

連載講座

磁気測定基礎講座 II
磁気異方性と磁気ひずみLecture on Magnetic Measurement II
Magnet Anisotropy and Magnetostriction

松井正顯 名古屋大学工学研究科

M. Matsui, Graduate School of Engineering, Nagoya University

The instrumentations for the measurement of magnetic anisotropy and magnetostriction, and the methods for interpreting these measurements are described. Some data for these properties are shown.

Key words: magnetic anisotropy, magnetostriction, instrumentation, magnetic measurement

1. はじめに

磁気異方性と磁気ひずみ（磁歪）は磁性材料の技術磁化過程を支配する重要な因子である。それらのオリジンは主としてスピン軌道相互作用や双極子-双極子相互作用などであるが、どの原因にしても、磁気異方性と磁気ひずみは着目原子（またはイオン）とそのごく近傍の局所的環境に影響される構造敏感な性質であることは共通している。したがって、材料として使用されるような多元系の複雑な物質では理論計算でその絶対値を見積もることは非常に難しい。また、結晶の対称性や原子配列などといった物質本来の性質のほかに、材料の作製方法（溶解凝固、蒸着、スパッタリング、圧延、粉碎、焼結など）や熱処理方法（急冷、除冷、焼鈍、時効、磁場中冷却など）の影響を受けやすい。したがって、測定値の評価は主として現象論的に行われ、物質ごとの相対的な検討がなされる。

本稿では磁気異方性と磁気ひずみ（磁歪）の現象論を説明してから、それらの測定法について記述することにする。

2. 磁気異方性の現象論

結晶構造（近接原子対）やその対称性に依存する磁気異方性を結晶磁気異方性という。また、強磁性体と反強磁性体が接触する界面で発生する異方性を交換磁気異方性という。これらの異方性は物質本来の性質に起因した異方性であるが、このほかに、材料の外形に依存する形状磁気異方性、熱処理とか圧延とかいった材料の作製過程において生じる誘導磁気異方性がある。これらの磁気異方性について少し説明する。

2.1 結晶磁気異方性

一般に結晶に付随する物性の異方性エネルギーは、方向余弦を $(\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3)$ として、

$$E_a = \sum c_i \alpha_i + \sum \sum c_{ij} \alpha_i \alpha_j + \sum \sum \sum c_{ijk} \alpha_i \alpha_j \alpha_k \quad (1)$$

と表すことができる。結晶磁気異方性エネルギーの場合は磁化ベクトルと結晶軸のなす角度に依存するので、磁化ベクトルの方向余弦を $(\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3)$ とすると、

$$E_{\text{anis}}(\theta, \phi) = K_0 + K_{ij} \alpha_i \alpha_j + K_{ijkl} \alpha_i \alpha_j \alpha_k \alpha_l \quad (2)$$

と書くことができる。ここで、 $i, j, k, l = 1, 2, 3$ であり、テンソルの縮和をとる。 K_{ij}, K_{ijkl} は磁気異方性定数である。(2) 式は、磁気異方性エネルギーの一般式であり結晶構造に依存しない。

次に、結晶構造が与えられると、(2) 式において、結晶の対称性を考慮すると、結晶磁気異方性エネルギー $E_K(\theta, \phi)$ が得られる。それを Table 1 にまとめる¹⁾。ここで、立方晶

Table 1 Crystalline magnetic anisotropy for various crystal structures

Crystal lattice	Magneto crystalline anisotropy energy
Cubic	$E_K = K_0 + K_1(\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2 + \alpha_3^2 \alpha_1^2) + K_2 \alpha_1^2 \alpha_2^2 \alpha_3^2$ $+ K_3(\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2 + \alpha_3^2 \alpha_1^2)$ $- K_0 + K_1 \sin^2 \theta$ $+ \left[\frac{1}{4}(K_1 + K_2) \sin^2 2\varphi - K_1 + K_3 \right] \sin^4 \theta$ $+ \left[-2K_3 + \frac{K_2}{2} \sin^2 2\varphi - \frac{K_2}{4} \sin^2 2\varphi \right] \sin^6 \theta$ $+ \left[K_3 + \frac{K_2}{16} \sin^4 2\varphi - \frac{K_2}{2} \sin^2 2\varphi \right] \sin^8 \theta$
Hexagonal	$E_K = K_0 + K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta + K_3 \sin^6 \theta$ $+ K_4 \sin^6 \theta \cos 6\varphi$
Trigonal	$E_K = K_0 + K_1 \sin^2 \theta + K_2^1 \sin^3 \theta \cos \theta \cos 3\varphi$ $+ K_3 \sin^4 \theta + K_4^1 \sin^5 \theta \cos \theta \cos 6\varphi$ $+ K_5^1 \sin^3 \theta \cos^3 \theta \cos 3\varphi$
Tetragonal	$E_K = K_0 + K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta + K_3 \sin^4 \theta \cos^2 \varphi \sin^2 \varphi$
Orthorhombic	$E_K = K_0 + \sin^2 \theta (K_1 \cos^2 \varphi + K_2 \sin^2 \varphi)$ $+ \sin^4 \theta (K_3 \cos^4 \varphi + K_4 \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi + K_5 \sin^4 \varphi)$ $+ \sin^2 \theta \cos^2 \theta (K_6 \cos^2 \varphi + K_7 \sin^2 \varphi)$

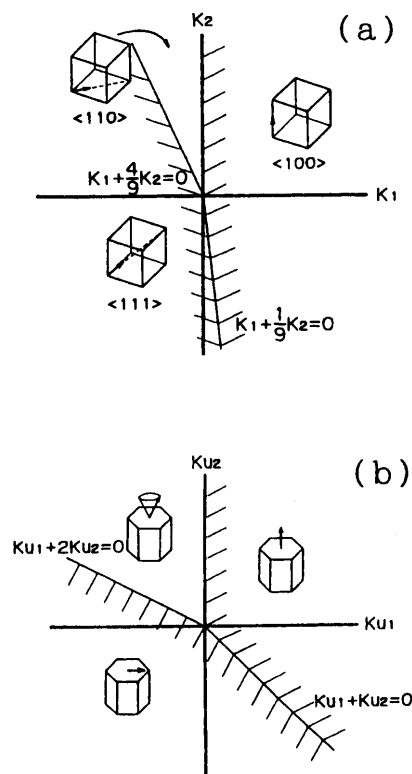


Fig. 1 Illustration of a relation between the first and the second crystalline anisotropy constants and the easy axis for cubic crystal (a) and for hexagonal crystal (b).

の異方性定数を K_1 と K_2 とし、Co のような六方晶の異方性定数を K_{u1} と K_{u2} とすると、磁化容易軸との関係は Fig. 1 のようになる。

次に、磁気異方性を考える上で大変重要な異方性磁場について説明しておくことにする。

磁化容易軸というのは、あたかもその方向に磁場があって磁気モーメントをその方向に引きつけていると考えることもできる。異方性磁場はそのような仮想的な磁場として定義される。すなわち、容易軸からの角度 θ_0 方向の異方性磁場を H_k とすると、

$$H_k = \frac{1}{M_s} \left(\frac{\partial^2 E_K}{\partial \theta^2} \right)_{\theta=\theta_0} \quad (3)$$

で与えられる.

