フラストレート系スピネル酸化物 ZnFe2O4における O - 26Fe サイトの Cr 置換効果

Study of magnetic Cr substitution effects in frustrated spinel oxide ZnFe₂O₄

大春大地1,小野拓海2,風間拓人2,村井亮太2,前田穂3,高野良紀3,高瀬浩一3,渡辺忠孝3 D. Oharu¹, T. Ono², T. Kazama², R. Murai², M. Maeda³, Y. Takano³, K. Takase³, T. Watanabe³

Abstract: Spinel oxide ZnFe₂O₄ is considered to be a geometrically frustrated magnet because of the absence of magnetic and structural phase transitions, we study effects of Cr substitutions in ZnFe₂O₄ by investigating structural and magnetic properties of polycrystalline $Zn(Fe_{1-x}Cr_x)_2O_4$.

1. はじめに

近年,磁性物理学の分野では、幾何学的フラストレート磁性体と呼ばれる物質群が注目を集め活発に研究が行われて いる.幾何学的フラストレーションとは、磁性体において磁性イオン間に強い磁気相互作用が働くにも関わらず、結 晶構造の幾何学的制約により磁気相転移が出来ない状況を指す.このような幾何学的フラストレート磁性体では、非 常に強いスピン揺らぎが生じる為、新奇かつ多彩な量子現象と基底状態が創出する.

スピネル酸化物 AB2O4は, B サイトが頂点共有の四面体からなるパイロクロア格子(Figure 1)を形成するが, このパイ ロクロア構造は、非常に強い幾何学的フラストレーションが生じることで知られている.スピネル酸化物 AB2O4 は、A サイト及び B サイトの構成元素の組み合わせによって非常に多くの種類の化合物を合成することができ、様々な物性 が現れることから、幾何学的フラストレート磁性体の中で

も最も盛んに研究が進められている.

フェライトスピネル ZnFe₂O₄は, A サイトが非磁性 Zn²⁺. 幾何学的フラストレーションの舞台となる B サイトが軌道 自由度をもたない磁性 Fe³⁺(S=5/2)で占められた結晶構造を 持っている(Figure 1). ZnFe₂O₄は Weiss 温度が $\Theta_w = +120$ K と強磁性的であり, $T_f \cong 13 \text{ K}$ で磁化率に異常を示すが, 低 温まで長距離磁気秩序と構造相転移を示さないことが中性 子散乱実験により確認されている[1].

今回我々は、ZnFe₂O₄の磁性 Fe³⁺サイトを軌道自由度をも たない磁性 Cr(S=3/2)で置換した混晶 Zn(Fe_{1-x}Cr_x)₂O₄の多結 晶作製と物性評価を行い,

ZnFe₂O₄のフラストレート磁性の元素置換効果を調べたので報告す る.



Figure 1. Crystal structure of spinel oxide AB_2O_4

2. 実験手順

Zn(Fe1-xCrx)2O4 多結晶は大気中焼成により作製した、原材料には ZnO 粉末(99.9%), Fe2O3 粉末(99.9%), Cr2O3 粉末 (99.9%)を用いた. それぞれの原材料を化学量論比に従って秤量しペレット状に成型した後に, ZnFe₂O₄(x=0)は 1100°Cで3時間, Zn(Fe_{1-x}Cr_x)₂O₄は800°Cを40時間, 続いて1100°Cで24時間, ZnCr₂O₄は,800°Cで40時間, 続いて1050°C で24時間、大気中で焼成した.作製した試料は粉末X線回折(XRD)測定で結晶構造の評価を行い、磁化率の温度依存 性の測定により物性を評価した.

3. 実験結果

作製した Zn(Fe_{1-x}Cr_x)₂O₄(x = 0, 0.3, 0.5, 1.0)の粉末 XRD パターンを Figure2 に示す. すべての試料で [ntencity[a.u.] ほぼ単相のスピネル構造が得ら れた. また, Cohen の最小二乗法 で求めた格子定数は Vegard 則に 従っており, Cr 置換量 x の増加に伴 う格子定数の減少を確認すること ができた(Figure 3). Zn(Fe_{1-x}Cr_x)₂O₄(x= 0, 0.3, 0.5)の磁場中冷却(FC: Field Cooling)とゼロ磁場冷却(ZFC: Zero-Field Cooling)での磁化率の温度依存性を Figure4 に示す. に *T*_f ≅ 10.0 K 以下 の低温で FC と ZFC の磁化率に 履歴が確認された.







Figure 3. Cr concentration x dependence of lattice constant in polycrystalline $Zn(Fe_{1-x}Cr_x)_2O_4$ (x = 0, x = 0.3, x = 0.5, x = 1.0)



Figure 4. Temperature dependence of magnetic susceptibilities in polycrystalline $Zn(Fe_{1-x}Cr_x)_2O_4$ (x = 0, x = 0.3, x = 0.5) 4. $\pm \&$

 $Zn(Fe_{1-x}Cr_x)_2O_4$ 多結晶では元素を置換してもスピネル構造が保持されることが確認できた. 当日は $ZnFe_2O_4$ のフラストレート磁性への Cr 置換効果の研究結果をより詳細に報告する予定である。

5. 参考文献

^[1] K. Kamazawa et al., Phys. Rev. B 68, 024412 (2003)