

会場 B

領域 3, 5

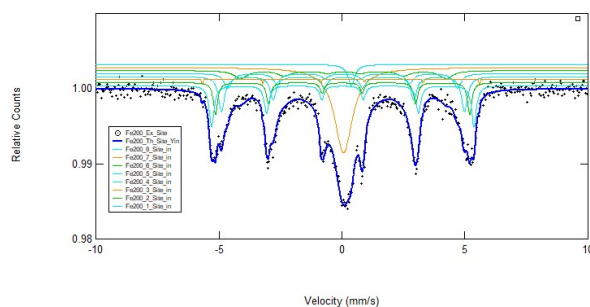
B-1

ホイスラー化合物 $\text{Fe}_{2-x}\text{Ni}_{1+x}\text{Al}$ のメスバウアー測定

鹿児島大学^A, 東京大学^B, アイソトープ実験施設^C 園田一貴^A, 尾上昌平^{A,C}, 恩田圭二郎^A, 廣井政彦^A, 上床美也^B, 小山圭一^A, 三井好古^A, 重田出^A, 伊藤昌和^A

化学式 X_2YZ (X, Y: 遷移金属, Z: s,p 元素) を有するホイスラー合金は、多くの興味深い物理的性質を示し、それらのうちのいくつかは機能材料形 (状記憶合金、ハーフメタル、熱電素子) としての可能性を有しており、注目を集めている。最近では F-43m という空間群を持つホイスラー合金が研究され始めている。そこで我々は空間群が F-43m と報告されている Fe_2NiAl と第一バンド計算で求めたフルホイスラー合金で多いとされている空間群の Fm-3m である Ni_2FeAl の Fe と Ni を置換して物質を作製し、物性を測定することで空間群の違いが物性にどのような影響を与えるかの研究を行った。作製した Fe_2NiAl , $\text{Fe}_{1.7}\text{Ni}_{1.3}\text{Al}$, $\text{Fe}_{1.5}\text{Ni}_{1.5}\text{Al}$ の空間群の違いを調べるためにメスバウアー分

光法により、それぞれの資料の鉄の価数、配位環境、磁性を測定した。図に Fe_2NiAl のメスバウアースペクトルを示す。通常 6 本のピークであるところ 8 本ピークが出ているため、 Fe_2NiAl は単純な F-43m 構造でないことがわかる。講演では他の試料のスペクトルと数値を比較し議論する。



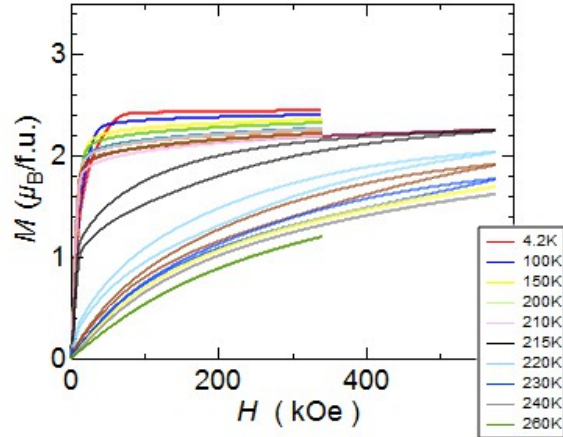
B-2

MnNiGe-CoNiGe 系の磁気・熱物性

鹿児島大学理工学研究科^A, 鹿児島大学理学部物理科学科^B, 東京大学 ISSP^C 恩田圭二郎^A, 甲斐友也^B, 廣井政彦^A, 真中浩貴^A, 寺田教男^A, 近藤晃弘^C, 金道浩一^C, 伊藤昌和^A

MnNiGe-CoNiGe の系は一次磁気構造相転移を起こし、巨大磁気熱量効果を引き起こす。この系は Ni₂In 型の常磁性六方晶から、TiNiSi 型の反強磁性斜方晶へと磁気相転移とマルテンサイト変態を起こし、両相転移のカップリングが磁気冷凍に重要とされている。今回我々はこの系における相転移を、置換量、磁性および熱物性の視点から明らかにしたい。また、この系の置換量を増やしていくことでスピングラスのような振る舞いも観測され、Mn_{1-x}Co_xNiGe($x=0.2$) では 1 kOe 下で 60 K 付近に FC と ZFC に非可逆性が見られ、磁場の増加に伴いこの温度は減少する。図に、 $x=0.1$ における磁化の磁場依存性を示す。215 K $\leq T \leq 230$ K の温度域で磁化がはっきりとしたヒステリシスを持つことが分かる。すなわち、この温度域において一次磁気構造相転移が起きていると考えられる。講演で