例えば、 c 軸を容易軸とする一軸異方性の場合は、 $E_K = K_{u1} \sin^2 \theta + K_{u2} \sin^4 \theta$ として、異方性磁場を計算すると、

$$\begin{aligned} c \text{ 軸方向: } & \frac{2K_{u1}}{M_s}, \\ c \text{ 面方向: } & -\frac{2}{M_s}(K_{u1}+2K_{u2}), \\ \theta_0=30^\circ \text{ 方向: } & \frac{1}{M_s}(K_{u1}+2K_{u2}) \end{aligned} \quad (4)$$

のようになる。(3)式は覚えておくと便利である。

2.2 交換異方性

交換異方性は強磁性体と反強磁性体が界面で接触しているときに現れ、一方向にのみ容易軸をもつ異方性である。例えば Co を空气中で酸化させると、酸化物の CoO が表面にできる。CoO は反強磁性であるので強磁性の Co と整合性を保ち接触していることになる。その磁気ヒステレシス曲線は、原点が磁場のマイナス方向にずれた形になり、土の磁場に対する保磁力が異なる結果になる²⁾。この効果は磁場中冷却を行うと顕著になる。この原因は界面における反強磁性交換相互作用の存在である。磁場を磁場中冷却の磁場と同じ方向にかけたときは磁化するのが速いが、逆の方向にかけたときは強磁性相内部のモーメントがすぐに磁場の方向に向くのにに対して反強磁性相との界面付近の強磁性モーメントは隣の反強磁性相からの反強磁性交換相互作用を受けて、磁場方向に向きにくくなるために、ヒステレシス曲線の中心が原点からずれ、片方の磁場方向にのみ保磁力の大きい材料ができる。交換異方性は一方向異方性とも呼ばれ、 360° の回転で元にもどる 1 回対称である。

したがって、交換異方性の異方性エネルギーは、Table 1 にはない式になり、

$$E_{\text{exan}} = K_d \cos \theta \quad (5)$$

で表される, K_d は一方向異方性定数である.

最近、薄膜・多層膜で GMR に関連した研究が盛んだが、弱磁場での GMR 変化率が著しく大きくなるスピントラニクス素子が開発されたが^{3), 4)}、それはこの一方向異方性を利用したもので、この性質の本格的な応用はこれが初めてである。また、一方向異方性と同じ考え方で反強磁性相互作用を応用した新しい永久磁石として交換スプリング磁石のアイデアがある^{5), 6)}。

2.3 形状異方性

磁性材料を使うときには必ず反磁場が問題となる。形状異方性はこの反磁場による静磁エネルギーの寄与によるものであり、一軸異方性である。反磁場の計算は文献 7 に詳述されている。

最近、強磁場による材料の組織制御が話題となっているが、ここで、強磁性マトリックス中に針状の強磁性粒子が析出するような場合の形状異方性について論じておくことにする。そのような場合の一軸異方性定数 K_u は次式で表される^{8), 21)}

$$K_{\perp} = (N_{\perp} - N_{\parallel}) \Delta M_s^2 (1 - \beta) \beta / 2\mu_0 \quad (6)$$

$$\Delta M_s = M_{s, M} - M_{s, G} \quad (7)$$

$M_{\text{s, M}}$ と $M_{\text{s, G}}$ は、それぞれマトリックスと析出粒子の飽和磁化であり、形状異方性にはそれらの飽和磁化の差が寄与する。 β は粒子の体積分率である。また $N_{\perp}$ と $N_{\parallel}$ はそれぞれ粒子の長軸方向に対する垂直と平行の反磁場係数である。

2.4 誘導磁気異方性

上述の異方性以外で重要な異方性に誘導磁気異方性がある

る。溶解、析出とか凝固、蒸着、熱処理や圧延などの加工のために生ずる異方性である。時効処理によって析出した粒子が針状であれば、その形状異方性によるもの、圧延によって加工硬化したときは残留応力とかすべりによる原子の再配列にかかわる異方性、蒸着膜などでは基板との熱膨張の差によって生ずるひずみとか残留応力によって生ずる逆磁歪効果にかかわる異方性などを総称して誘導磁気異方性といい一軸異方性を示す。すなわち、試料の作製プロセスに依存して生ずる異方性であり、前節に説明した各異方性や次章の磁歪の逆効果による異方性がオリジンとなっている。

3. 磁気異方性の測定と解析法

磁気異方性の測定は、主として磁気トルクの測定によるが、その他に、単結晶の磁化曲線から求める方法、飽和漸近則から見積もる方法などがある。また、強磁性共鳴吸収の測定からもかなりの精度で異方性定数を見積もることができる。

3.1 トルク測定法

磁気異方性の測定で、最もオーソドックスで正確な方法はトルク測定である。

一般に磁気トルク T は、 $T = -(\partial E_K / \partial \theta)$ で表される。その測定にはトルク磁力計を使うのが一般的である。ここで、装置の一例を Fig. 2 に示す。測定原理は次のようになっている。

試料に働くトルクは支持棒を介して、最上部の弾性細線（リン青銅やタングステン線など）に伝達され、細線が捻れる。このとき支持棒の上部に取り付けられたミラーが回転し、その回転角をフォトリッジで検出する。シグナルは、フィードバック回路で増幅されて、試料の回転を元に戻す

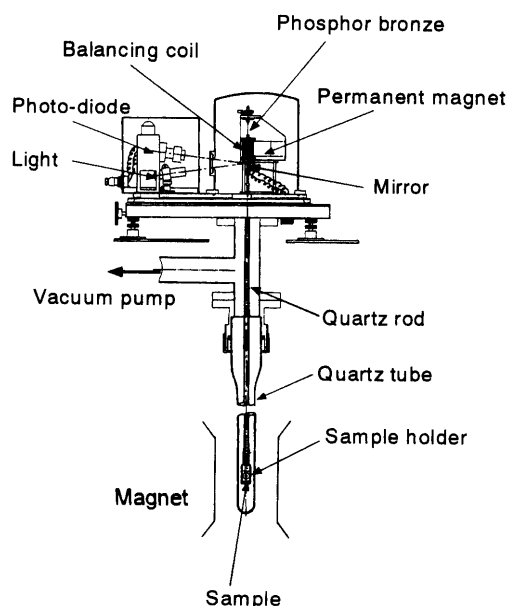


Fig. 2 Illustration of a torque magnetometer.

