



Title	強磁性形状記憶合金における結晶学的ドメインの磁場制御
Author(s)	福田, 隆; 掛下, 知行; 竹内, 徹也
Citation	大阪大学低温センターだより. 2004, 128, p. 7-11
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/8973
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

強磁性形状記憶合金における結晶学的 ドメインの磁場制御

工学研究科 福田 隆、掛下知行（内線 7482）
低温センター 竹内徹也

E-mail: kakeshita @mat.eng.osaka-u.ac.jp

1. はじめに

現在、磁場印加により大きな歪を発生できる材料として、超磁歪材料である TERFENOL-D ($\text{Tb}_{0.3}\text{Dy}_{0.7}\text{Fe}_2$)^[1]が挙げられる。この材料では比較的弱い磁場により0.1~0.2%もの歪が現れるため、超音波発生、微小アクチュエータ等に利用されている。ところが、近年になり、幾つかの強磁性形状記憶合金において磁場により数%もの歪を発生させることが可能であることが見出され^[2-4]、新機能性材料として関心を集めている。強磁性形状記憶合金における巨大な磁場誘起歪は、磁場下での弾性歪によるものではなく、磁場により結晶学的ドメイン（バリエント）が制御されることによる。本稿では著者らがを行っている3種の強磁性形状記憶合金（Fe-31.2at.%Pd、Fe₃Pt ならびに Ni₂MnGa）における磁場によるバリエント制御とそれに伴う巨大歪を紹介する。

2. 磁場による結晶学的ドメインの制御

一般に、形状記憶効果を示す合金は熱弾性型マルテンサイト変態をし、マルテンサイト相は幾つかの結晶学的ドメイン（バリエント）から構成されている。簡単のために、図1に示すように2種類のバリエントから構成されている場合を考える。マルテンサイトを熱誘起すると全てのバリエントの混在状態となる（図1 a→b）。これらバリエント間の界面は双晶面になっており、外部から剪断応力を加えると、双晶変形により特定のバリエントが成長し、その結果大きな歪が現れる（図1 b→c）。この大きな歪は、高温相に戻すことにより消失する（図1 c→a）。マルテンサイト相が強磁性の場合には、バリエントに加えて磁気的なドメインも存在する。バリエントと磁気的ドメインに対応関係がある場合、結晶磁気異方性のため、磁気モーメント m は、それぞれのバリエント内で図1(b)の矢印で示す磁化容易軸方向を向く。この状態に、一方のバリエントの磁化容易軸方向（他方にとっては磁化困難軸方向）に外部から磁場 H を印加すると、磁気モーメントが磁場方向に回転し、バリエント間にエネルギー差が生じる。その結果、バリエント界面を介して磁気的な剪断応力（ τ_{mag} ）が働き、この τ_{mag} が、双晶界面の移動に必要な応力（ τ_{req} ）よりも大きいならば、バリエント再配列が起き、大きな歪が現れる（図1 b→c）。

