

# 学位論文

GaAs 劈開表面に形成した金属単原子層膜における  
空間反転対称性の破れた超伝導

(Superconductivity with broken inversion symmetry in one-atomic-  
layer metal films grown on cleaved GaAs surfaces)

平成 25 年 12 月 博士(理学) 申請

東京大学大学院 理学系研究科 物理学専攻  
岡本研究室

関原 貴之

# 概要

本研究は、低温真空中で劈開した GaAs 表面に低温蒸着により形成した Pb と In の単原子層膜に対し、電気伝導測定をおこない、超伝導転移温度の平行磁場依存性を詳細に調べた。パウリ限界を大きく超える平行磁場を印加しても、超伝導状態は観測された。特に Pb では、14 T もの磁場に対しても、超伝導転移温度はほとんど変化せず、平行成分の有無による垂直磁場依存性の違いも見られなかった。測定した超伝導転移温度の平行磁場依存性に対し、空間反転対称性の破れた 2 次元超伝導で提唱されているヘリカル相と呼ばれる相の理論式を適用した。Pb 単原子層膜の場合、Rashba スピン分裂が非常に大きいと仮定した理論式でよく説明される。Rashba スピン分裂がそれほど大きくない In 単原子層膜に対しては、その理論式を拡張することで解析をおこない、Rashba スピン分裂の大きさを 0.04 eV と見積もった。その大きさは、Pb 単原子層膜で期待される値より一桁小さく、原子の重さによる違いとして理解できる。

# Abstract

We have studied the parallel-magnetic-field dependence of the superconducting transition temperature  $T_c$  by magnetotransport measurements on one-atomic-layer Pb and indium films deposited on cleaved GaAs surfaces. Superconductivity was stable even in parallel magnetic field  $H_{\parallel}$  much higher than Pauli paramagnetic limit. Especially the reduction of the transition temperature in the Pb films was found to be rather small even in  $H_{\parallel}$  up to 14 T. Furthermore, the perpendicular magnetic field dependence of the sheet resistance in the Pb films was almost independent of the presence of the parallel field component. For the case of the Pb films, the observed parabolic  $H_{\parallel}$  dependence of  $T_c$  is quantitatively explained in terms of an inhomogeneous superconducting state, called a helical state, theoretically proposed for a two-dimensional superconductor with a large Rashba spin splitting  $\Delta_R \gg \hbar\tau^{-1}$ . For the case of the indium films, we developed the theory for a moderate Rashba spin splitting  $\Delta_R \lesssim \hbar\tau^{-1}$ . The values of  $\Delta_R$  are estimated to be 0.04 eV, which is one order of magnitude smaller than that expected for the one-atomic-layer Pb films.

# 目次

<b>第1章</b>	<b>序論</b>	<b>1</b>
1.1	超伝導の研究の進展	1
1.2	単原子層の超伝導	1
1.3	表面での Rashba 効果	6
1.4	空間反転対称性のない系での超伝導	9
1.4.1	スピン一重項と三重項の混成	9
1.4.2	スピン帯磁率と臨界磁場	10
1.4.3	ストライプ相	13
1.4.4	ヘリカル相	14
1.5	本研究の目的	15
<b>第2章</b>	<b>実験方法</b>	<b>16</b>
2.1	劈開機構を備えた $^3\text{He}$ 蒸発冷却冷凍機	16
2.2	蒸着用フィラメント	20
2.3	GaAs 基板作製	21
2.4	測定回路	23
2.5	抵抗温度計とその磁場依存性	23
<b>第3章</b>	<b>実験結果及び考察</b>	<b>25</b>
3.1	超伝導転移温度と常伝導状態の面抵抗の膜厚依存性	25
3.2	Pb 単原子層膜での超伝導の平行磁場依存性	29
3.2.1	平行磁場を印加した状態での面抵抗の温度依存性	29
3.2.2	平行磁場に対する超伝導転移温度の変化量	29
3.2.3	垂直磁場を印加した状態での面抵抗の温度依存性	31
3.2.4	面抵抗の垂直磁場依存性	31
3.2.5	パウリ限界による考察	32
3.2.6	スピン軌道散乱による臨界磁場の上昇としての考察	33
3.2.7	空間反転対称性の破れた2次元超伝導としての考察	34
3.3	In 単原子層膜での超伝導の平行磁場依存性	37
3.3.1	平行磁場を印加した状態での面抵抗の温度依存性	37
3.3.2	平行磁場に対する超伝導転移温度の変化量	37
3.3.3	垂直磁場依存性	38

3.3.4	スピン緩和機構についての考察 . . . . .	38
3.3.5	Rashba スピン分裂の大きさの見積もり . . . . .	40
3.4	熱処理による効果 . . . . .	42
3.4.1	単原子層膜への影響 . . . . .	42
3.4.2	超伝導状態への影響 . . . . .	42
3.5	Bi 二原子層膜での平行磁場に対する超伝導転移温度の変化量 . . . . .	45
3.6	Bi 超薄膜と Pb 単原子層膜の電流-電圧特性 . . . . .	46
3.6.1	KT 転移の基礎知識 . . . . .	46
3.6.2	実験結果と考察 . . . . .	47
<b>第 4 章</b>	<b>総括</b>	<b>52</b>
4.1	まとめ . . . . .	52
4.2	今後の展望 . . . . .	53
4.2.1	電気伝導測定法を用いた研究 . . . . .	53
4.2.2	走査トンネル顕微鏡を用いた研究 . . . . .	54
4.2.3	他の測定方法へ向けて . . . . .	55
付録 A	常伝導状態の面抵抗から見積もった散乱時間	56
付録 B	$\Delta T_c$ の平行磁場依存性の導出	57
付録 C	<b>Pb</b> 単原子層膜の反弱局在効果	<b>63</b>
C.1	弱局在効果の基礎知識 . . . . .	63
C.2	実験結果 . . . . .	64

# 第1章 序論

## 1.1 超伝導の研究の進展

超伝導は、1911年に Kamerlingh Onnes によって発見されて以来、物理学の一分野として盛んに研究され、実験・理論の両方面で大きく進歩した。理論的には、1950年代に、Bardeen、Cooper、Schrieffer の3人によってBCS理論が提唱され、また、Ginzburg と Landau によって現象論として超伝導を理解できるGL理論も提唱され、半世紀ほど謎にまつまっていた超伝導状態が、ミクロとマクロの両方から理解できるようになった。実験的には、1980年代後半に、銅酸化物の高温超伝導体が発見されたことが超伝導の研究の更なる発展の契機となった。高温超伝導体は、従来のBCS理論で考えられているs波超伝導では説明がつかず、また、液体ヘリウムに頼らず比較的安価な液体窒素を冷媒として、超伝導転移を引き起こせるため、物理的見地からも応用的見地からも、集中的に研究された。現在でも、超伝導転移温度がなるべく高い物質、室温で超伝導になるような物質を発見しようという目的で盛んに研究されている。銅酸化物の高温超伝導体は、2次元正方格子がシート状に広がり、その上下に絶縁層がある多層的な構造を持ったd波超伝導体である。この発見を機に、低次元有機導体や $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ といったp波超伝導体など、様々なタイプの超伝導体も研究される様になった。

完全導電性やジョセフソン効果などの超伝導が持つ特性・特徴を活かすため、超伝導を工学的に応用しようという試みも長年なされている。基礎研究の分野では、以前から超伝導を応用した機器が使われてきた。超伝導量子干渉計(SQUID)は高感度磁気センサーとして、超伝導磁石は、強磁場を必要とする高エネルギー加速器や核融合炉にも利用されてきた。近年では、実社会でも超伝導を応用した装置が使われ始めている。超伝導磁石を利用した医療用MRIは一般に普及し、超伝導リニアモーターカーや高温超伝導体を線材とした送電線なども計画されている。超伝導量子ビットを利用して、高速暗号解読が期待されている量子コンピューターへ応用する研究も注目されている。

## 1.2 単原子層の超伝導

超伝導は2次元でも起こるのかという疑問に答えるため、薄膜での超伝導が長年研究されてきた。超伝導は、量子揺らぎに対して壊れやすいものとして考えら

れており、2次元系でも超伝導が起こるのかが非常に興味を持たれていた。さらに、ジョセフソン接合素子や超伝導トランジスタなどの超伝導素子への応用を考える上でも、超伝導体の薄膜化は避けられない。そのような観点からも、薄膜の超伝導は盛んに研究されてきた。

多くの金属では、薄膜化することで超伝導転移温度がバルクの値とずれていく。10 Å程度の膜厚までは、1980年代までに、超伝導転移温度の膜厚依存性が詳しく調べられている [1]。それによると、Al や Sn、In などの弱結合の超伝導体は薄膜化によって超伝導転移温度が増加する傾向にある。しかし、ある膜厚を下回ると、超伝導転移温度は減少していき、最終的に絶縁体になる。Al だと 30 Å 弱で、超伝導転移温度は最大値をとる [2]。一方、Pb、Nb、Ta、V などの強結合の超伝導体は膜厚の減少とともに単調に超伝導転移温度が減少し、絶縁体になる。

1989年、Goldmanらは、膜厚 3.28 Å の Pb 超薄膜、膜厚 6.73 Å の Bi 超薄膜といった数原子層に相当する金属薄膜においても超伝導転移を示すことを報告した [3]。図 1.1 に Bi 超薄膜の面抵抗の温度依存性を示す。彼らの実験では、Pb は 1.86 Å、Bi は 4.36 Å から電気伝導が測定されている。Bi で超伝導転移転移を起こす最も薄い膜における常伝導状態の面抵抗は、6.5 kΩ/□ であった。彼らは、液体 <sup>4</sup>He 温度の研磨されたガラス基板の上に、Pb や Bi を蒸着する前に、初めに Ge を 6 Å 程蒸着している。一方で、直接基板に蒸着した Sn や Pb 薄膜では、超伝導状態にならずに、抵抗が金属的に減少することが報告されている [4,5]。Goldman らは、Ge や Sb などを初めに蒸着することで、基板の凹凸が少なくなり、Pb や Bi の原子がかたまって粒を作ることを防ぎ、電気伝導がとりやすくなると述べている [6,7]。

