

令和 4 年 6 月 5 日現在

機関番号：15301

研究種目：国際共同研究加速基金（国際共同研究強化(B））

研究期間：2018～2021

課題番号：18KK0076

研究課題名（和文）第三世代放射光先端顕微分光によるエキゾチック超伝導候補物質の電子/局所構造研究

研究課題名（英文）Elucidation of electronic- and local- structure of candidate exotic superconductors studied by 3rd generation synchrotron based advanced spectroscopy

研究代表者

横谷 尚睦（YOKOYA, Takayoshi）

岡山大学・異分野基礎科学研究所・教授

研究者番号：90311646

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,900,000円

研究成果の概要（和文）： 実験的な制約のために分光研究の難しいエキゾチック超伝導候補物質に対して、顕微光電子分光を主とした先端顕微分光によって、電子構造（および必要に応じて局所構造）の解明を目指して国際共同研究を行った。chiral d-波超伝導候補物質SrPtAsについて、フェルミ面とバンド構造の直接観測に成功し、実験的にSrPtAsの電子状態がエキゾチック超伝導を発現しうる変数領域に位置することを示すなど、複数の試料についてこれまで未解明であった電子構造や局所構造を実験的に明らかにする事に成功した。これらの成果は、超伝導機構の理解につながる。加えて、関連する超伝導体の合成においても進展があった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

超伝導はマクロで出現する量子現象であり学術的に重要な現象である。一方、電気抵抗がゼロという性質は省エネルギーに役立つため、より高い超伝導転移温度を有する新たな超伝導体の開発や、これまでとは異なるメカニズムで発現する超伝導体（エキゾチック超伝導体）の発見やその理解は、超伝導体の可能性を広げるために重要です。本研究では、複数のエキゾチック超伝導体の候補物質について、試料中の電子の振る舞いやミクロな原子配列の特徴を先端的な分光手法で研究し、これまで得ることが難しかった情報を得ることに成功した。これらの成果はこれらの超伝導体の超伝導メカニズム解明につながる。

研究成果の概要（英文）： We have used advanced micro spectroscopy, especially micro photoemission spectroscopy, to study the electronic structure (and local structure if necessary) of candidate materials of exotic superconductors, which had been difficult to be studied spectroscopically due to experimental constraints. One of examples, for a candidate material of the chiral d-wave superconductor, SrPtAs, we succeeded in directly observing the Fermi surface and band structure, and experimentally showed that SrPtAs are indeed located in a parameter region where exotic superconductivity can be induced. We have succeeded in experimentally clarifying the electronic structure and local structure that have not been clarified so far for other superconductors. These results lead to understanding of the superconducting mechanism of each system. In addition, progress has been made in the synthesis of related superconductors.

研究分野：光電子物性

キーワード：エキゾチック超伝導 電子構造 局所構造

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

超伝導は電気抵抗が低温において消失する現象である。典型的な超伝導体は格子振動(フォノン)を媒介力として電子対が形成されることで説明される。一方、銅酸化物高温超伝導体、重い電子系超伝導体、有機超伝導体、鉄系超伝導体においては、フォノン以外(最有力の候補としてはスピン揺らぎ)のボゾンが電子対形成の媒介力として働くと考えられている。超伝導研究では新物質の発見が大きな推進力となってきた。銅酸化物高温超伝導体の発見以降も、フラーレン超伝導体、 $MgB_2$ 、鉄系超伝導体、最近では $BiS_2$ 系超伝導体(分担者水口が発見)等の新しい超伝導体が次々と発見され、物性研究からそれぞれの物質の特徴が明らかになり、また物質間の比較から超伝導状態やその発現機構の多様性に対する理解が深まってきた。一方 $CePt_3Si$ における空間反転対称性の破れた超伝導体の発見以降は、スピン軌道相互作用が超伝導状態に与える影響についての研究が活発に行われている。トポロジカル絶縁体やトポロジカル超伝導体という新しい概念が現れ、フォノン以外を媒介力とするエキゾチック超伝導に新たな研究視点を加えた。様々な試料で観測された超伝導状態は、電子対形成という普遍性を有する一方、電子対媒介力や対波動関数の対称性の多様性とそれに起因した特徴的な超伝導物性を示し、この理解が超伝導学術研究の核心となっている。

新超伝導体の機構解明に向けた研究において、角度分解光電子分光(ARPES)はフェルミ面や準粒子バンド、超伝導ギャップの対称性を直接的に観測できるため、重要な役割を果たしてきた。しかしながら、新たに発見されるエキゾチック超伝導候補物質は多結晶として合成されるのがほとんどで、単結晶が合成できたとしてもサイズが小さい。試料サイズが実験を制約する主要な条件の一つである。この問題をクリアするには顕微ARPESを用いることが必須である。

