

## Fe-Ga 合金単結晶の振動発電デバイスに搭載した状態での磁区構造

藤枝 俊\*、高橋 巧\*\*、志村玲子\*\*、川又 透\*\*\*、福田承生\*\*\*\*、鈴木 茂\*\*

(\*阪大 工学研究科、\*\*東北大 多元研、\*\*\*東北大 金研、\*\*\*\*福田結晶研)

Magnetic domain structure of Fe-Ga alloy single crystal on vibration power generator

S. Fujieda\*, T. Takahashi\*\*, R. Simura\*\*, T. Kawamata\*\*\*, T. Fukuda\*\*\*\*, and S. Suzuki\*\*

(\*Graduate School of Engineering Osaka University, \*\*IMRAM Tohoku University,

\*\*\*IMR Tohoku University, \*\*\*\*Fukuda Crystal Laboratory)

### 背景

Fe-Ga 合金の逆磁歪効果を利用した振動発電は、身の回りの振動から数ミリワットの電力を高効率に発電できるため、IoT (Internet of Things) デバイスを駆動させるためのメンテナンスフリー小型電源としての活用が期待されている<sup>1,2)</sup>。このデバイスでは、U字型フレームに Fe-Ga 合金を貼り付けた状態でコイルを巻き付け、永久磁石でバイアス磁場を印加する。固定端に振動を加えると、U 字部が支点となり、もう一方の自由端が強く振動する。振動により Fe-Ga 合金に引張りおよび圧縮応力が加わると逆磁歪効果によりコイルを貫く磁束が変化するため電磁誘導により誘導起電力が生じる。本研究では、振動発電機構の解明に向けて、U字型デバイスに搭載した状態で Fe-Ga 合金単結晶の磁区観察を行った。

### 実験方法

Czochralski 法により作製した大型 Fe-Ga 合金単結晶インゴットから、板面が(001)面および長手方向が[010]方向の板状試料を切り出した後、機械研磨および電解研磨を施した。振動による応力が[010]方向と平行に加わるように板状試料を U 字型フレームに貼り付けた。磁区観察には Faraday 効果を利用した磁気フィールド可視化システムを用いた。

### 実験結果

U字型振動発電デバイスへの(a)搭載前および(b)搭載後における Fe-Ga 合金単結晶の磁区観察結果を図 1 に示す。デバイス搭載前において、Fe-Ga 合金単結晶は試料全面において微細で複雑な磁区構造を示す。デバイス搭載後においても、Fe-Ga 合金単結晶は自由端側では微細で複雑な磁区構造を示す。一方、支点側では[010]方向に平行な縞状構造を示す。Kerr 効果顕微鏡を用いた Fe-Ga 合金単結晶の磁区観察により、 $\langle 100 \rangle$  方向と平行に引張り応力を印加すると、印可応力を緩和するように磁区構造は変化して、引張り方向に平行な磁化方向の磁区および直線的な  $180^\circ$  磁壁で構成された類似の縞状構造が形成することが報告されている<sup>3)</sup>。つまり、デバイス搭載後の支点側での縞状磁区の形成は引張りの残留応力の発生を意味する。Fe-Ga 合金単結晶をデバイスに搭載するために U 字型フレームに貼り付けると残留応力が生じて、磁区構造は不均一な状態となることが明らかになった。

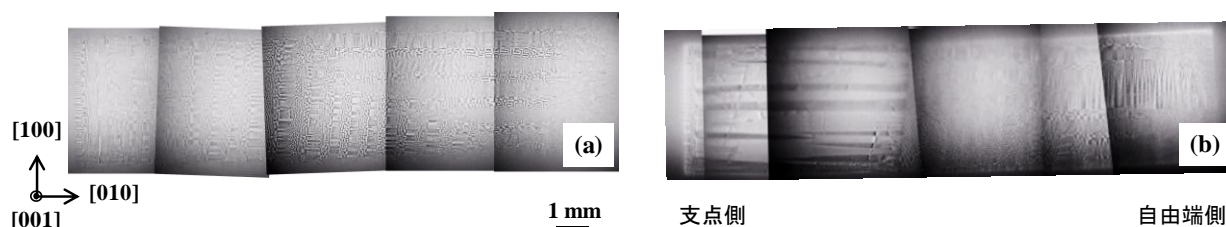


Fig. 1 U字型振動発電デバイスへの(a)搭載前および(b)搭載後の Fe-Ga 合金単結晶の(001)面の磁区構造。

### 参考文献

- 1) T. Ueno and S. Yamada, IEEE Trans. Magn., **47** (2011) 2407.
- 2) 上野敏幸, 日本 AEM 学会誌, 26 (2018) 185.
- 3) S. Fujieda, S. Asano, S. Hashi, K. Ishiyama, T. Fukuda and S. Suzuki, J. Appl. Phys., **124** (2018) 233901.