は、これらからエントロピーの変化量についても議論する。



B-3

ランタノイド系強磁性金属の高圧力下交流磁化率測定

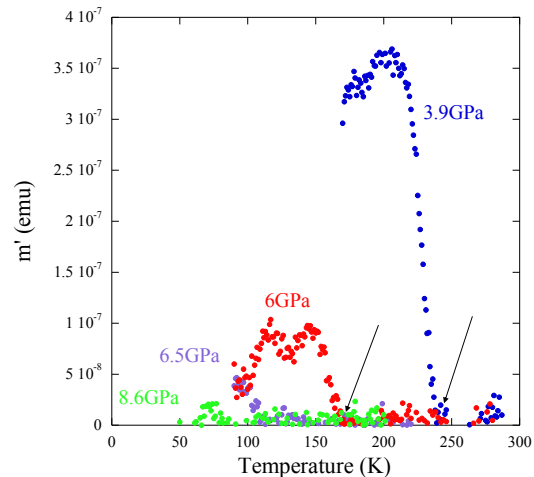
九工大工^A 山方香菜子^A, 大隈理央^A, 美藤正樹^A, 田中将嗣^A, 出口博之^A

希土類金属では、伝導電子が、局在した 4f 電子による局在磁気モーメントの相互作用を媒介する。高圧力下での磁気測定については、過去に、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm に関して電磁誘導方式の AC 測定 [1] と Gd、Tb、Dy、Ho、に関して SQUID を用いた直流磁化測定 [2] について報告されており、圧力を変えることで、転移温度が線形的に低下し、磁気モーメントが消失することが報告されている。また、Gd、Tb、Dy に関しては、電気抵抗測定が行われており、20 GPa を超えると磁気転移温度が上昇し始めると報告されている [3][4]。本研究の目的は、高圧力下交流磁化率測定を行うことによって、希土類強磁性金属の磁気特性の磁気転移温度を確認することである。図 1 は 8.6 GPa までの Gd の交流磁化率の in-phase の温度依存性である。図中の矢印は転移温度を示している。強磁性から常磁性への磁気相転移は、6.0 GPa まではっきりと観測されたが、6.5 GPa では、磁気モーメントの消滅を伺わせる。一度消失した磁気特性が復活することがあるのかを解明したい。

(2009).

[3] J.Lim, *et al.*, Phys. Rev. B **91**, 045116 (2015).

[4] J.Lim, *et al.*, Phys. Rev. B **91**, 174428 (2015).



[1] D.D. Jackson, *et al.*, Phys. Rev. B **71**, 184416 (2005).

[2] M. Mito, *et al.*, J. Phys. Chem. Solids **70**, 1290

B-4

Zn 置換した Mn-Al に対する磁場中熱処理効果

鹿児島大学大学院 理工学研究科^A, 東北大学 金属材料研究所^B 高木観雄^A, 小林領太^A, 三井好古^A, 梅津理恵^B, 高橋弘紀^B, 水口将輝^B, 小山佳一^A

強磁性 MnAl 相は正方晶 CuAu 型の結晶構造を持ち、 τ 相と呼ばれている。高温相である ϵ 相からの変態で得られる。 τ 相は準安定相であることから、様々な方法で安定化させる研究がされている。C を加えることが知られているが、最近では Wang らによって Zn 置換でも τ 相が安定化することが見つけられた。他の方法として外部磁場を加えることで、強磁性相を安定化させることができる。Mn-Al の薄膜やバルク試料を磁場中熱処理することで磁化の増加が報告されている。今回の研究では Zn 置換 Mn-Al 試料の磁場効果を調査することが目的である。試料は Mn53Al45Zn2 で秤量され、反応焼結法によって作製した。1100 °C で 48 時間保持し、クエンチによって ϵ 相を得た。これを 0 T と 15 T 中でそれぞれ 300 °C を 48 時間保持し、作製した。これらの試料を XRD 測定により相変態を調べ、磁場効果を調査した。

