

日本磁気学会論文特集号

3 巻 1 号

ONLINE ISSN: 2432-0471

Electronic Journal URL: <https://www.jstage.jst.go.jp/browse/msjtsmj/-char/ja/>

CONTENTS

Magnetic Recording

- 急速昇温熱処理による微細加工 Pt/Fe 積層ドットの $L1_0$ 規則合金化
..... 苗木俊樹・三吉啓介・吉川大貴・塚本新 1
- コラム状微細組織を有する $L1_0$ FePt グラニューラ媒体用粒界拡散を利用した網目状隆起下地層の提案
..... 清水章弘・日向慎太郎・徐晨・斉藤伸 7

Hard and Soft Magnetic Materials

- Local Strain Dependence of Uniaxial Magnetic Anisotropy in M-type Ferrites
..... J. Inoue, H. Nakamura, and H. Yanagihara 12
- (Sm,Y)(Fe,Co) $_{12-x}$ Ti $_x$ における生成相と磁気特性 萩原将也・眞田直幸・桜田新哉 19
- 巻線応力が環状試料の直流磁気特性に及ぼす影響 馬場康壽 24

Magnetic Phenomena

- 混合アニオン層状化合物 $Sr_2CrFeAsO_{3-\delta}$ の電子磁気相図
..... 山口道太郎・藤岡弘孝・大塚貴史・瀬戸誠・北尾真司・的場正憲・神原陽一 28

Thin Films, Fine Particles, Multilayers, Superlattices

- Fe-Ga 多結晶薄膜における高周波磁気特性の Ga 組成による変化
..... 川辺泰之・遠藤恭・宮崎孝道 34
- マイケルソン光干渉法による磁歪測定装置の作製
..... 佐藤睦規・吉田悠人・鈴木貴彦・高橋豊・小池邦博・稲葉信幸 39

Measurement Technique, High-Frequency Devices

- ローラー型永久磁石式磁場源の設計 佐久間洋志 43

Power Magnetism

- 磁気駆動マイクロポンプを内蔵したノート PC 用液冷システムの試作と評価
..... 占部諒・山田大生・本田崇 48
- 磁性塗布線を用いた近接効果に起因する交流抵抗の低減
..... 鳥島健太・山本達也・ト穎剛・水野勉・本田祐樹 54
- 横方向磁束型スイッチトリラクタンスモータの試作試験と特性改善に関する考察
..... 小森谷太希・伊藤裕貴・中村健二 58
- リラクタンスネットワーク解析に基づく巻線界磁型クローポールモータの回転子表面の
渦電流損算定 市川優太・中村健二 64

移動支援機器用インホイール磁気ギヤードモータの高効率化	伊藤亘輝・門松孝尚・中村健二	69
埋込磁石型磁気ギヤの性能向上に関する検討	水穴裕真・中村健二・鈴木雄真・大石悠平・立谷雄一・操谷欽吾	74
鋳を加熱するためのアプリケーションの熱解析と形状	山田外史・池畑芳雄・池田慎治	79
冷却ファン用高速回転モータの高トルク化・高効率化に関する検討	川村恭平・中村健二・一ノ倉理・後藤博樹・郭海蛟	85
LLG 方程式を用いた鉄心加工に伴う磁気特性変化の予測手法	羽根吉紀・中村健二・吉岡卓哉・川瀬剛志・石川智一	90
水平方向からの磁場が磁気浮上鋼板に与える影響（張力の印加位置に関する実験的検討）	伊藤誉淳・小田吉帆・成田正敬・加藤英晃	95
柔軟鋼板の湾曲磁気浮上制御（外乱相殺制御の基礎的検討）	小川和輝・多田誠・成田正敬・加藤英晃	101
湾曲磁気浮上薄鋼板に発生する振動メカニズムに関する基礎的考察	多田誠・小川和輝・成田正敬・加藤英晃	107

Biomagnetism / Medical Applications

Effect of Ionic Concentration on Dynamic Magnetic Susceptibility of Iron Oxide Nanoparticles Embedded in Chitosan Hydrogel Matrix	M. E. Villamin and Y. Kitamoto	113
--	--------------------------------	-----

Board of Directors of The Magnetism Society of Japan

President:	K. Takanashi
Vice Presidents:	K. Nakagawa, S. Nakamura
Directors, General Affairs:	Y. Miyamoto, K. Niiduma
Directors, Treasurer:	K. Aoshima, K. Ishiyama
Directors, Planning:	Y. Saito, S. Nakagawa
Directors, Editorial:	K. Kobayashi, T. Ono
Directors, Public Relations:	H. Itoh, S. Greaves
Directors, International Affairs:	Y. Takemura, M. Nakano
Auditors:	Y. Suzuki, R. Nakatani

急速昇温熱処理による微細加工 Pt/Fe 積層ドットの L_{10} 規則合金化

L_{10} ordering of microfabricated Pt/Fe stacked dots by rapid thermal annealing

苗木俊樹^{a)†}・三吉啓介^{a)}・吉川大貴^{b)}・塚本新^{b)}

^{a)} 日本大学大学院理工学研究科, 千葉県船橋市習志野台 7-24-1 (〒) 274-8501

^{b)} 日本大学理工学部, 千葉県船橋市習志野台 7-24-1 (〒) 274-8501

T. Naeki^{a)†}, K. Miyoshi^{a)}, H. Yoshikawa^{b)}, A. Tsukamoto^{b)}

^{a)} Graduate School of Science and Technology, Nihon University., 7-24-1, Narashinodai, Funabashi, Chiba 274-8501, Japan

^{b)} College of Science and Technology, Nihon University., 7-24-1, Narashinodai, Funabashi, Chiba 274-8501, Japan

Bit patterned media is a possible candidate for developing next-generation ultra-high-density data storage, therefore, the importance of shape, of techniques for fabricating magnetically monodisperse dots, and of research on materials that have high uniaxial magnetocrystalline anisotropy energy such as L_{10} -FePt is increasing. Furthermore, although the magnetic characterization of each isolated patterned dot is a crucial matter, there is a fundamental difficulty in measuring infinitesimal magnetic moments. On the basis of the idea of estimating the magnetic properties of a single dot by measuring several hundred million monodisperse dots, we investigated a process for fabricating monodisperse FePt dots and a magnetization process. In this report, we propose a novel fabrication procedure that consists of a combination of pre-patterning Pt/Fe film and post-annealing with rapid thermal annealing. Pt/Fe dots with a pitch of 100 nm and thickness of 3.75 nm were pre-patterned by using an electron beam lithography technique and rapidly heated up to 800°C, which lead to a lower dispersal of dots that was promoted by a hard-magnetic property. Under a Fe-rich composition condition for Fe₆₀Pt₄₀, 90% of the FePt dots showed a coercive force of over 15 kOe.

Key words: Bit patterned media, Electron beam lithography, Rapid thermal annealing, L_{10} -FePt, Monodisperse nanoparticles.

1. はじめに

磁気記録媒体の記録密度の到達目標は 2022 年に 4 Tbit / inch², 2025 年には 10 Tbit / inch² とされており¹⁾, 現在垂直磁気記録方式²⁾から, 熱アシスト磁気記録方式³⁾やマイクロ波アシスト磁気記録方式⁴⁾, ビットパターンドメディア (Bit Patterned Media: BPM)⁵⁾⁻⁸⁾といった新たな記録方式・技術の研究が行われている。BPM は 1 ドットの磁性微粒子に 1 ビットの情報記録を担わせる記録媒体方式なため, 高い S/N 比を得ることが可能であり, 1 ドット内では単磁区構造を形成する。そのため 1 ビットが十個程度の微粒子群で構成される従来のグラニューラ媒体と比べ, 高い面記録密度の達成を可能とし, 熱安定性が優れた記録媒体となることが期待されている。ただし, BPM では全ビットに同等の記録特性が求められ, 反転磁界分散やキュリー温度分散を低減する必要があり⁹⁾, 作製難易度が非常に高い。10 Tbit / inch² を超える BPM の作製には数ナノメートルスケールの磁性粒子を規則的に配列する技術が要求されると共に, 熱擾乱に耐える媒体用材料の開発が求められる⁹⁾。

L_{10} 型 FePt 規則合金は高い結晶磁気異方性エネルギー (K_u : 6.6 - 10 × 10⁷ erg / cm³) を有し¹⁰⁾, かつ化学的に安定である。 L_{10} -FePt 粒子を用いた BPM の研究を進める上で, 1 ビットを担う磁性体の磁気記録特性の重要性がこれまで以上に高まることから, 単体で存在する 1 ドットの磁気特性を詳細に検討することも重要である。これまでに異常ホール効果を用いた数十ナノメートルサイズの単一の FePt ドットの磁化反転特性測定¹¹⁾の報告があり¹¹⁾, 単体のナノ粒子の特性を明らかにする研究も進められている^{12), 13)}。実際の試料構成で作製した対象に対し単一粒子の磁気モーメントを測定する際, 直径 5 nm の L_{10} -FePt 粒子では約 7 × 10¹⁷ emu の微小量

を検出することが必要となる。これは, 現行の超伝導量子干渉素子式振動試料型磁力計 (SQUID-VSM) を用いた磁化測定において必要となる最小磁気モーメント総量 10⁸ emu に比べはるかに小さい。そこで, 同等の特性の粒子群を数億個程度作製し, SQUID-VSM を用いて磁性粒子を評価することで単ドットの磁気特性を見積もるという着想に基づき, 本論文では数億個の単分散 L_{10} -FePt 磁性微粒子群の作製と磁化過程につき検討を行った。

2. 微細加工技術と急速昇温熱処理法を組み合わせたプロセスによる単分散 L_{10} -FePt 粒子群形成法の検討

高密度 BPM 作製を目指し, 5 Tdot / inch² 級のビットパターン媒体等の研究が行われている¹⁴⁾。これら先行研究の多くは良質な L_{10} -FePt 垂直磁化膜を作製し, エッチング処理にて微小ドット状に加工するトップダウン法である。 L_{10} -FePt 連続膜の微細加工処理により生じるドット内部の微細構造欠陥は磁気異方性の低下や反転磁界分散を増大させるとの報告もある^{14), 15)}。そこで本検討では, 微細加工処理により生じる結晶構造へのダメージを避けるために FePt 薄膜材料自体を微細加工・パターン化した後に熱処理を行い L_{10} 規則合金化する手法を検討した。さらに, 今回熱処理には加熱時間が非常に短い急速昇温熱処理法を用いた。我々はこれまでに Pt/Fe 連続薄膜に数秒間の急速昇温熱処理 (Rapid Thermal Annealing: RTA) を施すことによる, 40 kOe 以上の保磁力 (H_c) を有する離散化した FePt 粒子群の形成を報告している。この熱処理法では特殊な配向誘導用下地層や単結晶基板を用いず, 熱酸化 Si 基板上へ (001) 優先配向した粒子群が作製可能である¹⁶⁾⁻¹⁹⁾。Fig. 1 に熱酸化 Si 基板上 Pt/Fe 連続膜の RTA 処理により作製した FePt 微粒子群の一例として透過型電子顕微鏡に

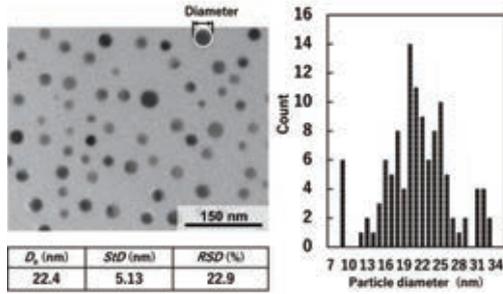


Fig. 1 TEM planar view of FePt particles fabricated by RTA, average diameter (D_a), standard deviation of D_a (StD), relative StD (RSD), and histogram of particle diameter.

よる観察像と粒径毎の粒子数ヒストグラムおよび、平均粒径 (Average Diameter : D_a), 粒径標準偏差 (Standard Deviation : StD), 相対粒径偏差 (Relative Standard Deviation : RSD) を示す¹⁶⁾. D_a が 22.4 nm に対し RSD は 22.9% と粒径分散が大きく、微細加工していない連続膜を初期構造とし RTA 処理により作製した粒子群は形状や体積、磁気特性の分散が大きいが課題であり、粒子サイズや形成位置の制御は困難である。ナノスケールの磁性体ではその形状が実効的磁気異方性に大きく寄与することも考えられ、粒子の体積や形状を揃えた粒子群を作製することが重要である。

本論文では、磁性ドットパターン作製方法として微細加工による微細構造欠陥の発生と、連続膜からの RTA による形成粒子形状・体積の大きな分散という 2 つの課題点を解消することを目的とし、まず、Pt/Fe 連続薄膜から均一体積の Pt/Fe ドットパターンを作製し、その後 RTA により規則合金化を促進する工程を実施した。またこれらの磁性ドットの $L1_0$ 規則合金化に向けた RTA 条件、磁気特性、形状分散につき検討を行った。

3. 電子線描画法を用いた単分散 Pt/Fe ドットパターンの作製工程

電子線描画法は電子線レジストに対して直接電子線を照射しパターンを形成する手法であり、数ナノメートルサイズのパターンを極めて高い精度で作製可能である。そのため電子線描画法に着目し、単分散な Pt/Fe ドットパターンの作製を試みた。Fig. 2 に作製工程の概要を示す。基板洗浄として熱酸化 Si 基板をアセトンで 5 min. イソプロピルアルコールで 5 min. 超音波洗浄し、170 °C の高温槽で 10 min. 熱処理し、乾燥させた。(a) レジスト塗布：熱酸化 Si 基板上に anisol 液で希釈したポジ型レジスト剤 (ZEP520A : ZEP - A = 1 : 5) を滴下し、500 rpm で 5 sec., 6000 rpm で 60 sec. スピンコートを行い 170 °C の高温槽で 10 min. 間の熱処理により溶媒を蒸発し、厚さ 35 nm のレジスト膜を形成した。(b) 電子線描画：電子線描画装置を用い、加速電圧 50 kV, 電流値 100 pA, ドーズ量 140 $\mu\text{C} / \text{cm}^2$ にて一辺 50 nm の正方形パターンを描画した。描画後、(c) 現像：室温下にて現像液 ZED・N50 に 60 sec. 浸し、マスクパターンを作製した。(d) 成膜：DC マグネトロンスパッタ法により $L1_0$ 型 FePt のストイキオメトリとなる FePt の組成比 (Fe 原子数 : Pt 原子数 = 50 : 50) を意図し Pt (2.11 nm) / Fe (1.64 nm) を積層した。成膜は Ar 流量 35 sccm, Ar ガス

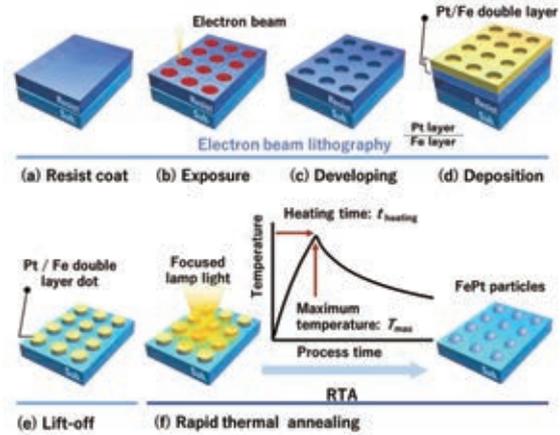


Fig. 2 Schematic diagram of fabrication process. (a) Resist coat, (b) electron beam exposure, (c) developing exposed mask, (d) deposition of Pt/Fe by DC magnetron sputter, (e) Lift-off, and (f) RTA performed for Pt/Fe dots.

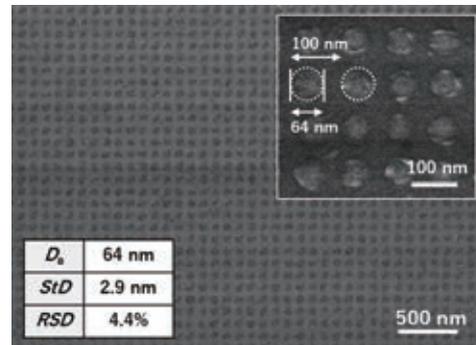


Fig. 3 SEM planar view of Pt/Fe dots fabricated by Lift-off method, average diameter (D_a), standard deviation of D_a (StD), and relative StD (RSD).

圧 2×10^{-4} Pa に設定した。その後、(e) リフトオフ：剥離液 ZDMAC に浸すことでレジストを除去し、孤立した Pt/Fe (総膜厚 3.75 nm) ドットピッチ 100 nm の配列パターンを作製した。

Fig. 3 にリフトオフ後の Pt/Fe ドットパターンの走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope : SEM) を用いて観察した表面像を示す。 D_a は 64 nm, StD は 2.9 nm であり、 RSD が 4.4% の Pt/Fe ドットパターンの形成を確認した。本検討に際し、作製ドット数は磁化測定で用いる SQUID-VSM の最小感度 10^{-8} emu に対し 100 倍の磁気モーメント量となることを目指し、1.6 mm 四方の領域に 2 億 5600 万個とした。また上記 (a) ~ (e) の条件にて作製することにより、1.6 mm 四方の種々の領域において全面にわたり同等のパターンが形成していることを確認した。

4. 急速昇温熱処理法による微細加工 Pt/Fe ドットの $L1_0$ 合金化

第 3 項で述べたドットパターンに対する RTA 条件を検討する上で、まず Pt/Fe 連続膜にて検討した RTA 条件について述べる。我々がこれまで報告した RTA 法は真空雰囲気中にて、集光した赤外線ランプ光を照射し試料を急速加熱する手法であり、光照射による加熱時間にて到達温度の制御を行っている。120 ~ 150 °C / sec. の加熱速度で熱処理を施す際、膜厚 3.75 nm の Pt/Fe 連続薄膜は、

加熱を開始し約 2 ~ 3 sec. 間に連続膜から分離を開始し島状の粒形態をとる. 同加熱時間域にて低規則化度の L_{10} 型 FePt 合金が形成可能である. 総加熱時間が約 3 ~ 5 sec. の条件にて, 比較的孤立したナノスケールの球状の粒子群が得られる時間領域がある. また, 粒子サイズの減少とともに熱酸化 Si 基板へ埋没する現象を断面 TEM 観察により確認し, 報告している¹⁷⁾. ただし, 高規則化度の L_{10} 型 FePt 合金の形成には約 5 sec. 以上の加熱時間を要する. 一方, 約 5 ~ 6 sec. の加熱行為に伴い, 試料温度は約 800 °C と高温になり, 複数の粒子同士が結合し, 比較的大きな粒へと粒形状が変化する²⁰⁾. したがって RTA を用いて連続膜を粒子化する際, 連続膜の分離過程や粒同士の結合が粒径分散の主因となる. RTA は短時間の加熱処理だけで Pt/Fe 連続膜から高規則化度の L_{10} 型 FePt ナノ粒子群を形成可能であるが, 粒子サイズと結晶化を独立に最適化できないことも課題であった. 以上述べたように RTA の加熱時間, 到達温度は粒子形状や結晶の規則化への寄与が大きく, 規則合金化を促す重要な要素である.

Pt/Fe ドットパターンの L_{10} 規則合金化に向け, RTA の加熱時間 (t_{heating}) と到達温度 (T_{max}) に着目し, 第 3 項に示す工程により Pt/Fe ドットパターンを作製した. 試料 (a) には $t_{\text{heating}} = 3.6$ sec. $T_{\text{max}} = 450^\circ\text{C}$, 試料 (b) には $t_{\text{heating}} = 5.1$ sec. $T_{\text{max}} = 630^\circ\text{C}$, 試料 (c) には $t_{\text{heating}} = 6.7$ sec. $T_{\text{max}} = 800^\circ\text{C}$ の RTA を施し, 粒子形状・磁気特性につき評価を行った. Fig. 4 に熱処理前および, 熱処理後 (a), (b), (c) の各試料, それぞれの表面 SEM 像および, D_a , StD , RSD を示す. Fig. 5 には原子間力顕微鏡 (Atomic Force Microscope : AFM) により観察した FePt ドットパターンのラインスキャン結果を示す. 測定には先端曲率半径が 10 nm のカンチレバーを用いた. また, Fig. 6 に SEM・AFM により観察した形状像から得た統計データに基づき, 熱処理前後にて粒子体積が保存されるとの仮定のもと作製した平均的粒子形状モデルを示す. RTA 後のドット形状は, T_{max} の増大とともにディスク形状から球形状に変化することが明らかとなった. また, いずれの条件においても FePt ドット群に大きな配列の乱れは生じず, RTA 前の初期配置を保存し, RSD が 4% 程度であることを確認した. 連続膜から粒子化した場合 (Fig. 1), RSD が 22.9% であるのと比較し¹⁹⁾, 5 分の 1 程度にまで減少しており, 微細加工を用いることで, 大幅に粒径分散を低減可能であることを示した. Fig. 7 に SQUID-VSM により室温下 (300K) にて膜面垂直方向, 膜面内方向に ±70 kOe の範囲で磁場を印加し測定した磁化曲線を示す. いずれの微細ドットパターン試料に対しても, 磁化過程・形状の比較検討に十分な総磁気モーメント量 (~ 10^6 emu) にて磁化曲線が測定可能であることを確認した. 以下試料毎の特徴を述べる. 試料 (a) は RTA 後もドットの形状はほとんど変化せず, D_a が約 62.5 nm, 高さ約 5.0 nm のディスク形状であり, 磁化曲線は軟磁性を示した. また Fig. 7 (a)・2 に示す ±10 kOe 印加磁場範囲の磁化曲線より, 作製したドット群は面内磁気異方性を示すことがわかる. 試料 (b) は RTA 後 FePt ドットの D_a が 42% 減少し, 高さ方向に 270% 増大した. 形状像より得た寸法から楕円球形状と近似し, 熱処理前の体積から熱酸化 Si 層に埋没した割合を算出した結果は 30% 程度である. さらに H_c が 5 kOe となり, 著しい H_c の増大を確認した. また膜面垂直方向磁場印加時の M_r / M_s (M_r : 残留磁化, M_s : 飽和磁化) は 0.66

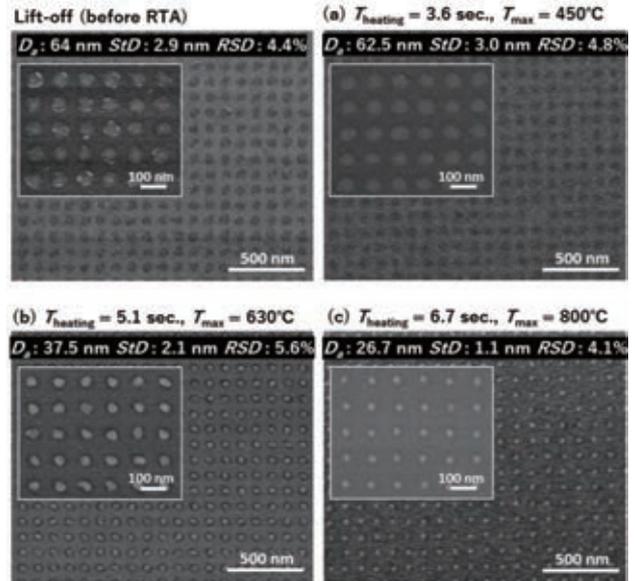


Fig. 4 SEM planar view of FePt dots before annealing (Lift-off) and with annealing of (a) $T_{\text{heating}} = 3.6$ sec. and $T_{\text{max}} = 450^\circ\text{C}$, (b) $T_{\text{heating}} = 5.1$ sec. and $T_{\text{max}} = 630^\circ\text{C}$, and (c) $T_{\text{heating}} = 6.7$ sec. and $T_{\text{max}} = 800^\circ\text{C}$.

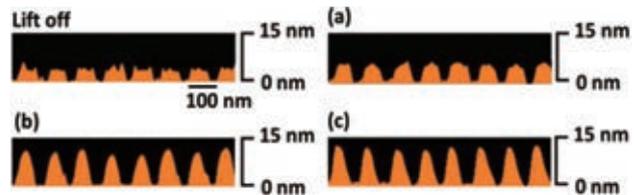


Fig. 5 Line scan profile of AFM imaging along FePt dot array for various annealing conditions (a)–(c).

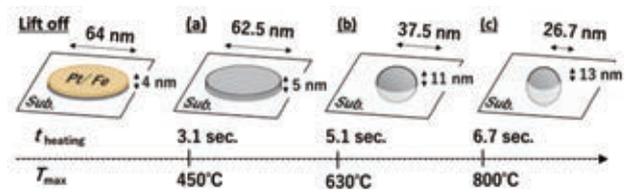


Fig. 6 Average shape models of FePt dot estimated from SEM and AFM images.

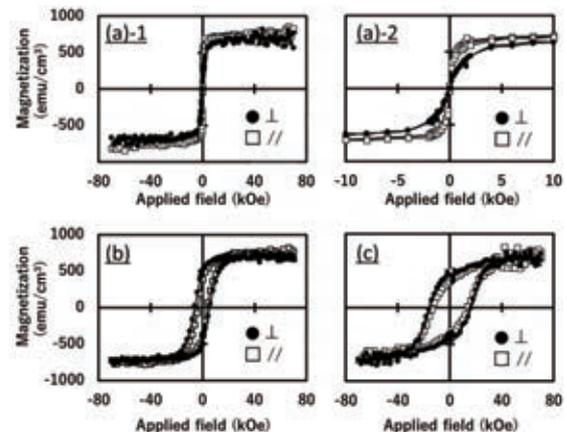


Fig. 7 In-plane and out-of-plane magnetization curves of FePt dots measured at 300 K for various annealing conditions (a)–(c).

を示した。以上より試料 (b) の FePt ドット群は低規則化度の $L1_0$ 型 FePt 規則相の形成初期段階であると言える。今回最も高い温度 $T_{max} = 800^\circ\text{C}$ まで加熱した試料 (c) において、 D_a は 60%減少し、26.7 nm にまで収縮し、高さ方向に 300%増大する最も大きな形状変化が生じた。ドットは球形形状に近づき 67%程度熱酸化 Si 層に埋没していることが算出できる。試料 (c) の磁化曲線より H_c は 16 kOe にまで増大し、膜面垂直方向磁場印加時の M / M_s は 0.66 であり、試料 (b) と同等の値を示した。よって T_{max} の増大により、高い規則化度の $L1_0$ 型 FePt 合金の形成が促進したと言える。以上より、微細加工した後に RTA を施すことで、 RSD が 4%程度と分散が小さい粒子群を形成可能であることを明らかとした。また高温に達する RTA 条件 ($t_{heating} = 6.7 \text{ sec.}$, $T_{max} = 800^\circ\text{C}$) においてもドット配列に乱れを生じることなく、規則合金化は最も促進され、 H_c が 16 kOe の硬磁気特性を示した。

硬磁気特性を示した試料 (c) においても磁化曲線には比較的広い磁化遷移領域 (印加磁場 0 ~ 30 kOe) が見られ、各磁性ドットの磁化反転磁界に分散を生じているものと考えられる。パターン化した磁性ドットは磁気的に独立しており、SQUID-VSM を用いたマクロ計測で得られる磁化曲線は各粒子の単純な合計で示されるため、各粒子に着目した磁気特性分散の起源を検討するのは困難である。そこで局所領域の磁気像を観察することで、各粒子の磁気特性分散の要因を検討した。比較的硬磁気特性を示した試料 (c) の粒子群に対し、磁気力顕微鏡 (Magnetic Force Microscope : MFM) を用い局所的な領域の磁気像を観察を行った。観察試料は基板面に対し膜面垂直方向に磁場を 70 kOe 印加した後、無磁場印加環境下にて MFM により粒子群の残留磁化の磁気像を観察した。Fig. 8 (a) に粒子群の形状像と残留磁化の磁気像を示す。Fig. 8 (b) に形状像と磁気像の同位置におけるラインスキャン結果を示す。Fig. 8 (a) の磁気像は主として 2 種類の濃淡領域で表され、粒子毎で異なるコントラスト分布を生じていることから粒子毎で異なる磁化状態であると言える。単磁区化した磁性粒子の磁化容易軸が膜面垂直方向に向いている際に観察される、濃部、淡部で表されるパターンや、膜面内方向に向いている際、両磁極が並んで観察される、いわゆるバイドメインパターンも観察された。Fig. 8 (b) のラ

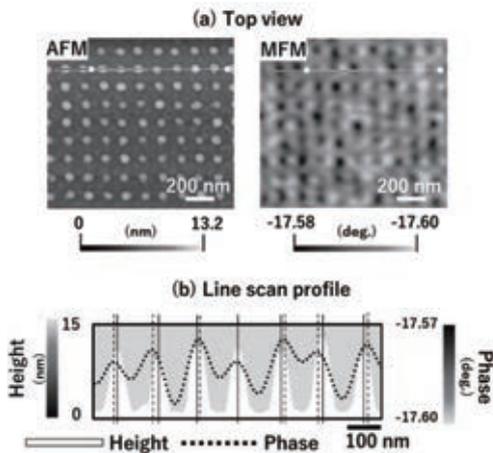


Fig. 8 AFM and MFM images and line scan profiles of those images along FePt dot array of sample (c). Magnetization was initialized at +70 kOe.

インスキャン結果より、コントラスト差や分布、形状像と位相像の極値の位置のずれにより磁化の向きが推測でき、これは粒子毎で様々である。このことから、磁化容易軸が様々な方位に配向した粒子群であることが示唆される。これは Fig. 7 (c) のマクロ計測結果が等方的な磁化曲線を示したことも対応する。以上磁化反転磁界分散の主因の 1 つとして各粒子の磁化容易軸分散であることが示唆された。したがって各粒子の磁気特性を単分散化するためには、各粒子の磁化容易軸の配向方位の分散を低減することが課題である。

5. FePt ドット群の磁化容易軸配向分散低減を目的とした FePt 組成比検討

第 4 項にて磁化反転磁界分散の主因の 1 つとして磁化容易軸分散の存在が示唆されたことから、全粒子群の磁化容易軸を一方向に揃えることが課題となった。

これまでに $\text{Fe}_{50}\text{Pt}_{50}$ に対し、数 at. % Fe 過剰の組成比となるよう積層した Pt/Fe 連続薄膜に RTA を施すことで、高保磁力化、規則度が向上するとともに、膜面垂直方向に (001) 優先配向化が促進するとの知見を得ている¹⁶⁾。そこで、Fe 過剰の組成比にて Pt/Fe ドットを作製し RTA を施すことで、全粒子の磁化容易軸の膜面垂直方向への配向化を試みた。

第 3 項に示す Fig. 2 の作製手順にて Pt/Fe (総膜厚 : 3.75 nm, 積層組成比 Fe : Pt = $x : 100 - x$) を成膜し、ドットパターンを作製した。前述の知見¹⁶⁾より $x = 50, 55, 57, 60$ at. % の Fe 過剰となる積層条件にて検討した。RTA は第 4 項にて比較的硬磁気特性を示した試料 (c) $t_{heating} = 6.7 \text{ sec.}$ $T_{max} = 800^\circ\text{C}$ と同条件にて行った。Fig. 9 に各積層組成比 ($x = 50, 55, 57, 60$ at. %) にて作製した Pt/Fe ドットに RTA を施した後の粒子群の表面 SEM 像および、算出した D_a , StD , RSD を示す。粒子化はほぼおむね組成比に依存せず、各試料において D_a は約 26 nm, StD は 1 nm, RSD は 4%程度の粒子群が形成された。Fig. 10 に室温下にて膜面垂直方向及び膜面内方向に ±70 kOe の範囲で磁場を印加し測定した磁化曲線を示す。なお、後述する方法にて可逆応答成分を補正し、非可逆応答成分のみを抽出したものである。Fe 組成比の増加とともに、 H_c の増大傾向が見られ、 $x = 60$ at. %にて最大の H_c (36 kOe) を得た。FePt ナ

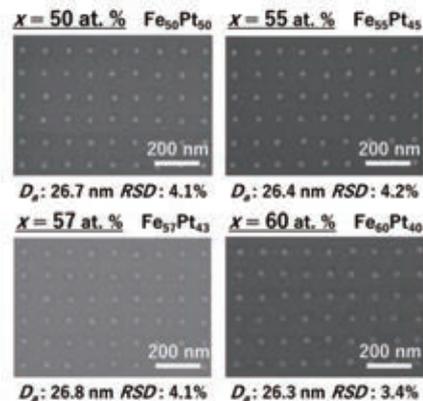


Fig. 9 SEM planar view of FePt dots for different composition ratios of $\text{Fe}_x\text{Pt}_{100-x}$. ($x = 50, 55, 57, 60$ at. %) average diameter (D_a), and relative StD (RSD).

ノ粒子は保磁力と規則化度が単調な増加関係であることが示されており²⁰⁾、粒子群全体の規則化度向上が示唆される。また $x = 55$ at. %以上で M_r / M_s が 0.9 と高い値を示し、磁気モーメント量が 90%以上の粒子が膜面垂直方向に配向した磁化状態が保持されていると言える。これまで Pt/Fe 連続薄膜に RTA を施し作製した FePt 微粒子群では、本組成比検討範囲 ($x = 50, 55, 57, 60$ at. %) において印加磁場が 0 kOe 付近にて軟磁性を示す磁化成分が確認されたが¹⁶⁾、Pt/Fe ドットに RTA を施し、作製した粒子群ではいずれの組成比においても全体が硬磁気特性を示した。Fig.10 より残留磁化量に関する膜面垂直および面内方向成分の比 ($M_{\perp} : M_{\parallel}$) がそれぞれ $x = 50$ では $M_{\perp} : M_{\parallel} = 1.0 : 1.0$, $x = 55$ では $M_{\perp} : M_{\parallel} = 3.1 : 1.0$, $x = 57$ では $M_{\perp} : M_{\parallel} = 2.0 : 1.0$, $x = 60$ では $M_{\perp} : M_{\parallel} = 1.7 : 1.0$ であったことから、今回検討した組成比では、 $x = 55$ にて最もその割合が大きく、全磁化量の約 4 分の 3 が垂直磁化成分を占める。

いずれの組成比で作製した試料においても磁化反転磁界に分散を有する。今回最も大きな H_c と M_r を得た $x = 60$ at. % の試料を用いて、試料のマクロ磁化計測および、各粒子の局所的な磁気像観察の 2 種の実験から、粒子群の磁化反転磁界分散の要因を検討した。膜面垂直および面内方向に磁場を印加し測定した磁化曲線を Fig. 11 (a) に示す。Fig. 11 (a) に示す磁化曲線より、磁化反転側へ印加磁界を増大するにつれ、磁化値に大きな変化を生じる範囲 (例えば磁気ヒステリシスループの第 2 象限) にて、一旦磁場を 0 kOe に戻す過程の磁化計測を行うことで主に回転磁化に由来すると考えられる可逆応答成分の磁化率を求め、全体から除くことで非可逆応答成分のみのヒステリシス曲線を求めた結果を Fig.11 (b) に示す。また、MFM を用いて残留磁化分布に由来する磁気像を観察した。膜面垂直方向に磁場を 70 kOe 印加した後、無磁場印加環境下での磁気像観察結果を Fig. 12 (a) に示す。また、Fig. 11 (b) の膜面垂直方向の磁化特性において高い H_c , M_r を示すとともに、

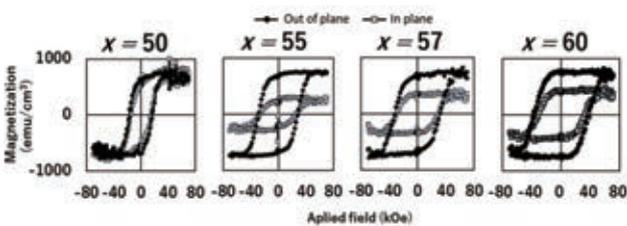


Fig. 10 In-plane and out-of-plane magnetic irreversible hysteresis loops of FePt dots with different composition ratios measured at 300 K.

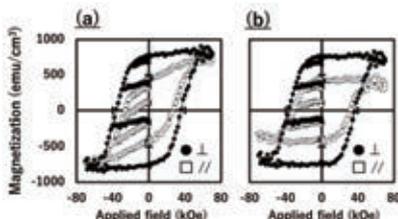


Fig. 11 (a) In-plane and out-of-plane magnetization curves of FePt dots measured at 300 K for $x = 60$ at. %. (b) Magnetic irreversible component of (a).

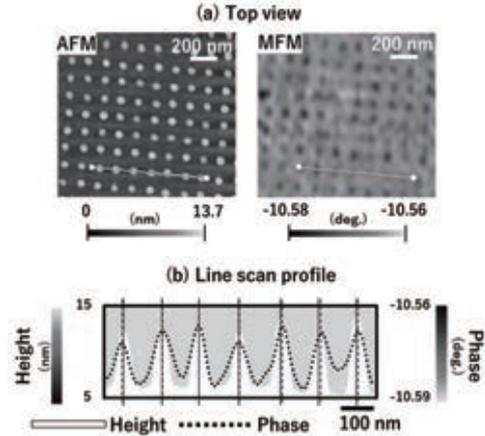


Fig. 12 AFM and MFM images and line scan profiles of those images along FePt dot array of of sample ($x = 60$ at. %). Magnetization was initialized at +70 kOe.

膜面垂直方向の残留磁化と膜面面内方向の残留磁化の比は $M_{r\perp} : M_{r\parallel} = 1.7 : 1.0$ である。よって、MFM 像より各粒子の濃淡が揃っていることから、単磁区化していると仮定すると、全ドットパターンの約 3 分の 2 が膜面垂直方向に磁化容易軸を有し、磁化反転磁界が 15 kOe 以上の特性を示したものと言える。Fig. 12 (b) に形状像と磁気像の同位置のラインスキャン結果を重ねたグラフを示す。前述の $x = 50$ at. %にて作製した試料の MFM 像 (Fig. 8 (a)) では主として 2 種類のコントラストの濃淡領域が見られたが、 $x = 60$ at. % の試料では主として濃い領域が確認された。 $x = 50$ at. % の場合と比較し、形状像の極大値と位相像の極大値のそれぞれの位置の差はほぼ等しく、各粒子に対応する位置での位相値は、同等であることから、磁化の向きが揃っているものと言える。一方、形状・位相像の極大値の位置ずれやコントラストの差が高く生じている粒子も複数個確認でき、磁化容易軸が膜面垂直方向から傾いた粒子も依然として存在することが示されるが、Fig. 11 から示される程ではない。このことから試料中に磁化容易軸を膜面内方向に有する領域の存在が示唆されるが、Fe 過多の組成比とすることで膜面垂直方向に向けた磁化状態が保持される粒子を多く形成するとともに磁化容易軸の配向方位の分散の低減が可能であることが示された。

さらに微細加工を用いて作製したドットパターン群の、磁化反転特性の分散を評価した。最も反転磁界幅が小さい $x = 55$ at. % の試料の磁化測定結果から、2 kOe の磁場変化ステップ ΔH 毎の磁化変化量 ΔM 、飽和磁化 M_s および総粒子数から、 ΔH 毎の磁化反転粒子数 (Number of magnetization reversal particles : N_{mnp}) の見積もりを行った。各粒子の磁気モーメントが等しいとの仮定のもと、粒径分散が 4%程度と分散が小さいことから各粒子の体積も等しいと仮定し、以下の式 (1)より 256,000,000 個のドットパターンからなる試料において、 ΔH 毎で磁化反転した粒子数を算出した。

$$N_{\text{mnp}} = (\Delta M / 2M_s) \times 256,000,000. \quad (1)$$

式 (1) を用い、膜面垂直方向の印加磁場に対する磁化曲線の非可逆応答した成分から算出した磁化反転粒子数のヒストグラムを Fig. 13 に示す。また Table 1 に、既報告である Fe 過多の組成比に

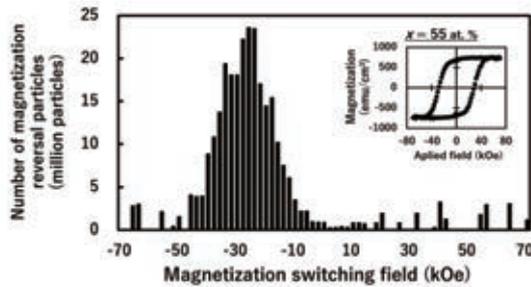


Fig. 13 Histogram of estimated number of reversed FePt dots for $x = 55$ at. % sample.

Table 1 Comparison of shape and magnetic dispersion of FePt particles.

Initial structure of Pt/Fe before RTA	Continuous film	Microfabricated dots
D_a (nm)	22.4	26.4
StD (nm)	5.13	1.1
RSD (%)	22.9	4.2
Average H_{sw} (kOe)	46.7	28.3
StD of H_{sw} (kOe)	26.3	7.7
RSD of H_{sw} (kOe)	56.2	27.2

てPt/Fe連続膜へRTAを施すことにより作製し、膜面垂直方向に高い磁気異方性が発現した粒子群の粒径および磁化反転磁界分散と¹⁶⁾、今回 $x = 55$ at. %で作製したドットパターン群の D_a , StD , RSD および平均磁化反転磁界 (Average H_{sw}) と磁化反転磁界偏差 (StD of H_{sw}), 相対磁化反転磁界偏差 (RSD of H_{sw}) をヒストグラムより算出した結果を示す。従来手法では、相対磁化反転磁界偏差は56.2%であり、今回の手法を用いることで半分以下にまで減少した。微細加工の後RTA処理を施す作製法によって粒径分散だけでなく磁化反転磁界分散も低減可能であることを明らかにした。また、自己組織化ポリマーを用いたパターンド媒体作製の試みにおいて (ドット直径8 nm, 保磁力6 kOeのドットパターン) 磁化反転磁界分散が21%との報告¹⁴⁾もあり、今回作製した $x = 55$ のパターンと同程度の磁化反転磁界分散である。

6. まとめ

本論文では同等の特性の粒子群を数億個程度作製し、マクロ磁化計測により1ドットに相当する磁気特性を見積もるという着想に基づき、数億個の単分散 $L1_0$ -FePt磁性微粒子群作製につき検討を行った。電子線リソグラフィ技術を用いて均一にPt/Feドットを作製し、 $L1_0$ 規則合金化に向けたRTA条件、磁気特性、形状分散につき検討を行った。微細加工により作製したPt/Feドットパターンに加熱時間6.7 sec.で800°Cまで急速加熱するRTAを施すことで、粒径が26.7 nm, RSD が4.4%程度と分散が小さい粒子群を形成した。微細加工を用いない連続膜から粒子化した場合の RSD と比較し5分の1程度にまで減少した。また熱処理時間の増加および、温度上昇に伴い H_c は16 kOeにまで増大し、 $L1_0$ 規則相の形成が促進されていることを示した。しかしながら、MFMによる局所

計測により、磁化容易軸の配向方位に分散が有することが明らかとなり、課題となった。

これに対し、Fe過多の組成比にてPt/Feドットを作製しRTAを施すことで、全粒子の磁化容易軸の膜面垂直方向への配向化を試みた。Fe過多の各試料は D_a が約26 nm, RSD が4%程度の粒子群が形成した。またFe組成比増加とともに、粒子群の H_c の増大傾向が見られた。 $x = 60$ at. %の粒子群は膜面垂直方向の残留磁化と膜面内方向の残留磁化の比が $M_{\perp} : M_{\parallel} = 1.7 : 1$ であるため、全ドットパターンの約3分の2が膜面垂直方向に磁化容易軸を有し、90%の粒子が15 kOe以上の磁化反転磁界を示したものと言える。さらにMFMによる局所計測により、試料中に磁化容易軸を膜面内方向に有する領域の存在が示唆されるが、Fe過多の組成比とすることで膜面垂直方向に向けた磁化状態が保持される粒子を多く形成するとともに磁化容易軸の配向方位の分散の低減が可能であることが示された。

従来手法で作製した試料と比較し、RTA微細加工を用いることで、相対磁化反転磁界偏差は半分以下にまで減少した。微細加工の後RTA処理を施す作製法によって粒径分散だけでなく磁化反転磁界分散も低減可能であることを明らかにした。

謝辞 本研究の一部は情報ストレージ研究推進機構の助成および文部科学省私立大学戦略的研究基盤支援事業 (S1311020) の助成により行った。

References

- 1) Road map of Advanced storage technology consortium (2016).
- 2) S. Iwasaki *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-13**, 1272 (1977).
- 3) M. H. Kryder *et al.*, *Proc. IEEE*, **96**, 1810 (2008).
- 4) J. G. Zhu *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, **44**, 125 (2008).
- 5) R. L. White *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, **33**, 990 (1997).
- 6) T. R. Albrecht, *IEEE Trans. Magn.*, **51**, 5 (2015).
- 7) S. Y. Chou *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **76**, 6673 (1994).
- 8) C. Vogler *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **108**, 102406 (2016).
- 9) D. Weller *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, **36**, 10 (2000).
- 10) R. M. H. New, *et al.*, *J. Vac. Sci. Technol. B*, **12**, 3196 (1994).
- 11) N. Kikuchi *et al.*, *Mag. Soc. Jpn.*, 17pC-10 (2002).
- 12) A. D. Kent *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **76**, 6656 (1998).
- 13) W. Wernsdorfer *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **78**, 7192 (1995).
- 14) A. Kikitsu *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, **49**, 693 (2013).
- 15) D. Wang *et al.*, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **41**, 195008 (2008).
- 16) K. Miyoshi *et al.*, *Technical Meeting on "Magnetics"*, *IEEE Japan*, **MAG-18**, 27 (2017).
- 17) Y. Itoh *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **43**, 8040 (2004).
- 18) A. Itoh *et al.*, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **36**, 62 (2012).
- 19) A. Itoh, *et al.*, "TEICE technical report. Magnetic recording", **105**, 13 (2005).
- 20) A. Itoh, *et al.*, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **36**, 62 (2012).
- 21) H. Sakuma, *et al.*, *J. Magn. Mat.* **300**, 284 (2006).

2018年10月15日受理, 2018年11月30日再受理,
2019年1月9日採録

コラム状微細組織を有する L1₀ FePt グラニューラ媒体用 粒界拡散を利用した網目状隆起下地層の提案

Proposal of network-shaped upheaval structure using grain boundary diffusion in underlayer for L1₀ FePt-based granular media with columnar nanostructure

清水章弘[†]・日向慎太郎・徐晨・斉藤伸

東北大学大学院工学研究科電子工学専攻, 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-05 (〒980-8579)

A. Shimizu[†], S. Hinata, S. Jo, and S. Saito

Department of Electronic Engineering, Graduate School of Engineering, Tohoku Univ.,
6-6-05, Aza-Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai 980-8579, Japan

In this study, we analyzed the surface morphology for the samples with thermal insulation layer (fcc(002)-MgO) / orientation control layer (bcc(002)-CrMn) / orientation inducing layer (amorphous CoW, NiTa, CrTi), especially focusing on atomic diffusion during the high-temperature process used to create the samples. Furthermore, we proposed a new design to realize a granular medium with the columnar nanostructure. Observation of the surface morphology of the MgO layer revealed that only when CrMn was used, a topological surface structure like a network (inverse opal structure) with a period of 10 · 20 nm and a height of about 2 nm was formed. Regarding this structure, 1) a CrMn grain boundary existed below where an upheaval structure was formed on the surface, 2) the elements constituting the amorphous layer exist in the grain boundary of the CrMn layer. These results suggest that the network-shaped upheaval structure on the surface of the MgO layer is brought by boundary diffusion of the elements constituting the amorphous layer from the amorphous layer into grain boundaries of the CrMn layer. Based on the above results, we have newly proposed a schematic model of HAMR media. First, to form isolated nuclei, a pure-FePt island-like layer with L1₀ ordered structure is deposited on the network-shaped upheaval structure of the MgO layer. Next, to realize a columnar nanostructure, a two-phase precipitated FePt-oxide layer is sputtered.

Key words: HAMR media, columnar nanostructure, MgO layer, grain boundary diffusion

1. はじめに

磁気記録媒体は 2025 年までに 10 Tbit/in² もの高記録密度化が求められており¹⁾, これを実現する次世代の記録方式として熱アシスト磁気記録 (Heat Assisted Magnetic Recording, HAMR) が注目されている。HAMR では記録時に熱を与えて磁化反転させるため, グラニューラ磁性層中の孤立磁性結晶粒のキュリー温度および反転磁界の分散を抑制することが求められている²⁾。この課題を解決するためには, FePt 磁性結晶粒の規則度を向上させること³⁾ や規則化した磁性結晶粒の *c* 軸の角度分散を抑制することが不可欠である。このうち *c* 軸の角度分散に注目すると, FePt 磁性結晶粒は下地上にヘテロエピタキシャル成長するため, 下地層から磁性層に至る積層構成が極めて重要である。現状検討されている HAMR 媒体の一般的な積層構成は, 基板側から, 配向を誘導するためのアモルファス層 (Texture inducing layer, TIL), ヘテロエピタキシャル成長を誘導するための (002) 配向体心立方晶 (bcc)-Cr 基シード層 (Seed layer, SL), 記録時の断熱も担う (002) 配向面心立方晶 (fcc)-MgO 層, そしてグラニューラ磁性層である。したがって MgO 層および Cr 基 bcc 層における (002) 結晶軸の配向分散^{4,5)} ならびにこれらの層の粒界での非ヘテロエピタキシャル成長の抑制が求められることとなる⁶⁻¹¹⁾。一方で現行実用化されている CoPt-酸化物グラニューラ型垂直磁気記録媒体では, 隣接磁性結晶粒同士の接触を防ぐた

め, *c* 面配向 Ru 下地層の表面に凹凸構造を付与して磁性結晶粒の初期核形成サイトを規制し, 粒界に非磁性酸化物を析出させている¹²⁻¹⁴⁾。磁性結晶粒のヘテロエピタキシャル成長を促進しつつ磁氣的孤立化した柱状結晶の集合組織を形成するためには, 下地層の結晶配向, 結晶粒界, 表面形態が極めて重要な役割を担っている。

以上を踏まえ本研究では, 一般的な積層構成の HAMR 媒体用の下地のヘテロエピタキシャル成長の実状を調査する必要があると考え, 下地層の結晶配向, 表面形態, 組成分布を詳細に評価した。

2. 実験方法

試料は量産で用いられるインラインスパッタ装置とほぼ同型機であるキャノンアネルバ製 C3010 (7 チャンバ構成, 片面成膜) で作製した。試料の層構成は MgO(Ar ガス圧 4.0 Pa, 膜厚 5 nm)/SL(bcc-Cr₈₀Mn₂₀) (0.6 Pa, 30 nm)/TIL(アモルファス-Co₆₀W₄₀, Ni₆₀Ta₄₀, Cr₅₀Ti₅₀) (0.6 Pa, 50 nm)/基板とした。ここで組成比は原子パーセントで示した。なお以下ではアモルファス層を a-と略記し, 特に断らない限りは a-TIL として CoW を用いている。MgO は RF マグネトロンスパッタリング法, SL および TIL は DC マグネトロンスパッタリング法を用いて成膜した。基板には厚さ 0.8 mm の 2.5 インチ耐熱ガラスディスクを用いた。Fig. 1 に縦軸に基板温度, 横軸に時間をとった試料作製フローを示す。

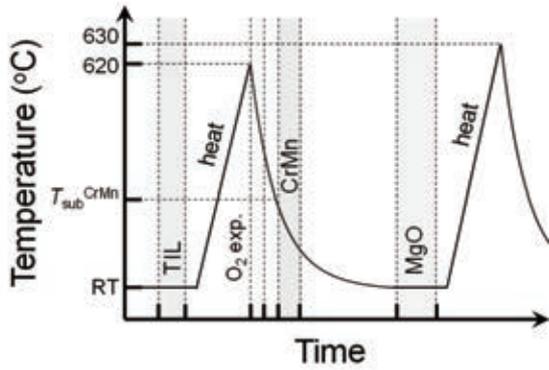


Fig. 1 Process flow of MgO/CrMn/TIL films.

配向制御のため TIL の成膜後 620 °C へ加熱し、その後 20 ラングミュア相当の酸素暴露を施し¹⁵⁾、 $T_{\text{sub}}^{\text{CrMn}}$ (25 – 305 °C) から SL を成膜した。その後室温に冷め切ってから MgO 層を成膜した後、試料に 630 °C への加熱を行った。最後の加熱は磁性層の成膜直前の加熱を想定したものである。結晶構造は Cu α 線を用いた Out-of-plane および In-plane X 線回折 (XRD) ならびに透過電子顕微鏡 (TEM)、表面形態は原子間力顕微鏡 (AFM)、各層の組成分布は走査型透過電子顕微鏡 (STEM) の高角環状検出器による暗視野法 (HAADF) ならびにエネルギー分散型 X 線分析 (EDX) をそれぞれ用いて解析した。

3. 実験結果および考察

3.1 アモルファス TIL および bcc-CrMn が MgO 層の表面形態に及ぼす影響

まず試料の形成相と結晶配向を確認した。Fig. 2 に MgO/ CrMn/ CoW 薄膜の (a) Out-of-plane および (b) In-plane XRD プロファイルを示す。参考のため上部には fcc-MgO および bcc-Cr の粉末回折プロファイルも示した。Out-of-plane プロファイルでは 42.8°, 64.7° 近辺に、In-plane プロファイルでは 43.0°, 44.2°, 62.5°, 64.4° 近辺に回折線が観測されている。

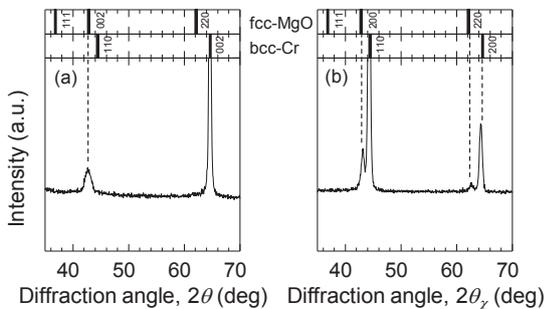


Fig. 2 (a) Out-of-plane and (b) in-plane XRD profiles for MgO/CrMn/CoW film. Upper profiles show powder diffraction patterns of fcc-MgO and bcc-Cr, respectively.

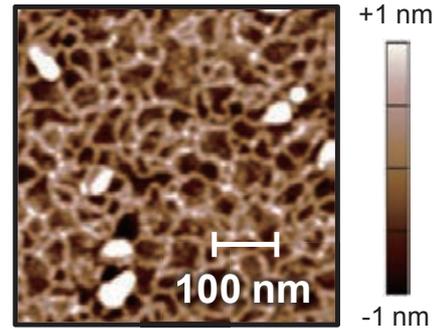


Fig. 3 AFM topography image of MgO/CrMn/CoW film at $T_{\text{sub}}^{\text{CrMn}}$ of 305 °C.

粉末回折プロファイルを参照するとこれらの回折線は、Out-of-plane では MgO (002), CrMn (002), In-plane では MgO (200), CrMn (110) および (200) からの回折線であることがわかる。したがって本試料では、bcc-CrMn が (002) 配向した上層に fcc-MgO 層が (002) 配向していることが確認できる。

次に MgO 層の表面形態を観察した。Fig. 3 に CrMn の成膜温度を 305°C とした場合の MgO/ CrMn/ CoW 薄膜の 500 nm × 500 nm 視野の AFM 像を示す。一瞥して特徴的な 2 つの表面構造が存在していることが確認できる。1 つは視野内に散見される高さ 3 nm、幅数 10 nm の突起構造であり、もう 1 つは試料全体にわたって観測される高さ 2 nm、間隔 10–20 nm の網目状隆起構造である。後者に注目し作製条件を様々に変化させたところ、CrMn 層の成膜温度と強い相関があることがわかった。Fig. 4 には CrMn 成膜開始温度 ($T_{\text{sub}}^{\text{CrMn}}$) を (a) 350°C, (b) 305°C, (c) 200°C, (d) 25°C としたときの MgO 層表面形態を示す。網目状隆起構造の平均網目寸法はそれぞれ、60, 48, 30, 15 nm であった。このように MgO 層表面の網目状隆起構造は CrMn 層の構造と相関があることが強く示唆される。

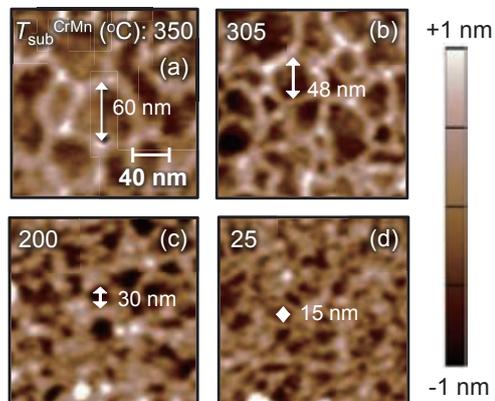


Fig. 4 AFM topography images of MgO/CrMn/CoW film at $T_{\text{sub}}^{\text{CrMn}}$ (°C) of (a) 350, (b) 305, (c) 200, and (d) 25, respectively.

網目状隆起構造の形成要因を調べるため、断面 TEM 分析を用いて隆起構造付近の膜厚方向構造解析を行った。Fig. 5 に CrMn の成膜温度为 305°C とした場合の MgO/ CrMn/ CoW 薄膜の断面 TEM 像を示す。MgO 層表面の隆起構造は AFM 像中に見られた網目状隆起構造の寸法と対応している。隆起部位の下部には CrMn 層に筋状にコントラストが異なる部位が存在していることがわかる。また、MgO 層においては隆起部直下で (002) 格子縞が不明瞭となっていることがわかる (白丸囲い部)。次に同様の視野の STEM-HAADF 像を Fig. 6 (a) に、Co, W, Mn の特性 X 線による EDX 像をそれぞれ (b), (c), (d) に示す。なお図中の K, L はそれぞれ K 線, L 線からの特性 X 線を用いて評価したことを意味する。HAADF 像によると CrMn 層において白いコントラスト部分が膜厚方向に筋状に観測されている。EDX 像によると、HAADF 像の白い部位に対応して Co, W が存在していることがわかる。この Co と W は CrMn 層の最上部にも層状に存在していることが確認できる。一方、筋状部位の直上の MgO 層および a-TIL 層との界面付近には Mn が存在していることも確認された。Fig. 5 および Fig. 6 より、MgO 層表面の網目状隆起部位は、CrMn 層内に膜厚方向筋状に見られる部位と対応していることから CrMn 層の結晶粒界であると考えられ、TIL を構成する元素である Co と W が CrMn 粒界を拡散していることが示唆される。

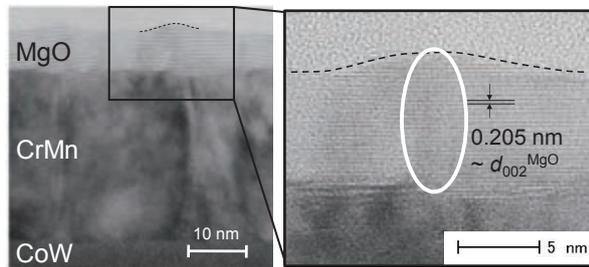


Fig. 5 Cross-sectional TEM images of MgO/CrMn/CoW film.

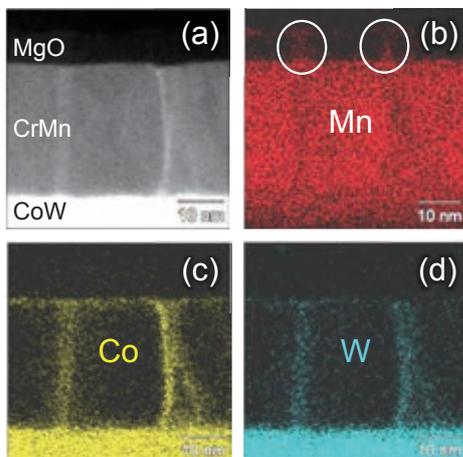


Fig. 6 (a) Cross sectional STEM-HAADF image and (b), (c), (d) STEM-EDX images by mapping of characteristic X-ray intensity of Mn K line, Co K line, and W L line.

また Mn に関しては、a-TIL 層とは相互拡散、MgO 層へは粒界拡散 (白丸囲い部) していることが示唆される。TEM 試料には電子線の入射方向に 10 nm 程度の試料厚があることを考慮すると、Fig. 5 の MgO 層隆起部直下において結晶格子が不明瞭に観測されていた結果は、TEM 像の奥行方向に (002) 配向結晶部と拡散した Mn が存在するアモルファス粒界部が重畳していること示唆している。すなわち MgO 層における隆起部直下では、Mg, O, Mn 原子が混在するアモルファス粒界が形成されていると考えられる。

CrMn 層の結晶粒界での MgO 層の表面隆起ならびにアモルファス層構成元素の CrMn 層粒界への拡散に注目し、これが Co, W に特有の現象なのか確かめるため、他の a-TIL 材料について同様の解析を行った。Fig. 7 には TIL として (a) CoW, (b) NiTa, (c) CrTi 層を用い、CrMn の成膜温度为それぞれ 305°C, 190°C, 300°C とした場合の MgO 層表面の 500 nm×500 nm 視野の AFM 像を、Fig. 8 (a), (b), (c) にはそれらの一部を拡大して 200 nm×200 nm 視野とした AFM 像を示す。(a) CoW と比較して不明瞭ではあるものの、TIL として (b) NiTa, (c) CrTi を用いた場合でも MgO 層表面には網目状隆起構造が観測されていることがわかる。

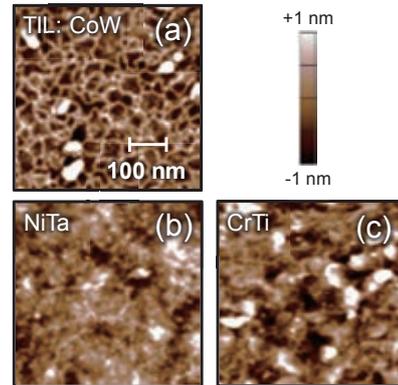


Fig. 7 AFM topography images of (a) MgO/CrMn/CoW film, (b) MgO/CrMn/NiTa film, and (c) MgO/CrMn/CrTi film.

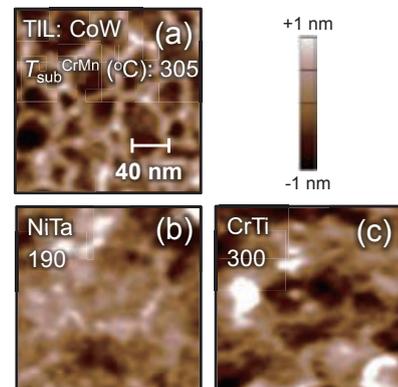


Fig. 8 Enlarged AFM topography images of (a) MgO/CrMn/CoW film, (b) MgO/CrMn/NiTa film, and (c) MgO/CrMn/CrTi film.

Fig. 9, Fig. 10 には Fig. 7, Fig. 8 に示した試料の断面 TEM 像と STEM による EDX 像を示す。Fig. 10 の EDX 像については、上段が Mn, 下段が TIL を構成する元素である (a) W, (b) Ta, (c) Ti である。a-TIL として NiTa, CrTi を用いた場合でも、隆起構造下部の CrMn 層に筋状にコントラストが異なる部位が観測され、その部位に TIL 構成元素の存在が確認された。また隆起構造直下における粒界構造も CoW 下地層を用いた場合と同様に観測された。したがって CrMn 層の結晶粒界部位での MgO 層の表面隆起、ならびにアモルファス層構成元素の CrMn 層粒界への拡散は、Co や W をアモルファス材料として用いた場合の特有の現象ではなく、他のアモルファス材料でも生じる現象であることがわかる。

Fig. 10 によると、CrMn の表層部にアモルファス構成元素が層上に存在していることも確認できる。この形成起源について知見を得るため、MgO 層を成膜しない試料についての断面 TEM 像を Fig. 11 (a) に、CrMn 層の表面部分を拡大したものを (b) にそれぞれ示す。Fig. 10 (a) より CrMn 層表面には電子密度の低い層が観測され、(b) よりその層の厚みは 2 nm であることが判明した。さらにこの試料について、Fig. 12 (a) に STEM-HAADF 像を、(b) に O についての EDX 像を示す。

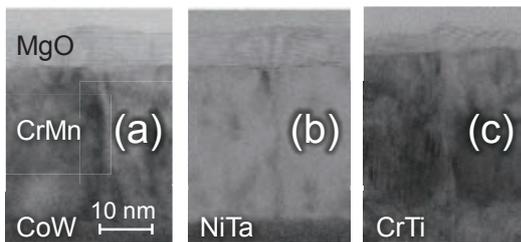


Fig. 9 Cross-sectional TEM images of (a) MgO/CrMn/CoW film, (b) MgO/CrMn/NiTa film, and (c) MgO/CrMn/CrTi film.

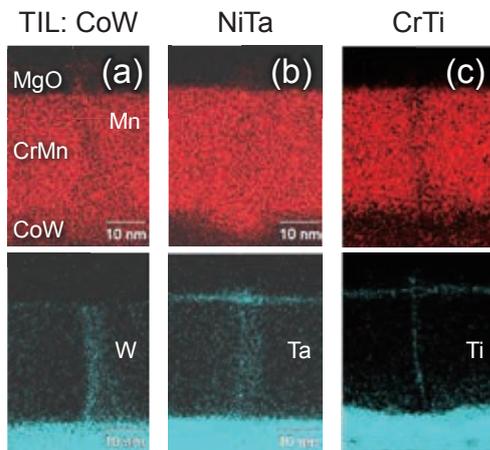


Fig. 10 Cross-sectional STEM-EDX images by mapping of characteristic X-ray intensity of (upper) Mn K line, (lower) W L line, Ta L line, and Ti K line for MgO/CrMn/TIL [(a) CoW, (b) NiTa, (c) CrTi] films, respectively.

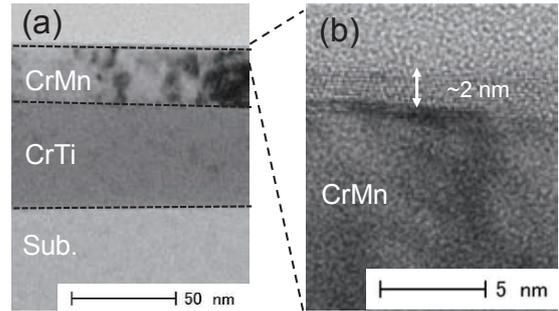


Fig. 11 (a) Cross-sectional TEM image and (b) enlarged image around film surface for CrMn/CrTi film.

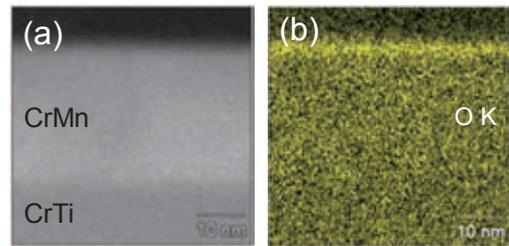


Fig. 12 (a) STEM-HAADF image and (b) STEM-EDX map of O of CrMn/CrTi film.

(a), (b) の対応により、CrMn 層表面において O が層状に存在していることがわかる。これらの結果からアモルファス層構成元素は CrMn 成膜時の加熱によって CrMn 粒界を拡散し、さらに酸化物として CrMn 表層を覆う性質があることが示唆される。

3.2 MgO 層表面における網目状隆起構造の形成起源

以上の結果から網目状隆起構造の形成起源を考察する。Fig. 13 に TIL 構成元素の粒界拡散ならびに網目状隆起構造の形成模式図を示す。まず bcc-CrMn 層の加熱成膜時にアモルファス層構成元素が CrMn 表層に極薄酸化層を形成するために CrMn 層の粒界を拡散する。酸素は加熱時に脱離により極僅かに発生してしまう不純物ガス (H₂O 等) から供給されているのではないかと推察している。さらにその上に MgO 層を成膜すると CrMn 粒界部からさらにアモルファス層構成元素や Mn が拡散し、MgO 層表面が隆起する。

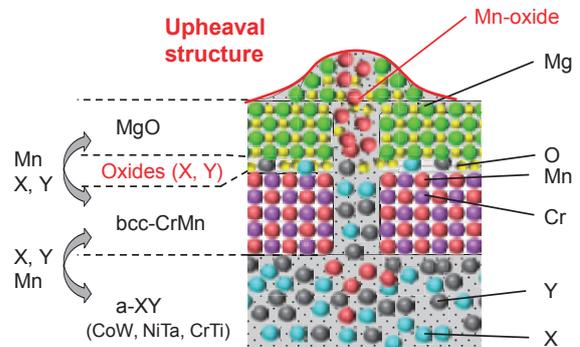


Fig. 13 Schematic of grain boundary diffusion of amorphous elements and network-shaped upheaval structure.

CrMn 結晶粒の粒界全てでこの現象が生じるため、全体としては網目状に隆起した構造が形成されるものと考えられる。なお MgO 層の結晶配向については、成膜時に bcc-CrMn 層層に形成される極薄酸化層がヘテロエピタキシャル成長を阻害し c 軸配向性を乱している可能性がある。

4. 網目状隆起下地層を活用した コラム状孤立化グラニューラ媒体の提案

これまでの知見をもとに L1₀ FePt 結晶粒を柱状孤立化グラニューラ組織に成長させる HAMR 媒体形成法を考察する。CoPt-酸化層グラニューラ型垂直磁気記録媒体では粒界が凹んだ下地層の上に磁性グラニューラ層を成膜している。一方で今回の検討では、粒界が隆起した下地層が形成されていることが興味深い。この点に注目して下地層表面形態を孤立化組織形成に活用することを念頭に考察する。

まず隣合う磁性結晶粒との接触の抑制については、初期核発生サイト間の距離を適度に離すことが重要である。そこで本研究で見出した網目状隆起構造を活用することを着想した。これは、L1₀ FePt 結晶粒は MgO (002) 層上にヘテロエピタキシャル成長しやすいという事実を鑑みると、Mg, O, Mn 原子が共存するアモルファス部分と MgO (002) 配向部分とが共存する下地上では、スパッタ成膜の極初期段階の液滴 FePt エンブリオが MgO 層の (002) 配向部分において安定初期核を形成するものという推察に基づく。次に柱状成長については、現行の垂直磁気記録媒体で得た知見から、金属-酸化層を2相析出させることで実現を試みる。すなわち結晶部と粒界部の表面凹凸が現行媒体の下地と逆転していても、FePt 島状初期核を形成できれば、凹凸形状を反転できるため、現行媒体磁性層のコラム状グラ

ニューラ化の材料知見を踏襲できると考えた。この考えに基づくと、酸化層には可能な限り低融点の材料を用いた方が分離性がよいと考えられる¹⁶⁾。以上の着想をまとめて、Fig. 14 に新たに提案する HAMR 用柱状孤立化グラニューラ媒体の積層構成の模式図を示す。

下層から網目状隆起 MgO 下地上に、規則化しやすい純 FePt 島状初期核層、FePt-酸化層グラニューラ層を積層することを想定した。網目寸法すなわち bcc-Cr 基合金粒径のシングルナノメートルへの微細化、FePt-酸化層グラニューラ層中の磁性結晶粒の規則度の向上が残される課題であり、今後取り組みたい。

5. まとめ

HAMR 媒体用下地を想定して、MgO/SL(bcc-Cr₈₀Mn₂₀)/TIL(a-Co₆₀W₄₀, Ni₆₀Ta₄₀, Cr₅₀Ti₅₀) / glass sub. の層構成からなる試料を作製し、結晶配向、表面形態、組成分布を詳細に解析した。その結果、(002)面配向 MgO 層表面に(002)面配向 CrMn 結晶粒の粒径に相当する網目状隆起構造が形成されることを見出した。これは CrMn 層の成膜時にアモルファス TIL 層構成元素が CrMn 結晶粒の粒界を拡散しており、その上に MgO 層を成膜すると CrMn 粒界部からアモルファス層構成元素や Mn が MgO 層へと拡散することによりもたらされると考えられる。このような下地層の表面凹凸を活かせば、積層構成を FePt-酸化層グラニューラ層/ 純 FePt 島状初期核層/ 網目状隆起下地層とすることにより HAMR 用柱状孤立化グラニューラ媒体の実現を期待できる。

謝辞 本研究の一部は情報ストレージ研究推進機構 (ASRC) の助成によって実施された。

References

- 1) Roadmap of advanced storage technology consortium (2016).
- 2) A. Chernyshov et al.: *J. Appl. Phys.*, **117**, 17D111 (2015).
- 3) J. S. Chen et al.: *J. Appl. Phys.*, **105**, 07B702 (2009).
- 4) S.-J. Jeon et al.: *J. Appl. Phys.*, **117**, 17A924 (2015).
- 5) S.-J. Jeon et al.: *Korean Mag. Soc.*, **21**, 35 (2016).
- 6) S. Wicht et al.: *J. Appl. Phys.*, **114**, 063906 (2013).
- 7) W. B. Cui et al.: *Solid State Comm.*, **182**, 17 (2014).
- 8) H. Ho et al.: *J. Appl. Phys.*, **116**, 193510 (2014).
- 9) Th. Speliots et al.: *Appl. Surf. Sci.*, **337**, 118 (2015).
- 10) J. Wang, et al.: *Acta Mat.*, **91**, 41 (2015).
- 11) B. S. D. Ch. S. Varapasad et al.: *AIP Advances*, **7**, 056503 (2017).
- 12) R. Mukai, et al.: *IEEE Trans. Magn.*, **41**, 3169 (2005).
- 13) S. Yonemura, et al.: *J. Magn. Magn. Mat.*, **320**, 3053 (2008).
- 14) S. Saito, et al.: *Magnetics Jpn. (Magune)*, **7**, 5 (2012).
- 15) S. Yoshimura.: *IEEE Trans. Magn.*, **36**, 5 (2000).
- 16) R. Kushibiki, et al.: *IEEE Trans. Magn.*, **53**, 3200404 (2017).

2018年10月15日受理, 2019年1月25日採録

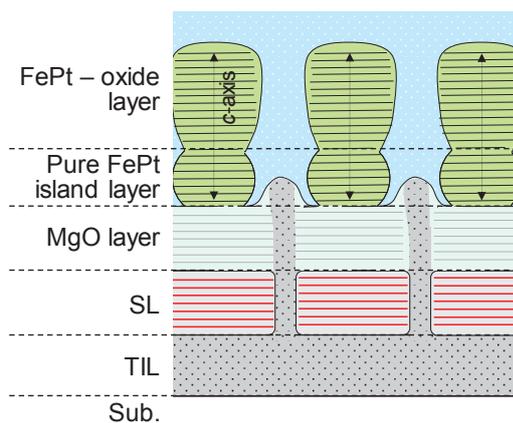


Fig. 14 Schematic of proposed structure of HAMR media for L1₀ FePt-based granular media with columnar nanostructure using network-shaped upheaval

Local strain dependence of uniaxial magnetic anisotropy in M-type ferrites

J. Inoue^{*,**}, H. Nakamura^{***}, and H. Yanagihara^{*}

^{*}Institute of Applied Physics, University of Tsukuba, *Tsukuba 305-8573, Japan*

^{**}Department of Applied Physics, Tohoku University, *Sendai 980-8577, Japan*

^{***}Department of Materials Science and Engineering, Kyoto University, *Kyoto 606-8501, Japan*

We study the magnetic anisotropy (MA) of magnetoplumbite (M)-type ferrites by calculating the electronic structure of clusters formed with an Fe³⁺ ion and O²⁻ ions. Spin-orbit interaction (*LS* coupling) is taken into account. It is shown that the *p-d* mixing between the Fe and O ions and local lattice distortion are crucial to understand the MA of M-type ferrites. Calculations of MA for M-type ferrites doped with Fe²⁺ or Co²⁺ ions demonstrate the importance of local lattice distortion on MA. It is shown that Fe²⁺ ions doped into 2a-site produce metamagnetic character when a compressive deformation along *c*-axis is introduced. It is also shown that the Co²⁺ ions doped onto 4f₁ site may enhance the uniaxial MA when a compressive deformation is introduced.

Key words : hexagonal ferrite, uniaxial magnetic anisotropy, local lattice distortion, cluster model

1. Introduction

Development of high performance permanent magnets is one of the important technological challenges for the energy-conserving society. Hexagonal ferrite magnets^{1),2)} are used most widely on a commercial basis. Even a 10 percent increase in the performance of ferrite magnets makes a great contribution towards energy-saving. It was recently found that doping of divalent Co ions into magnetoplumbite (M)-type ferrites increases magnetic anisotropy (MA).³⁾⁻⁵⁾ However, relation between the increase in MA and preferential sites for Co²⁺ ions has not been clarified⁶⁾⁻⁹⁾ and hence, no systematic development of high-performance ferrite magnets has been successful.

Requirements for large MA in permanent magnets are large value of magnetization, strong spin-orbit interaction (SOI), and low crystal symmetry. It is well known that rare-earth Fe (Co) compounds have tetragonal or hexagonal lattice symmetry. Recently, it was reported that thin films of tetragonally distorted spinel ferrites, Fe(Fe-Co)₂O₄, on suitable substrates produce extremely high uniaxial MA.¹⁰⁾ The mechanism of this high MA has been elucidated by both a phenomenological theory and an electron theory for an octahedral cluster containing a single Co ion and surrounding six O ions.^{11),12)}

M-type ferrites, AFe₁₂O₁₉ with A = Ba, Sr, or La, have a hexagonal lattice structure and their unit cell contains two formula units (fu's).^{1),2)} There are five nonequivalent sites for Fe ions called 2a, 2b, 4f₁, 4f₂, and 12k sites. Fe ions are trivalent in M-type ferrites with divalent A (Ba²⁺ and Sr²⁺) ion. On the other hand, one Fe ion in LaFe₁₂O₁₉ is divalent because La ions are trivalent. Magnetic moments of Fe ions at 2a, 2b, and 12k sites are parallel to the bulk moment, while those at 4f₁

and 4f₂ sites are antiparallel to the bulk moment. An important point is the shape of the clusters formed by a single Fe ion and surrounding O ions. Clusters for 2a-, 4f₂-, and 12k-Fe ions are of six-coordinate (octahedral), and the clusters for 2b- and 4f₁-Fe ions are of five-coordinate (hexahedral) and four-coordinate (tetrahedral), respectively, as shown in Fig. 1. It is noted that the octahedral and tetrahedral clusters are slightly distorted compared to the regular clusters existing in a cubic spinel ferrite.

In this work, using the electron theory for Fe-O clusters with SOI (*LS* coupling), we will show that the small lattice distortion of the clusters is crucial to the magnitude of MA in M-type ferrites and that the MA produced by Co²⁺ ions doped into M-type ferrite is also affected by the cluster distortion. To begin with, we first explain how the trivalent Fe ions produce MA of M-type ferrites in the present cluster model. This is nontrivial because 3d⁵ electron configuration of Fe³⁺ gives rise to null orbital angular momentum resulting in no *LS* coupling. We show that the *p-d* mixing of wave functions on O and Fe ions is essential to understand the MA in oxide magnets.

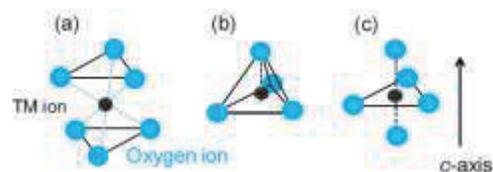


Fig. 1 Types of clusters formed by a TM ion (Fe or Co) and surrounding O ions. (a) Six-coordinate (octahedral) cluster, (b) four-coordinate (tetrahedral) cluster, and (c) five-fold (hexahedral) cluster. Direction of *c*-axis of the M-type ferrite is shown by an arrow.

In next section we explain a model (cluster model) for the electron theory to calculate MA. In section III, we will provide the calculated results of MA for undoped M-type ferrites, followed by those produced for Fe^{2+} and Co^{2+} ions in M-type ferrites. To clarify the effect of cluster distortion on MA of doped ferrites, the MA energy is calculated as a function of cluster distortion. Implications of the calculated results will be discussed, and conclusions are given in section IV.

2. Method of calculation

We perform numerical calculations for clusters with a single Fe^{3+} , Fe^{2+} , or Co^{2+} ion surrounded by six (octahedral cluster), five (hexahedral cluster), and four (tetrahedral cluster) O^{2-} ions using full orbital tight-binding (TB) model with SOI (LS coupling) on Fe and Co ions. The 3d-orbitals of the transition metal (TM) ions are spin-polarized and the ions have local moments. The clusters are simplified ones but satisfy the local symmetry.

Parameters of the inter-site p - d hopping between five 3d-orbitals on a TM ion and three 2p-orbitals on oxygen ions are determined from Harrison's textbook.^{13,14} Inter-site p - p hopping between O ions is also taken into consideration. The atomic energy levels of 2p- and 3d-orbitals and the magnitude of the exchange splitting are fixed by considering the results of the electronic states of the spinel ferrites calculated using first-principles.^{15, 16} Number of electrons on 3d states of Fe^{3+} , Fe^{2+} , and Co^{2+} are five, six, and seven per ion, respectively, and that of O^{2-} is six per ion. The ground state energy is calculated by diagonalizing the Hamiltonian matrix as a function of magnetization direction. It is noted that the mixing of p- and d-orbitals reproduces the correct symmetry-dependence of energy levels as in the crystal field potentials.

The values of the SOI of Fe^{3+} , Fe^{2+} , and Co^{2+} ions are fixed as 0.057, 0.050, and 0.063 eV per ion, respectively.¹⁷ The values are consistent with the dependence of SOI on Zr^3 , where Z and r are the atomic number and ionic radius of the TM ion, respectively.

In the following, "positive uniaxial MA" of the cluster is defined in such a way that the easy-direction of the cluster magnetization coincides with the c -axis shown in Fig. 1.

3. Calculated results and discussions

3.1 Magnetic anisotropy of $\text{AFe}_{12}\text{O}_{19}$

Figure 2 shows the calculated results of MA energy (K_u) for each cluster in M-type ferrites with $A = \text{Ba}$, Sr , and La . Positive K_u indicates the uniaxial MA. The shapes of the clusters used in the calculations are the same as those in the lattices observed for $A = \text{Ba}$, Sr , and La .¹⁸⁻²⁰ Two sets of parameter values are used, among which, one includes no p - p hopping and the other includes p - p hopping with a weighing factor of 0.5. Although the La-ferrite includes one Fe^{2+} ion in fu because

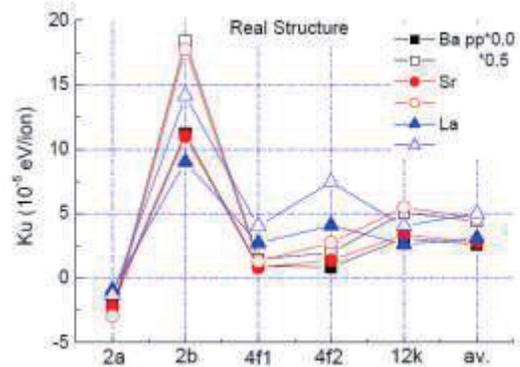


Fig. 2 Calculated results of MA energy, K_u for Fe^{3+} on each nonequivalent site in M-type ferrites. Closed symbols are for those without p - p hopping in the cluster model, and open symbols are for those with p - p hopping and a weighing factor of 0.5. "av" indicates the averaged value over the K_u values calculated for five nonequivalent sites. 0.1 meV/ion corresponds to 5.6 Merg/cm³.

La ion is trivalent, we neglected the existence of Fe^{2+} assuming that all the Fe ions are trivalent, in order to study the dependence of K_u on the small local lattice distortion

As shown in Fig. 2, the 2b site contributes most dominantly to the uniaxial MA because of its lowest cluster symmetry. Nevertheless, the other sites, especially 12k site, may contribute to the total MA because of the abundance of the 12k site. The tendency has already been discussed,¹⁾ and is consistent with that obtained in the theoretical analysis using crystal field model²¹⁾ and with that in the first-principle calculations.²²⁾

The calculated and experimental results of MA energy per unit volume are presented in Table 1. The calculated results are obtained by summing up the contribution of each cluster. We find that the results are in good agreement with the experimental ones. The result calculated by the first-principles is nearly half of the experimental values.²²⁾ The tendency observed in our calculation suggests the validity of our cluster model. It is noted that the calculated values shown in Table 1 include the effect of p - p hopping and that the inclusion of p - p hopping enhances the magnitude of K_u values.

Table 1 Experimental and calculated values of K_u in Merg/cm³ for $A = \text{Ba}$, Sr , and La . The result calculated using first-principles is also presented. The value of K_u of La-ferrite includes a contribution from Fe^{2+} and is larger than those of Ba- and Sr-ferrites by a factor 1~2.

A	Ba	Sr	La
Exp. ²³⁾	3.25	3.57	-
Present cal.	2.45	2.60	2.81
First-principles ²²⁾	-	1.8	-

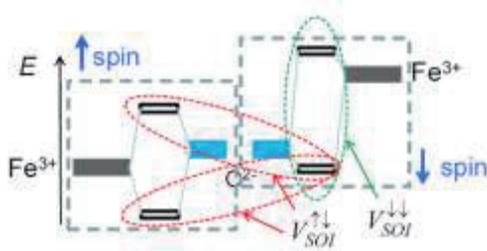


Fig. 3 A schematic diagram of the energy levels of a cluster formed by a TM ion at the center and O ions surrounding the TM ion. Shaded boxes represent the unhybridized levels and open boxes indicate the bonding and antibonding states after p - d mixing. $V_{SOI}^{\uparrow\downarrow}$ and $V_{SOI}^{\downarrow\downarrow}$ denote up-down spin and down-down spin components of the LS coupling.

