面心立方Ni-Fe合金単結晶における 誘起単軸磁気異方性の結晶方位依存性*

青 柳 恵 三**

Keizô Aoyagi: Crystal Orientation Dependence of Induced Uniaxial Magnetic Anisotropy in Face-Centered Cubic Nickel-Iron Single Crystals. The induced uniaxial ferromagnetic anisotropy energy, E_u , as a function of the crystal orientation has been measured, using a torque magnetometer, with magnetically annealed (110) disc single crystals of 17 and 46% Fe-Ni alloys. It has been found that E_u may be well expressed by a formula

$$E_u = -K \left(\sum_i \alpha_i^2 \beta_i^2 + k \sum_{j>i} \alpha_i \alpha_j \beta_i \beta_j \right),$$

where K is a positive constant, k a numerical factor, and α_i 's and β_i 's ($i=1,2,3$) are the direction cosines of magnetization vectors during the torque measurement and during magnetic annealing, respectively, and that the factor k is 2~3, except for Ni-Fe alloys nearby Ni_3Fe , being smaller than 4 as expected from the directional order theory for face-centered cubic lattice. This difference may partly be due to the fact that the contribution from the second-neighbor atoms is neglected in the theory, and rather large values of k for Ni-Fe alloys nearby Ni_3Fe may be due to the presence of superlattice.

(Received March 9, 1961)

I. 緒 論

第3部⁽¹⁾において著者は12および20% Co-Ni合金の単結晶試料について誘起磁気異方性のエネルギー E_u の結晶方位依存性をトルク磁力計⁽²⁾を用いて測定して、それが一般式

$$E_u = -K \left(\sum_i \alpha_i^2 \beta_i^2 + k \sum_{j>i} \alpha_i \alpha_j \beta_i \beta_j \right), \quad (1)$$

(ただし, K は正の常数, k は数係数, そして α_i および β_i ($i=1,2,3$) はそれぞれトルク測定中および磁気焼鈍中の磁化ベクトルの方向余弦) によつてよく表現され, そして係数 k の値は合金の組成に拘わらず2~3であることを見出した。

ところで, 以前に近角⁽³⁾は Ni_3Fe 合金単結晶における誘起磁気異方性の方位依存性を (110) 扁平回転楕円体試料

を用いて測定した。彼によつて得られた結果と20% Co-Ni合金についてわれわれが得たそれとの比較を Fig. 1 に示した。これから判るように, 近角は Ni_3Fe 合金に対して $k=8.5$ なる値を見出したが, これは著者が第III部⁽¹⁾において12および20% Co-Niに対して得た $k=2\sim3$ なる値よりも非常に大きい。そこで, 本第4部においてこの

** 東北大学金属材料研究所。現在, 電信電話公社電気通信研究所

* 本論文は著者が理学博士号の授与を申請する為に東北大学に提出した学位論文の一部である。

(1) 青柳: 本誌, 25 (1961), 424.

(2) 山本, 谷口, 青柳: 本誌, 25 (1961), 415 (第1部).

(3) 近角: J. Phys. Soc. Japan, 11 (1956), 551.

ような k 値の相違が合金系の相違は原因するか或いは Ni-Fe 系には Ni_3Fe 規則格子が存在するとに対し, Ni-Co 系

においては規則格子が存在しない⁽⁴⁾ことに原因するかを明らかにするために、Ni₃Fe に近い 17% Fe-Ni 合金および

Fig. 1 Comparison of the crystal orientation dependence of (a) the uniaxial ferromagnetic anisotropy, K_u , and of (b) the deviation of the direction of easy magnetization from that of the annealing magnetic field, $\Delta\theta$, in Ni₃Fe alloy measured by Chikazumi⁽³⁾ and in 12%Co-Ni alloy measured by us.

それから非常に遠い 46% Fe-Ni 合金の (110) 円板単結晶を用いて K_u の方位依存性を研究した。

II. 単 結 晶 試 料

磁気異方性測定のために用いたトルク磁力計は第 1 部⁽²⁾に記述してある。また、単結晶の製作、方位決定、および円板の成形のための手続きも第 2 部⁽⁵⁾に記述した通りである。なお、単結晶を製作するための原料は電解ニッケルと電解鉄である。試料の組成の決定は第 3 部⁽¹⁾における Ni-Co 合金単結晶の場合と同じ二つの方法⁽⁶⁾の外に単結晶の、切出された円板試料の、真上および真下の部分の化学分析によつても行われた。これらの決定の結果は Table 1 に示されているが、以下においては X 線蛍光分析によつて得られた値を採用する。なお、Table 1 には円板試料の寸法も与えてある。試料は前以て真空中で 1000°C で 1 時間焼鈍された。

III. 実 験 結 果

測定に際して行つた試料の熱処理は第 3 部⁽¹⁾における 12% Co-Ni 合金の場合と同様に (a) 450°C, 5 時間の磁気焼鈍, および (b) キュリー温度以上から 200°C/hr の速度

での磁場中冷却である。測定されたトルク曲線も 12% Co-Ni 単結晶の場合⁽¹⁾と同様にしてフーリエ解析された。

Fig. 2 Uniaxial and first cubic ferromagnetic anisotropy constants, K_u and K_1 , and the deviation of easy magnetization of the uniaxial anisotropy, $\Delta\theta$, from the direction of the annealing magnetic field, θ_i , as dependent on θ_i in a (110) disc of 17% Fe-Ni alloy as annealed at 450°C for 5 hours and cooled rapidly in magnetic field of 1700 Oe applied parallel to the plate surface (O) and as cooled from above the Curie temperature at the rate of 200°C/hr in the same magnetic field (Δ). Solid curves in (a) and (b) are calculated using $k=8.3$ and $k=9.6$, respectively.

