OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Investigation of spin liquid to Fermi liquid Mott Boundary in κ-type dimer-Mott organic complexes
Author(s)	Yesil, Emre
Citation	大阪大学, 2022, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/89554
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、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

Form 3

Abstract of Thesis

Name (YESIL Emre)	
Title	Investigation of spin liquid to Fermi liquid Mott Boundary in κ-type dimer-Mott organic complexes (κ型ダイマーモット有機化合物におけるスピン液体とフェルミ液体の間のモット境界に関する研究)

Abstract of Thesis

In conventional band theory, energy levels of all the components of a crystal hybridize, creating electronic band structures. When the Fermi level is within a band, the material has electron conducting properties. On the other hand, if it lays in a band gap, it has insulating properties. However, strong electronic interactions can lead a material with a conducting band structure to have insulating properties. This phenomenon is called a Mott metal insulator transition. Such a transition has been seen in organic conductors made of charge transfer complexes. These materials have a variety of ground states near the Mott boundary, including novel quantum ground states such as the quantum spin liquid. The spin liquid state is a non-ordered fluctuating state of quantum spins. We are interested in the relations between these phases near that boundary. Somes of them have already been studied. Antiferromagnetic to spin liquid boundary has been studied with κ-$EtMe_3Sb[Pd(dmit)_2]_2$ by heat capacity and thermal transport measurement. The Mott transition between a Fermi liquid and insulating states have been studied in several ways. The antiferromagnetic to Fermi liquid boundary has been widely studied via numerous materials such as κ-$(BEDT\text{-}TTF)_2Cu[N(CN)_2]Br$. This phase boundary is of 1st order. In 1991, κ-$(BEDT\text{-}TTF)_2Cu_2(CN)_3$ has been first synthesized and gained strong interest due to its superconductive properties. In 2003, Shimizu observe that this material does not exhibit a long-range magnetic ordering down to extremely low temperatures. Combined with its triangularity creating strong spin frustration and its dimerized structure have made of it a candidate to the spin liquid. Under applied Pressure, this material goes from a spin liquid to a Fermi liquid state. However, heat capacity measurements under applied pressure are quite challenging and the superconducting properties break the symmetry, thus this boundary is not a genuine Mott boundary. This thesis focuses on investigating the spin liquid to Fermi liquid phase boundary.

To do so, we are measuring low temperature (1-10K) heat capacity by relaxation calorimetry and single crystal XRD on an alloying system of κ-$[(BEDT\text{-}TTF)_{1-x}(BEDT\text{-}STF)_x]_2Cu_2(CN)_3$. In this system, when x=0, the ground state is spin liquid, and when x=1 it is a Fermi liquid. The alloying system works as chemical pressure instead of applying external pressure. It allows us simpler measurements, while avoiding the superconducting state. Thus, we can investigate the pure Mott transition. We observed the presence of low energy spin excitations proven by finite value of the Sommerfeld coefficient γ. We also observe large lattice contribution in the spin liquid region due to phonon softening of the lattice. Systematic changes in the heat capacity as well as wea changes in the crystalline structures seem to indicate a continuous transition around the quantum critical point. Via the heat capacity, it is possible to get the entropy. Entropy changes have been observed, indicating a Pomeranchuk-like transition. Finally, a quantum critical region rising from a competition between the spin liquid and the Fermi liquid state has been found in the low temperature region.

Previous research found a large dielectric increase around the boundary in the same alloying complex that they interpreted as evidence of phase separation. We tried to reproduce this by using a doped spin liquid, namely κ-$(BEDT\text{-}TTF)_4Hg_{2.89}Br_8$. We measured the dielectric permittivity down to around 4K and compared it with a deuterated κ-$(BEDT\text{-}TTF)_2Cu[N(CN)_2]Br$, which shows phase separation. Very different behaviors have been observed between these 2 samples, indicating the absence of phase separation in κ-$(BEDT\text{-}TTF)_4Hg_{2.89}Br_8$, but the existence of large nonlinear conductivity due to the mobile feature in the quantum spin liquid background. We conclude that the genuine phase transition between a quantum spin liquid and a Fermi liquid seems to be a continuous phase transition at the low energy levels. At the lower energy level, both states are similar, which may indicate a mixed state within the continuous quantum critical region.

