼす影響

センサ素子の小型化のためには素子長の低減が必須であるが、その場合、素子長手方向の反磁界の影響が無視できない。図 3, 4 は作製した 3mm 長さ素子(幅 20 μm , 膜厚 2 μm)において、その中央部と端部でインピーダンス特性を比較した図である。それぞれ容易軸角度が $0, 60^\circ$ の場合を示しており、いずれの場合も端部において素子特性が劣化していることを確認できる。これは反磁界の分布によるものである。図 5 は磁場解析により計

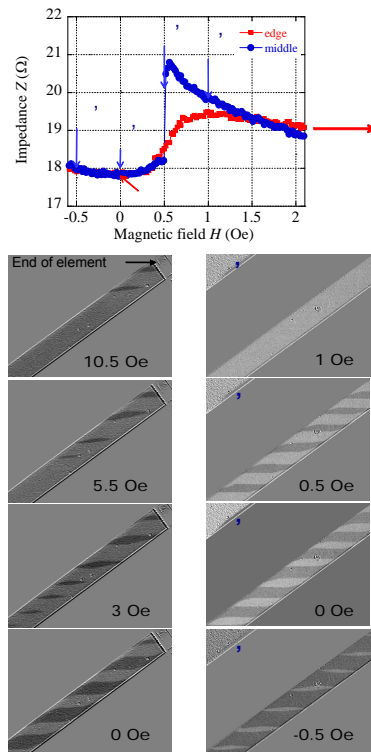


図 4 素子端部及び中央部におけるインピーダンスの外部磁界依存性と磁区観察(容易軸角度 60°)

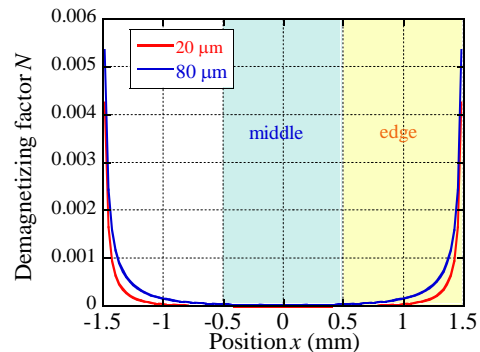


図 5 反磁界係数の分布(長さ 3mm, 膜厚 2 μm 素子, 素子幅: 20, 80 μm)

算した素子位置に対する反磁界係数の分布である。素子端部においてはその分布が非常に大きいことが明らかである。また、図 3, 4 には、それぞれの素子の端部、中央部における磁区観察結果も合わせて示した。素子端部では、磁区が伝搬して変化する様子が確認される一方、中央部では磁区が一斉に変化している。この結果も、反磁界分布の有無と対応する結果となっている。

(3) 素子の小型化の検討

反磁界の分布が素子特性に大きく影響を及ぼすことが明らかとなったので、反磁界を低減し、また、その分布を均一にする素子構造について検討を行った。図 6 は矩形と楕円形状素子における反磁界係数の分布を計算した結果である。楕円形状素子において反磁界の分布が均一化されていることが明らかである。図 7 は、矩形及び楕円形状素子の

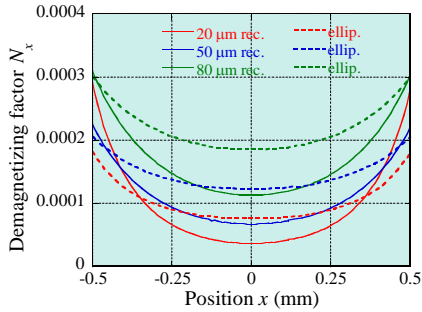


図6 反磁界係数分布 (矩形形状及び楕円形状)

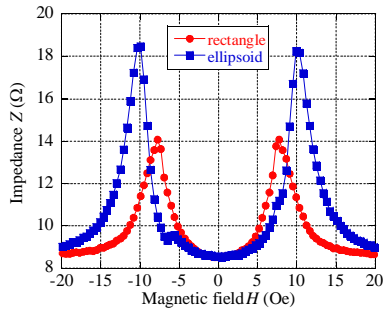


図7 インピーダンスの外部磁界依存性(幅 80μm, 長さ 1mm, 膜厚 2μm)

