

Title	Muon-spin relaxation studies of the pyrochlore iridates $\text{Sm}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ , $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ and $(\text{Nd}_{1-x}\text{Ca}_x)_2\text{Ir}_2\text{O}_7$
Author(s)	Retno, Asih
Citation	大阪大学, 2018, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/69334">https://hdl.handle.net/11094/69334</a>
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈/a〉</a> をご参照ください。

***Osaka University Knowledge Archive : OUKA***

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

## Abstract of Thesis

Name (Retno Asih (レトノ アシ))	
Title	Muon-spin relaxation studies of the pyrochlore iridates $\text{Sm}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ , $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ and $(\text{Nd}_{1-x}\text{Ca}_x)_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ (パイロクロアイリジウム酸化物 $\text{Sm}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ , $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ , $(\text{Nd}_{1-x}\text{Ca}_x)_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ のミュオンスピン緩和法による研究)
<p>Pyrochlore iridates, <math>R_2\text{Ir}_2\text{O}_7</math> (<math>R</math> = rare-earth elements), provide an ideal platform to investigate novel topological phases build upon the network of the corner-sharing tetrahedra structure and the large spin-orbit interaction drawn from Ir <math>5d</math> electrons. These compounds undergo metal-insulator transition (MIT) across the rare-earth series at room temperature. With increasing the ionic radius of <math>R^{3+}</math>, the temperature of MIT, <math>T_{\text{MI}}</math>, gradually decreases and disappears between <math>R = \text{Nd}</math> and <math>\text{Pr}</math>.</p> <p>This thesis describes <math>\mu\text{SR}</math> studies on the pyrochlore iridates <math>\text{Sm}_2\text{Ir}_2\text{O}_7</math>, <math>\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7</math> and <math>(\text{Nd}_{1-x}\text{Ca}_x)_2\text{Ir}_2\text{O}_7</math>. <math>\text{Sm}_2\text{Ir}_2\text{O}_7</math> and <math>\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7</math> are particularly attractive because they lie in the boundary of MIT and undergo the magnetic transition with MIT concomitantly at <math>T_{\text{MI}} \approx 117</math> and 33 K, respectively. By means of <math>\mu\text{SR}</math> experiments, we confirmed the appearance of magnetic long-range ordering (LRO) of Ir moments below <math>T_{\text{MI}}</math> followed by additional LRO of Nd/Sm moments below about 10 K. The all-in all-out (AIAO) spin-structure was confirmed to be the most convinced model to explain our <math>\mu\text{SR}</math> results. We compared observed internal fields at the muon site to those estimated from dipolar field and density functional theory calculations, and confirmed that lower limits of magnetic ordered moments were <math>0.12 \mu_{\text{B}}/\text{Ir}^{4+}</math> and <math>0.2 \mu_{\text{B}}/\text{Nd}^{3+}</math> in <math>\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7</math> and <math>0.3 \mu_{\text{B}}/\text{Ir}^{4+}</math> and <math>0.1 \mu_{\text{B}}/\text{Sm}^{3+}</math> in <math>\text{Sm}_2\text{Ir}_2\text{O}_7</math>, respectively. By further analysis, it is concluded that the spin coupling between <math>R</math> and Ir moments should be ferromagnetic for <math>\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7</math> and antiferromagnetic for <math>\text{Sm}_2\text{Ir}_2\text{O}_7</math>, respectively.</p> <p>The hole doping on <math>\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7</math> via the <math>\text{Ca}^{2+}</math>-substitution for <math>\text{Nd}^{3+}</math> was found to suppress a LRO of Ir magnetic moments. It was also confirmed that Nd moments keep undergoing the LRO below 10 K in <math>(\text{Nd}_{1-x}\text{Ca}_x)_2\text{Ir}_2\text{O}_7</math> for <math>x \leq 0.03</math>. No clear indication of the LRO was observed for <math>x = 0.07</math> and <math>0.10</math> down to 0.3 K, except for the appearance of the slowing-down behaviour in the spin fluctuations below 2 K, signifying a possible occurrence of a magnetically short-range ordering (SRO). The magnetic phase diagram of <math>(\text{Nd}_{1-x}\text{Ca}_x)_2\text{Ir}_2\text{O}_7</math> was proposed on the basis of the present studies.</p>	

