

# 目 次

第 46 号 2026 年 2 月

## 研究ノート

Resonating with the Intrinsic Coupling of Magnons and Phonons in Ferro- and Antiferromagnets .....	Jorge Puebla ... 3
---	--------------------

〈第 19 回 京都大学 低温物質科学研究交流会 Best Poster Award 受賞記念記事〉

新規有機伝導体 $\kappa''$ -(ET) <sub>2</sub> Cu[N(CN) <sub>2</sub> ]Br における陰イオン層の 乱れに誘起された Anderson 局在 .....	矢坂 聡一郎 ... 13
---	---------------

〈第 19 回 京都大学 低温物質科学研究交流会 Best Poster Award 受賞記念記事〉

超純良単結晶 UTe <sub>2</sub> の NMR : スピン三重項超伝導状態におけるゆらぎ .....	松村 拓輝 ... 20
--	--------------

## 運営状況

寒剤供給状況 吉田キャンパス・宇治キャンパス・桂キャンパス.....	28
環境安全保健機構 低温物質管理部門併任教員名簿, 寒剤供給関係業務担当者.....	31
環境安全保健機構 低温物質専門委員会委員名簿 .....	32

投稿案内.....	33
-----------	----

副編集長退任のご挨拶.....	35
-----------------	----

編集後記.....	36
-----------	----

Table of Contents

**Research Reports**

Resonating with the Intrinsic Coupling of Magnons and Phonons in Ferro-  
and Antiferromagnets  
..... Jorge Puebla ... 3  
(Commemorative Article for the Best Poster Award at the 19th Low-Temperature and Materials Sciences (LTM) Workshop)  
Anderson localization induced by disordered anions in a new organic conductor  
 $\kappa''$ -(ET)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Br  
..... Soichiro Yasaka ... 13  
(Commemorative Article for the Best Poster Award at the 19th Low-Temperature and Materials Sciences (LTM) Workshop)  
<sup>125</sup>Te-NMR measurements on ultra-clean UTe<sub>2</sub>:  
Unconventional fluctuations in the spin-triplet superconductivity  
..... Hiroki Matsumura ... 20

**From Organizing Committee**

Amounts of Cryogen Consumptions: Yoshida, Uji, and Katsura Campuses  
..... 28  
Staffs contributing to Cryogen Supply and Responsible Persons  
for He Gas Recovery Stations ..... 31  
Concurrent Staffs of the Low Temperature and Materials Sciences Division,  
Agency for Health, Safety and Environment ..... 32

**Call for Manuscript** ..... 33

**Message from Retiring Vice Chief Editor** ..... 35

**Editor's Note** ..... 36

# Resonating with the Intrinsic Coupling of Magnons and Phonons in Ferro- and Antiferromagnets

Jorge Puebla<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Department of Electronic Science and Engineering, Kyoto University, Kyoto 615-8510, Japan

Under resonant conditions, magnons and phonons, ubiquitous excitations in ferro- and antiferromagnets, couple via magnetoelastic interactions. This intrinsic link enables versatile generation, control, and detection of both excitations. This article offers a pedagogical overview of our team's main results and related studies in Japan and abroad, including acoustic spin current generation, nonreciprocal effects, magnon excitation in van der Waals antiferromagnets, advances in magnetoelastic crystals, and strong magnon-phonon coupling.

## 1. Introduction

Undergraduate physics textbooks lay the groundwork for our understanding of magnetism and, subsequently, magnetoelasticity. From classical electromagnetism, any moving charge generates a magnetic field. On the atomic scale, electrons orbiting the nucleus form current loops that produce orbital magnetism. Electrons also possess intrinsic angular momentum, the spin, a quantum property that provide them with a magnetic moment. In solids, crystal electric fields often fix the electronic orbitals, quenching their direct magnetic contribution. However, spin-orbit coupling links spin and orbital motion, allowing orbitals to influence magnetic behaviour. Because spin couples only weakly to the lattice, this spin-orbit interaction provides the bridge between spin and crystal fields. The resulting spin-orbital-lattice connection establishes the magnetoelastic coupling, where spin orientation and magnetization become intertwined with lattice strain.

For better or worse, magnetoelastic coupling is ubiquitous in magnetic materials, including ferro- and antiferromagnets. In this article, I highlight how our team and others in Japan and abroad are harnessing this coupling, exploiting the interplay between magnetization and strain to uncover new physical effects and applications.

Research on magnetoelastic coupling is as broad as the concept itself. Here, we focus on resonant conditions, where coherent acoustic (phonon) and spin (magnon) wave excitations are defined by specific frequencies or energies. Notably, many important advances also occur under non-resonant conditions. While a comprehensive review is beyond scope, we highlight selected studies on strain-assisted magnetization torque and switching [1, 2], domain wall motion [3–5], magnetic phase transitions [6], and strain-modulated Berry phases [7], among others.

The remainder of this article is organized as follows. I first describe the main components of the devices used in our research, followed by individual sections on acoustic spin current generation, nonreciprocal effects, acoustic magnon excitation in van der Waals antiferromagnets, advances in magnetoelastic crystals, and strong magnon-phonon coupling. Each section is designed to facilitate readers to explore

topics of particular interest independently.

## 2. Surface acoustic wave devices for magnon-phonon coupling studies

The research presented in this article on magnon-phonon resonant coupling is fundamentally based on surface acoustic wave (SAW) devices. SAW technology, developed in the 1960s, has evolved from radar and communication applications to miniaturized components in modern mobile phones [8]. A typical SAW device consists of metallic finger-like combs, called interdigital transducers (IDTs), patterned by lithography on a piezoelectric substrate. Figure 1(a) shows a schematic of the SAW device used in our work. We fabricated a pair of IDT ports at the ends of a  $\text{LiNbO}_3$  substrate, with the magnetic layer of interest placed between them, forming a platform for transmission and absorption experiments. In a typical measurement, a radio-frequency (rf) voltage is applied to one IDT, which, via the inverse piezoelectric effect, generates propagating surface vibrations. These waves travel across the magnetic layer to the second IDT, where they are converted back into a rf voltage through the piezoelectric effect. Comparing the input and output signals reveals the energy absorbed or transmitted by the system.

In a seminal 1958 work, Charles Kittel [9] theoretically described the resonant condition under which ultrasound waves couple to spin waves in magnetic materials. In ferromagnets, the dispersion relations of spin and acoustic waves intersect in the gigahertz (GHz) range, setting the operational frequency requirement for our SAW devices. The SAW frequency is given by  $f_{\text{SAW}} = v_s / \lambda_{\text{SAW}}$ , where  $v_s$  is the sound velocity of the substrate, typically 3000-4000 m/s for common piezoelectrics, and  $\lambda_{\text{SAW}}$  is the acoustic wavelength defined by the IDT finger periodicity. Achieving GHz frequencies therefore requires lithographic patterning with feature sizes on the order of a few hundred nanometres. Figure 1(b) presents data from a SAW absorption experiment on a 20 nm Ni (nickel) layer under an applied in-plane magnetic field. At approximately  $\pm 26$  mT, we observe resonant absorption of SAWs by the Ni layer. The absorbed acoustic energy drives magnetization precession and excites spin waves, as originally proposed by Kittel [9]. In this measurement, the in-plane magnetic field forms an angle of  $\theta = 45^\circ$  with the SAW wavevector  $k$ . The absorption strength depends strongly on this angle; further details on the angular dependence can be found in Ref. [10].

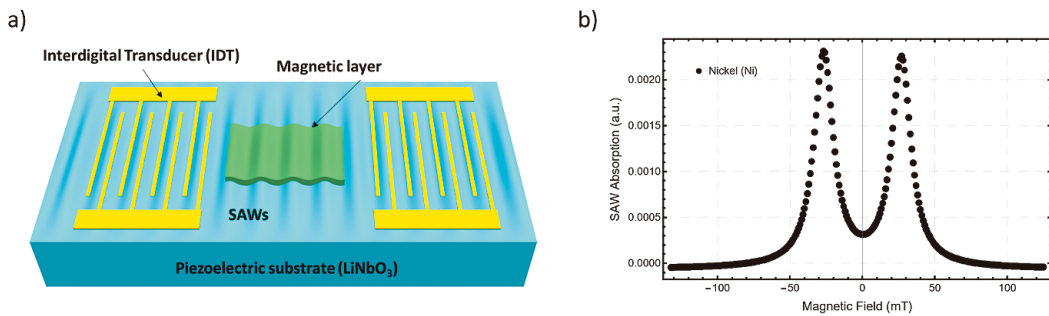


Figure 1. (a) Schematic of a SAW device used in our research, comprising a pair of interdigital transducers (IDTs) and a magnetic layer deposited on a piezoelectric substrate. (b) SAW absorption data for a 20 nm Ni layer under an applied in-plane magnetic field.

### 3. Acoustic spin current generation

Spin pumping is the transfer of angular momentum from the oscillatory magnetization dynamics of a ferromagnetic layer, driven by ferromagnetic resonance, into an adjacent nonmagnetic layer [11]. This process generates a spin current in the nonmagnetic layer. Similarly, magnetization precession induced by SAW absorption can also produce spin current.

In 2018, we reported spin current generation via acoustic spin pumping [12]. Figure 2(a) shows a schematic of one of our heterostructures: resonant SAW absorption drives magnetization precession in a Ni layer, transferring angular momentum to generate a spin current  $j_s$  in an adjacent Cu layer. The spin current is detected via spin-to-charge conversion at interfaces with Rashba spin-orbit coupling (SOC), producing an output voltage dependent on spin polarization [13]. We studied two heterostructures, Ni/Cu/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and Ni/Ag/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, whose interfaces exhibit opposite spin-to-charge conversion signs [14, 15]. Figure 2(b) shows the output voltage for Ni/Cu/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (red) and Ni/Ag/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (blue), reflecting acoustic spin current generation and Rashba-type conversion. A prior study in Germany demonstrated a similar effect via the spin Hall effect (SHE) [16]. In a 2020 follow-up [17], we showed enhanced acoustic spin current generation using acoustic cavities, which confine SAWs and strengthen their interaction with the magnetic layer.

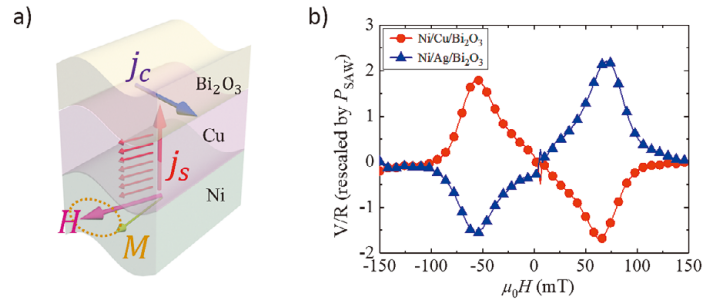


Figure 2. (a) Schematic of acoustic spin pumping in the Ni/Cu/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> heterostructure. (b) Output voltage for Ni/Cu/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (red) and Ni/Ag/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (blue), reflecting acoustic spin current generation and Rashba-type spin-to-charge conversion. Schematic in (a) is reproduced with permission from [12].

Other variants of acoustic spin current generation have been reported by research teams in Japan. In 2012, Uchida et al. [18] demonstrated acoustic generation of spin currents in a Pt/Y<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> (YIG) hybrid structure on a piezoelectric actuator, where sound waves modulate magnon distribution in YIG. In 2017, Kobayashi et al. [19] reported spin current generation via lattice rotation in a Cu layer driven by SAWs, a mechanism called spin rotation coupling. While this mechanism does not require a magnetic layer, the study used a Ni-Fe film, and no other studies have confirmed spin rotation-induced currents without a magnetic layer, warranting further analysis of [19]. In 2021, Kawada et al. [20] observed spin currents driven by SAWs in metallic nonmagnetic layers with strong SOC. The spin current direction appears to follow the expected spin Hall coefficients, and the effect was termed the acoustic spin Hall effect, though its underlying mechanism remains to be fully understood.

#### 4. Magnon–phonon nonreciprocal effects

Nonreciprocity refers to a direction-dependent response, in contrast to reciprocal systems, which behave symmetrically forward and backward. In technology, diodes and isolators are prime examples of nonreciprocal components. In the context of wave phenomena, the coupling between SAWs (phonons) and spin waves (magnons) offers intriguing possibilities, as both possess well-defined energies and wavevectors.

It is useful to elaborate on the characteristics of the SAWs we typically work with. These are Rayleigh waves, a type of seismic wave, with principal strain components being longitudinal ( $\varepsilon_{xx}$ ) and transverse/shear ( $\varepsilon_{xz}$ ). In seismology, the longitudinal wave is called the primary wave (arriving first) and the shear wave the secondary wave. Unlike earthquake Rayleigh waves, which are slow (0.01–few Hz), the SAWs in our experiments operate in the GHz range to match the spin wave dispersion described by Kittel [9].

The longitudinal and shear strains play a crucial role in magnon-phonon coupling. Dreher et al. [21] showed that SAW absorption in a ferromagnetic layer can become nonreciprocal when the shear strain  $\varepsilon_{xz}$  is significant. Figure 3 shows data from [21], where  $\alpha$  is the angle between an in-plane magnetic field and the SAW propagation direction. The data reveal two key points: (i) maximum absorption shows a fourfold symmetry, peaking at  $\alpha = \pm 45^\circ$  for both field polarities, and (ii) when  $\varepsilon_{xx}$  dominates and  $\varepsilon_{xz}$  is negligible, absorption is symmetric (reciprocal, Fig. 3a), whereas significant  $\varepsilon_{xz}$  induces asymmetric, nonreciprocal absorption (Fig. 3b).

The shear strain  $\varepsilon_{xz}$  depends on the layer thickness along the z-axis; thicker magnetic layers enhance this strain component. This observation has been experimentally confirmed by research teams in Japan [22, 23].

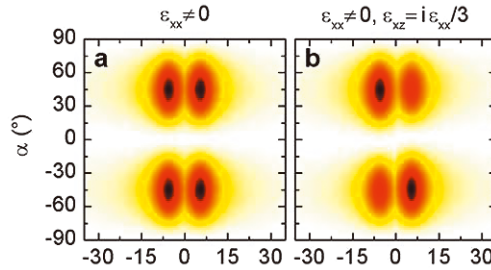


Figure 3. SAW resonant absorption in a Ni layer, with  $\alpha$  representing the angle between an in-plane magnetic field and the SAW propagation direction. (a) Absorption when longitudinal strain  $\varepsilon_{xx}$  dominates and shear strain  $\varepsilon_{xz}$  is negligible. (b) Absorption when shear strain  $\varepsilon_{xz}$  is significant, leading to nonreciprocal behaviour. Data in this figure is reproduced with permission from [21].