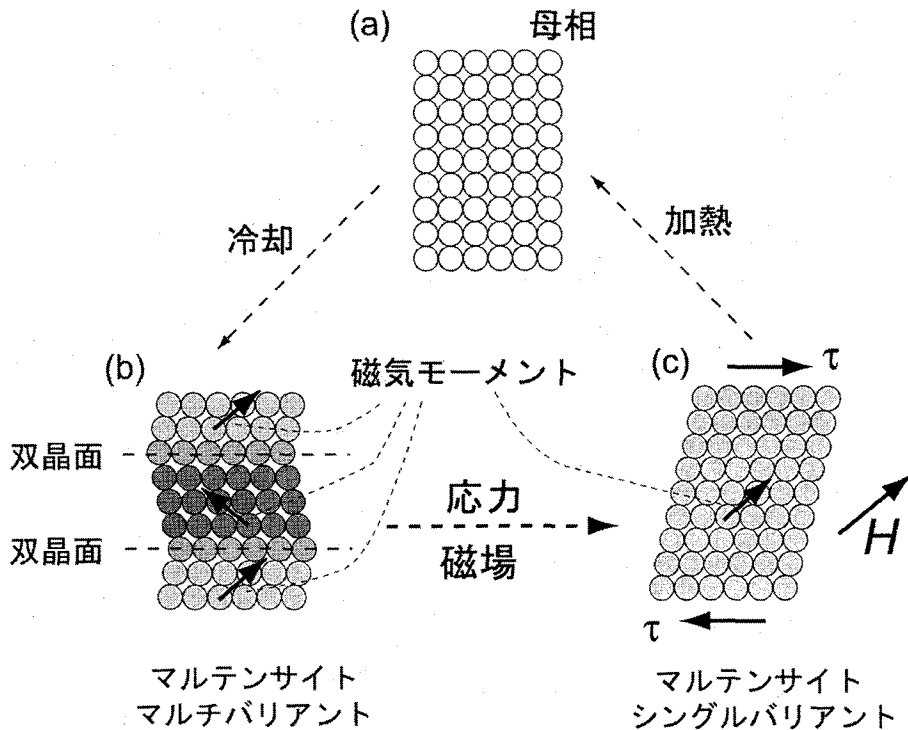


図1 応力 τ ならびに磁場 H によるマルテンサイトバリエーションの再配列。

3. 磁場により誘起される歪

巨大磁場誘起歪を示す3種の合金 Fe-31.2Pd (at.%)、Fe₃Pt ならびに Ni₂MnGa は立方晶から正方晶に熱弾性型マルテンサイト変態をし、変態温度はそれぞれ230K、85K、202Kである^[5-7]。マルテンサイト相の軸比 (c/a) の値は77Kで (Fe₃Pt については4.2Kで) 約0.94程度である。磁化容易軸は Fe-31.2Pd 合金では a 軸であり、Fe₃Pt と Ni₂MnGa では c 軸である。マルテンサイト相には3種類の格子対応バリエーションが存在する。これらのバリエーション間の界面は $\{101\}_M$ (M はマルテンサイト相を表す) 双晶面となっている。また、母相の $[001]_P$ (P は母相を表す) 方向は、ひとつのバリエーションでは c 軸であり、他の2つのバリエーションでは a 軸となる。

これら合金単結晶を無磁場下で冷却しマルテンサイト相にした後に、 $[001]_P$ 方向に磁場を印加した際の $[001]_P$ 方向への歪をキャパシタンス法で測定した。それらの結果を、図2に示す。いずれの合金においても約0.25MA 付近の磁場から試料の変形が始まっていることがわかる。すなわち、Fe-31.2Pd 合金では磁場方向に伸び、Fe₃Pt ならびに Ni₂MnGa では磁場方向に収縮している。この変形は、磁気的エネルギーの低いバリエーション (磁化容易軸が磁場方向に平行なバリエーション) が成長し、他のバリエーションが収縮することにより生じる。この歪と格子定数から、Fe-31.2Pd ならびに Ni₂MnGa では磁気的エネルギーが最も低いバリエーションがほぼ完全に選択されていることがわかる。しかしながら、Fe₃Pt では、容易軸である c 軸が磁場方向を向いたバリエーションの割合は70%程度にしか達していない。また、この系の特徴的なこととして、Fe-31.2Pd ならびに Ni₂MnGa の場合とは異なり、図2(b)の曲線Bからわかるように、0.6%もの歪が磁場除去に際して回復することが挙げられる。この歪はその後の磁場印加・除去により繰り返し現れ (曲線C,D ならびに E,F)、その

値は、超磁歪材料である TERFENOL-D における磁歪の約 3 倍にもなる。このような歪みの回復は弾性エネルギーの蓄積によるものであると考えられるが、その起源については未だ明らかではない。また、この可逆的歪は温度依存性があり、その値は 20K で約 1 % にも達する。

