

博士論文

バルクハウゼン効果に基づく

高強度 Fe-Co 磁歪合金の応答特性に関する研究

A study on response characteristics of high-strength
Fe-Co magnetostrictive alloy based on Barkhausen effect

横浜国立大学大学院

工学府

山崎 貴大

Takahiro Yamazaki

2019年3月

論文要旨

本研究は、磁歪材料において磁化過程で発生するバルクハウゼン効果に着目し、そのノイズ発生に関する磁壁の移動挙動と金属組織の相関性の解明を目的としたものである。特に、外部磁場や衝撃荷重により誘起されるバルクハウゼンノイズの応答特性を評価・解析することで、外力により発生する応力状態やひずみ、転位密度の定量的な評価手法を確立し、バルクハウゼンノイズを利用した全く新しい応力・ひずみ損傷センサを提案した。その結果を以下のようにまとめる。

(1) 本研究で用いる $\text{Fe}_{30}\text{Co}_{70}$ 合金の金属組織と磁気・磁歪特性の相関性の検証を行った。特に、組織パラメータとして結晶粒径と転位密度に着目した。磁壁移動の阻害要因となる結晶粒径の増大と転位密度の減少により、保磁力の減少(0.22倍)と磁歪感受率の増大(3.5倍)を示し、最大で 91.2 mJ/s の出力電力を示した。結晶粒の回復・再結晶に起因する転位や内部ひずみの消失により、磁歪を誘導する磁壁移動や磁化回転の抑制作用が軽減されたからであると考えられる。

(2) バルクハウゼンノイズの発生挙動に及ぼす弾性変形領域における格子ひずみの影響を検証した。応力下で計測可能なバルクハウゼンノイズ検出システムを構築し、その発生機構の検討を行った。その結果、材料内部に発生する引張応力の増加に伴い、バルクハウゼンノイズ波形の低周波成分の増大を確認した。更に、バルクハウゼンノイズ実効値は応力範囲 $0\text{-}500 \text{ MPa}$ までの弾性領域において良好な線形増加を示した。その応力感度は最大 0.27 mV/MPa を示し、磁歪材料の飽和磁歪量に依存することを明らかにした。

(3) 塑性ひずみにより蓄積される損傷がバルクハウゼンノイズに及ぼす影響を評価した。中断試験により塑性ひずみを付与した試験片の転位密度を算出し、バルクハウゼンノイズ実効値との相関性評価を実施した。その結果、転位密度の増加に伴い、バルクハウゼンノイズ出力電圧は線形的に減少し、一定の損傷度でバルクハウゼンノイズが消失することを示した。そのバルクハウゼンノイズと転位密度の関係から、バルクハウゼンノイズが消失しない損傷領域でのひずみ損傷の推定が可能であることを示し、印加磁場速度の増加により、定量的に評価可能な損傷範囲が増大することを明らかにした。

(4) 衝撃荷重により誘起されるバルクハウゼンノイズの発生挙動を調査した。試験片に衝撃荷重が作用するようなエポキシ樹脂との円筒形磁歪複合材料を作製し、衝撃圧縮試験によるバルクハウゼンノイズの応答特性の評価・解析を行った。バイアス磁場下における圧縮応力の作用により発生したバルクハウゼンノイズは、磁化過程における逆磁区の発生とその磁壁移動に起因すると考えられる。更に、作用する応力速度の増加に伴い、バルクハウゼンノイズ実効値は線形的に増大することを示した。

Abstract

This paper describes Barkhausen effect and the mechanical response characteristics in the magnetostrictive materials. In this study, the correlation between the domain wall movement and the microstructure was investigated by measuring Barkhausen noise (BHN) generated in the magnetization process. The quantitative evaluation methods of stress state, strain and dislocation density were proposed for the novel sensors for stress and strain damage using BHN. The results are summarized as follows.

(1) The correlation between the microstructure and the magnetic and magnetostrictive properties of textured $\text{Fe}_{30}\text{Co}_{70}$ alloy wire was investigated. Due to an increase in crystal grain size and a decrease in dislocation density which are the factors impeding domain wall movement, it was revealed that the coercivity was decreased (0.22 times at most) and the magnetostrictive susceptibility was increased (3.5 times at most), and an output power amount of 91.2 mJ/s. It is considered that the disappearance of internal strain and dislocation caused by restoration and recrystallization of crystal grains.

(2) The effect of lattice distortion in the elastic deformation region on BHN was investigated. BHN measurement system that can be measured under tensile stress was newly established. From the FFT analysis of BHN spectrum, it was revealed that the shift to the low-frequency region was mainly induced by the crystal grain. The root-mean-square (RMS) values of BHN showed good linearity up to 500 MPa which is in the elastic range. The stress sensitivity which might be related to the saturation magnetostriction was a maximum of 0.27 mV/MPa.

(3) The influence of damage accumulated by plastic strain on BHN was evaluated. The plastic strain was induced by the interruption test. The RMS values of BHN were decreased linearly as the dislocation density increased. This indicated that BHN disappeared with a certain degree of damage accumulation due to the increase of the potential energy of domain wall movement. It is shown that the strain damage range that can be evaluated quantitatively increased by increasing the velocity of the applied magnetic field.

(4) Stress-driven BHN was evaluated by the impact compression test. The epoxy/magnetostrictive composite was fabricated. By applying the dynamic stress to the composite, the stress-driven BHN generation was investigated. BHN generated is thought to be caused by the generation of reverse magnetic domains and the magnetic domain wall movement in the magnetization process.

目次

第 1 章	序論	1
1.1	背景	
1.1.1	エネルギーハーベスティングの拓く IoT 社会	2
1.1.2	スマート材料・構造システム	6
1.2	磁歪材料	
1.2.1	磁歪	8
1.2.2	先行研究	13
1.2.3	Fe-Co 系磁歪合金	16
1.3	バルクハウゼン効果	
1.3.1	バルクハウゼンノイズ	21
1.3.2	先行研究	26
1.3.3	応力誘起型バルクハウゼンノイズ	31
1.4	現状の課題と本研究の目的	34
1.5	本論文の構成	35
	参考文献 1	36
第 2 章	Fe-Co 磁歪合金ワイヤの磁気的特性に及ぼす金属組織の影響	43
2.1	はじめに	44
2.2	実験方法	
2.2.1	供試材	46
2.2.2	金属組織解析	47
2.2.3	磁気・磁歪特性評価	47
2.2.4	鋼球落下試験による出力発電特性評価	48
2.3	実験結果及び考察	
2.3.1	金属組織への熱処理効果	49
2.3.2	磁気・磁歪特性に及ぼす金属組織の影響	52
2.3.3	発電出力特性に及ぼす磁気・磁歪特性の影響	54
2.4	本章のまとめ	56
	参考文献 2	57

第 3 章	応力下におけるバルクハウゼンノイズ発生挙動とその特性評価	59
3.1	はじめに	60
3.2	実験方法	
3.2.1	供試材	62
3.2.2	バルクハウゼンノイズ測定装置のセットアップ	62
3.2.3	バルクハウゼンノイズ計測	63
3.2.4	周波数解析	64
3.3	実験結果	
3.3.1	低磁場および高磁場領域における BHN プロファイル	65
3.3.2	周波数スペクトル	68
3.4	考察	
3.4.1	応力センサ特性	71
3.4.2	バルクハウゼンジャンプ	73
3.5	本章のまとめ	75
	参考文献 3	76
第 4 章	バルクハウゼンノイズ解析によるひずみ評価と損傷度予測	79
4.1	はじめに	80
4.2	実験方法	
4.2.1	供試材	82
4.2.2	引張・中断試験	82
4.2.3	結晶構造解析	83
4.2.4	硬さ測定	83
4.2.5	バルクハウゼンノイズ出力特性評価	84
4.3	実験結果	
4.3.1	転位密度に及ぼすひずみ付加の影響	85
4.3.2	バルクハウゼンノイズ波形に及ぼす転位密度の影響	86
4.3.3	バルクハウゼンノイズ実効値	87
4.4	考察	88
4.5	本章のまとめ	90
	参考文献 4	91

第 5 章	応力誘起型バルクハウゼンノイズの検出と応答特性	93
5.1	はじめに	94
5.2	応力誘起による磁壁挙動	95
5.3	実験方法	
	5.3.1 磁歪複合材料	97
	5.3.2 出力電圧測定	98
5.4	実験結果	
	5.4.1 応力誘起型 BHN の応答特性	100
	5.4.2 クロスヘッド速度依存性	101
	5.4.3 応力感度	102
5.5	考察	
	5.5.1 BHN の応答性に影響する材料パラメータ	104
	5.5.2 SI-BHN の発生機構と特徴	105
5.6	本章のまとめ	107
	参考文献 5	108
第 6 章	結論	111
6.1	総括	112
6.2	今後の展望	113
付録		115
S1	Fe-Co 磁歪合金ワイヤにおける磁区構造・磁壁移動観察	116
S1.1	はじめに	116
S1.2	理論	116
S1.3	実験方法	
	S1.3.1 供試材	117
	S1.3.2 磁気カー効果顕微鏡	117
S1.4	観察結果	118
S1.5	まとめ	120
	参考文献 S1	120
S2	バルクハウゼンノイズに及ぼす計測システムの検討	121
S2.1	はじめに	121
S2.2	バルクハウゼンノイズに及ぼす測定条件の検討及び課題の抽出	122
S2.3	コイル特性および配置条件	
	S2.3.1 コイル特性およびその磁場強度分布	122
	S2.3.2 検出部の検討	125

S2.3	磁化コイルの磁場勾配の影響評価	126
S2.4	荷重負荷条件の検討	
S2.4.1	引張試験機による電磁ノイズ及び, 機械的ノイズの影響評価	127
S2.4.2	引張冶具による荷重負荷の影響評価	130
S2.4.3	サンプリングレートの違いによる波形評価	133
S2.5	まとめ	135
	参考文献 S2	135
	研究業績一覧	137
	謝辞	141

List of Abbreviations and Symbols

Abbreviations

AI	Artificial Intelligent
BHN	Barkhausen noise
DW	Domain wall
DD	Drawing direction
EBSD	Electron backscatter diffraction
EH	Energy harvester
FC	Field cool
FE-SEM	Field Emission Scanning Electron Microscopes
FI-BHN	Field-induced Barkhausen noise
FWHM	Full width at half maximum
GB	Grain boundary
IoT	Internet of Things
IPF	Inverse pole figure
LSD	Linear spectral density
MEMS	Micro-electro mechanical systems
NEMS	Nano-electro-mechanical systems
PF	Pole figure
PSD	Power spectral density
PZT	Lead Zirconate Titanate, $\text{Pb} [\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x}] \text{O}_3$
RMS	Root mean square
SI-BHN	Stress-induced Barkhausen noise
TD	Transverse direction
VSM	Vibrating-sample magnetometer
WQ	Water Quench

Greek Symbols

λ'	[m]	wavelength of Cu $K\alpha$
λ	[ppm]	Magnetostriction strain
λ_{100}	[ppm]	Magnetostriction strain to [100]
λ_{111}	[ppm]	Magnetostriction strain to [111]
λ_0	[ppm]	Spontaneous magnetostriction
λ_S	[ppm]	Saturation magnetostriction
μ	[H/m]	Permeability

μ_0	[H/m]	Permeability at free space
μ_r	[-]	Relative Permeability
ε	[-]	Strain
ε_n	[-]	Normal strain
σ'	[s]	Time between Barkhausen pulses
σ	[MPa]	Stress
σ_0	[MPa]	Normal Stress
ρ	[m ⁻²]	Dislocation density
τ	[s]	Time during a single Barkhausen pulse
Φ	[Wb]	magnetic flux

Roman Symbols

B	[T]	Magnetic flux density
B_r	[T]	Remanence
b	[-]	Burgers vector
D	[m]	Crystallite size
d	[ppm·m/A]	Magnetostrictive susceptibility (= $d\lambda/dH$)
E	[V]	Voltage induced by a single Barkhausen jump
f	[Hz]	Frequency
H	[A/m]	Magnetic field intensity
H_0	[A/m]	Coercivity
K_1	[J/m ⁻³]	Anisotropy constant
k	[-]	Turn number of coil
l_p	[m]	Length of Barkhausen noise
M	[A/m]	Magnetization
M_s	[A/m]	Saturation magnetization
N	[-]	Number of Barkhausen jump
P	[N]	Load
s	[m ² /N]	Elastic compliance
t	[s]	Time
v_w	[m/s]	Velocity of domain wall
V_{out}	[V]	Output voltage
V_{BHN}	[V]	Barkhausen noise voltage
V_{RMS}	[V]	Root-mean-square value of Barkhausen noise
x	[m]	Displacement

第 1 章

序論

概要

第 1 章では、本研究の背景及び先行研究について述べると共に、解決すべき課題と研究目的について述べた。初めに、エネルギーハーベスティングにより拓かれる IoT 社会を背景に、センサ・アクチュエータ材料としての磁歪材料について述べた。特に、代表的な磁歪材料である Terfenol-D や Galfenol の諸特性と比較しながら、Fe-Co 系磁歪合金の特徴と先行研究を示した。次に、機械・構造物の構造ヘルスマモニタリングの応用に向けて、バルクハウゼン効果を利用した応力測定および損傷診断に関する特徴と先行研究を述べた。それらを踏まえ、磁歪材料を用いたセンサ応用に向けた課題を明らかにし、本研究の目的と解決方策について述べた。最後に、本論文の構成を示した。

1.1 背景

1.1.1 エネルギーハーベスティングの拓く IoT 社会

実世界における人やモノ、モノを正確に「はかる」ことの需要がますます高まっている。その背景に、世界ではICT機器の爆発的普及、AI(人工知能)、ビッグデータ、IoT(モノのインターネット)技術などの社会実装が進み、社会のあらゆる場面でデジタル革命の新しい波が押し寄せている。

このような高度な情報通信技術が浸透した「Society5.0」が実現するためには、フィジカル空間における人の情報や機器の作動情報、環境情報などのあらゆるデータの収集が求められる。特に、サイバー空間で蓄積・解析されることにより、その取得データが高付加価値な情報へ昇華され、これらの情報が、適時適切にフィジカル空間で有効にフィードバック・活用する仕組みの構築が重要となる。例えば、**Fig. 1-1**に示したように、自動車や橋梁(フィジカル空間)から得られた振動を元に、センサ素子や各信号処理を介した情報がクラウド上(サイバー空間)で蓄積・分析される。そのフィードバックの恩恵として、最適な運転モードの提案や構造の健全性診断を享受できる[1]。

こうした実世界を意識したIoTは、世界規模で表面化する社会問題(少子高齢化、環境問題、都市問題、交通問題、エネルギー問題など)に解を与える技術として今後の重要なトレンドとなる。

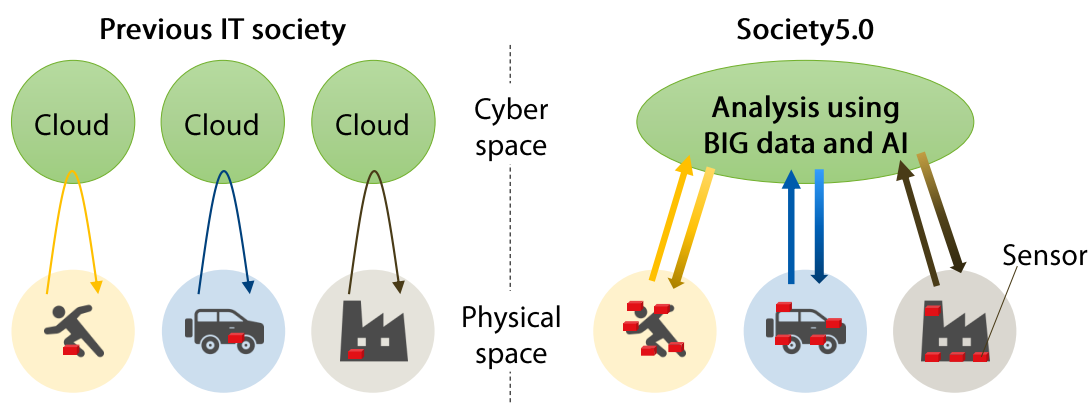


Fig. 1-1 Building Society5.0 of a mechanism to effectively utilize and feedback data in physical space and cyber space [1].

データ収集システム実現の要素技術の1つであるセンシングは、実世界の人間に関する情報や環境情報、物・事象が持つ情報などを正確に把握するための重要な役割を果たす。2016年1月22日内閣府により閣議決定された「第5期科学技術基本計画」[2]では、IoTシステム構築を含む超スマート社会サービスプラットフォームの形成(Society5.0)に貢献する基盤技術が、その戦略的強化事項として指定されている。

また、JEITAの「センサ・グローバル状況調査」[3]によれば、2016年におけるセンサの世界出荷

数量は245億個、その金額は1兆7千億円程度であり、共に前年を下回っているものの、5年連続で200億個を超え、4年連続で1兆円超えを継続しているなど、順調に成長していることがわかる。さらに、2019年には500億個[4,5]のセンサがインフラ設備や工場などの至る所に設置され、2023年ごろには毎年1兆個ものセンサの活用する「Trillion Sensors Universe (トリオンセンサ社会)」の実現[6]、更には、**Fig. 1-2**に示すように、その後のセンサ需要も加速度的に増大していく見通し[7]が立てられている。

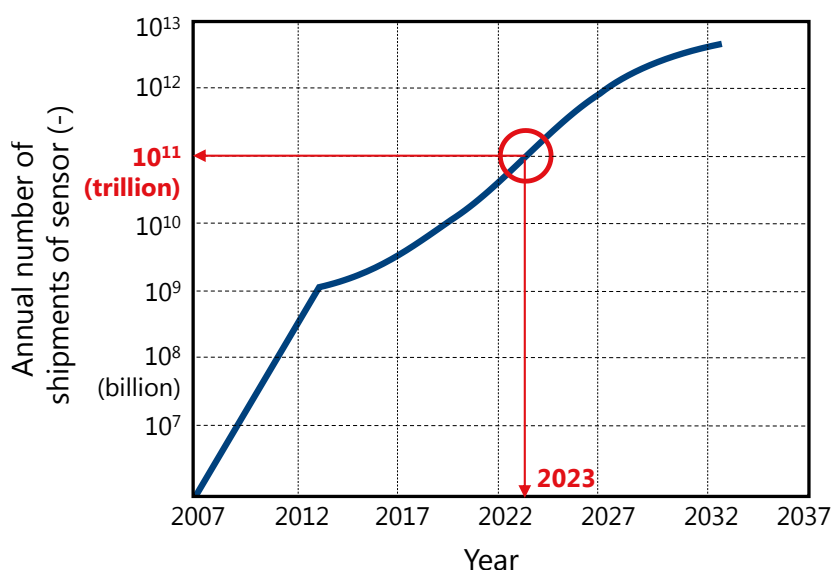


Fig. 1-2 Roadmap of sensor shipments per year. Realization of trillion sensors in 2023 (red circle) [7].

しかしながら、先に示した人間生活の革新とそれを取り巻くエネルギー政策には、大きな矛盾を抱えている。それは今後ますます必要となる膨大な数のセンサデバイスに対して、電力供給をどのような戦略を採るべきであるかが不透明であり、従来ながらの大規模な発電所による集中型発電（電源）や電池のような一度蓄えられたエネルギーの消費による方法では、多数分散した消費電力を賄うことが到底困難であるからである。また、そのような膨大な数の電子デバイスの1つ1つに電源配線や電池を備え付けることは、電池交換時の大きな手間になるだけでなく、消費電力的・資源的にも非現実的である。

このような従来の消費型エネルギーの概念を抜本的に変革する技術として、エネルギーハーベスティング[8-13]が注目されている。この技術を導入することで、今後生産される多くのセンサを“蓄えたエネルギーを消費するデバイス”から“使うときだけエネルギーを創出するデバイス”に変革することが可能となる。近年では、このように身の回りの自然エネルギーから回収した電力を有効利用するための蓄電技術の進展、センサや無線技術に関する低消費電力化も相まって、その適用領

域の拡大が想定されている。さらには、電池の寿命や電源配線による複雑な構造・システムから開放されることで、省人化や省エネルギー化、効率化の実現も期待されている。

エネルギーハーベスティングの原理の多くは、自然界の物理化学現象に基づいており、振動(人や機械・構造物、空気などの流体)や電磁波(光、電波)、熱(温度差)などの自然エネルギーを利用する。これらは、 $\mu\text{W}\sim\text{W}/\text{cm}^3$ 程度の微小電力のエネルギー変換技術となり、近年の超低消費電力デバイスの開発[8]により、通信に要する消費電力を十分賄うことが出来ると期待される。

特に、振動などの力学的エネルギーは環境中に偏在しており、利用しやすいエネルギーの1つである。例えば、コイルと磁石の相対運動の利用した電磁誘導方式や、圧電材料や磁歪材料などのスマート材料を媒介して電力を生み出す発電機構も注目されている。このように、力学的エネルギーを捕捉し電気エネルギーに変換する発電技術は、振動エネルギーハーベスティングと呼ばれている。

Fig. 1-3に実環境に存在する振動エネルギー分布[9,10]を示す。対象とする振動周波数やそのエネルギー密度が大きくなるにつれて、それらの衝撃に耐える機械的強度が重要となるとともに、人の動きやインフラ構造物、移動体、機械など発生するそれぞれの周波数に最適な発電機構の選択が必要である。近年、市場が徐々に拡大してきており、具体的な製品例として、ワイヤレススイッチ[11]やトイレの自動水栓[12]、プラントでの回転機械モニタリング[13]用途などが挙げられ、商業的に一定の成功を収める例も出てきている。

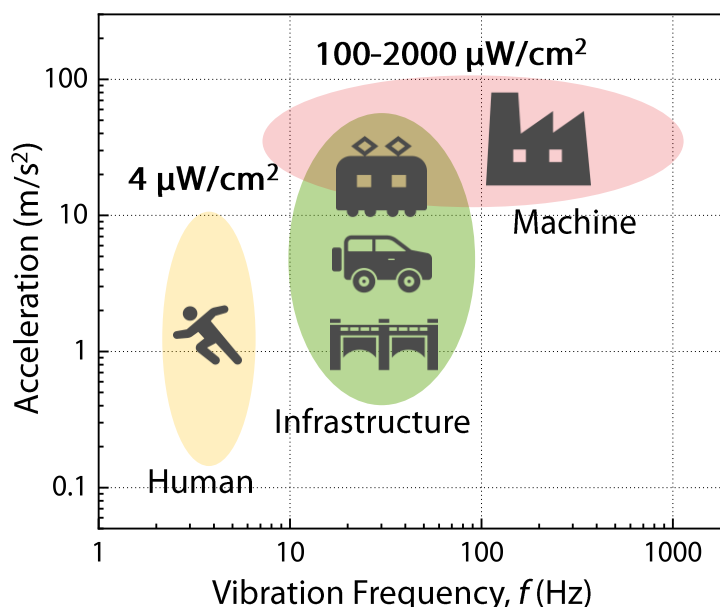


Fig. 1-3 Acceleration distribution map of vibration energy resources[9].

しかしながら、上述した力学的エネルギーを利用した発電機構はそれぞれ欠点を有するため、現状では適用範囲が限定的[14]であり、更なる改善が求められる。具体的には、磁石とコイルの相對運動の利用した電磁誘導では、小型化が難しい。静電誘導や圧電材料では、内部抵抗が高いため出力電圧が高いものの、耐久性の面でやや劣ってしまう。また、詳細については後述するが、磁歪材料に関しては、PZTを代表とする圧電材料と同程度の出力電力を得るためには、Terfenol-Dなどの高コスト、脆性な材料が用いる必要があった。そのため、適用可能な振動環境や利用目的に見合った発電条件を模索している段階でもある。

さらに、近年のMEMS(マイクロ電気機械システム)やNEMS(ナノ電気機械システム)の例が挙げられるような小型化した電子デバイスへの搭載を想定した、発電素子の小型化や力学的過酷環境でもそのロバスト性を十分発揮できるような材料開発が求められている。

一方で、このようなエネルギーハーベスティングに関する一連の研究で得られた、知的機能素子(スマート材料・構造システム)における高いエネルギー変換機構に着目したセンサ・アクチュエータ研究が盛んに行われている。このようなスマート材料・構造システムは、機械構造物の多機能化や省エネルギー化を実現し、次世代の産業育成上の重要な技術領域としてその役割を果たすことが期待されている。上述したセンサの高い需要に応え、より安心安全な社会構築に不可欠なセンサ・アクチュエータ機能の創出が求められる。

1.1.2 スマート材料・構造システム

外界の環境変化に対して自律的かつ最適な応答を示すスマート機能が注目されている。スマート機能とは、外的刺激に対して機械・構造物自体が柔軟に変化するセンサ機能, その変化に対して応答するアクチュエータ機能, 適切な判断を行うプロセッサ機能の 3 つの機能を合わせた総称であり, これらの機能を組み込んだシステムはスマート材料・構造システム[15]と呼ばれる。1980年代後半から盛んに行われるこれらの研究開発に伴い, 広範囲の周波数応答や大出力・大変位へと性能を向上させたアクチュエータ機能や高感度や複数機能を有するセンサ機能への要求が一層高まっている。1.1.1 節で記したセンサ需要に併せて, 機械・構造物自身のスマート化によるアクチュエータ機能の需要も増加したこと, さらにそれらを組み合わせる制御システムと複合化した応用が求められてきたことにも連動している。

代表的な力センサとして, ひずみゲージや光ファイバ, 圧電材料, 磁歪材料などを利用したデバイスが挙げられる。これらは外部環境の変化に対して高い感度と優れた応答特性を示すことが求められる。一方で, アクチュエータには電導モータや形状記憶合金, 圧電材料, 磁歪材料などが挙げられ, 外界変化に対する応答速度や変位精度, 繰り返し動作の再現性などが重要となる。これらのセンサ・アクチュエータに関する特徴[16-21]を **Table 1-1** に示す。これらの比較により, 圧電材料と磁歪材料はセンサおよびアクチュエータとしての両機能を正逆に利用できることがわかる。

Table 1-1 Principle and characteristics of stress-strain measurement technology [16-21].

Measurement technology	Principles	Direct/Indirect	Pros.	Cons.	Typical designs
Strain gauge	electric resistance	direct	<ul style="list-style-type: none"> • simple construction • high and adjustable resolution • high reliability 	<ul style="list-style-type: none"> • higher power consumption • rigid and fragile • scarce reproducibility 	[16]
Opto-Electronic	light interference fringes	direct	<ul style="list-style-type: none"> • good reliability • wide measurement range • good adaptability to workshop conditions 	<ul style="list-style-type: none"> • non-conformable • hard to construct dense array 	[17]
Piezo-Electric	piezoelectric effect	direct	<ul style="list-style-type: none"> • high frequency response • high dynamic range • rangeability • higher accuracy and finer resolution • high sensitivity and stiffness 	<ul style="list-style-type: none"> • charge leakages • poor spatial resolution • deteriorations of voltages or drifts in the presence of static force 	[18, 19]
Magnetostrictive	inverse magnetostrictive effect	indirect	<ul style="list-style-type: none"> • simple construction • high frequency response • good thermal hysteresis • high sensitivity and stiffness 	<ul style="list-style-type: none"> • applied to existing steel materials • poor spatial resolution • weak of magnetic flux leakage 	[20, 21]

また、各種センサ・アクチュエータとそれらの機能発現は、スマート材料・構造システムの基盤となる相互エネルギー変換に密接な関係を有している。Fig. 1-4 にそれぞれのエネルギー変換に基づく相変態メカニズム[22]を模式的に示した。例えば、電気エネルギーと機械的エネルギーの相互変換を利用する圧電材料に関しては、応力が作用した際に電荷が生じる圧電効果と、電圧を印加した際にひずみが生じる逆圧電効果が発現する。同様に、磁気エネルギーと機械的エネルギーの相互変換を利用した磁歪材料に関しては、磁場を印加した際にひずみが生じる磁歪効果と、応力を作用させた際に磁束変化を生じる逆磁歪効果が発現する。

このような同一材料内で生じるセンサ・アクチュエータ機能の同時発現の利用は、機械・構造物のスマート化や構造システムにまで拡張が可能となる。上で挙げた材料・センサシステムのうち、磁歪材料は非接触での検知・動作が可能であることから、外部制御による簡易なメンテナンスが実現する。

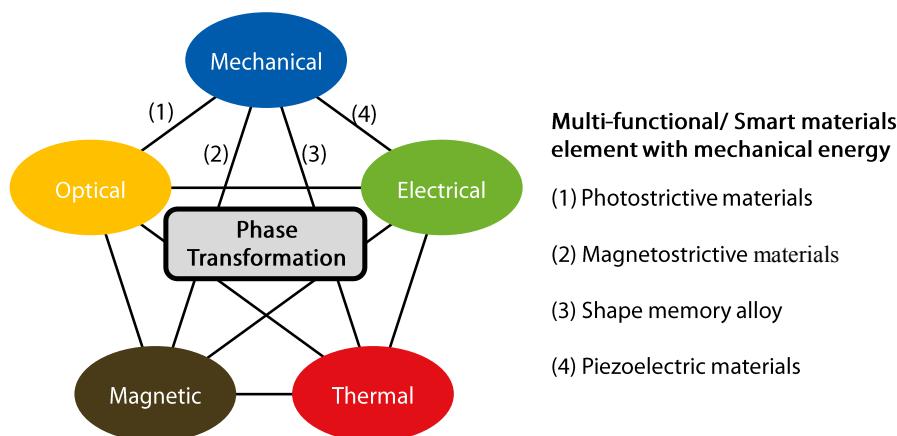


Fig. 1-4 Schematic diagram of energy conversion system through phase transformation in smart materials / structural system[22].

さらには、単一の材料・構造システムで発現するセンサ・アクチュエータ機能に、先述した身の回りの自然エネルギーを利用するエネルギー回生機構を加えることで、電池・配線のない自立型ワイヤレスセンサの実現が期待できる。これらの環境発電を利用することで、現在の「受動的なセンサ」から、定常的な情報発信可能な「能動的なスマートセンサ」に変えることができ、「センサ」の概念が抜本的に変革できる。これらは、発電所や工場でのエネルギー機器等の保守点検労力を軽減化でき、構造ヘルスマニタリング[23]への応用することにより、省エネ・機器保全分野における基盤技術となることが期待される。実際に、磁歪材料を用いた自律給電式のワイヤレスセンサ[24]も 2007 年に既に提案されており、実用化されている。

以上の背景を踏まえると、環境中に分散して存在する自然エネルギーやその情報を、スマート材料・構造システムを介して回収・蓄積・分析・利用することで、自らの発電電力を電源にしたワイヤレスセンサ・アクチュエータへの展開が可能となる。更に、これらの技術は、前述した IoT 社会や電力問題に対する新たな解決策を提供することができる。

1.2 磁歪材料

1.2.1 磁歪

強磁性体内部では原子のミクロな磁気モーメント(スピン)の配列により, 磁区構造(**Fig. 1-5**)を形成している. また, その磁区と磁区を境界となる磁気モーメントの遷移領域は磁壁(**Fig. 1-6**)と呼ばれる. **Fig. 1-7**には磁気モーメントと磁歪の関係を模式的に示した. まず, 外部磁場を印加していない時, 磁区内の磁気モーメントはそれ自体の自発磁化により, 磁気秩序を有しているが, 材料全体で見ると, 各磁区の磁化方位はランダムな分布を示す. 次に, 外部磁場の印加した際には, 磁気モーメントが回転し, 磁場方向と同一方向に向きをそろえる. これらの磁化回転に伴い各磁区内での磁化およびそのひずみはその向きを変えるので, 全体として形状が変化する.

一方で, 自発磁化が消失するキュリー温度以上では, 強磁性体は強磁性(ferromagnetic)から常磁性(paramagnetic)へ移行するため, 磁気ひずみも消失している. 温度が下がってくると材料内の静磁エネルギーと磁壁エネルギーの兼ね合いにより, 磁区構造や磁壁の特性が定まる. ここで, 単結晶の磁歪材料における磁歪(λ)は, 磁場を印加することにより, 全体の長さ(l)に対して, 微小長さ(Δl)だけ変化したとすると, 以下のように与えられる.

$$\frac{\Delta l}{l} = \lambda \quad (1-1)$$

ここで, 強磁性体がキュリー温度以上の温度のように, 磁気秩序をもたない(常磁性)と見なした場合において, 自発磁化による各磁区における自発ひずみ(ε)は, 材料内において特定の角度(θ)で発生している(**Fig. 1-7(i)**)とすると,

$$\varepsilon(\theta) = \varepsilon \cos^2 \theta \quad (1-2)$$

と示すことができる. さらに, これらのランダムな磁化方位を有する全ての磁区に対して, その自発ひずみの平均を取る(**Fig. 1-7(ii)**)と, 以下のように算出することが出来る.

$$\lambda_0 = \int_0^{\pi/2} \varepsilon \cos^2 \theta \sin \theta = \frac{\varepsilon}{3} \quad (1-3)$$

さらに, 外部磁場により強磁性体の磁化まで飽和している場合, その全ての磁区は同一方向に自発ひずみを有している(**Fig. 1-7(iii)**)ため, 最大磁気ひずみ(磁歪 λ_s)は,

$$\lambda_s = \varepsilon - \lambda_0 = \frac{2}{3} \varepsilon \quad (1-4)$$

のように求めることが出来る.

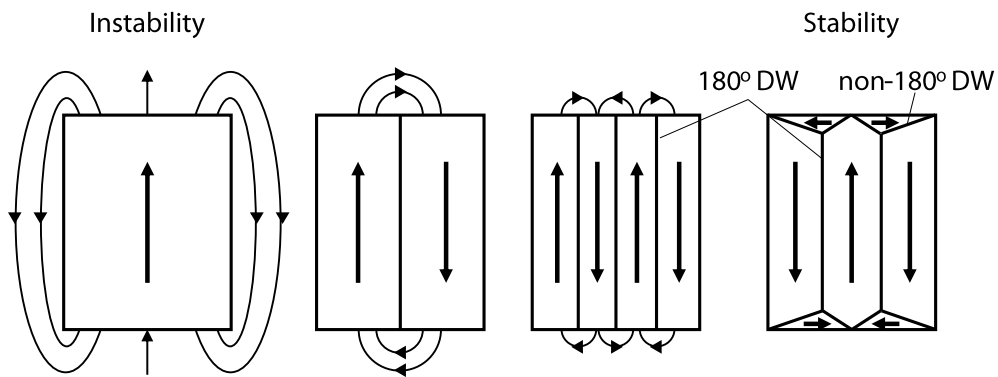


Fig. 1-5 Rearrangement of magnetic domains at the demagnetized state due to the energy minimization.

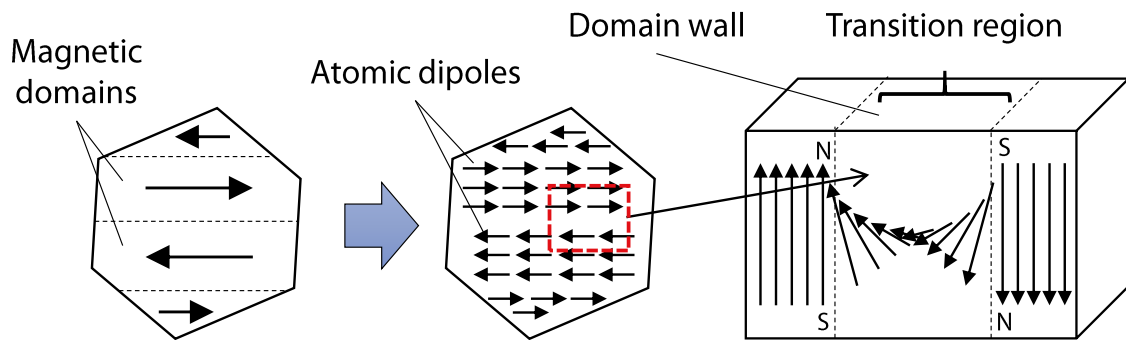


Fig. 1-6 Schematic illustration of domains and domain walls in ferromagnetic materials.

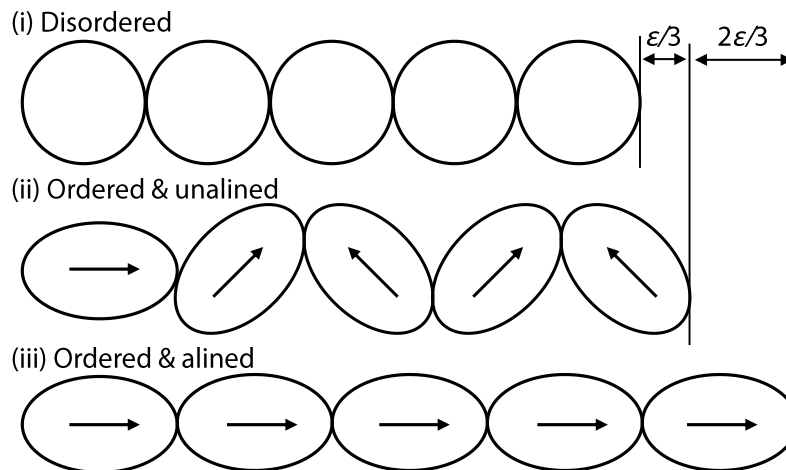


Fig. 1-7 Schematic diagram of the magnetostriction (i) disordered (paramagnetic) state above the Curie temperature, (ii) ordered (ferromagnetic), demagnetized state and (iii) ordered state magnetized to the saturation.

更に、磁気・機械的エネルギー変換機能の発現メカニズムをミクロな視点から明らかにすることが、磁歪材料の研究開発における目標の1つである。

磁歪とは、鉄などの強磁性体の磁化過程で形状変化を伴う磁気ひずみであり、一般に磁歪効果 (Joule 効果) [25] と呼ばれる。磁歪は発生するひずみ量の最大値で定義される。一方で、材料の形状が変化したときに磁化が変化する現象は逆磁歪効果 (Villari 効果) [26] と呼ばれる。これらの両効果に着目して、動力 (アクチュエータ) や応力検知 (センサ) の機能を有意に利用する材料が磁歪材料である。このような磁歪材料のエネルギー変換機能を活かしたスマート構造・システムにより、振動発電や逆磁歪式トルク・力センサなどの応用展開が可能となる。

磁歪効果は結晶中の原子配列やその電子スピン挙動に起因し、材料の形状や寸法、結晶方位に由来する磁気異方性の変化 [27] により発現する。特に、材料内部の結晶方位に由来する、結晶磁気異方性が磁歪にとって重要な磁気パラメータとなる。結晶磁気異方性とは、磁化方位 (自発磁化) の向きやすい磁化容易軸あるいは向きにくい磁化困難軸が、結晶方位によって異なる磁気的性質である (例えば、立方晶の鉄では [100] が容易軸, [111] が困難軸を示す)。そのため、磁歪材料は、Fig. 1-8 に示すように、磁性を担う原子の電子雲 (電子軌道) とのスピン軌道相互作用を介

して、金属組織のひずみが生じると考えられる。さらに、外部磁場を印加することによって、電子雲の異方性が更に高まることでより大きなひずみが生じることにより、原子スケールでは原子間距離に変位が発生し、マクロなスケールにおいて材料の寸法が変化する磁歪が発生する。このとき、多数の欠陥を含む強磁性材料内部では、クーロン力に由来する内部応力が発生し、それらの欠陥の再配列が誘導される。このような磁歪挙動は、自発磁化の容易軸と異方性定数により異なり、Fe-Ga 系合金および Fe-Co 系合金等では正の磁歪を示し、Ni 等では負の磁歪を示す。

At the atomic level

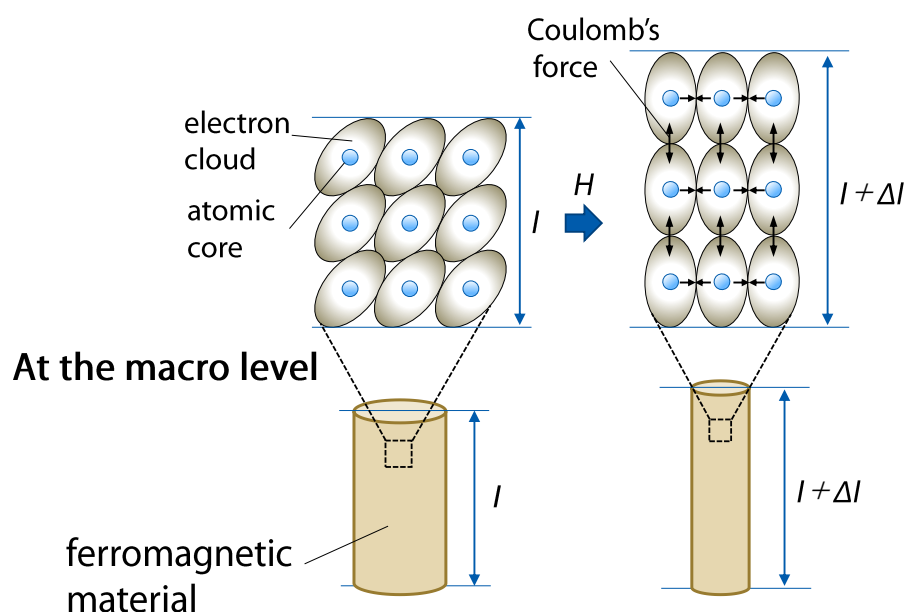


Fig. 1-8 Schematic image of magnetostriction and the displacement in the interatomic distance caused by the applied magnetic field at the atomic and macro level.

次に、磁歪材料における磁歪とひずみの関係を **Fig. 1-9** に示す。上述したように、磁歪材料の磁歪効果と逆磁歪効果によって、磁気エネルギーと機械エネルギーを可逆的なエネルギー変換が可能であることから、検知(センサ)と駆動(アクチュエータ)の両機能を有する。次の 2 式は磁歪材料の構成方程式[28]で、それぞれひずみ ε と磁束密度 B を与える。

$$\varepsilon = d'H + s\sigma \quad (1-5)$$

$$B = \mu H + d'\sigma \quad (1-6)$$

この時、 H は磁場強度、 σ は応力、 d' は磁歪定数、 μ は透磁率、 s は弾性コンプライアンスである。また、磁歪定数 d' は磁歪量 d と2次の磁気弾性定数 m を用いて $d'=d+mH$ と表されることもある。これらの式より、磁歪材料全体のひずみは磁場印加時の磁歪効果による磁気ひずみと外力で生じるひずみの和であり、磁束密度は外部磁場と逆磁歪効果に起因する磁束密度の変化により発生することがわかる。そのため、磁歪定数で定義される磁歪感受率が、磁歪材料の性能を大きく寄与することとなる。そのため、磁歪感受率が大きいほど、変位の立ち上がりが大きく、飽和磁歪が大きいほど振幅を大きく取れることが予測される。特に、磁歪材料をセンサ・アクチュエータ材料として利用する場合には、低磁場で大磁歪、小ヒステリシスによる再現性、高ヤング率であることにより、高い発生応力が重要[22]であることが示唆されている。

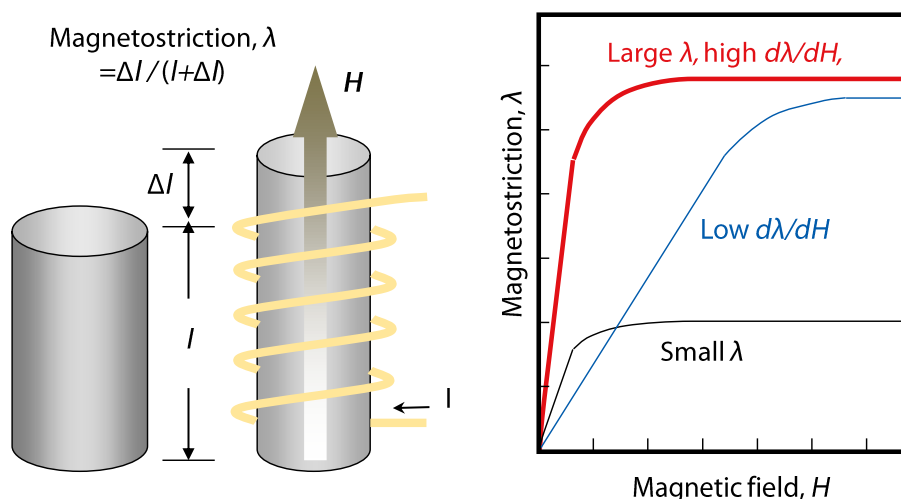


Fig. 1-9 Schematic diagram of magnetostriction due to magnetostrictive effect.