## 軟 X 線 MCD 顕微分光による熱間加工磁石の磁化過程評価

竹内誠<sup>1</sup>, 蓬田貴裕<sup>1</sup>, 菊池伸明<sup>1</sup>, 岡本聡<sup>1,2</sup>, 北上修<sup>1</sup>,

豊木研太郎<sup>2,3,\*</sup>, 小林慎太郎<sup>2,3</sup>, 小谷佳範<sup>3</sup>, 中村哲也<sup>2,3</sup>, 服部篤<sup>4</sup>, 日置敬子<sup>5</sup>

(<sup>1</sup>東北大, <sup>2</sup>ESICMM, NIMS, <sup>3</sup>JASRI, <sup>4</sup>(株)ダイドー電子, <sup>5</sup>大同特殊鋼(株)), \*(現)大阪大

Magnetization reversal process of hot-deformed Nd-Fe-B magnets

using soft X-ray magnetic circular dichroism microscopy

M. Takeuchi<sup>1</sup>, T. Yomogita<sup>1</sup>, N. Kikuchi<sup>1</sup>, S. Okamoto<sup>1,2</sup>, O. Kitakami<sup>1</sup>,

K. Toyoki<sup>2,3,\*</sup>, S. Kobayashi<sup>2,3</sup>, Y. Kotani<sup>3</sup>, T. Nakamura<sup>2,3</sup>, A. Hattori<sup>4</sup>, and K. Hioki<sup>5</sup>

(<sup>1</sup>Tohoku University, <sup>2</sup>ESICMM, NIMS, <sup>3</sup>JASRI, <sup>4</sup>Daido Electronics Co., Ltd., <sup>5</sup>Daido Steel Co., Ltd.),

\*Present : Osaka University

**はじめに** 熱間加工 Nd-Fe-B 磁石 (HD 磁石) は高い  $c$ -軸配向性, 微細な結晶粒 (~300 nm) を有しており, 粒界での磁壁ピンニングが保磁力機構の主要因であることが分かっている [1,2]. 本磁石の磁化過程を評価するためには Kerr 顕微鏡では空間分解能が十分でなく, 磁気力顕微鏡では探針磁気モーメントの反転や磁場中測定が難しいなどの問題がある. また表面研磨によるダメージの影響も無視できない. 一方, SPring-8 BL25SU で開発された軟 X 線磁気円二色性 (XMCD) 顕微分光装置では, 超真空雰囲気中での試料破断によるダメージフリー表面での観察が可能であり, また空間分解能は 90 nm と HD 磁石の粒径より十分に小さく, かつ超電導磁石で磁場中測定が可能である [3]. したがって, HD 磁石の各粒界でのピンニング磁場のマッピング評価や, その解析による粒界での交換結合評価が可能となることが期待できる. 本研究では, 磁気特性の異なる HD 磁石に対して XMCD イメージングによる磁化過程評価を行った結果を報告する.

**実験方法** 残留磁化 1.3 T, 保磁力 2.0 T を示す HD 磁石は  $0.5 \times 0.5 \times 5 \text{ mm}^3$  に加工したピラー形状 (長軸 //  $c$ -軸) とし, 超高真空雰囲気中で約半分の長さに破断した試料を磁場範囲 3T ~ -3T で XMCD イメージング測定を行った. XMCD イメージング測定後に Ta 10 nm をコートし, FE-SEM による表面構造観察を行い, XMCD 像と重ね合わせるにより, 粒界位置の同定ならびピンニング磁場分布の評価を行った.

