

氏 名	Yang Xing Bo 楊 興 波
授 与 学 位	工 学 博 士
学位授与年月日	平成元年3月24日
学位授与の根拠法規	学位規則第5条第1項
研究科, 専攻の名称	東北大学大学院工学研究科 (博士課程) 応用物理学専攻
学位論文題目	Magnetism of Amorphous (Co, Fe)–Rare Earth Alloys ((Co, Fe) – 希土類系非晶質合金の磁性)
指 導 教 官	東北大学教授 渡邊 剛
論 文 審 査 委 員	東北大学教授 渡邊 剛 東北大学教授 猪苗代 盛 東北大学教授 齋藤 好民 東北大学教授 藤森 啓安 東北大学助教授 宮崎 照宣

論 文 内 容 要 旨

3d遷移金属(T)と希土類(R)の非晶質合金では、希土類元素が非晶質相形成の役割を果たし、遷移金属原子と希土類原子の二種類の磁性原子のみからなる合金が広い組成範囲で作製できる。しかもT-R合金薄膜は大きな垂直異方性を示し、また液体急冷法により作製したT-R合金が大きな保磁力を示すことからこれらの合金系について応用を目的とした研究が数多く行われてきた。一方、基礎研究の観点からこれらの合金系を見ると3d遷移金属-希土類の非晶質合金は非晶質の磁性を理解するのに必要な局所磁気異方性、交換相互作用、電子局在化などを調べるのに有用な試料と言えるが、二種類の磁性原子が共存するためその磁性は複雑である。これまでの研究で多くの点が明らかとなったが、特に次のような基礎的な点がまだ未解決である。

- i) (Co, Fe)–R合金におけるCoとFeの磁気モーメントの変化。
- ii) T-T, T-R, R-Rの交換相互作用の振舞い。
- iii) 非晶質合金の磁性に及ぼす希土類原子の影響。

本研究は、液体急冷法により非晶質T-R(T=Co, Fe; R=Y, Pr, Nd, Sm, Gd, Dy, Er)合金を作製し、その磁性を系統的に調べることにより、上記i)–iii)の問題点を解明することを

目的として行われた。本論文はこれらの結果を全6章にわたってまとめたもので、以下にその要旨を記述する。

第一章 (Chapter 1 Introduction)

本章では3d遷移金属-希土類非晶質合金の研究の歴史、非晶質構造並びに磁性の一般的な概念について概観した後、本研究の背景と目的を述べている。

第二章 (Chapter 2 Experimental Procedures)

本章では、非晶質合金の作製方法、X線回折、磁化、帯磁率及び密度の測定などの実験方法について詳細に述べている。

第三章 (Chapter 3 Magnetic Properties of Amorphous Co-R Alloys)

本章では、非晶質 $\text{Co}_{100-x}\text{R}_x$ 合金についての実験結果を述べている。重要な実験結果を以下に要約する。

- 1) $50 \leq x \leq 70$ の組成範囲で非晶質合金を作製できる。
- 2) Co-Gd 合金の 4.2K での磁化は 14kOe までの磁界でほぼ飽和するが、それ以外の合金の磁化は飽和しない。
- 3) Co-Y 合金に於て $x < 60$ の合金はパラ磁性の振舞いを示すが、 $x \geq 60$ の合金は交換相互作用にエンハンスされたパウリ常磁性の振舞いを示す。
- 4) Co-Y 合金を除く全ての Co-R 非晶質合金はフェロからパラへ転移する。パラ状態では、Co-Sm 系を除いて帯磁率はキュリー・ワイス則に従うことが分かった。
- 5) Co-Sm 合金の場合、低温で磁場で冷却効果が見られ、パラ状態で逆帯磁率の温度変化は凸の曲線となり、キュリー・ワイス則に従わない。その原因は Sm^{3+} イオンの最低 J 状態のエネルギー分裂幅が小さいためであろうと推察した。
- 6) R 濃度の増加にともない T_c は単調に減少する。
- 7) T_c の希土類元素依存性はドウ・ジャンヌ係数のそれに類似しているが、細かな点においては異なる。
- 8) Co-軽希土類合金の磁化は R 濃度の増加と共に減少するが、Co-重希土類合金のそれは逆に増加する。
- 9) 図1に示すように逆帯磁率の温度変化から求めた平均有効磁気モーメント ($\bar{\mu}_{eff}$) は Co-軽希土類合金において $x = 60$ 付近で極小を示すが、Co-重希土類合金では磁化と似た組成依存性を示す。

