

## 負の磁歪材料のユニモルフ U 字型デバイスへの応用

杉山 太一、岡田 拓、清野 智史、中川 貴、大石 佑治、牟田 浩明、藤枝 俊  
(大阪大学 大学院 工学研究科)

Application of negative magnetostrictive materials to unimorph U-shaped device  
T. Sugiyama, T. Okada, S. Seino, T. Nakagawa, Y. Ohishi, H. Muta, S. Fujieda  
(Graduate School of Engineering, Osaka Univ.)

### はじめに

様々なモノがインターネットを通じて繋がる社会の実現に向けて、IoT デバイスの普及が年々進んでいる。これらの電源として、従来、圧電式やエレクトレット式などの振動エネルギーハーベスティングが盛んに研究されており、近年開発された逆磁歪効果を用いた方式が注目を集めている。様々なデバイスが開発されているなか、ユニモルフ U 字型デバイスは高い耐久性と大きな電圧を示す<sup>1)</sup>。本デバイスを用いた発電方法において、正の飽和磁歪を持つ材料の研究は多く行われているが<sup>2)3)</sup>、負の飽和磁歪を持つ材料の研究はほとんど行われていない。そこで、振動発電に用いる材料の選択肢を広げるため、負の飽和磁歪を持つ Ni、Fe および Co をユニモルフ U 字型デバイスに応用し、振動発電特性を評価した。

### 実験方法

本研究ではユニモルフ U 字型デバイス<sup>1)</sup> (0.5 mm 厚の鉄フレーム、コイル 3638 巻) に Ni、Fe および Co を逆磁歪材料 (寸法 16 × 4 × 0.5 mm<sup>3</sup>) として貼り付け、共振周波数  $f = 100$  Hz で短足側の変位  $d$  が 2.0 mm になるように強制振動させ (Fig. 1(a)および(b)参照)、その際にコイルに発生する電圧  $V_{op}$  を測定した。

### 実験結果

Ni (飽和磁歪  $\lambda_s = -37$  ppm) をフレームの表側 (Fig. 1(a)) に貼り付けて行った振動発電試験の結果を Fig. 1(c) (Ni front) に示す。発生電圧は、比較のために行ったフレームのみの値 (frame only) よりも小さい。一方、Ni をフレームの裏側 (Fig. 1(b)) に貼り付け、同様の条件で振動発電試験を行った結果、Fig. 1(c) (Ni back) に示すようにフレームのみの値よりも大きな電圧が得られた。また、得られた電圧の大きさから、以下のファラデーの法則を用いて、Ni の磁束密度変  $\Delta B$  を評価した。

$$V_{op} = -N(d\Phi/dt) = -NS(dB/dt)$$

ここで、 $N$  はコイルの巻き数、 $\Phi$  は磁束、 $S$  は試料の断面積である。その結果、Ni の  $\Delta B$  の最大値は、表側および裏側貼り付けの場合でそれぞれ 0.09 T および 0.24 T であった。つまり、負の飽和磁歪を持つ Ni はフレームの裏側貼り付けにより、大きな  $\Delta B$  を示す。また、Fe および Co を用いた振動発電試験においても、Ni の場合と同様の結果が得られた。したがって、ユニモルフ U 字型デバイスを用いた振動発電において、負の磁歪材料は裏側貼り付けが効果的である。

### 参考文献

- 1) T. Ueno, AIP Adv., **9** (2019) 035018.
- 2) S. Fujieda et al., IEEE Trans. Magn., **50** (2014) 2505204.
- 3) T. Okada et al., Mater. Trans., **62** (2021) 1798.

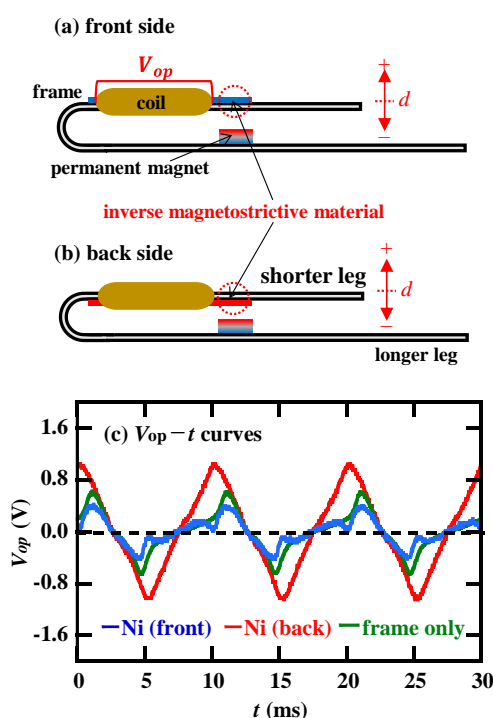


Fig. 1 Schematics of the unimorph U-shaped devices of (a) the front side and (b) the back side setting. (c) Time  $t$  response of open-circuit voltage  $V_{op}$  of the Ni unimorph core. The date of the frame without sample are also shown.