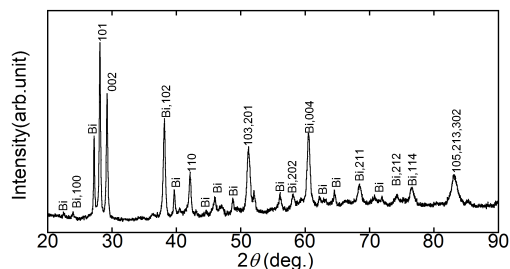
B-5

磁場中急冷による MnBi の組織観察

鹿児島大学大学院理工学研究科^A, 東北大学金属材料研究所^B 小林領太^A, 山下美咲^A, 三井好古^A, 高橋弘紀^B, 宇田聡^B, 小山佳一^A

低温相 MnBi は 1 軸の結晶磁気異方性を有する強磁性体である。低温相 MnBi とその高温相 Mn_{1.08}Bi の相変態温度 T_t はゼロ磁場中で 628 K と報告されている。磁場を印加すると、 T_t は 2 K/T の割合で上昇し、磁場中で状態図が変化する [1]。我々は、強磁場中熱分析装置により、強磁性体の強磁場中状態図の作成を進めているが、さらに詳しい高温磁場中における物質の情報を得るには、強磁場中で熱処理-急冷を行う必要がある。しかし、強磁場中急冷炉の報告は、グルノーブル強磁場施設における 16 T までの報告のみで、国内からの報告はない。最近、我々は 15 T 強磁場中急冷実験に成功し、相変態温度を境界として得られた相が低温相から高温相に変化することを明らかにした [2]。今回我々は、この強磁場中急冷炉を改良し、世界最高磁場 19 T における強磁場急冷実験に成功したので報告する。実験は、MnBi をアーク溶解法で作成後、熱処理し、これを試料とした。この試料に対し、東北大学金属材料研究所 20 T 無冷媒超伝導マグネットを用いて、19 T 磁場中で 663 K、6 h 熱処理を行

い、その後 19 T 磁場中で室温の水を用いて急冷した。得られた試料は、バルク X 線回折測定及び組織観察を行い、得られた相を評価した。図に得られた試料の XRD の結果を示す。X 線回折パターンから、低温相 MnBi と Bi が得られたことがわかる。この結果は、三井らによる磁場中状態図 [3] と一致している。[1] K. Koyama *et al* : J. Alloy. Compd., 509, (2011) L78-L80.[2] M. Yamashita *et al* : IEEE Magn. Lett., 8, (2017) 6501504. [3] Y. Mitsui *et al* : Mater. Trans. 54, (2013) 242



B-6

ガラス形成液体における構造緩和のアレニウス型からの転移とフラジリティ：イオン液体への応用

大分高専^A, 熊大院先端科学^B 池田昌弘^A, 安仁屋勝^B

多くのガラス形成液体における緩和時間や粘性は非アレニウス型の温度依存性を示し、ガラス転移点 T_g でのアレニウス則からの逸脱はフラジリティで評価される¹⁾。一方、融点より高い温度領域に目を向けると、network 系、非 network 系 (フラジイル系) に関わらず、共通してアレニウスの挙動が観測される。この振舞いはアレニウス・クロスオーバー現象とよばれ²⁾、転移点はアレニウス温度 T_A で指定される。興味深いことに、この T_A はフラジイル系物質では、我々のモデルから理論的に算出される協同運動の出現温度 T_x と近い値になることが分かっている³⁾。また近年、 T_g/T_A とフラジリティ m との間には相関があることも報告されている^{2,4)}。

本研究では、非ストークス-アインシュタイン的振舞いを示す伝導緩和と構造緩和間の解離 (デカップリング) 機構とイオン液体におけるアレニウス・クロスオーバー現象との関連性について議論する。

- 1) C.A. Angell, J. Non-Cryst. Solids 131-133 (1991) 13.
- 2) A. Jaiswal, et al., Phys. Rev. Lett. 117 (2016) 205701.
- 3) M. Ikeda, M. Aniya, Eur. Polym. J. 86 (2017) 29.
- 4) V.N. Novikov, Chem. Phys. Lett. 659 (2016) 133.

