転位観察における磁氣的性質の利用

馬 越 佑 吉*

1. はじめに

強磁性体内部で自発磁化が取る方向によって磁氣的内部エネルギーが変化する現象を磁気異方性と呼んでいる。Six⁽¹⁾は Fe-Ni 合金を圧延した際、変形前とは異なる非常に大きい1軸性の磁気異方性を示すことを見出し、これを特に圧延磁気異方性(誘導磁気異方性)と呼んだ。このような変形により導入された誘導磁気異方性の原因について次のような2つの立場から研究されている。

すなわち1つは Néel⁽²⁾、谷口⁽³⁾、近角⁽⁴⁾⁽⁵⁾らによる原子対モデルと呼ばれるものである。これは磁気異方性の原因をスピン同志の相互作用エネルギーの変化によって考え、変形に際しての原子面の迂りにより生じた原子対の数、分布の変化によって新たな誘導磁気異方性を生ずるという考え方である。高橋^{(6)~(9)}はさらにこの原子対モデルを発展させ Fe₃Al, Ni₃Fe の種々の規則構造を有する場合について結晶中の転位または転位対の運動とそれによって生じた原子対の変化により誘導磁気異方性を説明した。このような原子対モデルは双極子-双極子相互作用係数が原子対の種類によって異なる合金の場合に特に有効である。

もう1つの立場は変形によって生じた結晶中の内部応力すなわち転位による応力場が磁歪の逆効果により誘導磁気異方性を生ずるという考え方である⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾。強磁性体を磁化する過程で外部磁界方向へのスピンの回転により結晶が弾性的に歪む磁歪という現象が有ることは良く知られている。このような強磁性体に外部応力を加えた場合、この磁歪効果によりスピンは回転する。この際の回転方向は磁歪定数の符号に依存し、例えば負の磁歪定数を持つニッケルの場合には引張および圧縮応力により自発磁化の方向は応力軸に垂直または平行になる。従って結

晶中に内部応力が存在する場合には磁歪効果により逆にこの応力場を打消す方向に自発磁化が回転し、磁気異方性を生み出す。今転位近傍の応力場は各領域において圧縮および引張応力を有し、これに依存して各位置での自発磁化は図1に示すように不均一な分布を示す⁽¹²⁾。このスピンの分布は結晶中の転位の種類、密度、分布に依存し、これによってもたらされる磁氣的性質の変化により転位の観察が可能である。

本稿では後者の立場から磁氣的性質を使って塑性変形の研究に重要な転位組織の観察がどの程度可能であるかについて述べる。

図1 ニッケル中の刃状転位の応力場によるスピンの乱れ、外部磁界は転位のバーガース・ベクトル方向。

2. 飽和漸近領域での磁化率と転位

強磁界の下では内部応力を有しない理想結晶の自発磁化の方向は外部磁界の方向と一致する。しかし変形した結晶では転位による内部応力と磁歪との相互作用により自発磁化の方向は不均一となり磁気異方性の原因となる。このような変形による誘導磁気異方性と転位との関

* 大阪大学助手；工学部金属材料工学科
Observation of Dislocations Using Magnetic Techniques;
Yukichi Umakoshi(Department of Materials Science and
Engineering, Faculty of Engineering, Osaka University,
Suita)
1980年6月26日受理

係を知るためには変形による結晶中の磁気的な自由エネルギーの変化について考えなければならない。さてこの磁気的な自由エネルギーは原子が結晶格子を形成することによって生ずる結晶磁気エネルギー (Φ_K)、強磁性体内部でスピンを平行に保とうとする静電的相互作用によって生ずる交換エネルギー (Φ_{ex})、結晶表面または結晶境界に生ずる磁極による静磁エネルギー (Φ_{ms})、磁化の分散を阻止するための stray field エネルギー (Φ_s) および内部応力と磁歪の相互作用による磁気弾性エネルギー (Φ_m) の総和となる。またその際のそれぞれのエネルギーは次式によって与えられる。

$$\Phi_K = K_1(\gamma_1^2\gamma_2^2 + \gamma_2^2\gamma_3^2 + \gamma_1^2\gamma_3^2) + K_2\gamma_1^2\gamma_2^2\gamma_3^2 \quad (1)$$

ここで γ_i は自発磁化の方向余弦、 K_1, K_2 は結晶磁気異方性定数である。

$$\Phi_{ex} = A\{(\gamma_1)^2 + (\gamma_2)^2 + (\gamma_3)^2\} \quad (2)$$

ここで A は定数

$$\Phi_{ms} = -\tilde{H}_a \cdot \tilde{I}_s = H_a \cdot I_s \cos \omega \quad (3)$$

ここで H_a は外部磁界、 I_s は自発磁化、 ω はそのなす角

$$\Phi_s = -\frac{1}{2} \tilde{H}_s \cdot \tilde{I}_s \quad (4)$$

ここで H_s は stray field

$$\Phi_m = -\int \sigma \cdot e^m dV = -\frac{3}{2} [\lambda_{100} \sum \sigma_{ij} \gamma_i^2 + \lambda_{111} \sum \sigma_{ij} \gamma_i \gamma_j] \quad (5)$$

