

強磁性量子臨界性物質 $\text{Nb}_{1-y}\text{Fe}_{2+y}$ の物性へのアニール効果Annealing Effect on Physical Properties of Ferromagnetic Quantum Critical Material $\text{Nb}_{1-y}\text{Fe}_{2+y}$ ○猪瀬卓己¹, 鈴木敦智², 高柳和也², 福島祥紘², 渡辺忠孝³*T. Inose¹, T. Suzuki², K. Takayanagi², Y. Fukushima², T. Watanabe³

Abstract: NbFe_2 has C14-type Laves-phase crystal structure, which consists of stacked Kagome layers of Fe(6h) sites. While NbFe_2 exhibits a spin density wave (SDW) transition at $T_N \sim 10$ K, nonstoichiometric $\text{Nb}_{1-y}\text{Fe}_{2+y}$ with $y \geq 0.01$ or $y \leq -0.02$ exhibits a ferromagnetic transition. In addition, $\text{Nb}_{1-y}\text{Fe}_{2+y}$ is suggested to exhibit nonstoichiometry-tuned ferromagnetic quantum criticality at $y_c \sim -0.015$. We investigated annealing effect on the structural, magnetic, and electrical properties of polycrystalline $\text{Nb}_{1-y}\text{Fe}_{2+y}$.

1. はじめに

Laves 化合物は、組成 AB_2 の金属間化合物であり、その A サイトと B サイトは原子半径比が $A : B = 1.225 : 1$ に近い値の組み合わせの希土類元素もしくは遷移元素からなる。Laves 化合物の結晶構造は、六方晶の C14 型(MgZn₂ 型)、立方晶の C15 型(MgCu₂ 型)、2重六方晶の C36 型(MgNi₂ 型)の 3 種に分類される。

C14 型 Laves 化合物 NbFe_2 は、B サイトの Fe(6h) がカゴメ格子を形成している (Figure 1)。カゴメ格子をはじめとする三角格子を基調とした結晶構造の磁性体は、幾何学的フラストレーションに由来する強いスピン揺らぎが生じるため、新奇かつ多彩な量子現象と基底状態が創出する。 NbFe_2 は $T_N \sim 10$ K でスピン密度波 (SDW) 転移を示すが、 NbFe_2 に不定比性を導入した $\text{Nb}_{1-y}\text{Fe}_{2+y}$ においては、不定比量 $y \geq 0.01$ (Fe-rich)、または $y \leq -0.02$ (Nb-rich) で強磁性転移を示すとの報告がなされており、磁性が不定比に敏感であることが示唆されている。 $\text{Nb}_{1-y}\text{Fe}_{2+y}$ については、 $y_c \sim -0.015$ で強磁性量子臨界点が発現するとの報告が近年なされており、注目を集めている [1, 2, 3]。

我々は $\text{Nb}_{1-y}\text{Fe}_{2+y}$ の物性へのアニール処理の効果を研究するため、 $\text{Nb}_{1-y}\text{Fe}_{2+y}$ の多結晶作成とアニール処理を行い、アニール処理前後の物性を評価したので報告する。アニール処理とは、適切な温度と時間で加熱することにより、試料作製で生じた試料内部のひずみや欠陥を取り除く熱処理のことである。アニール処理を行うことで、試料の純良化が期待される。

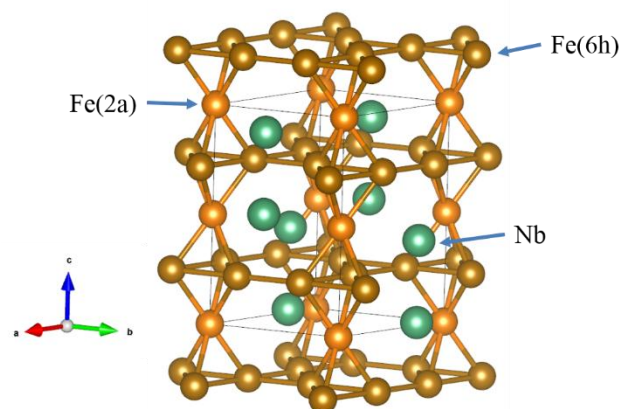


Figure 1. Crystal structure of C14-type Laves-phase compound NbFe_2

2. 実験方法

$\text{Nb}_{1-y}\text{Fe}_{2+y}$ の多結晶試料は、アルゴンガス雰囲気中でのアーク溶融法により作製した。原材料には Nb(99.9%) のインゴット、Fe(99.9%) の粉末を使用した。試料作製手順は、まず化学量論比に従い Nb インゴットの質量を基準として Fe 粉末を秤量し、5t で 20 分間 Fe 粉末を圧粉成形した。次に Nb インゴットと Fe 圧粉体をアーク溶融し凝固させて、 $\text{Nb}_{1-y}\text{Fe}_{2+y}$ の as-grown 多結晶試料を作製した。

作製した多結晶試料は、粉末 X 線回折 (XRD) 測定で結晶構造を評価し、磁化率および電気抵抗率の温度依存性を測定することで物性を評価した。その後、試料をアニール処理し、同様に結晶構造と物性を評価した。

