

フラストレート系スピングラス磁性体 $\text{Zn}(\text{Cr}_{1-x}\text{Ga}_x)_2\text{O}_4$ の超音波音速測定Ultrasound velocity measurement of frustrated spin-glass magnet $\text{Zn}(\text{Cr}_{1-x}\text{Ga}_x)_2\text{O}_4$ ○渡邊麻衣¹, 村下正樹², 高柳和也², 渡辺忠孝³*M. Watanabe¹, M. Murashita², K. Takayanagi², T. Watanabe³

Abstract: Frustrated spinel chromite ZnCr_2O_4 exhibits an antiferromagnetic transition at $T_N \sim 12$ K with cubic-to-tetragonal lattice distortion. This magnetostructural phase transition is restrained by substituting Ga for Cr. We study contribution of spin-lattice coupling to frustrated magnetism of $\text{Zn}(\text{Cr}_{1-x}\text{Ga}_x)_2\text{O}_4$ by performing ultrasound velocity measurements in the polycrystals.

1. はじめに

物性物理学の分野において、幾何学的フラストレート磁性体の研究が注目を浴びている。幾何学的フラストレーションとは、磁性原子のスピンの間に強い反強磁性相互作用が働くにも関わらず、格子の持つ幾何学的な制約により、低温まで磁気秩序が形成されない状況を指す。幾何学的フラストレート磁性体は強いスピン揺らぎが生じるため、新奇かつ多彩な物性を示すことが知られている。

スピネル酸化物 AB_2O_4 は、 A , B 構成元素の組み合わせにより、非常に多種類の物質の合成が可能な物質群であり、**Figure 1** に示す様に立方晶の結晶構造を有する。 B サイトは頂点共有した四面体から成り、強い幾何学的フラストレーションを生じさせるパイロクロア格子を形成している。このことから、スピネル酸化物は典型的なフラストレート磁性体であり、活発に研究が進められている。

クロムスピネル ZnCr_2O_4 は、 A サイトに非磁性イオン Zn^{2+} , B サイトに磁性イオン Cr^{3+} が位置する結晶構造を持ち(**Figure 1**)、ワイス温度 $\theta_w \sim -390$ K よりもはるかに低温の $T_N \sim 12$ K で反強磁性転移を示す典型的な幾何学的フラストレート磁性体である。 ZnCr_2O_4 においては、反強磁性転移が立方晶から正方晶への格子歪を伴って生じるが、これは結晶の対称性を低下させることでフラストレーションを解消するスピニヤンテラー転移であると考えられている[1]。

ZnCr_2O_4 における磁気構造相転移(スピニヤンテラー転移)は、 Cr サイトを Ga で置換することで抑制されることが知られている [2]。我々は、 ZnCr_2O_4 の磁気構造相転移への Ga 置換効果を研究するために、 $\text{Zn}(\text{Cr}_{1-x}\text{Ga}_x)_2\text{O}_4$ 多結晶について超音波音速測定を行っ

ている。この実験は、 $\text{Zn}(\text{Cr}_{1-x}\text{Ga}_x)_2\text{O}_4$ のフラストレート磁性へのスピン・格子結合の寄与を検証するものである。本稿では、超音波音速測定に用いる $\text{Zn}(\text{Cr}_{1-x}\text{Ga}_x)_2\text{O}_4$ 多結晶の作製と物性評価の結果について報告する。

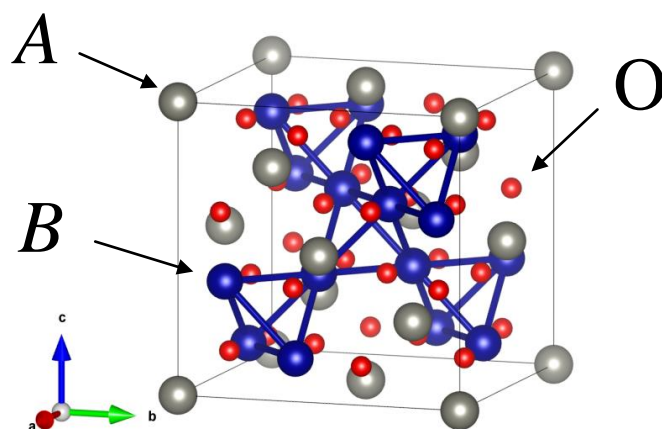


Figure 1. Crystal structure of spinel oxide AB_2O_4 .