ここで $\lambda_{100}, \lambda_{111}$ は磁歪定数、 σ_{ij} は応力テンソル

このような変形した結晶中での自発磁化の方向を知るためには磁気的な自由エネルギーを最小にする方向を求めればよく、これは次式のように与えられる。

$$\delta(\Phi_K + \Phi_{ms} + \Phi_m + \Phi_{ex} + \Phi_s) = 0 \quad (6)$$

式(6)は非線型二階偏微分方程式であるからこのままでは解を求めることは困難である。さて強磁性体を磁化する場合、外部磁界の増加に伴い磁壁移動および磁区内のスピンの回転が起こり、その後強磁界の下では磁化の強さは飽和状態になりほとんどのスピンは磁界の方向を向いている。Brown⁽¹³⁾はこのような強磁界負荷状態で micromagnetism の立場から転位源近傍の応力場による磁気モーメントの外部磁界方向からのずれを計算した。Seeger⁽¹¹⁾、Kronmüller⁽¹²⁾はこの手法を用い強磁界の下で式(6)の解を求めることにより飽和漸近領域での磁化率(飽和磁化率)と転位との関係を求めた。

今外部磁界を y 軸方向にかけ磁化の強さが飽和状態にある強磁界の下では自発磁化の方向はほとんど外部磁界の方向と一致するから、その方向余弦は次のようになる。

$$\gamma_1 \ll 0, \gamma_3 \ll 0, \gamma_2 \simeq 1 \quad (7)$$

このような条件の下で式(6)はフーリエ変換により解

くことができる。今 y 軸方向の磁化の強さを I_y とすると

$$I_y = I_s \cdot \bar{\gamma}_2 = I_s(1 - \bar{\gamma}_1^2 - \bar{\gamma}_3^2)^{1/2} \simeq I_s \{1 - \frac{1}{2}(\bar{\gamma}_1^2 + \bar{\gamma}_3^2)\} \quad (8)$$

これより飽和磁化率 χ_E は次式で与えられる†。

$$\chi_E = \frac{dH_y}{dH} = -\frac{1}{2} \frac{d}{dH} (\bar{\gamma}_1^2 + \bar{\gamma}_3^2) \quad (9)$$

ここでスピンの方向余弦の2乗の平均値は Parseval 式により次式のように与えられる。

$$\bar{\gamma}_i^2 = \frac{1}{V} \iint \int |\tilde{\gamma}_i(\mathbf{k})|^2 d^3\mathbf{k} \quad (10)$$

V は試料の体積、 $\tilde{\gamma}_i(\mathbf{k})$ は γ_i のフーリエ変換であるから次式のように表示される。

$$\tilde{\gamma}_i = -\frac{\mathbf{g}_i(\mathbf{k})}{\mathbf{k}^2 + \mathcal{H}^2} + \frac{h^2 \mathbf{k}_i (\mathbf{g}_1 \mathbf{k}_1 + \mathbf{g}_3 \mathbf{k}_3)}{(\mathbf{k}^2 + \mathcal{H}^2) \{ \mathbf{k}^4 + (\mathbf{k}^2 + h^2) \mathbf{k}^2 - h^2 \mathbf{k}_2^2 \}} \quad (11)$$

ここで $h^2 = 2\pi I_s^2/A$, $\mathcal{H}^2 = HI_s/2A$ であり A は交換定数

$$\left. \begin{aligned} \tilde{\mathbf{g}}_i(\tilde{\gamma}) &= \frac{1}{2A} \frac{\partial}{\partial \gamma_i} (\Phi_K + \Phi_m) \Big|_{\gamma_1, \gamma_3=0} \\ \tilde{\mathbf{g}}_i(\mathbf{k}) &= (2\pi)^{-3/2} \mathbf{g}_i(\tilde{\gamma}) \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) d\tau \tilde{\gamma} \end{aligned} \right\} \quad (12)$$

式(9)~(12)より χ_E は次式で与えられる。

$$\chi_E = \frac{I_s^2}{4AV} \frac{d}{d\mathcal{H}^2} \int [|\tilde{\gamma}_1(\mathbf{k})|^2 + |\tilde{\gamma}_3(\mathbf{k})|^2] d^3\mathbf{k} \quad (13)$$

$$\begin{aligned} |\tilde{\gamma}_1|^2 + |\tilde{\gamma}_3|^2 &= \frac{|\tilde{\mathbf{g}}_1|^2 + |\tilde{\mathbf{g}}_3|^2}{(\mathbf{k}^2 + \mathcal{H}^2)^2} \\ &- \left[2h^2 - \frac{h^4(\mathbf{k}_1^2 + \mathbf{k}_3^2)}{\mathbf{k}^4 + \mathbf{k}^2(\mathcal{H}^2 + h^2) - h^2 \mathbf{k}_2^2} \right. \\ &\times \left. \frac{|\tilde{\mathbf{g}}_1|^2 \mathbf{k}_1^2 + |\tilde{\mathbf{g}}_3|^2 \mathbf{k}_3^2 + 2\mathbf{k}_1 \mathbf{k}_3 (\text{Re} \tilde{\mathbf{g}}_1 \text{Re} \tilde{\mathbf{g}}_3 + I_m \tilde{\mathbf{g}}_1 I_m \tilde{\mathbf{g}}_3)}{(\mathbf{k}^2 + \mathcal{H}^2)^2 \{ \mathbf{k}^4 + \mathbf{k}^2(\mathcal{H}^2 + h^2) - h^2 \mathbf{k}_2^2 \}} \right] \end{aligned} \quad (14)$$

ここで図2のような座標変換を行ない転位の座標系について式(13)を積分する。この場合の各座標変換行列は次式のようになる。

$$\gamma'_1 = \beta_{ik} \gamma_k, \gamma''_1 = \beta_{ik} \gamma'_k, \gamma_i = \beta_{ik} \gamma''_k \quad (15)$$

このようにして求めた χ_E を stray field に依存する項 χ_{ES} と依存しない項 χ_{EO} に分離して表示する⁽¹⁴⁾。

$$\chi_E = \chi_{EO} + \chi_{ES}$$

$$\chi_{EO} = \frac{G^2 b^2 N}{64\pi^2 I_s H^3 (1-\nu)^2} \left(\ln \frac{\mathcal{H} R_0}{2} - 0.1728 \right)$$

$$\int_0^{2\pi} [(B_{ik}^{(1)} \eta_{ik}'')^2 + (B_{ik}^{(3)} \eta_{ik}'')^2] d\varphi''$$