Goldman らの実験により、超伝導薄膜を薄くしていくと常伝導状態での抵抗が上昇し、超伝導の量子抵抗  $R_q = h/4e^2 = 6.45 \text{ k}\Omega$  付近で超伝導状態を示さなくなり、絶縁体的振る舞いを示すようになることが分かった。これが超伝導絶縁体転移と呼ばれる量子相転移である。超伝導絶縁体転移では、クーパー対と強い乱れによる電子の局在とが関係し、乱れのパラメータとして、常伝導状態での抵抗がその一つと考えられている [6,8]。薄膜の膜厚を変化させることで、抵抗を変化させることができ、乱れの量を調整するのが容易であったため、超伝導絶縁体転移は、金属薄膜で盛んに研究された。

超伝導絶縁体転移の研究としては、低温蒸着により形成した薄膜の膜厚を減少させることで乱れを大きくし、その振る舞いを調べるのが主眼であった。一方で、乱れの少ない結晶構造を組んだ薄膜を作り、超伝導の研究をすることが、技術的進歩により可能になった。2004年、Guoらによって、量子サイズ効果が超伝導に影響を与えることが実証された。原子レベルで均一な厚みになるように Si (111) 面にエピタキシャル成長させた Pb 薄膜において、15~28 原子層の範囲で厚みを変化させたところ、状態密度と超伝導転移温度の振動が観測された [9]。

乱れの少ないきれいな結晶構造を持つ系で、より薄い薄膜で超伝導が起こるかどうかも研究されてきた [10-14]。2009年、Qinらは Pb の二原子層でも超伝導が起こることを報告した [15]。二原子層は、電子が面直方向にも運動でき、3次元的な

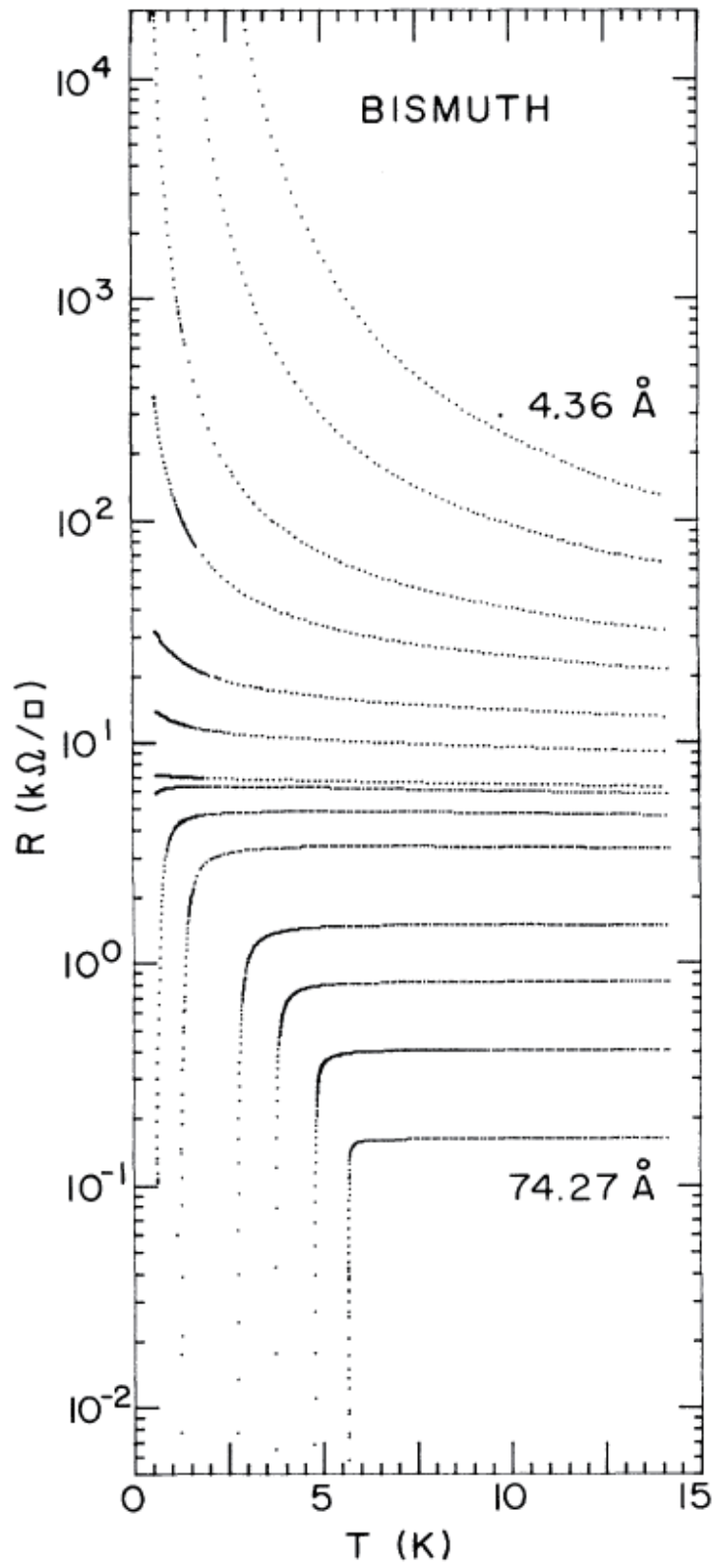


図 1.1: Bi 超薄膜の超伝導絶縁体転移 [3]



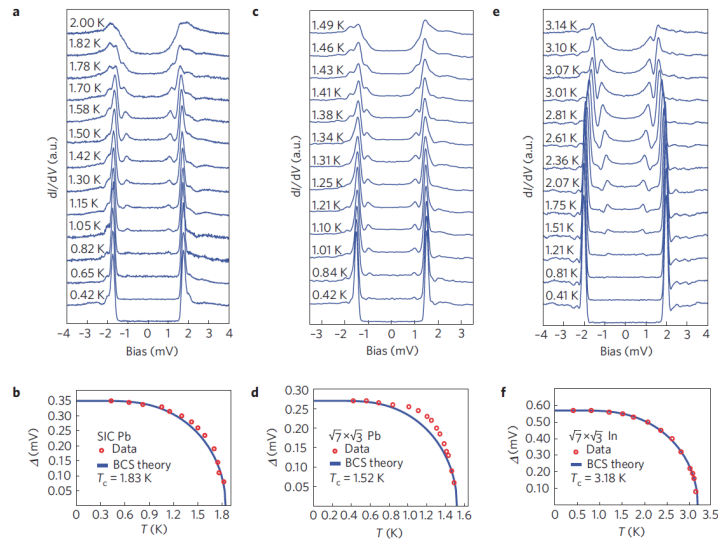


図 1.2: 各薄膜での  $dI/dV$  特性と、超伝導エネルギーギャップと温度の関係 (左から SIC Pb 相、 $\sqrt{7} \times \sqrt{3}$  Pb 相、 $\sqrt{7} \times \sqrt{3}$  In 相)[16]

性質を保てる最も薄い構造であるので、超伝導が起こる極限であると考えられた。

2010 年、Zhang らは Si (111) 面にエピタキシャル成長させた Pb と In の一原子層で超伝導が起きることを観測した [16]。Pb では、面密度  $10.44 \text{ nm}^{-2}$  (SIC Pb 相) と面密度  $9.40 \text{ nm}^{-2}$  ( $\sqrt{7} \times \sqrt{3}$  Pb 相) の 2 つの結晶構造の違う単原子層膜で観測された。In では、面密度  $9.40 \text{ nm}^{-2}$  の  $\sqrt{7} \times \sqrt{3}$  In 相のみである。走査トンネル分光法 (Scanning Tunneling Spectroscopy ; STS) から超伝導エネルギーギャップを測定し、BCS 理論でフィッティングすることでそれぞれの超伝導転移温度を求めている。各々の  $dI/dV$  特性と、超伝導エネルギーギャップと温度の関係を図 1.2 に示す。超伝導転移温度は、それぞれ 1.83 K、1.52 K、3.18 K である。SIC Pb 相では、測定した垂直方向の臨界磁場 1450 G から、コヒーレンス長が 49 nm と見積もられている。さらに角度分解型光電子分光法の結果から、クーパー対を形成する電子-フォノン相互作用には、原子層内での金属的な結合だけでなく、金属原子と基板である Si 原子との間の共有結合とが寄与していることが分かった。

エピタキシャル成長させた超薄膜の超伝導の研究は STS などのローカルな物理量の測定がほとんどであったが、2011 年、内橋らにより、電気伝導測定によっても単原子層の超伝導が観測された [17]。常伝導状態での抵抗  $410 \Omega$  を持つ、Si (111) 面上の  $\sqrt{7} \times \sqrt{3}$  In で転移温度 2.8 K の超伝導が観測され、マクロなスケールでも単原子層の超伝導が起こることが確認された。同じ In 単原子層でも、STS で求めた超伝導転移温度と電気伝導測定から求めた超伝導転移温度が一致していないが、その理由が試料の違いによるものか本質的な物理によるものかは分かっていない [18]。また、電流-電圧特性から超伝導臨界電流が測定された。図 1.3 に各温度での電流-電圧特性を示す。ジュール加熱による効果でヒステリシスが出てしまってい

