

Fe 基磁性薄膜の磁歪に関する研究

A study on magnetostriction of Fe-based magnetic thin films

電気電子情報通信工学専攻 川井 哲郎

Fe 基軟磁性合金は変圧器や電動機の鉄心材料として幅広く実用化されている。しかし、鉄心の振動によるエネルギー損失や騒音発生が課題が残されており、それらの低減が要望されている。これらの課題には励磁する際に磁性材料の寸法が変化する磁歪現象が関与している。Fe 基軟磁性材料の磁歪挙動を解析することを目的に、本研究では Fe 基合金の単結晶薄膜を作製し、回転磁場中でその磁歪挙動を詳細に調べた。その結果、結晶磁気異方性が磁歪挙動に大きく影響しており、結晶磁気異方性の影響により磁歪の観察方向（磁化容易軸方向と困難軸方向）に依存してバスタブ状や三角波状の複雑な磁歪挙動を示すことが明らかになった。これらの磁歪特性を実測した磁化曲線に基づいた修正一斉回転モデルで解析した。その結果、結晶磁気異方性の影響で印加した磁場の角度と回転する磁化の角度が異なる場合にこのような複雑な磁歪挙動が生じることが明らかになった。また、この解析により任意の配向面の任意の方向での磁歪挙動の予測が可能となった。

1. 背景と研究目的

Fe 基合金はその優れた軟磁気特性を活用して変圧器や電動機の鉄心材料として幅広く実用化されている。これらの電磁変換機器の鉄心材料にはエネルギー効率の面からはより低損失化、環境配慮の面からはより低騒音化が求められている。励磁により磁性材料の寸法が変化する原因は磁歪であり、鉄心材料の機械振動が原因で騒音が発生する^[1]。機器のエネルギー効率の向上を図って騒音を低減するためには、Fe 基合金材料の組成や結晶方位が磁歪特性に及ぼす影響を詳細に調べることが必要である。鉄心材料として幅広く実用化されている珪素鋼板 (Fe-Si 合金) については回転磁場中で磁歪を測定した結果も報告されており^[2]、方向性珪素鋼板では組成や多結晶構造に依存した複雑な磁歪挙動を示すことが知られている^[3]。0.2 mm 厚さの単結晶板を用いた磁歪挙動解析も行われているが、厚さに依存して磁区構造が変化したり^[4]、磁場の印加方向と材料が磁化する方向が一致しないため、統一的に磁歪現象を解明するには至っていない。変圧器等の励磁で鉄心に印加される磁場は 1 kOe 以下と大きくはない。磁場が大きい場合、軟磁性材料の結晶磁気異方性の影響によって印加した磁場の方向と磁化方向が一致しない現象が生じやすい。

本研究では Fe 基合金の結晶磁気異方性が磁歪挙動に及ぼす影響を系統的に明らかにすることを目的に、体心立方(bcc)構造を持つ鉄(Fe)および Fe-X(X=Al, B, Si)合金の単結晶薄膜を作製し、回転磁場中でその磁歪挙動を測定した^{[5]~[9]}。薄膜単結晶の配向は bcc(001)とした。この配向の単結晶膜を用いたのは、回転磁場中では一斉回転モデルに従って磁化が回転すると期待され、磁歪挙動に及ぼす結晶磁気異方性の影響を抽出し易いと期待されるからである。測定した磁歪挙動は修正一斉回転モデル（実測した磁化曲線に合うように反転磁場を設定したモデル）で解析した。その結果、実用的な 1 kOe 程度の回転磁場中では、結晶磁気異方性の影響により磁歪の観察方向（磁化容易軸方向と困難軸方向）に依存してバスタブ状や三角波状の複雑な磁歪挙動を示すことが明らかになった。

