Магнитные свойства монокристаллов твердых растворов $(Feln_2S_4)_{1-x}(ln_2S_3)_x$

© И.В. Боднарь [¶], М.А. Новикова, С.В. Труханов *

Белорусский государственный университет информатики и радиоэлектроники, 220013 Минск, Белоруссия * Научно-практический центр Национальной академии наук Белоруссии по материаловедению, 220072 Минск, Белоруссия

(Получена 18 июня 2012 г. Принята к печати 25 июня 2012 г.)

Направленной кристаллизацией расплава выращены монокристаллы твердых растворов (FeIn₂S₄)_{1-x}(In₂S₃)_x во всем интервале концентраций. На полученных монокристаллах проведены исследования магнитных свойств в интервале температур 4–300 К и полях 0–14 Тл. Установлено, что почти все твердые растворы являются парамагнетиками, вплоть до самых низких достижимых температур \sim 4 К. Показано, что основным магнитным фазовым состоянием исследуемых твердых растворов является состояние спинового стекла с температурой замерзания, монотонно вырастающей с ростом концентрации катионов Fe²⁺. Обсуждаются наиболее вероятные причины и механизм образования магнитного состояния кристаллов (FeIn₂S₄)_{1-x}(In₂S₃)_x.

1. Введение

Соединение In_2S_3 , которое образуется на разрезе In-S, может существовать в нескольких структурных модификациях [1-5] и относится к полупроводниковым материалам типа А^{III}В^{VI}₃. Указанное соединение является широкозонным полупроводником и в последнее время к нему привлечено внимание исследователей как к материалу "окна" в тонкопленочных фотовольтаических приборах с целью замещения CdS. Введение ферромагнитных атомов, какими являются атомы железа, в соединение In₂S₃ приводит к изменению существующих и появлению новых уникальных физических свойств в этом соединении, сочетающих в себе как полупроводниковые, так и магнитные свойства, и дает основание предполагать, что полученные новые материалы могут использоваться для создания на их основе новых приборов для спинтроники [6-8]. В данной работе представлены результаты исследования магнитных свойств твердых растворов (FeIn₂S₄)_{1-x}(In₂S₃)_x.

2. Методика эксперимента

Монокристаллы твердых растворов $(FeIn_2S_4)_{1-x}(In_2S_3)_x$ выращивали из расплава (вертикальный метод Бриджмена). Исходными материалами для выращивания монокристаллов служили поликристаллические слитки, синтезированные двухтемпературным методом по методике, описанной в работе [9]. Полученные слитки измельчали и перегружали в двойные конусообразные кварцевые ампулы, из которых внутренняя ампула заканчивалась цилиндрическим капилляром, который обеспечивал формирование монокристаллической затравки. После вакуумирования ампулу помещали в вертикальную однозонную печь с заданным градиентом температуры.

повышали со скоростью ~ 100 К/ч до 1400–1420 К и для гомогенизации расплава выдерживали при этой температуре ~ 2 ч. После указанного времени выдержки проводили направленную кристаллизацию расплава, понижая температуру печи со скоростью ~ 2 К/ч до полного затвердевания расплава. Для гомогенизации полученных слитков их отжигали при ~ 1020 К в течение 250 ч. Разработанный режим обеспечивал воспроизводимое получение монокристаллических слитков диаметром ~ 14–20 мм и длиной ~ 40 мм.

Гомогенность твердых растворов (FeIn₂S₄)_{1-x} (In₂S₃)_x определяли рентгеновским методом. Проведенные исследования показали, что на дифрактограммах как соединений, так и твердых растворов на их основе присутствуют рефлексы отражения, характерные для кубической структуры шпинели. Разрешение высокоугловых линий на дифрактограммах свидетельствует о гомогенности твердых растворов.

Состав выращенных кристаллов определяли исходя из выполнения в системе FeIn₂S₄-In₂S₃ закона Вегарда [9].

