OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Magnetocaloric effect of transition metal compounds
Author(s)	Tran, Ba Hung
Citation	大阪大学, 2021, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/85374
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

Form 3

Abstract of Thesis

Name （TRAN HUNG BA）	
Title	Magnetocaloric effect of transition metal compounds (遷移金属化合物の磁気熱量効果)

Abstract of Thesis

The traditional cooling method causes great harm to the environment because of using greenhouse gases. The magnetocaloric effect has attracted considerable attention as a promising method for future refrigeration due to its high efficiency and environment-friendly. The main concerns in this application are the Curie temperature T_C and isothermal magnetic entropy change ΔS_m: the former determines the working temperature and the latter determines the conversion efficiency. In this paper, variation of T_C due to doping has been studied in order to examine the controllability of T_C. As to ΔS_m, two special types of magnetocaloric effects, namely, giant magnetocaloric effect and inverse magnetocaloric effect, have been studied, because of the current interests in these effects. Electronic structure and parameters of Monte-Carlo simulation are calculated by DFT method (full-potential linearized augmented plane wave method and Korringa-Kohn-Rostoker method), while phase transitions are calculated Monte-Carlo simulations.

The first topic is the doping effect of MnCoGe alloy on T_C. The doping is done by replacing Ge with Cu. The T_C of non-doped MnCoGe is 350 K, which is not desirable for the refrigerator application. It is shown that by changing Cu concentration up to 0.35, T_C can be changed down to almost zero temperature. The reduction of T_C with increasing Cu concentration is due to interference in the exchange coupling of Mn-Mn pairs by insertion of Cu.

The second topic is the giant magnetocaloric effect observed in $(Mn_{1-x}Cu_x)CoGe$ alloys: in this case Mn site is replaced by Cu. The maximum of ΔS_m is observed for x=0.11 in experiment. Our calculation reproduced the maximum ΔS_m and the corresponding concentration of Cu. In this system, the structural transition between the orthorhombic and hexagonal phases is associated with the magnetic phase transition, and the latent heat due to the structural transition enhances ΔS_m, which is the source of the giant magnetocaloric effect. The present calculation shows values ΔS_m in a reasonable range that is expected for this effect to occur. By combining with the first topic, ΔS_m and T_C can be simultaneously controlled by doping.

The third topic is the inverse magnetocaloric effect observed in FeRh alloy. This effect is characterized by positive change in ΔS_m, while normally negative change. This inverse effect can occur when an anti-ferromagnetic phase is transformed to a ferromagnetic phase as temperature is increased. FeRh exhibits AFM at low temperatures and FM at high temperature, having the same crystal structure with slight change in the lattice parameter. A simple calculation of ΔS_m between AFM and FM phases did not agree well with the experimental value. Actually, the AFM and FM phases coexist near the transition, and the mole fraction of FM becomes another freedom of the structure. By taking this freedom into account, we obtained a good agreement in ΔS_m between theory and experiment.

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（　TRAN HUNG BA　）		
	（職）	氏　名
論文審査担当者	主 査　准教授　白井　光雲 副 査　教授　森川　良忠 副 査　教授　濱口　智志 副 査　准教授　佐藤　和則	

論文審査の結果の要旨

現在、実用化されているガス冷凍機に変わるものが模索される中、室温付近で動作する磁気冷凍機が注目されている。特に最近、巨大磁気熱量効果を有する磁性体がいくつか発見され、それらの材料を使うことにより磁気冷凍機の実用化が現実味を帯びるに至った。本研究は MnCoGe 及び FeRh 合金について磁気熱量効果を理論から研究するものである。前者に於いてはドーピングによるキューリー温度 T_c の制御、巨大磁気熱量効果の機構を明らかにし、後者に於いては新しい磁気熱量効果である逆磁気熱量効果の機構を明らかにすることを目的としている。

MnCoGe は T_c=350K（実験値）であるが、磁気冷凍応用を考えると室温以下まで下げることが望ましい。一つの方法が Ge サイトに Cu をドープすることで磁性原子間の相互作用を間接的に変化させるものである。実際に、平均場理論およびモンテカルロ計算により Cu 濃度とともに T_c がほぼ 0K まで下がることが示されている。T_c の絶対値はモンテカルロ計算でもかなり過大評価となっているが、ただし実験が単一相になっているのか（MnCoGe は磁気秩序を持つ直方相以外に磁気秩序を持たない六方相がある）いろいろ不確定要素が多く、一概に計算が間違いとは言い切れない。この系でさらに興味深いのは、Mn サイトに Cu をドープした系$(Mn_{1-x}Cu_x)CoGe$ で巨大磁気熱量効果が発現することである。磁気熱量効果の大きさは磁場があるときとないときのエントロピーの差ΔS_m で表されるが、単純な磁性相転移から予測される値よりもはるかに大きなΔS_m が得られている。その原因が、構造相転移が磁性相転移と同時に起き、そのためΔS_m に構造相転移に伴う潜熱が寄与することを明らかにしている。構造相転移と磁性相転移が同時に起きる Cu 濃度の範囲は実験と一致しており、有力な証拠となっている。

FeRh 合金に於ては近年、逆磁気熱量効果（外部磁場の増加に伴いエントロピーが増加する）が発見されておりその機構が注目されている。本研究では、それが反強磁性から強磁性への転移に伴うことを明らかにした。ΔS_m の値も良く実験を再現しており、この効果によることを確信させるものである。

以上のように、本論文は磁気熱量効果の様々な形態を首尾一貫した方法で再現した点で、学問的だけでなく磁気冷凍という応用分野に対しても大きな貢献をなしたものである。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。