† 式(9)の H_y は式(8)の I_y である。 H_y の単位は H と同じく A/m を用いているので、 χ_E は (A·m⁻¹/A·m⁻¹) 無名数となる。C.G.S. 単位系においても G/Oe (無名数) となるが、この場合と大きさが異なる。本誌および他の磁性材料の著書では I (H/m) と H (A/m) の単位を区別している場合が多いので注意されたい。

図 2 χ_E の計算に用いた座標系、転位の座標系 (x'', y'', z'')、Brown の座標系 (x, y, z)、外部磁界は y 軸に平行、結晶の座標系 (x', y', z')

$$\chi_{ES} = -\frac{G^2 b^2 N}{64\pi^2 I_s H^3 (1-\nu)^2} \left\{ \int_0^{2\pi} \frac{h^2}{\alpha^2} \left[\left(\ln \frac{\mathcal{H} R_0}{2} - 0.1728 \right) - \left(\frac{\mathcal{H}^2}{\mathcal{H}^2 + \alpha^2} \right)^3 \right] \right. \\ \times \left(\ln \frac{1}{2} R_0 \sqrt{\mathcal{H}^2 + \alpha^2} - 0.1728 \right) (A_{ik}^{(1)} \eta_{ik}'' \\ \left. \cos \varphi'' + A_{ik}^{(2)} \eta_{ik}'' \sin \varphi'' \right) d\varphi'' \\ \left. \begin{aligned} A_{ik}^{(m)} &= B_{ik}^{(1)} \beta_{1m}'' + B_{ik}^{(3)} \beta_{3m}'' \\ B_{ik}^{(m)} &= \beta_{il}' \beta_{km}' C_{lm} (\beta_{1l} \beta_{m2} + \beta_{m2} \beta_{l2}) \\ c_{11} &= 3\lambda_{100}, \quad c_{1j} = 3\lambda_{111} \end{aligned} \right\} \quad (16)$$

ここで N は転位密度、 b はバーガース・ベクトル、 N_0 は転位間距離、 G は剛性率、 η_{ik}'' は転位の応力テンソルのフーリエ成分。

今転位の応力場を極座標 ($k'' \sin \varphi''$, $k'' \cos \varphi''$) で表示すると

η_{ik}'' は⁽¹⁵⁾

$$\left. \begin{aligned} \eta_{11}'' &= (3 \sin \varphi'' - \sin 3\varphi'') \sin \chi, \\ \eta_{12}'' &= (\cos \varphi'' - \cos 3\varphi'') \sin \chi, \\ \eta_{22}'' &= (\sin \varphi'' + \sin 3\varphi'') \sin \chi, \\ \eta_{13}'' &= -2 \sin \varphi'' \cos \chi, \\ \eta_{33}'' &= 4 \sin \varphi'' \sin \chi, \quad \eta_{33}'' = 2 \cos \varphi'' \cos \chi \end{aligned} \right\} \quad (17)$$

ここで χ は転位線とバーガース・ベクトルとのなす角であるから刃状転位の場合 $\pi/2$ ラセン転位の場合 0 となる。式(16)、(17)より飽和磁化率は転位密度、バーガース・ベクトルに依存し、またその異方性は転位の応力テンソルの関数としての積分項で決定される。例えば ($\bar{1}01$) 面内に存在するラセン転位 ($\tilde{b} = 1/2[111]$) の場合 χ_{EO} の異方性は次式で与えられる。

$$\int_0^{2\pi} \{ (B_{ik}^{(1)} \eta_{ik}'')^2 + (B_{ik}^{(3)} \eta_{ik}'')^2 \} d\varphi'' = \\ 16\pi (1-\nu)^2 [(B_{13}^{(1)})^2 + (B_{13}^{(3)})^2 + (B_{22}^{(1)})^2 + (B_{22}^{(3)})^2] \quad (18)$$

従って転位の座標系 ($\tilde{b}, \tilde{n}, \tilde{l}$) について各座標軸に垂直なそれぞれの面での各結晶方向について磁化した場合の χ_E を測定し、その χ_E の大きさおよび異方性の形状より結晶中に存在する転位の種類、分布、密度を知ることができる。

著者ら⁽¹⁶⁾が計算した鉄単結晶の飽和磁化率の方位依存性を図 3 に示す。この場合転位の影響は孤立した転位とスピンとの相互作用のみを考え、 χ_E の値は式(16)に従

図 3 純鉄単結晶の飽和磁化率 χ_E の異方性 (計算値)、有効磁界 1.21×10^5 A/m、転位密度 10^{13} m^{-2} 。
(a) ($\bar{1}01$) 面での χ_E の異方性、--- $[111](101)$ 刃状転位、— $[111](101)$ ラセン転位、- · - $[111](101)$ ラセン転位。
(b) ($\bar{1}11$) (バーガース・ベクトルに垂直な面) での χ_E の異方性。
--- $[111](101)$ 刃状転位、— $[111](101)$ ラセン転位、- · - $[111](101)$ ラセン転位。

図4 195 K で引張変形した純鉄単結晶の飽和磁化率 χ_E の異方性, 有効磁界 $1.21 \times 10^5 \text{ A} \cdot \text{m}^{-1}$.
(a) $(\bar{1}01)$ 面での χ_E の異方性, (b) $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ 面での χ_E の異方性.