ために必要なバランシングコイルへ流す電流値としてトルクが検出されるのである。この精度を向上させるための工夫も多くなされている^{9)~11)}。

なお、精度良い実験を行うための測定上の注意事項として次のようなことが挙げられる。トルク測定では試料をあらかじめ球状または円板状に精度良く成形しておき、電磁石の回転は良い精度で水平である必要がある。また、試料位置がポールピースの中心に来るように注意を払う必要がある。そして、トルク測定を正確に行うためにはトルクの振幅が飽和するに十分な高磁場を印加する必要がある¹¹⁾。

次に、トルク計の校正には、標準試料として入手しやすいニッケル細線の形状異方性を用いる方法と、標準コイルを使用する方法が最もオーソドックスである¹¹⁾。ほかに慣性率を使って校正する方法もある¹²⁾。

まず、ニッケル細線のトルクは、形状異方性から、

$$T = \frac{1}{2\mu_0} (N_{\perp} - N_{\parallel}) M_s^2 v \sin 2\theta \quad (8)$$

で表される。ここで、 $N_{\parallel}$ と $N_{\perp}$ はそれぞれ細線の長軸方向とそれに直角方向の反磁場係数である。 M_s と v はニッケルの飽和磁化と細線の体積である。ニッケルが細線であれば、 $N_{\parallel} \approx 0$, $N_{\perp} \approx 1/2$ と考えてよい。また、細線は測定中に変形することのないように注意する必要がある。

標準コイルを使う場合は、コイルの巻き数を N 、断面積を S 、コイルに流す電流を i 、コイルの磁場と電磁石の磁場のなす角度を θ とすると、トルクは、

$$T = -\mu_0 N I S H \sin \theta \quad (9)$$

で表される。ここで、コイルは電磁石の磁場の均一性を考えると直径 1 cm 程度以下がよい。また、多層巻きにすると誤差が生ずるので数ターンの一層巻きがよい。

3.2 トルク曲線の解析法

トルク曲線の解析では得られた曲線をフーリエ級数に展開してその係数を決定する。解析法は多くの解説^{11)~13)}があるので詳細はそちらを参照していただくことにして、ここでは簡潔に述べることにする。まず、Fig. 3 にトルク曲線の例を示す。このように測定されたトルク曲線を

$$L = L_0 + L_2 \sin 2(\theta - \theta_2) + L_4 \sin 4(\theta - \theta_4) + L_6 \sin 6(\theta - \theta_6) \quad (10)$$

とおき、トルクのデータ点を最小自乗法でフィッティングして、 L_j と θ_j を決定する。例えば、立方晶の (110) 面内の場合、Table 1 の磁気異方性エネルギーを使って、トルクは、 θ_0 を原点として、

$$L = -\frac{\partial E_K}{\partial \theta} = -\frac{1}{64} [(16K_1 + K_2) \sin 2(\theta - \theta_0) + (24K_1 + 4K_2) \sin 4(\theta - \theta_0) - 3K_2 \sin (\theta - \theta_0)] \quad (11)$$

であるので、(10) 式の各成分の係数を比較して、 K_j を決定できる。Fig. 3 にはそのようにしてフィッティングした曲線も示してある。

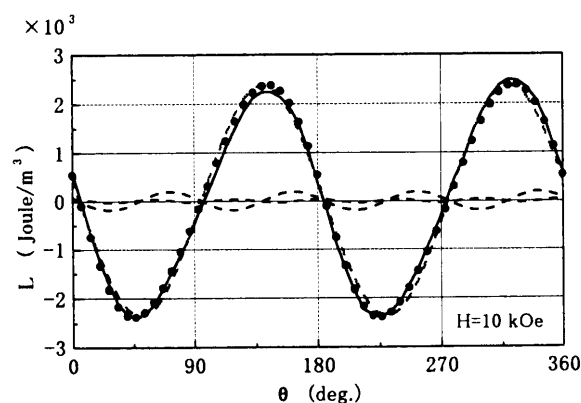


Fig. 3 Torque curve for a carbon steel. Points are experimental data and dotted lines are Fourier components analyzed. A full line shows the fitted curve as a total of the components.

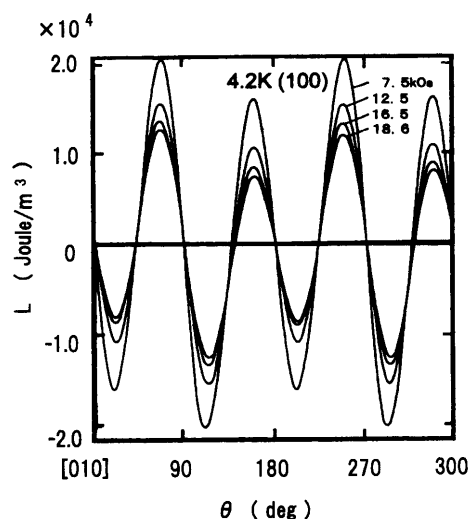


Fig. 4 Torque curves of an Fe-30%Pd alloy for various magnetic fields at 4.2 K.¹⁴⁾

次に、特殊な例を紹介する。すなわち、試料中に x, y, z 軸をそれぞれ容易軸とする一軸異方性をもつドメインが非一様に分布して混在しているような場合の解析法について説明する。Fig. 4 にそのようなトルク曲線の例を示す。この結晶は低温で fcc から fct へ変態し、変態後の fct 構造では、その c 軸が fcc の x, y, z の 3 方向のいずれかに向いたドメイン構造となっているとみられる^{14), 15)}。この図で特徴的なのは、各ドメインは一軸異方性をもっているにもかかわらず、トルク曲線は 4 回対称成分が支配的で、かつ、高磁場側でトルクの振幅が磁場とともに減少することである。その磁場依存性は Fig. 5 のようになる。ここで、 x, y, z のドメインが等量あるとすると、トルクは

$$T = -\frac{2}{3} \left[\frac{K_{u2}}{2} + \frac{(K_{u1} + K_{u2})}{M_s H} \right] \sin 4\theta \quad (12)$$

と表すことができる。このような場合には (12) 式のように見かけ上の 4 回対称成分のみが得られることが面白い。そ

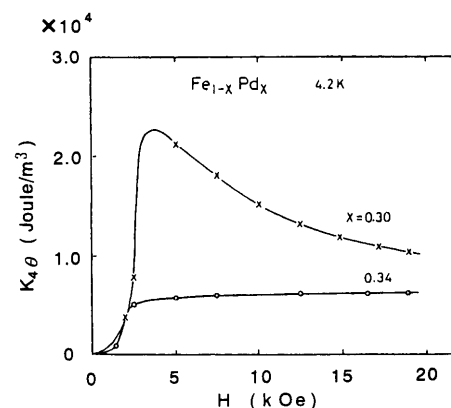


Fig. 5 Four fold component of the torque curve shown in Fig. 4 as a function of magnetic field.¹⁴⁾

して、トルク曲線の 4 回対称成分の振幅は H に逆比例し、その傾きと切片から K_{u1} と K_{u2} を見積もることができる。なお、文献 16 でも同様なことが指摘されている。そこでは、トルク測定において印加磁場が不十分な場合の取り扱いとして、高次の補正項を考慮した詳細な考察がなされ、(12) 式の [] の前の係数値が $4/3$ になるとしている。