## Cu<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の磁歪特性に及ぼす Cu の Zn 部分置換の影響

藤枝 俊、藤原康太、小杉静花、清野智史、中川 貴  
(阪大 工学研究科)

Influence of partial substitution of Zn for Cu on magnetostrictive properties of Cu<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>

S. Fujieda, K. Fujiwara, S. Kosugi, S. Seino, T. Nakagawa  
(Graduate School of Engineering, Osaka Univ.)

### はじめに

CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 系フェライトは、室温において立方晶スピネルフェライトの中でも特異的に大きな負の磁歪を示す。最近、我々は CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の Co を Cu で部分置換することにより、磁歪特性が飛躍的に向上することを見出した<sup>1)</sup>。Cu<sub>0.6</sub>Co<sub>0.4</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の磁歪特性は、比較的高印加磁場では市販の磁歪材料である Galfenol よりも優れているが、比較的低印加磁場では同程度以下である<sup>1)</sup>。本研究では、比較的低印加磁場での磁歪特性の向上に向けて、Zn<sub>x</sub>Cu<sub>0.5-x</sub>Co<sub>0.5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の磁歪特性を調べた。

### 実験方法

ZnO、Cu<sub>2</sub>O、CoO および α-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を出発原料として用い、それらを混合してペレット化した後、大気中において 950 °C で 20 時間の熱処理を施して立方晶スピネル構造の Zn<sub>x</sub>Cu<sub>0.5-x</sub>Co<sub>0.5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の単相試料を作製した。その円盤状ペレットの上面に歪みゲージを貼り付け、面内に磁場を印加して磁歪特性を評価した。

### 実験結果

Zn<sub>x</sub>Cu<sub>0.5-x</sub>Co<sub>0.5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 試料の  $x = 0.0$  および  $0.1$  の室温における磁化曲線を Fig. 1 に示す。Cu の Zn 部分置換により、飽和磁化は増加する。5 K においても、同様の傾向が観察された。立方晶スピネル構造において、8 個の四面体サイトと 16 個の八面体サイトの磁気モーメントは反強磁性結合する。2 価の Cu および Co は主に八面体サイトを占有し、3 価の Fe が残りの八面体サイトと四面体サイトを占有しているとすると、磁気モーメントを持たない 2 価の Zn は四面体サイトを占有すると推察される。室温における歪みの磁場依存性を Fig. 2 に示す。縦軸は、測定方向に対し平行および垂直に磁場を印加して測定した歪みの差の絶対値  $|\Delta L/L_{\parallel} - \Delta L/L_{\perp}|$  を示す。磁場印加により、 $|\Delta L/L_{\parallel} - \Delta L/L_{\perp}|$  は極大を示した後、徐々に減少して飽和傾向を示す。Zn 部分置換により、最大印加磁場での値は減少する。しかし、 $|\Delta L/L_{\parallel} - \Delta L/L_{\perp}|$  が極大に達する印加磁場は減少し、約 2.7 kOe 以下の比較的低磁場では Zn 部分置換前よりも大きな値を示す。つまり、Cu の Zn 部分置換により、低磁場印加での磁歪特性は向上する。

### 参考文献

- 1) S. Kosugi, M. Hisamatsu, Y. Ohishi, H. Muta, S. Seino, T. Nakagawa, S. Fujieda, Mater. Trans. (2023) in press.