To study the effect of the local lattice distortion in $AFe_{12}O_{19}$ on the MA, we performed similar cluster calculations for an ideal M-type ferrite in which the octahedral and tetrahedral clusters are regular octahedrons and tetrahedrons, respectively. The K_u value is 1.6 Merg/cm³, which is much smaller than those calculated for $AFe_{12}O_{19}$. The result indicates the importance of the local lattice distortion on MA.

The appearance of the MA in Fe^{3+} ions is explained in terms of p - d mixing between the spin-polarized 3d states of an Fe ion and 2p states of O ions. Figure 3 is a schematic presentation of the energy levels for the spin-polarized 3d states and unpolarized 2p states. Shaded boxes represent the energy levels of unhybridized states and white boxes indicate the bonding and antibonding states after p - d mixing. The down-spin bonding states include 3d-orbital components; consequently, the LS coupling becomes active between both up-down and down-down spin components, resulting in a weak MA in Fe^{3+} ions.

Some discussions on the validity of the present calculations are ready. The bulk K_u of Ba-ferrite was calculated to be 0.6 Merg/cm³ by using the crystal field model,²¹⁾ in which the local K_u values were reported to be $17.4 \times$ and $-2 \sim 6 \times 10^{-5}$ eV/ion for 2b-Fe and the other Fe ions, respectively. Although the tendency of the local K_u values agrees with the present results, the bulk K_u is smaller than that in the present model. The result may be attributed to the negative value of local K_u for the abundant 12k-site Fe ions.

The first principles calculation of the local K_u for Sr-ferrite in the Wien2K with GGA+U formalism²²⁾ gives $24 \times$ and $-1 \sim 2 \times 10^{-5}$ eV/ion for 2b-Fe and the other Fe ions, respectively. Although the bulk K_u value shown in Table 1 is consistent with the present result, the local K_u values except for 2b-Fe are not necessarily consistent with ours. We attribute the difference to the long-range effect neglected in our cluster model. Resultant numerical error inherent to the present model seems be of the order of 10^{-5} eV/ion, because the accu-

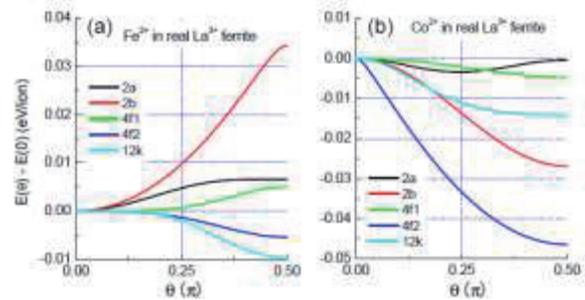


Fig. 4 MA energy, calculated in the cluster model, as a function of angle θ of the magnetization direction measured from c -axis shown in Fig. 1 for (a) Fe^{2+} and (b) Co^{2+} ions in the nonequivalent sites of La-ferrite.

racy in the numerical calculation is better than 10^{-7} eV/ion.

3.2 MA of divalent Fe and Co ions

To clarify the sites occupied by Co^{2+} in M-type ferrites is crucial in the fabrication of high performance ferrite magnets, however, the experimental results are controversial:^{(6),(7),(24)-(27)} Mössbauer and Raman measurements suggest $4f_2$ site as the occupied site, while Neutron diffraction and Extended X-ray Absorption Fine Structure (EXAFS) measurements suggest $4f_1$ site. As for the occupation of Fe^{2+} ions, on the other hand, both experimental and theoretical results suggest 2a site as the most preferential site.^{22),(28)} In addition, a metamagnetic transition observed in the magnetization process for Fe^{2+} doped $(Ca-La)Fe_{12}O_{19}$ might be a clue to identify the occupation sites of Fe^{2+} ions.²⁸⁾

To examine the effects of Fe^{2+} and Co^{2+} ions on MA, we perform numerical calculation of MA energy for clusters which contain Fe^{2+} or Co^{2+} . The shape of the cluster is assumed to be the same as that in La-ferrite. Calculated results for Fe^{2+} and Co^{2+} ions as a function of magnetization direction θ , the angle measured from c -axis, are presented in Fig. 4(a) and 4(b), respectively.

As shown in figure 4(a), Fe^{2+} ions on 2a, 2b, and $4f_1$ sites enhance the uniaxial K_u , while those on $4f_2$ and 12k sites suppress it. However, no such tendency has been observed in experiments. Furthermore, the θ -dependence of MA energy on 2a-Fe shows no tendency of a metamagnetic transition. As for Co^{2+} ions in La-ferrite, they, except for those on 2a site, suppress the uniaxial MA as shown in Fig. 4(b). The characteristic feature shown in Fig. 4(b) has been found to be unchanged for Co^{2+} ions doped in the other M-type ferrites. The MA energy thus calculated for Co^{2+} ion doped into any site in M-type ferrites would not explain the observed increase in the uniaxial K_u .

As mentioned, the shape of the clusters used in the calculations is assumed to be the same as that in the lattice structure of La-ferrite. However, in (La-Ca)-ferrite for example, random distribution of Fe^{3+} and Fe^{2+} ions may give rise to additional lattice distur-

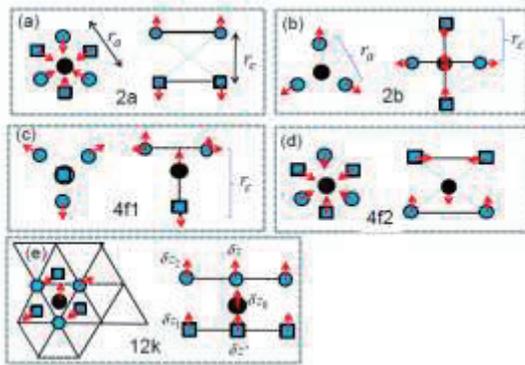


Fig. 5 Types of cluster distortions denoted by the shift (small red arrows) of O and Fe ions for (a) 2a, (b) 2b, (c) 4f₁, (d) 4f₂, and (e) 12k sites. Right and left panels of each figure are the projections of the cluster onto the *c*-plane and a plane along the *c*-axis, respectively. Two distances r_a and r_c are defined as the in-plane O–O distance and inter-plane one, respectively.

tion because of different ionic radii between Fe³⁺ and Fe²⁺ ions. Distribution of La and Ca ions may also lead to a similar effect. As shown in the previous subsection, the MA of M-type ferrite is sensitive to the lattice distortion of clusters, and therefore, it is expected that the calculated results shown in Fig. 4 might be altered by lattice distortion of the clusters. In the following, we perform cluster calculations by introducing cluster distortions.

As the details of local lattice distortion in (La-Ca)-ferrite are unknown, we first survey the characteristic feature of the local lattice distortion of Fe–O clusters in Ba-, Sr-, and La-ferrites.^{18)–20)} Results are depicted in Fig. 5, where small arrows denote the shifts of O and Fe ions from the positions of ideal clusters. The shifts for 2a-site cluster, for example, are depicted in Fig. 5(a). The left figure is a projection of the cluster on the *c*-plane, and shows that the O ions on both upper and lower triangles shrink, that is, the distance r_a shown in the figure becomes smaller than that of the regular octahedron in the cubic spinel ferrite. The right figure is a projection on to a plane along *c*-axis. It shows that O ions on the upper triangle shift upward and those on the lower triangle shift downward, resulting in an increase in the distance r_c . Figures for the other clusters should be understood similarly, except for the shift of the Fe ions along the *c*-axis. It is notable that result for the 12k-cluster exhibits complicated lattice distortion as depicted in Fig. 5(e).

The O-ion position is shifted from the position of the regular octahedron or tetrahedron by a small amount of $(\delta x_0, \delta y_0, \delta z_0)$, which may be estimated by using the X-ray diffraction data for Ba, Sr, and La-ferrites.^{18)–20)} The estimated values are $\delta x_0 = -0.01 \sim 0.015 \text{ \AA}$, $\delta y_0 = -0.02 \sim 0.01 \text{ \AA}$, and $\delta z_0 \lesssim 0.04 \text{ \AA}$ for 2a, 4f₁

Table 2. Estimated magnitude of cluster distortion in M-type ferrites, normalized r_c/r_a , and shift of Fe ion $|\delta z|$. Values for 12k-site cluster are omitted because of the complexity of the cluster distortion.

	Normalized r_c/r_a	Shift of Fe ion $ \delta z $ (Å)
2a	1.08 ~ 1.12	0
2b	0.87 ~ 0.90	0.006 ~ 0.007
4f ₁	1.06 ~ 1.07	0.002 ~ 0.003
4f ₂	1.10 ~ 1.17	0.009 ~ 0.011
12k	–	–

and 4f₂ site clusters. By using these values, the range of r_a and r_c values defined in Fig. 5 have been evaluated.

The cluster distortion may be characterized by two quantities, a ratio r_c/r_a where r_c and r_a are the in-plane and inter-plane distances between two O ions, respectively, and δz is the shift of Fe ion as defined in Fig. 5. Here, we introduce a normalized ratio $(r_c/r_a)_n$ that is the value of r_c/r_a normalized by that for regular octahedron or tetrahedron. The $(r_c/r_a)_n$ value for 2b-site cluster is determined using 2b-site cluster in the ideal M-type ferrite in which regular octahedrons and tetrahedrons are included. Table 2 shows values of normalized ration $(r_c/r_a)_n$ and $|\delta z|$ for clusters with the nonequivalent Fe sites. In the following, we use these values as a measure of lattice distortion to calculate the dependence of K_u on the local lattice distortion in M-type ferrite doped with Fe²⁺ or Co²⁺ ions.

Now, we study the dependence of K_u values on local lattice distortion for Fe²⁺ and Co²⁺ ions doped in Sr-ferrite. We focus our attention on the Fe²⁺ ion on 2a site, which may be responsible for the metamagnetic behavior, and on the Co²⁺ ion on 4f₁ and 4f₂ sites, which are suggested to be plausible for Co²⁺ occupation.

Figure 6(a) shows calculated values of K_u of Sr-ferrite in which 20 % Fe²⁺ ions are doped into 2a sites. The range of the lattice distortion is $0.9 < (r_c/r_a)_n < 1.0$ and $-0.01 < \delta z < 0.01$. The value of δz is zero because of the lattice symmetry, however, we have introduced it virtually for comparison with results obtained for the other clusters. The K_u value on Fe²⁺ ion and that of the bulk Sr-ferrite calculated in the previous subsection, have been averaged over. Red region shows positive K_u and blue and green regions indicate negative K_u . The linear dependence of K_u on $(r_c/r_a)_n$ is the same as the tetragonality dependence of K_u given by the relation $K_u = B(c/a-1)$ in cubic lattices, where B is the magnetoelastic constant. The dependence of K_u on δz is symmetrical because of the symmetry of the 2a-site cluster along the *c*-axis.

Because θ -dependence of K_u is given as $K_u \sim K_1 \sin^2\theta + K_2 \sin^4\theta$, several magnetic states may appear depending on the signs and magnitudes of K_1 and K_2 . Therefore, we have approximately fitted the calculated results of $K_u(\theta)$ using the equation above, and have

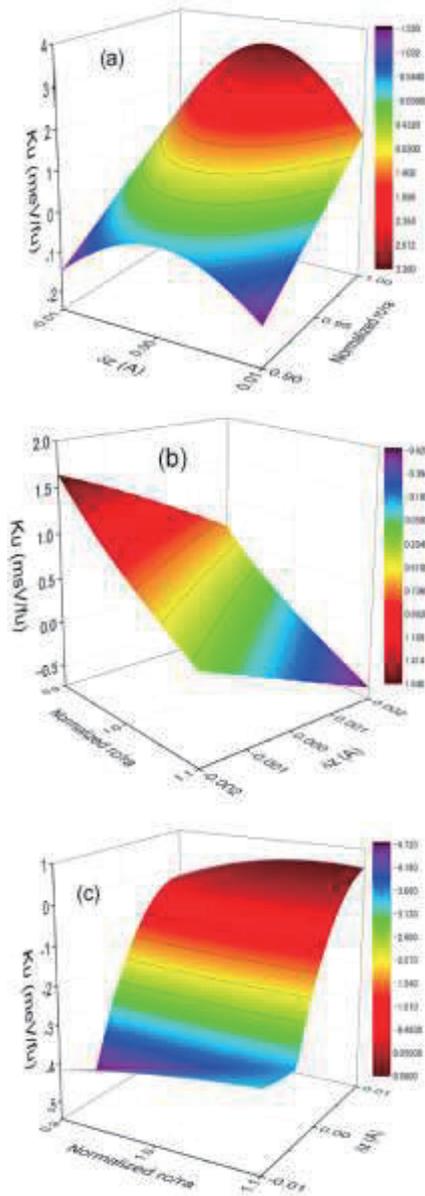


Fig. 6 Calculated results of K_u (in Merg/cm³) of Sr-ferrite with 20 % doping of Fe²⁺ or Co²⁺ ions. Results are plotted as a function of normalized r/r_a ratio, $(r/r_a)_n$ (see text), and δz (in Å), which characterize the cluster distortion and the shift of Fe or Co ions. (a) Fe²⁺ doping on 2a site, (b) Co²⁺ doping on 4f₁ site, and (c) Co²⁺ doping on 4f₂ site.

obtained values of K_1 and K_2 . These values are useful to semi-quantitatively discuss the dependence of the magnetic state on lattice distortion. Combination of the signs of K_1 , K_2 , and K_u is plotted in Fig. 7(a) as a function of $(r/r_a)_n$ and δz . For $(r/r_a)_n > 0.925$ with $\delta z = 0$, all values are positive, while states with $K_1 > 0$, $K_2 < 0$, and $K_u > 0$ appear with decreasing $(r/r_a)_n$. In these states the metamagnetic transition may occur when an in-plane external magnetic field is applied. The most

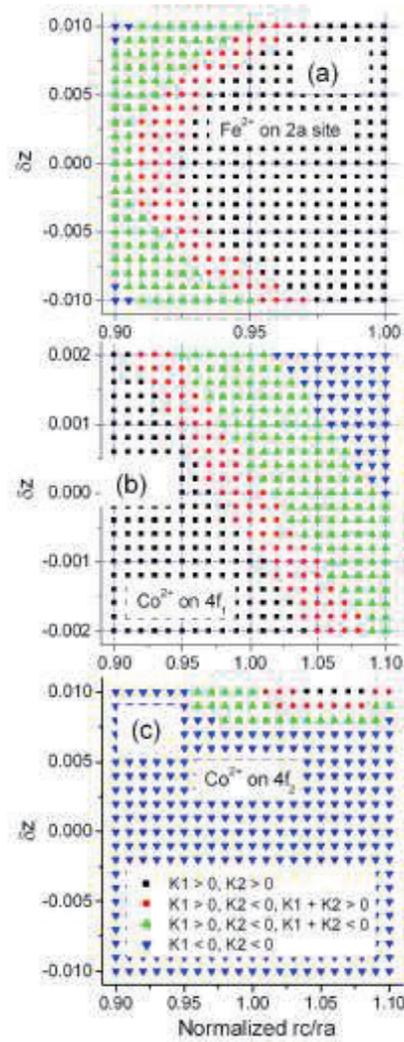


Fig. 7 Signs of K_1 , K_2 , and K_u calculated as a function of normalized r/r_a ratio and δz (in Å) to characterize the magnetic states of Sr-ferrites with 20 % doping of Fe²⁺ or Co²⁺ ions. (a) Fe²⁺ ion on 2a site, (b) Co²⁺ ion on 4f₁ site, and (c) Co²⁺ ion on 4f₂ site.

notable result shown in Fig. 6(a) and Fig. 7(a) is that the sign of MA is altered by a very small change in the inter-atomic distance.

Figure 6(b) shows the results for K_u of Sr-ferrite with 20 % doping of Co²⁺ on 4f₁ site. The red and blue regions indicate positive and negative K_u , respectively. The magnitude of the local distortion of the cluster containing 4f₁ site in the undoped Sr-ferrite corresponds to that in the blue region. With decreasing $(r/r_a)_n$, which implies increasing the compression along the c -axis, K_u values increase and become positive as shown in the figure. Similarly, K_u value becomes positive as δz turns to be negative.

Combination of the signs of K_1 , K_2 , and K_u is plotted in Fig. 7(b) as a function of $(r/r_a)_n$ and δz . We find the

blue region with negative K_u changes to be positive with decreasing $(r/r_a)_n$. Similar change occurs in case of sign change in δz from positive to negative. We see that the combination of signs of K_1 , K_2 , and K_u is altered by a few % change in $(r/r_a)_n$, as well as by a small shift δz of Co ion.

Similar plots for Sr-ferrite with 20 % doping of Co^{2+} on $4f_2$ site are presented in Fig. 6(c) and Fig. 7(c). It is noted that color presentation in Fig. 6(c) is different from that in figure 6(b): zero of K_u resides in the blue region in Fig. 6(b), while it is in the red region in Fig. 6(c). As shown in Table 2, values of $(r/r_a)_n$ and δz for $4f_2$ site cluster in the undoped ferrite are close to 1.1 and -0.01 \AA , respectively. Therefore, 20 % doping of Co^{2+} on $4f_2$ site makes K_u strongly negative. The plot in Fig. 7(c) shows that the negative sign of K_u would not be altered by weak distortion of the cluster.

We have thus investigated the overall feature of the effects of the local lattice distortion, that is, the cluster deformation, on K_u values as well as on the signs of K_1 , K_2 , and K_u . The possible magnitude of the local lattice distortion after Fe^{2+} or Co^{2+} doping was estimated by comparing the distortions in Ba-, Sr-, and La-ferrites with those in the ideal structure. The results may be summarized in the following manner.

Because the MA induced by Fe^{2+} and Co^{2+} ions is much larger than that induced by Fe^{3+} ion, dopant of small amount of Fe^{2+} and Co^{2+} ions may change the character of MA of M-type ferrites. When the lattice structure of doped ferrites is assumed to be the same as that of undoped ferrite, the change in K_u values for Fe^{2+} doping depends on the doped site of Fe^{2+} , while K_u for Co^{2+} ion is negative and independent of the doped site. However, such change in MA of doped ferrites strongly depends on the local lattice distortion, a very small change in $(r/r_a)_n$ of the cluster and/or a small shift in the position of Fe^{2+} (Co^{2+}) ions. Furthermore, such MA change depends on the occupation sites. For Fe^{2+} -doped 2a site, the metamagnetic feature appears under cluster compression along the c -axis. For Co^{2+} -doped $4f_1$ site, similar compression makes K_u positive.

The results are consistent with the observed ones, however, several discussions are possible. First, so far no explicit observation for the relation of MA change and local lattice distortion has been reported. Because the lattice distortion introduced in our calculation is very small, high-precision local probe is required to measure the lattice distortion.³⁰⁾

Secondly, in our calculations, the distortion of each cluster was treated independently. This treatment may not always be correct. For example, Fe ions on $4f_2$ sites form dumbbell structure in M-type ferrites, that is, two neighboring octahedrons share a triangle face, resulting in a double-cluster structure. It should be noted that, for this type of double-cluster structure, K_u value induced by two Co^{2+} ions depends on the distance between the two Co^{2+} ions. Our preliminary results show that with decreasing distance, direct overlap of 3d-electron

clouds increases and contributes to make K_u positive. The tendency is the same with that in the usual hexagonal Co lattices.

Thirdly, we would like to discuss the long-range effects of crystal field potential on K_u values. The bulk K_u values of M-type ferrites doped with 20% Co^{2+} or Fe^{2+} ions are of the order of 1 meV/fu as shown in Fig. 6, which corresponds $0.5\text{--}3 \text{ eV}$ per Co or Fe ion. The long-range effects on the local K_u of Co^{2+} have been investigated in a simple model for tetragonally distorted spinel ferrites in which a local trigonal symmetry around TM ions on the so-called B-site is produced due to characteristic lattice structure in the second nearest neighbor sites.³¹⁾ It has been shown that the local trigonal symmetry reduces the K_u value of the tetragonally distorted spinel ferrites.¹²⁾ Although M-type ferrites have no such local symmetry, existence of Ba or Sr ions and distribution of Co^{2+} and/or Fe^{2+} ions may reduce the bulk K_u values. Nevertheless, the local K_u values of Co^{2+} and Fe^{2+} remain sufficiently large as compared with those of Fe^{3+} , and therefore the semi-quantitative results shown in Figs. 6 and 7 would be unchanged. It is noted that such effect is not large for Fe^{3+} ions because the up and down spin states are already split by the large exchange field.

Finally, the clusters in ferrites are connected with one another, and therefore, the distortion of each cluster is affected by other clusters. Furthermore, such local lattice distortion is influenced by the distribution of divalent and trivalent ions in the lattice. One possible way to clarify such local lattice distortion in a doped lattice could be the method of lattice relaxation in the first-principles. In this case, however, highly precise calculation is also desirable.

4. Conclusions

We explained the MA of M-type ferrites by calculating the electronic structure of clusters with a single Fe^{3+} ion and surrounding O^{2-} ions. The SOI (LS coupling) was introduced in the magnetic ion. We found that the calculated results agree with the experimental ones fairly well, and attributed the mechanism of MA of Fe^{3+} ions to the p - d mixing between 2p- and 3d-orbitals of O^{2-} and Fe^{3+} ions, respectively. It was pointed out that a small amount of lattice deformation of the clusters is crucial for quantitative understanding of the MA.

Our cluster calculations showed that MA of M-type ferrites doped with Fe^{2+} or Co^{2+} ions is also strongly affected by a small amount of lattice distortion. It was shown that Fe^{2+} ions doped onto 2a-site produce metamagnetic character when compressive deformation along the c -axis is introduced. It was also shown that the Co^{2+} ions doped onto $4f_1$ site may increase the uniaxial MA when the compressive deformation is introduced.

For material design of ferrite magnets, however, precise measurements of local lattice distortion and

detailed first-principles calculations of MA with local lattice relaxation are required.

Acknowledgements This study was partially supported by the project "High Performance Magnets" of Japan Science and Technology Agency, Japan.

References

- 1) J. Smit and H. P. J. Wijn, Ferrite, *Philips Technical Library*, Eindhoven (1960).
- 2) H. Kojima, Ferromagnetic Materials, Vol. **3**, ed. E. P. Wohlfarth, p. 305, (North-Holland, Amsterdam).
- 3) H. Nishio, K. Iida, Y. Minachi, K. Masuzawa, M. Kawakami, and H. Taguchi, *J. Magn. Soc. Jpn.* **23**, 1097 (1999).
- 4) Y. Ogata, T. Takami, and Y. Kubota, *J. Jpn. Soc. Powder Metal.* **50**, 636 (2003).
- 5) Y. Kobayashi, S. Hosokawa, E. Oda, and S. Toyota, *J. Jpn. Soc. Powder Metal.* **55**, 541 (2008).
- 6) G. Wiesinger, M. Müller, R. Grössinger, M. Pieper, A. Morel, F. Kools, P. Tenaud, J.-M. Le Breton, and J. Kreisel, *phys. stat. sol. (a)* **189**, 499 (2002).
- 7) A. Morel, J.-M. Le Breton, J. Kreisel, G. Wiesinger, F. Kools, and P. Tenaud, *J. Magn. Magn. Mater.* **242–245**, 1405 (2002).
- 8) M. Pieper, F. Kools, and A. Morel, *Phys. Rev. B* **65**, 184402 (2002).
- 9) Y. Kobayashi, E. Oda, T. Nishiuchi, and T. Nakagawa, *J. Ceram. Soc. Jpn.* **119**, 285 (2011).
- 10) T. Niizeki, Y. Utsumi, R. Aoyama, H. Yanagihara, J. Inoue, Y. Yamasaki, H. Nakano, K. Koike, and E. Kita, *Appl. Phys. Letters* **103**, 162407 (2013).
- 11) A. Lisfi, C. M. Williams, L. T. Nguen, J. C. Lodder, A. Coleman, H. Corcoran, A. Johnson, P. Chang, A. Kumar, and W. Morgan, *Phys. Rev. B* **76**, 054405 (2007).
- 12) J. Inoue, H. Yanagihara, and E. Kita, *Materials Research Express* **1**, 046106 (2014).
- 13) W. A. Harrison, *Electronic Structure and the Properties of Solids*, 1980 (W. H. Freeman and Company, San Francisco).
- 14) J. Inoue, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **48**, 445005 (2015).
- 15) Z. Szotek, W. M. Temmerman, D. Ködderitzsch, A. Svane, L. Petit, and H. Winter, *Phys. Rev. B* **74**, 174431 (2006).
- 16) T. Kida, S. Honda, H. Itoh, J. Inoue, H. Yanagihara, E. Kita, and K. Mibu, *Phys. Rev. B* **84**, 104407 (2011).
- 17) F. E. Mabbs and D. J. Machin, *Magnetism and Transition Metal Complexes*, 2008 (Dover, New York USA).
- 18) X. Obradors, X. Solans, A. Collomb, D. Samaras, J. Rodriguez, M. Pernet, and M. Font-Altaba, *J. Solid State Chem.* **72**, 218 (1988).
- 19) M. V. Cabanas, J. M. Gonzalez Calbet, J. Rodriguez Carvajal, and M. Vallet Regi, *J. Solid State Chem.* **111**, 229 (1994).
- 20) M. Küpferling, R. Grössinger, M. W. Pieper, G. Wiesinger, H. Michor, C. Ritter, and F. Kubel, *Phys. Rev. B* **73**, 144408 (2006).
- 21) X. You, G.-J. Yang, D.-P. Chu, and H.-R. Zhai, *phys. stat. sol. (b)* **157**, 685 (1990).
- 22) V. Chlan, K. Kouřil, K. Uličinová, H. Štěpánková, J. Töpfer, and S. Seifert, *Phys. Rev. B* **92**, 125125 (2015).
- 23) B. Shirk and W. Buessem, *J. Appl. Phys.* **40**, 1294 (1969).
- 24) Y. Kobayashi, E. Oda, T. Nakagawa, and T. Nishiuchi, *J. Jpn. Powder Metal.* **63**, 101 (2016).
- 25) Y. Kobayashi, PhD thesis, Osaka University (2016), [in Japanese].
- 26) H. Nakamura, *Magnetics Jpn.* **13**, 59 (2018), [in Japanese].
- 27) Y. Kobayashi, *Magnetics Jpn.* **13**, 68 (2018), [in Japanese].
- 28) A. Shimoda, K. Takao, K. Uji, T. Waki, Y. Tabata, and H. Nakamura, *J. Solid State Chem.* **239**, 153 (2016).
- 29) K. Takao, T. Waki, Y. Tabata, K. Uji, and H. Nakamura, to be submitted.
- 30) H. Nakamura, A. Shimoda, T. Waki, Y. Tanabe, and C. Meny, *J. Phys. Condens. Matter* **28**, 346002 (2016).
- 31) J. C. Slonczewski, *Phys. Rev.* **110**, 1341 (1958).

Received Oct. 09, 2018; Accepted Dec. 19, 2018

(Sm,Y)(Fe,Co)_{12-x}Ti_xにおける生成相と磁気特性Structural and magnetic properties of (Sm,Y)(Fe,Co)_{12-x}Ti_x萩原将也[†]・眞田直幸・桜田新哉

(株) 東芝 研究開発本部 研究開発センター, 神奈川県川崎市幸区小向東芝町1 (〒212-8582)

M. Hagiwara[†], N. Sanada, and S. Sakurada

Corporate Research & Development Center, Research & Development Division, Toshiba Corporation.

1 Komukai-Toshiba-cho, Saiwai-ku, Kawasaki 212-8582, Japan

The structural and magnetic properties of (Sm,Y)(Fe,Co)_{12-x}Ti_x (x = 0.5, 0.6) prepared by arc melting and rapid quenching are investigated. The formation of the TbCu₇-type phase were facilitated with decreasing amount of Ti concentrations, and many amount of TbCu₇-type phase was observed for arc melted alloy at low Ti concentrations (x = 0.5). In the contrast, the volume fraction of TbCu₇-type phase was reduced remarkably for rapidly quenched alloy. This shows that the formation of the ThMn₁₂ structure was facilitated by rapid quenching at low Ti concentrations. When compared with the same amount of Ti concentrations (x = 0.5), the value of saturation magnetization of rapidly quenched alloy which was 1.55 T was higher than that of arc melted alloy.

Key words: ThMn₁₂ structure, permanent magnet materials, structure, saturation magnetization

1. はじめに

ThMn₁₂型結晶構造を有するRFe₁₂系化合物(R = 希土類元素)はR-Fe金属間化合物の中でも特に多くのFe元素を含有できることから高性能な永久磁石の候補材料として期待されている。この化合物のバニク体はFeの一部を非磁性の第三元素(Al, Si, Ti, V, Cr, Mo, Mn, W)で置換することにより安定に存在することが知られているが^{1)~4)}, 置換により飽和磁化(μ_0M_s)が低下するため⁵⁾, これまではNd₂Fe₁₄B⁶⁾を超える μ_0M_s は得られていなかった。しかし, 近年の薄膜における研究により, 非磁性の第三元素を含まないSm(Fe_{0.8}Co_{0.2})₁₂組成にてThMn₁₂相(1-12相)が単相状態で得られ, Nd₂Fe₁₄Bを超える1.78 Tの μ_0M_s と, 12 Tの異方性磁界(μ_0H_a)が報告された⁷⁾。この結果はRFe₁₂系化合物の高いポテンシャルを示すものとして注目を集めている。我々のグループでは, R-Fe-Si系における研究から1-12相生成のためには希土類の原子半径が重要な役割を担い, 原子半径が小さい場合に1-12相が生成することを見出している。さらに, RがNdの場合において, Ndの一部をZrで置換することで希土類サイトの平均原子半径が低下し, 1-12相の生成が促進されることを見出している⁸⁾。最近ではNd-Fe-Ti系において, Ndの一部をZrで置換することにより従来よりも低Ti濃度の組成で1-12相が得られることが報告され⁹⁾, さらに, Zr置換による1-12相安定化の効果がSm-Fe-Ti系にも適用可能であることが示されている^{10)~12)}。このような観点から, 我々はSmよりも原子半径が小さいYに着目し, (Sm,Y)(Fe_{0.8}Co_{0.2})_{12-x}Ti_x (x = 0.6, 1)組成のアーク溶解合金を対象にY置換が構成相や結晶格子, 磁気特性に与える影響を調べた結果, Smの一部をYで置換することで結晶格子のa軸長が低下し, (Sm_{0.8}Y_{0.2})(Fe_{0.8}Co_{0.2})_{11.4}Ti_{0.6}組成において, 1-12相がほぼ単相状態で得られることを見出した。この化合物は $\mu_0M_s = 1.50$ T, $\mu_0H_a = 11$ T, $T_c = 813$ Kの磁気特性を持ち, 永久磁石材料として優れたポテンシャルを有していることを確認している¹³⁾。Y系とZr系では化合物中の電子状態に違いが生じる可能性があり, これらの差異についても非常に興味深く, 1-12相の安定性や磁気特性に及ぼす希土類サイトの影響についてはさらに系統的な研究が必要である。本論文ではその一環としてY置換に注目し, (Sm,Y)(Fe,Co)_{12-x}Ti_x (x = 0.5, 0.6)組成の化合物におい

て, Ti量xおよび溶解急冷プロセスが生成相や磁気特性に及ぼす影響を検討した。

2. 実験方法

Ar雰囲気中でアーク溶解により合金を作製し, 均質化のためにAr雰囲気中1523 Kで25-50 hの熱処理を行った。本試料をアーク溶解合金と呼ぶ。また, 高周波溶解後, 溶湯を周速3m/sで回転するCuロールに射出して急冷薄帯を作製し, 均質化のためにAr雰囲気中1373 Kで25-50 hの熱処理を行った。本試料を液体急冷合金と呼ぶ。合金組成は熱処理後に(Sm_{0.8}Y_{0.2})(Fe_{0.8}Co_{0.2})_{12-x}Ti_x (x = 0.5, 0.6)となるよう調整した。試料組成はInductively coupled plasma-atomic emission spectroscopy (ICP-AES)を用いて測定し, 構成相はCu-K α 線を用いたX-ray diffraction (XRD)で評価した。微細組織は, Scanning electron microscopy - backscattering electron image/energy dispersive X-ray spectrometry (SEM-BEI/EDX)を用いて評価し, SEM像から算出した各相の面積分率をもって各相の体積分率とした。磁気特性はVibrating sample magnetometer (VSM)を用いて印加磁場9 Tまで測定した。いずれの測定も全ての試料について300 Kで行った。

3. 実験結果と考察

3.1 アーク溶解合金における構成相

Fig. 1にアーク溶解合金(x = 0.5, 0.6)のXRDパターンを示す。x = 0.6のTi量においては α -(Fe,Co)相からの回折ピークはほとんど見られず, 1-12相がほぼ単相状態で得られている¹³⁾。一方で, x = 0.5にTi量を低下すると, α -(Fe,Co)相のピークが明確に現れるとともに, 1-12相の(310), (002), (400), (202), (222)面からの回折ピーク強度が低下することが明らかとなった。そこでx = 0.5の合金における構成相の存在形態や体積比率をSEM観察から詳しく調べた。得られたSEM-BEIをFig. 2に示す。合金には組成の異なる3種類の相(A, B, C相)が存在し, XRDおよびEDXの測定結果を考慮すると, (A)相は1-12相, (C)相は α -(Fe,Co)相に対応していることが分かった。また, (B)相についてはEDXの測定結果から, (A)相に比べSm量が多く, 希土類と遷移金属の比が1:8-1:9の金属間

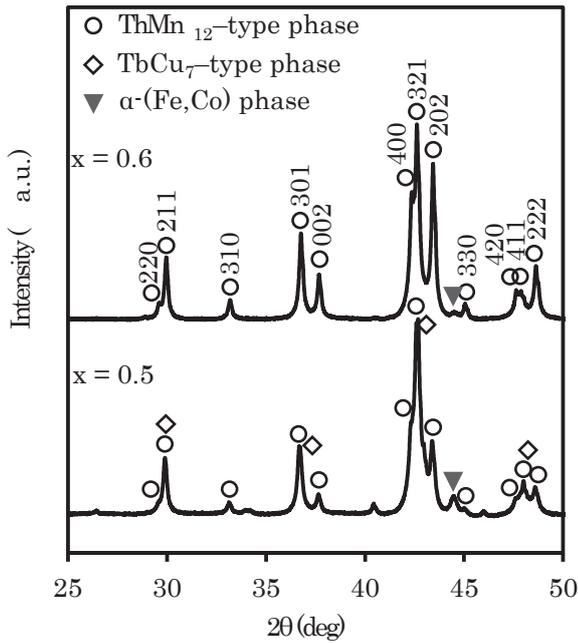


Fig. 1 XRD patterns of $(\text{Sm}_{0.8}\text{Y}_{0.2})(\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2})_{12-x}\text{Ti}_x$ ($x = 0.5, 0.6$) prepared by arc melting.

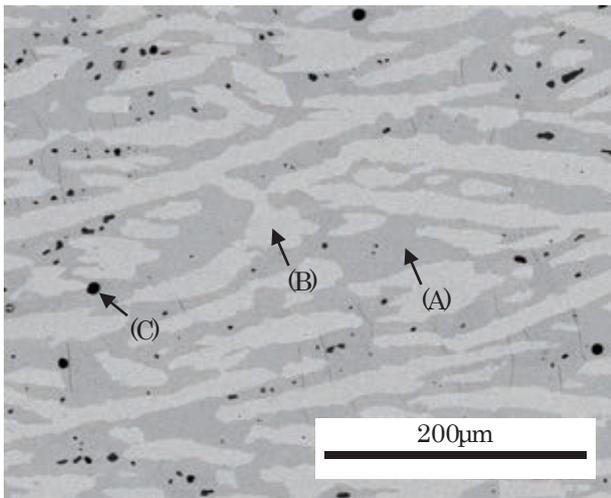


Fig. 2 SEM-BEI of $(\text{Sm}_{0.8}\text{Y}_{0.2})(\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2})_{11.5}\text{Ti}_{0.5}$ prepared by arc melting.

化合物相であることが分かった。(B)相の候補としては $\text{Th}_2\text{Zn}_{17}$ 相や $\text{Th}_2\text{Ni}_{17}$ 相があげられるが、XRD パターン(Fig. 1)においてそれらの相に特徴的な超格子由来のピークである、 $\text{Th}_2\text{Zn}_{17}$ 相の(024)面からの回折ピークや、 $\text{Th}_2\text{Ni}_{17}$ 相の(203)面からの回折ピークが確認されないことから、(B)相は遷移金属濃度の高い TbCu_7 相(1-7相)と考えた。我々がこれまでに報告した $x = 0.6$ の合金においても $x = 0.5$ の場合と同様に 1-12 相の他に 1-7 相と α -(Fe,Co)相が存在することを確認しているが、これらの相の体積率は非常に少なく、1-12 相の体積率は 95.8%であった¹³⁾。これに対し、Ti 量の少ない $x = 0.5$ の合金では各相の体積率は 1-12 相が 55.9%、1-7

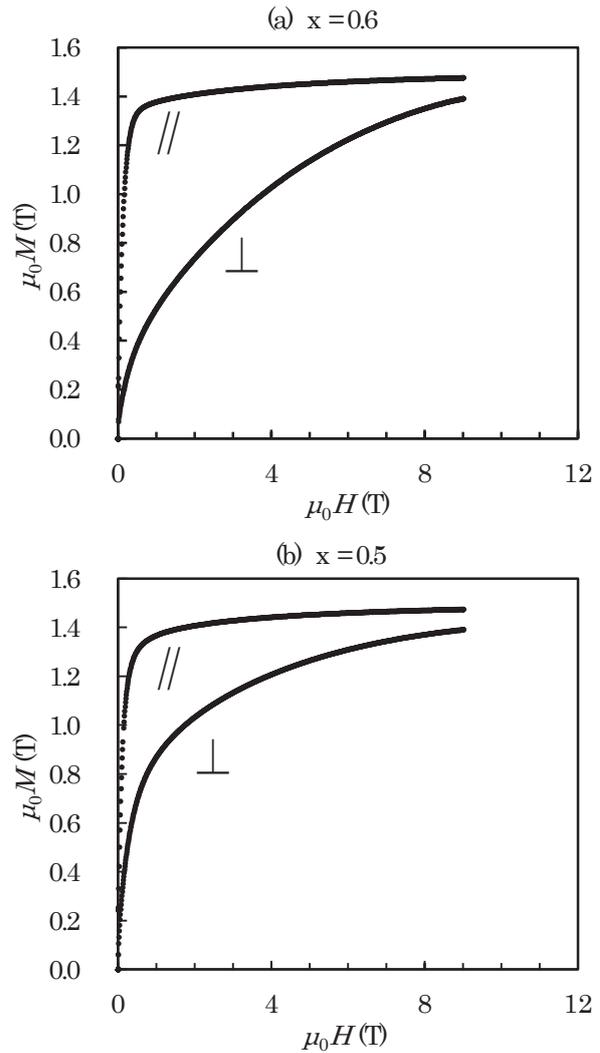


Fig. 3 Magnetization curves of $(\text{Sm}_{0.8}\text{Y}_{0.2})(\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2})_{12-x}\text{Ti}_x$ ($x = 0.6$ (a), 0.5 (b)) prepared by arc melting for oriented powder.

相が 42.1%、 α -(Fe,Co)相が 2.0%であり、多量の 1-7 相が存在することが明らかとなり、Ti 量の低下により 1-7 相の生成量が大幅に増加し、 α -(Fe,Co)相の生成量も増加することが分かった。このことは $x = 0.5$ の XRD パターンにおいて、 α -(Fe,Co)相からのピーク強度が増大し、1-12 相の(310), (002), (400), (202), (222)面からの回折ピーク強度が低下したことも整合する。また、EDX の測定結果から 1-12 相と 1-7 相の Ti 濃度はそれぞれ 5 at.%程度($x = 0.6$ に相当)と 3 at.%程度であり、1-7 相がより低 Ti 濃度な相であることが分かった。アーク溶解合金では 1-12 相の安定化には $x = 0.6$ 付近の Ti 量が限界であり、それよりも低い Ti 濃度では 1-7 相の生成量が增大すると考えられる。

3.2 アーク溶解合金における磁気特性

Fig. 3 にアーク溶解合金($x = 0.5, 0.6$)の磁化容易軸方向と磁化困難軸方向について測定した磁化特性を示す。測定試料は合金粉末を溶融パラフィン中 2T の磁場で配向させた後に固化することで作製した。各合金の $\mu_0 M_s$ および $\mu_0 H_k$ を容易軸方向の磁化曲線と困難軸方向の磁化曲線の外挿線の交点から求めたところ、 $\mu_0 M_s$ はそれぞれ 1.50 T ($x = 0.6$)と 1.49 T ($x = 0.5$)であり、 $\mu_0 H_k$ はいずれ

も 9 T 以上であった。ここで、 $\mu_0 M_s$ に着目する。我々のこれまでの研究においては非磁性元素である Ti 量 x を 1.0 から 0.6 まで低下させると、それに伴って $\mu_0 M_s$ が 1.35 T から 1.50 T に向向上することを確認している¹³⁾。ところが、本検討においては Ti 量を 0.5 まで低下させても $\mu_0 M_s$ はほぼ変わらないか、むしろ低下することが明らかとなった。これは Ti 量の低下により 1-7 相の生成量が増大することに起因すると推測される。したがって、 $x = 0.5$ 組成において高い $\mu_0 M_s$ を得るためには 1-7 相の生成量を低減することが重要であると考えられる。この観点から、我々は微細均一な組織を形成できる手法である液体急冷法に着目し検討を行った。次節以降でその検討結果について述べる。

3.3 液体急冷合金における構成相

Fig. 4 に液体急冷合金($x = 0.5, 0.6$)の XRD パターンを示す。液体急冷合金では $x = 0.5$ の場合においても α -(Fe,Co)相からのピーク強度は低く、1-12 相の(310), (002), (400), (202), (222)面からのピーク強度は $x = 0.6$ の場合とほぼ変わらない。これは、アーク溶解合金の結果(Fig. 1)とは異なっており、液体急冷によって 1-12 相の体積割合が増加したことを示唆している。 $x = 0.5$ の液体急冷合金について、SEM 観察から構成相の形態と体積比率を詳しく調べた結果をアーク溶解合金の結果とともに Fig. 5 に示す。図に示すように、液体急冷によって組織が微細化し、1-7 相の体積分率が大幅に減少することが明らかとなった。また、 α -(Fe,Co)相についても組織が微細化し、体積分率が減少することが分かった。各相の体積分率は 1-12 相が 86.0 %、1-7 相が 13.4 %、 α -(Fe,Co)相が 0.6 % であった。アーク溶解合金および液体急冷合金の構成相比率について Fig. 6 にまとめる。アーク溶解合金に比べ液体急冷合金では低 Ti 濃度組成での 1-12 相の割合が大きく、液体急冷によって 1-12 相の安定領域が低 Ti 濃度側に広がったものと考えられる。

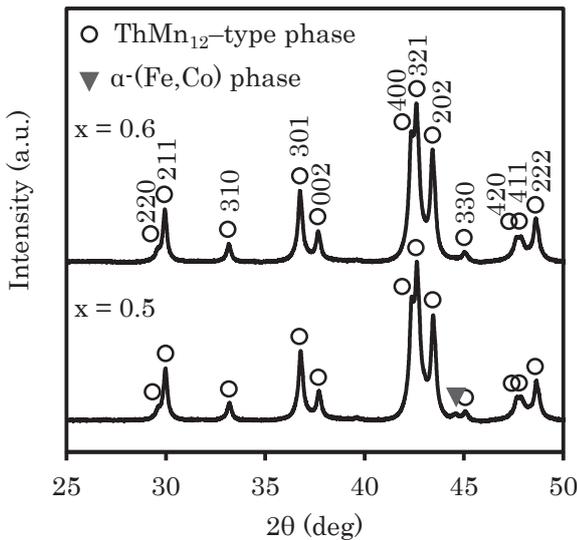
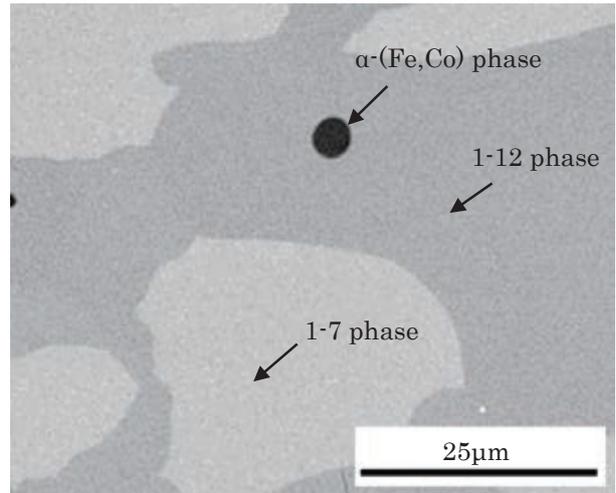


Fig. 4 XRD patterns of $(\text{Sm}_{0.8}\text{Y}_{0.2})(\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2})_{12-x}\text{Ti}_x$ ($x = 0.5, 0.6$) prepared by rapid quenching.

(a) Arc-melted alloys



(b) Rapidly quenched alloys

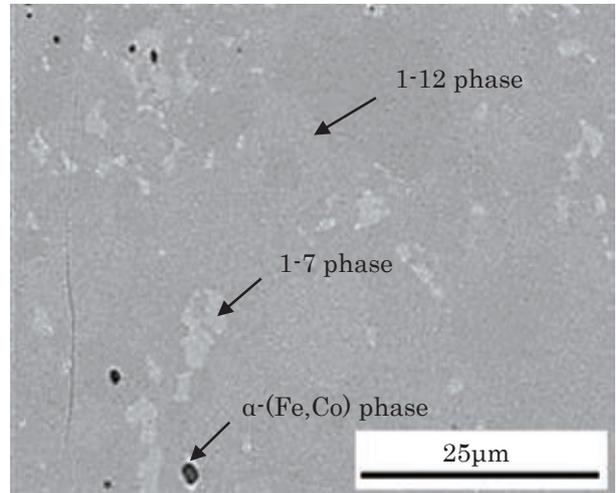


Fig. 5 SEM-BEIs of $(\text{Sm}_{0.8}\text{Y}_{0.2})(\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2})_{11.5}\text{Ti}_{0.5}$ prepared by arc melting (a) and rapid quenching (b).

3.4 液体急冷合金における磁気特性

前節で述べたように液体急冷合金は微細な組織を有していることから、本検討では合金を粒径 22 μm 以下の粉末状とし、粉末をパラフィンで固化した試料を用いて磁化特性を測定した。得られた磁化特性をもとに $\mu_0 M$ と $1/(\mu_0 H)^2$ のプロットを作成し、式(1)に示す飽和漸近則に従い切片から $\mu_0 M_s$ を算出した。式中の α は定数である。

$$\mu_0 M = \mu_0 M_s (1 - \alpha / (\mu_0 H)^2) \tag{1}$$

一例として Fig. 7 に $(\text{Sm}_{0.8}\text{Y}_{0.2})(\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2})_{11.5}\text{Ti}_{0.5}$ 組成の液体急冷合金の結果を示し、Table 1 に各合金の $\mu_0 M_s$ をまとめる。なお、アーク溶解合金についても、比較のために同様の方法で $\mu_0 M_s$ を測定し、前述した配向試料にて測定した値と併せて示している。Table 1 に示すように、液体急冷により $\mu_0 M_s$ が向上し、 $(\text{Sm}_{0.8}\text{Y}_{0.2})(\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2})_{11.5}\text{Ti}_{0.5}$ 組成において、 $\mu_0 M_s = 1.55 \text{ T}$ が得られた。Fig. 8 に $\mu_0 M_s$ と Ti 量 x の関係を示す。アーク溶解合金では Ti 量を 0.6 から 0.5 まで低下させても $\mu_0 M_s$ が変わらないのに対

Table 1 The saturation magnetization of $(\text{Sm}_{0.8}\text{Y}_{0.2})(\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2})_{12-x}\text{Ti}_x$ ($x = 0.5, 0.6$).

Composition of each alloy	Arc-melted alloys		Rapidly quenched alloys
	Oriented powder	Non-oriented powder	Non-oriented powder
$(\text{Sm}_{0.8}\text{Y}_{0.2})(\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2})_{11.4}\text{Ti}_{0.6}$	1.50 T	1.50 T	1.52 T
$(\text{Sm}_{0.8}\text{Y}_{0.2})(\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2})_{11.5}\text{Ti}_{0.5}$	1.49 T	1.50 T	1.55 T

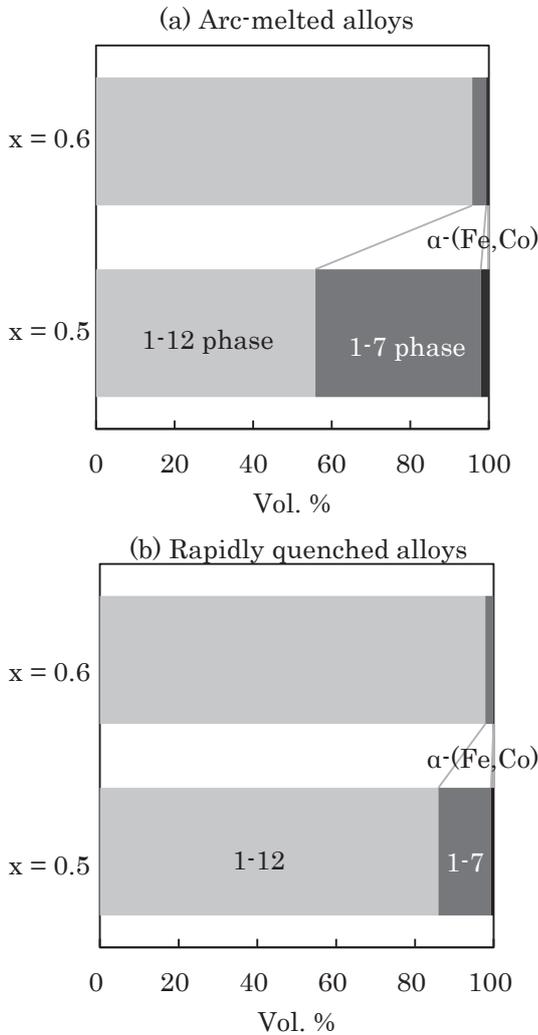


Fig. 6 The volume fraction of $(\text{Sm}_{0.8}\text{Y}_{0.2})(\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2})_{12-x}\text{Ti}_x$ ($x = 0.5, 0.6$) prepared by arc melting (a) and rapid quenching (b).

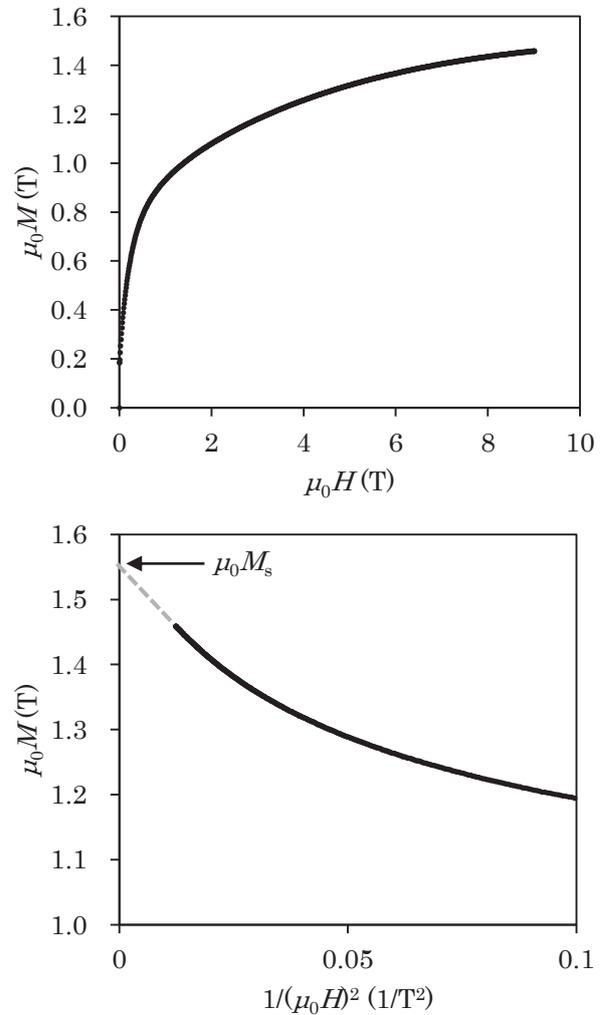


Fig. 7 Magnetization curves of $(\text{Sm}_{0.8}\text{Y}_{0.2})(\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2})_{11.5}\text{Ti}_{0.5}$ prepared by rapid quenching for non-oriented powder.

し、液体急冷合金では Ti 量の低下に伴い $\mu_0 M_s$ が向上することが明らかとなった。これは、 $x = 0.5$ の低 Ti 濃度組成において、液体急冷により 1-7 相の生成量を大幅に低減し、1-12 相の体積分率を増加できたためと考えられる。

4. まとめ

$(\text{Sm}, \text{Y})(\text{Fe}, \text{Co})_{12-x}\text{Ti}_x$ ($x = 0.5, 0.6$) 組成の化合物において、Ti 量 x および溶解急冷プロセスが生成相や磁気特性に及ぼす影響を検討した。その結果、アーク溶解合金では 1-12 相安定化のための Ti

量は $x = 0.6$ 付近が限界であり、それよりも Ti 濃度の低い $x = 0.5$ の組成では 1-7 相が多量に生成し、 α -(Fe,Co) 相も増加することが明らかとなった。これに対し、液体急冷合金では $x = 0.5$ 組成においても α -(Fe,Co) 相は少なく、1-7 相の体積分率はアーク溶解合金に比べ大幅に減少することが明らかとなった。この結果は液体急冷により 1-12 相の安定領域が低 Ti 濃度側に広がったことを示唆している。 $\mu_0 M_s$ についても溶解急冷プロセスによる違いが認められ、 $x = 0.6, 0.5$ のいずれの組成においても液体急冷合金はアーク溶解合金と比較して高い値を示した。特に、 $x = 0.5$ の組成ではアーク溶解合金の $\mu_0 M_s$ が 1.50 T であったのに対し、液体急冷合金

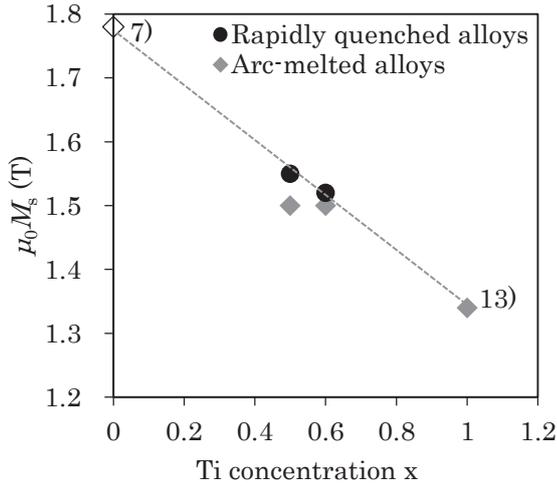


Fig. 8 Ti concentration dependence of the saturation magnetization of $(\text{Sm}_{0.8}\text{Y}_{0.2})(\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2})_{12-x}\text{Ti}_x$ ($x = 0.5, 0.6$).

の $\mu_0 M_s$ は1.55 Tであり、大きく向上することが明らかとなった。これは先に述べたように液体急冷により低Ti濃度組成で1-7相の生成量を大幅に低減し、1-12相の体積分率を増加できたことに起因すると考えられる。

References

- 1) K. Ohashi, T. Yokoyama, R. Osugi, Y. Tawara: *IEEE Trans. Magn.*, **23**, 3101 (1987).
- 2) D.B. De Mooij, K.H.J. Buschow: *J. Less-Common Met.*, **136**, 207 (1988).
- 3) R. Coehoorn: *Phys. Rev. B*, **41**, 11790 (1990).
- 4) K.H.J. Buschow: *J. Magn. Magn. Mater.*, **100**, 79 (1991).
- 5) R. Verhoef, F.R. de Boer, Z. Zhi-dong, K.H.J. Buschow: *J. Magn. Magn. Mater.*, **75**, 319 (1988).
- 6) S. Hirose, Y. Matsuura, H. Yamamoto, S. Fujimura, M. Sagawa, H. Yamauchi: *J. Appl. Phys.*, **59**, 873 (1986).
- 7) Y. Hirayama, Y.K. Takahashi, S. Hirose, K. Hono: *Scr. Mater.*, **138**, 62 (2017).
- 8) S. Sakurada, A. Tsutai, M. Sahashi: *J. Alloys. Compd.*, **187**, 67 (1992).
- 9) S. Suzuki, T. Kuno, K. Urushibata, K. Kobayashi, N. Sakuma, K. Washio, M. Yano, A. Kato, and A. Manabe: *J. Magn. Magn. Mater.*, **401**, 259 (2016).
- 10) T. Kuno, S. Suzuki, K. Urushibata, K. Kobayashi, N. Sakuma, M. Yano, A. Kato, A. Manabe: *AIP Adv.*, **6**, 025221 (2016).
- 11) A.M. Gabay, G.C. Hadjipanayis: *Scr. Mater.*, **154**, 284 (2018)
- 12) P. Tozman, H. Sepahri-Amin, Y.K. Takahashi, S. Hirose, K. Hono: *Acta Mater.*, **153**, 354 (2018).
- 13) M. Hagiwara, N. Sanada, S. Sakurada: *J. Magn. Magn. Mater.*, **465**, 554 (2018).

2018年10月17日受理, 2018年12月28日採録

巻線応力が環状試料の直流磁気特性に及ぼす影響

Effect of Winding Stress on DC Magnetic Properties of Ring Sample

馬場康壽

神奈川県立産業技術総合研究所, 神奈川県海老名市下今泉 705-1 (〒243-0435)

Y.Baba

Kanagawa Institute of Industrial Science and Technology, 705-1 Shimo-imaizumi Ebina, Kanagawa 243-0435, Japan

Ring samples are often used for measuring the DC magnetic characteristics of magnetic material. In this measuring method, stress and strain are induced into a specimen by winding coils on the ring samples. The magnetic characteristics of the samples might be affected by the inverse-magnetostriction phenomenon, which is caused by compressive stress on the ring samples. Hence, by using ring sample of a material with a positive magnetostriction constant, DC magnetic characteristics were measured both with and without the polymer case in order to prevent winding stress. As a result, it was confirmed that the magnetic characteristics of the ring samples were changed by the inverse-magnetostrictive effect induced by compressive stress.

Key words: DC magnetic measurement, ring samples, inverse magnetostriction phenomenon, winding stress

1. はじめに

軟磁性材料には数多くの種類があり、モータ、発電機や電磁弁などの鉄心や磁気回路を構成する材料として、電機工業分野、電子機器分野や電子部品分野など様々な分野で広く使用されている。最近では、環境負荷低減のために再生可能エネルギーである風力発電の導入や、自動車においては動力源が内燃機関だけのものから電気自動車やハイブリッド車のようにモータを使用するものへ転換を進めている国が増え、モータや発電機の需要は高まっている。そして、これらの機器や部品には省電力化、高性能化及び軽量・小型化が求められている。中でも日本国内におけるモータの電力消費量は、電力10社の年間販売電力量と自家発電の合計に対して占める割合が55%程度と推測されており、世界的に関心が寄せられている地球温暖化防止のためにも高効率化による省電力化が強く求められている¹⁾。これを解決するための手段として、用途に最適な磁性材料の選定や高性能な磁性材料の新開発および磁場解析による機器内部の磁気回路の最適化などがあるが、そのためには材料の磁気特性を把握する必要がある。

磁性材料の直流磁気特性を測定する方法の一つとして、IEC国際規格やJIS規格で規定されている環状試料を用いた積分方式の磁気測定方法がある²⁾⁻⁴⁾。しかし、この方法は環状試料に励磁用の一次コイルと誘起電圧を測定するための二次コイル及び絶縁用のテープを巻きつけるので、試料を締め付ける圧縮応力が多少なりとも発生する。そのため、この応力によって逆磁歪現象が起こる可能性があり、測定結果が材料本来の磁気特性と異なることが懸念される。環状試料の磁気特性に及ぼす応力の影響については、PCパーマロイの環状試料に対して高さ方向の一方方向だけに圧縮応力を印加させた結果、特性が磁化困難に変化したという報告⁵⁾がある。

そこで、本研究では環状試料を用いた積分方式の直流磁気測定において、手巻き程度の強さの巻線応力が磁気特性に及ぼす影響について調べたので報告する。

2. 測定方法

環状試料の材料に正磁歪の大きいパーメンジュール (FeCoV)を

用いて、環状には残留歪が比較的少ない放電ワイヤーカットで加工し、その後850℃の水素雰囲気中で3時間の熱処理を行って加工歪を除去した。巻線応力が磁化特性に及ぼす影響を調べるために、試料を環状の樹脂ケースに入れてから巻線をして試料に圧縮応力を与えない場合と、試料にコイルと絶縁用テープを直接巻いて圧縮応力を与えた場合の磁化特性を測定して両者を比較した。ここで、巻線応力の影響が顕著になるように、試料に直接手巻きする時は意図的に強く巻き込んだ。測定には同一の試料を用いて、先に樹脂ケースに入れた状態で測定し、次にケースから試料を取り出して直接巻線した状態を測定した。環状試料は外径45mm、内径37.5mm、高さ3mm、樹脂ケースは外径48mm、内径34.5mm、高さ6.5mmのものを用いて、絶縁用テープを巻いた後に二次コイルを161ターン巻き、その上から再び絶縁用テープを巻いて、最後に一次コイル50ターンを手巻きした。ここで、コイルと絶縁テープを直接手巻きした環状試料をFig.1に示す。測定には市販の積分方式直流B-H特性測定装置を用いて、最大磁界強度 $H=10\sim 1000\text{ A/m}$ の範囲で直流B-Hループを測定して諸特性を求めた。ただし、試料をケースに入れたときの測定結果については、二次コイルと試料間の磁束について空隙補償を行った。補償後の磁束密度 B は

$$B = B_0 - \mu_0 H (S_c - S_s) / S_s \quad (1)$$



Fig. 1 Winding coil on ring sample without polymer case (photo).

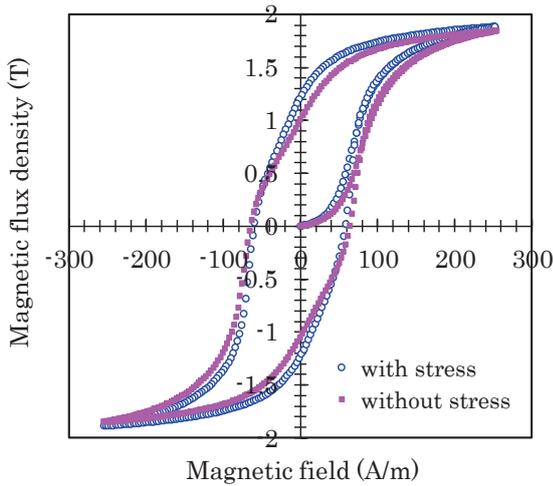


Fig. 2 B-H loops (○) with and (■) without winding stress.

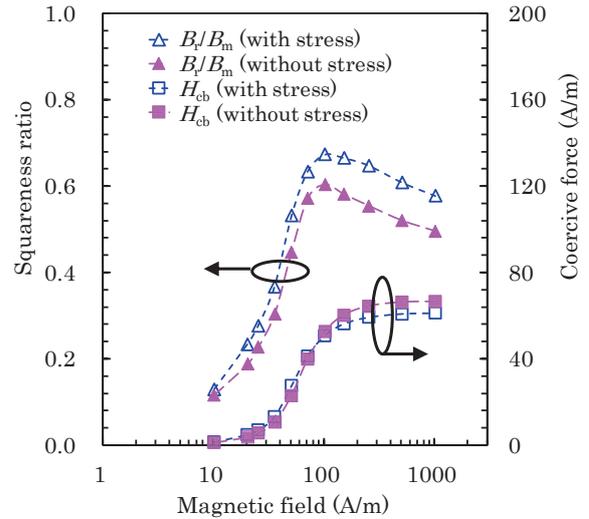


Fig. 4 Characteristics of squareness ratio (B_r/B_m) and coercive force (H_{cb}) with varied magnetic fields.

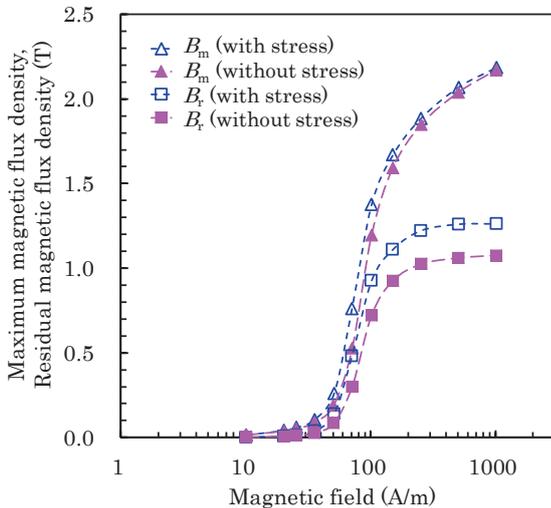


Fig. 3 Characteristics of maximum magnetic flux density (B_m) and residual magnetic flux density (B_r) with varied magnetic fields.

で求めた。ここで、 B_0 は二次コイルで検出した空隙を含む磁束密度、 S_s は環状試料の断面積、 S_c はケースの断面積である。

3. 結果と考察

磁界強度 $H=250$ A/m の時の B-H 曲線を Fig.2 に示す。コイルを直接巻いて環状試料に巻線応力を与えたときは、初磁化曲線の傾きと最大磁束密度 B_m が大きくなり B-H 曲線は磁化容易に変化し、残留磁束密度 B_r も大きくなった。ここで、環状試料の磁化方向は円周方向であり、コイルや絶縁テープによる締め付ける力は環状試料に対して上下及び径方向に加わるので、環状試料の円周を伸ばすように作用すると考えられる。つまり、巻線応力によって正磁歪材料を磁化方向に引っ張った状態に近くなるので、この結果は逆磁歪現象に合致している。これに対して、前述した環状試料の高さ方向だけに圧縮応力を与えた実験では、加圧器具の外

側から巻線をして試料に巻線応力が加わらないようにしているので、試料を制約の無い径方向に押し出すように作用する。この作用は内径方向と外径方向に引っ張った状態に近く、これが磁化方向と直交方向であるため磁化困難に変化させるように働く。この時の円周方向成分としては、外径側と内径側の膨らみは同程度なので中間点における円周の長さには変化が無く、外径側では引張りに作用して磁化容易に、内径側では圧縮に作用して磁化困難に働く。その結果、試料全体としてはこれらの要因の総和によって磁化困難に変化したと思われる。

測定磁界強度を変化させたときの B_m と B_r の巻線応力による影響を Fig.3 に、角形比 (B_r/B_m) と保磁力 H_{cb} の巻線応力による影響を Fig.4 に示す。これらの磁気特性値は逆磁歪効果によって全ての磁界強度において変化した。

巻線応力を与えたことによって生じた各磁気特性値の誤差と測定磁界強度との関係を Fig.5 に示す。各特性値の誤差率 E_r (%) は

$$E_r = ((\text{応力有り}] - \text{応力無し}] / \text{応力無し]) \times 100 \quad (2)$$

で求めた。ここで、応力がある場合と無い場合の磁気特性値の差について、大小関係が分かるように絶対値をとっていない。最大磁束密度 B_m の誤差率は測定磁界を強くすると減少して $H=1000$ A/m のときは 0.6 % であった。これは、測定磁界を強くしていくと巻線応力の有無に関係なく磁化が飽和に近づいて B_m の差が小さくなるからである。したがって、巻線応力が無い状態で磁化が飽和に近くなるような強さの磁界で測定した場合は、 B_m については巻線応力の影響による誤差は無視できる。測定磁界強度が 250 A/m 以上のときは残留磁束密度 B_r と保磁力 H_{cb} の誤差率の変化が小さくなった。これは、Fig.3 と Fig.4 から分かるように測定磁界が強い時は、巻線応力の有無に関係なく磁界強度の増加に伴う B_r と H_{cb} の増加が少なくなるからである。また、測定磁界強度が 100 A/m 以下のときは巻線応力の影響を強く受けて、全ての磁気特性値の誤差率は非常に大きくなる極大点を示した。さらに、 H_{cb}

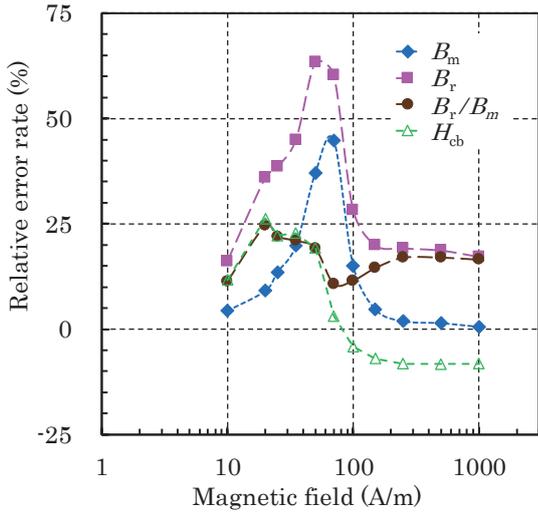


Fig. 5 Characteristics of relative error rate of maximum magnetic flux density (B_m), residual magnetic flux density (B_r), squareness ratio (B_r/B_m), and coercive force (H_{cb}) with varied magnetic fields.

の誤差率は磁界強度が 70 A/m 以下では正の値を示し、100 A/m 以上では負の値を示した。つまり、弱磁界領域では巻線応力の影響で保磁力が大きくなっている。ここで、弱磁界領域において磁界強度を変化させたときの B-H 曲線の変化を Fig.6 に示す。この領域では磁界強度の少しの増加で B_m が非常に大きくなり、それに伴って B_r と H_{cb} も大きく増加しており、 B_m の増大が H_{cb} の変化に大きく影響している様子が分かる。

そこで、磁束密度は磁性体の磁化成分の他にも磁性体内の磁界成分を含んでいることから、純粋に試料が磁化された量である磁気分極 J と保磁力 H_{cj} の関係について調べた。測定した磁束密度 B から磁気分極 J を算出し、巻線応力の有無において測定磁界強度毎に J-H 曲線を求めて各磁気特性値を導出した。測定磁界強度の増加に伴う保磁力 H_{cj} の増加量 ΔH_{cj} と最大磁気分極の増加量 ΔJ_m の比 ($\Delta H_{cj}/\Delta J_m$)、及び (2) 式で求めた H_{cj} の誤差率 $E_r(H_{cj})$ について測定磁界強度を変化させた時の様子を Fig.7 に示す。測定磁界強度が弱い領域ではこの増加量の比 ($\Delta H_{cj}/\Delta J_m$) が非常に大きくなり、極大点を持つ $E_r(H_{cj})$ と同様の傾向を示し、強磁界領域では $\Delta H_{cj}/\Delta J_m$ が小さくなった。このことから、弱磁界領域では磁気分極の少しの増加で保磁力が非常に大きくなり、強磁界領域では磁気分極が増加しても保磁力の増加は少ないと言える。したがって、弱磁界領域において同じ磁界強度で励磁した場合は、巻線応力を与えると逆磁歪効果によって巻線応力を与えない時よりも強く磁化されるので、保磁力が巻線応力を与えないときよりも大きくなる現象が起こる。これに対して強磁界領域において同じ磁界強度で励磁した場合は、応力の有無による磁化量の差が小さくなって、この保磁力の増加作用も小さくなるため、巻線応力が磁壁の移動を容易にして保磁力を減少させる作用の方が勝り、巻線応力が有るときの方が保磁力は小さくなったと考えられる。

最大磁気分極 J_m を変化させたときの保磁力 H_{cj} と残留磁気分極 J_r を Fig.8 に示す。試料を励磁した時の最大磁気分極 J_m が 0.26 T

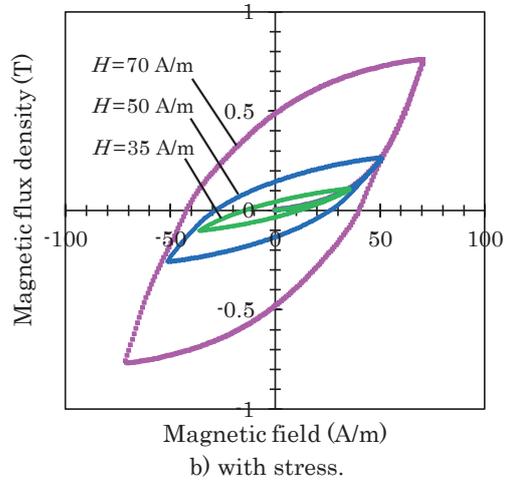
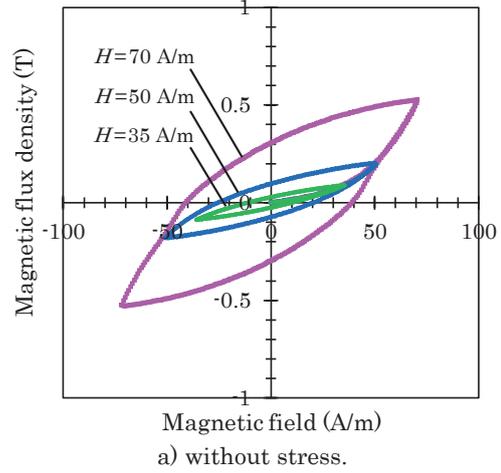


Fig. 6 B-H loops with varied magnetic fields.

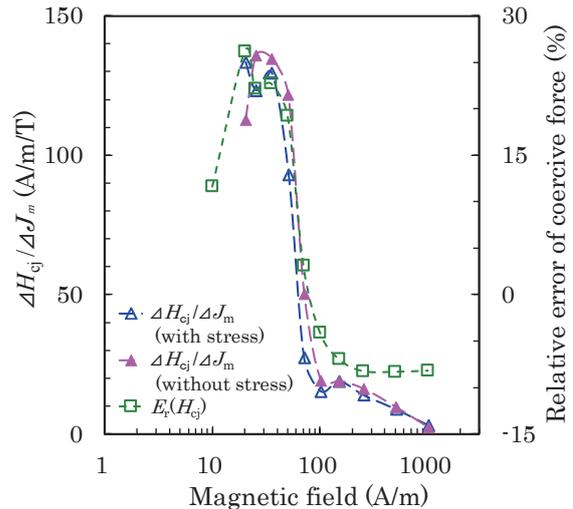
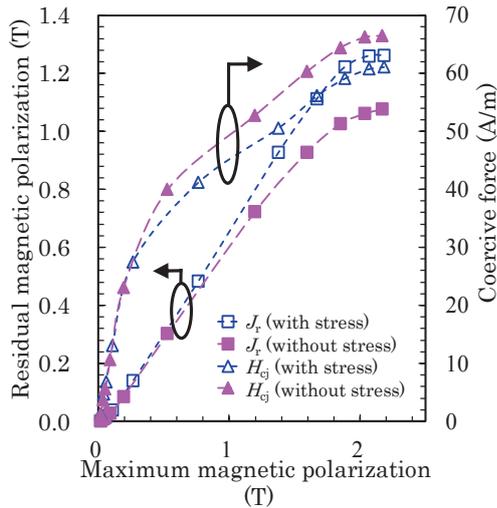
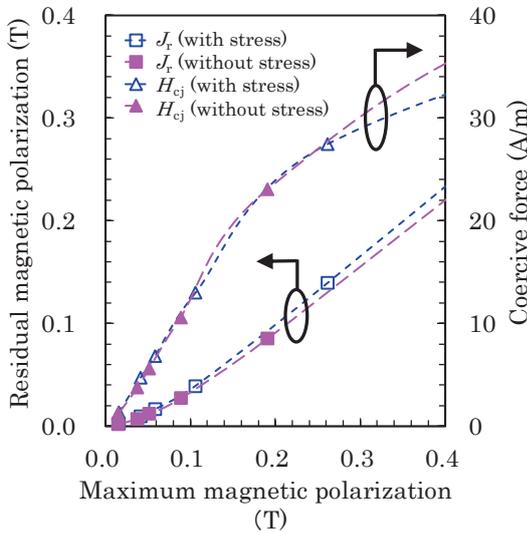


Fig. 7 Characteristics of ratio of increase in coercive force and increase in magnetic polarization ($\Delta H_{cj}/\Delta J_m$) and relative error rate of coercive force [$E_r(H_{cj})$], with varied magnetic fields.



a) Maximum magnetic polarization upto 2.2 (T).



b) Expansion of region with lower maximum magnetic polarization.

Fig. 8 Characteristics of residual magnetic polarization (J_r) and coercive force (H_{cj}) with varied maximum magnetic polarization.

以下の場合では H_{cj} の二つの特性は重なり、 J_m が強いときは巻線応力がある場合の方が H_{cj} は小さくなった。これに対して、残留磁気分極 J_r は J_m が弱い領域でも巻線応力がある場合の方が僅かに大きくなる傾向を示し、 J_m が強い領域ではその傾向が顕著になった。

励磁された試料の最大磁気分極 J_m を変化させた時の J-H 曲線の面積の特性を Fig.9 に示す。巻線応力がある場合と無い場合の特性は J_m が弱い領域から強い領域までの全域で差異は非常に小さかった。したがって、試料を同じ磁気分極の強さに励磁したときは、巻線応力の有無に関係なく J-H 曲線の面積はほぼ同じであるため、巻線応力によるヒステリシス損失への影響は非常に小さいと言える。

4. まとめ

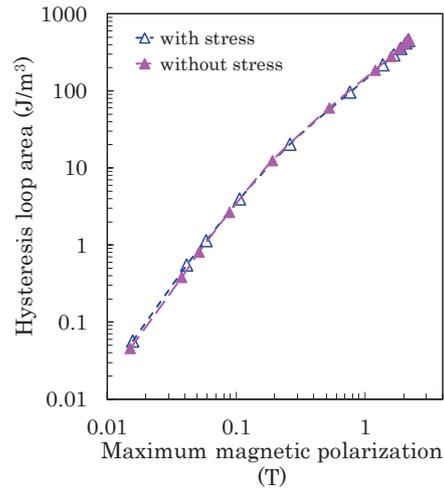


Fig. 9 Characteristics of hysteresis loop area with varied maximum magnetic polarization.

環状試料を用いた積分方式の直流磁気測定方法において、巻線コイルによる圧縮応力が正磁歪材料の磁気特性に与える影響について調べた。その結果、磁化特性は手巻き程度の巻線応力でも初磁化曲線の傾きは大きくなり磁化容易に変化し、これに伴って最大磁束密度と残留磁束密度も大きくなった。しかし、保磁力は弱磁界領域で大きくなったのに対して強磁界領域では小さくなった。また、励磁による磁化変化率が大きい弱磁界領域において、これらの磁気特性値は巻線応力により非常に大きく変化した。これに対してヒステリシス損失には大きな差異は見られなかった。

今後として巻線応力による環状試料の交流磁気特性への影響について調べる予定である。直流磁化時ではヒステリシス損に影響が小さかったことから、特に交流磁化時の損失への影響について測定する。また、環状試料や環状に隙間を形成した試料に対して、高さ方向の一方向に圧縮応力を与えた場合の鉄損特性の変化について報告^{6)~7)}されており、巻線応力時の特性変化との違いについても検討する。

References

- 1) http://www.enecho.meti.go.jp/category/saving_and_new/saving/general/more/pdf/h21_houkokusho.pdf, p.28 (As of December 1 2017).
- 2) Magnetic materials, Part 4: Methods of measurement of d.c. magnetic properties of iron and steel, *IEC 60404-4* ed2.2 (in English), p.9 (The IEC Central Office, Geneva, 1995)
- 3) Soft magnetic irons, *JIS C 2504* (in Japanese), p.5 (Japanese Standards association, Tokyo, 2000)
- 4) Nickel iron soft magnetic metallic materials, *JIS C 2531* (in Japanese), p.9 (Japanese Standards association, Tokyo, 1999)
- 5) M.Mimura, R.Nakamichi, T.Sasayama, M.Nakano and N.Takahashi: *The 2013 Annual Meeting Record Institute of Electrical Engineers of Japan*, **2**, 179
- 6) M.Kawabe, T.Nomiyama, A.Shiozaki, M.Mimura, M.Nakano and N.Takahashi: *IEEE Tran.Magn.*, **48**, 3462 (2012)
- 7) M.Kawabe, T.Nomiyama, A.Shiozaki, T.Morohoshi and T.Sasayama: *The 2014 Annual Meeting Record Institute of Electrical Engineers of Japan*, **2**, 170

2018年10月12日受理, 2019年1月9日採録

混合アニオン層状化合物 $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ の電子磁気相図Electronic and magnetic phase diagram of mixed anion layered compound $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ 山口道太郎^{a)}・藤岡弘孝^{a)}・大塚貴史^{a)}・瀬戸誠^{b)}・北尾真司^{b)}・的場正憲^{a)}・神原陽一^{a)†}^{a)}慶應義塾大学理工学部物理情報工学科, 神奈川県横浜市港北区日吉 3-14-1 (〒223-8522)^{b)}京都大学複合原子力科学研究所, 大阪府泉南郡熊取町朝代西 2-1010 (〒590-0494)M. Yamaguchi^{a)}, H. Fujioka^{a)}, T. Otsuka^{a)}, M. Seto^{b)}, S. Kitao^{b)}, M. Matoba^{a)}, and Y. Kamihara^{a)†}^{a)} Department of Applied Physics and Physico-Informatics, Faculty of Science and Technology, Keio Univ., 3-14-1 Hiyoshi, Kohoku-ku, Yokohama-shi, Kanagawa 223-8522, Japan^{b)} Institute for Integrated Radiation and Nuclear Science, Kyoto Univ., 2-1010 Asashiro-Nishi, Kumatori-cho, Sennan-gun, Osaka 590-0494, Japan

An electronic and magnetic phase diagram of a mixed anion layered compound, $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$, is demonstrated. $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ is composed by a carrier conducting FeAs layer and carrier blocking $\text{Sr}_2\text{CrO}_{3-\delta}$ layer. Polycrystalline $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ samples were prepared by solid-state reaction. The oxygen deficiency (δ) of the samples was determined using an assumption of a linear relation between δ and lattice volume (V). The δ - V relation was based on the V of several nominal compositions of polycrystalline samples with a smaller second phase. An electronic and magnetic phase diagram of $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ that considers δ and temperature (T) was created on the basis of electrical resistivity measurements and ^{57}Fe Mössbauer spectroscopy measurements. A magnetic Fe sublattice of $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ exhibited a stripe-type antiferromagnetic (AFM-s) phase for $0.124 \leq \delta \leq 0.210$ at $T < 60$ K and an internal magnetic field (H_{int}) distributed antiferromagnetic (AFM-DH) phase for $0.247 \leq \delta \leq 0.256$ at $T < 53$ K.

Keywords: mixed anion layered compounds, oxygen deficiency, antiferromagnetism, phase diagram, $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$

1. 緒言

格子中に二種類のアニオンを含む層状化合物, すなわち混合アニオン層状化合物 (Mixed anion layered compound: MALC)¹⁾は, 透明半導体²⁾, 高温超伝導体線材材料^{3)~6)}, 反強磁性半導体^{7)~11)}, および酸素欠損誘起による高機能酸素発生反応電気触媒¹²⁾として, 既存の酸化物材料に迫る高い機能が着目されている. Fig. 1 に, その一つであるペロブスカイト関連混合アニオン層状化合物 $\text{Ae}_2\text{T}_\text{M}\text{FePnO}_{3-\delta}$ (Ae : アルカリ土類金属元素, T_M : 遷移金属元素, Pn : ニクトゲン元素) の結晶構造を示す. Fig. 1 に示された構造は, その化学組成比より 21113 系と呼ばれる. 21113 系の結晶構造は, Fe の周囲に Pn が四配位した FePn ($\text{Pn} = \text{P, As}$) 層のキャリア伝導層と $\text{Ae}_2\text{T}_\text{M}\text{O}_{3-\delta}$ ($\text{Ae} = \text{Ca, Sr}$, $\text{T}_\text{M} = \text{Sc, V, Cr}$) で表されるペロブスカイト類似のキャリアブロック層が積層して構成される. 酸素欠損が存在し, 二次元的な電子構造が期待される点において, 代表的な銅酸化物系超伝導体である $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ¹³⁾ と類似の構造といえる. Zhu らは, 21113 系の一つとして, 超伝導転移温度 (T_c) = 37.2 K の鉄系超伝導体である $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_{3-\delta}$ ¹⁴⁾ を報告した. Tojo らは, $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_{3-\delta}$ は, 酸素欠損量 (δ) ≤ 0.145 の化学組成において, $T_c = 30.2\text{-}37.1$ K のバルク超伝導を示す^{15), 16)} と報告した. 同じく Tojo らは, $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_{3-\delta}$ に含まれる Fe 副格子の磁性相は, $\delta \geq 0.267$ で常磁性相から内部磁場 (magnetic hyperfine field, または internal magnetic field) に分布のある反強磁性相 (Antiferromagnetic phase with distributed magnetic hyperfine field: AFM-DH) へ量子相転移する¹⁶⁾ ことを報告した.

