

中性子回折による磁性材料の磁気構造解析 - Co₂Z 型 Ba フェライト -

(阪大・工) 中川 貴、高田 幸生、山本 孝夫
 (住特金、阪大・工) 橋 武司
 (住特金) 島田 武司
 (京大・原子炉) 川野 眞治

【緒言】中性子回折には、核散乱による寄与と磁気散乱による寄与の両方が含まれるので、磁性材料の磁気構造を決定することができる。原子核による中性子散乱能は原子番号依存性を示さないで、Fe と Co のように原子番号が隣接する元素を含む材料でもその構造を決定することができる。しかし、複雑な構造を示す実用材料の解析に用いられることはあまりなかった。また、単結晶については数多くの報告があるが、粉末多結晶の解析例は少ない。その原因として、粉末中性子回折法には、原子の座標や占有サイト、磁気モーメントの大きさや向きなど非常に多くの情報が含まれてしまうことが挙げられる。これらの情報を丹念に引き出せば、磁性材料の特性を説明することができる。本発表では、非常に複雑な結晶構造を持つ Co₂Z 型 Ba フェライトの解析を例に挙げて、中性子回折と他の測定から得られた情報とを比較した結果について報告する。

【実験】BaCO₃(99.7%)、Co₃O₄(99.9%)、Fe₂O₃(99.5%)の粉末を金属比が 3:2:24 となるように秤量し、純水を加えた後、鉄製のボールミルで 24 時間混合した。この混合粉末を乾燥後大気中 1273K で仮焼成し、ペレットに成型し 1573K の酸素雰囲気中(101.3 kPa)で 16 時間本焼成した。得られた生成物の粉末 X 線回折(Cu-K α)から Co₂Z 型 Ba フェライト(Ba₃Co₂Fe₂₄O₄₁)の生成を確認した。また、日本原子力研究所の研究用原子炉 JRR-3M のビーム孔 T1-3 に設置している東北大学金属材料研究所の所有する HERMES を用いて粉末中性子回折を行った。中性子は Ge(331)面で 1.8207 Å に単色化し、測定試料位置で 12mm のビーム幅となるようにスリットを調整した。粉末試料を直径 10mm のバナジウム製円筒ホルダーに封入し、回折角 2 θ = 3.0~152.9° の範囲の粉末中性子回折プロファイルを得た。測定間隔は 0.1° で、一点あたりビーム孔に設置しているモニターで中性子数が 75 万カウントになるまで(およそ 487 秒)測定した。さらに、得られた Co₂Z 型 Ba フェライト粉末を 1T の回転磁場中で磁場配向し、本焼成と同条件で再焼成して得られた磁場配向試料の磁化を測定した。磁化は SQUID 磁化計を用いて配向試料の磁化容易方向と磁化困難方向に対して、それぞれ 300K で印加磁場 5 T までの範囲で測定した。

【結果と考察】得られた粉末中性子回折図と Rietveld 解析によって最適化されたプロファイルを下図に示す。図中の点で示したのが測定値で、ほぼ重なり合う線は最適化後のプロファイルで、その差分をその下に示している。測定値と最適化値がよく一致していることがわかる。グラフの一番下には中性子による核散乱のみの回折ピーク位置とその強度を示している。これと回折プロファイルを比較すると、高角度では回折位置・強度ともよく一致しているが、低角度(特に 20° 付近)で回折強度の一致しないピーク群が観測されている。これらが磁気散乱によるピークである。最適化の結果は磁気モーメントが c 軸に対して 83.2° 傾いることを示唆し、Co₂Z 型 Ba フェライトが plana 構造をしていることを裏付けている。また、回転磁場中で磁場配向した試料の磁化測定結果も、磁化容易方向が c 面方向で、磁化困難方向が c 軸であることを示し、中性子回折の解析結果とよく一致した。

【参考文献】(1)橋 武司 他、粉体および粉末冶金、49(2002)677、(2)橋 武司 他、粉体および粉末冶金、49(2002)129。

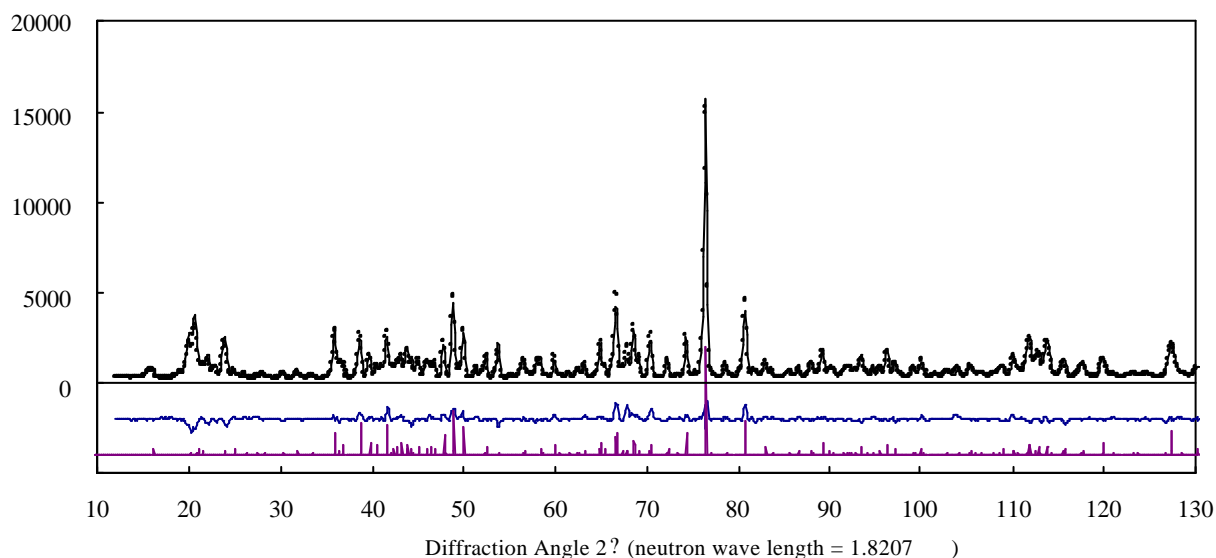


図 酸素中 (101.3 kPa) 1573K で 16 時間焼成した得られた Ba₃Co₂Fe₂₄O₄₁ の粉末中性子回折図と Rietveld 解析によって最適化したプロファイル