るが、1.8 Kで  $520 \mu\text{A}$  か  $230 \mu\text{A}$  と、単原子層であることを考えれば非常に大きい臨界電流を持つことが分かった。

最近では、Si 基板上に形成された同様な結晶構造を持つ Pb や In の単原子層膜に垂直方向に磁場を印加して、超伝導転移温度だけでなく、臨界磁場も測定されている [19]。臨界磁場から求めたコヒーレンス長とバンド構造から求めたピパード長を比較すると、単金属では、両者は同程度の値になるはずであるが、前者の方がずっと短いという結果が得られている。

なお、エピタキシャル成長で作られた薄膜の膜厚を正確に決定するのは、容易ではない。それらの薄膜は、高温でアニールすることで、一度蒸着した原子を脱離させて作成しており、最終的な Si 基板上の原子量は正確には分からない。高エネルギー電子回折 [20] や走査トンネル顕微鏡観察 (Scanning Tunneling Microscopy ; STM)[21] で評価されている。しかし、最近の実験が単原子層膜で得られたものは疑問視されている。超伝導が観測された  $\sqrt{7} \times \sqrt{3}$  In / Si (111) 表面構造では、hex と rect と呼ばれる 2 つの構造が存在する。試料の作り方によって作り分けることができるが、それらの混成したものができる可能性もある。Zhang らの実験 [16] では、rect- $\sqrt{7} \times \sqrt{3}$  構造であるが、内橋らの実験 [17] では、hex- $\sqrt{7} \times \sqrt{3}$  が多かったと記述されており、はっきりとしたことが分かっていない。これらの In 超薄膜は単原子層と考えられていたが、理論計算によるバンド構造などを比較した結果、単原子層ではなく、二原子層ではないかと指摘されている [22]。

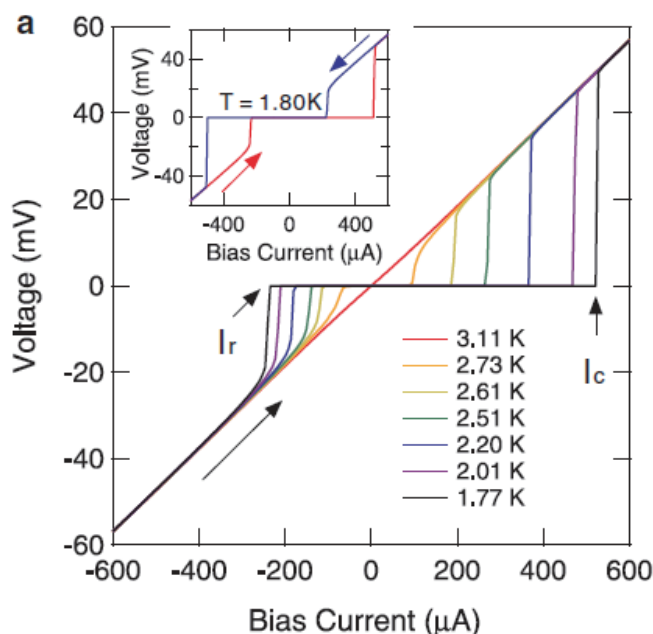


図 1.3:  $\sqrt{7} \times \sqrt{3}$  In 相での電流-電圧特性 [17]

### 1.3 表面での Rashba 効果

基板上的の薄膜や異なる物質の接合面など、表面や界面に形成された系では、上下方向に空間反転対称性が破れている。空間反転対称性を有する結晶中の電子状態は、空間反転対称性から、座標をひっくり返してもエネルギーが同じ ( $E(\mathbf{k}, \uparrow) = E(-\mathbf{k}, \uparrow)$ ) であり、一方で、時間反転対称性から、時間をひっくり返してもエネルギーが同じ ( $E(\mathbf{k}, \uparrow) = E(-\mathbf{k}, \downarrow)$ ) となる必要がある。そのため、2つのスピンのエネルギーは同じ ( $E(\mathbf{k}, \uparrow) = E(\mathbf{k}, \downarrow)$ ) であり、スピン状態は縮退している。しかし、空間反転対称性が破れた系では、スピンの向きによってエネルギーが異なり ( $E(\mathbf{k}, \uparrow) \neq E(\mathbf{k}, \downarrow)$ )、スピン分裂が許される。

空間反転対称性が破れていると、ポテンシャル勾配  $\nabla V$  ができる。このポテンシャル勾配が原子のスピン軌道相互作用と結合して、伝導電子のスピン分裂を引き起こす。ハミルトニアンは

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{\text{SO}} = -\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2 + \frac{\hbar}{4m^2c^2}\hat{\sigma} \cdot (\nabla V \times \hat{\mathbf{p}}) \quad (1.1)$$

のようになる。ここで、 $\hat{\sigma}$  はスピン演算子である。これを Rashba 効果という [23, 24]。Rashba 効果により、スピン縮退していたフェルミ面が分裂する。2次元自由電子モデルの場合、電子は面直方向のポテンシャル勾配  $\nabla V = (0, 0, E_z)$  を感じながら運動するため、エネルギーは

$$E(k) = \frac{\hbar^2}{2m}k^2 \pm \frac{\hbar^2}{4m^2c^2}E_z k = E_0(k) \pm \alpha k \quad (1.2)$$

となる。Rashba パラメータ  $\alpha$  は、原子のスピン軌道相互作用やポテンシャル勾配の大きさに強く依存する。図 1.4 に、Rashba スピン分裂がない場合とある場合での、2次元自由電子のフェルミ面とバンド分散の模式図を示す。

単体表面においては、Au (111) 表面において初めて Rashba スピン分裂が観測された [25]。図 1.5 に Au 表面の Rashba スピン分裂を示す。0.153 Å<sup>-1</sup> で 110 meV の Rashba 効果によるエネルギー分裂が観測されている。Rashba パラメータは 0.33 eV·Å である。さらに、スピン分解光電子分光法により H が吸着した W (110) 表面で、Rashba スピン分裂が観測された [26]。非放射性元素としては最も重い Bi 単体表面では、0.73 eV·Å の大きな Rashba スピン分裂が観測された [27]。絶縁体基板上の金属単原子層でも Rashba スピン分裂は観測されている。Si (111) や Ge (111) 表面上の Bi 単原子層では 100 ~ 200 meV 程度の Rashba スピン分裂が観測されている [28–30]。図 1.6 に Ge (111) 上の Pb 単原子層の Rashba スピン分裂を示す。0.36 Å<sup>-1</sup> で、200 meV の Rashba スピン分裂が観測されている。

Rashba 効果は半導体の分野でも盛んに研究されている。半導体ヘテロ接合により井戸型ポテンシャルに閉じ込められた電子系は 2次元であり、空間反転対称性が破れている。Rashba 分裂の大きさは表面電場に比例するため、半導体試料では、ゲート電圧を制御することでその大きさも制御できるからである。Rashba 効果を

電場によるスピン制御法として応用した例として、スピン電界効果型トランジスタ [32] が注目されている。

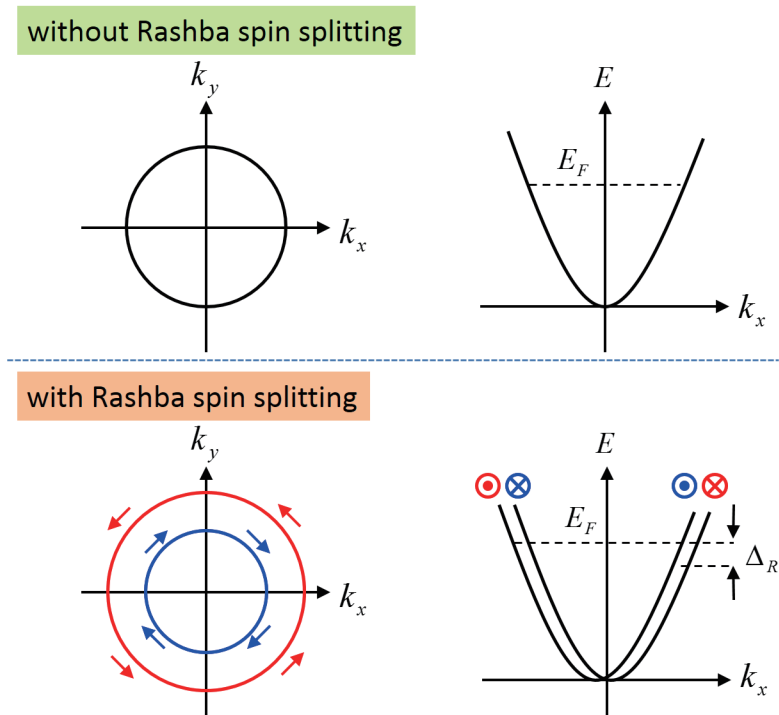


図 1.4: 2次元自由電子のフェルミ面 (左図) とバンド分散 (右図) の模式図。(上図)Rashba スピン分裂がない場合。(下図)Rashba スピン分裂した場合。図中の矢印はスピンの向きを示す。

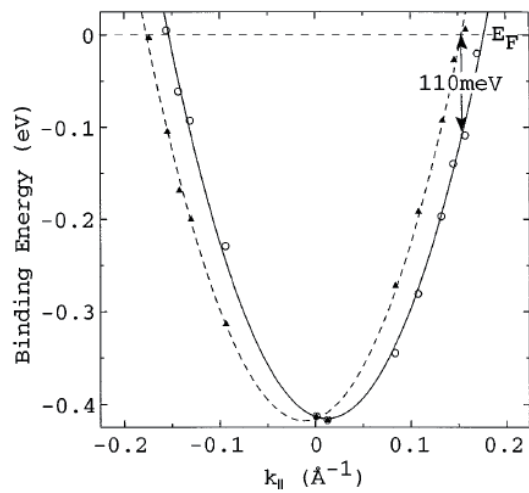


図 1.5: Au 表面の Rashba スピン分裂 [25]