### 2. 研究の目的

本研究では、実験的な制約のために電子構造研究の難しいエキゾチック超伝導候補物質の電子構造(および必要に応じて局所構造)を、顕微ARPESを主とした先端顕微分光によって明らかにすることを目的として研究を行った。具体的には、(A) chiral d-波超伝導候補物質 $SrPtAs$ のフェルミ面、(B) 新層状超伝導体 $NaSn_2(As_{2-x}P_x)$ 系の電子構造および局所構造、(C) 異常な超伝導物性を示すMNCI ( $M=Hf, Zr, Ti$ )のフェルミ面を実験的に明らかにすることである。これらの超伝導体はエキゾチック超伝導体の候補物質群であり、全てが日本発の物質である。これまで難しいと考えられていたエキゾチック超伝導候補物質微小試料の電子構造の研究に、先端顕微分光という切り口で挑戦するのが本研究の特色であり、この挑戦を通して超伝導の多様性に対する理解を深めることが学術的な独自性である。

### 3. 研究の方法

(1) chiral d-波超伝導候補物質 $SrPtAs$ のフェルミ面およびバンド構造の解明を目的として、岡山大学(現広島大学)野原研究室で作製された微小 $SrPtAs$ 単結晶試料の軟X線ARPESをPFにおいて行った。超伝導機構の絞り込みのために、実験的に得られたフェルミ面形状とバンド分散に対して、理論計算との比較を行った。(当初の予定としては国内放射光施設での予備実験を経て顕微ARPESを海外放射光施設で実施する予定であったが、当初期待していたデータが予備実験の段階で得られたことと、その後コロナ禍の影響で海外での実験が難しくなったことにより、海外での実験は実施しなかった。)

(2) 新層状超伝導体 $NaSn_2(As_{2-x}P_x)$ 系の電子構造および局所構造の解明を目的として、分担者(水口)および協力研究者(後藤)が $NaSn_2(As_{2-x}P_x)$ 単結晶試料および関連試料を合成し、海外の共同研究者(Saini)のグループおよび早稲田大学溝川研と共同で研究を行った。顕微EXAFS測定はヨーロッパの放射光施設において、ARPES測定によるバンド構造とフェルミ面形状の直接観測は国内放射光施設で行った。

(3) 異常な超伝導物性を示すMNCI ( $M=Hf, Zr, Ti$ )のフェルミ面およびバンド構造の解明を目的として、九州工業大学田中研究室で合成に成功した比較的大きな単結晶試料に対して、真空蒸着により表面ドーピング/表面インターカレーションを行うことにより作製したドーピング試料に対して、その場観測顕微ARPESに挑戦した。同時並行して、これまでほとんど電子状態研究の行われていないTiNCIについて、顕微光電子分光によりドーピングによる金属化にともなう電子状態変化を観測した。

(4) 関連する超伝導体については、複数の超伝導体においてそれぞれの研究課題の解決に有用な分光手法を用いて研究を進めるとともに、新超伝導体の合成においては特定サイトの多元素固溶に着目しハイエントロピー型(HEA型)の超伝導体を開発し、その物性を研究した。

#### 4. 研究成果

(1) chiral d-波超伝導候補物質 SrPtAs のフェルミ面およびバンド構造の解明に向けて、SrPtAs 微小単結晶を用いた軟 X 線 ARPES 実験により、フェルミ面およびバンド構造の直接観測に成功した。その結果、フェルミ面が強い 2 次元性を持つこと、それぞれの対称軸にそった分散形状が DFT 計算からの予測と大まかに一致することを見出した。実験的に観測したフェルミ準位近傍のバンド分散に対して、強束縛近似によるホッピングパラメータとスピン軌道相互作用の見積もりを行い、実験的に SrPtAs の電子状態がエキゾチック超伝導を発現しうるパラメータ領域に位置することを示した。この結果は、本超伝導体の超伝導機構を絞り込む上で重要である。

(2) 新層状超伝導体  $\text{NaSn}_2(\text{As}_{2-x}\text{P}_x)$  系の電子構造および局所構造の解明に向けて、母物質  $\text{NaSn}_2\text{As}_2$  の As K 吸収端および S K 吸収端での EXAFS 測定を行い、Sn-As、Sn-Sn、As-Na の各結合の特徴及びその温度依存性を明らかにした。その結果、As-Sn および Sn-Sn に関連する局所構造が 200K 近傍で変化することを見出した。この温度は輸送特性測定に異常が現れる温度と一致しており、この異常が局所構造の変化を伴うことを示した。一方、新  $\text{NaSn}_2(\text{As}_{2-x}\text{P}_x)$  系の角度分解光電子分光測定により、フェルミ面およびバンド構造の観測に成功した。