2. 実験方法

薄膜形成には、反射高速電子回折 (RHEED) 機構を取り付けた到達真空度が 4×10^{-7} Pa 以下の高周波マグネトロン・

スパッタリング装置を用いた。ターゲットには、直径 3 インチの Fe および合金を用い、いずれの合金に対しても製膜速度が 0.2 nm/s となるように高周波電力を調節した。基板には表面研磨を施した MgO(001)を用い、清浄化を目的に製膜前に高真空中で 600 °C×1 hour の熱処理を行った。基板温度 300 °C で 200 nm 厚の膜を形成した。膜厚は磁歪測定時に十分な出力がとれ、かつ垂直磁気異方性の原因となる柱状晶生成を抑制するように選定した。

表面構造を RHEED 法により観察し、結晶構造評価には Cu-K α 線を用いた X 線回折 (XRD) 法を用い、面外 ($2\theta/\omega$ スキャン) および面内 ($2\theta/\phi$ スキャン) 測定を行った。RHEED および XRD からいずれの膜も bcc(001)単結晶膜であることを確認した^{[5]~[9]}。磁化曲線は振動試料型磁力計 (VSM) で測定した。磁歪測定は最大 1.2 kOe の回転磁場中で片持ち梁のそりをレーザ変位計で測定することにより行い、(1)式を用いて磁歪を算出した^[10]。

$$\lambda = \frac{\Delta S \times t_s^2}{3 \times L^2 \times t_f} \times \frac{E_s \times (1 + \nu_f)}{E_f \times (1 - \nu_s)} \quad (1)$$

ここで、 λ は磁歪、 ΔS は測定したそり量、 L は 2 つのレーザポイントの間隔(12.5 mm)、 t は厚さ、 E はヤング率、 ν はポアソン比で、添字の s は基板を、f は膜を示す。単結晶材料の弾性的性質は異方的と考えられるので、ヤング率とポアソン比には異方性を考慮に入れた Table 1 に示す計算値を用いた^{[6]~[9]}。Fe 基合金膜については弾性定数の報告値がないので Fe 膜と同じ計算値を使用した。

Table 1. E and ν values of MgO(001) and bcc-Fe(001) based materials.

Orientation	MgO(001)		bcc(001)	
	[100]	[110]	[100]	[110]
E [GPa]	185	214	132	221
ν	0.34	0.23	0.37	-0.05

3. 結果と考察

本要約では、磁歪現象に関して系統的な解析を行った合金系の内 Fe-Al 系単結晶膜を例に挙げて概要を説明する。

3.1 bcc Fe(001)単結晶膜の磁歪挙動

Figure 1 に Fe(001)単結晶薄膜の磁化曲線を示す。<100>が磁化容易軸で<110>が困難軸である面内 4 回対称磁気異方性を示している。結晶磁気異方性磁場は 600 Oe 程度である。

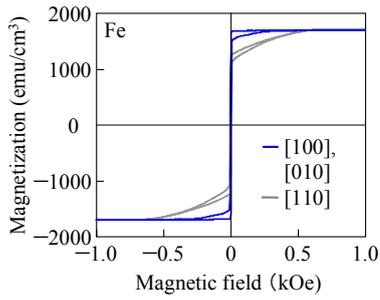


Fig. 1 Magnetization curves measured for an Fe(001) single-crystal film

Figure 2 に回転磁場中で測定した磁歪挙動を示す。縦軸は磁歪出力で横軸は印加した磁場の角度である。磁歪の観察方向から 45° 傾いた角度を 0° としている。磁化容易軸方向 [100] で測定した磁歪は磁場が 0.2 kOe と小さい時は方形波状である。磁場が大きくなるにつれてなだらかバスタブ状となる。磁場が異方性磁場の 2 倍の 1.2 kOe になってもバスタブ状で予想された正弦波とは異なっている。磁歪の振幅は磁場が 0.2 kOe と小さい時も大きく、磁場によらずほぼ一定である。一方、困難軸方向 [110] で測定した磁歪は三角波状である。磁場が小さい時振幅は小さく 0.7 kOe 程度まで振幅は増加し、それ以上の磁場では飽和する。磁場が異方性磁場の 2 倍の 1.2 kOe になっても鋭い三角波状で予想された正弦波とは異なっている。また、[100] 方向と [110] 方向とでは磁場の回転角に対する出力の位相が反転しており、磁歪定数の符号が異なることがわかる。