って単に転位密度についての積算とした. $(\bar{1}01)$ 面での χ_E の方位依存性を見ると 1 次迂り系の刃状転位およびラセン転位は $[111]$ バーガース・ベクトルに近い方位が最も小さくその異方性の形状も類似しているためこの面上のみの値では識別困難である. しかし $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ 面での異方性を見るとラセン転位の場合ほとんど方位依存性を示さないが刃状転位の場合 $[101]$ および $[1\bar{2}1]$ 方向に大きな値を示し, これよりその違いは明らかである. 2 次迂り系の転位についても同様である. また混合転位の場合は式 (17) より転位線とバーガース・ベクトルのなす角 χ の関数として応力テンソルは表示でき, これにより χ_E の方位依存性は求められる. Gessinger⁽¹⁵⁾ はニッケル単結晶についてこのような混合転位の場合の詳細な計算を行なっている. このように各面上での χ_E の異方性を比較することにより結晶中に存在する転位の形態を決定することができる. 飽和磁化率測定に当たって磁化の過程で試料内に反磁場が生じ, この際の有効磁界は試料の形状に依存する. 従ってこのような磁氣的異方性を測定する場合には, 各測定方向について反磁場係数が一定 (1/3) である球形試料を用いることが望ましい. また χ_E の値は非常に小さく, 従って磁化過程中的磁気余効にも十分注意しなければならない.

著者ら⁽¹⁶⁾ が求めた鉄単結晶を低温変形した際の各変形段階における χ_E の変化の実験例を図 4 に示す. 195 K の変形 (この温度は刃状転位とラセン転位の易動度がほとんど等しい遷移温度近傍と思われる) では変形初期の χ_E の異方性は図示のように複雑な形状を示す. 今刃状転位が迂り面上に集積し広範囲の応力場を形成する場合には応力の剪断成分はほとんど 0 となりその応力成分は

$$\sigma = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_{zz} \end{pmatrix} (x \parallel \bar{b}, y \parallel \bar{n}, z \parallel \bar{l})$$
 となるからそれによる χ_E の異方性は図 5 のような複雑な形状を示す. 従って図 3~5 より 3% 歪段階においては刃状転位および集積刃状転位の存在を示している. その後変形による応力増加に伴い主にラセン転位が運動, 増殖し, 7% 歪段階では $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ 面での χ_E の値からその転位密度は全転位密度の 65% と計算される. その後の高歪段階における χ_E の値は 2 次迂り系のラセン転位の存在を示している. またここで注目すべきことは変形の進行に伴い χ_E の値

図5 純鉄単結晶中の $(\bar{1}01)$ 面上に集積した刃状転位による各面における飽和磁化率 χ_E の異方性. 有効磁界 $1.21 \times 10^5 \text{ A} \cdot \text{m}^{-1}$, 転位密度 10^{13} m^{-2} .

が急速に増加している点である。例えば 12% 歪の場合後述する保磁力および変形応力から求めた転位密度は $1.6 \times 10^{13} \text{ m}^{-2}$ である。これに従って式(16)から求める χ_E の値に比べて実験値は 10 倍以上の大きな値を示している。これについて Kronmüller ら⁽¹¹⁾は次のように考えている。今転位の応力場によって回転させられた磁気モーメントの間にはお互いに平行に保とうとする交換力が働くからこの磁気モーメントの乱れ $\gamma(x)$ は転位源からの距離 x と共に指数関数的に減少する。

$$\gamma(x) = A \exp(-\mathcal{H}x) \quad (19)$$

ここで乱れが $1/e$ まで減少するときの距離 l_H (交換距離) は

$$l_H = 1/\mathcal{H} = (c/I_s H)^{1/2} \quad (20)$$

ここで c は定数。

図 6 (a) に示すように転位間距離が l_H 以上である場合には転位の応力場は独立して作用し、 χ_E は個々の転位の影響のみを考えればよいので式(16)で与えられる。一方転位間距離が l_H より小さい (b) のような長範囲の応力場を持つ n 個の転位からなる集積転位群の場合には転位の応力場の相乗効果により χ_E の値は転位のバーガー・ベクトルが $n\mathbf{b}$ として作用し、次式で示すような大きな値を取るようになる。

$$\chi_E = \frac{G^2 b^2 n N}{64 \pi^2 I_s H^3 (1-\nu)^2} \left(\ln \frac{\mathcal{H} \sqrt{n} R_0}{2} - 2.00 \right) \int_0^{2\pi} (B_{ik}(\omega) \eta_{ik}'')^2 d\varphi'' \quad (21)$$

図 6 転位群近傍の磁気モーメントの乱れ。
(a) $R_{ij} \gg l_H$, 孤立転位の場合。
(b) $R_{ij} \ll l_H$, 集積転位の場合。

これより結晶中の転位の相互反応、転位運動に対する障害物(亜粒界、不純物原子等)によって集積して広範囲な応力場を形成する転位群中の転位の数 n が決定できる。例えば 195 K で変形した鉄の場合(図 4), stage III 領域では転位密度から推定される平均転位間距離は 160 nm であり、これは交換距離 14 nm よりかなり大きな値を示している。しかし χ_E の大きな値から考えて転位は結晶中で不均一に分布して転位群を形成するものと考えられる。この際の転位群は約 12 個程度のラセン転位から成り、これが硬化に寄与していると考えられる。また Schroeder⁽¹⁴⁾は同じく鉄単結晶の室温変形の際の各

変形段階における χ_E の異方性を測定し、各変形段階ともほとんど刃状転位の寄与によるものとした。そして stage I の $2 \times 10^{13} \text{ m}^{-2}$ 程度の転位密度の段階ではほとんどの刃状転位は孤立転位として存在し、stage III において 1 次および 2 次渦り系の刃状転位が活動し、それぞれ 16~17 個および 12 個の転位からなる集積転位群を形成することを明らかにしている。

