

## 二重スピン鎖化合物 $\text{LaCrO}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ の物性評価

### Characterization of double spin chain compound $\text{LaCrO}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$

○鈴木健太<sup>1</sup>, 高瀬浩一<sup>2</sup>, 高野良紀<sup>2</sup>\*Kenta Suzuki<sup>1</sup>, Kouiti Takase<sup>2</sup>, Yosiki Takano<sup>2</sup>

Abstract: The double spin chain compound  $\text{LaCrOS}_2$  is a promising compound for quantum mechanical effects. It is also known that  $\text{LaCrOS}_2$  and  $\text{LaCrOSe}_2$  have Curie temperatures of 35 K and 51 K, respectively. Then, we synthesized samples of  $\text{LaCrO}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$  and evaluated the changes in crystal structure and magnetic properties.

#### 1. 背景・目的

$\text{LaCrOS}_2$ では磁性元素であるCrがジグザグに配列した二重鎖を形成しており、鎖内のCr原子同士の距離は鎖間におけるCr原子同士の距離に比べて接近している。このような擬一元的なスピン系では量子力学的効果が強くあらわれることが期待できる。

また、本研究室では過去に $\text{LaCrOS}_2$ が35K付近にキュリー温度 $T_c$ がある強磁性体であることを報告した<sup>[1]</sup>。一方、SをSeに置換した、 $\text{LaCrOSe}_2$ の $T_c$ が51Kになることが知られている<sup>[2]</sup>。

そこで $\text{LaCrOS}_2$ のSをSeに置換させた多結晶試料の合成と物性評価を行い、Se置換によるキュリー温度 $T_c$ と格子定数の変化を調べる。

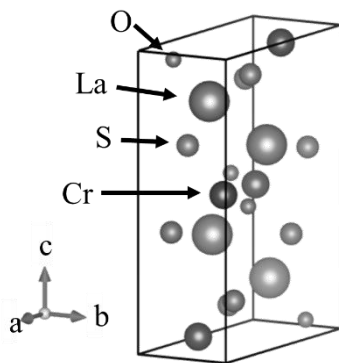


Figure 1. Crystal structure of double spin chain compound  $\text{LaCrO}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$

#### 2. 実験方法

##### 2.1 試料作成

$\text{LaCrO}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ 多結晶試料は、原材料として $\text{La}_2\text{O}_3$ 粉末(99.99%)、La粉末(99.9%)、Cr粉末(99.9%)、Se粉末(99.9%)、S粉末(99.99%)を使用して真空中での固相反応法によって作成した。湿気を吸いやすい性質を持つ $\text{La}_2\text{O}_3$ については900°Cで48時間仮焼きを行い、その後Ar雰囲気中で原料粉末を化学量論比にしたがっ

て秤量してから混合し、石英管に入れ真空封入し、1015°Cで24時間焼成を行った。そして純良化するため、焼成した試料を再粉砕し、6tで10分間圧粉を行い、石英管に入れ真空封入し、1015°Cで24時間の焼成を3回行った。

##### 2.2 評価方法

粉末X線回折測定にて結晶構造評価を行い、物性評価としてPPMSを用いて磁化率の温度依存性・磁場依存性を測定した。

#### 3. 実験結果

##### 3.1 粉末X線回折測定

Figure 2に $\text{LaCrO}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ 多結晶試料における粉末X線回折測定の結果を示す。いずれのSe置換を行った試料において、 $\text{La}_2\text{O}_2\text{S}$ が不純物として観測されるがその存在比は $x=0.0$ においても少なくほぼ単相の試料が得られている。

また、Seの割合が増えるにつれピークが低角に推移しTable 1の格子定数についてもa軸、b軸、c軸がSeの割合が増えるにつれ全て増加している。これは、SよりSeがイオン半径が大きいためでありSe置換されていることを示している。

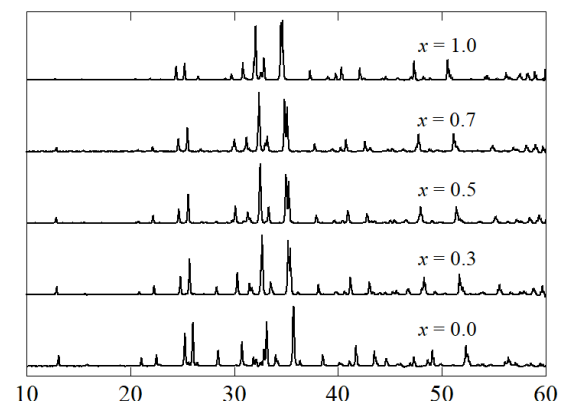


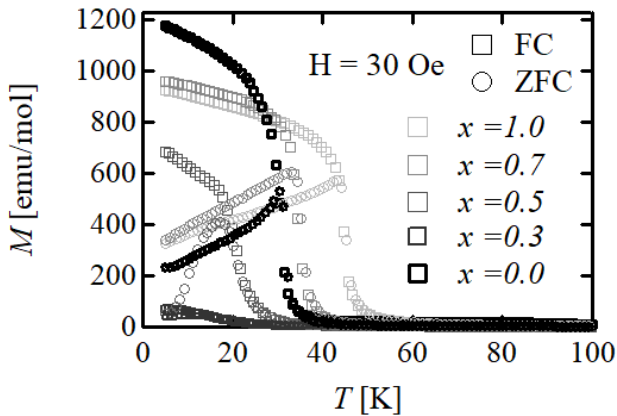
Figure 2. XRD patterns of polycrystalline  $\text{LaCrO}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$