このような磁歪材料を用いた磁歪式変換素子(デバイス)[29]において、材料自体にバイアス磁場と機械的予荷重を付加することは有効であると考えられている。まず、バイアス磁場は磁歪材料に予め磁界をかけて動作点を高めておくことであり、磁界の強さに対する磁化曲線の線形範囲を拡大し、その応力感受率を高める作用がある。次に、機械的予荷重は予め磁歪材料に応力を作作用させることであり、適切な予荷重によって磁歪材料の透磁率を高めることが出来る。また、外部磁場に対する応答周波数を変化させることにより、連続操作(超音波領域)下での内部加熱の最小化(ヒステリシス損)できる。このようにセンサ・アクチュエータ性能を最適化するためには、磁化・磁歪特性を把握した磁歪式デバイス設計を決定することが非常に重要である。

1.2.2 先行研究

磁歪材料に関する研究は、先述したように鉄における磁歪効果[25]が 1842 年に、逆磁歪効果 [26]が 1865 年に世界で初めて発見されたことを皮切りに、急速に進められた。体心立方構造 (bcc) の Fe が持つ磁歪定数は $\lambda_{100}=20$ ppm 程度と小さい。しかしながら、Fe を少量の固溶元素 (V, Mo, Ge, Cr, Ti, Sn, Al) で置換[30,31]することにより、Fe の磁歪量が変化することが報告されている。Table 1-2 に各元素の磁気異方性定数および磁歪量を示す。特に、1957 年 R.C. Hall によって開発された、Alfenol (Fe-Al 合金) は、Al が非磁性元素であり、鉄が bcc α -Fe 構造を保っているにも関わらず、20at%Al 合金の磁歪量 λ_{100} が Fe の 5 倍を示すことが報告されている。しかしながら、鉄系磁歪合金の磁歪量は高々 50 ppm 程度に留まり、この特性を効果的に活かす活用方法が見つからないだけでなく、これらの磁歪現象が電磁鋼板を用いた電磁デバイスにおいて、励磁した際の騒音や電磁振動による破壊の原因として考えられてきた。

Table 1-2 Magnetostriction constants of Fe-X, where X=V, Mo, Ge, Cr, Ti, Sn and Al [30, 31].

at% in Fe	Anisotropy const. K_1 (10^5 ergs/cm ³)	λ_{100} (ppm)	λ_{111} (ppm)	Ref.
100 Fe	4.8	20	-18	[30]
6.62 V	4.10	28.4	-12.6	[30]
15.6 V	3.30	42.8	-9.7	[30]
2.18 Mo	4.50	31.9	-13.2	[30]
4.35 Mo	4.20	39.3	-8.3	[30]
3.95 Ge	4.00	32.2	-0.8	[30]
5.73 Ge	3.30	37.1	-3.5	[30]
15.6 Cr	2.65	51.3	-6.3	[30]
21.1 Cr	2.00	51.7	-2.7	[30]
1.61 Ti	3.95	17.7	-15.7	[30]
2.43 Ti	4.50	14.5	-13.1	[30]
1.18 Sn	4.75	13.3	-15.3	[30]
1.8 Sn	4.95	12.1	-13.9	[30]
6.0 Al	-	29	-13	[31]
19.2 Al	-	95	3	[31]
15.4 Al	-	89	-2	[31]
29.6 Al	-	17	9	[31]

1965年、米国海軍戦略研究所 NSWC (Naval Surface Warfare Center)の A. E. Clark らによって、Tb や Dy などの希土類系元素を用いた Tb-Fe 系磁歪合金[32]から 1000 ppm, さらに、1973年には Terfenol-D (Tb-Dy-Fe 合金)において室温で 2,000 ppm の磁歪が報告[33]された。このような 1000 ppm もの巨大磁歪を示す磁歪材料は、超磁歪材料と呼ばれ、

1. 大きな変位 (~2,000 ppm)
2. 大きな発生力 (~30,000 N)
3. 10 μ s オーダーの高い応答性 (~40 μ sec)
4. 大きな許容圧縮応力 (700 MPa)

などの優れた特徴が挙げられる[33]。その一方で、希土類系元素である高価な Dy (ディスポロシウム) や Tb (テルビウム) を含有する金属間化合物であるため、脆弱かつ高い駆動磁場が必要であることがボトルネックとなり、センサ材料への応用は殆ど検討されていない。

さらに、A. E. Clark クラークらは、2000年、磁歪量に優れる Fe-Ga 系合金および Galfenol (Fe-Ga-Al) の開発[34]に初めて成功した。Fe-Ga 合金の特徴は、

1. 良い強度特性 (降伏応力 > 500 MPa)
2. 良延性
3. 大磁歪 (100 ppm 以上)
4. 低駆動磁場下で磁歪の飽和が可能
5. 低い材料コスト

などが特徴として挙げられる。しかし、開発当初の Fe-Ga 合金は単結晶材であったため生産性に劣る。更に、レアメタルである Ga を使用することからコストも高く、機械的強度に不安が残るため、力学的な過酷環境下が想定される自動車のステアリング、ブレーキ、エンジン制御システムのような機械構造部材への応用には多くの課題を残している。

また、上記のような技術的課題を解決するべく Galfenol 多結晶合金に対して元素添加による高強度化の試みが多くなされている。三元系 Fe-Ga-Al 合金に C (炭素)、B (ホウ素) 等の元素添加を行い、機械的性質に及ぼす諸効果の解析を行ってきた。C 添加合金の結果については、炭化物生成 (L12 相及び Fe_3GaC 相) による析出強化機構により 600 MPa 以上の高強度を達成しているが、飽和磁歪 λ_s は 40 ppm 程度まで劇的に減少している。その要因は、生成した L12 相が負磁歪を発現するためであると考察される。次に、L12 相の生成が正磁歪材料にとって極めて有害な因子であると考えた高橋ら[35]は三元系 Fe-Ga-Al 合金に C と Zr (ジルコニウム) を複合添加することで、L12 相の生成の抑制に成功し、800 MPa 級の高強度および、100 ppm 程度の

磁歪を有する合金の開発に成功している。さらに、近年、J. Liらは、BをFe-Gaに添加することにより、磁歪量は-48 ppmと小さいものの、機械的特性の大幅な向上を見出しており、ヤング率は174.3 GPaおよび最大強度は1400 MPa以上を示し、展延性の向上による0.5 mm径の引抜き加工を達成している[36]。

最後に、最近20年の間において報告された磁歪材料に関する論文数[37]の調査を行った。その経年推移をFig. 1-10に示す。これを参考にすると、磁歪材料は、1990年代後半と2010年代初頭の2度のブームにより研究開発が活発化している。このようなスマート材料・デバイス研究の趨勢は、マン・マシンインターフェースや医療ロボット、自動運転などへの需要からか、国内外で再活性化してきていることが判る。

特に、2010年以降の磁歪材料の総論文数において、“アクチュエータ”に関する論文の占める割合(●)が横ばいを示す一方で、“センサ”に関する論文の占める割合(◇)が急激に増大している。その背景には、前述したような第3元素の添加による機械的特性の向上や、後述するCo過剰域Fe-Co系合金の新たな登場が大きいと考えられる。このように大磁歪を示す磁歪材料の機械的特性が積極的に開発されていくことにより、従来のアクチュエータ材料研究に加えて、材料研究への適用もますます進んでいくと予想される。これは、例えば、自己診断・自己警報システム、突発破壊防止機能などといった環境変化に柔軟に対応・適合できる形態を具えたセンサ機能を、次世代のスマート材料・構造システムの設計コンセプトとして組み込んだ新素材の開発が有望視されているからであるといえる。

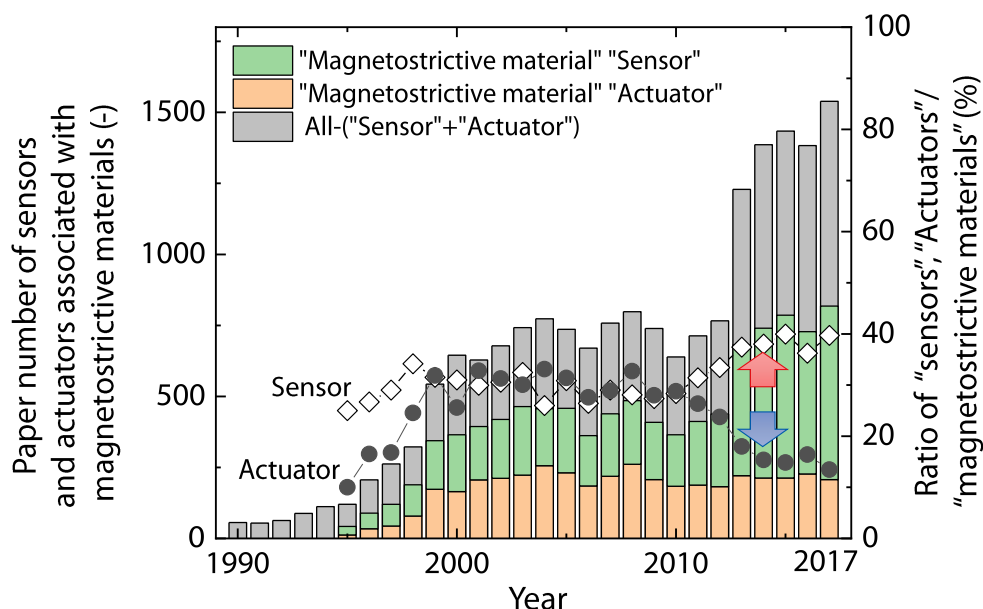


Fig. 1-10 Paper number of sensors and actuators associated with magnetostrictive materials and the Ratio of “sensors” (◇) or “Actuators” (●)/ “magnetostrictive materials”[37].

1.2.3 高強度 Fe-Co 系磁歪合金

上記のFe金属に対する置換元素効果に関する研究の中で、Co置換による研究も多くなされている。Fe-Co 系合金の中で、Fe-50at%Co 合金はパーメンジュール(Permendur)と呼ばれる。この材料は、優れた軟磁性及び高い飽和磁化や透磁率、磁歪量に加えて、低いエネルギー損失を示すなどの特徴を有する。しかしながら、室温における機械的強度及び加工性が他の軟磁性材料に劣り、広い用途への展開は無かった。

次に、Fe-Co系合金の状態図[38]をFig. 1-11に示した。この状態図から分かるように、例えば、Fe-50at%Coは720°C付近で不規則相(bcc Fe)から規則相(B2 ordered: bcc)へと変態する相境界を有する。そのため、規則相へ変態することにより、脆性を示す相が現れることが知られている。このような課題に対して、以下に示すような様々な検討がなされてきた。

1932年、WhiteおよびWahlら[39]は2at%程度のV(バナジウム)添加し、更に、適切な熱処理を加えることで、磁歪定数の低下を導く不規則-規則変態を抑制することに成功している。このV添加により、Fe-Co合金の加工性が改善され、電磁機能部品や電磁石、分析機器の磁極材料等に使用されるようになった。

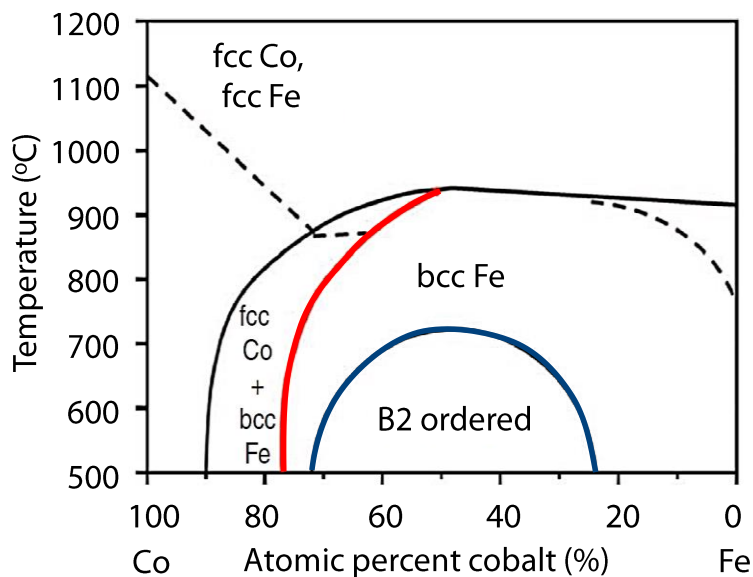


Fig. 1-11 Phase diagram of Fe-Co alloy and the red line indicates the Morphotropic phase boundary[38].

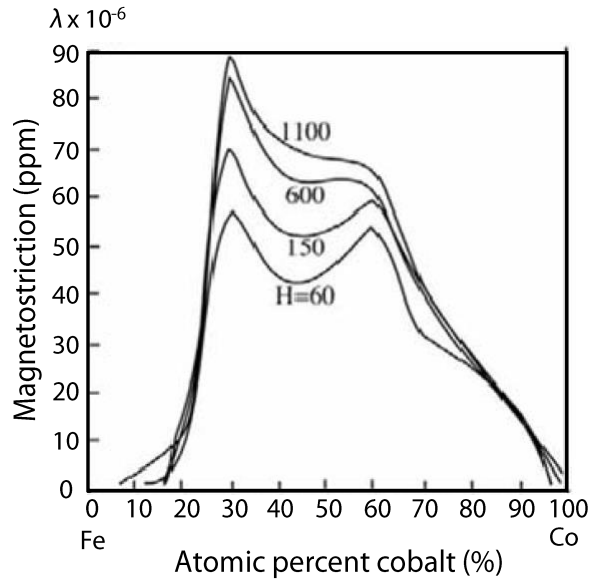


Fig.1-12 Magnetostriction of Fe-Co alloy system[40].

一方、1932年にY. Mashiyama[40]によってCo過剰域Fe-Co合金の磁気・磁歪特性の調査がなされてきた。磁歪量とCo濃度の関係をFig. 1-12に示す。この結果から、as-deposit材において飽和磁歪90 ppm はFe₃₀Co₇₀付近に出現し、Co70at%以上では、負の磁歪量を示すFcc Co相の析出を理由に、その材料全体の磁歪量は急激に減少し、ゼロに近づいていく。そのため、Fe-Co 2元系合金において、Coの存在比 $x=70\text{at}\%$ において最も高い飽和磁歪量を示すことが報告されている。

2007年、L. DaiとM. Wuttig[41]は、アーク溶解法で作製されたCo過剰域Fe-Co合金に対して熱処理温度と磁歪の関係を調査した。Co₇₀Fe₃₀合金は、温度700~840°Cで熱処理された場合、最大の約100 ppm ($=2/3 (\lambda_{\parallel} - \lambda_{\perp}) = 150 \text{ ppm}$)が発現する。一方で、Co_{75.5}Fe_{24.5}合金の場合、600~700°Cで熱処理すると、飽和磁歪は85 ppm程度まで減少する。これらの結果から、飽和磁歪は状態図の赤線上、つまり、bcc Fe 相と(fcc Co + bcc Fe)相の混相状態を示す境界付近温度で熱処理した場合に飽和磁歪を発現することを明らかにしている。

近年では、Co過剰域Fe-Co系合金(Co: 60-75at%)の有する高靱性かつ加工性に着目して、熱間加工および冷間加工、さらには引抜き加工を施すことにより、様々な構造部材へ適用可能な高強度磁歪合金の開発[42]に成功している。特に、冷間圧延加工及び引抜き加工により、最大で0.02 mmまでの薄さ(細さ)を実現している。さらに、山浦ら[43]は最大97%まで施した繰り返し冷間圧延素材におけるbcc-FeCoを有する磁歪薄板において、その結晶方位が[110]<001>面に強い配向

性とそれに起因する磁歪量の増大を報告している。また、木村ら[44]は急冷凝固により作製した薄帯素材に対して、様々な条件での熱処理を行うことにより、磁歪感受率の向上を報告している。更に成田ら[45]は、引抜加工を施した0.2 mm径のFeCo合金細線をエポキシ樹脂に埋め込んで作製した磁歪複合材料において、Fe-Ga磁歪合金を凌ぐ高い発電性能が報告している。

次に、他の磁歪材料と比較することで、Co過剰型Fe-Co合金の特徴を表にまとめたものを**Table 1-3**に示す。さらに、代表的な磁性材料における磁歪量を**Fig. 1-13**に示した。に示すような代表的な磁歪材料を比較し、表に示すのは、代表的な磁歪合金であるTerfenol-D及びGalfenolの磁歪材料は、単結晶系においてこのような巨大な磁歪量を示すのに対して、Fe-Co合金は多結晶系で、比較的大きな磁歪量を示す。特に、センサ特性に重要な、優れた磁気応答性(磁歪感受率)、高い飽和磁化とキュリー温度などを満たしている。

さらに、適用範囲の拡大が期待できる加工性と機械的強度、元素入手性などの点において、従来の磁歪材料よりも優れた特性を有している。機械的特性に関して言えば、Fe-Co合金は600 MPa以上の降伏強度、特に引抜加工材に関してはその熱処理材で1000 MPa以上の降伏強度を示し、そのとき8%程度の破断伸びを示す[46]。これらの機械的特性はVやBの添加により更なる高強度化が期待できる。

Table 1-3 Material properties of most Fe-Co alloys, Terfenol-D, and Galfenol [46].

Material properties		Fe-Co alloys	Terfenol-D	Galfenol
Magnetostrictive	Magnetostriction (ppm)	Max>140	Max 300	Max 300
		80-140	800-1200	12-240
	Coercivity (A/m)	<200	300	3000
Magnetic	Saturation flux density (T)	2.0<	10	1.5
	Relative permeability (-)	100	<10	<100
	Tensile stress (MPa)	600<	30	400
Mechanical	elongation (%)	<30	<1	1<
	Young's modulus (GPa)	200	<100	<100
Thermal	Coefficient of thermal expansion ($10^{-6} K^{-1}$)	11.9	12	-
	Curie temperature (°C)	900	380	680
Electrical	Volume resistivity ($\mu\Omega \cdot cm$)	10	58	-
Density ($g \cdot cm^{-3}$)		8.4	9.25	-

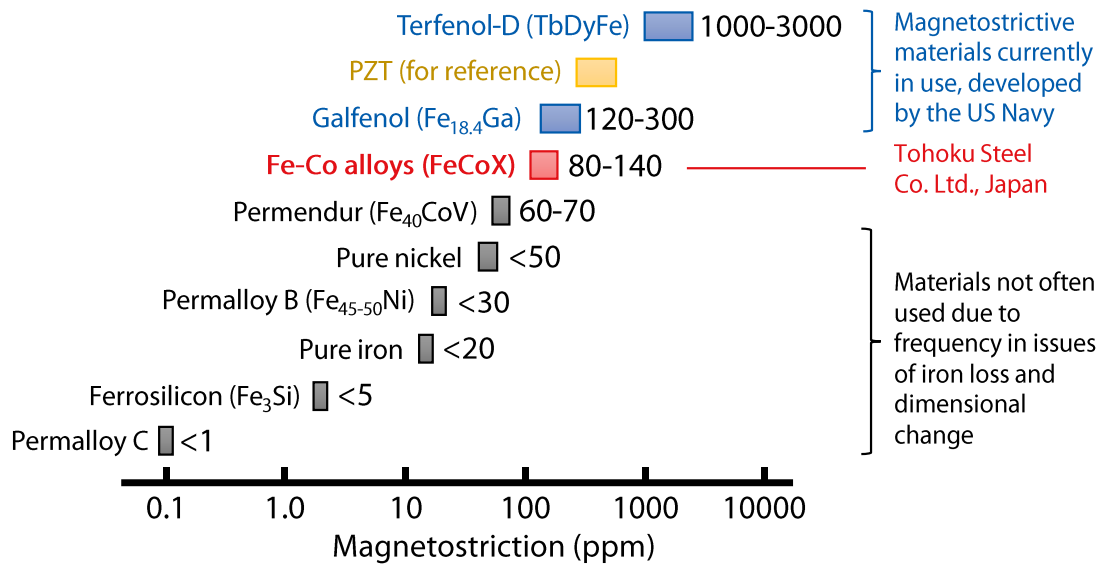


Fig. 1-13 Magnetostriction of various materials. The magnetostriction of a sample, like its magnetic properties, will fluctuate depending on its processing and thermal history [46].

その一方で、これまでの研究から、磁歪材料の逆磁歪効果を増大させるには、従来から検討されている

- 1) 磁歪量
- 2) 磁歪感受率
- 3) 保磁力, 残留磁束密度,
- 4) 磁気異方性

が複合的に作用していることがわかってきている。そのため、高性能な磁歪材料の研究開発には、その微視的な組織制御の重要性が増してきている。

ここで、1 mm径まで引抜加工を施したFe-Co合金ワイヤ材を用いて実際に測定した磁化曲線の一例をFig. 1-14に示す。この合金ワイヤは高いアスペクト比(長さ/直径)を有するため、薄板材と比較した場合に、格段に低い反磁界係数、さらには、引抜加工による高い形状磁気異方性を示すなどの特徴を有しており、低い保磁力および高い磁化率などの優れた磁化特性を有していることがわかる。

このように金属組織制御により特性向上した磁歪合金ワイヤを磁歪センサ・アクチュエータ材料として適用するとともに、その特性を十分活かせる最適分野への適用を検討することで、逆磁歪効果を利用した応力測定や非破壊検査などへの応用事例の少ない分野への参入や、金属組織制御によるマイクロな視点での新たな磁歪メカニズムの発見が期待できる。

本研究では、Fe-Co多結晶合金の諸特性評価や荷重負荷など取り扱いのしやすい最小の細さ

である1 mm径の引抜合金ワイヤに着目し、その金属組織観察や諸特性パラメータの評価可能で最も細い素材を用いて、高い応力感受率を活かしたセンサ材料として利用を目指して研究を進めていく。このように得られた強靱かつ機械的強度の優れた機能性素材を用いることで、力学的負荷の大きな自動車部材やインフラ構造体などへ適用可能な民生分野への応用展開が期待できる。

しかしながら、インフラ構造物の診断で用いられる磁歪(力)センサ埋設型の複合材料設計や高出力・小型の振動発電デバイスの実装のためには、材料自体の小型が必要不可欠である。そのため、1 mm以下の線材や薄膜での磁気・磁歪特性を明らかにしていく必要があるが、それらの特性と金属組織との関係は明らかになっていない。

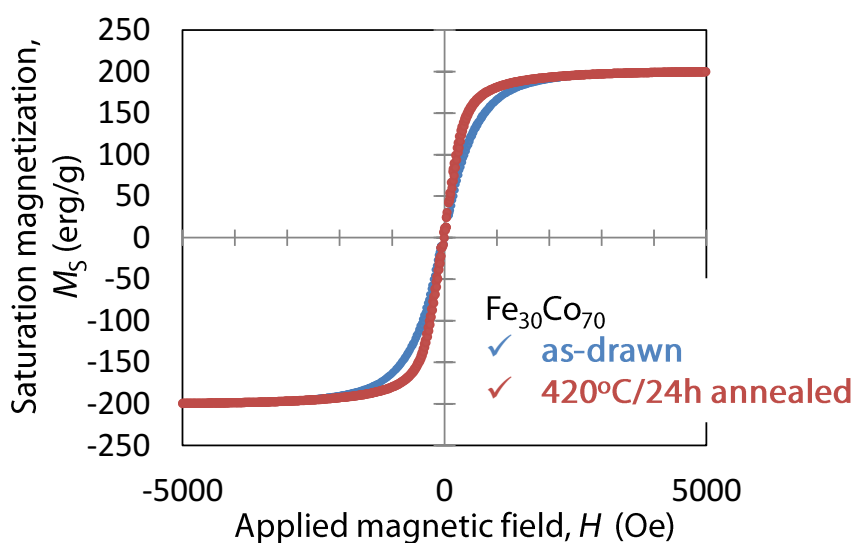


Fig. 1-14 Example of the magnetic hysteresis loop for the obtained Fe-Co alloy wire ($\phi=1$ mm) and the annealing sample.

1.3 バルクハウゼン効果

1.3.1 バルクハウゼンノイズ

複雑で未解明な“ノイズ”に対して何らかの意味や特徴を与えることにより、工学的価値のある“信号”へと変換される。バルクハウゼン効果とは、鉄などの強磁性材料の磁化過程における不連続な磁壁移動に起因したマイクロな不連続磁化であり、この効果によって誘導される高周波な磁束密度変化はバルクハウゼンノイズと呼ばれる。1919年に H. G. Barkhausen によって初めて発見[47]されたこのバルクハウゼンノイズは、**Fig. 1-15** に示したような簡単な発生装置により観測される。この不連続な磁気ノイズの観測は、1907年に P. Weiss によって提唱された磁区概念[48]を実験的に示した証左となり、強磁性材料におけるマイクロマグネティズム研究の発展に大きく貢献している。

強磁性体における巨視的(マクロ)な磁化挙動は、一見滑らかな磁化過程によって成り立っているように見えるが、実際は、磁壁移動や磁区回転などの多くの細かい不連続磁化によって発生することが知られている。このように、バルクハウゼンノイズは磁化過程で生じる不連続磁化に起因し、強磁性体内の結晶粒界や析出相などの異相界面によって磁壁が不連続に移動することで生じる磁気パルスである。これは、結晶粒界面や双晶などの局所的な磁気的エネルギー差が生じている境界上を磁壁が通過するとき、それらのエネルギーの壁により磁壁の移動・回転が妨げられ(ピン止め効果)、不連続に磁束が変化するためであると考えられている。特に、**Fig. 1-16** 中の赤丸で示したように、磁化ヒステリシス曲線を拡大すると小さな階段状の磁化状態の遷移が生じているとみることができる。そのため、磁区構造や材料内部に作用する発生応力やその金属組織に対して非常に敏感な応答挙動を示すことが最大の特徴となる。

このように得られたノイズ波形から特徴量を抽出し、その諸現象と材料パラメータを関連付けることで、マイクロな視点からの現象解明が期待できるだけでなく、その利用価値も高まる。このように、発生要因の異なる多種混合なバルクハウゼン“ノイズ”から、諸因子を分離・評価可能な、物理的意味を有するバルクハウゼン“信号”へ転換することは物理工学的にも大きな意義を有している。

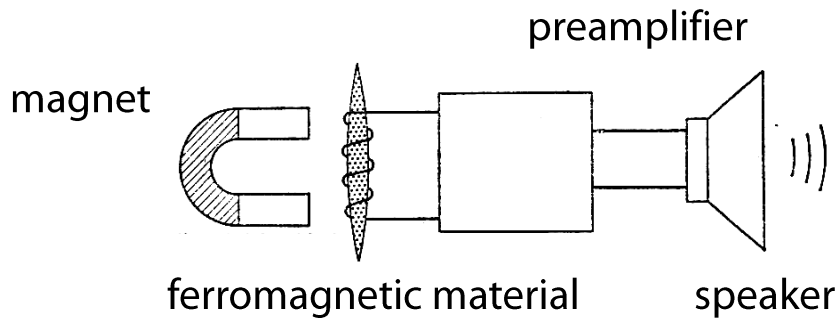


Fig. 1-15 Systems for the first observation of magnetic Barkhausen noise [47].

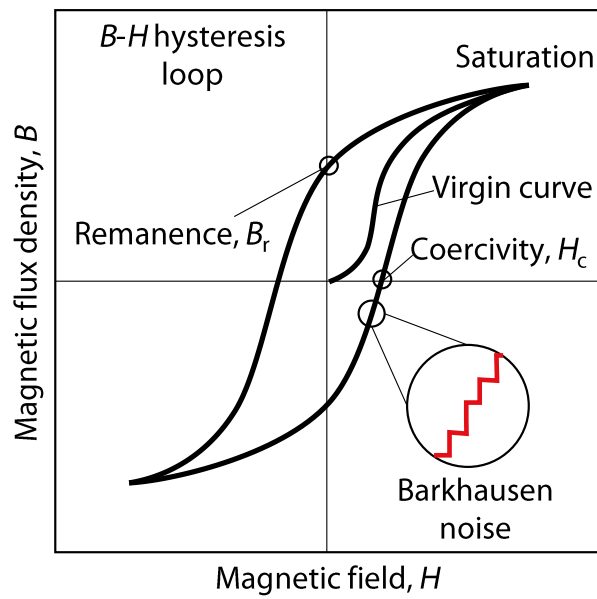


Fig. 1-16 Example of the magnetic hysteresis loop and virgin curve with the coercivity and the remanence. A step-like signal shows Barkhausen noise.

また、磁歪により生じる力学応答によって磁歪効果とバルクハウゼン効果の相関が導かれる。1.2.1 節における **Fig. 1-8** に示すように、磁歪材料では、外部磁場の印加により生じる磁気的な格子歪みと、原子スケールで発生する原子間距離の変位の差分により、わずかな内部応力が発生する。その力学応答は、材料内部の欠陥の再配列を誘導するため、このように生じた欠陥と磁化過程に生じる磁壁移動との相互作用によってバルクハウゼン効果が発生すると考えられる。

次に、鉄などの鉄鋼材におけるバルクハウゼンノイズの検出原理の模式図を **Fig. 1-17** に示す。強磁性材料に外部磁場が誘起されると、磁壁移動により磁化反転が生じる。この時、逆磁区発生、磁壁移動、磁化回転、飽和の順に磁化過程が進展する。磁壁移動は結晶欠陥でピン止めされながらも、バルクハウゼンジャンプを繰り返すことにより、不連続に進行するといえる。1 回のバルクハウゼンジャンプによって生じた場合は、鉄鋼材の周囲に設置した小型コイルからパルス電圧 $E(t)$ として、以下の式を用いて検出できる。

$$E(t) = -k \times \frac{dB}{dt}, \quad (1-7)$$

$$V_{BHN} = N \times E(t) \quad (1-8)$$

このとき、 k はコイルの巻き数、 B は磁束密度、 t は時間、 N はパルスの総数となる。さらに、実際の磁化過程では、鉄鋼材の内部における励磁領域において、沢山のバルクハウゼンジャンプが生じるため、**Fig. 1-18** に示すように、バルクハウゼンノイズに由来するパルス出力電圧が重畳して検出される。この複数波形が重なった高周波な出力電圧 V_{BHN} がバルクハウゼンノイズである。

このようなバルクハウゼンノイズには、その検出システムが簡易かつ非接触、低コストであるという特徴を有する。その他の非破壊検査技術[49-51]として、X 線法や中性子線法、レーザー光法、超音波法や渦電流法、光干渉法、アコースティックエミッション法、磁気音響法、逆磁歪法などが挙げられる。その中でも特に、磁気的性質を活かした検出手法は、そのセンサ部設計が容易であり、その検出が非接触であることなどがメリットとして挙げられる。

その一方で、磁気的な非破壊検査手法は、漏れ磁束やインピーダンスなどの磁気的な物理量変化の絶対値が小さいことや、適用できる構造部材が強磁性体である鉄鋼部材、もしくは強磁性体との接合・複合材に限定されることなどの課題を有している。

これらの課題を解決する有望な手法の 1 つとして、バルクハウゼンノイズを利用した非破壊検査技術が注目されており、鉄鋼構造物などの応力測定や材料診断に向けた研究開発がこれまで盛んに行われてきた。1930 年頃にはバルクハウゼンノイズの単パルス波形からその発生要因となる磁化変化の解析が主に行われてきた[52-55]。このとき、印加磁場速度 dH/dt は 1 秒間に数 A・

m^{-1} という比較的遅い磁化条件で行われ、磁化および検出には主にソレノイドコイルが使用されていた。その後、Tebble ら[56]によって、結晶構造の不連続・不規則性をバルクハウゼンノイズの調査によって解明することが出来るという、現在の「材質診断」の考え方が初めて提示された。特に、計測技術の進展に伴い、後述する様々な金属組織に関する評価がバルクハウゼンノイズ研究を通して行われてきた。測定手法に関しては、主に磁気ヘッドを用いた方式が主流であり、印加磁場速度も数 10 Hz 程度 ($dH/dt \sim 10^5 \text{ A} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$) といった比較的速い印加磁場速度で測定が行われるようになった。

これらの調査を元に、古屋ら[54]は、バルクハウゼンノイズ検出による溶接部への残留応力測定や低炭素鋼への疲労評価を行っている。さらに、実際に、米国 SWRI (Southwest Research Institute) [57]での、航空機ガスタービンのエンジン部材の残留応力評価の有効性が報告されている。さらには、米 American stress Technology 社[58]は、カムシャフトやクランク軸、ギア用の残留応力測定装置の開発、日本の日鉄住友テクノロジー社[59]は、研磨焼け検出装置を開発し、各社商品化まで行われている。

しかしながら、強磁性材料の各金属組織における磁壁挙動が不連続磁化に影響していることを考慮すると、例えば、結晶粒径のサイズを変更させた場合でも、加工・熱処理等によるその局所的な応力状態も変わってしまい、バルクハウゼンノイズ出力電圧は異なってしまう。また、鋼材のような実際に使用される環境においては、バルクハウゼンノイズに影響を与える各パラメータが劣化や疲労などによって、同時に変化してしまうケースも見られる。そのため、これらの課題がバルクハウゼンノイズ法を利用した材料診断技術の広く普及しなかった理由である。

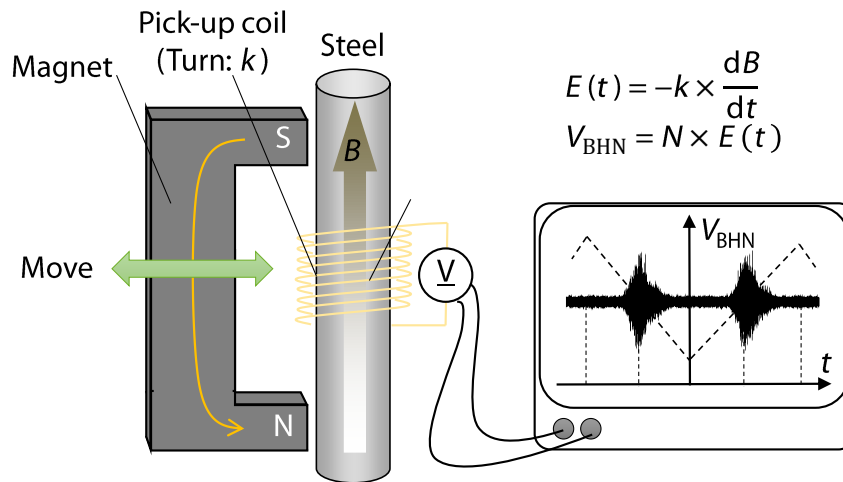


Fig. 1-17 Schematic of the structure and principle of the Barkhausen noise detection system.

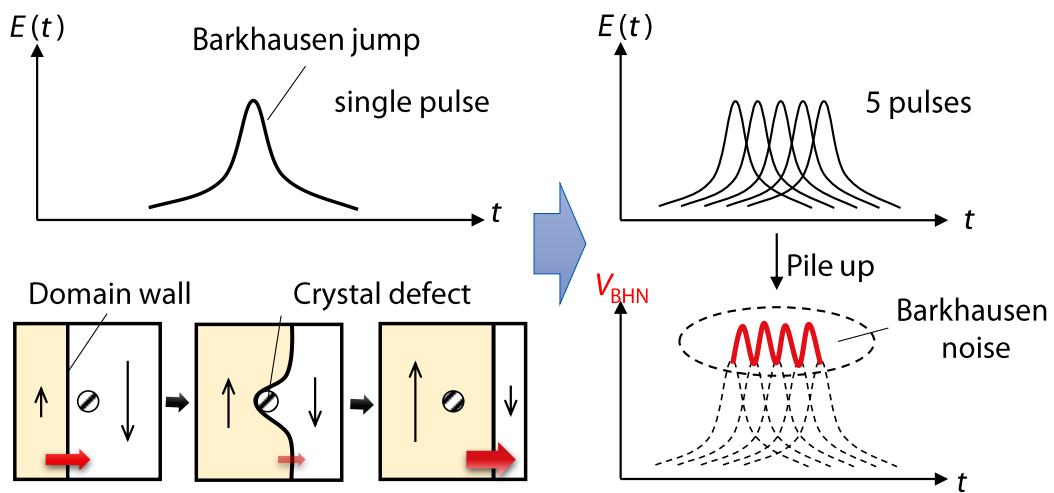


Fig. 1-18 Conceptual diagram that Barkhausen noise is detected by superposition of pulse voltage of Barkhausen jump.

1.3.2 先行研究

これまでに、鉄鋼材料での結晶粒界[60]や亜粒界[61]、転位[62,63]、析出物[64]など様々な金属組織によって大小は異なるもののピン止めに影響を受けることが報告されている。さらには、外力の作用[65-67]による磁区構造の変化や疲労損傷による残留応力の変化[68]など影響も受ける。また、これら検出には渦電流(eddy 効果)の発生を考慮する必要がある。外部磁場の周波数が低周波領域(~10 Hz)である場合、試料表面から深さおよそ 0.1-0.2 mm 程度[69]の表層領域からのパルス信号を検出できるため、試料の表面層に作用する平均的な微小応力の評価が可能となることが知られている。

一方で、理論的な側面からのアプローチも多数試みられている。1990 年、Alessandra[70]は不連続な磁壁移動をブラウン運動と仮定した ABBM モデルを提案している。このモデルでは、磁性材料中の磁壁の移動挙動がブラウン運動と同一挙動であると仮定し、バルクハウゼンノイズの出力電圧からその磁壁速度などの磁壁挙動を精度良く予測出来ることを見出している。彼らのモデルから導き出した研究成果により、バルクハウゼンノイズのパワースペクトルやパルス電圧分布の定量評価が可能となった。しかしながら、これらの予測は、対象材料の金属組織形態を考慮していないため、これまでに述べてきた金属組織との相関性に関する課題を ABBM モデルによって克服することは出来なかった。

また、坂本ら[71]によって提案されたモデルでは、材料内の個々の場所で発生する 1 回の磁壁のバルクハウゼンジャンプ(ピン止め現象)を電圧パルス(ガウスパルス)と考え、1 周期分の磁化過程で生じるバルクハウゼンノイズ波形全体をガウス分布に近似している。そのパルスの持続時間(σ)と個々のパルス間隔の時間(τ)を用いて、式(1-9)に示すようなバルクハウゼンノイズの実効値(V_{RMS})が τ^2/σ^2 に比例することを示している。

$$V_{RMS} \propto \exp[-(\tau - \tau_0)^2/2\sigma^2] \quad (1-9)$$

さらには、炭素鋼のフェライト相組織形態に基づいた理論的考察を加え、提案するモデルが実際に計測したバルクハウゼンノイズが金属組織具体的には、フェライト相の結晶粒径および析出したセメントイト粒の直径に着目しており、それらの結晶欠陥の依存性の結果(**Fig. 1-19**)と一致することを示している。

このような金属組織中を移動する磁壁の様子を **Fig. 1-20** に模式的に示した。印加中の外部磁場を弱め、反対向きの磁場を印加した際に、結晶粒界を核とした逆磁区の発生、続いて、磁壁の移動による磁区の成長を経て、印加磁場方向に磁化が飽和する。さらに、**Fig. 1-21** に 1 つの結晶粒内における磁壁移動の様子を示す。このとき、黒丸はセメントイト粒子を示し、斜線部は磁壁のジャンピング距離に相当する領域を示している。外部磁場により磁壁が粒内のピンニングサイトとしてセメントイトにおけるピン止め効果が発生しながら磁化過程が進行すると説明される。

このように、マクロに見ると前節の **Fig. 1-15** の磁化曲線のような滑らかな磁化過程をしているが、実際には粒界や析出物のような結晶欠陥との相互作用により、不連続な磁化過程が生じていると考えられる。同様に、弾性変形領域における格子歪みや塑性変形により蓄積される転位なども結晶欠陥として考えられており、上述したような先行研究によりその関係性は各鋼種ごとに明らかになってきている。

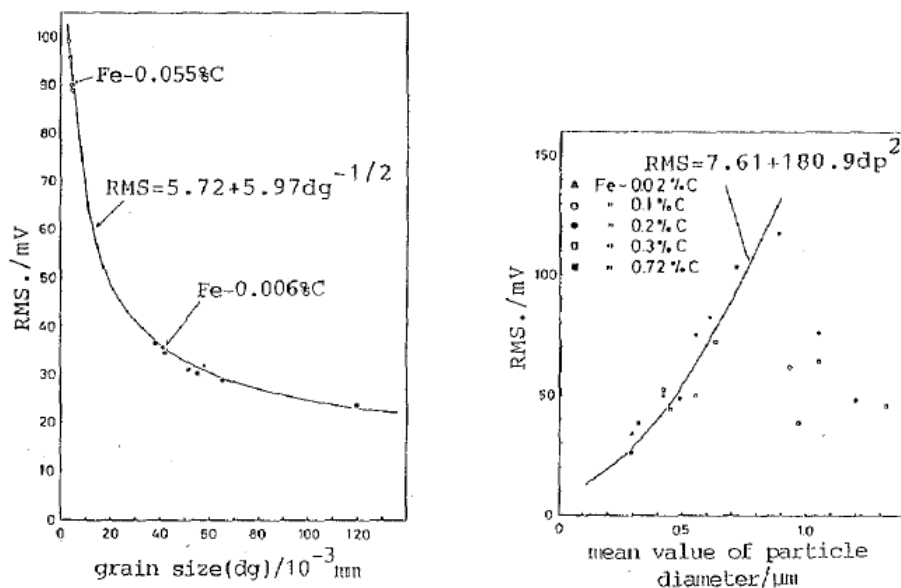


Fig. 1-19 Dependence of RMS values in ferrite grain and the mean value of cementite particle diameter [71].

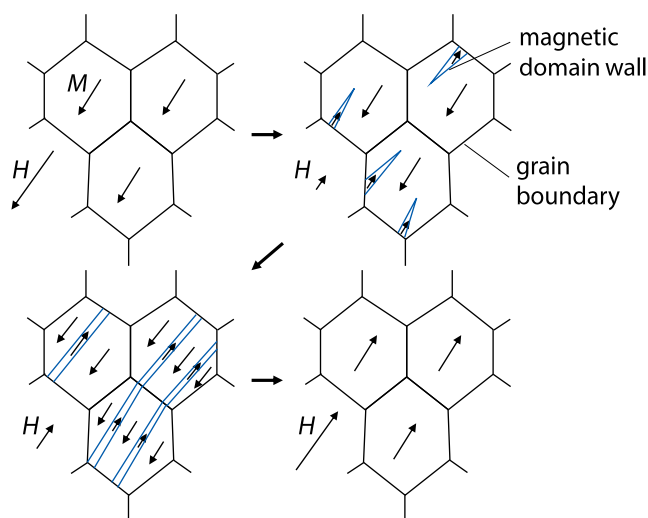


Fig. 1-20 Schematic illustration of magnetization reversal process in ferrite grains [71].

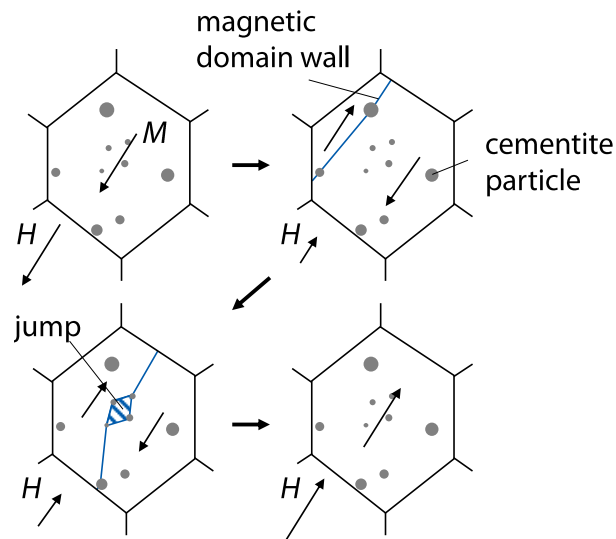


Fig. 1-21 Schematic illustration of magnetization reversal process in cementite-dispersed ferrite grains [71].

しかしながら、このようなマイクロな結晶組織にピン止めされるバルクハウゼンノイズジャンプモデルは、先の ABBA モデルとは相容れず、広く適用されることはなかった。このように、バルクハウゼンノイズの発生機構やその金属組織と相互作用に重要な支配因子(パラメータ)を適切に見出すことは未だ達成していない。また、多くの実験は実験的解釈とその部分的に確からしい理論との組み合わせによるものが多いため、バルクハウゼンノイズの汎用的な解釈や工学利用可能な精度の高い技術への道はまだ遠い。

これらの課題に対して、稲熊ら[72]は、自作した磁化・検出システム及び、応力センサ部の設計・開発により、鉄道レール中の内部応力を検出するバルクハウゼンノイズ法を提案し、実証実験を行っている。その様子を **Fig. 1-22** に示す。これらの特徴として、ひずみゲージと同等の応力センサ機能を持ち、非接触での検出、応力範囲-200 MPa~60 MPa での線形出力電圧、使用補償温度は最大で 100°C 程度であることから、これらのバルクハウゼンノイズ法が応力センサとして有用であると示している。

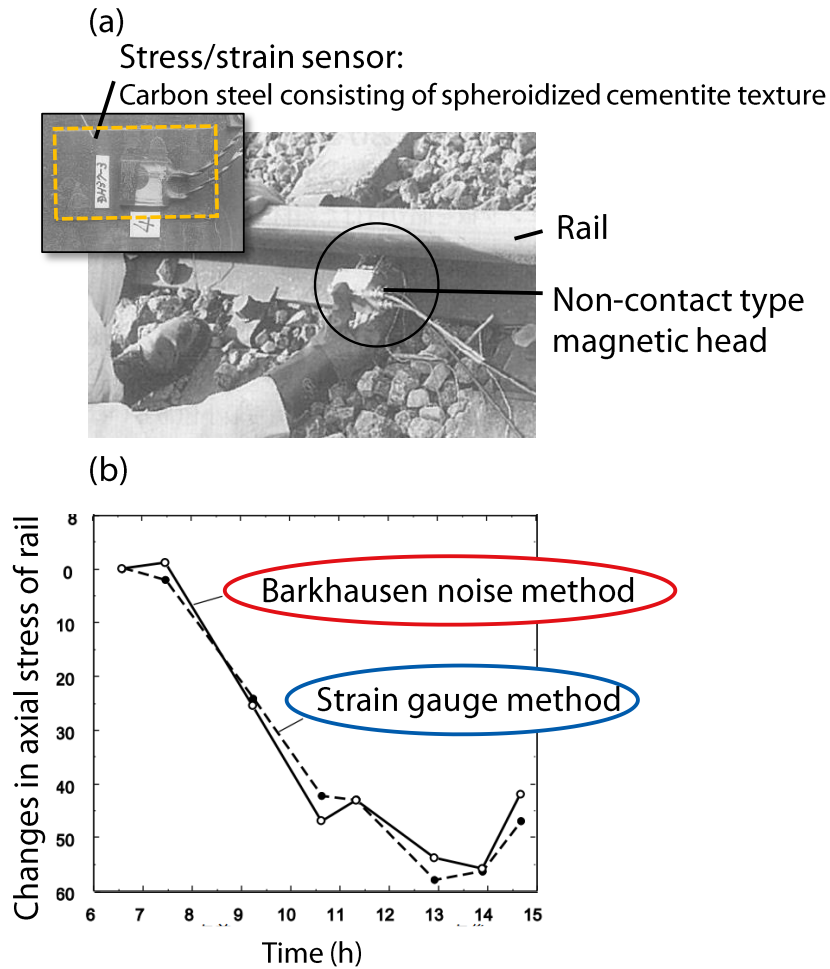


Fig. 1-22 (a) Photograph of Barkhausen noise method in which a sensor part with excellent stress sensitivity is attached to an object. (b) Changes in axial stress of rail[59].