B-7

超イオン導電ガラスの構造とエントロピー

熊大院自然科学^A, 熊大院先端科学^B, 山形大理^C 松永薫^A, 安仁屋勝^B, 白杵毅^C

高温で粒子群が一様に分布している系があるとする。この状態から温度を下げていくと粒子群は配列し構造を持つようになる。その際、エントロピーは変化し、系の拡散係数も変化する。このような考えの下、Dzugutov は拡散係数と過剰エントロピーに関するスケールリング則を提案した [1]。ここで、過剰エントロピーは熱力学エントロピーと理想気体のエントロピーの差として定義される。

これまでの研究で我々は、超イオン導電体に対する結合ゆらぎモデル [2] の観点から拡散係数と過剰エントロピーに対する関係式を導出した。今回は、同関係式の超イオン導電ガラスへの適用を試みた結果について報告する。

超イオン導電ガラス $(\text{AgI})_x(\text{As}_2\text{Se}_3)_{1-x}$ 系の構造 [3] から過剰エントロピーを求めた。AgI の組成を $x = 0.4$ から $x = 0.6$ に変化させた場合、過剰エントロピーは約 0.7 倍変化する。つまり、熱力学エントロピーは増える。これに伴い、拡散係数は約 1.2 倍に増加するという予想が得られる。

- [1] M. Dzugutov: Nature 381 (1996) 137.
- [2] M. Aniya: Integrated Ferroelec. 115 (2010) 81.
- [3] T. Usuki, et al.: J. Non-Cryst. Solids 312-314 (2002) 570.

B-8 イオン導電体の弾性的性質

熊大院自然科学^A, 熊大院先端科学^B 飯川景祐^A, 安仁屋勝^B

超イオン導電体におけるイオンの移動度は、化学結合性と関係があると考えられている [1]. 物質の結合性は、原子間を結び付けるボンド伸縮力定数 α とボンド変角力定数 β に反映される。これらの力の定数に関する定式化は、最初ダイヤモンド構造や閃亜鉛鉱構造をもつ物質に対して行われ [2], その後、蛍石型構造をもつ物質に対して拡張された。本研究では、イオン伝導と密接に関係すると予想される α や β の温度依存性を弾性定数の観点から調べた。その結果、 BaF_2 では β/α が温度上昇と共に増加することが分かった。AB 型化合物において、 β/α はイオン度と関係することが知られている [2]. また、 AgI の有効電荷の温度依存性は他の AB 型化合物と異なり、高温で増加する [3]. BaF_2 で得られた β/α の振舞いの原因は今のところ不明であるが、イオン導電体 BaF_2 の特徴が反映されている可能性がある。

[1] 安仁屋勝：日本物理学会誌 66 (2011) 414.

[2] R.M. Martin: Phys. Rev. B 1 (1970) 4005.

[3] M. Aniya, K. Wakamura: Physica B 219-220 (1996) 463.

B-9 イオン導電体におけるイオン伝導度の振動モード依存性

熊大院自然科学^A, 熊大院先端科学^B 田中良哉^A, 安仁屋勝^B

イオン導電体の中には、イオン伝導度がアレニウスの挙動から外れた振る舞いを示すものが多く見受けられる。その中で、 CaF_2 のようなフッ化物系では、イオン伝導度がアレニウスの挙動から逸脱を起こす温度域と、熱的性質に異常が見られる温度域が同程度であることが報告されている [1]。このことはイオン伝導度と格子振動が密接に関連し合っていることを示唆しているが、その詳細はまだ解明されていない。そこで本研究では、イオン伝導の非アレニウスの挙動に対するモデル [2] をヒントに、原子振動のモードとイオン伝導度の関係を考察する。モデルから、イオン伝導の活性化エネルギーは、ある特定の振動モードとそれに対する揺らぎを用いて書き表され、温度の上昇と共にイオン伝導に寄与する振動モードが増加するという結果が得られた。

[1] B.M. Voronin, S.V. Volkov: J. Phys. Chem. Solids 62 (2001) 1349.

[2] Y. Okada, M. Ikeda, M. Aniya: Solid State Ionics 281 (2015) 43.