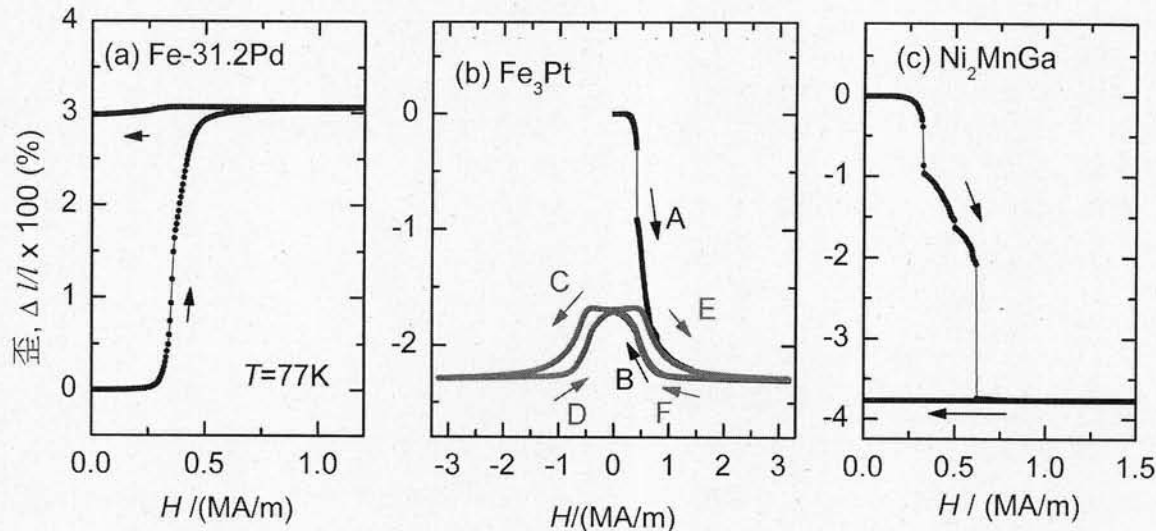


図2 試験温度まで零磁場で冷却した後、 $[001]_P$ 方向に磁場 H を印加した際の $[001]_P$ 方向の磁場誘起歪 ($\Delta l/l$)。 (a) Fe-31.2Pd、試験温度 77K ; (b) Fe_3Pt 、試験温度 4.2K ; (c) Ni_2MnGa 、試験温度 77K。正は伸び、負は収縮を表す。

上述した、磁場によるバリエント再配列は、磁場中で光学顕微鏡により直接観察することが出来る。その一例として Fe-31.2Pd 合金における観察例を図 3 に示す。母相表面は(a)に示すように平坦である。試料を無磁場下でマルテンサイト変態温度以下に冷却すると、マルチバリエントの状態となるため、(b)に示すように表面起伏が現れる。ここで左上から右下へと走っているトレースはマルテンサイトの $\{101\}_M$ 双晶面である。磁場を $[001]_P$ 方向に印加すると、(c)に示すようにバリエント再配列に伴い、暗部の領域が広がり始める。さらに磁場を強くすると、最終的には図 3 (d)に示すように、バリエント再配列が完了し、左上から右下へと走っている双晶面のトレースは完全に消失する。この磁場中の光学顕微鏡観察の結果は、図 2 (a)の磁場誘起歪の結果と良く対応している。

以上に述べたマルテンサイト変態温度、軸比、磁場によるバリエント再配列の結果を表 1 にまとめて示した。

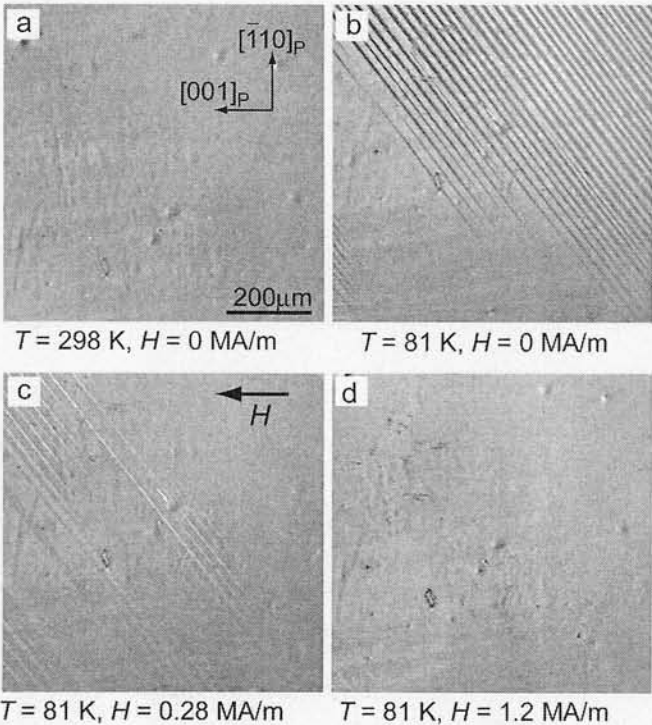


図3 Fe-31.2Pd 合金における磁場によるバリエント再配列の様子を示した光学顕微鏡写真。(a)母相状態、(b)零磁場下で81K まで冷却した試料表面に見られる双晶組織、(c)磁場下においてバリエントが再配列している最中、(d)再配列が完了した状態。