Исследования удельного магнитного момента были выполнены с помощью универсальной криогенной высокополевой измерительной системы (Liquid Helium Free High Field Measurement System by Cryogenic Ltd, London, UK) в интервале температур 4-300 К и полей 0-14 Тл [10]. Указанные измерения проводились на монокристаллических образцах, вырезанных из полученных слитков. Были выполнены измерения в зависимости от температуры в разных полях в режиме отогрева после охлаждения без поля (ZFC) и в поле (FC) [11]. Измерения удельного магнитного момента в режиме полевого охлаждения (FC) проводили в прямом и обратном направлении изменения температуры. Температуру замерзания магнитных моментов ферромагнитных кластеров T_f определяли как температуру, которая соответствует максимуму ZFC-кривой. Температуры начала расходимости ZFC- и FC-кривых при возрастании

[¶] E-mail: chemzav@bsuir.by

(T_{rev}) и уменьшении (T_x) температуры определяли в точках, для которых различия превышали 3%. Температуру магнитного упорядочения (T_{mo}) определяли по температурной зависимости FC-кривой как точку, эквивалентную точке минимума производной FC-кривой по температуре (min $\{dM_{\rm FC}/dT\}$). Температура магнитного упорядочения является хорошо определяемой величиной, характеризующей, кроме того, начало широкого температурного интервала, в котором осуществляется переход исследуемого образца в парамагнитное состояние [12]. В точке минимума производной меняется характер поведения с температурой FC-зависимости от "выгнутой вверх" к "выгнутой вниз", что соответствует переходу от ее быстрого убывания к медленному. Таким образом, температура магнитного упорядочения определяет окончание быстрого убывания магнитного момента с ростом температуры [13]. Спонтанный атомный магнитный момент (σ_s) определяли по полевой зависимости линейной экстраполяцией к нулевому полю. Анализ экспериментальных данных и численные расчеты выполнены с помощью компьютерной программы Origin 7.5.

3. Экспериментальные результаты и их обсуждение

Проведенные нами ранее магнитные измерения монокристаллов FeIn₂S₄ показали, что это соединение характеризуется температурой магнитного упорядочения $T_{\rm mo} \approx 22$ K [14]. С увеличением поля температура магнитного упорядочения $T_{\rm mo}$ смещается в сторону высоких температур. Установлено также отсутствие различий при измерении FC-кривых в прямом и обратном направлении изменения температуры, что наблюдается при классических магнитных переходах II рода [15]. В области 12 К наблюдается уменьшение удельного магнитного момента с уменьшением температуры. Такое поведение характерно для антиферромагнитного состояния [16]. Температура этого перехода составляет ~ 13 К в поле 1 Тл и незначительно уменьшается до ~ 12 К в поле 5 Тл.

При измерении и анализе магнитных свойств монокристаллов твердых растворов $(FeIn_2S_4)_{1-x}(In_2S_3)_x$ обнаружены следующие особенности. Во-первых, почти все составы являются парамагнетиками, вплоть до самых низких достижимых в данной работе температур ~ 4 K (рис. 1). Удельный магнитный момент монотонно возрастает с уменьшением температуры для всех составов. Ниже 4 K наблюдается тенденция к насыщению удельного магнитного момента. Температура магнитного упорядочения постепенно возрастает с ростом концентрации катионов железа Fe^{2+} от ~ 10 K для $Fe_{0.1}In_{2.0}S_{2.8}$ до ~ 18 K для $Fe_{0.8}In_{2.0}S_{3.8}$. Увеличение магнитного поля от 1 до 5 Tл закономерно увеличивает удельный магнитный момент и температуру магнитного упорядочения (рис. 1).



Рис. 1. Температурные зависимости удельного магнитного момента в полях 1 Тл (темные кружки) и 5 Тл (светлые кружки) для составов: $a - \text{Fe}_{0.1}\text{In}_{2.0}\text{S}_{2.8}$, $b - \text{Fe}_{0.2}\text{In}_{2.0}\text{S}_{3.2}$, $c - \text{Fe}_{0.6}\text{In}_{2.0}\text{S}_{3.6}$, $d - \text{Fe}_{0.8}\text{In}_{2.0}\text{S}_{3.8}$.

Для выяснения природы низкотемпературного магнитного фазового состояния твердых растворов $(FeIn_2S_4)_{1-x}(In_2S_3)_x$ были выполнены измерения полевых зависимостей атомного магнитного момента (рис. 2).