実験結果に基づいて Co の磁気モーメントと交換相互作用の変化を以下のように考察した。

- i) Co-Y と Co-Gd 合金系における磁化測定の結果によって Co の磁気モーメントは x の増加と共に減少し、 $x = 60$ 以上では消失することがわかった。この結論は有効磁気モーメントの解析から得られた結果と一致し、本研究における重要な成果の一つである。希土類の有効磁気モーメント

P(R)がフント則により与えられるとすると、希土類からの \bar{P}_{eff} への寄与は $[xP^2(R)/100]^{1/2}$ で表せる(図1の破線)。 $x \geq 60$ の合金の \bar{P}_{eff} は計算値とほぼ一致する。このことは同合金においてCoモーメントが消失していることを示す。 $x < 60$ の場合には、軽希土類合金の \bar{P}_{eff} は計算値より大きい、重希土類合金のそれはその逆の傾向を示す。この \bar{P}_{eff} の計算値からのずれはCo-Rの交換相互作用と関連することが分かった。

ii) 分子場の解析により非晶質Co-R合金のCo-Co, Co-RとR-Rの交換積分を求めた。一例としてCo-Gd合金の結果を図2に示す。Gdの濃度の増加にともない \bar{J}_{Co-Co} , \bar{J}_{Co-Gd} と \bar{J}_{Gd-Gd} は減少する。他の合金系においても同様の傾向を示した。しかも図3に示すようにCo-RとR-R交換積分は希土類の原子番号の増加につれて減少する。これは本研究における一つの重要な結果である。

第四章 (Chapter 4 Magnetic Properties of Amorphous Fe-R Alloys)

本章では、非晶質 $Fe_{100-x}R_x$ 合金についての実験結果を記述し、これらの実験結果に基づいて非晶質の形成範囲、磁化、キュリー転移について考察した。

明らかとなった主な実験結果を要約すると次の通りである。

- 1) $17 \leq x \leq 60$ の組成範囲で非晶質Fe-(Y, Pr, Nd, Sm, Gd)合金を作製できる。他のFe-重希土類合金系に於てはFe或はR-リッチの組成範囲のみで非晶質合金を作製できる。
- 2) Fe-Gd合金の4.2Kでの磁化は14kOeまでの磁界で飽和する傾向を示すが、それ以外の合金系、特にR-リッチの合金では磁化は飽和しない。Fe-(Pr, Nd, Sm, Dy)合金に於て磁場中冷却効果が見られた。
- 3) Fe-Y合金におけるFeのモーメントはYの濃度の増加に伴い減少し、 $x=70$ 付近で消失する。しかもxの増加に伴いフェロからパラへの転移が次第に不明瞭になる。
- 4) 全てのFe-軽希土類合金はフェロからパラへの明瞭な転移を示すが、多くのFe-重希土類合金ではその転移は不明瞭である。この転移の不明瞭な原因はFe-Fe交換積分の値が大きく分布しているためであると解釈した。
- 5) Fe-軽希土類合金の磁化はR濃度の増加にともない単調に減少するが、Fe-重希土類合金のそれは極小(補償組成)を示す。
- 6) Fe-重希土類合金の T_c はR濃度の増加にともない増加し、40at%R以上になるとほとんど変化しない。Fe-重希土類合金の場合には T_c は $x=30 \sim 40$ でピークを示す。
- 7) Fe-R合金系の T_c はFe-重希土類合金において顕著に低下し、ドウ・ジャンヌ係数のR依存性と大きく異なる。非晶質と結晶質との T_c の差並びに両者の密度の差は希土類の濃度または希土類の原子番号の増加にともない増加することが分かった。