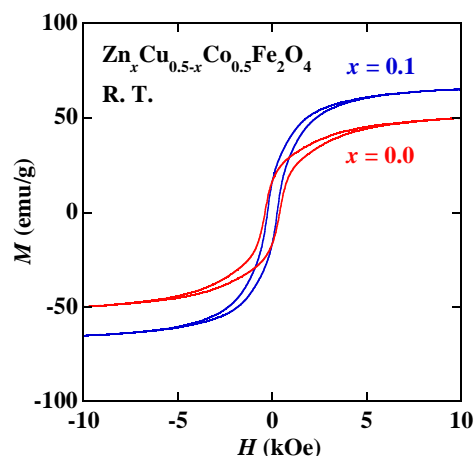


Fig. 1 Magnetization curves at room temperature of Zn<sub>x</sub>Cu<sub>0.5-x</sub>Co<sub>0.5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> with  $x = 0.0$  and  $0.1$ .

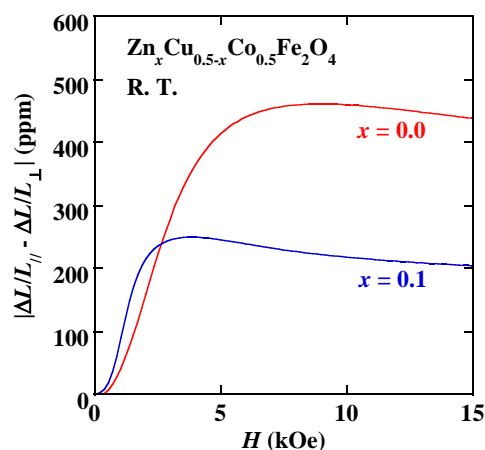


Fig. 2 Magnetic field dependence of strain  $|\Delta L/L_{\parallel} - \Delta L/L_{\perp}|$  at room temperature of Zn<sub>x</sub>Cu<sub>0.5-x</sub>Co<sub>0.5</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> with  $x = 0.0$  and  $0.1$ .

## 磁性窒化物薄膜における磁歪と磁気ダンピングの相関

伊藤啓太<sup>1</sup>、Ivan Kurniawan<sup>2</sup>、三浦良雄<sup>2</sup>、遠藤恭<sup>3</sup>、関剛斎<sup>1</sup>

(東北大金研<sup>1</sup>、物材機構<sup>2</sup>、東北大工<sup>3</sup>)

Correlation between magnetostriction and magnetic damping in magnetic nitride films

Keita Ito<sup>1</sup>, Ivan Kurniawan<sup>2</sup>, Yoshio Miura<sup>2</sup>, Yasushi Endo<sup>3</sup>, Takeshi Seki<sup>1</sup>

(IMR, Tohoku Univ.<sup>1</sup>, NIMS<sup>2</sup>, Grad. Sch. Eng. Tohoku Univ.<sup>3</sup>)

【背景】磁歪材料は、振動発電素子やトルクセンサに応用され、近年のフレキシブルスピントロニクスへの展開でも注目されているが、大きな磁歪を示す強磁性材料は Fe-Ga 合金や Tb-Dy-Fe 合金など希少金属や希土類元素を含むものが多い。ごく最近、資源が豊富な元素のみで構成される強磁性窒化鉄の Fe<sub>4</sub>N が、Co や Ni 等の典型的な単体強磁性金属よりも数倍大きい磁歪定数( $\lambda_{100} = -75$  ppm)を示すことが報告された<sup>1)</sup>。したがって、強磁性窒化物は希少金属・希土類フリー高磁歪材料として期待できるが、更なる高磁歪化に向けた材料設計指針は明らかになっていない。本研究では、第三元素として Mn および Co を添加した Fe<sub>4</sub>N 薄膜における磁歪を調べた。第三元素の添加量を系統的に変えて試料を作製し、 $\lambda_{100}$ 、飽和磁化( $M_s$ )、磁気異方性定数( $K_1$ )、ダンピング定数( $\alpha$ )、フェルミ準位における電子の状態密度( $D$ )の大きさとの相関関係を調べることで、 $\lambda_{100}$  の大きさを決める物理量を明らかにし、高磁歪材料を得るための指導原理の確立を試みた。