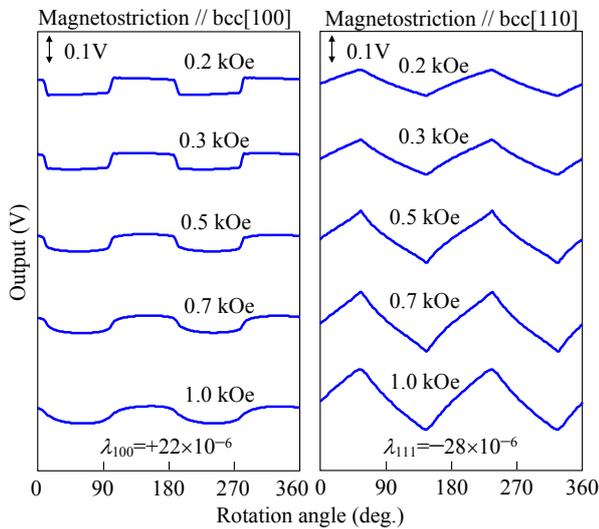


Fig. 2 Magnetostrictive behaviors measured along [100] and [110] under rotating magnetic fields for an Fe(001) single-crystal film.

3.2 bcc Fe-Al(001)単結晶膜の磁歪挙動

Figure 3 に Fe-Al(001)単結晶薄膜の磁化曲線を示す。いずれの試料も $\langle 100 \rangle$ が磁化容易軸で $\langle 110 \rangle$ が困難軸である面内 4 回対称磁気異方性を示しており、ヒステリシスは小さい。結晶磁気異方性磁場は $\text{Fe}_{90}\text{Al}_{10}$ 膜が 500 Oe で $\text{Fe}_{80}\text{Al}_{20}$ 膜は 300 Oe 程度であり Fe 膜より小さい。

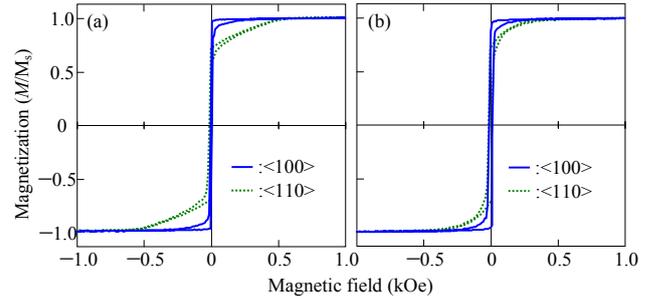


Fig. 3 Magnetization curves measured for (a) $\text{Fe}_{90}\text{Al}_{10}$ and (b) $\text{Fe}_{80}\text{Al}_{20}$ (001) single-crystal films.

Figure 4 に $\text{Fe}_{90}\text{Al}_{10}$ と $\text{Fe}_{80}\text{Al}_{20}$ 単結晶膜の磁歪挙動を示す。 $\text{Fe}_{90}\text{Al}_{10}$ 膜では [100] 方向の磁歪挙動は磁場が小さい時は方形波状であり、磁場が大きくなるにつれてなだらかなバスタブ状となる。振幅は磁場に依存せずほぼ一定である。[110] 方向では三角波状であり、その振幅は磁場に依存して大きくなる。出力の位相は [100] と [110] とで異なっており Fe 膜と似た挙動である。一方、 $\text{Fe}_{80}\text{Al}_{20}$ 膜では [100] 方向でもその振幅は磁場依存性を示しており、波形は歪んだ正弦波状である。[110] 方向では 1 kOe でも振幅が極めて小さく磁歪定数が極めて小さくなっていると予測される。