3.3 磁気共鳴吸収による測定

強磁性共鳴吸収を使っても磁気異方性を測定できる¹¹⁾。磁化 M に磁場がかかると磁場 H の方向を軸とした歳差運動を起こす。ジャイロ磁気比を γ とすると、 $d\mathbf{M}/dt = -\gamma \mathbf{M} \times \mathbf{H}$ の関係がある。これから、歳差運動の角周波数を ω とすると、 $\omega = \gamma H$ の関係が得られる。外部から ω のマイクロ波をあてて H を変えていくと、この式を満足する磁場でマイクロ波が歳差運動と共鳴しマイクロ波の吸収が起こる。これが強磁性共鳴吸収である。異方性磁場の方向に外部磁場をかけたときは共鳴吸収磁場は異方性磁場の分だけ低い外部磁場で吸収が起こる。したがって、例えば、容易軸方向と困難軸方向でそれぞれ共鳴磁場を観測すると、その差 ΔH は容易軸と困難軸の異方性磁場の差に相当することになる。(4) 式を使うと、

$$\Delta H = \frac{4}{M_s} (K_{u1} + K_{u2}) \quad (13)$$

のようになる。このようにして異方性定数を評価できる。

3.4 磁化曲線による磁気異方性の求め方

試料が一軸異方性を示すような場合は、次のようにして単結晶の磁化曲線から異方性定数を見積もることができる。

一軸異方性定数を K_u とし、容易軸方向から θ_0 の方向に磁場を印加し、磁気モーメントと磁場のなす角度を θ とすると、回転磁化範囲において全エネルギー E は、

$$E = K_u \sin^2(\theta_0 - \theta) - H M_s \cos \theta \quad (14)$$

で表される。ここで、エネルギーの最小値をとると、困難軸方向 ($\theta_0 = \pi/2$) の磁化 $M (=M_s \cos \theta)$ は、

$$M = \frac{M_s^2}{2K_u} H \quad (15)$$

のように表され、磁化曲線が直線的になる。したがって、困難軸方向に磁場を印加して、磁化が飽和する磁場（異方性磁場 H_k に相当）までの磁化曲線の下側の面積（ $1/2 M_s H_{k/2}$ ）から K_u が得られる。

永久磁石のように磁気異方性が非常に大きくて、通常の電磁石ではトルクの振幅が飽和できないときには、文献 11 や 16 に説明されているように、トルク曲線の補正を行って解析することができるが、それに対して、(15) 式を応用しても異方性定数を見積もることができる。つまり、まず、容易軸方向の磁化曲線を測定し飽和磁化 M_s を求めておき、次に困難軸方向に磁場をかけて、ある磁場以上で直線的な可逆磁化曲線となることを確認できたら、それを直線的に強磁場側に外挿して、飽和磁化との交点として H_k を求めれば、(15) 式から異方性定数を見積もることができる。

3.5 飽和漸近則による異方性定数の評価

どのような強磁性体も無限大の磁場を印加すれば磁化は飽和する。磁化曲線の高磁場側の可逆磁化過程の範囲では、磁化は磁気モーメントの回転によって飽和値に漸近する¹⁶⁾。すなわち、

$$M = M_s \left(1 - \frac{b}{H^2} - \dots \right) \quad (16)$$

と表される。ここで、立方晶の多結晶試料であれば、 $\text{grad } E_k = 0.39 K_1$ である。したがって、測定された磁化 M と $1/H^2$ をプロットしてその傾きより異方性定数が得られることになる。しかし、実際には、転位や不純物の存在があって(16)式には、 $(-a/H)$ の項が加わり、さらに高磁場磁化率の寄与の $\chi_0 H$ の項が加わるので、

$$\frac{dM}{dH} \approx M_s \left(\frac{a}{H^2} + \frac{2b}{H^3} \right) + \chi_0 \quad (17)$$

として、 dM/dH と $1/H^3$ プロットするのが良いとされる¹⁶⁾。また、 H が非常に大きくなると(17)式の第1項が大きくなっていくので、非常に強い磁場では使えない。しかし、この方法は多結晶の磁気異方性を大雑把に見積もることができるという点で有用であろう。

3.6 磁性薄膜のトルク測定

磁性薄膜は磁性層が薄いので、高感度のトルク磁力計で測定し、解析法も工夫する必要があるが、これまでに種々の方法が提案されている^{17)~19)}。ここでは、その中の一つの Miyajima らの測定・解析法¹⁸⁾を紹介する。

Fig. 6 のように磁場を膜面から α の角度にかけると磁化は膜面内から立ち上がる。その角度を図のように θ とする。このときの磁気エネルギー E とトルク T は、異方性定数を K として、

$$E = -M_s V H \cos \theta + K V \sin^2 (\alpha - \theta) \quad (18)$$

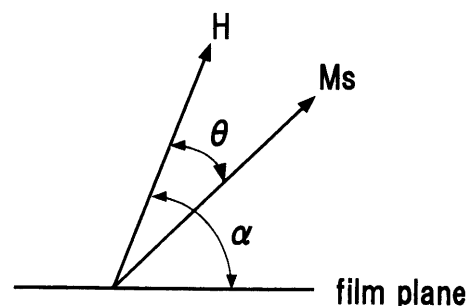


Fig. 6 Relation between the magnetic field and the magnetic moment out of the film plane for Eq. (18).

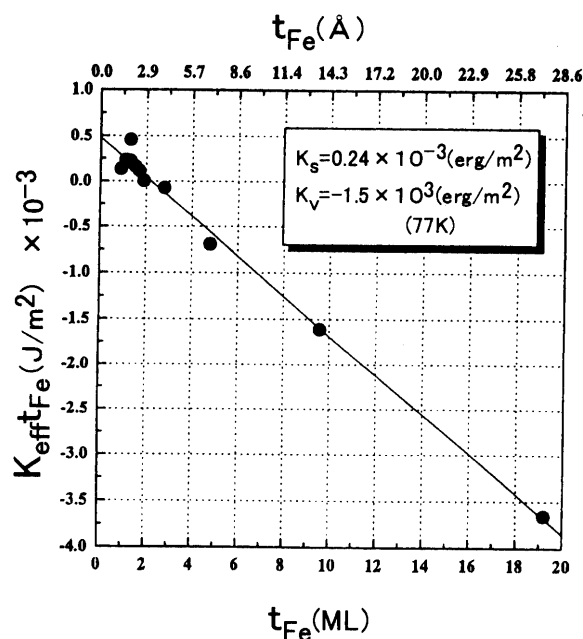


Fig. 7 $K_{eff} t_{Fe}$ as a function of Fe thickness of [Fe/Au] multiplayer. The surface anisotropy energy K_s is estimated by the plot according to Eq. (21).

$$T = M_s V H \sin \theta \quad (19)$$

である。ここで、 V は薄膜の体積である。エネルギー E の極小条件と(19)式から、 $\alpha = \pi/4$ として、

$$\left(\frac{T}{H} \right)^2 = - \left(\frac{M_s^2 V}{2K} \right) T + \frac{1}{2} (M_s V)^2 \quad (20)$$

が得られるので、磁場を $\alpha = \pi/4$ に固定し、 T の磁場依存性を測定し、 T/H と T をプロットすれば、 K を見積もることができる。なお、 K は反磁場による形状異方性と垂直磁気異方性の差である。