Fe-R合金におけるFeの磁気モーメントFe-Fe, Fe-R間の相互作用について次のように解析している。

- i) 図4に示すようにFe-Gd合金におけるFeのモーメントは組成に依存せず、ほぼ $2 \mu_B$ の値を示す。周期表上においてGdよりも左側に位置する軽希土類の合金の場合には同じ様な結論が得られた。一方、Fe-Y合金におけるFeの磁気モーメントはYの濃度の増加につれて単調に減少し、

$x=70$ 付近で消失する。Gd よりも右側に位置する重希土類元素の合金の場合には、Fe のモーメントは Fe-Y と Fe-Gd 合金の Fe モーメントの組成依存性の間の値を示すことが分かった (図 4 の蔭の部分)。

ii) Co-R 合金と同じように分子場の解析より求めた非晶質 Fe-R 合金における Fe-Fe と Fe-R 間の交換積分を図 5 に示している。Fe-Fe 間の交換積分は R の濃度の増加にともない増加するが、Fe-R 間の交換積分は逆に減少する。この結論は Fe-R 非晶質合金の磁性を理解するのに重要であり、本研究における重要な成果の一つである。図 3 に示すように Fe-R 間の交換積分は Co-R のそれと類似した希土類元素依存性を示すことが分かった。

第五章 (Chapter 5 Comparison between Amorphous Co-R and Fe-R Alloys)

本章では、非晶質 Co-R 合金系と Fe-R 合金系との磁性を比較し、これらの合金の磁性について更に考察を行っている。

Co と Fe の磁気モーメントが希土類濃度の増加にともない減少することは環境効果、いわゆる最隣接の Co 或は Fe 原子同士の数減少によると考えられる。もし 3d 遷移金属原子と希土類原子との相互作用が大きければこの相互作用で作った分子場は 3d 遷移金属原子のモーメントを誘導して、その磁性に影響することが明らかとなった。

Co-Co (Fe-Fe), Co-R (Fe-R) と R-R の交換相互作用の変化は希土類濃度または希土類の種類の変化に起因するモーメント間の距離の変化によると考えられる。

第六章 (Chapter 6 Summary and Conclusions)

本研究で明らかにされた主な結果を総括している。

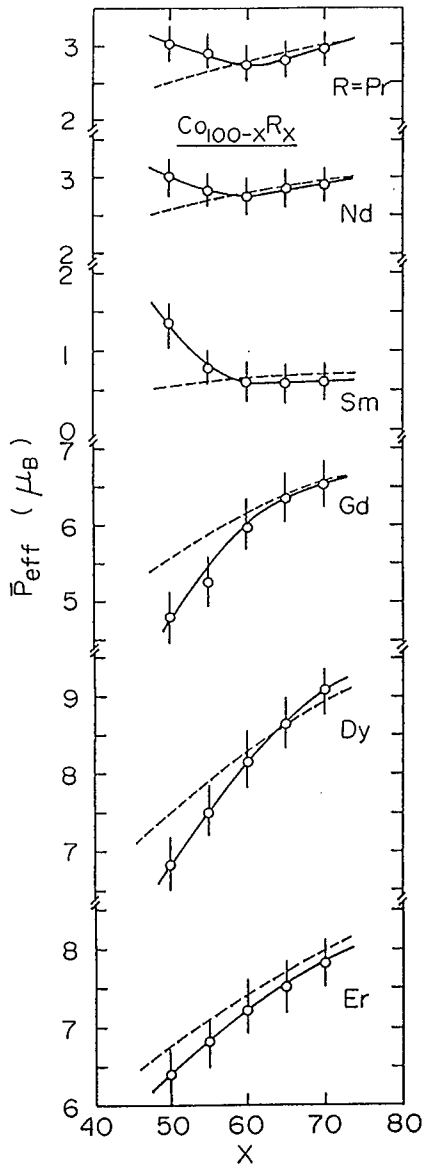


図1 非晶質 $\text{Co}_{100-x}\text{R}_x$ 合金の平均有効磁気モーメントの組成依存性。
破線： $[\text{xP}^2(\text{R})/100]^{1/2}$ 。