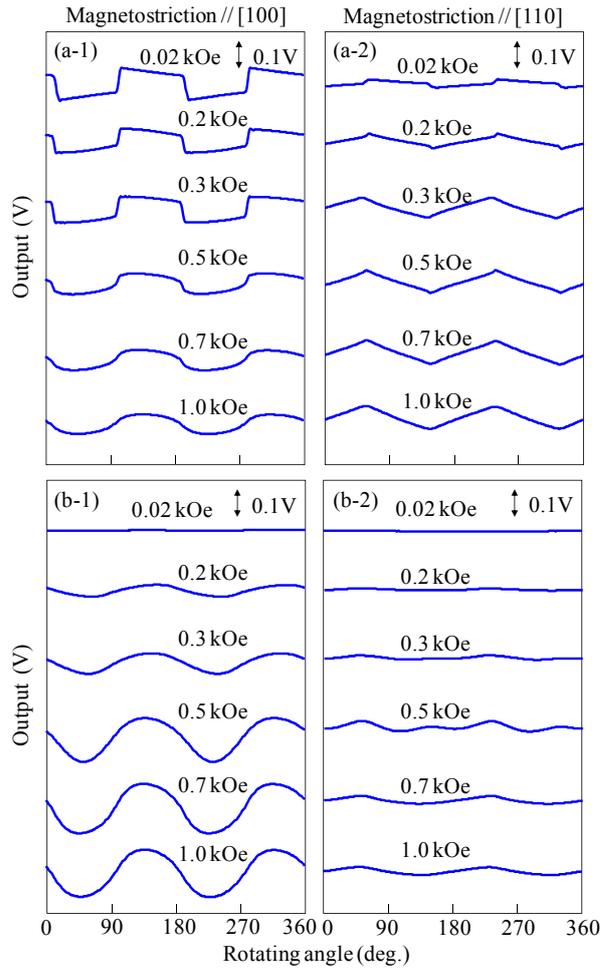


Fig. 4 Magnetostrictive behaviors measured along [100] and [110] under rotating magnetic fields for (a) $\text{Fe}_{90}\text{Al}_{10}$ and (b) $\text{Fe}_{80}\text{Al}_{20}$ (001) single-crystal films.

4. 修正一斉回転モデルによる bcc(001)単結晶薄膜の磁歪挙動解析

磁歪出力がバスタブ状や三角波状になる原因を明らかにするため Fe(001)単結晶膜を想定して Fig. 5 に示す座標系で修正一斉回転モデルによる解析を行った。

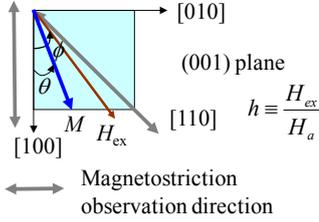


Fig. 5 A coordinate system used in a modified coherent rotation model.

Fe 膜では磁気弾性エネルギーは結晶磁気異方性エネルギーに比べて遥かに小さいと考えて差し支えなく、自由エネルギーとして結晶磁気異方性エネルギーと外部磁場によるゼーマンエネルギーを考える。系の自由エネルギーは

$$E = \frac{1}{8} \cdot K_1 \cdot (1 - \cos 4\theta) + M_s \cdot H_{ex} \cdot \cos(\varphi - \theta) \quad (2)$$

と書ける。ここで、 K_1 は結晶磁気異方性エネルギー、 M_s は飽和磁化、 H_{ex} は外部磁場、 θ は(001)面内で[100]からの磁化の回転角、 φ は(001)面内で[100]からの外部磁場の印加角度である。通常の一斉回転モデルでは磁化の回転はこの自由エネルギーを極小にするように決める。この時、保磁力は異方性磁場の大きさとなり Fig. 1 に示した実測の磁化曲線とは大きく異なる。そこで、逆磁場が働く就一直に磁化反転が生じるとする修正一斉回転モデルを採用する。このモデルで計算した磁化曲線は Fig. 6 に示すように実測の磁化曲線に近い。

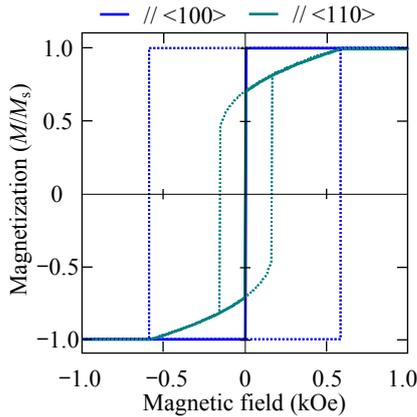


Fig. 6 Calculated magnetization curves by using the modified coherent rotation model (solid lines) and the coherent rotation model (dotted lines). $M_s=2.1$ T and $K_1=49$ kJ/m³ are assumed.