これに加えて、バルクハウゼンノイズを用いた応力測定を行う際には、既設構造体の劣化損傷や測定位置の誤差により、その検出値が異なってしまうため、予めバルクハウゼンノイズの検量線を取得しておく必要がある。実際に、計測位置がわずかにずれてしまうだけでも 10 MPa 程度の残留応力の変化[72]が生じてしまうという報告もある。そのため、同一の測定条件で検出しておいた残留応力の初期値を把握し、その測定位置を精度良く揃えておく必要がある。これに加えて、既設の対象構造物への応力測定は経年劣化や疲労により初期値の測定が既に困難であること、さらには、従来のバルクハウゼンノイズの応力測定では、材料内部の残留応力の値が絶対的でなく相対的評価となってしまうこともバルクハウゼンノイズ手法の大きな課題であるといえる。

また、鋼材の材料組成や金属組織形態により、そのバルクハウゼンノイズ出力電圧の応力依存性が異なることも報告されている。例えば、同じ共析成分を有する炭素鋼への熱処理により、パー

ライト組織や球状系セメンタイト組織、マルテンサイト組織を制御した場合に、バルクハウゼンノイズ出力電圧の応力感受率が球状化セメンタイト組織の変化量に対して大きな値を示すことを報告[73]している。

しかしながら、これらの応力測定は鋼板材に対する単軸の荷重負荷試験であり、主軸方向のひずみ比はポアソン比となるため、その材料により決定される。そのため、バルクゼンノイズ出力電圧が応力のどの成分と相関性を有しているのか判断できない。これを解決するためには、主軸方向のひずみ比を変える、あるいは2軸応力場を考慮して測定を行う必要がある。

近年では、任意の材料で生じるバルクハウゼンノイズを利用した新たな応力を検知する手法が提案されている。先に示したように、応力に対して感度の高く、均質に組織制御された鋼材(センサ材料)を開発し、そのセンサ材料を、材料診断対象とする機械・構造体の表面に接合或いは内部に埋設することで、その応力状態を把握しようとする手法である。これは予め応力依存性がわかっているため、初期値の管理が容易となり、外部応力の絶対的な評価が可能になる。

具体的には、坂本ら[74]は、非接触式の磁気ヘッドおよび応力センサ用の鋼材を開発している。この鋼材は、バルクハウゼンノイズに対する高い応力感受率を示す球状径セメンタイト組織に着目してセンサ部材として選定されており、この鋼材を鉄道レール部に貼り付けてバルクハウゼンノイズを評価することで、精度の高い応力測定を実現している。同様に、古屋と岡崎ら[75,76]は、形状記憶合金 Fe-Pd における外部刺激に誘起される相変態を利用した応力検出手法を提案している。特に、荷重負荷あるいは温度変化により析出される合金内の低温安定相 bcc マルテンサイトおよび、双晶磁歪を引き起こす細かい fct マルテンサイトの両相が、バルクハウゼンノイズ特性を変化させ、その依存性から応力値を算出できることを見出している。また、Vertestyら[77]は、冷間圧延した TRIP (Transformation Induced Plasticity) 薄板を用いた応力誘起変態における析出相の影響とその磁気パラメータの相関を調査している。

以上に示したようにバルクハウゼンノイズの発見から今日まで、1世紀にもわたるバルクハウゼンノイズ研究の中で、膨大な数の実験に加え、提案された様々なバルクハウゼンノイズ発生モデルを用いたシミュレーションや理論計算が試みられてきたが、未だにその基礎学理に基づく理論の体系化が成し得ておらず、上記で挙げたような応力測定や材質診断が精度良く実現するためには至っていない。

1.3.3 応力誘起型バルクハウゼンノイズ

これまでは外部磁場により誘導されたバルクハウゼンノイズとその静的な応力状態の相関に関する背景を説明してきた。本小節では、衝撃的な変動荷重がバルクハウゼンノイズやその磁壁移動に及ぼす影響に関する背景と先行研究について述べる。

前述したように、強磁性体内における磁区構造は、原子のマイクロな磁気モーメント(スピン)の配列により形成され、その磁気モーメントの遷移領域である磁壁とその挙動は、スピンの交換相互作用や磁気異方性定数によって決定される[27]。荷重負荷に対してバルクハウゼンノイズ出力電圧が変化する現象は、磁歪の逆効果に起因した磁区構造変化や磁壁挙動の影響を受けると考えられている。Kauseら[78]は、バルクハウゼンノイズ出力電圧の増減は磁歪定数 λ の正負によって定められているとし、材料内の存在する磁壁の種類(180度磁壁と非180度磁壁)とその特徴で説明している。 λ が正の場合、引張応力が作用されると、逆磁歪効果により発生応力場の方向と平行の180度磁壁の数が増大するため、バルクハウゼンノイズ出力電圧が増大する。一方、圧縮応力が作用されると、その垂直方向に平行な180度磁壁が増加するため、バルクハウゼンノイズは減少する。 λ が負の場合は、上記と反対の挙動が見られる。このように、磁歪定数 λ の正負やその絶対値に起因して、荷重負荷に対するバルクハウゼンノイズの依存性は大きく変わる。

これまでに、外部磁場や電流印加による磁壁移動[79-81]が多く報告されている。これらの磁壁挙動は物質(材料)のワイヤ形状[82]や印加磁場条件[83]の影響も受けることが知られている。近年では、高磁歪(200 ppm) Fe-Ga 系合金ナノワイヤにおいて、応力の作用による磁壁移動及びその位置・スイッチング制御[84]が報告されている。さらに、磁歪圧電積層膜における印加電圧により生じる圧電材料の歪みを介した(マルチフェロイック機能を利用した)磁歪材料内の磁壁移動[85]も確認されている。これらの磁壁挙動に寄与する一因として、一軸方向の応力勾配が挙げられ、マイクロマグネティクスシミュレーション[86]による整合性も確認される。

しかし、上記の報告は全てナノワイヤ単結晶を用いた研究成果であり、マイクロオーダー以上の線径を有する素材での磁壁移動は報告されていない。これらは、多結晶バルク体における磁壁挙動の評価が難しいことや、その応用先が十分に検討されていないからであると考えられる。

同様な理由から、応力誘起によって生じるバルクハウゼンノイズに関する報告はこれまで行われていない。しかし、複雑な磁区構造を示す、磁壁の動的移動やそのマイクロな磁気モーメントのわずかな変化に起因したバルクハウゼンノイズを検知できれば、材料中の応力状態や材料診断に有効なバルクハウゼンノイズ手法を拡張させ、動的応力検知にも適用可能なセンサとしての利用価値が期待できる。

本研究で使用する高強度かつ高い磁歪定数を有する Fe-Co 合金ワイヤ(直径 1 mm 以下)ではこのような応力誘起バルクハウゼンノイズを検知できる可能性を模索する価値は大いにあり、応力勾配を有する衝撃荷重の負荷による逆磁区発生、磁壁移動と金属組織との相互作用(ピン止め

現象)を調査することで、バルクハウゼンノイズの理解を深め、センサ特性の向上が実現すると考えられる。

従来の励磁型バルクハウゼンノイズと新たに提案する応力誘起型バルクハウゼンノイズの特徴と検出システムを **Fig. 1-23** に示す。本提案の計測システムにより、機械・構造部材に連続的に発生する実際の変動荷重のうち、平均応力である静的荷重と、衝撃的な変動荷重を分離することが可能となる。更に、本磁歪材料の高いキュリー温度 ($T_c \sim 965^\circ\text{C}$) [87]を考慮すると、熱的・力学的負荷の大きい土木系インフラ分野や化学プラントなどでの特異な環境下でリアルタイムな応力状態管理・経年劣化診断も大いに期待できる。その一例として **Fig. 1-24** に示す。さらには、従来は極めて困難視されていた、マイナー則に基づく疲労予測や劣化損傷評価に対して、応力誘起型バルクハウゼンノイズを利用した手法を検討することで、**Fig. 1-25** に示すような電源不要かつ非接触な革新的な材料診断技術への発展性も期待できる。

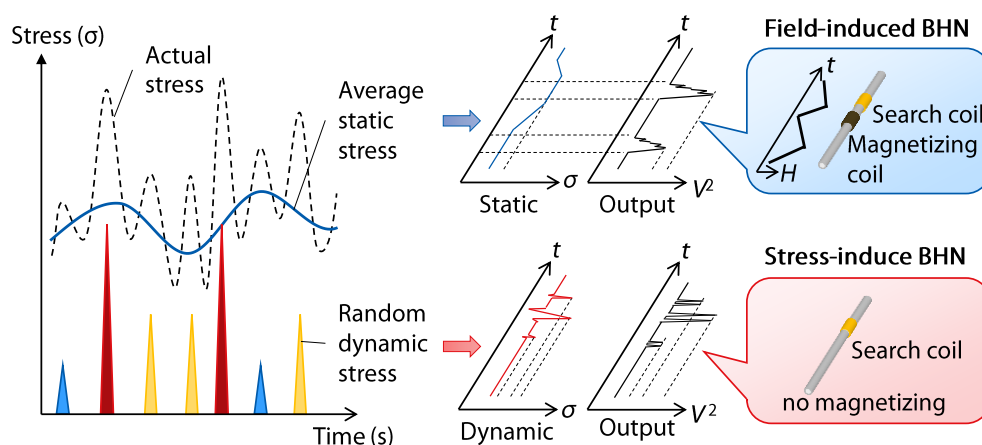


Fig. 1-23 Conceptual diagram of characteristics and detection system of conventional field-induced Barkhausen noise (FI-BHN) and newly proposed stress-induced Barkhausen noise (SI-BHN) against actual fluctuating stress.

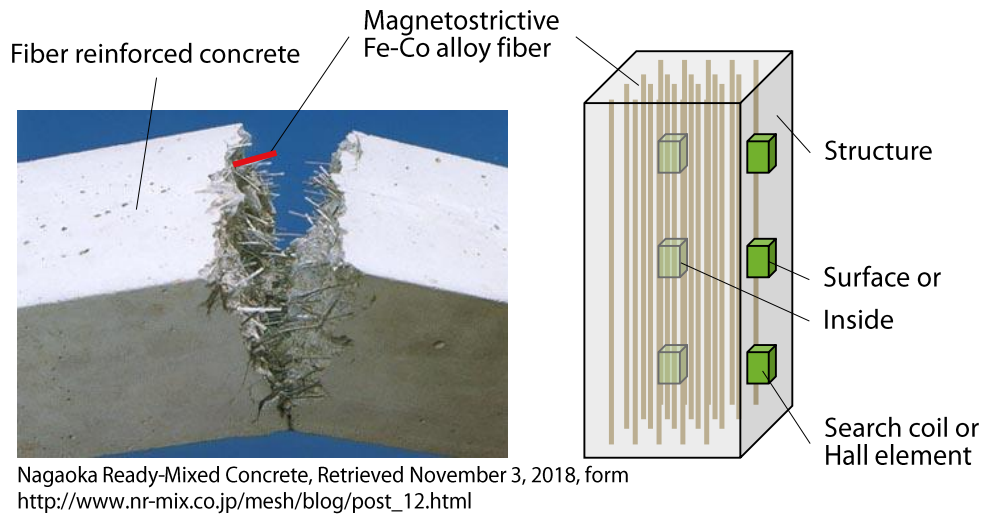


Fig. 1-24 An example of the application of inverse magnetostrictive stress sensor utilizing stress-induced Barkhausen noise to fiber reinforced concrete.

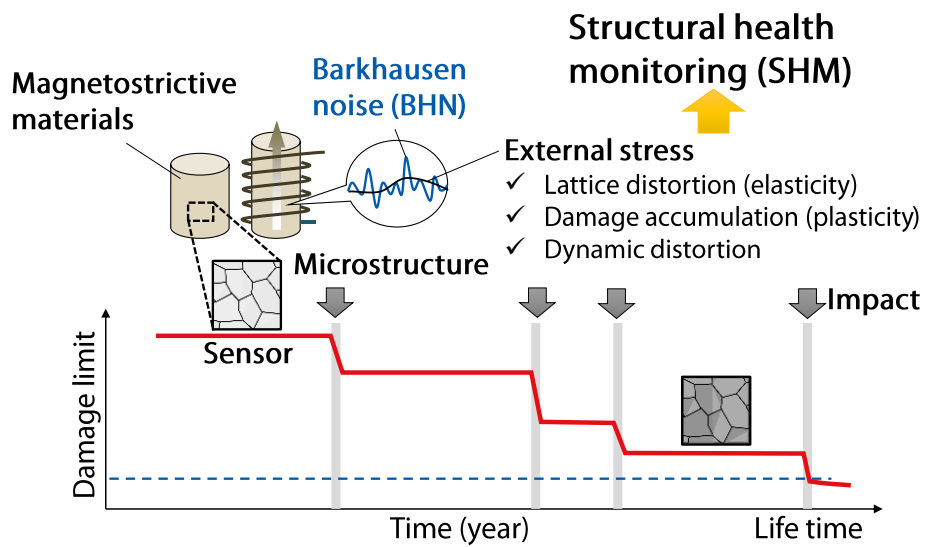


Fig. 1-25 Novel sensors for structural health monitoring (SHM) focusing on Barkhausen noise for the magnetostrictive materials.

1.4 現状の課題と本研究の目的

以上の背景を踏まえ、Fe-Co 磁歪材料の磁化過程に発生するバルクハウゼンノイズに着目した、新たな応力センサおよびひずみ蓄積量センサとしての有効性を検討する。

前述したように、バルクハウゼンノイズは強磁性材料内部における磁壁移動のピン止め現象により生じる不連続磁化であり、金属組織形態や応力状態に対して敏感に応答する。特に、引抜加工および熱処理により形状・組織制御された Fe-Co 多結晶合金ワイヤは優れた磁氣的・機械的特性を有している。そのため、バルクハウゼンノイズ検出部となるセンサ材料として本磁歪材料を選定することで、外部応力の作用により発生する以下のような力学的パラメータに対する高い応答性が期待される。

- ✓ 弾性変形領域での格子ひずみ
- ✓ 塑性変形により蓄積されるひずみ損傷
- ✓ 衝撃応力の発生により生じる動ひずみ

しかしながら、このような大磁歪かつ高強度を示す磁歪合金におけるバルクハウゼンノイズの発生挙動やそのノイズ発生に影響を及ぼす上記 3 つの内部要因との相関性が明らかになっていない。さらには、それらを実現する検出システムや高いセンサ特性を示す材料設計指針が未確立であることが課題として挙げられる。そのため、磁歪材料において発生するバルクハウゼンノイズの応答特性に関する基礎学理の確立を目指す上で必要となる次の技術項目を明らかにすることを目的とする。

- 1) 磁歪合金の磁気・磁歪特性に及ぼす金属組織の影響
- 2) バルクハウゼンノイズの発生挙動に及ぼす格子ひずみの影響とその応答特性
- 3) バルクハウゼンノイズの発生挙動とひずみ損傷の相関性
- 4) 動的応力により誘起されるバルクハウゼンノイズの検出とその発生挙動

以上の検討項目を元に、大磁歪を示す Fe-Co 合金ワイヤにおける磁化過程で発生するバルクハウゼンノイズに着目し、そのノイズの発生に関する磁壁の移動挙動と金属組織、転位、ひずみとの関連性の解明を本研究の目的とする。さらに、応力下での外部磁場、或いは衝撃応力のみにより誘起されるバルクハウゼンノイズを利用した全く新しい応力センサ・ひずみ損傷センサを提案することにより、材料に作用する変動応力や材料内に蓄積されるひずみ損傷の定量評価手法の確立を目指す。

1.5 本論文の構成

本論文は、以下の 6 章で構成されている。

第 1 章では、本研究の背景と先行研究について述べるとともに、研究で着目する研究課題と研究目的を示し、本論文の構成についてまとめている。

第 2 章では、本研究で用いる加工熱処理を施した $\text{Fe}_{30}\text{Co}_{70}$ 合金の金属組織と磁気・磁歪特性の相関性の検証を行った。特に、組織パラメータとして結晶粒径と転位密度に着目して、磁気・磁歪・発電出力特性に及ぼす金属組織の影響を検討した。その後、鋼球落下試験による出力電圧特性を調査することで、金属組織制御に基づく出力特性の向上に関する考察を行った。

第 3 章では、応力下でのバルクハウゼンノイズ検出システムを構築し、その出力特性の応力依存性に及ぼす金属組織の影響評価を行った。特に、Fe-Co 磁歪材料の弾性限界の範囲内における応力センサ特性の検証することにより、バルクハウゼンノイズを利用した応力センサへの有効性を検討した。さらに、バルクハウゼンノイズ出力電圧の時間軸波形に及ぼす静的応力の影響評価とその応答スペクトル解析から、金属組織形態に基づく磁壁移動モデルを示した。

第 4 章では、外部磁場により誘起されるバルクハウゼンノイズを利用した新たなひずみ損傷センサシステムを検討した。磁歪材料の塑性変形より蓄積される転位に着目し、磁歪材料におけるバルクハウゼンノイズ特性に及ぼすひずみ損傷の影響を調査した。結晶構造解析から算出した転位密度とバルクハウゼンノイズの相関性から、ひずみ損傷の定量的な評価手法を確立し、磁歪材料中のひずみ損傷度の予測モデルを提案した。

第 5 章では、荷重負荷により誘起されるバルクハウゼンノイズを検出可能な計測システムを構築し、衝撃荷重を与えた際に誘導される磁束密度変化からバルクハウゼンノイズの測定・評価を実施した。試験片としてエポキシ樹脂を用いた円筒形の磁歪複合材料を作製し、衝撃圧縮試験によるバルクハウゼンノイズ出力電圧の発生挙動を検証した。さらに、バルクハウゼンノイズ発生挙動に及ぼす応力速度の影響を調査することで、磁歪材料中に発生する動的応力の定量評価手法を検討した。

最後に、第 6 章では、本研究で得られる成果をまとめるとともに、本研究が波及しうる社会的意義について言及した。

なお、巻末に付録 S1 及び S2 において、磁区の直接観察およびバルクハウゼンノイズの検出システムに関する研究成果を補足資料として添付した。

参考文献 1

1. 内閣府, Society5.0, 2016, http://www8.cao.go.jp/cstp/society5_0/ (参照 2018-11-3).
2. 内閣府, 第 5 期科学技術基本計画, 2016.
3. JEITA, センサ・グローバル状況調査 2017 センサ世界出荷実績(2016 年)の発表, 2016.
4. 富士キメラ総研, 2017 センサーデバイス/ビッグデータ・IoT 市場調査総覧, 2017 年.
5. 総務省, 情報通信白書平成 27 年版, 2015.
6. S. Kaminaga, Trillion Sensors and MEMS, *Sensors and Materials* 30, 4 (2018), 723–731.
7. ローム株式会社, NE ハンドブックシリーズ センサネットワーク, 発行日経 BP 社, 2014.
8. 鈴木雄二ほか, 環境発電ハンドブック, エヌ・ティー・エス, 2012.
9. R. J. M. Vullers, R. van Schaijk, I. Doms, C. Van Hoof, R. Mertens, Micropower energy harvesting, *Solid-State Electronics* 53 (2009) 684–693.
10. 増田新, 振動エネルギーハーベスティング-環境振動発電技術-はモノになるか? *機械力学・計測制御部門ニュース* 57, 4, 2016.
11. M. Lee, J. Yang, M. J. Park, S. Y. Jung, J. Kim, Design and Analysis of Energy-Efficient Single-Pulse Piezoelectric Energy Harvester and Power Management IC for Battery-Free Wireless Remote Switch Applications, *IEEE Transactions on Circuits and Systems I* 65, 1 (2018), 366-379.
12. TOTO LTD, Aqua auto, Retrieved November 1, 2018, from, <https://jp.toto.com/products/faucet/groom/aqua.htm>
13. Perpetuum Ltd, Retrieved November 1, 2018, from <https://perpetuum.com/industrial-applications/>
14. 竹内敬治, エネルギーハーベスティングの最新動向, *表面技術* 67, 7 (2016).
15. 島村昭治, 最近の複合材料, *機械の研究* 29, 1(1977), 227-237.
16. Q. Liang, D. Zhang, G. Coppola, J. Mao, W. Sun, Y. Wang and Y. Ge, Design, and Analysis of a Sensor System for Cutting Force Measurement in Machining Processes, *Sensors* 16, 70 (2016).
17. W. L. Jin, P. K. Venuvinod, X. Wang, An optical fiber sensor based cutting force measuring device, *Int. J. Mach. Tools Manufact.* 35, 6, (1995), 877-883.
18. J. D Kim, D. S. Kim, Development of a combined-type tool dynamometer with a piezo-film accelerometer for an ultra-precision lathe, *Journal of Materials Processing Technology* 71 (1997) 360-366.
19. B. C. Rao, R. X. Gao, C. R. Friedrich, Integrated force measurement for on-line cutting geometry inspection, *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement* 44, 5 (1995), 977-980.

20. T. A. Baudendistel, M. L. Turner, A Novel Inverse-Magnetostrictive Force Sensor, *IEEE Sensors Journal* 7, 2 (2007), 245-250.
21. S. Hori, T. Okazaki, Y. Furuya, M. Shimada, M. Yokoyama, M. Nakamura, Effect of Heat Treatment under Stress on Torque Sensing Using Magnetostrictive (Fe-Ga-Al)-Zr-C Alloy Ring, *Materials Transactions*, 53, 5 (2012), 963-967.
22. 古屋 泰文, 岡崎 禎子, 金属系アクチュエータ・センサ材料の研究開発－急冷固化マルチフェロイクスへの新展開-, *軽金属* 55, 5 (2005), 233-241.
23. 国土交通省, インフラ長寿命化計画(行動計画), 2014.
24. L. Wang, F. G. Yuan, Energy harvesting by magnetostrictive material (MsM) for powering wireless sensors in SHM, *Proc. SPIE 6529, Sensors and Smart Structures Technologies for Civil, Mechanical, and Aerospace Systems 2007*, 652941 (2007).
25. J. P. Joule, *Ann. Electr. Magn. Chem.* 8,219 (1842).
26. E. Villari, Change of magnetization by tension and by electric current, *Annu. Rev. Phys. Chem.* 126 (1865) 87-122
27. 近角聡信, 強磁性体の物理(下), 昇華房, 1995.
28. T. Ueno, Energy harvesting and actuator technology using magnetostrictive material, current status and prospective, *Journal of the Japan Society for Precision Engineering* 79 4 (2013) 305-308.
29. A. B. Flatau, M. J. Dapino and F. T. Calkins, On Magnetostrictive Transducer Applications, *Mat. Res. Soc. Symp., Proc.* 604, (2000) 247-259.
30. R. C. Hall, Single-Crystal Magnetic Anisotropy and Magnetostriction Studies in Iron-Base Alloys, *J. Appl. Phys.* 31, 6, (1960), 1037-1038.
31. R. C. Hall, Magnetostriction of Aluminum-Iron Single Crystals in the Region of 6 to 30 Atomic Percent Aluminum, *J. Appl. Phys.* 28, (1957), 707-713.
32. A. E. Clark, B. F. DeSavage, and R. Bozorth, Anomalous Thermal Expansion and Magnetostriction of Single Crystal Dysprosium, *Physical Review* 138 (1965), A507.
33. A. E. Clark and H. S. Belson, Magnetocrystalline Anisotropy in Cubic Rare Earth - Fe₂ Compounds, *AIP Conference Proceedings* 10, 749 (1973).
34. A. E. Clark, J. B. Restorff, M. Wun-Fogle, T. A. Lograsso, and D. L. Schlagel, Magnetostrictive Properties of Body-Centered Cubic Fe-Ga and Fe-Ga-Al Alloys, *IEEE Trans. Magn.* 36 (2000), 3238.
35. T. Takahashi, T. Okazaki, Y. Furuya, Improvement in the mechanical strength of magnetostrictive (Fe-Ga-Al)-X-C (X = Zr, Nb and Mo) alloys by carbide precipitation, *Scripta Materialia* 61, 1 (2018), 5-7.

36. J. Li, M. Li, X. Mu, X. Bao, X. Gao, Magnetostrictive FeGa Wires for Application in the High-Temperature Waveguide Device, *Materials Transactions* 59, 4 (2018), 679-684.
37. "Web of Science, analysis (2018.11.2)
38. R. Sundar, S. Deevi, Soft magnetic FeCo alloys: alloy development, processing, and properties, *Int. Mater. Rev.* 50 (2005), 157-192.
39. J. H. White and C. V. Wahl, Workable magnetic compositions containing principally iron and cobalt, US patent No 1862559, 1932."
40. Y. Mashiyama, *Sci. Rept. Tohoku Univ.* 21 (1932), 394-410.
41. L. Dai and M. Wuttig, *Magnetostriction in Co-rich bcc CoFe Solid Solutions* (Department of Mat. Sci & eng., University of Maryland, 2007).
42. 古屋泰文ほか, FeCo 系磁歪合金及びその製造方法, 特開 2014-84484, 2014.
43. S. Yamaura, S. Makino, N. Kimura, M. Yokoyama, T. Kubota, and Y. Furuya, Magnetic properties of heat-treated Fe-Co alloys and their potential for vibration energy harvesting, *Trans. Mat. Res. Soc. Japan* 42 (2017), 127–133.
44. N. Kimura, T. Kubota, Y. Furuya, Heat Treatment and cold-rolled Effect on Magnetic·Magnetostrictive Properties in Rapidly Co-Fe Alloy ribbon, *Journal of the Japan Society of Applied Electromagnetics and Mechanics*, 24, 4 (2016).
45. F. Narita, Inverse Magnetostrictive Effect in Fe₂₉Co₇₁ Wire/Polymer Composites, *Adv. Eng. Mat.* (2016). DOI: 10.1002/adem.201600586.
46. F. Narita, M. Fox, A Review on Piezoelectric, Magnetostrictive, and Magnetoelectric Materials and Device Technologies for Energy Harvesting Applications, *Adv. Eng. Mater.* 20 (2018) 1700743.
47. H. Barkhausen, Two phenomena revealed with the help of new amplifiers, *Phys. Z* 29 (1919), 401-403.
48. P. Weiss, L'hypothèse du champ moléculaire et la propriété ferromagnétique. *J. Phys. Theor. Appl.* 6, 1 (1907), 661-690.
49. T. Lüthi, Non-Destructive Evaluation Methods, MSE-610 (2014), Retrieved November 3, 2018, from, [https://phd.epfl.ch/files/content/sites/phd/files/shared/edmx/MSE-610%20\(2014\).pdf](https://phd.epfl.ch/files/content/sites/phd/files/shared/edmx/MSE-610%20(2014).pdf)
50. C. Morón, C. Cabrera, A. Morón, A. García, M. González, Magnetic Sensors Based on Amorphous Ferromagnetic Materials: A Review, *Sensors (Basel)* 11, 15(11) (2015), 28340-66.
51. M. Augustyniak, Z. Usarek, Finite Element Method Applied in Electromagnetic NDTE: A Review, *Journal of Nondestructive Evaluation* (2016), 35-39.
52. E. P. T. Tyndall, The Barkhausen Effect, *Phys. Rev.* 24, 439 (1924).

53. R. M. Bozorth, Barkhausen effect in iron, nickel and permalloy. I. Measurement of discontinuous change in magnetization, *Phys. Rev.* 34, 772 (1929).
54. 古屋泰文, バルクハウゼンノイズ法による非破壊材料評価, *溶接学会誌* 64, 2 (1995).
55. R. M. Bozorth and J. F. Dillinger, Propagation of Magnetic Disturbances along Wires, *Nature* 127 (1931), 777.
56. R. S. Tebble, I. C. Skidmore and W. D. Corner, The Barkhausen effect, *Proc. Phys. Soc. (London)* A63, 739 (1950).
57. Southwest Research Institute., Method and Apparatus for Mapping Stress Within Ferromagnetic Materials by Analyzing Barkhausen Noise Formed by the Introduction of Magnetic Fields, Patent Number 5166613 (1992) .
58. American Stress Technologies, Inc., Retrieved November 3, 2018, from, <https://www.astresstech.com/en-us/products/>
59. NSST, バルクハウゼンノイズ測定装置 研磨焼け検出装置, Retrieved November 3, 2018, from, <http://www.nsst.nssmc.com/technology/bn/>
60. S. Yamaura, Y. Furuya, and T. Watanabe, The effect of grain boundary microstructure on Barkhausen noise in ferromagnetic materials, *Acta Mater.* 49, 15 (2001), 3019–3027.
61. D. Oriwol, E.-R. Carl, A.N. Danilewsky, L. Sylla, W. Seifert, M. Kittler, and H.S. Leipner, Small-angle subgrain boundaries emanating from dislocation pile-ups in multicrystalline silicon studied with synchrotron white-beam X-ray topography, *Acta Materialia* 61 (2013), 6903–6910.
62. L. Clapham, C. Heald, T. Krause, D. L. Atherton, and P. Clark, Origin of a magnetic easy axis in pipeline steel, *J. Appl. Phys.* 86, 3 (1999).
63. J. Pal'a, E. Ušák, New parameters in adaptive testing of ferromagnetic materials utilizing magnetic Barkhausen noise, *J. Magn. Magn. Mater.* 402 (2015).
64. M. Vaidhianathasamy, S.V. Aidyanathan, B. Raj, On the influence of tempered microstructures on magnetic Barkhausen emission in ferritic steels, *Philosophical Magazine* A77, 6 (1998).
65. M. J. Sablik, and B. Augustyniak, The effect of mechanical stress on a Barkhausen noise signal integrated across a cycle of ramped magnetic field, *J. Appl. Phys.* 79, 963 (1996).
66. C. G. Rothea, J. Chicois, R. Fougères, and P. Fleischmann, Characterization of pure iron and (130 ppm.) carbon–iron binary alloy by Barkhausen noise measurements: study of the influence of stress and microstructure, *Acta Mater.* 46, 14 (1998) 4873–4882.

67. G. Durin and S. Zapperi, Scaling Exponents for Barkhausen Avalanches in Polycrystalline and Amorphous Ferromagnets, *Phys. Rev. Lett.* 84 (2000), 4075-4078.
68. A. Sorsa, K. Leiviskä, S. Santa-aho, T. Lepistö, Quantitative prediction of residual stress and hardness in case-hardened steel based on the Barkhausen noise measurement, *NDT & E International* 46, 1, (2012) 100-106.
69. O. Stupakov, J. Pal'a, T. Takagi, T. Uchimoto, Governing conditions of repeatable Barkhausen noise response, *J. Magn. Magn. Mater.* 321, 18 (2009) 2956-2962.
70. B. Alessandro, C. Beatrice, G. Bertotti, and A. Montorsi, Domain - wall dynamics and Barkhausen effect in metallic ferromagnetic materials. I. Theory, *J. Appl. Phys.* 68, 2901 (1990).
71. H. Sakamoto, M. Okada, M. Homma, Theoretical analysis of Barkhausen noise in carbon steels, *IEEE Trans. Magn.* 23 (1987), 2236.
72. T. Inaguma, H. Sakamoto, M. Hasegawa, Stress Dependence of Barkhausen Noise in Spheroidized Cementite Carbon Steel, *IEEJ Transactions on Fundamentals & Materials* 155-A, 10 (1995), 993.
73. T. Inaguma, H. Sakamoto, and M. Hasegawa, Microstructure dependence of Barkhausen voltage pulse width in steel, *Journal of Applied Physics* 111, 063903 (2012).
74. 坂本広明, 稲熊徹, バルクハウゼンノイズの応力測定への応用, *日本応用磁気学会誌* 22, 12 (1998).
75. 古屋泰文, Hagood N. W., 田本静香, 久保田健, 岡崎禎子, 磁性形状記憶 Fe-Pd 合金相変態の磁気バルクハウゼンノイズによる評価, *日本金属学会誌* 66, 1 (2002), 28-33.
76. T. Okazaki, T. Ueno, Y. Furuya, M. Spearing, N. W. Hagood, Detectability of stress-induced martensite phase in ferromagnetic shape memory alloy Fe-30.2at.%Pd by Barkhausen noise method, *Acta Materialia* 52 (2004), 5169–5175.
77. G. Vertesy, I. Meszaros, I. Tomas, Nondestructive magnetic characterization of TRIP steels, *NDT&E International* 54 (2013), 107–114.
78. T. W. Krause, L. Clapham, A. Pattantyus, and D. L. Atherton, Investigation of the stress - dependent magnetic easy axis in steel using magnetic Barkhausen noise, *Journal of Applied Physics* 79, 4242 (1996).
79. D. Atkinson, D. A. Allwood, G. Xiong, M. D. Cooke, C. C. Faulkner, and R. P. Cowburn, A stable quasi-solid-state dye-sensitized solar cell with an amphiphilic ruthenium sensitizer and polymer gel electrolyte, *Nat. Mater.* 2, 85 (2003).
80. M. Hayashi, L. Thomas, C. Rettner, R. Moriya, Y. B. Bazaliy, and S. S. P. Parkin, Current Driven Domain Wall Velocities Exceeding the Spin Angular Momentum Transfer Rate in Permalloy Nanowires, *Phys. Rev. Lett.* 98, 037204 (2007).

81. Y. Nakatani, A. Thiaville, and J. Miltat, Faster magnetic walls in rough wires, *Nat. Mater.* 2, 521 (2003).
82. M. T. Bryan, T. Schrefl, and D. A. Allwood, Dependence of Transverse Domain Wall Dynamics on Permalloy Nanowire Dimensions, *IEEE Trans. Magn.* 46, 1135 (2010).
83. A. Kunz and S. C. Reiff, Enhancing domain wall speed in nanowires with transverse magnetic fields, *J. Appl. Phys.* 103, 07D903 (2008).
84. M. T. Bryan, J. Dean, and D. A. Allwood, Dynamics of stress-induced domain wall motion, *PHYSICAL REVIEW B* 85, 144411 (2012).
85. J. Dean, M. T. Bryan, T. Schrefl, and D. A. Allwood, Stress-based control of magnetic nanowire domain walls in artificial multiferroic systems, *Journal of Applied Physics* 109, 023915 (2011).
86. M. T. Bryan, S. Bance, J. Dean, T. Schrefl, and D. A. Allwood, Transverse and vortex domain wall structure in magnetic nanowires with uniaxial in-plane anisotropy, *J. Phys.: Condens. Matter.* 24, 024205 (2012).
87. R. Sundar, S. Deevi, Soft magnetic FeCo alloys: alloy development, processing, and properties, *Int Mater Rev*, 50 (2005), 157-192.

第 2 章

Fe-Co 磁歪合金の磁気的特性に 及ぼす金属組織の影響

概要

第 2 章では、本研究で用いる $\text{Fe}_{30}\text{Co}_{70}$ 合金の金属組織と磁気・磁歪特性の相関性の検証を行った。特に、組織パラメータとして結晶粒径と転位密度に着目した。磁壁移動の阻害要因となる結晶粒径の増大と転位密度の減少により、保磁力の減少(0.22 倍)と磁歪感受率の増大(3.5 倍)を示し、最大で 91.2 mJ/s の出力電力を示した。結晶粒の回復・再結晶に起因する内部ひずみや転位の消失により、磁歪を誘導する磁壁移動や磁化回転の抑制作用が軽減されたからであると考えられる。

2.1 はじめに

磁歪材料は外部磁場により形状が変化し、外力の作用により材料内の磁化が変化する材料である。このマイクロなひずみの発生を介して行われる磁気エネルギーと力学的エネルギーの可逆的な相互変換を通じて、磁歪材料は、材料自体の力学機能を利用したセンサ・アクチュエータ材料として注目される。近年では、機械・構造物で発生する振動や力学的負荷をエネルギー源とすることで、磁歪材料における逆磁歪効果を利用した振動エネルギーハーベスティング[1]やダンピングデバイス[2]、応力・トルクセンサ[3]などへの幅広い応用が期待されている。

強磁性体の中でも、1973年と2000年に米軍によって開発された Terfenol-D (Tb-Dy-Fe 合金) [4]と Galfenol (Fe-Ga 系合金) [5]が優れた磁歪特性を示すため、実用化に向けた研究開発が多く行われてきた。Xingら[6]は、鋳造された Fe-Ga 合金の異相物質間での、特に、準安定相である DO_3 と安定相である L12 の相互作用が、大きな磁歪量を促し、小さな保磁力などの優れた感度を示すのに重要な役割を果たすことを報告されている。しかしながら、これらの磁歪材料は大きな発生力や変位量、小さなヒステリシスを示すため、アクチュエータ特性に優れるものの、逆磁歪効果による振動発電や力センサへ適用できるほどの機械的特性に有していなかった。さらに、単結晶合金である構成組成に希土類系元素やレアメタルを有しているため、製造コストが高く、広く普及されることがなかった。

一方で、近年 Y. Furuyaら[7]によって Co 過剰型の Fe-Co 合金が優れた機械的特性を有することが見出され、力学的過酷環境への応用展開が期待されている。S. Yamauraら[8]は、多結晶 $Fe_{1-x}Co_x$ ($x = 50-90$ mol%) 合金への鍛造およびその後の冷間圧延(圧延率 $\sim 97\%$)により、圧延(RD)方向に沿った $Fe_{25}Co_{75}$ 合金において 128 ppm の大きな磁歪量を報告している。それらの磁歪合金では、強加工による格子ひずみの導入により、負の磁歪を有する fcc-Fe 相の生成を抑制できることが示唆されている。このように優れた加工性を有する Co 過剰型 Fe-Co 合金では、近年、膜厚(直径)0.02 mm までの冷間圧延による薄板化、冷間引抜きによる細線化を実現[9]しており、それらの加工素材を用いた機械・構造物への多面展開も期待されている。

また、マイクロな視点から磁歪材料を観察すると、磁歪現象は材料内の金属組織とその磁化過程に起因している。先述の Terfenol-D における飽和磁歪の発現機構は、モルフォトロピック相境界(構造的な組成境界)における磁気と格子の不安定性に起因すると説明される。任ら[10]は、室温において異なる結晶相が混成されるモルフォトロピック相境界となるように組成制御された希土類強磁性合金 $TbCo_2$ - $DyCo_2$ においてその巨大磁歪を報告している。これらの発見によって、金属組織と磁化・磁歪挙動が互いに影響しあうという新たな知見が得られた。同様に、Hunter et al. [11]らは、スパッタリング技術を用いた 2 元系 FeCo 合金薄膜を開発し、(bcc + fcc)/bcc 相境界付近での熱処理により磁歪量の大幅な増大を報告している。この時、 $Fe_{34}Co_{66}$ 薄膜における有効磁歪量は、1073 K での熱処理急冷により最大 260 ppm を、特に、(100)方向への磁歪量 λ_{100} は 1000 ppm を示すポテンシャルを有していることが示唆されており、金属組織の制御による更なる磁歪特性の向上、特にセンサ特性に決定する、磁歪感受率の向上がますます期待される。

しかしながら、これまで多結晶合金における磁歪特性と金属組織の関係を調査した研究は少なく、Co 過剰域 Fe-Co 合金におけるそのような相関性に関する知見は十分でないのが現状である。

そこで、本研究では、引抜加工を施すことにより得られた新たな多結晶 $\text{Fe}_{30}\text{Co}_{70}$ 合金ワイヤを研究対象とし、その磁気・磁歪特性を調査することで、その金属組織との相関性を明らかにすることを目的とする。特に、センサ特性に重要な保磁力や磁歪感受率に着目して、Fe-Co 合金の金属組織因子との相関を議論していく。最後に、逆磁歪効果に基づく発電性能を確認するために、鋼球落下試験を行い、その発電出力性能評価を実施する。このようにして、磁歪材料を用いた発電デバイス、センサ・アクチュエータ特性を決定する金属組織因子を把握することにより、更なる高性能な磁歪材料設計指針の構築を目指す。

これらの知見は、磁歪材料における磁化過程で発生するバルクハウゼン効果とその微細組織の関係性を評価する上で重要な評価指標となるため、本研究において使用する Fe-Co 合金ワイヤの微細組織と磁気的特性を把握することは非常に重要である。

2.2 実験方法

2.2.1 供試材

供試材は直径 1 mm の $\text{Fe}_{100-x}\text{Co}_x$ ($x = 70 \text{ mol\%}$) ワイヤを用いた。磁歪特性を向上させるための有効な熱処理条件は、2 元系 Fe-Co 合金の状態図(**Fig. 2-1**)によって決定した。金属組織を調査するいくつかの熱処理を行った。まずは、加工まま材(as-drawn 材)である $\text{Fe}_{30}\text{Fe}_{70}$ 合金ワイヤに対して、再結晶温度以下である 420°C で 24 時間の焼鈍し熱処理を行った。以下、この熱処理材を $420^\circ\text{C}\text{-FC}$ (furnace cooling)材と呼ぶ。この熱処理は、引抜き加工時に導入された残留応力や格子歪みを除去することを目的としている。次に、再結晶温度以上となる 820°C での 5 時間の焼入れ熱処理を行った。冷却には水焼入れを行った。以下、この熱処理材を $820^\circ\text{C}\text{-WQ}$ (water quenching)材と呼ぶ。この高温熱処理では、結晶粒の再結晶組織の形成及び結晶粒の粗大化を目的としている。更には、 820°C での熱処理温度は、Fe-Co 系合金の状態図における $\text{Co}=70 \text{ mol\%}$ のモルフォトピック相境界、つまり(bcc-Fe + fcc-Co)/ bcc-Fe 相境界付近であるため、過去の報告で見られるような、焼入れ熱処理による高磁歪化が期待できる温度である。

各熱処理は Ar を用いた真空密閉石英管中で行った。これらのワイヤ材を以下に示すような所定の長さに切断(組織観察:30 mm, X 線回折測定: 30 mm, VSM 測定: 10 mm, 鋼球落下試験: 10 mm)した後に、以下に示すような組織解析, 磁気的特性評価を実施した。

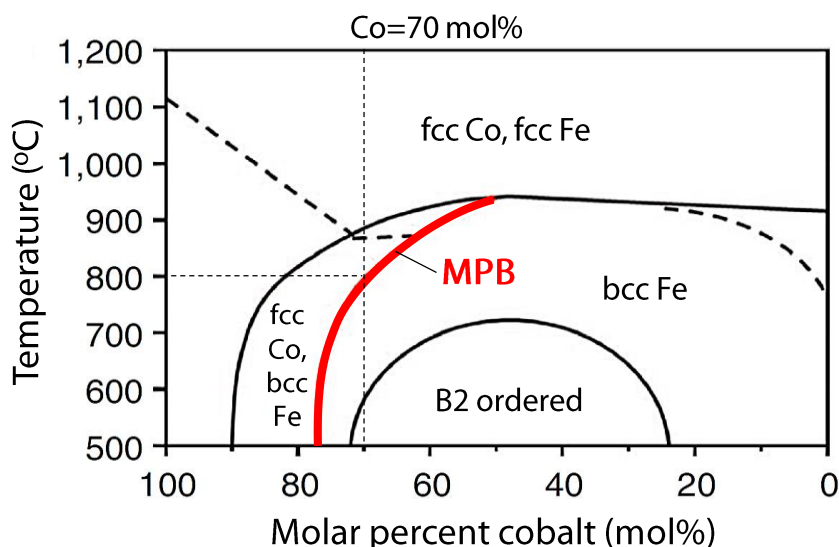


Fig. 2-1 Fe-Co phase diagram[8]. The red line shows a morphotropic phase boundary (MPB) in Fe-Co alloy system. The (bcc-Fe+fcc-Co)/bcc-Fe interface is a MPB at temperature of around 800°C of $\text{Fe}_{100-x}\text{Co}_x$ ($x=70 \text{ mol\%}$) alloys.

2.2.2 金属組織解析

構造同定及び転位密度算出には、リガク社製の X 線回折装置 (XRD; Ultima-IV) を用いた。測定範囲 30-90° とし、Fe-Co 合金ワイヤの結晶構造は、CuK α 線を用いた X 線回折測定のパークの決定により求めた。転位密度の算出には、XRD パターンより算出した各ピーク(110), (200), (211)における半価幅 (FWHM) を求め、Williamson-Hall プロット[12]を利用して転位密度の算出を行った。Williamson-Hall プロットには、以下の 2 式を用いて計算を行った。

$$\beta \cos\theta \frac{1}{\lambda} = \frac{0.9}{D} + 2\varepsilon \frac{\sin\theta}{\lambda} \quad (2-1)$$

$$\rho = 14.4 \frac{\varepsilon^2}{\beta^2} \quad (2-2)$$

この時、 β は半価幅、 λ は CuK α の波長、 D は結晶サイズ、 ε は格子ひずみを示す。

組織観察には、キーエンス社製のレーザー顕微鏡 (VK-X250) を用いた。結晶方位解析には、JEOL 社製の走査電子顕微鏡 (SEM) を用いた電子後方散乱回折 (EBSD) を用いて行った。これらの金属組織から算出した結晶粒径 d_g 、引抜き方向に対する結晶粒のアスペクト比 R_a を算出した、また、引抜き方向から見た逆磁極図 (IPF) のデータを用いて、結晶方位分布関数 (ODF) を利用した計算により、(110) の強度を算出した。

2.2.3 磁気・磁歪特性評価

磁気特性評価は、東英工業社製の振動型試料磁力計 (VSM; Model-5) を用いて、室温での磁化曲線を得た。印加磁場は 0~ ± 10 kOe であり、試料の長手方向に沿って磁場が印加されるように試験片を設置した。得られた磁化曲線から飽和磁化 M_s および保磁力 H_c に着目して磁気特性評価を実施した。このとき、印加した磁場と反対向きに発生する反磁場 H_d は、反磁場係数 N を用いて $\mu_0 H_d = -NM$ で表すことができ、その強さは磁化 M の大きさに比例する。本測定で用いた試験片は丸棒形状かつ寸法比 (長さ/直径) は 10 であり、反磁界係数[13]は 0.0172 となることが知られているため、今回は反磁場係数を無視して磁気特性評価を実施した。

磁歪特性評価は、上記と同様に、VSM を用いた磁場印加を行い、共和電業社製の 1 軸型ひずみゲージ (KFGS-1-120-C1-11) を試料片の表面に長手方向に沿って取り付けすることで、磁歪曲線を得た。このとき、印加磁場は 0~ ± 5000 Oe、印加磁場速度 140 Oe/s となるような磁化条件で磁歪測定を行った。ワイヤ材の中心部における磁歪を測定できるように、試料片は樹脂に固定し、中心部が断面となるまで研磨を行った。このとき、2000 番の耐水研磨紙での研磨を最終研磨とした。得られた磁歪曲線から飽和磁歪量 λ_s および磁歪感受性 $d_m (=d\lambda/dH)$ を算出することで、磁歪特性評価を実施した。特に、 d_m の算出には磁化磁歪曲線 (M - λ ループ) における印加磁場が 100 Oe のときの傾きの往復路の平均値を用いた。

2.2.4 鋼球落下試験による出力発電特性評価

逆磁歪効果に基づく発電性能を定量的に評価するために、加工まま材および 420°C-FC、820°C-WQ の 3 種の試験片に対して鋼球落下試験を実施した。Fig. 2-2 には、アルミニウムフレームといくつかの計測用装置によって設計された鋼球落下試験装置の概略図を示す。鋼球を試料表面に衝突させ、そのとき試料の周囲に設置した検出コイル(巻き数:1750 巻き, 電気抵抗:140.5 Ω)に誘導起電圧として誘起された出力電圧をオシロスコープを用いて測定した。このとき、磁歪材料の逆磁歪効果を高めるために、ネオジウム磁石を下に設置している。この磁石により発生するバイアス磁場により試験片の磁化過程は飽和された状態にある。

検出コイルの中心に置かれた試料 1 本に対して、高さ 30 cm から鋼球(重量 0.89 g)を落下させた。出力電圧のばらつきを抑えるため、出力電圧の平均値の算出には、試行回数を 10 回とした。本試験では、ピークピーク値の平均値 V_{P-P} [V]と出力電力 W [J/s]を以下の式で計算した。

$$W = \int \frac{|V(t)|^2}{R \cdot t} dt \quad (2-3)$$

ここで、 $V(t)$ [V]は出力電圧の時間変化、 R [Ω]は検出コイルの電気抵抗、 t [s]は経過時間を示す。このように、各試験片の出力電力と磁気・磁歪特性を比較・評価することにより、金属組織が与える影響を検討した。

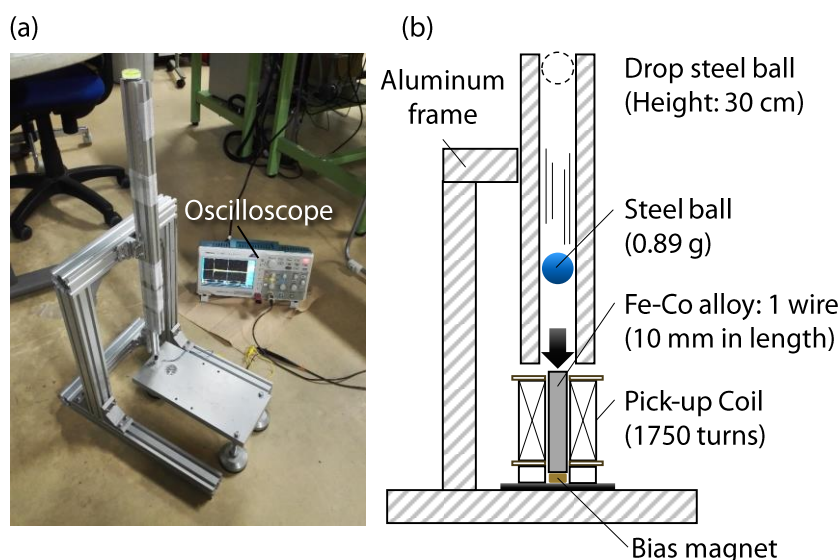


Fig. 2-2 (a) Photographic and (b) schematic of experimental energy harvesting set-up by drop impact test. The peak to peak voltage and the power resources was measured by search coil around Fe-Co alloy wire using oscilloscope when steel ball (0.89 g) was dropped at the height of 30 cm.

2.3 実験結果及び考察

2.3.1 金属組織への熱処理効果

Fig.2-3a に加工まま材 (as-drawn) 及び、420°C での焼鈍し材 (420°C-FC 材)、820°C での水焼入れ材 (820°C-WQ 材) から得られた X 線プロファイルを示した。これらのピークから不純物 (相) はなく、全ての試料が FeCo bcc 単相であることが確認された。特に、420°C での熱処理による B2 規則相などの生成は見られなかった。**Fig. 2-3b** には、bcc(110) ピークの拡大した図を示しており、熱処理により半価幅が減少していることがわかる。また、この (110) ピークに併せて、(200)、(211) の 3 つのピークに対して行った Williamson-Hall プロットから転位密度を算出した。

次に、**Fig. 2-4** は、加工まま材及び、420°C-FC 材、820°C-WQ 材の断面を引抜き方向 (D.D.) から観察した金属組織および結晶方位の解析結果を示す。カラーマッピングは、SEM-EBSD により解析を行い、引抜き方向から見た Fe-Co 合金ワイヤの結晶方位を示す。これらの観察・解析結果より、まず、加工まま材は引抜き加工により伸長した結晶粒を有していることが分かる。この時、伸長した結晶粒の幅を結晶粒径とすると、加工まま材では 13 μm であり、アスペクト比は 8.4 であり、420°C-FC 材では、結晶粒径は同じ 13 μm 、アスペクト比も 8.2 とほぼ同様な結晶粒を有することがわかった。また、IPF マップからこれらの試験片は、引抜き加工により {110} <100> 方位 (Goss 方位) を有していることから、結晶方位は 420°C での熱処理では変化していないことが明らかとなった。一方、820°C-WQ 材における結晶粒は粒状晶へと変化しており、結晶粒径が 25 μm と粗大化していることが確認できる。このときの結晶粒の平均アスペクト比は 1.4 であることから、再結晶組織を有していることがわかった。このとき、再結晶後の Fe-Co 合金の集合組織は依然として、強い {110} <100> 方位 (Goss 方位) を有していることから、方向性電磁鋼板によく見られるような 2 次再結晶粒 [14] が形成されることによって、820°C-WQ 材の結晶組織は引抜き加工によって形成された変形集合組織と同様な結晶方位を有する再結晶集合組織となっていると考えられる。

さらに、**Fig. 2-5** に転位密度及び結晶粒径に着目した金属組織の熱処理依存性を示す。これらの結果より、再結晶温度より低い温度である 420°C での熱処理では、加工まま材と比較すると、転位密度に関しては 0.77 倍となる減少が見られた。一方で、結晶粒径の変化はほとんど見られなかった。これは、420°C での焼鈍し熱処理により引抜き加工時に導入された結晶粒内の転位の合体消滅や安定配置への移動 (転位の再配列) が生じる回復現象によるものであると考えられる。また、再結晶温度より高い温度である 820°C での熱処理では、加工まま材に対して転位密度は 0.29 倍となる著しい減少を示した。また、結晶粒径は 1.9 倍の増大を示した。これは、先にも述べたように 820°C での熱処理後の金属組織において、再結晶および粗大化が生じたからであると考えられる。

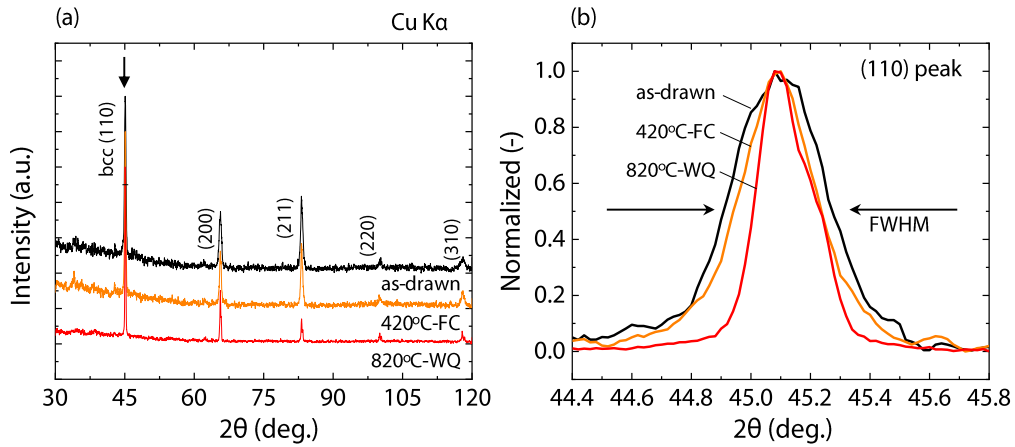


Fig. 2-3 (a) X-ray diffraction patterns for as-drawn, 420°C-FC (furnace cooling) and 820°C-WQ (water quenching) radiating to the angle of drawing direction (D.D.). (b) The enlarged view of the pattern of the bcc (110) peaks for each specimen showing the full width of half maximum (FWHM).