B-10 イオン導電性高分子に対するモデル II

熊大院自然科学^A, 熊大院先端科学^B 西牟田拓朗^A, 安仁屋勝^B

近年、イオン導電性高分子が電池材料として盛んに研究されている [1]。しかし、その基礎物性はまだよく理解されていない。本研究では、イオン導電体に対して以前に提案されたモデル [2] を参考に、固体イオン導電性高分子に対するモデルとして、負に帯電した高分子鎖とカチオン流体から構成された系を考える。この系は、連続体に対する運動方程式とマクスウェルの方程式で記述される。方程式を解くことで、イオン伝導度の解析的な表現が得られる [3]。発表では、得られた表現に基づいて、赤外領域での交流イオン伝導度の振る舞いについて議論する。特に、高分子鎖の質量がイオン伝導に与える影響や、温度依存性を反映する緩和時間とイオン伝導度との関係について述べる。

[1] A. Arya, A.L. Sharma: Ionics 23 (2017) 497.

[2] M. Aniya, M. Kobayashi: Appl. Phys. A 49 (1989) 641.

[3] T. Nishimuta, M. Aniya: Phys. Rep. Kumamoto Univ. 14 (2017) 61.

B-11 Fe 中 Ga 侵入過程における磁場効果

鹿児島大院・理工^A, 東北大・金研^B 萩尾聡明^A, 三井好古^A, 高橋弘紀^B, 小山佳一^A

磁場が化学反応や強磁性相生成に影響することが報告されている。最近では、高いキュリー温度を持つ Fe-C の状態図 [1] や MnBi の合成過程 [2] に磁場が影響することが報告された。Fe-Ga 系では、Fe が比較的大きな磁気モーメントと高いキュリー温度をもつことから、磁場による Fe-Ga 合金中の原子拡散や化合物相形成への影響が期待できるが、未だ研究が進んでいない。本研究の目的は、Fe 中への Ga の拡散過程と化合物形成に対する磁場効果を解明することである。試料は、表面を研磨した Fe の上に Ga をのせて石英管にアルゴンガス中で封入、ゼロ磁場、10 T 磁場中で熱処理した。熱処理された試料を磁場方向と平行に切断し、EPMA によって切断面の元素量を評価した。その結果、ゼロ磁場と強磁場 10 T 中において Ga が Fe 中に侵入および拡散し、幾つかの Fe-Ga 化合物の組成比に対応する領域の形成過程を観察できた。また、ゼロ磁場中と 10 T 磁場中の結果から、Fe 中への Ga の拡散が磁場によって抑制されていることを明らかにした。講演では、得られた Fe-Ga の各化合物相とその組織、及びそれに対する磁場抑制効果の詳細について報告する。

[1] H.Fujii, *et al.*, Phys. Rev. B 83 (2011) 054412

[2] Y.Mitsui, *et al.*, J. Alloy. Compd., 615(2014) 131-134

B-12

強磁性 Mn-Al に対する C 添加と、磁場中熱処理

鹿児島大学院 理工^A, 東北大 金研^B 高永悠大^A, 小林領太^A, 三井好古^A, 高橋弘紀^B, 廣井政彦^A, 小山佳一^A

Mn-Al 合金の強磁性相である τ 相は、正方晶 CuAu 型結晶構造で、飽和磁化 $144\text{A} \cdot \text{m}^2/\text{kg}$ 、キュリー温度 655K 、磁気異方性エネルギー $1.5\text{MJ}/\text{m}^3$ という磁気特性を有している [1][2]。準安定な τ 相は、hcp 構造をもつ ε 相を熱処理、急冷することにより得られる [3]。また、Mn-Al 合金に C を添加することで、 τ 相は安定化するが、キュリー温度は低下する [2]。本研究では、強磁性 τ 相を生成する際に重要となる C 添加の ε 相への効果に着目した。反応焼結法により $\text{Mn}_{100-x}\text{Al}_x$, $\text{Mn}_{100-x}\text{Al}_xC_2$ ($x=48-55$) を作製し、アルゴン雰囲気下で石英管に封入した。その後、 1373K , 24h で熱処理し、氷水中にクエンチし取り出した。得られた試料に X 線回折測定を行い、相を同定した。熱処理後のそれぞれの相を比較することにより、 ε 相の安定性に対する C 添加効果を調べた。図 1 に $\text{Mn}_{52}\text{Al}_{48}$, $\text{Mn}_{52}\text{Al}_{48}\text{C}_2$ を 1373K , 24h で熱処理後の X 線回折測定結果を示す。C=0 の場合、 ε 相単相ではないが、C=2 では、 ε 相単相が確認された。このことから、C 添加により、 ε 相の領域が広がったと考えられる。講演では、磁

場中熱処理の結果についても発表する。

- [1] J. H. Park, et al., J. Appl. Phys., 107 (2010) 09A731.
- [2] L. Pareti, et al., J. Appl. Phys., 59 (1986) 3824 - 3828.
- [3] H. Kono, J. Phys. Soc. Japan., 13 (1958) 1444.

