Fe₃Al_{1-x}Si_x 規則合金単結晶の結晶磁気異方性と磁歪

Magnetocrystalline Anisotropy and Magnetostriction for Ordered Fe₃Al_{1-x}Si_x Single Crystals

高橋 研・新井英雄・小林敏晴・脇山徳雄

東北大学工学部電子工学科, 仙台市荒巻字青葉 (〒980)

M. Takahashi, H. Arai, T. Kobayashi and T. Wakiyama

Dept. of Electronic Engng., Tohoku Univ., Aoba, Aramaki, Sendai, 980

Temperature dependence of the magnetocrystalline anisotropy constant, K_1 , and the magnetostriction constants, λ_{100} and λ_{111} , was determined for the Fe₃(Al_{1-x}Si_x) alloy single crystals with D0₃ and B2 types of ordered structure. For the Fe₃(Al_{1-x}Si_x) alloys with D0₃ type of ordered structure, the value of K_1 at R.T. is -4×10^4 erg/cm³ at $x=0$. With increasing x , K_1 decreases gradually and crosses zero around $x \cong 0.6$. In alloys with B2 type of ordered structure, the value of K_1 is $+2.9 \times 10^4$ erg/cm³ at $x=0$. With the slight increase of x , K_1 changes drastically in its sign and magnitude, and as a result, $K_1=0$ is realized at R.T. around $0.05 < x < 0.1$. Temperature dependences of K_1 in this alloys with B2 structure are completely different from those of the alloys with D0₃ structure. The concentration dependence of λ_{100} and λ_{111} at room temperature for the alloys with B2 structure is similar to that for the alloys with D0₃ structure. The values of λ_{100} and λ_{111} at room temperature for the alloys with B2 structure are 70~90% of that for the alloys with D0₃ structure.

1. はじめに

センダスト合金を含む Fe-Al-Si 合金では、相が組成や温度の変化に伴い複雑に変化する¹⁾。そのため磁気特性は材料の熱処理温度及び方法の違いによって著しく変化し実用上最適熱処理条件を決定することは重要な課題となっている。

熱処理条件を決定するに際しては、Fe-Al-Si 系での種々の規則相あるいは不規則相の生成温度、並びに各相に固有の磁気物性定数に関する知見が必要不可欠となる。一方センダスト合金の組成 (9.6 wt%Si, 5.5 wt%Al, bal. Fe) は、Fe₃Al と Fe₃Si を結ぶ組成線上にほぼ位置しており、Fe₃(Al_{1-x}Si_x) という擬二元合金を仮定した場合、センダスト合金の組成はほぼ $x \cong 0.6$ に相当する。この擬二元合金系においては、著者らの実験の結果、全組成域において室温では D0₃ 型規則構造が安定に存在するが、 $0 \leq x \leq 0.2$ の組成域においては高温に B2 型規則相が存在することが筆者らの研究により分かっている²⁾。したがって、薄膜をも含めたセンダスト系規則合金の熱処理及び作成法の違いによる磁気特性の変化を議論するに当たっては、Fe-Al-Si 系合金の D0₃ 型規則構

造での磁気特性のみならず、B2 型規則構造をも含めた磁気特性について更に詳細に知る必要がある。そこで本研究では、B2 及び D0₃ 型規則構造 Fe₃Al_{1-x}Si_x 合金の結晶磁気異方性定数 K_1 、及び磁歪定数 λ_{100} 、 λ_{111} の組成依存性を、温度変化を含めて明らかにし、各規則相に固有の上記諸量を詳細に検討した。

2. 実験方法

単結晶はブリッジマン法により Ar 雰囲気中で作製した。用いた素材の純度は、Fe: 99.9%, Al: 99.99%, Si: 99.999% である。均一化のため、得られた単結晶には 1200°C で 24 時間熱処理を施してある。面方位の決定には光像法及び背面反射ラウエ法を用いた。面方位決定後、塊状単結晶を厚さ約 1 mm の板状に切断した。板面は (100) 面に平行である。この板より、10 mmφ の円板を放電加工により打ち抜いた。

高温相の凍結あるいは室温での安定相を生成させるため、試料には、シリコニット炉を用い以下の熱処理を行った。

(1) B2 相: 1200°C × 24 時間 → 油中焼入れ

(2) D0₃ 相: 1200°C × 24 時間 $\xrightarrow{200^\circ\text{C}/\text{h}}$ 室温

Fig. 1 Phase diagram of $\text{Fe}_3(\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x)$ alloys. ○ corresponds to D0_3 , ● corresponds to B2 and □ corresponds to α phase, respectively.