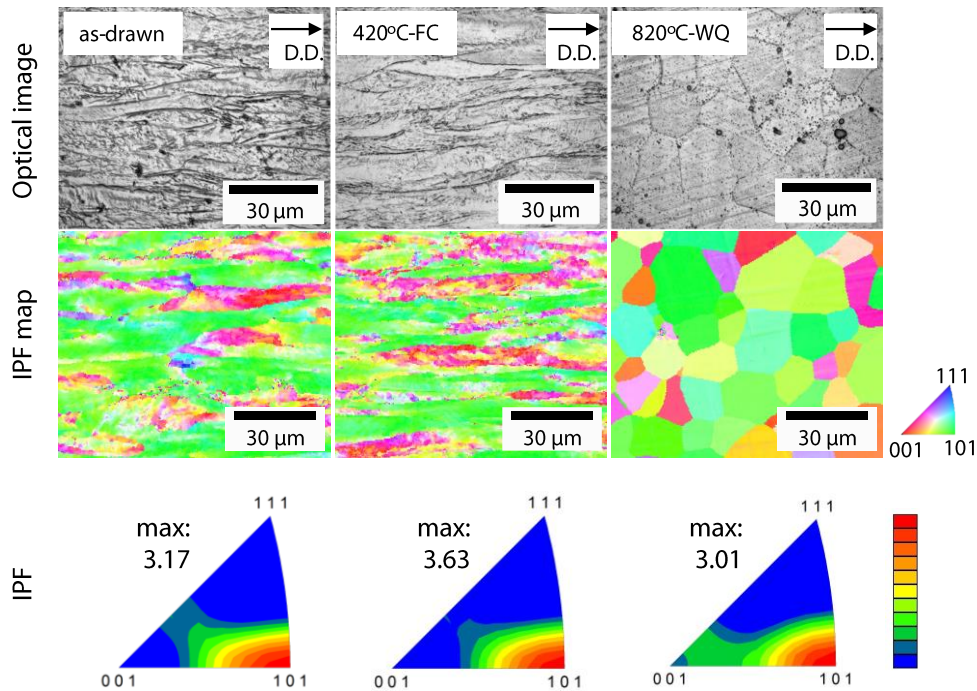


Fig. 2-4 Optical images obtained by laser microscope, the inverse pole figures (IPF) map and the IFP measured by EBSD along the drawing direction for the specimens of (a) as-drawn, (b) 420°C -FC and (c) 820°C-WQ.

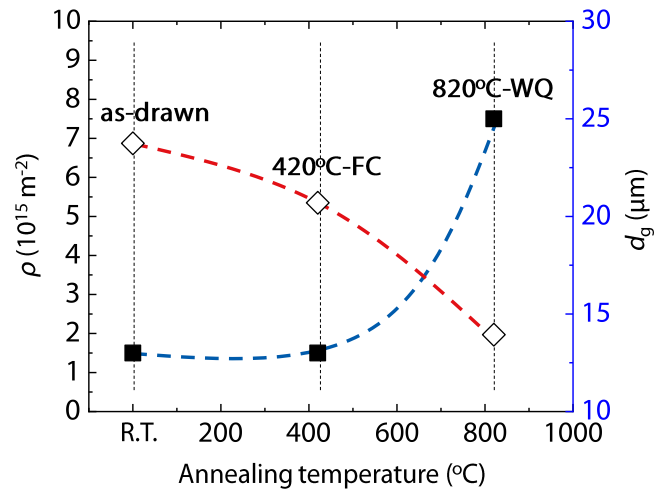


Fig. 2-5 Annealing temperature dependence of the dislocation density, ρ calculated using Williamson-Hall plot and the grain size, d_g obtained from optical imaged and for Fe-Co alloy wire and the heat-treated specimens.

2.3.2 磁気・磁歪特性に及ぼす金属組織の影響

磁気特性に関する測定結果とその考察について述べる。Fig. 2-6 は、今回作製した試験片の磁化曲線 $M-H$ ループを示す。Fig. 2-6a に加工まま材と 420°C-FC 材、820°C-WQ 材の磁化曲線を示した。磁化曲線が飽和した磁化の値から飽和磁化を決定した。また、Fig. 2-6b はその磁化曲線のゼロ磁場領域付近の拡大図を示した。図中の矢印で示したように、この磁化曲線と x 軸との交点から保磁力を算出した。まず、飽和磁化に関しては、各試験片での変化が見られなかった。そのため、過去の研究から化学組成の影響を大きく受ける一方で、金属組織の影響を殆ど受けないことが明らかになった。一方で、保磁力は加工まま材に比べて 820°C-WQ 材では大きく減少(0.22 倍)したことを確認した。これは加工まま材内部の強加工時に導入されたマイクロな内部欠陥(過剰な転位や亜粒界、残留応力など)が磁壁移動の障害として作用していることから、保磁力の増加を引き起こしていると考えられる。

また、Fig. 2-6c に、磁気特性の保磁力に着目して、転位密度と結晶粒径の関係を 3 次元的にまとめたものを示した。その結果、保磁力は結晶粒径の増加及び転位密度の減少により、大幅に減少することが明らかとなった。両者を分離して議論することはできないが、磁化過程における磁壁移動の障害因子として考えられている結晶粒界や結晶粒内の転位が回復や再結晶、粗大化によって、その密度が減少したからであると考えられる。特に、低温熱処理(420°C)では、結晶粒内部の過剰転位が回復により消失し、高温での熱処理(820°C)では、再結晶により結晶粒内の転位が大幅に消失し、同時に結晶粒の粗大化が生じた。これらの要因によって磁壁移動のピンングサイトが消失して磁壁移動が容易になったことが考えられる。

次に、磁歪特性に関する測定結果とその考察について述べる。Fig. 2-7a に各試験片における磁歪曲線($H-\lambda$ カーブ)を示す。また、磁歪曲線の飽和した磁歪量の値から飽和磁歪量 λ_s を、磁場 100 Oe における磁歪感受率 $d_m (=d\lambda/dH)$ を求めた。その結果、各試験片での飽和磁歪量は 420°C での低温熱処理により、132 ppm から 103 ppm へと減少した。更に、820°C での高温熱処理では、132 ppm から 102 ppm へと減少しており、420°C-FC 材とはほぼ同程度の飽和磁歪量を示した。これは、結晶粒径の変化に変化が見られなかったことから、転位の影響ではなく、低温熱処理時の結晶粒の回復により生じた材料中の内部歪みの減少に起因していると考えられる。一方で、820°C-WQ 材における磁歪感受率は、加工まま材に比べて、大きく増大(3.5 倍)していた。これは磁気特性と同様に、引抜き加工時に導入されたマイクロな欠陥の影響を受けたため、磁歪を誘導する磁壁移動や磁化回転を障害したからだと考えられる。

また、先ほどと同様に、磁歪感受率に着目して、金属組織の転位密度と結晶粒径の関係を Fig. 2-7b に 3 次元的に示した。この関係より、磁歪感受率は結晶粒径の増加及び転位密度の減少により、大幅に低下することが明らかとなった。さらに、金属組織への影響は確認できていないが、Fe-Co の状態図における (bcc + fcc) / bcc 相境界での 820°C での高温熱処理およびその水焼入れは、先にあげた先行研究のような磁歪感受率の向上に寄与していると考えられる。

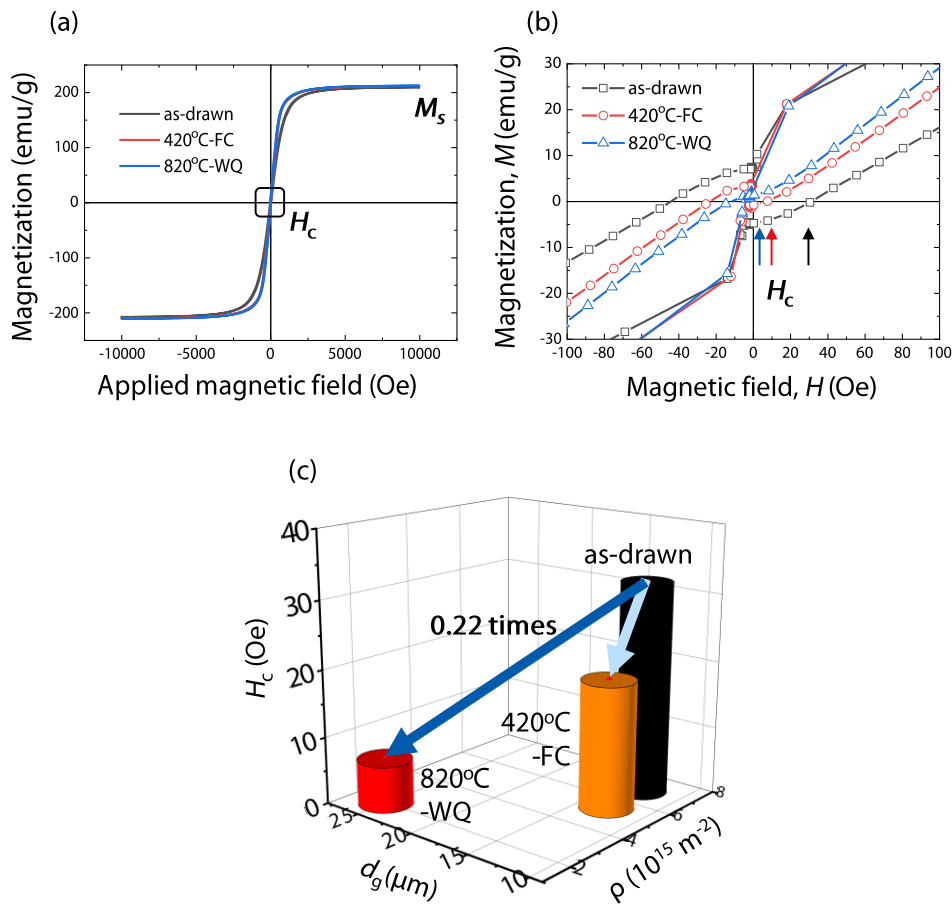


Fig. 2-6 Magnetization characteristics of Fe-Co alloy wire. (a) Magnetization curves for Fe-Co alloy wire and the annealed sample. (b) The enlarged figure of the square space of Fig. 2-6a. (c) Grain size and the dislocation density dependence of the value of coercivity.

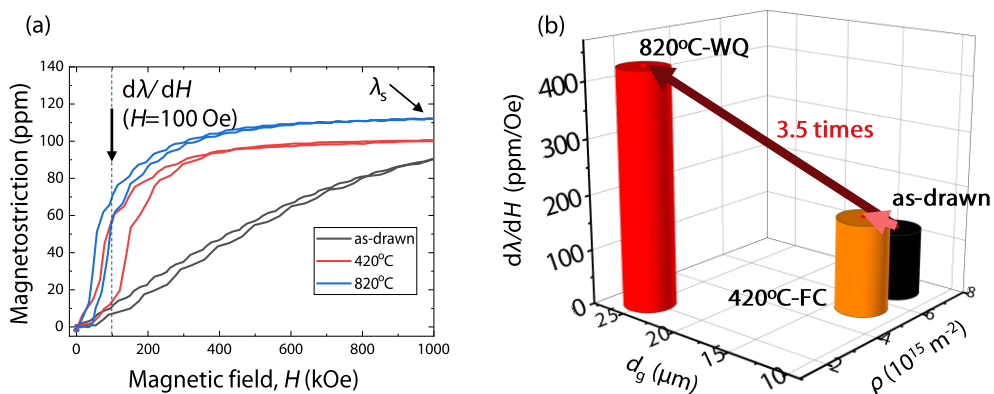


Fig. 2-7 Magnetostrictive characteristics. (a) Magnetostriction curves for as-drawn (R.T.), 420°C-FC and 820°C-WQ. (b) Grain size and the dislocation density dependence of the value of the magnetostrictive susceptibility for each sample.

2.3.3 発電出力特性に及ぼす磁気・磁歪特性の影響

磁歪材料を用いた逆磁歪効果に基づく発電出力特性を評価するため、Fe-Co 合金ワイヤの加工まま材、420°C-FC 材および 820°C-WQ 材に対して鋼球落下試験を実施し、磁気・磁歪特性との相関性を検証する。

まず、出力電圧 V_{out} はピックアップコイルに誘導される磁束密度変化 dB/dt から算出するため、1-2-1 節に示した磁歪材料の構成方程式(磁歪式)を用いて次のように求めることができる[15]。

$$V_{out} = -NA \frac{dB}{dt} = -NAs \left\{ d + \left(\frac{m}{\mu} \right) B_0 \right\} \frac{d\sigma}{dt} \quad (2-4)$$

このとき、 N はコイルの巻き数、 A はコイルの断面積、 s は弾性コンプライアンス、 σ は発生応力、 d は磁歪量、 m は 2 次の磁気弾性係数、 μ は透磁率、 B_0 はバイアス磁場を示す。つまり、出力電圧は式(2-4)に示すように、発生応力の時間変化率および磁歪特性によって決定される。

Fig. 2-8a に、加工まま材に対して鋼球を落下した際に得られた出力電圧の出力プロファイルの一例を示した。出力波形の 1 つ目の大きな波形は約 15 kHz の周波数を示している。そのため、そのはじめの出力電圧波形は鋼球の衝撃により発生した応力(歪み)に起因するものである。一方、後半の微小波形は、その周波数が約 140 kHz であり、試験片の長さ方向の寸法と縦弾性率から算出した固有振動数の値と同程度であった。そのため、鋼球を試料表面から離れた直後の固有振動によって発生した出力電圧であると考えられる。そのため、これらの波形全体は、逆磁歪効果によって得られた信号であると考えられる。また、420°C-FC 材における振動周期は、820°C-WQ 材の振動周期よりも短かったため、両者の試験片の出力特性には、衝撃力(塑性変形)に対する変形のしやすさ、硬さ、ヤング率などが異なることが考えられる。

次に **Fig. 2-8b** に、出力波形の面積に相当する式(2-3)から算出した各試料の出力電力の平均値に対する磁気・磁歪特性の関係を 3 次元的に示した。また、このときのピーク to ピーク電圧 V_{P-P} 、出力電力 W と、それぞれの標準偏差を **Table 2-1** に示した。これらの結果から、820°C-WQ 材が最も高い出力電力を示し、420°C-FC 材が最も低い出力電力を示した。このように、出力電力は磁歪感受率と良好な相関が得ることができた。しかしながら、飽和磁歪量の変化や他の磁気特性との相関が得られなかった。そのため、材料物性であるヤング率や硬さなどの機械的特性の影響を考慮する必要があると考えられる。

一方で、発電性能のばらつきが生じてしまった要因の一つに、供試材である Fe-Co 合金ワイヤの直径が 1mm であり、そのワイヤ材 1 本に直接与える衝撃力が、垂直でなかった場合外力が分散されてしまうため、そのような原因も考えられる。また、式(2-4)に示したような従来の評価指標とされる磁歪量や磁歪感受率などの準静的なパラメータからの予測では、その理論的に算出した値と実測値に誤差が生じることが成田ら[16]によって報告されていることから、動的な磁気パラメータを考慮する必要がある。また、Hauser ら[17]は、磁束密度に変化が生じる際には、局所的に磁

壁のジャンピング(バルクハウゼンノイズ)が誘起されることを提案して、ミクロスケールでの動的な磁化過程が逆磁歪効果に大きく影響を与えることも指摘している。

このように、発電性能を決定する逆磁歪効果のメカニズムをさらに深く理解するためには、ミクロなスケールでの磁壁の動的挙動を検討していく必要があると考えられる。

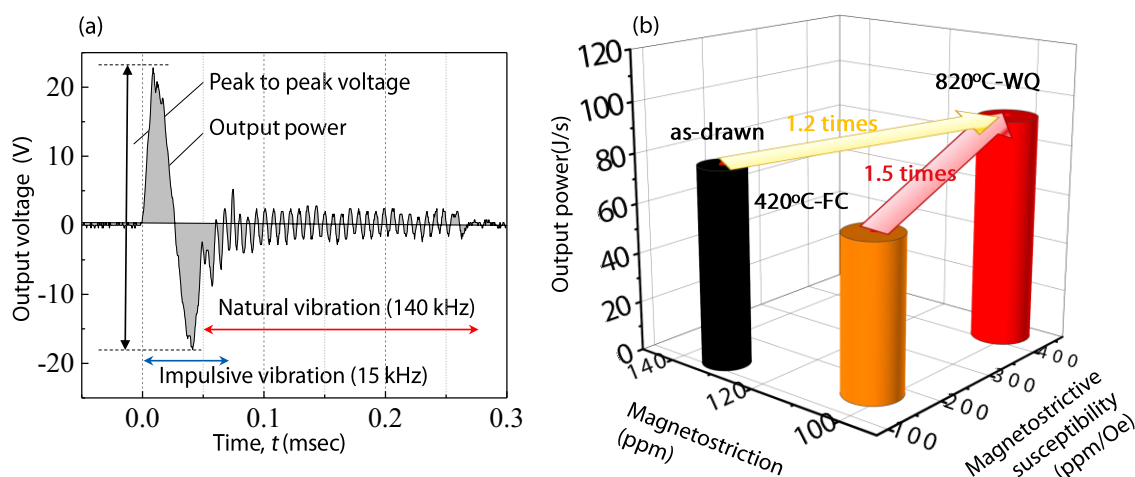


Fig. 2-8 (a) An example of output waveform when a steel ball was dropped on the surface of the as-drawn sample. (b) Comparison of the output power calculated from the area of the waveform for each sample.

Table 2-1 The mean value and standard deviation (SD) of peak to peak voltage and power resources calculated from the output profiles for samples of as-drawn, 420°C-FC and 820°C-WQ.

Sample	Peak-peak voltage [V]		Output power [mJ/s]	
	Mean	SD	Mean	SD
as-drawn (R.T.)	43.3	1.62	78.8	8.46
420°C-FC	35.7	1.61	62.0	4.64
820°C-WQ	47.6	2.09	91.2	5.61

2.5 本章のまとめ

本研究では、引抜加工を施すことにより得られた新たな多結晶 $\text{Fe}_{30}\text{Co}_{70}$ 合金ワイヤを研究対象とし、その磁気・磁歪特性を調査することで、その金属組織との相関性を検討した。特に、センサ特性の向上に重要となる保磁力や磁歪感受率に着目して、Fe-Co 合金の金属組織因子との相関を議論した。最後に、鋼球落下試験により発電出力特性を調査し、その磁歪特性との相関性の検討を行った。得られた知見を以下にまとめる。

- 1) 加工まま材に比べ、再結晶温度よりも低い温度での熱処理を施した $420^{\circ}\text{C}\text{-FC}$ 材では、結晶粒の回復現象に起因する転位密度のわずかな減少(0.77 倍)を示した。また、再結晶温度より高い温度での熱処理を施した $820^{\circ}\text{C}\text{-WQ}$ 材では、結晶粒の再結晶および粗大化による結晶粒径の増大(1.9 倍)と転位密度の著しい減少(0.29 倍)を示した。
- 2) Fe-Co 合金の結晶欠陥である粒界と転位の密度減少により、最大 0.22 倍となる保磁力の減少、最大 3.5 倍となる磁歪感受率の増大を確認した。これは、引抜き加工時に導入されたマイクロな内部欠陥の影響を受け、磁化や磁歪を誘導する磁壁移動や磁化回転を阻害したからだと考えられる。
- 3) 鋼球落下試験では、 $820^{\circ}\text{C}\text{-WQ}$ 材において最も高い出力電力(96.1 mJ/s)を示した。出力電力は磁歪感受率と良好な相関が得ることができた。しかしながら、飽和磁歪量の変化や他の磁気特性との相関が得られなかった。そのため、材料物性であるヤング率や硬さなどの機械的特性の影響を考慮する必要があると考えられる。

以上により、引抜加工により新たに作製された Co 過剰型 Fe-Co 合金ワイヤへの熱処理により、結晶粒界や転位などの欠陥密度の着目した金属組織形態を制御することにより、磁気・磁歪特性の更なる向上が期待できるといえる。

参考文献 2

1. Wang, L. and Yuan, F. G., Vibration energy harvesting by magnetostrictive material, *Smart Materials and Structures* 17, 43 (2008), 045009.
2. Davino, D., Giustiniani, A., Visone, C. and Adly, A., Experimental analysis of vibrations damping due to magnetostrictive based energy harvesting, *Journal of Applied Physics* 109, 7 (2011), 07E509.
3. Furuya, Y., Okazaki, T., Saito, C. and Shimada, M., Magnetostrictive Galfenol Torque Sensor Devices for Smart by-Wire Steering System in Automobile Technology, *Advances in Science and Technology* 67 (2010), 74-81.
4. Clark, A. E., DeSavage, B. F. and Bozorth, R., Anomalous Thermal Expansion and Magnetostriction of Single Crystal Dysprosium, *Physical Review* 138 (1965), A507.
5. Clark, A. E., Hathaway, K. B., Wun-Fogle, M., Restorff, J. B., Lograsso, T. A., Keppens, V. M., Petculescu, G., Taylor and R. A., Extraordinary magnetoelasticity and lattice softening in bcc Fe-Ga alloys, *Journal of Applied Physics* 93, 10 (2003), 8621.
6. Xing, Q., Du, Y., McQueeney, R. J. and Lograsso, T. A., Structural investigations of Fe-Ga alloys: phase relations and magnetostrictive behavior, *Acta Materialia* 56 (2008), 4536-4546.
7. 古屋泰文ほか, FeCo 系磁歪合金及びその製造方法, 特開 2014-84484 (2014).
8. Yamaura, S., Nakajima, T., Satoh, T., Ebata, T., Furuya and Y., Magnetostriction of heavily deformed Fe-Co binary alloys prepared by forging and cold rolling, *Materials Science and Engineering B* 193 (2015), 121-129.
9. I. Hasif, T. Kubota, M. Matsumoto, S. Yamaura, and Y. Furuya, Heat Treatment Effect on Magnetization and Magnetostriction in Heavily Rolled Fe₃₀Co₇₀ Alloy Thin Plate, *Japan Soc. Appl. Electromag. Mech.* 26, 1 (2018) 250-255.
10. Yang, S., Bao, H., Zhou, C., Wang, Y., Ren, X., Matsushita, Y., Katsuya, Y., Tanaka, M., Kobayashi, K., Song, X. and Gao, J., Large Magnetostriction from Morphotropic Phase Boundary in Ferromagnets, *Physical Review Letters* 104 (2010), 197201.
11. Hunter, D., Osborn, W., Wang, K., Kazantseva, N., Hattrick-Simpers, J., Suchoski, R., Takahashi, R., Young, M. L., Mehta, A., Bendersky, L. A., Lofland, S. E., Wuttig, M. and Takeuchi, I., Giant magnetostriction in annealed Co_{1-x}Fe_x thin-films, *Nature communication* 2, 518 (2011).
12. T Ungár, A Borbély, The effect of dislocation contrast on x - ray line broadening: A new approach to line profile analysis, *Appl. Phys. Lett.* 69, 3173 (1996).
13. 近角 聡信ほか, 磁性体ハンドブック, 朝倉書店, 1975.

14. Omura K. and Hayakawa Y., Influence of Primary Recrystallization Texture on Selective Growth of Goss Grains, *J. Japan Inst. Metals* 75, 9 (2011), 485-492.
15. Panina, L.V., Katoh, H., Mizutani, M., Mohri, K., Humphrey, F.B., Domain collapse in amorphous magnetostrictive wires, *IEEE Transactions on Magnetics* 28, 5 (1992), 2922-2924.
16. Narita, F., Inverse Magnetostrictive Effect in Fe₂₉Co₇₁ Wire/Polymer Composites, *Advanced Engineering Materials* 9 (2017), 1600586, DOI: 10.1002/adem.201600586.
17. Hauser, H., Energetic model of ferromagnetic hysteresis: Isotropic magnetization, *Journal of Applied Physics* 96 (2004), 2753.
18. A.E. Clark, M. Wun-Fogle, J.B. Restorff, T.A. Lograsso, J.R. Cullen, Effect of quenching on the magnetostriction on Fe_{1-x}Ga_x (0.13x<0.21), *IEEE Transactions on Magnetics* 37, 4 (2001), 2678 - 2680.

第 3 章

応力下における バルクハウゼンノイズ発生挙動と その特性評価

概要

第 3 章では, バルクハウゼンノイズの発生挙動に及ぼす弾性変形領域における格子ひずみの影響を検証した. 応力下でのバルクハウゼンノイズ検出システムを構築し, その出力特性の応力依存性に及ぼす金属組織の影響評価を行った. 特に, Fe-Co 磁歪材料の弾性限界の範囲内における応力センサ特性の検証することにより, バルクハウゼンノイズを利用した応力センサへの有効性を検討した. さらに, バルクハウゼンノイズ出力電圧の時間軸波形に及ぼす静的応力の影響評価とその応答スペクトル解析から, 金属組織形態に基づく磁壁移動モデルを示した.

3.1 はじめに

バルクハウゼンノイズは磁化過程における磁壁の不連続挙動に起因する。1907年に Weiss によって提唱された強磁性体における磁区モデル[1]は、このバルクハウゼン現象の発見[2]によって初めて実証された。これまでの巨視的磁化であった磁化過程が、磁区やその磁区間の磁気モーメントの遷移領域である磁壁の存在により、微視的な不連続磁化によって成立していることが明らかになった。この発生メカニズムによると、磁化過程における磁壁移動が材料内部の結晶欠陥によってピン止めされ、開放されることにより生じる微小な磁束密度変化である。材料周囲に設置した検出コイルに誘導された複数のパルス電圧が重畳されることによりバルクハウゼンノイズとして検出できる。

これまでに結晶粒界[3,4]や亜粒界[5,6]、転位[7,8]などの金属組織や、残留応力や外部応力[9-13]などの応力状態、さらには、磁化周波数や磁化・検出コイルシステムなどに依存する印加磁場条件[14]が、バルクハウゼンの発生挙動に影響を及ぼすことが報告されている。特に、応力測定では、複雑な金属組織の各因子の影響を受けるため、対象鋼材の初期状態でのバルクハウゼンノイズの金属組織依存性を把握しておく必要がある。さらに既設の鋼材の金属組織や残留応力は品質保証内でばらつきを有しており、その影響で応力依存性も大きく異なるため、非破壊検査としての応力測定は現状では難しい状態である。

近年、バルクハウゼンノイズを応力評価に利用したバルクハウゼンノイズ法[15]が提案されている。バルクハウゼンノイズの検出部(センサ部)として高い応力感受率を有するセンサ材料を、本来測定したい対象構造物へ貼付あるいは埋設することによる応力測定を行う手法である。応力状態によりバルクハウゼンノイズの出力電圧が変化する現象は、荷重負荷時の金属組織に蓄積される局所的な応力場の変化やそれに伴う磁区構造変化に起因すると考えられている。この変化は材料の磁歪定数 λ によりバルクハウゼンノイズの応力感受率が影響を受け、磁歪定数の大きな材料では、その感度が優れると予想される。Fig. 3-1に磁化過程に伴い発生するバルクハウゼンノイズおよび磁歪のモードを示した。また、バルクハウゼンノイズの発生に直接寄与する磁区構造や磁壁移動の観察結果に関する検証結果については付録 S1 に記載した。さらに、バルクハウゼンノイズの計測システムの検討を行うために、付録 S2 に示したような測定条件の検討と、外的ノイズが含まれないような測定環境の選定を予め行っている。

そこで本研究では、磁歪材料において発生するバルクハウゼンノイズに着目した新たな応力測定技術の基礎的検討として、応力下でバルクハウゼンノイズを評価可能な計測システムを新たに構築し、弾性変形領域での格子ひずみがバルクハウゼンノイズに及ぼす影響を解明することを目指す。Fe-Co 磁歪合金におけるバルクハウゼンノイズ波形の評価・解析を行うと共に、応力センサ特性と金属組織の相関性の検討を行う。その結果から金属組織に基づくバルクハウゼンノイズの発生挙動と発生応力の関係を考察する。

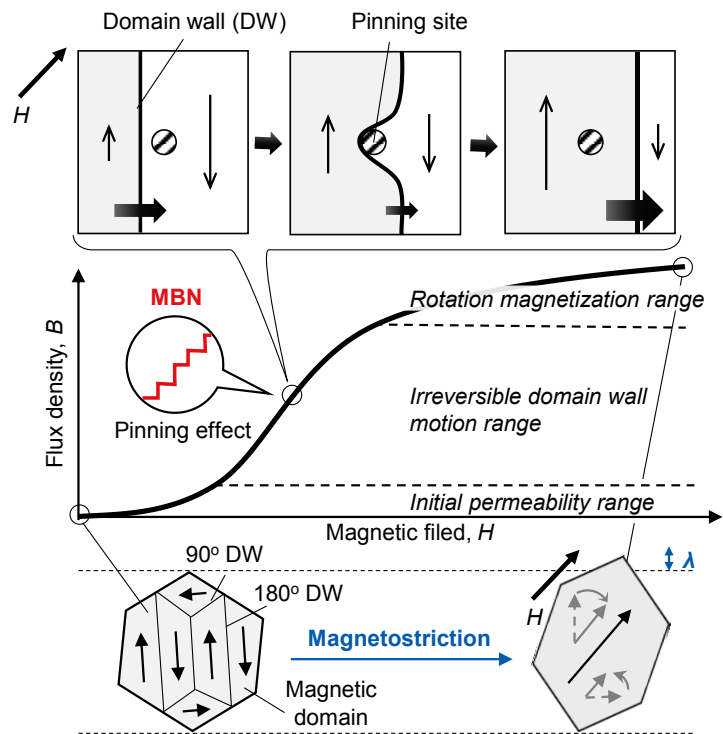


Fig. 3-1 Schematic illustration of the pinning effect (magnetic Barkhausen noise) and Joule effect (magnetostriction) during the magnetization process.

3.2 実験方法

3.2.1 供試材

本研究では、第2章で用いた東北特殊鋼(株)製の直径1 mmの $\text{Fe}_{30}\text{Co}_{70}$ 合金ワイヤの加工まま材($\lambda_s=132$ ppm)とその熱処理材を用いた、 420°C で24時間の熱処理を施した $420^\circ\text{C}\text{-FC}$ 材($\lambda_s=102$ ppm)および、 820°C で5時間の熱処理後、急水冷を施した $820^\circ\text{C}\text{-WQ}$ 材($\lambda_s=103$ ppm)を用いた。熱処理は、アルゴン Ar を真空封入した石英管中で行い、得られた試験片はバルクハウゼンノイズ測定のためにファインカッターを用いて120 mmの長さに切断した。

3.2.2 バルクハウゼンノイズ測定装置のセットアップ

Fig. 3-2 に変動する引張応力下でのバルクハウゼンノイズ測定に用いたブロック図を示す。まず、3Bサイエンティフィック社製の信号発生器(FG-100)を用いて、2500ターンの磁化コイル($\phi_{in}=10$ mm($\phi_{out}=20$ mm) $\times 28$ mm)へ三角波波形の電流を流すことにより、交流磁場を発生させた。なお、この信号発生器は、電源供給とファンクションジェネレータの両方の役割を担っている。その磁場により誘起された材料内部の磁束密度変化(dB/dt)に対して1750ターンの小さな検出コイル($\phi_{in}=3$ mm($\phi_{out}=6.4$ mm) $\times 12$ mm)を用いて、その起電圧としてバルクハウゼンノイズ信号を検出した。最大印加電圧は8.0 V(=0.15 A)とし、磁界はガウスメータ(電機研工業株式会社, GM5005)で測定した。特に、磁化コイルに最大電圧8.0 Vを印加したときのピックアップコイルの位置での、入力電圧に対する発生磁場の平均値は2.7(Oe/V)である。そのため、印加磁界の最大値 H_{max} は21.6 Oeとなる。Fe-Co合金は比透磁率($\mu_r\sim 500\text{-}1000$ [16])と大きい値を示すため、ワイヤ内の有効磁場(H_{eff})は空気中よりも高く、ワイヤ内の位置での磁場勾配の差異は無視できると考えられる。

検出された信号は、バンドパスフィルタ(300-10 kHz)を通過した後、低ノイズアンプによって10倍(40dB)に増幅された信号をデータロガー(キーエンス社製, NR600-HA08)を用いて取得した。このとき、50 kHzのサンプリングレートで計測した。今回印加周波数は、バルクハウゼンノイズの発生挙動を解析するため、また、表皮効果による渦電流を抑制するため、0.25 Hzと比較的遅い周波数となるように設定した。バルクハウゼンノイズは主に試料表面から検出され、渦電流の発生を考慮すると、その表面深さが0.1~0.2 mmからの信号を検知していることが知られている[17,18]。

引張り荷重の負荷には、島津製作所製の引張試験機(AG-5 kN)を用いた。引張方向に沿って弾性変形領域である500 MPaまでの引張荷重を少しずつ印加することで、バルクハウゼンノイズの応力依存性の評価を行った。本研究では、引張り治具を試験片の両端を直接挿込んだ場合でも、電磁ノイズや機械的ノイズが混入しない、あるいは無視できるほど小さいことを確認している。

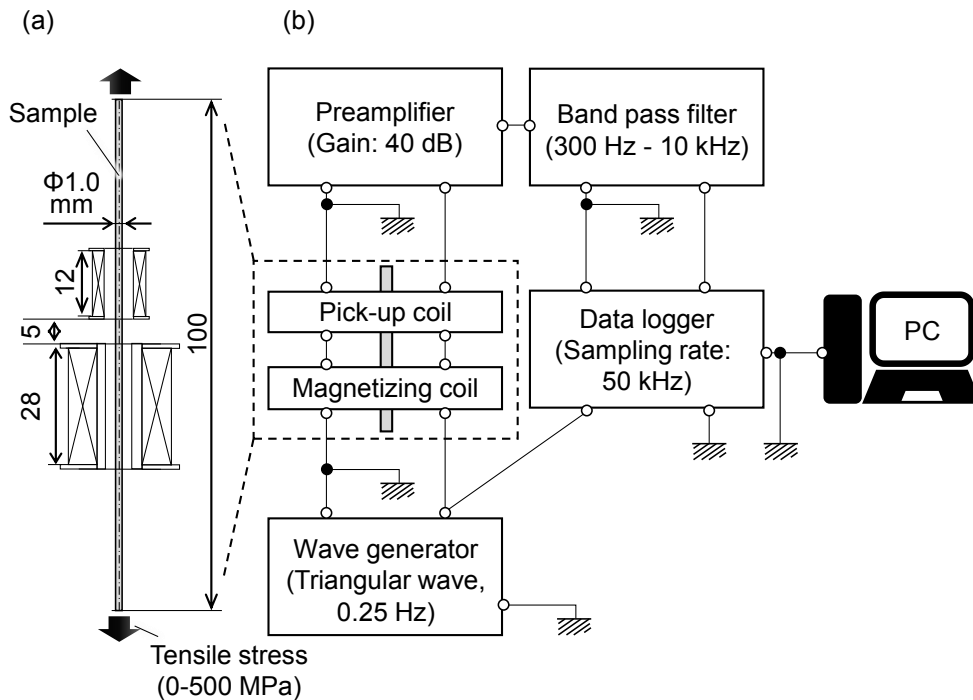


Fig. 3-2 Schematic illustration of BHN measurements system. (a) The dimension of the specimen and magnetizing/ pick-up coil. (b) An apparatus block diagram of measuring and analyzing BHN signals.

3.2.3 バルクハウゼンノイズ計測

本計測システムは、インフラ構造物へ貼付け(埋込み)可能な応力センシング技術への適用を想定している。そのため、バルクハウゼンノイズの検出には、検出コイルを磁化コイルの端から約 5 mm 離れた状態で設置したシステムを採用した。厳密には、磁化コイルは長さ方向に対して、発生磁場の強度分布が変化するため、磁歪材料内の磁化過程やバルクハウゼンノイズの発生挙動に影響を与える可能性がある。しかし、このような懸念点は、以下の 4 つの議論により、ほとんど無視できると考えられる。

- 1) 使用する磁歪材料の比透磁率が非常に大きい($\mu_r=500-1000$)ため、磁化コイルによる外部磁場から伝播された磁束密度は FeCo 合金ワイヤ内のみで伝播し、発生する。
- 2) 磁歪材料ワイヤの表面形状はどの点においても均一であるため、磁化過程(磁区発生や回転、磁壁移動)とその挙動は、長手方向の各点において均一な伝播挙動を示す。
- 3) 長手方向の各点でのバルクハウゼンノイズの発生挙動は常に類似した波形であると考えられるため、磁化コイルからの磁場強度分布が変化したとしても、検出コイル内の長手方向における各点では平均したバルクハウゼンノイズ出力電圧データを収集することができる。

そのため、取られたデータは、ピックアップコイルの中央部におけるバルクハウゼンノイズの発生挙動の代表値と同等であると見なすことができる。

- 4) バルクハウゼンノイズ波形(信号強度, 包絡線の形状, 周波数スペクトルなど)の変化は, 2つの磁化コイルで挟んだヘルツホルム型システムとほぼ同様な波形を示すことを確認している。(付録2参照)

以上の議論から, 本研究でのバルクハウゼンノイズ計測は, 検出コイルを磁化コイルの片側にセットしたシステムであってもバルクハウゼンノイズの発生挙動を十分に議論できると考えられる。

3.2.4 周波数解析

異なる荷重負荷条件でバルクハウゼンノイズ信号を取得した後, バルクハウゼンノイズの発生要因を特定するため, 高速フーリエ変換(FFT)およびウェーブレット変換(WT)による周波数解析を実施した。この時, グラフ作成ソフトウェアである OriginPro (OriginLab Corp.) を利用した。

また, バルクハウゼンノイズの引張応力依存性には, 周波数スペクトルの二乗平均平方根(RMS)から算出したバルクハウゼンノイズ実効値 V_{RMS} を用いた。バルクハウゼンノイズのスペクトル波形 $X(f)$ により, 以下の式を用いて算出できる。

$$V_{RSM} = \frac{\sqrt{|X(f)|^2}}{\Delta f}, \quad (3-1)$$

このとき,

$$X(f) = \int_{300}^{10000} x(t)e^{-2j\pi ft} dt, \quad (3-2)$$

$x(t)$ はバルクハウゼンノイズの時間軸波形を示す。各 FFT 解析の結果では, 10 回の交流磁場印加によりバルクハウゼンノイズ波形を計測し, その平均値からバルクハウゼンノイズ実効値を算出した。

3.3 実験結果

3.3.1 低磁場領域および高磁場領域における BHN プロファイル

Fig. 3-3 は、応力下 56 MPa における時間の関数としてピックアップコイルによって検出された出力信号と三角波形を有する励振電圧を示す。**Fig. 3-4** に示すようにピックアップコイルに誘起された有効 $B(t)$ は、ファラデーの法則による dB/dt を用いて計算される。

$$v(t) = N \cdot A \cdot \frac{dB(t)}{dt}, \quad (3-3)$$

$$B(t) = \int \frac{v(t)}{N \cdot A} dt, \quad (3-4)$$

ここで、 $v(t)$ は時間の関数として表されるピックアップコイル出力電圧であり、 N はピックアップコイルの巻数である。 A はピックアップコイルの断面積であり、 $B(t)$ は、ピックアップコイルの中心における平均磁束密度変化である。特に、 $B(t)$ は $v(t)$ の高周波成分はローパスフィルタ (10 kHz) でカットされている、あるいは、試験片表面での表皮効果により、高周波成分が減衰するため、実際の値より若干小さい値を示している。それにもかかわらず、**Fig. 3-3b** および **Fig. 3-3c** に示すように、FeCo ワイヤの最大透磁率 μ_{\max} 以降は、 $B(t)$ が飽和に近づいている。また、**Fig. 3-3d** は、磁化コイルで発生した誘起 $B(t)$ を除去するためにハイパスフィルタ (300 Hz) を通過させた時のバルクハウゼンノイズ波形の経時変化を示す。

また、交流磁場によって誘起された磁化曲線 (**Fig. 3-3c**) とバルクハウゼンノイズ出力波形 (**Fig. 3-3d**) の比較から、低磁場 (LF) 領域および高磁場 (HF) 領域においてバルクハウゼンノイズの発生挙動が異なることがわかる。LF 領域では、バルクハウゼンノイズ信号は、磁束密度が $B(H) = B(\mu_{\max})$ 付近になる第 1 のピーク電圧 (V_{P1} と呼ぶ) を示し、その後減衰している。HF 領域では、バルクハウゼンノイズ信号は再び増大し、第 2 ピーク電圧 (V_{P2}) を示す。その後、印加磁場が最大に達する前にほぼゼロまで減衰した。

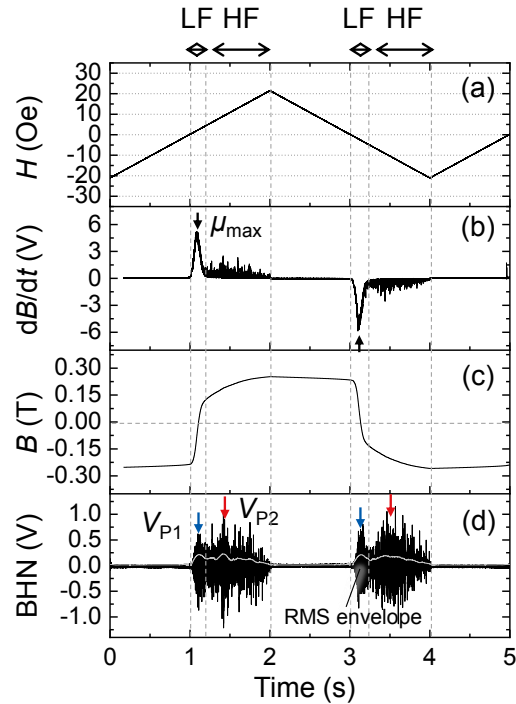


Fig. 3-3 Input and output signals at a stress of 56 MPa. Each profile shows (a) exciting voltage; (b) magnetic flux density change, dB/dt , (c) magnetic flux density, B , and (d) BHN (black line) and the root mean square (RMS) envelopes (gray line); where μ_{\max} shows the maximum magnetic permeability and the V_{P1} and V_{P2} are the first peak in the low field (LF) region and the second peak in the high field (HF) region, respectively.

次に、バルクハウゼンノイズ波形に及ぼす力学的作用の影響を調査した。Fig. 3-4 に示すように Fe-Co 合金ワイヤの長手方向に引張応力が 0, 19, 38, 56, 75, 113, 150 MPa となるように、荷重を負荷しバルクハウゼンノイズ波形を測定し、図中にその RMS 包絡線を示した。その結果を Table 3-1 は示す。

まず、RMS 包絡線のピーク値に着目すると、 V_{P1} と V_{P2} が共に増大していることがわかる。この時、荷重負荷がゼロの初期状態に比べ、それぞれ $V_{P1}(150)/V_{P1}(0) = 3.29$, $V_{P2}(150)/V_{P2}(0) = 5.9$ を示す。これらピーク強度の変化により、HF 領域に発生したバルクハウゼンノイズは、LF 領域よりも荷重負荷に伴って大きく変化することが明らかとなった。 V_{P1} に関しては、バルクハウゼンノイズ信号の増加は、印加された応力が増加するにつれて透磁率の増加[31]によって引き起こされると考えられる。 V_{P2} については、4.3.3.2 で説明する。

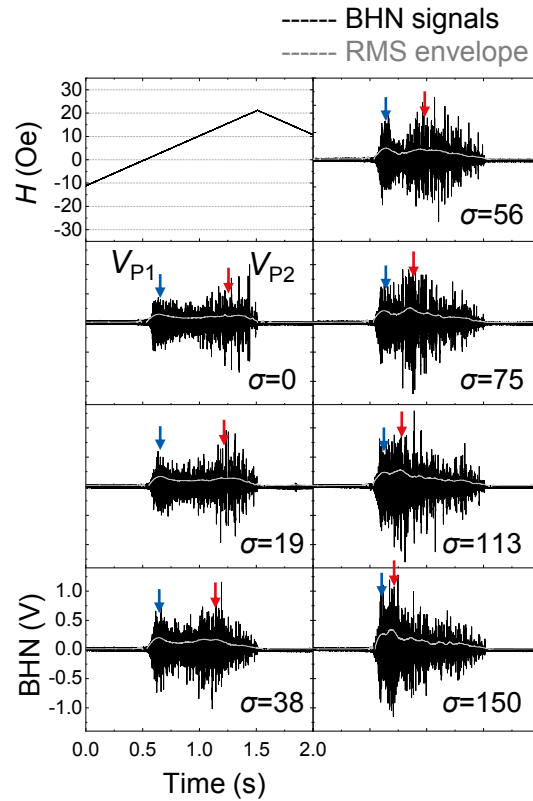


Fig. 3-4 BHN signals and the root mean square (RMS) envelopes (gray line) of BHN for annealed Fe-Co alloy wire under the stress of 0-150 MPa.

Table 3-1 Results of BHN profiles for FeCo alloy wire at different tensile stress levels.

