

ハイエントロピー岩塩型酸化物 ($Mg_{0.2}Co_{0.2}Ni_{0.2}Cu_{0.2}Zn_{0.2}O$) の多結晶合成と超音波測定
 Polycrystal growth and ultrasound measurement of rocksalt-type high-entropy oxide ($Mg_{0.2}Co_{0.2}Ni_{0.2}Cu_{0.2}Zn_{0.2}O$)

○阿蛭聡一郎¹, 遠藤将², 菅沼さくら子², 渡辺忠孝³
 * S. Abiru¹, M. Endo², S. Suganuma², T. Watanabe³

Abstract: Rocksalt-type oxide ($Mg_{0.2}Co_{0.2}Ni_{0.2}Cu_{0.2}Zn_{0.2}O$) is a prototypical high-entropy compound, which exhibits a long-range antiferromagnetic order below $T_N \sim 120$ K despite its strong bond randomness. We synthesize polycrystalline ($Mg_{0.2}Co_{0.2}Ni_{0.2}Cu_{0.2}Zn_{0.2}O$) and investigate its structural, magnetic, and elastic properties to study the contribution of magnetoelastic coupling to the emergence of long-range antiferromagnetic order in such a highly random magnet.

1. はじめに

近年、材料・物性科学の分野では、ハイエントロピー物質の研究が活発に行われている。ハイエントロピー物質とは、結晶中の同一サイトを5種類以上の元素が等比組成でランダムに占有した固溶体である。このような物質は非常に多くの化学組成を取りうるため、新物質・新物性が多く見つかるのではないかと期待されている。

ハイエントロピー岩塩型酸化物 ($Mg_{0.2}Co_{0.2}Ni_{0.2}Cu_{0.2}Zn_{0.2}O$) は、NaCl 型立方晶構造 (空間群 $Fm\bar{3}m$) の物質であり、2015年にハイエントロピー化合物として初めて合成が報告された物質である (Figure 1) [1]。この物質は岩塩型酸化物 AO の A サイトをハイエントロピー化したものであり、ハイエントロピー A サイトが磁性元素 Co, Ni, Cu と非磁性元素 Mg, Zn で構成されるが (Figure 1), ランダム磁性体であるにもかかわらず $T_N \sim 120$ K で反強磁性転移を示す [2, 3]。この長距離磁気秩序への転移は、

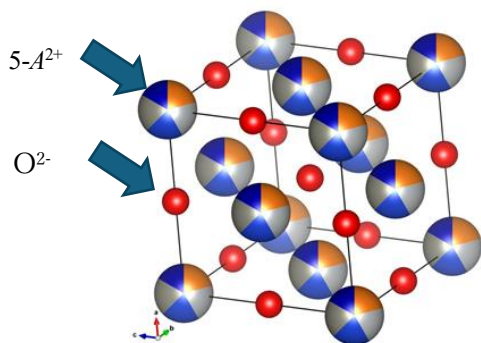


Figure 1. Crystal structure of rock-salt type ($Mg_{0.2}Co_{0.2}Ni_{0.2}Cu_{0.2}Zn_{0.2}O$)

ランダム磁気モーメントの格子秩序との結合 (磁気格子結合) に由来して生じている可能性がある。

我々は、($Mg_{0.2}Co_{0.2}Ni_{0.2}Cu_{0.2}Zn_{0.2}O$) の磁性への磁気格子結合の寄与を検証するために、この物質の多結晶試料を合成・評価し、超音波音速測定により弾性特性を調べている [4]。

2. 実験方法

($Mg_{0.2}Co_{0.2}Ni_{0.2}Cu_{0.2}Zn_{0.2}O$) の多結晶試料は、MgO, CoO, NiO, CuO, ZnO の粉末を使用して固相反応法によって作製した。試料は原材料の粉末をそれぞれ化学量論比に基づき秤量してから混合し、4 トンで 20 分間、または 30 分間圧粉をした後に $1000^{\circ}C$ で 13 時間焼成した後、急冷 (クエンチ) 処理を施した (Figure 2)。

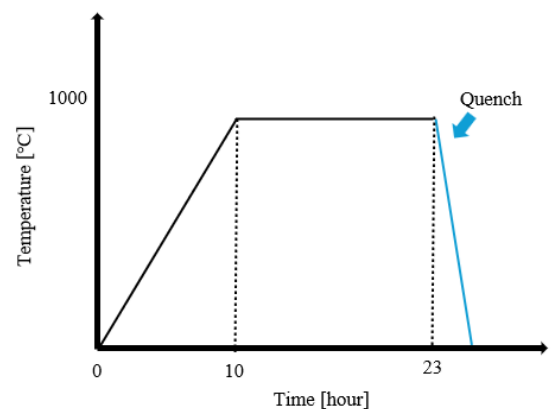


Figure 2. Sintering condition for polycrystal growth of ($Mg_{0.2}Co_{0.2}Ni_{0.2}Cu_{0.2}Zn_{0.2}O$)