【実験方法】分子線エピタキシー法により、SrTiO<sub>3</sub>(001)基板上に、Fe<sub>4</sub>N、Fe<sub>4-x</sub>Mn<sub>x</sub>N( $x = 0.1, 0.4, 1.0$ )、Fe<sub>4-y</sub>Co<sub>y</sub>N( $y = 0.2, 0.5, 0.8, 1.7, 2.2$ )薄膜を作製した。成膜温度は 450 °C を基本としたが、Fe<sub>4-y</sub>Co<sub>y</sub>N( $y = 1.7, 2.2$ )薄膜については窒素の脱離が生じたため、温度を 400 °C に下げた。試料の構造は X 線回折測定と反射高速電子回折により評価した。 $\lambda_{100}$  は光てこ法により測定した。窒化物薄膜の膜面内方向に最大 175 Oe の回転外部磁場を印加し、反射レーザー光の変位量を測定することで  $\lambda_{100}$  を測定した。 $M_s$  および  $K_1$  は振動試料型磁力計により、膜面内 [100] 方向および [110] 方向に外部磁場を印加し、磁化曲線を測定することで測定した。 $\alpha$  は 1 ポート型のコプレーナウェーブガイドとベクトルネットワークアナライザを用いた強磁性共鳴法により測定した。1 ~ 25 GHz の高周波および膜面内 [100] 方向に 200 ~ 2400 Oe の外部磁場を印加し、得られた共鳴ピークの線幅の外部磁場依存性から  $\alpha$  を算出した。いずれの測定も、室温において実施した。

【結果】構造評価の結果、Fe<sub>4</sub>N、Fe<sub>4-x</sub>Mn<sub>x</sub>N、Fe<sub>4-y</sub>Co<sub>y</sub>N 薄膜のエピタキシャル成長を確認できた。 $\lambda_{100}$  は Fe<sub>4</sub>N において報告値を超える -110 ppm を示したが、Mn または Co を添加することで絶対値が減少した。 $|\lambda_{100}|$ 、 $M_s$ 、 $|K_1|$ 、 $\alpha$  の添加元素濃度依存性を比較したところ、 $|\lambda_{100}|$  と  $\alpha$  の間に明瞭な正の相関関係が見られた。 $\alpha$  には resistivity-like 項と conductivity-like 項があり<sup>2)</sup>、理論式によれば<sup>3)</sup>、前者は  $\alpha \propto \xi^2 D / \tau M_s$ 、後者は  $\alpha \propto \xi^2 D \tau / M_s$  で表される。 $\xi$  はスピン軌道結合定数、 $\tau$  は電子散乱の緩和時間である。 $|\lambda_{100}|$  と  $\alpha$  の共通項として  $\xi$  が大きく寄与している場合は、 $|\lambda_{100}|$  と  $\alpha$  に加えて  $|K_1|$  との間にも正の相関関係が見られるはずであるが、そのような相関は得られなかったことから、 $\xi$  の寄与だけでは  $|\lambda_{100}|$  と  $\alpha$  の正の相関を説明できない。また  $M_s$  の変化も  $\alpha$  の変化とは違う傾向を示した。 $|\lambda_{100}|$  と  $\alpha$  の共通項として  $\tau$  が大きく寄与していると仮定した場合、 $\alpha$  の機構が resistivity-like が主であれば、 $|\lambda_{100}|$  と  $\alpha$  とともに  $1/\tau$  の依存性が想定される。格子系とスピン系の結合の強い材料では、 $\tau$  は短く、 $|\lambda_{100}|$  は大きく、 $\alpha$  は大きくなることを意味している。講演では、 $D$  の添加元素濃度依存性および  $\alpha$  における conductivity-like 項の寄与について第一原理計算を用いて調べることで上記の仮定を検証し、より大きな磁歪定数を実現するための材料設計指針を議論する。

【参考文献】1) Y. Maeda *et al.*, 信学技報 **121**, MRIS2021-7, 6 (2021). 2) S. M. Bhagat and P. Lubitz, Phys. Rev. B **10**, 179 (1974). 3) V. Kamberský, Can. J. Phys. **48**, 2906 (1970).

# 直接および間接測定による逆磁歪効果に起因した磁束密度変化の比較

岡田 拓、藤枝 俊、清野智史、中川 貴  
(阪大工)

Comparison of magnetic flux density change due to inverse magnetostrictive effect between direct and indirect measurements

T. Okada, S. Fujieda, S. Seino, T. Nakagawa  
(Graduate School of Engineering, Osaka Univ.)

## はじめに

逆磁歪効果を利用した振動発電は、IoT デバイスの次世代電力源として注目されている<sup>1)</sup>。優れた発電特性を実現するには、一定磁場中での応力印加により、逆磁歪効果に起因して大きな磁束密度変化を示す材料が求められる。新規材料開発のためには適切な材料評価が必要だが、従来は一定応力中での磁場印加により測定した磁化曲線の応力依存性から、間接的に磁束密度変化が評価されている<sup>2)</sup>。そこで本研究では、一定磁場中での応力印加による磁束密度変化の直接測定を実施し、従来法の間接測定から得た値と比較した。