**実験結果** Fig. 1 に示す HD 磁石の残留初磁化曲線から, 0~1.0 T および 1.5~2.0 T の範囲で磁化率が高くなっており, 2 段階の磁化過程をとっていることが分かる. 一般的には 1 段階目が熱消磁状態での多磁区粒子, 2 段階目が粒界での磁壁ピンニングによるものと考えられる. Fig. 2 および Fig. 3 は XMCD 像と粒界トレースを重ねたものであり, それぞれ熱消磁状態ならびに 1.5 T 印加の結果である. 粒径は平均で 260 nm 程度あり, 消磁状態の磁区幅は平均で 0.7  $\mu\text{m}$  程度であった. 磁区幅方向に 2~3 個の粒子が含まれており, 熱消磁状態での多磁区粒子は当初の予想ほど多くは見えない. 2 段階目の磁化過程に相当する 1.5 T では, 多くの磁壁が粒界でピンニングしている様子が確認できるが, 一部, 粒内で存在している磁壁も確認できる.

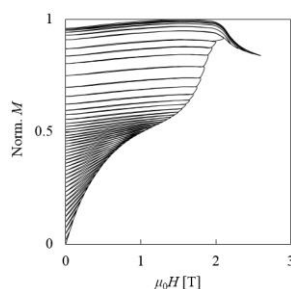


Fig. 1 Remanent initial magnetization curve of the HD magnet.

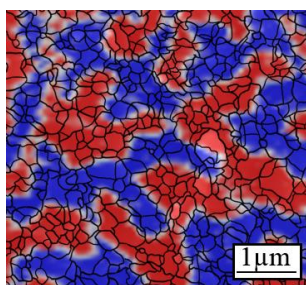


Fig. 2 XMCD image of thermally demagnetized state of the HD magnet.

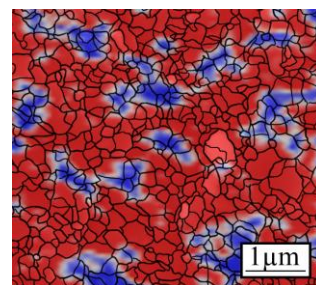


Fig. 3 XMCD image of the HD magnet after applying a magnetic field of 1.5 T.

**謝辞** 文科省「物質・デバイス領域研究アライアンス」及び元素戦略磁性材料研究拠点の支援の下で行われた.

### 参考文献

- [1] J. Liu *et al.* Acta Mater., **82**, 336 (2014). [2] Okamoto *et al.* J. Appl. Phys. **118**, 223903 (2015).  
[3] Y. Kotani *et al.*, J. Synchrotron Radiat. **25**, 1444 (2018).

## 中性子回折による磁気冷凍材料 $R_5Pd_2$ ( $R = Ho, Tb$ ) の短距離秩序

北澤英明<sup>1</sup>、河村幸彦<sup>2</sup>、L. Keller<sup>3</sup>、寺田典樹<sup>1</sup>、鈴木博之<sup>1</sup>、間宮広明<sup>1</sup>、A. Dönni<sup>1</sup>、S. Lee<sup>4</sup>、目時直人<sup>5</sup>、金子耕士<sup>5</sup>、井川直樹<sup>5</sup>

(<sup>1</sup>物材機構<sup>1</sup>、<sup>2</sup>CROSS 東海<sup>2</sup>、<sup>3</sup>PSI<sup>3</sup>、<sup>4</sup>KAERI<sup>4</sup>、<sup>5</sup>原子力機構<sup>5</sup>)

Short-range ordering of magnetic refrigerant materials  $R_5Pd_2$  ( $R = Tb, Ho$ ) by neutron diffraction

H. Kitazawa<sup>1</sup>, Y. Kawamura<sup>2</sup>, L. Keller<sup>3</sup>, N. Terada<sup>1</sup>, H. S. Suzuki<sup>1</sup>, H. Mamiya<sup>1</sup>, A. Dönni<sup>1</sup>, S. Lee<sup>4</sup>, N. Metoki<sup>5</sup>, K. Kaneko<sup>5</sup>, N. Igawa<sup>5</sup>

(<sup>1</sup>NIMS, <sup>2</sup>CROSS-Tokai, <sup>3</sup>PSI, <sup>4</sup>KAERI, <sup>5</sup>JAEA)

### はじめに

水素は新しいエネルギーキャリアとなり得る候補の一つとして注目されている。水素大量消費社会の実現のためには、従来よりも安価かつ安全に供給するための水素液化技術として、磁気冷凍による液化技術が期待されている。そのためには、液化に必要な温度領域(77K-20K)でより大きな磁気エントロピー変化を示す材料開発が求められている。

