Fe-Pd 基合金の磁気弾性効果

Magnetoelastic Effects of Fe-Pd Base Alloys

菊地紀雄・中山孝文・門脇静穂

(財)電気磁気材料研究所, 仙台市太白区八木山南 2-1-1 (〒982)

M. Kikuchi, T. Nakayama and S. Kadowaki

Res. Inst. for Electric and Magnetic Materials, 1-1, Yagiyama-minami 2-chome, Taihaku-ku, Sendai 982

The magnetoelastic properties of Fe-Pd+Mo, Ni, C and Si ternary alloys have been studied. The γ phase was stabilized at room temperature by their addition. The linear magnetostriction λ_f , ΔE effect and $d\lambda_f/dH$ increase in the ternary alloys. Magneto-mechanical coupling constant k obtained from ΔE effect agrees with that calculated from dynamic magnetostriction. The maximum value of k is 0.26 at a bias field of 8 Oe.

1. はじめに

近年、電子機器の進展に伴い磁歪材料の需要は飛躍的に増大し、その特性もしだいに向上している。磁歪材料に要求される基本特性としては、①磁歪活性度が大きい、②渦電流損失が小さい、③最適直流偏倚磁場が小さい、④強力励振を必要とする材料では飽和静磁歪量が多い、⑤冷間加工性が良い、などが挙げられる¹⁾が、これらの諸特性をすべて満足する合金はなく、不備な点は電気回路によって補償して使用している。ところで、深道および著者らは、Fe-Pd 系合金が γ 相 (fcc 構造) の磁気変態点以下で大きな弾性の軟化現象 (エリンバー効果) を持つこと²⁾に着目し、この合金の縦磁歪を測定した結果、30% Pd を中心とする極く狭い領域の合金で外部磁場 1000 Oe において 80×10^{-6} 前後の大きな磁歪を観測した^{3,4)}。しかしながら、この合金は磁歪曲線の立上り特性 ($d\lambda_f/dH$) が悪く、そのうえ加工性も劣るなど実用上問題があった。著者らは添加元素によって γ 相を安定化させ磁歪特性の改善を試みたが、満足すべき結果は得られていない⁵⁾。

本論文では Fe-Pd 系合金の上述の問題点の解決を図り、さらに磁歪の動特性を測定して電気機械結合係数を求め、静特性から得られた結果と比較し磁歪材料への適合性を検討した。

2. 実験方法

最初に Ar 雰囲気中のアーク溶解によって 3 元合金の

母材を溶製し、ついで高周波溶解あるいはアーク溶解を再び行って直径 3.5 mm の丸棒状あるいは直径 30 mm のボタン状素材を作製した。前者は冷間スウェーjing によって直径 2 mm、長さ 100 mm の棒に成形し、磁歪および ΔE 効果測定用試料とした。後者は冷間圧延によって厚さ 0.25 mm の板とし、これを外径 23 mm、内径 17 mm のリング状に加工して X 線および動磁歪測定用の試料とした。加工による歪みは 1050°C で 15 時間加熱後徐冷を行って取り除いた。

縦磁歪の測定は渦電流式変位検出法により、 ΔE 効果は静電法により、それぞれ 1000 Oe までの磁場中、常温で測定した。電気機械結合係数は ΔE 効果およびインピーダンス円から求めた。

本論文における Pd 量は $R = \text{Pd}/(\text{Fe} + \text{Pd})$ で表し、 $R = 0.30 \sim 0.36$ を基礎 2 元組成として用いた。添加元素は Ni, Mo, C および Si である。また、蛍光 X 線分析により組成分析を行った結果、分析値と仕込値は $\pm 2\%$ 以内で一致したため以後仕込値で組成を記述する。

3. 実験結果および考察

3.1 構造解析

Fig. 1 に $R = 0.30$ 合金およびこれを基礎とする Mo, Ni, C あるいは Si を含む 3 元合金の X 線回折図形を示す。いずれの合金においても $R = 0.30$ 合金が示す fcc のピークのみ現れ、0.5% の添加でも焼鈍状態で γ 単相が得られることがわかる。各指数間の相対強度比が一定でないのは、焼鈍した圧延板を用いたため、再結晶集合組織の影響が現れたものである。 γ 単相は $R = 0.30 \sim 0.36$ 合金に添加した場合にのみ確認された。添加元素としては Nb, Cr, Mo, Mn, Co, Ni, Al, C, Si, Ge, P について検討したが、 γ' 相 (fct 構造) や α 相 (bcc 構造) の混在が認められた合金を除外し、 γ 単相が $R = 0.30 \sim 0.36$ の範囲で得られた Mo, Ni, C および Si を含む合金について磁歪を測定した。

Fig. 1 X-ray diffraction patterns for a water quenched $R=0.30$ alloy and annealed $(\text{Fe}_{1-x}\text{M}_x)_{0.7}\text{Pd}_{0.3}$ alloys ($\text{M}=\text{Mo}, \text{Ni}, \text{C}, \text{Si}$) using $\text{FeK}\alpha$ radiation.