In 2020, our team reported large nonreciprocal SAW absorption in an ultra-thin 1.6 nm CoFeB layer [24]. At this thickness, with a SAW wavelength of  $\lambda_{\text{SAW}} \approx 600$  nm, the shear strain  $\varepsilon_{xz}$  is expected to vanish. Figure 4(a) shows the device schematic, similar to that described in Sec. 2, with CoFeB grown on Ta and capped with MgO. Figure 4(b) shows SAW power absorption at an in-plane magnetic field angle of  $10^\circ$ , revealing a pronounced difference when reversing the SAW wavevector ( $P_{-k}$ , blue;  $P_{+k}$ , red).

The vanishing  $\varepsilon_{xz}$  required a new explanation. A 1976 study by Maekawa and Tachiki [25] described SAW attenuation in ferro- and antiferromagnets due to lattice rotation coupling with magnetic anisotropy.

Lattice rotation direction depends on the SAW wavevector, enabling nonreciprocal absorption. Applying this theory to our data, we observed nonreciprocal acoustic attenuation with up to 100% rectification under optimized conditions, suggesting an acoustic analogue of an electronic diode [24].

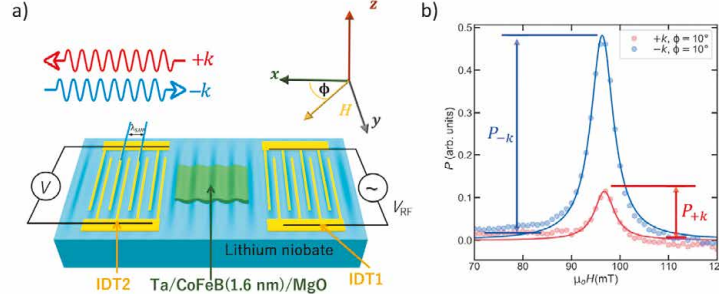


Figure 4. (a) Schematic of the SAW device used in the study of Ref. [24]. (b) Nonreciprocal SAW absorption in a 1.6 nm CoFeB layer under an in-plane magnetic field at  $10^\circ$ . This figure is reproduced with permission from [24].

Beyond its scientific significance, the technological relevance of nonreciprocal effects has spurred studies worldwide. Notable examples include SAW nonreciprocal absorption in synthetic antiferromagnets [26–29], ferromagnet/semiconductor hybrids [30], ferromagnetic bilayers with dipolar coupling [31], and noncollinear layer magnetizations [32]. More recently, we also reported SAW nonreciprocal absorption in the ferrimagnet  $Y_3Fe_5O_{12}$  (YIG) [33], and one more study including effects involving out-of-plane phononic angular momentum [34].

## 5. Acoustic magnon excitation in van der Waals antiferromagnets

Antiferromagnets are magnetically ordered materials, but unlike ferromagnets, where all moments align uniformly, antiferromagnetic moments alternate between atomic sites. This makes antiferromagnets more robust against external fields and free of stray fields, offering opportunities for dense spintronic devices [35, 36]. However, these same properties complicate magnetization control and readout, slowing the understanding and application of antiferromagnets.

Magnetoelastic coupling, ubiquitous in both ferro- and antiferromagnets, provides a potential route for phonon-mediated control or readout of magnetization. In SAW devices similar to Figure 1(a), current technology limits SAW operation to  $\sim 1$ -20 GHz, whereas spin wave dispersions in most antiferromagnets lie at  $>50$  GHz to THz. Alternatives exist: synthetic antiferromagnets, formed by alternating ferromagnetic layers coupled via thin nonmagnetic spacers, exhibit low-GHz spin wave resonances [26–29]. Similarly, van der Waals antiferromagnets, with weak interlayer coupling, reduce spin wave frequencies to the low-GHz range.

In 2023, we reported the first experimental evidence of SAW resonant absorption via magnon-phonon coupling in the van der Waals antiferromagnet  $CrCl_3$  [37]. Figure 5(a) shows a microscope image of a SAW device with a stamped  $CrCl_3$  layer between the IDTs, and Figure 5(b) provides a schematic. In  $CrCl_3$ , each atomic layer is ferromagnetic, but layers stack antiferromagnetically via van der Waals coupling (Figure 5c), forming two spin sublattices. These sublattices oscillate either in-phase (acoustic

spin wave mode) or out-of-phase (optic mode).

Figure 5(d) shows SAW absorption in  $\text{CrCl}_3$  at  $T = 6$  K (blue curve). Two symmetric absorption features appear: one around  $\pm 30$  mT (acoustic mode) and one around  $\pm 150$  mT (optic mode), consistent with the SAW frequency  $f_{\text{SAW}} = 1.1$  GHz. As temperature increases toward the Néel temperature  $T_N \approx 14$  K, both absorption features diminish and vanish, reflecting the magnetic transition.

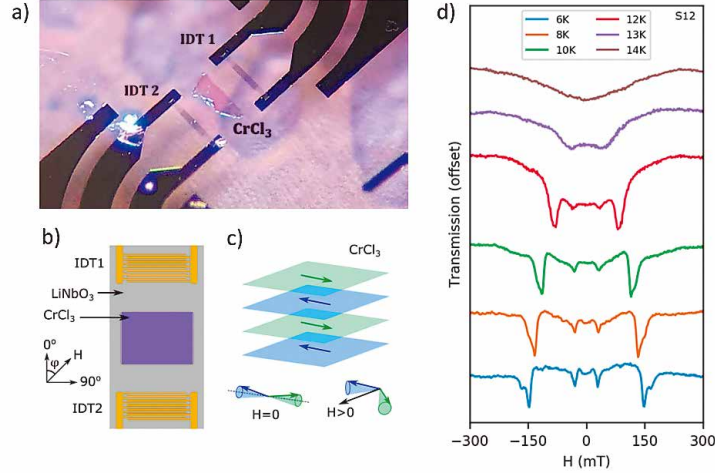


Figure 5. (a) Microscope image of a SAW device with a stamped  $\text{CrCl}_3$  layer between the IDTs. (b) Schematic of the SAW device. (c) Orientation of spin sublattices in  $\text{CrCl}_3$ . (d) SAW resonant absorption in  $\text{CrCl}_3$  under an in-plane magnetic field at temperatures from 6 K (blue) to 14 K (brown). Schematics in (b), (c) and data in (d) are reproduced with permission from [37].

## 6. Magnetoelastic crystals

An exquisite book by Leon Brillouin on the mathematical physics of wave propagation, with particular emphasis on periodic structures [38], laid the groundwork for today's broad research on photonic crystals [39–41], phononic crystals [42, 43], and more recently magnonic crystals [44, 45]. In our research, the typical SAW wavelength ( $\lambda_{\text{SAW}}$ ) ranges from a few hundred nanometers to 1–2  $\mu\text{m}$ , allowing the design and fabrication of artificial magnetic lattices within this scale to explore magnon-phonon coupling in what we term magnetoelastic crystals. Figure 6(a) shows the schematic of a Ni/Ti magnetoelastic crystal fabricated on a  $\text{LiNbO}_3$  piezoelectric substrate. Using this structure, we probed nonreciprocal SAW absorption determined by the symmetry of the structure as seen by the SAW wavevector  $k_{\text{SAW}}$ . When  $k_{\text{SAW}}$  interacts with the magnetoelastic crystal in an orientation lacking mirror symmetry, nonreciprocity appears [Fig. 6(b)], and it reverses when the crystal orientation is reversed [Fig. 6(c)]. In contrast, when the orientation preserves mirror symmetry, nonreciprocity vanishes [Fig. 6(d)], demonstrating the crystal's influence on magnon-phonon coupling [46]. The long phonon propagation lengths, broken time-reversal symmetry of magnons, and external magnetic field tunability together present exciting opportunities for future magnetoelastic crystal-based technologies [47].

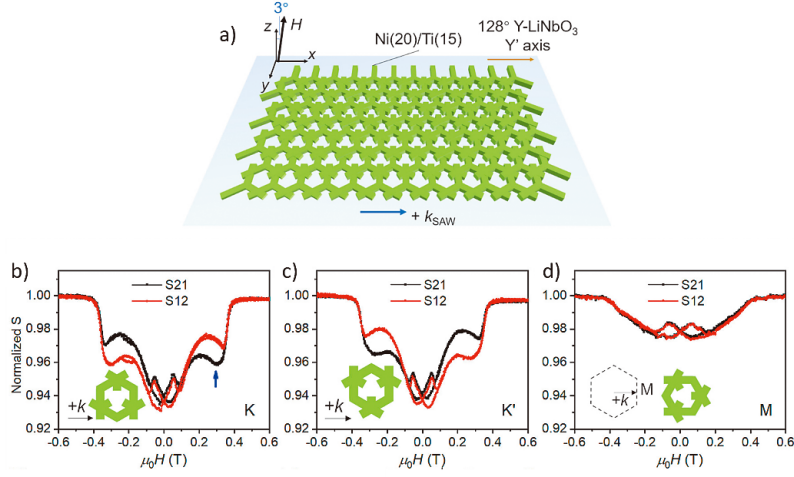


Figure 6. (a) Schematic of the magnetoelastic crystal structure composed of Ni/Ti deposited on a  $\text{LiNbO}_3$  piezoelectric substrate. (b) Nonreciprocal SAW absorption observed when the SAW propagation direction ( $k_{SAW}$ ) encounters the magnetoelastic crystal in an orientation lacking mirror symmetry. (c) The nonreciprocal response reverses when the orientation of the magnetoelastic crystal is reversed. (d) When  $k_{SAW}$  propagates along an orientation preserving mirror symmetry, the nonreciprocity vanishes, demonstrating the symmetry dependence of magnon-phonon coupling in the magnetoelastic crystal. This figure is reproduced with permission from [46].

## 7. Strong magnon-phonon coupling

As described above, surface acoustic wave (SAW) absorption in magnetic layers and the excitation of spin waves occur at the intersection of their respective dispersions, enabling efficient energy transfer. During this process, both phonons (acoustic waves) and magnons (spin waves) contribute to energy losses. When the coupling strength  $g$  exceeds the combined loss rates of magnons ( $k_m$ ) and phonons ( $k_p$ ), energy exchange between the two persists, defining the strong coupling regime. A hallmark of this regime is the anticrossing of the coupled mode dispersions, a phenomenon widely explored in light-matter interaction [48].

In 2024, we reported the first experimental observation of strong coupling between SAWs and spin waves at room temperature [49]. To minimize phonon losses ( $k_p$ ), we incorporated a pair of SAW resonators forming an acoustic cavity in addition to the interdigital transducers (IDTs). The magnon losses, on the other hand, are determined by the Gilbert magnetic damping, which is notably low in CoFeB thin films grown on Ti underlayers, similar approaches have shown to produce ultra-low Gilbert magnetic damping [50].

Figure 7(a) presents the calculated magnon ( $\omega_m$ , purple dashed line) and phonon ( $\omega_p$ , khaki dashed line) dispersions for a device with a central SAW frequency of  $f_{SAW} = 6.56$  GHz and an in-plane magnetic field of 35 mT. The green curves illustrate the expected mode anticrossing in the strong coupling regime. Figure 7(b) shows experimental SAW absorption data for a 30 nm CoFeB layer under varying in-plane magnetic fields, revealing two clear anticrossing features, evidence of two phonon modes confined within the acoustic cavity and the realization of the strong coupling regime.

The anticrossing indicate the formation of a hybrid magnetoelastic mode, exhibiting mixed magnonic and phononic characteristics. Notably, although phonons are typically insensitive to magnetic fields, the observed bending of the phonon dispersion near the magnon resonance demonstrates hybridization

and magnetic response. This emergent hybrid mode holds promise for wave-based information and communication technologies.

By removing the acoustic cavity, phonon losses increase, moving the system out of the strong coupling regime. As shown in Figure 7(c), in such a device, two phonon modes appear with linear magnetic field dependence, absorbed only at the magnon resonance condition.

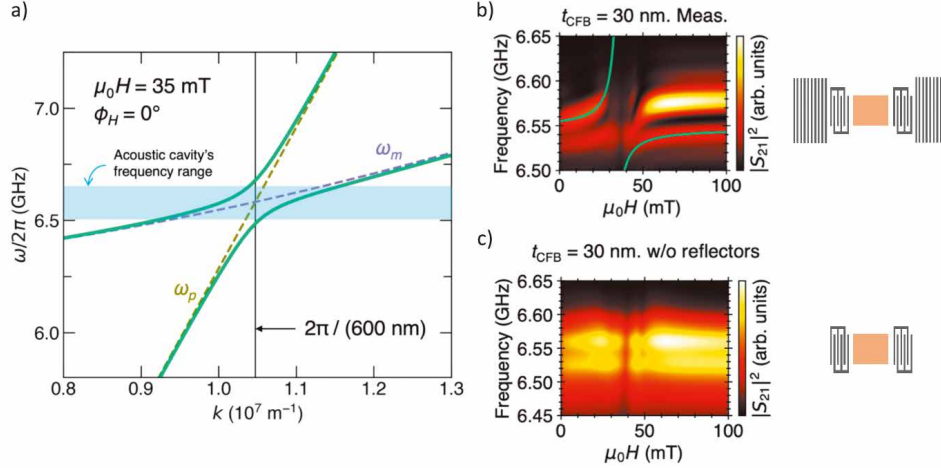


Figure 7. (a) Calculated magnon ( $\omega_m$ , purple dashed) and phonon ( $\omega_p$ , khaki dashed) dispersions for a device with a central SAW frequency of  $f_{SAW} = 6.56 \text{ GHz}$  and an in-plane magnetic field of 35 mT. The mode anticrossing in the strong coupling regime is shown as green curves. Experimental SAW absorption in a 30 nm CoFeB layer under in-plane magnetic fields is shown (b) with and (c) without acoustic reflectors forming an acoustic cavity. This figure is reproduced with permission from [49].