No.	Stress (MPa)	1 st peak of RMS envelope, $V_{p1}(\sigma)$		2 nd peak of RMS envelope, $V_{p2}(\sigma)$	
		Applied magnetic field (Oe)	Peak voltage (mV)	Applied magnetic field (Oe)	Peak voltage (mV)
1	0	3.09	22.8	15.8	19.2
2	19	3.41	28.1	14.9	22.1
3	38	3.13	40.8	12.7	30.1
4	56	3.05	45.1	9.61	38.1
5	75	2.72	43.9	7.67	67.9
6	113	2.70	58.1	5.79	77.7
7	150	2.57	75.0	4.06	115
		$V_{p1}(150)/V_{p1}(0) = 3.29$		$V_{p2}(150)/V_{p2}(0) = 5.99$	

3.3.2 周波数スペクトル

磁歪材料に生じるバルクハウゼン効果をさらに理解するために、周波数解析を行い、バルクハウゼンノイズの周波数スペクトルを調査した。Fig. 3-5 は外部応力 56 MPa となる応力下での高速フーリエ変換及び、ウェーブレット変換の結果を示す。バルクハウゼンノイズの周波数一時間波形から、磁歪合金ワイヤの磁化過程で発生する残留応力分布[19]や金属組織形態[20]、バルクハウゼンジャンプ[21]などのバルクハウゼンノイズ発生挙動に関する重要な情報を読みとることが出来る。

その結果、Fig. 3-5b に示すカラーの勾配を示す強度分布から、LF 領域において比較的高い周波数を有する BHN 信号が、HF 領域では周波数域にシフトしたことがわかる。さらに、周波数スペクトルのシフトを定量的に調査するため、FFT 解析を行った。LF 領域および HF 領域における FFT 解析結果を Fig. 3-5c に示した。バルクハウゼンノイズのスペクトル波形の正規化された RMS 包絡線を比較すると、LF 領域では、周波数スペクトルは 520 Hz の比較的高い周波数成分を有し、HF 領域では 340 Hz のピーク周波数を有する比較的低い周波数成分を有することが明らかとなった。

これらの結果は、強磁性材料の磁化過程[22]を参考にすると、バルクハウゼンノイズの発生要因が 180°磁壁を主とする磁壁移動から非 180°磁壁を主とする磁壁移動あるいは磁化回転にシフトしたと説明することが出来る。先ほどの時間軸波形で出現した V_{P2} ピークに関しては、 V_{P1} ピークの直後に存在するため、HF 領域における比較的動き出すのが遅い非 180°磁壁(主に 90°磁壁)の移動挙動、または磁化回転に起因すると考えられる。

また、長手方向のみのひずみであると仮定すると、発生応力に起因する材料内部の磁気弾性エネルギー E_σ は次式で示すことが出来る。

$$E_\sigma = -\frac{3}{2} \lambda \sigma \cos^2 \varphi, \quad (3-5)$$

この時、 λ は磁歪定数、 φ は磁化の方向と印加される応力の方向との間の角度を示す[23]。そのため、応力誘起磁場 $H_\sigma (= 1/\mu_0 \times \delta E_\sigma / \delta M)$ によって FeCo 合金ワイヤ内部の磁束密度 B が増加すると考えられる。

次に、FFT 解析を各応力下で得られたバルクハウゼンノイズ波形に対して行った。Fig. 3-6 は、0, 75, 150 MPa の応力におけるリニアスペクトル密度(LSD)を示す。このとき、420°C-FC 材の降伏応力は 819 MPa であることが分かっているため、150 MPa は十分弾性限界の範囲内であると考えられる。その結果、荷重負荷の増加に伴う低周波側へのピークシフトは、バルクハウゼンノイズスペクトルの逆数から計算されたジャンプ間隔(l_p/u_w 、 u_w は磁壁移動速度、 l_p はピンニング間隔)を示す。これは、磁壁の移動性が増大し、バルクハウゼンジャンプの間隔が広がったため、バルクハウゼンノイズスペクトルのピーク周波数は荷重負荷の増加に伴い、低周波数側へシフトしたと考えられる。

最後に, **Fig. 3-7** に示すように, FFT 解析後の波形から算出した $\text{Fe}_{30}\text{Co}_{70}$ 磁歪合金ワイヤにおけるバルクハウゼンノイズ実効値の応力依存性を調査したところ, 作用された応力との直線関係が 0.038 mV であることが示された. このとき, 発生応力あたりのバルクハウゼンノイズ実効値のフィッティング式は以下のように表すことができる.

$$V_{\text{RMS}} = 0.038 \times \sigma + 9.5. \quad (3-6)$$

このように, 本試験片におけるの応力依存性は良好な感度 ($0.038 \text{ mV} / \text{MPa}$) を示した. フィッティングされた線の切片は透磁率 μ (LF 領域の V_{p1}) に依存し, その傾きは試料の磁歪量 λ (HF 領域の V_{p2}) に依存すると考えられる.

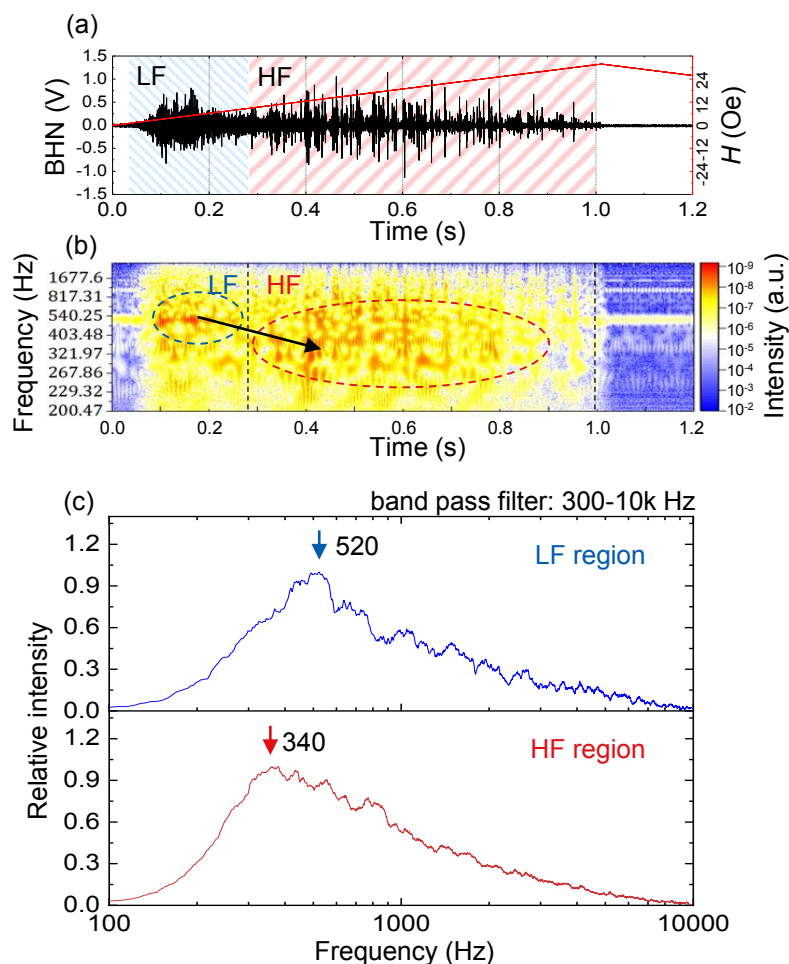


Fig. 3-5 Frequency spectra at a stress of 56 MPa. (a) A single BHN profile, (b) Wavelet transform (WT) analysis result and (c) fast Fourier transform (FFT) analysis results in the LF region (above) and in the HF region (below).

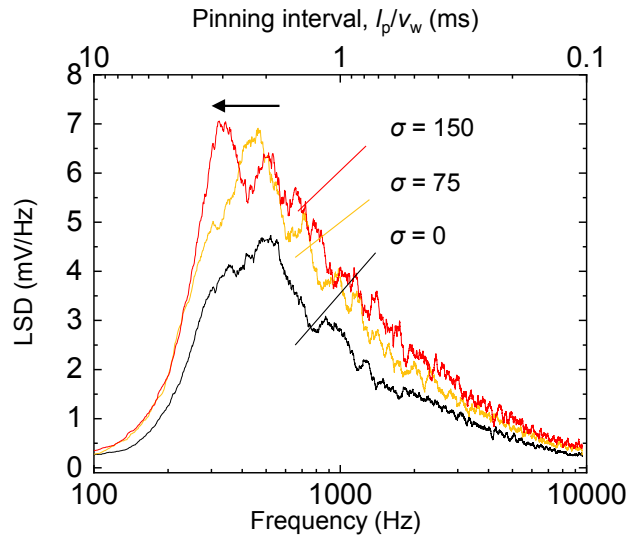


Fig. 3-6 Linear spectrum density (LSD) of BHN signals after performing FFT analysis at 0, 75, and 150 MPa stress.

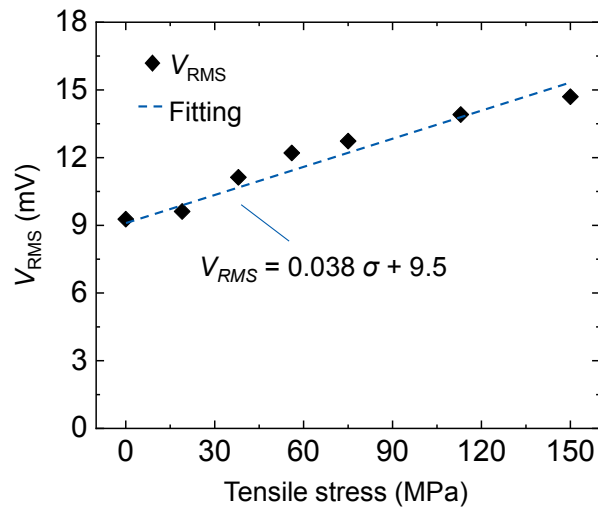


Fig. 3-7 Stress dependence of the RMS value of BHN (V_{RMS}) and the linear fitting.

3.4 考察

3.4.1 応力センサ特性

Fig. 3-8a に各試験片に対する応力の作用範囲 0-500 MPa となる弾性限界の範囲内でのバルクハウゼンノイズ実効値を示す。これは、先ほどの 420°C-FC 材へのバルクハウゼンノイズの応力依存性の結果に対して、更に加工まま材及び 820°C-WQ 材の結果を加えてプロットしたものである。また、それらの傾きを飽和磁歪量でプロットしたグラフを **Fig. 3-8b** に示した。さらに、これらの試験片におけるフィッティング直線の傾き、切片、誤差から算出したセンサ特性を **Table 2** に示す。これらのパラメータはそれぞれ応力感度、線形性、精度を示す。

これらの結果より、全ての試験片において広いダイナミックレンジにおいて良好な線形性を示した。特に、加工まま材において最も大きな応力感度を示しており、飽和磁歪量との良好な相関を明らかにした。これは引張荷重による発生応力により、磁気弾性エネルギーが蓄積され、磁束密度変化に変化したからである。金属組織の中でも結晶粒径や転位密度ではなく、内部ひずみの影響を大きく受けると考えられる。また、加工まま材における低応力下及び 500 MPa 付近での応力下でのバルクハウゼンノイズ実効値のばらつきは、材料内部の残留応力に起因する保磁力の影響を受けている。更には、作用する応力が 0 MPa におけるバルクハウゼンノイズ実効値は、第 2 章の結果を踏まえると、各材料の結晶粒界などの金属組織形態に関するパラメータと考えられる。

このように、弾性変形領域内でのバルクハウゼンノイズ実効値の応力依存性は、そのセンサ特性から結晶粒径や格子ひずみの影響を大きく受けていることが明らかとなった。

他の強磁性体を用いた応力センシング手法として、磁気異方性や磁気インピーダンス(MI) [24]、磁気アコースティックエミッション(MAE) [25]、アモルファスマイクロワイヤを用いた磁気スイッチング[26]などが挙げられる。このバルクハウゼンノイズ実効値の傾きや変化は、現存する応力センサに劣っているが、最適な熱処理などを施すことで、更なる特性構造が期待できる。また、これらの応力センサとバルクハウゼン効果に関連する物理定数となるため、磁歪材料の逆磁歪効果を利用した発電性能を見積もるための補正係数となりうる事が考えられる。

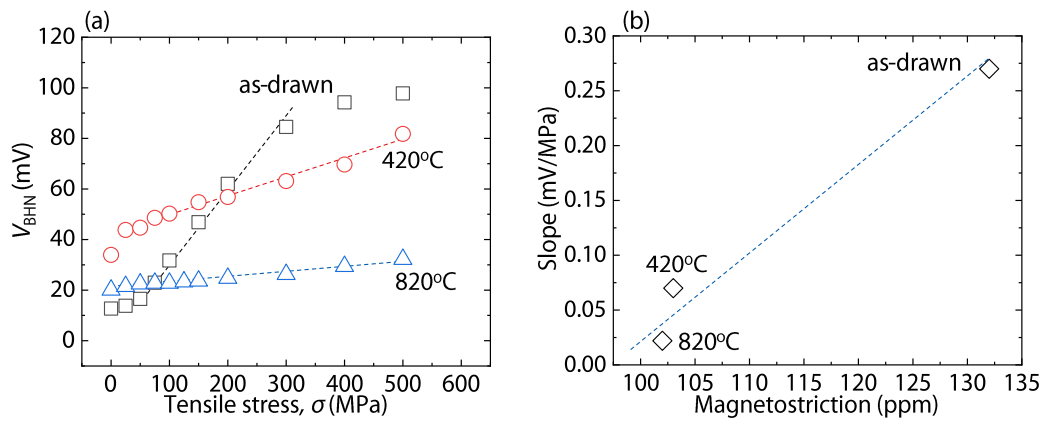


Fig. 3-8 (a)Correlation between RMS BHN and the tensile stress for as-drawn, 420°C-FC and 820°C-WQ. (b)The magnetostriction dependence of the slope of RMS BHN.

Table 3-2 Sensor characteristics for each magnetostrictive alloy wire.

Samples	Sensibility (mV/MPa)	Dynamic range (MPa)	Linearity (%F.S.)
As-drawn	0.27	50-300	<3
420°C-FC	0.070	25-500	<8
820°C-WQ	0.022	0-500	<6

3.4.2 バルクハウゼンジャンプ

以上の結果を踏まえ、磁歪材料におけるバルクハウゼンノイズ波形および周波数スペクトルに及ぼす力学的作用の影響を考慮して、金属組織に基づく磁壁挙動について議論する。

Fig. 3-9 は、420°C-FC 材におけるバルクハウゼンノイズの発生挙動モデルに関する模式図とその組織、波形データを示す。まず、SEM-EBSD 解析により得られた IQ (Image quality) マップ及び逆極点図 (IPF) マップから、多くのマイクロな亜結晶粒 (数百 nm～数 μm 程度) が結晶粒内に形成されていることがわかる。また、**Fig. 3-9c** に示すように、出力電圧の大きなパルス信号が広い間隔で発生し、出力電圧の小さいパルス信号が短い間隔で発生する信号が複数存在している。バルクハウゼンジャンプを伴うこの磁壁の動的挙動は、Hauser[27]の研究によって磁壁速度、 v_w の増加および磁壁ジャンプ長 l_p のような金属組織に起因するピンニングサイトの間隔の影響を受けると報告される。そのマイクロな磁束密度変化は、

$$\frac{dB}{dt} \propto \alpha \mu_0 M_s \frac{v_w}{l_p}, \quad (3-6)$$

ここで、 α は磁歪の磁化率に関連する定数であり、磁歪定数や磁壁の総数なども含まれる。 M は飽和磁化、 μ_0 は自由空間の透磁率を示す。このとき、材料の透磁率は荷重負荷によって変化するため、バルクハウゼン効果は磁歪材料の磁壁の動的挙動に敏感に影響されることが想定される。さらに、ピン止め効果に起因するバルクハウゼンジャンプの動的挙動は、磁壁の位置エネルギー (ポテンシャル) である磁壁エネルギーを用いたピンニングモデル[28]を用いて説明されている。このモデルを参考にすると、磁壁エネルギーは磁壁の厚さだけでなく、金属組織にも依存する。また、磁壁移動速度 v_w は、単位面積当たりの磁壁エネルギー、磁壁の位置 x に対する $\gamma_w(x)$ を用いて次の式で表すことができる。

$$v_w = -\frac{d\gamma_w(x)}{dx}. \quad (3-7)$$

Fig. 3-10a に、異なる荷重負荷条件におけるピン止め効果の影響を受けた磁壁挙動の概略図を示している。その結果、LF 領域の BHN 信号は、180°磁壁の動きが比較的小さなバルクハウゼンジャンプを含むため、ピンニングサイトの長さが小さいと考えられる。一方で、HF 領域における BHN 信号は、非 180°磁壁の移動が比較的大きなバルクハウゼンジャンプを含むことが考えられるため、ピン止め距離が大きいことに起因すると考えられる。

このように、粗大粒と微細粒で比較した場合に、バルクハウゼンノイズの発生挙動やその出力強度に寄与する応力効果は、微細粒を有する金属組織の方が大きく、その際、ピンニングサイトとなる結晶粒界を飛び越えるようなバルクハウゼンノイズジャンプが生じていると考えられる。これは、発生応力の増加に伴い、バルクハウゼンノイズの発生周波数が低周波域にシフトしていることから

説明できる. このようなモデルはこれまでに報告されておらず, 応力感受率を説明するミクロスケールでの定性的なモデルとなりうる.

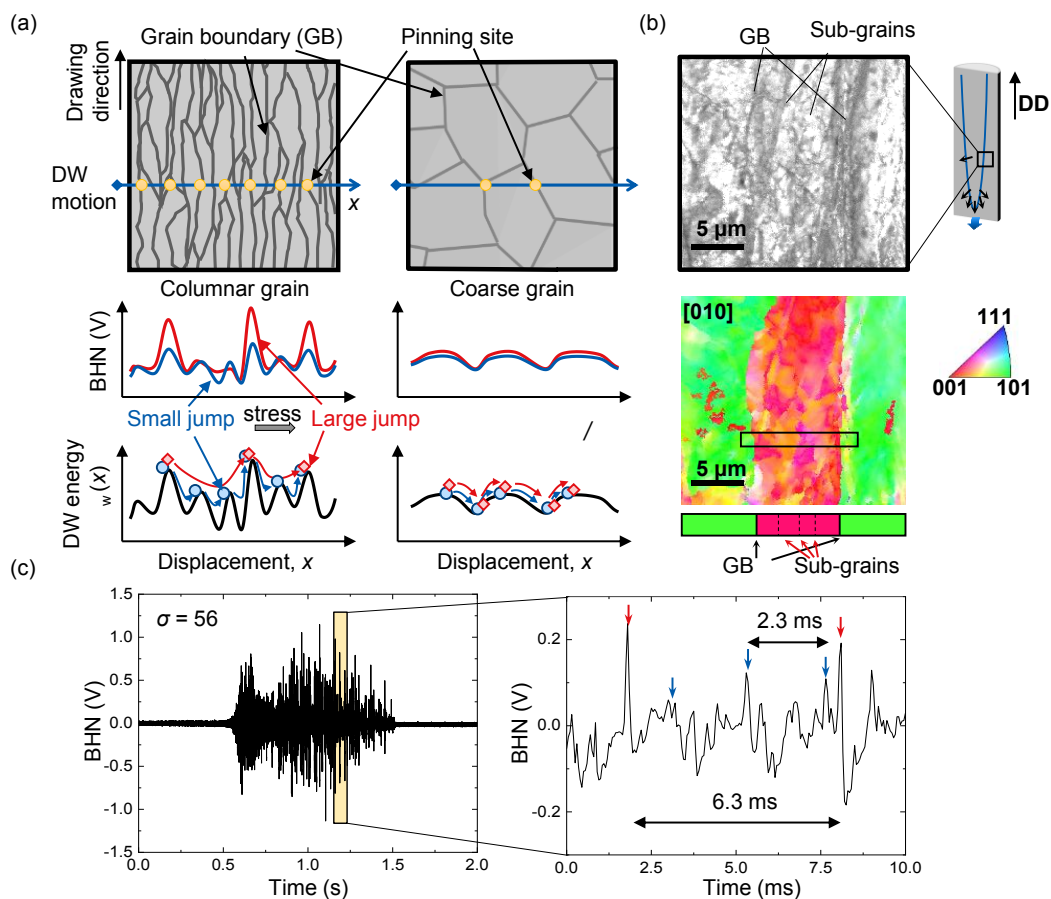


Fig. 3-9 Domain wall (DW) dynamics driven by a magnetic field along FeCo wire. (b) Image quality (IQ) map and inverse pole figure (IPF) map of the microstructure from the angle of ND. (a) Schematic of Barkhausen jump induced by the change of DW velocity due to the pinning effect, which is associating with the microstructures such as grain boundary (GB) or sub-grains. (c) Example of BHN signals and the enlarged wave profile at 56 MPa stress.

3.5 本章のまとめ

本研究では、バルクハウゼンノイズの発生挙動に及ぼす弾性変形領域における格子ひずみの影響を検証した。応力下でのバルクハウゼンノイズ検出システムを構築し、その出力特性の応力依存性に及ぼす金属組織の影響評価を行った。特に、Fe-Co 磁歪材料の弾性限界の範囲内における応力センサ特性の検証することにより、バルクハウゼンノイズを利用した応力センサへの有効性を検討した。得られた知見を以下にまとめる。

- 1) 直径 1 mm の Fe-Co 合金の引抜きワイヤにおける、バルクハウゼンノイズの計測システムを設計し、引張応力下でバルクハウゼンノイズを評価・解析するシステムを構築した。
- 2) 弾性変形領域の応力下で測定したバルクハウゼンノイズ波形への高速フーリエ変換を行い、その解析より得られたバルクハウゼンノイズ実効値は発生応力(格子ひずみ)に対する良好な線形増加を示した。加工まま材において最大で 0.27 mV / MPa の応力感度を示し、この傾きは磁歪材料の飽和磁歪量に依存して増大することを明らかにした。
- 3) 発生応力の増加により、バルクハウゼンノイズの周波数スペクトルは低周波数域にシフトすることを示した。これは、バルクハウゼンノイズの発生挙動として、ピン止めサイトとして作用する粒界などの結晶欠陥をいくつか飛び越えるような大きなバルクハウゼンジャンプが生じていると考えられる。

これらの知見により、金属組織の観点からバルクハウゼンノイズの発生挙動を検討し、弾性変形王領域における発生応力の定量的な評価手法を確立した。これらの結果を用いて、磁歪材料におけるバルクハウゼンノイズを利用した新しい応力センサシステムの提案により、インフラ構造物や大型機械などの応力モニタリングへの適用が期待できる。

しかし、本材料はワイヤ材であり、ピックアップコイル 1 つによる、1 次元的な応力場の検知システムとなることから、適用先が限定されてしまうことが課題として挙げられる。そのため、適用範囲の拡大には、ピックアップの数を増やすことによる応力発生点の位置検知と、90 度傾けて 2 つセットするなどの複合的な計測システムを構築する必要があると考えられる。また、静的荷重に対する検知だけでなく、衝撃力のような動的荷重も検知する必要があるが、その点については第 5 章で説明する。

参考文献 3

1. P. Weiss, L'hypothèse du champ moléculaire et la propriété ferromagnétique. *J. Phys. Theor. Appl.* 6, 1 (1907), 661-690.
2. H. Barkhausen, Two phenomena revealed with the help of new amplifiers, *Phys. Z* 29 (1919) 401-403.
3. Y. Furuya, Nondestructive material evaluation by Barkhausen noise analysis, *J. Japan Welding Soc.* 64, 2 (1995) 120–125.
4. S. Yamaura, Y. Furuya, and T. Watanabe, The effect of grain boundary microstructure on Barkhausen noise in ferromagnetic materials, *Acta Mater.* 49, 15 (2001) 3019–3027.
5. N. P. Gaunkar, C. I. Nlebedim, and D. Jiles, Examining the Correlation Between Microstructure and Barkhausen Noise Activity for Ferromagnetic Materials, *IEEE Trans. Magn.* 51, 11 (2015).
6. D. Oriwol, E.-R. Carl, A.N. Danilewsky, L. Sylla, W. Seifert, M. Kittler, and H.S. Leipner, Small-angle subgrain boundaries emanating from dislocation pile-ups in multicrystalline silicon studied with synchrotron white-beam X-ray topography, *Acta Mater.* 61 (2013) 6903–6910.
7. J. Pal'a, E. Ušák, New parameters in adaptive testing of ferromagnetic materials utilizing magnetic Barkhausen noise, *J. Magn. Magn. Mater.* 402 (2015).
8. L. Clapham, C. Heald, T. Krause, D. L. Atherton, and P. Clark, Origin of a magnetic easy axis in pipeline steel, *J. Appl. Phys.* 86, 3 (1999).
9. T. Okazaki, T. Ueno, Y. Furuya, M. Spearing, and N. W. Hagood, Detectability of stress-induced martensite phase in ferromagnetic shape memory alloy Fe–30.2 at.%Pd by Barkhausen noise method, *Acta Mater.* 52, 17 (2004) 5169–5175.
10. C. G. Rothea, J. Chicois, R. Fougères, and P. Fleischmann, Characterization of pure iron and (130 ppm.) carbon–iron binary alloy by Barkhausen noise measurements: study of the influence of stress and microstructure, *Acta Mater.* 46, 14 (1998) 4873–4882.
11. L. Mierczak, D. C. Jiles, and G. Fantoni, A new method for evaluation of mechanical stress using the reciprocal amplitude of magnetic Barkhausen noise. *IEEE Trans. Magn.* 47, 2 (2011) 459-465.
12. A. Zhukov, M. Churyukanova, S. Kaloshkin, V. Sudarchikova, S. Gudoshnikov, M. Ipatov, A. Talaat, J. M. Blanco, V. Zhukova, Magnetostriction of Co–Fe-Based Amorphous Soft Magnetic Microwires, *J. of Electron. Mater.* 45, 1 (2016).

13. M. J. Sablik, and B. Augustyniak, The effect of mechanical stress on a Barkhausen noise signal integrated across a cycle of ramped magnetic field, *J. Appl. Phys.* 79, 963 (1996).
14. M. Vashista, and V. Moorthy, Influence of applied magnetic field strength and frequency response of pick-up coil on the magnetic barkhausen noise profile, *J. Magn. Magn. Mater.* 345 (2013) 208-214.
15. T. Inaguma, H. Sakamoto, and M. Hasegawa, Microstructure dependence of Barkhausen voltage pulse width in steel, *Journal of Applied Physics* 111, 063903 (2012).
16. R. Sundar, S. Deevi, Soft magnetic FeCo alloys: alloy development, processing, and properties, *Int Mater Rev*, 50 (2005) 157-192.
17. O. Stupakov, J. Pal'a, T. Takagi, T. Uchimoto, Governing conditions of repeatable Barkhausen noise response, *J. Magn. Magn. Mater.* 321, 18 (2009) 2956-2962.
18. D.C. Jiles, L. Suominen, Effect of surface stress on Barkhausen effect emissions: model prediction and comparison with x-ray diffraction studies, *IEEE Trans. Magn.*, 30, 6 (1994) 4764-4766.
19. S. Chikazumi, *Physics of Ferromagnetism*, Vol. II, Syokabo 308 (1994).
20. O. Kypris, I. C. Nlebedim, D. Jiles, Experimental Verification of the Linear Relationship Between Stress and the Reciprocal of the Peak Barkhausen Voltage in ASTM A36 Steel, *IEEE Trans. Magn.* 49, 7 (2013) 4148-4151.
21. M. Moradi, A. D. Seyed, M. Mohseni, and A. J. Gharehbagh, Magnetoimpedance and Field Sensitivity of CoFeSiB Amorphous Ribbons under Applied Tensile Stress, *J. Supercond. Nov. Magn.* 28 (2015) 2059–2062.
22. S.J. Farley, J.F. Durodola, N.A. Fellows, L.H. Hernandez-Gomez, High resolution non-destructive evaluation of defects using artificial neural networks and wavelets, *NDT&E Int.* 52 (2012) 69–75.
23. K. Miesowicz, W. J. Staszewski, T. Korbiel, Analysis of Barkhausen noise using wavelet-based fractal signal processing for fatigue crack detection, *Int. J. Fatigue.* 83 (2016) 109–116.
24. P. Wang, X. Ji, L. Zhu, G. Tian, E. Yao, Stratified analysis of the magnetic Barkhausen noise signal based on wavelet decomposition and back propagation neural network, *Sens. Actuators A*, 201 (2013) 421-427.
25. M. R. N. Astudillo, M. I. L. Pumarega, N. M. Núñez, A. Pochettino, J. Ruzzante, Magnetic Barkhausen noise and magneto acoustic emission in pressure vessel steel, *J. Magn. Magn. Mater.* 426 (2017) 779–784.

26. J. Olivera, M. González, J.V. Fuente, R. Varga, A. Zhukov, J.J. Anaya, An Embedded Stress Sensor for Concrete SHM Based on Amorphous Ferromagnetic Microwires, *Sensors* 14, 11 (2014) 19963-19978.
27. H. Hauser, Energetic model of ferromagnetic hysteresis: Isotropic magnetization, *J. Appl. Phys.* 96, (2004) 2753-2767.
28. W. F. Brown, *Micromagnetics*, New York: Interscience 143 (1963).

第 4 章

バルクハウゼンノイズ解析による ひずみ評価と損傷度予測

概要

第 4 章では、磁歪材料の塑性変形より蓄積される転位に着目し、塑性ひずみにより蓄積される損傷がバルクハウゼンノイズの発生挙動に及ぼす影響を検証した。結晶構造解析を用いて転位密度を算出し、バルクハウゼンノイズ実効値との相関性評価を行った。転位密度の増加に伴い、バルクハウゼンノイズ出力電圧は線形減少を示し、一定の損傷度でバルクハウゼンノイズが消失することを明らかにした。また、バルクハウゼンノイズが消失しない損傷領域での転位密度の定量的な推定が可能であることを示し、印加磁場速度の増加により、定量的に評価可能な損傷範囲が増大することを明らかにした。バルクハウゼンノイズを利用した損傷度モニタリングはインフラ構造体の長寿命化に向けた新たな疲労予測診断技術として期待できる。

4.1 はじめに

バルクハウゼンノイズは先に示したとおり、磁化過程における不連続磁化に起因する。このような不連続性には、磁壁移動のピン止め効果の発生要因である金属組織、例えば析出物(相)の種類やサイズ、数、分布などの影響を大いに受けるのである。しかし、各組織因子において“ばらつき”が存在するため、その組み合わせは膨大な数となり、バルクハウゼンノイズの発生機構の解明を妨げる理由になっている。

塑性変形によるバルクハウゼンノイズの発生挙動に及ぼす影響は一層複雑であるといえる。前章の応力測定に向けた弾性領域での応力依存性は、ある一定の初期値(金属組織形態)に対して、磁歪定数(磁気ひずみ定数)がその応力感受率に対応し、正比例を示した。一方で、ひずみ付与などによる塑性変形では、金属組織形態が一変することに加え、残留ひずみとして内部応力も付与されるため、発生要因を金属組織単位で特定するのは困難である。そのため、磁化過程全体から見積もることができる保磁力や透磁率のような、少しマクロな視点からバルクハウゼンノイズに着目する。そのため、1 サイクルの中で発生したバルクハウゼンノイズの程度(実効値など)で評価することにより、転位密度とバルクハウゼンノイズの関係を明らかにしようとする試みである。

地震などの膨大な力の開放により、大型機械やインフラ構造物は繰り返し塑性変形によりたえず損傷を受けることがある。震災直後の減災のため、構造物の損傷度の迅速な把握が重要となる[1]。現状では、限られた専門家による目視や打音による劣化診断であるため、人的リソースの限界や、作業時間制限、定量的な判断基準の有無などの課題を有している。そのため、人を介さずに簡易かつ定量的な診断手法が強く望まれている。

また、金属材料が塑性変形する場合、原子のすべりに起因した格子欠陥が蓄積される。マクロな弾性率への変化は生じないが、材料内部の空孔や転位などのナノ欠陥が発生・配列し、それらが磁気特性に影響を与えることが知られている[2]。そのような構造物の材質変化に対する磁氣的性質の変化を利用した診断手法として、磁化過程における磁壁の不連続挙動により発生するバルクハウゼンノイズが注目される。近年、高い応力感受率を示す他の鋼材やスマート材料をセンサ部材として用いた応力測定・材質診断方法が提案されている。稲熊ら[3]は、球状型セメント組織が発生応力に対して高い応答性を有することを見出した。この鋼材を応力センサ部として対象構造物に貼り付け、材料内部に生じる残留応力や熱応力の評価に試みている。また Okazaki ら[4]は形状記憶合金におけるバルクハウゼンノイズを利用した温度・応力誘起による相変態挙動を評価している。

このように予め金属組織依存性を把握している鋼材に対するバルクハウゼンノイズを利用した応力測定は優れた感度を有し、初期値が分かっているため、絶対的な定量評価を行うことができるなどの特徴を有する。しかしながら、構造部への貼り付ける場合の接着材の劣化などの課題を有している。また、応力センサ部の貼り付け(埋め込み)による塑性変形を評価した実験の報告は殆どない。

本章では、強靱かつ高強度、大磁歪を示す Fe-Co 磁歪合金をセンサ材料とした際の、バルクハウゼンノイズを利用した材料診断に向けた基礎的検討を行う。特に、ひずみ損傷度がバルクハウゼンノイズに及ぼす影響を評価することを目的としている。具体的には、中断試験によるひずみ損傷を付与した材料に及ぼすバルクハウゼンノイズの影響評価を行うことにより、ひずみ導入により変化する金属組織が及ぼすバルクハウゼンノイズの発生挙動の影響を検証する。このようにバルクハウゼンノイズを利用したひずみ損傷評価手法を提案することで、損傷度予測モデルを検討する。それらの結果に基づき、**Fig. 4-1** で示すようなバルクハウゼンノイズを利用した損傷モニタリング技術への検討を行う。

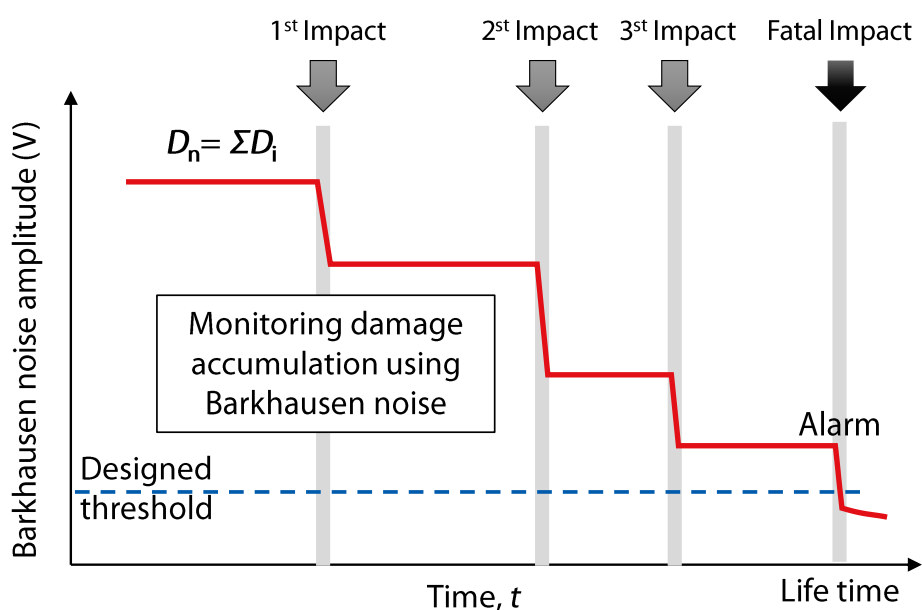


Fig. 4-1 Schematic illustration of structure health monitoring using Barkhausen noise.

4.2 実験方法

4.2.1 供試材

本研究では, $\text{Fe}_{30}\text{Co}_{70}$ 合金ワイヤ(直径 1 mm)を供試材として用いた. 試験片には $420^\circ\text{C}/24$ 時間保持による焼鈍し熱処理を施した熱処理材を用意した. この熱処理は伸線加工時に導入された結晶内部のミクロな結晶欠陥や残留ひずみの除去を目的としている. 本試験片の金属組織は, 第 2 章で示した通りであり, 磁気的特性に関しては, 飽和磁化 212 emu/g , 保磁力 5.19 Oe , 飽和磁歪 103 ppm を示している. これらの供試材に対して, 長さ 80 mm となるように切断加工を行い, 以下の引張・中断試験及び, バルクハウゼンノイズ評価を実施した.

4.2.2 引張・中断試験

引張試験および中断試験には, 島津製作所製の Autograph(AG-50kN)を用いた. 一定のクロスヘッド速度 1 mm/min (初期ひずみ速度 1.67 s^{-1})で行った. 試験装置と中断試験の模式図を Fig. 4-2 に示す. 本研究で用いた Fe-Co 合金における公称応力-公称ひずみ曲線を Fig. 4-3 に示した. 420°C -FC 材では, 降伏応力は 819 MPa , 最大応力は 1110 MPa を示した. 中断試験は室温で実施し, 420°C -FC 材では, それぞれ 0.70% , 1.1% , 2.6% , 3.2% , 3.9% , 6.7% まで塑性ひずみを付与したのち, 試験片を取り出し以下の各種特性評価を実施した.

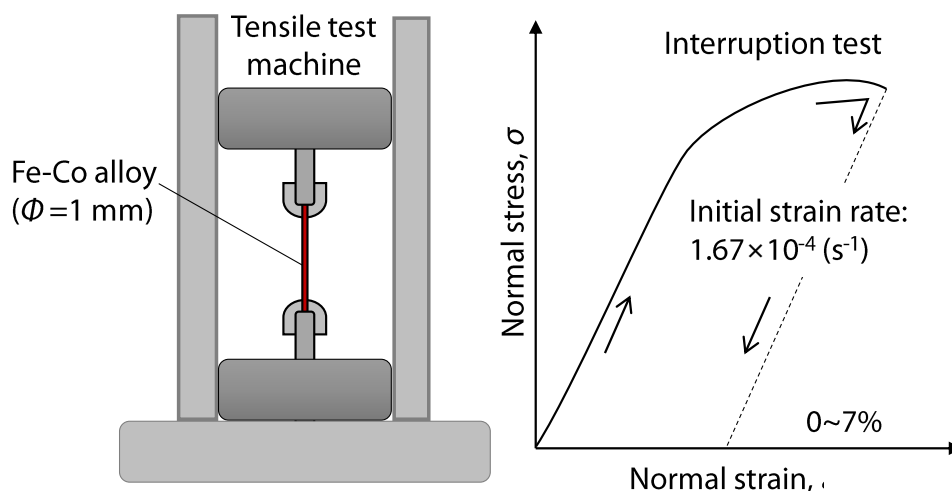


Fig. 4-2 Schematic illustration of experimental equipment and the interruption test.

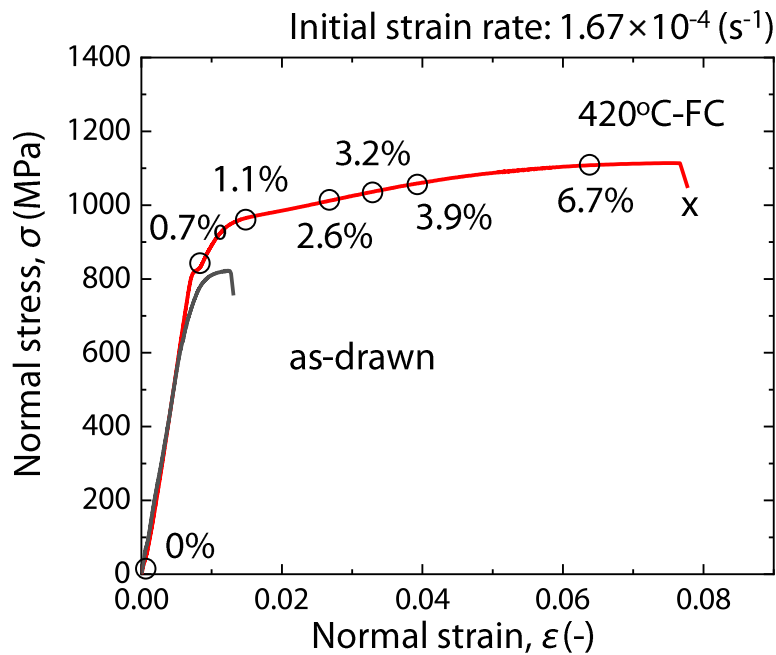


Fig. 4-3 Stress-strain curve for each Fe-Co wire sample.

4.2.3 転位密度の算出

結晶構造解析には Rigaku 製の X 線回折測定装置 (Ultima-IV) を用いた。それぞれひずみを付与したワイヤ材を上記と同様に表面研磨まで行った後、測定を行った。X 線回折測定では、管球は Cu K α 線を用いて、測定範囲は 30-120° となるような角度 2θ で測定を行った。得られた試験片に対して、これらの XRD プロファイルから第 2 章と同様に Williamson Hall プロットから転位密度を算出した。

4.2.4 硬さ測定

硬さ測定には、島津製作所製のビッカース硬さ試験機 (VMT-7) を用いて実施した。荷重を P [kgf] (F [N]), 圧痕の対角線長さを d [mm] として次式を用いてビッカース硬さ HV を算出した。

$$HV = 2 \sin 68^\circ \frac{P}{d^2} = 0.1891 \frac{F}{d^2} \quad (4-1)$$

これは試験荷重 P に依存しないので、均質材の測定ではその厚さに応じて荷重を調節することができる。本試験では、試験荷重として 0.5 [kgf] (4.903 [N]) を用いた。樹脂埋めにより固定された

試験片の表面を鏡面研磨まで仕上げた後、各試験片に対して 20 点程度のビッカース硬さ試験を行い、それらの平均値より求めた。

4.2.5 バルクハウゼンノイズ出力特性評価

バルクハウゼンノイズ出力特性評価には、第 3 章での実験に使用した、測定装置の構成およびバルクハウゼンノイズ計測システムを採用した、さらに、付録 S2 に示した計測条件の選定や先行研究[8]に基づいた結果を元に検討した。

バルクハウゼンノイズ実効値 (root-mean-square value of BHN, V_{RMS}) は、FFT による周波数解析を行い、以下の式を用いて平方 2 乗和を求めることにより算出した。このとき、周波数軸波形 $X(f)$ を用いて荷重の負荷時に発生する V_{BHN} を算出した。

$$V_{\text{BHN}} = \frac{\sqrt{|X(f)|^2}}{\Delta f}, \quad (4-2)$$

このとき、

$$X(f) = \int_0^{25000} x(t)e^{-2j\pi ft} dt \quad (4-3)$$

である。得られた波形 4 回分 (8 秒分のデータ) の平均値を算出することによりバルクハウゼンノイズ実効値を求めた。

本研究では中断試験後に引張試験機から取り外した試料を、検出コイルが中央に来るように設置し、外部の荷重負荷がない状態でバルクハウゼンノイズ出力電圧測定を行った。

4.3 実験結果

4.3.1 転位密度に及ぼすひずみ付加の影響

Fig. 4-4 にひずみ付与を行った各試験片における X 線回折測定の結果を示す. XRD 測定によるプロファイル評価により, ひずみ付与の前後の試験片は全て bcc-Fe 相を有しており, 不純物や新たな析出相の確認はなかった. XRD プロファイルには一部樹脂のピークも混在しているが, fccFe などの他の結晶構造は検出されていない. さらに, XRD パターンから算出した, 各ピーク (110), (200), (211), (220), (310) における半価幅 (FWHM) を求め, 任意のプロットから Williamson-Hall プロット[11]を利用し, 以下の 2 式から転位密度の算出を行った.

$$\beta \cos\theta \frac{1}{\lambda} = \frac{0.9}{D} + 2\varepsilon \frac{\sin\theta}{\lambda} \quad (4-4)$$

$$\rho = 14.4 \frac{\varepsilon^2}{\beta^2} \quad (4-5)$$

この時, β は半価幅, λ は Cu K α の波長, D は結晶サイズ, ε は格子ひずみである.

次に, 各塑性ひずみを付与した試験片への算出した転位密度と硬さ測定により求めたビッカース硬さのひずみ依存性を Fig. 4-5 に示す. ひずみ付与に伴い, 転位密度とビッカース硬さは共に, 正の相関を持ち, ほぼ同様な変化挙動を示した. 両試験片に対して, ひずみ付与により転位が増加していくと共に, これらの応力ひずみ曲線から得られたひずみとその転位密度の関係に基づいて, バルクハウゼンノイズの特性とひずみ損傷度の相関性を検証していく.

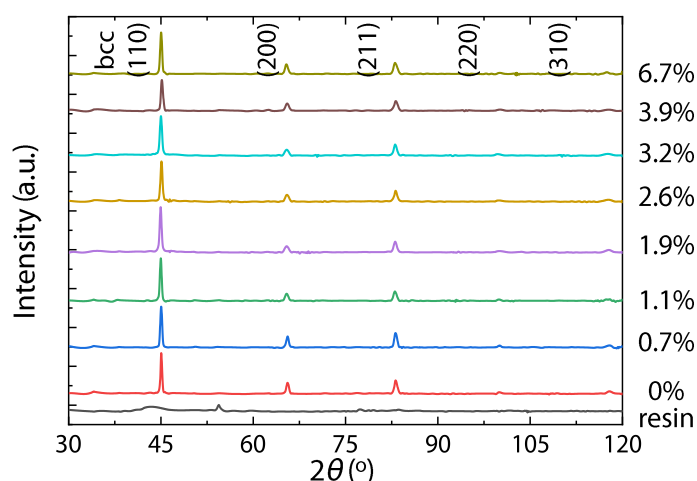


Fig. 4-4 XRD patterns for 420°C annealed specimen introduced some amount of distortions.

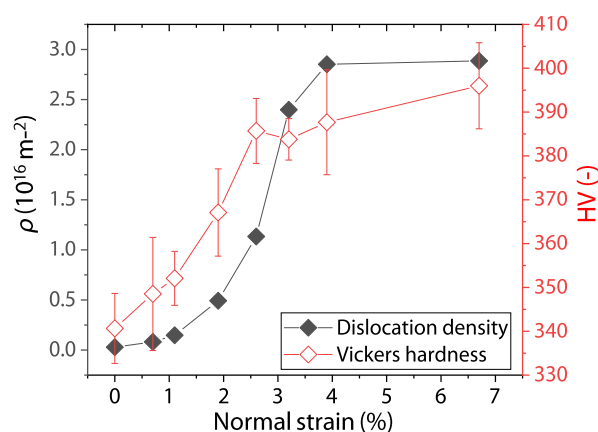


Fig. 4-5 Strain dependence of dislocation density, ρ calculated from Williamson-Hall plot and Vickers hardness, HV for 420°C annealed specimen.

4.3.2 バルクハウゼンノイズ波形に及ぼす転位密度の影響

バルクハウゼンノイズの発生機構であるピン止め効果は、その種類や強弱、大きさなどに大きく依存するため、磁化条件や応力状態の把握・制御が重要となる。Fig. 4-8 に、バルクハウゼンノイズ波形の塑性ひずみ依存性を示す。異なる印加磁場速度ごとにバルクハウゼンノイズ計測を実施した。

まずは、ひずみ依存性に関しては、どの磁場速度に関してもひずみ付与が大きくなるにつれてバルクハウゼンノイズが減少していくことがわかった。ただし、本研究における印加磁場強度が弱い場合 ($dH/dt=5.4 \text{ Oe/s}$) の場合、塑性ひずみ 2.6%以上が付与された試料に対しては、バルクハウゼンノイズの発生を確認することができなかった。一方、 $dH/dt=10.8 \text{ Oe/s}$ および、 $dH/dt=16.2 \text{ Oe/s}$ と磁化速度が比較的速い場合、塑性ひずみが導入されていても、バルクハウゼンノイズは発生するが、やはり出力電圧は減少していく。そのため、印加磁場速度が金属組織に及ぼす影響は大きいといえる。

次に、各バルクハウゼンノイズ波形のピーク位置に着目すると、ひずみ付与に従い、高磁場側へ移動していることがわかる。これは、保磁力の増加と共に、磁化率が低下しているため、磁壁移動により大きな磁場が必要となることを意味している。磁場印加によって材料内の磁化が一定値を超えたときにバルクハウゼンノイズが発生する。つまり転位密度の増加により蓄積された磁壁エネルギーの壁が高くなり、磁壁の移動を妨げていると考えられる。更に、ピーク位置の高磁場化に合わせて発生するバルクハウゼンノイズの時間も短くなっていることがわかる。これらのバルクハウゼンノイズ発生挙動は、Fig. 4-8 に示したように転位密度の増大にしたがい、磁壁のピン止めされてそれ以上動けなくなってしまうからであると考えられる。保磁力は転位増加の平方 2 乗根に比例すると報告[12, 13]があるため、保磁力の増加と共に、バルクハウゼンノイズ出力電圧は減少することが示唆された。

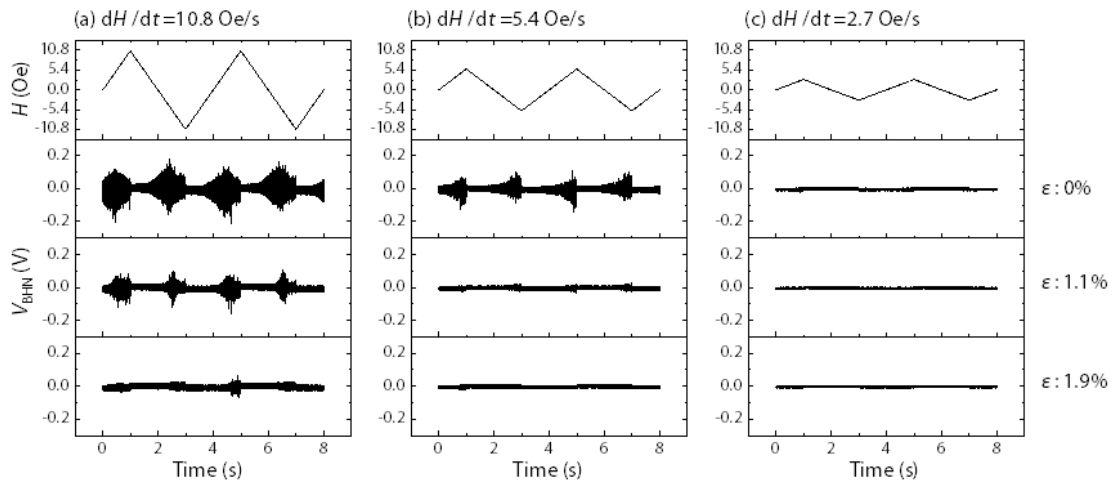


Fig. 4-6 Applied magnetic field and the Barkhausen noise signals given several distortions (ϵ : 0%, 1.1%, 1.9%) for 420°C annealed specimen in the case where the applied magnetic field gradient dH/dt is (a) 5.4 Oe/s, (b) 10.8 Oe/s, (c) 16.2 Oe/s.