Fig. 2 $\lambda_{\parallel}$ as a function of the content of additional elements added to Fe-Pd base alloys. (a): Ni, (b): Mo, (c): C, (d): Si.

3.2 縦磁歪

Fig. 2 には 1000 Oe の磁場中において求めた縦磁歪 $\lambda_{\parallel}$ の添加元素濃度依存性を示す。 $R=0.30$ および 0.32 合金において、2 元合金の $\lambda_{\parallel}$ 値 $30 \sim 50 \times 10^{-6}$ は、第 3

元素の添加とともに急増し、0.5% 付近で約 80×10^{-6} の極大を示す。Ni を含む 3 元合金の $\lambda_{\parallel}$ は $R=0.30$ の場合ブロードな極大を示し、広い組成領域で大きな値を示すことがわかる。他方、 $R=0.36$ 合金の場合、2 元合金の $\lambda_{\parallel}$ 値は 86×10^{-6} と高いが、Mo 添加によって 0.5% 付近に極大を示す他は添加元素量とともに単調に減少する。また、1% 以上の Mo および Si を加えた場合の $\lambda_{\parallel}$ は添加量とともに急激に減少するので図示しなかった。

焼鈍状態の Fe-30% Pd2 元合金の $\lambda_{\parallel}$ が小さいのは磁歪を低下させる α 相が混在していることに起因する。3 元合金において磁歪が増加するのは Ni などを添加することによってこの α 相が消失するためである。しかしながら、 $R=0.36$ 合金のように焼鈍状態でも γ -rich 相が得やすい合金では第 3 元素を添加しても $\lambda_{\parallel}$ はあまり増加しない。一方、3 元合金とした場合、図に示すように $R=0.30$ および 0.32 合金に対しては Ni を除いて 0.5% 付近に極大を作る場合が多い。これらの 3 元合金について磁化 σ および磁気変態点 T_C を調べてみると、 σ はいずれの元素に対しても添加量とともに緩やかに減少するが、 T_C はいずれも増加する傾向を示す⁵⁾。上述の Ni を含む合金の $\lambda_{\parallel}$ の変化は磁化に比例したものと考えられるが、Mo, C, Si のような非磁性元素を添加しても $\lambda_{\parallel}$ は増加する。これは Fe-Al 系合金の場合と類似の現象⁶⁾であり、 α 相の影響に加え、なんらかの規則格子相の生成が関与している可能性もあるが現段階では明らかでない。

Fig. 3 には高い磁歪値を有する合金について 60 Oe 以下の磁場中で調べた $\lambda_{\parallel}$ の磁場依存性を示す。合金の記号中例えば 3005C とあるのは $R=0.30$ で C を 0.5% 含む合金であることを意味する。低磁場において $\lambda_{\parallel}$ は急に増加し、図に示した Ni の立上りに匹敵することがわかる。

上述の $\lambda_{\parallel}-H$ 曲線から 10 Oe の磁場における $\lambda_{\parallel}$ を H で割った値、 $d\lambda_{\parallel}/dH_{10}$ を求め添加元素濃度に対して Fig. 4 に示した。図に見るように、 R の値と第 3 元素濃度とを適当に組み合わせることにより、純 Ni の $d\lambda_{\parallel}/dH_{10}$ の値⁷⁾と同等かこれを大きく上回る合金が得られることがわかる。通常、 $\lambda \propto \sigma^2$ なる関係が成立するので、高い $d\lambda_{\parallel}/dH$ を得るには高い透磁率を有する合金を求めれば良い。Fe-Pd 合金の場合、 γ 相安定化元素を添加することによって透磁率が増大し、その結果磁歪の立上り特性も改善されるものと思われる。

3.3 電気機械結合係数

電気機械結合係数 k には種々の求め方がある。清水らによれば等方磁歪を仮定した場合、多結晶体の k は近似

Fig. 3 Field dependence of λ_f for Fe-Pd base alloys.

Fig. 4 $d\lambda_f/dH_{10}$ as a function of the content of additional elements for $R=0.30, 0.33$ and 0.36 alloys.

的に

$$k = 0.752 \sqrt{\frac{\Delta E}{E_D}} \quad (1)$$

によって与えられる⁸⁾。ここで $\Delta E = E_H - E_D$ であり、 E_H および E_D はそれぞれ磁化および消磁状態におけるヤング率である。 ΔE 効果は磁歪と同様に 1000 Oe までの磁場中で縦効果として得られているので、これを用いて k を算出することにした。一般に k は、応用上バイアス磁場 H_b が数 10 Oe 程度以下で問題となる場合が多いので、特に低磁場における挙動に着目した。Fig. 5 は 3020

Fig. 5 Field dependence of $\Delta E/E_D$ for a 3020C alloy.