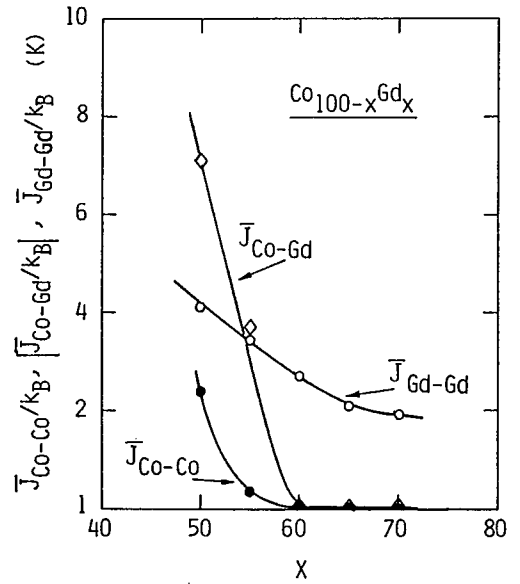


図2 非晶質 $\text{Co}_{100-x}\text{Gd}_x$ 合金の Co-Co, Co-Co と Gd-Gd 間の交換積分の組成依存性。

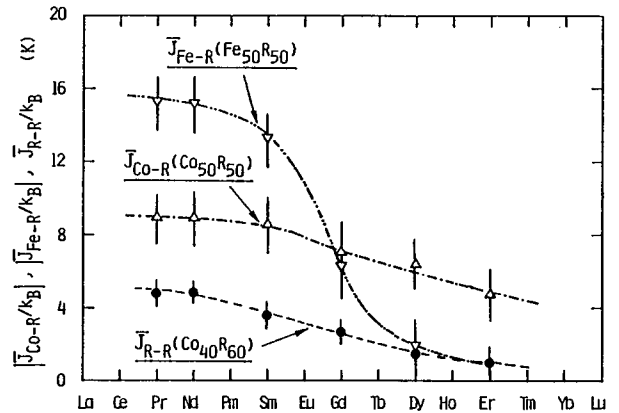


図3 非晶質 $\text{Fe}_{50}\text{R}_{50}$ 合金の $\bar{J}_{\text{Fe-R}}$, $\text{Co}_{50}\text{R}_{50}$ 合金の $\bar{J}_{\text{Co-R}}$ 並びに $\text{Co}_{40}\text{R}_{60}$ 合金の $\bar{J}_{\text{R-R}}$ の R 元素依存性。