2. 実験方法

$\text{Zn}(\text{Cr}_{1-x}\text{Ga}_x)_2\text{O}_4$ 多結晶試料は、原料として ZnO 粉末, Cr_2O_3 粉末, Ga_2O_3 粉末を使用して、空气中、大気封管中、真空封管中の3つの条件下で固相反応法によってそれぞれ作製した。原料粉末をそれぞれ秤量してから混合し、4トンで20分間、もしくは30分間圧粉した後に 1100°C , 24時間の焼成を行った(**Figure 2**)。

作製した試料は、粉末 X 線回折(XRD)測定により結晶構造を評価し、磁化率の温度依存性を測定

して磁気特性を評価した。

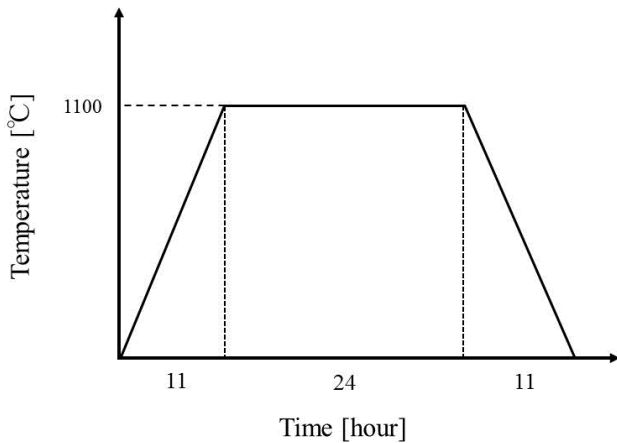


Figure 2 . Sintering condition of polycrystalline $\text{Zn}(\text{Cr}_{1-x}\text{Ga}_x)_2\text{O}_4$ ($x = 0.1$).

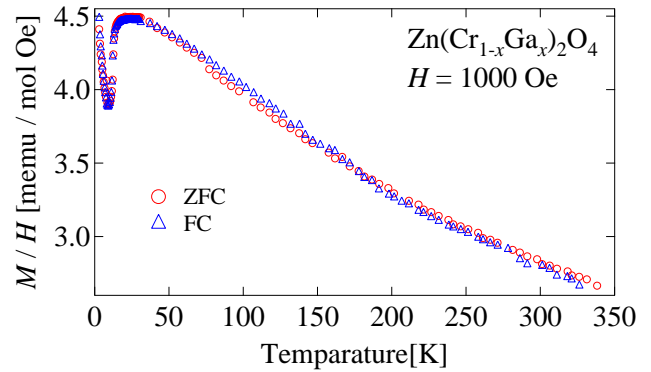


Figure 4. Magnetic susceptibility of polycrystalline $\text{Zn}(\text{Cr}_{1-x}\text{Ga}_x)_2\text{O}_4$ ($x = 0.1$) with $H = 1000$ Oe as a function of temperature.

3. 実験結果

3-1. 粉末 XRD 測定

Figure 3 に作製した $\text{Zn}(\text{Cr}_{1-x}\text{Ga}_x)_2\text{O}_4$ ($x = 0.1$) 多結晶試料の粉末 XRD 測定の結果を示す。ほぼ単相のスピネル構造を得られていることが分かる。

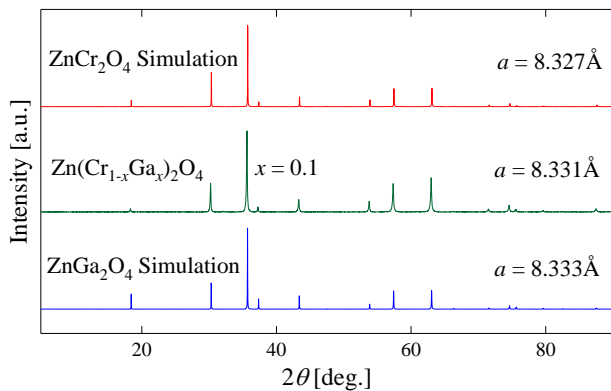


Figure 3. Powder XRD patterns of polycrystalline $\text{Zn}(\text{Cr}_{1-x}\text{Ga}_x)_2\text{O}_4$ ($x = 0.1$).

3-2. 磁化率測定

Figure 4 に $\text{Zn}(\text{Cr}_{1-x}\text{Ga}_x)_2\text{O}_4$ ($x = 0.1$) 多結晶試料における磁場中冷却(FC)とゼロ磁場冷却(ZFC)の磁化率の温度依存性を示す。高温ではキュリーワイス則に則った振る舞いを示し、 $T_N \sim 12.5$ K で反強磁性転移を示した。

4. まとめ

超音波音速測定に用いる $\text{Zn}(\text{Cr}_{1-x}\text{Ga}_x)_2\text{O}_4$ ($x = 0.1$) 多結晶試料の作製と物性評価を行った。粉末 XRD 測定により結晶構造を評価した結果、ほぼ単相のスピネル構造であることが確認できた。磁化率測定により、高温でのキュリーワイス則に則った振る舞いと、 $T_N \sim 12.5$ K での反強磁性転移を確認した。

現在、本稿の多結晶を用いた超音波音速測定が進行中である。

5. 参考文献

- [1] T. Watanabe *et al.*, Phys. Rev. B **86**, 144413(2012)
- [2] W. Ratcliff II *et al.*, Phys. Rev. B **65**, 220406(R)(2002).