## 8. Final remarks

In summary, our research, together with contributions from other teams in Japan and abroad, demonstrates that surface acoustic waves (SAWs) provide a powerful platform for probing and controlling magnetization dynamics through magnon-phonon coupling. Across ferromagnetic and antiferromagnetic systems, and from linear to nonreciprocal and strong coupling regimes, SAW based devices reveal the remarkable versatility of elastic waves in driving and detecting spin phenomena. The ability to engineer materials and device geometries, from layered heterostructures to magnetoelastic crystals, enables precise control over coupling strength, symmetry, and frequency response.

These advances not only deepen our understanding of fundamental magnetoelastic interactions but also open pathways for practical technologies in wave-based computing, signal processing, and spintronic systems. Hybrid magnetoelastic excitations, where phonons' coherence meets magnons' tunability, mark an exciting step toward low-power, reconfigurable information devices. In a recent work, we achieved efficient nonlinear magnon excitation in a SAW resonator supporting hybrid waves [51], pointing the way to acoustic control of nonlinear magnon and quantum magnonic systems [52].

## References

- [1] A. Khan, D.E. Nikonov, S. Manipatruni, T. Ghani and I.A. Young, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 262407 (2014).
- [2] S. Bandyopadhyay, J. Atulasimha and A. Barman, *Appl. Phys. Rev.* **8**, 041323 (2021).
- [3] N. Lei et al., *Nat. Comm.* **4**, 1378 (2013).
- [4] A. Adhikari and S. Adenwalla, *AIP Advances* **11**, 015234 (2021).
- [5] M. Fattouhi, F. Garcia-Sanchez, R. Yanes, V. Raposo, E. Martinez and L. Lopez-Diaz, *Phys. Rev. Applied* **18**, 044023 (2022).
- [6] J. Cenker et al., *Nat. Nanotechnol.* **17**, 256 (2022).
- [7] H. Chi et al., *Nat. Comm.* **14**, 3222 (2023).
- [8] D.P. Morgan, *Proceedings of the 1998 IEEE International Frequency Control Symposium* (1998).
- [9] C. Kittel, *Phys. Rev.* **110**, 836 (1958).
- [10] J. Puebla, M. Xu, B. Rana, K. Yamamoto, S. Maekawa and Y. Otani, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **53**, 264002 (2020).
- [11] Y. Tserkovnyak, A. Brataas and G.E.W. Bauer, *Phys. Rev. B* **66**, 224403 (2002).
- [12] M. Xu, J. Puebla, F. Auvray, B. Rana, K. Kondou and Y. Otani, *Phys. Rev. B* **97**, 180301 (2018).
- [13] J.C. Rojas-Sánchez et al., *Nat. Commun.* **4**, 2944 (2013).
- [14] J. Puebla, F. Auvray, M. Xu, B. Rana, A. Albouy, H. Tsai, K. Kondou, G. Tatara and Y. Otani, *Appl. Phys. Lett.* **111**, 092402 (2017).
- [15] F. Auvray, J. Puebla, M. Xu, B. Rana, D. Hashizume and Y. Otani *J. Mat. Sci.: Mat. Electr.* **29**, 15664 (2018).
- [16] M. Weiler, H. Huebl, F. S. Goerg, F. D. Czeschka, R. Gross and S. T. B. Goennenwein, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 176601 (2012).
- [17] Y. Hwang, J. Puebla, M. Xu, A. Lagarrigue, K. Kondou and Y. Otani, *Appl. Phys. Lett.* **116**, 252404 (2020).
- [18] K. Uchida, H. Adachi, T. An, H. Nakayama, M. Toda, B. Hillebrands, S. Maekawa and E. Saitoh, *J. Appl. Phys.* **111**, 053903 (2012).
- [19] D. Kobayashi, T. Yoshikawa, M. Matsuo, R. Iguchi, S. Maekawa, E. Saitoh and Y. Nozaki, *Phys. Rev. Lett.* **119**, 077202 (2017).
- [20] T. Kawada, M. Kawaguchi, T. Funato, H. Kohno and M. Hayashi, *Sci. Adv.* **7**, eabd9697 (2021).
- [21] L. Dreher, M. Weiler, M. Pernpeintner, H. Huebl, R. Gross, M. S. Brandt and S. T. B. Goennenwein, *Phys. Rev. B* **86**, 134415 (2012).
- [22] R. Sasaki, Y. Nii, Y. Iguchi and Y. Onose, *Phys. Rev. B* **95**, 020407(R) (2017).
- [23] S. Tateno and Y. Nozaki, *Phys. Rev. Applied* **13**, 034074 (2020).
- [24] M. Xu, K. Yamamoto, J. Puebla, K. Baumgaertl, B. Rana, K. Miura, H. Takahashi, D. Grundler, S. Maekawa and Y. Otani, *Sci. Adv.* **6**, eabb1724 (2020).
- [25] S. Maekawa and M. Tachiki, *AIP Conference Proceedings* **29**, 542 (1976).
- [26] R. Verba, V. Tiberkevich and A. Slavin, *Phys. Rev. Applied* **12**, 054061 (2019).
- [27] H. Matsumoto, T. Kawada, M. Ishibashi, M. Kawaguchi and M. Hayashi, *Appl. Phys. Exp.* **15**, 063003 (2022).
- [28] M. Küß, M. Hassan, Y. Kunz, A. Hörner, M. Weiler and M. Albrecht, *Phys. Rev. B* **107**, 214412 (2023).
- [29] M. Küß, M. Hassan, Y. Kunz, A. Hörner, M. Weiler and M. Albrecht, *Phys. Rev. B* **107**, 024424 (2023).
- [30] A. Hernández-Mínguez, F. Macià, J. M. Hernández, J. Herfort and P. V. Santos, *Phys. Rev. Applied* **13**, 044018 (2020).
- [31] M. Küß, M. Heigl, L. Flacke, A. Hörner, M. Weiler, A. Wixforth and M. Albrecht, *Phys. Rev. Applied* **15**, 034060 (2021).
- [32] L. Ushii, A. Slavin and R. Verba, *Phys. Rev. Applied* **22**, 034046 (2024).
- [33] Y. Ba, J. Puebla, K. Yamamoto, Y. Hwang, L. Liao, S. Maekawa, O. Klein and Y. Otani, *Phys. Rev. B*

- 111**, 104401 (2025).
- [34] L. Liao, F. Chen, J. Puebla, J. Kishine, K. Kondou, W. Luo, D. Zhao, Y. Zhang, Y. Ba and Y. Otani *Sci. Adv.* **10**, eado2504 (2024).
- [35] T. Jungwirth, X. Marti, P. Wadley and J. Wunderlich, *Nat. Nanotechnol.* **11**, 231 (2016).
- [36] V. Baltz, A. Manchon, M. Tsoi, T. Moriyama, T. Ono and Y. Tserkovnyak, *Rev. Mod. Phys.* **90**, 015005 (2018).
- [37] T.P. Lyons, J. Puebla, K. Yamamoto, R.S. Deacon, Y. Hwang, K. Ishibashi, S. Maekawa and Y. Otani, *Phys. Rev. Lett.* **131**, 196701 (2023).
- [38] L. Brillouin, *Wave propagation in periodic structures*, 2<sup>nd</sup> edition, Dover publications inc. (1953).
- [39] S. Noda and T. Baba, *Roadmap on photonic crystals*, 1<sup>st</sup> edition, Springer New York (2003).
- [40] J. D. Joannopoulos, P.R. Villeneuve and S. Fan, *Nature* **386**, 143 (1997).
- [41] S. Noda, M. Yoshida, T. Inoue, M. De Zoysa, K. Ishizaki and R. Sakata, *Nat. Rev. Elect. Eng.* **1**, 802 (2024).
- [42] M-H. Lu, L. Feng and Y-F. Chen, *Mat. Today* **12**, 12 (2009).
- [43] T. Vasileiadis, J. Varghese, V. Babacic, J. Gomis-Bresco, D. Navarro-Urrios and B. Graczykowski, *J. Appl. Phys.* **129**, 160901 (2021).
- [44] M. Krawczyk and D. Grundler, *J. Phys.: Condens. Matter* **26**, 123202 (2014).
- [45] A.V. Chumak, A.A. Serga and B. Hillebrands, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **50**, 244001 (2017).
- [46] L. Liao, J. Puebla, K. Yamamoto, J. Kim, S. Maekawa, Y. Hwang, Y. Ba and Y. Otani, *Phys. Rev. Lett.* **131**, 176701 (2023).
- [47] L. Liao, J. Liu, J. Puebla, Q. Shao and Y. Otani, *npj Spintronics* **2**, 47 (2024).
- [48] M. S. Skolnick, T. A. Fisher and D. M. Whittaker, *Semicond. Sci. Technol.* **13**, 645 (1998).
- [49] Y. Hwang, J. Puebla, K. Kondou, C. Gonzalez-Ballester, H. Isshiki, C. Sánchez Muñoz, L. Liao, F. Chen, W. Luo, S. Maekawa and Y. Otani, *Phys. Rev. Lett.* **132**, 056704 (2024).
- [50] S. Yoshii, M. Müller, H. Inoue, R. Ohshima, M. Althammer, Y. Ando, H. Huebl and M. Shiraishi, *Phys. Rev. B* **109**, L020406 (2024).
- [51] Y. Hwang, L. Liao, J. Puebla, M. Brühlmann, C. Gonzalez-Ballester, K. Kondou, N. Ogawa, S. Maekawa and Y. Otani, arXiv:2509.19706 (2025).
- [52] M. Brühlmann, Y. Hwang, J. Puebla and C. Gonzalez-Ballester, arXiv:2509.16199 (2025).

## 著者略歴



プエブラ ホルヘ (PUEBLA Jorge)

京都大学大学院工学研究科 電子工学専攻 准教授

<https://orcid.org/0000-0002-4364-5672>

2013年3月 University of Sheffield 博士 (物理)

2013年1月 Marie Curie Fellow, attocubesystems AG (ドイツ)

2015年2月 研究員, 理化学研究所 (日本)

2025年2月より現職

## 新規有機伝導体 $\kappa''$ -(ET)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Br における陰イオン層の 乱れに誘起された Anderson 局在

### Anderson localization induced by disordered anions in a new organic conductor $\kappa''$ -(ET)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Br

矢坂 聡一郎

京都大学 大学院理学研究科

Soichiro Yasaka

Graduate School of Science, Kyoto University

We report a new organic conductor  $\kappa''$ -(ET)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Br, which is the first polymorph of organic superconductor  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Br. Its electronic state is elucidated by means of band calculation in combination with transport, magnetic, and optical measurements. The results suggested the occurrence of Anderson localization due to orientational disorder in its anion layers.

#### 1. はじめに

有機伝導体とは、主に有機分子から構成されるにもかかわらず金属のように高い伝導性を示す物質のことを指す。本物質系は無機物質系に比べて、用いる分子やそのパッキング構造の自由度から非常に高いデザイン性を有しており、化学的手法による新分子・新規結晶合成と伝導性・磁性などの物性測定を組み合わせることでこれまで多様な物性を持つ有機伝導体が報告されてきた [1]。その中でも特に  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>X と呼ばれる有機伝導体群はその豊富な電子物性から多くの研究者の興味を引き付けてきた [1, 2]。ここで、ET とは有機ドナー分子 bis (ethylenedithio) tetrathiafulvalene (図 1a) のことを指し、X は対となる一価の陰イオン (X<sup>-</sup>) のことを指す。κ とは図 1b のように、ET 分子からなる二量体と隣接する二量体が直交しているようなパッキング構造を示す接頭辞である。電気的中性から  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>X 中で各 ET 二量体は一価に酸化された (ET)<sup>+</sup> となっており、二量体サイトあたりに一つのホールとスピンを有している。これをバンド描像に直すと、ET 分子の最高被占有分子軌道 (HOMO) はまず二量化によって結合性・反結合性軌道に分裂し、それぞれが形成するエネルギーバンドのうち高エネルギー側のものが半分占有されている状態となる。

この  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>X の電子物性として代表的な点は、電子間相互作用によって Mott の金属絶縁体転移を示すことである。Mott の金属絶縁体転移とは金属において、同一サイト内の電子間反発  $U$  がエネルギーバンド幅  $W$  を上回るときにバンドの分裂が起こり絶縁体となる現象を指し、絶縁相は低温で反強磁性秩序を呈する。κ-(ET)<sub>2</sub>X においても陰イオン種 X<sup>-</sup> を変化させることで様々な電子相関強度 ( $U/W$ ) を持つ物質が開発され、より大きい  $U/W$  では磁気秩序を伴う Mott 絶縁相が、より  $U/W$  の小さい金属相では非従来型超伝導が存在することが明らかとなっている [2]。他にも物質中にポテンシャルの乱れがある場合、電子の波動関数が散乱されることで空間的に局在してしまう Anderson 局在を起こし、これは主に X 線照射によって研究されている [3]。また、

Mott 絶縁相においても二量体サイト間のスピンプラストレーションが強いと長距離的な磁気秩序が抑制された量子スピン液体 [2,4] が発現するなど、様々な因子が $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>X の電子物性に影響している。近年ではキラリティ誘起スピン選択 (CISS) 効果 [5] や交替磁性 [6] などのより発展的な物性研究が $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>X で展開されており、本物質系は物性物理学の最前線として今なお幅広い興味を集め続けている。

筆者はその $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>X の中でも、常圧で最も高い転移温度を有する有機超伝導体として知られている $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Br ( $\kappa$ -Br) [7] の、世界初の結晶多形である $\kappa''$ -(ET)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Br ( $\kappa''$ -Br) [8] を合成し、その物性研究を行っている。 $\kappa''$ -Br は $\kappa$ -Br と類似した $\kappa$ -型の ET 伝導層を有するが、 $\kappa$ -Br は直方晶、 $\kappa''$ -Br は単斜晶の結晶系に属し、加えて $\kappa$ -Br にはなかった陰イオン層の構造の乱れが $\kappa''$ -Br では確認されるなどの差異が見られた。バンド計算では、 $\kappa''$ -Br の ET 伝導層に由来するエネルギーバンド構造は $\kappa$ -Br におけるそれとほぼ同一であることが示唆された。しかしながら、これらの共通点にもかかわらず、 $\kappa''$ -Br は超伝導体ではなく半導体的な伝導挙動を示した。加えて $\kappa''$ -Br は従来の Mott 絶縁体のように磁気秩序を示さず、電荷秩序も起きていないことが明らかになった。これらの結果は $\kappa''$ -Br において、陰イオン層の構造の乱れによって Anderson 局在が誘起されていることを示唆している。