17% Fe-Ni 合金に対する K_u および $\Delta\theta$ と θ_i の関係は Fig. 2 に描記されてある。ここに、実線の曲線は熱処理

Table 1 Compositions and dimensions of (110) disc single crystal specimens of nickel-iron alloys.

Specimen mark	Composition (wt.-% Co) determined			Dimensions	
	by X-ray fluorescence method	by chemical analysis	from K_1 data	Diameter (mm)	Thickness (mm)
Ni-Fe, 1	17 % Fe	18.09 % Fe	16 % Fe	12.232	0.470
Ni-Fe, 2	46 % Fe	48.36 % Fe	43 % Fe	10.475	0.483

(4) Ni-Co 系における規則格子 Ni₃Co の存在に対しては、否定的な証拠 [茅および中山: Z. Phys., 112 (1939), 420.] と肯定的な証拠 [A. Taylor: J. Inst. Metals, 77 (1950), 585; V. Z. Yao: J. Chem. Phys., 33 (1960), 741] とがあつて決定的ではない。

(5) 山本, 谷口, 青柳: 本誌, 25 (1961), 419 (第 2 部)。

(6) 第 1 等軸磁気異方性定数 K_1 の値の比較による組成の決定には R. M. Bozorth: Rev. Mod. Phys., 25 (1953), 42 の data を用いた。

(a) に対しては $k=8.3$ を用い, また熱処理 (b) に対しては $k=9.6$ を用いて第 3 部⁽¹⁾の (3)~(5) 式によつて計算されたものである。これらの k の値は近角⁽³⁾によつて Ni₃Fe 合金について得られた 8.5 なる値とよく一致するが, しかし 12 および 20% Co-Ni 合金に対する 2~3 なる値⁽¹⁾よりは遙かに大きい。 K_1 の測定値も Fig. 2 (a) に示されてい

る。 K_1 は θ_t には依存しないが、しかしすでに知られている規則格子生成の影響に対応して熱処理条件に依存することが知られる。

46% Fe-Ni 合金における K_u , $\Delta\theta$, および K_1 と θ_t の関係は Fig. 3 に示されている。ここに実線の曲線は熱処

Fig. 3 Uniaxial and first cubic ferromagnetic anisotropy constants, K_u and K_1 , and the deviation of easy magnetization of the uniaxial anisotropy, θ_0 , from the direction of the annealing magnetic field, θ_t , as dependent on θ_t in a (110) disc of 46% Fe-Ni alloy as annealed at 450°C for 5 hours and cooled rapidly in magnetic field of 1700 Oe applied parallel to the plate surface (○) and as cooled from above the Curie temperature at the rate of 200°C/hr in the same magnetic field (Δ). Solid curves in (a) and (b) are calculated, using $k=1.9$ and $k=2.4$, respectively.

理 (a) および (b) に対してはそれぞれ $k=1.9$ および 2.4 なる値を用いて計算されたものである。これらの k 値は 17% Fe-Ni 合金における 8.3 および 9.6 なる値よりも遙かに小さい。 K_1 は、17% Fe-Ni 合金の場合と同じく、 θ_t には依存しないが、熱処理条件に依存する。なお、 K_1 の符号は 46% Fe-Ni 合金に対しては正で、そして 17% Fe-Ni 合金に対して負である。

IV. 第 3 部 および 第 4 部 における 実験 結果 の 論 議

われわれが第 3 部⁽¹⁾ および 本第 4 部において 2 種の Ni-Co 合金および 2 種の Ni-Fe 合金における誘起された単軸磁気異方性の結晶方位依存性について得た実験結果は次の如くに総括される：— 磁気焼鈍によつて誘起される単軸磁気異方性は第 3 部⁽¹⁾ の (1)' 式によつて表示される。その式の中の係数 k の値は Table 2 に与えられ、またそれと合金組成との関係は Fig. 4 に描記されている。これらの表

および図によれば、 k の値は両合金系に共通に一般的には 2~3 であるが、ただ Ni₃Fe 近傍の Ni-Fe 合金に対しての

Table 2 Measured data on the k factor characterizing the orientational dependence of the induced uniaxial ferromagnetic anisotropy and on the first cubic anisotropy constant, K_1 , in nickel-iron alloys. Chikazumi's⁽³⁾ measured data on Ni₃Fe alloy are also given for comparison.