V を Cr に置換した $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ は超伝導転移を示さない^{17)~19)}. Zhu らは, Cr サイトへの Ti 部分置換により $T_c = 29.2$ K の超伝導相を示す化学組成²⁰⁾ を報告した. また, Tegel らは, Fe 副格子の磁性が 20 K 以下で内部磁場を示す¹⁸⁾ ことを報告した. こ

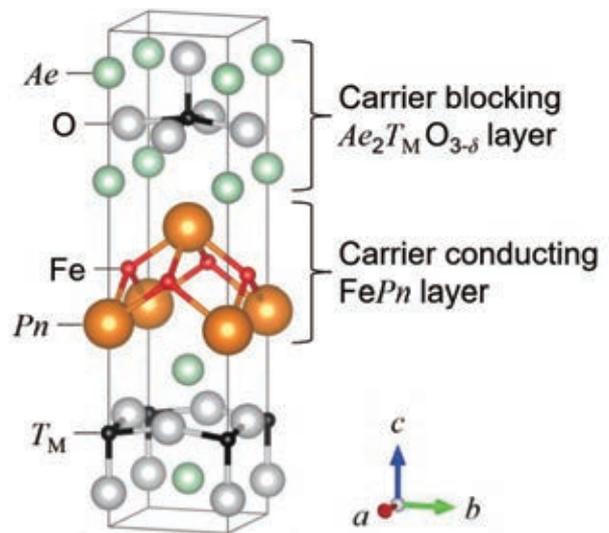


Fig. 1 Crystallographic structure in $\text{Ae}_2\text{T}_\text{M}\text{FePnO}_{3-\delta}$, so called “21113 system” with perovskite-type layers such as $\text{Ae}_2\text{T}_\text{M}\text{O}_{3-\delta}$, where Ae denotes alkaline earth metal (Ca, Sr), T_M denotes transition metal (Sc, V, Cr) and Pn denotes pnictogen (P, As).

のように, $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_{3-\delta}$ と $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ で超伝導発現に至る化学的機構が異なることは奇妙であり, 議論の対象といえる. しかしながら, $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ の δ の変化を無視せずに, 電子・磁気状態の変化を系統的に調べて報告した例は, 筆者の知る限り, 存在しない. 一方, $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_{3-\delta}$ は, 本研究と同じアプローチによる酸素欠損量の評価により化学組成が示され, その結果, 酸素欠損誘起の酸素発生反応触媒機能を持つことが明らかにされた¹²⁾.

我々は、酸素欠損量の異なる Sr₂CrFeAsO_{3-δ} を合成し、得られた試料の電気抵抗率温度依存性と元素選択的な Fe の磁気測定である ⁵⁷Fe Mössbauer 分光スペクトルを解析し、Sr₂CrFeAsO_{3-δ} の電子・磁気状態相図を明らかにした。

2. 原理

2.1 ⁵⁷Fe Mössbauer 分光^{2,1)}

Mössbauer 分光は、反跳エネルギーを失うことなく、原子核が γ 線を放射し、もう一方の同じ原子核がその γ 線を共鳴吸収する現象である Mössbauer 効果^{2,2)} を利用した分光技術である。Mössbauer 効果が観測されている核種は限られる。

⁵⁷Fe Mössbauer 分光では、天然の Fe に含まれる 2.2% の ⁵⁷Fe が、線源として用いる ⁵⁷Co から放出される 14.4 keV の γ 線を共鳴吸収する。線源から放出される γ 線は単色光であるため、線源を振動させることで、Doppler 効果により γ 線のエネルギーに幅を持たせる。その γ 線を試料に照射し、透過してくる γ 線を検出器で観測することで、Mössbauer スペクトルを得る。この Mössbauer スペクトルにより、試料中に含まれる Fe 格子の電子状態や結晶場、異方性、内部磁場などが分かる。基準試料は純鉄が用いられる。

2.2 Mössbauer スペクトル

一般に、価電子の状態により決まる異性体シフト (IS(T)) は真性アイソマーシフト (IS_I) と二次 Doppler シフト (IS_{SOD}(T)) の和として式 (1) のように与えられる。

$$IS(T) = IS_I + IS_{SOD}(T) \tag{1}$$

IS_I は、吸収体と線源の原子の核位置での s 電子密度 (|ψ_s²(0)|, |ψ_s²(0)|) に依存し、式 (2) のように表される。

$$IS_I = \frac{2}{5}\pi Ze^2(R_c^2 - R_g^2)[|\psi_a^2(0)|^2 - |\psi_s^2(0)|^2] \tag{2}$$

ここで、R_c, R_g は核子の励起状態と基底状態の有効半径であり、IS_I は共有結合性の指標となる。IS_{SOD}(T) は、格子振動の Debye 近似によって、式 (3) のように Debye 温度 (Θ_D) で表される。

$$IS_{SOD}(T) = -E_\gamma \left\{ \frac{2}{3} \frac{k_B T}{Mc^2} \left[\frac{3}{8} \frac{\Theta_D}{T} + 3 \left(\frac{T}{\Theta_D} \right)^3 \int_0^{\frac{\Theta_D}{T}} \frac{x^3}{e^x - 1} dx \right] \right\} \tag{3}$$

四極子分裂 (QS) は核四極子モーメント (Q) と非対称定数 (η) により式 (4) のように表される。

$$QS = \frac{1}{2}eQV_{zz} \left(1 + \frac{\eta^2}{3} \right)^{\frac{1}{2}} = \frac{1}{2}e^2qQ \left(1 + \frac{\eta^2}{3} \right)^{\frac{1}{2}} \tag{4}$$

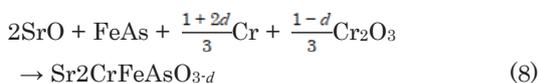
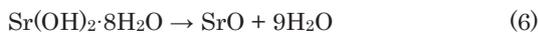
ここで V_{zz} (= eq) はデカルト座標 (x, y, z) での z 軸を最大の電場勾配の方向としたときの z 軸の電場勾配であり、このとき η は x 軸, y 軸の電場勾配を V_{xx}, V_{yy} として式 (5) で定義される。

$$\eta = \frac{V_{xx} - V_{yy}}{V_{zz}} \tag{5}$$

3. 実験方法

3.1 試料合成

Sr₂CrFeAsO_{3-δ} の多結晶試料は固相反応により合成した。合成で用いた化学反応式を以下に示す。



仕込み組成の段階では Sr₂CrFeAsO_{3-d} (d = -0.10, 0.00, 0.15, 0.20, 0.40) であった。式 (6) に示すように、Sr(OH)₂·8H₂O (シグマアルドリッチジャパン; 99.995 wt.%) をアルミナ (Al₂O₃) のつぼに入れ、電気炉で 900°C, 10 h の熱処理を施して脱水し、SrO を得た。式 (7) に示すように、Fe (高純度化学; 99.99 wt.%) および As (高純度化学; 99.9999 wt.%) を Ar 雰囲気 (O₂, H₂O < 1 ppm) のグローブボックス (GB, 美和製作所) 内で秤量、混合、磨砕し、粉末試料を石英管に真空封管した。その後、電気炉で 400°C, 20 h, 600°C, 10 h の熱処理を施し、FeAs を得た。式 (8) に示すように、SrO, FeAs, Cr (高純度化学; 99.9 wt.%) および Cr₂O₃ (高純度化学; 99.9 wt.%) を GB 内で秤量、混合、磨砕し、粉末試料をペレット状に加圧成型した。原材料の SrO は石英管と反応するため、得られたペレット状試料をアルミナ管に置き、石英管に二重封管した。封管の二重目は真空とし、二重目は 0.2 atm の Ar 雰囲気に調整した。封管後、電気炉で 1030-1330°C, 20-40 h の熱処理を施し、Sr₂CrFeAsO_{3-δ} の多結晶試料を得た。

3.2 試料評価

多結晶試料の結晶相は、X 線回折 (X-ray diffraction: XRD) 装置 (リガク; CuKα radiation) により評価した。回折角度 (2θ) は Si (NIST Standard Reference Material 640d) により校正した。

電気抵抗率の温度依存性は、ヘリウム循環式 Gifford-McMahon (GM) 冷凍機 (住友重機械工業) を用いた自作の電気抵抗率測定装置により、直流四端子法を用いて 4.3-300 K の範囲で測定した。

⁵⁷Fe Mössbauer 分光 (MS) は ⁵⁷Co を線源に用いた。⁵⁷Fe MS の測定方法の詳細は、Kitao らの報告^{2,3)}にて説明した。⁵⁷Fe MS による、Fe 副格子の電子状態、磁気秩序の解析には市販の解析ソフトウェアである Moss Winn^{2,4)}を用いた。

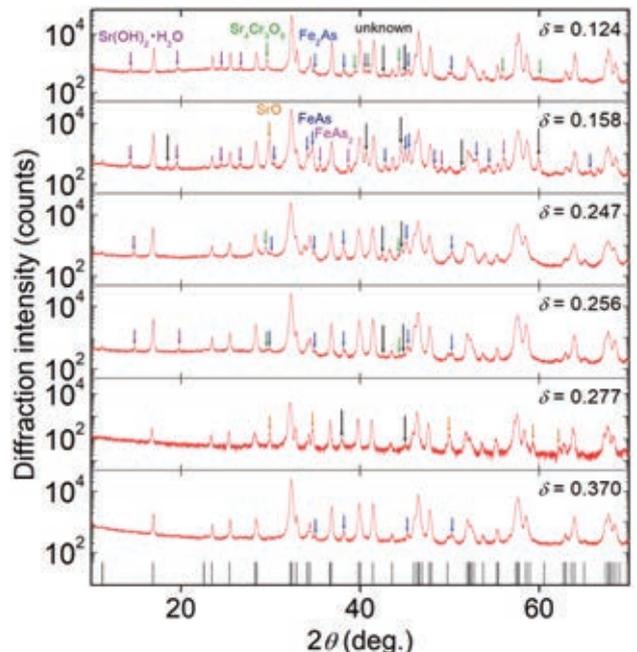


Fig. 2 XRD patterns of Sr₂CrFeAsO_{3-δ} samples with δ = 0.124, 0.158, 0.247, 0.256, 0.277 and 0.370. Vertical bars at bottom represent Bragg angles of diffraction for Sr₂CrFeAsO₃. Arrows represent Bragg diffractions assigned to second phases: unknown (black), FeAs (dark blue), Fe₂As (blue), FeAs₂ (pink), Sr₄Cr₃O₉ (green), SrO (orange), and Sr(OH)₂·H₂O (purple).

4. 実験結果

4.1 結晶相同定および酸素欠損量の決定

合成した13個の多結晶試料のうち、代表的なXRDパターンをFig. 2に示す。いずれの試料においても、 $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ は主相であった。異相として、 FeAs 、 Fe_2As 、 FeAs_2 、 $\text{Sr}_4\text{Cr}_3\text{O}_9$ 、 SrO 、 $\text{Sr}(\text{OH})_2\cdot\text{H}_2\text{O}$ が存在した。異相のうち、 $\text{Sr}(\text{OH})_2\cdot\text{H}_2\text{O}$ は SrO が大気中で水分と反応して生成されたと考えられる。

得られたXRDパターンより、最小二乗法を利用して格子定数

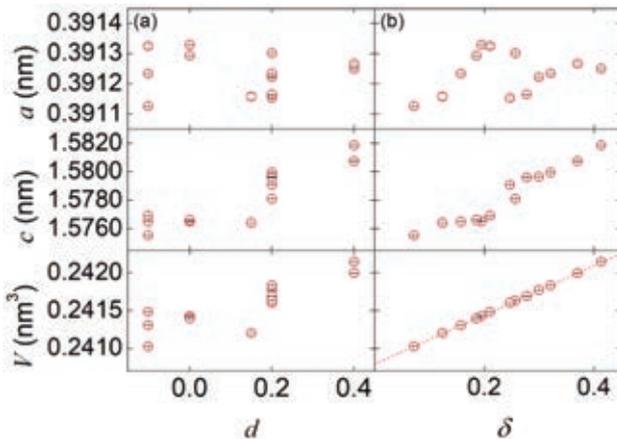


Fig. 3 Lattice constants (a , c , V) of $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ samples at room temperature as functions of (a) nominal oxygen deficiency (d) and (b) oxygen deficiency (δ) under the assumption of a linear relationship between V and δ . Small black lines in red circles show statistical errors. Other errors such as temperature fluctuation (< 1 K) should be considered.

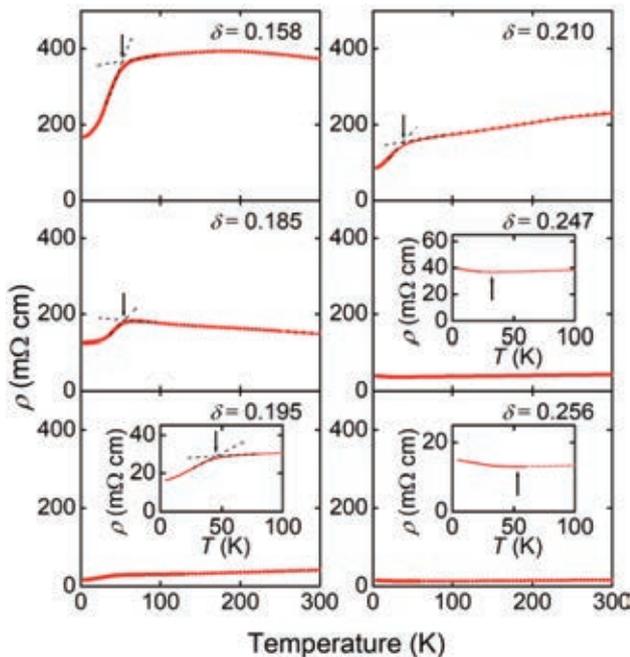


Fig. 4 Electrical resistivity (ρ) as function of temperature (T) for $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ samples with $\delta = 0.158, 0.185, 0.195, 0.210, 0.247,$ and 0.256 . Downward arrows indicate temperatures of anomalous kink (T_{anom}). Upward arrows indicate minimum temperatures (T_{min}). Insets show expanded view of figures.

(a , c), 格子体積 (V) を算出した。仕込み酸素欠損量 (d) に対する a , c , V の依存性を Fig. 3 (a) に示す。 d が増加するにつれて V も増加する傾向が見られた。XRD パターンにおいて $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ のメインピークである 104 面のピーク強度に対し、異相に帰属する最大ピーク強度が 3%未満である 3 個の試料の仕込み組成 ($d = 0.15, 0.20, 0.40$) を、この実験において信頼可能な化学組成の基準と定めた。次に、基準試料の δ と V の相関が線形であると仮定し、 δ - V 較正直線 (式 (9)) を得た。

$$\delta = 307.24 \cdot V - 73.981 \quad (9)$$

得られた δ - V 較正直線に各試料の V を代入し、それぞれの δ を算出した。基準試料は Fig. 2 における $\delta = 0.124, 0.256, 0.370$ である。 δ に対する a , c , V の依存性を Fig. 3 (b) に示す。 δ が増加するにつれて c は伸びた。 a の δ 依存性は c に比べて鈍感であった。

4.2 電気抵抗率測定

$\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ ($\delta = 0.158, 0.185, 0.195, 0.210, 0.247, 0.256$) の電気抵抗率 (ρ) の温度依存性を Fig. 4 に示す。いずれの試料でも金属的な常伝導が観測された。 $\delta = 0.158, 0.185, 0.195, 0.210$ の試料では、52 K, 54 K, 45 K, 38 K 付近に矢印で示す kink が存在し、kink の温度 (T_{anom}) よりも低くなるにつれて ρ は減少した。また、 $\delta = 0.124$ の試料でも 30 K 付近に同様の kink が存在した。 $\delta = 0.247, 0.256$ の試料では、32 K, 53 K でそれぞれ極小をとり、極小の温度 (T_{min}) よりも低温側で ρ は増加した。

4.3 ^{57}Fe Mössbauer 分光測定

$\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ ($\delta = 0.158, 0.247$) の各温度での Mössbauer スペクトルを Fig. 5 に示す。Fig. 5 の Mössbauer スペクトルに対して、異性体シフト (IS), 電場勾配による四極子分裂 (QS), 吸収線の半値幅 (LW), 内部磁場 (B_{int} : Internal magnetic field), 内部磁場の分布 ($W(B_{\text{int}})$) を考慮し、解析して得た Mössbauer パラメータ (IS, QS, LW) の温度依存性を Fig. 6 に示す。 $\delta = 0.158$ の試料は Fig. 2 より異相として FeAs を含むため、 $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ ($\delta = 0.158$) と $\text{FeAs}^{25)}$ の二相でパラメータ最適化を行った。300 K におけるパラメータ最適化より、 $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ ($\delta = 0.158$) と FeAs のモル分率はそれぞれ 74.0 mol.% と 26.0 mol.% と求まった。 $\delta = 0.247$ の試料は、内部磁場分布の影響により、全てのパラメータを最適化しようとする、LW の数値は収束しなくなった。そのため $\delta = 0.247$ の試料は、30 K 以下のパラメータ最適化において LW の値を固定した。

$\delta = 0.158$ の試料において、77-300 K では、QS による二重分裂 (doublet) のみを示し、LW の変化がないことから、Fe 副格子に内部磁場が生じていない非磁性の状態であり、磁気秩序は確認されない。66-77 K では、LW が増加したことから、磁気相転移が起こったと考えられる。4.2-40 K では、磁気分裂による六重分裂 (sextet) を示した。Tojo らの報告¹⁶⁾ と合わせて Fe 副格子は磁気モーメントの大きさが一原子毎に等しいストライプ型の反強磁性 (AFM-s) と考えられる。 B_{int} の温度依存性を Fig. 8 (a) に示す。

$\delta = 0.247$ の試料において、40-300 K では、doublet のみを示し、LW の変化がないことから、Fe 副格子に内部磁場が生じていない非磁性の状態であり、磁気秩序は確認されない。30-40 K では、LW が増加したことから、磁気相転移が起こったと考えられる。4.2-30 K では、LW は増加したが sextet を示さなかった。Fe 副格子は磁気

モーメントの大きさが一原子毎に異なる内部磁場に分布を持つ反強磁性、すなわちAFM-DHと考えられる。AFM-DHの秩序状態でのスペクトル解析は、0-15 Tの範囲で40個の異なる内部磁場が存在するとし、内部磁場に分布をつけて行った。得られた内部磁場分布の内部磁場依存性を Fig. 7 に示す。内部磁場の平均二乗振幅($\sqrt{\langle B_{\text{int}}^2 \rangle}$)を算出した。 $\sqrt{\langle B_{\text{int}}^2 \rangle}$ の温度依存性を Fig. 8 (b) に示す。

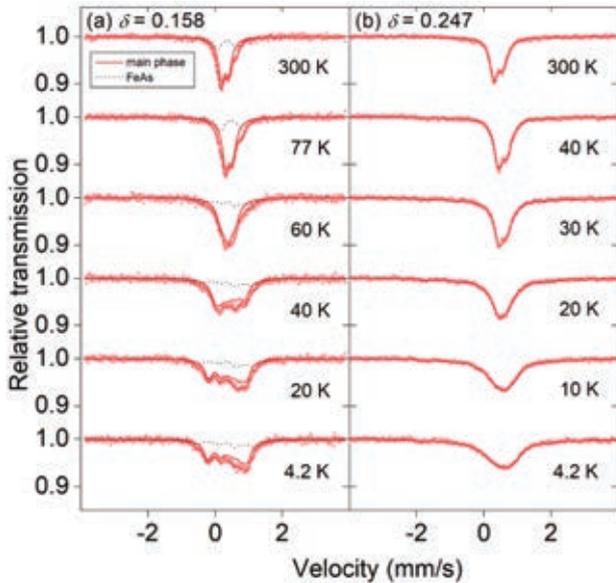


Fig. 5 ^{57}Fe Mössbauer spectrum of $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ samples at different temperatures indicated near plots. (a) $\delta = 0.158$ and (b) 0.247 . Red lines are fitted patterns, which are composed of two absorption lines for $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ (thick red lines) and FeAs (dashed lines) for $\delta = 0.158$ sample.

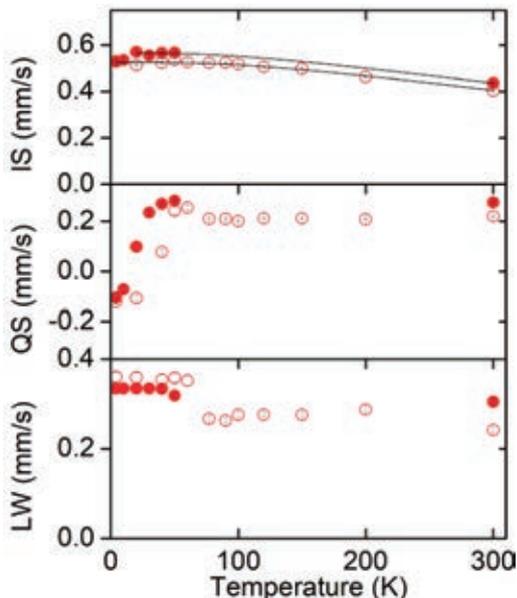


Fig. 6 Refined parameters for ^{57}Fe Mössbauer spectroscopy measurements of $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ samples with $\delta = 0.158$ (red open circles) and 0.247 (red closed circles). IS: isomer shift, QS: quadrupole splitting, LW line width. QS and LW parameters were fixed at low temperatures for $\delta = 0.247$ sample. Small black lines in red circles show statistical errors. Dashed lines are fitted patterns.

$\delta = 0.158, 0.247$ の試料の Fe 副格子はそれぞれ AFM-s, AFM-DH と異なる磁性相を示すことから、Fe 副格子の磁気状態は δ に依存する。

Fig. 6 において、式 (1,3) によりフィッティングを行った。 $\delta = 0.158$ の試料では $IS_I = 0.535$ mm/s, $\Theta_D = 451$ K, $\delta = 0.247$ の試料では $IS_I = 0.674$ mm/s, $\Theta_D = 398$ K となった。

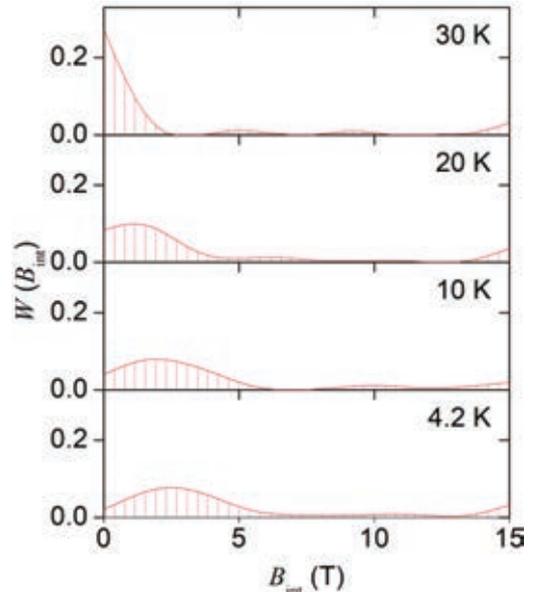


Fig. 7 Distributions (W) of internal magnetic fields (B_{int}) as function of B_{int} for $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ samples with $\delta = 0.247$ at different temperatures indicated near plots.

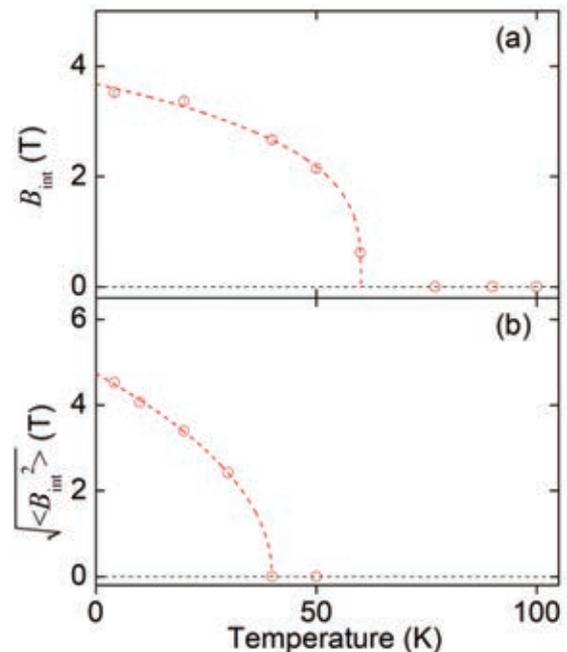


Fig. 8 (a) Temperature (T) dependence of internal magnetic fields (B_{int}) for $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ samples with $\delta = 0.158$. Small black lines in red circles show statistical errors. (b) T dependence of square root of mean squared amplitude of internal magnetic fields ($\sqrt{\langle B_{\text{int}}^2 \rangle}$), which is obtained from distributions of B_{int} for $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ samples with $\delta = 0.247$. Red dashed lines are fitted patterns.

Fig. 8において、式(10)の経験式^{2,6)}によりそれぞれの B_{int} に対して外挿を行った。

$$\sqrt{(B_{int}^2)} = B_0 \left(1 - \frac{T}{T_N}\right)^\alpha \text{ for } 0 \leq \frac{T}{T_N} \leq 1 \quad (10)$$

$\delta = 0.158$ の試料におけるAFM-sのNéel温度(T_{AFM-s})は60.1 K, $\delta = 0.247$ の試料におけるAFM-DHのNéel温度(T_{AFM-DH})は40.0 Kと求まった。0 K外挿による内部磁場は, $\delta = 0.158$ の試料では3.67 T, $\delta = 0.247$ の試料では4.74 Tと求まった。純鉄の磁気モーメントと内部磁場の関係より見積もった変換係数15 T/ μ_B を用いてFe一原子当たりの磁気モーメントの大きさに変換すると,0 Kにおける内部磁場は, $\delta = 0.158$ の試料では0.245 μ_B , $\delta = 0.247$ の試料では0.316 μ_B に対応する。これらの磁気モーメントの大きさは、鉄系超伝導体の母相としては典型的な実験値^{1,6), 2,3), 2,7), 2,8)}である。

5. 考察

5.1 化学組成に関する議論

本研究で用いた5元系化合物の場合、単相の多結晶を、仕込みでの化学組成を保って作成することは困難である。一方、異相を含む多結晶は、仕込み組成と異なる化学組成を示す。さらに、同一の仕込み組成・熱処理温度であっても、実験条件のわずかな差により、格子状態の異なる試料が得られる。すなわち、仕込み組成は真の化学組成とは異なる。そのため、これらの物理的性質は仕込み組成以外の基準を用いて整理する必要がある。我々は、酸素サイト以外に欠損がないと仮定し、格子定数を用いて酸素欠損量(δ)を決定した。この方法は、蛍光X線分析(X-ray fluorescence analysis: XRF), X線光電子分光(X-ray photoelectron spectroscopy: XPS), エネルギー分散型X線分光(Energy dispersive X-ray spectroscopy: EDX)の測定で求まる定量分析に比べ、表面の構造、Matrix効果、連続蛍光X線による影響がないため、系統だった電気的、磁気的性質の相図を求めるのに有効である^{1,6)}。この方法の信頼性は、密度汎関数理論による格子欠陥の生成エンタルピーの評価により、今後検証されると考えている。

5.2 異性体シフトと四極子分裂

Fig. 6において、 $\delta = 0.158$ の試料は20-40 K, $\delta = 0.247$ の試料は10-20 KにおいてQSの符号が逆転した。これは、電場勾配の変化を意味する。電場勾配は最近接の As^3- イオンの影響を大きく受けるため、 As^3- イオンの位置関係が変化したと考えられる。このことから、 $\delta = 0.158$ の試料は20-40 K, $\delta = 0.247$ の試料は10-20 Kにおいて $FeAs_4$ 分子構造の局所的な相転移が予想される。

室温付近でのISは、 $Sr_2VFeAsO_{3-\delta}$ や $FePn$ 相を持つ化合物 $LnFePnO$ のIS^{1,6), 2,3), 2,8)~3,1)}と近い値であった。Fig. 9に $FePn$ 相を持つ化合物の室温でのISを格子体積の逆関数として示す。 $LnFePnO$ 中のFeは、純鉄と同じく、共有結合、または金属結合的である^{3,2)~3,5)}。Fig. 9に示すように、 $Sr_2CrFeAsO_{3-\delta}$ のFeの化学結合状態も同様に、共有結合、または金属結合的である。

5.3 $Sr_2CrFeAsO_{3-\delta}$ の電子磁気状態相図

電気抵抗率測定より、 $\delta = 0.124-0.210$ の試料と $\delta = 0.247-0.256$ の試料でkink以下での $\partial\rho/\partial T$ の符号が異なったことから、 $0.210 \leq \delta \leq 0.247$ でキャリアの散乱機構が異なり、電子相の相転移が起きていると考えられる。電気抵抗率の温度依存とFe副格子に反強磁

性が生じる温度に相関があり、 T_{anom} と T_{min} を磁気転移温度の間接測定であると仮定した場合、 $0.124 \leq \delta \leq 0.210$ の試料のFe副格子はAFM-sで、 $0.247 \leq \delta \leq 0.256$ の試料のFe副格子はAFM-DHであると考えられる。この仮定を基に作成した $Sr_2CrFeAsO_{3-\delta}$ の電子・磁気状態相図をFig. 10に示す。

Tegelらは、nominal $Sr_2CrFeAsO_3$ において、電気抵抗率の温度依存性は極小をとり、Mössbauer分光測定において我々の $\delta = 0.247$ の試料と類似のスペクトルを報告した。式(9)の $\delta-V$ 校正直線よりTegelらの試料の δ を求めると、 $\delta = 0.234$ となった。Fig. 10はTegelらの過去の報告と矛盾しない。

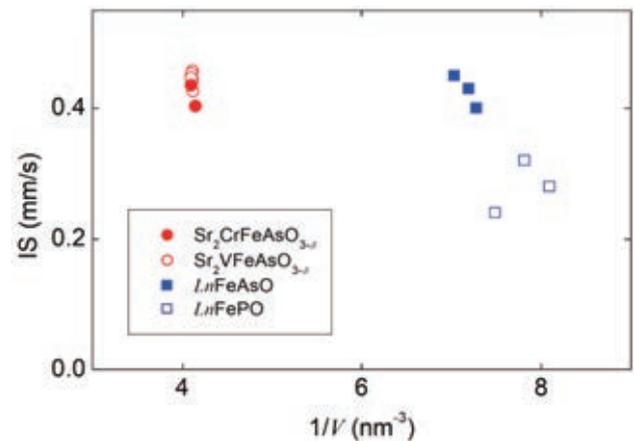


Fig. 9 Isomer shift (IS) of $Sr_2CrFeAsO_{3-\delta}$ (red closed circles), $Sr_2VFeAsO_{3-\delta}$ (red open circles), $LnFeAsO$ (blue closed squares), and $LnFePO$ (blue open squares) as function of inverse of lattice volume at room temperature²⁹⁾.

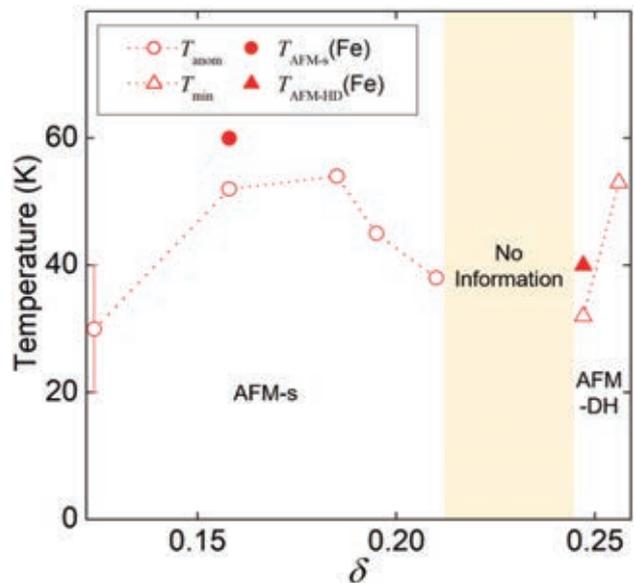


Fig. 10 Electronic and magnetic phase diagram of $Sr_2CrFeAsO_{3-\delta}$ considering δ and T . Open circles indicate temperatures of anomalous kink for $\rho-T$ curves (T_{anom}). Open upward triangles indicate minimum temperatures for $\rho-T$ curves (T_{min}). Closed circle indicates Néel temperature of stripe-type antiferromagnetic ordered Fe (T_{AFM-s}). Closed upward triangle indicates Néel temperature of internal magnetic field (H_{int}) distributed antiferromagnetic ordered Fe (T_{AFM-DH}). Shadow area denotes region in which crystallographic and/or compositional disorder exists.

6. 結言

我々は $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ の電子・磁気状態の酸素欠損依存性を明らかにすることを目的として、酸素欠損量の異なる $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ を合成し、電気抵抗率測定、 ^{57}Fe Mössbauer 分光測定を行い、その電子・磁気状態相図を作成した。 $0.124 \leq \delta \leq 0.210$ の試料の Fe 副格子はストライプ型反強磁性 (AFM-s) を示した。 $0.247 \leq \delta \leq 0.256$ の試料の Fe 副格子は内部磁場に分布のある反強磁性 (AFM-DH) を示した。 $0.210 \leq \delta \leq 0.247$ の化学組成において、 $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ の Fe 副格子は AFM-s から AFM-DH の相転移が生じると考えられる。

References

- H. Hiramatsu and Y. Kamihara: Developments and Applications of Transparent Oxides as Active Electronic Materials, H. Hosono and M. Hirano, p. 71-93 (CMC publishing, Tokyo, 2006).
- K. Ueda, H. Hiramatsu, H. Ohta, M. Hirano, T. Kamiya, and H. Hosono: *Phys. Rev. B*, **69**, 155305 (2004).
- Y. Kamihara, T. Watanabe, M. Hirano, and H. Hosono: *J. Am. Chem. Soc.*, **130**, 3296-3297 (2008).
- Y. Kamihara: *J. Cryo. Super. Soc. Jpn.*, **52**, 415-421 (2017).
- S. Iwasaki, M. Matoba, and Y. Kamihara: *Mater. Sci. Tech. Jpn.*, **55**, 77-82 (2018).
- X. Zhang, H. Oguro, C. Yao, C. Dong, Z. Xu, D. Wang, S. Awaji, K. Watanabe, and Y. Ma: *IEEE T. Appl. Supercon.*, **27**, 7300705 (2017).
- T. Hanna, S. Matsui, K. Kodama, T. Otomo, S. Shamoto, and H. Hosono: *Phys. Rev. B*, **87**, 020401 (2013).
- E. J. Wildman, J. M. S. Skakle, N. Emery, and A. C. McLaughlin: *J. Am. Chem. Soc.*, **134**, 8766-8769 (2012).
- Y. Kamihara, M. Matoba, T. Kyomen, and M. Itoh: *J. Appl. Phys.*, **91**, 8864-8866 (2002).
- Y. Shiomi, S. Ishiwata, Y. Taguchi, and Y. Tokura: *Phys. Rev. B*, **84**, 054519 (2011).
- J. Naganuma, Y. Kamihara, and M. Matoba: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **26**, 376-379 (2002).
- S. Hirai, K. Morita, K. Yasuoka, T. Shibuya, Y. Tojo, Y. Kamihara, A. Miura, H. Suzuki, T. Ohno, T. Matsuda, and S. Yagi: *J. Mater. Chem. A*, **6**, 15102-15109 (2018).
- J. D. Jorgensen, M. A. Beno, D. G. Hinks, L. Soderholm, K. J. Volin, R. L. Hitterman, J. D. Grace, I. K. Schuller, C. U. Segre, K. Zhang, and M. S. Kleefisch: *Phys. Rev. B*, **36**, 3608-3616 (1987).
- X. Zhu, F. Han, G. Mu, P. Cheng, B. Shen, B. Zeng, and H. Wen: *Phys. Rev. B*, **79**, 220512 (2009).
- Y. Tojo, M. Matoba, and Y. Kamihara: *J. Appl. Phys.*, **113**, 17E157 (2013).
- Y. Tojo, T. Shibuya, T. Nakamura, K. Shoji, H. Fujioka, M. Matoba, S. Yasui, M. Itoh, S. Iimura, H. Hiramatsu, H. Hosono, S. Hirai, W. Mao, S. Kitao, M. Seto, and Y. Kamihara: *J. Phys., Condensed Matter*, accepted for publication.
- H. Ogino, Y. Matsumura, Y. Katsura, K. Ushiyama, S. Horii, K. Kishio, and J. Shimoyama: *Supercond. Sci. Technol.*, **22**, 075008 (2009).
- M. Tegel, F. Hummel, S. Lackner, I. Schellenberg, R. Pöttgen, and D. Johrendt: *Z. Anorg. Allg. Chem.*, **635**, 2242-2248 (2009).
- M. Tegel, F. Hummel, Y. Su, T. Chatterji, M. Brunelli, and D. Johrendt: *EPL*, **89**, 37006 (2010).
- X. Zhu, F. Han, G. Mu, P. Cheng, B. Shen, B. Zeng, and H. Wen: *Sci. China Ser. G*, **52**, 1876-1878 (2009).
- E. Fujita, S. Nasu, T. Nishida, and Y. Yoshida: Introduction of Mössbauer spectroscopy (Tokyo gijutsu kyokai, Tokyo, 2002).
- R. L. Mössbauer: *Z. Phys.*, **151**, 124-143 (1958).
- S. Kitao, Y. Kobayashi, S. Higashitaniguchi, M. Saito, Y. Kamihara, M. Hirano, T. Mitsui, H. Hosono, and M. Seto: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **77**, 103706 (2008).
- <http://www.mosswinn.com/> (As of October 30, 2018).
- A. Blachowski, K. Ruebenbauer, J. Żukrowski, and Z. Bukowski: *J. Alloy. Compd.*, **582**, 167-176 (2014).
- A. Blachowski, K. Ruebenbauer, J. Żukrowski, K. Rogacki, Z. Bukowski, and J. Karpinski: *Phys. Rev. B*, **83**, 134410 (2011).
- M. Rotter, M. Tegel, and D. Johrendt: *Phys. Rev. B*, **78**, 020503 (2008).
- Y. Kamihara, T. Nomura, M. Hirano, J. E. Kim, K. Kato, M. Takata, Y. Kobayashi, S. Kitao, S. Higashitaniguchi, Y. Yoda, M. Seto, and H. Hosono: *New J. Phys.*, **12**, 033005 (2010).
- T. Nakamura, T. Yamamoto, M. Matoba, Y. Einaga, and Y. Kamihara: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **81**, 064714 (2012).
- M. Tegel, I. Schellenberg, R. Pöttgen, and D. Johrendt: *Z. Naturforsch. B*, **63**, 1057-1061 (2008).
- Y. Kamihara, H. Hiramatsu, M. Hirano, Y. Kobayashi, S. Kitao, S. Higashitaniguchi, Y. Yoda, M. Seto, and H. Hosono: *Phys. Rev. B*, **78**, 184512 (2008).
- W. Malaeb, T. Yoshida, T. Kataoka, A. Fujimori, M. Kubota, K. Ono, H. Usui, K. Kuroki, R. Arita, H. Aoki, Y. Kamihara, M. Hirano, and H. Hosono: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **77**, 093714 (2008).
- P. E. R. Blanchard, R. G. Cavell, and A. Mar: *J. Solid State Chem.*, **183**, 1477-1483 (2010).
- Y. Zhang, Y. L. Chen, Y. J. Cui, C. H. Cheng, H. Zhang, and Y. Zhao: *Supercond. Sci. Technol.*, **22**, 015007 (2009).
- Y. Kamihara, M. Hirano, H. Yanagi, T. Kamiya, Y. Saitoh, E. Ikenaga, K. Kobayashi, and H. Hosono: *Phys. Rev. B*, **77**, 214515 (2008).

2018年10月30日受理, 2018年12月19日再受理, 2019年1月10日採録

Fe-Ga 多結晶薄膜における高周波磁気特性の Ga 組成による変化

Change in High Frequency Magnetic Properties of Fe-Ga Polycrystalline Thin Films with Ga Composition

川辺 泰之*・遠藤 恭**,***・宮崎 孝道****

*東北大学大学院工学研究科, 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-04 (〒980-8579)

**東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センター, 仙台市青葉区片平 2-1-1 (〒980-8577)

***東北大学高等研究機構先端スピントロニクス研究開発センター, 仙台市青葉区片平 2-1-1 (〒980-8577)

****東北大学工学部, 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-04 (〒980-8579)

Y. Kawabe*, Y. Endo*, **,***, T. Miyazaki****

*Graduate School of Engineering, Tohoku University, 6-6-04 Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai 980-8579, Japan

**Center for Spintronics Research Network, Tohoku University, Katahira 2-1-1, Aoba-ku, Sendai 980-8577, Japan

***Center for Science and Innovation in Spintronics, Organization Advanced Studies, Tohoku University, Katahira 2-1-1, Aoba-ku, Sendai 980-8577, Japan

****Faculty of Engineering, Tohoku University, 6-6-04 Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai 980-8579, Japan

This paper reports the effect of Ga composition on the static and dynamic magnetic properties of 10-nm-thick Fe-Ga polycrystalline films. As for the static magnetic properties of these films, the saturation magnetization ($4\pi M_s$) decreased as the Ga composition increased. This feature is similar to that of Fe-Ga bulk alloy. The saturation magnetostriction (λ_s) also increased as the Ga composition increased, but these values were lower than those of Fe-Ga bulk alloy. As for their dynamic magnetic properties, the damping constant (α) decreased from 0.034 to 0.012 as the Ga composition increased, suggesting that the magnetization of Fe-Ga films with Ga compositions below 25 at.% switched slowly in the high frequency range. Therefore, the effect of Ga composition on α and λ_s is opposite between the two, indicating that this feature differs from those in Ni-Fe and Fe-Si binary alloy films.

Keywords: Fe_{100-x}Ga_x films, magnetostrictive material, static magnetic property, dynamic magnetic property

1. はじめに

電気磁気効果は、信号処理技術に応用されるマイクロ波共振器、位相変調器、フィルタを創製するうえで重要である^{1)–3)}。この効果は、最近、エネルギー高効率な磁性ランダムアクセスメモリ(MRAM)やスピン波論理演算素子の基本原理として適用され、磁気ひずみを有する強磁性体を含む強磁性体/誘電体複合構造における電圧誘起ひずみ現象として具現化されている⁴⁾。このようなナノスケールの高周波磁気デバイスの創製には、巨大な磁気ひずみを有する磁性薄膜材料、すなわち磁歪薄膜材料の開発が急務である。

デバイス応用上での要求は、弱磁界で大きく変形することである。しかしながら、Fe, Co, Niなどの強磁性体の場合、磁気ひずみを有しているものの、その大きさは最大でも10 ppmと小さく、デバイス応用には遠く及ばない。それに対して、テルフェノール-D(Terfenol-D; Tb_{1-x}Dy_xFe_{2-y})が大きな磁気ひずみを有し、その大きさが1000 ppmを超えることが報告され⁵⁾、超磁歪材料として研究開発が古くから進められてきた^{6), 7)}。しかしながら、希土類金属を用いているために非常に高価であり、機械的にもろく、加工性、耐食性に乏しいといった問題があげられている。

テルフェノール-Dに替わる材料として、米国海軍研究所で開発されたガルフエノール(Galfenol; Fe₈₁Ga₁₉)が注目さ

れている⁸⁾。Fe₈₁Ga₁₉合金は結晶性を有し、最大約350 ppmの磁気ひずみが発生する⁹⁾。この値はテルフェノール-Dと比べて低いものの、機械特性に優れ、加工性が良く、かつキュリー温度が高いといった特長を有している。その一方で、磁気ひずみの大きさはGa組成および結晶方位に依存することから、これらのパラメータの制御が課題となっている。

これまでFe-Gaバルク合金に関する研究が、磁歪アクチュエータや変換機器への応用を見すえて盛んに行われてきた。これらの研究では、主に結晶構造と磁気ひずみの関係について報告されている¹⁰⁾。また、Fe-Ga合金薄膜に関する研究は、Fe-Ga単結晶もしくはエピタキシャル膜では高周波磁気デバイス応用を見すえて、磁気ひずみと高周波磁気特性の膜厚およびGa組成依存性について報告されている^{11)–14)}。一方で、工業的に作製が簡便でガラス基板等に製膜可能な多結晶膜では、構造と静的磁気特性のGa組成依存性に関する知見^{15), 16)}はすでに報告されているものの、高周波磁気デバイス応用を見すえた高周波磁気特性に関する報告はなく、膜厚およびGa組成に対する系統的な知見が得られていない。

本研究では、主にGa組成の異なるFe-Ga多結晶膜の高周波磁気特性に着目して、それらの特性についてブロードバンド強磁性共鳴(B-FMR)測定法を用いて評価し、得られ

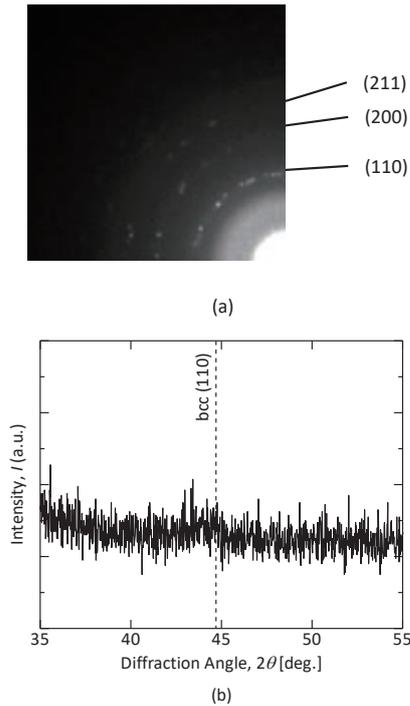


Fig. 1 Typical examples of (a) selected-area diffraction (SAD) pattern and (b) high angle x-ray diffraction profile of 10-nm-thick $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$ film with $x = 24.9$.

た結果について議論する。

2. 実験方法

$\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x(\text{Fe-Ga})$ 膜の作製には、DC マグネトロンスパッタ装置を用いた。スパッタ装置の製膜前真空度は 8.0×10^{-5} Pa 以下、製膜時の Ar ガス圧は 4.0×10^{-1} Pa とした。製膜に用いた基板は石英ガラスである。Fe-Ga 膜の膜厚は 10 nm に固定し、Ga 組成(x)を 18.5 ~ 33.4 at.% と変化させた。なお、膜の酸化を防ぐために 5 nm 厚の Cr 層を試料表面に積層した。

作製した膜の組成に関しては、あらかじめ膜厚 250 nm の Fe-Ga 膜を準備し、エネルギー分散型 X 線分析(EDX)を用いて決定した。作製した膜の構造に関しては、透過型電子顕微鏡(TEM)と X 線回折(XRD)を用いて評価した。それらの結果の一例を図 1 に示す。作製した膜の結晶構造は Ga 組成に関わらずランダム配向の bcc 多結晶であり、結晶粒径の小さい微結晶状態となっていることを確認した。

作製した膜の静的磁気特性に関しては、振動試料型磁力計(VSM)と光てこ法を用いた高感度薄膜磁歪装置((株)東栄科学産業製)を用いて評価した。磁歪測定に関しては、試料の膜面内に十分に強い回転磁界(最大 175 Oe)を印加した。なお、その測定条件の詳細等については他の文献¹⁷⁾に記載済みである。また、高周波磁気特性に関しては、ベクトルネットワークアナライザとコプレーナウェーブガイド(CPW)を組み合わせた B-FMR 測定法を用いて評価した。本測定法(図 2)では、作製した膜の表面を CPW 上にのせた

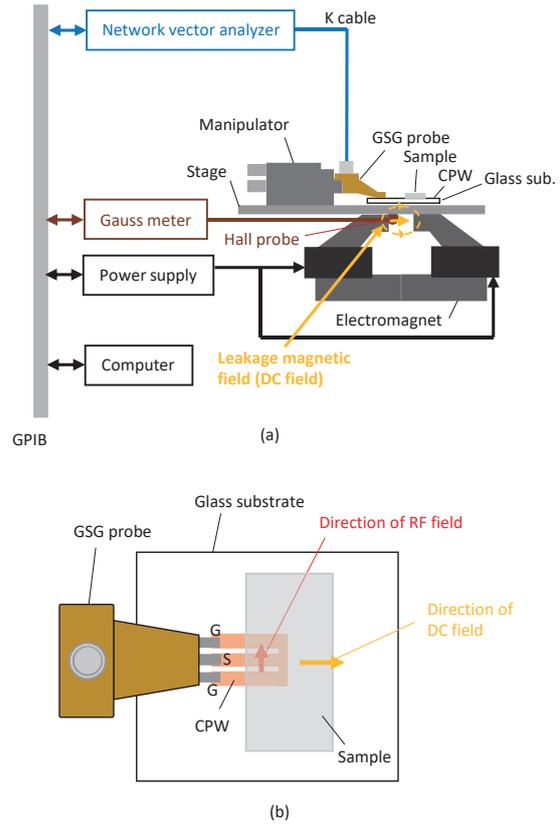


Fig. 2 (a) A schematic diagram of the broadband ferromagnetic resonance (B-FMR) measurement system. (b) The layout drawing of a sample, a CPW, and a GSG probe. Arrows represent direction of RF field and DC field.

状態で、CPW と VNA を高周波プローブと高周波ケーブルを介して接続させ、CPW の S パラメータについて測定周波数($f_{\text{Res}} = 9 - 18$ GHz)を固定し高周波磁界(RF field)と直交方向に外部磁界(DC field)を変可させながら VNA を用いて測定した¹⁸⁾。B-FMR 測定時の印加磁界方向は膜面内の任意の方向とし、最大磁界は 3 kOe とした。これらの磁気特性は、すべて室温で評価した。

3. 結果

まず 10 nm 厚の Fe-Ga 膜における静的磁気特性を検討した。図 3 に示すように、磁化曲線の形状はいずれの Ga 組成においても外部磁界の向きに依存して異なる形状となった。とりわけ、保磁力の Ga 組成に対する低減は膜面内の結晶粒径に関連していると考えられる。これらの結果を用いて、Fe-Ga 膜の残留磁化比(M_r/M_s)と飽和磁化($4\pi M_s$)を評価した。それらの結果を Ga 組成(x)に対して図 4 にまとめた。なお、記載されている 0° および 90° は、膜面内に印加した外部磁界の任意の方向とその直交方向を示している。 M_r/M_s は、いずれの Ga 組成においても外部磁界の向きに依存し、変化している。これらの結果は、異方性によるものと考えられるが、その起源については定かではなく今後検

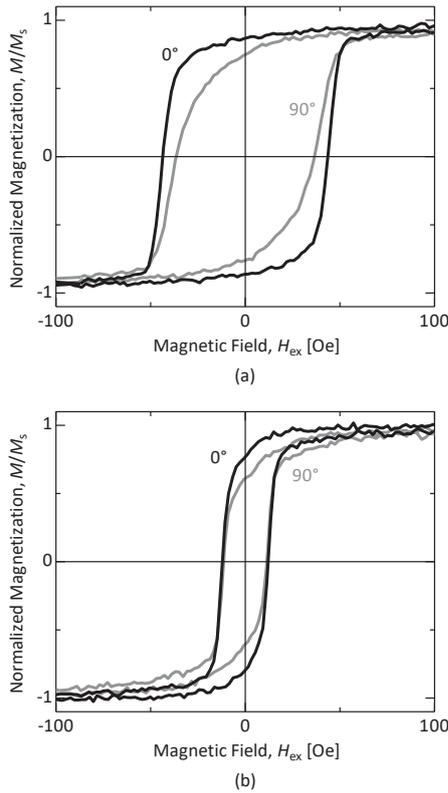


Fig. 3 Typical examples of M - H curves in 10-nm-thick $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$ films with (a) $x = 18.5$ and (b) $x = 33.4$. Black lines denote M - H curve when H_{ex} was applied along in-plane arbitrary directions of Fe-Ga films. Gray lines denote M - H curve when H_{ex} was applied along in-plane lateral directions of Fe-Ga films.

討していく。また、 $4\pi M_s$ に関しては、Ga 組成の増加にともなって 16.3 kG から 12.7 kG まで減少した。この挙動は、不規則相を有するバルク合金の結果(破線)¹⁰⁾と類似していて、非磁性元素である Ga の割合が単調に増加したことによるものと考えられる。

図 5 に Fe-Ga 膜における飽和磁気ひずみ(λ_s)の Ga 組成による変化を示す。Ga 組成が増加すると、 λ_s は増加した。これらの値は、およそ 20 – 60 ppm であり、 $\text{Fe}_{81}\text{Ga}_{19}$ バルク合金(約 350 ppm)⁹⁾や Fe-Ga 多結晶膜(最大約 90 ppm)¹⁶⁾と比べると低くなった。Fe-Ga バルク合金では、[100]の磁気ひずみが[111]に比べて非常に大きくなるのがすでに報告されている^{8), 9)}。したがって、磁気ひずみが低くなった原因としては、Fe-Ga バルク合金の報告から薄膜の結晶方位が主に[111]を向いているものと考えられる。また、Fe-Ga 多結晶膜との差異は、構造解析評価の結果をもとにして考えると、作製した Fe-Ga 膜における膜面内の結晶粒径が小さく微結晶状態となっているためと考えられる。

次に、Fe-Ga 膜の高周波磁気特性を検討するために、B-FMR 測定法を用いて Ga 組成の異なる Fe-Ga 膜の FMR スペクトルを測定した。それらの一例を図 6(a)に示す。い

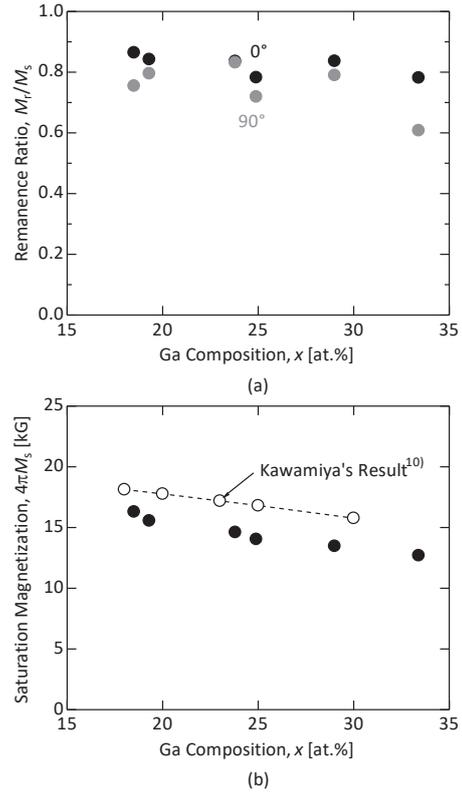


Fig. 4 Change in (a) remanence ratio (M_r/M_s) and (b) saturation magnetization ($4\pi M_s$) of 10-nm-thick $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$ films with Ga composition (x). Black circles indicate M_r/M_s when H_{ex} was applied along in-plane arbitrary directions of Fe-Ga films. Gray circles indicate M_r/M_s when H_{ex} was applied along in-plane lateral directions of Fe-Ga films.

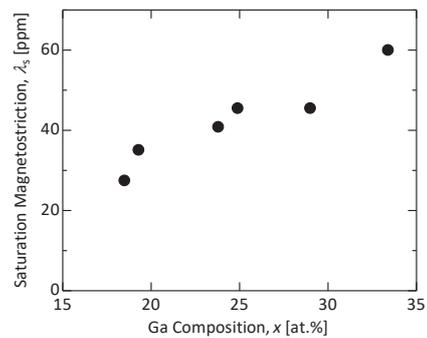


Fig. 5 Dependence of saturation magnetostriction (λ_s) on Ga composition (x) for 10-nm-thick $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$ films.

ずれの Ga 組成においてもディップ(FMR ピーク)を観測でき、周波数の増加とともに、高磁界側へシフトした。また、ピークの半値幅は周波数の増加とともに広がった。これらのピークが観測される外部磁界(H_{ex})とピークの半値幅(ΔH)を、ローレンツ関数¹⁹⁾によるフィッティングから決定した。まず、共鳴周波数の 2 乗(f_{Res}^2)と H_{ex} の関係を図 6(b)に示す。 f_{Res}^2 の H_{ex} に対する挙動は、実線で示した Kittel の

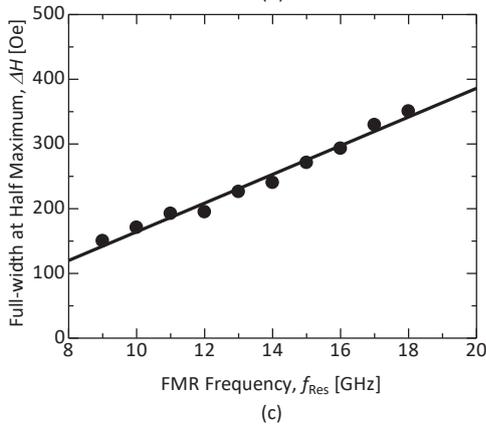
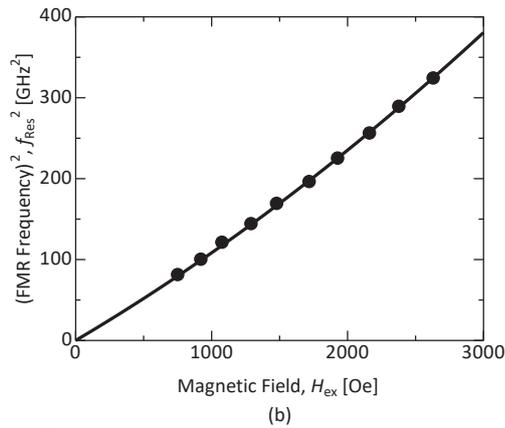
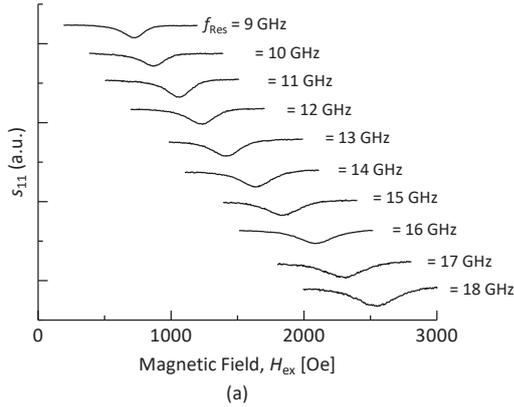


Fig. 6 (a) Typical examples of FMR spectra in 10-nm-thick $\text{Fe}_{81.5}\text{Ga}_{18.5}$ films. (b) Relationship between square of resonance frequency (f_{Res}^2) and resonance magnetic field (H_{Res}), (c) Relationship between full-width at half maximum (ΔH) and resonance frequency (f_{Res}) in 10-nm-thick $\text{Fe}_{81.5}\text{Ga}_{18.5}$ films. The solid lines in (b) and (c) represent the fitting curves by eqs (1) and (2), respectively.

関係式²⁰⁾

$$f_{\text{Res}}^2 = \left(\frac{\gamma}{2\pi}\right)^2 H_{\text{ex}}(H_{\text{ex}} + 4\pi M_{\text{s,eff}}) \quad (1)$$

により説明できる。ここで、 γ はジャイロ磁気定数(0.0191 GHz/Oe²¹⁾、また $4\pi M_{\text{s,eff}}$ は面直方向の有効異方性磁界(す

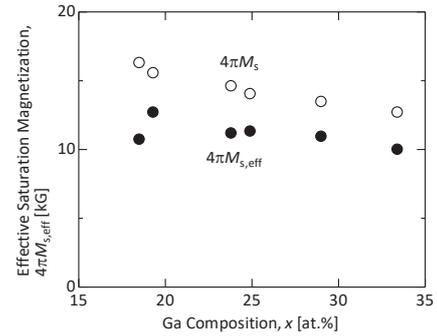


Fig. 7 Relationship between effective saturation magnetization ($4\pi M_{\text{s,eff}}$) and Ga composition (x) for 10-nm-thick $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$ films.

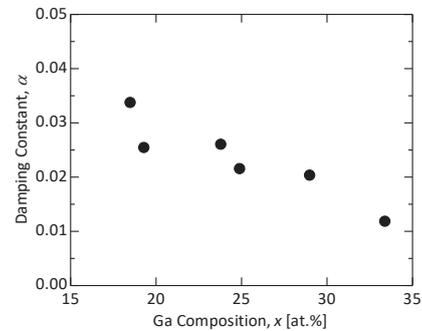


Fig. 8 Change in damping constant (α) of 10-nm-thick $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$ films with Ga composition (x).

なわち、有効飽和磁化にあたる)を表している。したがって、Kittel の式によるフィッティングから、すべての Fe-Ga 膜の $4\pi M_{\text{s,eff}}$ を求め、Ga 組成に対してまとめた。その結果を図 7 に示す。 $4\pi M_{\text{s,eff}}$ は、Ga 組成の増加とともにゆるやかに減少した。この傾向は、VSM により得られた飽和磁化 ($4\pi M_{\text{s}}$) の挙動と類似している。しかしながら、それらの値は 10–12 kG 程度であり、 $4\pi M_{\text{s}}$ と比べると低くなった。これは、Fe-Ga 膜における面直方向の反磁界が負の表面異方性の影響で弱くなっていることによるものと考えられる²²⁾。

また、図 6(c) からわかるように、 ΔH は f_{Res} に対して線形的に増加した。この挙動は、実線で示した ΔH と f_{Res} の関係式²³⁾

$$\Delta H = \Delta H(0) + \frac{4\pi\alpha}{\gamma} f_{\text{Res}} \quad (2)$$

とほぼ一致している。ここで、 $\Delta H(0)$ と α は周波数ゼロの時の不均一磁界線幅とダンピング定数である。(2)式によるフィッティングから得られる傾きの値から 10 nm 厚の Fe-Ga 膜におけるダンピング定数(α)を求めた。図 8 に示すように、 α は Ga 組成の増加とともに 0.034 から 0.012 まで減少する傾向であった。また、 $\Delta H(0)$ は Ga 組成にあまり依存せず

それらの値は数十 Oe 程度となった。これらの結果から、Ga 組成が 33.4 at.% の膜を除いていずれの場合も α の値はゼロ磁気ひずみ近傍の Ni-Fe 合金(0.0081)²⁴⁾や Fe-Si 合金(0.0084)²⁵⁾といった軟磁性膜の α と比較すると、およそ 2.5 - 4 倍ほど高くなっている。また、Fe_{100-x}Ga_x 単結晶膜(0.0055 - 0.0064, $x = 20 - 28$)¹¹⁾の α と比較すると、いずれの Ga 組成においても高く、およそ 2 - 7 倍となっている。この原因は、異方性分散などの影響に由来する磁氣的不均一性だけでなく、大きな飽和磁気ひずみの影響にもよると考えられる。また、Ga 組成がおおよそ 25 at.% 以下の場合における高い α は、磁化の反転速度が遅いことを示唆している。

さらに、 α の Ga 組成に対する減少傾向は λ_s の増加傾向と正反対となった。これに対して、Ni-Fe や Fe-Si 合金膜では α と λ_s は Ni 組成や Si 組成に対して増加する傾向にあり、ゼロ磁気ひずみ近傍の組成域で λ_s の符号に依存して α の λ_s に対する増加量が異なることが報告されている^{24), 25)}。したがって、Fe-Ga 膜の α と λ_s の関係は Ni-Fe や Fe-Si 合金膜の場合とは異なっていることがわかった。この原因については今後検討していく。

4. 結論

本研究では、10 nm 厚の Fe-Ga 多結晶膜における静的磁気特性および高周波磁気特性の Ga 組成による変化について検討し、以下の知見を得た。

静的磁気特性に関しては、 $4\pi M_s$ は Ga 組成の増加とともに減少し、それらの値は Fe-Ga バルク合金の値と類似している。 λ_s は Ga 組成の増加とともに増加し、その値は最大 60 ppm であり、Fe₈₁Ga₁₉ バルク合金(約 350 ppm)や Fe-Ga 多結晶膜(最大約 90 ppm)と比べると低くなった。Fe-Ga バルク合金との違いに関しては、薄膜の結晶方位が主に [111] を向いていることによるものと考えられる。また、Fe-Ga 多結晶膜との差異は、作製した Fe-Ga 膜における膜面内の結晶粒径が小さく微結晶状態となっているためと考えられる。

高周波磁気特性に関しては、その基本パラメータである α は Ga 組成の増加とともに減少した。また、Ga 組成が 33.4 at.% の膜を除いて、いずれの値もゼロ磁気ひずみ近傍の Ni-Fe 合金や Fe-Si 合金といった軟磁性膜の α と比較すると、およそ 2.5 - 4 倍ほど高くなった。特に、Ga 組成がおおよそ 25 at.% 以下の場合には、これらの高い α はいずれも磁化反転速度が遅いことを示唆している。また、 α と λ_s の Ga 組成に対する挙動は正反対であり、Ni-Fe および Fe-Si 合金膜の場合とは異なっていることがわかった。

謝辞 本研究を行うにあたり、東北大学大学院工学研究科 島田 寛 名誉教授に有益なご助言をいただきました。また、試料作製の一部および X 線回折測定を行うにあたり、東北大学多元物質科学研究所 北上 修 教授、岡本 聡 准教授、菊池 伸明 助教の協力を得ました。ここに深謝します。

本研究の一部は、JSPS 科研費 JP17H03226 の助成と、東北大学国際集積エレクトロニクス研究開発センター、および情報ストレージ研究推進機構(ASRC)の補助のもとで行われました。

References

- 1) Y. K. Fetisov, and G. Srinivasan, *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 143503 (2006)
- 2) A. B. Ustinov, G. Srinivasan, and B. A. Kalinikos, *Appl. Phys. Lett.*, **90**, 031913 (2007)
- 3) C. Pettiford, S. Dasgupta, J. Lou, S. D. Yoon, and N. X. Sun, *IEEE Trans. Magn.*, **43**, 3343 (2007)
- 4) D. E. Parkes, L. R. Shelford, P. Wadley, V. Holy, M. Wang, A. T. Hindmarch, G. van der Laan, R. P. Campion, K. W. Edmonds, S. A. Cavill, and A. W. Rushforth, *Scientific Reports*, **3**, 2220 (2013)
- 5) A. E. Clark, *AIP Conference Proceedings*, **18**, 1015 (1974)
- 6) L. Sandlund, M. Fahlander, T. Cedell, A. E. Clark, J. B. Restorff, and M. Wun-Fogle, *J. Appl. Phys.*, **75**, 5656 (1994)
- 7) A. G. Jenner, R. J. E. Smith, A. J. Wilkinson, and R. D. Greenough, *Mechatronics*, **10**, 457-466 (2000)
- 8) A. E. Clark, J. B. Restorff, M. Wun-Fogle, T. A. Lograsso, and D. L. Schlagel, *IEEE Trans. Magn.*, **36**, 3238-3240 (2000)
- 9) M. Wuttig, L. Dai, and J. Cullen, *Appl. Phys. Lett.*, **80**, 1135 (2002)
- 10) N. Kawamiya, K. Adachi, and Y. Nakamura, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **33**, 5, 1318-1327 (1972)
- 11) B. K. Kuanr, R. E. Camley, Z. Celinski, A. McClure, and Y. Idzerda, *J. Appl. Phys.*, **115**, 17C112 (2014)
- 12) A. Butera, J. L. Weston, and J. A. Barnard, *J. Magn. Magn. Mater.*, **284**, 17-25 (2004)
- 13) A. McClure, S. Albert, T. Jaeger, H. Li, P. Rugheimer, J. A. Schaefer, and Y. U. Idzerda, *J. Appl. Phys.*, **105**, 07A938 (2009)
- 14) A. McClure, H. Li, and Y. U. Idzerda, *J. Appl. Phys.*, **107**, 09A924 (2010)
- 15) A. Javed, N. A. Morley, and M. R. J. Gibbs, *J. Magn. Magn. Mater.*, **321**, 18, 2877-2882 (2009)
- 16) N. A. Morley, A. Javed, and M. R. J. Gibbs, *J. Appl. Phys.*, **105**, 07A912 (2009)
- 17) Y. Endo, T. Sakai, T. Miyazaki, and Y. Shimada, *IEEE Trans. Magn.*, **53**, 11, 2502305 (2017)
- 18) Y. Endo, and M. Yamaguchi, *Digests of the 39th Annual Conf. Magn. Jpn 2015*, 124 (2015)
- 19) G. Woltersdorf: "Spin pumping and two-magnon scattering in magnetic multilayers." Ph. D. thesis, Simon Fraser University (2004)
- 20) C. Kittel: *Introduction to Solid State Physics*, 8th edition, p.379, (John Wiley & Sons, Inc, Hoboken, 2005)
- 21) R. Bozorth: *Ferromagnetism*, p.809, (John Wiley & Sons, Inc, Hoboken, 2003)
- 22) C. L. Jermain, H. Paik, S. V. Aradhya, R. A. Buhrman, D. G. Schlom, and D. C. Ralph, *Appl. Phys. Lett.*, **109**, 192408 (2016)
- 23) S. S. Kalarickal, P. Krivosik, M. Wu, C. E. Patton, M. L. Schneider, P. Kabos, T. J. Silva, and J. P. Nibarger, *J. Appl. Phys.*, **99**, 093909 (2006)
- 24) Y. Endo, Y. Mitsuzuka, Y. Shimada, and M. Yamaguchi, *J. Appl. Phys.*, **109**, 07D336 (2011)
- 25) Y. Endo, Private communication

2018年10月16日受理, 2018年12月7日再受理, 2019年3月2日採録

マイケルソン光干渉法による磁歪測定装置の作製

Magnetostriction measurement system of magnetic thin films with Michelson interference

佐藤睦規・吉田悠人・鈴木貴彦・高橋豊・小池邦博・稲葉信幸

山形大学大学院理工学研究科, 山形県米沢市城南 4 丁目 3-16 (〒992-8510)

M. Sato, Y. Yoshida, T. Suzuki, Y. Takahashi, K. Koike, and N. Inaba

Graduate School of Science and Engineering, Yamagata Univ., 4-3-16 Jhonan, Yonezawa, Yamagata, 992-8510, Japan

We developed a sensitive magnetostriction measurement system of magnetic thin film specimens using a Michelson interference. When magnetic field is applied parallel to the film plane of the cantilevered specimen, the magnetostriction of the film makes the specimen slightly bend, and the movement of the interference patterns is observed depending on the deflection d of the specimen. Variation of d can be detected with the precision of about one hundredth of wavelength of laser beam. The magnetostriction constant λ_{110} of Fe(001) single crystal thin film deposited on MgO(001) single crystal substrate with film thickness of 61 nm was estimated to be $(1.4 \pm 0.27) \times 10^{-5}$ from the deflection of 2.6 ± 0.5 nm.

Key words: magnetic single crystal thin film, magnetostriction, Michelson interferometer

1. はじめに

最近の磁気デバイスでは、薄膜の多層構造となっていることから、HDD(hard disk drive)やMRAM(magnetic random access memory)などのデバイスの特性を考えるうえで、磁歪が重要な要因の一つになっている。また、磁歪により磁気異方性が誘起されることから、ナノコンポジット磁性材料の特性向上においても重要である。

磁歪を磁気緩和現象の観点からみると、Ni-Fe多結晶薄膜では、ダンピング定数 α と磁歪定数 λ との間に相関があることが報告されている¹⁾。パーマロイ組成近傍で α , λ がともに最小値をとり、パーマロイ組成から離れるにしたがって両者とも増大していく。一方、Ni-Fe単結晶薄膜では、結晶方位に依存して α が変化することが報告されている²⁾。この変化がバルク試料の結晶方位に対する磁歪の変化と似た変化を示していた。薄膜試料について、ダンピング定数と磁歪の関係を結晶方位の点から詳細に調べるためには、同一の単結晶試料で磁歪定数を測定する必要がある。

磁性薄膜試料の磁歪測定法は、ひずみゲージや光てこ法などの磁歪によって生じる試料のたわみを計測する手法が一般的である。前者の手法で測定可能な最小のたわみ量は $1 \mu\text{m}$ 程度であり、後者は 100 nm 程度である。一方、単結晶薄膜の形成によく使用される MgO 基板は、ガラス基板に比べてヤング率が 3 倍以上大きく、硬く曲がりにくい。例えば、板厚が 0.2 mm の薄い MgO 基板上に膜厚 100 nm の Fe を成膜した試料では、試料の一端を片持ちで固定したとき、固定端から 10 mm の位置での試料のたわみ量は 5 nm 程度となる。このため、従来の測定法では、たわみ量の計測が困難であり、新たな高分解能の測定装置が求められている。

本研究では、光学系を用いた高分解能な変位測定法として知られているマイケルソン干渉計を応用した磁歪測定装置を製作したので報告する。

2. 磁歪測定装置の構成

2.1 マイケルソン干渉計を用いた測定装置の原理

作製した磁歪測定装置は、マイケルソン干渉計の原理を応用した。マイケルソン干渉計の構成図を Fig. 1 に示す。マイケルソン干渉計では、光源から出た光がハーフミラーで固定ミラー側と可動ミラー側の 2 光路へ分けられる。以後、固定ミラー側の光を参照光、可動ミラー側の光を測定光と呼ぶことにする。参照光、測定光ともにそれぞれのミラーで反射し、再度ハーフミラーで合成され、スクリーン上に干渉縞が結像される。可動ミラーが距離 Δd 移動すると、測定光の光路長が $2\Delta d$ 変化し、参照光と干渉する際の位相が変わるため、干渉縞が移動する。例えば、可動ミラーが光源の波長 λ_L の $1/2$ 波長分移動すると、光路長が 1 波長分変化したことになり、干渉縞は 1 本分移動する。干渉縞の間隔 L_{pp} が $\lambda_L/2$ の可動ミラーの移動に対応していることから、干渉縞の移動量 ΔL を測定すれば、

$$\Delta d = \frac{\Delta L}{L_{pp}} \cdot \frac{\lambda_L}{2} \quad (1)$$

から、 Δd を得ることができる。この測定法を用いることで、光源の波長の $1/10 \sim 1/100$ の分解能で可動ミラーの移動量を測定することが可能である。

本測定装置では、Fig. 1 の挿入図に示すように、可動ミラーの部分を試料の一端を固定した片持ち構造の磁性薄膜試料に置き換えることにより、磁歪によって生じる試料のたわみ量 d を検出できるようにした。

2.2 光干渉磁歪測定装置の構成

作製した光干渉磁歪測定装置の写真を Fig. 2 に示す。レーザー、ミラーなどの光学系は除振台上に配置した。試料に磁界を印加する電磁石は、重量、測定系の光軸とポールピースの高さの関係、また、冷却水による振動防止の点から、光学系とは独立した台に設置した。

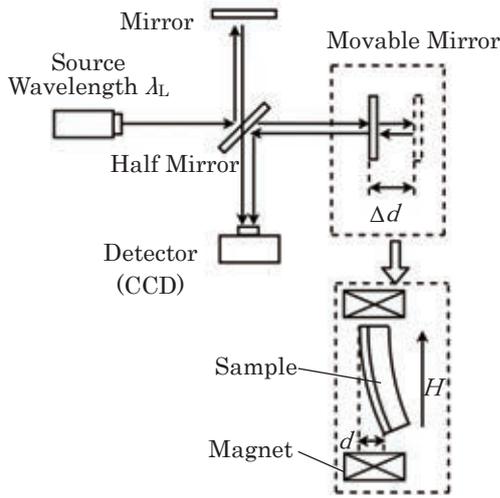


Fig. 1 Schematic picture of Michelson interferometer.

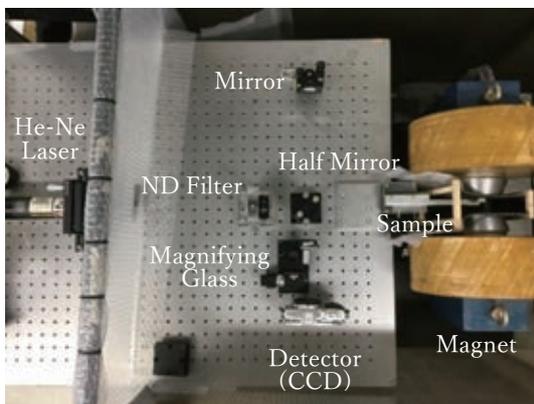


Fig. 2 Picture of the magnetostriction measurement system.

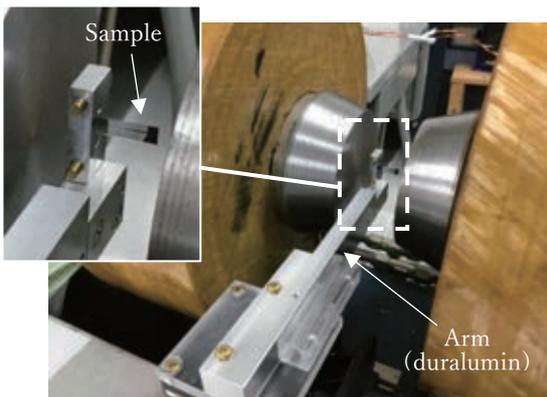


Fig. 3 Picture of sample holder.

光源には波長 $\lambda_L = 633$ [nm] の He-Ne レーザーを用いた。レーザー光の光軸上に、片持ちで固定した試料の自由端がくるように試料ホルダー、電磁石を配置した。試料とレーザーとの間にハーフミラーを設置し、試料に向かう光と直行する方向にレーザー光を分割し、その光軸上に固定ミラーを配置した。レーザー光のコヒーレント長を考慮して、ハーフミラーから固定ミラー、ハーフミラーから試料までの距離が等しくなるように配置している。

固定ミラーからの反射光(参照光)と試料からの反射光(測定光)はハーフミラーで合成されて干渉縞が結像される。この干渉縞の動きを観察するため、スクリーンの代わりに、ミラーレスデジタルカメラ(OLYMPUS E-PL5)を利用した。カメラはレンズを外し、干渉縞が直接撮像素子上に結像するようにした。拡大用対物レンズは、干渉縞を撮像素子上に適切な大きさに拡大するために使用している。また、遮光フィルターは、撮像素子の飽和を防ぎ、素子の最適な検出感度で干渉縞が測定できるように、レーザー光の光量を調整するために使用している。

電磁石の構造上、試料ホルダーを電磁石に直接設置することは困難であった。このため、除振台の端部からポールピース部までジュラルミン製のアームをのぼし、その端部に試料ホルダーを取り付ける構造にした(Fig. 3)。

電磁石は、バイポーラ電源を用いて $-319 \leq H \leq 319$ [kA/m] ($-4.00 \leq H \leq 4.00$ [kOe]) の範囲で磁界を印加することができる。ポールピースの中心近傍 20 mm の領域で磁界が一樣であることから、測定用試料の長さは 20 mm 以下とした。また、印加磁界の大きさは、試料ホルダー近傍に設置したホール素子で測定している。

2.3 測定プロセス

本装置では Python⁴⁾を用いて磁界制御を行うプログラムを作成し、半自動測定をできるようにした。測定では、磁界の変化に対する干渉縞の動きをカメラの動画モードで撮影している。プログラムによってバイポーラ電源の電流を変化させ、そのときの測定時刻とホール素子で測定した磁界の値のログが取得できるようにしてある。撮影した動画は、測定時のログと動画の時間を対応させ、測定磁界ごとのスナップショットとして画像化する。得られた画像はイメージシーケンスとして画像処理ソフト ImageJ⁵⁾へ取り込み、干渉縞(Fig. 4 (a))の y 方向で平均化する事により Fig. 4 (b)のような 1 次元の干渉縞の強度プロファイルを得る。グラフ化した干渉縞強度の半値幅から、ピークを中心位置を見積もり、各測定磁界のピーク位置の移動量を算出した。解析の際には複数本の干渉縞ピーク値の移動量を平均化している。

3. 実験方法

作製した磁歪測定装置の性能評価のため、同一の磁性薄膜試料について従来から知られている光てこ法と本方式の光干渉法で磁歪測定を行い、両者の測定結果を比較した。

比較用の試料には、RF マグネトロンスパッタ装置を用いて、基板厚 0.16 mm の MgO(001)単結晶基板上に作製した膜厚 254 nm の Ni(001)単結晶薄膜試料を準備した。

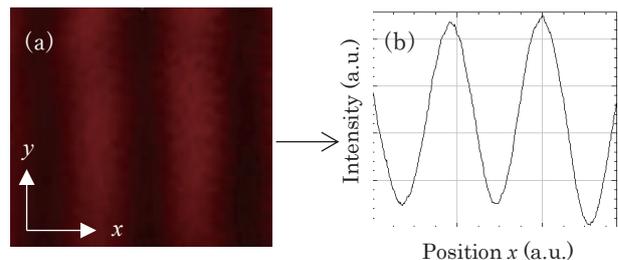


Fig. 4 (a) Picture of interference patterns. (b) Averaged intensity of interference fringes as a function of pattern.