## 2. 実験方法

$\kappa''$ -Br は $\kappa$ -Br の副生成物として、電解酸化法によって合成される。H 型電解セルの陽極側には ET, Ph<sub>4</sub>P[N(CN)<sub>2</sub>], Ph<sub>4</sub>PBr を、陰極側には CuBr を加え、体積分率 10% のエタノールを混合した 1,1,2-trichloroethane に溶解させた後に白金電極を用いて 0.3 μA の電流を印加した。陽極側から得られる黒色結晶のうち多くが $\kappa$ -Br であるが、僅かに $\kappa''$ -Br も含まれており、単結晶 X 線回折からそれらを分離した。

単結晶 X 線回折実験は窒素吹付装置を用いて 298–100 K の温度範囲で行い、入射光には Mo K α 線を用いた。各温度での単結晶構造に対する CCDC 番号は 2280028 (298 K), 2306411 (100 K), 2306412 (150 K), 2306413 (200 K), 2306414 (250 K) である。また各温度で得られた結晶構造をもとに拡張ヒュッケル法に基づいた強束縛近似 [9] を用いてバンド計算を行った。

電気抵抗測定では金線 (φ 15 μm) をカーボンペーストを用いて単結晶試料に接着し、ET 分子層に平行な方向に 4 端子法を用いて測定した。温度制御には Quantum Design 社の PPMS を用い、300–2 K の温度範囲で行った。

電子スピン共鳴 (ESR) 測定には X バンド (約 9.5 GHz) の周波数を用い、 $g = 2$  付近の常磁性電子に対して測定を行った。この際磁場は単結晶試料の  $c$  軸方向に平行に印加された。ヘリウムフロー型のクライオスタットを用いて温度制御を行い、各温度で単一のローレンチアンシグナルが観測された。なお磁化率の算出にあたっては CuSO<sub>4</sub> · 5H<sub>2</sub>O を標準試料として用いた。

ラマン散乱実験では He-Ne レーザー (633 nm) が用いられ、入射光は単結晶試料の  $c$  軸方向に偏光していた。温度制御はヘリウムフロー型のクライオスタットを用いて 300–4.2 K の温度範囲で行われ、ラマンシフトの校正にはネオンランプを用いた。

## 3. 結果と考察

図 1 に $\kappa''$ -Br の室温での結晶構造を示す。本物質は ET 分子による伝導層 (図 1b) と閉殻の陰イオン層 (図 1e) からなる交互積層構造 (図 1c) を有しており、これは塩化物である

$\kappa''$ -(ET)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl ( $\kappa''$ -Cl) [10] と同型構造である。  $\kappa''$ -Br の結晶系・空間群はそれぞれ単斜晶系かつ *C2/c* であり、直方晶系かつ *Pnma* の  $\kappa$ -Br とは異なる。  $\kappa''$ -Br の ET 層では結晶学的に等価な一つの ET 分子が二量体を形成し、それらが互いに直交した  $\kappa$ -型のパッキング構造を形成している (図 1b)。このような ET 分子のパッキング構造は  $\kappa$ -Br における結果と類似しているが、 $\kappa$ -Br では異なる傾きの ET 分子層が交互に重なっているのに対し、 $\kappa''$ -Br では ET 層の配向は全て平行である。陰イオン層は {Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Br} ∞ による高分子鎖から構成されている (図 1e)。ここで特筆すべき点は  $\kappa$ -Br ではジシアナミド基が一通りの配向方向に整列している (図 1f) のに対し、 $\kappa''$ -Br ではジシアナミド基が二通りの配向方向に無秩序化していることである (図 1e)。これらの異なる配向のジシアナミド基は中心対称性によって等価であり、占有率は 0.5 ずつであった。なおこれらの構造的特徴は  $\kappa''$ -Cl [10] において報告されたものと同様であった。

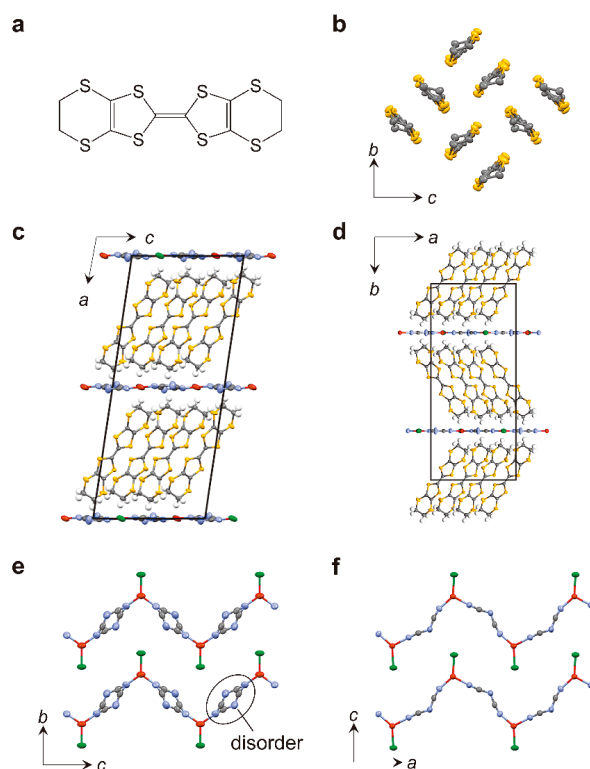


図 1. (a) ET の分子構造. 室温での (b)  $\kappa''$ -Br における ET 層のパッキング構造 (水素は省略). (c) *b* 軸方向から見た  $\kappa''$ -Br ならびに (d) *c* 軸方向から見た  $\kappa$ -Br の室温での結晶構造. (e)  $\kappa''$ -Br および (f)  $\kappa$ -Br の室温での陰イオン層構造. (灰色: 炭素, 白: 水素, 緑: 臭素, 赤: 銅, 水色: 窒素, 黄: 硫黄) [8] より許可を得て改変のうえ転載. © 2024 American Chemical Society.

次に、各温度で得られた結晶構造をもとに ET 伝導層における ET 分子の HOMO からなるエネルギーバンド構造を計算した。図 2 は 100 K の  $\kappa''$ -Br 並びに  $\kappa$ -Br の構造より得られたバンド分散とフェルミ面描像である。ET 分子の二量化によりエネルギーバンドは上下に分裂し、その上部が半分占有されているという  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>X に典型的なバンド構造が確認された。それと同時に、 $\kappa''$ -Br のバンド構造が  $\kappa$ -Br のものとほぼ同一であることが伺える。右図ではそれぞれのフェルミ面を図示しているが、両者はほぼぴったりと重なっている。

また、 $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>X では電子間相互作用 *U* はしばしば二量体内部のトランスファー積分 *t<sub>d</sub>* を用いて  $U = 2|t_d|$  と評価される。図 3 では  $\kappa''$ -Br の各温度での *U/W* を他の  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>X における値 [11] と

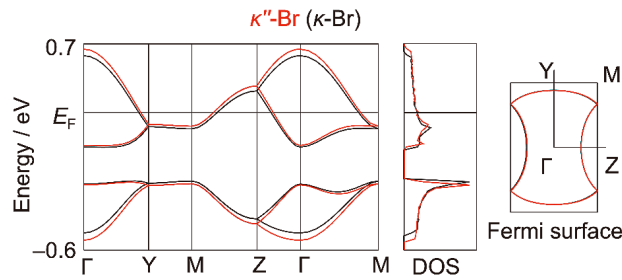


図 2.  $\kappa''$ -Br (赤) および  $\kappa$ -Br (黒) での 100 K において計算されたバンド分散, 状態密度およびフェルミ面. [8] より許可を得て転載. © 2024 American Chemical Society.

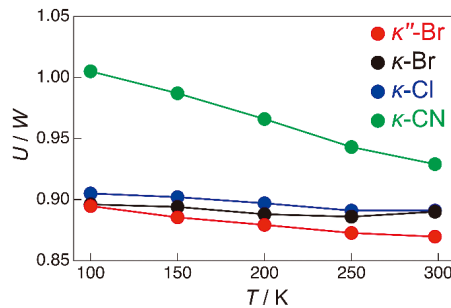


図 3.  $\kappa''$ -Br および他の  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>X における  $U/W$  の温度依存性. [8] より許可を得て改変のうえ転載. © 2024 American Chemical Society.

比較する.  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>(CN)<sub>3</sub> ( $\kappa$ -CN) においては低温での  $U/W$  が 1 程度と大きく, Mott 絶縁体的な挙動を示す [2, 11]. また  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl ( $\kappa$ -Cl) では  $U/W$  が超伝導体の  $\kappa$ -Br と非常に近いが低温でやや大きくなり,  $\kappa$ -Cl が非常に弱い圧力で超伝導転移を起こす Mott 絶縁体であることから, これらは Mott の金属絶縁体転移の境界付近に位置しているとされる [2, 11]. これらのデータと比較したところ,  $\kappa''$ -Br の  $U/W$  は常温では  $\kappa$ -Br より小さく, 低温に行くにつれてより近い値をとる. この結果から  $\kappa''$ -Br と  $\kappa$ -Br は電子相関の面でも近いといえる.

これらの共通点にもかかわらず,  $\kappa''$ -Br は  $\kappa$ -Br と異なる電気輸送特性を示した. 図 4 は  $\kappa''$ -Br 単結晶の ET 分子面内方向の抵抗の温度依存性である. 超伝導体である  $\kappa$ -Br とは対照的に,  $\kappa''$ -Br は低温まで半導体的な挙動を示した. アレニウスプロットから活性化エネルギーは 10.2 meV と見積もられたが, 20 K 以下の低温では従来の活性化挙動からの逸脱が見られた.

$\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>X の絶縁状態として最もよく知られているものは反強磁性秩序を伴う Mott 絶縁体である. この可能性について議論するために, 電子スピン共鳴 (ESR) を用いて,  $\kappa''$ -Br の磁気特性を測定した. 図 5 は  $\kappa''$ -Br のスピン磁化率の温度依存性である. スピン磁化率は室温で約  $5 \times 10^{-4}$  emu mol<sup>-1</sup> と, 他の  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>X と同程度の値を示した. 磁化率は 60 K あたりから減少を始めるものの, 低温まで常磁性スピンによる有限の磁化率が観測された. これは 27 K で反強磁性秩序を起こす  $\kappa$ -Cl [12] とは対照的であり,  $\kappa''$ -Br が反強磁性の Mott 絶縁体ではないことを示唆する. 同様に, 擬一次元系などで多く見られる電荷密度波状態 (反磁性) やスピン密度波状態 (反強磁性) の可能性も除外できる.

また一部の  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>X においては ET 二量体内部の電荷秩序による絶縁体転移が報じられている [13]. この可能性についても議論するために, ラマン散乱分光法を用いて  $\kappa''$ -Br 中の ET 分子の電荷状態を評価した. 各温度でのラマンスペクトルを図 6a に示す. 1500 および 1470 cm<sup>-1</sup> 付

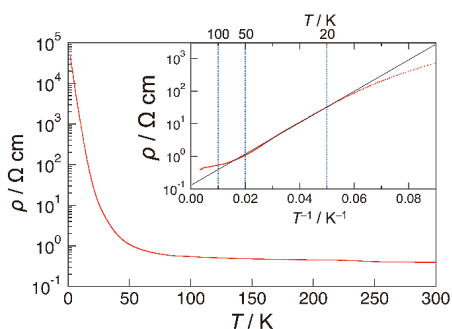


図 4.  $\kappa''\text{-Br}$  の面内抵抗の温度依存性. 挿入図は抵抗のアレニウスプロットであり, 黒線は活性化エネルギーが 10.2 meV でのフィッティングを図示している. [8] より許可を得て転載.  
© 2024 American Chemical Society.

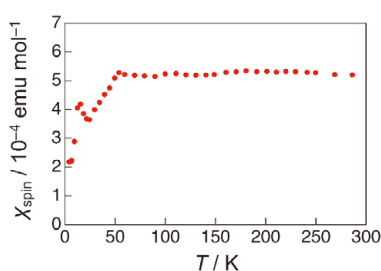


図 5.  $\kappa''\text{-Br}$  のスピン磁化率の温度依存性. [8] より許可を得て改変のうえ転載.  
© 2024 American Chemical Society.

近に見られるピークはそれぞれ ET 分子の  $\nu_2$  (図 6b) および  $\nu_3$  (図 6c) 伸縮振動モードによるもので, これらのピークは ET 分子の電荷状態に敏感であり, 電荷不均化に応じてピークスプリッティングを呈することが知られている [13, 14]. しかしながら図 6a にある通り, これらのピークは 4.2 K の低温まで分離を示さず, したがって  $\kappa''\text{-Br}$  内で電荷不均化は起きていないと考えられる.

