

# 振動発電用の Fe-Ga 合金 単結晶の逆磁歪効果

藤枝 俊\* 栢 修一郎<sub>1)</sub>\*\* 川又 透\*\*\* 志村 玲子\*\*\*\*  
石山和志<sub>2)</sub>\* 福田 承生\*\*\*\*\* 鈴木 茂\*\*\*\*\*

## 1. はじめに

無磁場中において、強磁性体は磁区と呼ばれる磁化方向が揃った複数の領域を作り、外に漏れる磁束を低減した磁区構造を形成する。また、各磁区の内部では電子スピンと軌道の相互作用(スピン軌道相互作用)に起因して、磁歪と呼ばれる磁化方向に依存した結晶格子歪みが生じる。そのため、強磁性体に磁場を印加すると外形が歪む。これが磁歪効果(≡Joule 効果)である。この逆効果として、強磁性体へ応力を印加すると磁氣的性質が変化する。この現象は、逆磁歪効果(≡Villari 効果)と呼ばれる。

2011年に上野らにより逆磁歪効果を利用して身近で発生する振動を電気エネルギーに変換する画期的な振動発電デバイスが開発され<sup>(1)(2)</sup>、IoT(Internet of Things)デバイス用の小型電源として注目されている<sup>(3)</sup>。その振動発電の原理を、電磁誘導の原理と比較して図1に示す。導電性のコイルに磁石を近づけて、磁束がコイルを貫くと電磁誘導により誘導起電力が生じる(図1左参照)。この時に発生する電圧  $V$  は、次式に示す Faraday の法則で表され、コイルを貫く磁束の時間変化  $d\Phi/dt$  に比例する。

$$V = -N \frac{d\Phi}{dt} \quad (1)$$

ここで、 $N$ はコイルの巻き数を表す。一方、図1右に示すように、逆磁歪効果を利用した振動発電では、コイルの中に磁性体を設置し、バイアス磁場を印加して磁化させる。磁性体が振動により圧縮されたり引張られたりすると、逆磁歪効果によりコイルを貫く磁束が変化するため、磁性体の移動無しでも電磁誘導による誘導起電力が得られる。従って、優れた振動発電デバイスを実現するには、逆磁歪効果により大きな磁束変化を示す磁性体、すなわち“逆磁歪材料”が要求される。

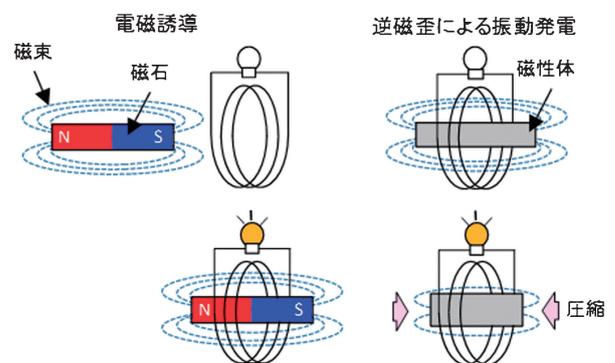


図1 電磁誘導(左)および逆磁歪効果を利用した振動発電(右)の原理の比較。(オンラインカラー)

\* 大阪大学大学院工学研究科；准教授(〒565-0871 吹田市山田丘 2-1)

\*\* 東北大学 電気通信研究所；1)准教授 2)教授

\*\*\* 東北大学 金属材料研究所；助教

\*\*\*\* 東北大学 多元物質科学研究所；准教授

\*\*\*\*\* 福田結晶技術研究所；社長

\*\*\*\*\* 東北大学 マイクロシステム融合研究開発センター；教授

Inverse Magnetostrictive Effect in Fe-Ga Alloy Single Crystals for Application to Vibration Power Generation; Shun Fujieda\*, Shuichiro Hashi\*\*, Toru Kawamata\*\*\*, Rayko Simura\*\*\*\*, Kazushi Ishiyama\*\*, Tsuguo Fukuda\*\*\*\*\*, Shigeru Suzuki\*\*\*\*\* (\*Department of Management of Industry and Technology, Graduate School of Engineering, Osaka University, Osaka. \*\*Reserch Institute of Electrical Communication, Tohoku University, Sendai. \*\*\* Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai. \*\*\*\*Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University, Sendai. \*\*\*\*\*Fukuda Crystal Laboratory, Sendai. \*\*\*\*\*Micro System Integration Center, Tohoku University, Sendai)