Ni 薄膜と基板は、Ni(001)[100]//MgO(001)[100]の結晶方位関係となっている。試料の形状は、Ni[100]方向を長軸、Ni[010]方向を短軸とする 20 mm × 7 mm の短冊形にした。また、Ni 試料と同様に MgO 基板上に作製した膜厚 61 nm の Fe 単結晶薄膜試料を準備した。試料の結晶方位関係は Fe(001)[110] // MgO(001)[100]である。MgO[100]方向が短冊形試料の長辺方向となるように基板を準備したことから、Fe 試料では短冊形試料の長軸が Fe の[110]方向となっている。この試料に用いた MgO 基板の厚さは 0.18 mm であった。

光てこ法の測定では、一端を固定した片持ちの短冊試料をポールピース間の中心部に配置し、長軸方向に磁界を印加して、たわみを測定した。試料の飽和磁界を考慮し、磁界は $-319 \leq H \leq 319$ [kA/m] ($-4.00 \leq H \leq 4.00$ [kOe]) の範囲で変化させた。光源には He-Ne レーザーを用い、片持ちの試料の固定端からの距離 10 mm の位置にレーザー光が当たるように光軸を調整した。反射光は、試料から $p = 550$ [mm]程離れた位置に配置した撮像素子で検出した。磁歪により試料がたわむと、撮像素子で検出されるレーザースポットの位置が移動する。磁界の変化に伴うレーザースポットの位置の変化を撮像素子で動画撮影し、動画から各測定磁界についてスナップショットを作成した。画像化された反射光を ImageJ へ取り込み、反射光強度をグラフ化し、半値幅からピーク位置を求めた。ゼロ磁界での反射光の位置を原点として、原点と任意の磁界印加時の反射光のピーク位置との距離 s を求めた。得られた変位量から、以下の式³⁾を用いて飽和磁歪 λ_s を算出した。

$$\lambda_s = \frac{E_s t_s s}{18pL t_f E_f (\cos^2 \theta - 1/3)} \quad (2)$$

ここで、 t_s は基板厚、 E_s は基板のヤング率、 t_f は試料薄膜の膜厚、 E_f は試料薄膜のヤング率、 L は試料固定端からレーザースポットまでの距離、 θ は試料と印加磁界のなす角である。今回の測定では $\theta = 0$ [deg.] である。

光干渉磁歪測定装置の測定では、光てこ法と同様に短冊試料の長軸方向が印加磁界方向となるように試料をポールピース間の中心部に配置し、 $-319 \leq H \leq 319$ [kA/m] ($-4.00 \leq H \leq 4.00$ [kOe]) の範囲で磁界を変化させた。片持ち試料の固定端から約 10 mm の位置に He-Ne レーザー光が当たるように配置した。2.3 節で述べた測定プロセスに従って干渉縞移動量からたわみ量 d の変化を求め、無磁界でのピークの位置を基準とし、磁歪定数 λ_s を算出した。 λ_s の算出には以下の式(3)、(4)を用いた³⁾。

$$\lambda_s = \frac{t_s^2 d}{3t_f L^2 \varepsilon} \quad (3)$$

$$\varepsilon = \frac{E_f(1 - \nu_s)}{E_s(1 + \nu_f)} \quad (4)$$

ここで、 ν_s は基板のポアソン比、 ν_f は薄膜のポアソン比である。

4. 実験結果

4.1 Ni 単結晶薄膜試料

Ni(001)単結晶薄膜の[100]方向に磁界を印加して磁歪定数を測定した。光てこ法による磁歪測定では、片持ち試料の固定端から $L = 9.0$ [mm]の位置にレーザー光を当て、撮像素子を $p = 575$ [mm]離れた位置に配置して測定を行った。 $H = 0$ に対して $H = 160 \sim 319$ [kA/m] (2.00 ~ 4.00 kOe) 印加したとき、撮像素子上でレーザースポットが $s = 23 \pm 0.1$ [μm]変位した。式(2)を用いて磁歪定数を算出すると、Ni[100]方向の磁歪定数は $\lambda_{100} = (-4.5 \pm 0.02) \times 10^{-5}$ となった。Ni 単結晶[100]方向のバルクの磁歪定数は $\lambda_{100} = -4.5 \times 10^{-5}$ であり⁷⁾、一致する結果となった。計算に使用した値を Table 1 にまとめておく。

次に光干渉磁歪測定装置での測定結果について述べる。片持ち試料の固定端から $L = 13$ [mm]離れた位置にレーザー光を当て、結像された干渉縞の移動量から得られた試料のたわみ量のグラフを Fig. 5 に示す。 $H = 239$ [kA/m] (3.00 kOe) から磁界を減少させていくと $H = 80.0$ [kA/m] (1.00 kOe) 付近でたわみ量が増え始め、 $H = 0$ [kA/m] (0 kOe) 付近でピークをとる。その後逆方向に磁界を印加していくと、再び試料がたわみはじめ、 $H \sim -160$ [kA/m] (-2.00 kOe) で飽和した。 $H = -239$ [kA/m] (-3.00 kOe) から $H = 239$ [kA/m] (3.00 kOe) まで変化させても同様の変化を示した。この結果から、平均のたわみ量は $d = -120 \pm 3$ [nm] であった。

また、得られたたわみ量のグラフは、正から負に磁界を印加した場合と負から正に磁界を印加した場合でピーク位置がずれ、バタフライ曲線のようにになっている。試料振動型磁束計により測定した試料の保磁力が 6.4 kA/m (80 Oe) であり、保磁力近傍でたわみ量がピーク値をとっている。ヒステリシスが存在するためにたわみ量ピーク値のずれが生じていると推察できる。

Table 1、および Table 2 の各値を用いて式(3)、(4)から λ_{100} を算出すると、 $\lambda_{100} = (-4.6 \pm 0.14) \times 10^{-5}$ となり、光てこ法で得られた結果と極めて良い一致を示した。この結果は、光干渉法を用いた新たな測定装置が、従来から知られている光てこ法と同様に測定できることを示している。

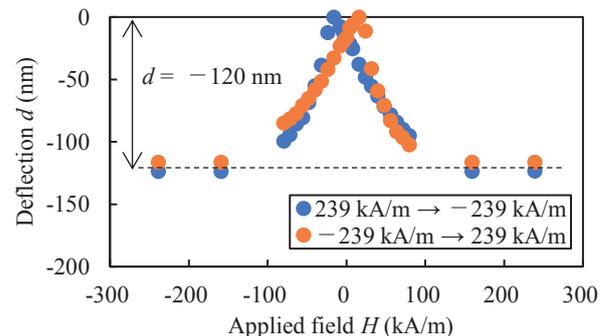


Fig. 5 Variation of deflection for the Ni (001) single crystal thin film specimen on magnetic field

Table 1 Parameter in optical lever method

Film thickness t_f	254 nm
Film Young's module $E_f^{(8)}$	200 GPa
Substrate thickness t_s	.016 mm
Substrate Young's module $E_s^{(9)}$	245 GPa
Displacement s	23 μ m
Laser spot position L	.9.0 mm
Distance from sample to detector p	575 mm

Table 2 Parameter in optical interference method

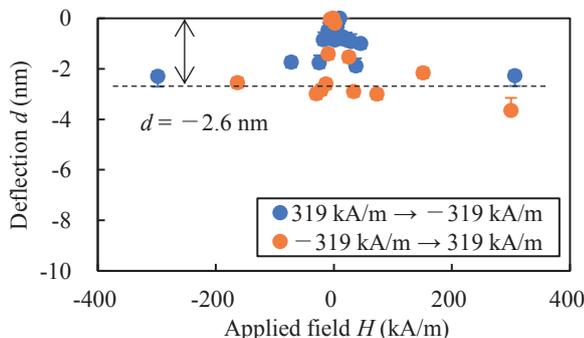
Film Poisson's ratio $\nu_f^{(10)}$	0.31
Substrate Poisson's ratio $\nu_s^{(9)}$	0.19
Laser spot position L	13.0 mm

4.2 Fe 単結晶薄膜試料

たわみ量の小さい試料について両測定法を比較するため前述の Ni 試料に比べて磁歪定数が小さく、膜厚の薄い Fe 単結晶薄膜試料を準備した。この試料では、短冊形の試料の長軸方向が Fe[110]となっている。光てこ法では片持ち試料固定端から $L = 10.6$ [mm]の位置にレーザー光を当て、試料から $p = 540$ [mm]離れた位置に撮像素子を配置して測定を行った。その結果、磁界を $-319 \leq H \leq 319$ [kA/m] ($-4.00 \leq H \leq 4.00$ [kOe])の範囲で変化させても反射光の位置は変化せず、たわみ量を検出できなかった。

光干渉法では試料固定端から $L = 7.9$ [mm]の位置にレーザー光を当て測定を行い、各印加磁界での干渉縞移動量からたわみ量を求めた。印加磁界とたわみ量の関係を Fig. 6 に示す。 $-80.0 \leq H \leq 80.0$ [kA/m] ($-1.00 \leq H \leq 1.00$ kOe)以上の領域で d はほぼ一定となった。測定値のばらつきは、熱ドリフトや測定系内の気流などの影響と考えられる。 $-80.0 \leq H \leq 80.0$ [kA/m] ($-1.00 \leq H \leq 1.00$ kOe)以上の領域 d について平均すると、 $d = 2.6 \pm 0.5$ [nm]となった。得られたたわみ量と Table 3 に示す各値から式(3)、(4)を用いて Fe 単結晶の[110]方向の磁歪定数を算出したところ、 $\lambda_{110} = (-1.4 \pm 0.27) \times 10^{-5}$ となった。バルク Fe 単結晶[110]方向の磁歪定数は $\lambda_{110} = -1.0 \times 10^{-5}$ であることから⁸⁾、本測定で得られた値は文献と近い値となっている。

この結果より、光干渉法では波長のおおよそ 1/100 の試料のたわみが検出でき、光干渉法が光てこ法よりも高分解能な磁歪測定法として利用可能である。

**Fig. 6** Variation of deflection for the Fe(001) single crystal thin film specimen on magnetic field**Table 3** Parameter of Fe single crystal sample

Film thickness t_f	61 nm
Film Young's module $E_f^{(10)}$	208 GPa
Substrate Poisson's ratio $\nu_f^{(10)}$	0.291
Substrate thickness t_s	0.18 mm
Laser spot position L	7.9 mm

5. 結言

マイケルソン干渉計の原理を応用した光干渉磁歪測定装置を新たに作製した。MgO 基板上に成膜した Ni(001)単結晶薄膜(膜厚: 254 nm)について従来法である光てこ法と作製した光干渉法で磁歪測定を行ったところ、光てこ法では $\lambda_{100} = (-4.5 \pm 0.02) \times 10^{-5}$ 、本方式では $\lambda_{100} = (-4.6 \pm 0.14) \times 10^{-5}$ が得られ、きわめて良い一致を示した。この結果は、新方式の磁歪測定装置が従来の光てこ法と同様に測定できることを示している。

Ni 試料より膜厚が薄く、磁歪定数の小さい MgO 基板上に成膜された Fe(001)単結晶薄膜(膜厚: 61 nm)について、両測定法で磁歪測定を行ったところ、光てこ法では試料のたわみ量を検出できなかった。一方、光干渉法では、約 2.6 nm のたわみが検出され、Fe 試料の[110]方向の磁歪定数は $\lambda_{110} = (-1.4 \pm 0.27) \times 10^{-5}$ と算出された。この値は、バルクの Fe 単結晶試料の λ_{110} とほぼ一致し、本測定方式が従来の光てこ法に比べて高感度測定が可能であることがわかった。nm オーダーのたわみ量を測定する場合、熱ドリフトや気流などの外乱がノイズとなることから、さらなる高感度化のために対策が必要である。

謝辞 本研究の一部は科研費基盤研究 B(No.16H0448)の補助を受けている。

References

- 1) Y. Endo, Y. Mitsuzuka, Y. Shimada, and M. Yamaguchi: *J. Appl. Phys.*, **109**, 07D336 (2011).
- 2) Y. Yoshida, S. Yamanaka, T. Suzuki, Y. Takahashi, N. Inaba, F. Kirino, M. Ohtake, and M. Futamoto: *Proceeding of 18th International Symposium on Applied Electromagnetics and Mechanics (ISEM2017)*. Chamonix-Mont Blanc. France. 2017. 9, SP_459-1.
- 3) Y. Shimada, H. Fukunaga, S. Hatta, and K. Yamada: *Jiseizairyoubussei kougakutekitokusei to sokuteihou* (in Japanese), p326, (Kodansha, Tokyo, 1999).
- 4) <https://www.python.org/>
- 5) W. S. Rasband, ImageJ, U. S. National Institutes of Health, Bethesda, Maryland, USA, <http://rsb.info.nih.gov/ij/>, 1997-2012.
- 6) A. C. Tam, *IEEE Trans. Magn.*, **25**, 2629 (1989).
- 7) S. Chikazumi: *Kyojiseitai no butsurei* (in Japanese), p. 117, (Syokabo Tokyo, 1973).
- 8) Y. Tanji, Y. Shirakawa and H. Moriya: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **4**, 417 (1970).
- 9) <http://www.tateho.jp/j/mgo/miracrystar.html>
- 10) G. R. Speich, A. J. Schwoeble and W. C. Leslie: *Met. Trans.*, **3**, 2031 (1972).

Received Oct. 28, 2018; Accepted Dec. 28, 2018

ローラー型永久磁石式磁場源の設計

Design of mangle-type magnetic field source with permanent magnets

佐久間洋志

宇都宮大学大学院工学研究科, 栃木県宇都宮市陽東 7-1-2 (〒321-8585)

H. Sakuma

Graduate School of Engineering, Utsunomiya Univ., 7-1-2 Yoto, Utsunomiya, Tochigi 321-8585, Japan

The effects of magnet size, separation, and rotation pattern on the strength and uniformity of a magnetic field and the torque acting on magnets are discussed regarding the design of a mangle-type magnetic field source. A finite-element simulation revealed that the maximum magnetic field increased as the diameter of the magnets increased or magnet separation decreased. A uniform magnetic field is possible when the rotation pattern of the magnets adopts a circular arrangement of magnetization for zero-field while a high torque acts on the magnets. The simulation results were verified with a prototype, although the maximum field was smaller than the simulation.

Keywords: magnetic field source, permanent magnet, finite-element method, magnetic field distribution, magnetic torque

1. はじめに

磁場源として最も一般的に使われている電磁石は、静磁場の発生には電力を消費しないが、ジュール熱としてエネルギーを捨てている。また、超伝導電磁石はジュール熱を発生しないが、超伝導状態を保持するために多大なエネルギーを消費する。一方、永久磁石は常に周辺に磁場を発生させており、これをうまく利用すれば無電源、冷却不要の磁場源を開発できると考えられる。実際、このような磁場源は古くから提案され、一部製品化されてきた。

くさび型の永久磁石を組み合わせた Halbach シリンダー¹⁾はその内部に強力に均一な磁場を発生させることが可能である。

Iwashita ら²⁾は、軟磁性体を利用した改良型 Halbach シリンダーにおいて、4.45 T の強力な磁場を発生させることに成功している。2つの Halbach シリンダーを組み合わせてシリンダー間の相対角度を変化させると、磁場強度を変化させることも可能である。しかしながら Halbach シリンダーは特殊なくさび型の永久磁石を必要とし、また強力な磁力に逆らって組み立てる必要があり、これらのことが製作コストを増大させる要因となっている。

本研究では、入手しやすい円柱型の永久磁石を用いたローラー型 (mangle type) の磁場発生装置に着目する。ローラー型磁場発生装置は代表的には4または6本の円柱型磁石を用いる。Fig. 1に示すように、磁石は径方向に着磁されており、磁石を回転させることにより任意の方向・強さの磁場を発生させることが可能である。磁石を Fig. 1(a)の方向に設定すると、Halbach シリンダーの磁化配置に等しくなり、上下二つの磁束ループが装置内部に右向きの磁場を発生させる。一方、Fig. 1(b)の場合には内部の空間から磁束が排除され、磁場の強さはゼロに近くなる。

ローラー型磁場発生装置の基礎的な研究は、既にいくつかのグループによりなされている。Bjork ら³⁾は、4本および6本の磁石を使用したローラー型磁場発生装置における磁石の体積と最大磁場の関係を計算している。また、Cugat ら⁴⁾は4本の磁石を使用したローラー型磁場発生装置を試作している。しかしながら、磁石の大きさや配置と発生する磁場の強さ・均一性、磁石を回転させるのに必要なトルクについて系統的に調べた研究は見当たらない。本論文では、このような情報を整理してローラー型磁場発生装置

の開発指針を示すことを目的とする。

2. 磁場源の構造と計算方法

径方向に着磁した6本の円柱型永久磁石を正六角形の頂点に配置したローラー型磁場源を考える。各磁石の角度を Fig. 1(a)のように設定すると、六角形の中心に右方向の最大磁場が生じる。この角度は厳密には正確ではなく、磁石の大きさや磁石間距離に依存するが、ここでは Bjork ら³⁾に従い、この角度における磁束密度を最大磁束密度 B_{max} とする。様々な磁石の大きさや距離、角度において磁石周辺の磁場と磁石に働くトルクを2次元有限要素法

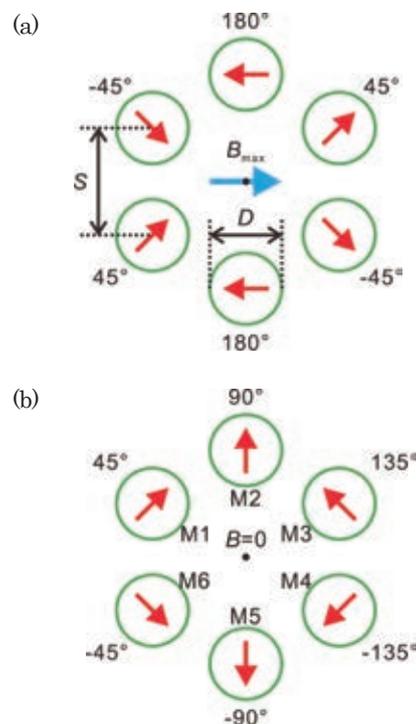


Fig. 1 Mangle-type magnetic field source with six magnets arranged on corners of regular hexagon. Magnetization directions shown in (a) and (b) are those generating high magnetic field and zero field, respectively.

(Field Precision, TriComp) により計算した。なお、磁石の大きさは比較的入手しやすいと考えられる直径 30 mm 以下とした。メッシュサイズは 1 mm とし、相対誤差の目標値は 10^{-6} とした。磁石の磁束密度はネオジウム磁石を想定して 1.1 T とし、減磁特性は理想的な傾き -1 の直線と仮定した。各磁石に働くトルクは、マクスウェルの応力テンソルを用いた面積分^{5),(6)}により求めた。

3. 計算結果

まず、磁石の磁化方向を Fig. 1(a)の最大磁場を発生する角度に固定して、磁石の直径 D と磁石間距離 S を変化させたときの六角形の中心における磁束密度の変化を Fig. 2 に示す。なお、 S は Fig. 1(a)に示したように、磁石中心間の距離である。 S を一定にすると D が大きいほど、また D を一定にすると S が小さいほど磁束密度は大きい。磁石を回転させることを考慮すると、磁石間に最低 2 mm (+磁石の直径) 程の間隔を空けなければならないが、その場合発生可能な磁束密度は最大で 0.65 T 程度である。

次に、任意強度の磁場の発生方法について議論する。プラスの最大からマイナスの最大まで任意強度の磁場を発生させる磁石の回転パターンはゼロ磁場時の磁石角度によって特徴付けられる。このような回転パターンは多数存在するが、ここでは代表的な 3 つのパターンについて検討する。Fig. 3 のパターン 1 は Fig. 1 に示したものと同じであり、磁場をゼロにするために左右から入ってきた磁束を上下に逃がすように磁化方向を設定する。パターン 2, 3 では磁化方向を放射状あるいは渦状にして内部の磁場をゼロにする。プラスの最大磁場からゼロを経てマイナスの最大磁場まで連続的に変化させるには、磁石角度をこれらの間の値に設定すればよいが、パターン 3 に関しては注意が必要である。パターン 3 は上下で非対称な磁化配置であり、縦方向の磁場成分を生じないように角度を設定する必要がある。Fig. 3(c) はこれを考慮して、横方向の磁場が目標の値に、縦方向の磁場がゼロに、後に述べる磁場の均一性が最高になるように磁石角度を最適化した結果である。

各パターンに従って中心の磁場を変化させるとき、磁場の均一性や各磁石に働くトルクも変化する。Fig. 4 は $D = 20$ mm, $S =$

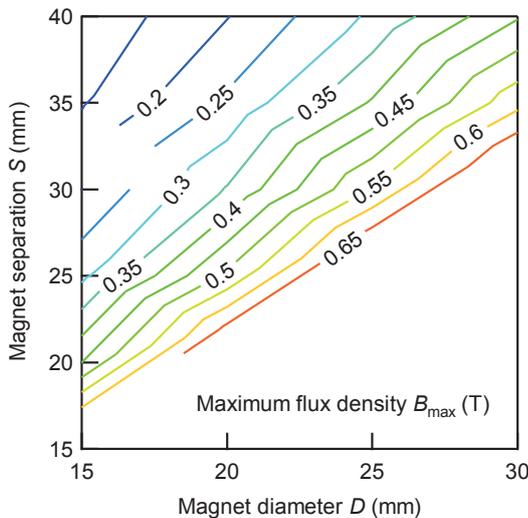


Fig. 2 Magnetic flux density at center as functions of magnet diameter D and magnet separation S .



Fig. 3 Three rotation patterns of magnets.

30 mm, パターン 1 において、磁石の角度に対する中心の磁束密度、中心付近の 1 cm 角の領域における磁束密度の (大きさの) 標準偏差、各磁石に働くトルクの変化を示している。ここで横軸は左上の磁石 M1 (Fig. 1(b)参照) の角度である。中心の磁束密度は単調かつ連続に変化していることがわかる。磁束密度の標準偏差については、最大磁場においては Halbach シリンダーの磁化配置に

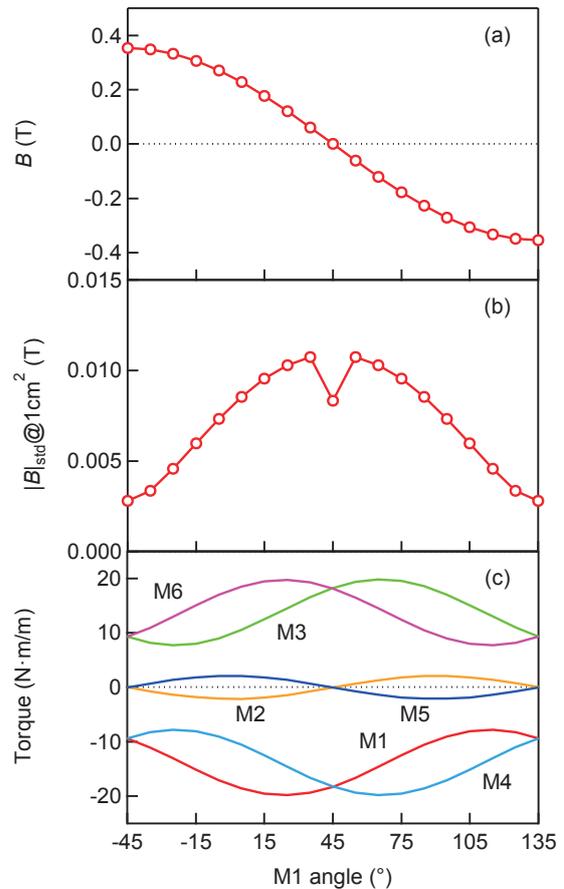


Fig. 4 (a) Magnetic flux density at center. (b) Standard deviation of flux density in 1 cm² region around center. (c) Torque acting on magnets as function of M1 angle for $D = 20$ mm, $S = 30$ mm, and pattern 1.

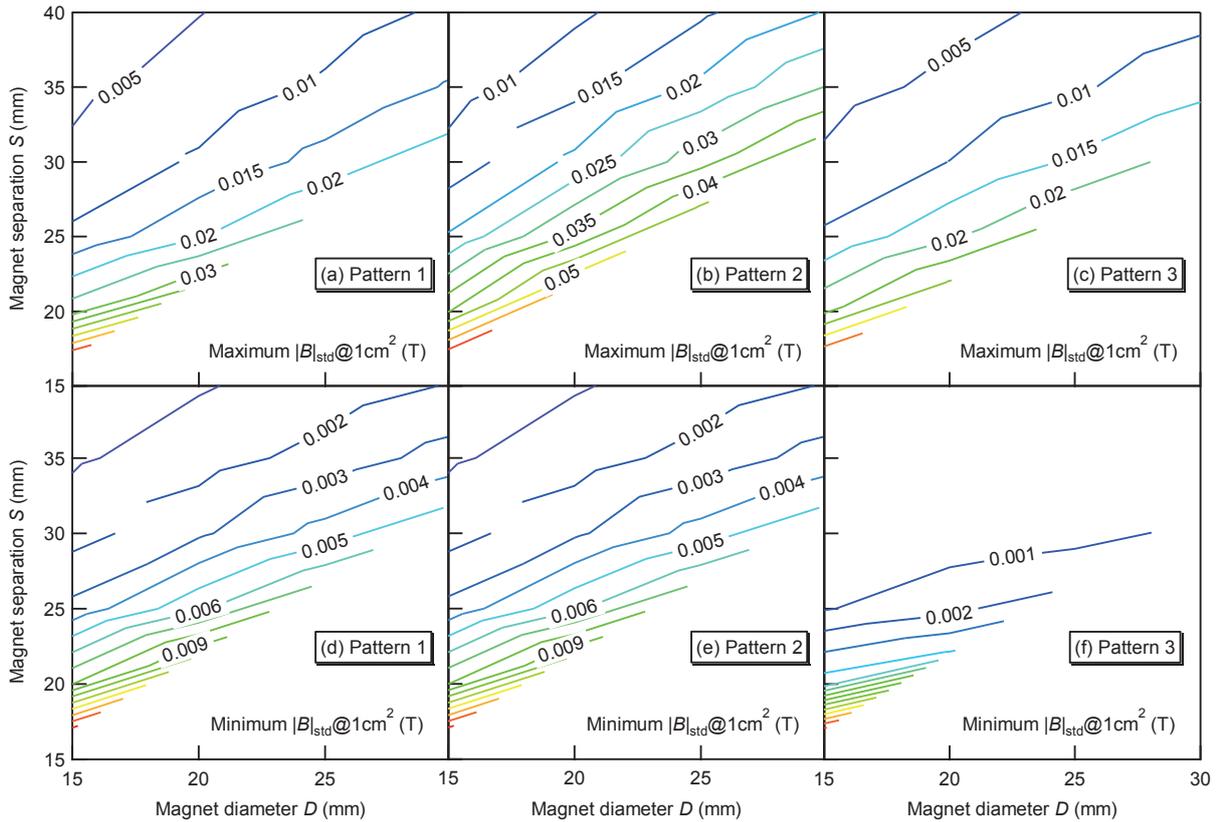


Fig. 5 (a)–(c) Maximum and (d)–(f) minimum standard deviation of magnetic flux density in 1 cm² region around center for patterns 1–3.

近く均一性が高いが、磁場が弱い時には均一性は悪化する。トルクについては、M1とM6、M2とM5、M3とM4はそれぞれ対称に回転するため、トルクは逆符号で同じ大きさとなる。M1、M3、M4、M6に大きなトルクが働くことがわかる。

各パターンにおける磁束密度の標準偏差の最大および最小値、トルクの最大値を D および S の関数としてプロットしてみる。Fig. 5(a)–(c) は磁束密度の標準偏差の最大値、(d)–(f) は最小値である。最大値・最小値とも S を一定にすると D が小さいほど、また D を一定にすると S が大きいほど標準偏差は小さく、磁場の均一性は

高い。最大値に注目すると、パターン1、3はパターン2に比べて均一性が高い。一方、最小値に注目すると、パターン3はゼロ磁場において最も均一性が高い。パターン1および2はHalbachシリンダーに対応する最大磁場において最も標準偏差が小さく、同じ値となっている。以上のことから、磁場の均一性についてはパターン3が最も優れていると言える。

Fig. 6はトルクの最大値である。 S を一定にすると D が小さいほど、また D を一定にすると S が大きいほどトルクは小さく、回転させやすいことがわかる。トルクはパターン1、2、3の順に小

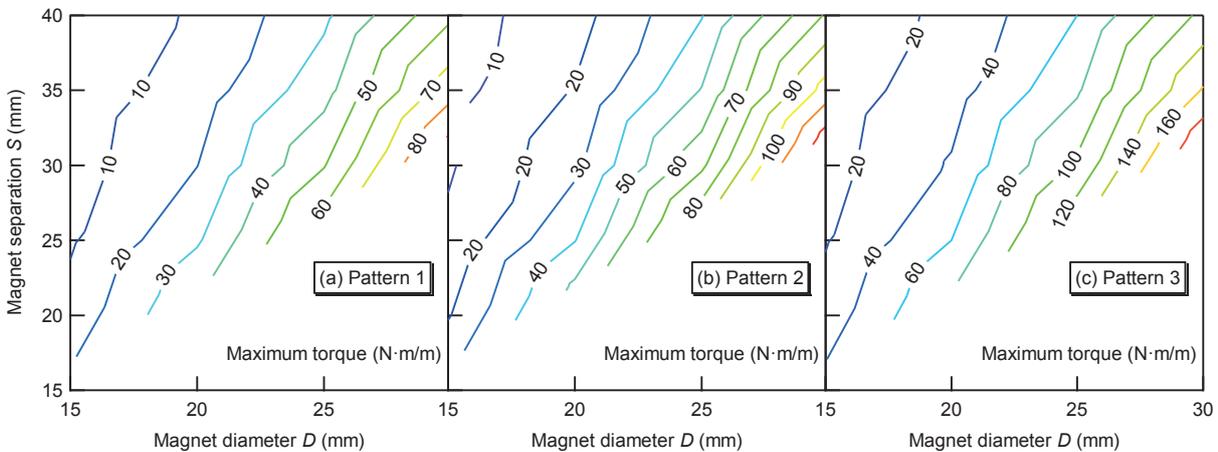


Fig. 6 Maximum torque acting on magnets for patterns 1–3.

さく、装置設計の観点からは好ましいことがわかる。

4. フィージビリティ・スタディと試作

ローラー型磁場発生装置をホール効果や磁気抵抗効果、磁気光学効果等の測定に用いることを想定する。室温測定で試料のみ挿入する場合には直径 10 mm 程度、室温以外の測定でクライオスタット等の装置を挿入する場合は直径 30 mm 程度の空間が必要である。試料空間の直径（ボア）を d とすると、 $d = 2S - D$ の関係があり、これを図示したものが Fig. 7 である。ハッチングの領域は $S < D$ で不可能な領域である。図の D , S の範囲では $d \geq 10$ は自動的に満たされる。一般的なホール効果測定や磁気光学効果測定等において、最大磁束密度は 0.5 T 程度が一つの目安となるだろう。クライオスタットの使用を想定して、Fig. 2 の $B_{max} = 0.5$ T のラインと Fig. 7 の $d = 30$ mm のラインの交点は、およそ $D = 20$ mm, $S = 25$ mm である。このとき、磁石の回転パターンを「1」とすると、磁束密度の標準偏差の最大値は約 0.02 T であり、最大磁束密度 0.5 T と比較すると約 4% である。一般的な電磁石と比較すると大きい、アプリケーションによっては許容されるであろう。また、最大トルクは約 30 N·m/m である。2次元シミュレーションのため、奥行き方向の単位長さあたりのトルクとなっているが、磁石の長さを 10 cm と仮定すると、3 N·m となる。これは小型のギアードモータで回転可能な値である。

実際の設計では、機構部品が入るスペースを確保するため寸法に若干の余裕を持たせる必要がある。Fig. 8 は $B_{max} = 0.5$ T, $d = 30$ mm を目標として、 $D = 25$ mm, $S = 31$ mm として試作した装置の外観である。4 台のステッピングモータを用いて磁石を回転させる (M1 と M6, M3 と M4 は対称に回転するため、ギアを用いてそれぞれ 1 つのモータで回転可能である)。1 つのモータには最大約 3.4 N·m のトルクが働くことになるが、減速比 1/264 の遊星ギアを介することにより回転可能である。また、42 mm 角のステッ

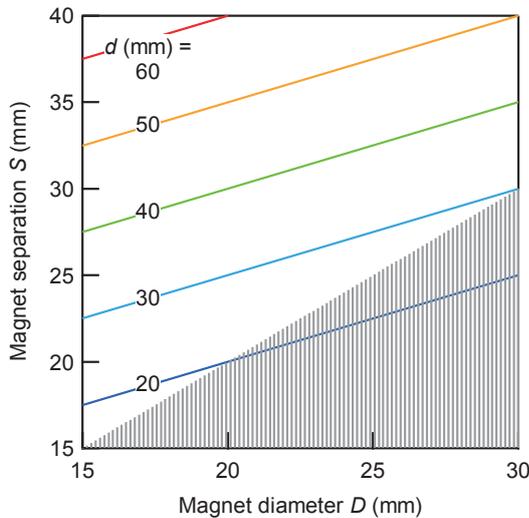


Fig. 7 Bore d as functions of magnet diameter D and magnet separation S . Hatching is invalid region of $S < D$.

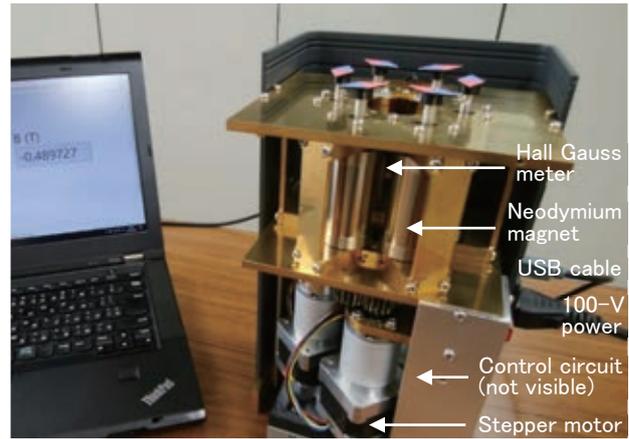


Fig. 8 Prototype of magnetic field source with bore $d = 30$ mm, magnet diameter $D = 25$ mm, and magnet separation $S = 31$ mm.

ピングモータの非通電時の保持力は 0.007 N·m 程度であるので、ギアの効率を 50% とすると、非通電でも磁石の角度を保持できることになる。このようにして磁場を変化させる時以外は通電不要とし、長時間の磁場安定性と省エネルギーを実現している。

Fig. 9 は試作機の中心付近、20×20 mm² の領域における磁束密度の横方向 (Fig. 1(a)の磁束密度の方向) 成分の分布である。1軸ホールガウスメータ (LakeShore 425) を 2軸自動ステージに取り付けて 2次元的に走査することにより測定した。磁石角度は Fig. 1 の最大磁場およびゼロ磁場を発生する角度である。最大磁場、ゼロ磁場どちらにおいても磁束密度の標準偏差はシミュレーションよりも大きく

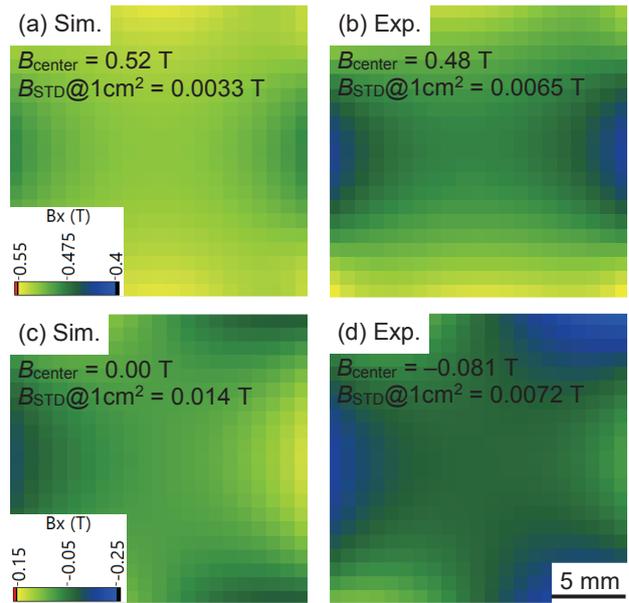


Fig. 9 Distribution of lateral component of magnetic flux density. (a) and (b) are comparison between simulation and experiment for the identical angles of magnets those generate maximum flux density (pattern 1). (c) and (d) are those for zero field.

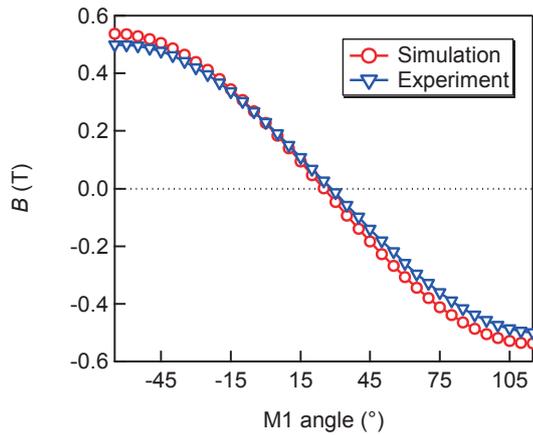


Fig. 10 Simulation and experimental results of magnetic flux density at center as function of M1 angle for modified pattern 1.

なった。この原因については次に示す磁束密度の大きさとともに議論する。

Fig. 10 は中心位置における磁束密度をシミュレーションと比較したものである。このときの磁石回転パターンは修正したパターン1を用いている。第2節で述べたように、最大磁場を発生する磁石角度は厳密には Fig. 1(a)の角度とは異なる。 $D=25\text{ mm}$, $S=31\text{ mm}$ の場合には磁石 M1 の角度は -65° , M2 の角度は 180° , ほかの磁石はそれらに対称な角度である。マイナスの最大磁場を発生する角度は M1 が 65° , M2 は 0° であり、中間の磁場は各磁石の角度を均一に変化させることにより実現する。したがって、ゼロ磁場時の角度は M1 が 25° , M2 が 90° となる。磁場がゼロとなるとき M1 の角度はシミュレーションでは 25° であるが、実験では約 28° であった。この差は、実験において磁石の角度にずれがあることを示している。また、磁束密度の最大値はシミュレーションでは 0.54 T であるのに対して、実験では 0.50 T であった。これも角度ずれが一因ではあるが、そのほかにも磁石自体の磁束密度が小さいこと、磁石の長さが有限であること、各磁石の位置あるいはホールセンサ

の位置が正確でないことなど様々な原因が考えられる。特に磁石の長さが有限であることは、奥行き方向の磁場の発散につながるため、磁束密度の標準偏差が大きいことと一致する。これらの要因については今後詳細に検討する予定である。

5. まとめ

6本の円柱型ネオジウム磁石を用いたローラー型磁場源について、磁石の大きさ・距離と最大磁束密度の関係、3つの磁石回転パターンにおける磁場の均一性と磁石に働くトルクを有限要素法により調べた。その結果、発生可能な最大磁束密度は約 0.65 T であること、磁石回転パターン3は磁場の均一性に優れるが、回転させるためのトルクは大きいことが明らかになった。この知見に基づき、試作機を製作し、 $+0.5\sim-0.5\text{ T}$ の任意の磁束密度を発生可能であることを確認した。

本論文では均一磁場の発生を目的としたが、ローラー型磁場源は不均一磁場の発生にも適している。今後、加速器等に用いられる多重極磁場の発生や、磁場勾配中の磁性体に働く並進力を用いた磁性体の位置制御への利用も期待される。

謝辞 試作機的设计指針について助言いただきました(有)ハヤマ・菊地敏明氏に感謝します。

References

- 1) K. Halbach: *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **NS-26**, 3882 (1979).
- 2) Y. Iwashita and M. Kumada: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **26**, 118 (2002) (in Japanese).
- 3) R. Bjørk, C. R. H. Bahl, A. Smith, and N. Pryds: *J. Magn. Magn. Mater.*, **322**, 3664 (2010).
- 4) O. Cugat, P. Hansson, and J. M. D. Coey: *IEEE Trans. Magn.*, **30**, 4602 (1994).
- 5) S. Humphries: Theory and applications of the Maxwell stress tensor, <https://www.fieldp.com/documents/stresstensor.pdf> (2012).
- 6) S. Humphries: Surface integral expressions for electric-magnetic force and torque, <https://www.fieldp.com/documents/forceandtorque.pdf> (2012).

2018年9月28日受理, 2018年12月30日採録

磁気駆動マイクロポンプを内蔵したノートPC用液冷システムの試作と評価

Fabrication and Testing of Liquid Cooling System for Laptop PC Incorporated with Magnetically Driven Micro-pumps

占部諒・山田大生・本田崇†

九州工業大学大学院工学研究科, 福岡県北九州市戸畑区仙水町 1-1 (〒804-8550)

R. Urabe, H. Yamada, and T. Honda†

Kyushu Institute of Technology, Faculty of Engineering, 1-1 Sensuicho, Tobata-ku, Kitakyushu-shi, Fukuoka 804-8550, Japan

A novel built-in CPU liquid cooling system that dispenses with a cooling fan is proposed for a high-end laptop PCs. This system consists of a liquid cooling jacket adhered to a CPU, a heat radiation flat plate on the back cover of a monitor, and magnetically driven micro-pumps. First, the size of the plate and the flow rate of coolant were determined on the basis of a thermal resistance method. Next, a micro-pump that uses a flapping elastic plate was designed and fabricated to be less than 8 mm in height, which included a drive coil. Last, to increase the load flow rate to the target value, multiple pumps were serially connected. As a result of a heating test, the liquid cooling system equipped with the two micro-pumps in series, successfully dissipated heat up to 50 W.

Key words: Liquid cooling system, magnetic field, micro-pump, permanent magnet, series operation

1. はじめに

ノートPCのCPUの冷却には、通常、内蔵する冷却ファンを利用した強制空冷が用いられているが、長期間の使用で溜まった埃が冷却性能を低下させたり、基板上で短絡を起こしたりする問題があった。また、ハイエンド仕様のCPUでは熱設計電力(Thermal Design Power, TDP)が50 W程度のものであり、冷却ファンの騒音・振動への対策や、大型化した冷却機器(冷却ファン、ヒートパイプ、放熱フィン等)の実装が困難になる問題があった。

これら強制空冷の問題を解決するために、より冷却性能が高い液冷システムの開発が進められ、液冷システムを内蔵したノートPCが市販化された^{1,2)}。このシステムはCPUから発生する熱を、液冷ジャケットを通して冷却液に伝え、モニターの背面から外気に放出するもので、冷却ファンを使わないことから低騒音化も実現している。しかし、対応するCPUのTDPは30 Wまでであり、50 W程度のハイエンドクラスには対応していない。また、冷却液の送液に一般的な遠心ポンプを用いているが、TDPの増加に伴うポンプの大型化も懸念される。

そこで本研究では、CPUのTDPが50 W程度のハイエンドノートPCを想定し、冷却ファンを不要とする液冷システムの設計と評価、ならびに筐体内の空きスペースにコンパクトに収まる小型の磁気駆動型循環ポンプの開発を目的とした。本論文では、はじめに熱抵抗を考慮した液冷システムの熱設計を行い、モニター背面に設置する放熱板の試作と評価を行った。この結果を基に循環ポンプに対する要求条件を求め、続いて、著者らが以前より検討してきた弾性板の羽ばたき運動を利用した磁気駆動マイクロポンプ^{3,4)}の適用を試みた。本ポンプは、吐出圧力が低いものの流量が大きいという特徴を有し、さらに細い筒状や薄型形状で構成できるため省スペース化が期待される。本論文では、ポンプの欠点である吐出圧力の低さをポンプの直列接続によって改善し、これを組み込んだ液冷システムにおいて良好な冷却性能を得ることに成功したので報告する。

2. 液冷システムの熱設計と試作

2.1 基本構成と目標値

Fig. 1に液冷システムの構成の概略を示す。本システムは、CPUを模ったカートリッジヒーター内蔵のヒータープレート(60 mm角、高木製作所 HU-200C)、その上に密着した銅製の薄型液冷ジャケット(60 mm×80 mm×3 mm、高木製作所 PB-100T)、流路を配した放熱板(アルミニウム平板、厚さ1.5 mm)、冷却液を送り出す循環ポンプ、それらを連結するフレキシブルチューブ(内径5 mm)で構成されている。放熱板は筐体の一部としてモニター背面につづら折り状に配置されることを想定し、PC使用中は放熱板が立った状態となる。放熱板の大きさは次節にて決定する。流路は放熱板の内側に構成されるが、モニター側には保護用として放熱板と同じ形状の断熱板(EVAフォーム、厚さ3 mm)を配置する。冷却液には不凍液(濃度60%に水で希釈したナイブライン®、凍結温度-20 °C)を使用するとした。また、冷却ファンはPCの内部及び外部に一切設置しないとす。

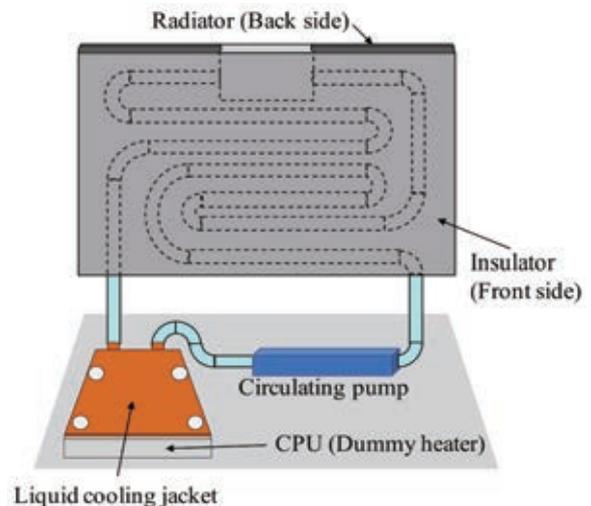


Fig. 1 Configuration of liquid cooling system.

本研究では、TDPが50 WのCPUの冷却を想定していることから、実験ではヒーターの消費電力を50 Wに設定し、CPUのケース表面温度 T_{case} に対応するヒータープレート表面中央部の温度を評価した。目標収束温度は、一般的なCPUに許容される最大動作温度 $T_{case-max}$ が70°C程度であることを考慮し、20%のマージンを見込んで55°C以下とした。また、送液ポンプに関しては、採用するポンプが薄型化できる点を活かし、高さを8 mm以下、消費電力を一般的な内蔵空冷ファン(1~3 W)よりも低い1 W未満とする目標値を設定した。ポンプ流量の目標値については次節の放熱板の設計を受けてから決定することとする。

2.2 熱設計と放熱板の構成

放熱板の熱設計には熱抵抗法を用いた。熱抵抗は熱の伝わりにくさを表す値で、温度差を電圧降下、熱流量を電流に対応させると、伝熱経路を電氣的等価回路で表現できる。

Fig. 2(a)に、液冷システムの熱等価回路を示す。通常、CPUの熱はまずケース表面から基板への熱伝導、内部空気への対流熱伝達、筐体への放射熱伝達等に分かれて伝わり、その後も様々な経路を経ながら外気に放出される。そのため、熱等価回路は複雑な直並列回路で表現される。しかし、本実験では液冷ジャケットの熱抵抗が他の熱抵抗に対し十分小さいと予想されるため、ヒーターの熱がすべて液冷ジャケットによって冷却液に伝わるとして熱等価回路を表現した⁹⁾。同回路図において、電流源 Q はヒーターで発生する熱流量であり、本実験では50 Wである。各熱抵抗は、ヒーターとヒータープレート表面間の熱抵抗 $R_{junction-case}$ 、ヒーター

プレート表面と冷却液間の熱抵抗(液冷ジャケットの熱抵抗) R_{jacket} 、放熱板に関わる熱抵抗 $R_{radiator}$ である。本研究では断熱板側への伝熱も無視できないと考え、解析には断熱板に関わる熱抵抗 $R_{insulator}$ も並列に加えた。なお、 $R_{radiator}$ と $R_{insulator}$ は、放熱板と断熱板のそれぞれの対流熱抵抗、伝導熱抵抗、放射熱抵抗を含んだ合成抵抗である。各部の温度は、ヒーター温度 $T_{junction}$ 、ヒータープレート表面温度 T_{case} 、冷却液温度 T_{liquid} 、周囲温度 $T_{ambient}$ とする。

T_{case} を目標値の55°C、 $T_{ambient}$ を室温23°Cとすれば、 R_{jacket} 、 $R_{radiator}$ 、 $R_{insulator}$ の合成抵抗(液冷システムの熱抵抗)は、

$$R_{jacket} + 1 / ((1 / R_{radiator}) + (1 / R_{insulator})) = (T_{case} - T_{ambient}) / Q = (55 - 23) / 50 = 0.64 [^{\circ}C/W] \quad (1)$$

と表され、この値以下になるように液冷システムを設計しなければならない。ここで、(1)式の熱抵抗のうち、液冷ジャケットの熱抵抗 R_{jacket} の値は冷却液の流量で変化するため実験的に求める必要がある。

液冷ジャケット単体の熱抵抗は、ヒータープレートと液冷ジャケットを密着し、冷却液を市販のギアポンプで循環させたときの T_{case} と冷却液の温度から算出した。測定の結果、冷却液の流量を増加させていくと60 ml/min程度までは熱抵抗が大きく減少するが、それ以上の流量では熱抵抗の減少幅は頭打ちになることがわかった。そこで本研究では、流量70 ml/minにおける実測値 $R_{jacket} = 0.18 [^{\circ}C/W]$ を液冷ジャケットの熱抵抗として採用し、 $R_{radiator}$ と $R_{insulator}$ の合成抵抗を0.46°C/W以下となるように放熱板の設計を行うこととした。

$R_{radiator}$ と $R_{insulator}$ の合成抵抗の算出には、Fig. 2(b)に示すように平板で隔てられた流体間の熱通過の考え方を採用した⁹⁾。すなわち、冷却液と平板(放熱板、断熱板)が接しており、冷却液の熱が平板を通過して外気に伝わっていく。このとき、流体(冷却液、空気)と平板の間では対流伝熱と放射熱伝達で伝熱し、平板の中は熱伝導によって伝熱する。Table 1に、計算で用いた物性値を示す。実験に使用したアルミニウム板の外気側はブラックアルマイトによる黒色加工を施しており、放射率を0.95と見積もった。対流熱伝達率は、水冷と自然対流の場合の一般的な数値を用いた。また、断熱材の熱伝導率は0.03 W/mKとした。

Fig. 3に、50 Wの熱流量を熱通過させるのに要する平板の面積と放熱板と断熱板の合成熱抵抗の関係を示す。合成熱抵抗は面積に反比例し、目標値の0.46°C/W以下となる平板の面積は約0.12 m²以上となった。この結果より、本実験では放熱板の寸法を、縦300 mm、横400 mmと決定した。この大きさはモニターサイズ

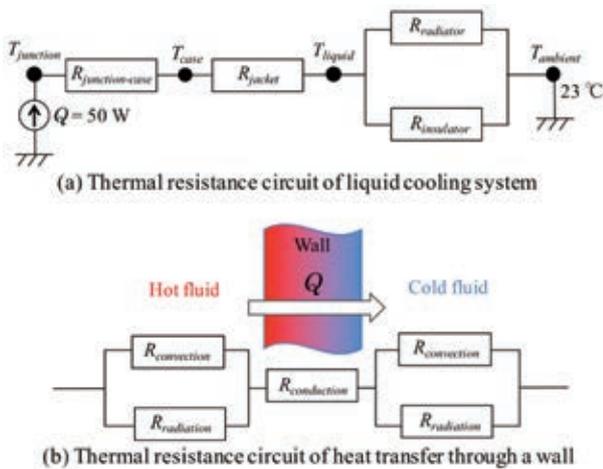


Fig. 2 Thermal resistance circuit for estimating thermal parameters.

Table 1 Thermal properties of radiator and insulator.

	Material	Thickness [mm]	Thermal conductivity [W/(m K)]	Convective heat transfer coefficient [W/(m ² K)]		Emissivity	
				Outside	Inside	Outside	Inside
Radiator	Aluminum	1.5	236	7	1000	0.95	0.7
Insulator	EVA foam	3.0	0.03	7	1000	0.7	0.7

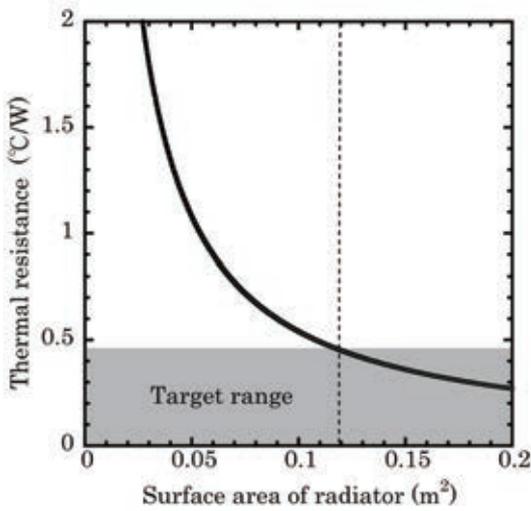


Fig. 3 Relationship between calculated thermal resistance and surface area of radiator.

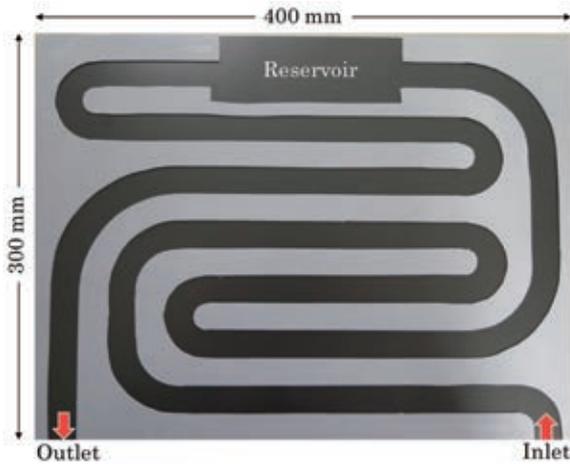


Fig. 4 Photograph of whole flow passage of radiator.

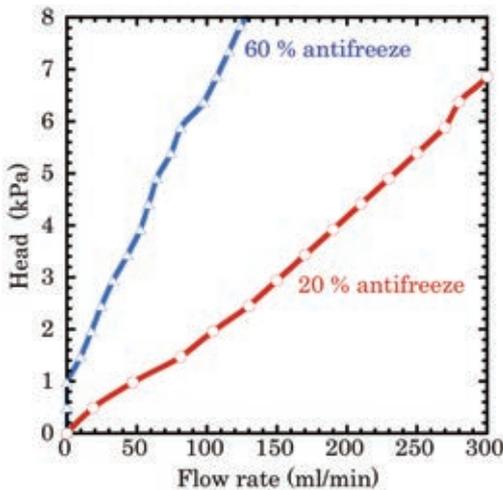


Fig. 5 System resistance curve.

が17インチクラスの比較的大型のノートPCの筐体に相当する。

2.3 放熱板の作製と評価

Fig. 4に、試作した放熱板の流路の写真を示す。前節で計算した

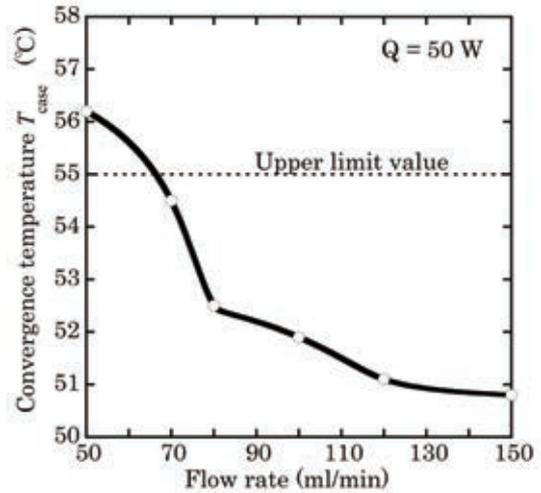


Fig. 6 Relationship between convergence temperature and flow rate.

平板を隔てた熱通過では、冷却液が直接放熱板に触れることが前提であり、配管を丸パイプで構成できない。そこで、厚さ2mmの放熱シリコンゴムの板(300mm×400mm)から図のようなつづら折りの流路をくり抜いて、それを前述の放熱板と断熱板で挟み込むことで流路を構成した。流路の断面形状は幅10mm、高さ2mmの矩形で、流路長は1.9mである。なお、放熱板の上部にはリザーバーを設けている。

Fig. 5に、作製した流路の室温23℃における流量と圧力の関係(抵抗曲線)の実測値を示す。同図には液冷システムで使用する濃度60%の不凍液に加え、濃度20%の不凍液の結果も示した。これは、冷却液に用いた不凍液の粘度の温度依存性が大きいためである。50W放熱時の冷却液の温度は熱等価回路から46-47℃と見積もられる。その温度では濃度60%の不凍液の粘度は室温の約1/2まで低下し、室温の濃度20%の不凍液の粘度と同程度になる。そこで次章では、室温における濃度20%の不凍液の抵抗曲線を50W放熱時の特性と見なし、ポンプの動作点を考察することとした。

続いて、市販のギアポンプを用いて液冷システムに冷却液(濃度60%の不凍液)を送液したときの冷却性能の評価を行った。冷却実験は、PC筐体を模ったアルミニウム製容器の内部に、プリント基板上に載せたヒータープレートと液冷ジャケットを設置し、容器上部をキーボードで蓋をした状態で行った。また、実際のPCの使用を想定し、放熱板を水平から60°立てた。

Fig. 6は、ヒーターの消費電力を50Wとした場合のヒータープレート表面温度 T_{case} の収束温度(1時間後の温度)とポンプ流量の関係である。室温は23-25℃である。流量がおおよそ70ml/min以上において目標収束温度の55℃以下になり、作製した液冷システムが設計した通りの冷却性能を有することが確認された。以上の結果より、循環ポンプの目標流量を液冷システムに組み込んだ状態で70ml/min以上と設定した。

3. マイクロポンプの試作と連結特性

3.1 素子構成と動作原理

前章の結果を受け、本章では冷却液を循環するための磁気駆動

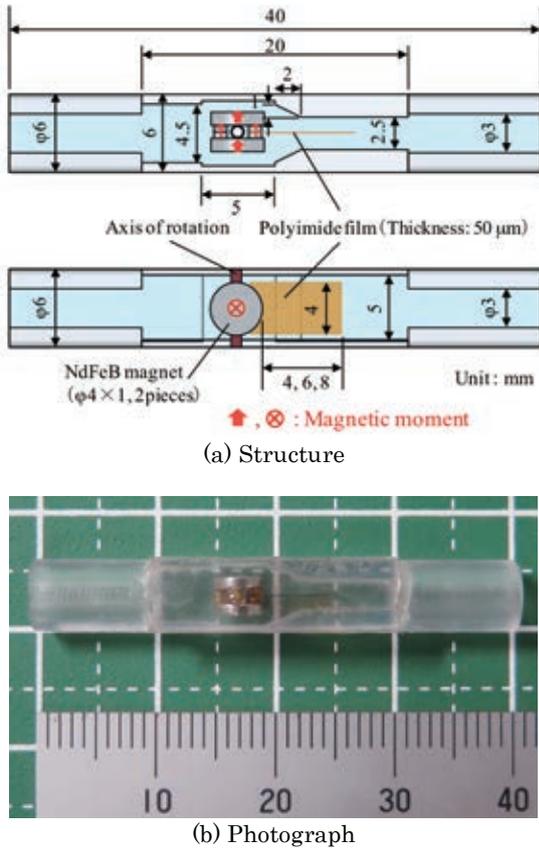


Fig. 7 Micro-pump using flapping elastic plate.

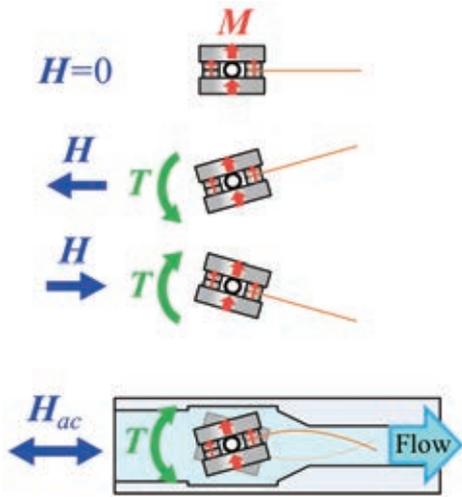


Fig. 8 Actuation principle of micro-pump.

マイクロポンプの開発を行う。本実験で採用するポンプは、永久磁石と弾性板から構成される羽ばたき機構を備え、交流磁界の印加による磁石の回転振動で生じた弾性板の羽ばたき運動を利用する。駆動コイルはケーシング外周に配置する構成のため、ポンプ高さの目標値である 8 mm 以下をコイル高さと考え、今回は高さ 6 mm のケーシング内にポンプを構成した。

Fig. 7(a)と(b)にマイクロポンプの構成と外観写真をそれぞれ示す。羽ばたき機構は、厚さ方向に着磁された 2 個の円盤状 NdFeB

磁石 (φ4 mm × 1 mm) の間に、円柱状 NdFeB 微小磁石 (φ1 mm × 0.5 mm) を 2 個重ねたものを 2 ヶ所に配置し、その一方の微小磁石間に弾性板としてポリイミドフィルムを挟み構成する。フィルム厚さは既報により規格の中から最適な 50 μm 厚を選定した。フィルム形状は長方形で、幅 4 mm、長さ (磁石端からの距離) を 4, 6, 8 mm とした。この羽ばたき機構を、組み合わせ磁石中央部の隙間に差し込んだ回転軸 (ポリイミドチューブ、外径 φ0.8 mm) を介し、塩化ビニル製のケーシング内に取り付けた。ケーシングの内部構造は、高さを 5 mm とし、幅については磁石周囲を 5 mm、フィルムが振動する箇所を 2.5 mm とし、その段差部には図のようにテーパーを設けた。また、両端はフレキシブルチューブと接続するため、外径 6 mm、内径 3 mm の筒状にした。

Fig. 8 に羽ばたき機構の動作原理を示す。ポンプ長手方向に磁界 H を印加すると、組み合わせ磁石の磁気モーメント M には、次式で表される磁気トルク T が作用し、羽ばたき機構は回転軸を中心に回転する。

$$T = M \times H \tag{2}$$

交流磁界を印加すれば磁気トルクは周期的に方向が切り替わり、羽ばたき機構は往復回転運動する。その結果、弾性板が羽ばたきことで流れが誘起されポンプとして機能する。

ポンプの基礎特性の評価は室温 23-25 °C で行い、作動流体には液冷システム駆動時の温度上昇を考慮し、濃度 20% の不凍液を使用した。評価項目は、流量と揚程とした。基礎特性評価時の駆動には、直径 45 mm、長さ 350 mm の試験用ソレノイドコイルを用いた。液冷システム用駆動コイルについては次章で別途作製する。

3.2 ポンプ単体の基礎特性

はじめに、ポリイミドフィルムの長さを決定した。Fig. 9 に 4 kA/m 印加時における無負荷流量の周波数特性を示す。いずれも 70 Hz 以上で 100 ml/min を超え、流量が多いという本ポンプの特徴が現れている。流量が最大となる周波数は、フィルムの曲げ振動の共振周波数に対応しているため、フィルム長が短いほど高くなった。そのときの最大値は、6 mm 時の流量が約 200 ml/min と他の長さに比べ大幅に多く、この結果から本実験ではフィルム長を 6 mm と決定した。

続いて、最大流量が得られる 100 Hz において、磁界強度を変化させて流量と揚程の関係である性能曲線を測定した。なお、本実験ではフィルムの耐久性と後述する駆動コイルの要求条件 (層厚と消費電力) を考慮し、印加する最大磁界強度を 4 kA/m と設定した。Fig. 10 にポンプの性能曲線を示す。同図には 2 章で調べた放熱板の流路の抵抗曲線 (濃度 20% の不凍液) も示しており、性能曲線との交点がポンプの動作点となる。流量、揚程ともに磁界強度が大きいくほど増加するが、動作点を見ると最大磁界強度の 4 kA/m 印加時でも目標値 70 ml/min 以上を満足させることは困難と予想される。本ポンプは無負荷では流量が多いが、吐出圧力が低いため負荷があると流量が急激に低下してしまう。

3.3 直列接続による特性向上

前節の問題を解決するために、ポンプの直列接続による吐出圧力の増加を試みた。連結するポンプの個数は最大 3 個とした。磁石同士の干渉を少なくするため、隣り合うポンプとの磁石間距離を 20 mm とし、磁石の磁化方向はすべてが揃うように接続して評

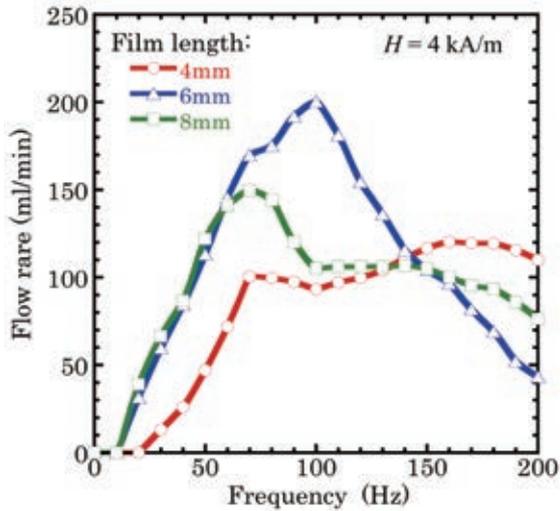


Fig. 9 Frequency dependence of no-load flow rate for three pumps with different film lengths.

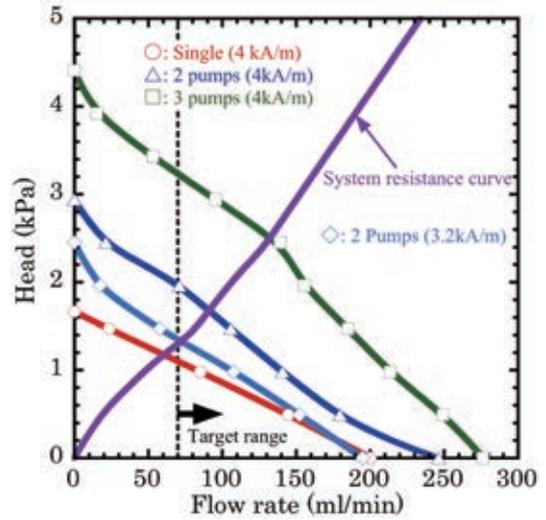


Fig. 11 Pump performance curves for single and serially connected pumps.

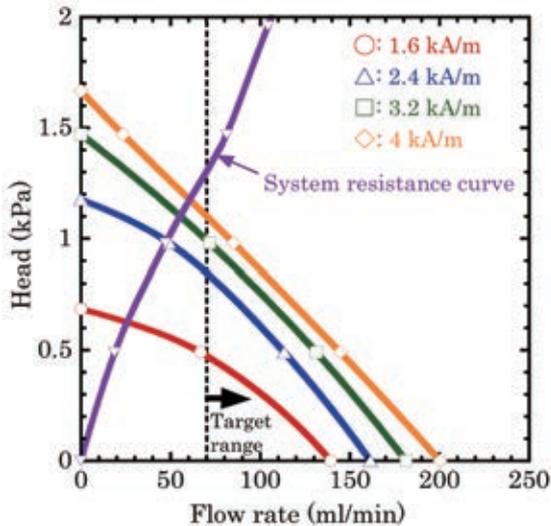


Fig. 10 Pump performance curves for single pump while different magnetic fields were applied.

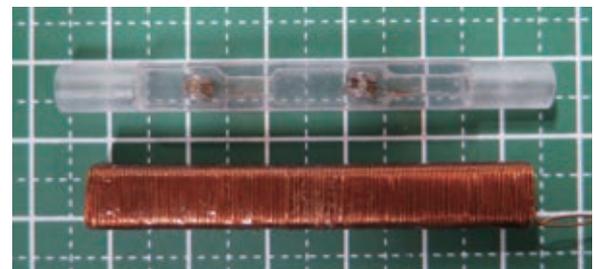


Fig. 12 Photograph of two micro-pumps in series and drive coil.

価を行った。

Fig. 11 に、ポンプを連結した場合の 4 kA/m 印加時における性能曲線を示す。連結することで、流量と揚程とも増加することがわかる。とくに揚程は個数に比例して増加し、直列接続が本ポンプの欠点である吐出圧力の低さを補う手法として有用であることが示された。流路の抵抗曲線とポンプの性能曲線の交点である動作点に着目すると、2 連結以上において目標流量の 70 ml/min 以上を満足できると期待される。ただし、2 連結の 4 kA/m 印加時の流量は目標値に対し余裕がある。そこで、2 連結時の駆動磁界を低減し動作点を目標値に合わせることにした。同図には 2 連結の 3.2 kA/m 印加時の結果も示しており、動作点の流量は目標値とほぼ一致している。

4. 液冷システムの評価

4.1 駆動コイルの作製

前章においてポンプを直列に 2 連結することで目標流量を満足

できる見通しを得た。そこで、2 章で作製した液冷システムに組み込むために、ポンプケーシング外周に密着する駆動用ソレノイドコイルを作製した。ケーシングの外形が幅、高さとも 6 mm で、コイル高さの目標値 8 mm からコイル形状は 1 辺が 8 mm の正方形断面とし、2 つの磁石の中心位置がコイル両端から内側に 15 mm となるようコイル長を 50 mm とした。この形状において、電流密度 6 A/mm² 以下で最大駆動磁界の 4 kA/m を発生する条件のもと、φ0.32 mm のホルマル線を 2 層巻き (総巻数 274 巻) したソレノイドコイルを作製した。Fig. 12 に 2 連結のポンプと駆動用コイルの写真を示す。

4.2 冷却性能の評価

Fig. 13 に、2 連結のポンプを組み込んだ液冷システム全体の写真 (左: カバーを外した状態、右: 測定時のカバーがある状態) を示す。各部の重量は、放熱板の乾燥重量が 1.3 kg、冷却液が 74 g、液冷ジャケットが 200 g、コイルを含めた 2 連結のマイクロポンプが 8.2 g であり、写真の右側のカバーを含めた総重量は約 2.1kg である。評価実験では、2.3 節で説明した実験と同じく実際の PC 筐体内の環境に近い状態とし、ヒータープレートの消費電力を 50 W としたときのヒータープレート表面温度 T_{case} の時間変化を測定した。ポンプの駆動磁界は 3.2 kA/m と 4 kA/m とし、室内温度は 23-25 °C とした。

Fig. 14 に、 T_{case} の時間変化を示す。同図には比較のために、ポ

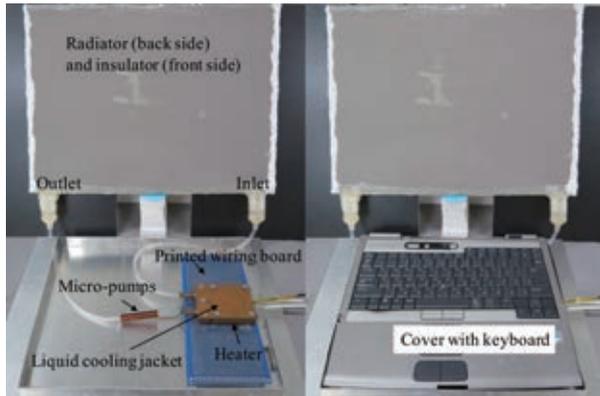


Fig. 13 Photograph of liquid cooling system incorporated with magnetically driven micro-pumps.

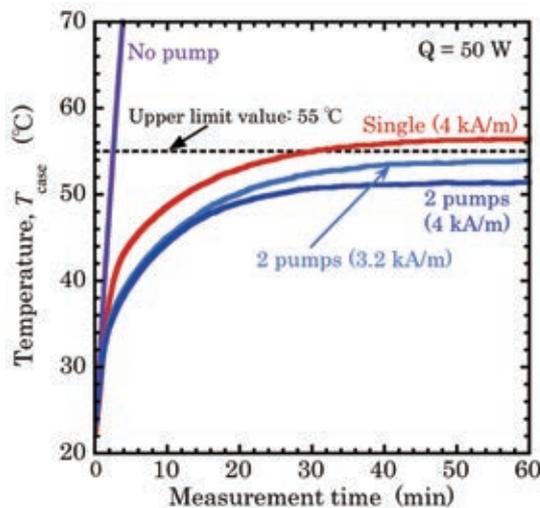


Fig. 14 Variation in temperature T_{case} with time.

ンプが無い場合とポンプ単体（駆動磁界 4 kAm）の場合の結果も示している。ポンプが無い場合は 2 分以内で目標値の 55 °C を超えてしまうが、ポンプを駆動することで温度上昇が大幅に抑えられることがわかる。ただし、Fig.11 で予想された通り、ポンプ単体による収束温度は 56.4 °C となり目標値を超過した。一方、2 連結のポンプでは、3.2 kA/m と 4 kA/m の駆動磁界とともに 55 °C 以下に収束させることに成功した。3.2 kA/m と 4 kA/m でポンプを駆動

するのに要する電力はそれぞれ 0.48 W と 0.71 W であり、消費電力の目標値である 1 W 未満も達成することができた。

5. まとめ

ハイエンドのノート PC に適用可能な液冷システムを実現するために、TDP が 50 W の CPU の発熱をモニター背面から放熱する液冷システムを設計・作製し、その循環ポンプとして弾性板の羽ばたき運動を利用した厚さ 8 mm の磁気駆動マイクロポンプを作製した。以下に得られた結果をまとめる。

- (1) 液冷システムの熱抵抗を解析し、放熱板の大きさを設定するとともに、冷却液が放熱板に直接接触する流路構成を考案した。
- (2) 弾性板の羽ばたき運動を利用した磁気駆動マイクロポンプの基礎特性を評価し、直列に 2 連結することで液冷システムに必要な目標流量を満足することができた。
- (3) 2 連結したマイクロポンプと駆動コイルを組み込んだ液冷システムを評価し、消費電力 50 W 時のヒータープレート表面温度を 55 °C 以下にすることができた。

今後は、冷却性能を維持したまま、放熱板の厚さや流路構造を見直し、モニター部の薄型化・軽量化を図る予定である。また、今回はポンプの細長い形状を考慮して簡便なソレノイドコイルによる駆動を採用したが、さらなる消費電力の低減を目指し鉄心を使った駆動法等も検討する必要がある。

References

- 1) T. Nakagawa, Y. Neko, T. Matsuoka, M. Suzuki, M. Eishima, K. Nagashima, S. Matsushita, K. Arakawa, and K. Saito: US Patent No. US 6791834 B2, 2004.
- 2) Y. Kondo: Proc. Therm. Eng. Div. Conf. 2003 of JSME, (2003), p. 101 (in Japanese).
- 3) T. Honda, J. Yamasaki, and K.I. Arai: *IEEE Trans. Magn.*, **34**, 2102(1998).
- 4) T. Honda, A. Yoshida, and J. Yamasaki: *J. Appl. Electromagn. Mech.*, **25**, 511(2007).
- 5) Y. Cengel, A. Ghajar: *Heat and Mass Transfer: Fundamentals and Applications*, Chap. 15, p. 49 (McGraw-Hill, Columbus, 2010).
- 6) R. Remsburg: *Advanced Thermal Design of Electronic Equipment*, p. 499 (Springer, Boston, 1998).
- 7) K. Kondo, T. Honda, J. Yamasaki, and S. Ishii: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **26**, 612 (2002).

2018年9月3日受理, 2018年10月26日採録

磁性塗布線を用いた近接効果に起因する交流抵抗の低減

Reduction of AC Resistance Caused by Proximity Effect Using Magnetocoated Wire

鳥島健太^{a)}・山本達也^{a)}・卜穎剛^{a)}・水野勉^{a)†}・本田祐樹^{b)}^{a)}信州大学工学部, 長野県長野市若里 4-17-1 (〒380-8553)^{b)}日立金属株式会社, 茨城県日立市川尻町 4-10-1 (〒319-1411)K. Torishima^{a)}, T. Yamamoto^{a)}, Y. Bu^{a)}, T. Mizuno^{a)†}, and Y. Honda^{b)}^{a)} Faculty of Engineering, Shinshu Univ., 4-17-1 Wakasato, Nagano-city, Nagano 380-8553, Japan^{b)} Hitachi Metals, Ltd., 4-10-1 Kawajiri-cho, Hitachi-city, Ibaraki 319-1411, Japan

Miniaturization and high efficiency of electronic device is required. The elements such as inductors and capacitors used in electronic equipment, are working to miniaturization and high efficiency by higher frequency. Along with the higher frequency of the driving frequency, AC resistance increases due to iron loss and copper loss. So, the authors have developed Magnetocoated wire (MCW) that has a magnetic layer around the copper wire to reduce the AC resistance. MCW reduces AC resistance because a magnetic layer leads a magnetic flux. As a result AC resistance in coil using MCW was reduced 32.1% in 1 MHz, 24.7% in 100 kHz, 20 % in 10 kHz.

Key words: magnetitocoated wire, magnetic path control technology, copper wire, AC resistance, proximity effect

1. まえがき

現在, パソコンなどの電子機器の小形化, 軽量化および高効率化が求められている。電子機器に用いられている変圧器やコイル, コンデンサなどの素子は高周波で駆動させることで小形化, 軽量化が図られている¹⁾。

高周波化に伴い, 銅線の抵抗は表皮効果に起因する抵抗および近接効果に起因する抵抗の 2 つの要素によって増加する²⁾⁻³⁾。表皮効果は高周波の電流が銅線に流れる際に電流密度が銅線の表面に偏るため, 抵抗が増加する。そこで, 表皮効果に起因する抵抗を低減するために細い銅線を撚り合わせたリッツ線が用いられる⁴⁾。しかし, リッツ線では, 近接した導体から発生する交流磁界が導体に作用し, 近接効果と呼ばれる交流抵抗が表れる²⁾⁻³⁾。

近接効果に起因する抵抗を低減させるためには, 磁性めっき線が用いられる⁵⁾。磁性めっき線は銅線の外周に鉄薄膜を有している。しかし, 磁性めっき線は鉄薄膜が導体となるために高周波帯において表皮効果を助長する欠点がある⁶⁾。また, 磁性めっき線は湿式めっき法を用いて製造されているため, 製造速度が数 cm/分と遅く生産性が悪い。

そこで, 筆者らは交流抵抗を低減するために磁性塗布線 (Magnetocoated wire 以下, MCW)を開発している。MCW は銅線 (Copper wire 以下, COW)の外周に鱗片状の磁性粉末を塗布した磁性層を有している。磁性層は銅に比べて透磁率が高いため磁性層に交流磁界が誘導される。また, 磁性塗布線は製造速度が速いため磁性めっき線と比較して生産性に優れている。

従来の磁性塗布線の製作方法はスプレー法を採用していたが,

既存の線材の製造工程には組み込めないため, 製造速度の改善が望まれている⁷⁾。そこで筆者らは, 銅線の絶縁被膜の塗布工程において磁性材料を塗布することで, 磁性塗布線の製造速度の大幅な改善を行った。

本論文では, 上記製作方法を用いた磁性塗布線の構造と磁気特性について述べる。また, 磁性塗布線を用いたコイルの抵抗・周波数特性を測定した結果について述べる。

本論文では, 以下の事項について述べる。

- (1) 磁性塗布線の構造と磁気特性
- (2) コイルの抵抗・周波数特性
- (3) コイル抵抗の電流依存特性

2. 磁性塗布線の構造と磁気特性

2.1 磁性塗布線の構造

Fig. 1 に COW と MCW の構造を示した。Fig. 1(a)に示したように, COW は導体径 1.45 mm の銅 (Cu) 線の外周に厚さ 18 μm の絶縁層が設けられている。Fig. 1(b)に磁性層の厚さ $d_t = 6 \mu\text{m}$ の MCW ($d_t = 6 \mu\text{m}$)の構造を示した。MCW ($d_t = 6 \mu\text{m}$)は導体径 1.45 mm の銅 (Cu) 線の外周に厚さ 6 μm の磁性層と厚さ 14 μm の絶縁層を設けている。ナノ結晶軟磁性材料の粉末とポリイミドを混合した磁性コンポジット材を COW に 3 回塗布したあと, ポリイミドを 5 回塗布することで製造した。Fig. 1(c)に, 磁性層の厚さ $d_t = 19 \mu\text{m}$ の MCW ($d_t = 19 \mu\text{m}$)の構造を示した。MCW ($d_t = 19 \mu\text{m}$) は導体径 1.45 mm の銅 (Cu) 線の外周に厚さ 19 μm の磁性層と厚さ 25 μm の絶縁層を設けている。磁性コンポジット材を COW に 6 回塗布したあと, ポリイミドを 10 回塗布することで製作した。MCW は日立金属 (株) で製作した。

連絡先: 水野勉[†], 〒380-8553 長野市若里 4-17-1
信州大学工学部電気電子工学科西棟 水野・卜研究室,
E-mail: mizunot@shinshu-u.ac.jp

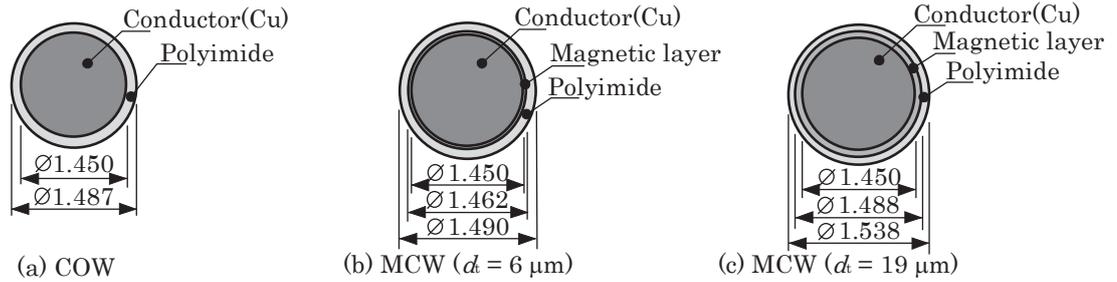


Fig. 1 Structure of wires. (unit: mm)

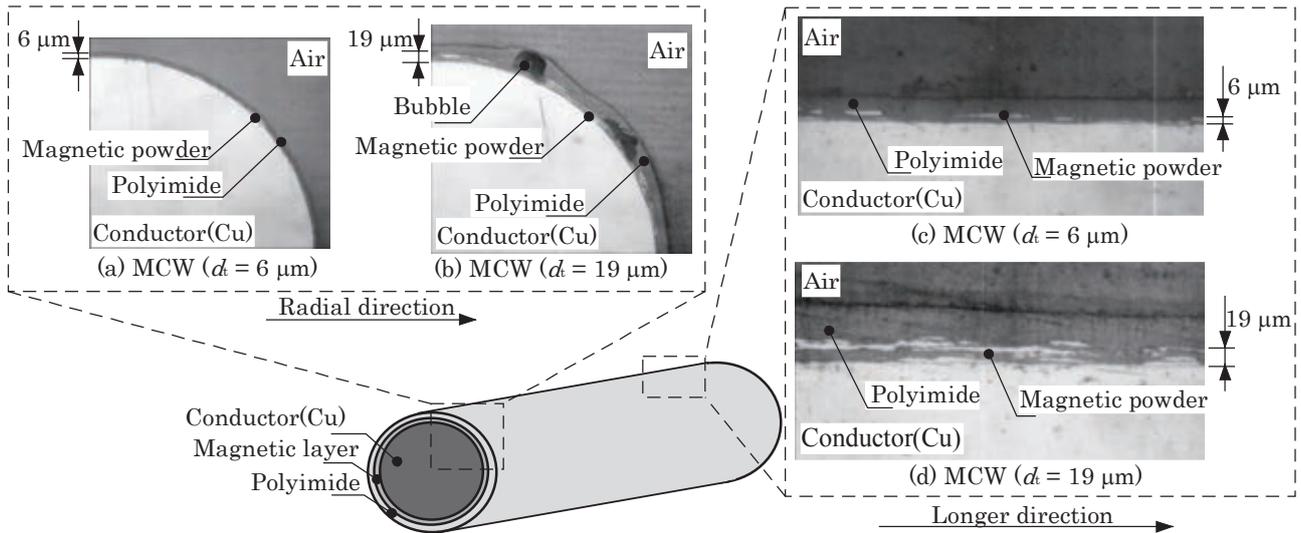
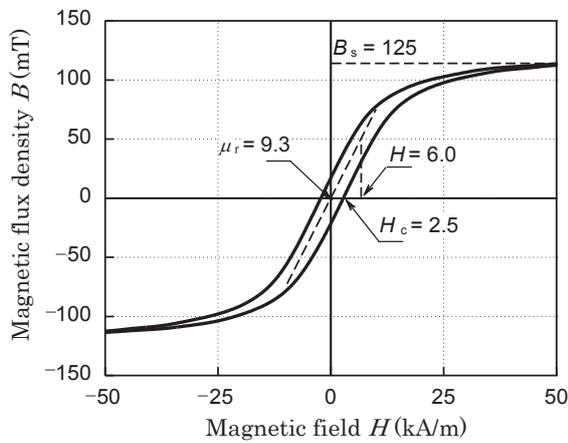
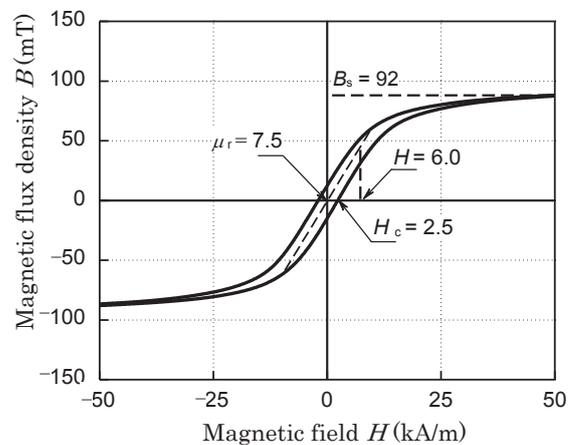


Fig. 2 Distributed situation of the magnetic powder of magnetocoated wire.



(a) MCW ($d = 6 \mu\text{m}$)



(b) MCW ($d = 19 \mu\text{m}$)

Fig. 3 Flux density vs. magnetic field loop of magnetocoated wire.

Fig. 2 に MCW の磁性粉末の分散状況を示した。銅線の外周に磁性層と絶縁層を設けており、磁性層には磁性粉末がまばらに分布している。ポリイミド層内に気泡が入っている部分もある。Fig. 2(a)と Fig.2(b)を比較すると、MCW ($d = 19 \mu\text{m}$)の方が MCW ($d = 6 \mu\text{m}$)よりも磁性粉末の分布がまばらであり、また気泡の混入も確認できる。これは、

磁性コンポジット材の塗布回数が多くなると、磁性粉末の均一な積層が困難になり、同時に気泡が混入しやすくなることに起因する。

2.2 磁性塗布線の B-H 特性

Fig. 3(a)に MCW ($d = 6 \mu\text{m}$) の長手方向の B-H ループを示した。B-H ループの測定には VSM (試料振動型磁力計)

を用いた. Fig. 2 に示したように, 磁性粉はまばらに分布しているが, 磁性層の厚さが一定で密に分布しており反磁界は発生しないものと仮定した. MCW ($d_t = 6 \mu\text{m}$)の飽和磁束密度 B_s は 125 mT であり, 原点付近での比透磁率 μ_r は 9.3, 保磁力 H_c は 2.5 kA/m であった. Fig.3(b)に MCW ($d_t = 19 \mu\text{m}$) の長手方向の B - H ループを示した. MCW ($d_t = 19 \mu\text{m}$) の飽和磁束密度 B_s は 92 mT であり, 原点付近での比透磁率 μ_r は 7.5, 保磁力 H_c は 2.5 kA/m であった. MCW ($d_t = 19 \mu\text{m}$)の飽和磁束密度 B_s および比透磁率 μ_r は MCW ($d_t = 6 \mu\text{m}$)より低下している. これは, MCW ($d_t = 19 \mu\text{m}$)の方が MCW ($d_t = 6 \mu\text{m}$)よりも磁性層を厚く塗布しているため, 気泡が混入していることが原因である.