Видно, что вплоть до температуры 4 К все полевые зависимости почти линейны, что характерно для антиферромагнитного или парамагнитного состояния. Незначительная величина атомного магнитного момента указывает, скорее всего, на антиферромагнитное состояние. В низкотемпературной области (менее 12 К) наблюдаются ненулевые значения спонтанного и остаточного атомного магнитного момента, а также коэрцитивной силы, свойственные для ферромагнитного упорядоченного состояния или наличия ферромагнитных корреляций ближнего порядка [17]. Такое поведение не соответствует однородному антиферромагнитному состоянию. При 4К спонтанный атомный магнитный момент σ_S для состава Fe_{0.2}In_{2.0}S_{3.2} равен $\sim 0.07 \,\mu_{\rm B}$ /f.u., для Fe_{0.1}In_{2.0}S_{2.8} — $\sim 0.03 \,\mu_{\rm B}$ /f.u. Для составов Fe_{0.6}In_{2.0}S_{3.6} и Fe_{0.8}In_{2.0}S_{3.8} спонтанный атомный магнитный момент σ_S равен $\sim 0.04 \,\mu_{\rm B}$ /f.u. и $\sim 0.03 \,\mu_{\rm B}$ /f.u. соответственно (рис. 2).

Результаты измерения ZFC и FC зависимостей удельного магнитного момента в слабых полях представлены на рис. 3. Установлено, что в низкотемпературной области (менее 12 K) ZFC-кривые убывают с понижением температуры, тогда как FC-кривые возрастают. При этом ZFC-кривые убывают более резко. На ZFC-кривых наблюдается пик, характерный для магнитного фазового состояния типа спинового стекла [18]. Температура замерзания T_f незначительно возрастает с ростом концентрации катионов Fe²⁺. Так, для состава Fe_{0.1}In_{2.0}S_{2.8} величина T_f равна ~ 4.8 K, тогда как для Fe_{0.8}In_{2.0}S_{3.8}



Рис. 2. Полевые зависимости атомного магнитного момента при температурах 4 К (светлые кружки) и 300 К (темные кружки) составов: $a - \text{Fe}_{0.1}\text{In}_{2.0}\text{S}_{2.8}$, $b - \text{Fe}_{0.2}\text{In}_{2.0}\text{S}_{3.2}$, $c - \text{Fe}_{0.6}\text{In}_{2.0}\text{S}_{3.6}$, $d - \text{Fe}_{0.8}\text{In}_{2.0}\text{S}_{3.8}$.



Рис. 3. Температурные зависимости на ZFC- (темные кружки) и FC-кривых (светлые кружки) удельного магнитного момента в полях 0.01 и 0.03 Тл для составов: $a - \text{Fe}_{0.1}\text{In}_{2.0}\text{S}_{2.8}$, $b - \text{Fe}_{0.2}\text{In}_{2.0}\text{S}_{3.2}$, $c - \text{Fe}_{0.6}\text{In}_{2.0}\text{S}_{3.6}$, $d - \text{Fe}_{0.8}\text{In}_{2.0}\text{S}_{3.8}$.

 $\sim 6.1 \,\mathrm{K}$ соответственно. Для каждого отдельного состава температура замерзания T_f при увеличение магнитного поля незначительно возрастает [19].

На рис. 4 представлены обобщенные концентрационные зависимости температур замерзания и магнитного упорядочения, а также упорядоченного атомного магнитного момента. Критические температуры уменьшаются с уменьшением содержания катионов Fe²⁺ почти линейно, но с разными скоростями. Так, скорость убывания температуры замерзания с уменьшением концентрации катионов железа составляет $d(T_f)/d(1-x) \approx$ температура $\approx 1.37 \, \text{K}/(1-x)$, в то время как магнитного упорядочения изменяется быстрее, $d(T_{\rm mo})/d(1-x) \approx 13.58 \, {\rm K}/(1-x)$. Скорость уменьшения атомного магнитного момента при низкой температуре в магнитном поле 14 Тл составляет $d(\sigma_{4K,14T_{\pi}})/d(1-x) \approx 0.74 \text{ K}/(1-x)$. Это свидетельст-



Рис. 4. Концентрационные зависимости экспериментальных значений: a — температур замерзания магнитных моментов (темные кружки) и магнитного упорядочения (светлые кружки), а также b — упорядоченного атомного магнитного момента при 4 К и 14 Тл для твердых растворов (FeIn₂S₄)_{1-x} (In₂S₃)_x. Штриховые линии обозначают линейную зависимость экспериментальных значений.

