

Ni-Cu 合金の臨界濃度付近における磁性

掛 下 知 行

§ 序 論

1. 歴史的背景

Ni-Cu 合金の磁性は, Ni が磁性を担い, Cu は非磁性原子として振舞うと見なされ, キュリー温度 T_c は, Cu の濃度とともに減少する。従って組成を変えることにより, $T_c \simeq 0\text{K}$ なる臨界濃度付近では, 温度と濃度の二つの面から, 強磁性から常磁性への移行が見られ, 臨界濃度付近の磁性研究にとって興味ある合金である。1936年頃から, バンド理論が金属・合金を扱うものとして提唱され, 特に Ni-Cu 合金は, この理論が適用できるものとして考えられて来た。しかし, 臨界濃度付近の物理量(磁化, 比熱, 電気抵抗)が精度よく測定されて来た結果, これまでのバンド理論での理解では極めて不十分となった。この合金の臨界濃度付近の諸現象に対して様々な説^{(1),(2),(3)}が出されているが, 統一的に説明し得る理解は, まだないのである。

2. 本実験の目的

これまでのこの合金系の物理学的研究において, 試料自体に対して十分検討をして議論を進めている研究は, ほとんどないのである。試料に検討が必要な理由は, 不完全な熱処理により, 冶金的な偏析等の問題があること, および全率固溶性にも疑問の余地があるからである。そこで第一に, 試料に十分な検討を加えることである。第二に, 臨界濃度付近の磁化の値を精度よく測定することである。第三に, 従来の解析は, 4.2 K のみの温度での測定に基づき, 理論式を展開するという近似で解析しているが, ここでは, 磁化曲線の温度変化を含めた, 全測定磁場における解析を試みることである。これらの検討をした上で, 臨界濃度付近における本質がどのようなになっているのかを考察する。

(1) C. G. Robbins, H. Claus and P. A. Beck, Phys. Rev. Lett. **22** ('69) 1307(2) F. M. Ryan, E. W. Pugh and R. Smoluchowski, Phys. Rev. **116** ('59) 1106(3) J. Inoue and M. Shimizu, J. Phys. Soc. Jap. **40** ('76) 1321

§ 本論（実験結果，考察）

試料は， $\text{Ni}_x\text{Cu}_{1-x}$ ($0.404 \leq x \leq 0.442$) である。磁化測定は，磁気天秤を使用し 4.2 ～ 20 K の温度範囲および 0.7 ～ 15 k Oe の磁場範囲で行なった。始めに $\text{Ni}_{0.426}\text{Cu}_{0.574}$ の試料で anneal の温度と時間を変えて各段階で磁化測定を行なった。(Fig. 1) この結果，1100℃ 72 hrs. と 950℃ 72 hrs. とでは，全測定磁場範囲で磁化の値が一致した。この測定後，450℃ 15 日間の熱処理をしたところ，全測定磁場範囲で磁化の値が，950℃ (1100℃) のそれと比べて 15 % 程の増加が見られた。この増加は，不純物混入あるいは，酸化などによる可能性があるので，再び 950℃ 72 hrs. の熱処理を行なったところ，前に測定した 950℃，1100℃ の磁化曲線とほぼ一致した。このことは，Ni-Cu 合金が全率固溶型でなく，むしろ析出の傾向にあることを示している。しかし 950℃ (1100℃) での状態については，それが完全な固溶状態にあるかどうかは充分明らかであるとは言いがたい。たとえばスピノーダル分解⁽⁴⁾の可能性も考慮せねばならないだろう。このことを考え合わせて，次に 950℃ 72 hrs. の熱処理をした試料 (x の異なる 7 種類) の磁化測定を精密に行なった。

(Fig. 2) 磁化曲線の特徴は次のようなものである。

(a) 700 Oe 以上でヒステリシスがない。(b) 大きく直線からはずれている。15 k Oe でも飽和の傾向が見られず，磁場とともに磁化が増加する。(c) いずれの濃度の合金の磁化曲線でも温度を上げると直線的になる。(d) 濃度とともに磁化が単調に増加する。