磁性層に使用したナノ結晶軟磁性材料の薄帯状態での飽和磁束密度は 1.23 T, 比透磁率は 3,000 から 7,000, 保磁力は 0.6 から 2.5 A/m の範囲にある. しかし, ナノ結晶軟磁性材料粉末がまばらに分布しているために磁性塗布線の飽和磁束密度 125 mT, 比透磁率 μ_r は 9.3 と低下したと考えられる. また, ナノ結晶軟磁性材料は薄帯を砕くことで粉末状に加工している. そのため, 残留応力の影響で保磁力が 2.5 kA/m と増加した.

3. コイルの抵抗-周波数特性

3.1 コイルの構造

Fig. 4 にコイルの構造図を示した. 広い周波数範囲での効果を確認するために巻線 $N = 9, 69, 144$ の計 3 つのコイルを製作した. COW と MCW とでは素線間距離が最大 3.4%異なるが, これによる近接効果に起因する抵抗の変化は極めて小さい. また同図中に, コイルの自己共振周波数を記載した.

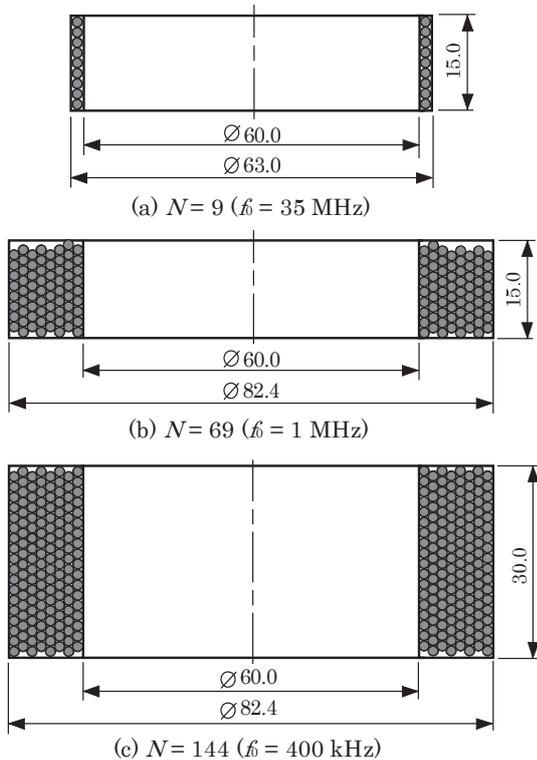


Fig. 4 Structure of coils. (unit: mm)

を記載した. コイルの自己共振周波数 f_0 の影響が十分小さい 1/10 以下の周波数範囲で測定を行った. したがって, $N = 9, 69, 144$ のコイルではそれぞれ 1 MHz, 100kHz, 10 kHz 以下の周波数範囲におけるコイルのインピーダンス特性を測定した.

3.2 コイルの抵抗-周波数特性

コイルのインピーダンス特性はインピーダンスアナライザを用いて測定した. このとき, 測定電流は 4 mA 以下であった.

Fig.5(a)に 9 回巻コイルの抵抗-周波数特性を示した. 周波数 1 MHz における COW, MCW ($d_t = 6 \mu\text{m}$), MCW ($d_t = 19 \mu\text{m}$)の抵抗値は, それぞれ 311 m Ω , 253 m Ω , 211 m Ω となった. COW の抵抗値と比較して, MCW ($d_t = 6 \mu\text{m}$)と MCW ($d_t = 19 \mu\text{m}$)の抵抗値は, それぞれ 18.6%, 32.1%低減した.

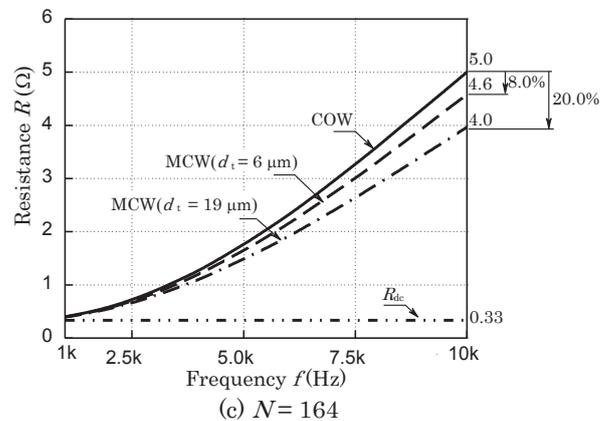
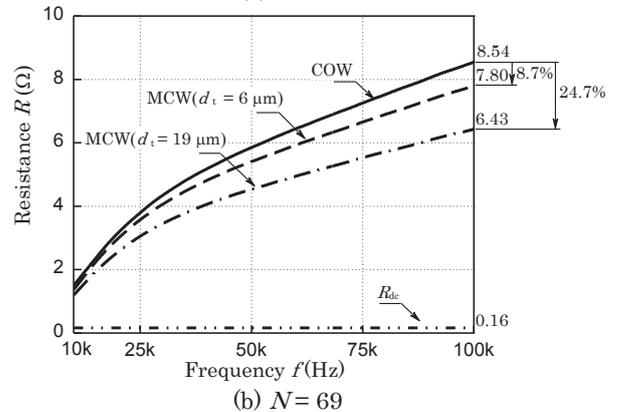
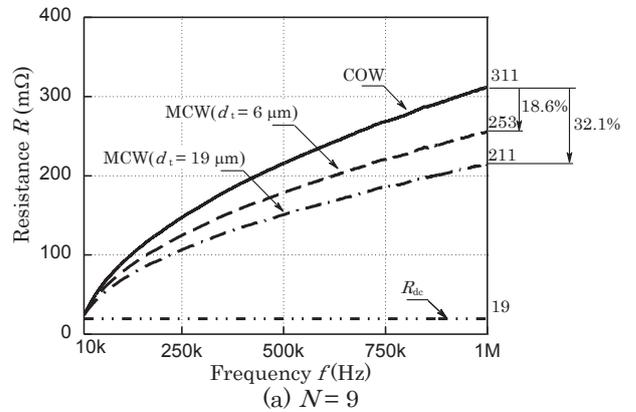


Fig. 5 Resistance vs. Frequency characteristics of coils.

Fig.5(b) に 69 回巻コイルの抵抗-周波数特性を示した。周波数 100 kHz における COW, MCW ($d_t = 6 \mu\text{m}$), MCW ($d_t = 19 \mu\text{m}$) の抵抗値は、それぞれ 8.54 Ω , 7.80 Ω , 6.43 Ω となった。COW の抵抗値と比較して MCW ($d_t = 6 \mu\text{m}$), MCW ($d_t = 19 \mu\text{m}$) の抵抗値は、それぞれ 8.7%, 24.7% 低減した。

Fig.5(c) に 144 回巻コイルの抵抗-周波数特性を示した。周波数 10 kHz における COW, MCW ($d_t = 6 \mu\text{m}$), MCW ($d_t = 19 \mu\text{m}$) の抵抗値は、それぞれ 5.0 Ω , 4.6 Ω , 4.0 Ω となった。COW の抵抗値と比較して、MCW ($d_t = 6 \mu\text{m}$) と MCW ($d_t = 19 \mu\text{m}$) の抵抗値は、それぞれ 8.0 %, 20.0 % 低減した。上述の抵抗値の低減は磁性塗布線の近接効果の抑制に起因する。

Fig.5 において、 $\mu_r = 9.3$ の MCW ($d_t = 6 \mu\text{m}$) よりも、 $\mu_r = 7.5$ の MCW ($d_t = 19 \mu\text{m}$) の抵抗低減効果の方が大きかった。これは、MCW ($d_t = 19 \mu\text{m}$) の方が磁性材料の体積が大きいため、より近接効果が抑制されることに起因する。また、磁性塗布線は 10 kHz から 1 MHz の幅広い周波数範囲において交流抵抗が低減した。

4. コイル抵抗の電流依存性

電気機器における定格電流密度は 3 A/mm² 程度である⁸⁾。Fig.3 に示したように、磁性塗布線の飽和磁束密度は 100 mT 程度と小さい。そこで、磁性塗布線の磁気飽和を確認するためにコイルの抵抗の電流依存性を測定した。

Fig.6 に周波数 $f = 20 \text{ kHz}$, コイル表面温度 $T = 50^\circ\text{C}$ のときの 69 回巻コイルの抵抗-電流特性を示した。コイルに電流を流し、温度上昇する過程で $T = 50^\circ\text{C}$ のときのインピーダンス特性を示した。測定にはサーモショット、インピーダンスアナライザ、および周波数特性分析器を用いた。

$I = 8 \text{ A}$ における COW, MCW ($d_t = 6 \mu\text{m}$), MCW ($d_t = 19 \mu\text{m}$) の抵抗値は、それぞれ 3.19 Ω , 3.04 Ω , 2.76 Ω

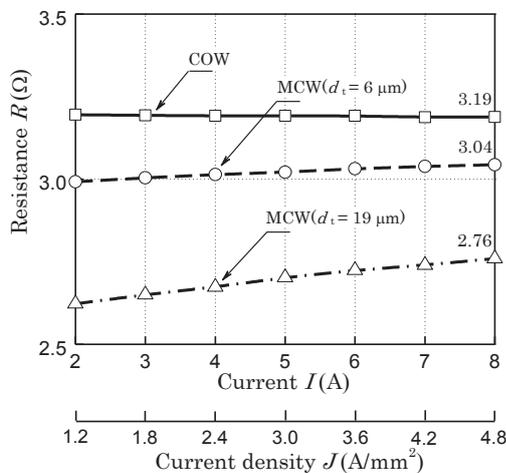


Fig. 6 Resistance vs. Current characteristics of coils. ($N = 69$, $f = 20 \text{ kHz}$, $T = 50^\circ\text{C}$)

となり、COW の抵抗と比較して、MCW はそれぞれ 4.7%, 13.5 % 低減した。電流が大きくなるにしたがって MCW の抵抗は増加した。これは、MCW の磁性層が磁気飽和して、交流磁界を誘導できなくなったことや、ナノ結晶軟磁性材料の鉄損が増加したことに起因する。

5. あとがき

本論文で述べたことは以下の事項である。

(1) 磁性塗布線の構造と磁気特性

MCW ($d_t = 6 \mu\text{m}$) の飽和磁束密度 B_s は 125 mT であり、比透磁率 μ_r は 9.3, 保磁力 H_c は 2.5 kA/m であった。MCW ($d_t = 19 \mu\text{m}$) の飽和磁束密度 B_s は 92 mT であり、比透磁率 μ_r は 7.5, 保磁力 H_c は 2.5 kA/m であった。

(2) コイルの抵抗-周波数特性

1 MHz, 100 kHz, 10 kHz において MCW の抵抗は COW の抵抗値と比較してそれぞれ最大 32.1 %, 24.7 %, 20.0 % 低減した。これは磁性塗布線の近接効果の抑制に起因している。MCW は幅広い周波数範囲で交流抵抗を低減する。

(3) コイル抵抗の電流依存特性

69 回巻コイル、 $I = 8 \text{ A}$, $f = 20 \text{ kHz}$ のとき MCW の抵抗は COW の抵抗と比較して最大 13.5 % 低減した。しかし、MCW は電流が大きくなるにしたがって抵抗が増加した。これは MCW の磁性層が磁気飽和して、交流磁界を誘導できなくなったことや、ナノ結晶軟磁性材料の鉄損が増加したことに起因する。

今後は先行技術である磁性めっき線との電氣的、および磁氣的特性の比較検討を行う。

謝辞 本研究の一部は、科学技術振興機構(JST)スーパークラスタープログラムコアクラスター京都地域の支援を受け実施したものである。

References

- 1) K. Harada: Switchingudengen Handobukku (in Japanese), p. 1 (Nikkankogyo Shimbunsha, Tokyo, 2000).
- 2) T. Mizubo, S. Enoki, T. Hayashi, T. Asahina and H. Shinagawa: *IEEE Trans. Magn.*, **Vol. 43, No.2**, p. 543 (2007).
- 3) J.D. Lavers, V. Bolborici: *IEEE Trans. Magn.*, **Vol. 35, No.5**, p. 3541 (1999).
- 4) Y. Hoshino: Koiru wo Tsukau Hito no Tame no Ohanashi (in Japanese), p. 16 (CQ Shuppan, Japan, 2000).
- 5) T. Mizuno, S. Enoki, T. Asahina, T. Suzuki, M. Noda and H. Shinagawa: *IEEE Trans. Magn.*, **Vol.43, No.6**, p. 2654 (2007).
- 6) T. Mizuno, T. Suzuki, T. Asahina, M. Noda, S. Enoki, H. Shinagawa, S. Uehara and H. Kitazawa: *IEEE Transactions on Fundamentals and Materials*, **Vol.127, No.10**, p. 661 (2014).
- 7) Y. Konno, T. Yamamoto, Y. Chai, T. Dobashi, Y. Bu, T. Mizuno: *IEEE Trans. Magn.*, **Vol.53, No.11**, 8401707 (2017).
- 8) Y. Teramae: LLC Kyoshin ni yoru Teizatsuon Surimu Dengen Gendaisekkeiho (in Japanese), p.108 (CQ Shuppan, Tokyo, 2014).

2018年9月28日受理, 2018年11月5日再受理, 2018年11月19日採録

横方向磁束型スイッチトリラクタンスモータの試作試験と特性改善に関する考察

Prototype Tests of Transverse-Flux-type SR Motor and Characteristics Improvement

小森谷 太希†・伊藤 裕貴・中村 健二

東北大学 大学院工学研究科, 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-11 (〒980-8579)

T. Komoriya †, Y. Ito, and K. Nakamura

Tohoku University, Graduate School of Engineering, 6-6-11 Aoba Aramaki Aoba-ku, Sendai 980-8579, Japan

Switched reluctance (SR) motors have a simple and robust structure, and low cost. However, torque and efficiency of conventional SR motors are lower than those of rare-earth permanent magnet motors. To improve the disadvantages, several kinds of special-structured SR motors, including axial-gap-type and permanent-magnet-assisted-type, have been proposed. This paper investigates a transverse-flux-type SR motor (TFSRM). The TFSRM is designed by using a finite element method (FEM), and the prototype tests are carried out. In addition, further improvement of the performance of TFSRM is discussed based on the prototype tests results.

Key words: Switched reluctance (SR) motor, Transverse-flux-type

1. はじめに

近年, 地球環境保護の観点から様々な分野で省エネルギー化が進められている。特に我が国においては, 総発電電力の約 6 割がモータで消費されている現状から, モータの高効率化が強く求められており¹⁾, 高性能な希土類磁石を用いた永久磁石モータの普及が急速に進んでいる。しかしながら, 希土類磁石に不可欠なネオジウムやジスプロシウムなどのレアアースは, 一部の国や地域に偏在しているため, 常に価格高騰と供給不安にさらされている^{2),3)}。加えて, 新興国の工業化の進展により, レアアースの需要は今後一層増すことが予想される。このような背景から, レアアースが不要でありながら, 高効率・高トルクなモータの開発が望まれている。

スイッチトリラクタンスモータ (Switched Reluctance Motor: SRM) は, 磁気回路の磁氣的突極性に由来するリラクタンストルクを利用したモータである。固定子, 回転子とともに突極構造を有し, 巻線は固定子極のみに集中巻される。回転子は鉄心のみで構成され, 巻線や永久磁石は不要である。したがって, SRM は構造が簡単で堅牢, 安価などの長を有する。一方, SRM のトルクや効率, 希土類磁石モータには及ばないという課題がある。そのため, これまでアキシヤルギャップ型⁴⁾や永久磁石補助型⁵⁾など, 様々な構造的工夫がなされた SRM が提案されている。

そこで筆者らは, 新たに横方向磁束型 (Transverse-Flux-type) に着目した。横方向磁束型モータとは, 回転子の回転方向に対して, 主磁束が横方向に流れるモータの総称である。構造的な特徴は, 固定子, 回転子のどちらか一方, あるいは両方がセグメント構造である場合が多い。また, コイルは極やスロットに施されるのではなく, トロイダル状のコイルを, 固定子または回転子に対して, 外鉄形にな

るように収める場合が多い。したがって, 通常のモータと比べて, 巻線占積率を高くすることができる。また, 場合によっては, 鉄心材料に方向性ケイ素鋼板を採用できるため, 動作磁束密度を高くすることができ, トルクや効率の向上が期待される。このような横方向磁束型モータは, これまでに永久磁石モータへの適用検討例は複数あるが^{8),9)}, SRM への適用例はあまりない。また, いくつかある先行研究を見ても^{10),11)}, 漏れ磁束を防ぐために, 固定子極間に補助的に磁石を使用するなど, 磁石不要という SRM 本来の特長が失われている例が多い。

これに対して本稿では, 磁石不要の横方向磁束型 SRM (Transverse-Flux-type SRM: TFSRM) について^{6),7)}, 3次元有限要素法 (3D-FEM) を用いて, 解析・設計を行うとともに, 実証機の試作・試験を行ったので報告する。さらに, 実証機のトルク劣化の原因について考察するとともに, その改善策について検討を行ったので報告する。

2. TFSRM の基本構成と試作試験結果

2.1 TFSRM の基本構成

Fig. 1 に, 一般的な SRM (Radial-Flux-type SRM: RFSRM) と横方向磁束型 SRM (TFSRM) を θ 軸方向に展開した図を示す。同図(a)より, 一般的な RFSRM の場合, 回転子の回転方向と主磁束の流れる方向は, 同じ θ 軸方向であるのがわかる。一方, 同図(b)の TFSRM の場合, 回転子の回転方向 (θ 軸方向) に対して主磁束が横方向 (z 軸方向) に流れることが了解される。

Fig. 2 に, 本稿での比較に用いた RFSRM と TFSRM の基本構成を示す。本 TFSRM の各相の固定子, 回転子とともに同数のカットコアで構成され, 固定子カットコアの内側にトロイダル状のコイルが収められている。これらを軸方向に 3 段積み重ねることで, 3 相機となる。本 TFSRM の

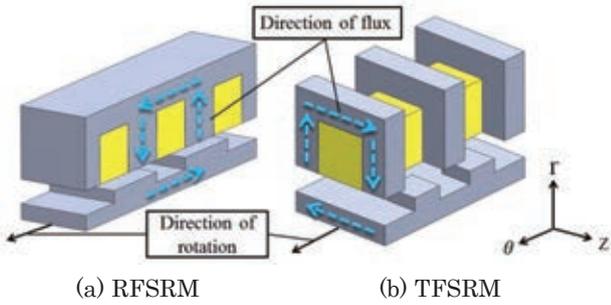


Fig. 1 Comparison of rotational direction and flux direction of RFSRM and TFSRM.

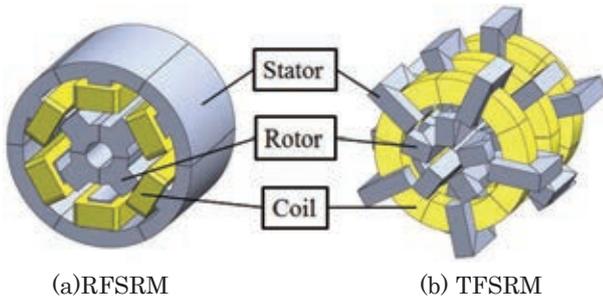


Fig. 2 Basic configuration of RFSRM and TFSRM.

コイルはトロイダル状であることから、一般的な RFSRM と比べて、巻線占積率を高くすることができる。加えて、鉄心材料に方向性ケイ素鋼板を採用できるため、動作磁束密度も高くすることができ、トルクや効率の向上が期待される。

Table 1 に、3D-FEM を用いて設計した TFSRM の諸元を示す⁷⁾。また、Table 2 には、先行研究で試作した比較・検討用の RFSRM の諸元を示す¹²⁾。今回設計した TFSRM は、先に試作した RFSRM と比較を行えるように同体格とし、電源電圧も同一とした。両表を比較すると、TFSRM の

Table 1 Specifications of TFSRM designed by 3D-FEM.

Diameter	96 mm
Axial length	90 mm
Air gap	0.3 mm
Core material	35G115
Winding space factor	50.1 %
Winding turns / phase	75
Stator and rotor pole numbers	5
Source voltage	60 V

Table 2 Specifications of the prototype RFSRM.

Diameter	96 mm
Axial length	90 mm
Air gap	0.2 mm
Core material	35A300
Winding space factor	29.0 %
Winding turns / phase	144
Stator pole numbers	6
Rotor pole numbers	4
Source voltage	60 V

構造的特徴に由来して、TFSRM の巻線占積率は RFSRM の約 1.7 倍になっていることがわかる。一方、ギャップ長については、TFSRM はセグメント構造になることから加工・組立精度を勘案し、RFSRM よりも広くした。

Fig. 3 に、TFSRM の 3D-FEM モデルを示す。軸方向に積まれた各相は互いに独立であると仮定すると、磁界の対称性と周期性から TFSRM の特性は、同図の 1 極分のモデルを用いて算定することができる。

Fig. 4 に、上述のモデルを用いて算定した TFSRM と RFSRM のトルク対速度特性の算定結果を示す。この図を見ると、TFSRM の速度は、RFSRM と同様に、負荷トルクに反比例する形で減少することがわかる。Fig. 5 は電流密度対トルク特性である。この図を見ると、TFSRM のトルクは、RFSRM よりも大きいことがわかる。

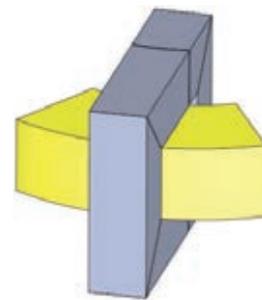


Fig. 3 3D-FEM model of TFSRM for one-pole.

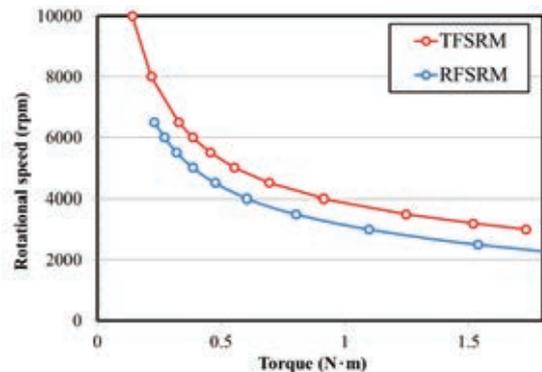


Fig. 4 Calculated torque vs. rotational speed characteristics of RFSRM and TFSRM.

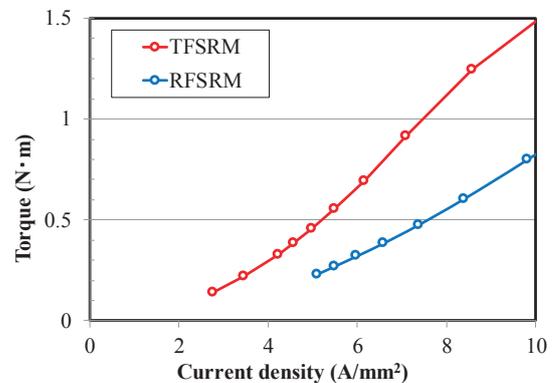


Fig. 5 Calculated current density vs. torque characteristics of RFSRM and TFSRM.

2.2 試作試験の結果

Fig. 6 に、TFSRM の試作機の外観を示す。Table 3 は諸元である。なお、試作上の都合により、鉄心材料を 35G115 から 23G110 に変更したが、Fig. 7 に示す通り、両材料の *B-H* 曲線にほとんど差異はない。また、これ以外は Table 1 に示した諸元と同一である。

Fig. 8 に、試作機のトルク対速度特性を示す。この図より、ほぼ設計通りの性能が得られていることがわかる。一方、Fig. 9 は電流密度対トルク特性である。この図を見ると、軽負荷領域では設計通りの特性であるが、負荷の増大に伴って誤差が拡大していることがわかる。これは、3D-FEM において無視した、カットコアの支持構造や隣接する相同士の磁氣的干渉の影響であると考えられる。次章からは、上記 2 つの影響の定量評価と改善策について検討を行う。

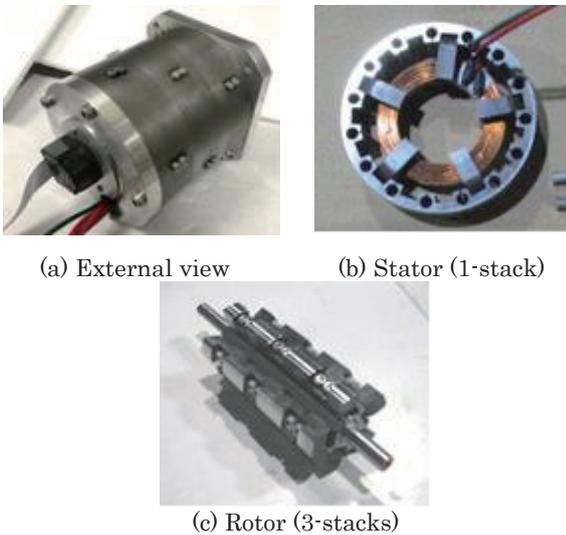


Fig. 6 The prototype TFSRM.

Table 3 Specifications of the prototype TFSRM.

Diameter	96 mm
Axial length	90 mm
Air gap	0.3 mm
Core material	23G110
Winding space factor	50.1 %
Winding turns / phase	75
Stator and rotor pole numbers	5
Source voltage	60 V

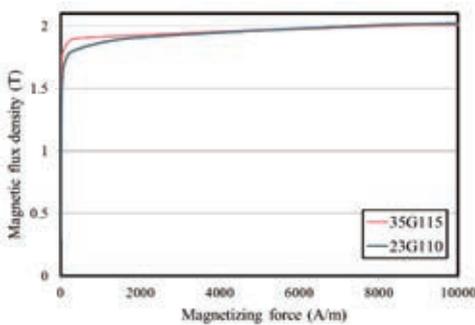


Fig. 7 Magnetization characteristics of 35G115 and 23G110.

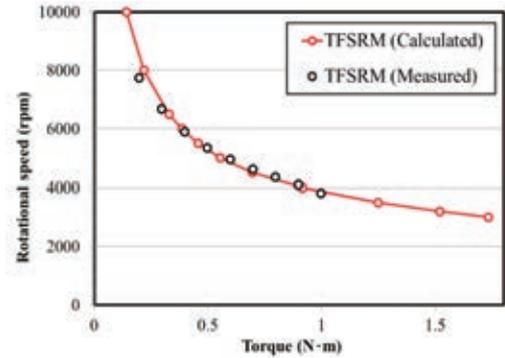


Fig. 8 Torque vs. rotational speed characteristics of the prototype TFSRM.

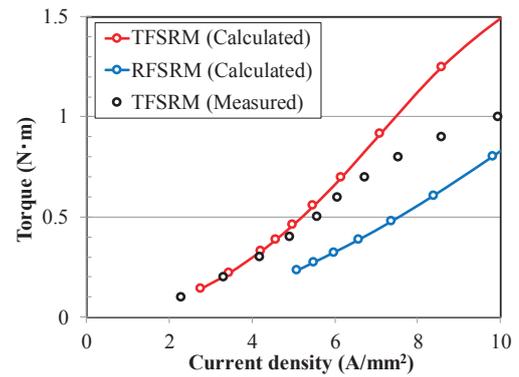


Fig. 9 Current density vs. torque characteristics of the prototype TFSRM.

3. コアの支持構造と相間の磁気干渉の影響評価

3.1 カットコアの支持構造の影響評価

Fig. 2(b)に示したように、TFSRM の固定子および回転子は、複数のカットコアで構成されることから、これらをケースやシャフトに固定する必要がある。本試作機では、Fig. 10 に示すように、各カットコアの背面に穴をあけ、ステンレス製のネジで固定した。本節では、3D-FEM を用いて、ネジ穴の影響について評価する。

Fig. 11 に、ネジ穴の影響を考慮した電流密度対トルク特性を示す。この図を見ると、ネジ穴を考慮することで、高負荷側でトルクの増加が鈍化する傾向が模擬され、実測値との誤差が小さくなったことが了解される。

Fig. 12 に、ネジ穴を考慮した場合と無視した場合の磁束密度コンターを示す。この図から、ネジ穴によってカットコア背面の磁路が狭窄して局所的な磁気飽和が生じており、これがトルク低下の原因の一つになっていることが了解される。

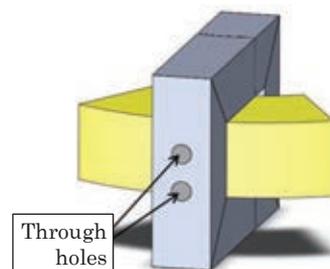


Fig. 10 Through holes for fixing the cut-core.

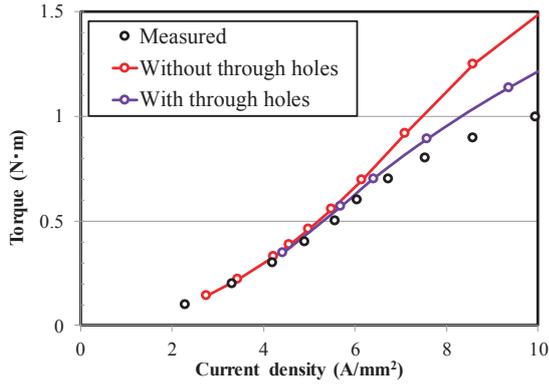


Fig. 11 Current density vs. torque characteristics considering the through holes.

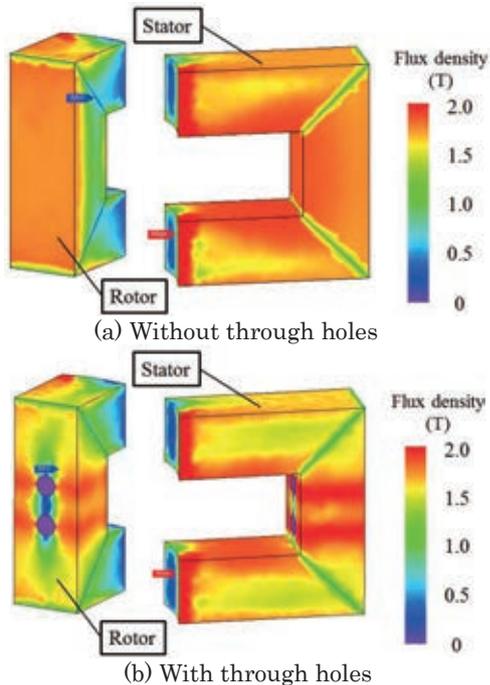


Fig. 12 Comparison of contour diagrams of flux density with and without through holes.

3.2 相間の磁気干渉の影響評価

Fig. 3 に示したように、前章の解析では、TFSRM の軸方向に積まれた各相は互いに独立であると仮定し、1 極分のモデルを用いた。これに対して本節では、相間の磁氣的干渉を考慮するため、Fig. 13 に示すモデルを用いる。なお、同図に示すように、本モデルではカットコア固定用のネジ穴も考慮している。

Fig. 14 に、上述のモデルを用いて算定した、電流密度対トルク特性を示す。この図を見ると、Fig. 10 に示したネジ穴のみを考慮した場合の結果よりも、さらに特性が劣化していることがわかる。すなわち、TFSRM の隣接する相同士の磁氣的干渉は、特性を劣化させる方向に影響を及ぼすことが明らかになった。なお、ネジ穴と相間干渉を考慮した計算値は実測値よりも特性が劣化したが、これはネジ穴部の透磁率は 1 として完全な非磁性体としたことや、各相同士の隙間はまったく無いとしたことなど、いわゆるワース

トケースで解析を行ったためであると考えられる。

Fig. 15 に、2 段目の巻線電流が最大となった時の磁束密度コンターを示す。この図から、2 段目の固定子巻線によって生じた磁束は、上下の隣接する相の特に回転子に流入していることがわかる。これは同図からわかるように、本 TFSRM では各相の回転子は空間的な位相のずれが無く、完全にくっついているためである。このように、本来非励磁区間にある他相に磁束が流入することは、負トルク発生の要因となることから、改善が必要である。

以上より、コアの支持構造と相間の磁気干渉は、どちらもトルクを低下させることが明らかになった。そこで次章では、これらの原因の改善を試みる。

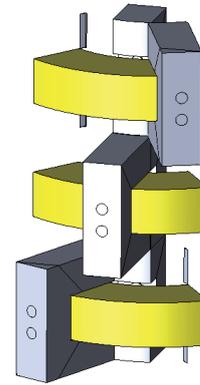


Fig. 13 3D-FEM model of TFSRM considering magnetic interference between adjacent phases.

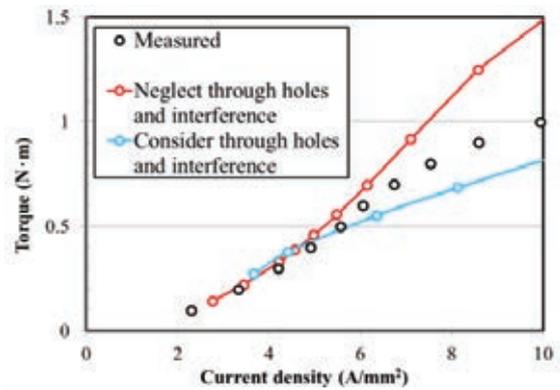


Fig. 14 Torque characteristics considering the through holes and the magnetic interference.

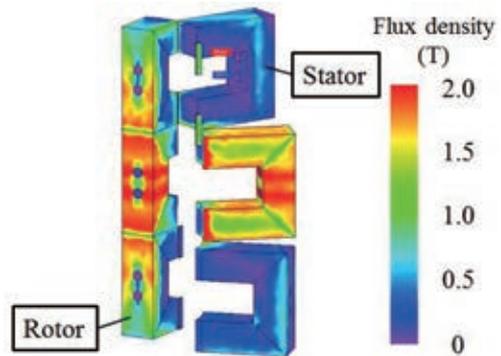


Fig. 15 Contour diagram of flux density when the winding current of the second phase becomes maximum.

4. 試作 TF SRM の性能向上に関する検討

4.1 カットコア背部の局所的磁気飽和の改善に関する検討

Fig. 12 に示したように、カットコアの背部にネジ留め用の穴をあけることは、磁路の狭窄につながり、磁気飽和の原因になる。そこで本節では、固定子コアの背面を広げ、磁路狭窄を緩和し、特性改善を試みる。具体的には、Fig. 16 に示すように、固定子コアを扇形状にすることで、背面の断面積を広げる。なお、回転子コアについては、Fig. 2(b) に示したように、隣接する極同士の間隔が狭く、扇形状に広げることができないため、試作機と同一の形状とした。

Fig. 17 に、固定子コアを扇形にした場合の電流密度対トルク特性の計算値を示す。この図を見ると、固定子コアを扇形状にし、磁路狭窄を緩和したことによって、高負荷側で特性が若干改善されたことがわかる。ただし、Fig. 18 に示すように、扇形にできなかった回転子コアで局所的な磁気飽和が生じたため、改善効果はあまり大きくない。今後は、極数を減らして回転子コアも扇形にするなど、さらなる改善が必要である。

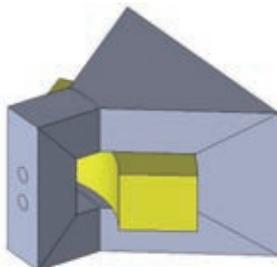


Fig. 16 TF SRM with fan-shape stator core.

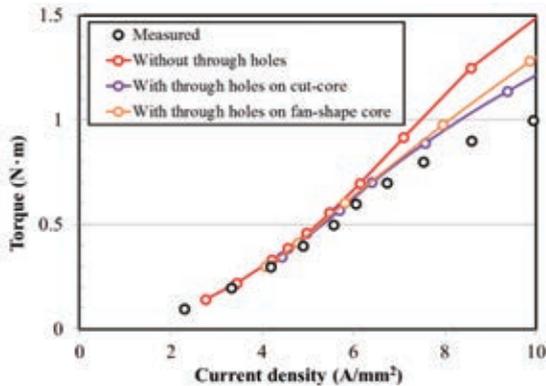


Fig. 17 Torque characteristics of the TF SRM with fan-shape stator core.

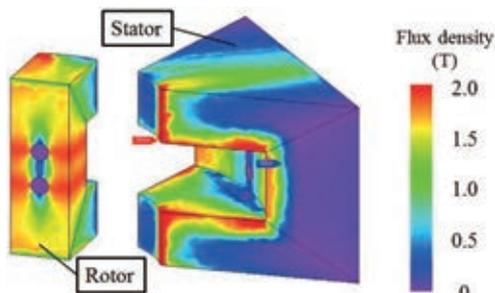


Fig. 18 Contour diagram of flux density of TF SRM with fan-shape stator core.

4.2 相間の磁気干渉の改善に関する検討

Fig. 15 に示したように、本 TF SRM は、特に各相の回転子は空間的な位相のずれが無く、完全にくっついているため、隣接する相の磁束の影響を受けやすい。そこで本節では、各相を物理的に離すことで、相間干渉がどの程度低減可能か検討を行った。

Fig. 19 に、各相の相間距離を 1 mm、3 mm、5 mm としたときの図を示す。なお、この検討では、相間を離れた分だけ、モータの軸長は長くなる。なお、本検討では同図からわかるように、ネジ留め用の穴についても考慮している。

Fig. 20 に、上述のモデルを用いて算定した電流密度対トルク特性を示す。この図を見ると、相間を広げることで、トルクが改善されること、特に 0 mm から 1 mm にギャップを広げた際に、最も大きく改善されることがわかる。

Fig. 21 に、種々相間距離を変えたときの磁束密度コンタを示す。Fig. 15 と比較すると、相間にギャップを設ける

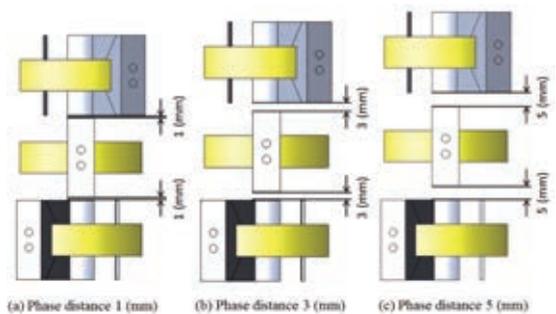


Fig. 19 TF SRMs with various distances between the adjacent phases.

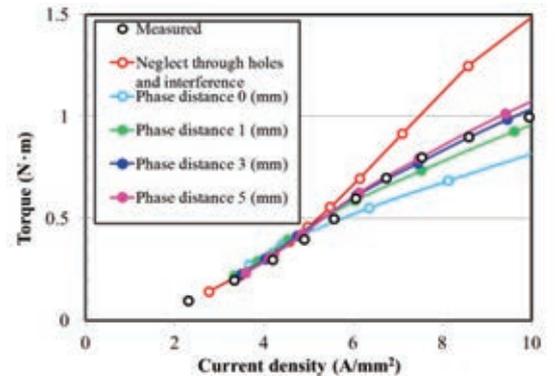


Fig. 20 Torque characteristics of the TF SRMs with various distance between the adjacent phases.

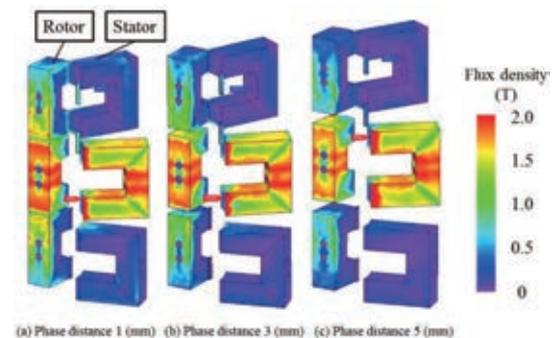


Fig. 21 Contour diagram of flux density in various distance between the adjacent phases.

ことで、隣接相に流れ込む磁束が減っていることが了解される。このことから、TF SRM 製作時には、僅かでも相間にギャップを設けることが有効であると言える。

5. まとめ

以上、本稿では 3D-FEM を用いて設計した、横方向磁束型 SRM (TF SRM) の試作試験結果について述べた。また、実証機のトルク劣化の原因について考察するとともに、その改善策について検討を行った。

その結果、試作した TF SRM はおおよそ設計通りの性能を有するが、高負荷側でトルクの低下が認められた。3D-FEM を用いて、その原因を調査したところ、カットコア固定用にあけたネジ穴に起因する局所的磁気飽和と、相間の磁気干渉が主たる要因であることが明らかになった。

次いで、ネジ穴による磁気飽和を緩和するため、固定子コアを扇形状に変更した場合の特性について、3D-FEM を用いて算定した結果、高負荷側でトルクが改善する結果が得られた。また、相間干渉については、隣接する相間に 1～5 mm のギャップを設けて検討したところ、1mm 程度の僅かなギャップでも特性が大きく改善されることが明らかになった。

今後は、さらなる特性改善に関する検討を行うとともに、改良機の試作と実証実験を行う予定である。

References

- 1) The Japan Electrical Manufacturers' association, "Top Runner Motor" (2015) (in Japanese).
- 2) Natural Resources and Energy Agency, "Rare Metal/ Rare Earth (Recycle Yusen 5 Koshu) no Genjo" (2014) (in Japanese).
- 3) T. Okabe and K. Nose, "Rare Metal no Kyokyu ya Juyo ni Kansuru Kongo no Tenbo", *Metal, Materials Science & Technology* (2013) (in Japanese).
- 4) K. Takase, H. Goto, and O. Ichinokura, *ICEMS 2016*, LS6B2 (2016).
- 5) K. Nakamura, K. Murota, and O. Ichinokura, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **31**, 123 (2007) (in Japanese).
- 6) Y. Ito, H. Goto, and O. Ichinokura, *The Papers of Technical Meeting on Magnetism, IEE Japan*, MAG-16-145 (2016) (in Japanese).
- 7) Y. Ito and K. Nakamura, *The Papers of Technical Meeting on Magnetism, IEE Japan*, MAG-17-135 (2017) (in Japanese).
- 8) Y. Ueda, *Toshiba Review*, **68**, 56 (2013) (in Japanese).
- 9) J. Jung, S. Ulbrich, and W. Hofmann, *Proceedings of ICEM 2014*, pp. 1096-1102 (2014).
- 10) Hongquan Yang, Chenglin Gu, *Proceedings of ICEMS 2008*, pp. 3414-3416 (2008).
- 11) Sui-chun Qu, Hua-bo Li, Xiao-guang Ma, *Proceedings of ICEMS 2008*, pp. 3367-3369 (2008).
- 12) W. Nakamura, S. Suyama, T. Watanabe, H.J. Guo, and O. Ichinokura, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **25**, 1207 (2001) (in Japanese).

2018年10月08日受理, 2019年01月19日採録

リラクタンスネットワーク解析に基づく 巻線界磁型クローポールモータの回転子表面の渦電流損算定

Calculation of Eddy Current Loss on Rotor Surface of Field-Winding type Claw-Pole Motor based on Reluctance Network Analysis

市川 優太^{a)†}・中村 健二^{a)}

^{a)}東北大学 大学院工学研究科, 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-11 (〒980-8579)

Y. Ichikawa^{a)†}, K. Nakamura^{a)}

^{a)} Tohoku University, Graduate School of Engineering, 6-6-11 Aoba Aramaki, Aoba-ku, Sendai, Miyagi 980-8579, Japan

A field-winding type claw-pole motor has a three-dimensional complicated structure. In addition, its characteristics depend on not only an armature current but also a field-current. Therefore, to estimate the characteristics of the field-winding type claw-pole motor, three-dimensional electromagnetic field analysis combined with its drive circuit is required. In a previous paper, three-dimensional reluctance network analysis (RNA) model of the claw-pole motor was proposed and the validity of the proposed model is proved by comparing with the results of torque characteristics obtained from finite element method (FEM). This paper presents a method for calculating eddy current loss on the rotor surface of the claw-pole motor based on RNA.

Keywords: Reluctance network analysis (RNA), field-winding type claw-pole motor, eddy current loss

1. はじめに

近年, モータ構造を 3 次元化することで, 鉄心と巻線の空間利用率を高め, トルクを向上させる手法がいくつか提案されている^{1),2)}. その中の一つである界磁巻線型クローポールモータは, 電機子側はいわゆる一般的な分布巻の同期機と同じ構造を有するが, 界磁側は爪状の極をかみ合わせた特殊な構造の回転子鉄心の中に, 同心円状に巻いた界磁巻線を収めた構造を有するため, 界磁巻線の占積率を高めることができる. また, 界磁電流を調整することで, 一般的な永久磁石界磁型のモータよりも, 容易に広範な速度制御が可能になる. しかしながら, クローポールモータの特性算定には, 3次元電磁界解析が必須であること, また電機子電流に加え, 界磁電流も制御パラメータとなるため, 諸特性を算定するためには, 駆動回路も含めた高速・高精度な解析が必要不可欠である.

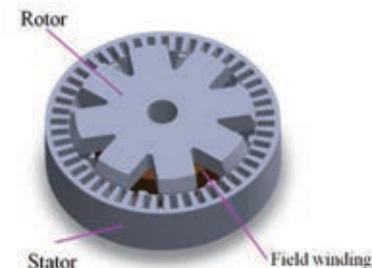
これに対して筆者らは, トランスやモータなどの解析対象を複数の要素に分割し, 分割した要素を磁気抵抗に置き換えることで, 対象全体を一つの磁気抵抗回路網で表して解析する, リラクタンスネットワーク解析 (Reluctance Network Analysis : RNA) を提案している³⁾. RNA は, モデルが簡便で計算が速く, 外部の電気回路や運動系との連成も容易などの特長を有する. これまで, RNA による各種モータの特性算定手法について様々な検討を行い, その有用性を明らかにしてきた^{3)・7)}. また, 本手法を巻線界磁型クローポールモータにも適用し, 高い精度でトルクを算定可能であることを明らかにした⁸⁾.

本論文では, トルク特性と同様に, モータの重要な性能評価指標の一つである効率の定量的算定を目的として, ク

ローポールモータの回転子表面で発生する渦電流損の算定手法について検討を行った. 本クローポールモータの回転子は炭素鋼のバルク体であることから, 回転子表面に生じる渦電流損は無視できないと考えられる. 本論文では, まず本モータの RNA モデルの導出方法について述べる. 次に, 回転子表面の渦電流損を計算するため, 渦電流による反作用界磁まで考慮可能な電気 - 磁気連成モデルを導出するとともに, 3次元有限要素法 (3D-FEM) との比較・検討を行ったので報告する.

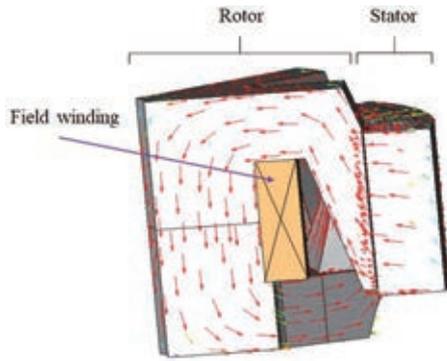
2. クローポールモータの基本構成

Fig. 1 に, 考察対象としたクローポールモータを示す. 固定子は 48 スロットであり, 固定子鉄心の材質は厚さ 0.35 mm の無方向性ケイ素鋼板である. 回転子は, 上下 8 つずつの爪状の極がかみ合わさっており, 内部に同心円状に巻

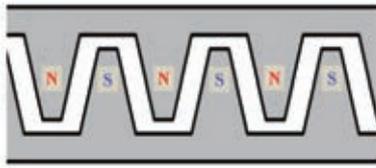


Winding method	Distributed
Stator teeth	48
Rotor pole	16
Stator core material	35A210
Rotor core material	S10C

Fig. 1 Specifications of a claw-pole motor.



(a) Vector plot of field flux.



(b) Magnetic-pole distribution on the rotor surface.

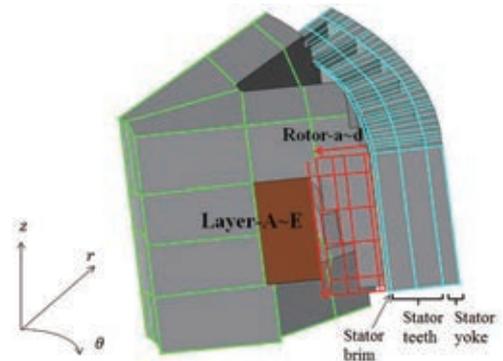
Fig. 2 Magnetic-pole distribution of the claw-pole motor.

かれた界磁巻線が収められている．電機子巻線は正弦波インバータによるベクトル制御，界磁巻線はスリップリングとブラシを介して直流で励磁を行う．

Fig. 2(a)に，3D-FEM で求めた，界磁磁束のベクトルプロット図を示す．界磁電流により発生した磁束は，回転子極先端からギャップを介して固定子に流入した後，隣接する回転子極に戻る．これにより，同図(b)に示すように回転子極表面は交互に NSNS…と磁化される．したがって，電機子電流によって，この磁化された回転子の極数と同じ極数の回転磁界を生じさせれば，回転子は回転磁界に同期して回転する．すなわち，界磁巻線型クローポールモータの回転原理は，一般的な同期機と等しい．また同図から明らかかなように，クローポール形状の回転子内部の磁束は，一般的なモータとは異なり，軸方向にも流れる．したがって，モータ特性の算定には3次元解析が必須となる．

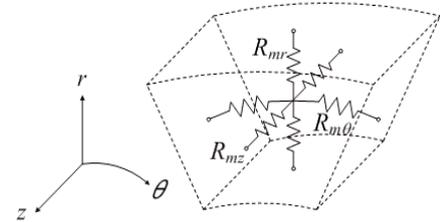
3. クローポールモータのRNAモデル⁸⁾

Fig. 3(a)に，RNAに基づくクローポールモータの分割図，および分割数を示す．電磁気的な対称性から1/8モデルを作成した．固定子については，軸方向(z軸方向)に一樣な構造であり，Fig. 2(a)からも明らかかなように，軸方向には磁束はほとんど流れないため，軸方向には分割しない．一方，径方向(r方向)はヨーク，ティース，つば部分を1, 2, 1の計4分割とし，周方向(θ方向)は60分割とした．回転子については，爪形の回転子極の傾斜を考慮するため，同図に示すように軸方向に5層に分割し，階段状に近似することで爪の形状を模擬した．以降では，軸方向に分割した各層を，同図の上から順に Layer-A~Layer-E と称する．また，各層とも径方向には4分割し，周方向はそれぞれ15分割とした．この径方向に4分割した領域を，以降では



	r	θ	z
Stator	4	60	1
Gap	1	60	5
Rotor	6	15	5
Rotor (Yoke)	12		

(a) Division of the motor based on RNA.



(b) Three-dimensional unit magnetic circuit.

Fig. 3 Motor division and unit magnetic circuit based on RNA.

Rotor-a~Rotor-d と称する．なお，ギャップに面したRotor-aについては，後述の渦電流損算定のため，さらに径方向に3つに細分割している．一方，爪状の回転子極以外の鉄心部については，磁束の流れが単純で分布や漏れ磁束も無視できることから，界磁磁束の流れに沿った磁気抵抗のみを配置した．最後に，ギャップ部は軸方向に5分割，径方向に1分割，周方向に60分割した．分割した各要素は同図(b)に示すような，3次元方向の6つの磁気抵抗で表す．これらの磁気抵抗のうち，鉄心部の磁気抵抗については非線形性を考慮している⁸⁾．

Fig. 4に，上述のようにして導出した3次元RNAモデルのLayer-Aの磁気回路を示す．図中の灰色背景部が鉄心部である．各層ごとに空気と鉄心の領域を変化させることで，爪状の回転子極の傾斜を表現している．

次いで，RNAにおける回転運動の表現については，通常，回転子側の磁気回路の磁気抵抗や起磁力を回転子位置角の関数で表すことで，回転運動を模擬するが，クローポールモータのように，回転子の形状が3次元で複雑になると，可変起磁力や可変磁気抵抗の数が非常に多くなるため，計算時間の長大化や解の収束性が悪化する可能性がある．そこで，形状が複雑な回転子の代わりに，Fig. 5に示すように，固定子側の磁気回路の磁気抵抗と起磁力を回転子位置角の関数で表すことで，回転運動を模擬する⁸⁾．

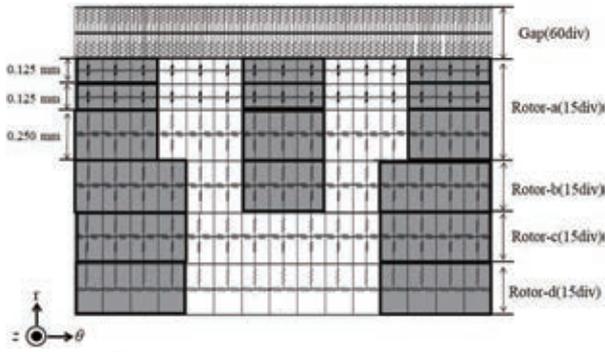


Fig. 4 Magnetic circuit of Layer-A.

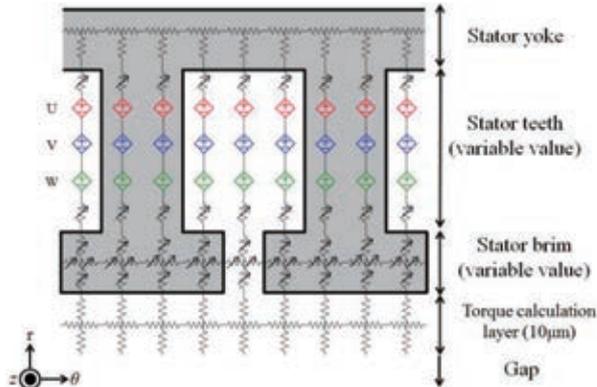


Fig. 5 Magnetic circuit of the stator considering the rotational motion.

4. RNA による回転子表面の渦電流損の算定手法

本モータの回転子は、爪状の極を上下でかみ合わせた特殊な構造を有するため、バルク状の鉄心を削り出して製作される。そのため、Fig. 6 に示すように、回転子表面にはギャップ高調波磁束に起因する渦電流が生じる。また、この渦電流による反作用磁界も生じる。この現象について、本論文では以下のようにして、渦電流を考慮した RNA モデルを導出した。

Fig. 7(a)に、ある分割要素における径方向への磁束 ϕ_{1r} と渦電流 i_1 の関係の模式図を示す。同図の回路において、径方向への磁束 ϕ_{1r} が流れると、その時間微分で決まる電圧が

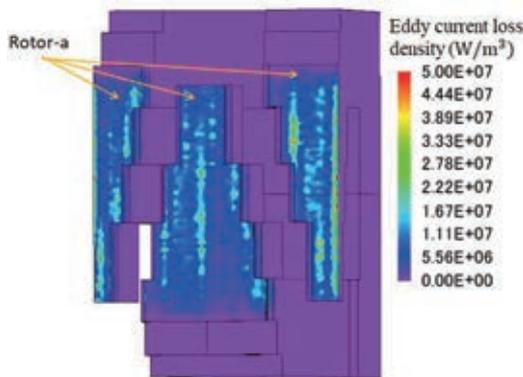


Fig. 6 Contour plot of eddy current loss density calculated by FEM.

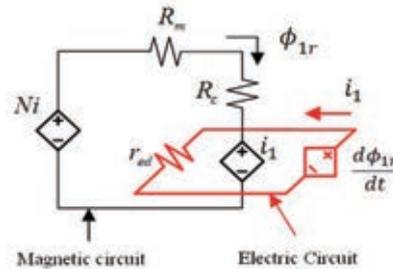
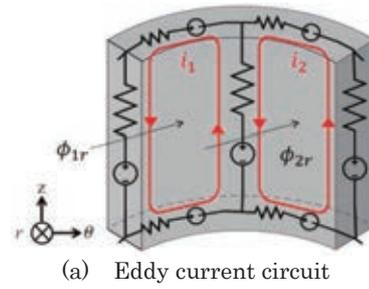


Fig. 7 (b) Equivalent electric-magnetic couple analysis model
Fig. 7 Equivalent circuit model for calculating eddy current loss.

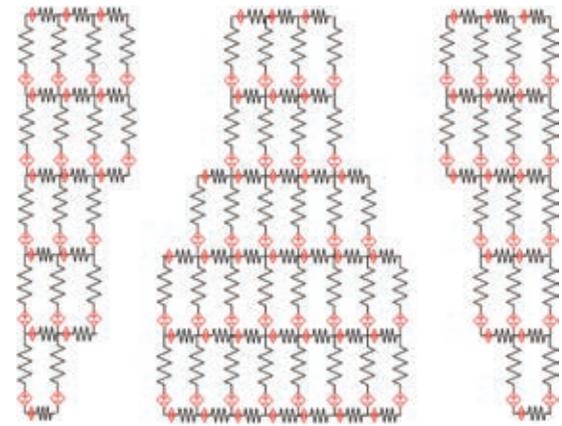
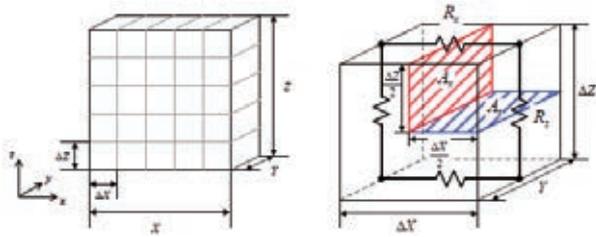


Fig. 8 Eddy current network model of the rotor surface considering the interaction between adjacent elements.

回路に誘起され、渦電流 i_1 が流れる。なお、実際の渦電流は回転子表面に複雑に分布するが、ここでは同図に示すように、RNA の要素分割に対応した分布を有し、各要素内では渦電流は均等に流れると仮定した⁹⁾。同図(b)がその等価回路である。誘起電圧と回路の抵抗 r_{ed} で決まる電流 i_1 を反作用起磁力として磁気回路側に返すことで、磁気回路と渦電流回路の連成が可能になる。ただし、実際の渦電流回路は隣接する要素間の相互作用も考慮する必要があるため、Fig. 8 に示すような回路網モデルを作成した。なお、Fig. 6 に示した電流密度コンター図より、実際に渦電流が流れるのは、回転子表面のみであることから、本論文では RNA モデルの Rotor-a 層のみに渦電流が流れると仮定して解析を行った。

渦電流回路の抵抗の導出方法については、Fig. 9 を用いて述べる¹⁰⁾。同図(a)のように分割した各要素を、同図(b)に示すように、 x 軸方向の電気抵抗 R_x と z 軸方向の電気抵抗 R_z に



(a)Division of conductor (b)Unit electric circuit
Fig. 9 Divisions of a conductor and its dimensions.

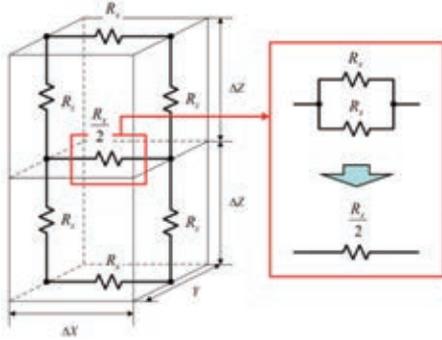


Fig. 10 Electric resistance when an element has adjacent element (in direction of x -axis).

置き換える. 同図に示すように, R_x は断面積が $(\Delta Z/2)Y$, 電流路が ΔX となるので, 電気抵抗率 ρ を用いて, 次式で求めることができる.

$$R_x = \rho \frac{2\Delta X}{\Delta Z Y} \quad (1)$$

z 軸方向の電気抵抗 R_z についても, 断面積は $(\Delta X/2)Y$, 電流路は ΔZ であることから, 次式で与えられる.

$$R_z = \rho \frac{2\Delta Z}{\Delta X Y} \quad (2)$$

また隣接する要素が存在する場合, Fig. 10に示すように, 隣り合う 2 つの電気抵抗が並列接続されると考えることができ, 抵抗値は半分になる.

Fig. 11に, 渦電流を考慮したクローポールモータの電気 - 磁気 - 運動連成解析モデルを示す. この連成解析モデルにおいて, 回転数 n_s が与えられると, 回転子位置角が計算され, RNAモデル内の固定子の起磁力と磁気抵抗の分布が

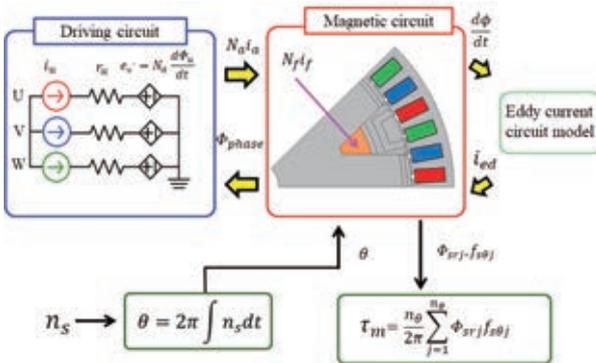


Fig. 11 Electromagnetic-motion coupled analysis model of the claw-pole motor.

変化する. 一方, 駆動回路側ではベクトル制御によって適切に位相が制御された 3 相正弦波電流が巻線に流れ, この巻線電流 i_a に巻数 N_a を乗じた起磁力が固定子側に生じる.

また, 界磁電流 I_f によって回転子側にも起磁力が生じる. これらの起磁力により, RNAモデル内を流れる磁束が計算されるとともに, 各相の鎖交磁束 ϕ_{phase} から巻線に生じる逆起電力が求まる. さらに, RNAモデル内の起磁力と磁束分布から渦電流, トルクが計算される. 上述の一連の計算は, SPICE等の汎用の回路シミュレータ上で, すべて同時に行うことが可能である.

5. 特性算定結果

5. 1 解析条件

前章までで導出した RNAモデルを用いて, クローポールモータの特性を算定する. また比較のため, 3D-FEMでも算定を行った. なお, RNAモデルは, Fig. 12(b)に示すように爪の形状が簡略化されていることから, 3D-FEMについては, 同様に簡略化されたモデルと, 同図(a)に示すように, 実際の形状に即した詳細なモデルを作成し, 比較を行った.

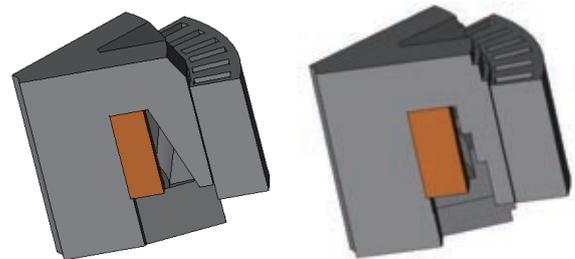
Fig. 13に, 解析した電流条件を示す. この図に示すように, 弱め界磁を含む広範な電流条件で比較・検討を行った. なお, 界磁電流は定格の 3 Aとした.

5. 2 解析結果

Fig. 14に, q 軸電流対トルク特性の比較を示す. このときの回転数は 450 rpmである. これらの図を見ると, 全電流条件において, 両者は良好に一致していることがわかる. また, 解析モデルの形状の違いによる差異も小さいことがわかる.

次いで, Fig. 15にクローポールモータの回転子表面の渦電流損の比較を示す. このときの回転数は 2000 rpmである. これらの図を見ると, 渦電流損の算定結果についても, 解析モデルの形状の違いによる差異はあまり大きくなく, RNAとFEMの算定結果は比較的良く一致していることがわかる.

解析モデルの形状の違いによる差異はあまり大きくない原因について考察するため, Fig. 16にFEMで求めた簡略モデルと詳細モデルの回転子表面の渦電流損分布を示す. この図を見ると, 形状の差異に由来する細かな相違点は認められるが, 全体的な分布については顕著な違いはないことが了解される.



(a) Actual shape (b) Simplified shape
Fig. 12 Comparison of the shape of the analytical models.

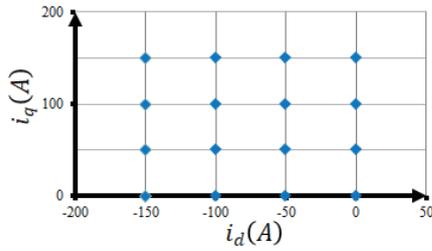


Fig. 13 Analysis points at $d - q$ current.

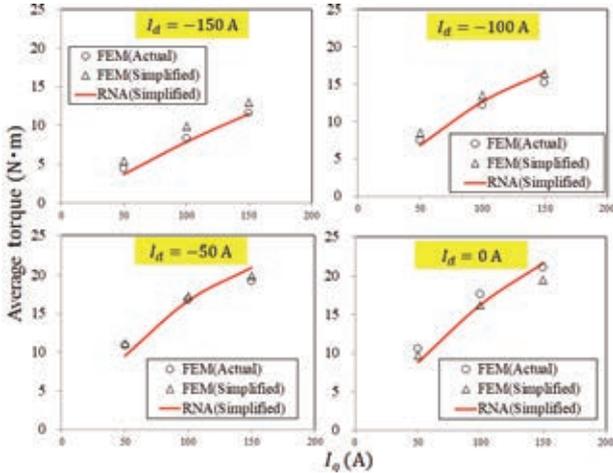


Fig. 14 Comparison of torque characteristics calculated by RNA and FEM.

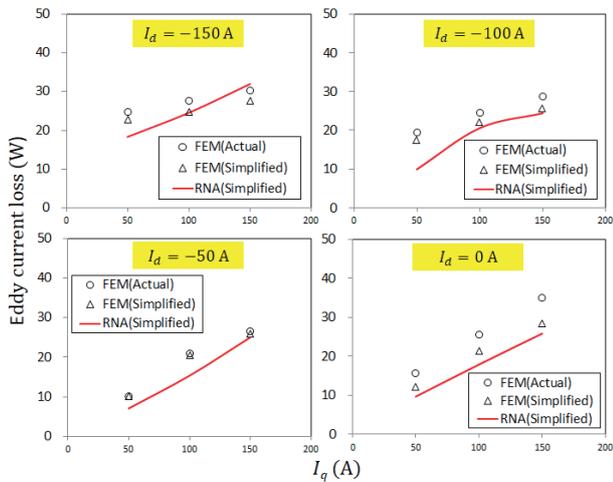


Fig. 15 Comparison of eddy current loss on rotor surface calculated by RNA and FEM.

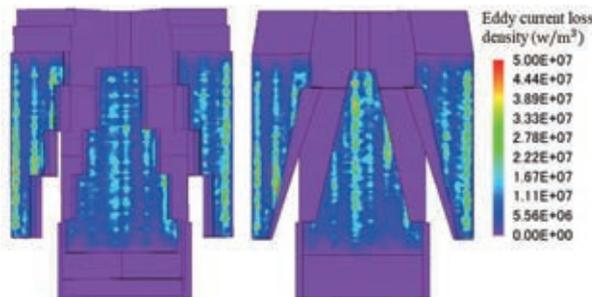


Fig. 16 Contour plot of eddy current loss density for the actual and simplified model calculated by FEM.

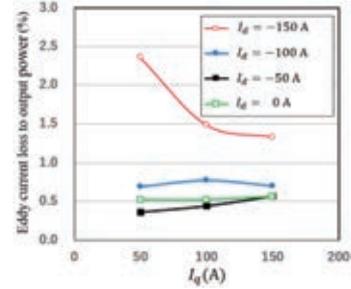


Fig. 17 The ratio of eddy current loss on rotor surface to output power calculated by RNA.

Fig. 17 に、RNA の算定結果から求めた、モータ出力に対する渦電流損の比率を示す。なお、モータ出力は次式に基づいて算出した。

$$W_{output} = \frac{2\pi N}{60} \times T \quad (3)$$

ここで、 T は Fig. 14 に示した平均トルク、 N は毎分の回転数である。この図を見ると、回転子表面の渦電流損の割合は約 0.5%~2.5%であることがわかる。すなわち、効率に換算すると約 0.5%~2.5%の低下に相当し、その影響は無視できないことが了解される。

6. まとめ

以上、本論文では、RNA に基づき界磁巻線型クローポールモータの回転子表面の渦電流損算定について検討した。

回転子表面で生じる渦電流を等価回路網で模擬し、これと RNA モデルを連成させることで、比較的精度良く渦電流損を算定できることを明らかにした。また、回転子渦電流損の割合は、効率に換算すると約 0.5%~2.5%であり、無視できないほど大きいことを明らかにした。なお、計算時間については、FEM がおよそ 1 条件当たり 20 時間であったのに対し、RNA は 20 分程度であり、大幅な計算時間の短縮が図れた。今後は、実機との比較・検討を行うとともに、渦電流損の低減策について検討を行う予定である。

References

- 1) Y. Enomoto, H. Tokoi, K. Kobayashi, H. Amano, C. Ishihara, and K. Abe, *IEEJ Trans. IA*, **129**, 1004 (2009) (in Japanese).
- 2) M. Inoue : *Motor technology Symp.*, **30**, C5-3-1 (2010) (in Japanese).
- 3) O. Ichinokura, K. Tajima, K. Nakamura, and Y. Yoshida, "Jikikairoho niyuru Mota no Kaiseki Gijutsu", Kagaku Gijutsu Shuppan (2016) (in Japanese).
- 4) T. Mizuguchi, K. Nakamura, T. Koyama, and O. Ichinokura, *IEEJ Trans. IA*, **129**, 1048 (2009) (in Japanese).
- 5) K. Suzuki, K. Nakamura, and O. Ichinokura, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **35**, 281 (2011) (in Japanese).
- 6) T. Miyashita, K. Nakamura, and O. Ichinokura, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **31**, 127 (2009) (in Japanese)
- 7) K. Nakamura and Osamu Ichinokura, *IEEJ Trans. IA*, **135**, 1063 (2015) (in Japanese).
- 8) Y. Ichikawa, K. Nakamura, J. Sukhwa, and N. Kurimoto, *T. Magn. Soc. Jpn. (Special Issues)*, **2**, 29 (2018) (in Japanese).
- 9) K. Nakamura, T. Tomonaga, S. Akatsuka, T. Ohinata, K. Minazawa, and O. Ichinokura, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **30**, 273 (2006) (in Japanese).
- 10) Y. Yoshida, K. Nakamura, and O. Ichinokura, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **36**, 127 (2012) (in Japanese).

2018年10月10日受理, 2018年12月29日再受理, 2019年2月27日採録

移動支援機器用インホイール磁気ギヤードモータの高効率化

Efficiency Improvement of In-Wheel Magnetic-Geared Motor for Walking Support Machines

伊藤亘輝[†]・門松孝尚・中村健二

東北大学 大学院工学研究科, 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-11 (〒980-8579)

K. Ito[†], T. Kadomatsu, and K. Nakamura

Tohoku University, Graduate School of Engineering, 6-6-11 Aoba Aramaki Aoba-ku, Sendai, Miyagi 980-8579, Japan

A magnetic-geared motor that an electric motor and a magnetic gear are magnetically combined has come to attract attention recently. In previous papers, several magnetic-geared motors were presented, and the feasibility and usefulness were demonstrated. However, the efficiencies of those prototype motors are not enough high. In this paper, efficiency improvement of a magnetic-geared motor is investigated from the view point of increasing torque and reducing losses. A prototype motor is designed by using three-dimensional finite element method (3D-FEM). The test results indicate that the efficiency is improved and that the prototype motor can be applied to walking support machines.

Key words: magnetic-geared motor, walking support machines, efficiency improvement

1. はじめに

一般にモータは、所望のトルクと回転数を得るために機械式ギヤと組み合わせて用いられる。しかし、機械式ギヤは歯車同士を接触させて動力を伝達するため、本質的に振動や騒音、摩擦や発塵などの問題がある。また、大容量機になると冷却のために潤滑油系統が必須になり、システムが複雑化し、定期的な保守点検も不可欠になる。

このような問題に対し、近年、磁気ギヤが注目されている¹⁾。磁気ギヤは非接触で増減速ができるため、振動や騒音が小さく、摩擦や発塵がない。また、潤滑油系統も不要であるため、保守性の向上が期待される。しかしながら、一般的な磁気ギヤは機械式ギヤの歯を単純に永久磁石で置き換えた構造を有し、互いに対向した一部の永久磁石のみが動力伝達に寄与するため、トルク密度が低く、実用には遠い存在であった。

これに対し、磁束変調型磁気ギヤ²⁾は、他の種類に比べてトルク密度が高く³⁾、効率も高い⁴⁾という特長を有する。さらに、磁石同士の吸引反発力によってトルクを伝達するため、同じトルク発生原理を有する永久磁石同期モータと磁氣的に融合一体化させることができる。したがって、磁気ギヤードモータとして小型化や部品点数の削減が可能になることから、特にモータの搭載スペースに制約がある、移動支援機器や小型車両への適用が期待される。

これまで筆者らは、永久磁石モータと磁束変調型磁気ギヤを磁氣的に一体化した磁気ギヤードモータを複数試作し、実証実験によって、その有用性を示した⁵⁾⁶⁾。また、その一方で、効率についてはさらなる改善の余地があることを明らかにした。

そこで本稿では、3次元有限要素法 (3D-FEM) を用いて、トルク向上と損失低減の両面から磁気ギヤードモータの高効率化について検討を行う。次いで、これらの検討に基づき試作した改良機の実験結果について述べる。最後に、本磁気ギヤードモータの移動支援機器への適用可能性についても評価を行ったので報告する。

2. 磁気ギヤードモータの高効率化に関する検討

2.1 磁気ギヤードモータの構成と原理

Fig. 1 に磁束変調型磁気ギヤの基本構成を示す。本磁気ギヤは、同心円状に配置された内外2つの極数の異なる永久磁石回転子と、その間に挟まれたポールピースと呼ばれる複数の固定子磁極片で構成され、ポールピースによって磁石磁束を変調することで、ギヤとして動作する。

Fig. 2 に、先に試作した磁気ギヤードモータの構成を示す⁶⁾。本磁気ギヤードモータは、Fig. 1 に示した磁束変調型磁気ギヤの内側回転子の内部に回転磁界を発生させるための電機子を収めた構造を有する。これにより、磁束変調型磁気ギヤの内側回転子が、永久磁石モータの回転子も兼ねることになる。

モータ部は3相9スロット集中巻の固定子 (Stator) と4極対の内側回転子 (Inner rotor) で構成される。磁気ギヤ部は上述の内側回転子と、27極のポールピース (Pole pieces), そして23極対の外側回転子 (Outer rotor) で構成される。なお、固定子鉄心の材質は無方向性ケイ素鋼板、ポールピースの材質は玉粉磁心、磁石材料はNd-Fe-B焼結磁石である。

上述の構成において、モータ部の固定子巻線に3相交流電流を流すと、回転磁界に同期して内側回転子が回転し、ギヤ比5.75 (= 23/4) で減速された出力を外側回転子から取り出すことができる。このとき、出力トルクは5.75倍に増幅される。

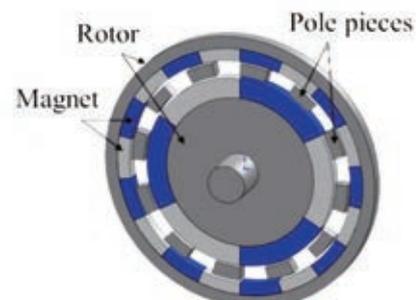


Fig. 1 Basic configuration of a flux-modulated-type magnetic gear.

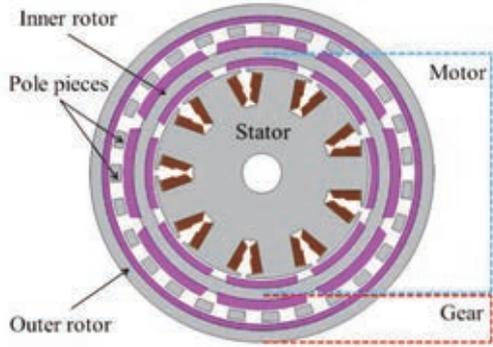


Fig. 2 Basic configuration of a magnetic-g geared motor.

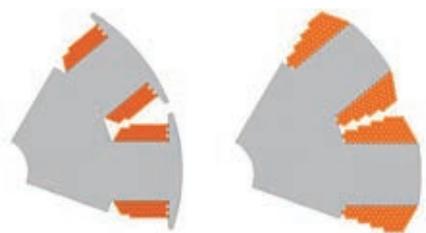
一般に、モータの効率 η は、トルクを T 、損失を W_{loss} とすると、次式で与えられる。

$$\eta = \frac{\omega T}{\omega T + W_{loss}} \quad (1)$$

ここで、 ω は角速度である。上式より、回転数一定の場合、モータの効率を改善するためには、トルクの増大か損失の低減が必要であることがわかる。次節以降では、この考えに基づき、高トルク化と低損失化の両面から効率改善の検討を行う。

2.2 高トルク化に関する検討

本節では、磁気ギヤードモータの高トルク化のため、巻線占積率の向上について検討する。Fig. 3に、従来の半閉スロット構造と、本稿で提案するオープンスロット構造の固定子を示す。従来型では、同図(a)に示す半閉スロット構造の固定子を採用しており、鏝がある分だけ空間利用率が悪くなっていた。そこで改良型では、同図(b)のオープンスロット構造を採用し、巻線占積率を向上することにより高トルク化を図った。Fig. 4に、FEMで計算した電流密度対トルク特性の比較を示す。この図を見ると、電流密度 10 A/mm²時において、オープンスロット構造は半閉スロット構造に対して、トルクが約 1.4 倍に向上したことがわかる。また、Fig. 5に構造変更前後のコギングトルク波形を示す。同図より、構造変



(a) Semi-closed-slot (b) Open-slot
Fig. 3 Winding arrangement in each slot shape.

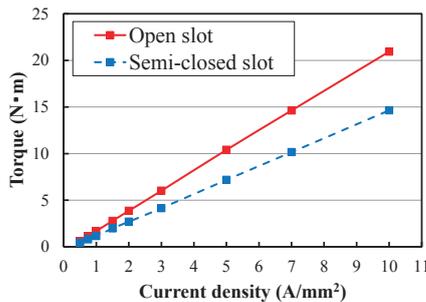


Fig. 4 Torque characteristics in each slot type.

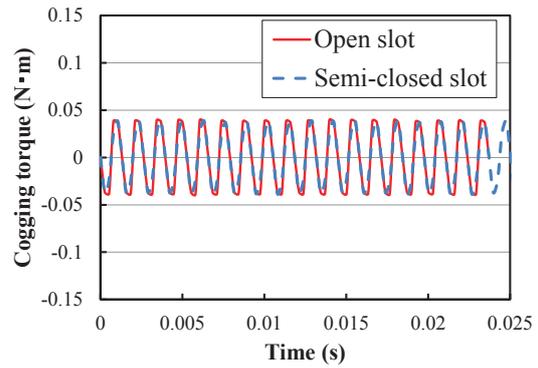


Fig. 5 Cogging torque behavior in each slot type.

更前後ではほぼ同一の波形となり、コギングトルクの変化が非常に小さいことがわかる。

2.3 低損失化に関する検討

本節では、はじめに鉄損の低減方法について述べる。従来機では、固定子および回転子の鉄心は一般的な無方向性ケイ素鋼板を用いた。本稿では、鉄心材料を低鉄損材である 6.5%Si-Fe に変更した場合の鉄損特性を算定する。6.5%Si-Fe は従来のケイ素鋼板よりも Si の含有率が高く、比抵抗が高いため、渦電流の発生を抑制することができる。一方で、飽和磁束密度はやや低いため、トルクの低下が懸念される。Fig. 6に、モータ各部の鉄損の比較を示す。この図から、鉄心材料に 6.5%Si-Fe を採用することで、鉄損が約半減できることがわかる。また、Fig. 7に材料ごとの電流密度対トルク特性の比較を示す。同図より、材料変更によるトルクの低下は僅かであることがわかる。

次に、内側回転子磁石に生じる渦電流損失の低減方法について述べる。Fig. 8に、検討対象とした内側回転子構造を示す。従来機では、同図(a)に示す表面磁石型 (SPM) を採用した。しかし、この構造では、磁石部がギャップ磁束の高調波成分の影響を直接受け、渦電流損失が大きくなってしまふ。そこで、改良機では同図(b)に示すように、磁石を回転子鉄心内部に埋め込んだ埋込磁石型 (IPM) を採用する。Fig. 9に、入力電流 5 A/mm²における渦電流損失の比較結果を示す。この図を見ると、SPMに対して IPM の損失が約 1/4 に低減したことがわかる。これは、磁石を埋め込むことで、高調波磁束が回転子鉄心をバイパスし、磁石内部へ侵入しなくなったためである。

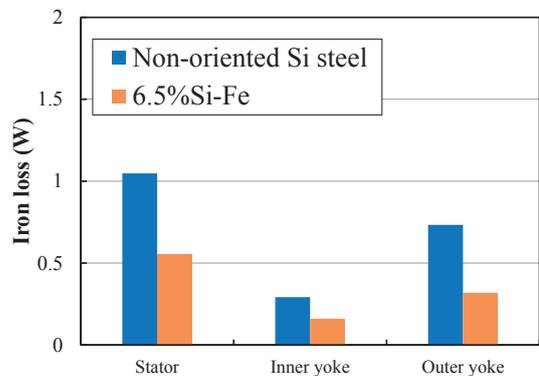


Fig. 6 Comparison of iron losses in each core material.

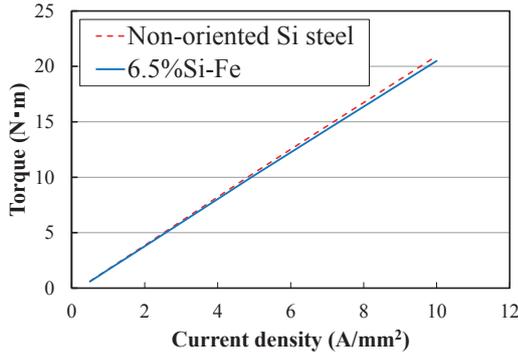


Fig. 7 Comparison of torque characteristics in each core material.

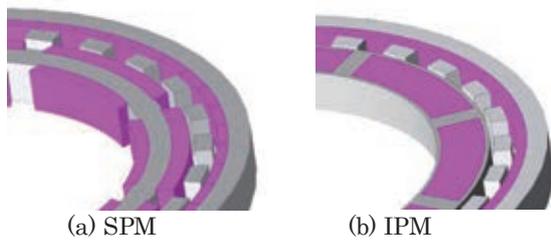


Fig. 8 Inner rotor structure of magnetic-geared motors.

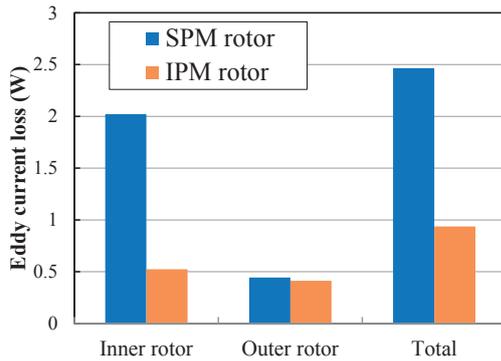


Fig. 9 Eddy current losses in each rotor structure.

2.4 改良型磁気ギヤードモータの設計・解析

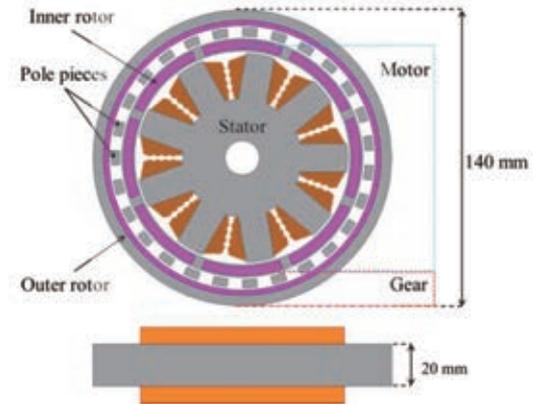
Fig. 10 に、前節までの検討に基づき設計した、改良型磁気ギヤードモータの諸元を示す。同図に示すように、本磁気ギヤードモータは高効率化のため、固定子はオープンスロット構造を採用した。その結果、巻線占積率は従来機よりも約9%向上し、約46%となった。また、固定子および回転子の鉄心材料は、低鉄損材である6.5%Si-Feを用いた。そして、磁石渦電流損を低減するため、内側回転子の構造は埋込磁石型とした。なお、ポールピースの材質は圧粉磁心、磁石材料はNd-Fe-B焼結磁石である。

Fig. 11 に、従来機と改良機の電流密度対トルク特性の計算結果の比較を示す。この図より、改良機はオープンスロット構造を採用し、巻線占積率が向上した結果、トルク特性が大幅に改善されたことがわかる。なお、電流密度6 A/mm²において、改良機は従来機に対し、トルクが約1.7倍に向上している。

Fig. 12 に、従来機と改良機の損失特性の計算結果を示す。ここで、 W_c は銅損、 W_i は固定子、回転子、ポールピースの鉄損、 W_e は永久磁石の渦電流損失である。この図を見ると、前節の検討の結果、改良機は従来機に対してすべての損失が低減していることが

わかる。各損失の低減割合は、負荷トルク15 N·mにおいて、 W_c が約35%、 W_i が約66%、 W_e が約55%であった。

Fig. 13 に、従来機および改良機の効率特性の計算結果を示す。トルク特性の向上と損失低減の結果、全領域において効率が改善されたことがわかる。また、計算上の最大効率は、従来機の89.5%に対して改良機は94.4%を達成した。



Inner rotor speed	3162.5 rpm
Outer rotor speed	550 rpm
Number of turns/pole	59 turns
Winding space factor	46.1%
Gap length	1.0 mm × 3
Core material	6.5%Si-Fe
Magnet material	Sintered Nd-Fe-B

Fig. 10 Specifications of the improved magnetic-geared motor.