多結晶試料のアニール処理は、全て同じ条件で行った (Figure 2)。アニール処理の手順は、まずタンタル箔で包んだ試料を石英管に入れ、真空ポンプで 3.0×10^{-3} Pa 以下に真空引きした後、封管した。次に、石英管に入った試料を電気炉に入れアニール処理を施した。

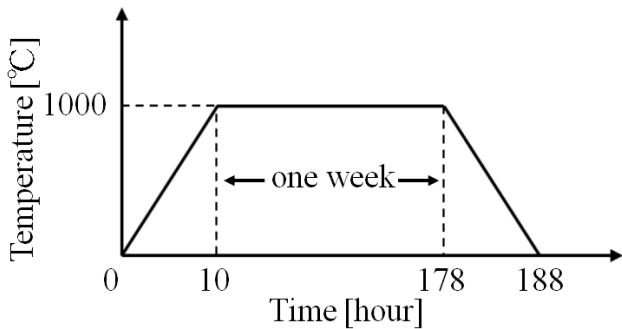


Figure 2. Annealing condition of polycrystalline $Nb_{1-y}Fe_{2+y}$

3. 実験結果

3-1. 粉末 X 線回折(XRD)測定

Figure 3 に $Nb_{1-y}Fe_{2+y}$ 多結晶試料 ($y = -0.010, -0.014, -0.034$) の粉末 XRD パターンを示す. as-grown 試料, アニール(annealed)試料ともに, 主相として C14 型の Laves 構造が得られたが, 多くの試料で NbO の不純物相が確認された(Figure 3 の▽).

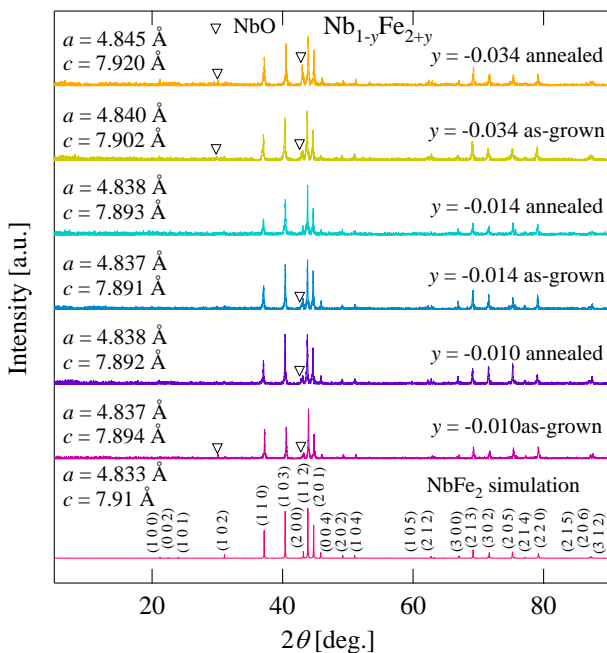


Figure 3. Powder XRD patterns of polycrystalline $Nb_{1-y}Fe_{2+y}$ ($y = -0.010, -0.014, -0.034$)

3-2. 磁化率測定

Figure 4 に $Nb_{1-y}Fe_{2+y}$ 多結晶試料 ($y = -0.010, -0.014, -0.034$) の $H = 100$ Oe での磁化率の温度依存性を示す. 全ての試料で, 強磁性転移が見られた.

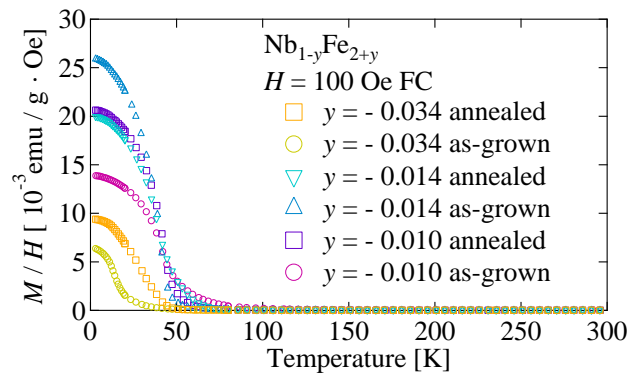


Figure 4. Temperature dependence of magnetic susceptibilities in polycrystalline $Nb_{1-y}Fe_{2+y}$ at $H = 100$ Oe ($y = -0.010, -0.014, -0.034$)

4. まとめ

C14 型 Laves 化合物 $Nb_{1-y}Fe_{2+y}$ の多結晶作製に成功したが, 多くの試料で NbO の不純物相が確認された. 作製した全ての多結晶試料で強磁性相転移が確認され, アニール処理を施すと, 磁気転移温度に変化が見られた.

当日の発表では, 異なる条件でのアニール処理の実験結果も含めて, より詳細に報告をする.

5. 参考文献

- [1] M. Brando *et al.*, Phys. Rev. Lett. **101**, 026401 (2008).
- [2] D. Moroni-Klementowicz *et al.*, Phys. Rev. B **79**, 224410 (2009).
- [3] S. Friedemann *et al.*, Nature Physics **14**, 62 (2018).