磁歪に起因する寸法変化は方向余弦を用いて

$$\frac{\delta l}{l} = \frac{3}{2} \cdot \lambda_{100} \cdot \left(\alpha_1^2 \cdot \beta_1^2 + \alpha_2^2 \cdot \beta_2^2 + \alpha_3^2 \cdot \beta_3^2 - \frac{1}{3} \right) + 3 \cdot \lambda_{111} \cdot (\alpha_1 \cdot \alpha_2 \cdot \beta_1 \cdot \beta_2 + \alpha_2 \cdot \alpha_3 \cdot \beta_2 \cdot \beta_3 + \alpha_3 \cdot \alpha_1 \cdot \beta_3 \cdot \beta_1) \quad (3)$$

と書ける^[11]. ここで λ_{100} と λ_{111} はそれぞれ[100]と[111]方向の磁歪定数、 α_i は磁化の方向余弦、 β_i は磁歪の観察方向の方向余弦である。磁化が(001)面内で回転し、磁歪の観察方向が[100]の時、 $\alpha_1=\cos\theta$ 、 $\alpha_2=\sin\theta$ 、 $\alpha_3=0$ 、 $\beta_1=1$ 、 $\beta_2=\beta_3=0$ なので(3)式は

$$\frac{\delta l}{l} = \frac{1}{4} \cdot \lambda_{100} \cdot (1 + 3 \cos 2\theta) \quad (4)$$

となり、この時の振幅から λ_{100} を決定出来ることがわかる。一方、磁歪の観察方向が[110]の時、 $\beta_1=\beta_2=1/\sqrt{2}$ 、 $\beta_3=0$ なので(3)式は

$$\frac{\delta l}{l} = \frac{1}{4} \cdot \lambda_{100} + \frac{3}{4} \cdot \lambda_{111} \cdot \sin 2\theta \quad (5)$$

となり、この時の振幅から λ_{111} を決定出来ることがわかる。(4)、(5)式の θ は磁化の回転角であり、印加した磁場の角度 φ とは異なる。充分強い磁場を印加した時のみ $\theta \approx \varphi$ となり正弦波になることが期待される。

Fe 膜を想定し $M_s=2.1$ T、 $K_1=49$ kJ/m³ として(2)式のエネルギーが極小になるように磁化の回転角 θ を計算し、その値を(4)、(5)式に代入して磁歪挙動を計算した結果を Fig. 7 に示す。印加磁場(H_{ex})を異方性磁場(H_a)で規格化した $h=H_{ex}/H_a$ をパラメータとして図示した。縦軸は寸法変化、横軸は[100]を基準とした磁場の印加角度を示す。

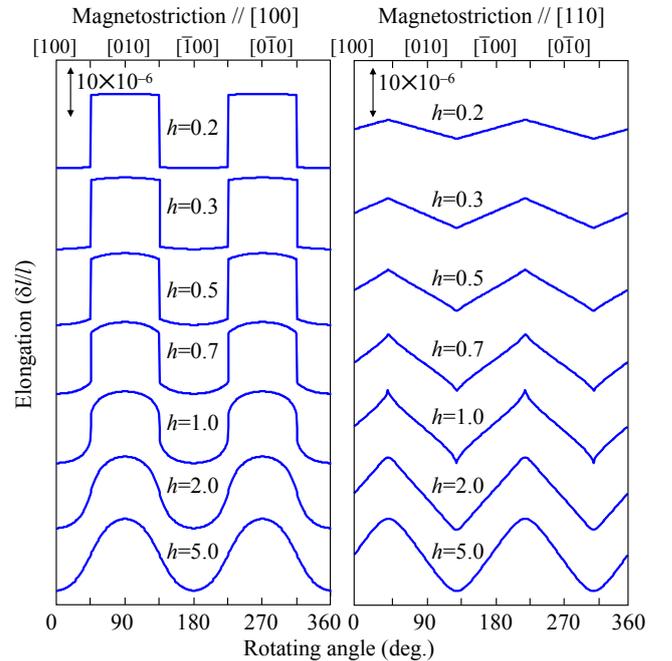


Fig. 7 Calculated magnetostrictive behaviors along bcc[100] and [110] as a function of h by using the modified coherent rotation model. h is defined as $h=H_{ex}/H_a$. λ_{100} and λ_{111} are assumed to be 10×10^{-6} .