Keywords: inverse magnetostrictive effect, Villari effect, magnetostriction, magnetic domain, energy harvesting

2019年9月25日受理[doi:10.2320/materia.59.10]

本稿では、振動発電用の逆磁歪材料として bcc 構造の Fe-Ga 合金単結晶に着目して取り組んだ著者らの最近の研究成果を示す。まず、次節では Fe-Ga 合金単結晶の振動発電への応用により優れた発電特性が得られることを概説する。3 節では、Fe-Ga 合金単結晶の初期磁区構造(無印加磁場および無印加応力状態)および磁場印加の影響について述べる。4 節では、応力印加による磁区構造の変化および機械的性質との関係を明らかにする。それらの結果を踏まえ、5 節では Fe-Ga 合金単結晶の優れた発電特性の発現機構について磁区構造の観点から説明する。最後に 6 節でまとめを行う。

## 2. Fe-Ga 合金単結晶の振動発電への応用

bcc 構造の Fe-Ga 合金は 2000 年に Clark らにより見出された磁歪材料であり、17 at% 程度の Ga 濃度で Ni, Fe-Al 合金および Fe-Co 合金よりも大きな約 311 ppm の磁歪効果を示す<sup>(4)(5)</sup>。この値は超巨大磁歪材料と呼ばれる Tb-Dy-Fe 化合物の磁歪効果より小さい<sup>(6)</sup>。しかし、Fe-Ga 合金は比較的良好な機械的性質を有し、脆い Tb-Dy-Fe 化合物では困難な機械加工も可能である<sup>(7)-(9)</sup>。さらに、前者の飽和磁束密度は 1.5 T 程度で、後者(1 T 程度)よりも大きい。つまり、Fe-Ga 合金は比較的大きな磁歪と飽和磁束密度および良好な機械的性質を併せ持っている。

Fe-Ga 合金の磁歪定数は結晶方位に強く依存する<sup>(4)(5)</sup>。例えば、Ga 濃度 13 at% の Fe-Ga 合金の磁歪定数は  $\langle 100 \rangle$  方向で最大であり、その値(約 140 ppm)は  $\langle 111 \rangle$  方向の磁歪定数よりも約 9 倍も大きい<sup>(5)</sup>。そこで、著者らは結晶方位の揃った単結晶に着目した<sup>(10)(11)</sup>。Czochralski (CZ) 法により Fe-Ga 合金単結晶を作製し<sup>(12)(13)</sup>、切り出した試験片の  $\langle 100 \rangle$  方向と振動による応力の発生方向が平行になるようにデバイス(上野らが開発した旧型の平行梁型デバイス<sup>(14)</sup>)に搭載して振動発電試験を行った<sup>(12)</sup>。その結果、4 V 程度の振動発電に成功し、それが飽和磁束密度の 53% に相当する 0.8 T 程度の磁束変化に起因することを突き止めた。つまり、Fe-Ga 合金単結晶は、逆磁歪効果による大きな磁束変化に起因して優れた発電特性を実現できるため、逆磁歪材料として有望である。なお、Fe-Ga 合金単結晶の CZ 法による作製<sup>(15)(16)</sup> および振動発電デバイス<sup>(17)</sup>の詳細は解説記事を参照されたい。

## 3. Fe-Ga 合金単結晶の初期磁区構造および磁場印加の影響

Fe-Ga 合金単結晶を搭載した振動発電デバイスの発電特性を向上させるには、逆磁歪効果による大きな磁束変化の発生機構の解明が大切である。そこで、Kerr 効果顕微鏡を用いて逆磁歪効果と密接に関連する磁区構造の詳細な観察を行った。Ga 濃度 16.1 at% の Fe-Ga 合金単結晶の(001)面の初期磁区構造を図 2 に示す<sup>(18)</sup>。観察には直径 10 mm で厚さ 2 mm の円盤状試料を用いた。磁場印加により磁化飽和させた

