

FeRh の磁場誘起相転移に関する研究

Study of Magnetic-Field-Induced Phase Transition in FeRh

大武和樹¹, 小野寺礼尚¹, 三井好古¹, 高橋弘紀¹, 木村尚次郎¹, 渡辺和雄¹, 小山佳一²
¹ 東北大・金研, ² 鹿児島大・理工

K. Ohtake¹, R. Onodera¹, Y. Mitsui¹, K. Takahashi¹, S. Kimura¹, K. Watanabe¹ and K. Koyama²

¹ Institute for Materials Research, Tohoku University

² Graduate School of Science and Engineering, Kagoshima University

1. はじめに

等原子組成付近の Fe-Rh は, B2 (CsCl) 型構造を有する規則合金である。等原子組成の FeRh は室温では反強磁性 (AFM) を示すが, 温度の上昇によって 350 K 付近で強磁性 (FM) へと一次の磁気相転移が起きる。この AFM-FM 相転移に伴い結晶構造は変化しないが, 体積が約 1% 増加する。また, 強磁性相は 675 K 付近で常磁性への二次相転移が起きる [1]。Fe-Rh の磁性は組成に大きく依存し, Fe 原子の増加により低温においても強磁性相が安定になるが, Rh 原子の増加により AFM-FM 相転移温度はより高温側へとシフトする。

一方, 室温以上で反強磁性相の FeRh に磁場を印加することで, 約 0.8% の巨大体積磁歪が生じることが報告されている [2]。この結果は, 磁場誘起強磁性相への相転移を示唆している。しかし, これまで強磁場・高温中での磁化測定や X 線回折測定などによる結晶構造の観測の報告はなく, FeRh の強磁場・高温中の磁性と結晶構造の関係は十分明らかになっていない。

したがって, 本研究では強磁場・高温中での磁化測定および X 線回折測定によって, FeRh の一次の磁気相転移に伴う磁性および結晶構造の変化を詳細に調べた。

2. 実験方法

実験に用いた FeRh 試料は, Fe (99.98%) および Rh (99.95%) の原料を化学量論比 1:1 となるよう秤量し, アルゴン雰囲気中でアーク溶解法を用いて合成した。得られた試料は石英管に真空封入し, 規則化のため 1273 K で 24 h 熱処理し 2 K/min で室温まで除冷した。その後, ロッド状試料および板状試料に成型した。成型した試料は, 再度石英管に真空封入し, 試料成型による歪みを取り除くため 973 K で 1 h 熱処理し, 2 K/min で室温まで除冷した。以上のようにして得られた FeRh は室温での X 線回折測定で B2 型構造となっていることを確認した。また, 格子定数は $a = 2.994 \text{ \AA}$ と求まり報告されている値 [1] と一致した。また, 蛍光 X 線による組成分析の結果, $\text{Fe}_{49.5}\text{Rh}_{50.5}$ の組成になっていることが分かった。

強磁場・高温中での磁化測定には試料振動型磁力計 (VSM) を用いて, 磁場 $0 \leq B \leq 11 \text{ T}$, 温度 $\text{R.T.} \leq T \leq 793 \text{ K}$ の範囲で測定を行った。試料はロッド状試料を使用し, 磁場は試料長手方向に平行に印加した。強磁場・高温中での X 線回折測定 [3][4] は, 線源に $\text{CuK}\alpha$ 線を用い, 磁場 $0 \leq B \leq 5 \text{ T}$, 温度 $\text{R.T.} \leq T \leq 473$

K の範囲で行った。試料は板状試料を Cu 製の試料ボードに固定して使用した。

3. 実験結果

3.1 強磁場・高温中磁化測定

Fig. 1 に 0.05, 5 T における磁化の温度依存性を示す。0.05 T では 400 K 付近で反強磁性から強磁性への一次相転移を示す。また, 680 K 付近では強磁性から常磁性への二次相転移が見られた。一方, 印加磁場を 5 T に増大させると AFM-FM 相転移温度は大きな低下が見られた。

磁化の磁場依存性は, Fig. 1 から見積もった AFM-FM 相転移温度直下である 371 K において測定した。測定結果を Fig. 2 に示す。およそ 0.5 T までに見ら

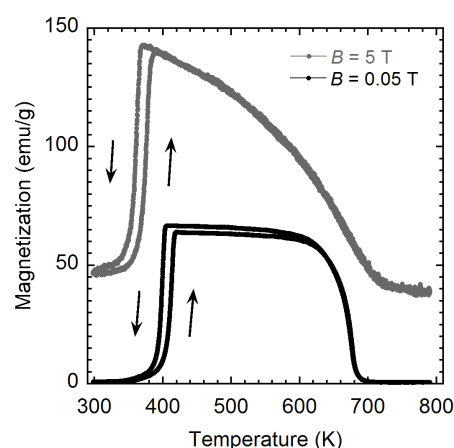


Fig. 1 Temperature dependence of the magnetization of FeRh at 0.05 and 5 T.