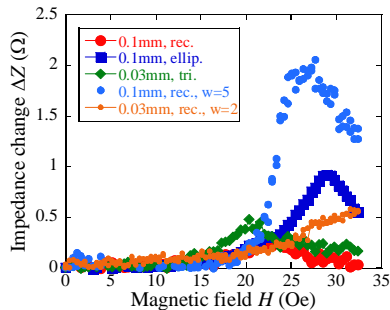


図8 インピーダンスの外部磁界依存性(形状工夫, FIB加工)

インピーダンスの外部磁界依存性を示した図である。素子幅は80μm, 素子長は1mm, 膜厚2μmである。楕円形状素子のインピーダンスの変化割合が矩形形状に比べて改善されていることを確認した。図8は, FIB加工による幅狭化や三角形形状による反磁界低減を実現して30μmまで小型化した素子においてインピーダンス変化を実現した結果を示した図である。三角形素子においては, 磁性体部の長さは100μmとしたが, 通電する素子部を30μmとしている。通電部における反磁界係数の分布や強度が矩形形状と比較して抑制できることは磁場解析により確認した。

(4) SUS304, Inconel600 の強磁性化

図9は, Inconel600合金を真空中, 600 で熱時効した場合の磁化曲線の変化を示した図である。時効前は常磁性特性を示し, 強磁性相を有していない。一方, 時効とともに強磁性化していることがわかる。SUS304でも同様の傾向が見られた。図10は, SUS304,

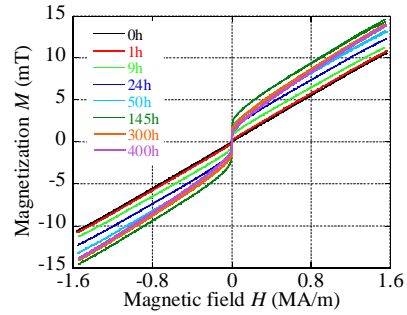
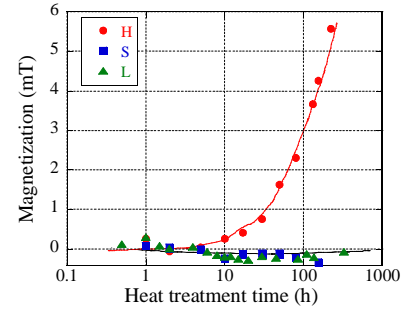
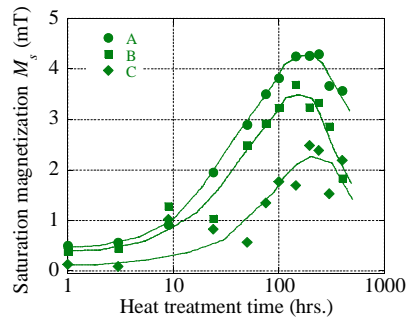


図9 磁化曲線 (Inconel600, 600)



(a) SUS304 (700)



(b) Inconel600 (600)

図10 飽和磁化の熱時効依存性

Inconel600 をそれぞれ 700, 600 で熱時効した際の, 強磁性成分の飽和磁化を時効時間に対して示したものである。SUS304 については, 炭素濃度が異なる場合の結果について示している。H, S, L の順に炭素濃度が高い。Inconel600 については粒径の大きさを変化させた場合について示している。A, B, C の順に粒径が小さい。SUS304 の H 材は時効時間の増加とともに飽和磁化が単調に増加した。S, L ではほとんど強磁性化が進んでいないことを確認できる。一方, Inconel600 では, 飽和磁化が 200 時間までは増加した後, 低下した。また, 粒径が小さいものほど, より強磁性化することがわかる。飽和磁化は粒径の 2 乗に反比例することを確認している。SUS304 については, 時効により Cr 濃度が低下し, マルテンサイト変態温度が上昇することで, 粒界に沿って強磁性化するので, 強磁性相は単純に増加する。一方, Inconel600 は局所的な Cr 濃度の低下でキュリー温度が上昇するため強磁性化するが, 時効が進むと Cr 濃度の回