4.3.3 バルクハウゼンノイズ実効値

次に、これらのバルクハウゼンノイズ波形から得られたバルクハウゼンノイズ実効値 V_{RMS} に対するひずみ量の関係を **Fig. 4-7** に示した。前節の発生挙動に関して示したように、ひずみ量の増大に伴い、バルクハウゼンノイズが減少した。低ひずみ量におけるバルクハウゼンノイズ実効値の減少率(勾配)が大きいことがわかる。そのため、き裂発生や進展に大きく影響を受ける 2%程度のひずみ検知も可能であるといえる。

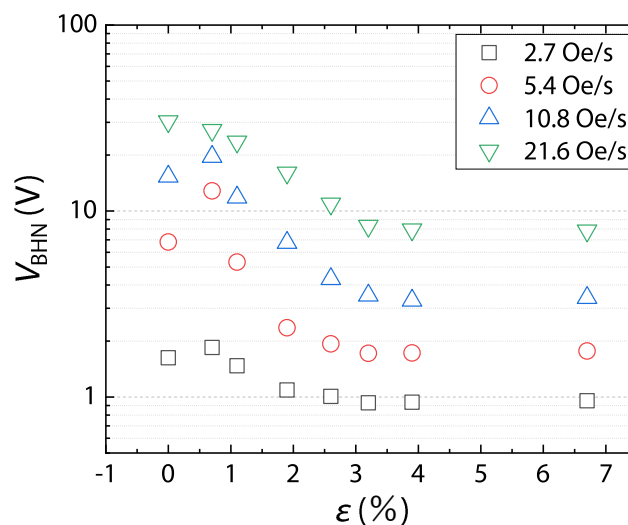


Fig. 4-7 Relationship between the RMS (root-mean-square) value of Barkhausen noise and the normal strain for 420°C annealed specimen.

4.4 考察

先ほど **Fig. 4-7** に示したバルクハウゼンノイズ実効値とひずみ付与の関係から定量的に損傷度を測定できる計測システムを提案する。

まず、バルクハウゼンノイズ実効値と転位密度依存性の片対数プロットを **Fig. 4-8** に示す。この結果、バルクハウゼンノイズ実効値は転位密度の増加するに従い線形的に減少し、一定の転位密度以上では、バルクハウゼンノイズの消失、一定値(ベース値)に収束することが分かった。また、印加磁場速度の増加に伴い、全てのひずみ量における出力電圧及び、その線形減少領域(オレンジメッシュ)の増大が確認された。そのベース値は印加磁場速度に相関を示しているため、磁化コイルの誘導磁場により発生したものであると考えられる。特に、印加磁場速度が 5.4 Oe/s の場合には、転位密度が $5.0 [10^{16} \text{ m}^{-2}]$ を境にバルクハウゼンノイズが消失することが分かった。同様に、印加磁場速度が 2.7, 10.8, 21.6 Oe/s の場合において、バルクハウゼンノイズの消失が確認され、その値をバルクハウゼンノイズ消失点として定義し、**Fig. 4-8** 中にひし形マークとして示した。この値は、線形減少するバルクハウゼンノイズ実効値がベース値と同じ値を示した点としている。

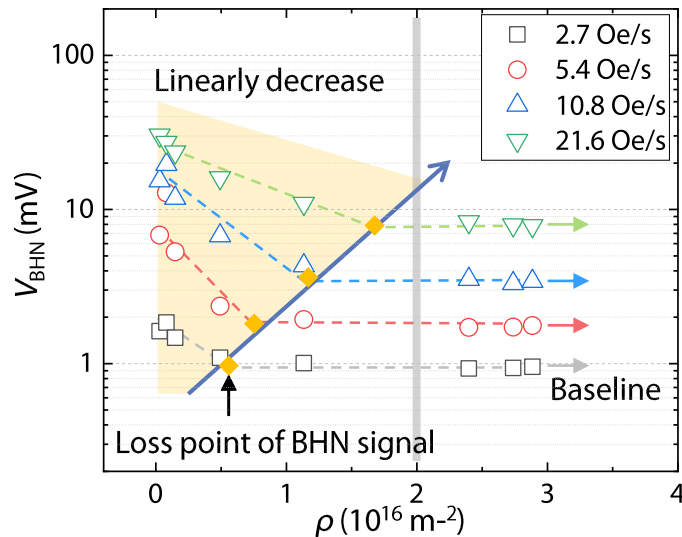


Fig. 4-8 Dislocation density dependence of the RMS (root-mean-square) value of Barkhausen noise and

また、**Fig. 4-9** にバルクハウゼンノイズの消失する転位密度と印加磁場速度の関係を示した。ここで、許容損傷度(許容転位密度, Allowable dislocation density, $\rho_{\text{allowable}}$)は転位密度が $2.0 [10^{16} \text{ m}^{-2}]$ であると仮定すると、その許容損傷度までバルクハウゼンノイズの実効値が線形減少する印加磁場速度を算出することができる。このとき、**Fig. 4-1** に示したような許容損傷度となるひずみ量で、バルクハウゼンノイズの消失が生じる。そのため、バルクハウゼンノイズが消失しない領域において、ひずみ損傷度の予測が可能となる。さらに、このように求めた印加磁場速度で固定した

バルクハウゼンノイズ検出および実効値の算出プログラムにより、定常的なひずみ蓄積モニタリングを可能とする。

本研究で用いた Fe-Co 磁歪ワイヤに対して更に引き抜き加工を施すことにより、直径 0.2 mm の合金ファイバ素材が開発[14]されており、複合繊維強化コンクリートへの適用することが期待できる。特に、このような磁歪繊維とホール素子もしくは検出コイルを構造体に設置あるいは埋設することで外部から非接触での損傷度検出が期待できる。本研究では X 線回折法における転位密度の算出により、ひずみ損傷度を評価したが、TEM (透過電子顕微鏡) を用いた転位の直接観察などによる更なる予測精度の向上や、他の熱処理材による再結晶前後の転位の動きや結晶方位などを制御することにより、転位密度以外の歪み損傷が与える金属組織依存性の評価が可能となる。

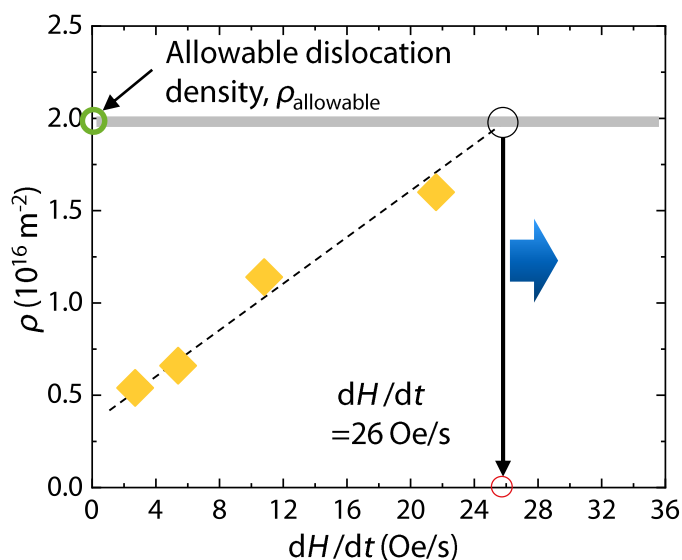


Fig. 4-9 Estimating the velocity of applied magnetic field using each damage accumulation where no Barkhausen noise occurs.

4.5 本章のまとめ

本研究では、高強度 Fe-Co 合金におけるバルクハウゼンノイズ解析を利用した応力センサに向けた基礎検討として、塑性ひずみにより蓄積される損傷がバルクハウゼンノイズに及ぼす影響を評価した。中断試験により塑性ひずみを付与した試験片の転位密度を算出し、バルクハウゼンノイズ実効値との相関性評価を実施した。得られた知見を以下に示す。

- 1) 800 MPa 級の降伏強度を有する Fe-Co 磁歪合金への中断試験により、0.70%、1.1%、2.6%、3.2%、3.9%、6.7%の塑性ひずみの付与を行った。結晶構造解析より求めた転位密度は塑性ひずみに対して正の相関を示した。
- 2) バルクハウゼンノイズ解析により求めたバルクハウゼンノイズ実効値と転位密度の相関性調査により、転位密度の増加に伴い、バルクハウゼンノイズ出力電圧は線形的に減少し、一定の損傷度でバルクハウゼンノイズが消失することを示した。
- 3) バルクハウゼンノイズと転位密度の関係から、バルクハウゼンノイズが消失しない損傷領域でのひずみ損傷の推定が可能であることを示し、印加磁場速度の増加により、定量的に評価可能な損傷範囲が増大することを明らかにした。

以上の成果により、強靱かつ高強度などの優れた機械的特性を有する磁歪合金ワイヤをセンサ部として、応力ひずみセンサへ有効性を検討したと共に、破断直前や予め設定しておいた許容損傷度におけるバルクハウゼンノイズが消失しないような印加磁場勾配に設定することで、ひずみ損傷度をモニタリングすることが可能となる。

参考文献 4

1. H. Liu, C. Koyama, J. Zhu, Q. Liu, M. Sato, Post-Earthquake Damage Inspection of Wood-Frame Buildings by a Polarimetric GB-SAR System, *Remote Sens.* 8, 935 (2016).
2. 近角聡信, 強磁性体の物理(下), 昇華房 (1995).
3. T. Inaguma, H. Sakamoto, and M. Hasegawa, Microstructure dependence of Barkhausen voltage pulse width in steel, *Journal of Applied Physics* 111, 063903 (2012).
4. T. Okazaki, T. Ueno, Y. Furuya, M. Spearing, N. W. Hagood, Detectability of stress-induced martensite phase in ferromagnetic shape memory alloy Fe-30.2at.%Pd by Barkhausen noise method, *Acta Materialia* 52 (2004), 5169–5175.
5. T. Yamazaki, T. Yamamoto, Y. Furuya, and W. Nakao, Magnetic and magnetostrictive properties in heat-treated Fe-Co wire for smart material/ device, *Mech. Eng.* 5, 2 (2018).
6. 鈴木清一, EBSP 読本 ~OIM を使用するにあたって~, (株)TSL ソリューションズ(2009).
7. M. HAYAKAWA, M. WAKITA and E. NAKAYAMA, Damage evaluation of ferrite steel during fatigue crack initiation process using misorientation parameter by EBSD, *Transactions of the JSME (in Japanese)* 80, 817 (2014).
8. T. Yamazaki, Y. Furuya and W. Nakao, Experimental evaluation of domain wall dynamics by Barkhausen noise analysis in Fe₃₀Co₇₀ magnetostrictive alloy wire, *J. Magn. Mater.* accepted (2 November 2018).
9. R. Sundar, S. Deevi, Soft magnetic FeCo alloys: alloy development, processing, and properties, *Int Mater Rev.* 50 (2005), 157-192.
10. S. Ii, K. Hirayama, K. Matsunaga, H. Fujii and S. Tsunekawa, Direct measurement of local magnetic moments at grain boundaries in iron, *Scripta Materialia* 68 (2013) 253–256.
11. T Ungár, A Borbély, The effect of dislocation contrast on x - ray line broadening: A new approach to line profile analysis, *Appl. Phys. Lett.* 69, 3173 (1996).
12. G. Laplanche, A. Kostka, O. M. Horst, G. Eggeler, P. George, Microstructure evolution and critical stress for twinning in the CrMnFeCoNi high-entropy alloy, *Acta Materialia* 118 (2016), 152-163.
13. 八重樫 光, 引張変形した実用鋼における磁気特性の転位密度依存性, *鉄と鋼* 91, 8 (2005).
14. F. Narita, M. Fox, A Review on Piezoelectric, Magnetostrictive, and Magnetoelectric Materials and Device Technologies for Energy Harvesting Applications, *Adv. Eng. Mater.* 20, (2018), 1700743.

第 5 章

応力誘起型バルクハウゼンノイズ の検出と応答特性

概要

第 5 章では, 衝撃荷重により誘起されるバルクハウゼンノイズの発生挙動を調査した. 試験片に衝撃荷重が作用するようなエポキシ樹脂との円筒形磁歪複合材料を作製し, 衝撃圧縮試験によるバルクハウゼンノイズの応答特性の評価・解析を行った. バイアス磁場下における圧縮応力の作用により発生したバルクハウゼンノイズは, 磁化過程における逆磁区の発生とその磁壁移動に起因すると考えられる. 更に, 作用応力の速度増加に伴い, バルクハウゼンノイズの実効値は, 線形的に増大することを示した. 本手法を用いることで, 磁歪材料中に発生する動的応力の定量評価が可能となることから, 外部電源を必要としない応力モニタリング技術への展開が期待できる.

5.1 はじめに

磁壁移動を誘導するために外部刺激を利用したものがある。前章までは外部磁場により誘導された磁壁の不連続挙動を調査してきたが、本章では、磁歪材料の逆磁歪効果に着目することで、荷重負荷により誘導される磁束密度変化とその磁壁挙動の調査をすることにより、ミクロな視点から磁歪の逆効果を検証していく。

機械・構造物分野では、モータの回転やエンジンのピストン運動などから、土木建設系インフラ分野では、風や波動、橋梁上の車両移動、鉄道車体移送などから、絶えず不連続的で、変動する外力の作用により、その経年劣化期限が近づく構造物の、寿命予測と安全評価の厳密性[1-3]が高まってきている。このような力学的過酷環境の中、利用者の安全・安心を確保するためには、構造物の劣化損傷を検知するだけでなく、き裂発生前の物体に作用する真応力や経年劣化によるひずみをリアルタイムに把握する技術が求められる。

これらの要求に対して、磁気的特性を利用した応力センサ[4]は非接触および応答性に優れることから、これまでに、磁気抵抗変化[5]や磁気インピーダンス変化[6]に基づく原理や、逆磁歪効果により発生する漏れ磁束計測[7, 8]を利用した非破壊診断が検討されてきた。しかし、これらの応力センサに用いられるアモルファス合金や Ni 箔帯リボンのような従来の材料では、感度に優れるものの、磁歪量が小さく、高い荷重負荷領域において磁気的特性変化が飽和してしまう、更には、時間分解能が低く、不連続に作用する発生応力の把握に向かないなどの欠点を有しているため、インフラ構造物などにおける高い荷重負荷やひずみ発生、高温環境が想定される使用条件には適していない。

近年注目される応力センシングの原理の 1 つに、**Fig. 5-1** に示すような、材料の金属組織要因に敏感な磁気バルクハウゼンノイズ[9-15]が挙げられる。本研究の対象試料としてきた高強度な磁歪合金におけるバルクハウゼンノイズを利用することでこれらの課題を解決できることが期待できる。

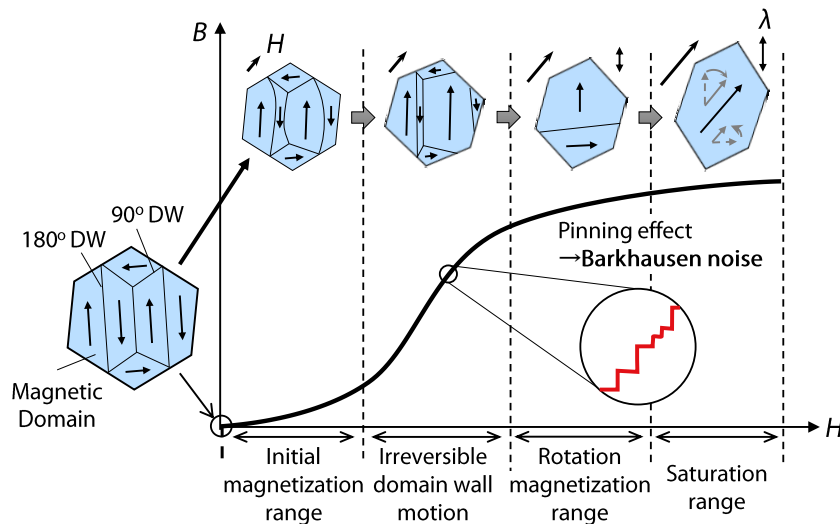


Fig. 1 Schematic diagram of the mechanism of Barkhausen noise generation in the magnetization process.

特に、第2章で調査を行ってきた磁歪合金における逆磁歪効果を利用した応力センシングに着目すると、例えば、圧電材料を用いたデバイスに見られるような振動発電・センシング一体型センサデバイス[16]が提案されているように、先述の力学的や熱的な過酷環境への適用が可能な産業 IoT インフラ用材料劣化診断センサの創出が期待できる。

近年では、従来の代表的な磁歪材料(Tarfenol-D や Galfenol など)の欠点である脆性を克服した、強靱かつ高い加工性、更には、軟磁性、大磁歪($\lambda_s \sim 100\text{-}130$ ppm)を示す新 Fe-Co 多結晶合金の基礎的な磁気特性が明らかとなっている[17]。その高い機械加工性を活かした繰り返し加工による非常に薄いフィルム素材($t \leq 0.05$ mm)や繊維素材($\Phi \leq 0.05$ mm)の実現により、更なる磁気・磁歪特性の向上に達成している[18, 19]。更には、高い結晶配向性およびごく金属組織を有する磁歪合金ワイヤを用いたバルクハウゼンノイズの応答特性とその力学的作用の影響を検証することで、高い発電性能および応力感度を示すことが明らかにしている[20]。

しかしながら、実際のバルクハウゼンノイズは、磁壁の動的移動とマイクロな磁気モーメントのわずかな変化に起因しているため、大変複雑である。さらに、その計測システムや計測・解析条件により、バルクハウゼンノイズの波形特性は大きく異なる[21,22]ため、バルクハウゼンノイズ測定手法の検討や検出波形の理解はますます重要となる。これまでの数多くの理論的・シミュレーション的、実験的研究から、様々なバルクハウゼンノイズの発生モデル[23 - 25]が提案・議論されているが、応力誘起によるバルクハウゼンノイズはこれまでに報告されていない。

そこで本研究では、大きな磁歪特性を示す Fe-Co 系磁歪合金ワイヤを用いた、荷重負荷によって誘起されるマイクロな磁束密度変化の検出、すなわち、応力誘起型バルクハウゼンノイズに着目した応力センサシステムを新たに提案する。得られたバルクハウゼンノイズ信号の波形解析や衝撃圧縮試験によるクロスヘッド速度依存性評価を実施することで、荷重負荷によって誘起されるバルクハウゼンノイズの発生機構とその要因について議論する。これらの知見から、平均応力(静的荷重)の検出を目的とした従来の励磁式バルクハウゼンノイズとは異なり、突発的な不連続に作用する応力に対して非励磁式(パッシブ)で検出可能な応力センシングに向けた定量的な評価手法の確立を目指す。

5.2 応力誘起による磁壁挙動

強磁性体内における磁区構造は、原子のマイクロな磁気モーメント(スピンの)配列により形成される。その配列遷移領域は磁壁と呼ばれ、スピンの交換相互作用や結晶磁気異方性定数によって決定される[26]。これまでに、ナノワイヤにおける外部磁場や電流印加による磁壁の移動が報告[27-29]されている。これらの磁壁挙動はワイヤ形状[30]や印加磁場条件[31]の影響も受けることが知られている。

近年では、高磁歪(200ppm) FeGa 系合金ナノワイヤにおいて、荷重負荷による磁壁移動及びその位置・スイッチング制御[32]が報告された。さらに、磁歪圧電積層膜における歪みを介したマルチフェロイック機能を利用した磁壁移動[33]も確認されている。これらの磁壁挙動に寄与する一

因として、一軸方向の応力勾配が挙げられ、マイクロマグネティクスシミュレーション[34]による整合性も確認される。

しかし、上記の報告は全てナノワイヤー素材を用いた研究成果であり、マイクロオーダー以上の線径を有する素材での磁壁移動は報告されていない。これらの結果は、結晶のスケール拡大により、多結晶体および磁壁の複雑さが増すからであると考えられる。

従来のバルクハウゼンノイズと新たに提案するバルクハウゼンノイズの特徴と検出システムの概念図を **Fig. 5-2** に示す。本提案の計測システムにより、機械・構造部材に連続的に作用する実際の荷重負荷のうち、平均応力である静的荷重と、衝撃的かつ不連続に作用する応力である動的を分離することが可能となる。更に、本磁歪材料の高いキュリー温度 ($T_c \sim 965^\circ\text{C}$) [35] を考慮すると、熱的・力学的負荷の大きい土木系インフラ分野などでの特異な環境下でリアルタイムな応力状態管理・経年劣化診断を実現する次世代の基盤技術となることが大いに期待できる。さらには、従来は極めて困難視されていた、マイナー則に基づく疲労予測や劣化損傷評価に対して、応力誘起型バルクハウゼンノイズを利用した手法を検討することで、電源不要かつ非接触な革新的な材料診断技術への発展性も期待できる。

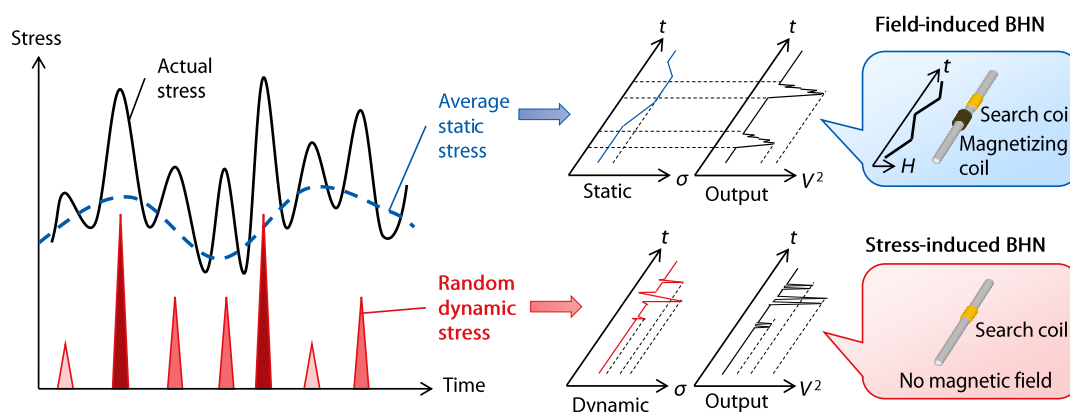


Fig. 5-2 Conceptual diagram of the features and sensor system of conventional field-induced BHN and newly proposed stress-induced BHN.

5.3 実験方法

5.3.1 磁歪複合材料

今回作製した磁歪複合材料の外観図を **Fig. 5-3** に示す。複数本の磁歪ワイヤをエポキシ樹脂 (EPO-TEK) に埋め込んだ磁歪複合材料を作製した。磁歪合金ワイヤを一方方向に配列するように固定し、母材と硬化剤を 100:45 の比率で混ぜ合わせた混合材を型に流し込んだ。その後、室温にて 24h 静置することで硬化させた。これらの複合材の寸法は、直径 11 mm 程度 (断面積 $A=95.0 \text{ mm}^2$ (うち、磁歪合金 $A=4.71 \text{ mm}^2$)) であり、ファインカッターを用いて 17~18 mm 程度の長さとなるように切断した。さらに、本複合材料は、バイアス磁場により誘起された磁気ひずみにより、磁歪合金と界面とのプレストレス効果により圧縮方向に残留応力が付与され、逆磁歪効果による大きな磁束密度変化を誘導することが期待される。

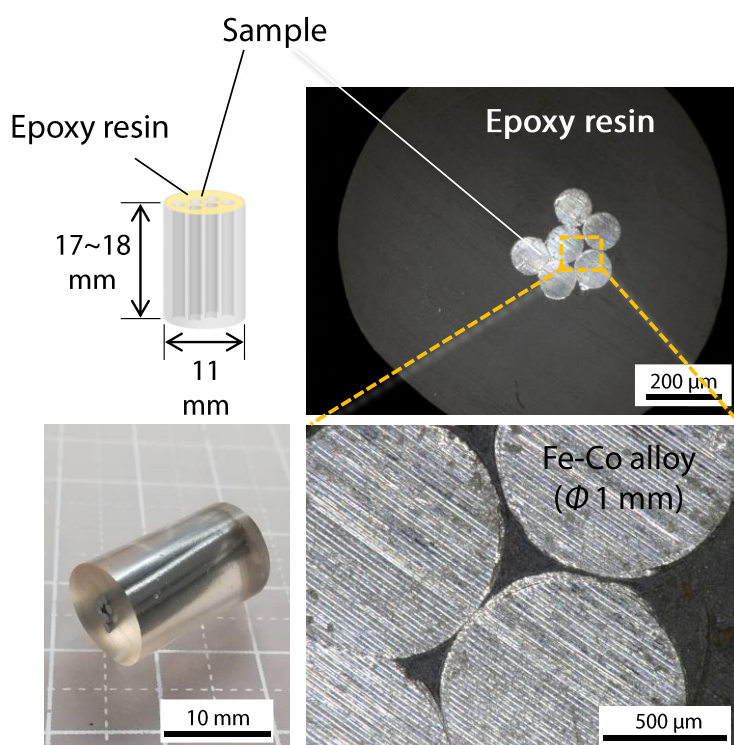


Fig. 5-3 Schematic diagram and photograph of the sample prepared this time.

Table 5-1 Material parameters of samples in this study.

Sample	Number of wire (-)	Length, l (mm)	Diameter (mm)	RVE (representative volume element)	Young's modulus, E (N/mm ²)	Saturation magnetostriction at 5 kOe, λ_s (ppm)	Magnetic susceptibility, χ (emu/g/Oe/)
Pure Fe	6	17.1	11	0.050	206	11.0	0.348
As-drawn Fe-Co	6	17.3	11	0.050	184	133	0.249
620°C-FC Fe-Co	6	17.8	11	0.050	186	117	0.313

磁歪合金には、近年著者たちの研究グループで開発された直径 1 mm の $\text{Fe}_{30}\text{Co}_{70}$ 合金の引抜き加工ワイヤ材料[17]を用いた。これらの磁歪合金ワイヤは、高いアスペクト比(長さ/径)を有しているため、低反磁界係数や強い磁気結晶異方性を有していることが特色である。材料内に残存する格子歪みや磁歪定数の影響を明らかにするため、 $620^{\circ}\text{C}/5\text{h}$ での焼鈍し処理材および、比較材として純鉄ワイヤ合金の計 3 種類の試料を用意した。これらの材料の寸法及び磁気・磁歪特性を **Table 5-1** に示す。熱処理を行う際には、真空封入後アルゴン雰囲気下にて電気炉を用いて行われた。本磁歪ワイヤは、 $[110] \langle 001 \rangle$ に配向した集合組織を有しており、試料の長手方向に磁化容易軸がほぼ一致することを確認している。

5.3.2 出力電圧測定

Fig. 5-4 に試験方法と計測システムを示す。衝撃圧縮試験には島津製作所製のオートグラフ (AG-50 kNXD)を用いて実施した。最小荷重 $P_{\min} = 200 \text{ N}$ 、最大荷重 $P_{\max} = 1000 \text{ N}$ の台形波形の圧縮荷重を 3 サイクル作用させた。この時のクロスヘッドは、変位により制御され、その速度は $d\delta/dt = 0.05 \text{ mm/s}$, 0.1 mm/s , 0.5 mm/s , 1.0 mm/s , 2.0 mm/s , 3.0 mm/s であった。このとき、複合材料に作用する平均応力は、実際に計測した 420°C -FC 材に実施した試験片の応力ひずみ曲線から算出すると、試験片に作用する応力速度は、 $(d\sigma/dt)_{\text{load}} = 99.0 \times d\delta/dt - 0.889$ 、除荷時の応力速度は、 $(d\sigma/dt)_{\text{unload}} = -34.6 \times d\delta/dt - 12.8$ であり、線形性の高い応力速度で作用していることを確認している。出力電圧は、荷重の負荷時と除荷時で異なっており、本報告では、負荷範囲から算出した BHN 実効値を用いて作用される応力の評価を行った。

出力電圧を評価する際には、磁歪複合材料は土台(鉄塊)の上に置かれたバイアス磁場用のネオジム磁石 ($\Phi 10 \text{ mm}$)の上に設置した。このとき、バイアス磁場強度の調整及び、試験片の磁気回路を遮断するために、土台とネオジム磁石およびネオジム磁石と試料の間にアルミニウム ($\Phi 10 \text{ mm}$)を用意した。バイアス磁場 B_0 は、KANETEC社製のガウスメータ(TM-801)を用いて 80 mT 程度であることを確認しており、磁歪合金の磁化過程は **Fig. 5-1** で示す飽和領域にあると考えられる。また、試験片上部にアルミニウムを設置することにより、治具との接触面の高さ調節を行った。

発電出力電圧 V_{out} は、試験片周囲に固定した、断面積 113 mm^2 、2500 ターン、長さ 36 mm 、抵抗 106Ω の検出コイルとデータロガー(キーエンス社製、NR-600 及び NR-HA08)を用いて検出した。このときのサンプリングデータは 10 ms であった。更に、バルクハウゼンノイズ出力電圧 V_{BHN} は、同一の検出コイルを用いて検出した誘導起電圧を、NF社製の低ノイズアンプ(LI-75A)により100倍増幅し、NF社製のパスバンドフィルター(FV-628B)を用いて周波数域 $100\text{-}1000\text{Hz}$ の信号を抽出して計測した。このときのサンプリングレートは 50 kHz であった。

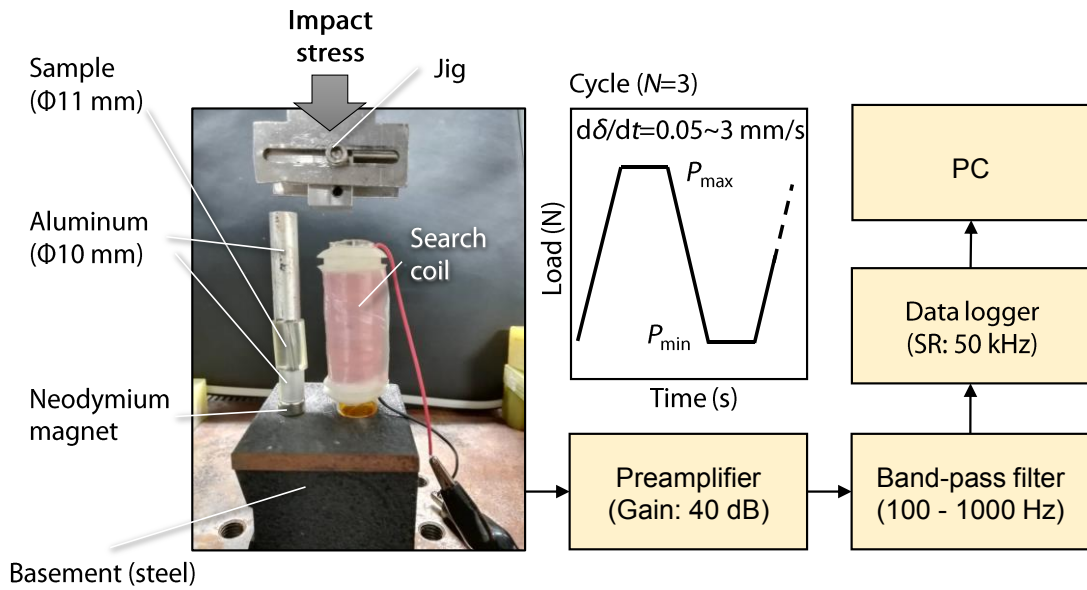


Fig. 5-4 Photograph and program of compression impact test and block diagram of the measurement system.

更に、磁歪材料への作用する応力速度依存性を検証するために、バルクハウゼンノイズ信号を高速フーリエ変換 (FFT) による波形解析から、周波数軸波 $X(f)$ を用いて荷重負荷時に発生する BHN 実効値 V_{BHN}^{RMS} を算出した。

$$V_{BHN}^{RMS} = \frac{\sqrt{|X(f)|^2}}{\Delta f}, \quad (5-1)$$

このとき、

$$X(f) = \int_0^{1000} x(t) e^{-2j\pi ft} dt \quad (5-2)$$

得られた発電出力電圧および BHN 出力電圧の 3 回分の波形から加算平均を行うことで特性評価を実施した。

5.4 実験結果

5.4.1 応力誘起型 BHN の応答特性

磁歪合金の 420°C-FC 材および純鉄材料に対して変位速度 $d\delta/dt = 2.0 \text{ mm/s}$ で行った衝撃圧縮試験の結果の一例を **Fig. 5-5** に示す. 上から順に, 荷重 P , 変位 s , 発電出力電圧 V_{out} , 増幅および周波数カットしたバルクハウゼンノイズの波形をそれぞれ示している. 両試験片のそれぞれのパラメータのスケールは同じである.

圧縮応力の作用により発電出力電圧は正を示し, 一方で, 除荷中には負を示すことがわかる. また, バルクハウゼンノイズ出力電圧は, 発電出力電圧の変化が生じる間にパルスのノイズが発生しているため, 磁束密度変化に伴って発生する出力信号であることがわかる. 一部の出力波形に関しては, 荷重の変化率が 0 になったときに発生していることから, 応力状態が安定化したことにより, 衝撃荷重によってばらばらになった磁区内の磁気モーメントが, バイアス磁場によって, 同一方向に戻っていくことに発生するマイクロな磁壁移動(磁束密度変化), あるいは, 万能試験機の機械的振動であると考えられる.

一方で, 純鉄材料へ行った衝撃圧縮試験では, わずかに発電出力電圧が確認できるものの, バルクハウゼンノイズはバックグラウンドのノイズに埋もれてほとんど確認することができなかった. これは他の応力速度での衝撃圧縮試験でも同様な結果が得られた. つまり, 同程度の磁化(200 emu/g 付近)を有する純鉄において, SI-BHN が確認できなかったため, 逆磁歪効果が大きな磁歪合金においてのみ発生する現象であることが確認できる.

これらの結果の示すように, 比較的綺麗な発電出力波形を示すこと, 純鉄での出力電圧を確認できないことから, 材料自体や材料下に設置した永久磁石, さらにはコイル動くことによる電磁誘導の影響は完全に無視できているといえる. もしくは, 影響があったとしてもバックグラウンドのノイズに埋もれる程度の小さなものである. また, バルクハウゼンノイズ出力電圧は, 逆磁歪効果により誘導される高周波(100-1000Hz)な微小な信号であり, ある程度大きな発電出力電圧, つまりマクロな磁束密度変化(透磁率変化)の誘導によって付随的に発生する信号であることが明らかになった.

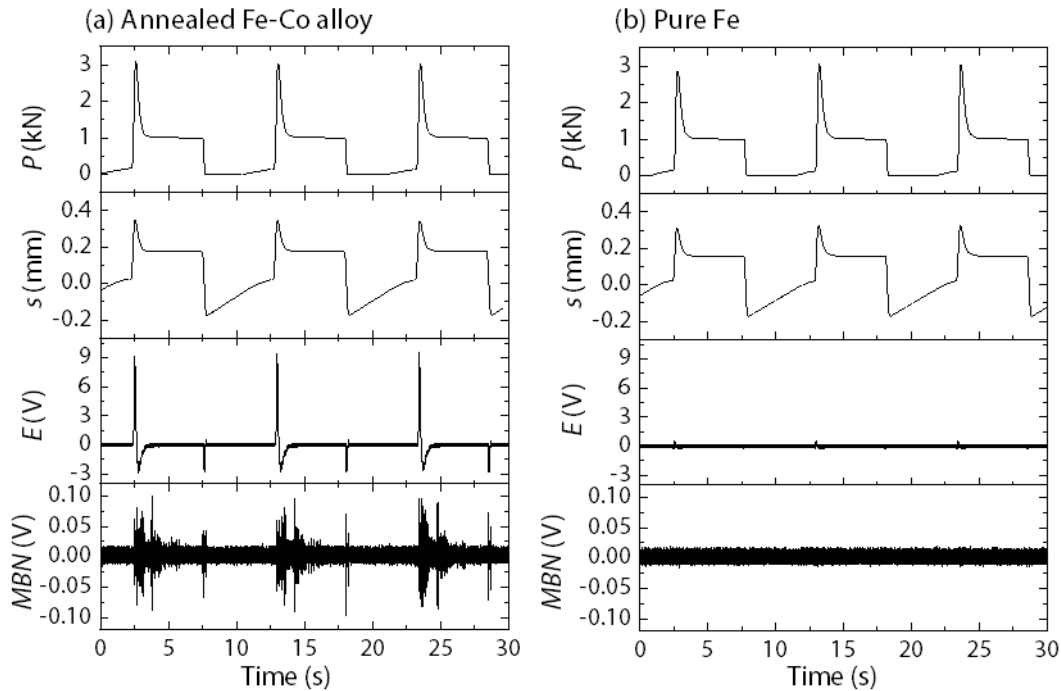


Fig. 5-5 Stress-induced Barkhausen noise (SI-BHN) waveform observed in (a) Annealed Fe-Co magnetostrictive alloy and (b) pure iron.

5.4.2 クロスヘッド速度依存性

次に、熱処理を施した磁歪材料に対してクロスヘッド速度を $d\delta/dt$ を 0.05 から 3 mm/s まで変化させたときに発生したバルクハウゼンノイズ信号の波形を Fig. 5-6 に示す。Fig. 5-6a は 1 サイクル（負荷および除荷過程）における荷重 P を、Fig. 5-6b はバルクハウゼンノイズ出力電圧の 2 乗 (V_{BHN}^2) を示している。この時、青色のエリアで示した領域が負荷過程 (0.5, 1, 2, 3 mm/s の場合は戻り緩和過程を含む)、赤色のエリアで示した領域が除荷過程を示す。

この結果により、青色及び赤色の領域で示したバルクハウゼンノイズが応力速度に比例して大きくなっていることがわかる。青色のエリア直後のノイズは出力電圧が変化しないことから、現地点では先の予測要因として説明しているように外的な不明ノイズであると考えられる。また、クロスヘッド速度が 0.05 mm/s および 0.1 mm/s のときは、バルクハウゼンノイズはほぼ発生していないため、磁壁移動するのに必要なバルクハウゼンノイズ発生に閾値が存在すると考えられる。

5.4.3 応力感度

Fe-Co 磁歪合金の引抜き材および熱処理材, 更に比較材として純鉄材に対して行った衝撃圧縮試験によるバルクハウゼンノイズ計測およびその応力速度依存性の検証を行った. **Fig. 5-7** に, その荷重の負荷時に検出したバルクハウゼンノイズの FFT 解析結果から実効値を算出し, その値を応力速度ごとの変化を示した. その結果, これらの応力速度依存性の線形性は良好であることがわかる.

また, 今回のバルクハウゼンノイズの材料ごとの感度(傾き)を, 発電出力電圧の速度依存性と併せたものを **Fig. 5-7b** に示す. この結果から, 材料の長手方向への飽和磁歪量が 11 ppm であった純鉄では, バルクハウゼンノイズがほとんど検出できず, 発電出力電圧のほうが感度は優れている一方で, 磁歪材料の加工まま材や 420°C-FC 材においては, 発電出力電圧の応力に対する感度よりもバルクハウゼンノイズのそれが若干であるが優れていることから, 有意に感度が高いことを示すことが明らかとなった.

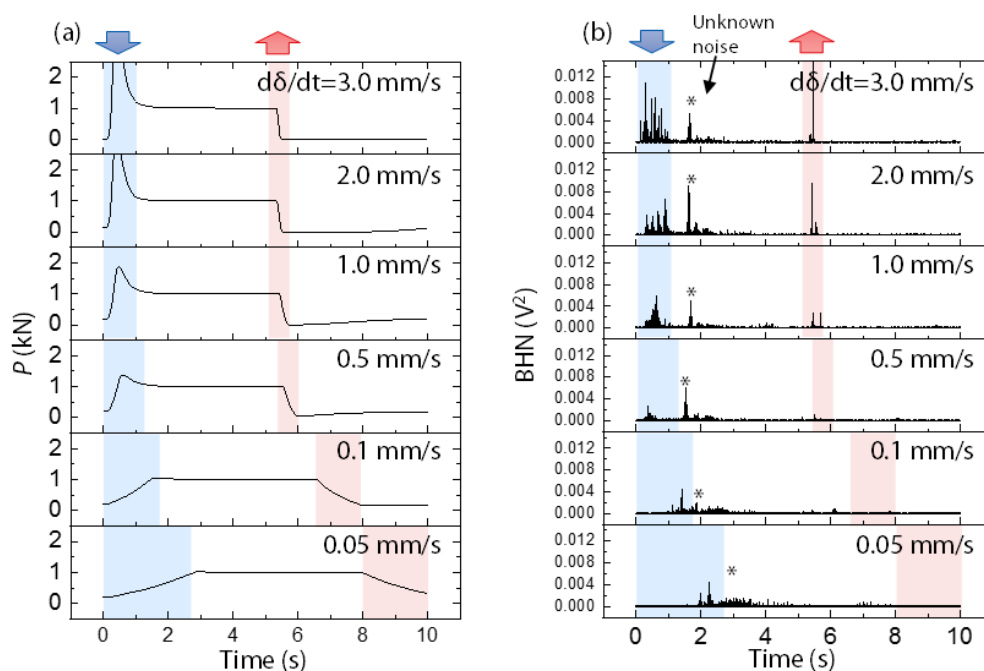


Fig. 5-6 Crosshead speed dependence of (a) applied load (kN), (b) SI - BHN output voltage (V^2) for Fe-Co magnetostrictive alloy.

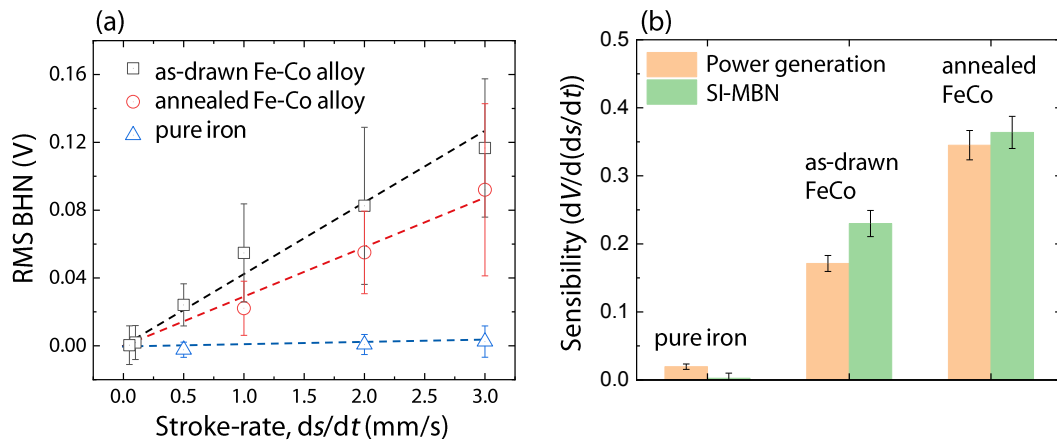


Fig. 5-7 Crosshead speed dependence of (a) the RMS (root-mean-square) value of Si-BHN and (b) its sensibility for annealed Fe-Co alloy, as-drawn Fe-Co alloy, and pure iron.

5.5 考察

5.5.1 BHN の応答性に影響する材料パラメータ

今回使用した試験片の基礎物理特性として、マクロな磁壁易動度を示す磁化率 χ および、歪みエネルギーの仕事量に換算されるヤング率 E と 2 乗飽和磁歪量 λ^2 の積 (=出力電圧に寄与する材料パラメータ $\chi^*E\lambda^2$) を導入する. 本試料の磁気特性および磁歪特性は VSM 及び一軸型のひずみゲージを用いて測定し、ヤング率は共振法により算出した. 純鉄のヤング率に関しては参考論文[36]から引用した.

Fig. 5-8 に、これらの値とバルクハウゼンノイズの応力感度の相関性を示した. 本来であれば、バイアス磁場による初期状態の磁歪量を考慮すべきであるが今回は磁歪ワイヤ/樹脂コンポジットなので、初期磁気ひずみは樹脂との複合化によるプレストレス効果により残留応力が印加され、磁束密度変化を促進すると解釈できる.

その結果、今回使用した試験片の材料パラメータと発電出力電圧およびバルクハウゼンノイズ出力電圧は良好な線形特性に有するため、両者の相関性を示すことができたこと. この関係を元に、材料パラメータから発電性能に加え、応力感度の見積もりが可能となることから、金属組織学的な視点からの発電・センサ材料開発に大きく貢献すると考えられる.

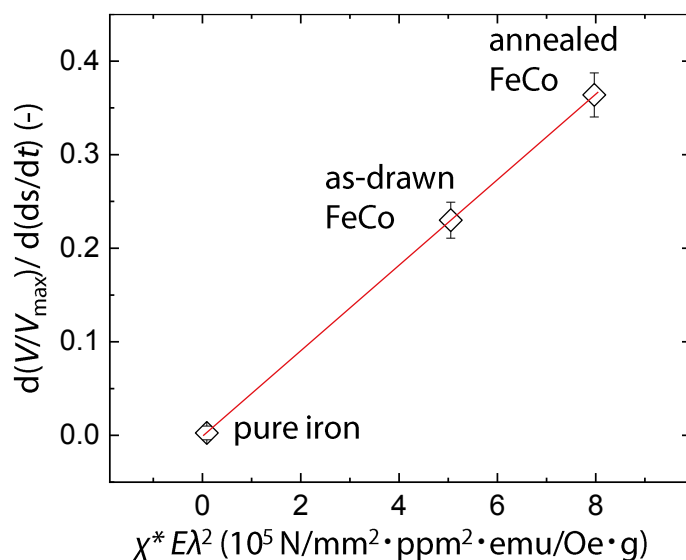


Fig. 5-8 Correlation between sensitivity and DW mobility parameter of SI-BHN.

