Fe-Al 系合金の低温焼入による磁歪*

沼 倉 健 一**

Ken'ichi Numakura: Magnetostriction of Iron-Aluminum Alloys by Subzero Quenching in Liquid Nitrogen. The magnetostriction and the magnetization of 10 kinds of polycrystalline ferromagnetic iron-aluminum alloys after various heat treatments were measured. The magnetostriction curve of Fe-Al alloy containing 2.39 per cent of aluminum showed a minimum near saturation when it was heated for one hour at 1200°C, and quenched in water from that temperature. The magnetostriction curve of Fe-Al alloy containing 8.43 per cent of aluminum was quite peculiar and showed irreversible hysteresis, just after heating for one hour at 300°C, then quenching in liquid nitrogen from that temperature. A maximum of saturation magnetostriction appeared at the composition of about 12 per cent of aluminum, and this tendency did not change by heat treatments. Furthermore, the deviation of saturation magnetization with each heat treatment was largest at the above composition because of order-disorder transformation. The saturation magnetostrictions of the alloys in the composition range, except ordered phase, quenched in water from 1200°C, were larger than that in the state cooled in furnace from the same temperature.

(Received March 20, 1961)

I. 緒 言

液体窒素に焼入れた場合、著者の予想に反し急冷効果が抑制されるということについては前論文¹⁾に詳述したが、この現象がアルフェル合金特有のものであるかどうかを調べるために Fe-Al 合金の強磁性全領域に亘って焼入れ温度を種々変え、磁歪ならびに磁化曲線を測定した。

II. 試料および測定方法

この研究に当り、Fe-Al 系合金の強磁性領域全般に亘って試料を新たに調整した。材料はこれまでと同様、昭和電工製の電解鉄と純アルミニウムで 2% おきに計 10 本の丸棒試料を真空高周波炉で溶解した。熔融金属は直径 5 mm の円棒状鑄型に鑄込し、アルゴンガス圧によつて鑄込み中に試料内に巣の発生するのを防止した。ついで旋盤により直径 4 mm、長さ 10 cm の丸棒に仕上げた。試料の Al 分析結果は各図面に記入されてある通りである。磁化曲線の測定は弾動電流計法により、磁歪 λ は静的な optical lever の方法によつた。

III. 測定結果および考察

この研究の主な目的である液体窒素中への焼入れ処理を行う前に仕上げ直後の状態、1000°C×3 hr 加熱して炉冷し

た状態、1200°C×1 hr 加熱して炉冷した状態および 1200°C から水中に焼入れた状態について測定を行った。しかる後 300°, 400°, 500°, 600°, 800°, 1000°, 1200°C の各温度に 1 時間、加熱保持し、それぞれの温度から液体窒素に焼入れて、磁歪および磁化曲線を測定した。このようにして各熱処理状態における試料の磁歪対磁化曲線を求めることが出来る。Figs. 1, 2 には、2.39% Al 合金の一例を示す。1000°C×3 hr 加熱炉冷した場合には磁化 I (C.G.S.) の初期において正の磁歪を生じ、 $I=1100$ (C.G.S.)

Fig.1 Magnetostriction, λ vs. intensity, I curves for 2.39% Al specimen after various heat-treatments.

近傍で極大となり、飽和領域で 0 に減少する。1200°C×1 hr 加熱炉冷した場合には磁歪は初め正值をとるが、 $I=1200$ (C.G.S.) 近傍で負に転じ、飽和磁歪は負値をと

** 東北大学金属材料研究所

* 1961 年 4 月日本物理学会分科会に発表

(1) 沼倉：本誌，25(1961)，738.

る。つぎに 1200°C から水中に急冷した状態の磁歪は最も特異である。すなわち磁化の増加と共に正の磁歪は漸次増

Fig. 2 Magnetostriction, λ vs. intensity, I curves for 2.39 %Al specimen after various heat-treatments.

大し, $I=1100\sim 1200$ (C.G.S.) 近傍の極大を経て減少する。そして飽和領域で再び急激に増大し一つの極小を形成する。

この種の磁歪曲線は著者らによりある特種の珪素鋼帯において初めて見出されたものであるが⁽²⁾, 上記の通り丸棒試料にも同様の効果が得られたことは頗る興味がある。この合金の 1200°C における相状態は α 相と γ 相との境界近傍に当っており, 多少複雑な構造を有し, そのためにある種の拘束力が試料内部に存在しているものと思われる。このような磁歪現象に対して, 著者は次のように考えている。すなわち, 一般に容易磁化方向が正の磁歪常数を示し, 磁化困難方向に負の磁歪常数を有するこの種 Fe 基合金においては, 容易磁化方向の磁歪特性が磁化の初期に発生し磁化困難方向の磁歪特性が最終的に発生するのが最も正常である。従つて多くの場合, 磁歪曲線はなだらかな拋物線型となるか若しくは指数函数的に増大する。しかし, 若しも正の磁歪常数を有する容易磁化方向が何らかの拘束力を受けると, ある限界磁場内では磁壁移動並びに磁区回転が抑制されてしまう。しかも磁化困難方向にはこのような拘束力が働かないとすると, その限界磁場以内でその方向の磁区回転が比較的容易に行われ, その方向の磁歪特性が発生するであろう。磁場の強さをさらに増加し, その限界磁場を越えると, 拘束力に打勝つて残存している特定方向の磁区回転が生じ, 正磁歪が発生するものと考えられる。