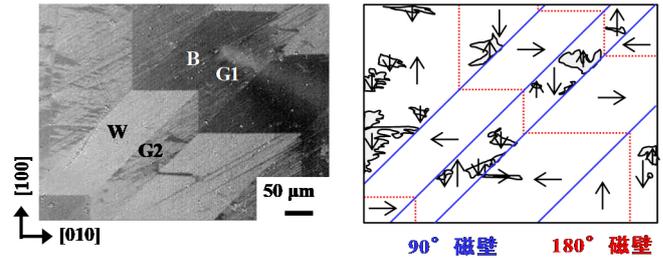


図 2 Fe-Ga 合金単結晶の(001)面の初期磁区像(無印加磁場および無印加応力)(左)と模式図(右)<sup>(18)</sup>。右図において、矢印は各磁区の磁化方向を表し、灰色の磁区は補助磁区を表す。(オンラインカラー)

状態を基準とし、その差分により磁区画像を得た。観察面が 2° 程度傾いているため補助磁区も含むが、コントラストの異なる 4 種類の磁区(B, W, G1 および G2)が観察された。観察光の入射方向とコントラストの関係を解析した結果、B 磁区および W 磁区の磁化方向は  $[010]$  および  $[0\bar{1}0]$  であり、G1 磁区および G2 磁区の磁化方向は  $[\bar{1}00]$  および  $[100]$  であった。隣り合う B 磁区と W 磁区および G1 磁区と G2 磁区の磁化方向はほぼ 180° で、磁区を隔てる磁壁に着目すると階段状である。一方、隣接する B 磁区と G1 磁区および W 磁区と G2 磁区の磁化方向はほぼ 90° で、その磁壁は直線的である。すなわち、Fe-Ga 合金単結晶の  $\{100\}$  面の初期磁区構造は、主に面内の 4 つの  $\langle 100 \rangle$  磁化容易軸方向を磁化方向とする磁区で構成され、それらは直線的な 90° 磁壁と階段状の 180° 磁壁で隔てられる。

図 3(a)-(d) に  $[010]$  方向への磁場印加による磁区構造の変化を示す<sup>(18)</sup>。300 Oe の磁場印加により、観察領域の左下外側から 180° 磁壁が現れる。また、右上の 180° 磁壁は、さらに右上に移動する。印加磁場を 560 Oe まで増加させると、左下の 2 つの 180° 磁壁は衝突して消滅し、右上の 180° 磁壁は観察領域の右上外側へ移動する。上述のように階段状の 180° 磁壁が移動・消滅している間、直線的な 90° 磁壁は殆ど移動しない。その結果、980 Oe の印加磁場では、直線的な 90° 磁壁のみで構成された縞状磁区となる。さらに強い磁場を印加すると、90° 磁壁が移動し始め、1960 Oe で磁場印加方向を磁化方向とする単磁区状態に達する。このように、磁場印加による磁区構造変化の特徴が明らかになった。

図 4 に磁区観察と同一単結晶の  $[010]$  方向の磁化  $M_{[010]}$  および歪み  $\Delta L/L_{[010]}$  の磁場依存性を示す<sup>(18)</sup>。これらの測定において、磁場は磁区観察と同様に  $[010]$  方向に印加した。磁場印加により、磁化方向が磁場方向の磁区( $\rightarrow$  方向)の割合が増加するため(図 3 参照)、磁化は増加する。一方、300 Oe 以下の印加磁場では、 $\Delta L/L_{[010]}$  曲線は殆ど変化しない。また、560 Oe 程度の印加磁場でも  $\Delta L/L_{[010]}$  は 30 ppm 程度である。その後、さらに強い磁場を印加すると  $\Delta L/L_{[010]}$  は急激に増大し、磁化と同程度の印加磁場で飽和する。Fe-Ga 合金の  $\langle 100 \rangle$  方向の磁歪定数は正であり<sup>(4)(5)</sup>、各磁区において結晶格子は磁化方向の  $\langle 100 \rangle$  磁化容易軸方向に伸び