以上から  $\kappa''\text{-Br}$  は半導体であるにもかかわらず, Mott 絶縁相や電荷秩序相において従来観測されてきた磁気秩序や電荷不均化のどちらも示さないことが明らかになった. 従って,  $\kappa''\text{-Br}$  における絶縁状態はポテンシャルの乱れに誘起された Anderson 局在だと考えられる. 同様に乱れに誘起された絶縁状態は X 線照射における実験などで報告されており [3], 活性化挙動に従わないなど  $\kappa''\text{-Br}$  との共通点が見られる. 加えて,  $\kappa''\text{-Br}$  の低温での抵抗は温度の対数に比例しており (図 7), Cu 薄膜などの弱局在における結果 [15] と一致する. これも本物質での Anderson 局在の発現を支持する一つの証拠である.  $\kappa\text{-(ET)}_2\text{X}$  での構造の乱れの研究手法として, X 線照射の他に ET 分子の末端エチレン基の配座の乱れを用いたものがある [16,17].  $\kappa''\text{-Br}$  においても同様に ET 分子に配座の乱れが見られるが, 超伝導体である  $\kappa\text{-Br}$  と同程度の乱雑さであるため [8], 本物質の Anderson 局在の起源とは言い難い. 同様に X 線照射の影響についても議論すべきだが, 先行研究 [3] では 100 時間以上の照射により絶縁体転移が起きているのに対し, 本研究での結晶への X 線回折実験の時間は 2 時間程度なのでその影響は極めて少ないと予想される. 以上から, やはり単結晶構造で指摘された陰イオン層における配向の乱れが  $\pi$  伝導層内部にポテンシャルの乱れを導入していると考えられる. また  $\kappa''\text{-Cl}$  [10] は  $\kappa''\text{-Br}$  と同型構造を有するが, 詳細な物性研究は行われておらず, 陰イオン層の乱れの影響について十分な議論は行われてい

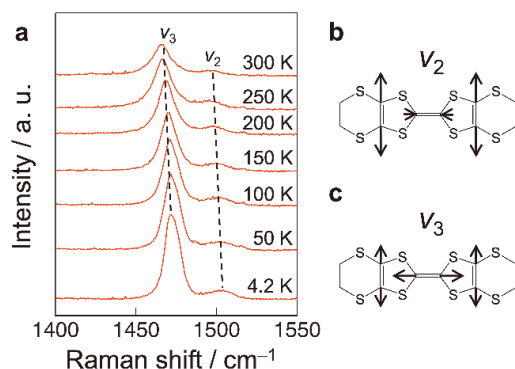


図 6. (a)  $\kappa''\text{-Br}$  の各温度でのラマンスペクトル. ET 分子における (b)  $\nu_2$  および (c)  $\nu_3$  振動モード. [8] より許可を得て転載. © 2024 American Chemical Society.

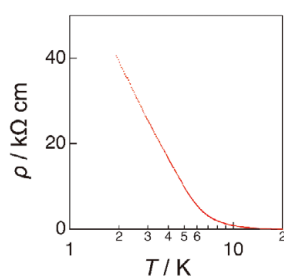


図 7.  $\kappa''\text{-Br}$  の低温での面内抵抗の温度依存性. [8] より許可を得て転載. © 2024 American Chemical Society.

ない. そういった意味で  $\kappa''\text{-Br}$  は多形合成という手段によってポテンシャルの乱れを導入し, Anderson 局在を引き起こすことができた初めての  $\kappa\text{-(ET)}_2\text{X}$  である. 加えて本物質は従来の化学ドーピングやアモルファス化と比べてその化学組成やバンド構造が変化しないまま Anderson 局在が発現しているという点で特徴的であり, 超伝導体である  $\kappa\text{-Br}$  との比較によりランダムポテンシャルの電子物性に対する影響についてより詳細な知見を得ることが期待される.

#### 4. おわりに

本研究の対象物質である  $\kappa''\text{-Br}$  は筆者が学部 4 年生のときに偶然発見したもので, 当時は 30 年に渡り盛んに研究されていた有機超伝導体にこれまで知られていない相があったという事実にとどく興奮した. またただ構造が新しいというだけでなく, 陰イオン層の配向の乱れが Anderson 局在の発現に寄与しているという物性面での新たな知見も見出すことができ, 論文として形にすることができたのは僥倖である. しかしながら, 本物質は未だに単結晶数個ほどの試料しか得られておらず, 固体 NMR や比熱測定などのより多量の試料を要する測定を行うには合成方法の改良が必須である. 「物理学は化学に支えられている」とは小形正男氏著の「分子性物質の物理」[18] の一節であるが, 本研究もその例にもれず, よりその物理物性を明らかにするためには化学における進歩が不可欠だと感じる. 最近, 合成温度を  $-5\text{ }^\circ\text{C}$  などの低温にすることでより多くの  $\kappa''\text{-Br}$  が得られることが分かってきたが, 結晶の純度や再現性に問題があり, 合成条件の最適化はまだ不十分である. 本研究やそこから得られる知見が今後より分野の発展に貢献できるよう,  $\kappa''\text{-Br}$  の生みの親である化学者として, そしてその物性に最初にアクセスで

きる物理学者として最善を尽くしていきたい。

## 5. 謝辞

まず初めに、常日頃液体ヘリウム供給・回収でお世話になっている環境安全保健機構低温物質管理部門の皆様にご感謝申し上げます。また本研究の遂行にあたり、京都大学大学院理学研究科 北川宏教授、前里光彦准教授、吉田幸大准教授、田中優輝氏から多大なるご助言およびご指導を賜りました。加えて ESR 測定においては京都大学大学院理学研究科 大塚晃弘准教授にご助力いただきました。また本研究は JSPS 科研費 (JP20H02709, JP20H05623, JP23H01933) および JST 戦略的創造研究推進事業 (JPMJAC1501) の助成を受けたものです。

## 参考文献

- [1] G. Saito and Y. Yoshida, *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **80**, 1–137 (2007).
- [2] K. Kanoda, *J. Phys. Soc. Jpn.* **75**, 051007 (2006).
- [3] T. Sasaki, *Crystals* **2**, 374–392 (2012).
- [4] Y. Shimizu et al., *Phys. Rev. Lett.* **91**, 107001 (2003).
- [5] R. Nakajima et al., *Nature* **613**, 479–484 (2023)
- [6] M. Naka et al., *Nat. Commun.* **10**, 4305 (2019)
- [7] A. M. Kini et al., *Inorg. Chem.* **29**, 2555–2557 (1990).
- [8] S. Yasaka et al., *Inorg. Chem.* **63**, 4196–4203 (2024).
- [9] T. Mori et al., *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **57**, 627–633 (1984).
- [10] N. D. Kushch et al., *J. Solid State Chem.* **182**, 617–621 (2009).
- [11] T. Hiramatsu et al., *J. Mater. Chem. C* **3**, 1378–1388 (2015).
- [12] H. Ohta et al., *Synth. Met.* **103**, 1914–1915 (1999).
- [13] N. Drichko et al., *Phys. Rev. B* **89**, 075133 (2014).
- [14] T. Yamamoto et al., *J. Phys. Chem. B* **109**, 15226–15235 (2005).
- [15] S. Kobayashi et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **49**, 1635–1636 (1980).
- [16] X. Su et al., *Phys. Rev. B* **57**, R14056R (1998).
- [17] T. Naito et al., *Adv. Mater.* **3**, 1506–1511 (2022).
- [18] 小形正男 (著), 鹿野田一司, 宇治進也 (編), 「分子性物質の物理」, 朝倉書店 (2015).

## 著者略歴



矢坂 聡一郎 (YASAKA Soichiro)

京都大学大学院理学研究科 化学専攻 博士後期課程 2 年生

ORCID: 0009-0009-9425-0193

2022 年 3 月 京都大学理学部 卒業

2022 年 4 月 京都大学大学院理学研究科 化学専攻 修士課程 入学

2024 年 3 月 京都大学大学院理学研究科 化学専攻 修士課程 卒業

2024 年 4 月 京都大学大学院理学研究科 化学専攻 博士後期課程 入学

現在に至る

超純良単結晶  $\text{UTe}_2$  の NMR: スピン三重項超伝導状態におけるゆらぎ $^{125}\text{Te}$ -NMR measurements on ultra-clean  $\text{UTe}_2$ :  
Unconventional fluctuations in the spin-triplet superconductivity

松村 拓輝

京都大学 大学院理学研究科

Hiroki Matsumura

Graduate School of Science, Kyoto University

We performed  $^{125}\text{Te}$ -NMR measurements on ultra-clean single crystals of  $\text{UTe}_2$ , a leading candidate for spin-triplet superconductivity. The Knight-shift measurements along the three crystallographic axes revealed a distinct decrease in spin susceptibility below  $T_c = 2.1$  K, indicating that the  $d$ -vector possesses components along all axes, consistent with a fully gapped triplet state analogous to the superfluid  $^3\text{He-B}$  phase. In the superconducting state, the nuclear spin-lattice relaxation rate  $1/T_1T$  exhibits a sharp drop below  $T_c$  without a coherence peak, followed by an unexpected enhancement below 0.35 K that is suppressed by magnetic fields. This low-temperature upturn cannot be explained by impurities or multigap effects but is quantitatively reproduced by the Bloembergen–Purcell–Pound (BPP) model. The result suggests that the slow spin dynamics might originate from collective spin excitations inherent to the spin-triplet superconducting state of  $\text{UTe}_2$ .

## 1. はじめに

超伝導は、2つの電子が「クーパー対」と呼ばれるペアを形成することで生じる巨視的な量子現象です。従来の超伝導体では、このクーパー対を構成する電子のスピンは反平行 ( $\uparrow\downarrow$ ) となり、全スピン角運動量はゼロになります。このような状態はスピンス重項超伝導と呼ばれ、鉛 (Pb) やアルミニウム (Al) など、現在知られているほとんどの超伝導体がこのタイプに属します。一方で、2つの電子のスピンが平行 ( $\uparrow\uparrow$  または  $\downarrow\downarrow$ ) となり、全スピン角運動量が 1 となる状態も理論的には可能で、これはスピンス重項超伝導と呼ばれます。この状態では、クーパー対がスピンの向きをある程度自由に変えることができるため、磁場に強い特性を示したり、スピンの回転するような内部自由度をもったりなど、非常に特異な性質を示します。スピンス重項状態は、ヘリウム 3 ( $^3\text{He}$ ) の超流動相で実現していることが知られていますが [1]、固体中での実現例はきわめて稀です。

スピンス重項超伝導は、外部磁場などによる超伝導スピンの制御や超伝導スピンドイナミクスを可能にすることから、超伝導スピントロニクスへの応用が期待されています。さらに、トポロジカル量子状態やマヨラナ粒子の出現とも深く関係しており、現代物理学と量子技術の両面で大きな注目を集めています。本稿では、近年発見されたスピンス重項超伝導の有力候補物質である  $\text{UTe}_2$  において観測された、「非自明なスピンゆらぎを伴うスピンス重項超伝導状態」の発見について解説します。

## 2. スピン三重項超伝導の有力候補物質 $UTe_2$

$UTe_2$  は、直方晶(空間群  $Immm$ )に属する化合物で、ウラン原子が「2本のはしご(two-leg ladder)」構造を形成する、 $UTe_2$ 型と呼ばれる特徴的な結晶構造をもっています(図1)。2018年にその超伝導が発見されて以来[2]、上部臨界磁場  $H_{c2}$  がすべての結晶軸方向でスピン三重項超伝導体におけるパウリ臨界磁場を大きく超えること、さらに磁場や圧力によって複数の超伝導相が誘起されることなどから(図2)[3,4]、スピン三重項超伝導の有力候補として世界的に注目を集めています。発見当初、超伝導転移温度  $T_c$  は 1.6 K でしたが、合成方法の改良により、現在では 2.1 K まで上昇しています[5]。比熱の詳細な試料依存性測定によって、この 2.1 K の試料では残留比熱がほぼゼロであることが確認されており、極めて不純物の少ない「超純良試料」であることが示されています[6]。

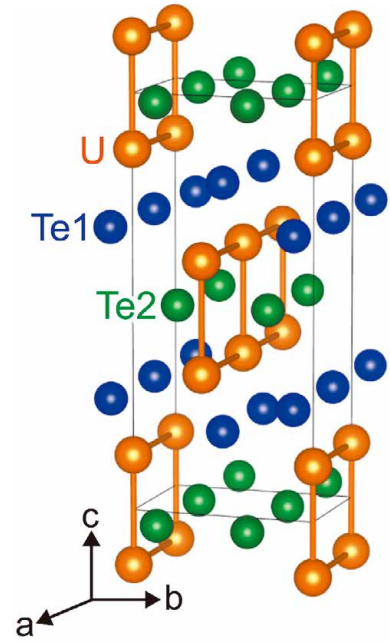


図1  $UTe_2$  の結晶構造.

スピン三重項超伝導体の有力候補としては、これまでに  $UGe_2$ ,  $URhGe$ ,  $UCoGe$  などの「強磁性超伝導体」が知られています[7]。これらは強磁性と超伝導が微視的に共存する点の特徴ですが、 $UTe_2$  の決定的な違いは、常磁性状態で超伝導を示す点にあります。多くのウラン系超伝導体では磁気秩序と超伝導が共存しますが、磁気秩序の存在はしばしば超伝導の本質的な性質を覆い隠してしまいます。 $UTe_2$  は低温まで常磁性を保つため、スピン三重項超伝導の本質的な物理を探るうえで理想的な研究対象といえます。

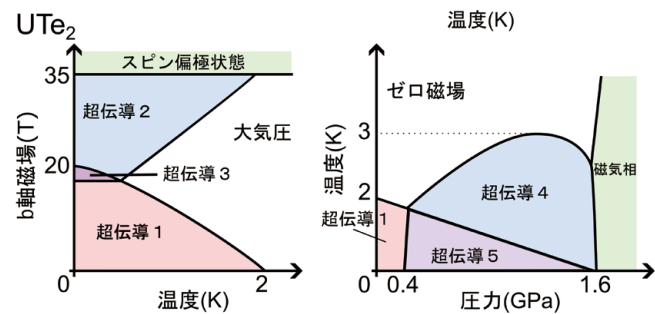


図2  $UTe_2$  の  $b$  軸磁場 - 温度相図(左)と温度 - 圧力相図(右)の概略図。従来の超伝導と異なり、磁場や圧力によって複数の超伝導相が現れる。

## 3. $UTe_2$ の超伝導状態におけるスピン磁化率

超伝導状態におけるスピン磁化率は、その超伝導対のスピン状態、すなわち秩序変数の対称性を決定づけるうえで極めて重要な物理量です。しかし、通常バルク磁化測定では、超伝導反磁性(マイスナー効果)の寄与が支配的となり、電子スピン由来の磁化率成分を直接取り出すことは容易ではありません。そこで用いられるのが、電子スピンと原子核との超微細相互作用を通じて局所的な磁化率を測定できる、核磁気共鳴(NMR)法です。NMRは、超伝導状態におけるスピン磁化率を直接検出できる、数少ない有力な手法のひとつです。NMRでは、外部磁場中の核スピンがゼーマン相互作用によって特定の共鳴周波数  $\omega_{res}$  で共鳴します。もし核位置に電子スピンが作る局所磁場が存在すれば、この共鳴周波数はわずかにシフトします [ $\omega_{res} \rightarrow (1+K)\omega_{res}$ ]。この周波数シフトをナイトシフト(Knight shift)と呼びます。ナイトシフトは、 $K \propto A_{hf} \chi_{spin}$  の形で電子スピンの磁化率  $\chi_{spin}$  に比例します。ここで、 $A_{hf}$  は超微細結合定数です。通常の金属では、ナイトシフトは電子スピンの磁化率によって決まっていますが、超伝導状態