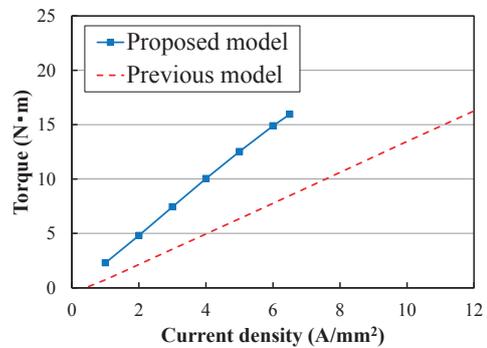


Fig. 11 Comparison of calculated torque characteristics of the previous and proposed magnetic-geared motors.

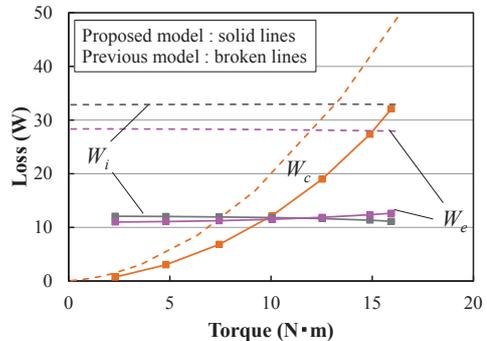


Fig. 12 Comparison of calculated loss characteristics of the previous and proposed magnetic-geared motors.

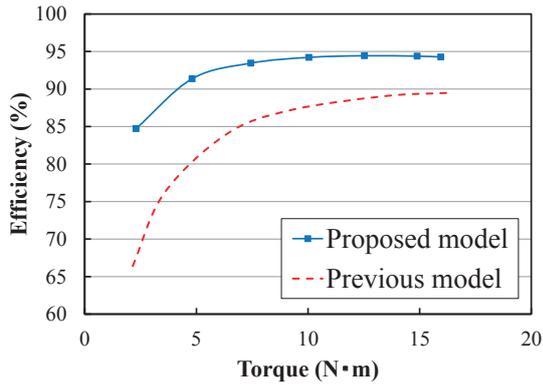


Fig. 13 Comparison of calculated efficiency characteristics of the previous and proposed magnetic-geared motors.

3. 実証実験および移動支援機器への適応可能性評価

3.1 試作機の実証実験の結果

本節では、前章の検討に基づいて試作した、改良型磁気ギヤードモーターの実証実験の結果について述べる。

Fig. 14 に、実験システムの外観を示す。本システムは、磁気ギヤードモーターの試作機、トルクメータ、ヒステリシスブレーキ、スコープコーダ、直流電源、3 相インバータ駆動回路とその補助電源で構成される。

磁気ギヤードモーターは、磁束変調型磁気ギヤと永久磁石同期モーターが一体化した構造を有するため、駆動方法は一般的な永久磁石同期モーターと同様である。したがって、試作機の内側回転子の磁極位置の検出にはホールセンサを使用し、電流ベクトル制御にて駆動した。実験は、磁気ギヤードモーターを一定の回転速度（外側回転子速度 174 rpm）で制御した状態で、ヒステリシスブレーキにて任意の負荷を加え、その時の負荷トルク、回転数、電圧および電流を計測し、各種特性を求めた。

Fig. 15 に、電流密度対トルク特性の実測値を示す。同図中の計算値と比較すると、両者の傾きはほぼ一致しており、設計どおりの性能が得られていることがわかる。誤差については、3D-FEM では考慮できない機械損が主要因であると考えられる。

続いて、Fig. 16 にトルク対効率特性の実測値を示す。この図より、最大効率は、負荷トルク 11 N·m 時の 84.7% であり、先行研究⁶⁾に対して、約 15% の向上を達成した。したがって、本稿で提案した高効率化は有用であることが実証された。

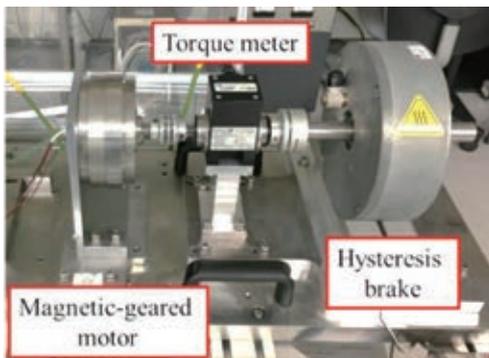


Fig. 14 General view of the experimental setup.

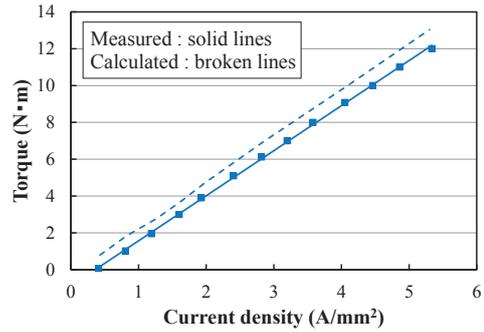


Fig. 15 Torque characteristics of the trial magnetic-geared motor.

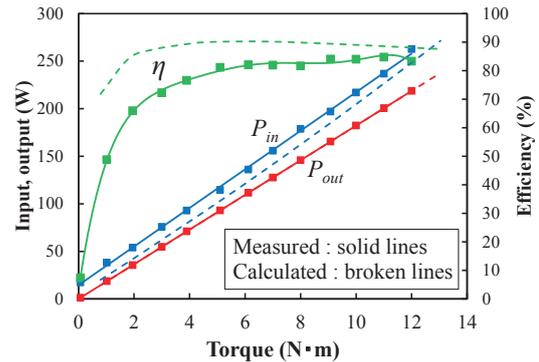


Fig. 16 Efficiency characteristics of the trial magnetic-geared motor.

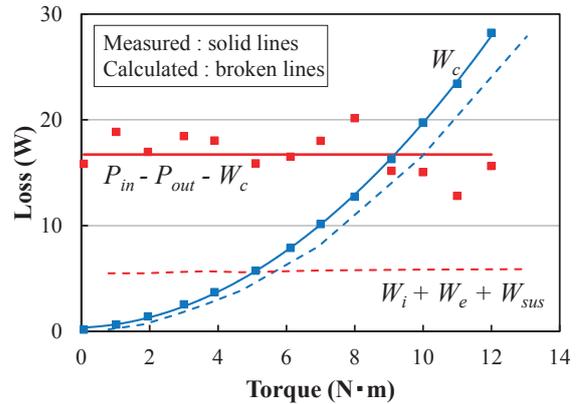


Fig. 17 Loss characteristics of the trial magnetic-geared motor.

Fig. 17 にトルク対損失特性を示す。図中の W_c は銅損、 W_i は固定子および回転子鉄心とポールピースの鉄損の合計値、 W_e が磁石の渦電流損、 W_{sus} が支持部の渦電流損である。結果より、銅損については実測値と計算値が概ね一致していることがわかる。一方、銅損以外の損失に関しては、実測値と計算値で大きな誤差が生じている。これは、上述のとおり、3D-FEM では考慮できない機械損が起因していると考えられる。したがって、今後さらなる高効率化を達成するには、機械損の低減が必要であることがわかる。

3.2 移動支援機器への適用可能性評価

前節において改良機の最大効率を約 85% を達成し、効率の改善が実証された。そこで本節では、試作した磁気ギヤードモーターの移動支援機器への適用可能性評価として、まずは最低限の走行性

能があるかについて検討を行った。

一般的に、移動体の走行抵抗は車がり抵抗、空気抵抗、加速抵抗、勾配抵抗の総和となり、次式で表現される。

$$F_{load} = \mu_r Mg \cos \theta + Msin \theta + 0.5C_d \rho Av^2 + \frac{(M+M_r)a}{g} \quad (2)$$

Table 1に上式の各パラメータを示す。ここで μ_r は路面状況により定まるタイヤの車がり摩擦抵抗係数、 M は車両総重量、 g は重力加速度、 θ は路面の勾配、 C_d は空気抵抗係数、 ρ は空気密度、 A は全面投影面積、 v は車両速度、 M_r は慣性質量、 a は車両加速度である。また、移動体のタイヤ半径を r とすると、車軸にかかる負荷トルク T_{load} は次式で求まる。

$$T_{load} = r \times F_{load} \quad (3)$$

本稿では、(2)式および(3)式を用いて、勾配の異なる良好な路面において、移動支援機器を時速0~6 km/hの範囲で使用した際の、車軸にかかる負荷トルクを算出した。そして、試作した磁気ギヤードモータの速度対トルク特性と、上述の計算結果を比較することで、移動支援機器への適応可能性を評価した。なお、試作機は、移動支援機器の2つのタイヤホイール内に搭載することを想定した。

Fig. 18に、移動支援機器への適用可能性について評価した結果を示す。同図の破線部分は磁気ギヤードモータ2台分の速度対トルク特性を表している。すなわち、この破線で囲まれた範囲の内側が、移動支援機器の動作可能範囲であることを意味する。各勾配の車軸にかかる負荷トルクは、車両速度が低速であるため、ほぼ一定値となっている。また、車軸にかかる負荷トルクは、破線で囲まれた範囲内に収まっている。したがって、路面状況が良好な場合、最大勾配5度において、最高時速6 km/hで、磁気ギヤードモータを搭載した移動支援機器が動作可能であることがわかる。

4. まとめ

以上本稿では、3次元有限要素法を用い、トルク向上と損失低減の両面から磁気ギヤードモータの高効率化について検討を行うとともに、試作した改良機の特長について述べた。また、改良機の移動支援機器への適用可能性についても評価を行った。

高効率化の検討においては、オープンスロット構造、低鉄損材、並びに埋込磁石型回転子を採用することで、トルクの向上と損失の低減を実現し、計算上の最大効率は94.4%を達成した。次いで、改良機の試作試験では、ほぼ設計通りのトルク性能を得るとともに、最大効率では84.7%を達成した。これは従来機に対して、約15%の改善である。なお、計算値よりも効率が低下した要因は、FEMでは考慮できない機械損の影響が主であると考えられる。

さらに、移動支援機器への適応可能性を評価したところ、試作した磁気ギヤードモータ2台を、タイヤホイール内に搭載した移動支援機器は、アスファルト等の良好な路面状況において、十分に適応可能であることが明らかとなった。

今後は、試作機をもう一台製作するとともに、これらを搭載した移動支援機器を製作し、実証実験を行う予定である。

なお、本研究の一部はJSPS 科研費基盤(B) JP16H04310の助成を受け行った。

Table 1 Running resistance parameter

Rolling resistance coefficient	μ_r	0.011	
Total weight	M	108	kg
Gravity acceleration	g	9.8	m/s ²
Angle of slope	θ	0,2,5,5	deg
Air resistance coefficient	C_d	1	
Air density	ρ	1.204	kg/m ³
Front projection	A	0.4	m ²
Vehicle speed	v	0~6	km/h
Inertia weight	M_r	8.64	kg
Vehicle acceleration	a	0.1	m/s ²
Wheel radius	r	0.165	m

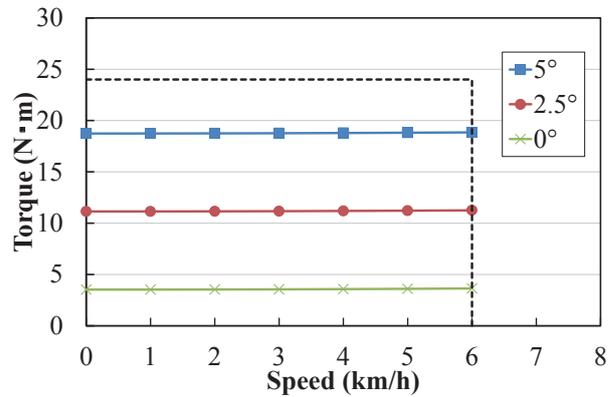


Fig. 18 Evaluation results of applicability for the walking support machines.

References

- 1) F. T. Jørgensen, P. O. Rasmussen, and T. O. Andersen: "Magnetic gears – a Review", *Summer Seminar on Nordic Network for Multi Disciplinary Optimized Electric Drives* (2003).
- 2) T. B. Martin, Jr.: "Magnetic transmission", U.S. Patent 3378710 (1968).
- 3) K. Atallah and D. Howe, *IEEE Trans. Magn.*, **37**, 2844 (2001).
- 4) K. Nakamura, M. Fukuoka, and O. Ichinokura, *J. Appl. Phys.*, **115**, 17A314 (2014).
- 5) K. Nakamura, K. Akimoto, T. Takemae, and O. Ichinokura, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **39**, 29 (2015) (in Japanese).
- 6) K. Nakamura, K. Akimoto, and O. Ichinokura, *The papers of Technical Meeting on "Magnetics"*, *IEEEJ, MAG-16-37* (2016) (in Japanese).
- 7) Society of Automotive Engineers of Japan: "Jidosha Gijutsu Handbook 10 Sekkei (EV, Hybrid) (2011) (in Japanese).

2018年10月10日受理, 2019年01月06日採録

埋込磁石型磁気ギヤの性能向上に関する検討

Performance Improvement of Interior Permanent Magnet Magnetic Gear

水穴 裕真^{a)†}・中村 健二^{a)}・鈴木 雄真^{b)}・大石 悠平^{b)}・立谷 雄一^{b)}・操谷 欽吾^{b)}^{a)} 東北大学 大学院工学研究科, 仙台市青葉荒巻字青葉 6-6-11 (〒980-8579)^{b)} ㈱プロスパイン, 宮城県大崎市松山次橋新千刈田 117 (〒987-1305)Y. Mizuana^{a)†}, K. Nakamura^{a)}, Y. Suzuki^{b)}, Y. Oishi^{b)}, Y. Tachiya^{b)}, and K. Kuritani^{b)}^{a)} Tohoku University, Graduate School of Engineering, 6-6-11 Aoba Aramaki Aoba-ku, Sendai, Miyagi 980-8579, Japan^{b)} Prospine Co., Ltd., 117 Shinsengarida, Matsuyamatsugihashi, Osaki, Miyagi, Japan

Magnetic gears can change the speed and torque without any mechanical contacts. Therefore, it has a low vibration and acoustic noise, and maintenance-free operation. Several kinds of magnetic gears were proposed. Among them, a flux-modulated type magnetic gear has higher torque density than other kinds of magnetic gears. In a previous paper, an interior permanent magnet (IPM) structure was presented. It was demonstrated by finite element analysis (FEM) that eddy current loss in the magnets can be reduced remarkably. This paper describes the comparison of the IPM structure with surface permanent magnet (SPM) structure in experiment and discusses a performance improvement of the IPM gear from the view point of the rotor structure.

Key words: Flux-modulated type magnetic gear, interior permanent magnet (IPM), eddy current loss

1. はじめに

機械式ギヤは、歯数の異なる歯車を 2 つ以上組み合わせで構成され、増速や減速、正転や逆転、回転軸の向きの変更、並びに動力分割など、多種多様な動力の伝達が可能である。現在、機械式ギヤは様々な分野で利用されており、動力伝達を行う上で重要な機械要素の一つとなっている。しかし、機械式ギヤは歯車同士を接触させて動力伝達を行うため、振動や騒音、接触部での摩耗や発熱などの問題が生じる。さらに、大容量機の場合、接触部の冷却や摩耗低減のための潤滑油システムが必須となるため、システムが複雑化し、定期的な保守点検も必要となる。

これらの問題に対し、近年、永久磁石を利用した磁気ギヤが注目されている¹⁾。磁気ギヤは非接触で動力伝達可能であるため、機械式ギヤと比べて振動や騒音が小さく、摩耗や発塵がない。加えて、潤滑油システムも不要であり、保守性に優れる。しかし、一般的な磁気ギヤは、機械式ギヤの歯を単純に永久磁石に置き換えた構造であり、互いに対向した永久磁石同士でしか動力の伝達が行われないため、トルク密度や効率が低く、実用には遠い存在であった。

これに対し、磁束変調型磁気ギヤ²⁾は、内外 2 つの永久磁石回転子と、その間に挟まれたポールピースと呼ばれる複数の固定子磁極片で構成され、磁石磁束をポールピースにより変調することで、ギヤとして動作する。磁束変調型磁気ギヤは、すべての永久磁石が動力伝達に寄与するため、他の磁気ギヤと比べてトルク密度が高く³⁾、実用化が最も期待されている。

磁束変調型磁気ギヤの実用化には、さらなるトルク向上

と損失低減の両立が不可欠であるが、このうち損失については、非同期的な高調波磁束に由来する磁石渦電流損の低減が必須である。

上記の問題に対し、先に筆者らは、回転子鉄心に永久磁石をスポーク状に埋め込んだ磁気ギヤを提案し⁴⁾、3次元有限要素法(3D-FEM)による電磁界解析により、磁石渦電流損が大幅に低減されることを明らかにした。ただし、鉄損など、それ以外の損失に関する検討はなく、また実機による検証も行われていない。そこで本稿では、この埋込磁石型(Interior permanent magnet: IPM)磁気ギヤについて、詳細な損失の分析と実証実験を行うとともに、さらなる性能向上に向けた検討を行ったので報告する。

2. 磁束変調型磁気ギヤの動作原理

Fig. 1 に、磁束変調型磁気ギヤの基本構成を示す。磁束変調型磁気ギヤは、同心円状に配置された極対数の異なる内外 2 つの永久磁石回転子と、その間に挟まれたポールピースと呼ばれる周方向に等間隔に配置された複数の固定子磁極片から構成される。以下、本磁気ギヤの動作原理を述べる。

Fig. 2 に、内側回転子の永久磁石からポールピースを介して、外側ギャップに作られる磁束分布を模式的に示す。同図のように、永久磁石の起磁力分布が正弦波状であると仮定すると、起磁力は次式で表される。

$$f_h(\theta, t) = F_{ah} \cos\{p_h(\theta - \omega_h t)\} \quad (1)$$

ここで、 F_{ah} は内側回転子の磁石起磁力の振幅、 p_h と ω_h はそれぞれ内側回転子の極対数と角速度である。

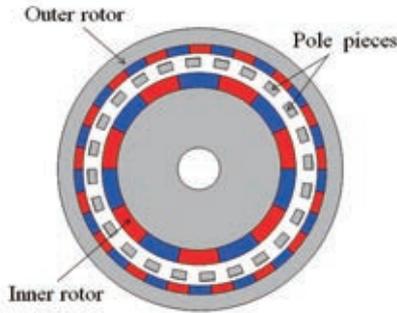


Fig. 1 Basic configuration of a flux-modulated type magnetic gear.

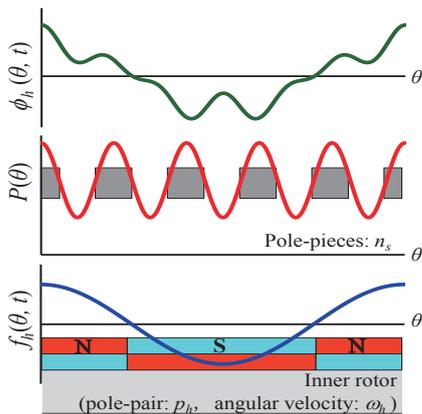


Fig. 2 Outside gap flux generated by the inside magnet's MMF and the pole-pieces.

ポールピースのパーミアンス分布 $P(\theta)$ についても正弦波状であると仮定すれば、ポールピースの極数 n_s を用いて、次式で表すことができる。

$$P(\theta) = \lambda_d + \lambda_a \cos(n_s \theta) \quad (2)$$

ここで、 λ_d と λ_a はそれぞれポールピースのパーミアンス分布の平均値と振幅である。

以上から、外側ギャップに作られる磁束分布 $\phi_h(\theta, t)$ は、(1)式と(2)式の積として、次式のように求まる。

$$\begin{aligned} \phi_h(\theta, t) = & F_{ah} \lambda_d \cos\{p_h(\theta - \omega_h t)\} \\ & + \frac{1}{2} F_{ah} \lambda_a \cos\left\{(n_s + p_h)\left(\theta - \frac{p_h}{n_s + p_h} \omega_h t\right)\right\} \\ & + \frac{1}{2} F_{ah} \lambda_a \cos\left\{(n_s - p_h)\left(\theta - \frac{-p_h}{n_s - p_h} \omega_h t\right)\right\} \end{aligned} \quad (3)$$

(3)式より、外側ギャップに現れる磁束には、内側回転子の極対数 p_h と同じ次数の成分に加えて、 $(n_s + p_h)$ と $(n_s - p_h)$ の2つの成分が存在することが了解される。これらの成分の回転速度はそれぞれ $p_h \omega_h / (n_s + p_h)$ 、 $-p_h \omega_h / (n_s - p_h)$ である。したがって、外側回転子の極対数 p_l を $(n_s + p_h)$ 、もしくは $(n_s - p_h)$ のいずれかに選べば、外側回転子は以下の速度で同期して回転する。

$$\omega_l = \pm \frac{p_h \omega_h}{n_s \pm p_h} = \pm \frac{p_h}{p_l} \omega_h \quad (4)$$

なお、(3)式を見ると、ポールピースで変調された2つの成分 $(n_s + p_h)$ と $(n_s - p_h)$ の振幅は等しいが、実際は永久磁石の起磁力分布、並びにパーミアンスの空間分布は、正弦波ではなく台形波に近いため、高調波の影響により、 $(n_s - p_h)$ の成分の振幅の方が大きくなる。したがって、通常、磁束変調型磁気ギヤの外側回転子の極対数は $p_l = n_s - p_h$ になるように選択する。

3. 表面磁石型と埋込磁石型の磁気ギヤの比較

3.1 表面磁石型と埋込磁石型の磁気ギヤの特性算定

Fig. 3 に、IPM 磁気ギヤと表面磁石型 (Surface Permanent Magnet: SPM) 磁気ギヤの基本構成を示す。また、Table 1 に諸元を示す。内外回転子の極対数はそれぞれ3と31であり、極対数の比からギヤ比は10.33となる。ポールピースおよび回転子鉄心の材質は、それぞれ圧粉磁心および無方向性ケイ素鋼板であり、磁石材料はNd-Fe-B焼結磁石である。磁気ギヤの直径は150 mm、軸長は25 mm、ポールピースと内外回転子の間のギャップ長はそれぞれ2 mmと1 mmである。

IPM 磁気ギヤは、内外回転子磁石をスポーク状に埋め込み、幅1 mmの磁気ブリッジをギャップ側に設けた構造となっている。また、磁石磁束の短絡を防止するため、バックヨークに非磁性のステンレスを用いている。なお、両者の全磁石体積は等しくなるように設計した。

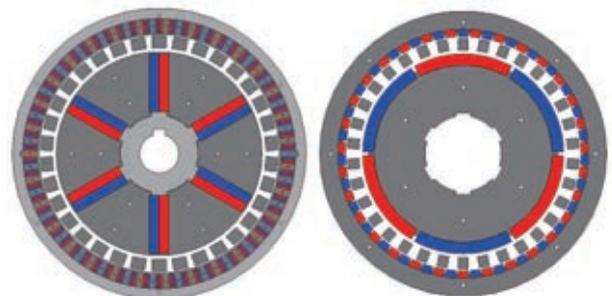


Fig. 3 Basic configuration of two kinds of magnetic gears (left : IPM-type , right : SPM-type).

Table 1 Specifications of the magnetic gears.

Gear ratio	10.33
Outer diameter	150 mm
Axial length	25 mm
Inner air gap	2 mm
Outer air gap	1 mm
Inner pole-pairs	3
Outer pole-pairs	31
Number of pole-pieces	34

Fig. 4 に、3D-FEM による両磁気ギヤの特性算定結果を示す。このとき、内側回転子の回転数は 300 rpm である。

同図(a)の総損失を見ると、IPM 磁気ギヤの方が SPM 磁気ギヤよりも小さいことがわかる。また、低速領域であることから、渦電流損よりも鉄心の鉄損が支配的になっていることがわかる。なお、同図を見ると、IPM 磁気ギヤの渦電流損の方が、SPM 磁気ギヤよりも若干大きいことがわかるが、これは IPM の場合は磁石渦電流損に加えて、バックヨークに用いた非磁性ステンレスで生じる渦電流損も考慮したためである。

次いで、同図(b)の鉄損の内訳を見ると、IPM 磁気ギヤでは外側回転子鉄心の鉄損が大きく減少しており、これが総損失が減少した主たる要因であることがわかる。

同図(c)は両磁気ギヤの効率特性である。本稿では、磁気ギヤの機械出力 P_{out} および効率 η は、以下の式を用いて算出した。

$$P_{out} = \omega_h \bar{\tau}_h \quad (5)$$

$$\eta = \frac{P_{out}}{P_{out} + W_i + W_e} \times 100 (\%) \quad (6)$$

ここで、 ω_h 、 $\bar{\tau}_h$ はそれぞれ内側回転子の回転角速度とトルクの平均値、 W_i は内外回転子鉄心とポールピースの鉄損の和、 W_e は永久磁石および非磁性ヨークの渦電流損失の和である。この図を見ると、すべての回転数において、SPM 磁気ギヤよりも IPM 磁気ギヤの方が高効率であるという結果が得られた。

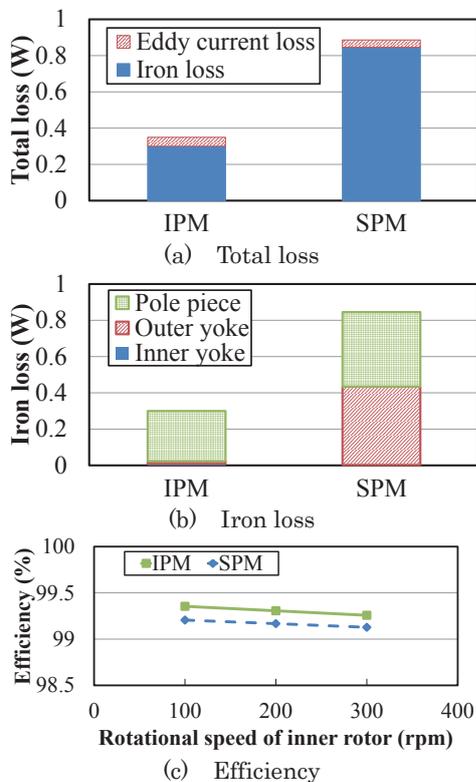


Fig. 4 Comparison of the total loss, iron loss, and efficiency of the SPM and IPM magnetic gears.

3.2 実機検証

前節の算定結果に基づき、実機検証を行った。Fig. 5 に、実験装置の外観を示す。サーボモータにより磁気ギヤを任意の速度で回転させ、ヒステリシスブレーキを出力側に接続して所望の負荷トルクを印加する。入力軸と出力軸のそれぞれにトルクメータを接続し、内外回転子の速度およびトルクを測定する。入力を低速大トルクの外側回転子、出力を高速低トルクの内側回転子とし、磁気ギヤを増速動作させて実験を行った。

Fig. 6 に、低速側 20 rpm 時の効率および外側回転子の最大トルクの比較結果を示す。なお、最大トルクを測定する際は、磁石渦電流損などの過渡的な影響を抑えるため、低速側を数 rpm 程度の極めて遅い速度で定回転させ、徐々に負荷をかけながら、脱調する瞬間のトルクを測定した。

同図(a)より、すべての領域で IPM 磁気ギヤの方が効率が低いことが了解され、実機においても IPM 磁気ギヤは高効率であることが明らかになった。

一方で、同図(b)の最大トルクを見ると、IPM 磁気ギヤのトルクは SPM 磁気ギヤの半分以下であることがわかる。次章では、トルク低下の原因とその対策について考察する。

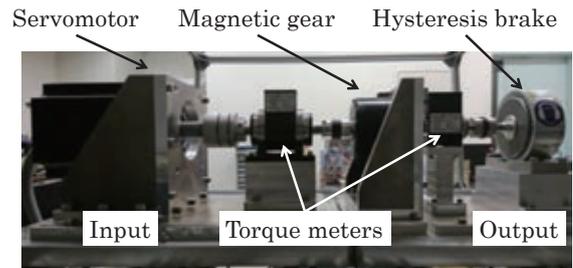


Fig. 5 Experimental setup.

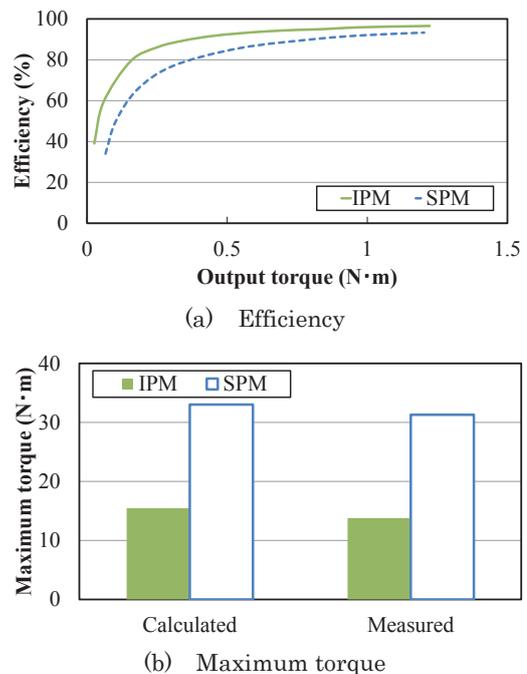


Fig. 6 Comparison of maximum torque and efficiency of the prototype SPM and IPM magnetic gears.

4. 埋込磁石型磁気ギヤのトルク向上に関する検討

4.1 トルク低下の原因とその対策

Fig. 7は、スポーク形 IPM 磁気ギヤの磁束密度ベクトル図である。この図を見ると、磁石磁束の一部が磁気ブリッジに漏れていることがわかる。これにより有効磁束が減少し、トルクの低下を招いていると考えられる。そこで、Fig. 8に示すように、磁気ブリッジをギャップ側ではなく、非磁性ヨーク側に設けることで、有効磁束の増加を図った。ただし、スポーク形状のまま磁気ブリッジを非磁性ヨーク側に設けると、遠心力で磁石が飛散する恐れがあるため、同図に示すように、磁石を台形にした。

Fig. 9に、本稿で提案する IPM 磁気ギヤ (Trapezoid) の諸元を示す。磁気ブリッジの幅は、内側が 2 mm、外側が 1 mm である。なお、磁石を台形にしたことで、スポーク形と比べて、磁石量は 1.64 倍に増えている。

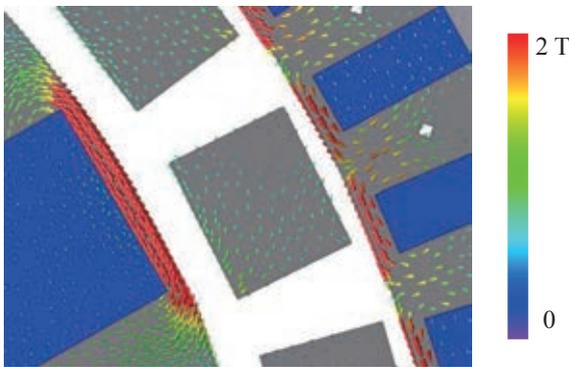


Fig. 7 Flux density distribution of the IPM magnetic gear (Spoke).

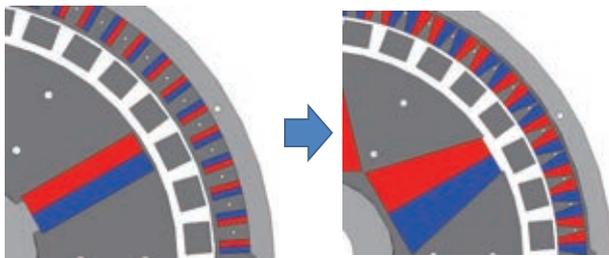


Fig. 8 Rotor structure for torque improvement.

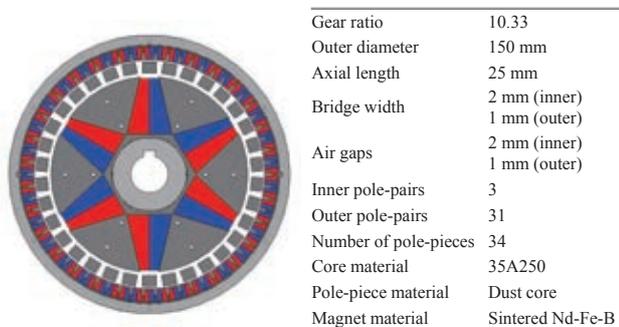


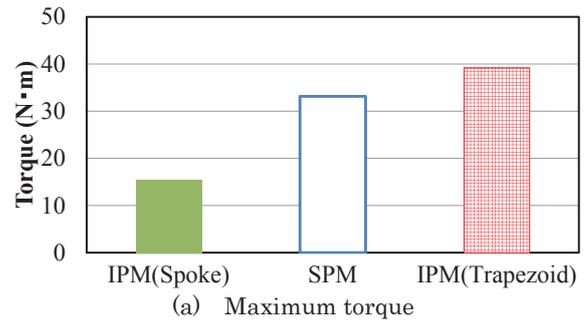
Fig. 9 Specifications of the proposed IPM magnetic gear (Trapezoid).

4.2 特性の比較

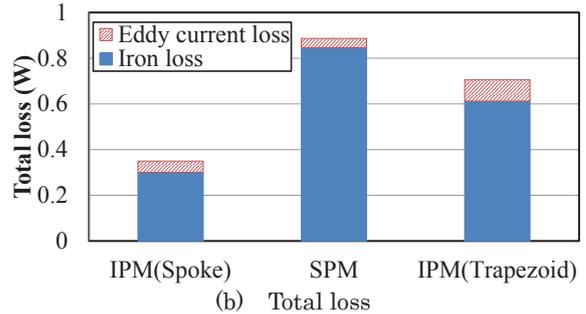
Fig. 10 に、各磁気ギヤの特性算定結果を示す。同図(a)より、IPM (Trapezoid) の最大トルクは 39.2 N・m であり、SPM 磁気ギヤを上回っていることがわかる。これは、磁気ブリッジの位置を変更したことで有効磁束を増加させたことに加え、回転子磁石の形状を台形にして磁石量を増加させたためである。

同図(b)の総損失および同図(c)の鉄損の内訳を見ると、IPM (Trapezoid) は IPM (Spoke) よりも損失が増えたが、SPM よりは低く抑えられていることがわかる。

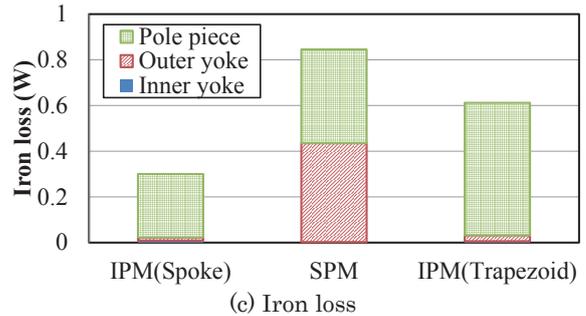
同図(d)に効率を示す。この図を見ると、すべての領域で IPM (Trapezoid) が最も効率が高いことがわかる。これは



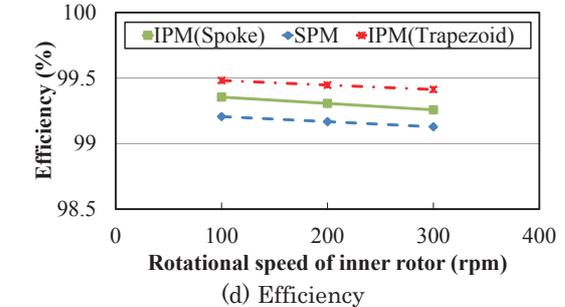
(a) Maximum torque



(b) Total loss



(c) Iron loss



(d) Efficiency

Fig. 10 Comparison of the maximum torque and total loss and iron losses and efficiency of the magnetic gears.

埋込磁石構造を採用したことで鉄損が減少したことに加え、磁気ブリッジの位置を変更して有効磁束を増加させるとともに磁石形状を台形にして磁石量を増やしたことで、SPMを上回るトルクを得ることができたためである。

5. まとめ

以上、本稿ではIPM磁気ギヤについて、詳細な損失の解析と実証実験を行うとともに、さらなる性能向上に向けた検討を行った。

今回検討を行った比較的低速な速度領域では、IPM化による効率改善は、外側回転子鉄心の鉄損減少が主たる要因であることが明らかになった。なお、先行研究⁴⁾では、IPM化により、磁石渦電流損が大幅に低減され、効率が向上することが示唆されていたが、バックヨークに用いる非磁性ステンレスに生じる渦電流損まで含めると、逆に増加することも明らかになった。

次いで、実証実験によって、IPM磁気ギヤはSPM磁気ギヤと比べて効率が高いことが明らかになった。一方で、トルクは劣ることが判明したため、原因の調査を行ったところ、磁気ブリッジによる漏れ磁束が主たる要因であることが明らかになった。

そこで本稿では、磁気ブリッジを非磁性ヨーク側に設け、磁石形状を台形にした回転子構造を提案した。3D-FEMによる解析結果より、提案したIPM磁気ギヤは、スポーク形のIPM磁気ギヤおよびSPM磁気ギヤと比べ、トルクおよび効率が優れていることが明らかとなった。

今後は、コスト削減を目的として、磁石量をどの程度減らせば、SPM磁気ギヤと同等のトルク性能を実現できるかについて検討するとともに、本稿で提案したIPM磁気ギヤの試作試験を行う予定である。

なお、本研究の一部はJSPS科研費 基盤(B)JP16H04310の助成を受け行った。

References

- 1) F. T. Jørgensen, P. O. Rasmussen, and T. O. Andersen: "Magnetic gears – a Review", Summer Seminar on Nordic Network for Multi Disciplinary Optimized Electric Drives (2003).
- 2) T. B. Martin, Jr.: "Magnetic transmission", U.S. Patent 3378710 (1968).
- 3) K. Atallah and D. Howe, *IEEE Trans. Magn.*, **37**, 2844 (2001).
- 4) T. Ikeda, K. Nakamura, and O. Ichinokura, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **34**, 380 (2010) (in Japanese).

2018年 10月 11日受理, 2019年 01月 06日採録

鍼を加熱するためのアプリケーションの熱解析と形状

Thermal Analysis and Structure of Applicator for Heat Acupuncture

山田外史^{a)†}・池畑芳雄^{b)}・池田慎治^{a)}^{a)} 公立小松大学生産システム科学部, 石川県小松市四丁町ヌ 1-3 (〒923-8611)^{b)} 金沢大学理工研究域, 石川県金沢市角間町 (〒920-1192)S. Yamada^{a)†}, Y. Ikehata^{b)}, and K. Ikeda^{a)}^{a)} Faculty of Production System Engineering and Sciences, Komatsu Univ., 1-3 Yoncho-machi, Komatsu 923-8611, Japan^{b)} College of Sciences and Engineering, Kanazawa Univ., Kakuma-machi, Kanazawa, 920-1192, Japan

Acupuncture and moxibustion are forms of oriental medicine that are used in medical treatment to stimulate the nerves of the body. In moxibustion treatment, thermal stimulation is applied through heat conduction from the outside of the skin by burning moxa near the skin, so there is an inevitable disadvantage of burning the skin. In this paper, we propose a novel applicator system of non-contact induction heating for avoiding this disadvantage. The acupuncture inserted in the skin is heated by electromagnetic induction heating and heat stimulation is applied selectively near the target to be stimulated. In addition, the configuration of the exciting coil of the proposed applicator allows the inside of the skin to be heated, so a thermal stimulation is possible near subcutaneous cells. We discussed the magnetic flux density distribution, heat capacity, and rising temperature theoretically and experimentally. We confirmed that the proposed is effective.

Key words: Acupuncture and moxibustion, applicator, induction heating, magnetic fields, heat stimulation, cancel coil

1. はじめに

東洋医学の「鍼灸医療」は、鍼や灸を用い身体に刺激を与えることで、多様な疾病への治療的や健康増進を目指す医療である。熱刺激を与える灸治療は、もぐさの燃焼による皮膚外からの熱伝導により人の皮膚へのやけどを与えるデメリットがある¹⁾。

非接触な誘導加熱により鍼治療用の鍼（医療用の市販の鍼，ステンレス製SUS304，直径0.25–0.30 mm，長さ30–50 mm）を体外に設置したコイルから励磁し，鍼を加熱し必要な皮下の熱刺激を与える。誘導加熱では，発熱量の制御の可能性がある，また磁界分布や鍼の電気特性などを考慮できれば，皮膚のやけどを避け，必要な体内への熱刺激を与えられる可能性がある。

本論文では，励磁コイル（アプリケーション）の構成や形状を検討し，誘導加熱する鍼の部分の磁界分布を制御し，上記のこれまでの灸治療の欠点の除く可能性を検討した。以下には，

- (1) 誘導加熱による鍼の発熱量，温度分布，
- (2) 鍼の発熱分布を考慮したコイル構成，
- (3) 試作コイルによる温度計測，

について記述する。

2. 誘導加熱による鍼の発熱量および加熱温度

2.1 鍼の温熱刺激

本論文で提案する手法は，鍼灸治療用の市販の鍼を用い，治療過程をできるだけ変更なく，また簡易な操作を目指した治療技術とする。Fig. 1は，誘導加熱による鍼の温熱刺激装置の概要である。癌のハイパーサーミア治療装置を参考に，100 kHz程度の高周波電源装置から励磁コイルとコンデンサによる直列共振回路を構成する²⁾。皮膚に刺した鍼に励磁コイルをセットし，鍼の軸方向の交流磁界を印加し鍼のうず電流損失による発熱により，皮下組織（脂肪層，筋肉層）を加熱，神経を刺激する。よって，鍼治療の付加的な医療操作なしに「灸の熱刺激」を可能にする。

市販の鍼は，ステンレス SUS304 製であるがその多くは永久磁

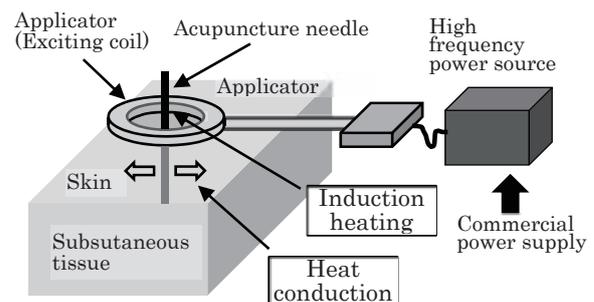


Fig. 1 Applicator system for heating acupuncture.

石に吸引され，線引の加工過程でマルテンサイト変態を生じ弱い磁性体であることが分かった。本研究では，励磁周波数は $f = 100$ kHz で誘導加熱により鍼金属のみが発熱し，体組織（皮膚，筋肉，脂肪組織など）の発熱は極めて小さく無視するとする。よって，体組織の上昇は，加熱体（鍼）のみからの熱伝導とし，毛細血管の熱輸送や熱放射は無視する。

熱刺激の必要な加温温度について，ここでは灸の熱効果からの評価ではなく，細胞の熱変性から加温の上昇温度の範囲 $T(K)$ を

$$7 \text{ K} < T < 24 \text{ K} \quad (1)$$

と設定する。体温を 36°C とすると(1)式の上下温度は， $43, 60^\circ\text{C}$ である。下限温度は，細胞のアポトーシスの温度であり，上限温度はタンパク質の熱変性の下限温度である^{3,4)}。

体組織の上昇温度の解析の簡単化のため，軸方向の高周波磁界下の電磁誘導によるうず電流損失による単位長さあたりの発熱量 $P(W/m)$ の解析，また鍼の発熱量がすべて鍼表面から均一な熱伝達媒質としての体組織に熱伝導するとして，上昇温度を解析する。解析は軸対称モデルとして行った。これらの解析結果において，(1)式に示す範囲の上昇温度の可能性を把握する。

2.2 電磁誘導による円柱金属の発熱量

誘導加熱の対象とする市販の鍼を非磁性または低比透磁率の円柱状導体金属体と仮定し、うず電流損失が発熱の主体としてヒステリシス損等を見捨てる。対象は Fig. 2 に示すモデルとし、円柱導体に軸方向の磁界を印加した場合、うず電流による円柱の単位長さ当たりの発熱量 $P(W/m)$ は、

$$P = \frac{\pi H_0^2}{\gamma} \frac{ka\{ber(ka)bei'(ka) - bei(ka)ber'(ka)\}}{\{ber^2(ka) - bei^2(ka)\}} \quad (2)$$

で与えられる⁵⁾。ここで、定数および関数は以下である。

- a (m) : 半径, γ (S/m) : 導電率,
- μ (H/m) : 透磁率, f (Hz) : 励磁周波数,
- H_0 (A/m) : 磁界の強さ, $k = \sqrt{\omega\gamma\mu}$ (1/m) : 定数,
- $ber(x)$, $bei(x)$: 第1種ケルビン関数,
- $ber'(x)$, $bei'(x)$: 第1種ケルビン関数の微分関数.

2.3 鍼(円柱モデル)からの熱伝導

加熱された円柱からの熱により周囲の媒質は温度上昇を生じる。ここでは簡単化のため軸対称モデルとする。発熱した細い鍼から体細胞への熱伝達において、Fig. 3 に示すように鍼の発熱量 P (W/m) の媒質への熱伝導のみとすると、媒質の鍼中央からの半径距離 r (m)、時間 t (s) において、上昇温度 T (K) は(3)式で与えられる⁶⁾。

$$T(t, r) = \frac{2Q}{K} \left(\frac{\kappa at}{r}\right)^{1/2} \left\{ i^1 \operatorname{erfc}(\alpha) - \frac{(3r+a)(\kappa t)^{1/2}}{4ar} i^2 \operatorname{erfc}(\alpha) + \right\} \quad (3-1)$$

$$\alpha = \frac{r-a}{2(\kappa t)^{1/2}} \quad (3-2)$$

ここで、

- $i^n \operatorname{erfc}(x)$: 相補誤差関数の n 次の累積積分,
- P (W/m) : 発熱量, $Q = PS$ (W/m²) : 熱束,
- S (m) : 円柱の単位長さあたり表面積,
- K (W/mK) : 熱伝導率, ρ (kg/m³) : 比重,
- c (J/kgK) : 比熱, 定数 : $\kappa = K/(\rho c)$, 係数 : $C (=1.79)$.

(3)式において、円柱導体の径が小さく、また十分時間が経過した時、すなわち $(a^2/\kappa t)$ の値が十分小さいとみなされるとき、(3)式の近似式、すなわち、

$$T(t, r) = \frac{Qa}{2K} \ln\left(\frac{4\kappa t}{Cr^2}\right) + O\left(\frac{a^2}{\kappa t}\right) \quad (4)$$

で与えられる。

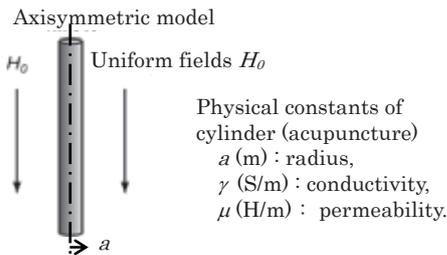


Fig. 2 Model of induction heating.

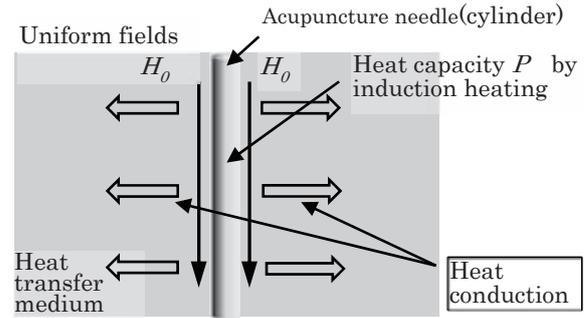


Fig. 3 Model of thermal transfer.

3. 鍼モデルの発熱解析と実験結果

Fig. 4 の平板型励磁コイルによる円柱導体の発熱量を(2)式に基づいて計算した。まず、励磁コイルによる軸上の磁界強さ H_0 を解析式を用いて計算し⁷⁾、軸の磁界分布に対して円柱導体の半径 ($a = 0.125$ mm) が十分細いとして(2)式を適用し発熱量 $P(z)$ を解析した。使用した鍼は材質 SUS304 の非磁性材料で作成されているが、加工過程でマルテンサイト変態を起こし磁性化している。試作した8字コイル法⁸⁾による計測器では比透磁率 μ_r は、1-10 程度ばらついた値であった。よって解析では、多く鍼が分布し実験に用いた鍼の比透磁率 $\mu_r = 4$ を適用した。また、導電率は Fig. 5 に解析結果を示す。コイル中央に対象な分布とはなるが、励磁コイルが体外に設置され皮膚内は幾分大きさが減少する。円柱導体の発熱量は、磁束密度分布に対して発熱量の分布はさらに急激に減少することとなる。

鍼の発熱により周りの媒質(生体)へ熱伝導し温度上昇する。Table 1 の生体の熱パラメータ値等を適用し⁹⁾、(4)式を用い鍼周りの上昇温度(体温からの温度差)を計算した結果が Fig. 6 である。この結果は、鍼の近傍に限るが(1)式で示した範囲での上昇温度を得ることができることを示す。

鍼灸治療用の鍼を用い加熱実験を行った。Fig. 7(a)は、実験モデルで試験管内の寒天を皮下組織のファントムとし、ソレノイドコイルにて励磁した。励磁周波数 $f = 133, 260$ kHz、温度測定点の鍼近傍にて磁束密度(波高値) $B = 8.0, 11.1$ mT_p と変化させて試験的に上昇温度の計測を行った。温度計測は、ファイバー温度計(安立計測機, FL2000)を用い、直径 0.8 mm^φ のプローブ先端を鍼に押し付け計測した。

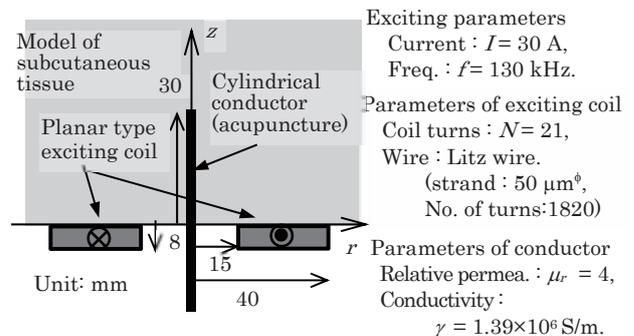
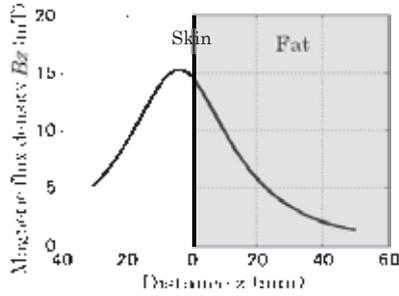
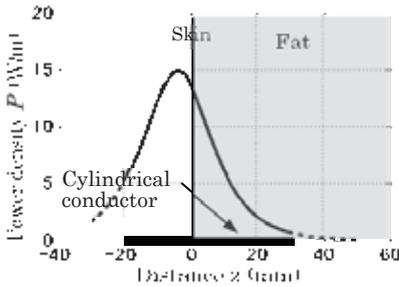


Fig. 4 Model of cylindrical conductor.



(a) Magnetic flux density

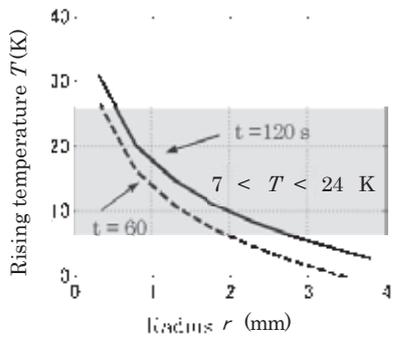


(b) Heat capacity P

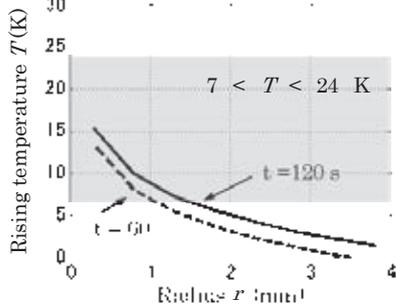
Fig. 5 Magnetic flux distribution and heat capacity on cylindrical conductor.

Table 1 Electromagnetic parameters of fat and agar

Items	Fat	Agar
Gravity ρ (kg/m ³)	9.17×10^2	1.0×10^3
Thermal conductivity K (W/mK)	0.203	0.582
Specific heat c (J/kgK) @ 20 °C	2.51×10^3	4.18×10^3



(a) Position $z = 0$ mm



(b) Position $z = 10$ mm

Fig. 6 Rising temperature of fat around cylindrical conductor.

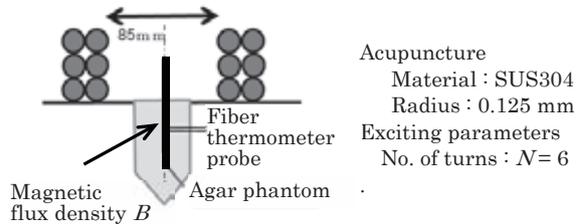
鍼と温度プローブの正確な間隔は明確ではなく、鍼の直径 (0.25 mm^φ) に比べプローブ径は大きくスポット的な温度計測ではないが、Fig. 7(b)の結果は、鍼からの熱伝導による寒天媒質の温度上昇を確認できた。励磁周波数、磁束密度を調整することで十分に(1)式を満たす範囲の上昇温度を実現することは可能である。

4. 磁界分布による鍼温度の制御

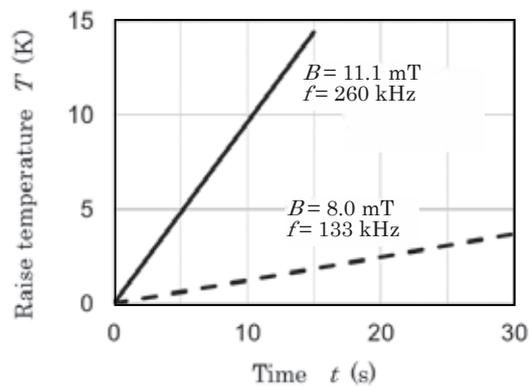
4.1 磁界抑制コイル付平面コイル

体外に設置したコイルからの励磁では皮下部より皮膚表面での磁束密度が高くなり、よって鍼の発熱量、上昇温度は大きくなる。これは一般的な灸治療での皮膚へのやけどなどを発生させるのと同様な現象となる。これを避ける方法として、皮膚近くの磁界の大きさを抑制するために主コイルの磁界と逆方向の磁界を局部的に発生させ、皮膚近くの発熱を抑えることを検討した。Fig. 8(a)が磁界抑制コイル付平面コイルと名づけたコイル構造である。Table 2にその形状、電気的パラメータを与える。主コイルに対して、逆巻きしたキャンセリングコイルを中央部分の置き、主コイルの磁界を弱めることを目的とする。主コイルとキャンセリングコイルには同じ電流を流す。磁束密度の分布の調整は、コイル巻数比で行う。製作したコイルはFig. 8(a)に示すように、ポビンをを用い折り返して巻く。コイルはリッツ線を用いた。

Fig. 9(a)は、ソレノイドコイルの解析式による z 軸上の磁界分布である。主コイルとキャンセリングコイルの巻数比は、 $N_2/N_1 = 6/21$ ではあるが、コイル中央の磁束密度は半分程度抑えられている。この中央の磁束密度は、ゼロにする必要がなく皮膚表面近の温度上昇がやけどなどを生じ



(a) Experimental model



(b) Rising temperature ($z = 5$ mm)

Fig. 7 Experimental results.

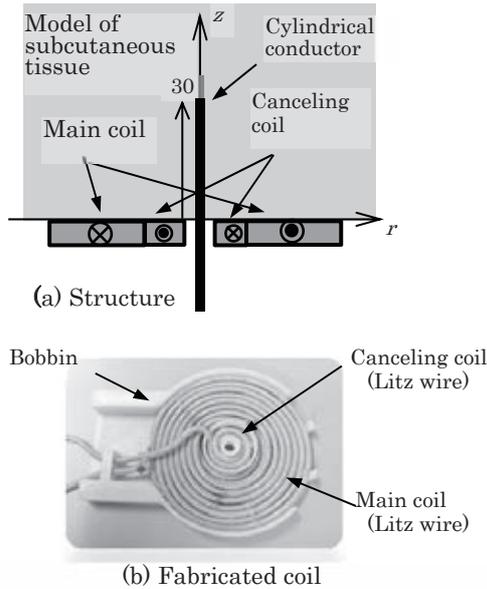


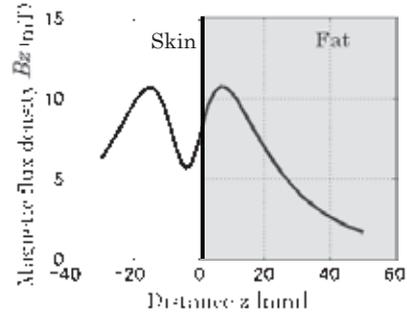
Fig. 8 Planer coil with canceling coil.

Table 2 Parameters of planer coil with canceling coil.

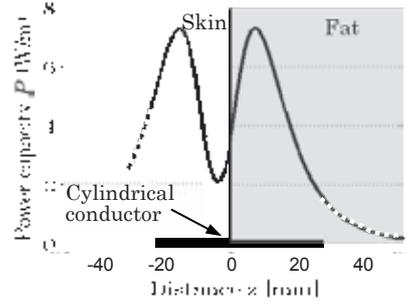
	Inner radius (mm)	Outer radius (mm)	Thick-ness (mm)	No. of turns
Main coil	15	40	9	21
Canceling coil	6.5	13	9	6
Electric items of series-connected main and canceling coils				
Inductance (μH)			20.2	
Resistance ($\text{m}\Omega$)			32.5	
Frequency (kHz)			130	
Current (A)			20.0	

ない程度でよい。磁束密度の最大点は皮膚表面 ($z=0$) から $z=7\text{ mm}$ に移動し、抑制部分の磁束密度の最低値は最大点に対して 0.56 倍、 $z=0$ では 0.72 倍に抑制された。本論文では、コイル形状比や抑制磁界と形状比の関係等は今後の検討とするが最適化によりさらに改善できる。Fig. 9(b)は、(2)式の発熱解析の式による鍼 ($a=0.125\text{ mm}$, $\mu_r=4$, $\gamma=1.39\times 10^6\text{ S/m}$) の発熱量 $P\text{ (W/m)}$ の分布である。発熱量は、磁界の強さ H_0 の 2 乗に比例するので発熱量の分布の大小の変化は明確になる。発熱量の最大値に対する抑制部分の最低値の比は 0.31 倍、 $z=0$ の点では 0.48 倍に抑制された。

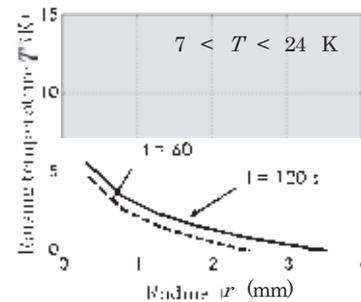
Fig. 9(c)は、Table 1 の脂肪の熱伝導のパラメータを用いた時の $z=5, 20\text{ mm}$ における上昇温度 $T\text{ (K)}$ を媒質を脂肪質として (4)式の発熱解析の近似式により計算した結果である。ここで上昇温度が零以下となるのは近似式による誤差である。(4)式は、1次元モデルで z 方向への熱伝導は考慮していないが、 r 軸の計算領域は $0.5 < r < 4\text{ mm}$ であり、この大きさでの z 方向の発熱分布は小さいと仮定した。Fig. 9(d)の磁束密度の最大値近傍 ($z=7\text{ mm}$) では、(1)式に示す必要な上昇温度を十分に満たすことができる。



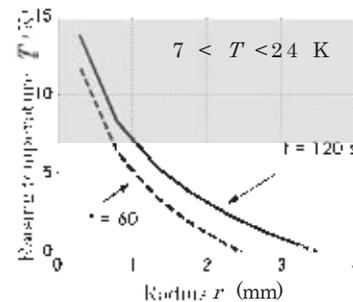
(a) Magnetic flux density at $r=0$



(b) Heat capacity P at acupuncture



(c) Rising temperature of medium around acupuncture at $z=0$ after $t=60, 120\text{ s}$ after excitation



(d) Rising temperature ($z=7\text{ mm}$)

Fig. 9 Analysis results of magnetic flux density, heat capacity, and rising temperature of planar coil.

実験により発熱の確認、発熱分布の検証のため、赤外線サーモビューア(テスト一機, testo 875i)を用い、赤外線の吸収を避けるため空気中にて測定した。誘導加熱による発熱分布の計測する目的で、熱伝導率の大きな鍼に沿った熱伝達を避けるため、電流印加後の約 10 s の短時間の経過した時の鍼の温度を計測した。Fig. 10 は、室温からの上昇温

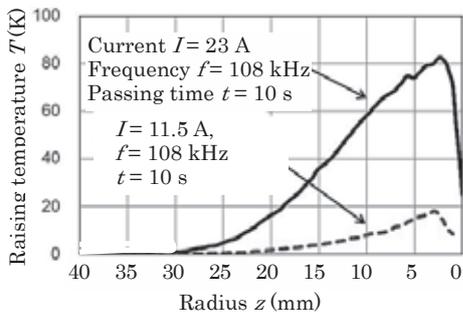
度を表す。周りの空気への熱伝導が小さく鍼の上昇温度は計算結果より大きな値である。位置 $z = 0 \text{ mm}$ はコイル面(皮膚表面), $z = 30 \text{ mm}$ は鍼先端である。磁束密度の抑制効果によりコイル面では発熱が抑制され, $z = 3 \text{ mm}$ 近傍で最大となっている。

4.2 磁気スリーブによるシールド付平面コイル

皮膚近傍の鍼の発熱量, 上昇温度を抑制するには励磁コイルからの磁束密度を制御する方法に対して, 鍼を磁気シールドすることにより発熱を抑えることができる。この場合においても, 磁気シールドする磁性体は皮膚外部のみ設置可能である。

Fig. 11 は, この方法でのコイルならびに鍼の磁気シールドの一般的構成である。磁気スリーブは, フェライト磁心の鍼の径に対して十分大きな穴のあるスリーブにより構成する。また, 体外部での磁束密度を抑制するためバックヨークも配置した。磁気スリーブの穴は磁気シールドされるが, 磁気スリーブの磁性体には磁束が収束される。

Fig. 12 は, 軸対称の2次元数値解析による磁束密度分布を示す, Fig. 12(a)の磁気スリーブの近傍での磁束線分布が示すように, 磁気スリーブを設置することにより磁束は収



(a) Temperature distribution on acupuncture.



(b) Photo of acupuncture by thermometer.

Fig. 10 Measurement of acupuncture temperature.

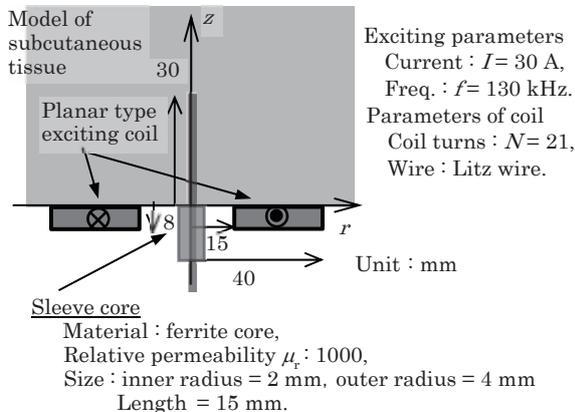


Fig. 11 Planar coil with magnetic shield.

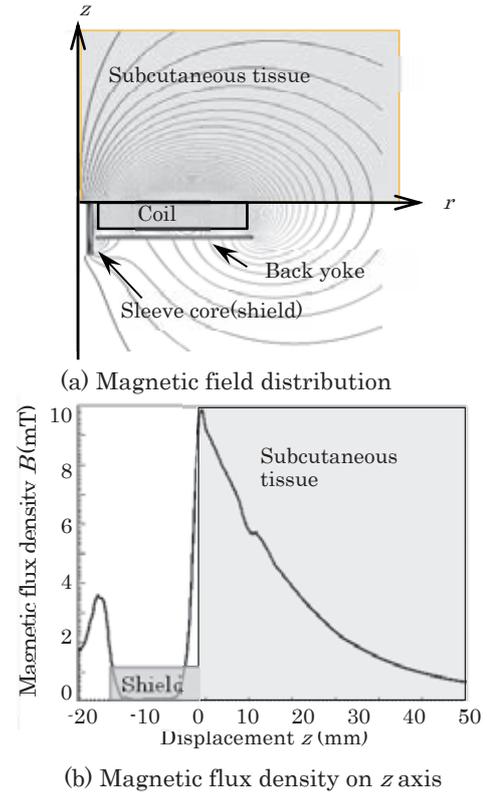


Fig. 12 Magnetic field distribution.

束され, 皮膚下の部分での磁束密度の抑制が起きない。Fig. 12(b)に示す z 軸上の磁束密度は, 磁気スリーブの部分では磁束密度は極めて減少するが, 磁気スリーブの先端から磁束が拡散し, 磁束密度がピークを示し返って増加することとなる。よって, 皮膚外の鍼の磁気シールドができるが, 本来の皮膚近傍での磁束密度の抑制, すなわち皮膚近傍の発熱の抑制はモデルでの単純な形状では困難である。しかし, 磁気スリーブや励磁コイルの形状等の最適化によっては目標の磁界分布とする可能性は否定できない。

5. まとめ

鍼の誘導加熱することにより「灸の熱刺激」が可能か, また皮膚近傍より下皮膚の脂肪や筋肉質を選択的に加熱, 熱刺激することができないか検討した。誘導加熱用の平面形アプリケーションのコイル構造を提案し, 理論的また実験的により磁束密度分布, 発熱量, 上昇温度を解析, 実験結果で検討した。

提案した磁界抑制コイル付平面コイルは, 皮膚の加熱の抑制した皮下の加熱の可能性を確認した。また, 市販の鍼(SUS304製, 直径 0.25 mm°)での発熱量, 脂肪質の熱伝導パラメータを用いた上昇温度の検討により熱刺激に必要な加熱ができる可能性を確認した。しかし, 深い皮下での加熱には問題があり, 励磁周波数, 鍼の磁気特性, コイル形状等の最適化への検討が必要である。

References

- 1) K. Mori, K. Saijy : *Harikyu Igaku Daijiten* (in Japanese), (Ishiyaku Shuppan, 2012).
- 2) S. Yamada, Y. Ikehata, T. Ueno, M. Kakikawa : *J. Magn. Soc. Jpn.*, **37**, 282 (2013).
- 3) Y. Yamazaki, I. Nagano, S. Yagitani, T. Maeda, K. Igarashi, K. Terai, H. Nagae, K. Tazawa : *JSAEM Studies in Applied Electromagnetics and Mechanics*, **14**, 241 (2003).
- 4) A.R. Moritz, F.C. HERRIQUES : *Studies of thermal injuries*, Am J. Pathol, 23:695-720 (1947).
- 5) J. Lammeraner, M. Staffl : *Eddy currents* (CRC Press , 1966), p.91.
- 6) H.S. Carslaw, J.C. Jaeger : *Conduction of Heat in Solids*, (Oxford at the Clarendon Press, 1959), p.339.
- 7) S. Takeyama : *Denjikigaku Gennshou Riron* (in Japanese), (Maruzen, 1969), p.252.
- 8) P.A. Calgano, D.A. Thompson : *Rev. Sci. Instrum.*, **46**, 904, (1973).
- 9) Bioelectromagnetic data : http://eprints.lib.hokudai.ac.jp/dspace/bitstream/2115/7706/1/5-2-3_p68-71 (as of Sept. 8, 2018).

2018年10月15日受理, 2018年11月23日再受理, 2018年12月08日採録

冷却ファン用高速回転モータの高トルク化・高効率化に関する検討

Torque and Efficiency Improvement of High-Speed Cooling-Fan Motor

川村 恭平[†], 中村 健二, 一ノ倉 理, *後藤 博樹, **郭 海蛟

東北大学 大学院工学研究科, 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-11 (〒980-8579)

*宇都宮大学 大学院工学研究科, 宇都宮市陽東 7-1-2 (〒321-8585)

**東北学院大学 工学部, 多賀城市中央 1-13-1 (〒985-8537)

K. Kawamura, K. Nakamura, O. Ichinokura, *H. Goto, **H. J. Guo

Tohoku University, Graduate School of Engineering, 6-6-11 Aoba Aramaki Aoba-ku, Sendai, Miyagi 980-8579, Japan

*Utsunomiya University, Graduate School of Engineering, 7-1-2 Yoto, Utsunomiya, Tochigi 321-8585, Japan

**Tohoku Gakuin University, School of Engineering, 1-13-1 Chuo, Tagajo, Miyagi 985-8537, Japan

This paper presents torque and efficiency improvement of high-speed permanent magnet (PM) motors for cooling-fans from the view point of the rotor structure. The first candidate is surface permanent magnet (SPM) motor, which has bonded Nd-Fe-B polar anisotropic magnets in order to obtain large torque and low iron loss. The second one is interior permanent magnet (IPM) motor, which has a two-layer-type rotor in order to obtain large reluctance torque. The both PM motors are compared in terms of torque and efficiency by using three-dimensional finite element method (3D-FEM). The IPM motor, which demonstrates higher efficiency, is prototyped and demonstrates larger torque and higher efficiency in comparison with a previous cooling-fan motor.

Key words: Cooling-fan motor, surface permanent magnet (SPM), interior permanent magnet (IPM)

1. はじめに

近年、産業、運輸、民生など、様々な分野で電動化が推進されており、モータの需要は拡大し続けるとともに、高出力化、高効率化の要求が年々強まっている。これらのモータはいわゆる動力用途であるが、最近では冷却用途としての需要も高まっている。これはスイッチング電源回路やモータ駆動回路など、いわゆるパワーエレクトロニクス回路の高周波化、高出力化に伴い、局所的な損失の増大と、それに伴う発熱の問題が顕在化しているためである。したがって、これらの回路の冷却に用いられるファンには、冷却性能を向上させるために、大型化、並びに高速回転化による風量・風圧の増大が要求されており、これを駆動するモータには高トルク化、高速回転化が求められている。

一方、従来、これらのファンに用いられるモータはコストが最優先であったため、有限要素法 (FEM) 等によるモータの最適設計に関する検討は不十分であり、効率も決して高くはない。そこで本稿では、今後重要視されることが予想される冷却ファン用高速回転モータの高トルク化と高効率化について、永久磁石 (PM) モータの回転子構造に着目し、比較・検討を行ったので報告する。

2. 比較・検討に用いた永久磁石モータ

本稿では、表面磁石型 (SPM) と埋込磁石型 (IPM) の回転子構造の異なる 2 種類の PM モータに関して、比較・検討を行う。なお、考察に用いたモータは、固定子よりも回転子の積み厚の方が大きい、いわゆるオーバーハン

グ構造を有するため、3次元 FEM を用いて算定を行った。設計目標は、従来機の仕様が定格回転数 9000 rpm、定格トルク 57 mN・m、および定格時の効率が 80%であるのに対し、冷却ファンの風量・風圧の増大の観点から定格回転数 12600 rpm、定格トルク 200 mN・m とし、さらにその時の設計上の効率を 93%以上とした。また、SPM、IPM モータともに、3相 6 スロット 4 極のインナーロータ型とし、体格や巻線の仕様もそろえることで、回転子構造に焦点を絞った比較を行えるようにした。

磁石材料については、高トルク化の観点からはネオジム焼結磁石が最適であるが、10000 rpm を超える高速回転になると、磁石渦電流損失による効率の低下が大きくなることが予想されるため、従来機と同様にネオジムボンド磁石を採用した。

また、一般的な冷却ファン用のモータは、コストの観点から、いわゆるオープンループの矩形波駆動が採用される場合が多いが、今後は高トルク化、高効率化の観点から電流ベクトル制御による正弦波駆動が採用されることを想定して、解析を行った。以下、各モータの特徴について述べる。

2.1 SPM モータ

一般的な SPM モータの回転子磁石は、Fig. 1(a)に示すようにラジアル方向に着磁される場合が多いが、本稿で採用したネオジムボンド磁石は、磁石性能という観点から見ると、ネオジム焼結磁石に劣ることから、ラジアル着磁ではなく、極異方着磁を採用する。同図(b)に示すように、

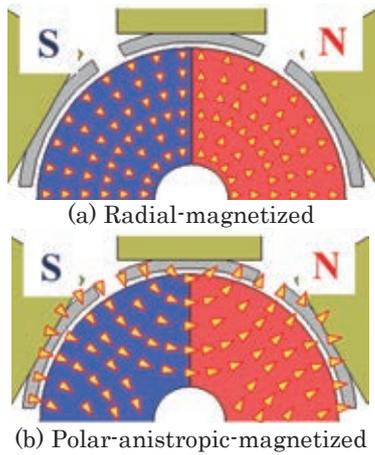


Fig. 1 Radial- and Polar-anisotropic-magnetized rotors of SPM motors.

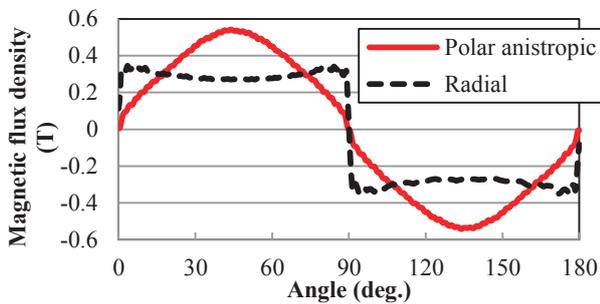


Fig. 2 Comparison of flux density distribution of the rotor surface of the SPM motors.

極異方性着磁は、磁化が磁極中心に集中するように円弧状に着磁され、その結果、空隙磁束分布は正弦波状になり、トルクに寄与する基本波成分の振幅が大きくなる^{1),2)}。

Fig. 2に、同図(a)のラジアル着磁の回転子と同図(b)の極異方性着磁の回転子について、FEMを用いて回転子表面から0.2 mm地点の磁束密度の空間分布を算定した結果を示す。この図を見ると、極異方性着磁にすることで、分布が正弦波状になり、振幅も大きくなっていることがわかる。

2.2 IPM モーター

IPM モーターは回転子鉄心に磁石を埋め込むことで、マグネットトルクに加えて、磁氣的突極性に由来するリラクタンストルクを利用することができる。ただし、磁気ブリッジ部で磁石磁束が短絡されるため、磁石からの有効磁束はSPMモーターよりも小さくなる。特に、残留磁束密度が焼結磁石よりも小さいボンド磁石では、その影響がより顕著に現れる。

そこで本稿では、Fig. 3に示すように、磁石を2層とし、かつ磁石をより深く埋め込むことで、磁石表面積の拡大を狙った。Fig. 4に、磁石が1層の場合と2層の場合の回転子表面から0.2 mm地点の磁束密度の空間分布の算定結果を示す。この図より、磁石層を2層にすることで、振幅が大きくなっていることがわかる。なお、リラクタンストルクの増大という観点からも2層化は有効である³⁾。

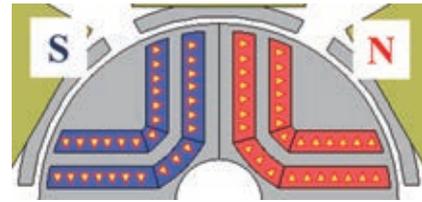


Fig. 3 Two-layer-type rotor of the IPM motor.

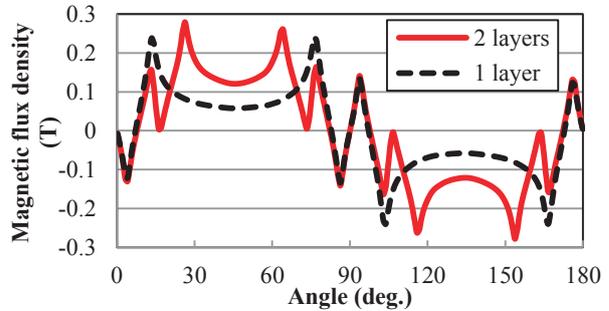


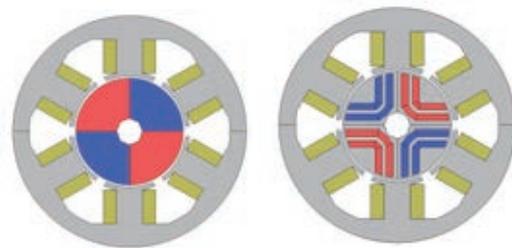
Fig. 4 Comparison of flux density distribution of the rotor surface of the IPM motors.

2.3 FEM 解析結果

前節までで述べた SPM モーターおよび IPM モーターについて、3次元 FEM を用いて特性の算定および比較・検討を行った。Fig. 5に両モーターの諸元を示す。

Fig. 6(a)に、電流密度対トルク特性を示す。この図より、SPM モーターの方がより低い電流密度で目標の200 mNmに達していることがわかる。これは極異方性着磁を採用したことによるところが大きいと考えられる。

一方、同図(b)には、銅損および鉄損の比較を示す。ここで、銅損は巻線抵抗 r と巻線電流 i を用いて、 ri^2 で算出した。鉄損は、FEM で得られた磁束密度分布からスタインメッツの実験式に基づき後計算で算定した⁴⁾。この図を見ると、銅損についてはトルクの大きい SPM モーターの方が小さいことがわかるが、鉄損については逆に IPM モーターの方が小さいことがわかる。これは SPM モーターの方が、



(a) SPM	(b) IPM
Motor diameter	54 mm
Rotor speed	12600 rpm
Number of turns/pole	48 turns/pole
Magnet pole pairs	2
Gap length	0.5 mm
Material of magnet	Bonded Nd-Fe-B
Material of iron core	35A300

Fig. 5 Specifications of SPM and IPM motors.

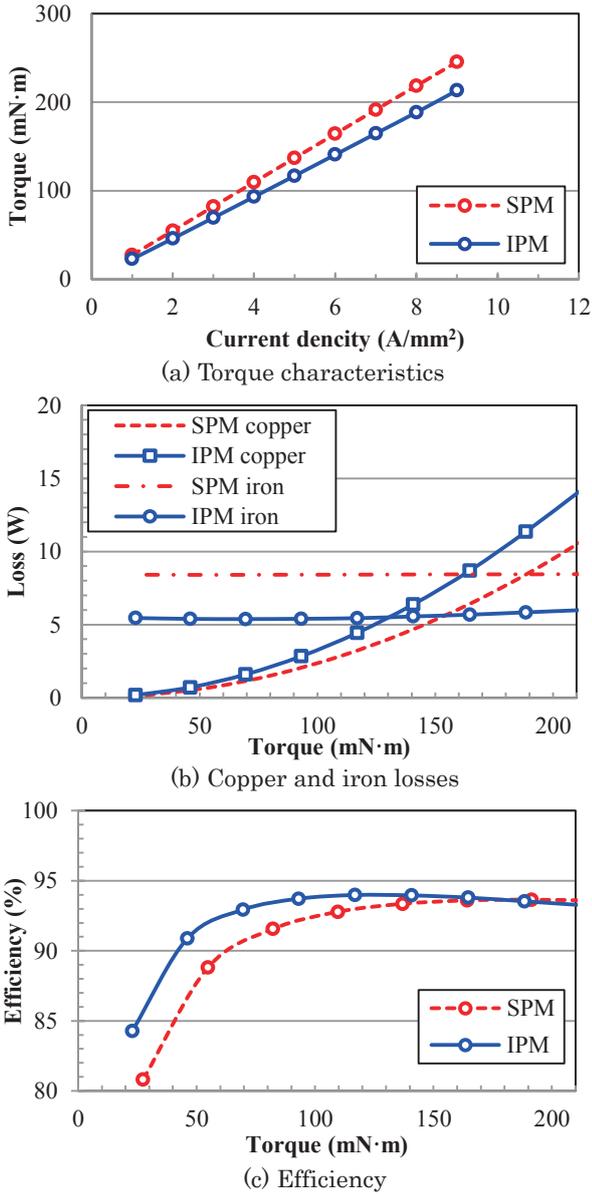


Fig. 6 Comparison of characteristics of the SPM and IPM motors.

磁石磁束の増加により、動作磁束密度が高くなったためである。すなわち、磁石磁束のみに頼ったトルク向上では、同時に鉄損の増大も招くことがわかる。

同図(c)は効率の比較である。ここで設計上の効率は、機械出力を P_{out} 、銅損を W_c 、鉄損を W_i として次式で求めた。なお、機械損や漂遊損は考慮していない。

$$\eta = \frac{P_{out}}{P_{out} + W_c + W_i} \times 100(\%) \quad (1)$$

この図を見ると、IPM モータの方が SPM モータよりも全般的に効率が高いことがわかる。これは IPM モータの場合、トルクの増大を磁石磁束のみに頼らずに、リラクタンストルクの活用もできることから、動作磁束密度を低く抑えることができ、その結果、鉄損を小さくできたことが理由として挙げられる。

3. 試作試験の結果と考察

3.1 試作試験結果

前章までの検討結果に基づき、IPM モータの試作試験を行った。Fig. 7 に試作した IPM モータの回転子の外観を、Fig. 8 に実験システムの外観を示す。今回の試作において、回転子は、磁石を着磁器によって所望の大きさと方向に着磁した後、回転子鉄心に挿入する形で作製した。

Fig. 9 に、試作機の電流密度対トルク特性を示す。また、比較のため、Fig. 6(a) に示した計算値も併せて示す。この図を見ると、計算値と実測値には誤差があり、特に両直線の傾きに差異があることがわかる。この傾きの差は、回転子磁石からの有効磁束の差が主たる要因であると考えられることから、解析・設計で想定したとおりの着磁分布が得られていない可能性が考えられる。

次いで、Fig. 10 に効率の比較を示す。なお、実測において効率は、入力電力 P_{in} と出力電力 P_{out} から次式で求めた。

$$\eta = \frac{P_{out}}{P_{in}} \times 100(\%) \quad (2)$$

この図より、試作機の効率は、従来機の効率 80% に対して大きく改善することはできたが、最高効率は約 88% であり、設計通りにはならなかった。この原因としては、Fig. 9 に示したトルクの低下や、機械損の影響、および漂遊損の影響が考えられる。



Fig. 7 Rotor core of the prototype IPM motor.

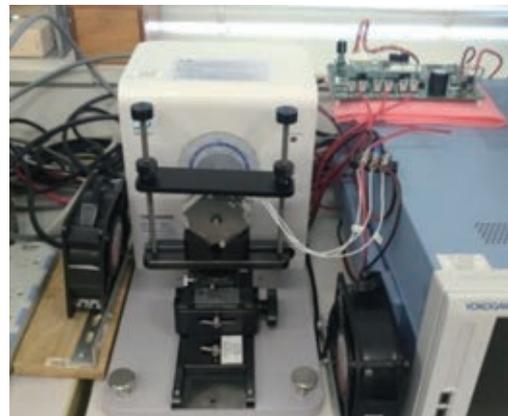


Fig. 8 External view of the experimental setup.

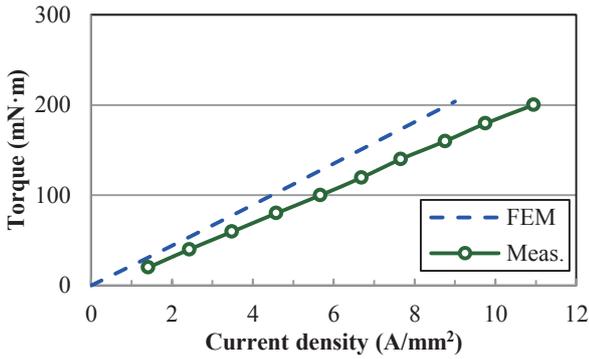


Fig. 9 Comparison of torque characteristics.

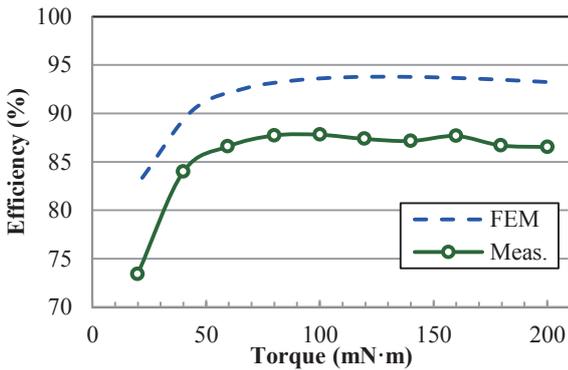


Fig. 10 Comparison of efficiency characteristics.