вует о более высокой интенсивности обменных взаимодействий $Fe^{2+}-S^{2-}-Fe^{2+}$ в случае, когда координация катионов железа более высокая. Факт немонотонного уменьшения упорядоченного атомного магнитного момента с уменьшением содержания катионов Fe^{2+} может указывать на различную жесткость и упорядоченное расположение катионов Fe^{2+} при формировании различных конфигураций обменных взаимодействий $Fe^{2+}-S^{2-}-Fe^{2+}$.

Магнитные полупроводники характеризуются, как правило, наличием так называемого косвенного обменного взаимодействия между *d*-ионами. В кристаллической решетке магнитного полупроводника *d*-катионы разделены немагнитными катионами, и поэтому волновые функции *d*-электронов непосредственно не перекрываются. Прямое обменное взаимодействие между ними отсутствует. Однако возникает косвенное взаимодействие, обусловленное тем, что волновые функции *d*-катионов перекрываются через волновые функции немагнитных катионов. Как правило, для вырожденных магнитных полупроводников косвенное 90-градусное обменное взаимодействие является антиферромагнитным [20].

Согласно эмпирическим правилам Гуденафа-Канамори [21], косвенные 180-градусные обменные взаимодействия между магнитными моментами электронов, нахоляшихся на частично заполненных, а также полностью незаполненных энергетических уровнях, являются отрицательными. Таким образом, косвенные обменные взаимодействия Fe²⁺-S²⁻-Fe²⁺ с разной координацией катионов Fe^{2+} , находящиеся в *A*-подрешетке структуры шпинели, должны быть антиферромагнитными. Антиферромагнитное состояние в соединении FeIn₂S₄ paнee было обнаружено другими авторами [22,23]. Это в случае нормальной шпинели. Если наблюдается некоторая степень обращенности структуры шпинели, т.е. частичное заполнение А-подрешетки катионами индия, происходит обрыв протяженных обменно-связанных цепочек Fe²⁺-S²⁻-Fe²⁺. Это так называемое диамагнитное разбавление, которое может приводить к формированию неоднородного магнитного состояния. Косвенные 180-градусные обменные взаимодействия между магнитными моментами электронов, находящихся на полностью и частично заполненных энергетических уровнях, являются положительными.

Таким образом, в разбавленной магнитной подсистеме могут появляться ферромагнитные корреляции ближнего порядка [24]. Конкуренция антиферромагнитных и ферромагнитных взаимодействий между катионами железа приводит к фрустрации обменных связей и образованию однородного магнитного фазового состояния — спинового стекла. Обменная связь называется фрустрированной, если взаимная ориентация соответствующих магнитных моментов не совпадает со знаком их обменных взаимодействий [25]. Состояние спинового стекла в соединении FeIn₂S₄ ранее наблюдалось в работах [26,27].

Среди многих типов магнитоупорядоченных веществ особое место принадлежит так называемым спиновым стеклам. Ориентация магнитных моментов спинового стекла в области температур ниже некоторой критической T_f не имеет никокой пространственной периодичности. Она меняется в пространстве случайным образом, подобно расположению атомов в обычном стекле. Для спинового стекла наблюдаются ферромагнитные корреляции ближнего порядка. В отличие от парамагнетиков, где магнитные моменты флуктуируют во времени, спиновые стекла характеризуются "замороженными" магнитными моментами, т.е. ненулевыми средними по времени векторными величинами.

Спиновые стекла обладают рядом уникальных свойств. Зависимость магнитной восприимчивости от температуры претерпевает резкий излом при критическом значении температуры T_f — температуры замерзания магнитных моментов, которая возрастает с увеличе-

нием концентрации магнитных примесей и уменышается с ростом частоты приложенного магнитного поля (снижение критической температуры наблюдается даже для очень медленного изменения магнитного поля, вплоть до минут). С ростом внешнего магнитного поля, вплоть до минут). С ростом внешнего магнитного поля излом размывается. Такое поведение говорит о том, что равновесие в спиновых стеклах устанавливается медленно. Спиновые стекла демонстрируют магнитную вязкость, т. е. зависимость магнитного момента от времени при температурах ниже T_f . Магнитная часть теплоемкости зависит от температуры линейно в области низких температур, а в точке T_f наблюдается плавный максимум теплоемкости. Это говорит о сильной вырожденности основного состояния спиновых стекол.