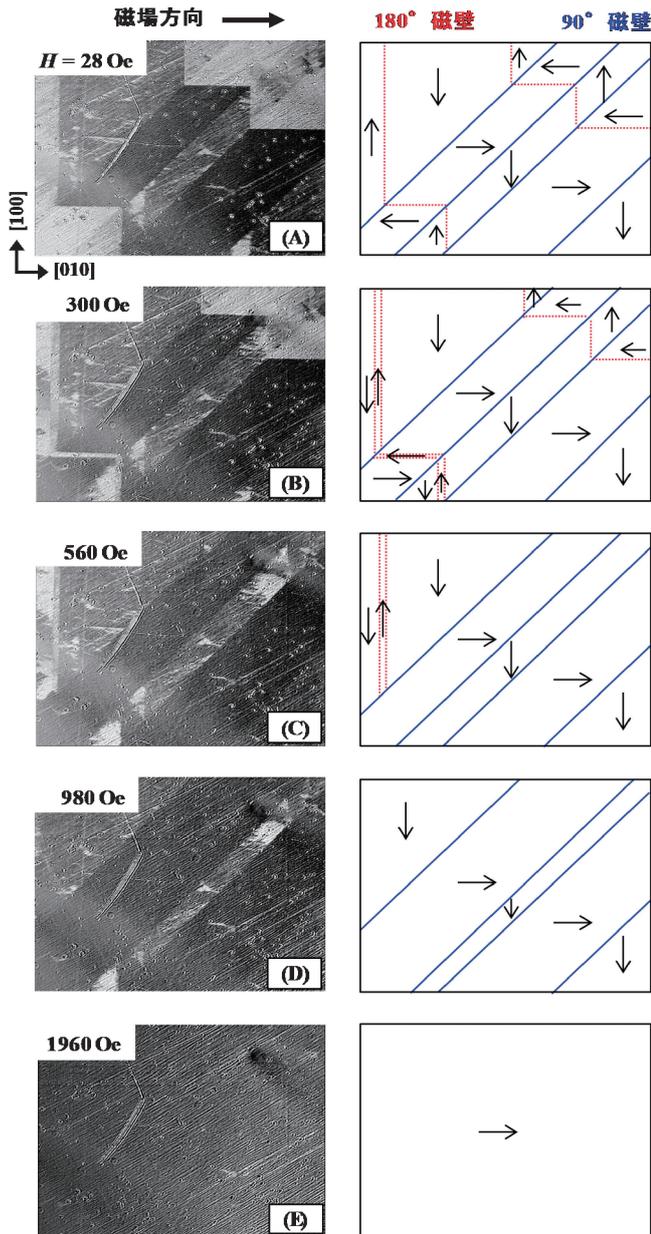


図3 [010]方向に磁場を印加して観察したFe-Ga合金単結晶の(001)面の磁区像(左)と模式図(右)<sup>(18)</sup>。右図の矢印は各磁区の磁化方向を表す。

ている。つまり、比較的低磁場で生じる180°磁壁の移動では、格子が[010]方向と平行方向に伸びている磁区(→方向および←方向)の割合は増加しないため、 $\Delta L/L_{[010]}$ 曲線は殆ど変化しない。比較的高磁場で生じる90°磁壁の移動により、格子が[010]方向と平行方向に伸びている磁区の割合は増加するので $\Delta L/L_{[010]}$ は増加する。つまり、図4下の $\Delta L/L_{[010]}$ 曲線の振舞いは、図3に示した磁区観察の結果と対応する。Kerr効果顕微鏡で観察できるのは表面近傍のみであるが、Fe-Ga合金単結晶の内部においても、図3で述べた特徴と同様の磁区構造変化が生じると推察される。