磁化容易軸[100]で観察する磁歪挙動は磁場が $h=0.2$ と小さい時は方形波状であり、磁場 h が大きくなるにつれてなだらかバスタブ状になる。振幅は磁場に依存せず一定である。一方、磁化困難軸[110]で観察した磁歪挙動は三角波状であり、その振幅は磁場依存性を示し、 $h=1$ までは磁場が大きく

なるにつれて振幅も大きくなる。 $h=1$ 以上では修正一斉回転モデルは通常の一斉回転モデルに一致する。 $h=1$ で振幅は飽和する。これらの計算結果は Fig. 2 に示した実測と良く対応していることがわかる。すなわち、bcc(001)単結晶膜の回転磁場中での磁歪挙動はその結晶磁気異方性に依存して、磁化の角度が印加した磁場の角度とは異なるために、磁化容易軸方向ではバスタブ状、磁化困難軸方向では三角波状の挙動となることがわかる。 Fig. 4 に示した Fe₉₀Al₁₀ 膜の磁歪挙動は Fe 膜と同様に説明出来る。 Fe 膜に比べて[110]で観察した磁歪出力が小さいので λ_{111} の絶対値が小さくなっていることがわかる。磁場が小さい時、Fe₈₀Al₂₀ 膜の[100]で観察した磁歪の出力が小さいのは保磁力がやや大きく、異方性磁場が小さいために一斉回転モードになり難いためと考えられる。 [110]で観察した磁歪出力は極めて小さく λ_{111} の絶対値が零に近づいていることがわかる。

実測した回転磁場中での飽和した振幅から算出した磁歪定数 λ_{100} と λ_{111} の Al 組成依存性を Fig. 8 に示す。磁歪の正負は出力の位相から判断した。 Fe 膜の λ_{100} は正であり λ_{111} は負である。 Fe-Al 合金膜になると λ_{100} の絶対値は大きくなる。一方、 λ_{111} の絶対値は合金濃度が増すと小さくなり、Fe₈₀Al₂₀ 膜では零に近づく。この磁歪定数の組成依存性は報告されているバルク材料の傾向^[12]と類似している。

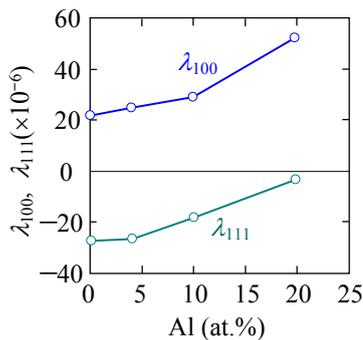


Fig. 8 Magnetostriction constants, λ_{100} and λ_{111} for Fe-Al(001) single-crystal films.

5. まとめ

MgO(001)単結晶基板上に作製した Fe および Fe-X(X=Al, B, Si)(001)単結晶薄膜の磁歪を回転磁場中で測定した。 Fe(001)単結晶膜の磁化容易軸方向[100]の磁歪挙動はバスタブ状でその振幅は印加する磁場の大きさに依存せずほぼ一定であった。一方、磁化困難軸方向[110]では三角波状となりその振幅は異方性磁場と同等の 0.7 kOe 程度までは磁場に依存して大きくなり、それ以上の磁場では飽和して一定値を示した。その原因を実測した磁化曲線に基づいた修正一斉回転モデルで解析した。その結果、bcc(001)単結晶膜の回転磁場中での磁歪挙動はその結晶磁気異方性に依存して、磁化の角度が印加した磁場の角度とは異なるために、磁化容易軸方向ではバスタブ状、磁化困難軸方向では三角波状の挙動となることがわかった。印加した磁場の大きさが異方性磁場より大きくなっても、磁化の角度が磁場の角度に一致するのは磁化容易軸方[100]と困難軸方向[110]だけで、その間の角度では一致しない。そのため、異方性磁場よりも大きな回転磁場中