3.7 磁化曲線から評価する薄膜の表面磁気異方性

磁性薄膜では磁性層の厚さが薄くなると垂直磁気異方性が現れる。これは、バルクの異方性エネルギーに対して表面エネルギーの寄与が大きくなるときに現れると考えられるので、

$$K_{\text{eff}} = \frac{2K_s}{t_F} + K_v \quad (21)$$

で表すことができる²⁰⁾。 K_{eff} , K_s , K_v はそれぞれ、有効異方性定数、異方性定数への表面のからの寄与で単位表面積あたりの異方性定数、磁性層の単位体積当たりの異方性定数である。第1項の係数2は磁性層の表面が上下にあるからである。また、 t_F は磁性層の厚さである。ここで、 K_{eff} は膜面内と垂直方向の磁化曲線の差から見積もられる。例えば、Fig. 7に示すように、 $K_{\text{eff}} t_F$ と t_F をプロットすると直線になり、薄いところで K_s が正になり、垂直磁気異方性が現れることがわかる。

4. 磁気ひずみ (磁歪) の現象論

一般に強磁性体を磁化すると磁化方向に変形することを磁気ひずみ (磁歪) といい、逆に弾性的に伸ばすと伸びた方向あるいはそれと直角方向に磁化が生ずることを逆磁歪効果という。磁歪の原因はいろいろ考えられているが、体積変化を伴わない線磁歪 (方向性磁歪ともいう) は原子磁気モーメントを双極子と考えて、磁気双極子間の双極子-双極子相互作用とか四重極子相互作用などによって起こるモデルを第一に挙げるができる。その他のオリジンを含め詳細は文献を参照していただくことにして、ここでは磁歪の現象論とその測定法について述べる。なお、体積変化を伴う磁気ひずみには体積磁歪や強制磁歪があるがそれも紙面の都合で割愛する。

さて、原子磁気モーメント間の電磁気学的な相互作用エネルギーにおいて、結晶ひずみにかかわるエネルギー項を磁気弾性エネルギーといい、それと弾性エネルギーの和が極小になるように線磁歪 ($\Delta l/l$) の大きさが決まる。そして、現象論的には、ひずみテンソル e_{ij} と観測方向の方向余弦 $\beta_1, \beta_2, \beta_3$ を用いて、

$$\lambda = \frac{\Delta l}{l} = \sum_{j,k=1}^3 e_{jk} \beta_j \beta_k \quad (22)$$

と表される。

例えば、立方晶系の単結晶の線磁歪は、

$$\begin{aligned} \frac{\Delta l}{l} = & A_0 + A_1(\alpha_1^2 \beta_1^2 + \alpha_2^2 \beta_2^2 + \alpha_3^2 \beta_3^2) \\ & + A_2(\alpha_1 \alpha_2 \beta_1 \beta_2 + \alpha_2 \alpha_3 \beta_2 \beta_3 + \alpha_3 \alpha_1 \beta_3 \beta_1) \\ & + A_3(\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2 + \alpha_3^2 \alpha_1^2) \\ & + A_4(\alpha_1^4 \beta_1^2 + \alpha_2^4 \beta_2^2 + \alpha_3^4 \beta_3^2) \\ & + A_5(\alpha_1 \alpha_2 \alpha_3^2 \beta_1 \beta_2 + \alpha_2 \alpha_3 \alpha_1^2 \beta_2 \beta_3 + \alpha_3 \alpha_1 \alpha_2^2 \beta_3 \beta_1) \end{aligned} \quad (23)$$

である^{11), 21)}。ここで、 A_3, A_4, A_5 が小さければ、2定数表現式として

$$\begin{aligned} \frac{\Delta l}{l} = & \frac{3}{2} \lambda_{100} (\alpha_1^2 \beta_1^2 + \alpha_2^2 \beta_2^2 + \alpha_3^2 \beta_3^2 - \frac{1}{3}) \\ & + 3 \lambda_{111} (\alpha_1 \alpha_2 \beta_1 \beta_2 + \alpha_2 \alpha_3 \beta_2 \beta_3 + \alpha_3 \alpha_1 \beta_3 \beta_1) \end{aligned} \quad (24)$$

のように表すこともできる。 $(\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3)$ と $(\beta_1, \beta_2, \beta_3)$ はそ

れぞれ自発磁化とひずみの観測方向に関する方向余弦である。 λ_{100} と λ_{111} は磁歪定数であり、実験的には、それぞれ、[100]方向と[111]方向に磁場をかけたとき、その方向で観測したひずみと定義される。また、理論的には、磁歪の起源にもよるが、双極子-双極子相互作用の場合には、その相互作用係数や弾性率で表現できる量である。現象論的な表現式として(24)式がよく用いられる。例えば、(110)面内で、 $[1\bar{1}0]$ 方向でひずみを観測するときは、 θ を[001]方向からの角度として、

$$\frac{\Delta l}{l} = -\frac{1}{8} \lambda_{100}(1+3 \cos 2\theta) + \frac{3}{8} \lambda_{111}(1-\cos 2\theta) \quad (25)$$

となる。

多結晶であれば、(25)式の平均をとって、

$$\lambda_s = \frac{2}{5} \lambda_{100} + \frac{3}{5} \lambda_{111} \quad (26)$$

となり、観測方向と自発磁化のなす角度を θ として、

$$\frac{\Delta l}{l} = \frac{3}{2} \lambda_s \left(\cos^2 \theta - \frac{1}{3} \right) \quad (27)$$

で表される。

なお、試料に残留ひずみが存在している場合には、磁歪によって一軸異方性が生ずるので、スパッタリングや蒸着で薄膜を作製したり、熱処理や加工を施すと2.4で述べたように誘導磁気異方性が生ずる。その原因の多くは逆磁歪効果によるが、誘導磁気異方性については文献11と21にまとめてあるのでそちらを参照してほしい。

ここで、六方晶系の線磁歪を示しておく、

$$\begin{aligned} \frac{\Delta l}{l} = & \lambda_A [\alpha_1 \beta_1 + \alpha_2 \beta_2]^2 - (\alpha_1 \beta_1 + \alpha_2 \beta_2) \alpha_3 \beta_3 \\ & + \lambda_B [(1-\alpha_3^2)(1-\beta_3^2) - (\alpha_1 \beta_1 + \alpha_2 \beta_2)^2] \\ & + \lambda_C [(1-\alpha_3^2)\beta_3^2 - (\alpha_1 \beta_1 + \alpha_2 \beta_2) \alpha_3 \beta_3] \\ & + 4 \lambda_D (\alpha_1 \beta_1 + \alpha_2 \beta_2) \alpha_3 \beta_3 \end{aligned} \quad (28)$$

のようになる^{11), 21)}。

5. 磁歪測定法

線磁歪の測定はバルクではストレインゲージ法で測定することが多い。また、ひずみ量を静電容量の変化やインダクタンスの変化に変換して測定する方法がありストレインゲージ法より感度が良い。薄膜では光てこ法で測定することが多い。

5.1 ストレインゲージ法

ストレインゲージは金属線の伸び縮みで電気抵抗が変化することを利用してひずみを測定するもので、室温以下の測定では紙ゲージを用いる。使用されている金属線はアドバンス線やコンスタンタン線 (どちらもCu-Ni合金)、カルマ線 (Ni-Cr-Al-Fe合金) などがある。

ゲージ線の電気抵抗 R_g の変化率 $\Delta R_g / R_g$ は

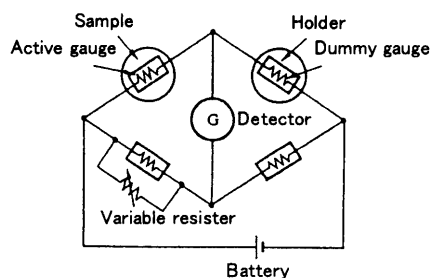


Fig. 8 Wheatstone bridge circuit for the measurement of magnetostriction by the strain gauge method.

