

Nb-Bi-Se 系化合物の単結晶育成とその超伝導特性の評価

Growth and superconducting properties of Nb-Bi-Se-based single crystals

山梨大¹, 九工大², 北大³, 物材機構⁴°長尾雅則¹, 田中将嗣², 堀部陽一², 三浦章³, 丸山祐樹¹, 綿打敏司¹, 高野義彦⁴, 田中功¹Univ. of Yamanashi¹, Kyushu Institute of Technology², Hokkaido Univ.³, NIMS⁴°M. Nagao¹, M. Tanaka², Y. Horibe², A. Miura³, Y. Maruyama¹, S. Watauchi¹, Y. Takano⁴, I. Tanaka¹

E-mail: mnagao@yamanashi.ac.jp

[はじめに] Bi_2Se_3 に Cu や Sr を添加することで、トポロジカル超伝導体と呼ばれる特殊な電子構造を持つ超伝導体が発現することが報告されている¹⁻²⁾。Nb 添加によっても Bi_2Se_3 がトポロジカル超伝導体になる可能性が示唆されている³⁻⁵⁾。我々は、フラックス法により Nb 添加 Bi_2Se_3 単結晶の育成を試みた際、超伝導転移温度 2.3 K と 3.2 K の 2 種類の相の存在を確認した。このうち 2.3 K 相は、 $(\text{BiSe})_{1.10}(\text{NbSe}_2)$ で表現されるミスフィット化合物⁶⁾であることが明らかとなった。一方、3.2 K 相については、Nb 添加 Bi_2Se_3 の超伝導転移温度と概ね一致するが、これに相当する相(構造)の確認には至っていない。本研究では、Nb:Bi:Se の仕込み組成を変化させることで得られる単結晶について、その構造・組成および超伝導特性を評価し、3.2 K 相が得られる条件の探索を行った。

[実験] Nb, Bi, Se を合計 0.8 g になるように Nb, Bi, Se をそれぞれの仕込み組成で秤量し、これにモル比 CsCl:KCl=5:3 の CsCl/KCl フラックスを 5 g 加え混合したものを石英管に真空封入した。これを 700 °C で 10 h 保持後、200 h で 600 °C まで徐冷し、室温まで炉冷したものを石英管から取り出し、蒸留水を加えてフラックスを溶解させ、ろ過・乾燥することで単結晶を得た。得られた単結晶は、走査電子顕微鏡(SEM)、エネルギー分散型 X 線分析(EDS)、X 線回折(XRD)により形状、組成、構造を調べ、超伝導量子干渉計(SQUID)で磁化の温度依存性(M - T 特性)、直流四端子法で輸送特性を評価した。また、収束イオンビームを用いて微細加工を行うことで、 c 軸方向の電気伝導特性を評価した。

[結果] Table I に各仕込み組成における超伝導転移温度(T_c)と 2 K で Zero field cooling (ZFC)における磁化率を示す。Nb:Bi:Se=0.75:1.00:2.50 において高い T_c と超伝導由来の強い反磁性信号を観測した。この試料について ab 面方向に電流を流し、電気抵抗測定を行ったところ、3.1 K でゼロ抵抗を観測した。一方、 c 軸方向に電流を流したところ、2.1 K および 3.0 K の二カ所で超伝導転移を観測した。同試料の XRD および EDS による表面付近の分析では、 $(\text{BiSe})_{1.10}(\text{NbSe}_2)$ 単相であることが確認されていることから、3.0 K 付近で超伝導転移を起こす相は、単結晶試料内部に積層する形で存在している可能性が高い。今後は、 c 軸に平行な積層構造を詳細に観察し、この超伝導相について構造や組成を明らかにしたいと考えている。

1) S. Sasaki *et al.*, Phys. Rev. Lett. **107** (2011) 217001. 2) Z. Liu *et al.*, J. Am. Chem. Soc. **137** (2015) 10512. 3) Y. Qiu *et al.*, arXiv:1512.03519. 4) B. J. Lawson *et al.*, Phys. Rev. B **94** (2016) 041114(R). 5) T. Asaba *et al.*, Phys. Rev. X **7** (2017) 011009. 6) A. Nader *et al.*, Solid State Comm. **101** (1997) 149-153.

Table I Nominal compositions, superconducting transition temperature (T_c) and magnetic susceptibility for Nb-Bi-Se-based single crystals.

Nominal compositions			T_c (K)	Magnetic susceptibility (emu/g) ZFC at 2.0 K
Nb	Bi	Se		
0.125	1.00	1.50	3.2	-0.72
0.50	1.00	2.00	3.1	-2.37
0.67	1.00	2.33	3.2	-2.60
0.75	1.00	2.50	3.4	-2.68
0.75	1.00	3.00	3.6	-3.32×10^{-4}
0.95	1.00	2.50	2.3	-8.43×10^{-4}
0.95	1.00	3.00	2.6	-6.53×10^{-2}
1.00	1.00	3.00	2.6	-0.55