Seeger, Kronmüller⁽¹⁰⁾⁽¹⁷⁾はこのような考え方を面心立方金属の加工硬化の研究に利用した。彼らの加工硬化理論⁽¹⁸⁾によれば stage I のいわゆる容易渦り領域においては結晶中の障害物に運動を阻止された転位は増殖転位による応力の上昇に伴い集積することなく孤立転位として障害物を越える。従ってこの段階においては forest dislocation の加工硬化係数に対する寄与はほとんどないと考えられる。一方 stage II においては Frank-Read 源により増殖された転位の応力場により先端の転位は障害物を乗り越え、Lomer-Cottrell 不動転位または集積転位により運動を阻止されるまで運動する。従って集積転位密度は変形に伴い増加する。このようなモデルの正当性は各変形段階の χ_E の測定により結晶中の転位が孤立転位としてか、または集積転位として存在するかを知ることにより容易に確認できる。彼らは Ni, Ni-Co⁽¹⁰⁾⁽¹⁷⁾単結晶について各変形段階の χ_E の変化を求め、これより求めた各変形段階の転位の形態が彼の加工硬化理論と良く一致する事を示した。今 Ni-20%Co 単結晶の場合の例を図 7 に示す。stage I においては χ_E は転位密度の増加に伴い孤立転位の場合は式(16)に従って増加するため、転位密度の増加にもかかわらず $\Delta \chi_E H^3 / \Delta \tau$ は一定の値を示す。また stage II では $\Delta \chi_E H^3 / \Delta \tau$ は変形に伴い増加し、式(21)で示される集積転位密度の増加を裏付け、彼らの加工硬化理論の妥当性を示している。

図 7 Ni-20%Co 単結晶の引張変形後の飽和磁化率と変形応力の変化。
有効磁界は $1.6 \times 10^5 \text{ A} \cdot \text{m}^{-1}$ 。

3. 磁区構造と転位

強磁性体は静磁エネルギーを減ずるために磁区を形成するが、その磁区構造は静磁エネルギーと磁壁エネルギーの兼ね合いとして決定される。変形された結晶ではこのような磁区構造と転位との間には密接な関係が有り、近年の micromagnetism の発展により磁区観察の結果として結晶の部分的な領域(10 μm ~1 mm)における転位配列を知ることができるようになった。

今変形前の理想的な結晶では磁区構造は結晶磁気エネルギー(Φ_K)によって決定され、磁区内のスピン方向は Φ_K 最小なる磁化容易軸方向に並ぶ。例えばニッケルおよび鉄の場合にはそれぞれ $\langle 111 \rangle$ および $\langle 001 \rangle$ 方向を取る。このような結晶を変形した場合、転位の導入により磁気的エネルギーは増加し、この変形による寄与は次式で与えられる。

$$\Delta\Phi^{(i)} = \Phi_{\text{ex}} + \Phi_m + \Phi_K + \Phi_{\text{ms}} - \Phi_K^{(h)} - \Phi_{\text{ms}}^{(h)} \quad (22)$$

ここで $\Phi_K^{(h)}$, $\Phi_{\text{ms}}^{(h)}$ は理想結晶の結晶磁気エネルギーおよび静磁エネルギーである。式(22)は Brown の手法を用い飽和磁化率の場合とはほぼ同様に求められる。この場合の記号は χ_E の場合と同じである。

$$\Delta\Phi^{(i)} = \frac{G^2 b^2 N}{8\pi^2 A \mathcal{H}_H^2 (1-\nu)^2} \left(0.5772 + \ln \frac{\mathcal{H}_H R_0}{2} \right) \int_0^{2\pi} [(B_{ik}^{(1)} \eta_{ik}^{(1)})^2 + (B_{ik}^{(3)} \eta_{ik}^{(3)})^2] d\varphi'' \quad (23)$$

これは stray field を考慮しない場合の χ_E の場合と同様の異方性を持つ。Kronmüller⁽¹⁹⁾は内部応力の磁区に対する寄与を応力の波長と磁区の大きさとの比較により

長範囲 $\sigma^{(l,r)}$ および短範囲 $\sigma^{(s,r)}$ 応力場に分離して検討している。

さて変形した結晶の磁区構造は式(23)で与えられる転位の応力場による寄与と、大きな異方性を有する結晶磁気エネルギーの総和として決定される。実際の磁区観察に当っては平面的な観察によるため適当な観察面を選ばなければ非常に複雑な構造を示し、変形の効果を十分理解し得ない。このような観点から転位の座標系($\tilde{b}$, $\tilde{n}$, $\tilde{l}$)の座標軸を含み、しかも結晶磁気エネルギー最小なる方

写真1 ニッケル単結晶の(101)面上の磁区構造。
(a) 変形前, (b) $\tau=1.96\text{MPa}$ まで引張変形(室温)

向を含む面について観察するのが望ましい。

ニッケル単結晶の変形前および変形後の磁区観察の例を写真1に示す⁽²⁰⁾。この磁区観察は偏光が強磁性体中のスピンによって首振り運動をする現象を利用した磁気カー効果によって行なっている。この際偏光による濃淡を強めるため試料表面には $\lambda/4$ 厚の ZnS 被膜を蒸着している。今(101)面上での変形前の磁区は図8(a)に示すよ

図8 ニッケル単結晶の(101)面での磁気異方性。

(a) 結晶磁気エネルギー, Φ_K , (b) 孤立した刃状転位による誘導磁気エネルギー, $\Delta\Phi^{(i)}$, 転位密度は 10^{13}m^{-2} , (c) (101)面上に集積した刃状転位群による誘導磁気エネルギー, $\Delta\Phi^{(i)}$, 転位密度は 10^{13}m^{-2} 。