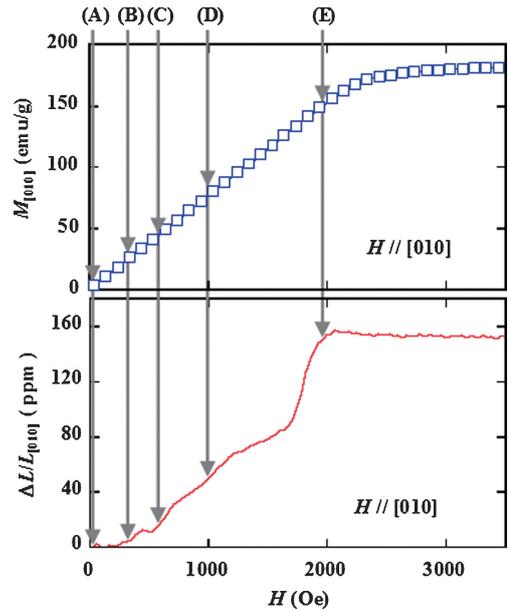


図4 Fe-Ga合金単結晶の[010]方向の磁化 $M_{[010]}$ (上)および歪み $\Delta L/L_{[010]}$ (下)の磁場依存性<sup>(18)</sup>。[010]方向に磁場を印加した。また、図3の(A)~(E)に対応する状態を矢印で示す。

#### 4. 応力印加による磁区構造の変化とヤング率との関係

引張り応力を印加したGa濃度12.8at%のFe-Ga合金単結晶の[010]方向の歪み $\Delta L/L_{[010]}$ の磁場依存性を図5に示す<sup>(19)</sup>。測定には、縦5.51mm、横4.67mmで厚さ0.54mmの板状試料を用いた。引張り応力および磁場は、[010]方向と平行に印加した。無印加応力状態において、 $\Delta L/L_{[010]}$ 曲線は160ppm程度に飽和する。ここで、飽和磁場が図4の値よりも低いのは、主に試料の形状が異なることに起因する。引張り応力の印加により、 $\Delta L/L_{[010]}$ 曲線の飽和値は減少する。前節で述べたように、 $\Delta L/L_{[010]}$ 曲線は磁区構造と密接に関わる。従って、引張り応力の印加による磁区構造の変化が強く示唆される。

同一単結晶の[010]方向と平行に引張り応力を印加して観察した磁区構造の変化を図6に示す<sup>(19)(20)</sup>。5.7MPa程度の引張り応力を印加すると、初期磁区を構成する直線的な90°磁壁および階段状の180°磁壁は同時に動き出す。さらに応力を印加すると、引張り方向に対して磁化方向が垂直の磁区(↑方向および↓方向)の割合が減少し、磁化方向が平行の磁区(→方向および←方向)の割合が増加する。さらに、11.4MPaの引張り応力を印加すると、引張り方向に対して磁化方向が垂直の磁区(→方向および←方向)は消滅し、磁化方向が平行の磁区(→方向および←方向)で構成された縞状構造となる。一方、圧縮応力を印加すると、圧縮方向と磁化方向が垂直の磁区で構成された縞状構造が観察された<sup>(21)</sup>。つまり、磁歪による結晶格子の歪みで印加応力を緩和するために90°磁壁は移動・消滅し、その際に磁束が外に漏れないように180°磁壁は階段状から直線的になると説明される。図3

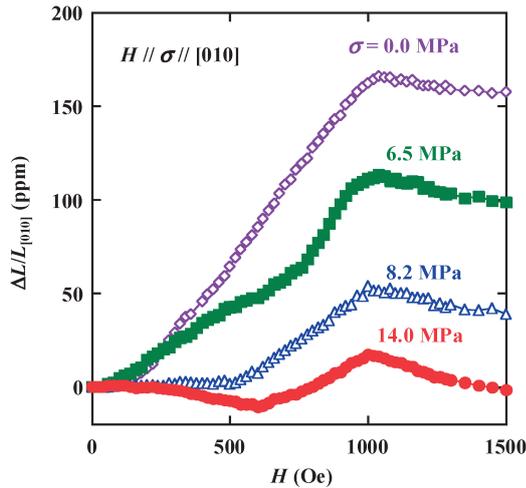


図5 引張り応力を印加したFe-Ga合金単結晶の[010]方向の歪み $\Delta L/L_{[010]}$ の磁場依存性<sup>(19)</sup>. 引張り応力および磁場は、[010]方向と平行に印加した。