相解析は、電子線回折及びX線回折により行った。

結晶磁気異方性定数 K_1 はトルク法により求めた。上述の単結晶円板を用い、得られたトルク曲線（計測温度範囲： $-196^\circ\text{C} \sim 600^\circ\text{C}$ ）をフーリエ解析することにより K_1 を決定した。磁歪定数 λ_{100} , λ_{111} はストレーンゲージ法により求めた。測定に用いた試料は上述の単結晶円板であり、歪観測方向を $\langle 100 \rangle$ 及び $\langle 110 \rangle$ 方向とし、それぞれ縦磁歪と横磁歪との差をとることにより、室温での λ_{100} と λ_{111} とを決定した。

3. 実験結果

3.1 $\text{Fe}_3\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x$ の状態図

実験に先立ち、 $\text{Fe}_3\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x$ 合金の状態図を高温 X 線カメラを用いて決定した。Fig. 1 に、 $\text{Fe}_3\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x$ 合金の状態図を示す。図中の○印は D0_3 、●印は B2、□印は不規則 α 相に対応している。低温では、どの組成域においても D0_3 相が安定に存在する。しかしながら、 $0 \leq x \leq 0.2$ の組成域においては高温相に B2 相が存在している。一方 $0.2 < x \leq 1$ の組成域では B2 相は高温においても存

Fig. 2 Magnetocrystalline anisotropy constant, K_1 , as a function of temperature for Fe_3Al alloys with B2 and D0_3 type of ordered structure, respectively.

在せず、室温からの温度上昇に伴い D0_3 相から不規則 α 相へと相変態を起こす。また Fe_3Si では融点まで D0_3 相が安定に存在している。これらの結果より、 $x \leq 0.2$ の組成域においては高温に B2 相が存在することが明らかとなり、かつ又、 $x \approx 0.6$ 近傍のセンダスト合金には、 D0_3 型規則構造のみが安定に存在することが分かった。

3.2 K_1 の温度依存性

Fig. 2 に一例として、 Fe_3Al 合金の場合の B2 及び D0_3 型規則構造における K_1 の温度依存性を示した。図中○印は B2 型、●印は D0_3 型における K_1 値を表している。B2 型規則構造をもつ試料の場合、 K_1 は全温度範囲で正であり、 K_1 の値は -196°C での $1.0 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3$ から温度上昇とともに増加し、室温付近で極大を示す。さらに温度を上昇させると 300°C でのほぼ 0 の値まで単調に減少し、それ以上の温度では、ほぼ 0 となる。一方 D0_3 型規則構造を有する試料の場合、 K_1 の符号は、ほぼ全温度範囲で負であり、その値は -196°C での $-1.8 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$ から 400°C での 0 まで温度上昇とともに単調に減少し、それ以上の温度ではやはりほぼ 0 となる。このように Fe_3Al 合金では K_1 の符号は D0_3 型では負であるが B2 型では正となり、規則構造の違いにより磁化容易軸が異なることが分かる。また K_1 の温度変化の傾向も D0_3 型と B2 型では大きく異なっているのが見られる。

Fig. 3 Magnetocrystalline anisotropy constant, K_1 , for $\text{Fe}_3(\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x)$ alloys ($x=0.05, 0.1$) with B2 type of ordered structure as a function of temperature.

次に、 Fe_3Al の Al 原子を Si 原子で置換した場合の K_1 の温度依存性の变化を、Fig. 3 及び Fig. 4 に示す。Fig. 3 には、 $\text{Fe}_3\text{Al}_{0.95}\text{Si}_{0.05}$ ($x=0.05$) 及び $\text{Fe}_3\text{Al}_{0.9}\text{Si}_{0.1}$ ($x=0.1$) 合金の B2 型構造での K_1 の温度依存性を示した。図中●印は $x=0.05$ 組成の K_1 値を、○印は $x=0.1$ 組成の K_1 値をそれぞれ表している。 $x=0.05$ 組成の K_1 の温度依存性は Fe_3Al の B2 型での K_1 と同じような温度変化を示している。すなわち、 $x=0.05$ 組成では、 K_1 の符号は全温度範囲で正であり、 K_1 の値は -196°C での $2.9 \times 10^4 \text{erg/cm}^3$ から温度上昇とともに増加し、室温近傍で極大を示す。さらに温度を上げると K_1 値は減少し、 300°C 以上ではほぼ一定の値 ($8 \times 10^3 \text{erg/cm}^3$) となる。一方 $x=0.1$ 組成では $x=0.05$ 組成の場合とは異なり K_1 は 300°C 以下では負の符号を示し、その値は -196°C での $-7.8 \times 10^4 \text{erg/cm}^3$ から温度上昇に伴い減少し、 300°C で 0 を横切る。 300°C 以上では K_1 の符号は正であり、その値はほぼ温度によらず一定 ($\approx 3 \times 10^3 \text{erg/cm}^3$) である。

Fig. 4 には比較のため、同じ組成の合金の D0_3 型での K_1 の温度依存性を示してみた。低温で安定な相として

Fig. 4 Magnetocrystalline anisotropy constant, K_1 , for $\text{Fe}_3(\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x)$ alloys ($x=0.05, 0.1$) with D0_3 type of ordered structure as a function of temperature.