うに結晶磁気エネルギーが $[111]$, $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$, $[\bar{1}11]$, $[1\bar{1}\bar{1}]$ の 4 方向に磁化容易軸を持つため写真 1 (a) に示すように 4 相の磁区構造を示す。しかし変形に伴い結晶中の孤立した刃状転位 ($\vec{b}=1/2[101]$, $\vec{n}=[111]$) の応力場により図 8 (b) に示すように誘導磁気エネルギー $\Delta\phi^{(1)}$ は $[111]$ 方向で増加し, 従って磁区は $\Delta\phi^{(1)}$ が小さい $[1\bar{2}1]$ に近い $[\bar{1}11]$ 方向が優先方位となり 2 相の磁区構造を示す。更に変形が進み stage II 領域では写真 1 (b) のように $[1\bar{2}1]$ 方向が優先方位となり階段状組織 (ladder-shaped strips) を示す。この階段状組織の間に $[111]$ 方向に自発磁化を持つ縞状組織が認められる。更にこれはビーム状組織に分割される。このような磁区構造をもたらす転位組織として図 9 のような転位群が考えられる⁽²¹⁾。(A) のような刃状転位双極子ないしこれらから成る転位群は個々の刃状転位と同様の $\sigma = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & 0 & \gamma_{xz} \\ 0 & \sigma_{yy} & 0 \\ \sigma_{xz} & 0 & \sigma_{zz} \end{pmatrix} (x \parallel \vec{b}, y \parallel \vec{n}, z \parallel \vec{l})$ なる応力テンソルを持ちその誘導磁気エネルギー $\Delta\phi^{(1)}$ は図 8 (b) のようになる。この場合孤立転位に比

図 9 引張変形 (stage II) したニッケル単結晶中の転位の模式図。

べて転位群としての広範囲応力場を考え, それが超転位としての効果を示すことにより $\Delta\phi^{(1)}$ への寄与はより大きくなる。一方迂り面上に集積した刃状転位による転位壁(B)とか1次および2次迂り系の転位反応で形成されたLomer-Cottrell 不動転位(C)による広範囲応力場は $\sigma = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_{zz} \end{pmatrix}$ なる応力テンソルを持ち, それによる $\Delta\phi^{(1)}$ は図 8 (c) のようになる。このような転位群の結果として写真 1 (b) のような複雑な磁区構造を示す。またこのような転位は 1033 K の焼鈍で最初に刃状転位双極子の寄与によるビーム状磁区が消失し, 焼鈍に伴い階段状磁区が増加する。この磁区は 1173 K までの焼鈍に対して安定であり, Lomer-Cottrell 不動転位が熱的に安定であることを示す⁽²¹⁾。その後転位密度の減少に伴い結晶磁気エネルギーの効果が優先し, 磁区は変形前の 4 相構造へと移行する。

次に変形した純鉄の磁区観察の例を写真 2 に示す⁽²²⁾。鉄の場合図 10 (a) の ϕ_K に示されるように磁化容易軸は $\langle 001 \rangle$ 方向であるため, 変形前の結晶では (101) 面の磁区は 2 相構造を示す。変形に伴い転位の応力場による $\Delta\phi^{(1)}$ は増加し, その際の各転位による異方性は図 10 (b) のようになる。1 次迂り系の刃状, ラセン転位共に $[111]$ 方向の $\Delta\phi^{(1)}$ が最小で $\langle 001 \rangle$ 磁化容易軸を打消すように働くが刃状転位の方がより効果的である。室温ないし 195 K の変形では変形初期にこの刃状転位の効果が認められ, $\langle 001 \rangle$ 方向に伸びた 2 相組織の一部が $[111]$ 方向へと遷移する。しかし加工硬化が進み stage III においては写真 2 (a) に示すように磁区は $[010]$ から一部 $[111]$ および $[1\bar{2}1]$ 方向に遷移する領域が認められるようになる。今迂り面上に集積した刃状転位群による広範囲応力場の応力テンソルは $\sigma = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_{zz} \end{pmatrix}$ であるから, これによる $\Delta\phi^{(1)}$ は図 10 (c) のようになる。従って写真 2 (a)

写真 2 純鉄単結晶の引張変形後の (101) 面上の磁区構造。
(a) 195 K, 13% 引張変形, (b) 77 K, 18% 引張変形。

図 10 純鉄単結晶の $(\bar{1}01)$ 面での磁気異方性.

(a) 結晶磁気エネルギー, Φ_K , (b) 種々の転位による誘導磁気エネルギー, $\Delta\Phi^{(i)}$, 転位密度は 10^{13} m^{-2} , (c) $(\bar{1}01)$ 面上に集積した刃状転位群による誘導磁気エネルギー, $\Delta\Phi^{(i)}$, 転位密度は 10^{13} m^{-2} .

に認められる $[111]$, $[121]$ 方向への磁区の遷移はこのような転位群によると考えられる. 前項の χ_E の結果では結晶全体としてはラセン転位密度が大きいことを示していたが磁区観察では各領域での転位組織を反映するため磁区の分布は不均一となり部分的に刃状転位群の存在を示している. また室温で予歪を与えた後 77 K で変形した場合も変形初期には写真 2 (a) と同様の磁区構造を示した. これは室温変形で形成された刃状転位群が 77 K の変形でも結晶中に安定に存在することを示す. その後転位密度の増加により磁区は小さくなるが 2 次迂回系のラセン転位の活動により写真 2 (b) のように磁区は再び $[010]$ 方向への 2 相構造を示す. しかし一部に依然として刃状転位群の効果が認められる.