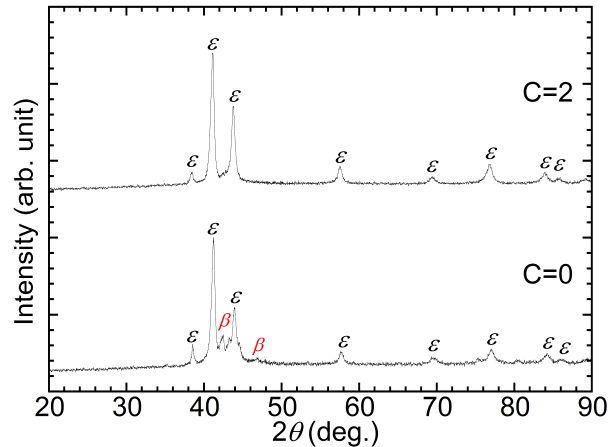


図1: 1373K , 24h 熱処理後の X 線回折測定結果

B-13

Mn-Al 合金の熱分析による相変態の速度論的評価

鹿児島大院・理工^A, 東北大・金研^B 籠秀斗^A, 小林領太^A, 三井好古^A, 高橋弘紀^B, 小山佳一^A

MnAl 合金の τ -相は強磁性で高いキュリー温度 ($T_C = 655\text{K}$) を持つ [1]。しかし τ -相は非平衡相であり、不規則 hcp 構造を有する ε -相からの熱処理によってしか得られない [2]。最近、磁場によって τ -相の合成が促進されることが報告され、 τ -相の強磁性により得られるエネルギー利得が相変態の駆動力となることが示唆された [3]。

本研究では、強磁場中示差熱分析 (DTA) 装置を用いて ε -相から τ -相への相変態を速度論的に評価し、相変態への磁場効果を明らかにする。反応焼結法により作製された $\text{Mn}_{55}\text{Al}_{45}$ を用いて、 0T から 15T までの磁場中 DTA 測定を昇温速度を変えて行った。

図 1 に活性化エネルギーの磁場依存性を示す。 0T から 10T までの磁場印加によって活性化エネルギーがおおよそ $6\text{kJ}/(\text{mol} \cdot \text{T})$ の割合で単調減少している。しかし 10T 以上の磁場印加では活性化エネルギーが急激に上昇していることを見出した。

- [1] H. Kono, J. Phys. Soc. Japan 13 (1958) 1444.
- [2] R. Kobayashi, et al., IEEE Magn. Lett. 8 (2017) 1400704.

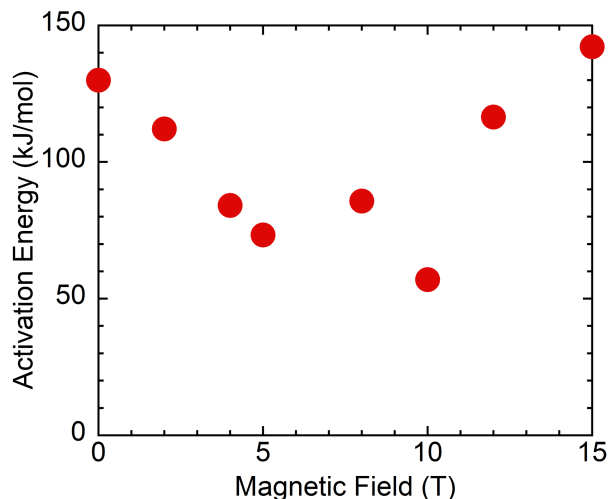


図1 活性化エネルギーの磁場依存性

- [1] J. H. Park, et al., J. Appl. Phys. 107 (2010) 09A731.