(3) 異常な超伝導物性を示す  $\text{MnCl}$  ( $\text{M}=\text{Hf}, \text{Zr}, \text{Ti}$ ) 超伝導体については、これまで研究のほとんど進んでいなかった  $\text{TiCl}$  の電子状態を光電子分光により集中的に研究した。Na インターカレート試料 ( $\text{Na-TiCl}$ ) については、顕微軟 X 線光電子分光により金属状態にある試料領域を選択して価電子帯及び内殻準位を測定し、 $\text{TiCl}$  において電子ドーピングに伴う電子状態変化の直接観測に成功した。Na- $\text{TiCl}$  超伝導体試料のスペクトル形状と計算によって得られた状態密度との比較から、電子相関効果の重要性を示唆する結果を得た。この結果は、 $\text{TiCl}$  の超伝導を理解する上で電子相関を考慮する必要性を示す。

母物質  $\text{TiCl}$  においては、軟 X 線照射により半導体の  $\text{TiCl}$  が金属化することを発見し、更に金属化の起源が塩素原子の脱離による電子ドーピングであることを解明した。加えて、照射試料の磁化測定から超伝導の兆候を見出した。これらの結果は、光照射による超伝導試料の新たな作製方法の可能性を示唆している。一方、 $\text{TiCl}$  の合成方法のわずかな違いが超伝導転移温度に大幅な影響を与える原因を調べるために、複数の光源を用いた光電子分光測定及び脱離ガス分析を行い、超伝導転移温度の減少には水素が関与していることを示唆する結果を得た。また、 $\text{Na}_x\text{TiCl}$  ( $x=0\sim 0.4$ ) について、電子構造パラメータの見積もりを行うために硬 X 線光電子分光測定を行い、Ti 2p に現れる構造と超伝導性の関連を明らかにした。

(4) 関連物質の研究から下記の成果を得た。

Pb 置換により超伝導化する  $\text{CsBi}_{4-x}\text{Pb}_x\text{Te}_6$  の超伝導化の起源を電子状態の観点から調べるために光電子分光を行った。その結果、Pb 置換による Bi-Bi 対の切断が有効的に電子ドーピングとして働いていることを見出した。このことは、Bi-Bi 対の制御が超伝導の発現と深く関係していることを示唆する。

Sn の原子価スキップに伴う負の U による超伝導が議論されている  $\text{Ag}_{1-x}\text{Sn}_{1+x}\text{Se}_2$  超伝導体について、Se K 吸収端の EXAFS 実験を行い Se 原子周りの局所構造に関する情報を得る事に成功した。その結果、 $\text{Sn}^{4+}$  イオンと  $\text{Sn}^{2+}$  イオンの共存に伴う結合長の違いは観測されることがわかった。このことは、Sn の原子価スキップの可能性が少ないことを示唆する。

エキゾチック超伝導の可能性が議論されている  $\text{BiS}_2$  系超伝導体で  $\text{BiS}_2$  伝導面を 4 層有する  $\text{La}_2\text{O}_2\text{Bi}_2\text{Pb}_2\text{S}_{6-x}\text{Se}_x$  超伝導体の真空紫外線 ARPES 測定および PES 測定を行なった。非超伝導体試料 ( $x=1$ ) の ARPES 測定から電子ポケットを観測した。この結果は、低温での電気抵抗の半導体的振る舞いが、バンドギャップでは説明できないことを示す。温度依存 PES 測定からは、温度減少に伴い、非超伝導体試料 ( $x=0$ ) においてはフェルミ準位上の状態密度が減少するものの、超伝導体試料 ( $x=1$ ) ではフェルミ準位上の状態密度は減少しないことがわかった。これらの結果は、Se 置換による超伝導発現の要因が化学ポテンシャルの変化ではないことを示す。

様々な種類の化合物超伝導体に着目し、特定サイトの多元素固溶からハイエントロピー型 (HEA 型) の超伝導体を開発した。NaCl 型金属テルライドは  $\text{MTe}$  ( $\text{M} = \text{Ag}, \text{In}, \text{Sn}, \text{Pb}, \text{Bi}$ ) においては、高圧下で超伝導転移温度が変化しない現象 (圧力上昇に鈍感になる現象) を見出した。HEA 化による電子状態またはフォノンの変化がその起源であると推測され、今後の高圧下物性研究が重要である。また、M サイトの固溶元素を変えることで、バンド反転の有無を制御できることも示し、トポロジカル超伝導体候補物質の開発に重要な情報を得ることができた。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計35件（うち査読付論文 35件 / うち国際共著 12件 / うちオープンアクセス 8件）