表1 強磁性形状記憶合金の特性

	Fe-31.2Pd (at. %)	Fe ₃ Pt	Ni ₂ MnGa
マルテンサイト変態温度(K)	230	85	202
軸比 (c/a)	0.940(77K)	0.945(14K)	0.940(77K)
磁化容易軸	a 軸	c 軸	c 軸
[001] _p 磁場下での[001] _p 方向への歪	膨張	収縮	収縮
[001] _p 磁場下における優位なバリエーションの割合	100%	70%(14K)	100%
磁場除去に際して回復する歪 (%)	0	0.6(4.2K)	0
結晶磁気異方性定数 K_u (kJ/m ³)	-180(77K)		420(77K)
磁氣的剪断応力の最大値 τ_{mag} (MPa)	1.5(77K)		3.4(77K)
バリエーション再配列に必要な剪断応力 τ_{req} (MPa)	0.6-1.2(80K)		1.2-2.2(80K)

4. 磁場によるバリエーション再配列機構

ここでは、磁氣的剪断応力 τ_{mag} がバリエーション再配列に必要な応力 τ_{req} より大きくなっていることを Fe-31.2Pd 合金の場合について定量的に示す。その前に、磁氣的剪断応力 τ_{mag} と他の物理量との関係を示す。この値は、バリエーション再配列前後の磁氣的エネルギー差、 ΔU_{mag} 、と双晶変形の剪断量、 s 、($s = [1 - (c/a)^2] / (c/a)$) で、 $\tau_{mag} = \Delta U_{mag} / s$ と表される。この値は、磁場を磁化容易軸に平行に印加した場合に最大値をとり、その値は、一軸結晶磁気異方性定数 $|K_u|$ と近似できる。 s の値は格子定数から算出され、77K で 0.124 である。 $|K_u|$ の値は、磁化困難軸 (c 軸) 方向の磁化曲線と磁化容易軸 (a 軸) 方向の磁化曲線の囲む面積として求めることができる。磁化困難軸ならびに容易軸の磁化曲線を求めるためには磁化測定の間を通して単一バリエーションとする必要がある (磁場によるバリエーション再配列を阻止しなければならない)。そこで、試料に一軸圧縮応力を加えて測定を行った。77K における測定結果を図 4 に示す。この磁化曲線の囲む面積より $|K_u|$ を求めると、その値は約 180 kJ/m³ となる。求めた $|K_u|$ と s の値を用いて、77K における τ_{mag} の最大値を算出すると 1.5 MPa となる。一方、 τ_{req} は単結晶を用いた引張試験により求めることができる。図 5 は Fe-31.2Pd の 80K における [001] 方向への引張試験よりもとめた応力-歪曲線の一例であり、この図では約 2 MPa にステージが見られる。双晶変形のシュミット因子は 0.5 であるから、この場合 τ_{req} は約 1 MPa となる。このようにして、 τ_{mag} の最大値が τ_{req} より大きいことが確かめられる。他の温度においても、 τ_{mag} の最大値は τ_{req} より大きいことが確認でき、実際に、これらの温度において磁場によるバリエーション再配列が起きる。