Состояние типа кластерного спинового стекла часто наблюдается в неоднородных магнитных системах, таких как сплавы Со–Си и Со–Ад [28,29]. В них ферромагнитные кластеры внедрены в неферромагнитную матрицу. Уменьшение температуры замерзания T_f свидетельствует об уменьшении среднего размера ферромагнитоупорядоченных кластеров. Можно выполнить количественную оценку среднего размера ферромагнитных кластеров. С этой целью необходимо использовать формулу Бина–Ливингстона [30], связывающую средний размер ферромагнитных кластеров с константой магнитной кристаллографической анизотропии, представляющей собой ни что иное, как объемную плотность энергии магнитной кристаллографической анизотропии, и критической температурой T_f :

$$\langle K \rangle \langle V \rangle = k_{\rm B} T_f,$$

где $\langle K \rangle$ — среднее значение константы магнитной кристаллографической анизотропии ферромагнитного кластера, $\langle V \rangle$ — его средний объем, $k_{\rm B}$ — постоянная Больцмана, T_f — температура замерзания (максимум на ZFC-кривой).

Константы анизотропии можно получить из уравнения для энергии магнитной кристаллографической анизотропии в плоскости [100]:

$$E_a = K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta,$$

где K_1, K_2 — константы магнитной кристаллографической анизотропии, θ — угол между намагниченностью и осью [010]. Энергия магнитной кристаллографической анизотропии определяется площадью между кривыми y(H), измеренными для монокристаллов вдоль направлений [010] и [001]. Так, для анион-дефицитного манганита La_{0.70}Sr_{0.30}MnO_{2.85} средний размер ферромагнитных включений составляет ~ 10 нм [18]. Температура расходимости ZFC- и FC-кривых, измеренных в одинаковом режиме изменения температуры $T_{\rm rev}$, определяет максимальный размер ферромагнитного кластера [31], который в данном случае почти совпадает со средним размером.

Свойства спинового стекла поняты далеко не полностью [32]. Понимание природы магнитного состояния спинового стекла важно для развития фундаментальной физики. Это понимание может привести к новым применениям спиновых стекол.

4. Заключение

Таким образом, в данной работе исследованы магнитные свойства твердых растворов $(FeIn_2S_4)_{1-x}(In_2S_3)_x$. Установлен преимущественно антиферромагнитный характер косвенных обменных взаимодействий в основном состоянии между катионами Fe²⁺. Обнаружено наличие ферромагнитных корреляций ближнего порядка. Основным магнитным фазовым состоянием исследуемых составов является состояние спинового стекла с температурой замерзания, монотонно возрастающей с ростом концентрации катионов Fe²⁺. Обсуждаются наиболее вероятные причины и механизм образования магнитного состояния кристаллов $(FeIn_2S_4)_{1-x}(In_2S_3)_x$.

Список литературы

- H. Hahn, W. Klingler. Z. Anorgan. Allgem. Chem., 260, 110 (1949).
- [2] H. Hahn, W. Klingler. Z. Anorgan. Allgem. Chem., **259**, 135 (1949).
- [3] C.J.M. Roymans. J. Inorg. Nucl. Chem., 11, 78 (1959).
- [4] G. King. Acta Crystallogr., **15**, 512 (1962).
- [5] P. Ruck. J. Appl. Phys., 6, 1 (1973).
- [6] И.В. Боднарь, С.А. Павлюковец, В.Ю. Рудь, Ю.В. Рудь. ФТП, 43, 1553 (2009).
- [7] А.В. Ведяев. УФН, 172, 1458 (2002).
- [8] И.В. Боднарь, В.Ю. Рудь, Ю.В. Рудь, Е.И. Теруков. ФТП, 44, 39 (2010).
- [9] И.В. Боднарь, Ю.А. Федотова, М.А. Новикова. Неорг. матер., 47, 156 (2011).
- [10] С.В. Труханов. Письма ЖТФ, 37, 13 (2011).
- [11] S.V. Trukhanov, A.V. Trukhanov, C.E. Botez, A.H. Adair, H. Szymczak, R. Szymczak. J. Phys.: Condens. Matter, 19, 266 214 (2007).
- [12] С.В. Труханов, И.О. Троянчук, Н.В. Пушкарев, Г. Шимчак. ЖЭТФ, **122**, 356 (2002).
- [13] С.В. Труханов, А.В. Труханов, А.Н. Васильев, А.М. Балагуров, Н. Szymczak. ЖЭТФ, **140**, 942 (2011).
- [14] И.В. Боднарь, С.В. Труханов. ФТП, 45, 890 (2011).
- [15] С.В. Труханов, А.В. Труханов, А.Н. Васильев, А. Maignan, H. Szymczak. ЖЭТФ, 85, 615 (2007).
- [16] Ч. Киттель. Введение в физику твердого тела (М., Наука, 1978).
- [17] С.В. Труханов, И.О. Троянчук, А.В. Труханов, И.М. Фита, А.Н. Васильев, А. Maignan, Н. Szymczak. Письма ЖЭТФ, 83, 36 (2006).
- [18] С.В. Труханов, А.В. Труханов, А.Н. Васильев, Н. Szymczak. ЖЭТФ, **138**, 236 (2010).
- [19] И.В. Боднарь, С.В. Труханов. ФТП, 45, 1464 (2011).
- [20] S.V. Trukhanov, L.S. Lobanovski, M.V. Bushinsky, V.V. Fedotova, I.O. Troyanchuk, A.V. Trukhanov, V.A. Ryzhov, H. Szymczak, R. Szymczak, M. Baran. J. Phys. Condens. Matter., 17, 6495 (2005).
- [21] J.B. Goodenough. Phys. Rev., 100, 564 (1955).