1. 著者名 Masashi Tanaka, Noriyuki Kataoka and Takayoshi Yokoya	4. 巻 7
2. 論文標題 Superconductivity in the alpha-Form Layer Structured Metal Nitride Halide	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 33
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/condmat7020033	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Pugliese G. M., Tortora L., Paris E., Wakita T., Terashima K., Puri A., Nagao M., Higashinaka R., Matsuda T. D., Aoki Y., Yokoya T., Mizokawa T., Saini N. L.	4. 巻 1
2. 論文標題 The Local Structure of the BiS <sub>2</sub> Layer in RE(0,F)BiS <sub>2</sub> Determined by In-Plane Polarized X-ray Absorption Measurements	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physchem	6. 最初と最後の頁 250 ~ 258
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/physchem1030019	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Tanaka Masashi, Kataoka Noriyuki, Matsumoto Ryo, Inumaru Kei, Takano Yoshihiko, Yokoya Takayoshi	4. 巻 7
2. 論文標題 Synthetic Route of Layered Titanium Nitride Chloride TiNCl Using Sodium Amide	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 ACS Omega	6. 最初と最後の頁 6375 ~ 6380
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsomega.1c06986	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Mitobe Tsubasa, Hoshi Kazuhisa, Kasem Md. Riad, Kiyama Ryosuke, Usui Hidetomo, Yamashita Aichi, Higashinaka Ryuji, Matsuda Tatsuma D., Aoki Yuji, Katase Takayoshi, Goto Yosuke, Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 11
2. 論文標題 Superconductivity in In-doped AgSnBiTe <sub>3</sub> with possible band inversion	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 22885
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-021-02341-9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Kasem Md Riad, Yamashita Aichi, Hatano Taishi, Sakurai Kota, Oono-Hori Naoko, Goto Yosuke, Miura Osuke, Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 34
2. 論文標題 Anomalous broadening of specific heat jump at T <sub>c</sub> in high-entropy-alloy-type superconductor TrZr <sub>2</sub>	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Superconductor Science and Technology	6. 最初と最後の頁 125001 ~ 125001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6668/ac2554	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yamashita Aichi, Matsuda Tatsuma D., Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 868
2. 論文標題 Synthesis of new high-entropy alloy-type Nb <sub>3</sub> (Al, Sn, Ge, Ga, Si) superconductors	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Alloys and Compounds	6. 最初と最後の頁 159233 ~ 159233
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jallcom.2021.159233	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hoshi Kazuhisa, Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 33
2. 論文標題 Experimental overview on pairing mechanisms of BiCh <sub>2</sub> -based (Ch: S, Se) layered superconductors	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 473001 ~ 473001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648X/ac1f4d	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Hoshi Kazuhisa, Kurihara Ryosuke, Goto Yosuke, Tokunaga Masashi, Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 12
2. 論文標題 Extremely high upper critical field in BiCh <sub>2</sub> -based (Ch: S and Se) layered superconductor La <sub>0.5</sub> F <sub>0.5</sub> BiS <sub>2-x</sub> Sex (x=0.22 and 0.69)	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 288
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-021-04393-3	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Kasem Md. Riad, Yamashita Aichi, Goto Yosuke, Matsuda Tatsuma D., Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 56
2. 論文標題 Synthesis of high-entropy-alloy-type superconductors (Fe,Co,Ni,Rh,Ir)Zr <sub>2</sub> with tunable transition temperature	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Materials Science	6. 最初と最後の頁 9499 ~ 9505
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s10853-021-05921-2	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Kiyama Ryosuke, Hoshi Kazuhisa, Goto Yosuke, Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 15
2. 論文標題 Investigation of Superconducting Properties and Possible Nematic Superconductivity in Self Doped BiCh <sub>2</sub> Based Superconductor Ce <sub>0</sub> Bi <sub>1.7</sub> Se <sub>0.3</sub>	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 physica status solidi (RRL)	6. 最初と最後の頁 2000546 ~ 2000546
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/pssr.202000546	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hoshi Kazuhisa, Sudo Kenta, Goto Yosuke, Kimata Motoi, Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 60