5.5.2 SI-BHN の発生機構と特徴

以上の結果を踏まえて、SI-BHN の発生原理の考察を行う。Fig. 5-9 に、詳細な応力の作用に伴うバルクハウゼンノイズの出力波形(赤色)を示す。先ほども説明したように、荷重の負荷時およびその緩和過程においてバルクハウゼンノイズが発生していることがわかる。これらのフェーズを I~V に分けて表示した。

I. 荷重負荷が生じていない領域

II. 治具が試料に接触し、荷重負荷やひずみが発生するが、材料内の磁化が変化していない領域

III. 荷重負荷が生じており、その中間あたりで応力速度の最大値を迎える。

IV. 荷重負荷が最大値を向かえ、一定の発生応力まで緩やかに減少している

V. 荷重負荷の値が一定の値でキープされている領域

これらの領域において、発電出力電圧およびバルクハウゼンノイズ出力電圧を検出しているのは、領域 III および 領域 IV である。

さらに、Fig. 5-9c に材料の磁化過程およびその緩和過程における磁氣的性質に基づく BHN の発生モデルの模式図を示した。領域 I では、バイアス磁場により、材料内の磁化はほぼ飽和している。荷重負荷により最もひずんだ地点(時間)にて磁化は最も低くなり、応力緩和が進むにしたがって、磁化はバイアス磁場に応じて、長手方向に揃っていくことが予想される。これらの現象をミクロな視点から捉えてみると、ほぼ飽和された状態から、応力が作用されることによって、磁区の発生及び磁壁の移動が生じる。領域 III において、バイアス磁場により揃っている磁気モーメントがばらばらな方向を向く。その際に発生する磁束密度変化は高速かつ不連続であるため、磁気モーメントの揺らぎ、あるいは磁壁の大きなジャンプを伴う移動に伴って発生するバルクハウゼンノイズであると考えられる。一方、領域 IV において、荷重負荷が緩和されるにつれて、バイアス磁場により磁化が進められるため、比較的ゆっくりで滑らかな磁化過程となるため、磁壁移動に伴うバルクハウゼンノイズが前者よりも強度が高く発生すると予想される。

また、本研究で適用したバイアス磁場の強度は 80 mT 程度であり、磁気および磁歪特性共に十分飽和することを確認している。そのため、このバイアス磁場の強度が領域 II の保持時間に大きく寄与することが想定されると共に、領域 III 及び IV における発電出力電圧及びバルクハウゼンノイズ出力電圧の感度にも影響すると考えられる。また、成田らの報告[37]では、磁歪材料自体にプレストレスを負荷した状態で樹脂を埋める磁歪複合材料での試験が行われ、最適な印加残留応力が存在していることが示されている。そのため、材料自体に付与する残留応力及び、バイアス磁場の強度に関する計測システム設計は、バルクハウゼンノイズの発生に関する時間的感度(領域 II の短縮)と応力感度(領域 III 及び IV)における力学的作用)に重要な役割を示すことが示唆される。

逆磁歪効果に誘起されるマイクロな磁壁移動によって発生するバルクハウゼンノイズを利用した応力センサは、従来、検出できなかった発生応力を高感度に検出することが可能なため、応力強度と頻度の異なる実情環境での利用でのマイナー則に基づく疲労予測などへの適用範囲を拡大させるポテンシャルを大いに有している。更に、磁歪合金の逆磁歪効果における磁束密度変化は、振動発電で知られているようにその出力特性は材料因子、特に、磁区構造や金属組織の性状(パラメータ)に大きく依存する。そのため、本研究で取り組む応力誘起バルクハウゼンノイズはコイルを併設することによる、磁歪材料表面から磁束漏れが検出し評価を行う。これらの発生原理が相似していることから、磁歪材料の応力状態や劣化損傷を随時モニタリングすることにより、発電性能の劣化やその予測モデルの構築に貢献する可能も秘めている。

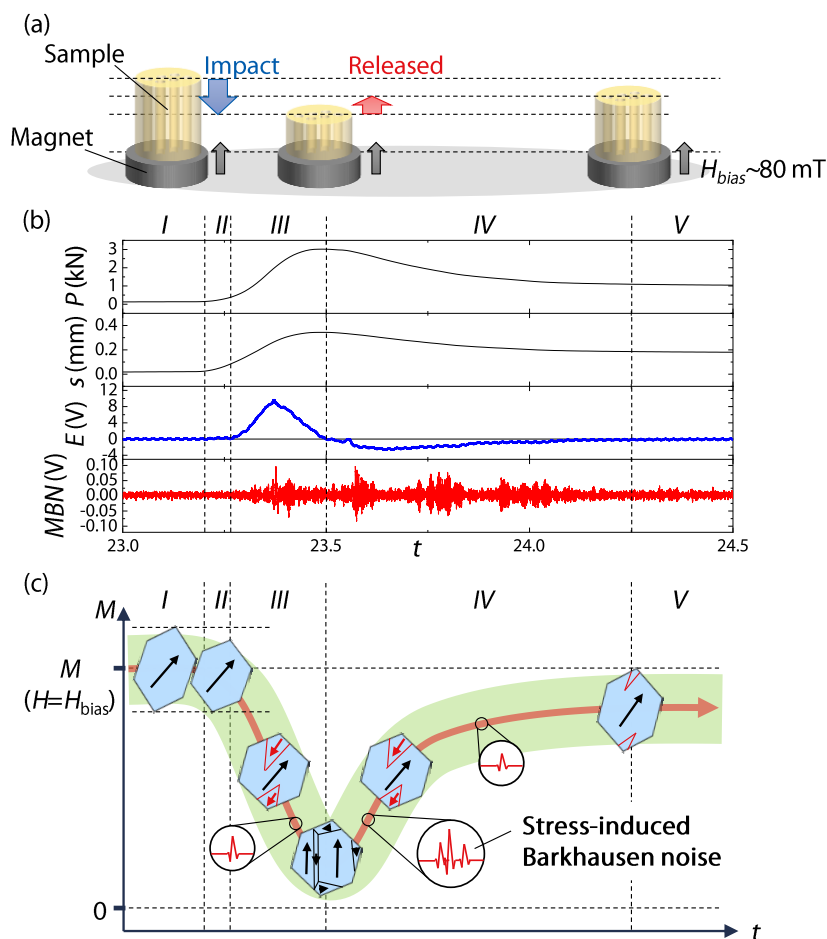


Fig. 5-9 (a) Relationship between impact stress and strain in magnetostrictive composite material and (b) SI - BHN output characteristics and (c) Schematic diagram of the mechanism of magnetic domain wall behavior and the SI-BHN generation in annealed Fe - Co alloy.

5.6 本章のまとめ

本研究では、大磁歪を示す新 Fe-Co 多結晶合金に、衝撃荷重を加えることで誘起される磁束密度変化、特に、磁区発生や磁壁の不連続移動で発生する、バルクハウゼンノイズを抽出・解析することで、その応答特性および応力速度依存性の検証を行った。

その結果、圧縮荷重の負荷過程及び除荷過程でバルクハウゼンノイズの検出に成功し、荷重負荷速度の増加に伴い、そのノイズ出力電圧は増大することを確認した。この応力誘起によって発生したバルクハウゼンノイズは、同様な手法を用いても純鉄材料では検出することが出来なかったため、逆磁歪効果により誘導されたマイクロな磁壁移動や磁気モーメントの揺らぎに起因すると考えられる。更には、マイクロな磁気信号であるバルクハウゼンノイズを利用した応力感度が、マクロな磁束密度変化である発電出力電圧のそれよりも優れていることを明らかにした。

以上の研究成果より、電源不要で非接触な計測条件で SI-BHN の検出・解析が可能であることから、機械構造体の各部位の受ける変動荷重の把握にも使用に供することが出来る、本磁歪材料を用いた従来にない革新的なダイナミック応力センサやひずみ損傷量センサなどへの適用範囲の拡大が予想される。更に、本研究成果は逆磁歪効果を利用したマクロな透磁率変化でなく、応力誘起に伴うマイクロな磁壁の動的移動を観測した初めての事例であり、磁化ダイナミクスの力学的作用に関する新たな学術的展開も大いに期待できる。

参考文献 5

1. R. Teti, K. Jemielniak, G. E. O'Donnell, D. A. Dornfeld, Advanced monitoring of machining operations, *CIRP Annals - Manufacturing Technology* 59, 2 (2010), 717-739.
2. S. K. U. Rehman, Z. Ibrahim, S. A. Memon, M. Jameel, Nondestructive test methods for concrete bridges: A review, *Construction and Building Materials* 107 (2016), 58–86.
3. J. Hwang, J. Lee, S. Kwon, The application of a differential-type Hall sensors array to the nondestructive testing of express train wheels, *NDT&E International* 42 (2009), 34–41.
4. C. Morón, C. Cabrera, A. Morón, A. García and M. González, Magnetic Sensors Based on Amorphous Ferromagnetic Materials: A Review, *Sensors* 15 (2015), 28340-28366.
5. L. Jogschies, D. Klaas, R. Kruppe, J. Rittinger, P. Taptimthong, A. Wienecke, L. Rising, and M. C. Wurz, Recent Developments of Magnetoresistive Sensors for Industrial Applications, *Sensors (Basel)* 15, 11 (2015), 28665–28689.
6. Morón, C.; Garcia, A. Giant magneto-impedance in nanocrystalline glass-covered microwires. *J. Magn. Magn. Mater.* (2005), 290–291, 1085–1088.
7. V. Zhukova, M. Ipatov, A. Talaat, J. M. Blanco, M. Churyukanova, S. Taskaev, A. Zhukov, Effect of stress-induced anisotropy on high frequency magnetoimpedance effect of Fe and Co-rich glass-coated microwires, *Journal of Alloys and Compounds* 735 (2018), 1818-1825.
8. Y. Furuya, T. Okazaki, C. Saito, and M. Shimada, Magnetostrictive Galfenol Torque Sensor Devices for Smart by-Wire Steering System in Automobile Technology, *Adv. Sci. Tech.* 67 (2010), 74–81.
9. S. Yamaura, Y. Furuya, and T. Watanabe, The effect of grain boundary microstructure on Barkhausen noise in ferromagnetic materials, *Acta Mater.* 49, 15 (2001), 3019–3027.
10. D. Oriwol, E.-R. Carl, A.N. Danilewsky, L. Sylla, W. Seifert, M. Kittler, and H.S. Leipner, Small-angle subgrain boundaries emanating from dislocation pile-ups in multicrystalline silicon studied with synchrotron white-beam X-ray topography, *Acta Mater.* 61 (2013), 6903–6910.
11. M. Vaidhianathasamy, S.V. Aidyanathan, B. Raj, On the influence of tempered microstructures on magnetic Barkhausen emission in ferritic steels, *Philosophical Magazine* A77, 6 (1998).

12. A. Sorsa, K. Leiviskä, S. Santa-who, T. Lepistö, Quantitative prediction of residual stress and hardness in case-hardened steel based on the Barkhausen noise measurement, *NDT & E international* 46, 1 (2012), 100-106.
13. G. Durin and S. Zapperi, Scaling Exponents for Barkhausen Avalanches in Polycrystalline and Amorphous Ferromagnets, *Phys. Rev. Lett.* 84 (2000), 4075-4078.
14. M. J. Sablik, and B. Augustyniak, The effect of mechanical stress on a Barkhausen noise signal integrated across a cycle of ramped magnetic field, *J. Appl. Phys.* 79, 963 (1996).
15. C. G. Rothea, J. Chicois, R. Fougères, and P. Fleischmann, Characterization of pure iron and (130 ppm.) carbon–iron binary alloy by Barkhausen noise measurements: study of the influence of stress and microstructure, *Acta Mater.* 46, 14 (1998), 4873–4882.
16. A. H. Alavi, H. Hasni, P. Jiao, W. Borchani, N. Lajnef, Fatigue cracking detection in steel bridge girders through a self-powered sensing concept, *Journal of Constructional Steel Research* 128 (2017) 19–38.
17. T. Yamazaki, T. Yamamoto, Y. Furuya, and W. Nakao, Magnetic and magnetostrictive properties in heat-treated Fe-Co wire for smart material/ device, *Mech. Eng.* 5, 2 (2018).
18. S. Yamaura, T. Nakajima, T. Satoh, T. Ebata, and Y. Furuya, Magnetostriction of heavily deformed Fe–Co binary alloys prepared by forging and cold rolling, *Mat. Sci. Eng. B* 193 (2015), 121–129.
19. I. Hasif, T. Kubota, M. Matsumoto, S. Yamaura, and Y. Furuya, Heat Treatment Effect on Magnetization and Magnetostriction in Heavily Rolled Fe₃₀Co₇₀ Alloy Thin Plate, *Japan Soc. Appl. Electromag. Mech.* 26-1 (2018), 250-255.
20. T. Yamazaki, Y. Furuya and W. Nakao, Experimental evaluation of domain wall dynamics by Barkhausen noise analysis in Fe₃₀Co₇₀ magnetostrictive alloy wire, *J. Magn. Mater.* accepted (2 November 2018).
21. M. Vashista and V. Moorthy, Influence of applied magnetic field strength and frequency response of pick-up coil on the magnetic barkhausen noise profile, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 345 (2013), 208-214.
22. M. Blaow, B. A. Shaw, Magnetic Barkhausen Noise Profile Analysis: Effect of Excitation Field Strength and Detection Coil Sensitivity in Case Carburized Steel, *Materials Sciences and Applications* 5, 5 (2014), 258-266.
23. D.C. Jiles, L. Suominen, Effect of surface stress on Barkhausen effect emissions: model prediction and comparison with x-ray diffraction studies, *IEEE Transactions on Magnetics* 30, 6 (1994), 4764-4766.

24. H. Hauser, Energetic model of ferromagnetic hysteresis: Isotropic magnetization, *J. Appl. Phys.* 96, 2753 (2004).
25. H. Sakamoto, M. Okada, and M. Homma, Theoretical analysis of Barkhausen noise in carbon steels, *IEEE Trans. Magn.* 23 (1987), 22–36.
26. Chikazumi, S. *Physics of Ferromagnetism* (Oxford Univ. Press, New York, 1997).
27. D. Atkinson, D. A. Allwood, G. Xiong, M. D. Cooke, C. C. Faulkner, and R. P. Cowburn, *Nat. Mater.* 2, 85 (2003).
28. M. Hayashi, L. Thomas, C. Rettner, R. Moriya, Y. B. Bazaliy, and S. S. P. Parkin, Current Driven Domain Wall Velocities Exceeding the Spin Angular Momentum Transfer Rate in Permalloy Nanowires, *Phys. Rev. Lett.* 98, 037204 (2007).
29. Y. Nakatani, A. Thiaville, and J. Miltat, Faster magnetic walls in rough wires, *Nat. Mater.* 2, 521 (2003).
30. M. T. Bryan, T. Schrefl, and D. A. Allwood, Dependence of Transverse Domain Wall Dynamics on Permalloy Nanowire Dimensions, *IEEE Trans. Magn.* 46, 1135 (2010).
31. A. Kunz and S. C. Reiff, Enhancing domain wall speed in nanowires with transverse magnetic fields, *J. Appl. Phys.* 103, 07D903 (2008).
32. M. T. Bryan, J. Dean, and D. A. Allwood, Dynamics of stress-induced domain wall motion, *PHYSICAL REVIEW B* 85, 144411 (2012).
33. J. Dean, M. T. Bryan, T. Schrefl, and D. A. Allwood, Stress-based control of magnetic nanowire domain walls in artificial multiferroic systems, *Journal of Applied Physics* 109, 023915 (2011).
34. M. T. Bryan, S. Bance, J. Dean, T. Schrefl, and D. A. Allwood, Transverse and vortex domain wall structure in magnetic nanowires with uniaxial in-plane anisotropy, *J. Phys.: Condens. Matter.* 24, 024205 (2012).
35. R. Sundar, S. Deevi, Soft magnetic FeCo alloys: alloy development, processing, and properties, *Int. Mater. Rev.* 50 (2005), pp. 157-192
36. J. A. Benito, J. Jorba, J. M. Manero, A. Roca, Change of Young's modulus of cold-deformed pure iron in a tensile test, *Metallurgical and Materials Transactions A* 36, 12 (2005), 3317–3324.
37. F. Narita, Inverse Magnetostrictive Effect in Fe₂₉Co₇₁ Wire/Polymer Composites, *Advanced Engineering Materials*, 19 (2017) 1600586.

第 6 章

結論

6.1 統括

本研究は、磁歪材料において磁化過程で発生するバルクハウゼン効果に着目し、そのノイズ発生に関する磁壁の移動挙動と金属組織の相関性の解明を目的としたものである。特に、外部磁場や衝撃荷重により誘起されるバルクハウゼンノイズの応答特性を評価・解析することで、外力により発生する応力状態やひずみ、転位密度の定量的な評価手法を確立し、バルクハウゼンノイズを利用した全く新しい応力・ひずみ損傷センサを提案した。その結果を下記のように総括する。

(1) 本研究で用いる $\text{Fe}_{30}\text{Co}_{70}$ 合金の金属組織と磁気・磁歪特性の相関性の検証を行った。特に、組織パラメータとして結晶粒径と転位密度に着目した。磁壁移動の阻害要因となる結晶粒径の増大と転位密度の減少により、保磁力の減少(0.22 倍)と磁歪感受率の増大(3.5 倍)を示し、最大で 91.2 mJ/s の出力電力を示した。結晶粒の回復・再結晶に起因する転位や内部ひずみの消失により、磁歪を誘導する磁壁移動や磁化回転の抑制作用が軽減されたからであると考えられる。

(2) バルクハウゼンノイズの発生挙動に及ぼす弾性変形領域における格子ひずみの影響を検証した。まず、応力下で計測可能なバルクハウゼンノイズ検出システムを構築し、その発生機構の検討を行った。その結果、引張応力の増加に伴い、バルクハウゼンノイズ波形の低周波成分の増大を確認した。これは、今回、ピン止めサイトとして着目した結晶粒界において、応力の作用により磁壁が粒界を飛び越えるようなジャンピング挙動となることを示した。更に、バルクハウゼンノイズ実効値は応力範囲 $0\text{-}500 \text{ MPa}$ までの弾性領域において良好な線形増加を示した。その最大応力感度は 0.27 mV/MPa を示し、磁歪材料の飽和磁歪量に依存することを明らかにした。

(3) 塑性ひずみにより蓄積される損傷がバルクハウゼンノイズに及ぼす影響を評価した。中断試験により、最大 6.7%の塑性ひずみを付与した。X 線プロファイルより転位密度を算出し、バルクハウゼンノイズ実効値との相関性評価を行った。転位密度の増加に伴い、バルクハウゼンノイズ出力電圧は線形的に減少し、一定の損傷度でバルクハウゼンノイズが消失することを示した。そのバルクハウゼンノイズと転位密度の関係から、バルクハウゼンノイズが消失しない損傷領域でのひずみ損傷の推定が可能であることを示し、印加磁場速度の増加により、定量的に評価可能な損傷範囲が増大することを明らかにした。

(4) 衝撃荷重により誘起されるバルクハウゼンノイズの発生挙動を調査した。試験片に衝撃荷重が作用するようなエポキシ樹脂との円筒形磁歪複合材料を作製し、衝撃圧縮試験によるバルクハウゼンノイズの応答特性の評価・解析を行った。バイアス磁場下における圧縮応力の作用により発生したバルクハウゼンノイズは、磁化過程における逆磁区の発生とその磁壁移動に起因すると考えられる。更に、作用応力の速度増加に伴い、バルクハウゼンノイズの実効値は、線形的に増大することを示した。本手法を用いることで、磁歪材料中に発生する動的応力の定量評価が可能となることから、外部電源を必要としない応力モニタリング技術への展開が期待できる。

6.2 今後の展望

本研究の研究対象である Fe-Co 磁歪合金ワイヤは、強靱かつ大磁歪を有する引抜き多結晶合金であり、その金属組織制御により、磁気・磁歪特性や発電性能を飛躍的に向上した力センサ材料として注目される。特に、磁歪材料における磁化過程で発生する微視的なバルクハウゼン効果と金属組織との相関性を明らかにすることで、バルクハウゼンノイズ法へ適用、更には高い力学応答特性を有する材料設計指針の確立。本研究では特に、バルクハウゼン効果を利用した応力・ひずみ損傷センサを提案し、定量的な評価手法の確立を目指しつつ、外力を受けた際に発生する微小ひずみや応力がバルクハウゼンノイズに及ぼす影響を評価している。

磁歪材料の逆磁歪効果を利用した力センサは、大きな荷重負荷に耐えうる機械的特性および高い磁歪定数が要求され、従来の磁歪材料では到達し得なかった高い力学的負荷環境でのセンシング技術が可能となる。また、第 5 章で提案している変動荷重を測定可能なこのダイナミック応力センサは、荷重負荷により電圧が誘起されるため、エネルギーハーベスタ(振動発電)とセンサ・アクチュエータの各機能を同時に利用した、外部電源不要かつ非接触な新たなセンサデバイスの創出が期待できる。

第 5 期科学技術基本計画の折り返しを迎えた現在の科学技術戦略において、このようなスマート機能の統合化は、Society 5.0 を実現する上で必要不可欠な基盤技術となる。更に本研究では、SDGs(持続的な開発目標)の 7 番(:エネルギーをみんなに そしてクリーンに)と 9 番(:産業と技術革新の基盤をつくろう)への貢献が期待でき、社会に与えるインパクトは大きいといえる。具体的には、構造モニタリングやスマートグリッドに代表されるような分散型電源の確保とデータ収集用の各種センサを要求する次世代の電力・情報網の構築がそれらの重要な役割を担う。これらを実現することによって、多様かつ潜在的なニーズに対する需要予測や商品提案が可能となり、高効率・省エネルギー、更には安心・安全な社会の実現に近づけることができる。

新たなエネルギー供給手段としての振動発電や他の材料ではその信頼性が担保しきれないような高応力領域や高温環境下でのセンシング機能の需要は高い。磁歪材料や磁歪複合材料の用途は多岐に渡り、本研究で試みた微視的な視点からの磁歪効果やバルクハウゼン効果のメカニズム解明に関する基礎学理の構築は、工学的応用を見据えた上で重要な研究課題であるといえる。

本研究がこれらの一助となることを期待して、本論文の結びとさせていただきます。

付録

S1. Fe-Co 磁歪合金ワイヤにおける磁区構造・磁壁移動観察

S1.1 はじめに

本論文で着目してきたバルクハウゼンノイズは磁場印加に伴い生じる不連続な磁壁移動に起因すると考えられている。本研究ではバルクハウゼンノイズの計測システムを構築して、検出コイルに誘導された磁気パルスが重畳されたバルクハウゼンノイズ波形の解析を通して間接的に評価を行ってきた。しかしながら、磁壁挙動と金属組織との間で生じるピン止め効果やその相互作用を明らかにするためには、バルクハウゼンノイズの発生機構の基本的な情報である磁壁移動を直接観察して、併せて考察を行うことが非常に重要となる。これまでの研究では、バルクハウゼンノイズ波形の計測結果と磁区構造・磁壁移動とを比較検討した報告は少なく、Co 過剰域 Fe-Co 系合金、さらには、その強加工材における磁区構造の観察に関する報告はない。

本研究では、多数ある磁区観察手法のうちの磁気光学的手法を用いた磁気カー効果顕微鏡に着目して Fe-Co 合金の磁区観察を行う。

S1.2 理論

強磁性体ではひとりでに自発磁化が形成されているにも関わらず、必ずしも強く磁化していないのは、強磁性体の内部の多くは磁区 (magnetic domain) に分かれており、それらの磁区の自発磁化の向きが異なるからである。そのような予測は、先に挙げた 1907 年の P.Weiss の論文[1]で初めて指摘されている。その後、1919 年に Barkhausen は強磁性体の磁化が多くの不連続磁化に伴って発生するバルクハウゼン効果に起因することを発見している。この発見により、磁区と磁区の境界となる磁壁の移動速度の測定などを通して、磁区が存在が明らかなものとなってきた。

これまでの研究でこれらの磁区構造は異方性エネルギーや金属組織などから決定されることが報告されている。強磁性体における磁区構造の模式図は第一章の Fig. 1-17 に示した通りである。

無限に細長い強磁性体では、その方向に自発磁化が向いて、全てのスピンの平行に並んでいる状態が最も安定な状態であるが、有限な形の磁性体で、このような分布をとると、その表面に磁極が現れ、静磁エネルギー U_{mag} が増大する。このエネルギーはかなり大きいので、磁性体内部のスピンの波はその分布を変え、 U_{mag} を減らそうとする。その結果、スピンの平行性は失われ、交換エネルギー U_{ex} と磁気異方性エネルギー U_{ani} 、磁気弾性エネルギー U_{elas} などを増やすこととなる。そして安定なスピン分布は式(S1-1)に示すようにこれらのエネルギーの総和 U

$$U = U_{mag} + U_{ex} + U_{ani} + U_{elas} \quad (S1-1)$$

を極小にする条件で決まる。

次に、磁壁移動について述べる。本研究では引抜加工によるワイヤ材を使用するため、残留応力や加工ひずみが試料内部に存在すると考えられる。特に、残留応力は磁気特性に大きく影響するため、磁壁移動過程における残留応力の影響を考慮する必要がある。前述でも説明したが強磁性体の内部は、多く磁区に分かれている。その磁区と磁区の境界ではスピンは一方の磁区の磁化方

向から、他方の磁区の磁化方向に少しずつ向きを変えている。このスピンの向きの遷移層は磁壁やブロッホ壁(あるいはネール壁)と呼ばれる。磁壁中でスピンの向きが徐々に回転しているのはスピン間の交換エネルギーはその角度の 2 乗に比例しているため、急激に向きを変えると交換エネルギーを大きく増してしまうからである。磁性体の内部を磁壁が移動した場合、磁壁の位置によって内部エネルギーは変化する。このエネルギー変化の主因として Kondorsky[2]によって提案されたように残留応力の場所による変化であることが挙げられる。また、残留応力によっても影響を受ける。残留応力変化の波長 l が十分長ければ、式(S1-2)より磁気エネルギー γ は小さくなるので磁壁は非常に動きやすい。一方、波長が十分小さくなり、磁壁の厚さ以下になると残留応力 σ は磁壁内部で変化することになり、磁気エネルギー γ の場所による変化はかえって小さくなることが知られる。

$$\gamma = 2 \sqrt{A(K_1 - \frac{3}{2} \lambda \sigma_0 \cos 2\pi \frac{s}{l})} \quad (S1-2)$$

A: 交換相互作用の係数

特に、実際の強磁性体には多くの残留応力や欠陥・析出相が存在するため上記のような磁気エネルギーの変化は無視できない。そのようなエネルギー変化は磁壁を束縛し保磁力や初透磁率等の磁気特性に大きく影響してくる。磁壁を束縛する因子として、空孔、転移等様々であるが、束縛が強い場合は束縛点の間隔にのみ依存し、束縛の種類に関係しない。

S1.3 実験方法

S1.3.1 供試材

供試材には、引抜加工により柱状化した結晶粒を有する 420°C-FC 材(平均粒径:5-15 μm)を用いた。供試材を 2 cm 程度に切断し、試験片を樹脂に埋め込み、耐水研磨紙による断面出し・粗研磨、アルミナスラリーを用いたバフ研磨、コロイダルシリカを用いて鏡面研磨まで行った。

S1.3.2 磁気カー効果顕微鏡

室温大気圧でバルク体での測定可能な磁気カー効果顕微鏡(高倍率磁区観察装置 BH-780IP, NEOARK 社)を用いて測定を行った。測定原理としては、Fig. S1-1 に示すように磁気カー効果もしくはファラデー効果を利用して磁区を観察する。磁気カー効果とは、磁性体の表面に偏光が当たって反射するときその偏光面が回転するという現象である。そのため、検光板の検光軸を 1 つの反射光の偏光軸にあわせれば、その反射光は明るい像をつくり、他の磁区は暗い像を作るため、磁気モーメントの向きを撮影することが可能となる。

このような磁気光学的方法はコロイドのような媒体を使わないため、簡便かつ大気圧室温において磁区観察を行うことができるというメリットがある。一方で、観察できる倍率に限界を有する点がデメリットである。今回の観察では観察可能で最大の倍率である 20 倍の対物レンズを用いて観察を行った。

実験条件として、測定装置の試料台に試験片をセットし、装置上に備え付けてある鉄心ありのヘルツホルムコイルにより磁場印加を行い、以下のような手順で観察を行った。まずは、試験片に対して、減衰繰り返し磁場を印加することにより、消磁処理を行った。その後、500 Oe の磁場を印加し、バックグラウンド撮影、その後、25 Oe ごとに撮影を行った。得られた画像の濃淡調整を行うことにより磁区構造の観察を行った。

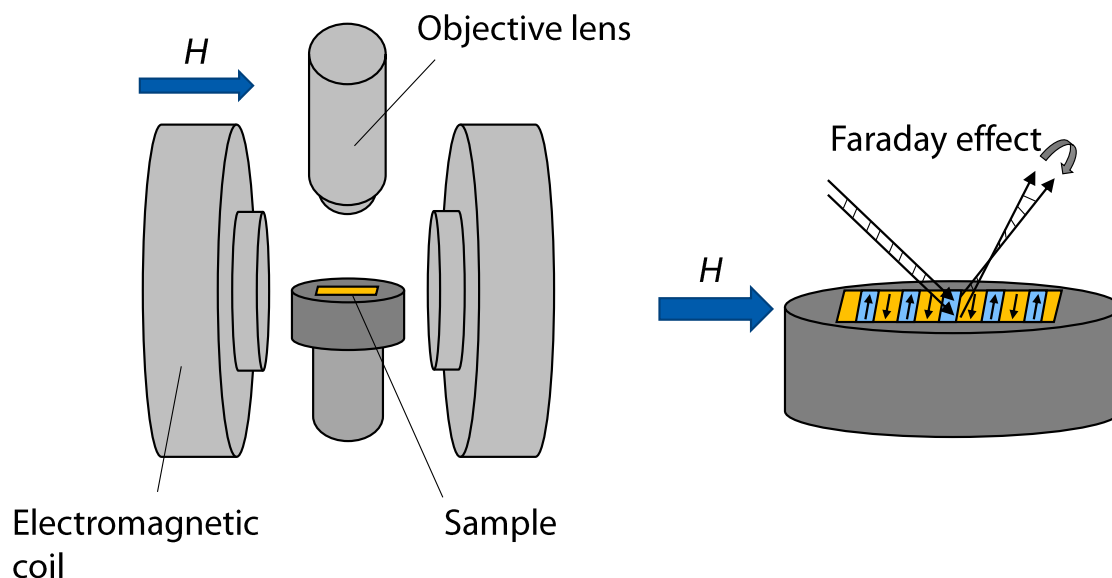


Fig. S1-1 Schematic illustration of magnetic domain structure observation using by Magnetic Kerr effect microscope.

S1.4 観察結果

本材料における磁気カー効果顕微鏡の磁区像とその移動の様子を **Fig. S1-2** に示した。 **Fig. S1-2** は柱状晶を有する 420°C-FC 材の引抜方向に対して垂直な面を観察した結果である。 **Fig. S1-2a** に示したように、比較的きれいに磁区構造と磁区の境界である磁壁の位置を確認できる。 **Fig. S1-2b** では、磁化が十分飽和している 500 Oe の磁場を印加した状態の画像を参照に、各磁場下での磁区画像を撮影した画像である。これ以上の倍率での観察が行えなかったため詳細は不明だが、磁壁移動が生じる際に、結晶粒界付近にて磁壁が留まるピン止め現象が生じていることが確認できた。このことから本研究で示した磁壁ダイナミクスの説明の裏づけが出来たのではないかと考得られる。

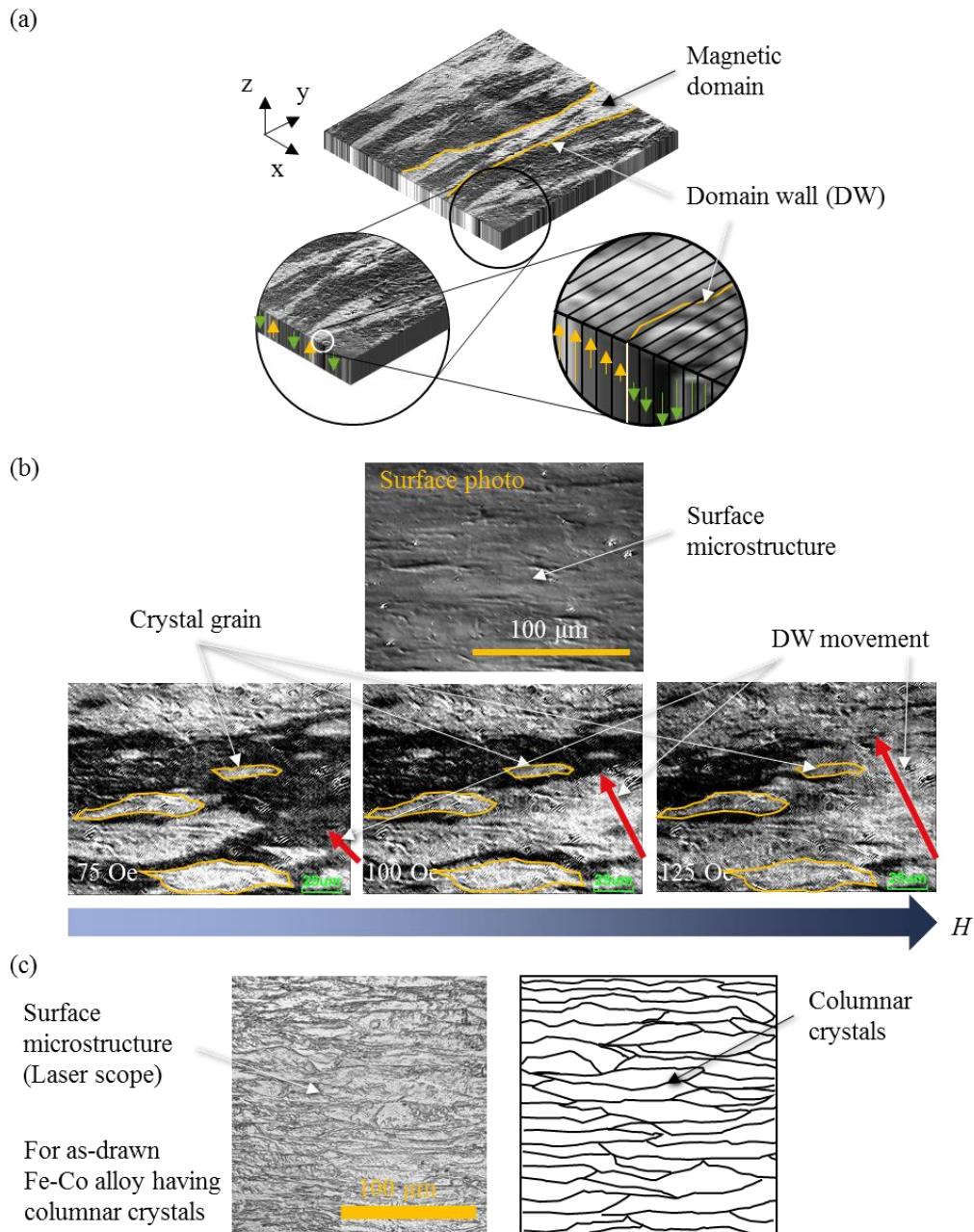


Fig. S1-2 Magnetic domain structure for the 420°C/24h annealed specimen obtained by Magneto-Optical Kerr Effect Microscope (BH-780IP, NEOARK Corporation, Japan). (a) Photographs of magnetic domain structure and the boundaries of the white and black area show the domain walls (DWs). (b) A surface photo of microstructure and the images of a magnetic domain at the applied magnetic field of 75, 100 and 125 Oe, respectively, and the yellow lines show some of the grain boundaries and red arrow indicates the DW movement. (c) A laser scope micrograph of the same specimen having columnar crystals and the schematic of the microstructure.

S1.5 まとめ

Fe-Co 合金ワイヤにおける磁区構造および磁壁挙動の様子を観察を行った。その結果、磁壁移動は結晶粒界においてピン止めされ、磁場印加に伴い、磁壁が開放され、飽和していく様子を観察することができた。その一方で粗大粒の場合では、結晶粒内において帯状の磁壁がその場で発生および消滅している様子も観察出来た。

しかしながら、本試験片の金属組織は引抜方向に配向した集合組織<110>を有していることがわかっている。そのため、線材の断面方向やその垂直方向から決定される磁区構造を予測して観察を行うべきであり、これらを予め観察を行う必要がある。さらに、多結晶合金における磁壁観察は結晶方位や表面のわずかな歪みの影響を受けるため、測定試料の改善や別の測定方法を用いることで更なる高解像度での観察が必要になる。しかし、これらの考察や精度の高い観察がまだ不十分なので、別の機会の論文にて正式に報告したいと考えている。

参考文献 S1

1. P. Weiss, L'hypothèse du champ moléculaire et la propriété ferromagnétique. J. Phys. Theor. Appl. 6, 1 (1907), 661-690.
2. R. M. Bozorth, Barkhausen effect in iron, nickel and permalloy. I. Measurement of discontinuous change in magnetization, Phys. Rev. 34, 772 (1929).
3. K. Kawahara, D. Iemura, S. Tsurekawa and T. Watanabe, High-Temperature In-situ Observations of Magnetic Domains in Fe-Co Alloys, Materials Transactions 44, 12 (2003) 2570-2577.

S2. バルクハウゼンノイズ計測システムの検討

S2.1 はじめに

バルクハウゼンノイズの評価・解析には様々な内的・外的要因の影響を受けるため、使用する装置や測定条件、測定環境を考慮した上で、バルクハウゼンノイズを検出・解析を行う必要がある。

そのため、一般的な、バルクハウゼンノイズ実験[1-3]では、試料よりもはるかに長いソレノイドコイル或いは 2 個のコイルを上下に設置したヘルムホルツコイルを用いて、均一な印加磁場を確保することが推奨されている。試料全体に対して均一な磁場を生成させることにより、誘導された磁束密度変化を検出する。さらに、荷重負荷する際には、非磁性体で吊るした錘を用いるケースが一般的な手法である。

しかしながら、本研究では、試料に荷重を負荷した状態を模擬してバルクハウゼンノイズ測定を行うことを目的としており、引張試験機を用いて荷重を負荷した場合には、試験片を長く設置しなければならないが、十分な試験片を用意することができないため、バルクハウゼンノイズの計測システムを検討する必要がある。

また、本研究では、応力下における磁歪合金ワイヤへ適用可能なバルクハウゼンノイズの測定手法の確立及び、その測定・解析結果に基づいた荷重負荷状態の評価を実施した。その研究成果は第 3 章に示している通りである。しかしながら、試験片形状や磁化および検出コイルの設置条件、測定環境に伴い、バルクハウゼンノイズ波形へ大きく影響することが知られているため、測定手法を確立するにあたり、外部ノイズが少なく適当なバルクハウゼンノイズを検出・評価する条件を決定する必要がある。

そこで、本付録では、測定時におけるコイル配置や荷重負荷条件、外部ノイズの影響を極力小さくするための予備調査を行う。さらに、その測定データの信頼性に対する考察を行うために、バルクハウゼンノイズに及ぼす可能性のある測定環境・条件を抽出し、それらがバルクハウゼンノイズに及ぼす影響を検証した。本論文における第 3 章から第 5 章までのバルクハウゼンノイズを利用した材料評価では、これらの予備調査の結果に基づいて実験を行っており、計測システムの検討は、本研究における測定系の確立に非常に重要である。

S2.2 バルクハウゼンノイズに及ぼす測定条件の検討および課題の抽出

本研究では、無線通信技術を用いたインフラ構造物や大型機械の構造健全性診断に向け、磁歪材料線材を構造物に設置或いは埋設し、バルクハウゼンノイズを利用することによる新たな力学的センシング手法の提案している。具体的には、材料に負荷される静的荷重、ひずみ時に蓄積されるひずみ損傷度、衝撃荷重などの検知を目的としている。これらの力学的パラメータに対してバルクハウゼンノイズの信頼性を確保するために要求される測定条件として、以下の5点が挙げられる。

1. 均一(勾配のない)磁場印加であること(磁化および検出システムの検討)
2. 接合部・つかみ部から外部ノイズが入らないようにすること(電磁氣的・環境ノイズの影響)
3. 荷重負荷による力学的なノイズが入らないこと(力学的ノイズの影響)
4. サンプリングノイズが適切であること(信頼性の高いデータ取得)
5. 工学的に使用しやすい計測システムであること(サイズが小さく簡易な設計)

これらの影響を考慮して適当なバルクハウゼンノイズ評価を行うことができるような計測システムを構築するため、以下の実験を実施した。

S2.3 コイル特性および配置条件

S2.3.1 コイル特性およびその磁場強度分布

本研究では、磁化コイル1つ或いは2つと検出コイル1つを用いたBHN検出システムを検討し、そのバルクハウゼンノイズ波形の信頼性について調査を行った。まずは、検出部のコイル特性とその配置条件が本研究で使用する試験片の形状が直径1mm線材状であるため、適当なサイズの2種類(大小)のソレノイドコイルを選定した。各コイルは磁化コイル(大)と検出コイル(小)として用いた。それぞれのコイルの特性を以下のTable S2-1に示した。さらに、ガウスメータを用いて磁化コイルにより発生する磁場強度の計測値と以下の理論式より算出した理論値をFig. S2-1に示した。

$$H(t) = \frac{nI(t)}{2l(b-a)} \int_a^b \int_{(-l/2)-x}^{(l/2)-x} \frac{r^2}{(r^2+y^2)^{3/2}} dy dr, \quad (\text{S2-1})$$

n は単位長さあたりの巻き数、 I は印加電流、 l は磁化コイルの長さ、 a と b はそれぞれのコイルの内径及び外径を示す。

Table S2-1 Properties of magnetizing and pick-up coil.

Coil	Magnetizing coil	Pick-up coil
Coil length / mm	28	12
Inside diameter / mm	10	3
Outside diameter / mm	20	6.4
Turn, N / T	2500	1750
Turn per unit length, n / T/m	4.0×10^4	14.5×10^4
Diameters of copper wire, φ / mm	0.25	0.03
Resistance, R / Ω	52	150
Cross-sectional area of cooper wire, S / m^2	3.8×10^{-4}	3.8×10^{-7}

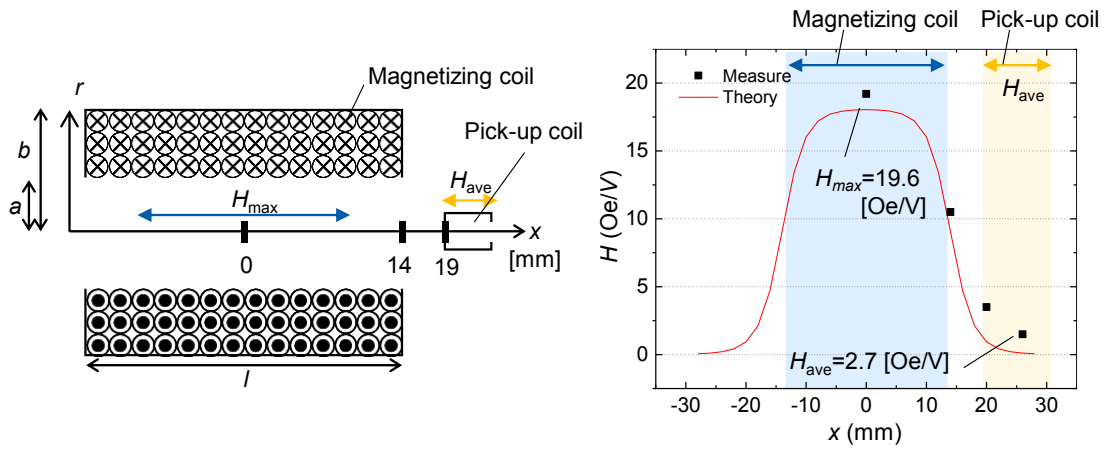


Fig. S2-1 Magnetizing coil and the generated magnetic field distribution used in this study. Black plots indicate measure data and the red line shows theoretical data calculated from Eq. (S2-1).

有限長のソレノイドコイルは中心で最大値を示し、印加電圧 1 V あたり、19.6 Oe 程度の発生磁場が生じることがわかった。その長さに対して 3 分の 1 程度の範囲において、最大磁場と同等に磁場が均一に分布する。これらの発生磁場は中心から離れるにつれて減少し、ソレノイドコイルの端では、最大磁場の約半分まで減衰する。さらに離れるにつれて、発生磁場は指数関数的に減少していく。このとき Fig. S2-1 に示すように磁化用のソレノイドコイルから 5 mm 離して設置した検出コイルでの発生磁場は、黄色で示した磁場強度となり、その範囲における平均磁場強度は印加電圧 1 V あたり 2.7 Oe であることがわかった。

実際には、試験片である Fe-Co 合金が 2 つのソレノイドコイルの中心に設置してあるため、Fe-Co 合金の透磁率を考慮すると、有効磁場は増大し、空気中の磁場分布に比べ、磁場勾配が軽減されると考えられる。

次に、大小のソレノイドコイルの組み合わせによる、磁化および検出コイルの配置を検討した。Fig. S2-2 に(a)片肩寄せ型と(b)ヘルツホルム型、(c)ソレノイドコイル型の 3 種を検討し、バルクハウゼンノイズの計測を行い、波形のひずみやノイズの入り込み具合の調査を行った。この中の 3 つ目のソレノイドコイル型の検出システムは今回使用するコイルの位置の関係から磁化コイルによる電磁誘導のノイズが多く含まれてしまうため、不相当だと判断した。

そのため、(a)肩寄せ型とヘルツホルム型コイルの検出システムの波形調査を行った。

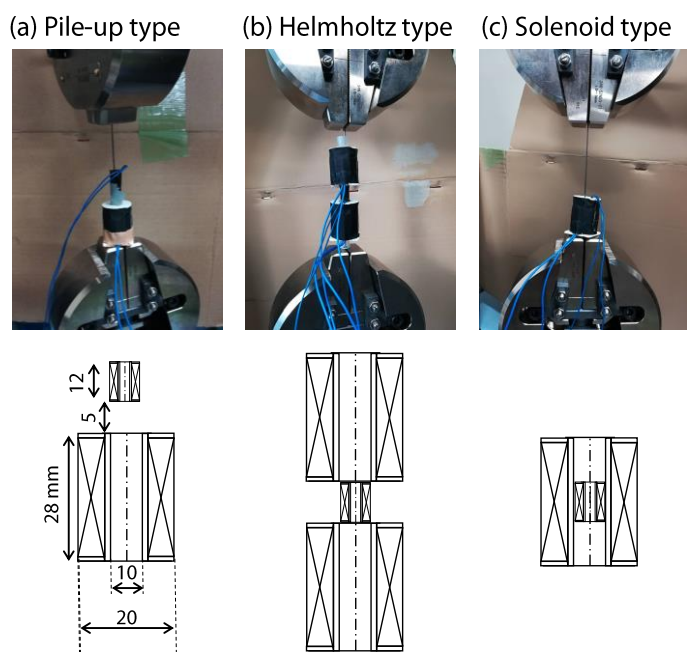


Fig. S2-2 Photography and the schematic images of three types of BHN measurement system: (a) pile-up type, (b) Helmholtz type and (c) Solenoid type.

S2.3.2 検出部の検討

それぞれ 2 種類のコイルシステムを用いた BHN 測定の結果を **Fig. S2-3** に示した. これらの BHN 波形は, 一例として(a)肩乗せ型コイルの検出システムでは応力下 56 MPa, ヘルツホルム型コイルの検出システムでは, 引張応力下 50 MPa での測定を行った結果を示しています. 無応力下での測定でも同等な結果を示していた.

更に, 測定した波形データを分析および高速フーリエ変換による解析を行った結果, BHN 出力電圧強度や, 実効値 (RMS) 包絡線の形状変化, 周波数スペクトルなどの両者の BHN 波形の傾向が, 2 種類の検出システムの間でほぼ同じであることを示した. 周波数スペクトルに見られる単発パルスのノイズは, 電源ノイズの高調波であると考えられる.

次に, 以上の理由から, 第 3 章の研究で示したように, 空間中の磁場勾配が検出したバルクハウゼンノイズ信号に与える影響がどの程度であるか調査するため, 1 m サイズのソレノイドコイルを用いた調査を実施した.