立方晶  $Dy_5Pd_2$  型結晶構造を持つ  $Ho_5Pd_2$  は、反強磁性体 ( $T_N = 28K$ ) であるにもかかわらず、水素の沸点 20K に近い 34 K で非常に大きな磁気熱量効果 (MCE) があるとの興味深い報告が Samanta<sup>1)</sup> らによってなされた。我々は  $Ho_5Pd_2$  の磁気構造に興味を持ち、以前、JRR-3 に設置された熱中性子を使った粉末中性子回折実験を行った。 $Ho_5Pd_2$  は  $T_g (=T_N)$  以上から  $\mathbf{k} = [0.18, 0.18, 0.18]$  の不整合伝搬ベクトルを持った秩序が発達しつつも、低温 5K まで長距離秩序を持たないグラス秩序を取っている事が示唆された。今回、より長周期の情報を得るため、スイス PSI 中性子実験施設 SINQ に設置された冷中性子回折計 DMC を用いて、参照物質  $Tb_5Pd_2$  ( $T_g = 70K$ ) 多結晶試料の回折パターンの温度変化を測定した。

### 実験方法

中性子回折実験は、SINQ (スイス PSI) の冷中性子回折計 DMC ( $\lambda = 4.507 \text{ \AA}$ ) で行われた。アーク炉で溶解後、800°C で 100 時間程度真空焼鈍された多結晶体を粉末化した試料が実験で用意された。

### 実験結果

図 1 に 1.5 K ~ 70 K の温度範囲における中性子粉末回折パターンを示す。90 deg 以上に観測された鋭いピークは、核散乱からの回折パターンである。 $T_g = 28K$  よりも遙かに高い 70K から温度が下降するに従って、低角の 5deg 付近に  $\mathbf{k} = [\delta, \delta, \delta]$  ( $\delta = 0.18$ ) の幅広いピークが発達して行く様子が観測された。また、 $\mathbf{k} = [1, 1, 1]$  のサイドの  $\mathbf{k} = [1 \pm \delta, 1 \pm \delta, 1 \pm \delta]$  にも幅の広く弱いピークも観測された。 $\mathbf{k} = [\delta, \delta, \delta]$  のピークの積分強度を温度の関数としてプロットすると  $T_g$  から低温に向かって急激に増加する事がわかった。

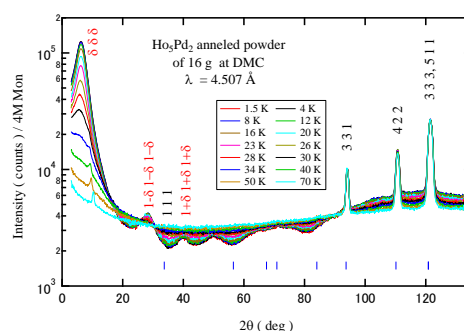


Fig. 1 Temperature dependence of neutron powder patterns of  $Ho_5Pd_2$ .

### 謝辞

本研究は、JST 未来社会創造事業「磁気冷凍技術による革新的水素液化システムの開発」(課題 ID: 18077503) の一環として実施しました。

### 参考文献

- 1) T. Samanta, *et. al.*, Appl. Phys. Lett. 91, 082511 (2007).

## Mn 基ホイスラー合金 $Mn_2CoGa$ の磁氣的性質と原子配列

梅津理恵<sup>1,2,3</sup>、斉藤耕太郎<sup>4</sup>、小野寛太<sup>5</sup>、石垣徹<sup>6</sup>、辻川雅人<sup>2,3,7</sup> 白井正文<sup>2,3,7</sup>  
 ( <sup>1</sup>東北大金研、<sup>2</sup>東北大 CSRN、<sup>3</sup>東北大 CSIS、<sup>4</sup>ポール・シェラー研、  
<sup>5</sup>高エネ研、<sup>6</sup>茨城大、<sup>7</sup>東北大通研)

Magnetic properties and atomic configuration of  $Mn_2CoGa$  in Mn-based Heusler alloy  
 R.Y. Umetsu<sup>1,2,3</sup>, K. Saito<sup>4</sup>, K. Ono<sup>5</sup>, T. Ishigaki<sup>6</sup>, M. Tsujikawa<sup>2,3,7</sup>, M. Shirai<sup>2,3,7</sup>  
 ( <sup>1</sup>IMR, Tohoku Univ., <sup>2</sup>CSRN, Tohoku Univ., <sup>3</sup>CSIS, Tohoku Univ.,  
<sup>4</sup>Paul Scherrer Institut, <sup>5</sup>KEK, <sup>6</sup>Ibaraki Univ., <sup>7</sup>RIEC, Tohoku Univ.)