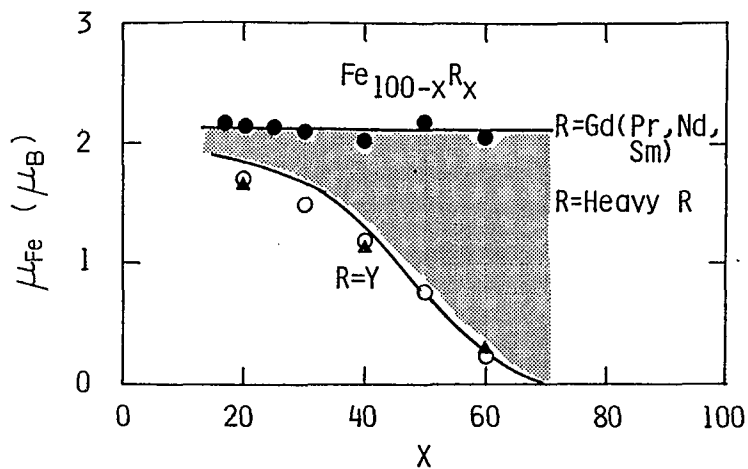


図4 非晶質 $Fe_{100-x}R_x$ 合金における Fe モーメントの変化。

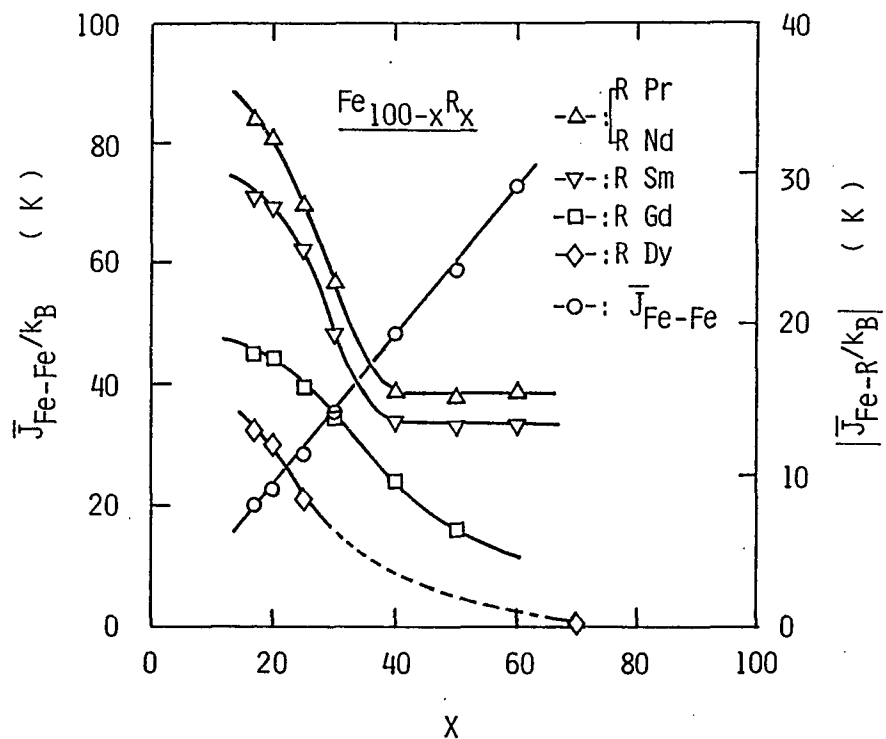


図5 非晶質 $Fe_{100-x}R_x$ 合金における Fe-Fe と Fe-R 間の交換積分の組成依存性。

審査結果の要旨

非晶質合金の磁性に関しては基礎および応用の両面から興味もたれ、種々の研究が行なわれている。特に、3d遷移金属(T)と希土類(R)の合金系では、希土類元素が非晶質構造形成に寄与し、その結果この二種類の磁性原子(T, R)からできた非晶質合金を広い組成範囲で作製することを可能にしている。しかしながら、これらの非晶質合金において各原子の磁気モーメント、原子間の交換相互作用あるいはR原子の合金の磁性に及ぼす影響などについての系統的な研究は少ない。本論文は、T原子としてCo, Fe原子を選び、非晶質Co-R, Fe-R合金系について、各原子の基礎磁性を明らかにすることを目的として、これら非晶質合金の磁気的性質の系統的研究を行ったもので、全編6章よりなる。

第1章は緒論である。

第2章は液体急冷法による試料の作製と実験方法の詳細について述べている。

第3章ではCo-R合金系について非晶質構造の形成範囲および4.2-300Kの磁化並びに帯磁率の測定結果を記述し、Coの磁気モーメント、交換相互作用が希土類元素の種類並びにその濃度どのように依存するかを明らかにしている。特にCo-重希土類合金の場合、Co原子とR原子の相互作用が常磁性を理解する上で重要な役割を果たしていることを指摘した。

第4章はFe-R合金について非晶質構造の形成範囲、Feの磁気モーメント、キュリー温度並びに交換相互作用について調べている。特に、Co-Coの交換積分が希土類元素濃度と共に単調に増加するのに対して、Fe-Feの交換積分が逆に減少することを明らかにしている。

第5章では非晶質Co-R, Fe-R合金系の磁性を比較し、CoとFeの磁気モーメントが最隣接のCo或いはFe原子同士の数によって決まり(環境効果)、更にT原子とR原子との相互作用の大きさによりT原子の磁気モーメントが誘導されることを明らかにした。この考えに基づき、Co-R, Fe-R非晶質合金系の磁性を統一的に理解できることを示した。

第6章は総括および結論である。

以上要するに本論文は、液体急冷法によりCo-R, Fe-R非晶質合金を作製し、その磁気モーメント、キュリー温度並びに交換相互作用を詳細に調べることにより、非晶質合金の基礎磁性を解明したもので、応用物理学の進歩に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。