4. 初磁化率, 保磁力と転位

強磁性体を非常に小さい振幅の磁界で磁化する場合の可逆的な磁化を初磁化率という. この領域における磁化は磁気異方性に抗しての回転磁化および可逆的な磁壁移動によってもたらされる. 回転磁化の効果は非常に小さいと考えられるのでここでは磁壁移動の効果のみを考える. 今完全に一様な磁性体内では磁壁移動は非可逆的であるが, 変形した結晶中では転位の応力場と磁気モーメントの相互作用により磁壁の位置によってエネルギーが変化する. このような状況の下で磁界が加えられると, 磁壁は可逆的な位置まで移動する. その際磁壁移動が起こった領域では磁気モーメントが逆転し, 磁気エネルギーを変化させる. Vicena⁽²³⁾はこのような考え方に基づいて 1 本の転位の応力場と磁壁内の磁気モーメントとの相互作用による磁壁エネルギーの変化を求めて初磁化率と

図 11 磁壁に働く力の統計的分布.

転位との関係を求めた. 今変形した結晶の 1 つの磁区内には $10^7 \sim 10^9$ 個の転位が存在すると考えられるから, これらの転位と磁壁との場所による相互作用を統計的に図 11 のように仮定する. この分布状態における可逆位置までの磁壁移動により Seeger ら⁽²⁴⁾は初磁化率 χ_0 を次式のように求めた.

$$\chi_0 = \frac{(2I_s \cos \alpha)^2 F_B}{L_3} \cdot \frac{1}{R} = \frac{(2I_s \cos \alpha)^2}{2} \left\{ \pi F_B / (L_3 \int_{-\infty}^{\infty} (dv/dz)^2 dz) \right\}^{1/2} \cdot \frac{1}{\sqrt{N}} \quad (24)$$

ここで F_B は移動に寄与する平均的な磁壁の面積, α は磁壁面と外部磁界とのなす角, R は $V(Z)=0$ における勾配, L_3 は任意の磁壁間距離.

次に非可逆的磁化による保磁力 H_c はほとんどすべて磁壁移動によって行なわれる. この場合磁区境界を与えるのは転位の応力場による寄与が最大である $V_{\max}$ による. 従って保磁力は次式のように与えられる⁽²⁴⁾.

$$H_c = \frac{2\sqrt{\pi}}{2I_s F_B \cos \alpha} \cdot \bar{V}_m \times \left\{ \ln \frac{L_3}{2L_0} \right\}^{1/2} = \frac{1}{2I_s \cos \alpha} \left\{ \frac{2 \ln (L_3/2L_0)}{F_B L_3} \int_{-\infty}^{\infty} \{v(z)\}^2 dz \right\}^{1/2} \sqrt{N} \quad (25)$$

従って $\chi_0 \sim \beta_0 / \sqrt{N}$, $H_c \sim \beta_c \sqrt{N}$ として転位密度の測

図 12 引張変形したニッケル単結晶の初磁化率 χ_0 、保磁力 H_c の変形応力依存性。
(a) stage I, (b) stage II.

図 13 引張変形および繰返し変形した純鉄単結晶の保磁力 H_c 、飽和磁化率 χ_E の変化。

定が可能である。ただしここで β_0, β_c は転位の種類、分布に依存し、例えば刃状転位の方がらせん転位よりその寄与は大きい。またここで注意すべきは Rayleigh 領域においては転位の応力場の効果は磁壁近傍においてのみ有効であり、磁壁の幅は約 10 nm と考えられるので χ_E や磁区観察の場合のような広範囲の応力場の効果を考える必要はなく、個々の転位の効果として転位密度が測定できる。このような考え方に基いて Ni⁽²⁵⁾, Fe⁽²⁶⁾, Ni⁽²⁷⁾-Co⁽²⁸⁾ 等の結晶について変形の各段階における転位密度が測定されている。一例を図 12⁽²⁸⁾ に示すが、これから明らかな如く stage I 領域では $N(\tau) \sim (\tau - \tau_0)$, stage II 領域では $N(\tau) \sim (\tau - \tau_0)^2$ なる関係を示し、面心立方金属の加工硬化機構とよく一致している。また Mughrabi ら⁽²⁹⁾ は鉄単結晶の繰返し変形および引張変形後の H_c の変化を図 13 のように求めた。引張変形の場合は室温では刃状転位密度が応力増加と共に増加することを示す。これに比べて繰返し変形の場合は変形初期の H_c の増加は少なく、その後変形量の増加と共に急速に増加する。このことから変形初期には刃状転位密度は増加するがそれは刃状転位双極子を形成し、 H_c の増加にそれほど寄与しない。その後の H_c の急速な増加は転

位密度の増加にもかかわらず χ_E の値が変化しないことから考えてセル壁における転位密度の急速な増加および内部応力の小さいセル組織への転位の再配列によるものと考えられる。

5. おわりに

本稿で述べた磁気的測定手段による場合は電子顕微鏡による場合と異なり、直径数 cm の大きな結晶についてその中に存在するすべての転位についての情報が積算して得られる。従って変形した結晶中の転位組織についての正確な統計的情報を比較的容易に得ることができる。飽和磁化率による場合は孤立転位と転位群が形成する広範囲応力場との効果を分離する必要がある。しかし初磁化率、保磁力は短範囲応力場の効果のみを反映し、これらの測定手段の併用により転位組織、転位密度についての定量的な情報が得られる。また磁区観察の場合は試料の比較的大きい各領域における転位組織を反映し、不均一変形を起こした結晶についても定性的ではあるが各領域における転位組織を知ることができる。その他塑性変形中に試料に交番磁界を負荷した場合、運動転位と磁壁との相互作用により変形応力が変化するという興味ある現象もあるが誌面の都合上末尾の文献⁽³⁰⁾⁽³¹⁾を参照して戴きたい。

最後に磁気的研究に際し有益なご助言を賜った Max-Planck 研究所 A. Seeger 教授、H. Kronmüller 教授に、また本稿執筆に際し結果の一部を御教示戴いた岩手大学工学部 高橋正氣助教授および常に有益なご助言を戴いている大阪大学工学部 山根寿己教授に感謝の意を表します。

文 献

- (1) W. Six, J. L. Snoek and W. G. Burgers: De Ingenier, **49** (1934), E 195.
- (2) L. Néel: Compt. rend., **238** (1954), 305.
- (3) S. Taniguchi and M. Yamamoto: Sci. Rept. Res. Inst. Tohoku Univ., **A6** (1954), 330.