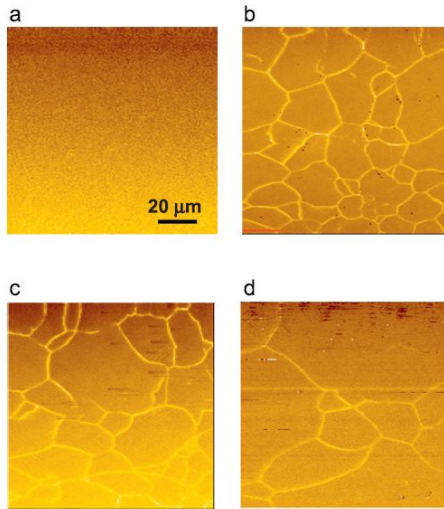


図 11 磁気力顕微鏡図 (Inconel600, 600 , a: 時効前, b: 試料 A・100h, c: 試料 B・100h, d: 試料 C・100h)

復が起こり、キュリー温度が再び低下するため、常磁性に戻る。図 11 は、粒界に沿った強磁性化を磁気力顕微鏡により確認した結果である。この強磁性化した部分が、Cr 濃度が低下した領域、すなわち、耐食性が低下した領域に対応している。

(5) 成果のまとめ

本研究では、薄膜 MI センサにおいて異方性を付与する方向が重要であるため、磁気異方性の方向がセンサ特性に及ぼす影響を系統的に調べ、その振る舞いが単純磁区モデルやバイアス磁化率の理論を用いて定性的に説明可能なことを明らかにした。また、素子の小型化のためには端部における反磁界の影響が避けられず、その制御方法について実験的、理論的の両面から検討を進め、楕円素子活用や先端形状の工夫により、素子長 30 μm まで小型化した素子の基本動作を実現した。また、応用先の一つとして検討している SUS304 鋼においては、通常非磁性であるが鋭敏化すると粒界に沿ってマルテンサイト変態して強磁性化し、時効時間の増加とともに飽和磁化が増加することを明らかにした。Inconel600 合金材料においては、粒径を変化させた試料を用いて強磁性化の熱処理時間依存性について検討した。粒径の 2 乗に反比例して飽和磁化が減少することを明らかにした。これらの知見は SUS304 や Inconel600 を用いた構造物におけるひび割れの危険性を高感度磁界センサにより検知する際の基礎データとなる。

5 . 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 8 件)

H. Yanagiwara, T. Murakami, H. Kikuchi,

Relationship between sensitization and magnetic characteristics in SUS304 stainless steel, International Journal of Applied Electromagnetics and Mechanics, 2016 (印刷中), 査読有。

H. Kikuchi, S. Oe, H. Uetake, S. Yabukami, T. Nakai, S. Hashi, K. Ishiyama, Enhancement of Sensitivity on Miniaturized Thin-film Magnetoimpedance with Ellipsoidal Element, Physics Procedia, Vol. 75, pp. 1271-1278, December 2015, 査読有。

DOI: 10.1016/j.phpro.2015.12.141

H. Kikuchi, S. Kamata, Y. Takahashi, T. Nakai, S. Hashi, K. Ishiyama, Improvement of stepped magnetoimpedance properties by controlling the demagnetizing effect, IEEE Transactions on Magnetics, Vol. 51, No. 11, pp. 4004304, November 2015, 査読有。

DOI: 10.1109/TMAG.2015.2441748

H. Kikuchi, S. Kamata, T. Nakai, S. Hashi, K. Ishiyama, Influence of demagnetizing effect on the GMI magnetic sensor elements fabricated using thin-film with uniaxial anisotropy, Sensors and Actuators A: Physical, Vol. 230, pp. 142-149, July 2015, 査読有。

