

O-24

ハイエントロピー型スピネル(Mg_{0.2}Co_{0.2}Ni_{0.2}Cu_{0.2}Zn_{0.2})(Cr_xAl_{1-x})₂O₄ の多結晶合成Synthesis of Polycrystals of High-Entropy-Type Spinel (Mg_{0.2}Co_{0.2}Ni_{0.2}Cu_{0.2}Zn_{0.2})(Cr_xAl_{1-x})₂O₄○北澤侑人¹, 遠藤将², 菅沼さくら子², 渡辺忠孝³*Y. Kitazawa¹, M. Endo², S. Suganuma², T. Watanabe³

Abstract: Chromite spinel ZnCr₂O₄ is a typical geometrically-frustrated magnet exhibiting an antiferromagnetic transition at $T_N \sim 13$ K in coincidence with cubic-to-tetragonal lattice distortion. This magnetostructural transition in ZnCr₂O₄ is considered to be a release of frustration by lowering crystal symmetry, which is called Spin Jahn-Teller effect. High-entropy-type chromite spinel (Mg_{0.2}Co_{0.2}Ni_{0.2}Cu_{0.2}Zn_{0.2})Cr₂O₄ is also a frustrated magnet exhibiting an antiferromagnetic transition at $T_N \sim 30$ K. To study element substitution effect on frustrated magnetism of (Mg_{0.2}Co_{0.2}Ni_{0.2}Cu_{0.2}Zn_{0.2})Cr₂O₄, we perform synthesis and physical property evaluation of polycrystalline (Mg_{0.2}Co_{0.2}Ni_{0.2}Cu_{0.2}Zn_{0.2})(Cr_xAl_{1-x})₂O₄.

1. はじめに

近年、物性物理学の分野では、幾何学的フラストレート磁性体の研究が活発に行われている。幾何学的フラストレーションとは、磁性原子間に強い反強磁性相互作用が働くにも関わらず、格子が持つ幾何学的制約により低温まで磁気秩序が形成できない状態のことを指す。幾何学的フラストレート磁性体には強いスピン揺らぎが生じるので、新奇かつ多彩な物性が発見されることが期待される。

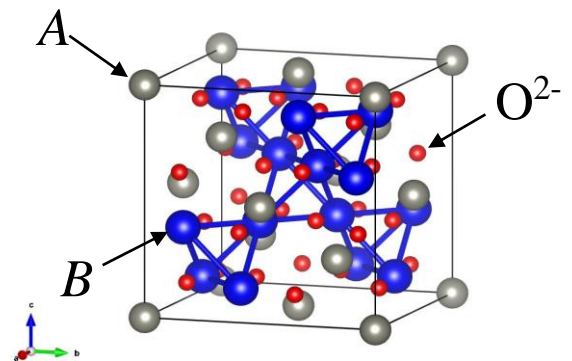
スピネル酸化物 AB₂O₄ は、立方晶の結晶構造（空間群 $Fd-3m$ ）を有し、B サイトが頂点共有の正四面体から構成されるパイロクロア構造を形成していることにより、強い幾何学的フラストレーションを生じる構造となっている(Figure1)。

クロムスピネル ZnCr₂O₄ は、A サイトが非磁性 Zn²⁺、B サイトが磁性 Cr²⁺ で構成される物質であり、ワイス温度 $\theta_W \sim -390$ K よりもはるかに低温の $T_N \sim 13$ 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[1]。ZnCr₂O₄ の $T_N \sim 13$ K での反強磁性転移は、立方晶から正方晶への格子歪を伴うが、この磁気構造相転移は結晶の対称性を下げることでフラストレーションを解消する転移（スピニャーンテラー転移）であると考えられている[2]。

クロムスピネル ACr₂O₄ については、A サイトが 5 種の等比組成の元素で構成されるハイエントロピー物質 (5-A)Cr₂O₄ の多結晶合成が最近になり報告されている[3]。このうち(Mg_{0.2}Co_{0.2}Ni_{0.2}Cu_{0.2}Zn_{0.2})Cr₂O₄ は、ワイス温度 $\theta_W \sim -500$ K よりもはるかに低温の $T_N \sim 30$ K で反