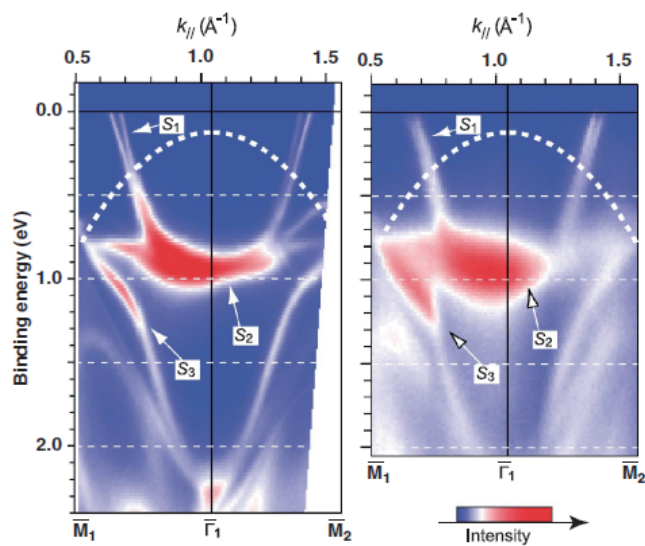


図 1.6: Ge(111) 上の Pb 単原子層の Rashba スピン分裂 [31]

## 1.4 空間反転対称性のない系での超伝導

2004年、重い電子系の物質として  $\text{CePt}_3\text{Si}$  で初めて空間反転対称性のない結晶構造を持つ超伝導体が発見された [33]。さらに、 $\text{CeRhSi}_3$  [34] や  $\text{Li}_2\text{Pd}_3\text{B}$  [35] など次々と結晶構造に空間反転対称性のない超伝導体が発見された。図 1.7 に  $\text{CePt}_3\text{Si}$  の結晶構造を示す。簡明さのため Pt 原子を除いた模式図も図 1.8 に示す。 $\text{CePt}_3\text{Si}$  では、Si 原子の位置が単位格子の中心位置 (図 1.8 中の破線の赤丸) から結晶の  $c$  軸に沿った方向にずれている。その結果、 $\text{CePt}_3\text{Si}$  の結晶構造は  $ab$  面を鏡面とする鏡面反転について非対称である。このため、 $\text{CePt}_3\text{Si}$  は結晶構造に空間反転対称性がない。

これらの空間反転対称性のない結晶構造を持つ超伝導体の発見により、従来の BCS 理論の枠組みからはずれ、パリティの破れたクーパー対が実現する新規物性が注目され、研究されてきた [36–38]。以下で詳しく解説するが、空間反転対称性の破れた超伝導体の特徴に、スピン一重項状態とスピン三重項状態の混成、臨界磁場の増大などが上げられる。現在のところ、スピン一重項とスピン三重項が強く混合しているという実験的証拠はない。 $\text{CeRhSi}_3$  [39] や  $\text{CeIrSi}_3$  [40] で磁場が  $c$  軸に平行な方向において、高圧下で、20~30 T もの大きな臨界磁場が観測されている。これらの系では、電子の有効質量が増大して、電子の速度は遅くなっている。また、圧力下では、コヒーレンス長が非常に小さくなっている。そのため、軌道効果が抑えられ、巨大な臨界磁場が観測できたと考えられる。しかし、これらの結果が、空間反転対称性の破れに起因する超伝導相の存在によるものなのか確認は得られていない。

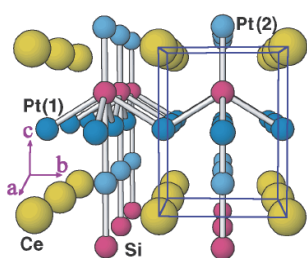


図 1.7:  $\text{CePt}_3\text{Si}$  の結晶構造 [34]

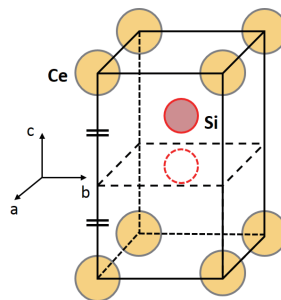


図 1.8:  $\text{CePt}_3\text{Si}$  の結晶構造の模式図

### 1.4.1 スピン一重項と三重項の混成

空間反転対称性のない物質における超伝導の特徴の一つに、スピン一重項状態とスピン三重項状態の混成がある [41, 42]。ここでは、簡単のため、フェルミ面が等方的な 2 次元系で、空間反転対称性が  $z$  軸方向に破れている  $\nabla V \propto \mathbf{n}_z$  の Rashba

型を考える。常伝導状態では、フェルミ面が2つに分裂し、電子のスピンのフェルミ運動量に垂直な方向に決まることになる。この分裂したフェルミ面上で、電子がクーパー対を組んで超伝導状態になる。クーパー対は波数  $\mathbf{k}$  と  $-\mathbf{k}$  で組むため、Rashba スピン分裂  $\Delta_R$  が超伝導エネルギーギャップ  $\Delta_0$  より十分大きい場合、異なるバンド間でクーパー対を組むことはエネルギー的に大きく損することになり、同一バンド間でしかクーパー対を形成することはできない。この場合、フェルミ運動量の向きによって電子スピンの向きが決定されるため、 $\mathbf{n}_z \times \mathbf{k} = (-k_y, k_x, 0)$  の方向にスピンの量子化軸をとった場合の上向きスピンを  $+\sigma$ 、下向きスピンを  $-\sigma$  とすると、形成されるクーパー対は、状態ベクトル  $|+\mathbf{k}, +\sigma\rangle |-\mathbf{k}, -\sigma\rangle$  で表わされる。この対状態ベクトルは、スピン一重項状態とスピン三重項状態の混成になる。対状態ベクトルを

$$|+\mathbf{k}, +\sigma\rangle |-\mathbf{k}, -\sigma\rangle = \frac{1}{2}(|+\mathbf{k}, +\sigma\rangle |-\mathbf{k}, -\sigma\rangle - |+\mathbf{k}, -\sigma\rangle |-\mathbf{k}, +\sigma\rangle) + \frac{1}{2}(|+\mathbf{k}, +\sigma\rangle |-\mathbf{k}, -\sigma\rangle + |+\mathbf{k}, -\sigma\rangle |-\mathbf{k}, +\sigma\rangle) \quad (1.3)$$

のように簡単な式変形をすると、右辺の第1項がスピン一重項の成分で、第2項がスピン三重項の成分となる。

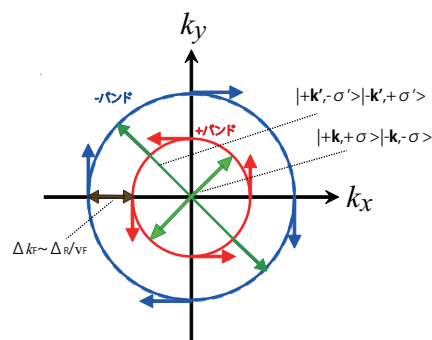


図 1.9: Rashba スピン分裂したフェルミ面上での超伝導

## 1.4.2 スピン帯磁率と臨界磁場

超伝導体に磁場を印加すると、外部磁場と電子スピンの結合（ゼーマン効果、パウリ常磁性効果）によって、クーパー対の形成は阻害される。ここでは、ゼーマン効果によって決まる超伝導状態の臨界磁場を考える。実際には、超伝導状態の臨界磁場は、多くの場合、軌道効果による対破壊効果で決まっている。本研究では、単原子層膜に対し平行磁場を印加した場合を中心に考えるため、軌道効果は無視できるものとする。

ゼーマン効果による超伝導状態の臨界磁場は、常伝導状態と超伝導状態の自由エネルギーを比較することで求められる。絶対零度での、常伝導状態のスピン帯磁率を  $\chi_{\text{Normal}}$ 、超伝導状態のスピン帯磁率を  $\chi_{\text{SC}}$ 、常伝導状態の状態密度を  $N(0)$  とすると、臨界磁場  $H_c$  は、常伝導状態と超伝導状態の自由エネルギーの差

$$F_{\text{Normal}} - F_{\text{SC}} = -\frac{1}{2}\chi_{\text{Normal}}H^2 - \left(-\frac{1}{2}N(0)\Delta_0^2 - \frac{1}{2}\chi_{\text{SC}}H^2\right) \quad (1.4)$$

が0になるところで決まり、

$$H_c = \Delta_0 \sqrt{N(0)/(\chi_{\text{Normal}} - \chi_{\text{SC}})} \quad (1.5)$$

となる。

図 1.10 に、等方的なフェルミ面を持つ2次元系で、Rashba スピン分裂した系と分裂していない系に対し、平行磁場を印加した場合のフェルミ面の形状とスピン分布の変化の様子を示す。空間反転対称性を有する場合には、ゼーマン効果によってスピン縮退が解けてバンドが2つに分裂する。この場合は、クーパー対を形成するはずの2つの電子が同一のスピンを持つことになり、クーパー対を組めない。そのため、超伝導状態のスピン帯磁率  $\chi_{\text{SC}}$  は0である。この時の臨界磁場をパウリ限界という。一方で、空間反転対称性が破れた系の場合、平行磁場を印加すると、Rashba スピン分裂したフェルミ面が+バンドと-バンドでそれぞれ逆方向に動く。この場合、超伝導状態でも外部磁場の方向に磁化を持つことができ、 $\chi_{\text{SC}} \approx \chi_{\text{Normal}}$  である。そのため、臨界磁場は非常に大きくなり得る。このような相は、次節で説明するように、超伝導オーダーパラメータが周期的になるため、ストライプ相と呼ぶ。