### はじめに

$Mn_2CoAl$  ホイスラー合金が  $Hg_2CuTi$  型構造の原子配列をしている場合に、スピングャップ半導体型 (SGS-type) の特異な電子状態を有することが第一原理計算より示唆され<sup>1,2</sup>、注目されている。しかしながら、Mn-Co-Al 三元系状態図によると、1273 K 以下では  $Mn_2CoAl$  は 2 相領域にあり<sup>3</sup>、相分離のため单相を得にくいことが想定される。そこで、本研究では関連物質として  $Mn_2CoGa$  ホイスラー合金の試料を作製して相状態を確認し、中性子粉末回折測定より原子配列を決定し、それをもとに電子状態の計算を行った。

### 実験方法

$Mn_2CoGa$  の多結晶試料は高周波溶解にて作製し、1173 K にて 1 日間の溶体化熱処理を施した後水中に焼入れし、773 K にて規則化のための熱処理を行った。規則-不規則相変態温度を調べるために示差走査熱量 (DSC) 測定を行い、磁化測定は試料振動型磁力計 (VSM) 及び SQUID 磁力計を用いて行った。粉碎した粉末試料は歪除去の熱処理を施し、J-PARC に設置してある茨城県材料構造解析装置 (iMATERIA) を用いて飛行時間法 (TOF) により行い、解析には FullProf を用いた<sup>4</sup>。

### 実験結果

VSM より得た熱磁化曲線より  $Mn_2CoGa$  合金のキュリー温度は約 740 K であることが分かり、DSC 曲線において規則-不規則変態に伴うとみられる反応が約 1050 K において観測された。5 K における磁化曲線のアロットプロットから算出した自発磁化の値は  $2.0 \mu_B/f.u.$  である。

図に、 $Mn_2CoGa$  の室温で測定を行った粉末中性子回折パターンを示す<sup>5</sup>。  $I_{cal.}$  は FullProf を用いて得た回折パターンを示し<sup>3</sup>、  $I_{cal.} - I_{exp.}$  は実験で得たパターンとの差を示す。  $Hg_2CuTi$  型原子配列を仮定した場合より、Mn と Co 原子がランダムに配列した  $L2_{1b}$  型構造とした場合のほうが R-値は低く、解析より得られた磁気モーメントの値も、理論計算値や磁化測定で得られた自発磁化の値に近いことが判明した。この原子配列は、HAADF-STEM 像観察による結果と対応している<sup>6</sup>。  $L2_{1b}$  型原子配列の  $Mn_2CoGa$  に対してコヒーレントポテンシャル近似を用いて第一原理計算を行ったところ、SGS-type 電子状態は有しないものの、ダウンスピンスライドのフェルミ面近傍に擬ギャップが形成され、比較的スピン分極率の高い電子状態であることが分かった。

### 参考文献

- 1) G. D. Liu *et al.*, Phys. Rev. B **77**, 014424 (2008).
- 2) S. Ouardi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **110**, 100401 (2013).
- 3) R. Kainuma *et al.*, J. Alloys Compd. **269**, 173 (1998).
- 4) R. Carvajal, Physica B **192**, 55 (1993).
- 5) R.Y. Umetsu *et al.*, J. Phys.: Condens. Matter **31**, 065801 (2019).
- 6) K. Minakuchi *et al.*, J. Alloys Compd. **645**, 577 (2015).

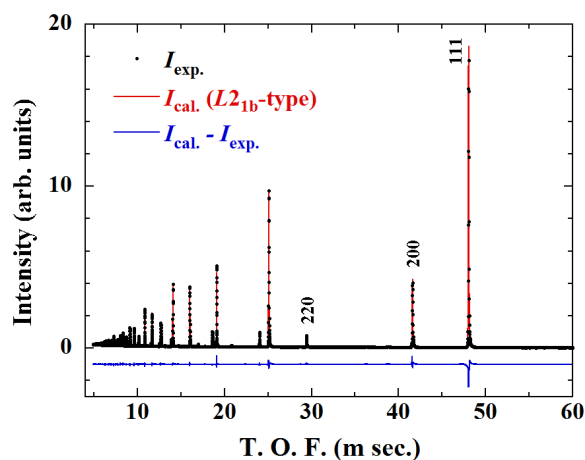


Figure Powder neutron diffraction pattern of  $Mn_2CoGa$  Heusler alloy obtained at room temperature, together with the calculated pattern as the  $L2_{1b}$ -type structure.