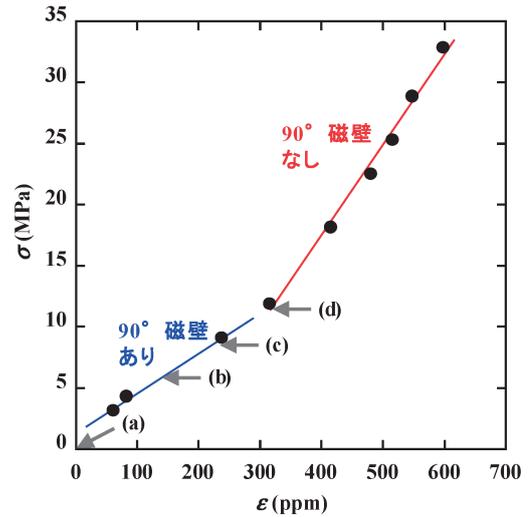


図7 Fe-Ga合金単結晶の張り応力 $\sigma$ —歪み $\varepsilon$ 曲線<sup>(19)</sup>. [010]方向と平行に引張り応力を印加した. 図5の(a)~(d)に対応する状態を矢印で示す。

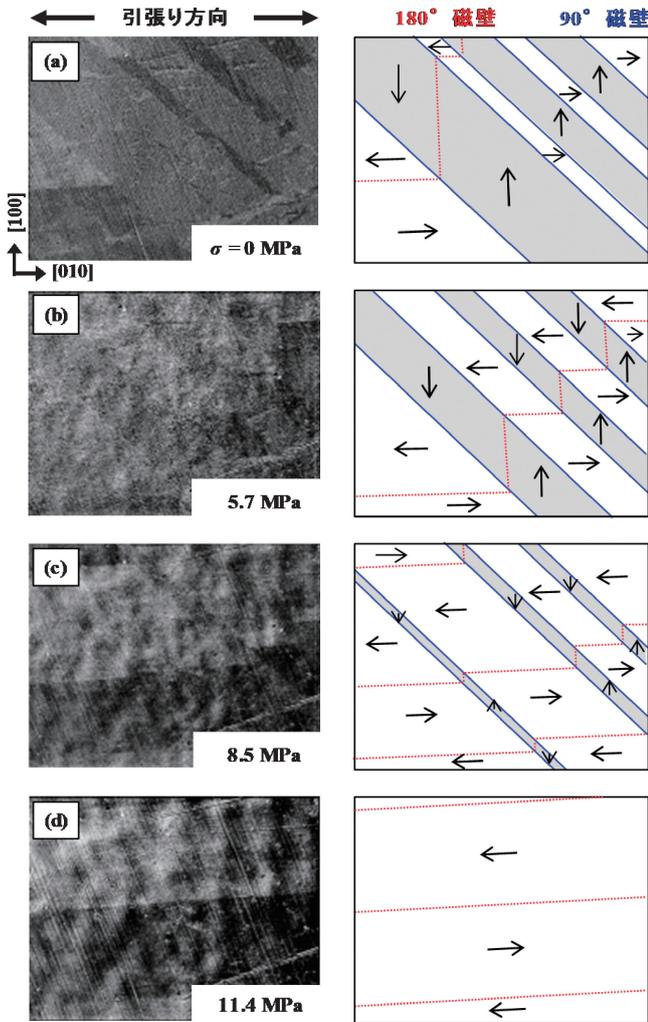


図6 [010]方向と平行に引張り応力を印加して観察したFe-Ga合金単結晶の(001)面の磁区像(左)と模式図(右)<sup>(19)</sup>. 右図において、矢印は各磁区の磁化方向を表し、磁化方向が引張り方向と垂直の磁区を灰色で示す。

で述べた磁場印加とは異なる、応力印加による磁区構造変化の特色が明らかになった。また、90°磁壁が消滅する11.4 MPa以上の引張り応力において図5の $\Delta L/L$ 曲線の飽和値はほぼゼロであり、磁区観察結果と対応することから、Fe-Ga合金単結晶の内部においても同様の特徴の磁区構造変化が生じていると推察される。