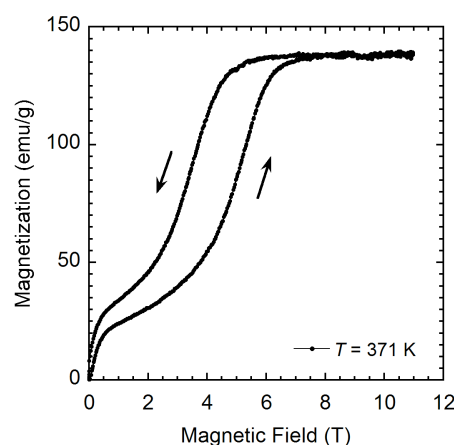


Fig. 2 Magnetization curve of FeRh at 371 K.

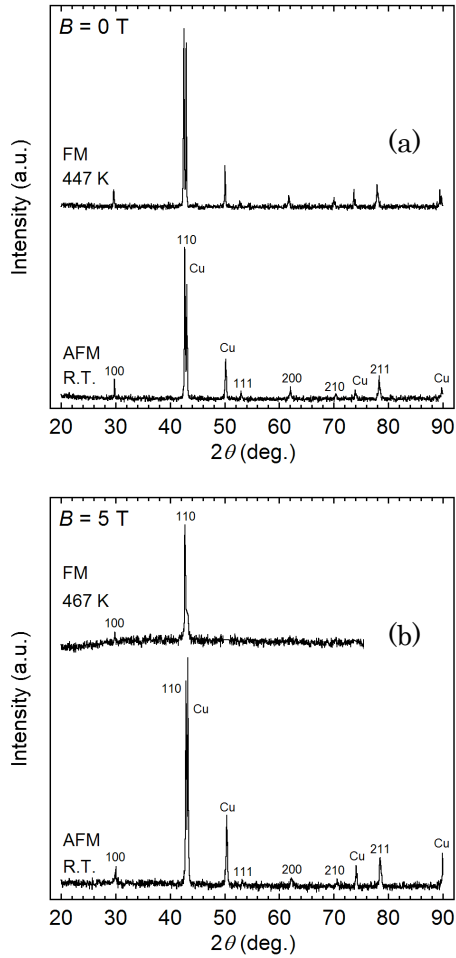


Fig. 3 X-ray diffraction profiles for FeRh under (a) zero field, (b) 5 T at room temperature and high temperature.

れる磁化の立ち上がりは、熱揺らぎおよび組成の不均一性により、試料の一部が強磁性相へと転移しているためだと考えられる。更に磁場を印加すると、4 T 付近から鋭く磁化が上昇し初め、反強磁性から磁場誘起強磁性へ一次の磁気相転移を観測した。

3.2 強磁場・高温中磁化測定

Fig. 3 に、ゼロ磁場および 5 T における低温 (反強磁性相)、高温 (強磁性相) の $20 \leq 2\theta \leq 90^\circ$ における X 線回折パターンを示す。なお、5 T の高温においては Cu の強いピークが観測されたため除去してある。X 線回折パターンによると、それぞれ結晶構造の対称性に変化は見られないが、強磁性相のピークは全て低角度側にシフトした。

詳細な相転移の過程を観測するため、Fig. 4 にゼロ磁場および 5 T における FeRh 211 ピークの温度変化を示す。低温では、反強磁性相のピークが熱膨張により低角度側へシフトしている。そして、それぞれ 399 K および 362 K で 2 本のピークが観測された。これは、AFM-FM 相転移過程で格子定数の小さな反強磁性相と格子定数の大きな強磁性相の二相共存状態になっていると考えられる。さらに高温にすると

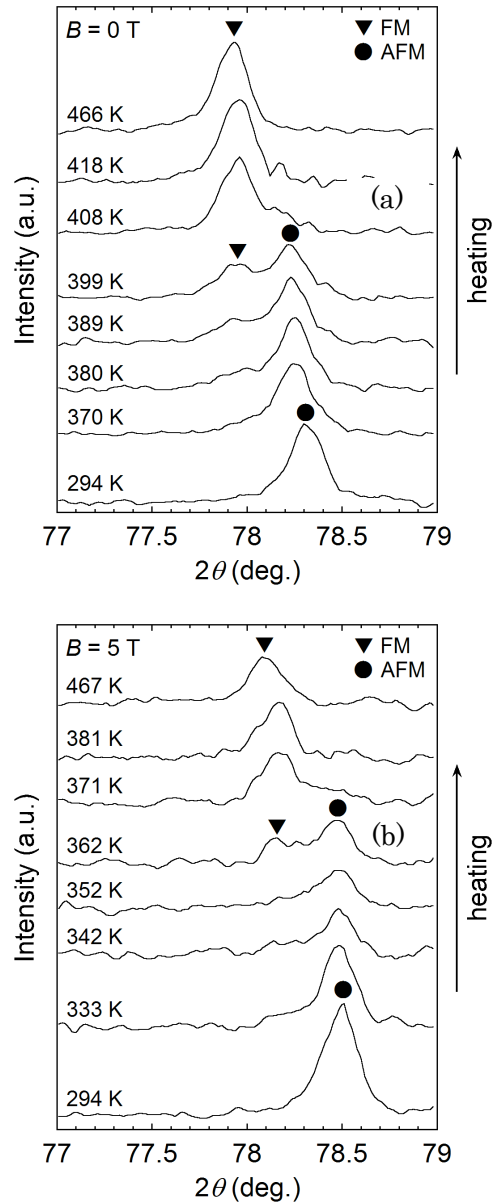


Fig. 4 X-ray diffraction profiles of the 211 reflection of FeRh under (a) zero field, (b) 5 T at various temperatures.