ではクーパー対のスピンの状態によって変化します。NMR 測定では、マイスナー効果に由来する反磁性シフトとスピン磁化率によるシフトが存在するため、両者を分離して議論することが鍵となります。

ここで、本稿で用いる「スピン」の意味について補足しておきます。スピン軌道相互作用の強い  $f$  電子系では全角運動量  $J$  を基底として系を記述するのが自然ですが、重い電子状態のウラン系化合物では、ウランの  $5f$  電子の遍歴性のため、有効スピン  $S = 1/2$  を持つ準粒子として扱えることが、ナイトシフトや電子比熱の比較から系統的に示されています [8]。本稿では、以後「スピン」と呼ぶときには、この遍歴電子スピンのことを指しています。

スピン一重項超伝導体では、クーパー対が反平行スピンを組むため、超伝導転移後にスピン自由度が消失し、絶対零度ではあらゆる磁場方向に対してスピン磁化率がゼロに収束します。一方、スピン三重項超伝導体では、クーパー対が平行スピンを形成するため、クーパー対そのものが磁場に応答します。したがって、スピンの向きに応じて磁化率が異方的になり、磁場方向によってスピン磁化率が減少するか否かが異なるという特徴を持ちます。

我々のグループでは、 $UTe_2$  の発見当初から  $^{125}\text{Te}$  NMR を用いて超伝導状態のスピン磁化率を調べてきました [9]。初期の試料では残留状態密度が大きく、超伝導にならない領域も存在するなど実験的に困難な点がありました。しかし、近年合成された超純良試料によって本質的な振る舞いを明瞭に観測することが可能になりました。なお、常伝導状態の物性は、初期試料と超純良試料どちらにおいても、定性的には同様のふるまいが観測されています。

図 3 に、超純良試料におけるナイトシフトの温度依存性を示します [10]。ここでは、常伝導状態におけるスピン磁化率の温度依存性を差し引いた純粋な超伝導の寄与のみを示しています。結果として、 $a$  軸方向では顕著な減少、 $b$  軸および  $c$  軸方向ではわずかな減少が観測されました（縦軸スケールに注意してください）。 $b$  軸、 $c$  軸は変化が小さいため、超伝導反磁性の寄与を考慮する必要がありますが、2つの Te サイトの比較によって確かに超伝導スピン磁化率が減少していることを確認しています [11]。なお、 $UTe_2$  における各結晶軸方向の超微細結合定数は実験的に見積もられており [12]、ほぼ等方的であるため、ナイトシフトの異方的振る舞いはそのま

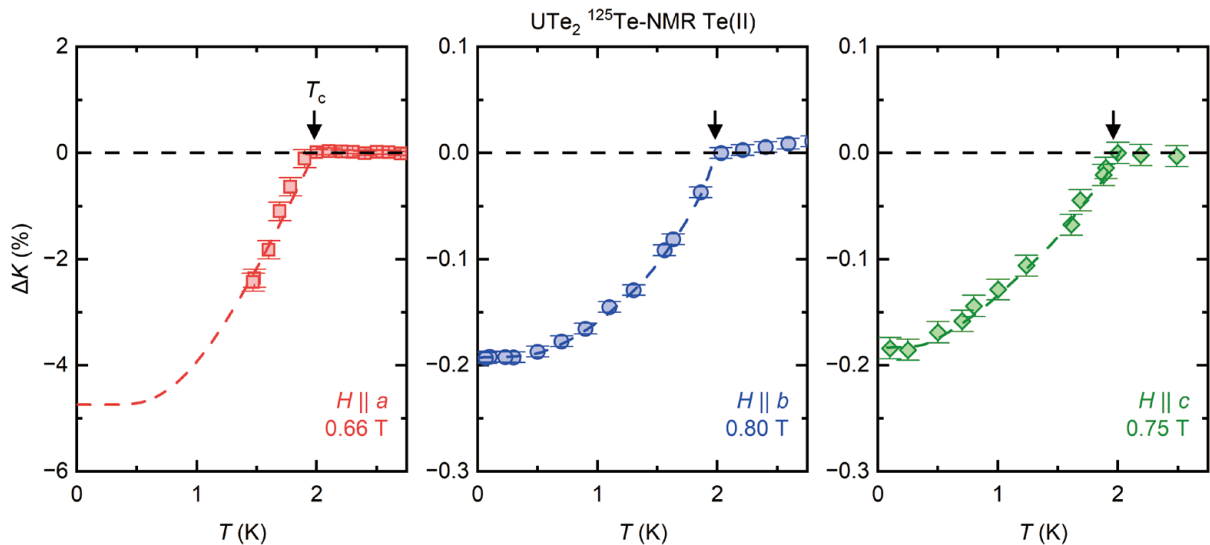


図 3  $a$ ,  $b$ ,  $c$  軸それぞれの超伝導状態でのナイトシフトの温度変化 [10, 11].

まスピン磁化率の異方性を反映しています。すべての結晶軸でのナイトシフトの減少は、一見するとスピン一重項超伝導を示唆するようにも見えますが、特に  $a$  軸方向での減少量から推定されるパウリ臨界磁場は約 2 T と、実際の上部臨界磁場  $\mu_0 H_{c2} \sim 12$  T と比較して著しく小さな値です。これは一重項の枠組みでは説明できません。この矛盾は、スピン三重項超伝導体において  $d$  ベクトル (スピン三重項の秩序変数に対応、超伝導スピンと直交するベクトルとして定義される) が 3 軸すべてに成分を持ち、外部磁場によって超伝導スピンが部分的に磁場方向へ回転・偏極すると仮定すれば自然に理解できます。実際、初期試料の NMR 測定では、磁場を強くするとスピン磁化率の減少が抑制される挙動が確認されており [9, 13], 同様の磁場誘起超伝導スピン偏極は,  $UPt_3$  [14] や  $K_2Cr_3As_3$  [15] など他のスピン三重項候補でも観測されています。

超伝導状態のナイトシフト測定から、低磁場下の  $UTe_2$  の状態は  $^3He$  の超流動 B 相と同じ対称性 (群論的には  $A_u$  表現) を持ち、スピン三重項かつ全方向でギャップをもつ“フルギャップ三重項超伝導”であると考えられます。実際、熱伝導測定からフルギャップを示唆する結果が報告されています [16]. 一方で、比熱や磁場侵入長の測定では、点状ノード (ギャップがゼロとなる方向) の存在を示唆する結果も報告されており [17,18], ギャップ構造の詳細は現在も活発に議論されています。ただし、超伝導スピンの状態については今回の超純良試料を用いた 3 軸方向の測定によって明らかにすることができたと考えています。

#### 4. $UTe_2$ の超伝導相内における非自明なゆらぎの発見

さらに、超伝導ギャップ構造について NMR 測定から調べるために、 $b$  軸磁場下で核スピン-格子緩和率  $1/T_1$  の測定を行いました。  $1/T_1$  はノード構造によって特徴的な温度依存性を示すため、超伝導ギャップを調べる有効な手法です。図 4 (上) は 4 K 以下において 0.65 T で測定された  $1/T_1$  の温度依存性をさらに温度で割ったものです。  $T_c$  より高温では通常金属的な  $1/T_1 T$  一定の振る舞いが見られ、  $T_c$  直下では従来型超伝導特有のコヒーレンスピークを示さず、  $1/T_1 T$  は急峻に減少します [10]. より低温の領域に注目すると、1 K から 0.4 K の間では  $1/T_1 T$  は  $\sim T_2$  程度の温度依存性で減少しますが、0.35 K 以下では非自明な上昇を示し、0.1 K で飽和します。このような増大があると  $1/T_1$  からギャップ構造を結論付けることは単純には困難で、図 4 (下) に示すナイトシフトには見られないような増大は、超伝導状態における非自明なゆらぎの存在を示唆しています。

$1/T_1 T$  の低温における異常な増大について調べるために、様々な磁場下で  $1/T_1 T$  の温度依存性を測定しました。図 5(a), (b) は 0.65 T に追加して 0.38 T, 0.80 T, 3.0 T, 5.0 T における  $1/T_1 T$  の温度依存性をプロットしたものです。低温の増大はより低磁場で発達し、磁場の印加で抑制さ

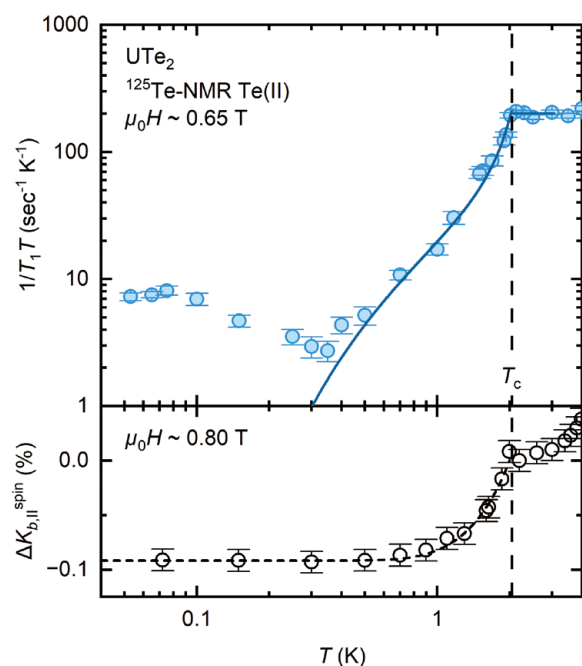


図 4 (上) 0.65 T における  $1/T_1 T$  と (下) ナイトシフトのスピ成分の温度依存性。

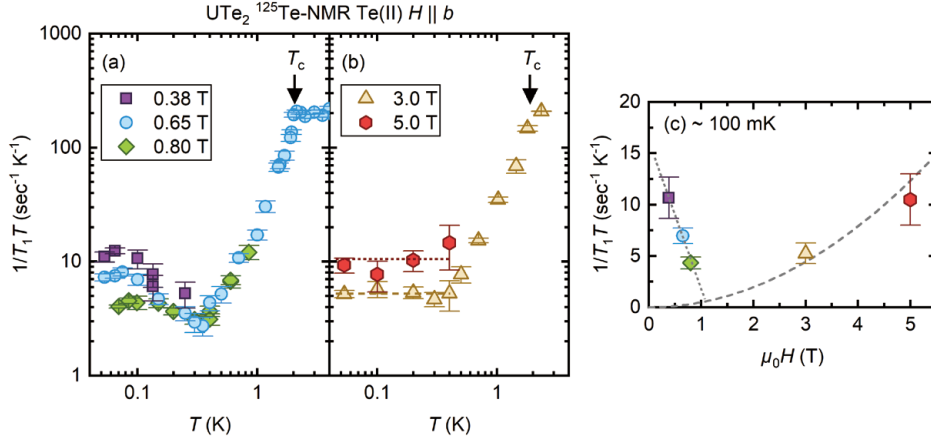


図5  $b$  軸方向の異なる磁場下 [(a) 0.38 T, 0.65 T, 0.80 T, (b) 3.0 T, 5.0 T] における  $1/T_1T$  の温度依存性. (c) 100 mK における  $1/T_1T$  の  $b$  軸方向の磁場依存性.

れます. 3 T 以上の磁場領域では  $1/T_1T$  は低温で一定の値を取り, その一定値は磁場と共に  $1/T_1T \sim H^2$  の関係で増加します. この高磁場における振る舞いは, 印加磁場によって超伝導体に侵入する vortex 内の状態密度に起因するとしてよく理解できます [19].

一般に, 試料内に磁性不純物が含まれる場合には, その磁気ゆらぎによって  $1/T_1$  は低温で異常を示します.  $UTe_2$  においては超伝導発見当初の試料では, 1% 程度のウラン欠損に起因するキュリー的な振る舞いが磁化率の温度依存性などに見られていましたが [20], 現在の試料では量子振動が見られるほど純良になっていることから, 磁性不純物の影響であることを排除できます. また,  $T_1$  緩和が単一成分でよく解析できることも, 試料の純良性を裏付けています.

別の可能性としては, 超伝導のマルチギャップも考えられます. 鉄系超伝導体  $KFe_2As_2$  [21] や局所的に空間反転対称性の破れた超伝導体  $SrPtAs$  [22] では  $T_c$  よりさらに低温で小さなギャップが開くことが報告されています.  $UTe_2$  で見られる  $1/T_1T$  の温度依存性は一見マルチギャップ超伝導の振る舞いと類似しているものの, その磁場依存性は真逆です. マルチギャップ超伝導の小さなギャップは, 磁場で壊れやすいため,  $1/T_1T$  は磁場と共に増大することが分かっています. そのため, マルチギャップの可能性も否定されます.

一方, 低温における残留状態密度  $\gamma_0$  の寄与については考慮する必要があります. 本研究で用いている試料に対する比熱測定から, 最低温 0.3 K において  $\gamma_0/\gamma_n = 0.053$  ( $\gamma_n$  は常伝導状態におけるゾンマーフェルト係数) と見積もられます. 仮にこの残留 DOS が比熱と同様の割合で  $1/T_1T$  に寄与すると仮定すると,  $1/T_1T$  は  $0.56 \text{ sec}^{-1}\text{K}^{-1}$  と見積もられますが, これは観測値よりも一桁小さい値となります. したがって, 残留 DOS を無視することはできないものの, 観測された上昇挙動をそれのみで説明することはできません.