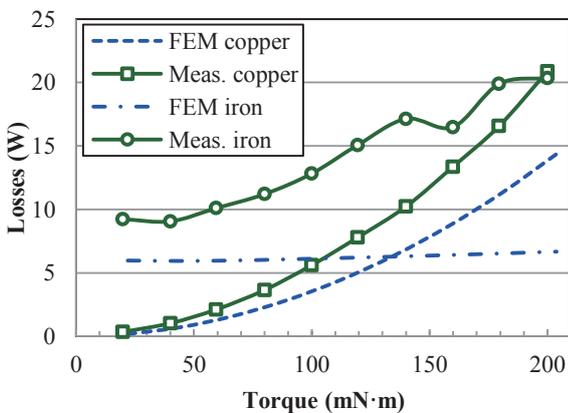


Fig. 11 Comparison of copper and iron losses.

Fig. 11 に、損失の比較を示す。実測において、銅損は巻線抵抗 r と巻線電流 i を用いて、 ri^2 で算出した。一方、鉄損については直接測ることができないため、次式のように入力電力から出力電力と銅損を引く形で求めた。

$$W_i = P_{in} - P_{out} - W_c \quad (3)$$

したがって、実測の鉄損には機械損 W_m や漂遊損 W_s が含まれる。この図を見ると、銅損、鉄損ともに実測値の方が大きいことがわかる。銅損については、トルク特性の低下が原因である。鉄損については、機械損や漂遊損など、FEM では考慮できない損失の影響が主たる要因であると考えられる。次節では、トルクおよび効率低下の要因について、さらに詳しい考察を行う。

3.2 効率低下の要因に関する考察

まず、トルク低下の原因として挙げた回転子磁石の着磁分布について検証を行った。Fig. 12 に、回転子表面の磁束密度分布の計算値と実測値を示す。実測では、回転子表面から約 0.2 mm 地点の磁束の径方向成分をプローブを用いて計測した。FEM では、実測と条件を合わせるため、同様に、回転子表面から 0.2 mm 地点の磁束の径方向成分を計算で求めた。この図より、計算値の方が振幅が大きいことがわかる。また、トルクに寄与する基本波成分を求めると、計算値は 168 mT、実測値は 142 mT となり、約 15% の差異があることがわかった。なお、Fig. 9 に示した計算値と実測値のトルク特性の傾きは計算値が約 23、実測値が約 20 であり、約 13% の差異であることから、試作機におけるトルク低下の主たる要因は、この着磁分布の差であるといえる。

次いで、漂遊損の原因について考察する。一般に、漂遊損の原因をすべて特定することは容易ではないが、ここではケース損に着目した。なぜならば、SPM モータと比べて、IPM モータは軸方向への漏れ磁束が大きいため⁵⁾、これがケースに鎖交し、渦電流損を生じさせる可能性があるためである。Fig. 13 に、モータケース含む解析モデルを示す。Fig. 14 に、ケース損の算定結果を示す。このときの回転数は 12600 rpm である。この図を見ると、ケース損はトルクに対して増加し、定格点で 7 W 程度であることがわかる。ここで Fig. 6(b) と Fig. 11 で示した計算

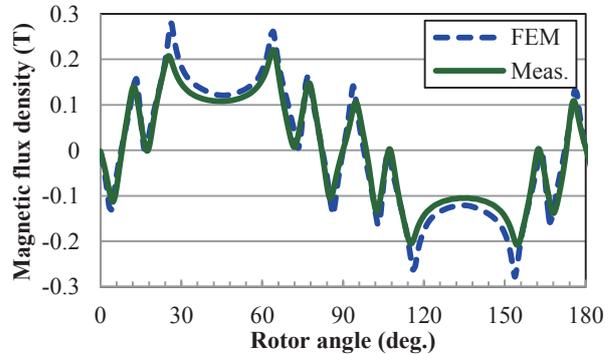


Fig. 12 Comparison of calculated and measured flux density distributions of the rotor surface.

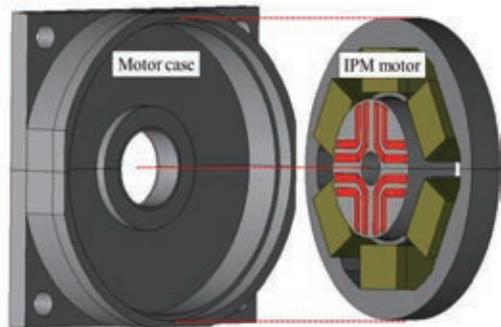


Fig. 13 FEM model for calculating eddy current loss in the motor case.

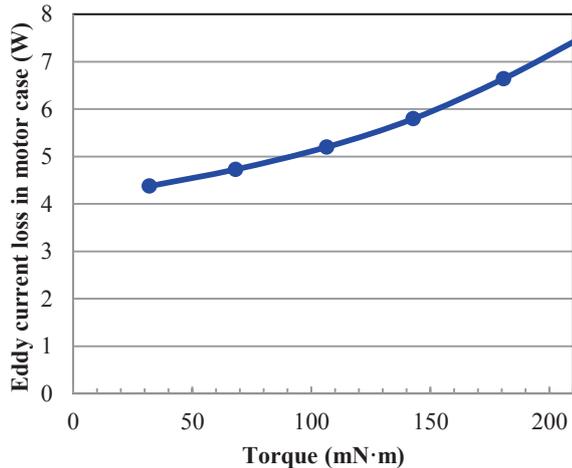


Fig. 14 Calculated eddy current loss in the motor case.

値と実測値の鉄損の誤差は、定格点で約 14 W であるため、ケース損だけではその差はすべて埋まらないが、無視できないほど大きいことが明らかになった。

4. まとめ

以上、冷却ファン用高速回転モータの高トルク化と高効率化について、永久磁石モータの回転子構造に着目し、比較・検討を行った。

まず初めに、極異方性着磁を採用した SPM モータ、および 2 層構造の回転子を採用した IPM モータについて、

3 次元 FEM を用いて特性の算定を行ったところ、トルク特性については SPM モータが上回ったが、動作磁束密度の増加によって鉄損も増大し、結果として効率は IPM モータの方が優れるという結果が得られた。

次いで、上述の結果に基づき、IPM モータの試作試験を行ったところ、従来機の効率 80% を大きく上回る約 88% の効率を得ることができた。ただし、設計上の効率である 93% には及ばなかった。この原因としては、設計通りの着磁分布を得られなかったことに由来するトルクの低下、並びに漏れ磁束によるケース損が原因の一つとして考えられることを、FEM の解析に基づき定量的に明らかにした。

今後は、今回明らかになったトルク低下および損失の発生要因に基づき、改良設計したモータの試作試験を行う予定である。

References

- 1) S. Kitamura, Y. Ishihara, T. Todaka, and Y. Inoue, *IEEJ Trans. IA*, **117**, 1001 (1997) (in Japanese).
- 2) M. Fukuoka, K. Nakamura, and O. Ichinokura, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **36**, 123 (2012) (in Japanese).
- 3) Y. Takeda, S. Morimoto, N. Matsui, and Y. Honda, “Umekomi Jishaku Mo-ta no Sekkei to Seigyō”, OHM (2001) (in Japanese).
- 4) IEEJ Technical Report No. 855, pp. 10-11 (2001) (in Japanese).
- 5) T. Nonaka, A. Toyota, and M. Motomichi, *Journal of the Japan Society of Applied Electromagnetics*, **24**, 43 (2016) (in Japanese).

2018年10月11日受理, 2018年11月28日再受理, 2019年1月7日採録

LLG 方程式を用いた鉄心加工に伴う磁気特性変化の予測手法

Prediction Method of Magnetic Properties in Magnetic Core due to Machining Process

by using LLG Equation

羽根 吉紀^{a)†}・中村 健二^{a)}, 吉岡 卓哉^{b)}・川瀬 剛志^{b)}・石川 智一^{b)}^{a)}東北大学 大学院工学研究科, 仙台市青葉区青葉 6-6-11 (〒980-8579)^{b)}(株)デンソー, 愛知県刈谷市昭和町 1-1 (〒448-8661)Y. Hane^{a)†}, K. Nakamura^{a)}, T. Yoshioka^{b)}, T. Kawase^{b)}, and T. Ishikawa^{b)}^{a)}Tohoku University, Graduate School of Engineering, 6-6-11 Aoba Aramaki Aoba-ku, Sendai 980-8579, Japan^{b)}DENSO CORPORATION., Inc., 1-1 Showacho, Kariya, Aichi 448-8661, Japan

An analytical method taking deterioration of magnetic core due to machining process into consideration and finding the optimum processing method are essential to development of high-efficiency electric machines. In a previous paper, simplified Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) equation, which expresses the behavior of magnetizations inside the magnetic core, was used for calculating magnetic properties of the electromagnetic steel sheet. It was demonstrated that the proposed method can express the dynamic behavior of the magnetic core including manor loops. This paper presents a novel prediction method of magnetic properties in the machined magnetic core by using the simplified LLG equation.

Key words: Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) equation, hysteresis loop, magnetic properties prediction

1. はじめに

近年, 地球環境保全および省エネルギーの観点から, 高効率な電気機器の開発が望まれている. ここで, モータなどの電気機器の鉄心材料に使用される電磁鋼板は, 製造工程における加工の際, 結晶粒に歪みが生じ, この影響で磁気特性が変化し, 機器の性能が低下することが知られている. したがって, 電気機器の高効率化のためには, 加工による磁気特性の変化まで考慮した解析手法の確立, 並びに鉄心材料の最適な加工法の構築が必要不可欠である. しかしながら, 任意の鉄心材料の加工後のヒステリシスループを実測することは, 必ずしも容易ではないことから, 何らかの方法による推測が必要である.

磁気特性の表現手法は, 主に物理モデルと現象論的モデルに大別される. その中で, 物理モデルの一つである Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程式を用いる手法は, 磁性体内部の微小な磁化の挙動や分布まで表現可能であり, 磁壁や磁気異方性, 磁化同士の相互作用など, ミクロな磁気現象を詳細に模擬できる. しかしながら, 解析モデルが大規模になるため, 一般に電気機器の解析には適用困難である. これに対して文献 1)では, 磁壁を直接考慮しないなど, いくつかの仮定を設けることで, 電磁鋼板の磁気特性を表現する手法が提案されている. 先に筆者らは, この簡略化された LLG 方程式を磁気回路モデルに組み込むことで, マイナーループまで含めた鉄心の動的な挙動を精度良く模擬できることを明らかにした²⁾.

本稿では, この簡略化された LLG 方程式を用いて, 加工前後の磁気特性から任意の圧延を施した電磁鋼板の磁気特性を推定する手法について検討を行ったので報告する.

2. 簡略化の仮定を取り入れた LLG 方程式

本章では, LLG 方程式の原理, 並びに文献 1)で提案された簡略化の仮定について述べる.

LLG 方程式による磁化分布の解析においては, 解析領域を複数の要素に分割して各要素を磁化ベクトル \mathbf{M}_i で表し, これらの挙動を次に示す LLG 方程式を用いて解くことで, 磁性体内の磁化分布を求めることができる.

$$\frac{d\mathbf{m}_i}{dt} = -\gamma(\mathbf{m}_i \times \mathbf{H}_{eff}) + \alpha(\mathbf{m}_i \times \frac{d\mathbf{m}_i}{dt}) \quad (i=1 \sim n) \quad (1)$$

ここで, $\mathbf{m}_i = (m_{ix}, m_{iy}, m_{iz})$ は大きさが1になるように規格化された磁化ベクトルであり, 飽和磁化 M_s を用いて $\mathbf{m}_i = \mathbf{M}_i / M_s$ で与えられる. また, $\gamma = 2.21 \times 10^5$ m/(A·s) はジャイロ磁気定数, $\alpha = 1$ は Gilbert の損失定数と呼ばれる無次元数, \mathbf{H}_{eff} は有効磁界である.

一般に, LLG 方程式における有効磁界 \mathbf{H}_{eff} は次式で与えられる.

$$\mathbf{H}_{eff} = \mathbf{H}_{app} + \mathbf{H}_{ani} + \mathbf{H}_{mag} + \mathbf{H}_{exc} \quad (2)$$

ここで, \mathbf{H}_{app} は印加磁界, \mathbf{H}_{ani} は異方性磁界, \mathbf{H}_{mag} は静磁界, \mathbf{H}_{exc} は交換磁界である. これらの磁界をすべて考慮することで, 結晶粒よりもさらに小さい磁区や磁壁を含む, 磁化の詳細な挙動や分布を求めることができる. しかしながら,

本手法をそのまま電気機器の解析に適用することは、計算機容量や計算時間の観点から事実上不可能である。また、実際の電磁鋼板の磁気ヒステリシスは、磁歪による磁気弾性効果や内部応力、材料に含まれる不純物や結晶の格子欠陥など、様々な要因の影響を受けることから、これらを正確に解析に取り入れることは必ずしも容易ではない。

上述の問題に対し、文献 1)ではいくつかの仮定を設けることで、実用的な計算時間で精度良く電磁鋼板の磁気ヒステリシスを計算する手法が提案されている。具体的には、まず、本来は多磁区構造を有する結晶粒を、単磁区構造とみなすことで、磁壁の移動を表す交換磁界を無視する。一方で、交換磁界を無視したことによって、磁壁移動による磁化反転が表現できなくなった代わりに、異方性磁界の強さを表す係数を物理定数よりも小さくすることで、磁化を反転しやすくしている。また、本来であれば、各々の磁化に作用する静磁界は場所によって異なるが、これらをすべて計算することは、計算時間の観点から実用的ではないことから、全磁化の平均値を用いて近似的に与えている。さらに、上述の静磁界による影響に加えて、磁歪による磁気弾性効果や格子欠陥などの影響を、文献 1)では磁気弾性エネルギー E_{ela} による磁界 H_{ela} と称して有効磁界に加えている。したがって、文献 1)における有効磁界は以下の式で与えられる。

$$H_{eff} = H_{app} + H_{ani} + H_{ela} \quad (3)$$

(3)式の異方性磁界 H_{ani} は、以下の式で表される。

$$H_{ani} = -\frac{1}{M_s} \frac{\partial E_{ani}}{\partial m_i} \quad (4)$$

$$E_{ani} = \frac{h_{ani} M_s}{2} (a_1^2 a_2^2 + a_2^2 a_3^2 + a_3^2 a_1^2) \quad (5)$$

ここで、 E_{ani} は異方性エネルギーである。 h_{ani} は異方性磁界係数であり、先述の理由から物理定数よりも小さい値を与えている。また、 a_1, a_2, a_3 は各要素の磁化容易軸に対する方向余弦である。

(3)式の磁気弾性エネルギーによる磁界 H_{ela} は、以下の式で与えられている。

$$H_{ela} = -\frac{1}{M_s} \frac{\partial E_{ela}}{\partial m_i} \quad (6)$$

$$E_{ela} = \sum_{j=1}^n b_{2j} m^{-2j} \quad (7)$$

$$\bar{m} = \sqrt{\left(\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N m_{ix}\right)^2 + \left(\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N m_{iy}\right)^2 + \left(\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N m_{iz}\right)^2} \quad (8)$$

ここで、 $b_2 \sim b_{2n}$ は係数である。(8)式を見るとわかるように、文献 1)において、 E_{ela} は様々な要因に由来する磁化同士の相互作用を考慮するために、平均規格化磁化 \bar{m} の偶数次の項だけを持つべき級数で与えられている。したがって、(6)式の磁界は、平均規格化磁化 \bar{m} の奇数次の項だけを持つべき級数となることから、主として磁気特性の非線形性を表していることがわかる。

3. LLG 方程式を用いた加工に伴う磁気特性変化予測

Table 1 および Fig. 1 に、それぞれ測定に用いた試料の諸元および寸法を示す。試料 No. 0 は、無加工の材料である。一方、試料 No. 1~4 は、試料 No. 0 に対してそれぞれ異なる大きさの圧延が施されている。ここで、表 1 に示す圧延率とは、加工前の試料の板厚に対する加工後の板厚の減少率を指す。

Fig. 2 に、各試料の最大磁束密度 1.0 T における直流ヒステリシスループの実測値を示す。なお、これらの直流ヒステリシスループは、文献 3)で提案された手法を用いて、周波数 50, 100, 200 Hz におけるヒステリシスループの実測値より導出した。この図を見ると、圧延されることでループの形状が元の状態から大きく変化することがわかる。

ここで、鉄心材料の無加工時の磁気特性を元に加工後の磁気特性を予測するにあたり、本稿では LLG 方程式のパラメータと圧延率の關係に着目する。Fig. 3 に、LLG 方程式のパラメータとヒステリシスループの形状との対応關係を示す。図に示すように、異方性磁界係数 h_{ani} は、保磁力に比例するパラメータである。また、磁気弾性エネルギーの係数 $b_2 \sim b_{2n}$ は、ヒステリシスループの非線形性を表現するパラメータであり、同図の第 1 象限の上昇曲線の形状から求まる。LLG 方程式の各パラメータと圧延率の關係を導出するために、各試料の直流ヒステリシスの実測からの推定値からパラメータを算出した。

Table 1 Specifications of test samples.

Sample No.		0	1	2	3	4
Rolled ratio	%	0	3	6	9	12
Density	kg/m ³	7600				

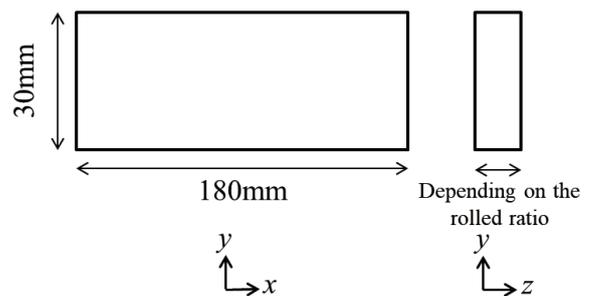


Fig. 1 Dimensions of the test samples.

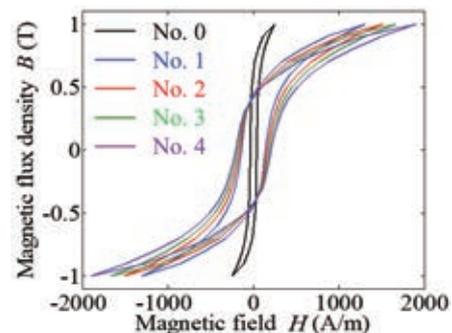


Fig. 2 Estimated dc hysteresis loops of each sample.

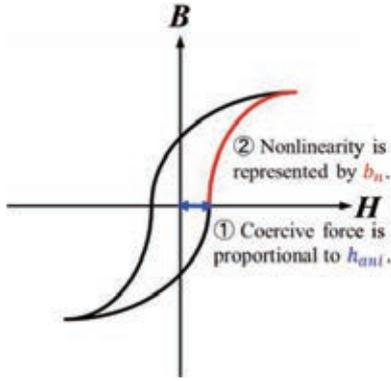


Fig. 3 Relationship between parameters of the LLG equation and a shape of hysteresis loop.

Table 2 Parameters of the LLG equation.

No.	0	1	2	3	4
h_{ani}	109	404	471	546	611
b_2	-1.51	2.86×10^2	3.43×10^2	4.41×10^2	5.00×10^2
b_4	8.21×10^2	2.24×10^3	2.80×10^3	3.04×10^3	3.65×10^3
b_6	-1.61×10^4	5.76×10^3	5.74×10^3	6.01×10^3	6.12×10^3
b_8	2.10×10^5	-1.24×10^4	-1.28×10^4	-1.35×10^4	-1.42×10^4
b_{10}	-1.39×10^6	9.50×10^3	9.60×10^3	9.85×10^3	1.05×10^4
b_{12}	5.39×10^6	-	-	-	-
b_{14}	-1.28×10^7	-	-	-	-
b_{16}	1.83×10^7	-	-	-	-
b_{18}	-1.44×10^7	-	-	-	-
b_{20}	4.78×10^6	-	-	-	-

Table 2 に、導出した LLG 方程式のパラメータを示す。また、Fig. 4 に、Table 2 に示すパラメータを用いて計算した直流ヒステリシスを示す。これらの図を見ると、各試料の直流ヒステリシスについて、LLG 方程式を用いた計算値は、文献 3) に基づく実測からの推定値と良好に一致していることが了解される。

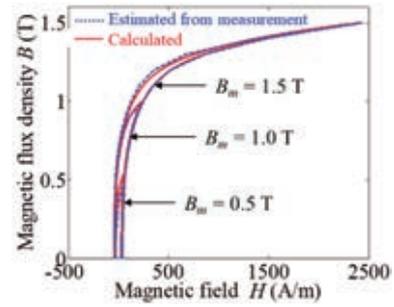
Table 2 の結果より、まずは h_{ani} の推定について検討を行う。Fig. 5 に、試料 No. 0~4 について算出した h_{ani} と圧延率 x の関係を示す。この図を見ると、圧延率の増加に伴い、 h_{ani} は単調増加していることがわかる。ここで、任意の圧延率における h_{ani} を推定するにあたり、加工前後での h_{ani} の比を圧延率 x の関数 $h_{anir}(x)$ として、次式のように定義する。

$$h_{anir}(x) = \frac{h_{ani}(x)}{h_{ani}(0)} \quad (9)$$

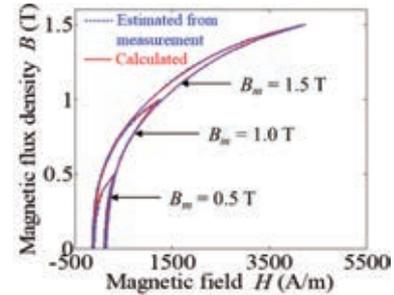
Fig. 6 に、 $h_{anir}(x)$ と圧延率の関係を示す。この図を見ると、圧延率 3~12% において、 $h_{anir}(x)$ はほぼ線形に変化していることがわかる。したがって、 $h_{anir}(x)$ は次に示すような関数で近似することができる。

$$h_{anir}(x) = \alpha x + \beta \quad (10)$$

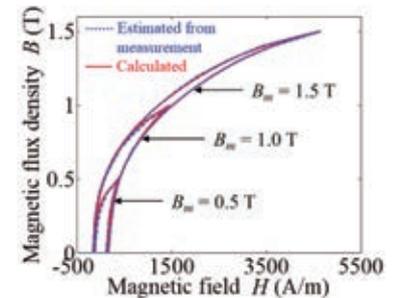
ここでは、 $\alpha = 21.19, \beta = 3.05$ と求まる。このように、(10)



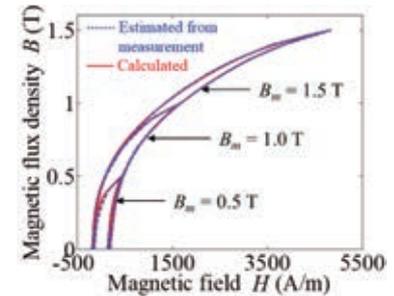
(a) Sample No. 0



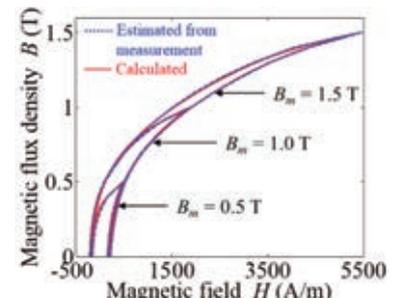
(b) Sample No. 1



(c) Sample No. 2



(d) Sample No. 3



(e) Sample No. 4

Fig. 4 Comparison of estimated and calculated dc hysteresis of each test sample.

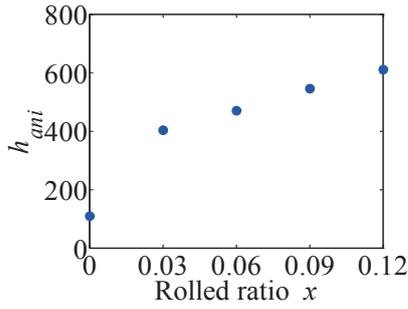


Fig. 5 Relationship between rolled ratio x and h_{ani} .

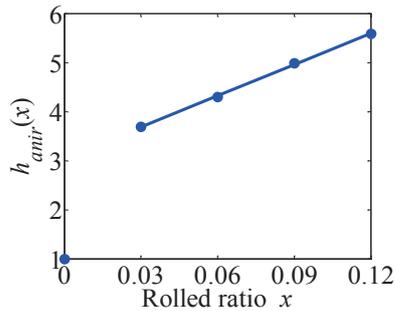


Fig. 6 Relationship between rolled ratio x and $h_{anir}(x)$.

式を用いることで、任意の圧延率における h_{ani} の値を推定できると考えられる。ただし、無加工と圧延率 3%の間を関数化できるかどうかについては、今後検討を行う必要がある。

次いで、 $b_2 \sim b_{2n}$ の推定について検討を行う。Fig. 7 に、試料 No. 1~4 について算出した $b_2 \sim b_{10}$ と圧延率 x の関係を示す。この図を見ると、 h_{ani} の場合とは異なり、 $b_2 \sim b_{10}$ は圧延率 x に対して、単調な変化にはなっていないことがわかる。したがって、圧延率を用いて単純な関係式で表すことは困難であることから、 $b_2 \sim b_{2n}$ の予測については、別の視点で考える必要がある。

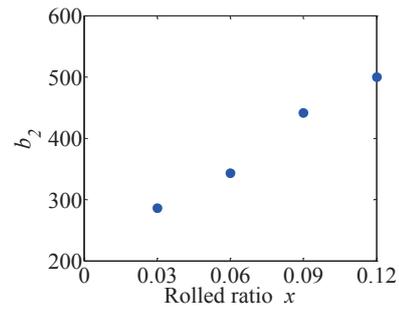
ここで $b_2 \sim b_{2n}$ は、Fig. 3 に示したように、ヒステリシスループの第 1 象限の上昇曲線の形状を表すパラメータである。したがって、加工した任意の材料について $b_2 \sim b_{2n}$ を決定するためには、加工後のヒステリシスループの第 1 象限の上昇曲線を予測すればよい。そこで、磁束密度 B の関数 $g(B)$ を以下のように定義する。

$$g(B) = \frac{1}{h_{anir}} \times \frac{H_{pre}(B)}{H_{nonpre}(B)} \quad (11)$$

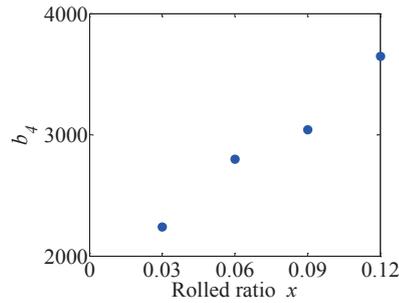
ここで、 $H_{nonpre}(B)$ 、 $H_{pre}(B)$ はそれぞれ、加工前後の試料のヒステリシスループの上昇曲線のうち、磁束密度 B が正の領域における磁界強度である。Fig. 8 に、試料 No. 1~4 のそれぞれについて導出した $g(B)$ およびその平均値を示す。このように、 $g(B)$ は圧延率によらずほぼ一定の傾向を示すことがわかる。したがって、試料 No. 1~4 の $g(B)$ の平均 $g_{ave}(B)$ を、以下に示すような多項式で近似する。

$$g_{ave}(B) = aB^5 + bB^4 + cB^3 + dB^2 + eB + 1 \quad (12)$$

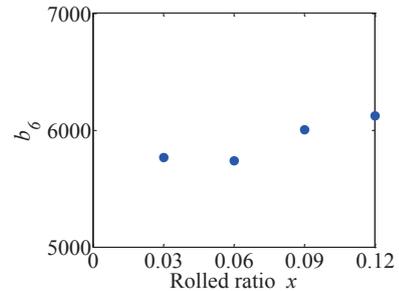
ここでは、Fig. 8 より、 $a=2.16$ 、 $b=-6.37$ 、 $c=5.06$ 、 $d=-1.61$ 、



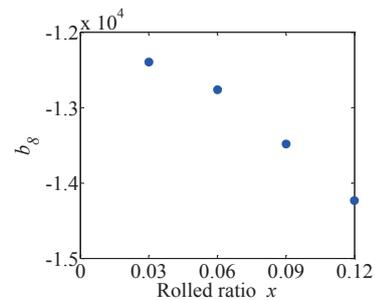
(a) b_2



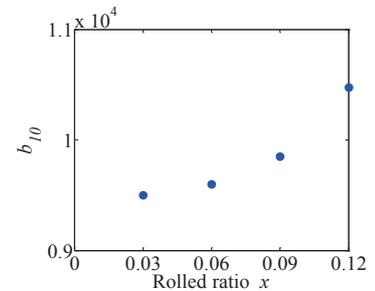
(b) b_4



(c) b_6



(d) b_8



(e) b_{10}

Fig. 7 Relationship between rolled ratio x and $b_2 \sim b_{10}$.

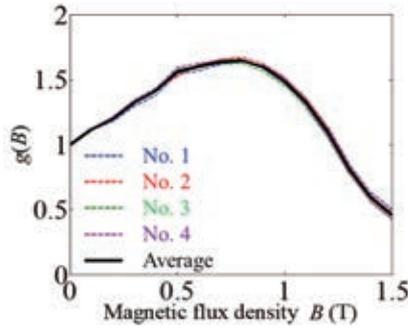


Fig. 8 Relationship between magnetic flux density B and $g(B)$ of each test sample and average values.

$e = 1.25$ と求まる. これを(11)式に代入して, 次式を得る.

$$H_{pre}(B) = h_{anir} \times H_{nonpre}(B) \times g_{ave}(B) \quad (13)$$

以上より, (13)式を用いて任意の圧延率における磁界強度 $H_{pre}(B)$ を計算することで, 加工後のヒステリシスループの上昇曲線を予測し, そこから $b_2 \sim b_{2n}$ を決定できると考えられる.

上述の提案手法の妥当性を確認するため, 計算したヒステリシスループを, Fig. 4 に示した実測からの推定値と比較検証した. Fig. 9 に, 試料 No. 1~4 の直流ヒステリシスの実測からの推定値と計算値を示す. これらの図を見ると, 高磁束密度においてわずかに誤差が見られるものの, 実測からの推定値と計算値が概ね一致していることから, 提案手法の妥当性が了解される.

4. まとめ

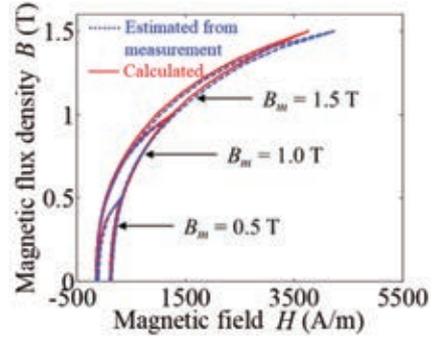
以上, 本稿では, 文献 1)の簡略化された LLG 方程式を用いて, 加工前後の磁気特性から任意の圧延を施した電磁鋼板の磁気特性を推定する手法について検討を行った.

簡略化された LLG 方程式において, ヒステリシスループの形状を決定するパラメータに着目し, 加工前後の各パラメータと圧延率の関係を明らかにするとともに, これを用いて任意の圧延を施した電磁鋼板の磁気特性を精度良く予測する手法を提案した.

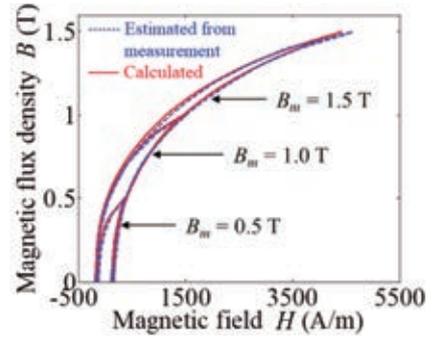
今後は, 提案手法を用いて予測した加工後の磁気特性を, モータ等の電気機器の解析・設計に適用する予定である. さらに, 圧延率 0~3 %, 並びに 12%以上における LLG 方程式のパラメータと圧延率の関係の導出, 並びに磁気特性予測を行う予定である.

References

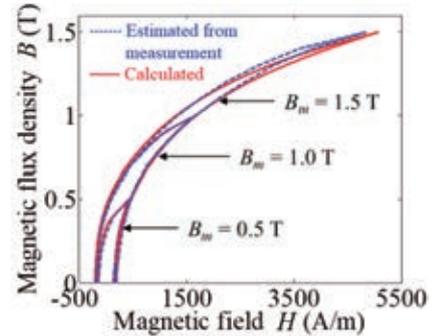
- 1) A. Furuya, J. Fujisaki, Y. Uehara, K. Shimizu, H. Oshima, Y. Murakami, and N. Takahashi, *The Papers of Joint Technical Meeting on "Static Apparatus" and "Rotating Machinery", IEE Japan*, SA-13-6, RM-13-6 (2013) (in Japanese).
- 2) H. Tanaka, K. Nakamura, and O. Ichinokura, *IEEEJ Trans. FM*, **134**, 243 (2014) (in Japanese).
- 3) J. Kitao, K. Hashimoto, Y. Takahashi, K. Fujiwara, Y. Ishihara, A. Ahagon, and T. Masuo, *The Papers of Joint Technical Meeting on "Static Apparatus" and "Rotating Machinery", IEE Japan*, SA-12-16, RM-12-16 (2012) (in Japanese).



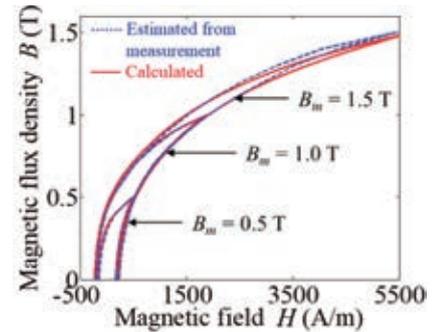
(a) Sample No. 1



(b) Sample No. 2



(c) Sample No. 3



(d) Sample No. 4

Fig. 9 Prediction results of dc hysteresis loops of each test samples by using the proposed LLG Equation.

2018年10月05日受理, 2018年12月30日採録

水平方向からの磁場が磁気浮上鋼板に与える影響 (張力の印加位置に関する実験的検討)

Effect of Magnetic Field from Horizontal Direction on Magnetically Levitated Steel Plate (Experimental Consideration of Applied Position of Tension)

伊藤誉淳^{a)}・小田吉帆^{a)}・成田正敬^{a)†}・加藤英晃^{a)}

^{a)} 東海大学大学院工学研究科機械工学専攻, 神奈川県平塚市北金目 4-1-1 (〒259-1292)

Y. Ito^{a)}, Y. Oda^{a)}, T. Narita^{a)†}, H. Kato^{a)}

^{a)} Tokai Univ., 4-1-1 Kitakaname, Hiratsuka-shi, Kanagawa 259-1292, Japan

Thin steel plates are widely used in various industrial products, and these products demand plates with a high-quality surface. However, there is a problem in that surface quality and metal plating are degraded during transport. As a solution to this, non-contact transport of steel plates electromagnetic force has been proposed. It was previously confirmed that, by applying a magnetic field in the horizontal direction, the levitation stability of transported thin steel plates improved under different transport conditions. However, the positions at which to install the electromagnets in the horizontal direction has not yet been investigated. Therefore, in this report, we investigated the positions at which a magnetic field should be applied in the horizontal direction and confirmed that the positions are related to improving the levitation stability of steel plates.

Key words: electromagnetic levitation control, thin steel plate, magnetic field, transportation, finite difference methods

1. はじめに

薄鋼板は多種多様な工業製品に広く重用されているが、その製造工程においてローラとの接触によるメッキの不良や表面品質の劣化により大きな問題が生じている。この問題の解決策として磁気浮上による鋼板の非接触搬送技術が活発に検討されている¹⁻³⁾。しかし、磁気浮上技術に関する研究の多くは浮上対象が剛体と考慮できる物体についての検討であり、複雑な変形を起こす柔軟性がある物体の磁気浮上についての報告は少ない。当研究グループでは薄く柔軟で浮上制御が困難である薄鋼板に着目し、鉛直方向に浮上制御を行うだけでなく、鋼板のエッジ部に電磁石ユニットを設置したシステムを提案している。エッジ部に設置した電磁石により鋼板の水平方向に位置決め制御を行うことで横滑りや落下を防止し、非接触支持搬送が可能であることを明らかにした⁴⁾。さらに有限要素法による水平方向の磁場の電磁界解析を行い鋼板に加わる吸引力を得て、有限差分法を用いた浮上中の鋼板形状を算出した。これに基づき実施した浮上実験では、水平方向からの磁場により柔軟鋼板のたわみが抑制でき、浮上中の安定性を向上できることを明らかにした⁵⁾。エッジ部に設置した電磁石からの磁場の強さを変化させることで様々な搬送条件でも浮上安定性が向上することを確認している。一方、エッジ部に設置した電磁石から鋼板に印加する磁場の位置によって浮上鋼板の形状が変化することが考えられる。それにより鋼板の浮上性能に変化がある。そこで、本研究では電磁石の位置が変化した際の鋼板形状の影響を検討するため、薄鋼板の

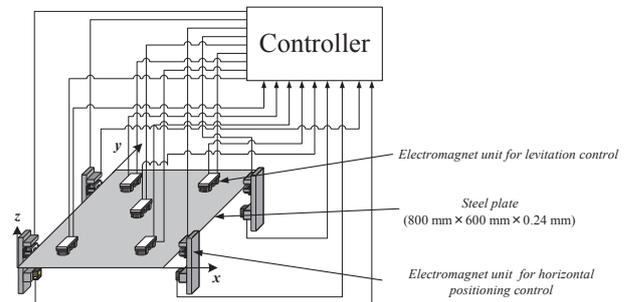


Fig. 1 Outline of electromagnetic levitation control system with horizontal positioning control.

柔軟性によるたわみが生じる板厚 0.24 mm の薄鋼板を対象とし、エッジ部に設置した電磁石の位置が浮上鋼板に与える影響を実験より検証する。

2. 鋼板形状の算出

2.1 磁気浮上システムの概略

磁気浮上システムの概略図を Fig. 1 に示す。磁気浮上システムは鉛直方向の浮上制御システムと水平方向の位置決め制御システムにより構成される。浮上対象は長さ $l = 800$ mm, 幅 $w = 600$ mm, の長方形亜鉛めつき鋼板 (材質 SS400) とする。浮上制御システムは周囲と中央の 5 か所に浮上用電磁石ユニットを設置し、各電磁石表面から鋼板表面までの距離を 5 mm に制御することで鋼板を磁気浮上させる。浮上した鋼板のエッジに対して水平方向位置決め制御用ユニットによる吸引力を加え、鋼板の相対する 2

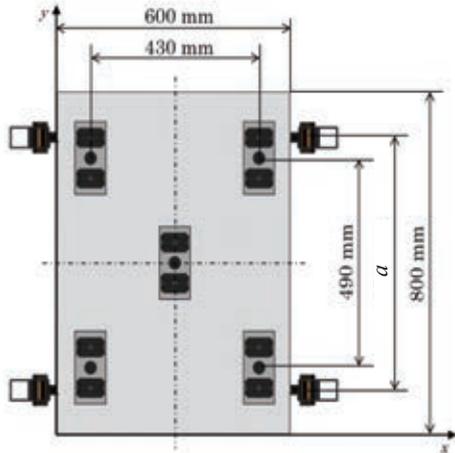


Fig. 2 Layout of electromagnetic levitation system.

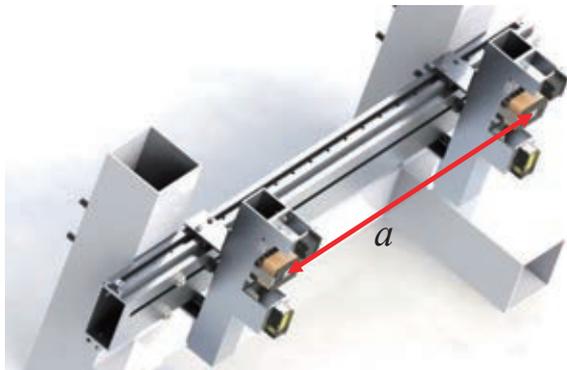


Fig. 3 Horizontal electromagnetic positioning mechanism.

辺に沿って 2 個ずつ設置されており、各電磁石表面から鋼板エッジまでの距離を 5 mm に非接触位置決め制御する浮上用電磁石ユニットと水平方向位置決め制御用ユニットは Fig. 2 のように配置されている。水平方向位置決め制御用ユニットは Fig. 3 のように可動することができる。

2.2 鋼板形状解析モデル

電磁石中心間距離 a を変化させた際の浮上中の鋼板に水平方向からの磁場が与える影響を明らかにするため鋼板の水平方向に電磁石を設置し、鋼板全体を鉛直下向きに変位を与えた場合の鋼板の平均たわみを算出する。水平方向の電磁石には鋼板の位置決め制御を行う制御電流（後掲 Fig. 8 の i_k ）と定常的に吸引力を発生させるための定常電流値（後掲 Fig. 8 の I_k ）が流れている。本解析では定常電流値 I_k は 0.025 A とする。長方形薄鋼板の静的なたわみの方程式は次式で表される。

$$D\nabla^4 z = f_z + f_x \frac{\partial^2}{\partial x^2} z - \rho hg \tag{1}$$

$$D = \frac{Eh^3}{12(1-\nu^2)}, \nabla^4 = \frac{\partial^4}{\partial x^4} + 2\frac{\partial^4}{\partial x^2 \partial y^2} + \frac{\partial^4}{\partial y^4}$$

ここで E : 薄鋼板のヤング率 [N/m²], h : 薄鋼板の厚さ [m], ν : ポアソン比, x : 薄鋼板の短手方向の座標 [m], y : 薄鋼板の長手方向の座標 [m], z : 薄鋼板の変位 [m], f_x : 水平方向に設置した電磁石による薄鋼板の単位面積あたりに

加わる鉛直方向の外力 [N/m²], f_z : 水平方向に設置した電磁石による薄鋼板の単位長さあたりに加わる水平方向の外力 [N/m], ρ : 薄鋼板の密度 [kg/m³], g : 重力加速度 [m/s²] である。なお、電磁界解析ソフト JMAG を用いて電磁石 1 つあたりの吸引力を解析し、電磁石中心間距離 a をもとに、鋼板全体に発生する f_x, f_z を算出した⁵⁾。

フィードバック制御を行っていることから浮上方向電磁石の位置で薄鋼板は単純支持され、水平方向電磁石は制御によって薄鋼板が制御点で静止していると仮定し、式(1)を用いて、薄鋼板のたわみを有限差分法 (FDM) によって計算する。このとき、差分解析格子の大きさは 10 mm×10 mm とした。差分解析により得られた各解析点のたわみを z_i とし、平均たわみ J_z を次式のように定義した。

$$J_z = \frac{\sum_{i=1}^N |z_i|}{N} \tag{2}$$

2.3 解析結果

式(1)を用いて、FDM により算出した鋼板形状を Fig. 4 に示す。Fig. 4 から電磁石中心間距離 $a = 220$ mm のとき鋼板の x 軸方向が最も大きいたわんでいる。しかし、電磁石中心間距離 a を徐々に長くしていくことで鋼板の x 軸方向のたわみは抑制され、鋼板のたわみは y 軸方向に移動していることが分かる。しかし、電磁石中心間距離 $a = 540$ mm よりも長くなってしまえば鋼板のたわみは完全に y 軸方向に移動してしまい、鋼板の y 軸方向のたわみが最も大きくなる。このことから水平方向電磁石は鋼板の中心よりも端部に設置した方がたわみ抑制効果が大きいが判明した。式(2)から算出した平均たわみ J_z と電磁石中心間距離 a の関係を Fig. 5 に示す。Fig. 5 からも電磁石中心間距離 a が長くなっていくことで鋼板の平均たわみが減少していることが分かる。そして、電磁石中心間距離 a が 440 mm から 540 mm の間で最も平均たわみが抑制され、さらに電磁石中心間距離 a を長くしていくことで平均たわみも上昇していくことが確認できた。最もたわみを抑制できる電磁石位置で浮上性能の向上が期待できる。

3. 薄鋼板の磁気浮上システム

3.1 実験装置

磁気浮上装置のシステム詳細を Fig. 6 に示す。浮上用電磁石ユニットは 2 つの電磁石と薄鋼板までの変位を測定するための渦電流式非接触変位センサで構成されており、渦電流式非接触変位センサを中央に電磁石で挟むように配置してある。水平方向位置決め制御用ユニットは浮上用電磁石ユニットと同じ電磁石を 1 つとレーザ式センサの 1 基にて構成される。使用する電磁石コイルは線径が 0.5 mm、巻数は 1005 回とした。この電磁石の電気回路は直列結合されており、渦電流式の非接触変位センサを中央に挟むように配置してある。なお電磁石の磁場による変位センサへの影響を計測した結果、測定誤差は 1% 以下であり制御系に

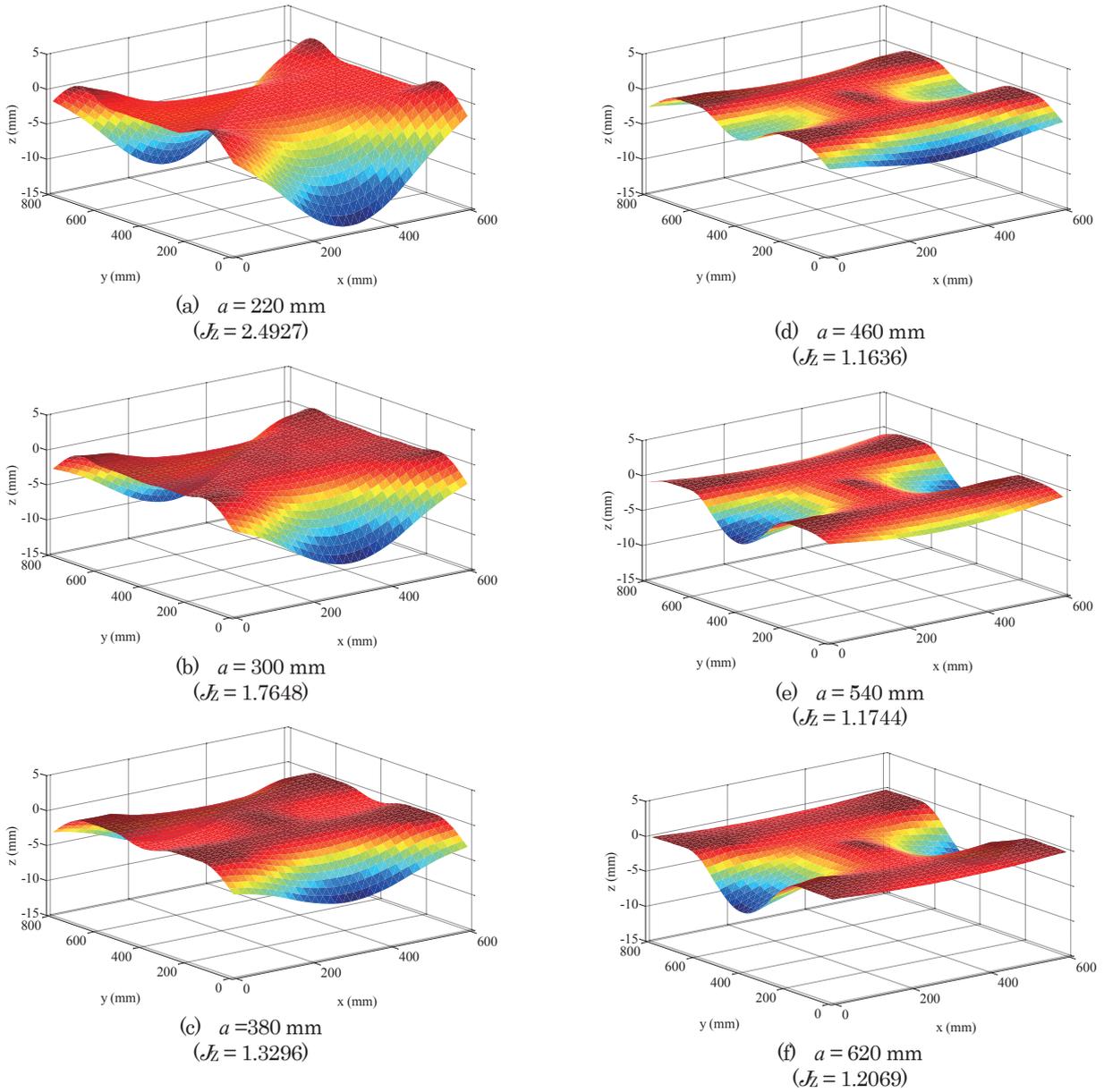


Fig. 4 Analytical shape of levitated steel plate (steady current $I_k = 0.025 \text{ A}$, $h = 0.24 \text{ mm}$).

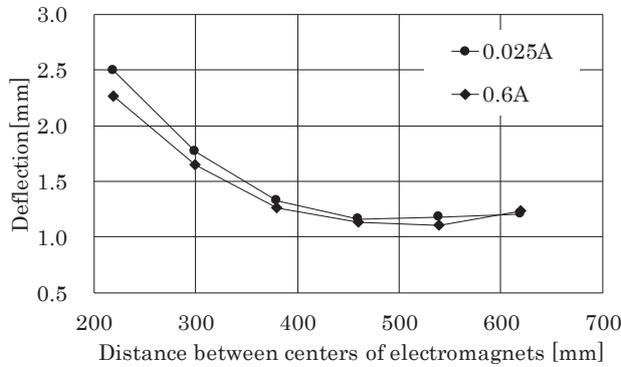


Fig. 5 Relationship between distance between center of electromagnet and average deflection.

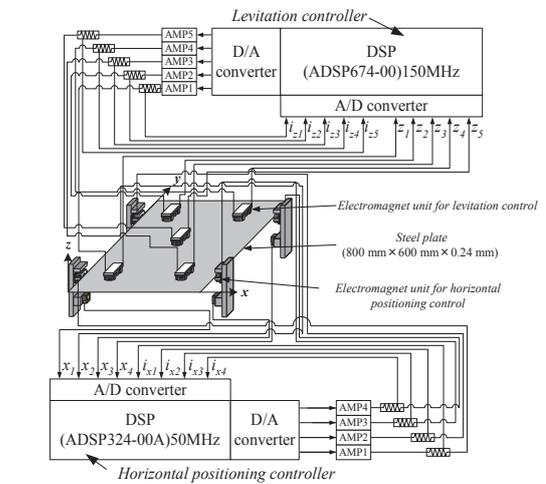


Fig. 6 Electromagnetic levitation control system with horizontal positioning control.

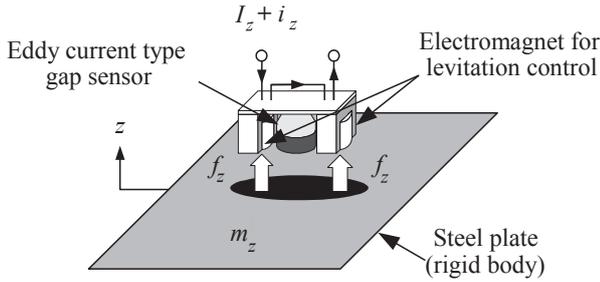


Fig. 7 Theoretical model of levitation control of steel plate.

及ぼす影響はほとんどないことを確認している⁶⁾。さらに電磁石コイル電流を測定用の外部抵抗より検出し、合計10個の観測値をA/DコンバータからDSPに入力し制御則を計算する。D/Aコンバータから電流供給用アンプへ制御電圧を出力し、薄鋼板を磁気浮上させる。Fig. 6に示すとおり、本実験装置の制御システムでは2基のDSPで構成される。鉛直方向の浮上制御と水平方向位置決め制御についてそれぞれ独立して制御モデルを構築し、それぞれのDSPに実装して制御を行っている。

3.2 鉛直方向の浮上制御モデル

Fig. 6 上部に鉛直方向の浮上制御システムの詳細を示す。本研究では1カ所の電磁石位置で検出した変位、速度と電磁石コイルの電流値をその電磁石に対してのみフィードバックする。そこでFig. 7に示すような磁気浮上対象の5分の1に相当する質量を浮上させる1自由度系としてモデル化する。電磁石からの静的吸引力によって鋼板を支持すれば一定の距離に保たれる平衡状態が存在する。そこからの鉛直方向変位 z に関する運動方程式、線形化近似を行った電磁石吸引力に関する方程式および電磁石回路方程式と平衡点近傍での電磁石の特性方程式から以下のような状態方程式が得られる⁷⁾。

$$\begin{aligned} \dot{\mathbf{z}} &= \mathbf{A}_z \mathbf{z} + \mathbf{B}_z \mathbf{v}_z \\ \mathbf{z} &= [z \quad \dot{z} \quad i_z]^T, \\ \mathbf{A}_z &= \begin{bmatrix} 0 & 1 & 0 \\ \frac{4F_z}{m_z Z_0} & 0 & \frac{4F_z}{m_z I_z} \\ 0 & -\frac{L_{\text{eff}}}{L_z} \cdot \frac{I_z}{Z_0^2} & -\frac{R_z}{2L_z} \end{bmatrix}, \\ \mathbf{B}_z &= \begin{bmatrix} 0 & 0 & \frac{1}{2L_z} \end{bmatrix}^T \end{aligned} \quad (3)$$

ここで Z_0 : 平衡浮上状態における電磁石表面と鋼板表面との間隔[m], F_z : 電磁石ユニットから発生する静的な吸引力[N], I_z : 静的吸引力を得るための定常電流値[A], i_z : 電磁石コイル電流の変動値[A], L_z : 平衡浮上状態における電

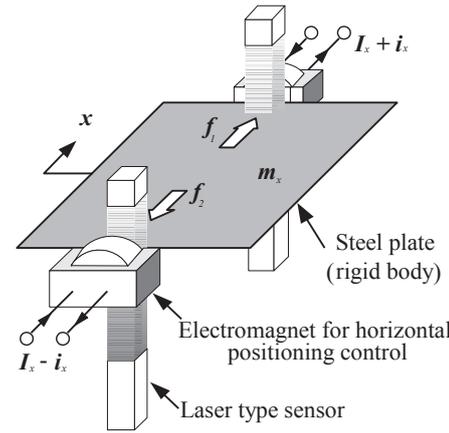


Fig. 8 Theoretical model of horizontal positioning control of steel plate.

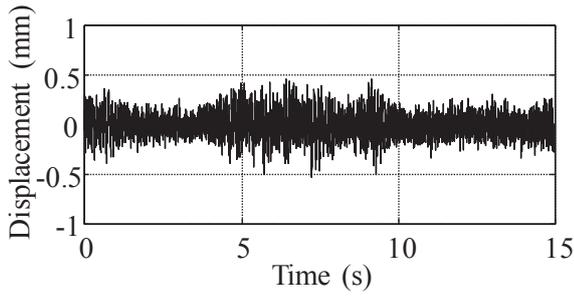
磁石コイルのインダクタンス[H], R_z : 2つの電磁石コイルの総抵抗値[Ω], v_z : 電磁石コイルに加わる定常電圧からの変動値[V], L_{eff}/Z_0 : 電磁石の有効磁束に相当する定数[H], L_{lea} : 電磁石の漏れ磁束に相当する定数[H]である。

3.3 水平方向の位置決め制御モデル

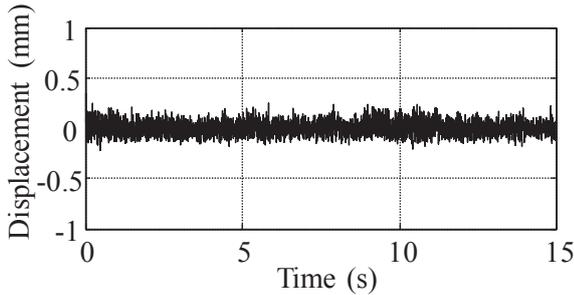
Fig. 6 下部に水平方向の位置決め制御システムの詳細を示す。Fig. 8に示すように、水平方向の運動は1軸方向のみに運動する1自由度系としてモデル化する。したがって、鋼板の1辺に配置した2個の電磁石からは同じ吸引力が発生するとした。鋼板の2辺に対向するように1つずつ電磁石を配置し、同じ静的吸引力を加えることによって鋼板の平衡状態があり、そこからの鋼板の微小変化による水平方向の状態方程式を得る⁷⁾。

$$\begin{aligned} \dot{\mathbf{x}} &= \mathbf{A}_x \mathbf{x} + \mathbf{B}_x \mathbf{v}_x \\ \mathbf{x} &= [x \quad \dot{x} \quad i_x] \\ \mathbf{A}_x &= \begin{bmatrix} 0 & 1 & 0 \\ \frac{4F_x}{m_x X_0} & 0 & \frac{4F_x}{m_x I_x} \\ 0 & -\frac{L_{\text{xeff}}}{L_x} \cdot \frac{I_x}{X_0^2} & -\frac{R_x}{2L_x} \end{bmatrix}, \\ \mathbf{B}_x &= \begin{bmatrix} 0 & 0 & \frac{1}{2L_x} \end{bmatrix}^T \end{aligned} \quad (4)$$

ここで、 F_x : 静的吸引力[N], X_0 : 平衡浮上状態における電磁石表面と鋼板表面とのギャップ[m], L_x : 静的吸引力を得るための定常電流値[A], i_x : 電磁石コイル電流の変動値[A], L_x : 平衡浮上状態における電磁石コイルのインダクタンス[H], R_x : 2つの電磁石コイルの総抵抗値[Ω], v_x : 電磁石コイルに加わる定常電圧からの変動値[V], L_{xeff}/X_0 : 電磁石の有効磁束に相当する定数[H], L_{lea} : 電磁石の漏れ

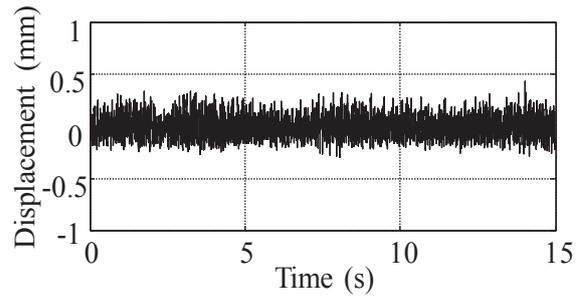


(a) $a = 150 \text{ mm}$

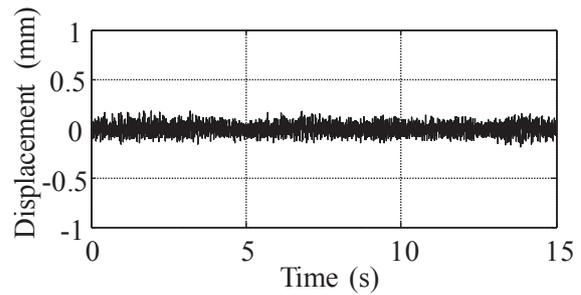


(b) $a = 550 \text{ mm}$

Fig. 9 Time history of vertical displacement of steel plate ($I_k = 0.025 \text{ A}$).



(a) $a = 150 \text{ mm}$



(b) $a = 550 \text{ mm}$

Fig. 10 Time history of vertical displacement of steel plate ($I_k = 0.5 \text{ A}$).

磁束に相当する定数[H]である。なお v_x は状態変数 \mathbf{x} をフィードバックして次式のように得られる。

$$v_x = -F_x \mathbf{x} \tag{5}$$

$$F_x = [f_x \quad f_v \quad f_i]$$

このとき F_x はそれぞれの状態変数に対するフィードバックゲインである。

4. 浮上実験

4.1 実験条件

鋼板の浮上安定性を評価するために、浮上させた鋼板に対して水平方向からの磁場を印加し、電磁石中心間距離 a を変化させた浮上実験を行った。このとき、水平方向電磁石に印加する定常電流値は 0.025 A と 0.5 A の2種類を用いた。また、浮上方向、水平方向ともに電磁石中心間距離 a が変化した際にも同一のフィードバックゲインを用いた。なお、フィードバックゲインの探索は基礎実験において最も浮上困難であった電磁石中心間距離 $a = 150 \text{ mm}$ の位置で安定した浮上が可能であり、最高性能となるようなゲインを試行錯誤的に求めた。電磁石中心間距離 a は 150 mm から 650 mm まで、 150 mm 刻みで8秒間、鋼板を浮上させた。

4.2 実験結果

定常電流値 I_k が 0.025 A と 0.5 A のときの制御点にて観測した鋼板の浮上方向の変位時刻歴波形を Fig. 9 と Fig. 10 に、電磁石中心間距離 a と鋼板の浮上方向変位標準偏差の

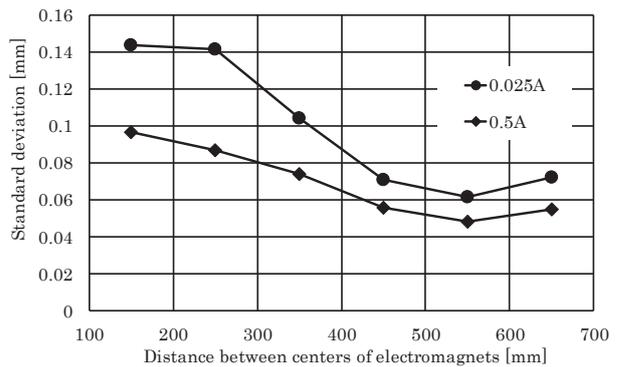


Fig. 11 Relationship of distance between centers of electromagnets and standard deviation.

関係を Fig. 11 に示す。Fig. 9 から電磁石中心間距離 a を 150 mm から 550 mm に変化させたところ薄鋼板の変位標準偏差が 57% 抑制された。また、Fig. 10 から電磁石中心間距離 a を最適な位置に移動させることにより薄鋼板の変位標準偏差が 50% 抑制された。さらに Fig. 11 から電磁石中心間距離 a が増加していくと変位標準偏差が減少していき、 $a = 550 \text{ mm}$ のとき最も変位標準偏差が低くなる。電磁石中心間距離 a を増加させていくと変位標準偏差も増加していく。この傾向は定常電流値が変化しても同様である。また、鋼板形状解析と一致することから、他の条件で安定浮上させる際には鋼板形状解析を行うことで水平方向電磁石の最適位置を求めることが可能であることが判明した。

5. まとめ

板厚 0.24 mm の薄鋼板に対し水平方向からの磁場を印

加させる位置を変化させたときの磁気浮上鋼板に与える影響を検証するために浮上中の柔軟鋼板のたわみ形状を算出し、それらをもとに浮上実験を行い薄鋼板の浮上安定性に関する検討を行った。その結果、水平方向から磁場を印加させる位置を変化することによって浮上中の薄鋼板の安定性が向上することを確認した。さらに、実験結果と解析結果の傾向が一致したことから、条件が限定的ではあるが鋼板形状解析を行うことで安定した浮上制御が可能な電磁石位置を推定することができた。

References

1) S. Matsumoto, Y. Arai, and T. Nakagawa: *IEEE Trans.*

Magn., **50**, 8600304 (2014).

- 2) T. Namerikawa and D. Mizutani: *Trans. IEEJ*, **36**, 1319 (2006).
- 3) M. Morishita and M. Akashi: *IEEJ Trans. Industry Appl.*, **119**, 1289 (1998).
- 4) Y. Oshinoya, K. Ishibashi, and T. Sekihara: *Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng. Ser. C*, **68**, 1428 (2002).
- 5) T. Narita, T. Kurihara, and H. Kato: *Mech. Eng. J.*, **3**, 15-00376 (2016).
- 6) Y. Oshinoya, S. Kobayashi, and K. Tanno: *Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng. Ser. C*, **62**, 3067 (1996).
- 7) M. Kida, T. Suzuki, Y. Oda, T. Narita, H. Kato, and H. Moriyama: *Trans. Magn. Special Issues*, **1**, 76 (2017).

2018年10月31日受理, 2019年1月23日採録

柔軟鋼板の湾曲磁気浮上制御（外乱相殺制御の基礎的検討）

Magnetic Levitation Control and Bending of Flexible Steel Plate (Fundamental Study on Disturbance Cancellation Control)

小川和輝^{a)}・多田誠^{a)}・成田正敬^{a)†}・加藤英晃^{a)}

^{a)} 東海大学工学部, 神奈川県平塚市北金目 4-1-1 (〒259-1292)

K. Ogawa^{a)}, M. Tada^{a)}, T. Narita^{a)†}, and H. Kato^{a)}

^{a)} Department of Prime Mover Engineering, Tokai Univ., 4-1-1 Kitakaname, Hiratsuka-shi, Kanagawa 259-1292, Japan

In the conveyance systems of production lines for thin steel plates, there is a problem in that the quality of the plate surface deteriorates because the plates are always in contact with rollers. To solve this problem, electromagnetic levitation technologies have been studied. When an ultrathin and flexible steel plate is to be levitated, controlling the levitation becomes difficult because the plate undergoes increased flexure. In this study, we herein propose a method of levitating an ultrathin steel plate that is bent to an extent that does not induce plastic deformation. To investigate the levitation stability of an ultrathin steel plate, we applied disturbance cancellation control in a bending and levitation system. The object of electromagnetic levitation was a rectangular zinc-coated ultrathin steel plate (SS400) with a length of 800 mm, width of 600 mm, and thickness of 0.19 mm. A vibrator was attached below three frames on which an electromagnet unit was installed so that the frames could be vibrated up and down. We conducted experiments on levitation performance when the electromagnet was displaced by frame vibration in the system. The results show that stable levitation can be realized even with an input external disturbance when levitating at the optimum bending angle.

Key words: magnetic levitation, vibration control, bending and levitation, optimal control, disturbance cancellation control

1. はじめに

近年、物体を非接触に把持・搬送することができる磁気浮上技術に注目が集まっており、磁力の特性を積極的に利用した活発な検討が行われている¹⁻⁶⁾。一方、表面の高品質化が要求される冷間圧延など薄鋼板製造ラインに磁気浮上技術を適用することが期待されるが、その板厚と面積に起因する柔軟性から弾性振動が励起され、浮上時の安定性が著しく損なわれる。この課題を解決するために浮上安定性に関する検討が行われている。一方、フィードバックのみの最適制御において、薄鋼板を塑性変形しない範囲で湾曲させ、磁気浮上させる方法を提案している⁷⁾。また、より実機に近い環境ではセンサおよび電磁石ユニットなどの装置自体に突発的あるいは定期的な振動が加わり、浮上性能が劣化する可能性がある。そこで、電磁石ユニットに振動を与えた場合の検討を行い、外乱状況下においても最適な湾曲度合いで浮上させることで、湾曲させずに浮上させるよりも高い浮上安定性を得ることが可能であることを確認している⁸⁾。しかし、これまでのような電磁石と鋼板との相対変位を一定に保つような制御を行う場合、鋼板を湾曲させることで装置自体に入力される外乱に対して受動的に浮上安定性を向上させることはできるが、従来の手法で対応不可能な外乱が入力された際に、浮上の維持は不可能となる。このため装置に入力される振動を検知し、装置自体の絶対変位を考慮した上で、浮上制御を行う必要がある。

当研究グループでは湾曲させない薄鋼板を用いて、外乱相殺制御を適用している⁹⁾。この制御モデルを湾曲磁気浮上システムに適用し、定期的な外乱であるランダムノイズで加振した浮上実験を行い、安定性が向上したことを確認している¹⁰⁾。

本研究は、突発的な外乱に対する薄鋼板における浮上安定性向上の為、外乱相殺制御を湾曲磁気浮上装置に適用し、

浮上用電磁石ユニットを取り付けているフレームにパルス波による振動を与えた状態で浮上実験を行った。フィードバックのみの最適制御と外乱相殺制御との比較から薄鋼板における制御性能に関する評価を行った。

2. 薄鋼板の湾曲制御システム

Fig. 1 に制御システムの概略図、Fig. 2 に湾曲浮上装置の概略図、Fig. 3 に実験に使用している電磁石ユニットを示す。浮上対象は長方形亜鉛めっき鋼板(長さ $a = 800$ mm, 幅 $b = 600$ mm, 厚さ $h = 0.19$ mm)を使用している。電磁石本体は E 型フェライトコアに直径 0.5 mm のエナメル線を 1005 回巻いたものである。渦電流式非接触変位センサを 2 個の電磁石で挟むように配置した電磁石ユニットを、3 台の加振器によってそれぞれ独立に上下加振させることが可能な 3 本のフレームに設置してある。

また、この 3 本のフレーム変位を検出するために別途 3 個の渦電流式非接触変位センサを設置している。長方形の薄鋼板を 5 か所の電磁石ユニットにより Fig. 4 に示すように吊り下げるようにして非接触支持するため、鋼板の絶対変位およびそのデジタル微分値である絶対速度、電磁石コイルに流れる電流の定常値からの変動分の観測値をフィードバックし、制御電圧を計算する。また外乱相殺制御を行う場合は、上述の観測値の他に電磁石ユニットを設置しているフレームの変位をフィードフォワードし制御量を計算する。D/A コンバータから電力供給用アンプへ制御電力を出力し、5 か所の電磁石ユニットから発生する吸引力を制御し、鋼板変位が絶対座標上で一定となるように磁気浮上させる。5 個の電磁石ユニットのうち周囲の No. 1~4 は傾け

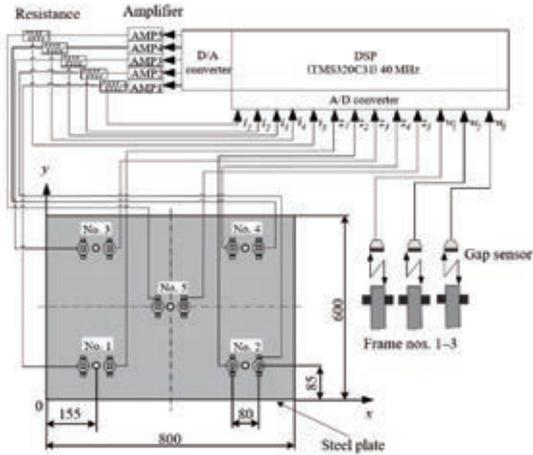


Fig. 1 Electromagnetic levitation control system.



Fig. 3 Photograph of electromagnet.

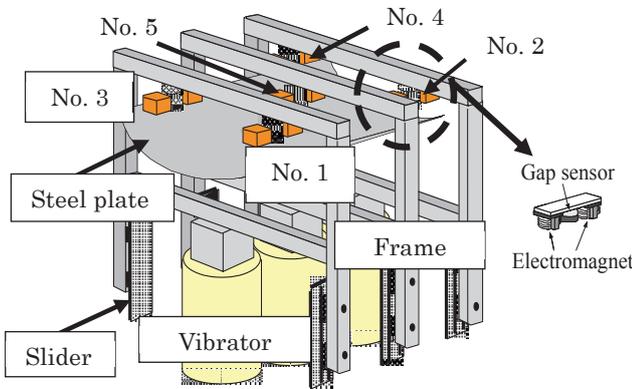


Fig. 2 Schematic illustration of experimental apparatus.

ることができる機構になっている。このように電磁石ユニットの角度を変更することで、鋼板を湾曲させて浮上させることができる。また、鋼板を湾曲させても電磁石が同じ位置に吸引力を印加できるように周囲の電磁石ユニット No. 1~4 は水平方向に、中央の電磁石ユニット No. 5 は鋼板の湾曲度合いに応じて垂直方向に動かすことができる。

加振器は、周波数一定の正弦波を用いてフレームの振幅および位相が一定になるように調整した後、フレームを振動させることで浮上鋼板に外乱を入力した。

3. 運動方程式

本研究では鋼板のモデリングの一つとして簡易な 1 自由度モデルを採択する。1 自由度モデルでは 5 個の電磁石ユニットが独立して浮上制御を行うため、鋼板を各電磁石に対する 5 つの質量に仮想的に分割し、分割した質量の変位、速度および対応する電磁石コイル電流それぞれを集中定数系としてモデル化を行う。鋼板を浮上させるためには、電磁石に定常電流を流すことによって発生する吸引力により鋼板の自重を支持する。さらにこのシステムは不安定系の

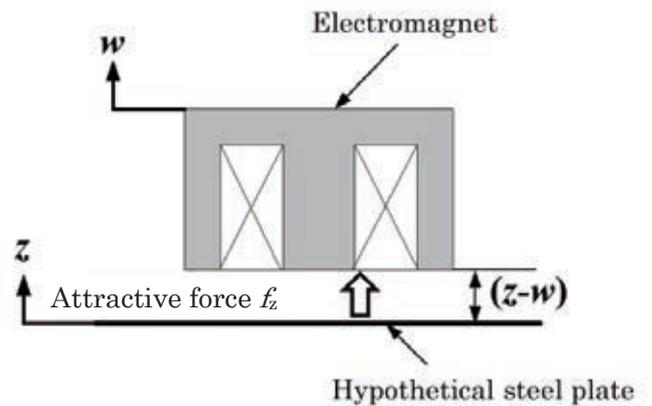


Fig. 4 One degree-of-freedom model of levitation control of steel plate.

ため、制御電流を加えて鋼板と電磁石の距離が 5 mm に維持できるように制御を行っている。電磁石からの静的吸引力によって仮想的に分割した鋼板を支持すれば一定の距離に保たれる平衡状態が存在する。そこからの鉛直方向変位 z に関する運動方程式は以下ようになる。

$$m_z \frac{d^2}{dt^2} z(t) = 2f_z(t) \quad (1)$$

ここで、 m_z : 鋼板を仮想的に 5 つに分割した質量[kg], z : 鋼板の絶対変位[m], f_z : 電磁石 1 個当たりの吸引力の変動値 [N]である。

さらにフレームの変位を w とすると、電磁石と鋼板の間の距離は $Z = z(t) - w(t)$ と表すことができる。電磁石 1 個当たりのコイルのインダクタンス L を次式のように距離 Z に反比例する成分と磁束の漏れに相当する成分の和として近似する。

$$L(Z) = \frac{K_{em}}{Z} + L_{lea} \quad (2)$$

ここで K_{em} : 電磁石の吸引力の比例定数 [Hm], L_{lea} : 電磁石 1 個あたりの漏れインダクタンス [H] である。

電磁石に加える電圧をとコイルに流れる電流 I の関係は、電磁石コイルの抵抗を R_z とすると

$$V_z(Z, I) = R_z I + \frac{d}{dt}(L(Z)I) \quad (3)$$

である。平衡点 (Z_0, I_0) 近傍でテーラー展開すると、電磁石

コイルに加わる定常電圧から変動値 v_z は

$$v_z = R_z i_z + L_z \frac{d}{dt} i_z - L_{\text{eff}} \frac{I_z}{Z_0^2} \frac{d}{dt} (z(t) - w(t)) \quad (4)$$

ここで Z_0 : 平衡浮上状態における電磁石表面と鋼板表面とのギャップ [m], L_z : 平衡浮上状態における電磁石コイルに流れる電流 [A], i_z : 電磁石コイルに流れる電流の変動値 [A], L_z : 式 (2) をより求めた平衡浮上状態における電磁石コイルのインダクタンスである。

線形化近似を行った電磁石吸引力に関する方程式および電磁石コイルに流れる電流に関する方程式は以下のようになる。

$$f_z(t) = \frac{F_z}{Z_0} (z(t) - w(t)) + \frac{F_z}{L_z} i_z(t) \quad (5)$$

$$\frac{d}{dt} i_z(t) = -\frac{L_{\text{eff}} I_z}{L_z Z_0^2} \frac{d}{dt} (z(t) - w(t)) - \frac{R_z}{2L_z} i_z(t) + \frac{1}{2L_z} v_z(t) \quad (6)$$

ここで F_z : 平衡浮上状態においてペアの電磁石の両方から発生する静的吸引力の合計値 [N] である。

また、フィードフォワード併合制御ではシステムに既知である外乱の周波数特性を組み込み、制御性能の向上を図る。そのため電磁石を支持しているフレームが振動した場合のフレーム絶対変位のパワースペクトル密度における周波数特性を近似する外乱成形フィルタを設計する。本研究では基礎的な検討を行うため外乱成形フィルタの次数は 2 次とし、状態変数の増加を最小限とした。外乱成形フィルタの伝達関数は s 領域において以下に示すように表される。

$$G(s) = \frac{\omega_f^2}{s^2 + 2\zeta_f \omega_f s + \omega_f^2} \quad (7)$$

ここで ζ_f , ω_f はこの伝達関数の出力がフレーム外乱変位のパワースペクトル密度にカーブフィットするよう決定した。

4. 外乱相殺制御モデルの状態方程式

4.1 磁気浮上システムの状態方程式

状態変数として鋼板の絶対変位, 絶対速度, 電磁石コイルに流れる電流, フレームの変位, 速度を採用し, 式(1), (5), (6)を整理して以下のような状態方程式を得る。

$$\dot{\mathbf{z}} = \mathbf{A}_z \mathbf{z} + \mathbf{B}_z v_z + \mathbf{d}_z \mathbf{w} \quad (8)$$

ただし

$$\mathbf{z} = [z \quad \dot{z} \quad i_z]^T \quad (9)$$

$$\mathbf{w} = [w \quad \dot{w}]^T \quad (10)$$

$$\mathbf{A}_z = \begin{bmatrix} 0 & 1 & 0 \\ \frac{2F_z}{m_z Z_0} & 0 & \frac{2F_z}{m_z L_z} \\ 0 & -\frac{K_{\text{em}} I_z}{L_z Z_0^2} & -\frac{R_z}{2L_z} \end{bmatrix} \quad (11)$$

$$\mathbf{B}_z = [0 \quad 0 \quad \frac{1}{2L_z}]^T \quad (12)$$

$$\mathbf{d}_z = \begin{bmatrix} 0 & 0 \\ -\frac{F_z}{m_z Z_0} & 0 \\ 0 & \frac{K_{\text{em}} I_z}{L_z Z_0^2} \end{bmatrix} \quad (13)$$

4.2 フレーム変位生成システム

式 (7) で表された外乱成形フィルタを状態空間表現する。状態変数 \mathbf{w}_f として直接検出可能なフレームの絶対変位 w_f , フレームの速度 \dot{w}_f を選り状態空間表現すると以下のようになる。

$$\dot{\mathbf{w}}_f = \mathbf{A}_f \mathbf{w}_f + \mathbf{d}_f w_{\text{wh}} \quad (14)$$

$$\mathbf{w}_f = [w_f \quad \dot{w}_f]^T$$

$$\mathbf{A}_f = \begin{bmatrix} 0 & 1 \\ -\omega_f^2 & -2\zeta_f \omega_f \end{bmatrix}$$

$$\mathbf{d}_f = [0 \quad \omega_f^2]^T$$

$$\mathbf{E}\{w_{\text{wh}}(t)\} = 0$$

$$\mathbf{E}\{w_{\text{wh}}(t) w_{\text{wh}}^T(t')\} = k_{\text{wh}} \delta(t - t')$$

ただし w_{wh} は白色雑音 (変位) であり, $\mathbf{E}\{\cdot\}$ は数学的期待値, k_{wh} は白色雑音のインテンシティ, $\delta(\cdot)$ はディラックのデルタ関数を意味している。

4.3 拡大システム

1 自由度系の磁気浮上システムとフレームからの外乱への生成システムを併合し, 白色雑音を入力とする拡大システムを設計する。なお, 制御系設計はこの外乱周波数特性を含んだ拡大システムに基づいて行うことになる。状態変数 \mathbf{z}_{arg} として \mathbf{z}_z , \mathbf{w}_f を選ぶと, 式 (8), (14) から拡大システムの状態方程式は次式のようになる。

$$\dot{\mathbf{z}}_{\text{arg}} = \mathbf{A}_z^{\text{arg}} \mathbf{z}_{\text{arg}} + \mathbf{B}_z^{\text{arg}} v_z + \mathbf{D}_z^{\text{arg}} w_{\text{wh}} \quad (15)$$

$$\mathbf{z}_{\text{arg}} = [\mathbf{z}^T \quad \mathbf{w}_f^T]^T$$

$$\mathbf{A}_z^{\text{arg}} = \begin{bmatrix} \mathbf{A}_z & \mathbf{d}_z \\ \mathbf{0}_{2 \times 3} & \mathbf{A}_f \end{bmatrix}$$

$$\mathbf{B}_z^{\text{arg}} = [\mathbf{B}_z^T \quad \mathbf{0}_{1 \times 2}]^T$$

$$\mathbf{D}_z^{\text{arg}} = [\mathbf{0}_{1 \times 3} \quad \mathbf{d}_f^T]^T$$

本研究では離散時間系最適制御理論 \mathcal{N} に基づいて制御系を設計した。本研究で扱うモデルの場合, 鋼板の絶対変位の定常位置からの変動分, 絶対速度ならびに電磁石コイル電流の定常値からの変動分のみを状態量として評価するのが最も基本的な方法である。しかしフレーム加振による入力外乱の周波数特性が既知であり, その検出が容易であることから外乱を予測したフィードフォワード補償を行うことによりフィードバックのみの場合と比較して制御性能の向上が期待できる。

5. 最適制御理論

本研究では離散時間系最適制御理論に基づいて制御系を設計した。状態変数と制御入力を評価する無次元量の評価関数を次式のように定義した。

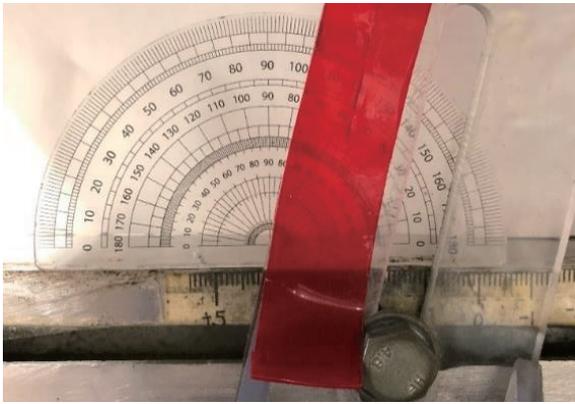
$$\mathcal{J} = (1/2) \sum_{k=1}^{N-1} \{ \mathbf{z}_{\text{arg}}^T(k) \mathbf{Q}_z^{\text{arg}} \mathbf{z}_{\text{arg}}(k) + \mathbf{R}_z^{\text{arg}} v_z^2(k) \} \quad (16)$$

ただし $\mathbf{Q}_z^{\text{arg}}$: 状態変数に対する重み係数行列, $\mathbf{R}_z^{\text{arg}}$: 制御入力に対する重み係数行列である。またこのときのフィードバック制御入力は以下のようになる。

$$v_z(k) = \mathbf{F}_z^{\text{arg}} \mathbf{z}_{\text{arg}}(k) \quad (17)$$



(a) Photograph of side view of electromagnet.



(b) Enlarged view.

Fig. 5 Electromagnet angle ($\theta = 13^\circ$).

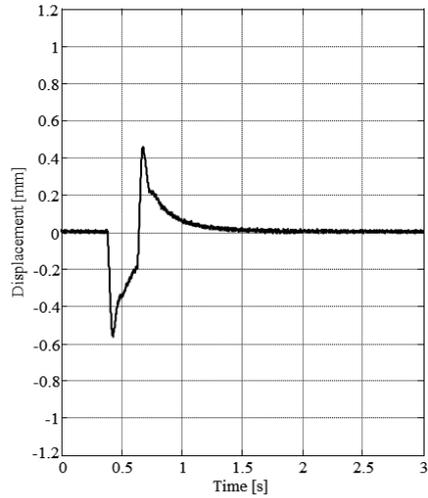
$$\mathbf{F}_z^{\text{arg}} = [\mathbf{F}_z^{\text{FB}} \quad \mathbf{F}_z^{\text{FF}}] \quad (18)$$

ここで \mathbf{F}_z^{FB} : フィードバックゲイン, \mathbf{F}_z^{FF} : フィードフォワードゲインである.

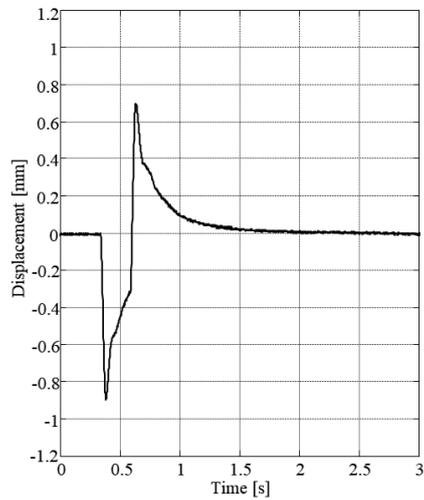
6. パルス波を用いた外乱入力実験

6.1 実験条件

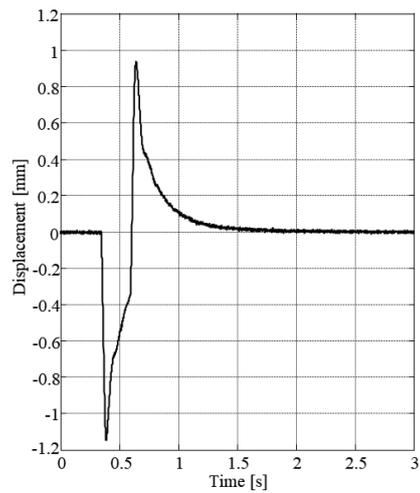
電磁石ユニットを取り付けているフレームに対して鉛直方向にパルス波の振動を与えた場合の浮上安定性について実験的に評価を行う. 本実験では提案する外乱相殺制御モデルと既報⁷⁾にて適用していた相対変位による1自由度フィードバック制御モデルを適用した. Fig.5 に電磁石角度 13° 時の写真を示す. 電磁石の角度は, 0.19 mm 鋼板において最も浮上性能が向上する 13° で湾曲浮上を行った. フレームを加振する条件として, フレームのパルス状振動の両振幅を $1.0 \text{ mm}_{\text{p-p}}$, $1.6 \text{ mm}_{\text{p-p}}$, $2.0 \text{ mm}_{\text{p-p}}$ になるように加振器を設定した. 3種類の振幅で加振させたフレームの変位時刻歴を Fig. 6 に示す. なお, 測定開始後 0.2 秒後にパルス波を入力している.