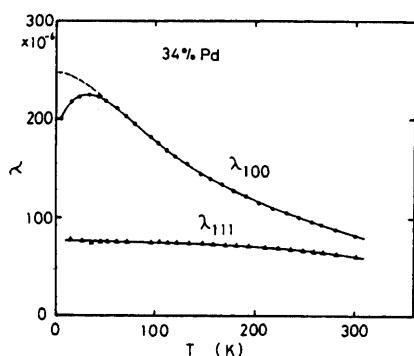


Fig. 9 Example of the measurement of magnetostriction constants as a function of temperature for Fe-Pd alloy.²⁴⁾ The strain gauge method is used for the measurement.

$$\frac{\Delta R_g}{R_g} = F \frac{\Delta l}{l} \quad (29)$$

のように表される。Fはゲージ率といい、金属線の場合は $F=1.8\sim 2.2$ である。また、金属線以外に半導体ゲージもあり、その場合は $F\approx 200$ である。

磁歪の温度変化の測定には、あらかじめゲージ率の温度変化を測定しておく必要がある。そのために工夫されたゲージ率測定法は文献 13, 23 に詳述されている。ストレインゲージは長さが 2~20 mm 程度まで作られており、通常は円板試料に接着剤で張り付けて使用する。接着面に空気が入り込まないように注意する必要がある。また、コンスタンタンのゲージ線は磁気抵抗効果が非常に大きいので注意が必要である²²⁾。

ストレインゲージ法の測定回路は Fig. 8 のように、4 枚のゲージを使い、ホイートストーンブリッジ回路を用いる。4 枚のうち、1 枚は銅円板にダミーゲージを張り付けて、試料のアクティブゲージと同じ環境になるように試料近傍に置く。試料とダミー以外の 2 枚のゲージは磁石から離しておく。まず可変抵抗器 R で回路のバランスを取っておき、磁歪によってアクティブゲージの電気抵抗が変化して生ずる非平衡電圧を測定すればよい。

回路の校正は次のように行う。可変抵抗器の抵抗を R とし、それを ΔR だけ変化させたとき、

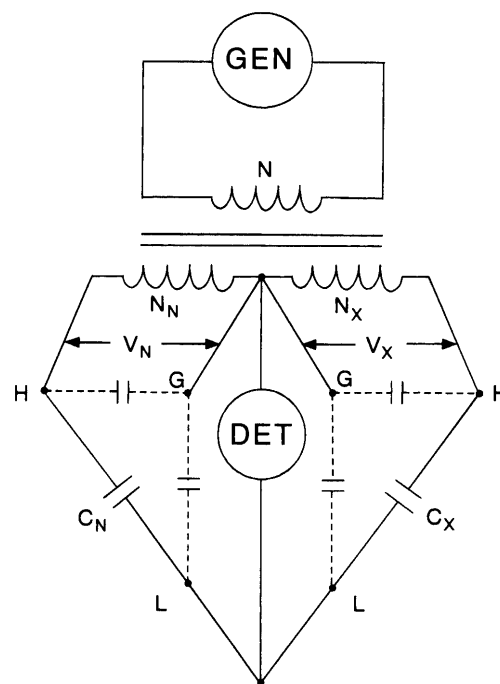


Fig. 10 Circuit used for the capacitance bridge method. C_X and C_N are condensers for the sample measured and standard (dummy) sample, respectively.

$$\frac{\Delta l}{l} = \frac{R_g \Delta R}{FR^2 \left(1 + \frac{R_g}{R} + \frac{\Delta R}{R} \right)} \quad (30)$$

の関係がある^{11), 13)}。したがって、磁歪によって回路のバランスがくずれ検出器 G に電流が流れれば、その電流が 0 になるまで R を変化させるという手順でこの式に従ってひずみを見積もるか、または R を変化させてひずみを (30) 式で見積もると同時に G の電圧変化を読みとっておいて校正してもよい。Fig. 9 に Fe-Pd 合金の測定例を示す²⁴⁾。この合金の低温構造変態の前駆現象らしい変化が極低温で観測されている。

5.2 三端子静電容量法

まず、キャパシタンスブリッジ法について紹介する。試料部分を数 pF の平行板コンデンサー C_X として作製し、それを Fig. 10 のようにダミーコンデンサー C_N とともに差動ブリッジ回路 (キャパシタンスブリッジ) を構成する。各コンデンサーは 3 端子容量セルの中に置き、そのセルはアースしてある。Fig. 10 の G はそのアース端子である。セルのケースのアースをとる方法が 3 端子容量法である。理想的な場合は、図のように H-G 間と L-G 間の静電容量は周囲の環境により変化するが、 C_X と C_N はセル内部の幾何学的配置によってのみ変化し、ブリッジ回路の平衡条件、

$$V_N C_N = V_X C_X \quad (31)$$

は周囲の影響は受けないことになる^{25), 26)}。この方法で、

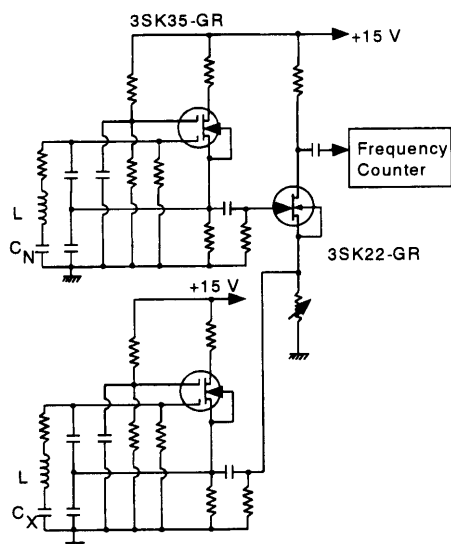


Fig. 11 Electric circuit of LC generator for measurement of magnetostriction. C_X and C_N are condensers for the sample measured and standard (dummy) sample, respectively.