2. 論文標題 Investigation of in-plane anisotropy of c-axis magnetoresistance for BiCh <sub>2</sub> -based layered superconductor Nd <sub>0.7</sub> F <sub>0.3</sub> BiS <sub>2</sub>	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 020907 ~ 020907
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/abdc33	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yamashita Aichi, Usui Hidetomo, Hoshi Kazuhisa, Goto Yosuke, Kuroki Kazuhiko, Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 11
2. 論文標題 Possible pairing mechanism switching driven by structural symmetry breaking in BiS <sub>2</sub> -based layered superconductors	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 230-230
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-020-80544-2	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Mizuguchi Yoshikazu, Kasem Md. Riad, Matsuda Tatsuma D.	4. 巻 9
2. 論文標題 Superconductivity in CuAl <sub>2</sub> -type Co <sub>0.2</sub> Ni <sub>0.1</sub> Cu <sub>0.1</sub> Rh <sub>0.3</sub> Ir <sub>0.3</sub> Zr <sub>2</sub> with a high-entropy-alloy transition metal site	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Materials Research Letters	6. 最初と最後の頁 141 ~ 147
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/21663831.2020.1860147	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Hoshi Kazuhisa, Sakuragi Shunsuke, Yajima Takeshi, Goto Yosuke, Miura Akira, Moriyoshi Chikako, Kuroiwa Yoshihiro, Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 5
2. 論文標題 Structural Phase Diagram of La <sub>01-x</sub> FxBiS <sub>Se</sub> : Suppression of the Structural Phase Transition by Partial F Substitutions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 81 ~ 81
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/condmat5040081	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Hoshi Kazuhisa, Kimata Motoi, Goto Yosuke, Miura Akira, Moriyoshi Chikako, Kuroiwa Yoshihiro, Nagao Masanori, Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 4
2. 論文標題 Two-fold symmetry of in-plane magnetoresistance anisotropy in the superconducting states of BiCh <sub>2</sub> -based La <sub>00.9</sub> F <sub>0.1</sub> BiS <sub>Se</sub> single crystal	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physics Communications	6. 最初と最後の頁 095028 ~ 095028
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/2399-6528/abbb58	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Jha Rajveer, Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 13
2. 論文標題 Unconventional isotope effect on transition temperature in BiS <sub>2</sub> -based superconductor Bi <sub>40</sub> S <sub>3</sub>	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 093001 ~ 093001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1882-0786/abacdf	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yamashita Aichi, Jha Rajveer, Goto Yosuke, Miura Akira, Moriyoshi Chikako, Kuroiwa Yoshihiro, Kawashima Chizuru, Ishida Kouhei, Takahashi Hiroki, Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 10
2. 論文標題 Evolution of two bulk-superconducting phases in Sr0.5RE0.5FBiS2 (RE: La, Ce, Pr, Nd, Sm) by external hydrostatic pressure effect	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 12880-12880
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-020-69889-w	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Jha Rajveer, Goto Yosuke, Higashinaka Ryuji, Miura Akira, Moriyoshi Chikako, Kuroiwa Yoshihiro, Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 576
2. 論文標題 Improvement of superconducting properties by chemical pressure effect in Eu-doped La2-EuO2Bi3Ag0.6Sn0.4S6	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physica C: Superconductivity and its Applications	6. 最初と最後の頁 1353731 ~ 1353731
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.physc.2020.1353731	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yamashita Aichi, Jha Rajveer, Goto Yosuke, Matsuda Tatsuma D., Aoki Yuji, Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 49
2. 論文標題 An efficient way of increasing the total entropy of mixing in high-entropy-alloy compounds: a case of NaCl-type (Ag,In,Pb,Bi)Te1-xSex (x = 0.0, 0.25, 0.5) superconductors	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Dalton Transactions	6. 最初と最後の頁 9118 ~ 9122
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d0dt01880e	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Jha Rajveer, Goto Yosuke, Matsuda Tatsuma D., Aoki Yuji, Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 129
2. 論文標題 Superconductivity in Se-doped La202Bi2Pb2S6-xSex with a Bi2Pb2Ch4-type thick conducting layer	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 EPL (Europhysics Letters)	6. 最初と最後の頁 67001 ~ 67001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1209/0295-5075/129/67001	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -



1. 著者名 Kiyama Ryosuke, Goto Yosuke, Hoshi Kazuhisa, Jha Rajveer, Miura Akira, Moriyoshi Chikako, Kuroiwa Yoshihiro, Matsuda Tatsuma D., Aoki Yuji, Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 89
2. 論文標題 Bulk Superconductivity Induced by Se Substitution in Self-Doped BiCh <sub>2</sub> -Based Compound CeOBiS <sub>2-x</sub> Sex	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 064702 ~ 064702
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.89.064702	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Okazaki Hiroyuki, Terashima Kensei, Billington David, Iwata Keiji, Wakita Takanori, Tanaka Masashi, Takano Yoshihiko, Muraoka Yuji, Yokoya Takayoshi	4. 巻 32
2. 論文標題 Change in the electronic structure of the bismuth chalcogenide superconductor CsBi <sub>4-x</sub> PbxTe <sub>6</sub> by dissociation of the bismuth dimers	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 145501 ~ 145501
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648X/ab5e1a	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Paris E., Joseph B., Marini C., Terashima K., Wakita T., Yokoya T., Mizuguchi Y., Mizokawa T., Saini N. L.	4. 巻 101
2. 論文標題 High-pressure x-ray absorption and diffraction study of the self-doped superconductor EuFBiS <sub>2</sub>	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 214526~214526
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.214526	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Pugliese G. M., Paris E., Capone F. G., Stramaglia F., Wakita T., Terashima K., Yokoya T., Mizokawa T., Mizuguchi Y., Saini N. L.	4. 巻 22
2. 論文標題 The local structure of self-doped BiS <sub>2</sub> -based layered systems as a function of temperature	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 22217 ~ 22225
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d0cp03974h	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Akabane Yuka, Shimaiwa Taiki, Goto Yosuke, Mizuguchi Yoshikazu, Yokoya Takayoshi, Arita Masashi, Kumar Shiv, Schwier Eike F., Shimada Kenya, Saini Naurang L., Mizokawa Takashi	4. 巻 89
2. 論文標題 Momentum Dependent Band Renormalization and Surface Aging Effect on a Zone Center Electron Pocket in NaSn2As2 Revealed by Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 114707 ~ 114707
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.89.114707	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Kataoka Noriyuki, Tanaka Masashi, Hosoda Wataru, Taniguchi Takumi, Fujimori Shin-ichi, Wakita Takanori, Muraoka Yuji, Yokoya Takayoshi	4. 巻 33
2. 論文標題 Soft x-ray irradiation induced metallization of layered TiNCI	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 035501 ~ 035501
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648X/abbbc3	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Sogabe Ryota, Goto Yosuke, Abe Tomohiro, Moriyoshi Chikako, Kuroiwa Yoshihiro, Miura Akira, Tadanaga Kiyoharu, Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 295
2. 論文標題 Improvement of superconducting properties by high mixing entropy at blocking layers in BiS2-based superconductor RE00.5F0.5BiS2	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Solid State Communications	6. 最初と最後の頁 43 ~ 49
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ssc.2019.04.001	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yuwen Hao, Goto Yosuke, Jha Rajveer, Miura Akira, Moriyoshi Chikako, Kuroiwa Yoshihiro, Matsuda Tatsuma D., Aoki Yuji, Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 58
2. 論文標題 Enhanced superconductivity by Na doping in SnAs-based layered compound Na <sub>1+x</sub> Sn <sub>2-x</sub> As <sub>2</sub>	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 083001 ~ 083001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab2eb1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Jha Rajveer, Goto Yosuke, Matsuda Tatsuma D., Aoki Yuji, Nagao Masanori, Tanaka Isao, Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 9
2. 論文標題 Bulk superconductivity in a four-layer-type Bi-based compound La <sub>2</sub> O <sub>2</sub> Bi <sub>3</sub> AgO <sub>6</sub> Sn <sub>0.4</sub> S <sub>5.7</sub> Se <sub>0.3</sub>	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 13346
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-019-49934-z	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 88
2. 論文標題 Superconductivity in High-Entropy-Alloy Telluride AgInSnPbBiTe <sub>5</sub>	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 124708 ~ 124708
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.88.124708	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kasem Md. Riad, Hoshi Kazuhisa, Jha Rajveer, Katsuno Masayoshi, Yamashita Aichi, Goto Yosuke, Matsuda Tatsuma D., Aoki Yuji, Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 13
2. 論文標題 Superconducting properties of high-entropy-alloy tellurides M-Te (M: Ag, In, Cd, Sn, Sb, Pb, Bi) with a NaCl-type structure	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 033001 ~ 033001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1882-0786/ab7482	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Shukunami Yuta, Yamashita Aichi, Goto Yosuke, Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 572
2. 論文標題 Synthesis of RE <sub>123</sub> high-T <sub>c</sub> superconductors with a high-entropy-alloy-type RE site	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physica C: Superconductivity and its Applications	6. 最初と最後の頁 1353623 ~ 1353623
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.physc.2020.1353623	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Katsuno Masayoshi, Jha Rajveer, Hoshi Kazuhisa, Sogabe Ryota, Goto Yosuke, Mizuguchi Yoshikazu	4. 巻 5
2. 論文標題 High-Pressure Synthesis and Superconducting Properties of NaCl-Type $\text{In}_{1-x}\text{Pb}_x\text{Te}$ ( $x = 0-0.8$ )	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 14 ~ 14
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/condmat5010014	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Kataoka Noriyuki, Terashima Kensei, Tanaka Masashi, Hosoda Wataru, Taniguchi Takumi, Wakita Takanori, Muraoka Yuji, Yokoya Takayoshi	4. 巻 88
2. 論文標題 $\mu$ -PES Studies on $\text{TiNCI}$ and Quasi-two-dimensional Superconductor Na-intercalated $\text{TiNCI}$	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 104709 ~ 104709
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.88.104709	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Pugliese G M, Stramaglia F, Goto Y, Terashima K, Simonelli L, Fujiwara H, Puri A, Marini C, Hacisalihoglu M Y, d'Acapito F, Yokoya T, Mizokawa T, Mizuguchi Y, Saini N L	4. 巻 31
2. 論文標題 Temperature dependent local atomic displacements in $\text{NaSn}_2\text{As}_2$ system	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 425402 ~ 425402
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648X/ab2bd4	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計28件 (うち招待講演 9件 / うち国際学会 10件)

