

カルコゲナイドスピネル FeCr_2S_4 の高磁場磁化測定

Magnetic Properties of Chalcogenide-Spinel FeCr_2S_4 .

鹿児島大・理 伊藤 昌和
東北大金研 小山 佳一

M. Ito¹, K. Koyama²

¹ Department of Physics, Kagoshima University

² Institute for Materials Research, Tohoku University

1. はじめに

AB_2X_4 (A :3d 原子、 B :d 電子原子、 X : S, Se, Te) で表されるカルコゲナイドスピネル化合物は、磁氣的、電気伝導的特性において多彩な物性を示すことから、古くから注目を集めている系である。 FeCr_2S_4 は、巨大磁気抵抗を示すことが報告され[1]、その物性が精力的に調べられている物質である。また、結晶構造の幾何学性に由来する磁氣的フラストレーションを示す系としても知られている。[2] FeCr_2S_4 の Cr イオンは価数 $3+$ ($3d^3$, $S = 3/2$) で存在し、八面体サイトを占めている。一方、Fe イオンは四面体サイトに価数 $2+$ ($3d^6$, $S = 2$) で存在している。このとき Cr^{3+} イオン間には強磁性相互作用が、 Fe^{2+} 間には弱い反強磁性相互作用が働いているが、 Cr^{3+} - Fe^{2+} イオン間には強い反強磁性相互作用が存在する。このため、 FeCr_2S_4 は Cr^{3+} イオンと Fe^{2+} イオンの磁気モーメントが反平行に並ぶ、フェリ磁性転移を $T_N = 170$ K で起こす。ところで、磁性イオンの軌道に注目してみると、 Fe^{2+} は e_g 軌道を 3 個の電子が占めており、ヤーン・テラー (JT) 活性イオンである。これに起因して、 $T_0 = 9$ K では JT 転移が起きる。[3]

本研究では、カルコゲナイドスピネル FeCr_2S_4 の強磁場下における磁性と軌道秩序の関係を調べるために強磁場磁化測定を行った。

2. 実験

実験に用いた FeCr_2S_4 多結晶試料は固相反応法により作成した。高磁場磁化測定は東北大学金属材料研究所附属強磁場超伝導材料センターの超伝導マグネット 18T-SM を使い、磁場範囲 $0 < B < 14$ T で、引き抜き法により測定を行った。比熱は、断熱ヒートパルス法により $1.5 < T < 300$ K の温度範囲で鹿児島大学において測定した。

3. 実験結果

Fig. 1 (a) に零磁場下、温度範囲 $1.5 < T < 300$ K での比熱の温度依存性を示す。 $T_N = 166$ K でフェリ磁性転移に伴う比熱の異常が現れている。また Fig. 1 (b) に示すように、 $T_0 = 7.4$ K で JT 転移による λ 状の異常が現れている。

Fig. 2 に $B = 6$ T での磁化の温度依存性を示す。 ~ 180 K 以下で温度減少とともに磁化が増加し、50 K 付近で最大となった後、わずかに減少している。低

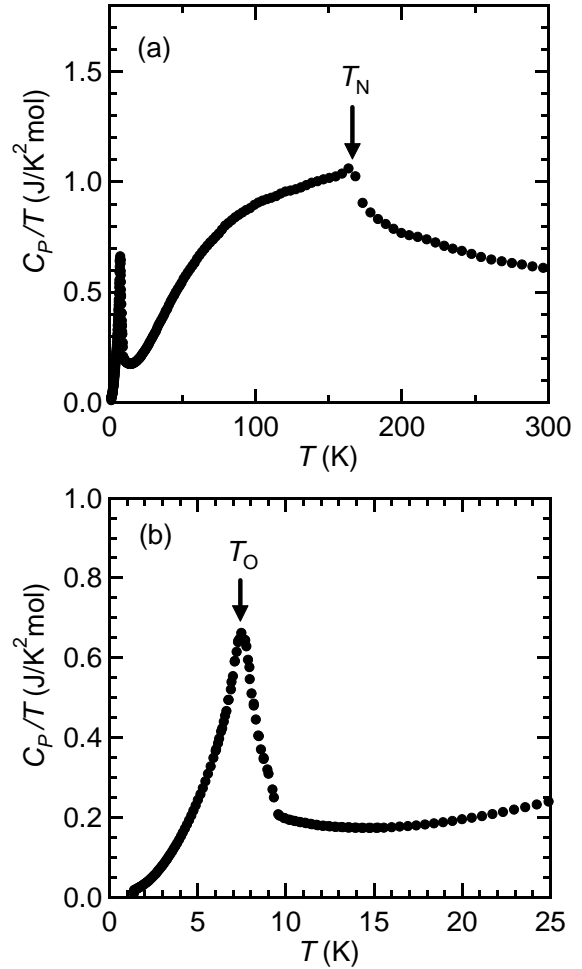


Fig. 1 Temperature T dependence of specific heat C_P/T for FeCr_2S_4 in the range (a) $1.5 < T < 300$ K and (b) $1.5 < T < 25$ K.

