

六方晶フェライトの磁気モーメントの温度依存性の解析

Estimation of the Temperature Dependence of the Magnetic Moments
of Hexagonal Ferrites

尾田 悦志¹⁾ 小林 義徳¹⁾ 井川 直樹²⁾

Etsushi ODA¹⁾ Yoshinori KOBAYASHI¹⁾ Naoki IGAWA²⁾

¹⁾日立金属磁材研 ²⁾原子力機構

8~300 K における六方晶 M 型マグネトプランバイト構造を有するフェライト $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_{12-x}\text{Co}_x\text{O}_{19}$ ($x=0, 0.20$)の粉末中性子回折パターンを Rietveld 解析し、5 種類ある各 Fe^{3+} サイトごとの磁気モーメントを求めることができた。

キーワード：粉末中性子回折，Rietveld 解析，Sr-La-Co 系 M 型フェライト，磁気モーメント

1. 目的

Sr-La-Co 系 M 型フェライトは六方晶マグネトプランバイト構造 (M 型) を有するフェライト (組成式： $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ ，空間群： $\text{P6}_3/\text{mmc}$) の Sr^{2+} の一部を La^{3+} で、 Fe^{3+} の一部を Co^{2+} で置換した組成であり、 $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ よりも高い結晶磁気異方性を有することから高性能フェライト磁石材料として実用化されている[1]。Sr-La-Co 系 M 型フェライトの磁気特性の向上は La^{3+} および Co^{2+} 置換により M 型の結晶・磁気構造が変化したことが原因と考えられる。これまでに Sr-La-Co 系 M 型フェライトの結晶・磁気構造に関する報告例はあるが[2,3]，2a，4e，4f₁，4f₂ および 12k の 5 種類の各 Fe^{3+} サイトごとの磁気モーメントをその温度依存性も含めて精密に解析した報告例はない。本研究では、粉末中性子回折により極低温から室温までの Sr-La-Co 系 M 型フェライトの各 Fe^{3+} サイトごとの磁気モーメントを求めることを目的とする。

2. 実験方法

測定試料は SrCO_3 ， $\text{La}(\text{OH})_3$ ， $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ ， Co_3O_4 粉末を $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_{12-x}\text{Co}_x\text{O}_{19}$ ($x=0, 0.20$) になるように秤量し、純水を溶媒とするボールミルで 4 h 混合した。得られた混合原料を乾燥後、1523 K で 20 h，大気中で仮焼成した後、遊星ボールミルで微粉碎した。得られた微粉碎粉を 1373 K で 3 h，大気中で熱処理したものを試料粉末として用いた。

中性子回折には JRR-3 の HRPD を用いた。Ge(331) のモノクロメータを用い、中性子の波長は 0.1824 nm，コリメータ条件は 12'-40'-sample-6' とした。測定 2θ は 2.50~162.40° で $\Delta 2\theta=0.05^\circ$ とした。試料ホルダーはバナジウム製の円筒 (直径 15 mm) を用いた。測定温度は 8, 50, 100, 150, 200, 250, 300 K とした。得られた回折データの Rietveld 解析には RIETAN-FP [4] を用い、Muller らが $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ について報告した結晶構造[5] を初期値として用いた。

3. 研究成果

Fig.1 に Rietveld 解析結果の一例として 8 K における $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_{12-x}\text{Co}_x\text{O}_{19}$ ($x=0$) の Rietveld 解析結果を示す。解析の結果は $R_{\text{wp}}=6.27\%$ ， $R_{\text{B}}=0.64\%$ ， $S=1.69$ と良好である。その他の測定温度および $x=0.2$ の組成に関しても同様の良好な解析結果が得られた。

Rietveld 解析の結果、8~300 K での各 Fe^{3+} サイトごとの磁気モーメントを求めることができた。Fig.2 に Rietveld 解析で求めた $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_{12-x}\text{Co}_x\text{O}_{19}$ ($x=0$) の各 Fe^{3+} サイトごとの磁気モーメントと 8 K の磁気モーメントとの比の温度依存性を示す。いずれの Fe^{3+} サイトの磁気モーメントも温度の上昇に伴って低下する傾向だが、12k サイトの磁気モーメントの低下量が特に大きい。同様の結果が $x=0.2$ の組成でも得られている。

4. 結論・考察

粉末中性子回折により、8~300 K での Sr-La-Co 系 M 型フェライトの各 Fe^{3+} サイトごとの磁気モーメントを求めることができたが、磁気モーメントの解析結果の確度と精度をさらに向上させるために、粉末試料の磁化を精密に測定して、Rietveld 解析に用いることが望ましい。この結果は今後の結晶全体の磁気モーメントおよび各 Fe^{3+} サイトごとの磁気異方性の評価に有用である。