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名	（ Emre Yesil ）	
	（職）	氏　名
論文審査担当者	主 査　教授	中澤　康浩
	副 査　教授	奥村　光隆
	副 査　教授	中野　元裕

論文審査の結果の要旨

有機ドナー分子が電荷移動によってイオン化し、カウンターになる分子性無機アニオンと分離積層型に配列した塩では、ドナー分子上の最高占有軌道にあるπ電子のスピンや電荷の自由度が物性に発現する。こした物質では、様々な量子力学的な相互作用を通した多彩な電子物性を示すことで知られている。特に、有機分子が二次元のκ型の配列をつくる塩では、強い電子相関と隣接分子の軌道の重なりによって局在性と遍歴性が競合し、温度変化や圧力変化により、Mott 転移という金属絶縁体転移を起こすことが知られている。Mott 転移は、電子系の 1 次転移として広く知られており、ハバードモデルやその拡張モデルによって理論面からも活発に研究をされており、実験的にも有機電荷移動塩や金属間化合物で、その金属絶縁体転移の境界付近の物性が実験的に広く研究されている。このように Mott 境界を挟んで存在する絶縁相、金属相の熱力学的な特徴と、境界付近で特異的におこる特徴を熱力学的な実験で調べることは学術的に大きな意義がある。一方で、多くの物質系では局在した強相関絶縁体では基底状態は反強磁性の長距離秩序を示し、また金属相は超伝導などの基底状態をとるなど、現象の多様さが、転移そのものの根本的な理解を複雑にしている。ハバードモデルによる電荷ギャップの形成の有無による純粋な Mott 転移の熱力学的特徴を捉えるためには、秩序形成を伴わない金属相、絶縁相の間の変化を調べる必要がある。Emre Yesil 氏は、Mott 絶縁状態でありながらスピンフラストレーションによって反強磁性長距離秩序を示さず、スピン液体状態である分子性化合物、κ-(BEDT-TTF)$_2$Cu$_2$(CN)$_3$ に対して、ドナー分子の一部の硫黄原子をセレンに置き換えた BEDT-STF 分子とドナー混晶塩をつくることで基底状態の連続的な制御が可能であることに注目した。BEDT-STF 分子の含有量の増加とともに、スピン液体状態が x=0.2 付近になると伝導的に変化し Fermi 液体となる。その系統的な変化を、同氏が開発、改良してきた微小試料熱容量測定システムを用いた熱容量測定によって明らかにした。またスピン液体の状態にキャリアドープすることで生じる伝導相に関する誘電的性質を調べることで、秩序形成のない量子液体間での純粋な Mott 転移の特徴を調べ、新しい知見を得ることに成功した。

論文は以下のように構成されている。まず、第 1 章の論文作成に関する謝辞の記載の後、第 2 章では本研究の意義、分子性電荷移動塩の電子状態の基本的な説明とダイマーMott 系でのスピン液体の特徴、Mott 転移による金属・絶縁体転移に関する概要が説明されている。第 3 章では、研究で用いた極微量試料を用いた熱容量測定の手法と、誘電測定装置の説明がなされている。続く、第 4 章では熱容量の測定結果とその解析の詳細、さらに X 線回折を用いて明らかになった研究の主要な内容が記載されている。特に、量子液体であるスピン液体と Fermi 液体が三角格子構造のもつフラストレーションのために秩序化を示さない中で生じる量子臨界性に起因した変化が基底状態の熱力学パラメターの解析から見いだされることが明らかになり、その点に関する議論が多角的に展開されている。さらに、第 5 章では、スピン液体状態でダイマー内に閉じ込められている電荷の自由度が電荷ギャップの消滅により遍歴性を獲得する過程で生じる、非線形的な誘電挙動に関する議論が展開されている。第 6 章では,これらの議論を総括した結論が述べられている。

Emre Yesil 氏の行った、秩序形成を伴わない量子液体間の Mott 転移における量子臨界性の存在は、分子性のダイマーMott 型化合物での熱力学的、誘電的実験で初めて明らかになった知見であり、今後の分子性化合物の理論、実験研究に有益な情報を与えるものと判断できる。

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。