磁場下 ($< 1000\text{e}$) の磁化測定では、この温度域でカusp状の異常が現れる温度域であり、低温度領域では磁場中冷却 (FC) と零磁場冷却 (ZFC) で差が現れることが報告されている。[4] これは、スピングラス状態の特徴的振る舞いである。このことより、われわれの結果で見られる、磁化の 50 K 以下の磁化の減少は、磁氣的フラストレーションに起因しているものと考えられる。

Fig. 3 に $4 < B < 14$ T における磁化の温度依存性を示す。50 K 付近で見られる磁化の極大は、磁場増加とともに低温度へシフトしている。また、低温度領

域での磁化の減少の割合も小さくなっている。これは、強磁場を印加したことで FeCr_2S_4 の磁氣的フラストレーションが弱められたためと考えられる。また $B > 6 \text{ T}$, $T < T_0$ で、温度減少に従い、磁化が増加していることがわかる。低磁場下 ($< 100 \text{ Oe}$) の磁化測定において、FC の測定で類似の異常が見られることが報告されている。[4] しかし、高磁場磁化測定で現れる異常は、FC、ZFC ともに見られることから、発現の機構は異なると考えられる。おそらく、この異常は Fe^{2+} の磁気モーメントに起因しており、結晶構造、磁性および磁氣的フラストレーションが絡み合った結果と思われる。

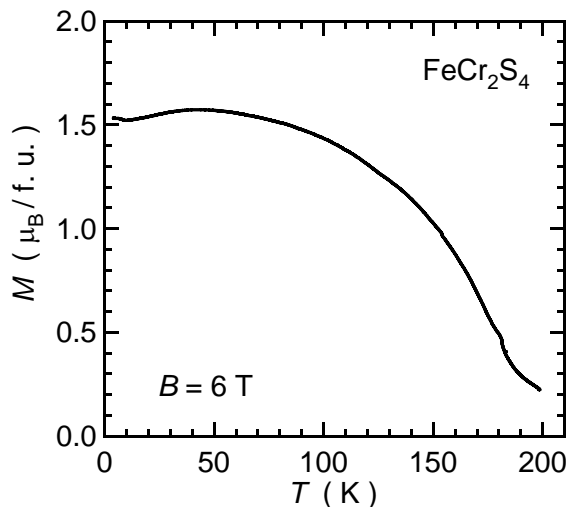


Fig. 2 Temperature dependence of magnetization M for FeCr_2S_4 at $B = 6 \text{ T}$.

4. まとめ

カルコゲナイドスピネル FeCr_2S_4 の強磁場下における磁性と軌道秩序の関係を調べるために強磁場磁化測定を行った。 FeCr_2S_4 の磁氣的フラストレーションは強磁場により弱められることがわかった。また、6 T 以上の磁化の温度依存性において、 T_0 以下で磁化が増加する振る舞いを見出した。これらの実験結果は、 FeCr_2S_4 が結晶構造、磁性および磁氣的フラストレーションが複雑に絡み合った系であることを示している。

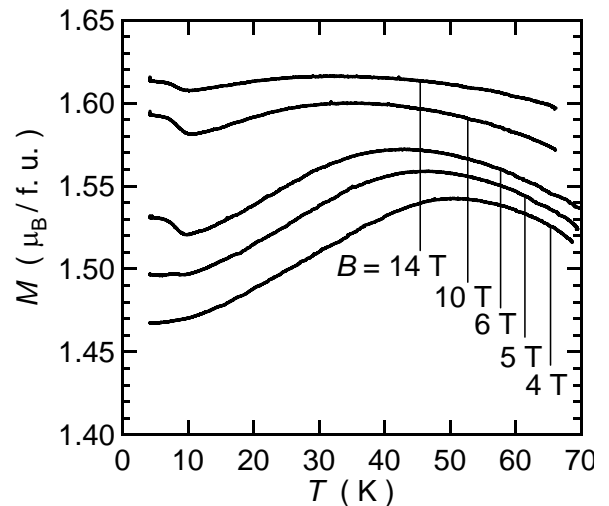


Fig. 3 Temperature dependence of magnetization for FeCr_2S_4 at $B = 4, 5, 6, 10$ and 14 T .

参考文献

- [1] A. P. Ramirez, R. J. Cava and J. Krajewski, *Nature* 156, 386 (1997).
- [2] R. Fichtl, V. Tsurkan, P. Lunkenheimer, J. Hemberger, V. Fritsch, H.-A. Krug von Nidda, E.-H. Scheidt and A. Loidl, *Phys. Rev. Lett.* 131, 505 (2004).
- [3] M. R. Spender and A. H. Morrish, *Solid State Commun.* 11, 1417 (1972).
- [4] V. Tsurkan, J. Groza, G. Bocelli, D. Samusi, P. Petrenco, V. Zestrea, M. Baran, R. Symczak, H. Symczak, M. Mucksch, F. Haider and R. Tidecks, *J. Phys. Chem. Solid.* 2040, 66 (2005).