## 実験方法

試料には  $50 \times 5 \times 0.5 \text{ mm}^3$  の圧延まま Fe-70 at.% Co 合金 (東北特殊鋼 (株) 提供) を用いた。試料にピックアップコイルを取り付け、Fig.1 (a) に示すように、引張試験機により動的または静的な引張応力を印加した。また、試料の外側に設置したソレノイドコイルにより交流または直流磁場を印加した。間接測定では静的応力印加中に交流磁場を印加し、直接測定では直流磁場印加中に動的応力を印加することで磁束密度変化を評価した。

## 実験結果

間接測定では、無印加応力状態と 160 MPa の引張応力を印加した状態で磁化曲線を測定し、磁束密度変化  $\Delta B$  を求めた。間接測定により得た磁場増加過程と減少過程における  $\Delta B$  の磁場依存性を Fig.1 (b) に示す。間接測定により求めた  $\Delta B$  は、磁場の増加に伴い 0.43 T のピークを示し、その後減少する。磁場が 0 から 40 mT の範囲では、磁場増加過程と減少過程で  $\Delta B$  値が異なり、ヒステリシスの影響を示す。直接測定では、一定磁場を印加した状態で、160 MPa の引張応力を印加した際に発生する電圧から  $\Delta B$  を求めた。Fig.1 (c) に示すように、直接測定により得た  $\Delta B$  のピーク値は 0.31 T であり、間接測定により得た値より小さい。また、直接測定により求めた  $\Delta B$  においても磁場増加過程と減少過程で差が表れるが、間接測定と比べるとその差はわずかであり、ヒステリシスの影響は小さい。このような逆磁歪効果に起因した  $\Delta B$  の違いは、間接測定と直接測定における磁壁移動の違いに起因すると推察される。

## 参考文献

- 1) T. Ueno *et al.*, IEEE Trans. Magn., **47** (2011) 2407.
- 2) S. Inoue *et al.*, AIP Adv., **11** (2021) 069901.

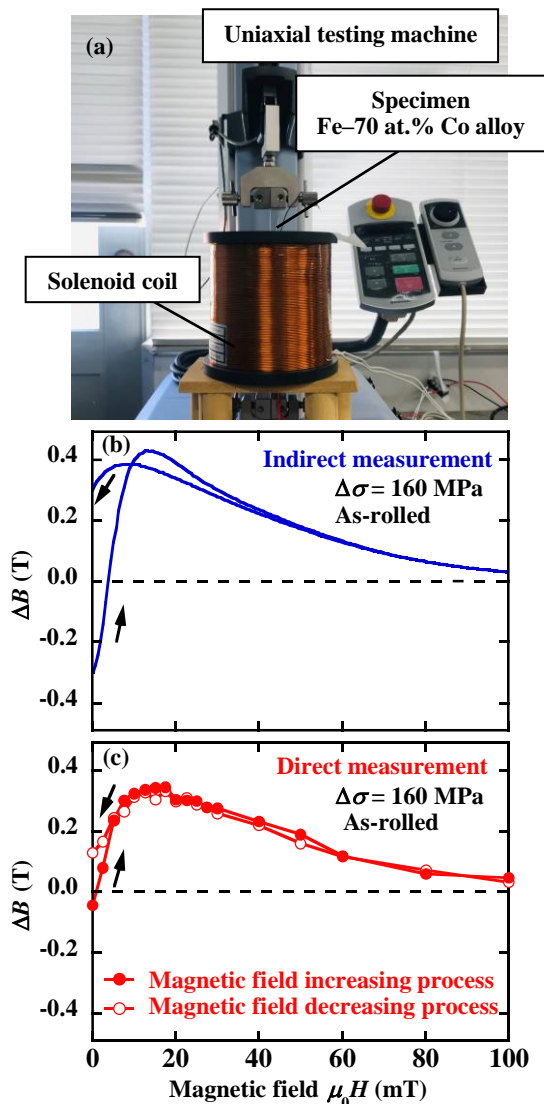


Fig.1 (a) Photograph of setup to evaluate the magnetic flux density change,  $\Delta B$ , in indirect and direct measurements. Magnetic field,  $\mu_0 H$ , dependence of  $\Delta B$  obtained by (b) indirect and (c) direct measurements.