上述の磁区構造の変化は、機械的特性にも大きな影響を及ぼす。図7に同一単結晶の引張り応力—歪み曲線を示す<sup>(19)</sup>。応力—歪み曲線は、図6で90°磁壁がほぼ消滅する11.4 MPa近傍の印加応力で大きく折れ曲がる。11.4 MPa以上の印加応力における応力—歪み曲線の傾きから求めたヤング率は74 GPaであり、既報と同程度の値を示す<sup>(22)</sup>。一方、11.4 MPa以下のデータから求めたヤング率は32 GPaである。つまり、90°磁壁の移動・消滅による応力緩和により、ヤング率は59%も低下する。ここで注意しなければならないことは、11.4 MPa近傍の印加応力における歪みが300 ppm程度もあり、図5で示した無印加応力における $\Delta L/L_{[100]}$ 曲線の飽和値よりも2倍程度も大きいことである。このことは、応力印加による磁区構造の変化は弾性変形も伴うことを意味する。Fe-Ga合金単結晶では、印加応力の半分は弾性変形に費やされ、残りの半分程度しか磁区構造の変化には寄与しない。従って、逆磁歪効果を利用して優れた発電特性を得るには、磁性体に磁歪よりも大きな歪みを印加する必要がある。

## 5. 逆磁歪効果による磁束変化の発生機構

図1で述べたように、優れた発電特性を得るには逆磁歪効果による大きな磁束変化が求められる。3および4節で述べた磁区観察結果より予想されるFe-Ga合金単結晶の逆磁歪効果による磁束変化の発生機構を図8に示す<sup>(23)</sup>。無印加

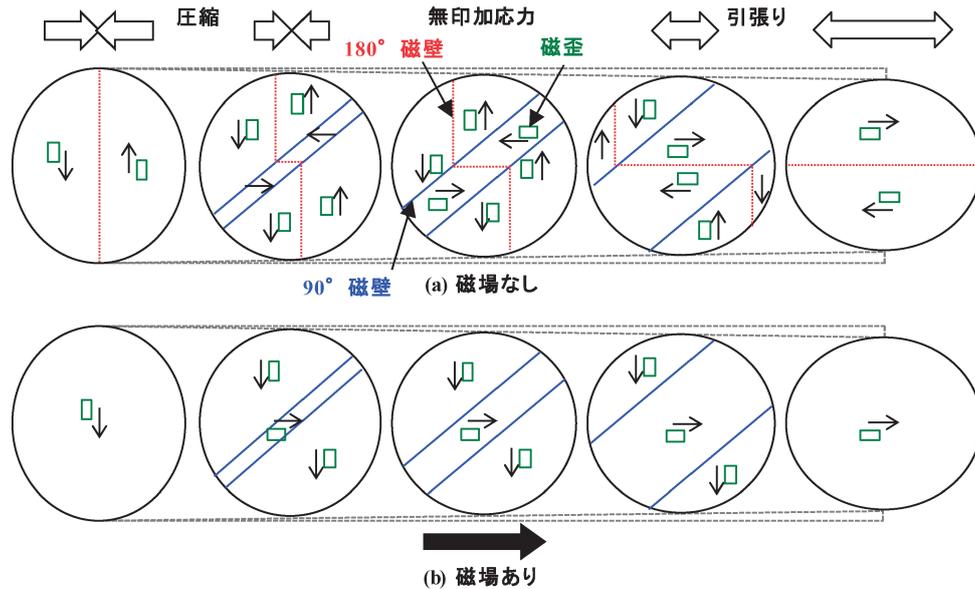


図8 磁区観察結果より予想される Fe-Ga 合金単結晶の応力印加による磁束変化の発生機構の模式図<sup>(23)</sup>. 矢印は磁区の磁化方向を表す. また, 各磁区における磁歪による結晶格子歪みを長方形で示す.