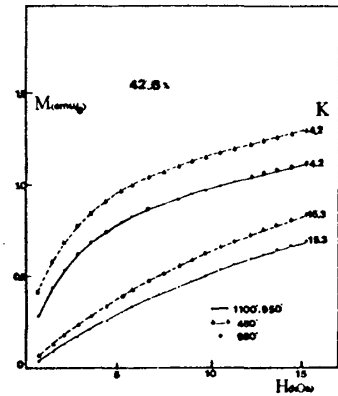


Fig. 1

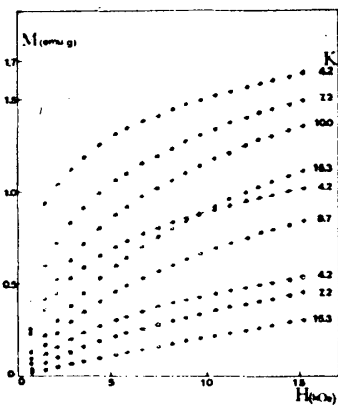


Fig. 2

(上 $\text{Ni}_{0.442}$ 中 $\text{Ni}_{0.422}$
下 $\text{Ni}_{0.404}$ の合金)

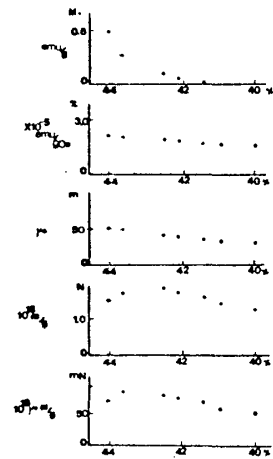


Fig. 3 (パラメーターと濃度)

(4) J. W. Cahn, J. Appl. Phys. 34 ('63) 3581

これらの磁化曲線に対して、実験結果と論文を参照し、次の二つの立場から解析を試みた。(i) スーパーパラ磁性として振舞う項とそれ以外の項の重ね合わせ。(ii) 全体あるいは大部分が単一の強磁性体であるという近似である。(i), (ii)の解析から現在のところ、臨界濃度付近の合金の磁化曲線は $M = (M_0) + xH + m \cdot N \cdot L\left(\frac{mH}{k_B T}\right)$ で表わされ、解析に用いたパラメーター (M_0 , x , m , N) の温度、濃度に対する振舞いから、(Fig.

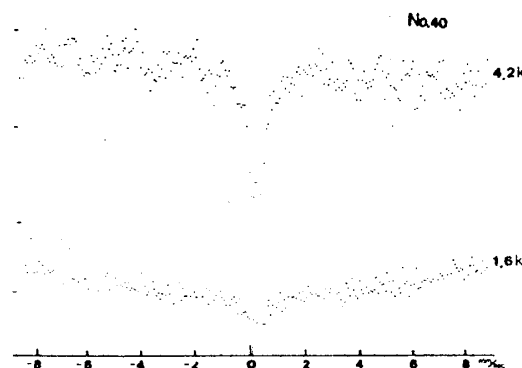


Fig. 4 ($\text{Ni}_{0.40}\text{Cu}_{0.597}\text{Fe}_{0.003}$)

3) この付近の磁性を統一的に考えるには、濃度の空間的なゆらぎがあると結論した。そのために試料は、フェロ的、スーパーパラ的、パラ的な様相を示す三つの部分からなり、これらは、温度濃度により割合を変えると推論した。また Ni-Cu 合金に ^{57}Fe をした試料の Mössbauer スペクトルの測定から、種々の仮定をした上で内部磁場分布を解析した結果、パラとフェロの部分からなる磁場分布であることがわかり、今の結論を支持するものであった。(Fig. 4)

§ 結 論

- ① 1100°C 72 hrs. 950°C 72 hrs. の熱処理は磁化測定には、同じ効果を与える。
- ② 450°C 15 日間の熱処理後の磁化測定から、Ni-Cu 合金は、析出の傾向にある。
- ③ 種々の解析から、臨界濃度付近の磁性は $M = (M_0) + xH + mNL$ で表わされ、パラメーターの考察から、濃度の空間的なゆらぎがある。

§ 今後の方向

濃度のゆらぎという観点から、電顕観察をすることあるいは、スピノーダル分解との関連から、Ni-Cu 合金に Si を入れて磁化測定をすること、および N. M. R. の実験を考えている。