5. 引用(参照)文献等

- [1] Y. Ogata, Y. Kubota, T. Takami, M. Tokunaga and T. Shinohara: IEEE Trans. Magn. 35(1999)3334-3336.
- [2] A. Morel, P. Tenaud , F. Kools and J.M. Le Breton: Proc. 9th Int. Conf. Ferrites (ICF9)339-346.
- [3] Y. Kobayashi, E. Oda, T. Nishiuchi and T. Nakagawa: J. Ceram. Soc. Jpn. 119(2011)285-290.
- [4] F. Izumi and K. Momma: Solid State Phenom. 130(2007)15-20.
- [5] J. Muller and A. Collomb: J. Magn. Magn. Mater. 103 (1992) 194-203.

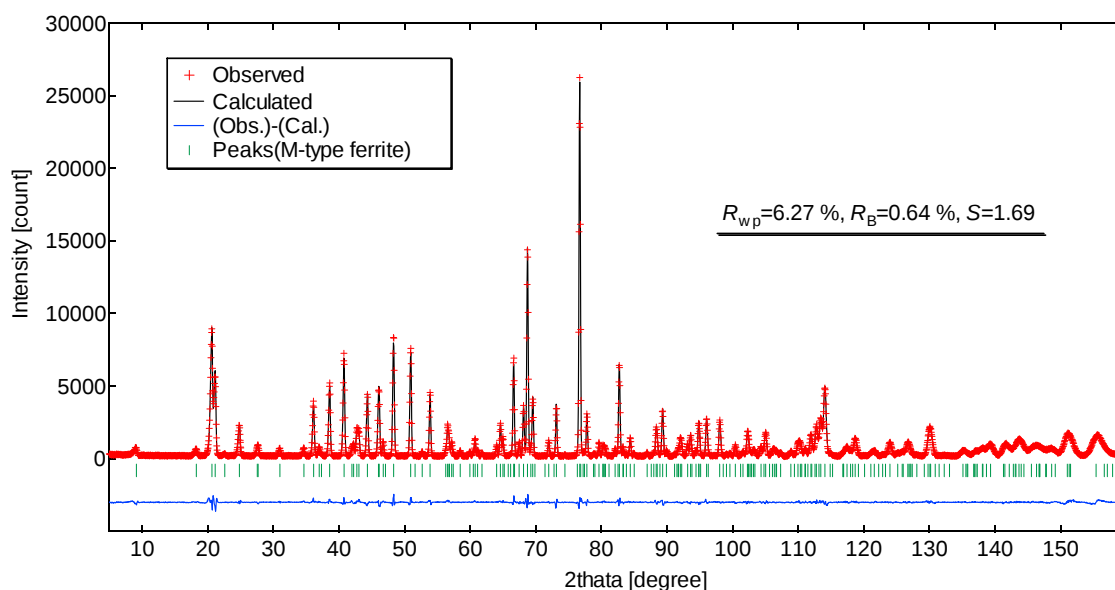


Fig.1 Typical result of Rietveld analysis of powder neutron diffraction pattern of $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_{12-x}\text{Co}_x\text{O}_{19}$ ($x=0$) obtained at 8 K.

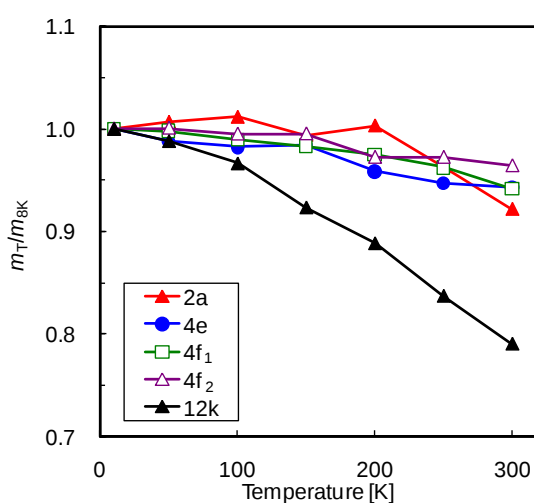


Fig.2 Thermal variation of the magnetic moments (m_T) of iron ions on five sublattices in $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_{12-x}\text{Co}_x\text{O}_{19}$ ($x=0$) relative to the magnetic moments at 8K (m_{8K}).