



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Electron Spin Resonance Studies of Molecular Mott Insulators with Triangular Lattice [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	Kim, Sunghyun
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(理学)
Dissertation Number	甲第13557号
Issue Date	2019-03-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/74231
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/4.0/
Type	doctoral thesis
File Information	Kim_Sunghyun_review.pdf, 審査の要旨



学 位 論 文 審 査 の 要 旨

博士の専攻分野の名称 博士 (理 学) 氏 名 Kim Sunghyun

審査担当者	主査	客員准教授	大 島 勇 吾
	副査	教 授	網 塚 浩
	副査	准教授	市 村 晃 一 (工学研究院)
	副査	教 授	河 本 充 司

学 位 論 文 題 名

Electron Spin Resonance Studies of Molecular Mott Insulators with Triangular Lattice
(三角格子を有する分子性 Mott 絶縁体の電子スピン共鳴による研究)

博士学位論文審査等の結果について (報告)

近年、 $S=1/2$ の三角格子を有する分子性 Mott 絶縁体である金属ジチオレン錯体塩 $\beta' -X[Pd(dmit)_2]_2$ (X は 1 価カチオン) が注目されている。この系は、カチオン X を置換することで三角格子の異方性パラメーター t'/t (t' , t は三角格子を形成する二量体間の遷移積分) を制御することが出来るため、幾何学的な磁気フラストレーションが基底状態に及ぼす影響を調べることが可能な系である。この特徴から、 $X=Me_4P$ ($t'/t=0.62$), Et_2Me_2P ($t'/t=0.84$), Me_4Sb ($t'/t=0.86$) 塩は反強磁性状態 (AFL0)、 $X=EtMe_3Sb$ ($t'/t=0.91$) 塩はスピン液体状態 (QSL)、 $X=Et_2Me_2Sb$ ($t'/t=1$) 塩は電荷秩序状態 (CO) と基底状態が多彩に変化する。この系は静帯磁率や熱容量などのマクロな測定を用いた研究がこれまで多くなされてきたが、電子を直接見るミクロな測定は少ない。そこで本論文では、ミクロな測定である電子スピン共鳴 (ESR) を用いて、この一連の系における基底状態やスピンドYNAMIXS などの研究を系統的に行った。

その結果、 $\beta' -X[Pd(dmit)_2]_2$ の中で $X=Me_4P$, $EtMe_3Sb$, Et_2Me_2Sb 塩は各々 AFL0, QSL, CO 状態を持つことを ESR 測定においても確認した。また、 $X=EtMe_3Sb$ 塩においては、QSL 状態の素励起であるスピノンのダイナミクスを反映して、motional narrowing による線幅の温度依存性や特異な角度依存性が観測された。一方で、これまで反強磁性状態の基底状態を持つと考えられていた Et_2Me_2P 塩や Me_4Sb 塩において、ネール温度以下で反強磁性と常磁性的な状態が共存しているような結果が得られ、QSL 物質で観測された ESR の特徴も確認されている。また ESR を用いたスピン計測法により、三角格子の異方性パラメーター t'/t が大きい系ほど低温で残るスピン量は多い傾向が確認された。これらの結果より、 Et_2Me_2P 塩と Me_4Sb 塩の低温で見える常磁性的なスピンはただの残余スピンではなく、 $X=EtMe_3Sb$ 塩で観測された同様のスピノンである可能性が考えられる。

さらに、本論文は $\beta' -X[Pd(dmit)_2]_2$ 塩の系統的な研究にとどまらず、同じ三角格子を有しながらも Valence Bond Solid (VBS) 状態を基底状態にもつ $EtMe_3P[Pd(dmit)_2]_2$ 塩の ESR 測定も行った。本論文では、そのスピングャップが約 90 K であることを導出し、また、VBS 状態の転移温度以下で非線形な ESR スペクトルが観測された。詳細な解析により、この非線形な ESR スペクトルは、線幅のシャープな信号とブロードな信号からなり、各々 stacking 方向と side-by-side 方向にスピンドYNAMIXS をもつことが明らかになった。そのスピンドYNAMIXS は VBS 状態の磁気励起から来るものだと考えられており、ESR 信号の角度依存性や温度依存性から、シャープな信号はソリトン励起、ブロードな信号はマグノンの集団スピン励起であるという結論に至った。

このように本論文は、三角格子を有する分子性 Mott 絶縁体 $\beta' -X[Pd(dmit)_2]_2$ 塩に関して、基

底状態やスピンダイナミクスなどを ESR により明らかにした。また、VBS 状態の磁気励起を世界で初めて観測し、そのダイナミクスに関して新たな知見が得られた。よって、これらの系統的な研究成果により、本論文は、三角格子を有する分子性 Mott 絶縁体 $X[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$ 塩の基底状態やスピンダイナミクスの理解に大きく貢献したと考える。

よって著者は、北海道大学博士（理学）の学位を授与される資格あるものと認める。