- [22] T. Kanomata, H. Ido, T. Kaneko. J. Phys. Soc. Jpn., 34, 554 (1973).
- [23] B.S. Son, S.J. Kim, C.S. Kim, M.H. Jung, Y. Jo. J. Korean Phys. Soc., 52, 1077 (2008).
- [24] S.V. Trukhanov, L.S. Lobanovski, M.V. Bushinsky, V.A. Khomchenko, N.V. Pushkarev, I.O. Troyanchuk, A. Maignan, D. Flahaut, H. Szymczak, R. Szymczak. Eur. Phys. J. B, 42, 51 (2004).
- [25] S.V. Trukhanov, A.V. Trukhanov, H. Szymczak. J. Phys. Chem. Sol., 67, 675 (2006).
- [26] J.L. Dormann, M. Seqqat, D. Fiorani, M. Nogues, J.L. Soubeyroux, S.C. Bhargava, P. Renaudin. Hyperfine Interactions, 54, 503 (1990).
- [27] V. Sagredo, M.C. Mororon, L. Betancourt, G.E. Delgado. J. Magn. Magn. Mater., **312**, 294 (2007).
- [28] S. Nafis, J.A. Woollam, Z.S. Shan, D.J. Sellmyer. J. Appl. Phys., 70, 6050 (1991).
- [29] F. Conde, C. Gonez-Polo, A. Hernando. J. Magn. Magn. Mater., 138, 123 (1994).
- [30] C.P. Bean, J.D. Livingstone. J. Appl. Phys., 30, S120 (1959).
- [31] С.В. Труханов. ЖЭТФ, 127, 107 (2005).
- [32] S.V. Trukhanov, I.O. Troyanchuk, I.M. Fita, H. Szymczak, K. Berner. J. Magn. Magn. Mater., 237, 276 (2001).

Редактор Т.А. Полянская

Magnetic properties of $(Feln_2S_4)_{1-x}(ln_2S_3)_x$ solid solution single crystals

I.V. Bodnar, M.A. Novikova, S.V. Trukhanov*

Belorussian State University of Informatics and Radio Electronics, 220013 Minsk, Belorussia * Scientific Practical Center for Sciences of Materials of the Belorussian National Academy of Sciences, 220072 Minsk, Belorussia

Abstract The $(FeIn_2S_4)_{1-x}(In_2S_3)_x$ solid solution single crystals were grown by directional crystallization of the melt in the whole concentration range. The investigations of the magnetic properties were carried out on the received single crystals in the 4–300 K temperature and 0–14T field intervals. It is istablished, that almost all the solid solutions are paramagnetic down to the lowest achievable temperatures ~ 4K. It is shown, that the ground magnetic phase state of the investigated solid solutions is a spin glass one with the freezing temperature increasing monotonically with increasing of the Fe²⁺ cations concentration. The most probable cause and mechanism of formation of the magnetic state of the $(FeIn_2S_4)_{1-x}(In_2S_3)_x$ crystals are discussed.