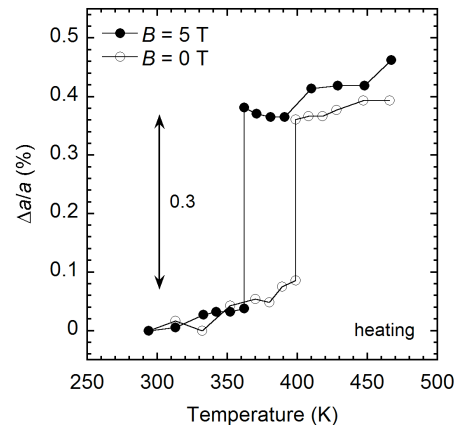


Fig. 5 Temperature dependence of lattice expansion of FeRh at zero field and 5 T.

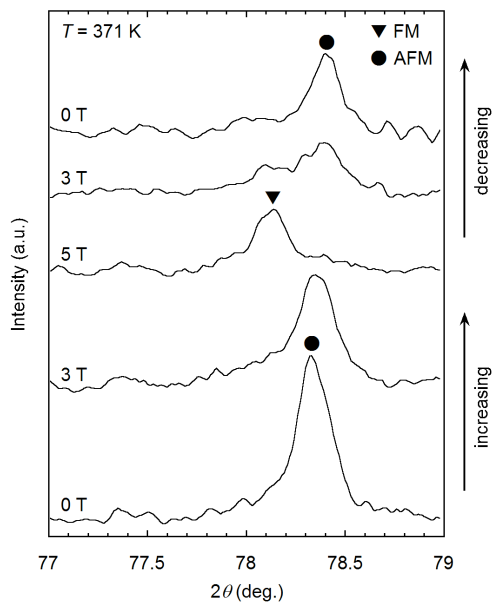


Fig. 6 X-ray diffraction profiles of the 211 reflection of FeRh at 371 K in the magnetic fields up to 5 T.

反強磁性相のピークは消失し、強磁性相のピークのみが観測された。またこの結果は、Fig. 2 の磁化の温度依存性の結果と矛盾しない。

Fig. 4 の FeRh 211 ピークから見積もった、格子定数の温度変化を Fig. 5 に示す。この結果から、微視的に見ても AFM-FM 相転移に伴って 0.3% 程度の格子膨張が分かった。これは約 1% の体積膨張に相当し、磁歪測定の結果 [2] ととも一致する。

Fig. 6 に AFM-FM 相転移温度直下である 371 K において測定した FeRh 211 ピークの磁場変化を示す。励磁過程のゼロ磁場および 3 T では反強磁性相のピークが観測された。一方、5 T ではそれまでよりも低角度側へシフトした位置にピークが観測された。消磁過程の 3 T で二相共存状態になっていることから、これは 3 T から 5 T への励磁過程で磁場誘起の相転移が起こり、5 T で強磁性相のみのピークが観測されたと考えられる。また、この結果は Fig. 3 の磁化の磁場依存性の結果とも矛盾しない。

4. 結論

FeRh の一次の磁気相転移、およびそれに伴う結晶構造の変化について調べるため、強磁場・高温中での磁化測定と X 線回折測定を行った。磁化測定では、温度の上昇および磁場印加による AFM-FM 相転移をこれまでよりも強磁場・高温中で観測した。X 線回折測定では、ゼロ磁場および 5 T 中で温度上昇に伴う AFM-FM 相転移の過程を観測した。また、磁場誘起による AFM-FM 相転移の過程の観測に成功した。以上の実験結果から、FeRh の反強磁性から強磁性への一次の磁気相転移に伴い、格子定数の小さな反強磁性相から格子定数の大きな強磁性相へと、不連続な格子の膨張が起きることが明らかになった。

参考文献

- [1] J. S. Kouvel and C. C. Hartelius, *J. Appl. Phys.*, **33** (1962) 1343.
- [2] M. R. Ibarra and P. A. Algarabel, *Phys. Rev. B*, **50** (1994) 4196
- [3] K. Watanabe, Y. Watanabe, S. Awaji, M. Fujiwara, N. Kobayashi, and T. Hasebe, *Adv. Cryo. Eng.*, **44** (1998) 747
- [4] Y. Mitsui, K. Koyama, and K. Watanabe, *Sci. Tech. Adv. Mater.*, **10** (2009) 014612