強磁性転移を示すことから、非常に強いフラストレーションが生じていると考えられている[3]。

我々は、(Mg_{0.2}Co_{0.2}Ni_{0.2}Cu_{0.2}Zn_{0.2})Cr₂O₄ のフラストレート磁性への元素置換効果を研究するために、磁性 Cr サイトを非磁性 Al で置換した混晶 (Mg_{0.2}Co_{0.2}Ni_{0.2}Cu_{0.2}Zn_{0.2})(Cr_xAl_{1-x})₂O₄ の多結晶合成を行い、結晶構造と磁気特性を調べたので報告する。

Figure 1. Crystal structure of spinel oxide AB₂O₄

2. 実験方法

(Mg_{0.2}Co_{0.2}Ni_{0.2}Cu_{0.2}Zn_{0.2})(Cr_xAl_{1-x})₂O₄ の多結晶試料は、原料として MgO 粉末、CoO 粉末、NiO 粉末、CuO 粉末、ZnO 粉末、Cr₂O₃ 粉末、Al₂O₃ 粉末を使用して空気中での固相反応法によって作製した。原料粉末を化学量論比に基づいて秤量してから混合し、4t で 20 分間圧粉した後に 24 時間焼成を行った。

作製した試料については、粉末 X 線回折(XRD)測定

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

による結晶構造の評価, 磁化測定による磁気特性の評価を行った.

3. 実験結果

3-1. 粉末 XRD 測定

Figure 2 に $(\text{Mg}_{0.2}\text{Co}_{0.2}\text{Ni}_{0.2}\text{Cu}_{0.2}\text{Zn}_{0.2})(\text{Cr}_x\text{Al}_{1-x})_2\text{O}_4$ ($x = 0, 0.1, 0.2, 1$) の多結晶試料における粉末 XRD 測定の結果を示す. いずれの試料でも主相としてスピネル構造が得られた.

発表では, $(\text{Mg}_{0.2}\text{Co}_{0.2}\text{Ni}_{0.2}\text{Cu}_{0.2}\text{Zn}_{0.2})(\text{Cr}_x\text{Al}_{1-x})_2\text{O}_4$ ($x = 0 \sim 1$) の多結晶試料の粉末 XRD 測定, 磁化測定の結果を報告する.

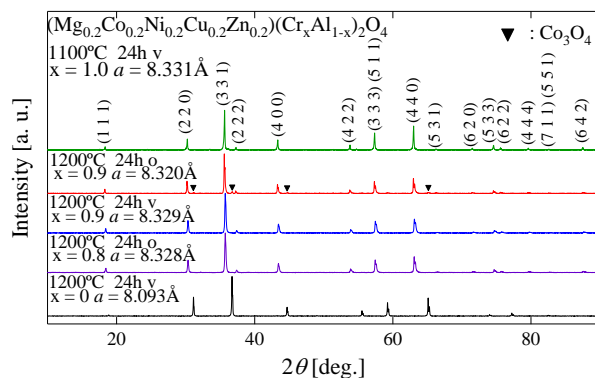


Figure2. Powder XRD patterns of polycrystalline $(\text{Mg}_{0.2}\text{Co}_{0.2}\text{Ni}_{0.2}\text{Cu}_{0.2}\text{Zn}_{0.2})(\text{Cr}_x\text{Al}_{1-x})_2\text{O}_4$ ($x = 0, 0.1, 0.2, 1$).

4. 参考文献

- [1] H. Ueda *et al.*, Prog. Theor. Phys. **159**, 256 (2005).
- [2] T. Watanabe *et al.*, Phys. Rev. B **86**, 144413 (2012).
- [3] B. Musicó *et al.*, Phys. Rev. Mater. **3**, 104416 (2019).