でもその磁歪挙動は正弦波にはならないことが明らかになった。本要約に記述した Fe-Al 合金膜だけでなく、Fe-Si や Fe-B(001)合金膜でも同様な挙動を示し、修正一斉回転モデルによる解析が幅広く適用可能であることを確認した。その結果、この解析により任意の配向面の任意の方向での磁歪挙動の予測が可能となった。平衡状態図では固溶限が極めて小さい Fe-B 合金系では B を過飽和に固溶した単結晶膜が得られ、結晶磁気異方性や磁歪定数の B 量依存性を明らかにした。その結果、Fe-B 合金系の磁歪の組成依存性は同じ IIIb 族元素である Fe-Al 合金系と類似していることが明らかになった。

謝辞 本研究を行うに当たり、懇切丁寧なご指導を賜った指導教員の二本正昭教授に深く感謝致します。

参考文献

- [1] D. Azuma and R. Hasegawa: "Audible Noise from Amorphous Metal and Silicon Steel-Based Transformer Core," *IEEE Trans. Magn.*, **44**, pp. 4104 (2008).
- [2] M. Enokizono, S. Kanao, and G. Shirakawa: "Measurement of arbitrary dynamic magnetostriction under alternating and rotating field", *IEEE Trans. Magn.*, **31**, pp. 3409 (1995).
- [3] M. Enokizono, T. Suzuki, and J. D. Sievert: "Measurement of dynamic magnetostriction under rotating magnetic field", *IEEE Trans. Magn.*, **26**, pp. 2067 (1990).
- [4] 柘修一郎, 石山和志, 我妻成人, 荒井賢一, 山城康正: 「(100) 珪素鋼単結晶板の磁歪」, 日本応用磁気学会誌, **22**, pp. 645 (1998).
- [5] T. Kawai, T. Aida, M. Ohtake, and M. Futamoto: "Magnetostrictive behavior of Fe-Si single-crystal films with different orientation under rotating magnetic fields", *IEEE Trans. Magn.*, **50**, pp.2008004 (2014).
- [6] T. Kawai, T. Aida, M. Ohtake, and M. Futamoto: "Effect of magnetocrystalline anisotropy on the magnetostrictive behavior of Fe-Si single-crystal film", *J. Magn. Soc. Jpn.*, **39**, pp. 181 (2015).
- [7] T. Kawai, T. Aida, M. Ohtake, and M. Futamoto: "Magnetostrictive behaviors of Fe-Si(001) single-crystal films under rotating magnetic fields", *J. Appl. Phys.*, **117**, pp. 17A303 (2015).
- [8] T. Kawai, T. Aida, M. Ohtake, and M. Futamoto: "Magnetostrictive behaviors of Fe-B(001) single-crystal films under rotating magnetic fields", *IEEE Trans. Magn.*, **51**, pp. 2007004 (2015).
- [9] T. Kawai, T. Abe, M. Ohtake, and M. Futamoto: "Magnetostrictive behaviors of Fe-Al(001) single-crystal films under rotating magnetic fields", *AIP Advances* **6**, pp. 055931 (2016).
- [10] T. Kawai, M. Ohtake, and M. Futamoto: "Saturation magnetostriction measurements of magnetic thin films under high magnetic fields", *Thin Solid Films*, **519**, pp. 8429 (2011).
- [11] 近角聡信: 「強磁性体の物理 (下)」, 裳華房, pp. 59 (1984).
- [12] R. M. Bozorth: *Ferromagnetism*, Princeton, New Jersey, D. Van Nostrand Company (1951).

研究業績

有査読学術論文 27 件 (筆頭 12 件, 共著 15 件)
国際会議発表 12 件 (筆頭 12 件)