それでは, 低温における増大の起源は何なのでしょう. 我々は, 2 準位間のゆらぎを説明するのによく用いられる Bloembergen, Purcell, Pound (BPP) model を適用し, 解析を行いました. 観測された  $1/T_1$  ( $(1/T_1)_{\text{obs}}$ ) は次のように分けられます.

$$\left(\frac{1}{T_1}\right)_{\text{obs}} = \left(\frac{1}{T_1}\right)_S + \left(\frac{1}{T_1}\right)_{\text{BPP}}$$

ここで,  $(1/T_1)_S$  は超伝導ギャップによって決まる準粒子励起の寄与,  $(1/T_1)_{\text{BPP}}$  は増大に関する寄与を表します. 標準的な BPP モデルでは超微細磁場  $\mathbf{h}(t)$  の自己相関関数は  $\langle \mathbf{h}(t)\mathbf{h}(0) \rangle = \langle \mathbf{h}^2 \rangle$

$\exp(-t/\tau)$  と仮定されます．ここで、 $\langle h^2 \rangle$  はゆらぎの大きさの時間平均、 $\tau$  は相関時間です．このとき、 $(1/T_1)_{\text{BPP}}$  は次式で与えられます．

$$\left(\frac{1}{T_1}\right)_{\text{BPP}} = \frac{\gamma_n^2}{2} \int \langle \mathbf{h}(t)\mathbf{h}(0) \rangle e^{i\omega_{\text{res}}t} dt = \gamma_n^2 \langle h^2 \rangle \frac{\tau}{1 + (\omega_{\text{res}}\tau)^2}$$

ここで、 $\gamma_n$  は核磁気回転比です．この式に従うと、 $\tau$  が  $1/\omega_{\text{res}}$  に一致する温度で  $1/T_1$  が最大値を取ります．実験的に得られた  $1/T_1$  のピーク温度 (約 100 mK) から、平均的な局所磁場のゆらぎ強度は  $\sqrt{\langle h^2 \rangle} \sim 0.1$  mT と見積もられます．これは、超伝導状態における共鳴線のシフト ( $\sim 0.4$  mT) と同程度であり、このゆらぎが超伝導スピンによって引き起こされていることを示唆しています．また、相関時間を熱活性化型 [ $\tau(T) = \tau_{\infty} \exp(E_0/k_B T)$ ] で仮定すると、 $\tau_{\infty} \sim 10^{-8}$  s、ゆらぎの活性エネルギー  $E_0 \sim 0.1$  K で、実験結果を定量的に再現できます．このスケールは電子スピンのダイナミクスに対応するエネルギーであり、ゆらぎが超伝導電子のスピン自由度に起因している可能性を示しています．これらの結果から、超伝導ギャップ内の低エネルギー励起の起源として超伝導スピンの集団励起が考えられます．スピン三重項超伝導体では、超伝導状態においてもスピン空間での回転自由度が残存し、スピン波的励起が生じると期待されます．本研究の観測は、スピン三重項超伝導に起因した新奇なスピンドイナミクスをとらえたものであると考えられます．

## 5. まとめ

我々は  $^{125}\text{Te-NMR}$  を用いた超純良  $\text{UTe}_2$  単結晶の研究により、スピン三重項超伝導状態におけるスピン自由度の実体を明らかにしました．

ナイトシフト測定では、 $T_c = 2.1$  K 以下でスピン磁化率が全結晶軸方向において減少することを示し、スピン三重項状態の  $d$  ベクトルが 3 軸すべてに成分をもつことを明らかにしました．この結果は、 $\text{UTe}_2$  の超伝導状態が超流動  $^3\text{He-B}$  相と同様のフルギャップ型スピン三重項超伝導である可能性を強く支持しています．

一方、 $1/T_1 T$  の測定からは、超伝導転移直下でのコヒーレンスピークの欠如に加えて、0.35 K 以下で異常な増大を示す低温スピンゆらぎを観測しました．この増大は磁場によって抑制され、不純物やマルチギャップ効果では説明できません．我々は BPP モデルによってこの振る舞いを解析し、ゆらぎの相関時間およびエネルギースケールを定量化し、低エネルギー領域での超伝導スピンドイナミクスの存在を明らかにしました．

これらの結果は、 $\text{UTe}_2$  のスピン三重項超伝導状態において超伝導スピンの集団励起が実際に現れている可能性を示唆するものです．今後、磁場方向依存性や磁場強度依存性の測定を行い、この新奇なスピンゆらぎの起源をさらに明らかにしていきたいです．

## 謝辞

本成果は京都大学理学研究科の松林陸氏、北川俊作准教授、石田憲二教授、原子力機構先端研の徳永陽研究主席、酒井宏典研究主幹、神戸振作研究員、東北大学金属材料研究所の仲村愛助教、清水悠晴助教、本間佳哉助教、Dexin Li 助教、三宅厚志准教授および青木大教授、また、九州大学アイソトープセンターの本多史憲教授らとの共同研究として行われました．関係各位に深く感謝いたします．

本研究は、JSPS 科研費 JP20KK0061, JP20H00130, JP21K18600, JP22H04933, JP22H01168, JP23H01124,

JP23K22439, JP23K25821, JP25H00609, JP25KJ1567, 村田学術振興・教育財団, 日揮・実吉奨学会の助成を受けたものです。また, 筆者は, JST 次世代研究者挑戦的研究プログラム JPMJSP2110 の支援を受けました。最後に, すべての実験で不可欠な寒剤供給においてご尽力いただいた LTM センターの方々にこの場を借りて厚く御礼申し上げます。

#### 参考文献

- [1] A. J. Leggett, *Rev. Mod. Phys.* **47**, 331 (1975).
- [2] S. Ran, C. Eckberg, Q.-P. Ding, Y. Furukawa, T. Metz, S. R. Saha, I.-L. Liu, M. Zic, H. Kim, J. Paglione, and N. P. Butch, *Science* **365**, 684 (2019).
- [3] S. K. Lewin, C. E. Frank, S. Ran, J. Paglione, and N. P. Butch, *Rep. Prog. Phys.* **86**, 114501 (2023).
- [4] D. Braithwaite, M. Vališka, G. Knebel, G. Lapertot, J.-P. Brison, A. Pourret, M. E. Zhitomirsky, J. Flouquet, F. Honda, and D. Aoki, *Commun. Phys.* **2**, 147 (2019).
- [5] H. Sakai, P. Opletal, Y. Tokiwa, E. Yamamoto, Y. Tokunaga, S. Kambe, and Y. Haga, *Phys. Rev. Materials* **6**, 073401 (2022).
- [6] D. Aoki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **93**, 043703 (2024).
- [7] D. Aoki, K. Ishida, and J. Flouquet, *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 022001 (2019).
- [8] H. Tou, K. Ishida, and Y. Kitaoka, *J. Phys. Soc. Jpn.* **74**, 1245 (2005).
- [9] 例えば, G. Nakamine, S. Kitagawa, K. Ishida, Y. Tokunaga, H. Sakai, S. Kambe, A. Nakamura, Y. Shimizu, Y. Homma, D. Li, F. Honda, and D. Aoki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 113703 (2019).
- [10] H. Matsumura, H. Fujibayashi, K. Kinjo, S. Kitagawa, K. Ishida, Y. Tokunaga, H. Sakai, S. Kambe, A. Nakamura, Y. Shimizu, Y. Homma, D. Li, F. Honda, and D. Aoki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **92**, 063701 (2023).
- [11] H. Matsumura, Y. Takahashi, K. Kinjo, S. Kitagawa, K. Ishida, Y. Tokunaga, H. Sakai, S. Kambe, A. Nakamura, Y. Shimizu, Y. Homma, D. Li, F. Honda, A. Miyake and D. Aoki, *Phys. Rev. B* **111**, 174526 (2025).
- [12] H. Fujibayashi, K. Kinjo, G. Nakamine, S. Kitagawa, K. Ishida, Y. Tokunaga, H. Sakai, S. Kambe, A. Nakamura, Y. Shimizu, Y. Homma, D. Li, F. Honda, and D. Aoki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **92**, 053702 (2023).
- [13] S. Kitagawa, K. Nakanishi, H. Matsumura, Y. Takahashi, K. Ishida, Y. Tokunaga, H. Sakai, S. Kambe, A. Nakamura, Y. Shimizu, Y. Homma, D. Li, F. Honda, A. Miyake, and D. Aoki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **93**, 123701 (2024).
- [14] H. Tou, Y. Kitaoka, K. Ishida, K. Asayama, N. Kimura, Y. Ōnuki, E. Yamamoto, Y. Haga, and K. Maezawa, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 3129 (1998).
- [15] J. Yang, J. Luo, C. Yi, Y. Shi, Y. Zhou, and G.-q. Zheng, *Sci. Adv.* **7**, eabl4432 (2021).
- [16] S. Suetsugu, M. Shimomura, M. Kamimura, T. Asaba, H. Asaeda, Y. Kosuge, Y. Sekino, S. Ikemori, Y. Kasahara, Y. Kohsaka, M. Lee, Y. Yanase, H. Sakai, P. Opletal, Y. Tokiwa, Y. Haga, and Y. Matsuda, *Sci. Adv.* **10**, eadk3772 (2024).
- [17] K. Ishihara, M. Roppongi, M. Kobayashi, K. Imamura, Y. Mizukami, H. Sakai, P. Opletal, Y. Tokiwa, Y. Haga, K. Hashimoto, and T. Shibauchi, *Nat. Commun.* **14**, 2966 (2023b).
- [18] S. Lee, A. J. Woods, P. F. S. Rosa, S. M. Thomas, E. D. Bauer, S.-Z. Lin, and R. Movshovich, *Phys. Rev. Research* **7**, L022053 (2025)
- [19] K. Kinjo, S. Kitagawa, Y. Nakai, K. Ishida, H. Sugawara, and H. Sato, *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 065002 (2019).
- [20] Y. Tokunaga, H. Sakai, S. Kambe, Y. Haga, Y. Tokiwa, P. Opletal, H. Fujibayashi, K. Kinjo, S. Kitagawa, K. Ishida, A. Nakamura, Y. Shimizu, Y. Homma, D. Li, F. Honda, and D. Aoki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **91**, 023707 (2022).
- [21] H. Fukazawa, Y. Yamada, K. Kondo, T. Saito, Y. Kohori, K. Kuga, Y. Matsumoto, S. Nakatsuji, H. Kito, P.

- M. Shirage, K. Kihou, N. Takeshita, C.-H. Lee, A. Iyo, and H. Eisaki, J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 083712 (2009).  
[22] F. Brückner, R. Sarkar, M. Günther, H. Kühne, H. Luetkens, T. Neupert, A. P. Reyes, P. L. Kuhns, P. K. Biswas, T. Stürzer, D. Johrendt, and H.-H. Klauss, Phys. Rev. B **90**, 220503(R) (2014).

## 著者略歴



松村 拓輝 (MATSUMURA Hiroki)

京都大学大学院理学研究科 博士後期課程 2年

ORCID: 0000-0002-9477-1804

2022年3月 京都大学 理学部 卒業

2024年3月 京都大学大学院理学研究科 修士課程修了

2024年4月 京都大学大学院理学研究科 博士後期課程進学

## 運 営 状 況

## 寒剤供給状況

吉田キャンパス

液体ヘリウム供給量

令和7年度

単位：リットル

	4月	5月	6月	7月	8月	9月	合計
理学研究科・物理学第一	3,198	3,750	2,906	3,365	3,304	3,474	19,997
理学研究科・化学	945	844	767	718	761	686	4,721
理学研究科・その他	0	0	0	0	0	58	58
理学研究科・低温物質科学研究支援室 SQUID	977	778	415	411	859	789	4,229
医学部附属病院	384	388	393	413	398	508	2,484
薬学研究科	104	37	60	144	63	60	468
工学研究科	0	0	434	0	0	0	434
農学研究科	87	224	71	81	16	126	605
人間・環境学研究科	450	271	800	969	215	0	2,705
情報学研究科	54	57	59	55	60	59	344
高等研究院	369	348	417	171	375	304	1,984
物質－細胞統合システム拠点	54	39	0	56	34	0	183
合 計	6,622	6,736	6,322	6,383	6,085	6,064	38,212

液体窒素供給量

令和7年度

単位：リットル

	4月	5月	6月	7月	8月	9月	合計
理学研究科・物理学第一	1,454	1,952	1,692	1,965	1,752	1,539	10,354
理学研究科・化学(含窒素ガス利用分)	4,009	4,157	4,234	4,532	3,894	3,681	24,507
理学研究科・その他	474	656	669	612	690	830	3,931
医学研究科	956	1,069	1,025	967	938	804	5,759
医学部附属病院	157	212	175	174	196	200	1,114
工学研究科	371	520	546	467	608	534	3,046
農学研究科	2,356	2,465	2,251	2,565	2,258	2,217	14,112
人間・環境学研究科	579	504	210	473	355	268	2,389
エネルギー科学研究科	229	341	380	355	361	364	2,030
生命科学研究科	540	524	557	606	623	579	3,429
地球環境学堂	36	59	42	78	84	30	329
医生物学研究所	1,560	1,561	1,598	2,331	1,858	1,993	10,901
環境安全保健機構・放射線管理部門	158	170	146	192	107	169	942
国際高等教育院	34	38	61	0	0	32	165
高等研究院	0	5	5	0	0	0	10
物質－細胞統合システム拠点	680	485	788	498	680	544	3,675
総合生存学館	15	14	16	18	12	13	88
物質－細胞統合システム拠点	13,608	14,732	14,395	15,833	14,416	13,797	86,781
総合生存学館	12	22	21	24	19	15	113
合 計	15,174	15,454	14,832	16,359	14,919	13,300	90,038

宇治キャンパス

液体ヘリウム供給量

令和7年度

単位：リットル

	4月	5月	6月	7月	8月	9月	合計
エネルギー理工学研究所	321	416	321	550	167	379	2,154
成長戦略本部	178	71	132	69	108	130	688
化学研究所	1,614	1,149	1,541	1,537	988	1,156	7,985
生存圏研究所	79	0	0	63	0	83	225
合計	2,192	1,636	1,994	2,219	1,263	1,748	11,052

液体窒素供給量(ガスを含む)

令和7年度

単位：リットル

	4月	5月	6月	7月	8月	9月	合計
農学研究科・農学部	296	168	170	268	240	269	1,411
工学研究科・工学部	163	118	320	404	269	517	1,791
エネルギー理工学研究所	1,366	1,442	1,138	1,163	1,156	954	7,219
成長戦略本部	0	36	21	19	7	19	102
化学研究所	1,828	1,737	1,668	2,013	1,273	1,612	10,131
生存圏研究所	86	199	111	183	138	100	817
合計	3,739	3,700	3,428	4,050	3,083	3,471	21,471