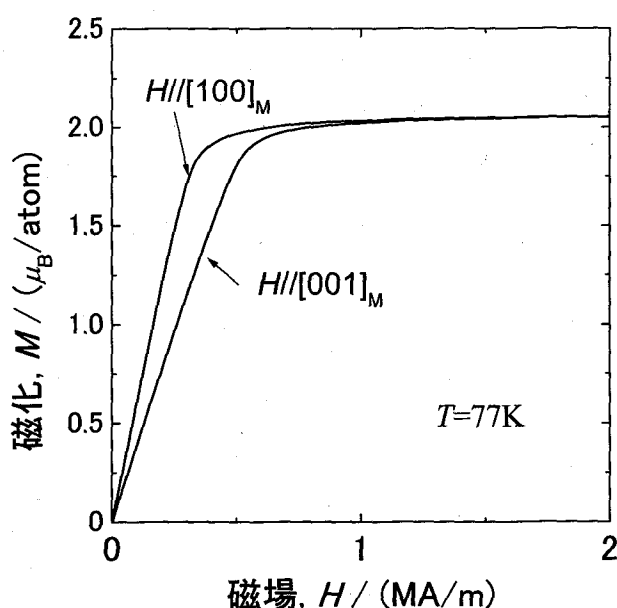


図4 Fe-31.2Pd 合金の77K における磁化困難軸方向 ($H//[001]_M$) ならびに磁化容易軸方向 ($H//[100]_M$) の磁化曲線。

5. おわりに

本稿で述べた強磁性形状記憶合金は、数 % という大きな磁場誘起歪と100Hz程度という応答性を併せもっており、新しいアクチュエータ材料の展開が期待される。しかしながら、発生できる応力 ($\tau_{\text{mag}} - \tau_{\text{req}}$) が数 MPa と小さいため、ソフトタッチな用途に向いている。 τ_{mag} を大きくするためには、 s を小さくするか $|Ku|$ を大きくする必要がある。

強磁性形状記憶合金の応用としては、磁場誘起歪だけでなく、歪を磁氣的に検出できるセンサーとしても期待することができる。試料に応力を負荷するとバリエーション再配列により歪が生じる。このバリエーション再配列にともない磁化困

難軸は磁化容易軸に変換されるため、帯磁率ならび透磁率が大きく変化する。これを利用すると、逆磁歪効果を利用した磁歪材料よりも感度の良い歪センサーの開発が期待できる。

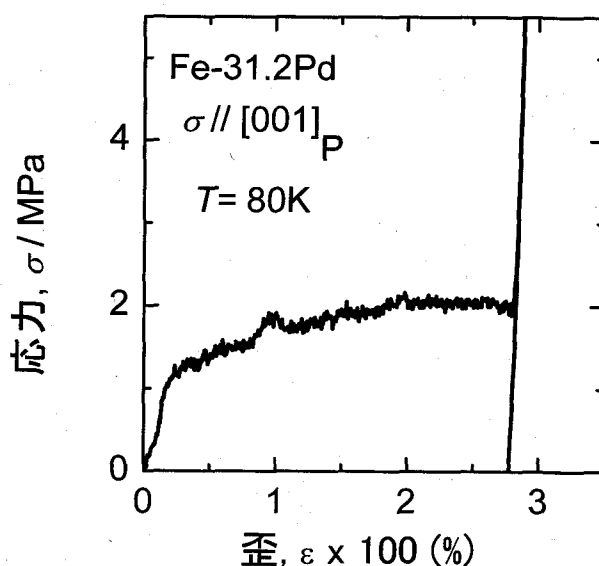


図5 Fe-31.2Pd 合金の80K における $[001]_P$ 方向の引張試験より求めた応力-歪曲線。

参考文献

- [1] A. E. Clark, J. P. Teter and O. D. McMaster: J. Appl. Phys., **63** (1988), 3910-3912.
- [2] K. Ullakko, J. K. Huang, C. Kantner, R. C. O'Handley and V. V. Kokorin: Appl. Phys. Lett., **69** (1996), 1966-1968.
- [3] R. D. James and M. Wutting: Phil. Mag., **A 77** (1998), 1273-1299.
- [4] T. Kakeshita, T. Takeuchi, T. Fukuda, M. Tsujiguchi, T. Saburi, R. Oshima and S. Muto, Appl. Phys. Lett., **77** (2000), 1502-1504.
- [5] 大嶋隆一郎: 日本金属学会報, **28** (1989), 493-502.
- [6] T. Sakamoto, T. Fukuda, T. Kakeshita, T. Takeuchi and K. Kishio: J. Appl. Phys., **93** (2003) 8647-8649.
- [7] N. Okamoto, T. Fukuda, T. Kakeshita, T. Takeuchi and K. Kishio: Sci. & Tech. Adv. Mater., **5** (2004), 29-34.