10^{-5} pF 程度の感度は十分にあるといわれている。平板コンデンサの容量は数 pF であるので、 $\sim 10^{-6}$ 程度の変位まで測定可能となる。なお、試料のコンデンサ部分の作り方としては文献 25 で作製されたセルが良いと思われる。

しかし、磁歪の温度変化の測定では、セル内における試料周辺物質に熱膨張係数の差があると、試料の静電容量はその影響をあらかじめ受ける。そこで、磁場を一定にしておいて磁歪の温度変化を測定するとなると大きな誤差を伴うことになるので、温度一定のもとで磁歪の磁場変化を測定する方がよい。

このほかの微小変位測定法として、キャパシタンスブリッジ法と同様に数 pF の測定試料の平行板コンデンサを作製して、それを LC 発振回路に組み入れて、その発振周波数を周波数カウンターでカウントするという LC 発振回路法がある。L の大きさにもよるが、コンデンサが数 pF ならば約 100 MHz の高周波発振器となる。この方法は高感度であるが、わずかな周囲の環境変化が周波数変化に影響するので周波数が不安定になり測定精度が落ちる。そこで、試料コンデンサのほかに、キャパシタンスブリッジと同様に Cu のような非磁性体でダミーコンデンサをもう一つ作製して、発振回路を二つとし、その周波数差を周波数カウンターでカウントするようにすると周囲環境の影響が小さくなると同時に感度が上がる。Fig. 11 にその発振回路の例を示す。図中、 C_X と C_N がそれぞれ測定試料と標準試料のコンデンサである。筆者の経験では、この方法が最も感度の良い測定法と考えられる。しかし、発振振幅の調整が難しいことやノイズを小さくするために発振回路そのものを試料コンデンサの直近におく必

要があることなど技術的な問題点が多い。

5.3 光てこ法とその他の測定法

薄膜の磁歪はもっぱら光てこ法で測定される。基板に蒸着された薄膜試料をそのまま片持ち梁のように固定しておく。磁場をかけて薄膜がひずむと、それによって基板がわずかにたわむので、自由端付近に当たった光の反射光のずれを検出すれば磁歪が測定できる。

試料の面内方向に磁場をかけたときのひずみを $\lambda_{\parallel}$ 、面に直角方向にかけたときの歪みを $\lambda_{\perp}$ とすると、

$$\lambda_{\parallel} = \frac{X_{\parallel} t^2}{6lLd} \cdot \frac{E_s(1+\nu_t)}{E_t(1-\nu_s)} \quad (32)$$

$$\lambda_{\perp} = \frac{X_{\perp} t^2}{6lLd} \cdot \frac{E_s(1+\nu_t)}{E_t(1-\nu_s)} \quad (33)$$

で表される²⁷⁾。ここで、 $X_{\parallel}$ と $X_{\perp}$ はそれぞれ膜面に平行方向と垂直方向に磁場をかけたときの反射光の変位、 l は薄膜と光検出素子の距離、 d と L はそれぞれ膜の厚さと長さ、 t は基板の厚さ、 E_t と E_s はそれぞれ基板と膜のヤング率、 ν_t と ν_s はそれぞれ基板と膜のポアソン比である。

ここで、 $l=20$ cm、 $d=10^{-5}$ cm、 $L=1$ cm、 $t=0.1$ cm とし、(32) 式の右辺のヤング率とポアソン比の部分をおおむね 0.1 と仮定すると、 $\lambda \approx 10^{-5}$ 程度の変位を測定するには、 $X \approx 10^{-5}$ cm 程度の感度が必要となる。この方法で最も大切なのは、膜のひずみを基板のたわみとして測定するので基板と試料の密着度が完全であることを仮定していることに留意する必要がある。また、膜のヤング率やポアソン比はバルクの値を使用するしかないが、この点も注意が必要であろう。このほか、光てこ法で変位を検出するときに、光ファイバを使用する方法も提案されている²⁸⁾。また、磁場中の X 線回折によっても磁歪を比較的感度良く測定できる。

6. おわりに

磁気異方性と磁歪の測定法は古くから検討され、改良に改良を重ねられ、最近では感度・精度ともにずいぶんよくなった。この連載講座では、従来の確立された測定法と解析法について、しかも静的な性質についての説明したが、現在知られている測定原理による主な測定法を網羅したつもりである。しかし、科学と技術の発展と感度と精度の向上の競争では、常に後者が遅れる運命にある。最近では薄膜の研究者が増えているが、特にごく微量な試料や極めて局所的な部分の磁化、磁気異方性、磁歪などを正確に調べる必要に迫られている。おそらくその分野の専門家の中にはその辺の解説を期待された方も多いと思われる。そのような原子層オーダーの性質を知るほどの感度と精度の向上は測定原理そのものから見直す必要がある。それが今後の課題と思われる。

さて、この連載講座では会員からの質問を募集したが、磁気異方性と磁歪の測定に関して以下のような質問が寄せ

られたので、最後にその Q and A を記すことにする。

(1) 磁気異方性について

Q1. 各方法の長所および短所を教えてください。磁化の極端に小さいものや、磁気異方性の極端に大きなものなどの測定にはどのような方法が適当か？

A1. 本文ではこの質問に直接的には答えていないが、3.3～3.5 あたりに答えがあると思います。

Q2. 磁気異方性の測定は本来単結晶試料を用いるべきと思いますが、試料作製の困難さから実際には多結晶体の測定で代用しています。トルクメータなどで多結晶体の磁気異方性を測定する場合に、考えられる誤差の要因、最低限注意しなければならない点があれば教えてください。

A2. 多結晶体の磁気異方性といいますと、結晶磁気異方性以外の異方性でしょうか。そうしますと、小さな軸異方性の測定ということだと思います。その場合は、試料形状が旋盤加工程度の精度で等方的でなければなりません。また、試料の表面の凹凸や傷あるいは強磁性体のゴミが影響します。表面のどこかに小さなくぼみがあっても測定値に影響することがあります。

(2) 磁歪の測定について

Q1. 磁歪を測定する手法としてはどのようなものがあるのでしょうか（ひずみゲージ、静電容量、その他）。

A1. 本文を参照してください。

Q2. 微小領域の測定はどの程度まで可能でしょうか。

A2. ご質問は、どの程度の微小面積まで可能かという意味にとりましたが、微小面積の磁歪測定では光を使う方法が最も良いと思いますが、測定可能範囲はビーム径程度と思います。ただし、光をパルス的に当てるなどして実験的に工夫し、解析法も改良すればもっと狭い範囲まで測定可能でしょう。

Q3. 急冷薄帯など凸凹のあるサンプルの測定は正確に行えるのでしょうか。

A3. ストレインゲージ法では試料とゲージの完全な密着を、光てこ法であれば原点 ($H=0$) の正確な位置を確認できれば凹凸があっても問題ないと思います。

Q4. 「超磁歪」とはどの程度以上を指すのでしょうか。

A4. 超磁歪とは 0.1% 以上の巨大な磁歪量でしかも小さな印加磁場でそのような巨大な磁歪を生じる材料につけられた名前です²⁹⁾ので、単に磁歪何%以上ということにはなっていないようです。