## 桂キャンパス

## 液体ヘリウム供給量

令和7年度

単位：リットル

	4月	5月	6月	7月	8月	9月	合計
工学研究科・電気工学	0	0	648	0	0	0	648
工学研究科・電子工学	1,410	1246	842	699	531	835	5,563
工学研究科・材料化学	24	24	36	252	166	40	542
工学研究科・物質エネルギー化学	502	414	408	478	443	452	2,697
工学研究科・分子工学	260	332	134	109	92	120	1,047
工学研究科・高分子化学	8	23	7	9	8	26	81
工学研究科・合成・生物化学	70	74	88	62	73	102	469
合計	2,274	2,113	2,163	1,609	1,313	1,575	11,047

## 液体窒素供給量

令和7年度

単位：リットル

	4月	5月	6月	7月	8月	9月	合計
工学研究科・都市環境工学	58	73	51	98	58	56	394
工学研究科・機械理工学専攻	15	27	43	27	4	51	167
工学研究科・マイクロエンジニアリング専攻	69	48	58	56	47	43	321
工学研究科・原子核工学専攻	0	0	8	5	0	25	38
工学研究科・電気工学	1,499	2,464	2,755	4,967	1,972	972	14,629
工学研究科・電子工学	9,177	9,894	9,021	10,022	9,178	8,777	56,069
工学研究科・材料化学	457	621	612	957	721	973	4,341
工学研究科・物質エネルギー化学	989	971	740	961	777	1,113	5,551
工学研究科・分子工学	721	506	713	429	473	470	3,312
工学研究科・高分子化学	189	278	209	221	179	249	1,325
工学研究科・合成・生物化学	1,077	1,110	1,186	1,206	1,090	1,180	6,849
工学研究科・化学工学	174	69	82	64	188	113	690
地球環境学堂	186	151	241	171	160	153	1,062
合計	14,611	16,212	15,719	19,184	14,847	14,175	94,748

## 環境安全保健機構 低温物質管理部門 併任教員名簿

令和8年2月1日

氏名	職	部屋番号	所属・連絡先
佐々木 豊	教授	総合研究5号館307	TEL 3755 sasaki@scphys.kyoto-u.ac.jp
松原 明	准教授	総合研究5号館311	TEL 3787 akira@scphys.kyoto-u.ac.jp
大塚 晃 弘	准教授	総合研究5号館410	TEL 4062 otsuka@kuchem.kyoto-u.ac.jp
中野 義 明	助教	総合研究5号館310	TEL 4061 nakano@kuchem.kyoto-u.ac.jp

## 寒剤供給関係業務 担当者

令和8年2月1日

キャンパス	施設設置場所	担当者(電話)
吉 田	北部構内・極低温寒剤 供給施設	佐々木 豊 (3755)、 大塚 晃弘 (4062, 4055, 4058) 石川 学、五十嵐 聡、伊藤 薫 (4055, 4058) 寒剤配送トラック 090-5128-6769
	北部構内・理学部6号館 CE	化学専攻事務室 (3965)、中濱 治和 (7664)
宇 治	極低温物性化学実験室	玉野 健一 (宇治 17-4551)、 市川 能也 (宇治 17-4550)
桂	A クラスター・液体窒素 CE B クラスター・極低温施設 C クラスター・液体窒素 CE	西崎 修司 (桂 14-7407, 15-2136) 加藤 悟 (桂 14-7130, 15-2136)、 掛谷 一弘 (桂 15-2265) 中村 武恒 (桂 14-7353)、 高津 浩 (桂 15-2513)

環境安全保健機構 低温物質専門委員会委員名簿

令和8年2月1日

委員名	所 属	T E L	連 絡 先
佐々木 豊	理学／LTM 1号委員	3755	sasaki@scphys.kyoto-u.ac.jp
松 原 明	理学／LTM 2号委員	3787	akira@scphys.kyoto-u.ac.jp
大塚 晃 弘	理学／LTM 2号委員	4062	otsuka@kuchem.kyoto-u.ac.jp
幸坂 祐 生	理学 3号委員	3780	kohsaka.yuhki.3j@kyoto-u.ac.jp
石田 憲 二	理学 3号委員	3752	kishida@scphys.kyoto-u.ac.jp
奥 山 弘	理学 3号委員	3977	hokuyama@kuchem.kyoto-u.ac.jp
道岡 千 城	理学 3号委員	3991	michioka@kuchem.kyoto-u.ac.jp
朽尾 豪 人	理学 3号委員	4215	tochio@mb.biophys.kyoto-u.ac.jp
渡邊 一 也	理学 3号委員	4047	kw@kuchem.kyoto-u.ac.jp
武田 和 行	理学 3号委員	4011	takezo@kuchem.kyoto-u.ac.jp
吉田 健 司	病院 3号委員	19-4494	tayoshi@kuhp.kyoto-u.ac.jp
白石 誠 司	工学 3号委員	15-2272	mshiraishi@kuee.kyoto-u.ac.jp
陰 山 洋	工学 3号委員	15-2506	kage@scl.kyoto-u.ac.jp
中村 裕 之	工学 3号委員	5440	nakamura.hiroyuki.2w@kyoto-u.ac.jp
掛谷 一 弘	工学 3号委員	15-2265	akeya@kuee.kyoto-u.ac.jp
米澤 進 吾	工学 3号委員	15-2263	yonezawa.shingo.3m@kyoto-u.ac.jp
谷口 幸 雄	農学 3号委員	6331	taniguchi.yukio.2x@kyoto-u.ac.jp
藤原 直 樹	人環 3号委員	6786	naoki@fujiwara.h.kyoto-u.ac.jp
土井 俊 哉	エネ科 3号委員	4725	doi@energy.kyoto-u.ac.jp
小野 輝 男	化研 3号委員	17-3103	ono@scl.kyoto-u.ac.jp
島川 祐 一	化研 3号委員	17-3110	shimak@scl.kyoto-u.ac.jp
木村 吉 宏	施設部長 4号委員	2301	kimura.yoshihiro.5a@kyoto-u.ac.jp

令和7年4月1日～令和8年3月31日

「京都大学低温物質科学」への投稿のお誘い並びに原稿の作成要領  
Call for Manuscripts for  
"Low Temperature and Materials Sciences (Kyoto University)"

米澤 進吾<sup>1,3</sup>, 佐々木 豊<sup>2,3</sup>, 加藤 大地<sup>1,3</sup>, 北川 俊作<sup>2,3</sup>, 中野 義明<sup>2,3</sup>

<sup>1</sup>京都大学 大学院工学研究科, <sup>2</sup>京都大学 大学院理学研究科,

<sup>3</sup>京都大学 環境安全保健機構 低温物質管理部門 京都大学低温物質科学 編集委員会

Shingo Yonezawa<sup>1,3</sup>, Yutaka Sasaki<sup>2,3</sup>, Daichi Kato<sup>1,3</sup>, Shunsaku Kitagawa<sup>2,3</sup>,  
Yoshiaki Nakano<sup>2,3</sup>

<sup>1</sup> Graduate School of Engineering, Kyoto University,

<sup>2</sup> Graduate School of Science, Kyoto University,

<sup>3</sup> Editorial Board of "Low Temperature and Materials Sciences (Kyoto University)",  
Low Temperature and Material Sciences Division,  
Agency for Health, Safety and Environment, Kyoto University

アブストラクトは英語で数行作成してください。 Write an abstract of several lines in English.

## 1. はじめに

「京都大学低温物質科学（通称：LTM 誌，英文名：Low Temperature and Materials Sciences (Kyoto University)）」では，環境安全保健機構が提供する寒剤・共通機器の利用者の皆様や関係者の皆様より「研究ノート」，「技術ノート」，「サロン」への投稿を歓迎いたします。投稿されました原稿は，編集委員会で審議のうえ掲載の可否を決定いたします。なお，編集委員会からの原稿依頼も行いますので，依頼させていただいた際にはよろしくお願ひ申し上げます。

なお，本誌に掲載された記事は，原則全文が低温物質管理部門のウェブページ (<https://www.ltm.kyoto-u.ac.jp/centershi/index.html>) と京都大学学術情報レポジトリ (KURENAI) にて Web 公開されますので，ご了承ください。後者では DOI も付与されますので，研究成果としてご活用いただけます。

投稿にあたっては，以下第 2 章を御参照のうえ，MS-Word を用いて原稿作成してください。初校刷りは電子ファイルより作成いたしますので，フォーマットを守っていただくようによろしくお願ひいたします。

完成した原稿は，docx または doc 形式の電子ファイルで，担当編集者宛もしくは編集委員会 (LTM\_editors@sk.kuce.kyoto-u.ac.jp) にお送りください。また，pdf ファイルも併せてお送りください。

## 2. 原稿の作成要領

A4 用紙（レターサイズではありません）の上下左右に 25 mm ずつマージンをとって，和文表題，英文表題，和文著者・所属，英文著者・所属，アブストラクト（英文），本文，参考文献，著者写真（35 mm（幅）× 40 mm（高さ）），著者略歴の順に記述してください。1 ページ目は，

必ず上から 5 cm 程度余白を空けて表題を書いてください。本文 1 行あたり全角 45 文字程度、1 ページあたり 40 行程度を基準にしてください。漢字・かな・カナには MS 明朝、英字・数字には必ず Times New Roman、本文中の見出しには MS ゴシック（またはこれらに準じる書体）を使用してください。強調のためのボールドの使用は避けてください。表題は 14 point、著者・所属は 12 point、本文は 10.5 point、図・表のキャプションは 10 point の文字を用いてください。本文中、物理記号を表す記号は斜体（イタリック）、単位記号は立体（ローマン）で表記し、物理量と単位の間や数字と記号の間には半角スペースを 1 個入れてください。また、章の間には空の行を 1 行設けてください。句読点は「. , 」に統一してください。

図は高解像度のものを本文中に貼り付けてください。カラー印刷が可能ですので、できるだけカラーの図を使用してください。アクセプト後、印刷用に高解像度の画像ファイルを、Word ファイルとは分けて提出していただくことを推奨しております。

論文等の図を用いる場合は、引用情報を付すとともに、その掲載誌等の利用規約に則って用い、必要であれば著者ご自身の責任で使用の許諾をお取りください。ご自身の論文の図を用いる際でも、掲載誌からの許諾が必要な場合がありますのでご注意ください。

その他の細部については、本稿ならびに下記 Ref. [1]などのスタイルを参考にしてください。

### 参考文献

下の例のように、[引用番号] 著者名、雑誌名、巻数、最初のページ番号、年の順でお願いします。

[1] 米澤進吾, 京都大学低温物質科学, **30**, 10 (2017).

[2] J. G. Bednorz and K. A. Muller, Z. Phys. B **64**, 189 (1986).

### 著者略歴

こちらに顔写真を  
貼り付けてください  
35 x 40 mm 程度  
(この枠は最終的に  
削除してください)

米澤 進吾 (YONEZAWA Shingo)  
京都大学大学院工学研究科 電子工学専攻 教授  
ORCID: 0000-0002-7476-3604

2008 年 3 月 京都大学 博士 (理学) 取得  
2008 年 4 月 京都大学大学院理学研究科 研究員  
2008 年 7 月 京都大学大学院理学研究科 助教  
2019 年 2 月 同准教授  
2023 年 4 月より現職

(複数の著者がいらっしゃる場合は全員分をお願いします)

## 副編集長退任のご挨拶



2024年度より刷新したメンバーで活動を開始しました京都大学低温物質科学新編集部の中で副編集長を勤めさせていただいてきた佐々木豊です。低温物質管理部門執行部との橋渡しの役割も含め、古参の立場から本誌の編集に携わって参りました。当初からの役割は果たせ、編集部も活発化して参りましたので、本号の編集を持ちまして編集委員を退任させていただくこととなりました。私個人としても定年退職を迎え人生の新しいステージに進みます。低温物質科学研究センターの設立以来24年にわたって京都大学の低温物質科学研究の発展に寄与して参りました本誌が、今後とも皆様の目を楽しませ、学術発展の一助として光り続けることを夢見ております。

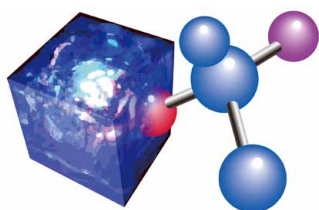
## 編集後記

今号では初めての企画として、2025年2月の第19回京都大学低温物質科学講演会・研究交流会におけるポスターセッションでポスター賞をとられた3名のうち、引き続き大学に博士課程学生として在籍している2名の方に受賞記念記事を書いていただきました。ポスターの内容だけでなく、研究の背景等についても詳しく書いていただきました。フレッシュな文章をぜひご一読ください。また、2025年度より京都大学に着任された Jorge Puebla 先生にも、ご専門のマグノン-フォノン結合に関する最先端の研究について解説していただきました。異種の準粒子の結合が作る興味深い世界をご堪能ください。

2025年12月に京都大学が国際卓越研究大学の認定候補に選定され、これから京都大学が大きく変わろうとしています。低温関係の組織・体制も大きく変わる可能性もありますが、京都大学における低温物質科学研究が今以上に発展していくような体制になるように願っています。

最後になりますが、佐々木副編集長のご定年に伴い、今号にて副編集長もご退任ということになります。佐々木先生は京都大学の低温研究を長年支えてくださいました。この場を借りて厚く御礼申し上げます。

米澤



旧低温センターロゴ

このロゴマークは、左側の立方体が低温科学をシンボリックにイメージし、右側の分子模型が物質科学を表したデザインになっています。2006年に制定され、LTM誌9号より使われています。

### 京都大学低温物質科学 (LTM誌)

Low Temperature and Materials Sciences  
(Kyoto University)

第46号 2026年2月 Volume 46, February 2026

編集委員会：米澤 進吾 (編集委員長), 佐々木 豊 (副編集長),  
加藤 大地, 北川 俊作, 中野 義明, 固体 量子  
LTM\_editors@sk.kuee.kyoto-u.ac.jp

アドバイザーボード：石田 憲二, 幸坂 祐生, 渡邊 一也,  
前里 光彦, 大塚 晃弘, 奥山 弘, 武田 和行,  
朽尾 豪人, 谷口 幸雄, 松橋 眞生, 藤原 直樹,  
土井 俊哉, 中村 裕之, 白石 誠司, 掛谷 一弘,  
陰山 洋, 藤田 晃司, 小野 輝男, 島川 祐一

事務局：〒606-8501 京都市左京区吉田本町  
京都大学環境安全保健機構 低温物質管理部門  
Tel : 075-753-9521 Fax : 075-753-9521

印刷：創文堂印刷株式会社