Alloy	Heat treatment in magnetic field	k	K_1 (10 ³ erg/cm ³)
17% Fe-Ni	200°C/hr	9.6	- 9.8
	450°C, 5 hrs	8.3	-10.0
46% Fe-Ni	200°C/hr	2.4	3.9
	450°C, 5 hrs	1.9	3.3
Ni ₃ Fe	840°C/hr	8.5	- 1.7

Fig. 4 Composition dependence of the k factor in nickel-cobalt (○, Δ) and nickel-iron (●, ▲) alloys as annealed in magnetic field at 450°C for 5 hours and cooled rapidly (○, ●) and as cooled in magnetic field from above the Curie temperature at the rate of 200°C/hr (Δ, ▲). Chikazumi's⁽³⁾ measured data with Ni₃Fe is also plotted for comparison (■).

み非常に大きく、また 450°C で 5 時間磁場中で焼鈍された状態の k の値は磁場中でキュリー温度上から約 200°C/hr の速度で冷却された状態のそれよりも常に少し小さい。従つて、面心立方固溶体合金における k の値は規則格子が形成される組成範囲を除けば、組成及び合金系の如何に拘わらず 2~3 であるといひ得る。

さて、第 1 に、Ni₃Fe 近傍の Ni-Fe 合金を除けば、 k の値は谷口-山本⁽⁷⁾ および Néel⁽⁸⁾ によつて提出された directional order 理論から面心立方固溶体に対して期待される 4 なる値よりも小さいことに注目される。このことの原因の一部は強磁性原子間の異方的な相互作用が理論において仮定されている程には短範囲的ではないことであろう。実際、若し第 2 近隣原子からの寄与が第 1 近隣原子のそれに単純に重畳すると考え得られるならば、 k の値は 4 より

(7) 谷口, 山本: Sci. Rep. RITU, **A6** (1954), 330; 谷口: Sci. Rep. RITU, **A7** (1955), 269.

(8) L. Néel: Compt. rend., **237** (1953), 1613; J. de phys. rad., **15** (1954), 225.

も小さいことは容易に示される。すなわち、面心立方格子における第 2 近隣原子は単純立方格子を形成するから、それらによる誘起単軸磁気異方性エネルギー $E_u^{(2)}$ は

$$E_u^{(2)} = -K^{(2)}\alpha_i^2\beta_i^2 \quad (12)$$

なる形をもつ⁽⁸⁾⁽⁹⁾。従つて全体の誘起磁気異方性 E_u は

$$E_u = E_u^{(1)} + E_u^{(2)} = -\{K^{(1)} + K^{(2)}\} \times \left\{ \sum_i \alpha_i^2 \beta_i^2 + k' \sum_{j>i} \alpha_i \alpha_j \beta_i \beta_j \right\}, \quad (13)$$

ただし

$$k' = 4/\{1 + (K^{(2)}/K^{(1)})\} \quad (14)$$

しからば、 $K^{(2)}/K^{(1)} > 0$ であるから、 $k' < 4$ になる。

第 2 に、Ni₃Fe 近傍の Fe-Ni 合金において規則格子生成のために k の値が大きくなっていることに注目される。

さらに、Fig. 4 をよく見ると、Ni-Co 合金においては k が Co 量の増加と共に少しく増加することが知られる。斯様な k の組成依存性は実際の固溶体の非理想性によつて説明されるように思われる。Néel の非理想固溶体の場合に対する理論的取扱いは directional order を含む原子配置の混合エントロピーを考慮に入れていないから、directional order と固溶体の非理想性との相関を厳密には計算し得ない。

(9) 谷口: Sci. Rep. RITU, **A8**(1956), 173.

い。極く最近我々の研究室の岩田⁽¹⁰⁾はこの問題を面心立方格子については 4 面体近似を用いて取扱い、そして Néel によつて得られた誘起磁気異方性の組成依存性は修正されて規則化エネルギー v 従つて臨界温度は両合金系に対して約 2 なる係数の程度改善され、そして溶質濃度の増大と共に、Ni-Co 合金における如く $v < 0$ なる場合には k は増大し、そして Fe-Ni 合金における如く $v > 0$ なる場合には k は減少することを示した。この岩田によつて得られた k の組成依存性は Fig. 4 に示された Ni-Co 合金におけるそれと定性的に一致する。

斯様にして、谷口-山本⁽⁷⁾および Néel⁽⁸⁾によつて提出された directional order 理論は、実験結果の細かい点の説明に対しては若干困難があるけれども、他の何れの理論⁽¹¹⁾よりも実験結果をよく説明することが出来るとい得る。

闊筆するに当り、著者は本研究に対して与えられた山本美喜雄教授および谷口哲助教授の懇切な指導と激励並びに岩田孝夫助教授の有益な忠告とに対して心から感謝する次第である。

(10) 岩田: Trans. JIM に近く発表。

(11) 例えば C.D. Graham: *Magnetic Annealing, Magnetic Properties of Metals and Alloys*, ASM (1959); E.W. Lee: *Adv. Phys.*, **8** (1959), No. 31 参照。