Q5. 磁歪の温度依存性を測定したいのですが、その手法をお教え下さい。

A5. 室温以下の磁歪の温度変化については、ここで述べたどの方法でも測定可能ですが、ストレインゲージ法であればゲージ率の温度変化と磁気抵抗効果の小さいゲージ線のストレインゲージを使用することが必要です。また、磁気抵抗効果は温度変化しますのでその点に留意する必要があります。3 端子静電容量法であれば、試料とその周囲物質

の熱膨張係数の差に注意する必要があります。また、室温より高温の温度変化では高温用ストレインゲージが市販されています。

Q6. 磁歪を精度良く測定するにはどのような手法が有効であり、また、その検出限界はどの程度になるのでしょうか。

A6. ここで、紹介した方法で精度良く測定する方法は 3 端子容量法です。その限界のひずみ量は本文にも書きました。約 10^{-6} 程度と考えられます。

Q7. 交流で駆動している磁歪を測定する手法としてはどのようなものがあるのでしょうか。

A7. ストレインゲージ法によって測定することができます。その場合は、5.1 に書きましたように特に磁気抵抗効果の影響に注意が必要です。また、数十 kHz 以上の高周波用としては、レーザーのドップラー効果を利用した変位計などが市販されています。

Q8. 外部より応力を加えて材料をひずませた場合、磁化量の変化に伴い磁歪が発生するように磁化量が変化しているのでしょうか。

A8. 双極子間の相互作用理論で説明しますと、材料をひずませますと、原子間距離や原子対数が変化しますので、それに伴って相互作用エネルギーが増大します。エネルギーを下げるためにスピンの回転し磁化量に変化が起きます。逆磁歪効果です。

Q9. 一定磁界を回転させながら磁歪を測定しておりますが (X 軸: 回転角, Y 軸: ひずみ量)、得られるサインカーブの物理的な意味がわかりません。検出器が変位を捕らえる方向に磁界が印加される場合、変位は単純な磁歪量として理解できます。しかし、これと直角方向に磁界が印加された場合、材料のポアソン比で変形 (変位) した磁歪量を検出しているように考えられるため物理的な意味が明確ではありません。

A9. 磁場の回転角に対して磁歪量が正弦曲線または余弦曲線を描くのは、(27) 式が成り立つからです。磁歪には縦磁歪と横磁歪があることに関係しています。物理的には、双極子間の相互作用モデルで考えますと、その相互作用エネルギーは原子の配列方向とスピン方向の角度に依存しますので、磁場回転によって試料のスピン方向が変化して双極子間の相互作用エネルギーが増加しますと、それをスピン間距離の変化で下げようとするためにひずむからです。(27) 式で λ_s の符号で正弦曲線か余弦曲線かが決まります。

謝 辞 本稿を書くに当たり、日本応用磁気学会編集委員会委員の方々、および特に田口 仁氏 (TDK(株)) には貴重なコメントをいただきました。深く感謝いたします。

引用文献

- 1) R. F. Pearson: Experimental Magnetism 1, pp. 138-223. ed. by G. M. Kalvius and R. S. Tebble (John Wiley & Sons, 0000).
- 2) W. H. Meiklejohn and C. P. Bean: *Phys. Rev.*, **102**, 1413 (1956); *ibid.*, **105**, 904. (1957).
- 3) B. Dieny, V. S. Speriosu, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, D. R. Wilhoit, and D. Mauri: *Phys. Rev. B*, **43**, 1297 (1991).
- 4) B. Dieny: *J. Magn. Magn. Mat.*, **136**, 335 (1994).
- 5) E. F. Kneller and R. Hawig: *IEEE Trans. Magn.*, **27**, 3588 (1991).
- 6) V. Patel, M. El-Hilo, K. O'Grady, and R. W. Chantrell: *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **26**, 1453 (1993).
- 7) R. M. Bozorth: Ferromagnetism, p. 579 (IEEE Press, 1993).
- 8) 近角聰信: 強磁性体の物理 (下), p. 80 (裳華房, 1984).
- 9) R. F. Penoyer: *Rev. Sci. Instrum.*, **30**, 711 (1959).
- 10) A. A. Aldenkamp, C. P. Marks, and H. Zijstra: *Rev. Sci. Instrum.*, **31**, 544 (1960).
- 11) 川西健次, 近角聰信, 櫻井良文編集: 磁気工学ハンドブック (朝倉書店, 1998).
- 12) 脇山徳雄: 金属物理, **7**, 33 (1961).
- 13) 近角聰信責任編集: 磁気 (実験物理学講座 17) (共立出版, 1968).
- 14) 松井正顯, 安達健五: 豊田研究報告, 第 34 報告, p. 36 (1981).
- 15) M. Matsui, J. P. Kuag, T. Tatani, and K. Adachi: *J. Magn. Magn. Mat.*, **54-57**, 911 (1986).
- 16) 近角聰信: 強磁性体の物理 (下) p. 15 (裳華房, 1984).
- 17) F. B. Humphrey and A. R. Johnson: *Rev. Sci. Instrum.*, **34**, 348 (1963).
- 18) H. Miyajima, K. Sato, and T. Mizoguchi: *J. Appl. Phys.*, **47**, 4669 (1976).
- 19) T. Wielinga: *J. Appl. Phys.*, **50**, 4888 (1979).
- 20) H. J. G. Draaisma, W. J. M. de Jonge, and F. J. A. den Broeder: *J. Magn. Magn. Mat.*, **66**, 351 (1987).
- 21) 近角聰信, 太田恵三, 安達健五, 津屋 昇, 石川義和編集: 磁性体ハンドブック, p. 834 (朝倉書店, 1975).
- 22) 高木秀夫, 辻 俊郎: 金属物理, **3**, 111 (1975).
- 23) R. M. McClintock: *Rev. Sci. Instrum.*, **30**, 715 (1959).
- 24) M. Matsui and K. Adachi: *J. Magn. Magn. Mat.*, **31-34**, 115 (1983).
- 25) N. Tsuya, K. Ohmori, K. I. Arai, and T. Wakiyama: *Sci. Rep. RITU*, **B27** (1, 2), 1 (1975).
- 26) 葛西直子: *Bul. Electrotech. Lab.* (電気試験所彙報), **32** (12), 1157 (1968).
- 27) 高橋 研: 磁性薄膜の測定法, p. 67, 猪俣浩一郎編 (トリケップス, 1990).
- 28) 橋本俊一, 金子正彦, 早川正俊, 阿蘇興一: 第 11 回日本応用磁気学会学術講演概要集, p. 335 (1987).
- 29) 佐橋政司, 小林忠彦: 日本音響学会誌, **46**(7), 591 (1990).

(2000 年 5 月 12 日受理)



松井正顯 まつい まさあき

昭 46 3 月名古屋大学大学院工学研究科
博士課程修了, 昭 46 9 月東京大学物性研
究所助手, 昭 51 5 月名古屋大学工学部講
師, 昭 53 2 月同助教授, 昭 58 ~ 59
IBM ワトソン研究所客員研究員, 平 2 6
月名古屋大学工学部教授, 現在に至る
専門 磁気物性, 磁性材料 (工博)