**Table 1.** Lattice constant of  $\text{LaCrO}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$

|           | 空間群    | 格子定数    |         |         |
|-----------|--------|---------|---------|---------|
|           |        | $a$ (Å) | $b$ (Å) | $c$ (Å) |
| $x = 1.0$ | $Pnma$ | 8.676   | 3.841   | 11.595  |
| $x = 0.7$ | $Pnma$ | 8.560   | 3.807   | 11.46   |
| $x = 0.5$ | $Pnma$ | 8.497   | 3.781   | 11.380  |
| $x = 0.3$ | $Pnma$ | 8.462   | 3.757   | 11.321  |
| $x = 0.0$ | $Pnma$ | 8.419   | 3.708   | 11.222  |

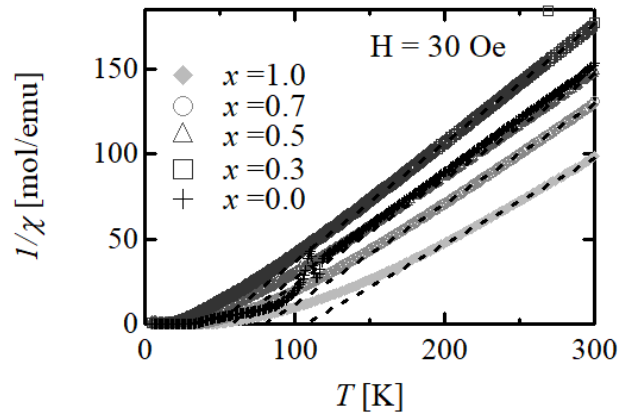
3.1 磁化率測定

Figure 3 に  $\text{LaCrO}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$  多結晶試料における磁場中冷却(FC), ゼロ磁場冷却(ZFC)での磁化率の温度依存性を示す. 約 60K 以下で急激に増加しており強磁性的相互作用が支配的であることを示している.  $x=0.3$  へ近づくにつれ低温の磁化の大きさが小さくなった.  $x=0.0$ ,  $x=1.0$  に比べ約 1/10 ほど急激に減少した.



**Figure 3.** Temperature dependence of Magnetic susceptibility of polycrystalline  $\text{LaCrO}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$

Figure 4 に逆帯磁率の温度依存性, Table 2 にキュリー温度( $T_c$ ), 常磁性 Curie 温度( $\theta_p$ ), 有効磁気モーメント( $p$ ), 交換相互作用定数( $J$ ),  $g$ -因子( $g$ )を示す. 文献値は  $\text{LaCrOS}_2$  のものであり今回作製した  $x=0.0$  の値と比較的近い値を示しており,  $x=0.3$  に向かって値が全て低くなっていることが確認された. また,  $\text{LaCrOS}_2$  のみ約 116K 付近にも微小な磁化のとびが存在することが分かった.



**Figure 4.** Temperature dependence of the inverse susceptibility of polycrystalline  $\text{LaCrO}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$

**Table 2.** Value calculated from magnetic susceptibility measurement of polycrystalline  $\text{LaCrO}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$

|                   | $T_c$ (K) | $\theta_p$ (K) | $p$ ( $\mu_B$ ) | $J$ (K) | $g$   |
|-------------------|-----------|----------------|-----------------|---------|-------|
| $x = 1.0$         | 43        | 107            | 3.942           | 40.66   | 1.82  |
| $x = 0.7$         | 33        | 81             | 3.656           | 28.51   | 1.744 |
| $x = 0.5$         | 20        | 62             | 3.587           | 19.44   | 1.852 |
| $x = 0.3$         | 16        | 48             | 3.378           | 10.59   | 1.888 |
| $x = 0.0$         | 31        | 57             | 3.524           | 29.72   | 2.036 |
| 文献 <sup>(1)</sup> | 32        | 60             | 3.75            | 27      | 1.93  |

4. まとめ

二重スピン鎖化合物  $\text{LaCrO}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$  について多結晶作製と物性評価を行った. X 線回折測定を行った結果, ほぼ純良な試料を得られたことが確認され, 結晶が Se に置換されるにつれ単位格子が順当に増加することが分かった. 磁化率測定を行ったところ, 約 60K 以下で強磁性的相互作用が支配的になり,  $\text{LaCrOS}_2$  のみ約 116K 付近にも微小な磁化のとびが存在することが分かった. また,  $x=0.3$  に向かって低くなる変化していくことが観測された. 当日の発表では,  $x=0.5$  以下の試料を細かい間隔で作成し  $x=0.3$  付近のより詳細な変化を含めて報告する.

5. 参考文献

[1] 北村剛:「二重スピン鎖化合物  $\text{LaCrOS}_2$  の磁化と比熱」,修士論文(日本大学大学院理工学部研究科),1999  
 [2] C. Stock and E. E. McCabe, (2016), J. Phys.: Condens. Matter 28, 453001.