著者は先に異方性珪素鋼帯のこのような磁歪曲線に対して簡単な理論的表示を試みたが, この合金についても単結晶の磁歪常数が判れば, 次式によつて上記の実験結果を表示することが出来る。

$$\begin{aligned} (\delta l/l) = & \lambda_{100}(-1 + \sqrt{3\eta_1^2 + 1}) h_{100} \\ & + \{\lambda_{100}/4 + 3/4 \lambda_{111}(2\eta_2^2 - 1)\} h_{110} \\ & + \lambda_{111}/2(3\eta_2^2 - 1) h_{111} \dots\dots\dots (1) \end{aligned}$$

ただし $I \leq I_s/\sqrt{2}$ なる領域でのみ成立する。

$I \geq I_s/\sqrt{2}$ なる領域では

$$(\delta l/l) = \lambda_{100}(-1 + \sqrt{3\eta_1^2 + 1}) h_{100}$$

$$\begin{aligned} & + \lambda_{100}/4(2 - \sqrt{4 - 6\eta_2^2}) \\ & + \lambda_{111}/2(3\eta_2^2 - 1) h_{111} \dots\dots\dots (2) \end{aligned}$$

ここに $\eta_1 = I/I_s$, $\eta_2 = I/I_c$

$$h_{100} + h_{110} + h_{111} = 1$$

上式において λ_{100} , λ_{110} , λ_{111} はそれぞれ各主要軸方向の磁歪常数をあらわし, h_{100} , h_{110} , h_{111} はそれぞれ軸方向に存在する λ_{100} , λ_{110} , λ_{111} を百分率で示した数分布で, I_s , I_c はそれぞれこの合金の飽和磁化の強さおよび限界磁場における磁化の強さを表わしている。

さてつぎに液体窒素に焼入れる前に, 再び試料を 1200°C まで加熱し, 4°C/min の冷却速度で炉冷し, 熱歪のない状態にした。300°C から焼入れた場合には図から判る通り磁歪は初めから負の値を取り, 磁化の増加と共に値は指数函数的に増大している。400°C の場合は再び傾向が変り, 磁歪は初め正値を取りやや直線的に増加するが, $I=1300$ (C.G.S.) 近傍から減少して, $I=1500$ (C.G.S.) 近傍で負に転じ, 飽和磁歪は負値を示す。次に 500°, 600°, 800° および 1200°C から焼入れた場合は傾向的にも, 値も, 300°C の場合と全く大同小異である。しかし 1000°C から焼入れた場合は 400°C の場合に酷似している。

次に, Fig. 3 には 8.43 % Al 合金の異常な特性変化を示す。まず同試料を 1200°C に加熱し炉中冷却を行つて熱歪のない状態にし, 再びこれを 300°C $\times$ 1 hr 加熱して低温処理を施し, 処理後直ちに磁歪測定を行うと, 同図に示すように非可逆的な履歴現象を示す。図中, 矢じるしは測定

Fig. 3 Anomalous magnetostriction curve for 8.43 %Al specimen at virgin state just after quenching in liquid nitrogen from 300°C.

方向を表わす。ところで翌日, 再び同試料を測定すると図に並記されてあるように全く単純な磁歪曲線となる。このような異常現象の発生因として, 介在不純物としての C⁽³⁾, N の影響も考えられるが, 現在のところ未詳である。

次に各焼入温度, または炉冷状態における飽和磁歪を Al 濃度に対してかいてみると, Figs. 4, 5, 6 に示したよう

(2) 白川, 沼倉: 日本物理学会第 12 回年会 (1957) に発表; Nature, 190(1961), No. 4775, 523.

(3) H. Gengnagel: Berichte der Arbeitsgemeinschaft Ferromagnetismus (1958), 127.

な曲線傾向が得られる。Fig. 4に見られる通り、仕上げ状態の儘では 14 % Al 近傍が最も磁歪が大きく、1200°C か

Fig. 4 Saturation magnetostriction, λ_s vs. concentration curves after various heat-treatments.

Fig. 5 Saturation magnetostriction, λ_s vs. concentration curves after various heat-treatments.

Fig. 6 Saturation magnetostriction, λ_s vs. concentration curves after various heat-treatments.