B-14

パラジウム水素系の磁性

九大院工^A 稲垣祐次^A, 川崎洋輔^A, 河江達也^A

パラジウムは強磁性に近い常磁性体であるが、水素を吸蔵させた PdHX では水素濃度 x に比例して磁性は減少し、約 $x=0.6$ で完全に消失することが報告されている [1]。また、広い水素濃度にわたって 50 60K 付近に電気抵抗や比熱に異常が見られる未解決の問題 (50K 異常) がある。更に $x=0.7$ 以上の高水素濃度では低温 ($\sim 10\text{K}$) で超伝導を示すことも明らかになっている [2]。これら興味深い物性の起源を解明する目的で、我々は最近、水素雰囲気下磁化測定を開始した。我々の室温での測定でも $x=0.6$ に向けての磁性の消失が確認されたが、加えて $x=0.1$ 以下の低水素濃度の領域で磁性がわずかに増大する現象が観測された。相図における α 相に対応する領域でのこの現象は、過去に報告例がない。

当日は低温領域も含めた結果の詳細を報告する。また可能であればパラジウムナノ粒子系での結果と合わせて、試料のサイズ依存性についても言及したいと考えている。

[1] R. J. Miller and C. B. Satterthwaite, Phys. Rev. Lett. 34, 144 (1975).

[2] T. Skoskiewicz, Phys. Stat. Sol. 11, K123 (1972).

B-15

マイクロマグシミュレーションによるスピン波伝播の数値解析

九大理^A 今野克洋^A, 松本慧大^A, 佐藤琢哉^A

スピン流の一種としてのスピン波は、マグノニクスという新しい分野で盛んに研究されている。スピン波の特性として、試料中に一つのエアギャップがあるときに、スピン波が透過することが観測されている [1]。また、エアギャップを周期的に入れた構造を持つマグノニック結晶中においても、スピン波が透過することが観測されている [2]。その一方で、ギャップとギャップとの間の領域については言及されていない。

そこで我々は2つのエアギャップを持つ試料において磁化をガウシアン状の波束として励起し、それによって生成されたスピン波が2つのギャップを透過する様子を、GPU ベースのマイクロマグネティックシミュレーションソフトである mumax3 を用いて計算した。講演では、その結果を時空間的に FFT し、また波数ごとに試料端での透過率を計算することによりギャップ間の領域で解析したことを報告する。

[1] T. Schneider, et al., EPL 90 27003 (2010)

[2] A. V. Chumak, et al., Appl. Phys. Lett. 93, 022508 (2008)

B-16

ブリルアン散乱による後方散乱マグノンモードの検出

九大理^A, Technische Universität Kaiserslautern,^B 松本 慧大^A, Thomas Brächer^B, Tobias Fischer^B, Burkard Hillebrands^B, 佐藤 琢哉^A

スピン波は、物質中の磁気モーメントの歳差運動が、相互作用を介して波のように伝播する現象である。そのスピン波には、双極子相互作用を介して伝わるもの、交換相互作用を介するもの、またその両方によるもの、という三つの異なるモードが存在する。それを検出するために、ブリルアン散乱という、物質に入射した光子と物質内のスピン波との非弾性散乱を用いた手法がしばしば用いられる。そこで我々はブリルアン散乱を用いて、熱平衡状態にある試料内部のスピン波を検出した。その結果、双極子相互作用が支配的なモード：静磁表面波 [1] と交換相互作用が支配的なモード：後方散乱マグノン [2] というスピン波が観測された。講演では、得られた結果を解析し、交換硬度 (exchange stiffness) の見積もりを行う。

[1] Phys. Rev. 118, 1208 (1960)

[2] Phys. Rev. Lett. 111, 107204 (2013)

B-17

磁性体におけるラマン散乱

九大理^A 吉瀬みのり^A, 徐維宏^A, 土田孝三^A, 佐藤琢哉^A

物質と光の相互作用を調べることは物性を知る上で大きな手助けとなることはよく知られているが、磁性体においては光と磁性体内のスピンとが磁気光学的相互作用することが興味深いと考えられている。当研究室ではその研究の一つとしてスピン波の制御、観測を行うためのポンプ・プローブ測定を行ってきた。そこで今回はその測定システムにおいて既に研究がなされているサンプルに関する結果との比較対照を行うことを目的としてラマン測定装置を構築した。

今回はいくつかのフェライト試料を用い、室温状態において角度分解偏光ラマン分光を行なった。これによって得られたラマンピークとポンプ・プローブでの測定の結果との整合性について報告する。