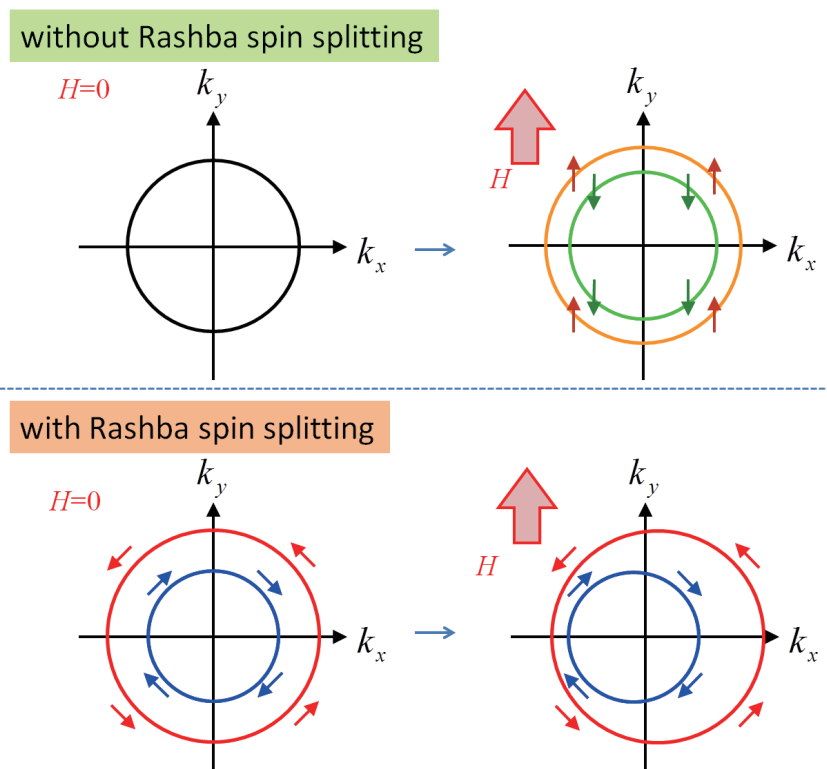


図 1.10: 等方的なフェルミ面を持つ 2 次元系でのフェルミ面の形状とスピン分布の変化の様子。(上図)Rashba スピン分裂がない場合。(下図)Rashba スピン分裂した場合。図中の矢印はスピンの向きを示す。

### 1.4.3 ストライプ相

ストライプ相では、平行磁場を  $x$  軸方向に印加した場合、分裂したフェルミ面がそれぞれ  $y$  軸の逆方向に、 $q_s/2 = \mu_B H_{\parallel} / v_F$  ずつ動く。ここで、 $v_F$  はフェルミ速度、 $\mu_B$  はボーア磁子 ( $\mu_B = e\hbar/2m_e = 9.274 \times 10^{-24} \text{ J/T} = 5.788 \times 10^{-5} \text{ eV/T}$ ) である。この相では、Fulde-Ferrel-Larkin-Ovchinnikov (FFLO or LOFF) 状態 [43, 44] のように、超伝導オーダーパラメータの位相が  $\cos(q_s y)$  のように空間変調する。図 1.13 にストライプ相のフェルミ面を示す。

ストライプ相の臨界磁場は、文献 [45] によれば、Rashba スピン分裂が超伝導エネルギーギャップよりずっと大きい ( $\Delta_R \gg \Delta_0$ ) 場合、

$$H_c = \frac{1}{\mu_B} \sqrt{\Delta_0 \Delta_R} = \frac{1}{\mu_B} \sqrt{\frac{\pi k_B T_{c0} \Delta_R}{e^\gamma}} \quad (1.6)$$

で与えられる。ここで、 $\gamma$  は Euler 定数である [式 (B.3) 参照]。磁場中での超伝導転移温度  $T_c$  は磁場が弱い場合では、

$$T_c = T_{c0} - \frac{7\zeta(3)}{8\pi^2 k_B^2 T_{c0}} (\mu_B H_{\parallel})^2 \quad (1.7)$$

で与えられている。

図 1.11 にストライプ相が出現する場合の超伝導の相図を示す。図 1.11 では単位系は、 $T_c \rightarrow T_c/T_{c0}$ 、 $B \rightarrow \mu_B H/k_B T_{c0}$ 、 $h_{SO} \rightarrow \Delta_R/2k_B T_{c0}$  に直せばよい。Rashba スピン分裂がない場合、BCS 型に一致する。Rashba スピン分裂が大きくなるにつれ、臨界磁場も増大していく。

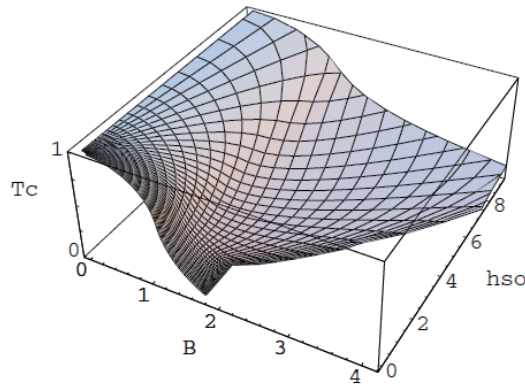


図 1.11: ストライプ相が出現する場合の超伝導の相図 [45]

### 1.4.4 ヘリカル相

ストライプ相は、クリーンな系でしか現れない。これは、乱れが強くなり電子の散乱が大きくなると + バンドから - バンド、 - バンドから + バンドといった異なるバンドへの散乱が生じ、 + バンドと - バンドがそれぞれ独立でいられなくなるからだと考えられる。乱れの強い系では、代わりにヘリカル相と呼ばれる相が出現する [46, 47]。この相では、平行磁場を  $x$  軸方向に印加した場合、分裂したフェルミ面が  $y$  軸の正の向きににわずかに  $q_h = \mu_B H_{\parallel} \Delta_R / v_F \epsilon_F$  だけ動く。ここで、 $\epsilon_F$  はフェルミエネルギーである。ヘリカル相では、超伝導オーダーパラメータの位相は、 $\exp(iq_h y)$  のように空間変調する。図 1.14 にヘリカル相のフェルミ面を示す。

ヘリカル相の臨界磁場は、文献 [46, 47] によれば、Rashba スピン分裂が非常に大きい ( $\Delta_R \gg \hbar\tau^{-1}$ ) とし、

$$H_c = \frac{1}{\mu_B} \sqrt{\frac{\pi \hbar k_B T_{c0}}{4e^2 \tau}} \quad (1.8)$$

で与えられる。

図 1.12 に不純物散乱がある場合の空間反転対称性の破れた 2 次元超伝導の相図を示す。図中の値は、超伝導エネルギーギャップに対する散乱確率の比  $\hbar\tau^{-1}/2k_B T_{c0}$  である。赤い線は散乱が無い場合 ( $\hbar\tau^{-1}/2k_B T_{c0} = 0$ ) の線である。この場合、弱磁場では BCS 相を、強磁場ではストライプ相を示し、 $\times$  印付近にヘリカル相が現れる。散乱が小さいとヘリカル相の部分は少ないが、散乱が大きくなっていくと、ヘリカル相の部分も大きくなっていき、 $\hbar\tau^{-1}/2k_B T_{c0}$  が 7.7 (図 1.12 中では値が間違っており、4.5 の線が本当は 7.7 である) を超えると、ヘリカル相だけになる。

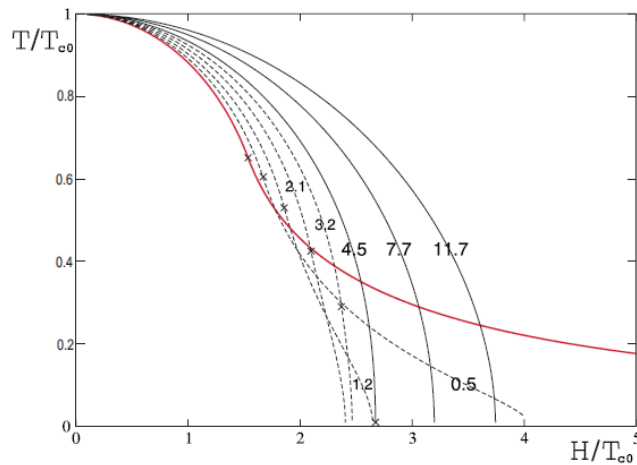


図 1.12: 不純物散乱がある場合の空間反転対称性の破れた 2 次元超伝導の相図 [47]