磁場および無印加応力の初期磁区は、直線的な  $90^\circ$  磁壁と階段状の  $180^\circ$  磁壁で形成される. この状態で Fe-Ga 合金単結晶に引張りおよび圧縮応力を印加すると、印加応力を緩和するように  $90^\circ$  磁壁は移動・消滅する. すなわち、引張り応力および圧縮応力と平行および垂直な  $180^\circ$  磁壁で構成された縞状磁区となる. 従って、磁束変化は生じない. 一方、無印加応力で適切な強さの磁場（バイアス磁場）を印加すると  $180^\circ$  磁壁が移動・消滅して、直線的な  $90^\circ$  磁壁で構成された縞状磁区となる（図 8(b) 参照）. この状態で応力を印加して  $90^\circ$  磁壁を移動・消滅させると、今度は引張り応力および圧縮応力と平行および垂直な磁化方向の単磁区に近い状態が生じ、大きな磁束変化が生じる. 従って、初期磁区構造およびバイアス磁場の強さが Fe-Ga 合金単結晶を利用して優れた発電特性を実現する鍵となる.

最近、我々は振動発電デバイスに搭載した状態の Fe-Ga 合金単結晶の磁区観察に成功した<sup>(24)</sup>. 図 9 (a) に示すように、上野らが開発した新型のユニモルフ振動発電デバイスでは、U 字型フレームに Fe-Ga 合金単結晶を貼り付けた状態でコイルを巻き付けて、永久磁石でバイアス磁場を印加する構造になっている. 磁区観察は、図 9 (b) に示すように、自由端を振動させた際の応力の発生方向と  $[010]$  方向が平行で観察面が  $(001)$  面となるように Ga 濃度 14.3 at% の Fe-Ga 合金単結晶をデバイスに貼り付け、コイルと永久磁石を取り外した状態で行った. 例として、無印加応力では 3.5 mm の U 字型フレームの開口部 ( $D$ ) を 2.0 mm に押し縮めて観察した結果を図 9 (c) に示す. デバイスに搭載した状態では磁化飽和状態の参照像を得ることが出来ず Kerr 効果顕微鏡での観察が困難であったため、この観察では参照像無しで明瞭な磁区像が得られる Faraday 効果磁場センサーを利用した. 観察視野が限られているため、領域を分割して観察した結果

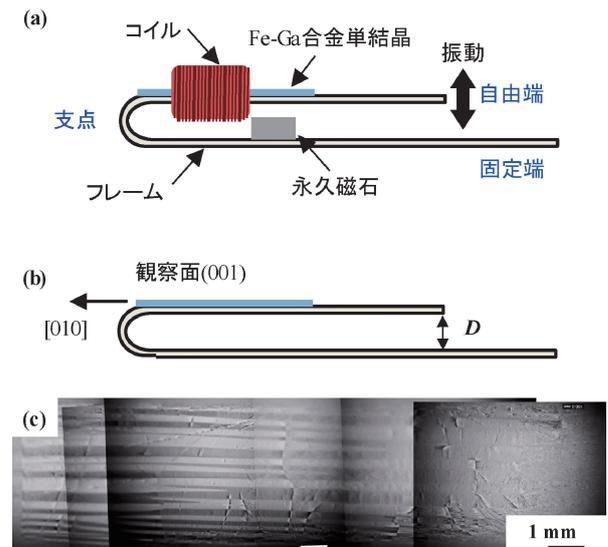


図9 (a)ユニモルフ型振動発電デバイスおよび(b)磁区観察方法の模式図. (c)デバイスに搭載した状態の Fe-Ga 合金単結晶の  $(001)$  面の磁区像<sup>(24)</sup>.

を繋ぎ合わせて Fe-Ga 合金単結晶の全面的磁区像を得た. 単結晶の自由端側では、微細で複雑な磁区構造であるが、支点側では引張り応力方向とはほぼ平行の直線的な  $180^\circ$  磁壁で構成された縞状磁区が観察された. つまり、応力が支点側に集中するため不均一であるが、図 8 で述べた磁区構造変化がデバイスに搭載した状態で確認された.

## 6. おわりに

人工知能およびロボットの技術の目覚ましい進展が期待されており、それらの技術で利用される様々な情報を収集およ