- (4) S. Chikazumi, K. Suzuki and H. Iwata : J. Phys. Soc. Japan, **12**(1957), 1295.
- (5) S. Chikazumi, K. Suzuki and H. Iwata : J. Phys. Soc. Japan, **15**(1960), 250.
- (6) S. Takahashi : Phys. Stat. Sol. (b), **52**(1972), 141.
- (7) S. Takahashi : Phys. Stat. Sol. (b), **69**(1975), 227.
- (8) S. Takahashi : Phys. Stat. Sol. (a), **42**(1977), 201.
- (9) S. Takahashi : Phys. Stat. Sol. (a), **42**(1977), 529.
- (10) A. Seeger and H. Kronmüller : J. Phys. Chem. Solids, **12**(1960), 298.
- (11) H. Kronmüller and A. Seeger : J. Phys. Chem. Solids, **18**(1961), 93.
- (12) H. Kronmüller : Can. J. Phys., **45**(1967), 631.
- (13) W. F. Brown : Phys. Rev., **58**(1940), 736.
- (14) G. Schroeder : Phys. Stat. Sol. (a), **47**(1978), 145.
- (15) H. Gessinger : Phys. Stat. Sol., **39**(1970), 581.
- (16) 馬越佑吉, H. Kronmüller : 日本金属学会講演概要, (1979.10月), 252; 投稿中.
- (17) A. Seeger, H. Kronmüller, S. Mader and H. Trauble : Phil. Mag., **6**(1961), 639.
- (18) A. Seeger : *Dislocations and Mechanical Properties of Crystals*, Ed. by J. C. Fisher et al., Wiley, New York, (1957), p.243.
- (19) H. Kronmüller : AIP Conf. Proc., **10**(1972), 1006.
- (20) H. Willke : Phil. Mag., **25**(1972), 397.
- (21) G. Schroeder and H. Kronmüller : Phys. Stat. Sol. (a), **34**(1976), 623.
- (22) 馬越佑吉, H. Kronmüller : 日本金属学会講演概要, (1979.10月), 252; 投稿中.
- (23) F. Vicena : Czech. J. Phys., **5**(1955), 480.
- (24) A. Seeger, H. Kronmüller, H. Rieger and H. Trauble : J. Appl. Phys., **35**(1964), 740.
- (25) H. Rieger : Phys. Stat. Sol., **8**(1965), 283.
- (26) S. Hayashi : Trans. JIM, **8**(1967), 14.
- (27) K. Lubitz : Appl. Phys., **16**(1978), 87.
- (28) H. Kronmüller : Z. Physik., **154**(1959), 574.
- (29) H. Mughrabi, R. Kütterer, K. Lubitz and H. Kronmüller : Phys. Stat. Sol. (a), **38**(1976), 261.
- (30) S. Hayashi, S. Takahashi and M. Yamamoto : J. Phys. Soc. Japan, **25**(1968), 910.
- (31) S. Hayashi, S. Takahashi and M. Yamamoto : J. Phys. Soc. Japan, **30**(1971), 381.

<新刊案内>

Handbook on the Toxicology of Metals

(金属毒性ハンドブック)

L. Friberg, G. Nordberg, V. Vouk 編

この本の PR 文によると,「本書は,金属毒性の理解と評価に必要な情報を整理し,主として環境安全および労働衛生の分野に関係する医家,毒物学者,技術者が利用しやすい形に毒性データをまとめたものである。」とうたっている。

金属の毒性に関する書は以前にもいくつか出版されているが,この本には1970年代の最近の新しい研究結果が多く盛られており,この方面の著しい進展がうかがわれる。

内容は,第1章の序文以後大きく2つに分けられている。第1部は総論であり第2～14章から構成されており,多くの金属に共通する毒性を網羅的にながめている。つまり金属の一般化学,試料採取と分析法,環境中の金属の移動,沈積・吸収・新陳代謝,毒性作用の原理,摂取と効果についての数学的および統計的取り扱い,摂取と感応との関係や効果におよぼす因子,摂取と感応との関係や摂取と効果との関係を評価する

ための伝染病学的な取扱い,金属毒性防止の一般的様相,金属の生物学的効果,標準と判断基準,金属毒性の診断と処置の一般的様相,金属の突然変異や癌種への効果等について解説している。

第2部は第15～42章から構成されており,28種の金属について各論を述べている。各章では,アブストラクトにつづいて,その金属の物理化学的性質,分析法と問題点,生産と用途,環境的な水準,新陳代謝,生理組織や生体的循環での水準,効果および摂取と感応との関係,診断と処置,最後に文献という形で書かれている。

金属にたずさわる者にとっては,なれない術語もあって,難解のところが多いと思われるが,とくに毒性の著しい金属や多量の金属を取り扱う工場,研究所にはぜひ常備し,技術者も積極的に金属の一つの顔を知ることが必要であろう。(S.M.)

[17.0×24.5 cm 750頁 1979年 Dfl. 240.00 Elsevier/North-Holland Biomedical Press]