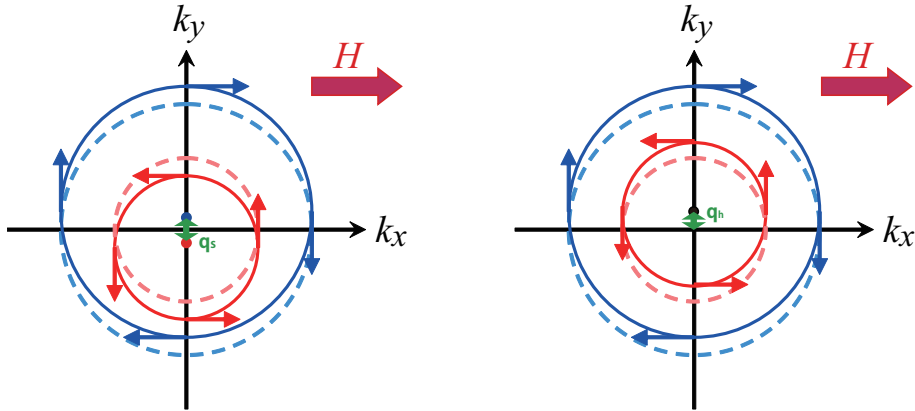


図 1.13: ストライプ相のフェルミ面 図 1.14: ヘリカル相のフェルミ面

## 1.5 本研究の目的

本研究は、空間反転対称性の破れた2次元超伝導のスピン状態を調べることを目的とした。

筆者は、低温真空中で GaAs 単結晶を劈開し、その表面に形成した Bi 超薄膜で超伝導を観測した [48]。低温真空中で劈開に成功すれば、原子レベルでフラットな清浄表面が得られる。基板の凹凸をなくすことで、Pb と In では、単原子層に相当する薄膜でも超伝導が観測できた。

絶縁体基板上的単原子層は、運動の自由度を一つ失うため、完全な2次元系として扱える。さらに、下は基板で、上は真空中で、空間反転対称性が破れており、スピン軌道相互作用の強い Pb 単原子層ならば、強い Rashba スピン分裂が期待できる。単原子層の面内方向に磁場を印加すれば、軌道効果を抑えることができ、スピン状態を調べることができる。Pb 単原子層膜において、超伝導転移温度の変化量の平行磁場依存性を詳細に測定した。比較として、スピン軌道相互作用が Pb より弱い In 単原子層膜での超伝導においても測定した。

## 第2章 実験方法

本研究は、低温・真空中で GaAs 単結晶を劈開した表面に金属を蒸着するという独自の手法を用いた。これには、筆者の研究室で近年研究されてきた InAs[49–51] や InSb[52] の劈開表面に誘起された表面反転層 2 次元電子系の電気伝導測定の手法を応用した。本章では、その手法の詳細を解説する。

### 2.1 劈開機構を備えた $^3\text{He}$ 蒸発冷却冷凍機

GaAs 基板を低温・高真空の条件下で劈開し、その場で金属を蒸着し、電気伝導測定をおこなうための冷凍機の概略について述べる。

本研究では強磁場を加えるため、冷凍機の径は 2 インチの超伝導マグネットに導入できるよう直径 5cm 程度に制限される。ここに GaAs 基板を固定する回転台、電気伝導測定のための導線、回転機構のための動力線、蒸着装置を納める必要がある。さらに試料を液体  $^4\text{He}$  温度以下まで冷却するための機構も必要である。

まず、冷却機構について述べる。本冷凍機は、 $^3\text{He}$  ポット内に  $^3\text{He}$  を液化し、それを減圧することで、最低温度として 0.5K まで到達できる。 $^3\text{He}$  ポットと試料回転部の間には、厚さ 0.1mm、幅 3mm、長さ 50mm 程度のアニールされた銀フォイルが渡され、熱伝導を確保している。 $^3\text{He}$  が流れるステンレスパイプを囲うように 1K ポットが設置されている。ステンレスパイプ内には、冷却速度を上げるために対流用のテフロンチューブが設置されている。

冷却時には断熱真空管、 $^3\text{He}$  ポット、1K ポット内を真空引きする。 $^4\text{He}$  取り込み口が氷などで詰まるのを防ぐために、1K ポットは真空引きの後に、 $^4\text{He}$  ポンベとつなぎ大気圧以上に保ちニードルバルブを開放する。冷凍機を液体  $^4\text{He}$  中に入れると、断熱真空管の壁面が残留ガスを吸着するため、高真空の空間が実現される。この段階では、 $^3\text{He}$  ポットと 1K ポットは熱的に浮いている。 $^3\text{He}$  ポット内に  $^3\text{He}$  を満たし、1K ポットを働かせると、 $^3\text{He}$  を液化できる。液体  $^4\text{He}$  の取り込み口はニードルバルブになっており、1K ポットへの取り込み流量を調節することが可能である。

回転機構は、回転時の機械的なガタや発熱を最小限に抑えるため、歯車等は使用せずに冷凍機上部から差し込んだネジの先端から伸びたステンレス線と、回転台の外郭部分に固定されたリン青銅のパネの引っ張り合いにより回転するという構造になっている。回転台には、GaAs 基板のほかに、 $\text{RuO}_2$  温度計、ホール素子、

ヒーターとして  $1\text{k}\Omega$  の抵抗素子を取り付けられている。支持棒にアニールした銅箔をはり、回転台を回転させ、GaAs 結晶の先端をそれに押し付けることで、劈開する。回転台の角度は、ホール素子の抵抗から見積もることができる。

蒸着装置は、4K 部分の真鍮フランジに銅のポールを立て、そこに IC ソケットを固定し、フィラメントを取り付けたものである。このフィラメントは 6 個まで同時に導入でき、独立に通電可能である。フィラメントの詳細は後述する。

本冷凍機は、液体  $^4\text{He}$  で直接冷却されるフランジと、 $^3\text{He}$  蒸発冷却によって冷却される回転台部分が真鍮製で、1K ポット及び蒸着装置を支える棒が銅製、その他の部分は全てステンレス製という設計である。図 2.1 に、回転台による劈開機構を備えた  $^3\text{He}$  蒸発冷却冷凍機の模式図を示す。

### $^3\text{He}$ 減圧装置

$^3\text{He}$  ガスは大変貴重であるため、装置内の気密性を保たねばならない。本研究における  $^3\text{He}$  減圧装置としては、研究室内の超伝導マグネットや測定装置の使用状況に応じて、ガスハンドリングシステムまたは吸着ポンプを用いた。両者による最低到達温度の違いは見られなかった。ガスハンドリングシステムの概略を図 2.2 に示す。ターボ分子ポンプにより排気能力を上げている。バルブ操作のため簡単に冷却できる。一方、吸着ポンプは多孔質の吸着剤を冷却し、気体分子を物理吸着させて排気するものである。 $^3\text{He}$  ガスには、Cryogenic Limited 製のディップスティックのタンク内のものを用いた。図 2.3 に吸着ポンプの概念図を示す。真鍮とステンレスの接合部には銀蝋を用いて、気密性が確保されている。吸着剤として孔径  $10\text{ \AA}$  のモレキュラーシーブス (Wako 13X 1/16) が、吸着ポンプの高さの 6 割程度まで入っている。これを液体  $^4\text{He}$  で冷却することで  $^3\text{He}$  ガスを減圧する。

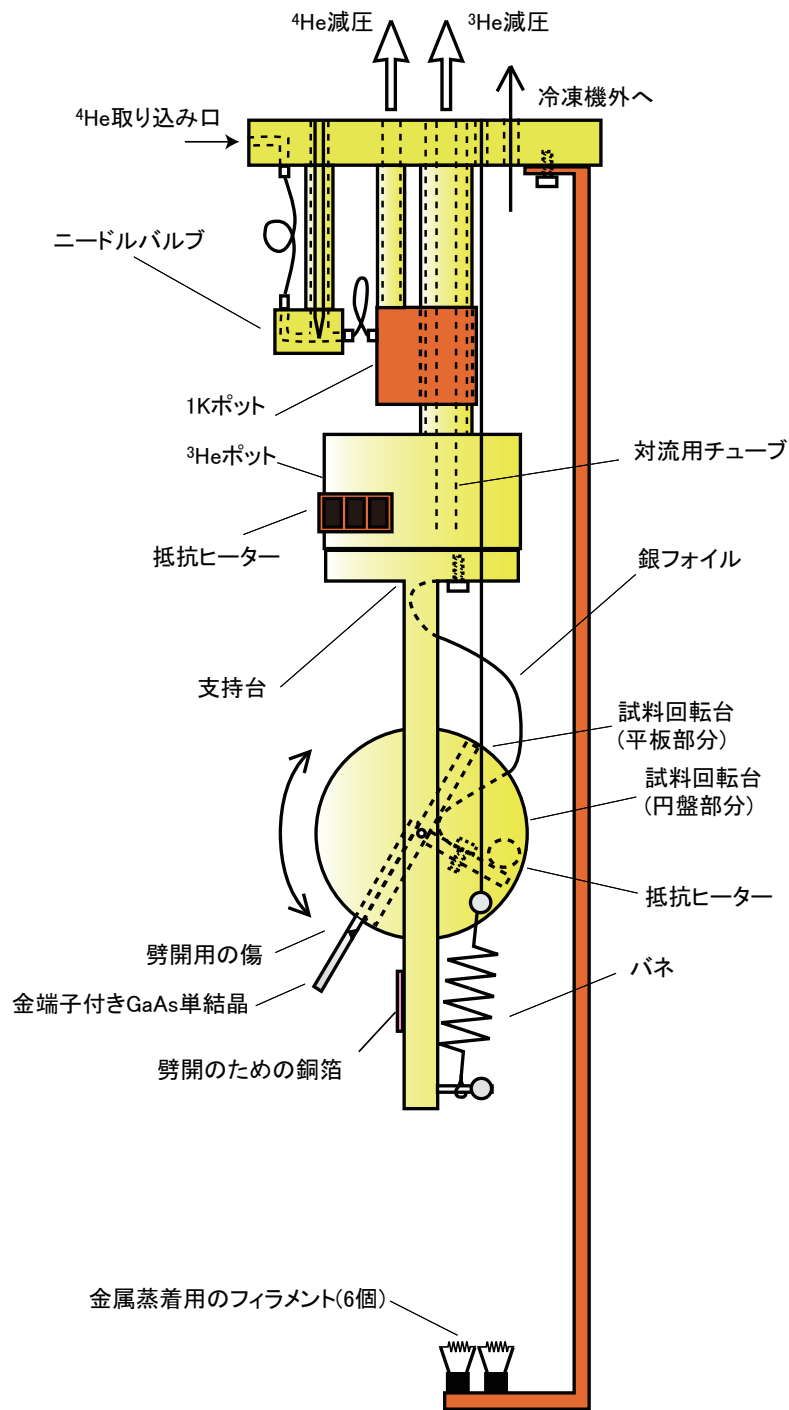


図 2.1: 回転台による劈開機構を備えた  $^3\text{He}$  蒸発冷却冷凍機の模式図 ([53] より改編)。試料回転台の平板部分には、試料の他にホール素子、ヒーター用抵抗、 $\text{RuO}_2$  抵抗温度計が取り付けられている。冷却時には、これらを覆うように断熱真空管をかぶせる。