ら水冷した状態では 10~12 % Al 近傍が最大となり、その他の処理においてはすべて 12 % Al 近傍に極大が存在している。そして値が増減するのみで傾向変化は殆んど見られない。

つぎに各試料の飽和磁歪を炉冷および焼入温度に対してかくと、Figs. 7, 8, 9 に示すような曲線が得られる。Fig. 7 には非規則相領域の組成試料に対する結果を示す。1000°C×3 hr 加熱炉冷するといずれも急激に増加し、ついで

1200°C×1 hr 加熱水冷すると、2.39 % Al 合金だけがさらに増加し他は減少する。つぎに 1200°C×1 hr 加熱炉冷す

Fig. 7 Saturation magnetostriction, λ_s vs. quenching temperature curves for each specimen.

Fig. 8 Saturation magnetostriction, λ_s vs. quenching temperature curves for each specimen.

Fig. 9 Saturation magnetostriction, λ_s vs. quenching temperature curve for 18.04 % Al alloy.

ると何れの試料も例外なく減少する。この現象はこの組成グループの特性のように思われる。さらに各試料を 1200°C に一旦加熱し炉冷して熱歪のない状態にしてから改めて 300°C に 1 時間加熱して低温焼入れを施すと、2.39 % Al 合金および 8.43 % Al 合金は僅かながら増大するが、他はさらに減少する。400°C の場合は 8.43 % Al 合金では再び減少するが他の場合は殆んど変わらない。500°C 以上になると 8.43 % Al 合金を除く他の試料は 600°C に一つの山をつくり、ゆるやかに増加している。8.43 % Al 合金の場合は 500°C に一つの極小を、600°C には可成り顕著な極大を示し、800°C 以上は他の場合と同様増加の傾向を示す。Fig. 8 には $\text{Fe}_{13}\text{Al}_3$ 並びに Fe_3Al 型規則相に属する組成グループの特性を示す。1000°C×3 hr 加熱炉冷すると前

者同様磁歪は急激に増大し、1200°C から水冷すると不規則状態になるため、再び磁歪は急激に減少する。つぎに1200°C に再び加熱し炉冷すると値は急激に増大し、規則化が行われたことが判る。300°C から液体窒素に焼入れた場合は10.26%、12.28% および14.36% Al 合金はさらに増加し一つの極大を示すが、15.95% Al 合金は減少の傾向を示す。そして500°C において一つの極小を形成し、600°C になると僅かながら増加する。14.36% および15.95% Al 合金においてはその後1200°C まで殆んど変化を示さないが、12.28% Al 合金では800°C を山にして多少減少する。10.26% Al 合金では前グループ同様600°C を山にして増加の傾向を示す。Fig. 9 には18.04% Al 合金の結果を示す。この場合は熱処理による変化は全く認められない。最後に種々の熱処理状態における飽和磁気をAl濃度に対してかくとFig. 10 に示す通りである。図から判る

Fig.10 Saturation magnetization, I_s vs. concentration curve after various heat-treatments.

合金に至る。初めの曲線傾斜はAl溶質原子によってFeが稀釈されることを示している。Alが約10%以上になると、曲線は比較的急激に減少している。

IV. 総 括

Fe-Al 系合金の強磁性全領域に亘つて焼入れ温度を種々変え、磁歪ならびは磁化曲線を測定し、大要次の結果を得た。

(1) 2.39% Al 合金を1200°C×1hr加熱し、その温度から水中に急冷した状態の磁歪は、飽和領域に一つの極小が存在する。

(2) 上記の磁歪曲線に対し、理論表示を与えた。

(3) 8.43% Al 合金を1200°C に加熱炉冷した後、再びこれを300°C×1hr加熱し、液体窒素に焼入れを行つた直後の磁歪曲線は全く異常であり、非可逆的な履歴現象を示す。

(4) 磁歪が最大となるのは12% Al 組成近傍で、この傾向は熱処理によつて変化しない。

(5) 非規則相領域の組成試料においては(2.39% Al 合金の例外はあるが)1200°C から水中に急冷した場合の飽和磁歪は同温度から炉冷した場合よりも大きい。

(6) $Fe_{13}Al_3$ および Fe_3Al 型規則相を示す組成試料においては500°C にて一つの極小を示す。これは熱歪効果の極大点に対応するものと考えられる。

(7) 18.04% Al 合金の磁歪は熱処理によつて全く変化を示さない。

(8) 飽和磁気の各熱処理に対する測定値の変化は12% Al 近傍が最も大きく、規則-不規則変態によることが伺われる。

(9) 飽和磁気の最初の曲線傾斜はAl溶質原子によつてFeが稀釈されていることを示している。

(10) 大凡そ10% Al 組成合金以上になると規則相のために急激に減少し、単調な変化を示さない。

終りに、本研究の遂行に当つて、終始、御鞭撻、御指導を賜つた白川勇記教授に心から深謝の意を表する。