1. 発表者名 片岡範行, 寺嶋健成, 水口佳一, 高野義彦, 脇田高德, 村岡祐治, 横谷尚睦
2. 発表標題 $\text{La}_2\text{O}_2\text{Bi}_2\text{Pb}_2\text{S}_6$ - $x\text{Sex}$ の電子構造研究
3. 学会等名 日本物理学会2021秋季大会 (オンライン開催)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 脇田高德, 矢野佑幸, 寺嶋健成, 水口佳一, 星和久, 後藤陽介, 村岡祐治, 横谷尚睦
2. 発表標題 層状超伝導体 $\text{LnO}_{0.5}\text{F}_{0.5}\text{BiS}_2$ ( $\text{Ln} = \text{La}, \text{Ce}, \text{Pr}$ and $\text{Nd}$ ) の4d-4f共鳴光電子分光
3. 学会等名 日本物理学会2021秋季大会 (オンライン開催)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 片岡範行, 田中将嗣, 松本美香, Li Ya jun, 高木康多, 保井晃, 脇田高德, 村岡祐治, 横谷尚睦
2. 発表標題 層状窒化塩化物 $\text{Na}_x\text{TiNCI}$ の硬X線光電子分光
3. 学会等名 日本物理学会2021秋季大会 (オンライン開催)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takayoshi Yokoya
2. 発表標題 Experimental verification of two-gap superconductivity in $\text{MgB}_2$
3. 学会等名 Material Research Meeting 2021, Yokohama, Japan (Hybrid開催) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 片岡範行, Li Ya jun, 瀬戸口太朗, 出村郷志, 坂田英明, 川崎郁斗, 藤森伸一, 田中清尚, 脇田高德, 村岡祐治, 横谷尚睦
2. 発表標題 $\text{Pb}$ 置換 $\text{La}(\text{O}, \text{F})\text{BiS}_2$ 超伝導体における電子状態の温度依存性
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 水口佳一
2. 発表標題 高エントロピー合金型熱電材料の探索
3. 学会等名 日本物理学会第78回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yoshikazu Mizuguchi
2. 発表標題 Material design concept for superconducting high-entropy-alloy-type compounds
3. 学会等名 MRM2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 水口佳一
2. 発表標題 局所構造を制御した新超伝導体の開発
3. 学会等名 金研ワークショップ(中性子)(招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 水口佳一
2. 発表標題 高エントロピー合金型化合物 $\text{TrZr}_2$ の超伝導特性
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 水口佳一
2. 発表標題 BiS2系層状超伝導体の発見と超伝導発現条件の解明
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会(2021年)(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 脇田高德, 片岡範行, Li Ya Jun, 室隆桂之, 小林夏野, 上野哲平, 秋光純, 村岡祐治, Naurang L. Saini, 横谷尚睦
2. 発表標題 Ag <sub>0.8</sub> Sn <sub>1.2</sub> Se <sub>2</sub> 単結晶の顕微光電子分光
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会(2021年)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 片岡範行, 田中将嗣, 脇田高德, 村岡祐治, 横谷尚睦
2. 発表標題 層状窒化ハロゲン化物の電子構造
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会(2021年)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 田中将嗣, 片岡範行, 横谷尚睦
2. 発表標題 層状窒化ハロゲン化物超伝導体の合成法再考察
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会(2021年)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名	T. Wakita, E. Paris, K. Kobayashi, K. Terashima, M. Y. Hacisalihoglu, T. Ueno, F. Bondino, E. Magnano, I. Pis, L. Olivi, J. Akimitsu, Y. Muraoka, T. Yokoya, N. L. Saini
2. 発表標題	Determination of the Valence States and the Local Structures of $Ag_{1-x}Sn_1+xSe_2$ ( $x = 0.0, 0.1, 0.2, 0.25$ and $1.0$ )
3. 学会等名	Internatinal Conferenece on Strongly Correlated Electron Systems 2019 (SCES2019) (国際学会)
4. 発表年	2019年