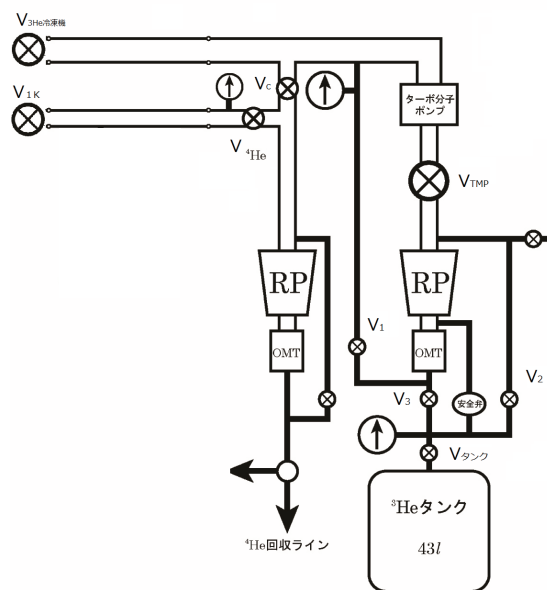


図 2.2: ガスハンドリングシステムの概略図 ([53] より改編)

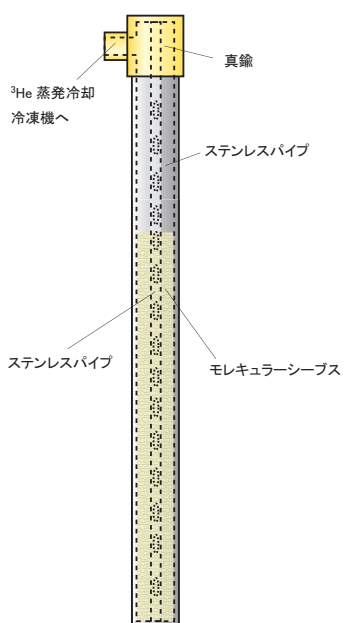


図 2.3: 吸着ポンプの概念図 ([53] より改編)



## 2.2 蒸着用フィラメント

蒸着には、市販の豆電球 35V 0.11A (T10 E10 C-2F) 中のタングステンフィラメントに室温で一度金属を付けて、低温真空中で通電し加熱することで、その金属を飛ばすという手法を用いた。6 個のフィラメントを用意し、それらを一つずつ GaAs に向けて飛ばしきることで、段階的に蒸着量を変化させた。フィラメントは、IC ソケットに挿せるように PCB コネクタにはんだ付けしてある。IC ソケットには R800-10-064-10-001 を、フィラメント側の PCB コネクタには R311-83-164 を用いた。

蒸着量は、金属を付けたフィラメントを室温で、クライオスタットと同じジオメトリで水晶振動子に向けて蒸着させることにより較正した。水晶振動子の膜厚計測には、バルクの値の体積密度を用いた。フィラメント上の膜厚に対して、基板への蒸着量は良好な線型性が得られる。図 2.4 に本研究での較正直線を示す。本研究のセットアップでは、水晶振動子を用いて 210 mm 離れた 6 つのフィラメントに  $1\ \mu\text{m}$  蒸着し、それを 28 mm 離れた GaAs 劈開面に向けて飛ばし切ると、 $5.5\ \text{\AA}$  蒸着される。蒸着量の較正には、約 5 % の誤差がある。吸着係数は金属を蒸着する場合、室温でもほとんど 1 である [54]。

なお、室温での蒸着源としては、純度 99.999% 以上のものを用いた。

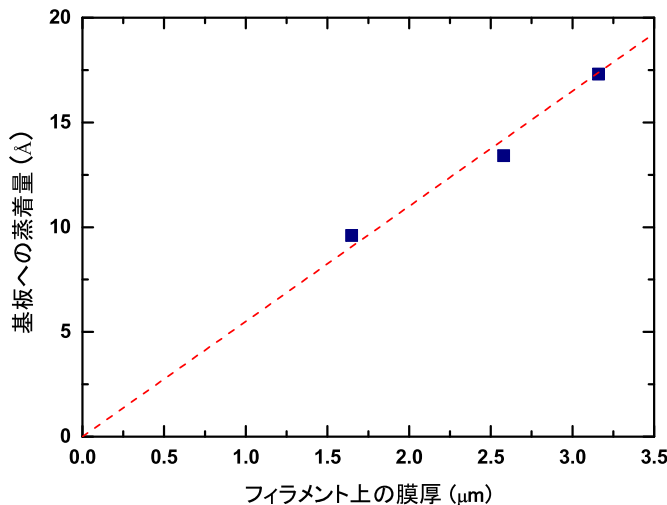


図 2.4: フィラメント上の膜厚と基板への蒸着量の関係

## 2.3 GaAs 基板作製

低温・真空中で劈開した表面に蒸着した金属薄膜の電気伝導を測定するには、基板が劈開性を持つことと絶縁体であることが要求される。

筆者は、GaAs 単結晶に金電極を配置した基板で、蒸着した金属薄膜の電気伝導を測定できることを実証した [48]。GaAs の場合、劈開が成功した清浄表面では、電気的中性が保たれ、表面準位がバンドギャップ中には存在しない。

GaAs 基板は、図 2.5 のように、劈開表面がホールバー型の電極配置になるように作製した。両側に電極をつけるのは、低温での劈開が成功しているか判断するためのものである。端子間の抵抗の均一性を調べることで、金属薄膜が均一に付いているか、電流が均等に流れているか、劈開表面のステップによって抵抗が出ていないかが分かる。なお、GaAs ウェハには DOWA エレクトロニクス株式会社のノンドープの半絶縁性 GaAsLEC 基板を用いた。

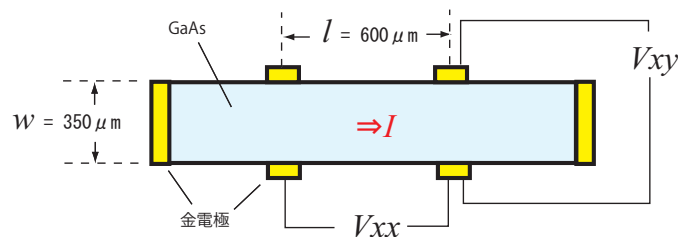


図 2.5: 上から見た GaAs 劈開表面の電極配置の概念図

### 作製手順

1. 劈開容易面に沿って、ウェハから試料を 4 mm × 15 mm 程度の大きさに切り出す。
2. GaAs をアセトン、エタノール、蒸留水の順番に 5 分間ずつ超音波洗浄する。
3. GaAs 表面に高耐熱フォトリソレジスト S9912G を塗布し、スピンドーターで 4000 rpm、30 秒回転させ、レジストの厚みを均一にし、110 °C のホットプレート上で 1 分程バークする。
4. マスクパターンを用いて、表面の電極となる部分にだけ紫外線を 90 秒露光する。裏面をさらに全面露光する。裏面を露光するのは、側面の電流端子になる部分のレジストを露光させるためである。
5. GaAs を 30 秒ほど現像液 (CD-26 DEVELOPER) につけ、紫外線を露光した部分のレジストを落とした後、蒸留水で洗う。

6. GaAs 側面の電極を付けたくない上下の部分にマイクロスワブ等を用いてレジストを塗り、バークする。側面にレジストが残っている場合があるので、ルビセルスティック等できれいに拭き取る。
7. スパッタリング装置を用いて金端子をつける。  
これで片面は完成である。
8. 洗浄から端子付けまでを、反対面に対しても同様に行う。
9. 試料をアセトンに数時間以上つけておき、リフトオフする。  
以上のプロセスで GaAs の加工自体は終了である。次に、GaAs をガラスエポキシ基板に貼る作業を行う。
10. 裏面の電圧端子に  $\phi 0.03$  mm の白金線を PS-806 高温銀ペーストを用いて付ける。銀ペーストが乾いたら、GE7031 ワニスでガラスエポキシ基板に貼り付ける。完全に凝固するまでワニスを乾かす。
11. 表面と側面にも白金線を取り付け、銀ペーストを十分に乾かして、はんだ付けでガラスエポキシ基板の端子と導通をとる。
12. 最後に、劈開用の傷を入れれば完成である。

実際の GaAs 基板は図 2.6 のようになる。

こうして作製した GaAs 基板の端子間の抵抗は、光の当たり方にもよるが、室温では  $1\text{ M}\Omega$  弱から 10 数  $\text{M}\Omega$  である。低温 (4K 以下) では  $100\text{ M}\Omega$  以上である。