作製した試料は、超音波測定に向けて粉末 X 線回折 (XRD) 測定により結晶構造を評価し、磁化率測定により磁気特性を評価した。

1: 日大理工・学部・物理 2: 日大理工・院 (前)・物理 3: 日大理工・教員・物理

3. 実験結果

3-1. 粉末 XRD 測定

Figure 3 に $(\text{Mg}_{0.2}\text{Co}_{0.2}\text{Ni}_{0.2}\text{Cu}_{0.2}\text{Zn}_{0.2})\text{O}$ 多結晶試料の粉末 XRD 測定の結果を示す。ほぼ単相の岩塩型構造が得られていることを確認した。

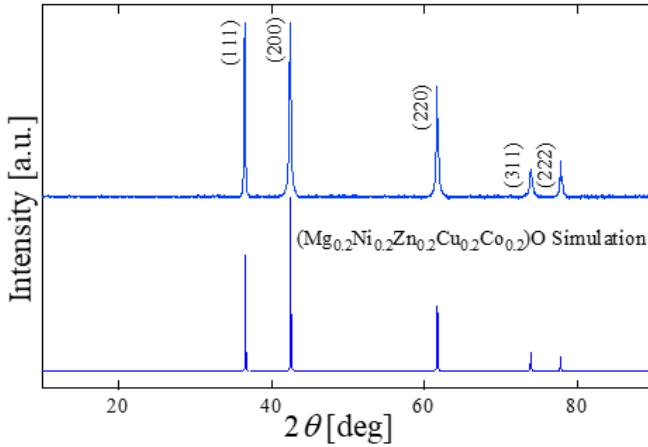


Figure 3. Powder XRD pattern of polycrystalline $(\text{Mg}_{0.2}\text{Co}_{0.2}\text{Ni}_{0.2}\text{Cu}_{0.2}\text{Zn}_{0.2})\text{O}$

3-2. 磁化率測定

Figure 4 に $(\text{Mg}_{0.2}\text{Co}_{0.2}\text{Ni}_{0.2}\text{Cu}_{0.2}\text{Zn}_{0.2})\text{O}$ 多結晶試料の外部磁場 $H = 1000 \text{ Oe}$ の下でのゼロ磁場冷却(ZFC) と磁場中冷却(FC)の磁化率と逆磁化率の温度依存性を示す。 $T_N \sim 120 \text{ K}$ での反強磁性転移を確認した。

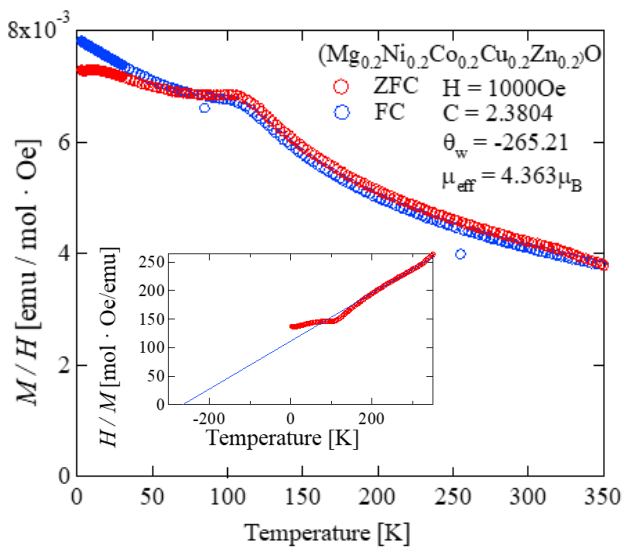


Figure 4. Temperature dependence of ZFC/FC magnetic susceptibility of $(\text{Mg}_{0.2}\text{Co}_{0.2}\text{Ni}_{0.2}\text{Cu}_{0.2}\text{Zn}_{0.2})\text{O}$ polycrystal at $H = 1000 \text{ Oe}$. The inset shows temperature dependence of the ZFC inverse magnetic susceptibility.

4. まとめ

$(\text{Mg}_{0.2}\text{Co}_{0.2}\text{Ni}_{0.2}\text{Cu}_{0.2}\text{Zn}_{0.2})\text{O}$ の多結晶試料を合成し、ほぼ単相の岩塩型構造を有し、 $T_N \sim 120 \text{ K}$ で反強磁性転移を示す試料を得ることができた。

現在は、 $(\text{Mg}_{0.2}\text{Co}_{0.2}\text{Ni}_{0.2}\text{Cu}_{0.2}\text{Zn}_{0.2})\text{O}$ の多結晶試料を用いた超音波測定を行うための条件出し(試料の厚み、焼成条件、圧粉時間等)を行っている。最適な測定条件を見出し次第、超音波音速測定、すなわち弾性率の温度依存性の測定を行う予定である。

5. 参考文献

- [1] C. M. Rost *et al.*: "Entropy-stabilized oxides" Nat. Commun. **6**, 8485 (2015).
- [2] M. P. Jimenez-Segura *et al.*: "Long-range magnetic ordering in rocksalt-type high-entropy oxides" Appl. Phys. Lett. **114**, 122401 (2019).
- [3] J. Zhang *et al.*: "Long-Range Antiferromagnetic Order in a Rocksalt High Entropy Oxide" Chem. Mater. **31**, 3705 (2019).
- [4] 西村嶺: 「擬ブルッカイト $A\text{Ti}_2\text{O}_5$ ($A = \text{Fe}, \text{Co}$)におけるスピニャーンテラー効果の検証」2022年度修士論文