C 合金の $\Delta E/E_D$ 値の磁場依存性を示す。Fe-Pd 系合金の $\Delta E/E_D$ 値は 1000 Oe の磁場においてはほぼ飽和する傾向を示し、40~50% の高い値に達する場合が多い⁹⁾が、低磁場における挙動は複雑で、 $\Delta E/E_D$ 値が大きく変化する合金は限定される。図は、低磁場で $\Delta E/E_D$ の極小値が大きい一例であるが、 $\Delta E/E_D$ の極小値は -12% である。この $\Delta E/E_D - H_b$ 曲線から k と H_b との関係を求め、Fig. 6 に●印で示した、 k の最大値 $k_{\max}$ は 8 Oe で 0.26 である。

次に、 H_b を印加したときの試料の自由インピーダンスを周波数の関数として求め、動インピーダンス軌跡円を描いた。Fig. 7 にその一例を示す。インピーダンス円より共振周波数 f_0 、コードラント周波数 f_1, f_2 、軌跡円の直径 D_z および制動インピーダンス $Z_b = R_b + iX_b$ を求め、次式によって k を計算した¹⁰⁾。

$$k = \sqrt{\frac{D_z}{D_z + X_b Q_z}} \quad (2)$$

ここで X_b は制動リアクタンス、 $Q_z = f_0/(f_2 - f_1)$ である。このようにして求めた k を Fig. 6 に○印で示した。 $k_{\max}$ は $H_b = 18$ Oe で 0.20 となり $\Delta E/E_D$ から求めた値と同程度であるが、 $k_{\max}$ が得られる H_b の値は 10 Oe 程度大きい。これは $\Delta E/E_D$ あるいは動的測定に用いた試料では冷間加工の方法が異なるため両者の再結晶集合組織に差異が生じ、低磁場での磁化過程が異なってくることに よるものと考えられる。

次に、磁歪活性度 q および k は次式により与えられる。

$$q = \chi I^2 \quad (3)$$

Fig. 6 Bias field dependence of k obtained from ΔE effect (●) and from dynamic magnetostriction (○) for a 3020C alloy.

Fig. 7 Impedance circle for a 3020C alloy at a bias field of 16 Oe. The ac drive field is 0.05 Oe rms.

$$k = \sqrt{\frac{q}{E}} \quad (4)$$

ここで χ は増分磁化率で、 Γ は磁歪率である。3020C 合金について (3) 式より $\chi = 82$, $\Gamma = 3.6 \times 10^4$ を用いて q を求めると 10×10^{10} となり、Ni と同等である。また、この値を用いて (4) 式より k を求めると 0.3 となり前述の結果とほぼ一致した。他の 3 元合金においても q は約 10×10^{10} であり、 k は 0.2~0.3 であった。

なお、渦電流損で問題となる比電気抵抗は、本合金系ではいずれも $40 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ 程度であり全般に小さい。したがって比抵抗値を増大させることが今後の課題である。

以上本研究で得られた Fe-Pd 基 3 元合金の磁気弾性特性はこれまでに研究された 2 元あるいは 3 元合金や既存の材料である Ni^{7), 11)} および Fe-Al 合金^{6), 12)} のそれと比較すると、 λ_s , $d\lambda_s/dH_{10}$, $\Delta E/E_D$ ではいずれも大きく上回り、 $k_{\max}$ では同等である。しかも 3 元合金とすることによって加工性が改善され、冷間線引、冷間圧延が可能となるので、本合金は位置制御用アクチュエータ、超音波振動子あるいは遅延線などの磁歪材料として有望である。

5. ま と め

以上の結果をまとめると次のようになる。

(1) Fe-Pd2 元合金の γ 相は Ni, Mo, C, Si の添加により常温で安定化され、磁歪、 ΔE 効果に対する添加の影響が顕著である。特に低 Pd の Fe-30% Pd 合金でその効果が著しく、磁歪、 ΔE 値ともに増大し、立上り特性に優れる。

(2) ΔE 効果および動磁歪から求めた電気機械結合係数は類似の傾向を示し、 $k_{\max}$ も 0.26 と比較的高い値が得られた。

文 献

- 1) 実吉純一、菊池喜充、能本乙彦：超音波技術便覧，298，日刊工業新聞，東京（1978）。
- 2) 増本量，斉藤英夫，小林猛郎：日本金属学会誌，27，263（1963）。
- 3) K. Fukamichi: *J. Appl. Phys.*, **50**, 6562 (1979).
- 4) T. Nakayama, M. Kikuchi and K. Fukamichi: *J. Phys. F*, **10**, 715 (1980).
- 5) T. Nakayama, M. Kikuchi and K. Fukamichi: *IEEE Trans. Magn.* **MAG-16**, 1071 (1980).
- 6) R. C. Hall: *J. Appl. Phys.*, **28**, 707 (1957).
- 7) R. M. Bozorth: *Ferromagnetism*, p. 631, D. Van Nostrand, N. J. (1950).
- 8) 清水 洋，菊池喜充：東北大学電通談話会記録，28，43（1959）。
- 9) 菊地紀雄，中山孝文，門脇静穂：第 12 回日本応用磁気学会学術講演概要集，312（1988）。
- 10) H. T. Savage, A. E. Clark and J. M. Powers, *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-11**, 1355 (1975).
- 11) 山本美喜雄：日本金属学会誌，5-5，167（1941）。
- 12) 白川勇記編：応用金属学大系，第 9 巻，p. 350，誠文堂新光社，東京（1965）。

1988 年 11 月 21 日受理，1989 年 2 月 10 日採録