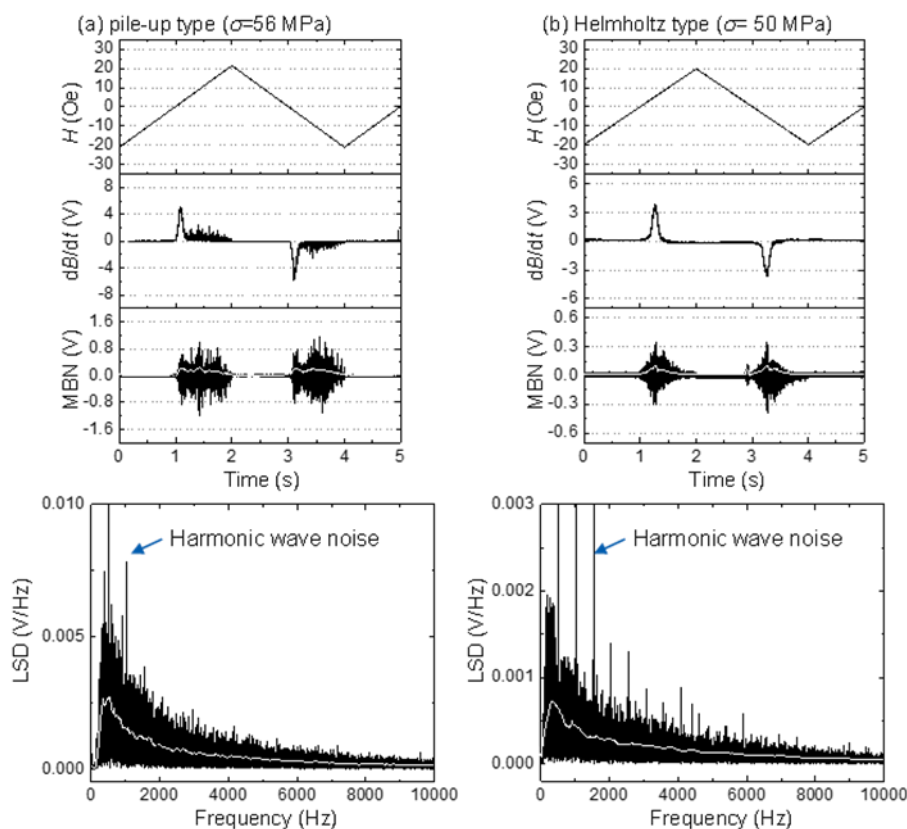


Fig. S2-3 BHN profiles and the frequency spectra measured by using (a) pile-up type coil system and (b) Helmholtz type coil system.

S2.2.3 磁化コイルの磁場勾配の影響評価

Fig. S2-4 に示すような大型ソレノイド型コイル(直径 120 mm×長さ 400 mm)を用いて以下の実験条件 1)2) で BHN 測定を行った. それらの結果を Fig. S2-5 に示した. 本検証では, 第 3 章と同様に 420°C-FC 材を使用した. このとき, 荷重負荷がかからないように, テープで浮かせた状態で測定を行った.

- 1) 検出コイルをソレノイド型コイルの中心付近に置いた場合
- 2) 検出コイルをソレノイド型コイルの外側 3.5 mm 離れた場所に置いた場合

その結果, 両者の BHN 包絡線に明確な違いは見られなかった. さらに, 第 3 章の考察で示したように, 両者の場合において, 磁歪材料におけるバルクハウゼンノイズの特徴である 2 段階ピークを確認することができた. そのため, 検出コイルの配置に伴う磁場勾配の影響は今回の議論に関して無視できるほど小さいと今回の結果からも結論付けられる. S2.2 節の結果を踏まえると, 想定した応用先での設置の容易さやコイルシステムのサイズに制限があることなどを考慮して, 本研究では, (a)の肩寄せ型コイルの検出システムを採用した.

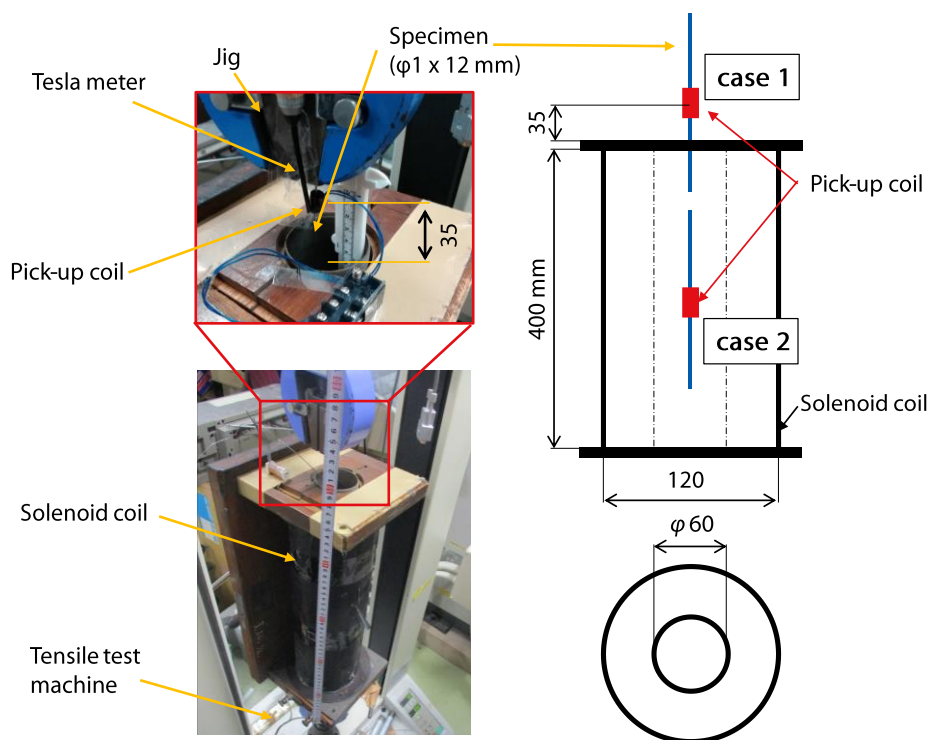


Fig. S2-4 (a) Photos and (b) the schematic image of large solenoid coil attached to a tensile tester. The length of the specimen is 12 mm.

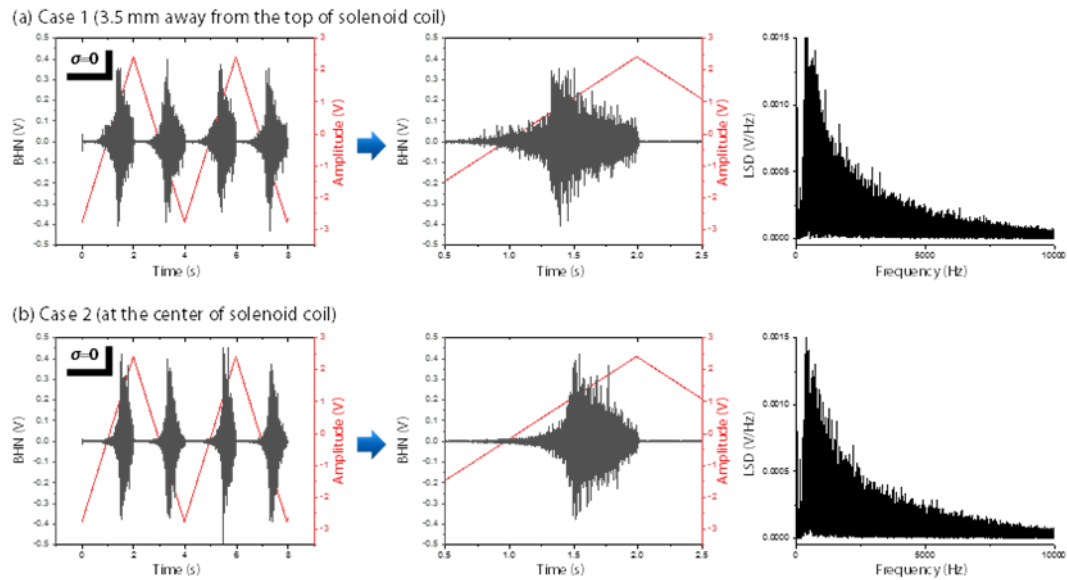


Fig. S2-5 Results of BHN measurement using a large solenoid-type magnetizing coil in (a) case 1 (3.5 mm away from the top of solenoid coil) and (b) case 2 (at the center of solenoid coil) without any stress.

S2.4 荷重負荷条件の検討

S2.4.1 引張試験機による電磁ノイズ及び、機械的ノイズの影響評価

外部から引張荷重を加える場合には、一般的に、試料がソレノイドコイルの中央に配置され、引張冶具と試料の間には非磁性リボンを接着して錘に取り付ける[4]ことが望ましいとされるが、本研究では、構造物に埋設あるいは接合することを検討しているため、試料の両端が固定された状態で荷重負荷を受ける環境でバルクハウゼンノイズの計測手法を検討する。

そこで、引張試験機の引張冶具のつかみ部で試験片に伝播する電磁ノイズ及び、機械的ノイズの影響を評価するため、以下の実験条件 1)2)3)で BHN 測定を行った。

- 1) Cu ワイヤ（非磁性導電性）の BHN 計測（電磁ノイズの除去）
- 2) 両チャック部を Al パイプで覆った状態で FeCo ワイヤの BHN 計測（磁気回路の遮断）
- 3) 引張試験機の電源を落とした状態で FeCo ワイヤの BHN 計測（モータ由来の機械的ノイズの除去）

その BHN 信号の時間軸波形と周波数軸波形の結果をそれぞれ **Fig. S2-5**, **Fig. S2-6**, **Fig. S2-7** に示した。以上の測定結果より、原稿で示した実験条件で測定した BHN 波形の特徴と大きな違いが生じないことから、本研究の BHN 測定手法において、今回検討した引張試験機に由来するノイズがバルクハウゼンノイズ信号に与える影響は小さいといえる。

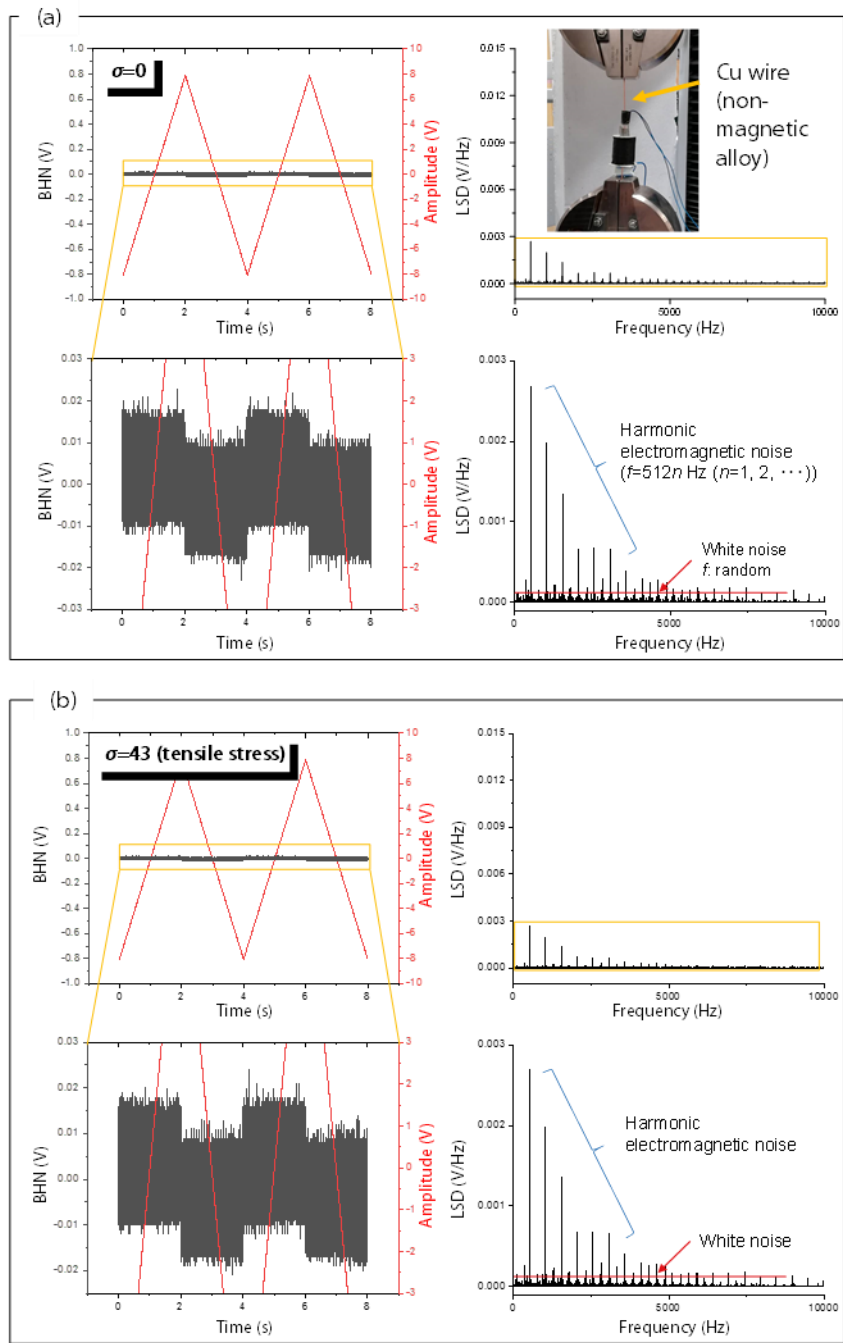


Fig. S2-5 BHN measurement for non-magnetic Cu wire ($\varphi=1$ mm). The results of BHN signals and FFT analysis (a) without stress and (b) with the stress of 43 MPa using the tensile tester.

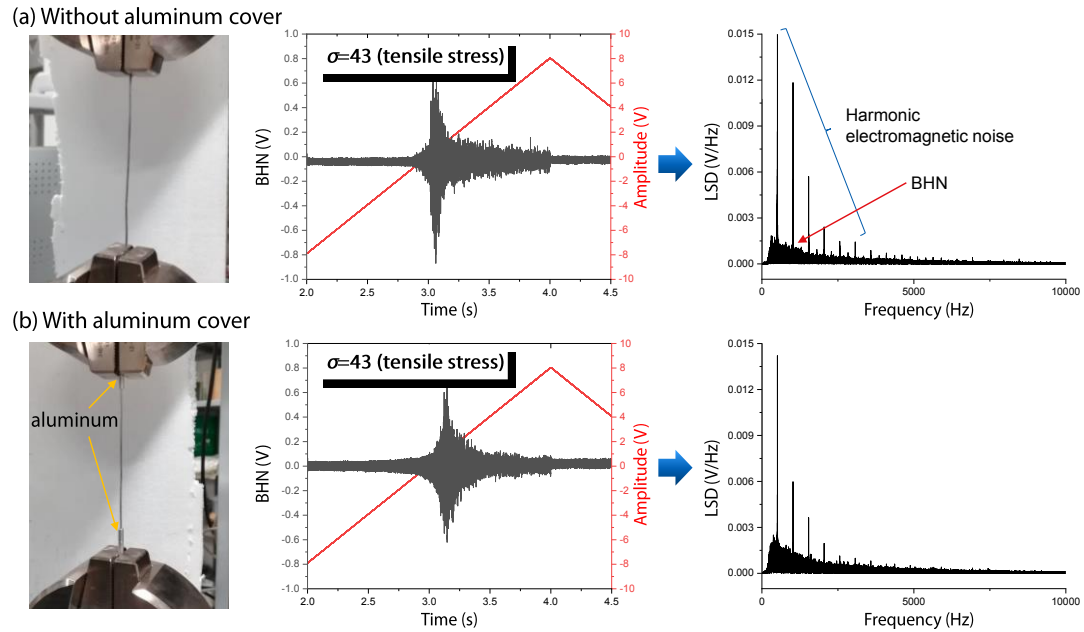


Fig. S2-6 Photography of BHN measurement for an annealed Fe-Co wire ($\phi=1$ mm), the results of BHN signals and the FFT analysis (a) without aluminum cover and (b) with the aluminum cover on the edge of it at the stress of 43 MPa using the tensile tester.

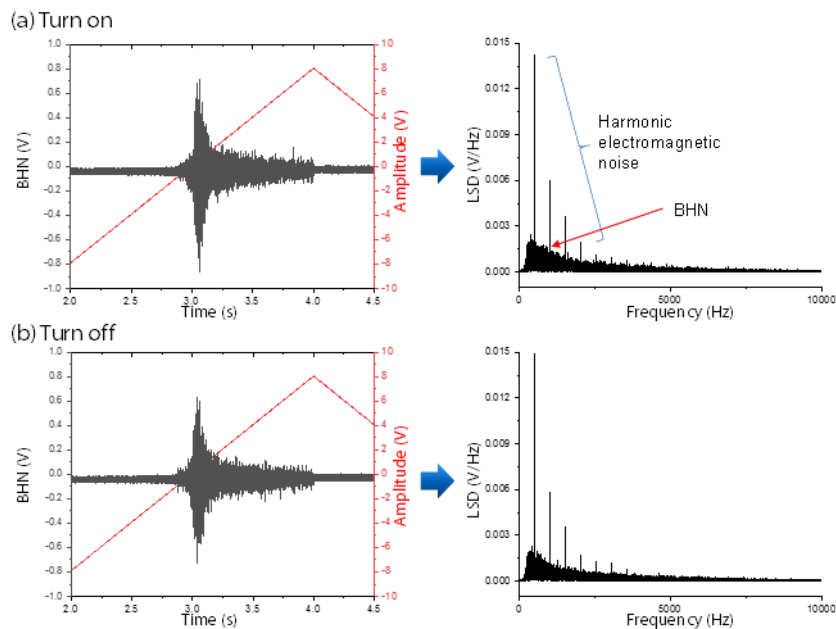


Fig. S2-7 BHN measurement for an annealed Fe-Co wire ($\phi=1$ mm) at the stress of 43 MPa with the tensile machine (a) tuned on and (b) turned off.

S2.4.2 引張治具による荷重負荷の影響評価

続いて、今回使用する引張試験機は油圧式でなく、モーター式となるため、引張治具で直接試料を掴んだ場合に、モーター由来のノイズが試料に伝播しバルクハウゼンノイズに影響を与えることが懸念される。そのため、**Fig. S2-8** に示すように、治具を錘として吊るしながら、荷重負荷の方法及び磁歪効果の影響を評価するため、以下の実験条件 4)5)で BHN 測定を行った。

- 4) 錘(つかみ治具)を吊るして応力を作用した状態(≒45 MPa)と錘を吊るさない状態(≒0 N)で BHN 評価
- 5) 4)と同様の実験を、磁歪定数の小さな、応力除去焼鈍し純鉄ワイヤー(<20 ppm)に対して BHN 評価

その時の時間軸波形と周波数軸波形の結果をそれぞれ **Fig. S2-9** に示した。ただし、これらの各実験では、S2.4.1 節と同様に、治具によるつかみ部を Al パイプで覆い、引張試験機の電源を落とした状態で測定を実施した。

これらの測定結果より、引張試験機によるチャックした場合と錘を吊るした場合の両方で、2 段階ピークを確認することができた。一方で、純鉄ワイヤーでは、2 段階目のピークを確認することができなかったため、このピークは磁歪定数が比較的高い磁歪効果に由来するものだと考えられる。

今回の測定では、ワイヤー端が自由でも 2 段階の包絡線を確認することができた。そのため、第 3 章で議論していたように、磁歪定数の大きな材料特有のバルクハウゼンノイズの発生挙動が 2 段階であることが本研究によって明確になったといえる。

さらに、これらの結果を補助する参考文献として、以下の D. C. Jilies や K. Miesowicz により報告されたバルクハウゼンノイズの研究結果[5, 6]を例に挙げる。**Fig. S2-10** に示すように、本研究と同様に、純 Ni 合金を用いた BHN 包絡線において、2 段階のピークの存在および、荷重負荷の増大に伴い 2 つのピーク移動を示している。ただし、その研究で用いられた試験片は、Ni 金属(磁歪定数が負)であるため、2 つのピークが引張応力の作用に伴い、減衰及び高磁場側への移動を示していた。そのため、本研究で用いたような高い磁歪定数を有する FeCo 合金に発生する BHN 包絡線において、2 段階ピークを有することは原理的に有りうると考えられる。

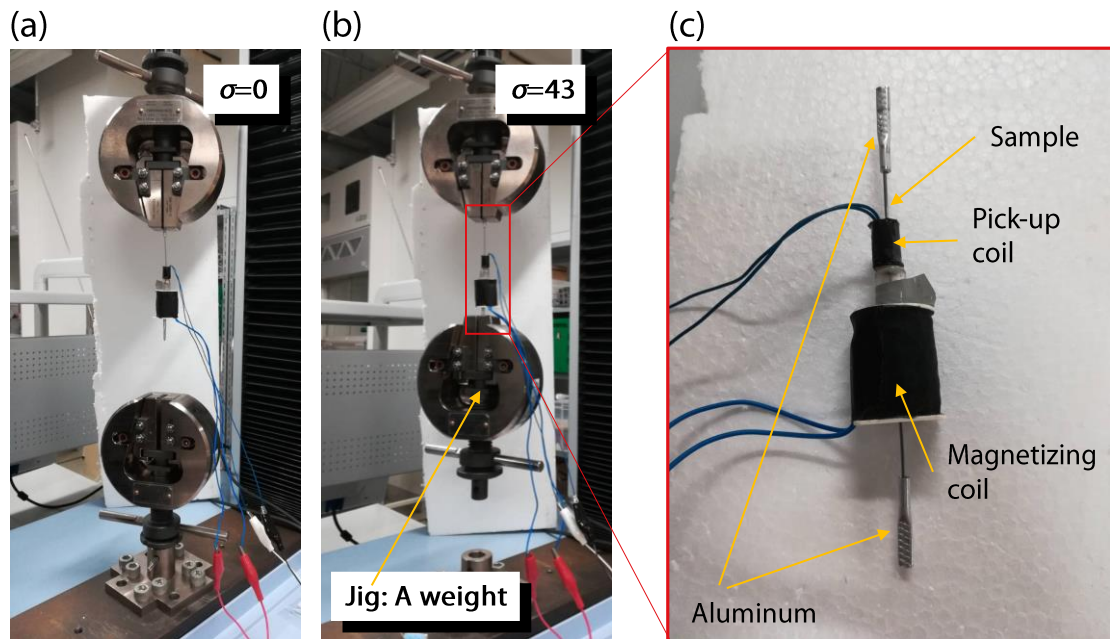


Fig. S2-8 Experimental setup of BHN measurement without tensile tester (a) with no weights, (b) with a tiny weight of 36 N (jig) without tensile tester, and the enlarged magnetizing and pick-up system.

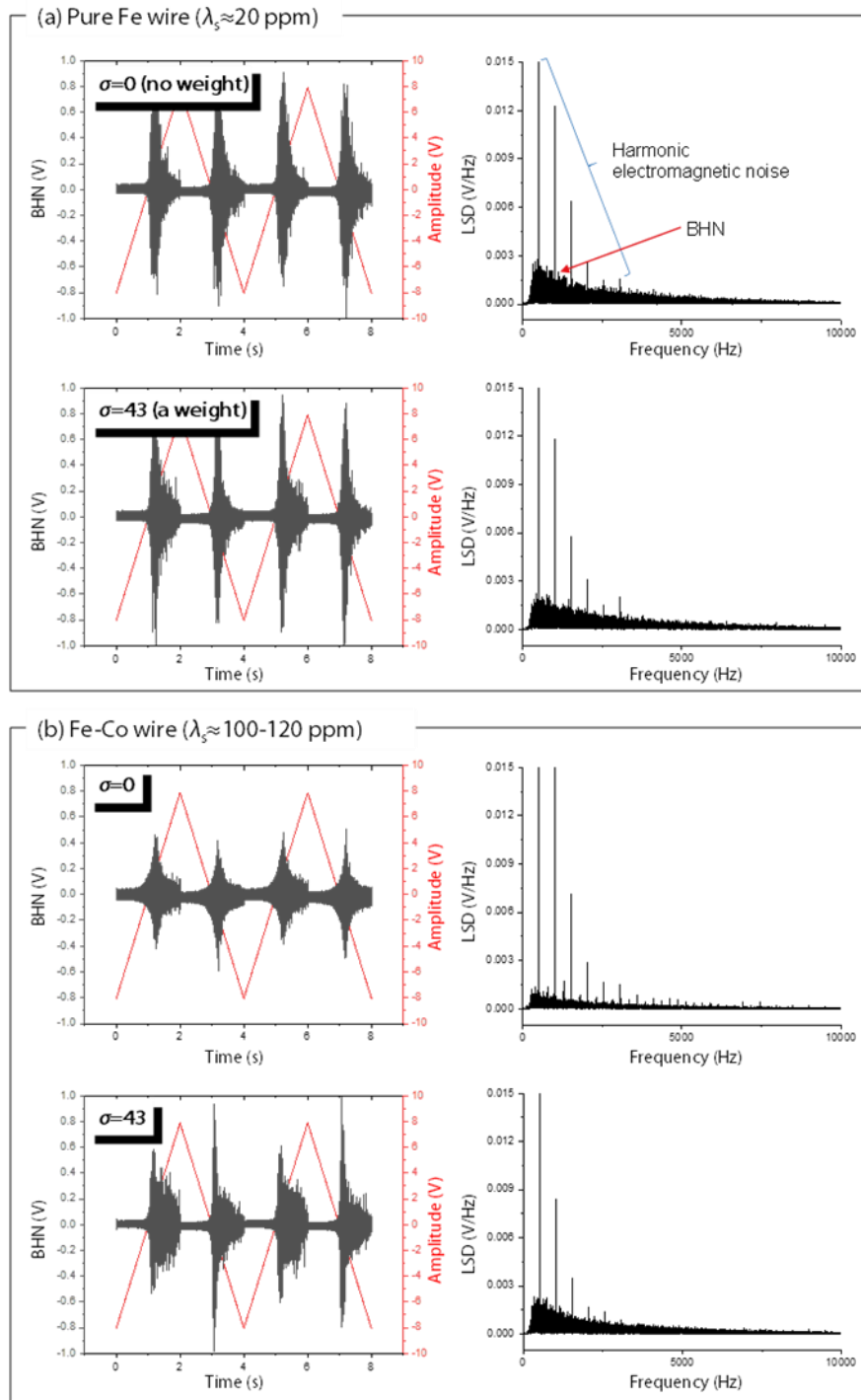


Fig. S2-9 Results of BHN measurement (a) for pure Fe wire ($\phi=1$ mm) and (b) for an annealed Fe-Co wire ($\phi=1$ mm) at the stress of 0 MPa (no weight) and 43 MPa (a weight) without a tensile tester, respectively.

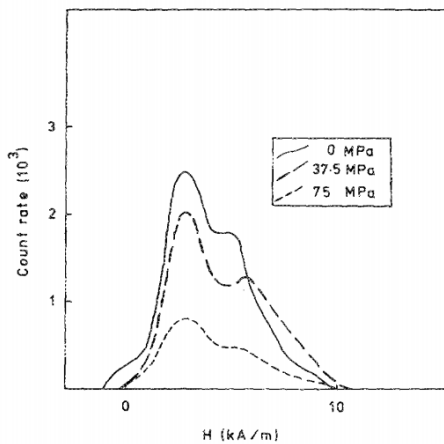
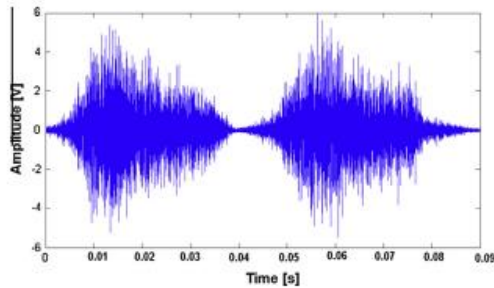
(a) Nickel alloy ($\phi=0.75''$)(b) DC01/1.0330 mild steel
(250 mm x 80 mm x 1 mm)

Fig. S2-10 Example results of (a) the stress effect of BHN envelope for nickel alloy rod ($\phi=0.75''$) and (b) the BHN waveform having 2 peaks in the magnetization process[5,6].

S2.3.3 サンプリングレートの違いによる波形評価

本研究で用いる入力信号は、3Bサイエンティフィック社製の信号発生器(FG-100)を用いている。この信号発生器は、パワーサプライとファンクションジェネレータの両方の役割を担っており、磁化コイルへの三角波波形の電流を流すことにより、交流磁場の発生させている。しかしながら、これらの発生した波形はアナログ波形でなく、デジタル波形であるため、微小単位時間で観察するとステップライクな(階段状の)波形となっていることがわかっている。そのため、その不連続的な電磁誘導がバルクハウゼンノイズに与える影響および、その不要なノイズを極力低減できるサンプリングレートを決定する必要がある。データの収集にはキーエンス製のデータロガーを用いた。

異なるサンプリングレート(2 μs (500 kHz), 20 μs (50 kHz), 200 μs (5 kHz))で計測した印加磁場と BHN 信号を **Fig. S-11** に示した。今回、入力を拡大すると、入力波波形が階段状の波形となっているため、検出コイルの出力波形に電磁誘導由来のノイズとして影響を与える可能性がある。しかし、今回の材料では、BHN 信号の出力電圧が大きく、S/N 比が大きいため、包絡線へ影響は小さいと考えられる。また、整数倍の周波数で生じる単発信号なため、周波数波形に大きな影響は及ばない或いは同等の影響を受けるため差分することにより、影響を考慮せずに解析を行うことが出来る。

これらの結果より、サンプリングレートが 200 μs よりも遅い場合では、BHN 波形がひずんでいるように見えるが、20 μs 以下では、解析に十分な BHN 波形が取得できていると考えられる。以上より、本研究では、バルクハウゼンノイズ信号への影響が殆どなく、十分だと考えられるサンプリングレート 20 μs (50 kHz)を採用した。

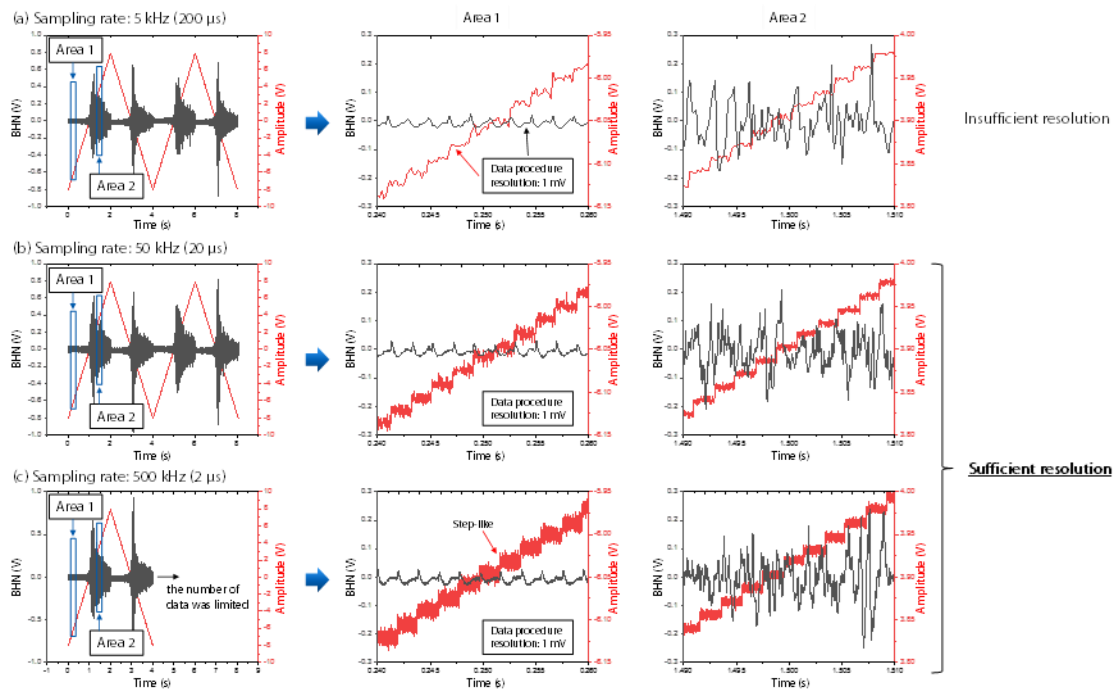


Fig. S2-11 Results of BHN measurement at the sampling rate of (a) 5 kHz (200 μ s), (b) 50 kHz (20 μ s) and (c) 500 kHz (2 μ s) with the stress of 43 MPa. Each figure on the center and right show the enlarged area (1) and area (2), respectively. Both data procedure resolutions were 1 mV.

S2.4 まとめ

本付録 S2 では、応力下における磁歪合金ワイヤへ適用可能なバルクハウゼンノイズに及ぼす測定条件の検討を行った。特に、バルクハウゼンノイズの計測システムに重要な磁化・検出システムを検討し、測定時における荷重負荷条件、外部ノイズ、サンプリングレートが与える影響の調査を行った。その結果、BHN 波形とその周波数特性は、均一磁場が生じるように設計したヘルツホルム型コイルシステムでの検出波形とほぼ同等であり、各条件で比較した評価・解析により、平均化された検出コイル内における BHN 波形は十分信頼できる精度で検出できることを明らかにした。

さらに、本研究ではこの BHN 検出システムを構造体への埋設や接合に適用することを検討していることから、エンジニアリング的には、磁歪効果を考慮したバルクハウゼンノイズ計測手法として有意義な結果であるといえる。しかし、本来であれば、荷重負荷方法により導入されてしまう磁気歪みによるノイズの影響を除去あるいは分離して定量的評価を検討する必要があるが、それらの差異を実験的に分離することは本実験系では難しいと考えられる。非磁性リボンで錘を固定し荷重を負荷した場合においても、磁気歪みによる試料自体に変位が生じてしまうことで電磁誘導によるノイズの影響を受けてしまうことが考えられる。そのため、これらの検討は今後のチャレンジとして検討していく。

以上より、コイル位置や環境ノイズや荷重負荷時のつかみ部がバルクハウゼンノイズ波形に与える影響は小さく、同一条件上での測定に及ぼす影響は殆ど無視できるといえる。このように、応力下で十分計測可能なバルクハウゼンノイズ検出システム、特に磁化および検出コイルを組み合わせた検出部を構築し、実用化可能な計測条件にて応力状態やひずみ・疲労損傷度を把握できることが可能であるといえる。

参考文献 S2

1. F. Fiorillo, Anisotropy and magnetization process in soft magnets: Principles, experiments, applications, *J. Magn. Magn. Mater.* **304-2** (2006), 139-144.
2. L. Kraus, J. Bydžovský, P. Švec, Continuous stress annealing of amorphous ribbons for strain sensing applications, *Sensors and Actuators A: Physical* **106**, 1-3 (2003), 117-120.
3. J. Olivera, M. González, J.V. Fuente, R. Varga, A. Zhukov, J.J. Anaya, An Embedded Stress Sensor for Concrete SHM Based on Amorphous Ferromagnetic Microwires, *Sensors* **14**, 11 (2014), 19963-19978.
4. G. Durin and S. Zapperi, Scaling exponents for Barkhausen avalanches in polycrystalline and amorphous ferromagnets, *Phys. Rev. Lett* **84** (2000), 4075-4078.
5. D. C. Jiles, Stress-induced changes in the magnetic properties of some nickel-copper and nickel-cobalt alloys, *Journal of Applied Physics* **64**, 3620 (1988).
6. K. Miesowicz, W. J. Staszewski, T. Korbiel, Analysis of Barkhausen noise using wavelet-based fractal signal processing for fatigue crack detection, *International Journal of Fatigue* **83** (2016) 109–116.

研究業績一覧

1. 本論文を構成する査読論文

- 1) T. Yamazaki, T. Yamamoto, Y. Furuya, W. Nakao, “Magnetic and magnetostrictive properties in heat-treated Fe-Co wire for smart material/ device,” Mechanical Engineering Journal 5, 2 (2018) 17-00569. (2章)
- 2) T. Yamazaki, Y. Furuya, W. Nakao, “Experimental evaluation of domain wall dynamics by Barkhausen noise analysis in Fe₃₀Co₇₀ magnetostrictive alloy wire,” Journal of Magnetism and Magnetic Materials 475 (2019) 240–248. (3章)

2. その他の論文

- 1) D. Shigeoka, T. Yamazaki, T. Ishikawa, K. Miike, K. Fujiwara, T. Ide, A. Oshima, T. Hashimoto, D. Aihara, K. Kanda, A. Usui, Y. Hosokai, H. Saito, Y. Ichiyanagi, “Functionalization and Magnetic Relaxation of Ferrite Nanoparticles for Theranostics,” IEEE Transactions on Magnetics 54, 11 (2018) 1-7.
- 2) T. Yamazaki, S. Morimoto, K. Hyodo, T. Ishikawa, Y. Ichiyanagi, “Effect of cobalt-doping on the magnetic properties and crystal structure of delafossite AgFeO₂ nanoparticles,” Journal of Alloys and Compound 745, (2018) 631-636.
- 3) S. Morimoto, T. Ishikawa, K. Hyodo, T. Yamazaki, S. Taira, K. Tsuneyama, and Y. Ichiyanagi, Preparation and characterization of newly developed matrix using functional γ -Fe₂O₃ nanoparticles for mass spectrometry in small molecules, Surface and Interface Analysis 48, 11 (2016) 1127–1131.
- 4) K. Mori, M. Hachisu, K. Hyodo, S. Morimoto, T. Yamazaki, Y. Ichiyanagi, Characterization of local structure and heat dissipation of iron oxide nanoparticles for magnetic hyperthermia treatment, Transactions of the Materials Research Society of Japan 41, 1 (2016) 25-28.
- 5) T. Kondo, K. Mori, M. Hachisu, T. Yamazaki, D. Okamoto, M. Watanabe, K. Gonda, H. Tada, Y. Hamada, M. Takano, N. Ohuchi, Y. Ichiyanagi, “AC Magnetic Susceptibility and Heat Dissipation by Mn_{1-x}Zn_xFe₂O₄ Nanoparticles for Hyperthermia Treatment,” Journal of Applied Physics 117, 17 (2015) 17D157.
- 6) K. Mori, M. Hachisu, T. Yamazaki, Y. Ichiyanagi, “Magnetic properties of CuFe_{1-x}Cr_xO₂ nanoparticles surrounded by amorphous SiO₂,” Journal of Applied Physics 117, 17 (2015) 17C756.
- 7) 山崎貴大, 兵藤公美典, 森本翔大, 石川智也, 一柳優子, Coドーブ効果によるAgFeO₂ ナノ微粒子の磁気特性と局所構造解析, ナノ学会会報 14 巻第 1 号, pp. 25-29, 2015 年.

- 8) 森本翔大, 兵藤公美典, 山崎貴大, 石川智也, 平修, 常山幸一, 一柳優子, 機能化した磁性ナノ微粒子を用いたマウス肝臓質量分析イメージング, ナノ学会会報 14 巻第 1 号, pp1-6, 2015 年.

3. 国際会議 Proceedings

- 1) T. Yamazaki, T. Yamamoto, Y. Furuya, W. Nakao, “Magnetic and magnetostrictive properties in heat-treated Co-Fe wire for design of smart material/ device,” Proceedings of the 2017 International Conference on Materials & Processing, 4427 (2017).
- 2) K. Hyodo, S. Morimoto, T. Yamazaki, T. Ishikawa and Y. Ichiyanagi, Local structure analysis of diluted magnetic semiconductor Co and Al co-doped ZnO nanoparticles, Proceedings of the American Institute of Physics 1709, 1 (2016) 020004.
- 3) M Hachisu, K Mori, K Hyodo, S Morimoto, T Yamazaki, and Y Ichiyanagi, Room-temperature ferromagnetism in Co and Nb co-doped TiO₂ nanoparticles, AIP Conference Proceedings 1649, 1 (2015), 20-26.

4. 国際会議発表(筆頭のみ)

口頭

- 1) T. Yamazaki, Y. Furuya, W. Nakao, “Magnetostriction and domain wall movement behavior in heat-treated Fe-Co wire for application of stress sensor,” The 15th International Conference on Advanced Materials, 3173, Kyoto, August 2017. **(Award for Encouragement of Research 受賞)**
- 2) T. Yamazaki, T. Yamamoto, Y. Furuya, W. Nakao, “Magnetic and magnetostrictive properties in heat-treated Co-Fe wire for design of smart material/ device,” The 2017 International Conference on Materials & Processing, 4427, Los Angeles, June 2017.
- 3) T. Yamazaki, Y. Ichiyanagi, “Analysis of Apoptosis and Necrosis by Magnetic Hyperthermia,” A3 Foresight 3rd Meeting, P15, Beijing, January 2015.

ポスター

- 4) T. Yamazaki, Y. Furuya, W. Nakao, “Barkhausen noise analysis in Fe-Co magnetostrictive alloy wire for monitoring stress and damage accumulation,” 21th International Conference on Magnetism, Q7-11, San Francisco, July 2018.
- 5) T. Yamazaki, K. Mori, M. Hachisu, S. Morimoto, K. Hyodo, Y. Ichiyanagi, “Synthesis of Co doped AgFeO₂ delafossite nanoparticles,” 20th International Conference on Magnetism, TU. F-P10, Barcelona, July 2015.

5. 国内学会・シンポジウム等における発表(筆頭のみ)

口頭

- 1) 山崎貴大, 古屋泰文, 中尾航, “FeCo 磁歪合金ワイヤを用いた応力・歪み検出センサ,” 第3回電磁材料・デバイス研究会, P3, 仙台, 2018年3月.
- 2) 山崎貴大, 古屋泰文, 中尾航, “磁歪感受率改善と振動発電デバイス設計〜バルクハウゼンノイズを用いた磁歪挙動評価〜,” 第1回電磁材料・デバイス研究会, P1, 仙台, 2017年11月.
- 3) 山崎貴大, 古屋泰文, 中尾航, “バルクハウゼンノイズ手法を用いた新規 Fe-Co 磁歪ワイヤにおける磁壁挙動評価,” 日本機械学会 2017年度年次大会, J0430104, 埼玉, 2017年9月.

ポスター

- 4) 山崎貴大, 古屋泰文, 中尾航, “生体信号の高感度センシングに向けた磁歪式アクティブマテリアルの創製,” 第7回超異分野学会, No. 48, 東京, 2018年3月.
- 5) 森本翔大, 山崎貴大, 兵藤公美典, 石川智也, 酒井元一大, 太田郁己, 岡岳大, 小池涼太, 柴田恵助, 谷口葉史, 一柳優子, “シリカコート鉄酸化物ナノ微粒子の XAFS 解析と質量分析およびハイパーサーミア効果,” 日本物理学会第71回年次大会, 19aPS-18, 仙台, 2016年3月.
- 6) 山崎貴大, 兵藤公美典, 森本翔大, 石川智也, 一柳優子, “Co-Zn ferrite ナノ微粒子の磁気ハイパーサーミア効果,” 日本物理学会第70回秋季大会, 16pPSA-1, 大阪, 2015年9月.
- 7) 山崎貴大, 兵藤公美典, 森本翔大, 石川智也, 一柳優子, “Co ドープしたデラフォサイト型ナノ微粒子 AgFeO₂ の作製と磁化測定,” ナノ学会第13回大会, P3-45, 仙台, 2015年5月. (若手優秀ポスター賞受賞)
- 8) 山崎貴大, 近藤貴也, 蜂巢将也, 森一将, 兵藤公美典, 森本翔太, 一柳優子, “磁気ハイパーサーミア用 Mn-Zn ferrite ナノ微粒子の作製及び分散性の向上,” 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 17P-S2-8, 札幌, 2014年9月.
- 9) 山崎貴大, 上原政智, 一柳優子, “ホールドーピングによるデラフォサイト型超伝導体の探索,” ナノ学会第12回大会, P2-11, 京都, 2014年5月.

謝辞

本論文は筆者が横浜国立大学大学院工学府機能発現工学専攻 物質とエネルギーの創生工学コース 博士課程後期 中尾研究室在籍中の研究成果をまとめたものです。

本論文の作成にあたり、博士後期課程の進学時より指導教員である中尾航教授には、終始あたたかい御指導と激励を賜るのみならず、多くの知識、研究者の志を御教授いただきました。心より御礼申し上げます。また、本研究の遂行にあたり、磁歪材料に関する研究の共同研究者として懇切なる御指導を賜った東北大学マイクロシステム融合研究開発センター古屋泰文特任教授(元・横浜国立大学先端科学研究所客員教授)に深甚なる謝意を表します。

多くの先生方に御指導、御助力を賜りました。磁気物性に関するご助言を賜ると共に、真空封入装置を使わせて頂きました梅原出教授、金属材料の研磨加工に係る御助言を賜ると共に、切断機やビッカース硬度計を使わせて頂きました高橋宏治教授、それぞれの御専門に関する様々な御助言を賜りました梅澤修教授、岡崎慎司教授、大竹充准教授には、御多用中にも関わらず、本学位論文の審査員として、本研究に係る御助言を賜るとともに、本論文の細部にわたり御指導を頂きました。深く感謝の意を表します。

さらに、万能試験機を借用いただきました東北大学大学院工学研究科材料システム工学専攻の成田史生教授、磁気カー効果顕微鏡を使わせていただきました東北大学電気通信研究所人間情報システム研究部門の石山和志教授ならびに栢修一郎准教授、振動試料型磁力計(VSM)を借用いただきました東北大学金属材料研究所の梅津理恵准教授、バルクハウゼンノイズに関する御助言を賜りました職業能力開発総合大学校能力開発院の山浦真一准教授、金属組織分析に関する御助言を賜りました本学梅澤研究室の古賀紀光助教には、厚く御礼申し上げます。

また、本学学士課程での担当教官である上原政智准教授ならびに、本学博士課程前期での担当教官である一柳優子准教授には、現在に至るまで御指導・御鞭撻賜りましたことを心より感謝申し上げます。

多くの仲間達にも励まされました。恵まれた環境で研究活動に取り組めたことは私の良き思い出であり、活力でした。中尾研究室での唯一の同期として博士課程後期を共に過ごした木村奈津子氏とは、3年間互いに議論しあい、慰め励まし合うことで、精神的にも多く助けてもらいました。心より感謝いたします。また、日ごろより研究や進路、人生に関する御助言を賜りました竹尾恭平特任助教(現・横浜国立大学大学院工学府)、後藤健太博士(現・物質・材料研究機構)、吉岡俊介博士(現・株式会社博報堂)、柳迫徹郎助教(現・工学院大学工学部機械工学科)、李將源氏(現・博士課程後期)、玉川雄貴氏(現・博士課程後期)、岡安和人氏(現・横浜国立大学技術専門職員)には、深く御礼申し上げます。研究室生活の中でともに切磋琢磨し、楽しく過ごした中尾研究室の学生の皆様にも重ねて心より感謝いたします。

その他にも、国内外でお世話になった先生方、本学内外の博士課程後期の諸氏、試料の分析・評価に御協力いただきました機器分析評価センターの技術職員の皆様等、多くの方々に御支援、御助力を賜りました。深く感謝申し上げます。

本研究は下記の研究費・経済的な援助により遂行されました。ここに記して感謝いたします。

- ・工学研究マネジメント学習プログラム 研究費 2016 年前期
- ・横浜国立大学国際学術交流奨励事業(海外研究調査) 2018 年前期
- ・横浜国立大学大学院工学府 特別研究員 2016 年－2019 年(継続 3 年)
- ・東電記念財団奨学生 2017 年－2019 年
- ・東北大学金属材料研究所 新素材センター共同研究 2017 年－2019 年(継続 2 年)
課題番号:17G0048, 18G0026
研究課題名:「鉄基磁歪 FeCo 系合金を用いた振動発電デバイス用の材料設計最適化」
- ・東北大学金属材料研究所 研究部共同研究 2017 年－2019 年(継続 2 年)
課題番号:17K0076, 18K0043
研究課題名:「加工熱処理 FeCo 過剰型磁歪合金の磁区形態と磁気バルクハウゼン応力センサ信号との相関性」
- ・科学研究費助成事業 基盤研究(B)(一般) 2017 年－2019 年
課題番号:17H03140
研究課題名:「環境発電 IoT デバイス適用への磁歪・圧電界面ドメイン増殖型高感度スマート複合材料」

最後に、博士課程後期への進学に理解を示し、研究生生活を支え常に励ましてくれた両親と兄弟に深い感謝の意を表して、謝辞といたします。

a

2019 年 3 月 山崎 貴大