(a) Amplitude: $1.0 \text{ mm}_{\text{p-p}}$.

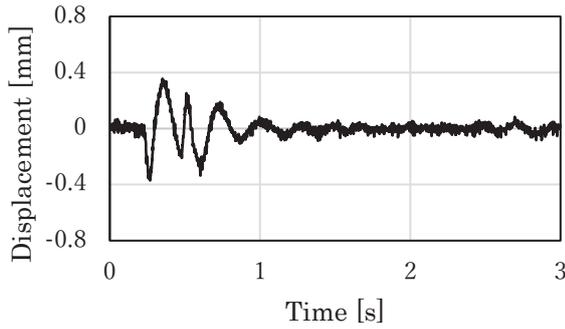


(b) Amplitude: $1.6 \text{ mm}_{\text{p-p}}$.

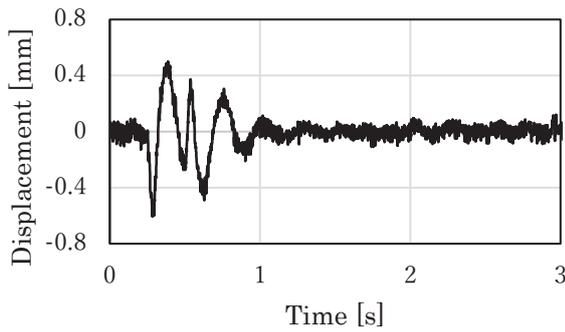


(c) Amplitude: $2.0 \text{ mm}_{\text{p-p}}$.

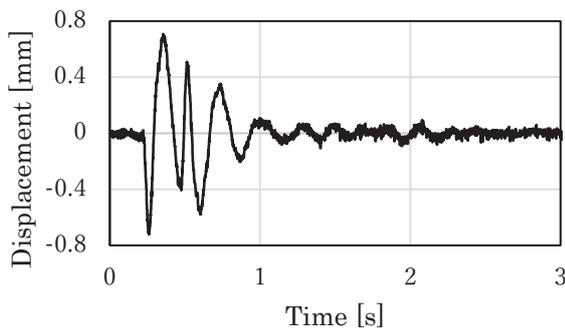
Fig. 6 Time histories of displacement of frames when vibrated by pulse disturbance.



(a) Amplitude: 1.0 mm_{p-p}.

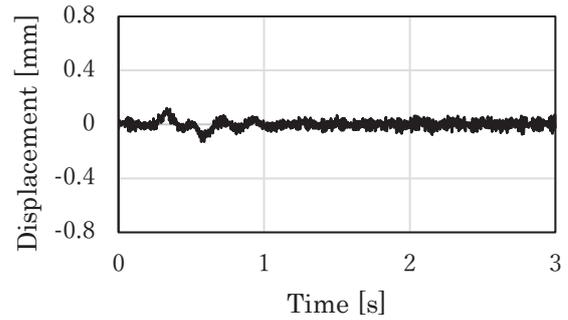


(b) Amplitude: 1.6 mm_{p-p}.

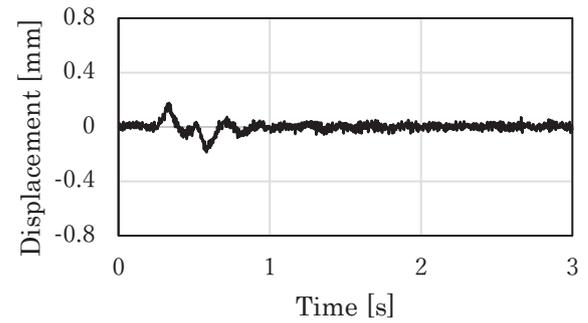


(c) Amplitude: 2.0 mm_{p-p}.

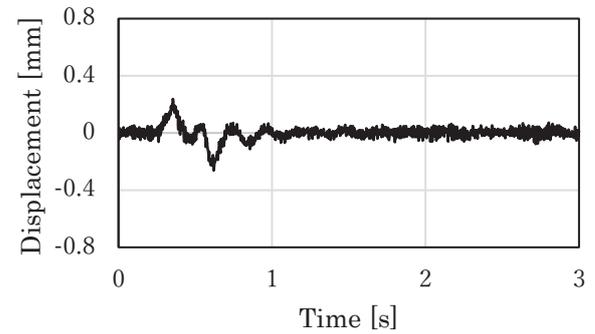
Fig. 7 Time histories of displacement of thin steel plate (1 DOF feedback control model).



(a) Amplitude: 1.0 mm_{p-p}.



(b) Amplitude: 1.6 mm_{p-p}.



(c) Amplitude: 2.0 mm_{p-p}.

Fig. 8 Time histories of displacement of thin steel plate (disturbance cancellation control model).

6.2 実験結果

Fig. 7 に 1 自由度フィードバック制御モデルを用いた場合のそれぞれの振幅における薄鋼板の変位時刻歴, Fig. 8 に外乱相殺制御モデルを用いた場合の薄鋼板の変位時刻歴を示す. 両図の(a)は 1.0 mm_{p-p} の場合, (b)は 1.6 mm_{p-p}, (c)は 2.0 mm_{p-p} の結果である. Fig. 7 および Fig. 8 より 1 自由度フィードバック制御モデルを適用した場合と外乱相殺制御モデルを適用した場合の鋼板の変位時刻歴の両振幅を比較すると, どの振幅の振動を入力した場合であっても, 外乱相殺制御モデルの方が, 薄鋼板の両振幅を制御することができた. 1 自由度フィードバック制御モデルの場合, 加振振幅が大きくなるに従って, 鋼板変位の両振幅も増加

する傾向にあるが, 外乱相殺制御モデルの場合は, 加振振幅を増加した場合でも, 鋼板変位の両振幅はほぼ一定である. また, 振動の減衰に関しては, 1 自由度フィードバック制御モデルでは与えられた振動が収束するまでに必要とする時間は 1 秒~1.5 秒であるが, 外乱相殺制御モデルを適用した場合は, 1 秒以内に振動を収束することができた.

7. おわりに

本研究では湾曲磁気浮上装置における電磁石ユニットに関する基礎的な考察として, 鋼板の絶対変位をフィードバックする外乱相殺制御を適用し薄鋼板の湾曲磁気浮上実験

を行った。その結果、外乱相殺制御を適用することにより、
1 自由度フィードバック制御モデルと比較し振動を抑制する性能を飛躍的に向上できることが確認できた。今後の予定として、他の板厚おける浮上性能傾向を同じ実験装置で考察を行う。

References

- 1) T. Mizuno: *J. Jpn. Soc. Prec. Eng.*, **68**, 1180 (2002).
- 2) A. Javed, T. Mizuno, M. Takasaki, Y. Ishino, M. Hara, and D. Yamaguchi: *MDPI Actuators*, **7**, 21 (2018).
- 3) M. Morishita, M. Akashi, and T. Azukizawa: *IEEEJ Trans. Ind. Appl.*, **120**, 509 (2000).
- 4) Y. Odajima, Y. Takada, I. Oikawa, and T. Nakagawa: *IEEEJ Trans. Ind. Appl.*, **138**, 692 (2018).
- 5) S. Iwashita, and S. Torii: *IEEEJ Trans. Ind. Appl.* **135**, 475 (2015).
- 6) T. Mizuno, M. Kosugi, and S. Fukuzawa: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **31**, 445 (2007).
- 7) H. Marumori, H. Yonezawa, T. Narita, H. Kato, and Y. Oshinoya: *Trans. of Jpn. Soc. Mech. Eng.*, **81**, 14-00471 (2015).
- 8) M. Tada, H. Yonezawa, H. Marumori, T. Narita, and H. Kato: *Int. J. Appl. Elec. Mech.*, (Accepted).
- 9) S. Hasegawa, Y. Oshinoya, and K. Ishibashi: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **29**, 582 (2005).
- 10) K. Ogawa, M. Tada, T. Narita and H. Kato: *MDPI Actuators*, **7**, 43 (2018).

2018年10月31日受理, 2019年2月28日再受理, 2019年3月5日採録

湾曲磁気浮上薄鋼板に発生する振動メカニズムに関する基礎的考察

Fundamental consideration on vibration mechanism in thin steel plate with curvature during magnetic levitation

多田誠^{a)}・小川和輝^{a)}・成田正敬^{a)†}・加藤英晃^{a)}^{a)}東海大学, 神奈川県平塚市北金目 4-1-1 (〒259-1292)M. Tada^{a)}, K. Ogawa^{a)}, T. Narita^{a)†}, and H. Kato^{a)}^{a)} Tokai University, 4-1-1 Kita Kaname, Hiratsuka-shi, Kanagawa 259-1292, Japan

Research was conducted on non-contact transfer technology for applying magnetic levitation technology that uses electromagnets to thin steel plates. We previously succeeded in improving the levitation performance by bending a thin steel plate within a range that did not plastically deform it. In this study, to clarify the vibration mechanism of the steel plate during levitation, we performed a modal analysis, a frequency response analysis on a plate, and a bending and levitation experiment with a type of disturbance that has the most influence on such plates. As a result, it was found that the bending and magnetic levitation is effective for improving the levitation performance because the vibration mode became dominant when bending the thin steel plate and the levitation performance could be maintained even when the disturbance was input.

Key words: magnetic levitation, vibration control, modal analysis, frequency response analysis, elastic vibration

1. 緒言

磁気浮上技術は、物体を非接触に把持および搬送できるという長所があり、鉄道の高速化¹⁾、歯車や軸受の高効率化^{2,3)}などを目的に様々な研究が行われている。特に、薄鋼板の製造ラインでは、接触搬送による鋼板表面の品質劣化を防止するため、磁気浮上技術による非接触搬送の導入が望まれており、浮上対象が薄鋼板で電磁石の吸引力を利用した吸引式磁気浮上に関する研究が活発に報告されている⁴⁻⁶⁾。鋼板を磁気浮上させるための研究には、鋼板をねじりなど変形しない剛体として扱うものが多く存在するが、浮上対象の板厚や面積、制御装置の仕様によって鋼板の変形や弾性振動が問題となる場合がある。実際、浮上中の薄鋼板は力学的に四辺自由の平板に重力と支持力が加わっている状態と考えることができる。このとき支持力が発生しない箇所には重力によって静的にはたわみが、動的には多数の振動モードによる弾性振動が発生する。弾性振動を抑制するためには定常的に大きく振動するモードの腹にアクチュエータを設置する必要がある。しかし、あるモードの腹となる点が、他の振動モードでは振幅が0となる節になる場合もあり、全てのモードに対応するためにはモードを観測するための多数のセンサとモードを抑制するための多数のアクチュエータが必要となり、このような装置を構築することは現実的に不可能である。また、振動モードは高次になるほど固有振動数が増加する。このため、アクチュエータの動作可能な周波数帯域以上の振動モードに由来する弾性振動は仮に観測できたとしても制御できなくなる問題もある。

そこで、当研究グループはこれまでに安定した浮上制御を阻む要因であった柔軟性を積極的に利用し、厚さが0.3 mmより薄い薄鋼板を塑性変形させない範囲で湾曲させて浮上させる方法を提案した。このとき、湾曲させた鋼板の静的なたわみに着目し、形状解析から鋼板のたわみを抑制できる最適な湾曲角度を算出した⁷⁾。

さらに鋼板を湾曲させて浮上実験を行い、求めた最適角度で最も安定して浮上可能であることを実験的に示した。そして、湾曲させることで浮上安定性が向上し、さらに制御出力へのノイズや磁気浮上装置の振動など外乱が入力された場合でも最適な湾曲角度で浮上させることで浮上性能の劣化を防ぐことができることを示した⁸⁻¹⁰⁾。

しかし、湾曲して浮上させた鋼板にどのような振動モードが存在し、どの振動モードが浮上性能に大きく影響するのか詳細な検討が行えていなかった。本研究ではこの湾曲磁気浮上システムの浮上対象である薄鋼板の振動モードと共振周波数を有限要素解析より得て、外乱を入力した実験から最も支配的なモードを探索した。さらに得られた固有振動数を含む近傍の帯域において、周波数一定の外乱を入力して浮上実験を行い、湾曲浮上性能の検討を行った。

2. 薄鋼板の共振周波数解析

2.1 鋼板の湾曲形状

薄鋼板の振動形状解析を行うため、湾曲浮上中の薄鋼板の湾曲形状および電磁石の支持力を導出する。このとき、長方形鋼板の短手方向を突き出しはり(はね出し単純はり)と考え、一次元のはりのたわみ形状を鋼板長手方向に押し出したものとする。

Fig. 1に本実験で使用する長方形鋼板の寸法および電磁石の配置図を、Fig. 2に鋼板を短手方向から見たはりと仮定したモデルを示す。このモデルにおける支持点D、Eは周囲に設置した電磁石ユニットの位置(Nos.1~4)で、点Cは中央の電磁石の位置(No.5)である。また支持力 F_0 は中央電磁石ユニットの支持力を表している。本研究の磁気浮上システムでは、中央電磁石ユニットの支持力 F_0 の値を変化させることにより鋼板を湾曲させるため、Fig. 2のように支持点DとEで単純支持され、C点で集中荷重 F_0 が作

用している。このとき鋼板にはたわみが生じ、支持点での鋼板の角度をたわみ角 φ と定義する。このモデルからたわみ角 φ とその時の支持力 F_5 の関係式を算出することにより各電磁石ユニットに印加する定常電流値を算出した。

中央の支持点 No. 5 での支持力 F_5 の関係は次式で表される。

$$F_5 = \frac{2ah}{3l^2} \{ \rho g l (l^2 - 6d^2) - 2Eh^2 \varphi \} \quad (1)$$

また鋼板の質量より、外側の支持点 No.1~No.4 での支持力 $F_1 \sim F_4$ は次式となる。

$$F_1 = F_2 = F_3 = F_4 = \frac{\rho ahgb \cdot F_5}{4} \quad (2)$$

ここで、 a : 板長さ [m], b : 板幅 [m], h : 板厚 [m], ρ : 鋼板の密度 [kg/m³], g : 重力加速度 [m/s²], l : x 軸に見た電磁石ユニット No.1 と No.3, あるいは No.2 と No.4 の距離 [m], d : x 軸に見た電磁石ユニット No.1, No.2, No.3, No.4 から鋼板端部までの距離 [m], E : 鋼板のヤング率 [N/m²] である。

2.2 解析モデル

薄鋼板の振動形状および共振周波数を検討するため、モーダル解析および周波数応答解析を行った。解析モデルは ANSYS Workbench Mechanical にて長さ 800 mm, 幅 600 mm, 厚さ 0.19 mm の薄鋼板を電磁石設置角度 $\theta = 13^\circ$ で湾曲させた時の形状を再現した。 $\theta = 13^\circ$ という湾曲角度は、過去の実験⁹⁾にて最も振動の振幅が抑制され、最も浮上する確率の高かった条件である。このとき、鋼板は四辺自由であり、支持条件は Fig. 1 に示す電磁石の設置位置と同じ場所で支持した。

2.3 解析結果

Fig. 3 に解析で使用した鋼板モデルを示す。このモデルを用いて薄鋼板のモーダル解析と周波数応答解析を行った。Fig. 4 の結果は、周波数応答解析の結果にて突出した周波数のモード形状のみ抜粋して掲載した。それぞれ (a) 短手方向の弾性一次モードで 6.20 Hz, (b) 短手方向の弾性三次モードで 11.71 Hz, (c) 長手方向の弾性一次と短手方向の三次が組み合わさったモードで 19.65 Hz, (d) 短手方向の弾性五次モードで 41.69 Hz という結果になった。(a) の弾性一次モードは、周囲電磁石の箇所が節となり、鋼板短手方向中央部が腹となる振動形状である。(b), (c) および (d) のモードは、(a) 弾性一次モードと同様短手方向中央に腹が存在する奇数次モードが突出した。これらのモードが突出している理由として、鋼板短手方向を湾曲させることで短手方向の振動が支配的になる弾性一次モードに近い形状となるため、鋼板長手方向の振動や鋼板中央部が節になる偶数次のモードが抑制されていることが考えられる。よって、薄鋼板を湾曲浮上させることによって、弾性一次などの奇数次モードが支配的になり、他の振動モードを抑制することができることが分かった。

3. 外乱入力対応の湾曲磁気浮上装置

前章の解析にて得られた湾曲薄鋼板の振動モードが実際の磁気浮上状態にてどのような影響を及ぼすのか確認するために、外乱を入力できる磁気浮上装置を用いて実験を行った。

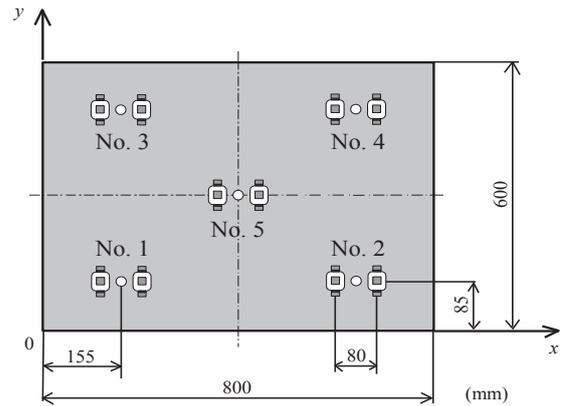


Fig. 1 Dimension of steel plate and arrangement of electromagnets.

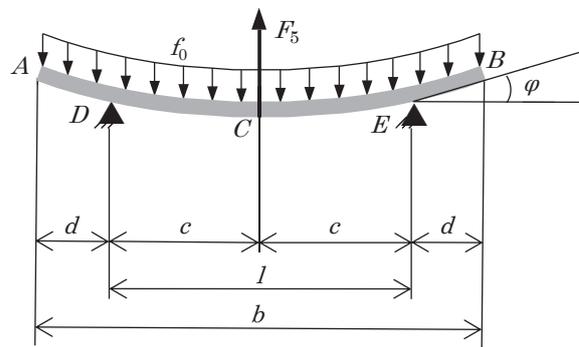


Fig. 2 Protruding beam.

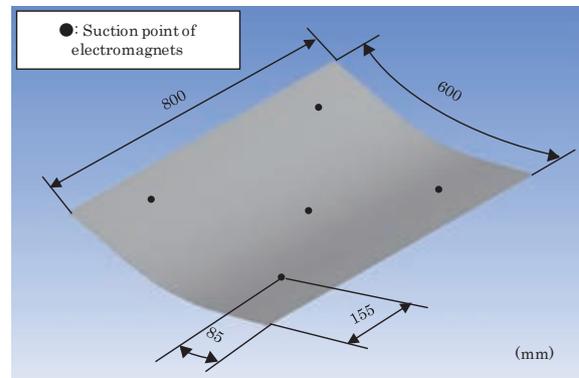


Fig. 3 Shape analysis of steel plate.

Fig. 5 に制御システムの概略図, Fig. 6 に実験装置の概略図を示す。浮上対象は長さ 800 mm, 幅 600 mm, 厚さ 0.19 mm の長方形垂鉛メッキ鋼板を使用する。電磁石ユニットは鋼板周囲の 4 か所および鋼板の重心になる中央部に設置した。これら 5 つの電磁石ユニットを用いて鋼板を非接触支持するために、鋼板の変位を 5 個の渦電流式非接触変位計により検出し、検出した変位をデジタル微分により速度に変換する。さらに電磁石コイル電流を測定用の外部抵抗より検出し、合計 15 個の観測値を入力し制御則を計算する。なお電磁石ユニットは 2 つの電磁石と 1 つの渦電流式非接触変位センサから構成されている。電磁石は E 型フェライトコアに直径 0.5 mm のエナメル線を 1005 回巻いたものである。この電磁石の電気回路は直列結合されており、変位センサを中央に挟

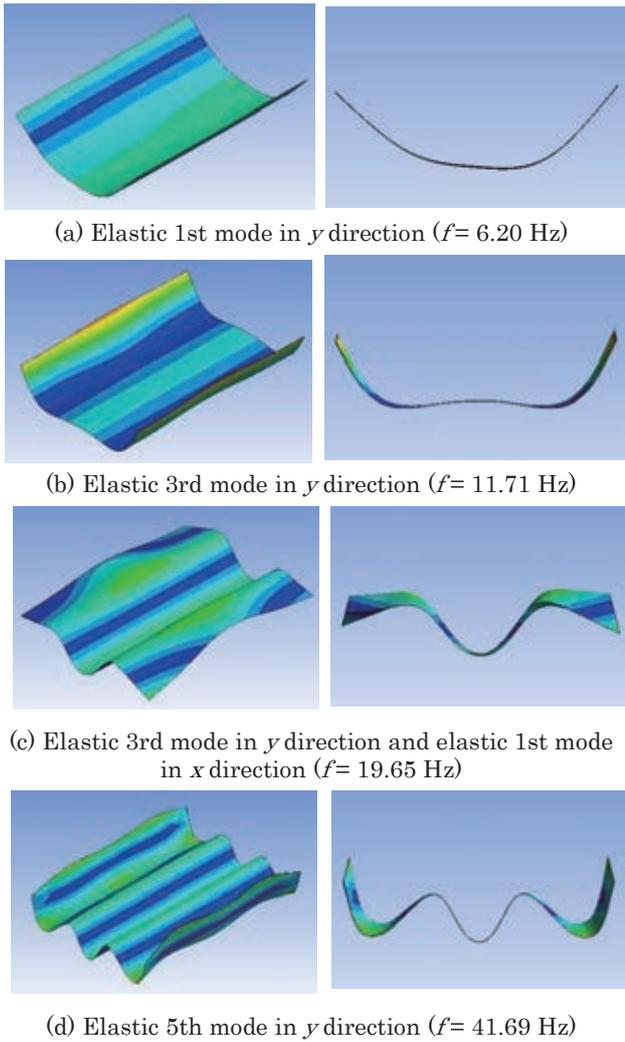


Fig. 4 Shape analysis of steel plate.

むように配置してある。

5 個の電磁石ユニットのうち周囲の Nos. 1~4 は Fig. 6 の正面図のように傾けることができる機構になっている。このように電磁石ユニットの取り付け角度を変更することで、鋼板を湾曲させて浮上させることができる。また、鋼板を湾曲させても電磁石が同じ位置に吸引力を印加できるように周囲の電磁石は水平方向に、中央の電磁石は鋼板の湾曲度合いに応じて垂直方向に動かすことができる。

制御システムは過去の研究で用いた手法⁹⁾と同様に、ある位置での電磁石の変位、速度、コイル電流の検出値の情報を同じ電磁石にのみフィードバックする独立制御を行い、離散時間系の最適制御理論に基づいて最適制御則を求める。Fig. 7 に示すように鋼板を 5 つの仮想質量 m_m に分割し、それぞれを集中定数系としてモデル化を行う。鋼板を浮上させる方法は電磁石の定常電流 I_m によって発生する吸引力 F_m により鋼板を支持し、そこに制御電流 i_m を加え鋼板と電磁石の距離が 5 mm になるように制御を行っている。電磁石角度 θ における各電磁石の吸引力は式 (1)、(2) より求めた。

電磁石ユニットを設置しているフレームには加振器が備え付け

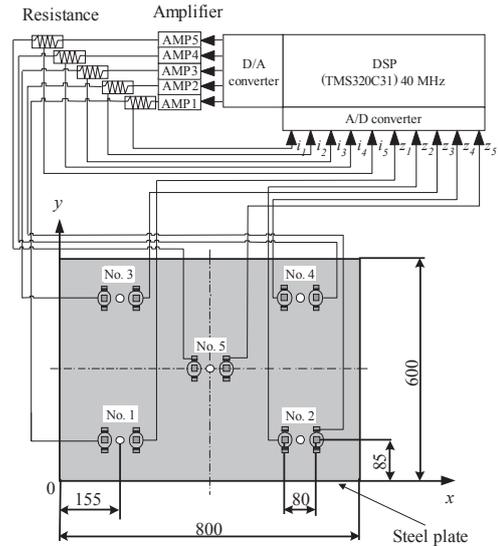


Fig. 5 Electromagnetic levitation control system and arrangement of electromagnets.

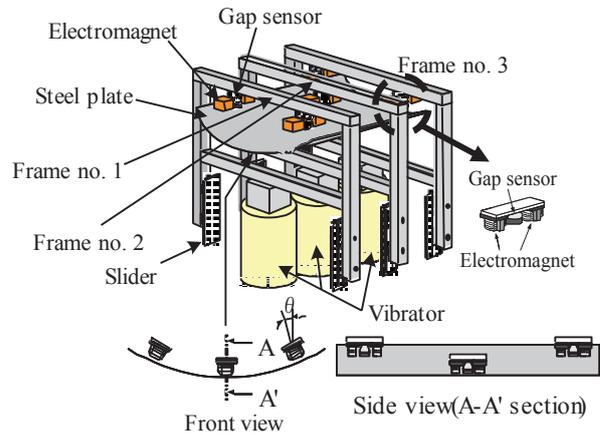


Fig. 6 Schematic illustration of experimental apparatus.

られており、周波数一定の正弦波を用いてフレームの振幅および位相が一定になるように調整した後、フレームを振動させることで浮上鋼板に外乱を入力することができる。なお各フレームには Fig. 8 に示す渦電流式非接触センサを設置し、加振中のフレームの変位を測定した。

4. パルス波を用いた外乱入力実験

4.1 実験条件

浮上中の薄鋼板に最も影響する外乱を実験的に探索するため、電磁石ユニットが備え付けられているフレームをパルス波で加振させた外乱入力実験を行った。パルス波で加振させたフレームの変位時刻歴波形を Fig. 9 に示す。

このとき、浮上中鋼板の振動は各電磁石ユニットに取り付けてある渦電流式非接触変位センサで取得した。また、電磁石の設置角度 θ は過去の実験⁹⁾で振動が抑制された $\theta = 10, 13, 15^\circ$ に、フレーム加振の振幅は 0.7 mm に設定した。なお、入力した振幅 0.7

Table 1 Representative value of resonance frequency.

Tilt angle of electromagnets [deg]	Resonance frequency [Hz]
10	2.67 - 10
13	3.56 - 9.78
15	3.11 - 10

mm は最悪の外乱であり、予備実験にてこれ以上振幅値を増加させた場合に浮上が困難であることを確認している。

4.2 実験結果

パルス波を用いてフレームを加振させた際の鋼板の変位時刻歴波形およびスペクトル波形を Fig. 10 に示す。同図より、最大のスペクトルは 0.0335 mm であり、そのときの周波数は 5.75 Hz である。同様の実験を 10 回行った際に測定された共振周波数の最小値と最大値を Table 1 に示した。Fig. 10 および Table 1 から、本実験で使用している鋼板の共振周波数は約 2.5 ~ 10 Hz の範囲内に存在することが分かった。また、2 章の解析では 6.20 Hz で弾性一次モードの振動が発生しているという結果になったが、この結果が本章の実験結果の範囲内にあることが分かる。したがって、実際の湾曲磁気浮上実験においても弾性一次モードが支配的であると考えることができる。

5. 正弦波を用いた外乱入力実験

5.1 実験条件

過去の研究⁹⁾では、ランダムノイズなど複数の周波数成分が含まれた外乱を入力してきたが、できる限り共振周波数に近い周波数で固定した外乱を入力するため、本章では周波数を一定に設定した正弦波を用いて電磁石ユニットを加振させ、そのときの湾曲浮上性能を検討する外乱入力実験を行った。

浮上中鋼板の振動を取得するため、Fig. 11 に示すように鋼板中央付近に渦電流式非接触変位センサを設置した。この変位標準偏差から外乱入力時の鋼板の浮上安定性を評価した。Fig. 12 にフレームの時刻歴波形およびスペクトル波形の例を示す。このとき、正弦波の振幅は 0.25 mm 一定とし、正弦波の周波数は 4 章の結果を参考に 3~10 Hz の範囲内で 1 Hz 刻み毎に実験を行った。また、電磁石の設置角度 θ は過去の実験⁹⁾ で最も振動が抑制された $\theta = 13^\circ$ で行った。

5.2 実験結果

Fig. 13 に周波数ごとの変位標準偏差を示す。同図より、正弦波の周波数を高めると変位標準偏差は増加し、5 Hz で最も標準偏差が高くなり、5 Hz 以降は標準偏差が低下した。

Fig. 14 に 3 Hz、5 Hz および 8 Hz の正弦波を入力した際の鋼板の変位時刻歴波形を示す。(b) 固有振動数に近い 5 Hz のときは振幅約 0.7mm で振動するが、(a) 3 Hz および (c) 8 Hz では 5 Hz と比べると振幅は半分以下となった。

これらの結果を 2 章 Fig. 4 と比較すると、Fig. 13 で最も高い偏差を記録した 5 Hz の振動は、約 6 Hz で振動した Fig. 4 (a) の短

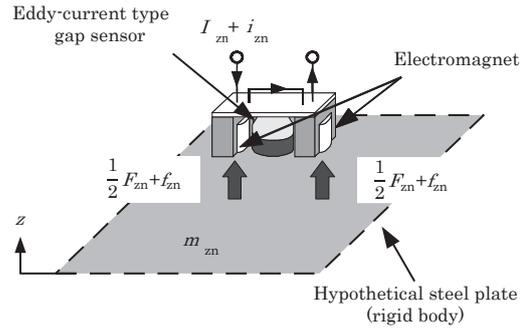


Fig. 7 Theoretical model of levitation control.

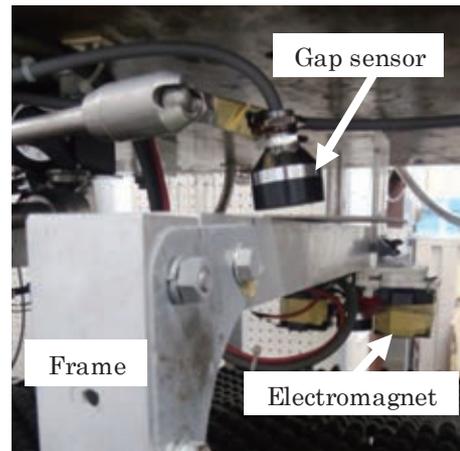


Fig. 8 Eddy-current gap sensor for frame (No. 2).

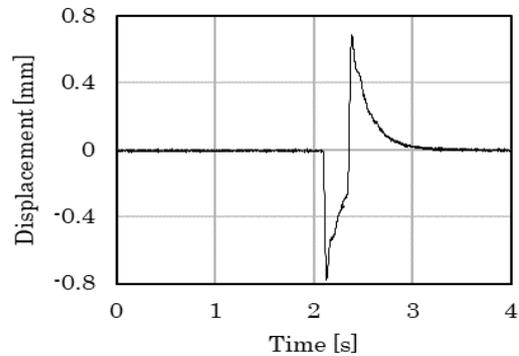


Fig. 9 Time history of displacement of vibrating frames by the pulse disturbance.

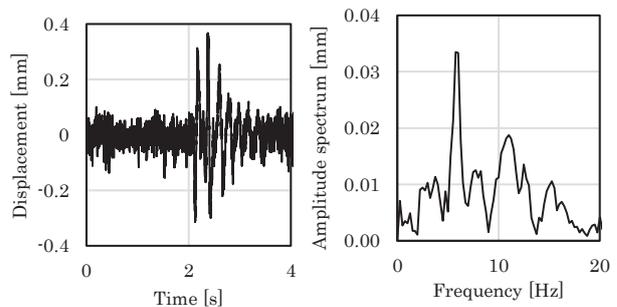


Fig. 10 Time history and amplitude spectrums of displacement of steel plate when vibrating frames by the pulse disturbance ($\theta = 13^\circ$).

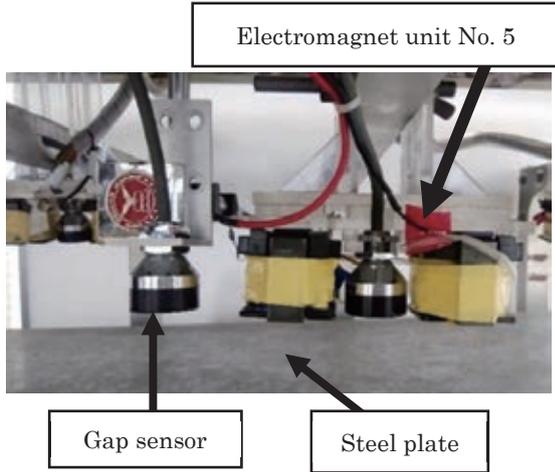


Fig. 11 Eddy-current gap sensor in central part of steel plate.

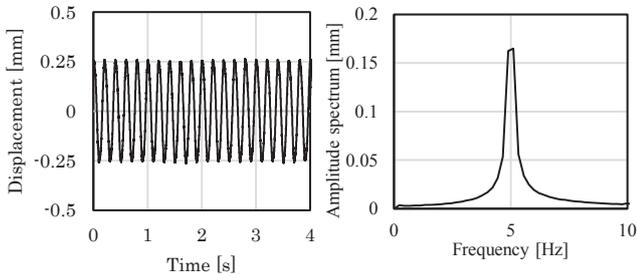


Fig. 12 Time histories of displacement and amplitude spectrums of vibrating frames by the sine disturbance ($f=5$ Hz).

手方向の弾性一次モードが最も近い振動モードであるといえる。しかしながら、鋼板を湾曲させることで固有振動数に近い外乱によって弾性一次モードが励起され、鋼板と電磁石の間隔 5mm に対して 10%以上の振幅で振動している状況下でも鋼板は落下することなく浮上を続けることができた。

6. 結言

本報告では浮上中鋼板の振動メカニズムを明らかにするために、薄鋼板のモーダル解析および周波数応答解析を行った上で浮上中鋼板に最も影響する外乱を入力した湾曲浮上実験を行った。

解析および実験の結果、薄鋼板を湾曲させ奇数次の振動モードが励起しやすい状態を作ることによって他の振動モードが発生しにくくなり、浮上安定性が向上することを鋼板の弾性振動の観点から示した。さらに固有振動数付近の外乱を入力した状態でも浮上状態を維持できたことから、湾曲磁気浮上によって浮上性能が向上できたことを実験的に確認することができた。

今後の研究計画として、外乱を相殺する制御手法の開発を予定しており、より浮上性能の高い磁気浮上制御を目指していく。

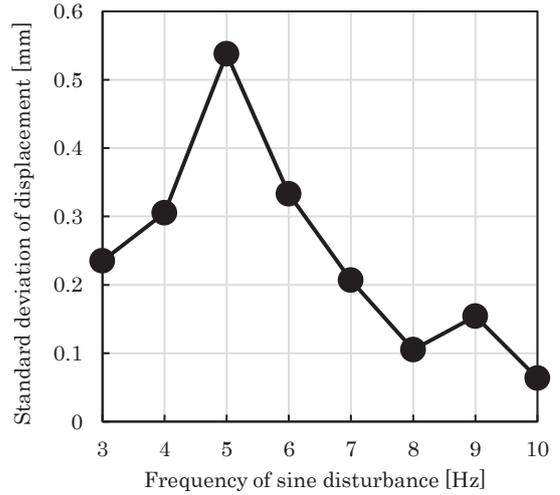
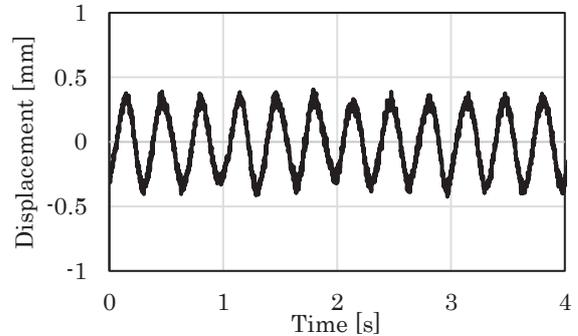
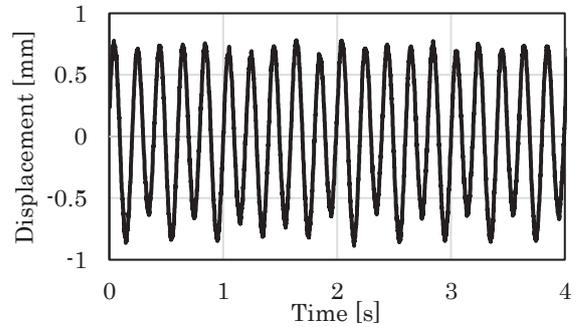


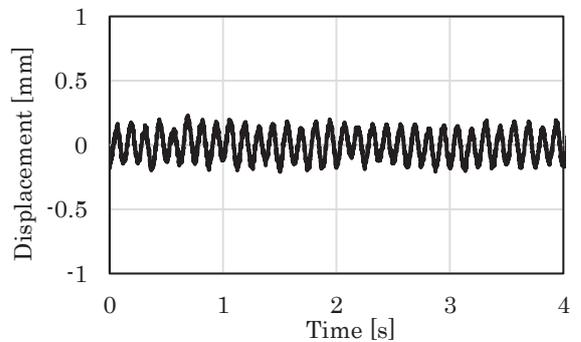
Fig. 13 Standard deviation of displacement when vibrating the frames by the sine disturbance.



(a) $f=3$ Hz



(b) $f=5$ Hz



(c) $f=8$ Hz

Fig. 14 Time histories of displacement when vibrating the frames by the sine disturbance.

References

- 1) Y. D. Chung, C. Y. Lee, D. W. Kim, H. Kang, Y. G. Park and Y. S. Yoon: *IEEE Trans. on Applied Superconductivity*, **27**, 3601805 (2017).
- 2) E. Morimoto, N. Niguchi and H. Hirata: *IEEJ Trans. on Industry Applications* (in Japanese), **138**, 164 (2017).
- 3) Y. Ishino, T. Mizuno, M. Takasaki, M. Hara and D. Yamaguchi: *Journal of the JSAEM* (in Japanese), **26**, 178 (2018).
- 4) S. Iwashita and S. Torii: *IEEJ Trans. on Industry Applications* (in Japanese), **135**, 475 (2015).
- 5) Y. Odajima, Y. Takada, I. Oikawa and T. Nakagawa: *IEEJ Trans. on Industry Applications* (in Japanese), **138**, 692 (2018).
- 6) Y. Oshinoya and T. Obata: *JSME International Journal Series C*, **45**, 60 (2002).
- 7) H. Marumori, H. Yonezawa, T. Narita, H. Kato and Y. Oshinoya: *Trans. of Japan Society of Mechanical Engineers* (in Japanese), **81**, 14-00471 (2015).
- 8) H. Kato, H. Marumori, H. Yonezawa and T. Narita: *Trans. of ASME Journal of Vibration and Acoustics*, **138**, VIB-15-1159 (2016).
- 9) M. Tada, H. Yonezawa, H. Marumori, T. Narita and H. Kato: *Int. J. Appl. Elec. Mech.* (Accepted).
- 10) K. Ogawa, M. Tada, T. Narita and H. Kato: *MDPI Actuators*, **7**, 43 (2018).

2018年11月8日受理, 2019年2月26日採録

Effect of Ionic Concentration on Dynamic Magnetic Susceptibility of Iron Oxide Nanoparticles Embedded in Chitosan Hydrogel Matrix

M. E. Villamin, and Y. Kitamoto

Tokyo Institute of Technology, Department of Materials Science and Engineering, 4259 Nagatsutacho, Midori-ku, Yokohama, Kanagawa, 226-8502

We investigate the effect of the ionic strength of surrounding NaCl solutions of an iron-oxide chitosan hydrogel (FeO_x-CH) on magnetic relaxation of the FeO_x NPs. The magnetic relaxation of the FeO_x NPs is examined using dynamic magnetic susceptibility measurement. Swelling ratio (SR) is also measured after the FeO_x-CH is immersed to various NaCl concentrations. SR of the FeO_x-CH decreases as the NaCl concentration increases. This trend is explained by considering the osmotic water flow in the FeO_x-CH. The peak in frequency dependence of the imaginary part of the susceptibility (χ'') is found around 200 Hz. In addition, the position of the χ'' peak frequency shifts to lower frequencies as the NaCl concentration increases. The observed frequency shift is inferred to be due to the suppression of the Brownian relaxation caused by the decrease of SR of the FeO_x-CH as the NaCl concentrations increases. An effective viscosity change of 6.8% due to the change in the NaCl concentration is also estimated via analytical calculation.

Key words: biomagnetism, magnetic nanoparticles, magnetic biosensing, chitosan ferrogel, dynamic susceptibility,

1. Introduction

There is great research interest on the integration of nanostructures with stimuli-responsive polymers for the development of multifunctional materials. One of these multifunctional materials is a ferrogel that exhibits dual-responsiveness to both chemical and magnetic external stimuli ¹⁾⁻²⁾. Such ferrogels are composed of magnetic nanoparticles crosslinked (either via physical or chemical crosslinking) with a stimuli-responsive polymer network. Due to the dual-responsiveness to pH/magnetic or thermal/magnetic, these ferrogels are extensively studied for many biomedical applications for stress sensors ³⁾, controlled-release of drug ⁴⁾, and externally control microfluidics ⁵⁾.

In particular, ferrogels are very useful for biosensing applications. In a previous study, we have demonstrated magnetic based pH-detection using an iron oxide – chitosan (FeO_x-CH) ferrogel ⁶⁾. This is achieved by coupling the chemical-responsiveness (pH-sensitivity) of the CH matrix to magnetic relaxation property of the FeO_x nanoparticles (NPs). That is a change in the pH (chemical stimulus) would cause a corresponding change in the magnetic relaxation property of the embedded FeO_x NPs, which can then be measured by dynamic magnetic susceptibility. This potentially paves the way for non-contact magnetic-based chemical (pH) sensors based on ferrogels. Note that different polymers may be used to detect different chemical stimuli ⁷⁾⁻¹⁰⁾. Hence, ferrogel based biosensors are not limited to pH detection.

Potentially, ferrogel-based biosensors can be applied to microarrays. Microarrays are used for simultaneous analyses of different target molecules, such as in DNA microarrays and in protein-based microarrays in a single experiment run. In a conventional microarray, sensing sites that have a unique target molecules are arranged in an array or matrix. The surface of the sensing sites is

functionalized so that the target molecules (and only the target molecules) bind to the sites. The bound target molecules are then detected by labeling methods such the use of fluorescent labels or isotopic labels, or non-labeling methods such as mass spectrometry or micro-cantilevers ¹¹⁾⁻¹²⁾. In commercially available microarrays, the fluorescent labeling detection method is dominant because of its high throughput and low cost ¹¹⁾. However, fluorescent labels often chemically react to target molecules that could potentially alter their intrinsic property ³⁾ and also sufficient time is required for the reaction to complete. These affect the reliability of the signal detection, and prevent the real-time detection of binding events ¹¹⁾⁻¹³⁾. Alternative non-label methods, on the other hand, are still under development.

Clearly, one possible alternative label-free method is the use of a ferrogel based microarray, which utilizes ferrogel sites instead of the functionalized surfaces. The use of magnetic sensing offers potentially label-free, non-contact measurement at possibly real-time detection speeds by using ferrogels. By choosing the appropriate gel matrix material, target molecules could interact directly to the gel without the need for further functionalization. Furthermore, gels also potentially allow to increase the sensing part by using the whole volume of the ferrogel instead of using two-dimensional binding surface.

As mentioned, magnetic based pH sensing has already been previously demonstrated in FeO_x-CH, where changes in pH affected the magnetic relaxation of the NPs, which was then detected by dynamic susceptibility measurements ⁶⁾. As pH changed from pH 1.95 (acidic) to pH 6 (neutral), the peak in the frequency dependent imaginary part of the susceptibility shifted to lower frequency, from ~190 to ~170 Hz ⁶⁾. This is accompanied by a reduction in the swelling ratio (SR) of ferrogel (i.e. the ferrogel reduced swelling and became

smaller). We attributed the shift in the peak of the imaginary part susceptibility to lower frequency due to the change of Brownian relaxation time resulting from the reduced swelling of the CH. This can be interpreted as a change in effective viscosity of CH. The viscosity of the CH changed with pH due to the presence of NH_4^+ vs. NH_3^+ causing the CH to decrease swelling in low pH. This mechanism will be explained in more detail in a latter section.

In this study, we utilize the same material system and demonstrate magnetic-based ionic strength detection. Similar to the previous study, the materials used in this study are the following: CH as the stimuli-responsive polymer, and FeO_x NPs as the superparamagnetic nanoparticles. We note that CH is chemically responsive not only to pH^{14,16,21} but also to multiple chemicals, including ions (ionic strength sensitivity)^{15,17,18,20,22} and temperature²¹. Other advantages of using CH are its abundance²²⁻²³, biocompatibility^{14,22} and ease of functionalization^{14,21}. Hence, these make CH an ideal candidate for ferrogel biosensors. Whereas, the merits of using FeO_x NPs are biocompatibility²⁴, strong magnetic property²⁴⁻²⁶ and low toxicity²⁴, which makes them appropriate for many biomedical applications. Here, we investigated the effect of the change in the ionic strength of the surrounding solution to the magnetic susceptibility of the FeO_x -CH ferrogel, as measured by dynamic magnetic susceptibility.

2. Experimental Details

2.1 Synthesis and characterization of FeO_x -CH

The chemicals used in the experiment are as follows: iron(III) chloride hexahydrate ($\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) and iron(II) chloride tetrahydrate ($\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$) with 99.0 % purity were bought from Wako Pure Chemical Industries, and chitosan powder with $\sim 20000 - 50000$ molecular weight, was obtained from the Sigma Aldrich Company.

The synthesis process has been described in detail in a previous study⁶. For convenience, here we describe the process briefly. First, $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ and $\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ powder ($\text{Fe}^{3+}/\text{Fe}^{2+}$ ratio of 1/2) were added to a chitosan solution using a magnetic stirrer. Next, the $\text{Fe}^{3+}/\text{Fe}^{2+}/\text{CH}$ aqueous solution was placed in an NH_4OH coagulation bath until the gelation is completed. Lastly, the resulting iron-oxide chitosan hydrogel (FeO_x -CH), which has a distinctive black color, was washed several times with purified water. By measuring the height of the gel formed as function of time, we are able to estimate the gel formation rate. Note that the FeO_x NPs were not functionalized before embedding into the gel. Thus, we assume that the nanoparticles are weakly bound to the chitosan matrix; there is also a possibility that some FeO_x NPs are freely moving or completely not bound to the chitosan matrix.

The final structure of the FeO_x -CH specimens was confirmed by scanning electron microscopy (SEM). Prior to SEM observations, the specimens were coated with osmium. Moreover, the ferrogel formation and FTIR

results are also presented.

2.2 Swelling ratio

Swelling ratio (SR) is generally used to evaluate the amount of water absorption of hydrogels. SR values of FeO_x -CH are calculated using equation (1)²⁷.

$$\text{SR \%} = [(W_s - W_d) / W_d] \times 100\%, \quad (1)$$

where W_s is the specimen's weight when swollen after submerging to the solution, and W_d is the specimen's weight after freeze drying for two hours. The sample was immersed in the solution with different NaCl concentrations (10 mM, 100 mM and 500 mM) prior to SR measurements. Note that the sample was washed after each measurement, and then, the same sample was used in the next measurements.

2.3 Dynamic Magnetic Susceptibility Measurement

For the magnetic characterization, we measured dynamic magnetic susceptibility (sometimes referred to as the AC susceptibility or frequency dependent susceptibility) under alternating fields of the FeO_x -CH using a Physical Property Measurement System (Quantum Design Corp.: PPMS). The dynamic susceptibility represents dynamic magnetic responses of the FeO_x NPs inside the CH. Susceptibility is simply the slope of the magnetization (M) with respect to applied magnetic field (H). In the dynamic susceptibility measurement, we measured the two parts of susceptibility, the real (χ') part and imaginary (χ'') part of susceptibility²⁹⁻³². Theoretically, the two parts are expressed as follows:

$$\chi'(\omega) = \chi_0 / [1 + (\omega\tau_{\text{eff}})^2], \quad (2)$$

$$\chi''(\omega) = \chi_0 \cdot (\omega\tau_{\text{eff}}) / [1 + (\omega\tau_{\text{eff}})^2], \quad (3)$$

where $\omega = 2\pi f$ is the angular frequency with f the frequency, τ_{eff} the effective relaxation time, and χ_0 is the static susceptibility ($\omega = 0$) described by

$$\chi_0 = (\mu_0 n m^2) / (3k_B T). \quad (4)$$

with vacuum permeability μ_0 , thermal energy $k_B T$, magnetic moment m , and particle number density n . In this study, the point of interest is the imaginary part of the susceptibility χ'' , which can be used to estimate the effective magnetic relaxation time τ_{eff} . At the frequency where χ'' is maximum, the following relation²⁹⁻³² is true:

$$2\pi f_{\text{peak}} \cdot \tau_{\text{eff}} = 1, \quad (5)$$

where the f_{peak} is the frequency at χ'' maximum. Therefore, we can calculate τ_{eff} from f_{peak} . The effective relaxation time τ_{eff} is the combination of the two magnetic relaxation processes: Brownian relaxation and Néel relaxation. The Brownian relaxation is due to the physical rotation of nanoparticles, whereas Néel relaxation is from the internal rotation of a magnetic moment of nanoparticles. In general, the faster relaxation mechanism is dominant and τ_{eff} is given by the equation²⁹⁻³²

$$\tau_{\text{eff}} = (\tau_B \cdot \tau_N) / (\tau_B + \tau_N). \quad (6)$$

The Brownian relaxation time (τ_B) is given by the following equation^{26, 29-32},

$$\tau_B = [\eta \cdot (d_h)^3] / (2k_B T). \quad (7)$$

where η is the viscosity of the suspension and d_h is the

hydrodynamic particle diameter. From equation (7), it can be noted that the τ_B is dependent on the hydrodynamic size of the nanoparticle. The Néel relaxation time τ_N is described by ²⁹⁾⁻³²⁾

$$\tau_N = \tau_0 \cdot \exp [(\kappa\pi d_c^3) / (6k_B T)] . \quad (8)$$

where κ is the anisotropy constant, d_c is the magnetic core diameter of the nanoparticle, and τ_0 is the intrinsic relaxation time with a typical value of 10^{-9} s ^{29),31)}. From equation (8), it can be noted that τ_N is dependent on the magnetic core size.

Dynamic susceptibility measurements were made with a magnetic field strength of 10 Oe and frequency range of 10 Hz to 10 kHz. The sample was immersed in different NaCl concentrations (10 mM, 100 mM and 500 mM) before the PPMS measurements. Note that the sample was washed after each measurements and then the same sample was used in the next measurements.

3. Results and Discussion

3.1 Formation of ferrogel

The formation of ferrogel is discussed in this paper to elucidate how the ferrogel have become a porous structure. The actual image of the ferrogel during the gelation time of 1 hour is shown in Fig. 1. The region with a black color is ferrogel, that above the ferrogel is the NH_4OH solution, and that below the ferrogel (colored orange) is the unreacted $\text{Fe}^{3+}/\text{Fe}^{2+}/\text{CH}$ solution. To monitor the height of the ferrogel, photos of specimens were taken with the gelation time. There were 8 photos taken during the 6 hour-observation of the ferrogel. Using an image editor software, the vertical height of the ferrogel was measured in pixels. The height of the container was used as the calibration height to convert the height in pixels to mm. Thus, we are able to accurately estimate the height of the gel via image processing.



Fig. 1 Actual image of ferrogel. $\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}/\text{CH}$ solution inside the bottle is submerged in NH_4OH solution. When $\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}/\text{CH}$ combines with NH_4OH , ferrogel is formed. This image is taken half way thru the synthesis, thus the unreacted $\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}/\text{CH}$ solution, initially formed ferrogel, and NH_4OH solution are all present. Here, ferrogel membrane separates the two solutions.

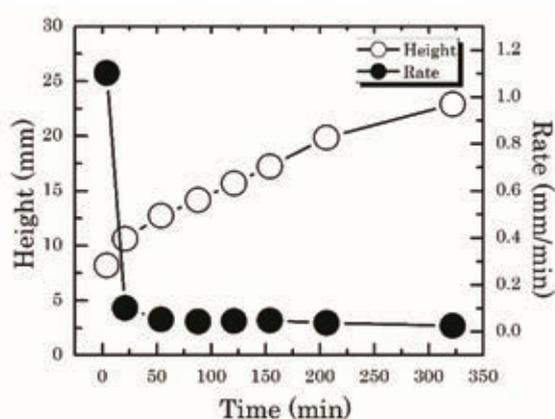


Fig. 2 Measured height of the ferrogel (left y axis, open circles) and the calculated rate of gelation (right y axis, filled circles) are plotted as a function of gelation time.

The calculated ferrogel heights are shown in Fig. 2 (left y axis, open circles). From the figure, it can be observed that the height of the ferrogel monotonically increases with the gelation time. This implies that the ferrogel is porous because it allows the NH_4OH to penetrate into the bottom of the container in order to react and form the additional ferrogel.

The rate of the ferrogel formation is also shown in Fig. 2 (right y axis, filled circles). From the figure, it can be seen that the rate of gelation is decreasing with time. It is also evident from the plots that the calculated initial rate is very high (>1 mm/min) from time = 0 to 30 minutes. Immediately after the initial stage, the rate gradually decreases from time = 30 to 150 min; the rate becomes very slow (<0.1 mm/min) from time = 150 to 350 min. From these data, we can observe that the gel formation rate continuously decreases. This nonlinear gelation behavior suggests that the ferrogels might have different layers within the hydrogel ³³⁾ due to the difference on the rate of diffusion of the OH^- from the top to the bottom of the container. Furthermore, this trend is consistent with the idea that as the gel becomes thicker, the diffusion rate naturally becomes slower, leading to the decrease in gel formation rate with time.

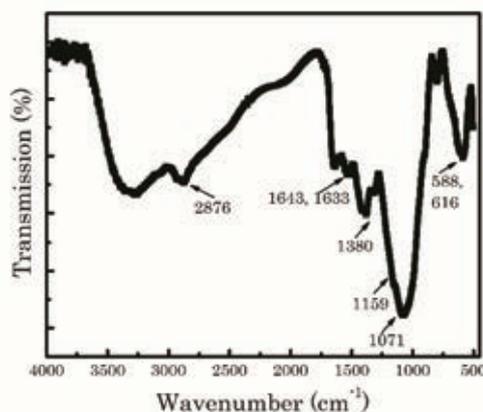


Fig. 3 FTIR spectrum of FeOx-CH .

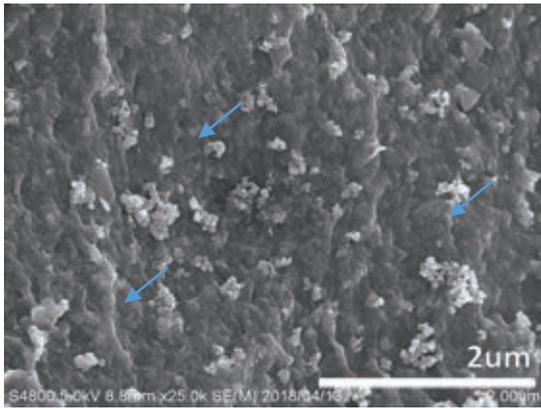


Fig. 4 SEM image of FeO_x-CH at 25Kx magnification. Blue arrows point to some of the FeO_x NPs clusters within the ferrogel.

3.2 FTIR and SEM results

Fig. 3 shows the FTIR results of the FeO_x-CH. For CH, the characteristic bands of the asymmetric stretching of the C-H bond appeared around 2876 cm⁻¹. The N-H and C-N vibrations of the amino group present in chitosan is evident at 1633/1643 cm⁻¹ and 1380 cm⁻¹, respectively. In addition, the band around 1159/1071 cm⁻¹ is from the C-OH stretching of the ester group in chitosan. More importantly, the absorption band at around 600 cm⁻¹ is from the Fe-O bond in the FeO_x NPs. From the FTIR data, it can be inferred that high quality CH and FeO_x NPs are present in the composite gels.

An SEM image of FeO_x-CH is shown in Fig. 4. It can be seen from the figure that the NPs (white areas) seem to be clustered and scattered along the striated wall of the CH. The size of the clusters of NPs varies from around 50 nm to 500 nm, with an average of around 150 nm (from 30 sites within the SEM image). This confirms the presence of FeO_x NPs in the composite gel. The SEM image also reveals the irregular/rough porous structure of the CH matrix. In particular, this rough structure increases the surface area of the CH which is desirable to increase sensitivity.

3.3 Swelling ratio at different ionic concentration

The swelling ratio (SR) is plotted as a function of the ionic concentration of solutions in which the FeO_x-CH are immersed as shown in Fig. 5. The SR of the FeO_x-CH decreases as the ionic concentration of the solution increases. As observed from the figure, it can be concluded that the FeO_x-CH is indeed sensitive to changes in the salt concentration change. The degree of swelling of hydrogels depends on the extent on the degree of ionization of functional groups of the hydrogels and the ionic strength of the external solution^{23),33)-34)}.

One possible explanation on the reduced swelling of the gel, when the surrounding solution of the CH has high ionic strength, is the movement of the water molecule from the lower osmotic pressure inside the CH to the higher osmotic pressure outside the CH.

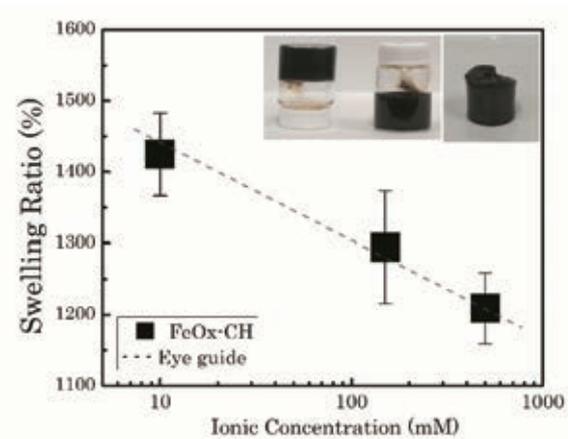


Fig. 5 Swelling ratio of FeO_x-CH with different ionic concentrations. Insets are photographs of actual FeO_x-CH used.

The additional osmotic pressure outside the CH is caused by the presence of cations (Na⁺) near the walls of the CH²³⁾⁻³⁴⁾. This is also known as the Donnan effect²³⁾⁻³⁴⁾, wherein, in this case, we consider that CH acts as a semi-permeable membrane. To illustrate this, the schematic of swelling mechanism of FeO_x-CH at different ionic strength is shown in Fig. 6. From the schematic diagram, the black arrows correspond to the amount and the direction of the water flow from outside the gel into the inside the gel. When there is large water flow into the gel, the gel swelling is enhanced, whereas when there is a small water flow into the gel, the gel swelling is reduced. Figure 6 shows that when the NaCl concentration of the surrounding CH is increased, the amount of the water flow inside the CH is small, causing the CH to reduced swelling. In contrast, when the NaCl concentration is decreased, the water flow going to CH is large resulting to an enhance swelling of the CH.

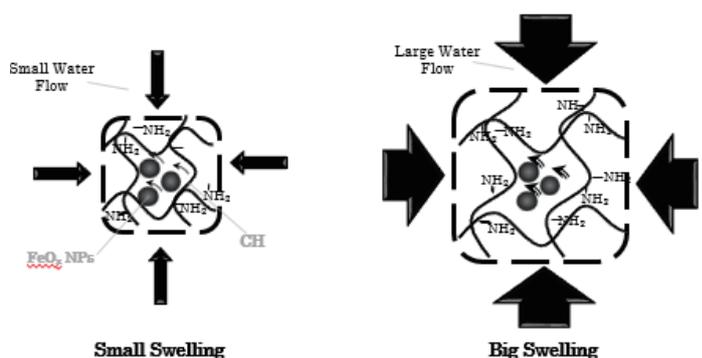


Fig. 6. Schematic of FeO_x-CH mechanism when submerged to increasing (left) or decreasing (right) ionic concentration. Black arrows show the amount of water flow inside the gel that causes the reduction and enhancement of the gel swelling. It also illustrates the FeO_x NPs rotation under these two ionic conditions.

3.4 Dynamic susceptibility as a function of ionic strength

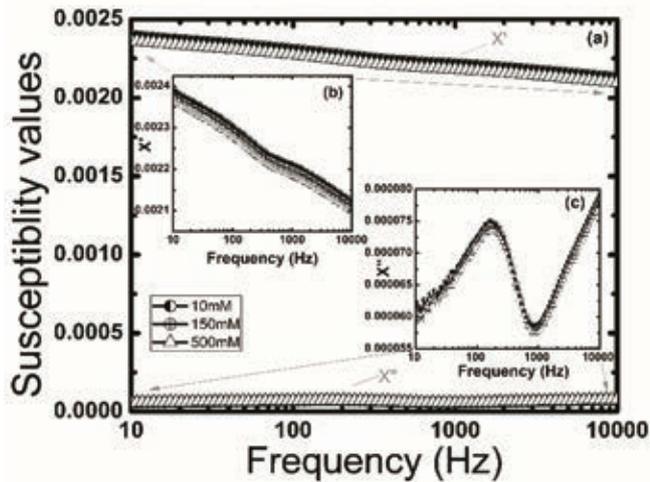


Fig. 7 Dynamic susceptibility of the FeOx-CH (a), the zoomed in real (inset b, top values) and imaginary (inset c, bottom values) parts of the susceptibility at 10mM (●), 150mM (○), and 500mM (△) NaCl concentrations.

As seen in Fig. 7a, the plot of the χ' values are all located in the top part of the plot with high susceptibility values, whereas the plot of the χ'' values are all located at the bottom with low susceptibility values. The plots of the zoomed-in χ'' and χ' values are also shown in Fig. 7b and Fig. 7c, respectively. We can observe from Fig. 7a that the χ'' values are very small compared to χ' values at lower frequencies ($\chi'' / \chi' \approx 0.026$), hence, it is expected that the area inside M-H hysteresis curve at these frequencies would be proportionally small (almost no hysteresis in M-H curve is expected) which is a characteristic of superparamagnetism. Further, as can be seen in the Fig. 7b (inset), it is evident that χ' is decreasing as the frequency increases. This decreasing behavior is a typical signature of the real part of the susceptibility for superparamagnetic nanoparticles³⁵⁾ as the frequency crosses the f_{peak} of the sample.

We can see in Fig. 7b (inset) that χ' slightly decreases (shift downwards) with the increase of the ionic concentration. This downward shift seems to be related to the corresponding change in χ'' with ionic concentration. This is elucidated in the next paragraph. Note also that the order of magnitude of the χ' values does not change, which suggests that the total moment of the ferrogel sample did not change between measurement, which is expected and a sign of good experimental reproducibility and reliability of the sample.

For all the ionic conditions, it can be observed in Fig. 7c (inset) that there is a clear χ'' peak at around 200 Hz, corresponding to an effective relaxation time of τ_{eff} of around 0.8 msec. Also, the χ'' values are again increasing at $\gg 1$ kHz which could correspond to another high frequency peak. Moreover, the χ'' plot shown in Fig. 7c (inset) are shifted to lower frequency with the increase of the ionic concentration. This low-frequency shift of the χ'' would also cause a corresponding low-frequency shift in the χ' . However, since there is no peak in the χ' , this low-

frequency shift may appear as a downward shift, which we see in the Fig. 7b results.

Shown in the inset of Fig. 8 is the plot of the zoomed-in normalized χ'' from the data in Fig. 7c. In the normalization of χ'' , the minimum χ'' value (found at the low frequency end) is set to 0, whereas the local maximum χ'' peak value (found around 200 Hz) is set to 1. Note that at the low frequency end, the value of χ'' is very much smaller than that of χ' values and practically is zero. Also, in Fig. 8 inset, the normalized χ'' values are vertically separated for visual clarity of the shift in f_{peak} . It can be seen that the position of the maximum χ'' shift to lower frequency as the ionic strength increases. A plot of f_{peak} for different ionic strength are shown in Fig. 8. These f_{peak} values are extracted from the fitted Gaussian function of the data from the inset of Fig. 8. It is evident from Fig. 8 that there is a shift in the χ'' peak position to lower frequencies from ~ 193 Hz to ~ 182 Hz upon increase of the ionic concentration of the solution from 10 mM to 500 mM. We also note the strong correlation between the SR in Fig. 5 to f_{peak} in Fig. 8, which clearly suggests that the reduced swelling of the ferrogel is related to the shift in f_{peak} .

As previously mentioned in Section 2.3, the point of interest in this study is in the magnetic relaxation (τ_{eff}) of the FeO_x NPs in the ferrogel, we can estimate the τ_{eff} from f_{peak} by applying Eq. (5). Here, we find τ_{eff} was increased from 0.874 msec to 0.825 msec as the ionic strength increases from 10 mM to 500 mM.

In order to explain these results, we need to determine the dominant magnetic relaxation mechanism in the present sample. We note that the Néel relaxation time τ_{N} is not affected by changes in ionic concentration or reduced swelling of the ferrogel, whereas the Brownian relaxation time can be affected. When the ferrogel reduced swelling, it likely becomes more difficult for the FeO_x NPs to rotate, especially if we consider clustered NPs as suggested by the SEM imaging results. This increased difficulty of rotation effectively suppresses the Brownian relaxation of the NPs. This can be interpreted as an increase in the effective viscosity of the surrounding gel. Therefore, the fact that a shift f_{peak} was observed strongly suggests that in the sample in the current study Brownian relaxation is dominant, as Néel relaxation alone would not explain the f_{peak} .

Note that although the reduced swelling of the gel also changes the spacing between NPs which can also affect τ_{eff} , the trend, however, is opposite. If we consider the spacing between NPs, the reduced swelling of the gel would yield to the decrease in spacing between NPs, which would enhance the dipolar interaction, which should in-turn decrease τ_{eff} ³⁹⁾⁻⁴⁰⁾. That is when high density (small spacing) of NPs are present, relaxation is

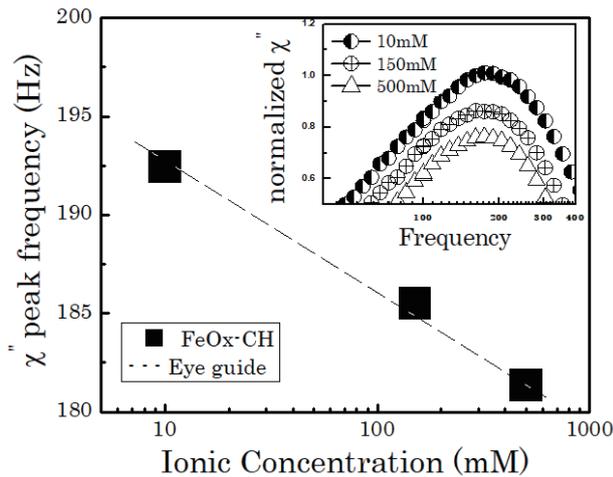


Fig 8. Peak frequency f_{peak} of χ'' as function of ionic concentration of the $\text{FeO}_x\text{-CH}$. Inset: plot of the normalized χ'' as function of frequency at different ionic concentrations, zoomed-in and vertically separated for visual clarity of the position of f_{peak} .

enhanced. We note that this is in fact opposite the results of the present study, and is therefore unlikely. Moreover, since the NPs are arranged in clusters, the dipolar interaction between individual particles is already present even without changing the ionic concentration. Hence, changing the interparticle spacing due to the ionic concentration (and reduced swelling of the gel) is not expected to increase the dipolar interaction significantly.

Furthermore, if we consider the only the effect of ionic concentration to NPs (the case without a CH gel matrix), we expect that an increase in the ionic concentration leads to the surface charges in the NPs, which would prevent aggregation as well as increases inter-particle spacing⁴¹⁾⁻⁴³⁾. Again, this, however, is opposite the results of the present study, where the presence and reduction of swelling of the CH gel causes the formation of clusters and the spacing between NPs to decrease. Therefore, the possibility that the ionic concentration (chemical stimuli) is affecting the magnetic properties NPs directly is unlikely, and that it is more probable that the ionic concentration directly interacts with the CH gel and CH gel in-turn affects the magnetic property of the NPs by suppressing the Brownian relaxation.

After these considerations, we therefore infer that for the sample in the present study, Brownian relaxation is dominant ($\tau_{\text{eff}} \approx \tau_B$ ³⁵⁾⁻³⁷⁾, and $\tau_B \ll \tau_N$). This allows us to estimate the hydrodynamic size d_h . Using Eq. (7), we estimated d_h of around 130 nm for $\eta = 1 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ ⁴⁴⁾. We note that this value agrees well with the clustered NPs size showed in our SEM results. Whereas, we attribute the high frequency χ'' peak (at $\gg 1 \text{ k Hz}$ in Fig. 7c-inset) to the non-clustered NPs in the ferrogel. Assuming that the high frequency peak is comparable to that of a similar sample, it is expected to be in the order of 10 kHz, which corresponds to a $\tau_B \approx 16 \mu\text{sec}$ and $d_h \approx 34 \text{ nm}$. Note that

the NPs d_h and d_c are of the same order of magnitude, which is expected. Furthermore, this also allows us to estimate the minimum possible magnetic core size of the NPs. Since Brownian relaxation is dominant, $\tau_N \gg \tau_B \approx 0.80 \text{ msec}$. Assuming τ_N is in the order of 8 msec, we estimate a magnetic core size of around 18.41 nm for $\kappa = 2 \times 10^4 \text{ Joule}\cdot\text{m}^{-3}$ ⁴⁵⁾⁻⁴⁶⁾. This again fits well with the SEM results, since the magnetic core size should be smaller than the cluster size. Note that this is just the lower bound for the magnetic core size of the NPs.

Similar to the analysis done in the previous study⁶⁾, it is reasonable to assume that the Néel relaxation time remains the same even if the ionic concentration changes. Therefore, the presence of the experimentally observed frequency shift suggests that Brownian relaxation is dominant in the present specimens. Ignoring the contribution of Néel relaxation (i.e. $2\pi f_{\text{peak}} \approx 1/\tau_B$)³⁶⁾⁻³⁸⁾, we can relate the change in the effective viscosity $\Delta\eta$ to the experimentally observed shift in peak frequency, Δf_{peak} , due to ionic concentration change. This relation is analytically written as

$$\Delta f_{\text{peak}} \approx (2 k_B T \Delta\eta) / (\pi d_h^3 \eta) = (\Delta\eta / \eta) \times \tau_B, \quad (9)$$

where the parameter $\Delta\eta/\eta$ is the fractional (or percent) change of the viscosity. Equation (9) is derived by taking the derivative of the reciprocal of Eq. (5) with respect to η . From the experimentally measured frequency shift of $\Delta f_{\text{peak}} \approx 11 \text{ Hz}$ due to ionic concentration change, a change in the viscosity $\Delta\eta/\eta \approx 6.13\%$ is estimated. We estimate that the viscosity change of the surrounding medium is increased from 1 mPa.s to 1.0613 mPa.s when the ionic concentration is increased. This is smaller compared to our previous result on the effect of pH. This signifies that the ferrogel is more sensitive to pH than to ionic strength values used in the experiments.

4. Conclusion

In the present study, we experimentally demonstrated the use of CH ionic strength sensitivity to affect the magnetic relaxation properties of FeO_x NPs. The observed shift to lower frequency of the χ'' peak is due to the reduced swelling of the hydrogel that suppresses the Brownian relaxation. The change of effective viscosity is also estimated by analytical calculations. The results in this study is a promising demonstration of magnetic sensing of chemical stimuli that may be useful for future bio-sensing applications.

Acknowledgements This work was partly supported by the following foundations: Tokyo Ohka Foundation, Kato Foundation and Murata Science Foundation.

References

- 1) J.S. Gonzalez, P. Nicolás, M.L. Ferreira, M. Avena, V.L. Lassalle, V.A. Alvarez: *POLYM INT.*, **63**, 258 (2012).
- 2) S. Kennedy, C. Roco, A. Délérís, P. Spoerri, C. Cezar, J. Weaver, H. Vandenberg, and D. Mooney: *Biomaterials*, **161**, 179 (2018).

- 3) Y. Lu, W. He, C. Cao, H. Guo, Y. Zhang, Q. Li, Z. Shao, Y. Cui, and X. Zhang: *Sci Rep.*, **4**, 5792 (2014).
- 4) X. Zhao, J. Kim, C.A. Cezar, N. Huebsch, K. Lee, K. Bouhadir, and D.J. Mooney: *Proc. Natl. Acad. Sci.*, **108**, 67 (2011).
- 5) N.S. Satarkar, W. Zhang, R.E. Eitel, and J.Z. Hilt: *Lab Chip*, **9**, 1773 (2009).
- 6) M.E. Villamin, and Y. Kitamoto: *IEEE Trans. Magn.*, **55**, 1 (2019).
- 7) Koetting, M. C., Peters, J. T., Steichen, S. D., & Peppas, N. A.: *Mater. Sci. Eng. R Rep.*, **93**, 1 (2015).
- 8) Ma, C., Shi, Y., Pena, D. A., Peng, L., & Yu, G.: *Angew. Chem.*, **127**, 7484 (2015).
- 9) Dragan, E. S., & Cocarta, A. I.: *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **8**, 12018 (2016).
- 10) Wei, M., Gao, Y., Li, X., & Serpe, M. J.: *Polym. Chem.*, **8**, 127 (2017).
- 11) M. Bally, M. Halter, J. Vörös, and H.M. Grandin: *Surf. Interface Anal.* **38**, 1442 (2006).
- 12) A. Syahir, K. Usui, K.Y. Tomizaki, K. Kajikawa, and H. Mihara: *Microarrays (Basel)*, **4**, 228 (2015).
- 13) H.J. Hong, W.S. Koom, and W.G. Koh: *Sens.*, **17**, 1293 (2017).
- 14) M. Rizwan, R. Yahya, A. Hassan, M. Yar, A.D. Azzahari, V. Selvanathan, F. Sonsudin, and C.N. Abouloula: *Polymers*, **9**, 137 (2017).
- 15) H.S. Lee, M.Q. Yee, Y.Y. Eckmann, N.J. Hickok, D.M. Eckmann, and R.J. Composto: *J Mater Chem*, **22**, 19605 (2012).
- 16) S.K. Samal, M. Dash, P. Dubruel, and S. V. Vlierberghe: Smart polymers and their applications, Chapter 8, p. 237-270 (Elsevier, 2014).
- 17) J. Cho, M.C. Heuzey, A. Bégin, and P.J. Carreau: *J Food Eng.*, **74**, 500 (2006).
- 18) S. Kunjachan, S. Jose, and T. Lammers: *Asian J. Pharm.*, **4**, 2 (2014).
- 19) F. Lai, H. Li, and R. Luo: *Int J Solids Struct.*, **47**, 3141 (2010).
- 20) X. Zhang, H. Niu, Y. Pan, Y. Shi, and Y. Cai: *Anal. Chem.*, **82**, 2363 (2010).
- 21) F.M. Goycoolea, M.E. Fernández - Valle, I. Aranaz, and A. Heras: *Macromol Chem Phys.*, **212**, 887 (2011).
- 22) S. Dimida, C. Demitri, V.M. Benedictis, F. Scalera, F. Gervaso, and A. Sannino: *J Appl Polym Sci*. **132**, (2015).
- 23) G.R. Deen, and X.J. Loh: *Gels*, **4**, 13 (2018).
- 24) W. Zhang, X. Li, R. Zou, H. Wu, H. Shi, S. Yu, and Y. Liu: *Sci. Rep.*, **5**, 11129 (2015).
- 25) W.S. Peternele, V.M. Fuentes, M.L. Fascineli, J.R.D. Silva, R.C. Silva, C.M. Lucci, and R.B.D. Azevedo: *JNANOMATER*, **2014**, 94 (2014).
- 26) A.G. Kolhatkar, A.C. Jamison, D. Litvinov, R.C. Willson, and T.R. Lee: *Int. J. Mol. Sci.*, **14**, 15977 (2013).
- 27) Kim, S. J., Park, S. J., & Kim, S. I. (2003). *React. Funct. Polym.*, **55**, 53 (2003).
- 28) Fan, L., Yang, H., Yang, J., Peng, M., & Hu, J.: *CARBOHYD POLYM*, **146**, 427 (2016).
- 29) J. Dieckhoff, D. Eberbeck, M. Schilling and F. Ludwig: *J. Appl. Phys.*, **119**, 043903 (2016).
- 30) F. Ludwig, C. Balceris, C. Jonasson, and C. Johansson: *IEEE Trans. Magn.*, **53**, 1 (2017).
- 31) S. Bogren, A. Fornara, F. Ludwig, M. del Puerto Morales, U. Steinhoff, M.F. Hansen, O. Kazakova, and C. Johansson: *Int J Mol Sci.*, **16**, 20308 (2015).
- 32) V. Singh, V. Banerjee, M. and Sharma: *J. Phys. D.*, **42**, 245006 (2009)
- 33) J. Nie, W. Lu, J. Ma, L. Yang, Z. Wang, A. Qin, and Q. Hu: *Sci. Rep.*, **5**, 7635 (2015).
- 34) J. Ricka, T. Tanaka: 1984. *Macromolecules*, **17**, 2916 (1984).
- 35) Fannin, P. C., Scaife, B. K. P., & Charles, W.: *J. Phys. E: Sci. Instrum.*, **19**, 238 (1986).
- 36) Wu, K., Liu, J., Wang, Y., Ye, C., Feng, Y., & Wang, J. P.: *Appl. Phys. Lett.*, **107**, 5 (2015).
- 37) Wu, K., Ye, C., Liu, J., Wang, Y., Feng, Y., & Wang, J. P.: *IEEE Trans. Magn.*, **52**, 1 (2016).
- 38) Tu, L., Wu, K., Klein, T., & Wang, J. P.: *J. Phys. D.*, **47**, (2014).
- 39) Orozco-Henao, J. M., Coral, D. F., Muraca, D., Moscoso-Londoño, O., Mendoza Zélis, P., Fernandez van Raap, M. B., & Knobel, M.: *J. Phys. Chem. C*, **120**, 12796 (2016).
- 40) Allia, Paolo, Marco Coisson, Paola Tiberto, Franco Vinai, Marcelo Knobel, M. A. Novak, and W. C. Nunes.: *Phys. Rev. B*, **64**, 144420 (2001).
- 41) Mirshahghassemi, S., Cai, B., & Lead, J. R.: *Environmental Science: Nano*, **3**, 780 (2016).
- 42) Nesztor, D., Bali, K., Tóth, I. Y., Szekeres, M., & Tombácz, E.: *J. Magn. Magn. Mater*, **380**, 144 (2015).
- 43) Tombácz, E., Farkas, K., Földesi, I., Szekeres, M., Illés, E., Tóth, I. Y., Nesztor, D. & Szabó, T.: *Interface focus*, **6**, (2016).
- 44) Jia, D., Hamilton, J., Zaman, L. M., & Goonewardene, A.: *Am. J. Phys.*, **75**, 111 (2007).
- 45) Nayek, C., Manna, K., Imam, A. A., Alqasrawi, A. Y., & Obaidat, I. M.: *In IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, **305**, (012012). IOP Publishing. (2018).
- 46) Demortiere, A., Panissod, P., Pichon, B. P., Pourroy, G., Guillon, D., Donnio, B., & Begin-Colin, S.: *Nanoscale*, **3**, 225 (2011).

Received Oct. 16, 2018; Revised Dec. 27, 2018; Accepted Feb. 15, 2019

Editorial Committee Members · Paper Committee Members

K. Kobayashi and T. Ono (Director), T. Kato, K. Koike and T. Taniyama (Secretary)					
A. Fujita	H. Goto	H. Hashino	S. Honda	S. Inui	Y. Kanai
S. Kasai	A. Kikitsu	H. Kikuchi	T. Kimura	T. Kubota	K. Miura
T. Nagahama	H. Naganuma	M. Naoe	M. Ohtake	N. Pham	T. Sasayama
T. Sato	T. Sato	K. Sekiguchi	M. Sekino	T. Shima	Y. Shiratsuchi
M. Sonehara	T. Tanaka	S. Yamada	K. Yamamoto	H. Yuasa	
N. Adachi	K. Bessho	M. Doi	T. Doi	T. Hasegawa	N. Inaba
S. Isogami	K. Kamata	H. Kato	K. Kato	T. Koda	S. Kokado
Y. Kota	T. Maki	E. Miyashita	T. Morita	S. Muroga	H. Nakayama
T. Narita	D. Oyama	J. Ozeki	T. Saito	S. Seino	K. Tajima
M. Takezawa	T. Takura	M. Tsunoda	S. Yabukami	T. Yamamoto	K. Yamazaki
S. Yoshimura					

Notice for Photocopying

If you wish to photocopy any work of this publication, you have to get permission from the following organization to which licensing of copyright clearance is delegated by the copyright owner.

〈All users except those in USA〉

Japan Academic Association for Copyright Clearance, Inc. (JAACC)
6-41 Akasaka 9-chome, Minato-ku, Tokyo 107-0052 Japan
Phone 81-3-3475-5618 FAX 81-3-3475-5619 E-mail: info@jaacc.jp

〈Users in USA〉

Copyright Clearance Center, Inc.
222 Rosewood Drive, Danvers, MA01923 USA
Phone 1-978-750-8400 FAX 1-978-646-8600

編集委員・論文委員

小林宏一郎 (理事)	小野輝男 (理事)	加藤剛志 (幹事)	小池邦博 (幹事)	谷山智康 (幹事)					
乾成里	大竹充	葛西伸哉	金井靖	喜々津哲	菊池弘昭	木村崇	窪田崇秀	後藤博樹	
笹山瑛由	佐藤拓	佐藤岳	嶋敏之	白土優	関口康爾	関野正樹	曾根原誠	田中哲郎	
直江正幸	永沼博	長浜太郎	橋野早人	PHAM	NAMHAI	藤田麻哉	本多周太	三浦健司	
山田晋也	山本健一	湯浅裕美							
安達信泰	磯上慎二	稲葉信幸	小瀬木淳一	小山大介	加藤宏朗	加藤和夫	鎌田清孝	神田哲典	
古門聡士	小田洋平	齊藤敏明	清野智史	田倉哲也	竹澤昌晃	田島克文	角田匡清	土井達也	
土井正晶	中山英俊	成田正敬	長谷川崇	別所和宏	榎智仁	宮下英一	室賀翔	森田孝	
藪上信	山崎慶太	山本崇史	吉村哲						

複写をされる方へ

当学会は下記協会に複写複製および転載複製に係る権利委託をしています。当該利用をご希望の方は、学術著作権協会 (<https://www.jaacc.org/>) が提供している複製利用許諾システムもしくは転載許諾システムを通じて申請ください。ただし、本誌掲載記事の執筆者が転載利用の申請をされる場合には、当学会に直接お問い合わせください。当学会に直接ご申請いただくことで無償で転載利用いただくことが可能です。

権利委託先：一般社団法人学術著作権協会

〒107-0052 東京都港区赤坂9-6-41 乃木坂ビル

電話 (03) 3475-5618 FAX (03) 3475-5619 E-mail: info@jaacc.jp

本誌掲載記事の無断転載を禁じます。

日本磁気学会論文特集号

Vol. 3 No. 1 (通巻第5号) 2019年5月1日発行

Vol. 3 No. 1 Published May 1, 2019

by the Magnetism Society of Japan

Tokyo YWCA building Rm207, 1-8-11 Kanda surugadai, Chiyoda-ku, Tokyo 101-0062

Tel. +81-3-5281-0106 Fax. +81-3-5281-0107

Printed by JP Corporation Co., Ltd.

Sports Plaza building 401, 2-4-3, Shinkamata Ota-ku, Tokyo 144-0054

Advertising agency: Kagaku Gijutsu-sha

発行：(公社)日本磁気学会 101-0062 東京都千代田区神田駿河台1-8-11 東京YWCA会館207号室

製作：ジェイピーシー 144-0054 東京都大田区新蒲田2-4-3 スポーツプラザビル401 Tel. (03) 6715-7915

広告取扱い：科学技術社 111-0052 東京都台東区柳橋2-10-8 武田ビル4F Tel. (03) 5809-1132

Copyright ©2019 by the Magnetism Society of Japan