の D0_3 型における K_1 の符号は、両者の組成の合金においても、ほぼ全温度範囲で負であり、 K_1 の値は -196°C での大きな値 ($x=0.05$ で -1.2×10^5 , $x=0.1$ で $-1.6 \times 10^5 \text{erg/cm}^3$) から温度上昇に伴いほぼ単調に減少し、約 400°C ではほぼ 0 になる傾向を示している。

3.3 K_1 の組成依存性

Fig. 5 に、擬二元合金、 $\text{Fe}_3(\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x)$ の全組成範囲 ($0 \leq x \leq 1$) における室温での K_1 の組成依存性を示した。図中●印は B2 型における K_1 値を表わし、○印は D0_3 型における K_1 値を表している。 D0_3 型の場合、 K_1 値は、 Fe_3Al での値 ($-7.5 \times 10^4 \text{erg/cm}^3$) から Fe_3Si での正の値 ($6.0 \times 10^4 \text{erg/cm}^3$) まで単調に変化し、 $x \approx 0.6$ 組成において K_1 は 0 を横切る。この組成はセンダスト組成にほぼ対応する。一方 B2 型規則構造の場合、 Fe_3Al では正の値 ($3.2 \times 10^4 \text{erg/cm}^3$) を示すが、 $0.05 \leq x \leq 0.1$ の組成において K_1 は 0 を横切り、 $x \geq 0.1$ の組成では K_1 は負の値を示している。興味ある結果として、これら擬二元合金の場合、B2 型、 D0_3 型のどちらの場合においても室温において $K_1=0$ が成立する組成が存在し、それらの組成は大きく異なっているのが分かる。

3.4 λ_{100} , λ_{111} の組成依存性

Fig. 6 に $0 \leq x \leq 1$ の組成範囲における λ_{100} 及び λ_{111} の組成依存性を示す。図中○印は D0_3 型での λ_{100} を、□印

Fig. 5 Magnetocrystalline anisotropy constants, K_1 , at room temperature as a function of concentration, x , for the $\text{Fe}_3(\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x)$ alloys.

は D0_3 型での λ_{111} を, ●印は B2 型での λ_{100} を, ■印は B2 型での λ_{111} をそれぞれ示している. D0_3 型での λ_{100} , λ_{111} は, 両者とも Fe_3Al での正の値 ($\lambda_{100}=8.3 \times 10^{-5}$, $\lambda_{111}=3.1 \times 10^{-5}$) から Fe_3Si での負の値 ($\lambda_{100}=-1.7 \times 10^{-5}$, $\lambda_{111}=-5 \times 10^{-6}$) まで組成の変化に伴い単調に変化し, $x=0.6$ で 0 を横切る. この組成はセンダスト組成に対応している. 一方 B2 型における λ_{100} , λ_{111} の符号は, $0 \leq x \leq 0.2$ の組成範囲で D0_3 型の場合と同様に正である. しかしながら, λ_{100} , λ_{111} の値は D0_3 型の場合の値より約 10~30% 程度小さくなっているのが特徴である.

4. 結 論

B2 及び D0_3 型規則構造を有する $\text{Fe}_3\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x$ 合金単結晶を用い, 結晶磁気異方性定数 K_1 の温度及び組成依存性, 並びに磁歪定数 λ_{100} , λ_{111} の組成依存性を調べた. その結果, 以下のことが明らかとなった.

- 1) $\text{Fe}_3\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x$ 擬二元合金で B2 型規則構造を有す

Fig. 6 Magnetostriction constants, λ_{100} and λ_{111} , at room temperature as a function of concentration, x , for the $\text{Fe}_3(\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x)$ alloys.

る試料の室温での K_1 の組成依存性は, D0_3 型のそれとは全く異なる. D0_3 型の場合, K_1 の符号は, Fe_3Al では負であるのに対し, Fe_3Si では正であり, K_1 の値は x の増加により徐々に減少し, $x=0.6$ (センダスト) において 0 を横切る. 一方 B2 型の場合, K_1 の値は Fe_3Al での正の値から, Si 組成が増加するにつれて急激に小さくなり, $0.05 < x < 0.1$ と組成範囲で 0 を横切る. B2 及び D0_3 型の場合の K_1 の温度依存性は, 大きく異なる.

2) B2 型規則構造を有する試料の室温での λ_{100} , λ_{111} の組成依存性は, D0_3 型のそれとはほぼ同様の傾向を示す. しかしながら B2 型の場合の λ_{100} , λ_{111} の値は D0_3 型の場合の λ_{100} , λ_{111} の値に比して約 10~30% 程度小さい.

文 献

- 1) 宮崎他: 日本金属学会誌, **46**, 1111 (1982).
- 2) 高橋他: 第 7 回日本応用磁気学会学術講演概要集, 99 (1983).

1986 年 12 月 22 日受理, 1987 年 2 月 23 日採録