DOI: 10.1016/j.sna.2015.04.027

H. Kikuchi, H. Takahashi, H. Yanagiwara, T. Murakami, Relationship between ferromagnetic properties and grain size of Inconel alloy 600, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, Vol. 381, pp. 56-64, May 2015, 査読有。

DOI: 10.1016/j.jmmm.2014.12.041

H. Kikuchi, S. Kamata, Y. Takahashi, T. Nakai, S. Hashi, K. Ishiyama, Investigation of driving power dependence on magnetoimpedance profiles of thin-film elements with uniaxial anisotropy, IEEE Transactions on Magnetics, Vol. 51, No. 1, pp. 4001204, January 2015, 査読有。

DOI: 10.1109/TMAG.2014.2358221

H. Kikuchi, Y. Takahashi, K. Takahashi, T. Nakai, S. Hashi, K. Ishiyama, Effects of direction of easy axis on the magnetoimpedance properties of thin film with uniaxial anisotropy, Journal of Applied Physics, Vol. 115, Issue 17, pp. 17A303, May 2014, 査読有。

DOI: 10.1063/1.4859095

H. Kikuchi, J. Kumano, T. Nakai, Y. Onodera, S. Hashi, K. Ishiyama, Effects of the shape of the elements on the properties of stepped giant magnetoimpedance, IEEE Transactions on Magnetics, Vol. 49, No. 7, pp. 4044-4047, July 2013, 査読有。

DOI: 10.1109/TMAG.2013.2243130

[学会発表](計 27 件)

住田千尋, 菊池弘昭, 植竹宏明, 藪上信, 柘修一郎, 石山和志, 低周波帯における磁性薄膜素子のインピーダンス変化増大とその要因の考察, 平成 28 年電気学会全国大会, 東北大学・仙台, 2016. 3. 16-18, 2-128.

菊池弘昭, 大江駿, 鎌田信吾, 植竹宏明,

藪上信, 中居倫夫, 柎修一郎, 石山和志, 反磁界分布に基づく磁性薄膜高周波インピーダンス解析と素子小型化の検討, 電気学会マグネティックス研究会, 山形大学・米沢, MAG-15-102, 2015. 9. 24, 25.

H. Yanagiwara, T. Murakami, H. Kikuchi, Relationship between sensitization and magnetic characteristics in SUS304 stainless steel, ISEM2015, Awajishima, Hyogo, Sep. 16-18, 2015, PS2-15.

大江駿, 菊池弘昭, 植竹宏明, 藪上 信, 中居 倫夫, 柎 修一郎, 石山 和志, 反磁界分布制御による磁性薄膜磁気センサの小型・高感度化に関する検討, 第 39 回日本磁気学会学術講演会, 名古屋大学・名古屋, 2015. 9.8 - 9.11, 9aD-1.

H. Kikuchi, S. Oe, H. Uetake, S. Yabukami, T. Nakai, S. Hashi, K. Ishiyama, Controlling of demagnetizing field distribution for miniaturization and improvement of sensitivity on thin-film magnetoimpedance element, 20th International Conference on Magnetism (ICM2015), Barcelona, Spain, July 5-10, 2015, Th.O-P22.

H. Kikuchi, S. Kamata, S. Oe, T. Nakai, S. Hashi, K. Ishiyama, Improvement of stepped magnetoimpedance properties by controlling demagnetizing effect, Intermag2015, Beijing, China, May 11-15, 2015, FR-04.

鎌田信吾, 大江駿, 菊池弘昭, 反磁界分布を考慮した磁気インピーダンス特性解析, 平成 27 年電気学会全国大会, 東京都市大学・東京, 2015. 3. 24-26, 2-133.

菊池弘昭, 鎌田信吾, 中居倫夫, 柎修一郎, 石山和志, 高周波キャリア型薄膜磁界センサの低周波領域における感度増加についての考察, 電気学会マグネティックス研究会, 岡山大学・岡山, MAG-14-185, 2014. 12. 3.