## 論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 ( Retno Asih )		氏 名
論文審査担当者	(職)	
	主 査	萩原 政幸
	副 査	花咲 徳亮
	副 査	川村 光
	副 査	渡邊 功雄
	副 査	中野 岳仁

## 論文審査の結果の要旨

学位申請者は、ミュオンスピン緩和法 ( $\mu$ SR 法) と密度汎関数計算法によって、レアース原子を含むパイロクロア型イリジウム酸化物である  $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  と  $\text{Sm}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  における Ir/Nd/Sm の磁性状態を調べた。また、ホールドープした  $(\text{Nd}_{1-x}\text{Ca}_x)_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  における磁性とホール濃度の関係を研究した。パイロクロア型イリジウム酸化物は、テトラポッド型に組み合わさる磁気スピンによって多彩な磁性・電子状態を発現する。Ir 原子が大きなスピン・軌道相互作用を持ち、その効果が及ぼす電子状態の解明も精力的に行われている。近年では、Weyl 状態や量子スピン液体状態の出現も議論されており、新たな強相関電子系の議論を生み出す物質系として期待されている。

学位申請者は、スイスのポール=シェラー研究所 (PSI) における直流状ミュオンビームを用い、 $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  と  $\text{Sm}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  におけるミュオン位置の内部磁場を詳細に測定することによって磁性状態を詳細に調べた。 $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  においては、33 K で金属絶縁体転移を起こすと同時に Ir が磁気秩序状態を形成することが同グループのバルス状ミュオンを用いた先行研究結果から示されていたが、超低温までの測定により Nd の磁気秩序状態が全体のスピン秩序状態を乱すことを見いだした。 $\text{Sm}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  においては、約 117 K で起こる金属絶縁体転移とともに Ir 磁気秩序状態が発生することを確認し、金属絶縁体転移と Ir の磁気転移はパイロクロア型イリジウム酸化物における一連の系において共通して発現する事象であると結論付けた。さらに、約 10 K 以下においてミュオン位置における内部磁場が減少することを発見し、 $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  に見られる時と同様に低温で Sm 磁気モーメントの秩序状態が現れることを明らかにした。これにより、Ir とレアースの磁気秩序状態は別々に発現するものであると結論づけるとともに、レアースと Ir 間における磁気相関が期待されているものよりはるかに小さいものである可能性を指摘した。これらの結果をもとに、Ir/Nd/Sm の磁気モーメントの大きさを推察するために、密度汎関数法を用いたミュオン位置の同定を行った。その結果、Ir とレアースが構築するテトラポッド構造の 3 回対象軸上にミュオンが停止することが期待されることを見いだした。このミュオン位置を活用した双極子磁場計算を行い実験結果と比較対照させることによって、Ir/Nd/Sm で期待される磁気モーメントの大きさの下限値を見積もることに成功した。また、Ir とレアースのスピン結合状態が Ir-Nd の場合は強磁性的である一方、Sm-Ir では反強磁性的であることを見いだした。

これら一連の研究結果に対するさらなる理解のために、 $(\text{Nd}_{1-x}\text{Ca}_x)_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  における磁性のホール量依存性を  $\mu$ SR で測定した。x が 0.05 近傍までは金属絶縁体転移点と Ir の磁気転移点がともにホール量に比例して減少するにも関わらず、Nd の磁気転移点は約 10 K 付近と変化がないことを見いだした。一方、 $x > 0.05$  においては、金属絶縁体転移がほぼ変化しなくなるにもかかわらず、磁気転移点が  $x = 0.10$  に向かって消失していくことを見いだした。これにより磁気相関を完成させ、パイロクロア型イリジウム酸化物の磁性とホール濃度依存性を明らかにした。また、ホール量によって Nd モーメントの大きさが大きくなる可能性を指摘し、Ir の磁気モーメントがホールによって希釈される効果を考察することによってこの結果を説明することに定性的に成功した。

よって、本論文は博士 (理学) の学位論文として十分価値あるものと認める。