1. 発表者名	N. Kataoka, K. Terashima, M. Tanaka, W. Hosoda, T. Taniguchi, T. Wakita, Y. Muraoka, T. Yokoya
2. 発表標題	Electronic structure of $TiNCI$ and electron-doped $TiNCI$
3. 学会等名	International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2019 (SCES2019) (国際学会)
4. 発表年	2019年

1. 発表者名	Kensei Terashima, Yuko Yano, Eugenio Paris, Yosuke Goto, Yoshikazu Mizuguchi, Yoichi Kamihara, Takanori Wakita, Yuji Muraoka, Naurang L. Saini, Takayoshi Yokoya
2. 発表標題	Study of chemical pressure effect on electronic- and local crystal-structure in $LaOBiCh_2$ system
3. 学会等名	MRM2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年	2019年

1. 発表者名	片岡範行, 寺嶋健成, 田中将嗣, 細田涉, 谷口拓海, 脇田高德, 村岡祐治, 横谷尚睦
2. 発表標題	層状窒化物超伝導体 $TiNCI$ の電子構造
3. 学会等名	日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年	2019年



1. 発表者名 片岡範行, 寺嶋健成, 田中将嗣, 細田渉, 谷口拓海, 脇田高德, 村岡祐治, 横谷尚睦
2. 発表標題 軟X線顕微光電子分光を用いた層状窒化物超伝導体TiNCIの電子構造研究
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 寺嶋健成, 片岡範行, 谷口拓海, 齋藤有紀, 工藤一貴, 野原実, 村岡祐治, 横谷尚睦,
2. 発表標題 SrPtAsの角度分解光電子分光
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 脇田高德, E. Paris, 小林夏野, 寺嶋健成, M. Y. Haciosalioglu, 上野哲平, F. Bondino, E. Magnano, I. Pis, L. Olivi, 秋光純, 村岡祐治, 横谷尚睦, N. L. Saini
2. 発表標題 Ag <sub>1-x</sub> Sn <sub>1+x</sub> Se <sub>2</sub> (x = 0.0, 0.1, 0.2, 0.25 及び1.0)の局所構造のx依存性
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 竹田早英桂, 赤羽裕香, 後藤陽介, 水口佳一, 横谷尚睦, N.L. Saini, 溝川貴司
2. 発表標題 SrSn <sub>2</sub> As <sub>2</sub> の電子状態と原子価不安定性
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 片岡範行, 田中将嗣, 寺嶋健成, 細田渉, 谷口拓海, 松本美香, 藤森伸一, 室隆桂之, 脇田高德, 村岡祐治, 横谷尚睦
2. 発表標題 層状塩化窒化物TlNCIの光照射効果
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 水口佳一
2. 発表標題 BiS2 系層状化合物の新物質開発と超伝導発現条件
3. 学会等名 日本物理学会2019 年秋季大会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Goto
2. 発表標題 Layered Tin Pnictides as a New Class of van der Waals-type Superconductors
3. 学会等名 MRM2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 R. Jha
2. 発表標題 Bulk superconductivity induced via two-site substitution in La202M4S6-type layered oxychalcogenide La202Bi3Ag0.6Sn0.4S5.7Se0.3
3. 学会等名 MRM2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Goto
2. 発表標題 Superconductivity in layered tin pnictides with a van der Waals-type structure
3. 学会等名 ISS 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Mizuguchi
2. 発表標題 BiS2-based layered superconductor with thick superconducting layers
3. 学会等名 Superstripes 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 後藤陽介、水口佳一
2. 発表標題 SnPn-based layered superconductors
3. 学会等名 Study of matter at extreme conditions (SMEC2019) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	寺嶋 健成  (TERASHIMA Kensei)  (20551518)	国立研究開発法人物質・材料研究機構・国際ナノアーキテク トニクス研究拠点・NIMS特別研究員   (82108)	

## 6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	水口 佳一  (MIZUGUCHI Yoshikazu)  (50609865)	東京都立大学・理学研究科・准教授    (22604)	

## 7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

## 8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
イタリア	Universita di Roma "La Sapienza"	Elettra Sincrotrone Trieste		
スイス	Paul Scherrer Institut			
スペイン	ALBA Synchrotron Light Facility			
フランス	ESRF			
トルコ	Recep Tayyip Erdogan University			
英国	Cardiff University			