S. Kamata, H. Kikuchi, T. Nakai, S. Hashi, K. Ishiyama, Enhancement of impedance change in low frequency on thin-film magnetoimpedance element, The 59th Annual Magnetism and Magnetic Materials (MMM) Conference, Honolulu, Hawaii, USA, Nov. 3-7, 2014, BR-03.

菊池弘昭, 柳原宏樹, 高橋秀樹, 村上武, 磁気センサを用いたインコネル 600・SUS304 の鋭敏化の非破壊評価, 日本保全学会第 11 回学術講演会, 八戸工業大学・八戸, 2014.7.23-25, 1-2-C-2.

H. Kikuchi, S. Kamata, Y. Takahashi, T. Nakai, S. Hashi, K. Ishiyama, Investigation of driving power dependence on MI profiles of thin-film elements with uniaxial anisotropy, 10th European Conference on Magnetic Sensors and Actuators(EMSA2014), Vienna, Austria, July 6-9, 2014, TP17.

H. Kikuchi, H. Takahashi, H. Yanagiwara, T. Murakami, Relation between behavior of ferromagnetic properties and grain size in Inconel 600 alloy, Intermag2014, Dresden, Germany,

May 4-8, 2014, ET-11.

H. Kikuchi, S. Kamata, T. Nakai, S. Hashi, K. Ishiyama, Dependence of sensing position on the MI properties of elements fabricated using thin-film with uniaxial anisotropy, Intermag2014, Dresden, Germany, May 4-8, 2014, GW-05.

高橋秀樹, 柳原宏樹, 村上武, 菊池弘昭, Ni 基合金及びオーステナイト系ステンレスの熱鋭敏化による磁気特性変化, 電気学会マグネティックス研究会, 岩手大学・八幡平ロイヤルホテル, MAG-14-032, 2014. 3.27, 28.

鎌田信吾, 菊池弘昭, 中居倫夫, 柎修一郎, 石山和志, 素子端部と中央部における MI 特性と反磁界の影響, 平成 26 年電気学会全国大会, 愛媛大学・松山, 2014. 3.18-20, 2-126.

H. Kikuchi, Y. Takahashi, K. Takahashi, T. Nakai, S. Hashi, K. Ishiyama, Effects of direction of easy axis on magnetoimpedance properties of thin film with uniaxial anisotropy, The 58th Annual Magnetism and Magnetic Materials (MMM) Conference, Denver, Colorado, USA, Nov. 4 - 8, 2013, AR-06.

高橋洋介, 高橋健太, 小野寺雄紀, 菊池弘昭, 中居倫夫, 柎修一郎, 石山和志, 単純磁区モデルを用いた MI センサの不連続特性の考察, 第 37 回日本磁気学会学術講演会, 北海道大学・札幌, 2013. 9.3-9.6, 6aF-3.

高橋秀樹, 隅本雄貴, 菊池弘昭, インコネル 600 合金の鋭敏化・強磁性化に及ぼす粒径の影響, 第 37 回日本磁気学会学術講演会, 北海道大学・札幌, 2013. 9.3-9.6, 5pD-6.

菊池弘昭, 高橋健太, 小野寺雄紀, 高橋洋介, 中居倫夫, 柎修一郎, 石山和志, MI 特性に及ぼす容易軸方向及び端部素子形状の影響, 電気学会マグネティックス研究会, 信州大学・長野, MAG-13-034, LD-13-038, 2013. 6.20,21.

(他 8 件)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

菊池 弘昭 (KIKUCHI HIROAKI)

岩手大学・工学部・准教授

研究者号: 30344617

(2) 連携研究者

石山 和志 (ISHIYAMA KAZUSHI)

東北大学・電気通信研究所・教授

研究者番号: 20203036

柎 修一郎 (HASHI SHUICHIRO)

東北大学・電気通信研究所・准教授

研究者番号: 90324285

松尾 哲司 (MATSUO TETSUJI)

京都大学・工学部・教授

研究者番号: 20238976

竹澤 昌晃 (TAKEZAWA MASAOKI)

九州工業大学・工学部・准教授

研究者番号: 20312671