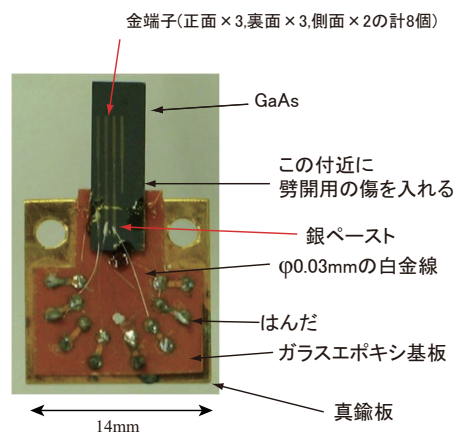


図 2.6: 実際の GaAs 基板の写真

## 2.4 測定回路

図 2.7 に測定回路を示す。電気抵抗の測定は、(株)nf 回路設計ブロックの LI5640 デジタルロックインアンプ、あるいは、Keithley Instruments Inc. 6221 DC and AC Current Source と 2182A Nanovoltmeter の組み合わせを用いておこなった。試料の発熱を防ぐため 100 nA 以下の低電流で測定した。RuO<sub>2</sub> 温度計の抵抗測定及び温度の PID 制御は、Lake Shore Cryotronics, Inc. の Model 370 レジスタンスブリッジを用いて行った。磁場の大きさは、超伝導マグネットに流す電流値から求めた。ホール素子の抵抗測定には、試料と同じデジタルロックインアンプを用いた。測定値は、GP-IB インターフェースを介して PC に取り込んだ。

温度依存性の測定時には、温度を 1 点 1 点固定し、試料と温度計の温度が平衡になった状態で測定した。

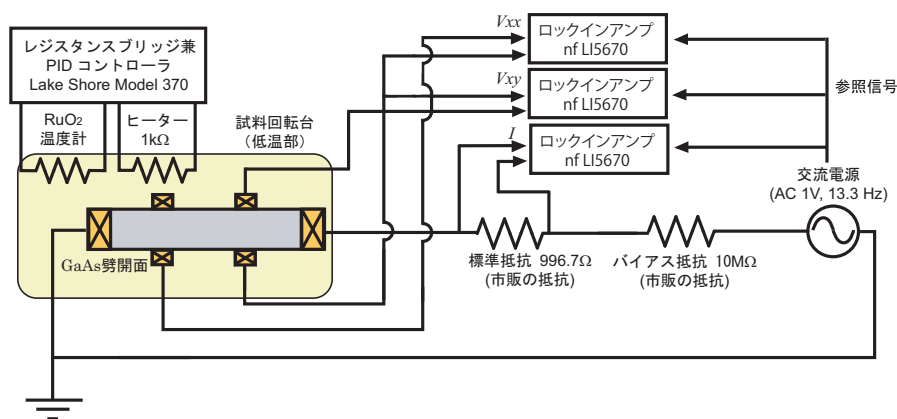


図 2.7: 測定回路

## 2.5 抵抗温度計とその磁場依存性

温度計には、磁場に対する変化量が小さく、磁場の角度にも依存せず、磁場に対して単調に振る舞う RuO<sub>2</sub> 温度計 (Scientific Instrument Inc. Model:RO-600) を用いた。Scientific Instrument Inc. によれば、この温度計は、0.036 K から 4.2 K の範囲で 16 T までの磁場中での温度の値を、簡単に較正できる [55]。磁場の影響を考慮せず温度に較正した、見かけの温度を  $T(B)$ 、本来の温度を  $T(0)$  とすると、 $(T(B) - T(0))/T(B)$  が、温度の誤差が  $\pm 1.6\%$  以内で、直線的になる。この特性は universal correction と呼ばれている。そのため、磁場中での温度計としてよく用いられる。

本研究では、磁場を印加した状態での温度依存性を精密に測定する必要があったため、universal correction より小さい誤差が要求された。そのため、飽和蒸気圧

を一定にした状態で磁場を印加し、温度計の抵抗値を精密に測定した。測定には、劈開機構を備えた  $^3\text{He}$  蒸発冷却冷凍機ではなく、温度計が液体  $^3\text{He}$  あるいは液体  $^4\text{He}$  につかるような冷凍機を用いた。2K 以下では  $^3\text{He}$  冷凍機、3.24 K では  $^4\text{He}$  冷凍機を用いた。4.23 K は液体  $^4\text{He}$  容器に入れ、2.16 K はさらにラムダプレートを作動させて測定した。各冷却手法で液体  $^3\text{He}$  あるいは  $^4\text{He}$  の飽和蒸気圧を一定にしながら、温度計の抵抗の磁場依存性を測定した。筆者が測定した結果を図 2.8 に示す。また、universal correction との比較を図 2.9 に示す。universal correction の誤差の範囲内で確かに一致しているが、より小さい誤差で較正できるようになった。

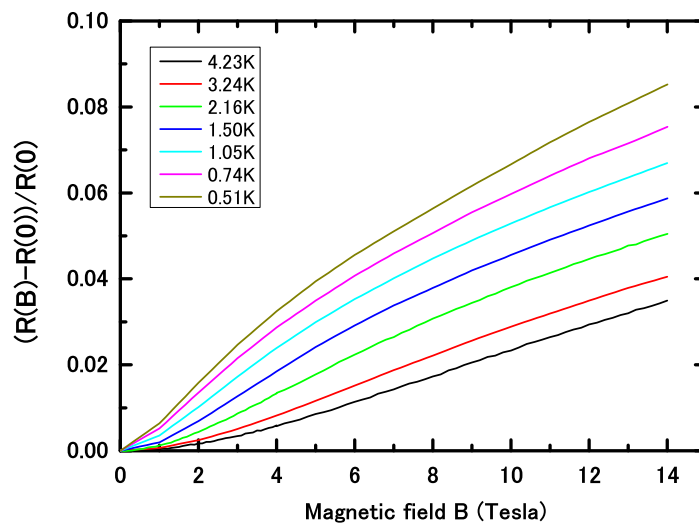


図 2.8:  $\text{RuO}_2$  温度計の磁場依存性

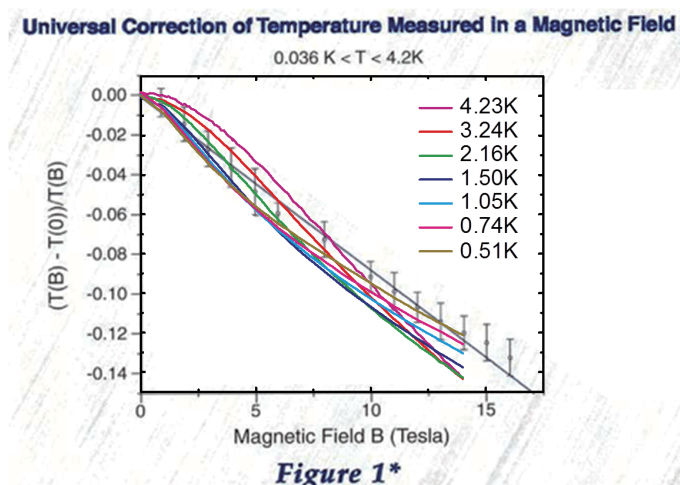


図 2.9:  $\text{RuO}_2$  温度計の温度較正 (測定結果と universal correction[55] との比較)

## 第3章 実験結果及び考察

### 3.1 超伝導転移温度と常伝導状態の面抵抗の膜厚依存性

図 3.1 に、GaAs 劈開表面に蒸着した Pb 超薄膜の面抵抗の温度依存性を示す。膜厚 1.7 Å では、温度が下がるにつれ抵抗が上昇する絶縁体的振る舞いが見られた。膜厚 2.2 Å 以上の薄膜では、超伝導状態を観測した。膜厚 1.7 Å の常伝導状態での面抵抗  $R_N$  は 6.13 kΩ/□ であった。絶縁体的振る舞いから超伝導状態を示すようになる境となる抵抗は、理論的には  $h/4e^2 = 6.45$  kΩ である [56]。本研究では、それより小さい値で、絶縁体的振る舞いから超伝導状態に変化した。超伝導転移温度  $T_c$  はそれぞれ 0.90 K、2.1 K、3.0 K であった。なお、 $T_c$  は面抵抗が  $R_N$  の半分になる温度として定めた。 $R_N$  はそれぞれ 4.35 kΩ/□、2.18 kΩ/□、1.17 kΩ/□ であった。

図 3.2 に、GaAs 劈開表面に蒸着した Bi 超薄膜の面抵抗の温度依存性を示す。超伝導状態を観測した膜厚は、7.7 Å、10 Å、13 Å、15 Å である。 $T_c$  はそれぞれ 2.1 K、3.0 K、3.7 K、4.1 K であった。 $R_N$  はそれぞれ 1.77 kΩ/□、1.13 kΩ/□、803 Ω/□、646 Ω/□ であった。膜厚が 7.7 Å より薄い場合は 4 端子電気伝導測定ができず、絶縁体的振る舞いは観測できなかった。

同様に、In 超薄膜での面抵抗の温度依存性を図 3.3 に示す。膜厚 2.2 Å では、 $R_N$  が 4.65 kΩ/□ であり、最低到達温度でも抵抗が下がり始めるところまでしか測定できなかった。もっと温度を下げるのができたならば超伝導状態を観測できたかもしれない。膜厚 2.7 Å と 3.3 Å では超伝導状態を観測した。 $T_c$  は 1.7 K、2.4 K であった。 $R_N$  は 1.49 kΩ/□、965 Ω/□ であった。

図 3.4 に、Pb と Bi 超薄膜での、膜厚と超伝導転移温度  $T_c$ 、膜厚と常伝導状態の面抵抗  $R_N$  の関係を示す。赤い記号が我々のデータである。同一の GaAs 基板で得られた結果は、同じシンボルにしてある。比較として、Goldman らの文献 [3] のデータを黒点で示す。文献 [3] では、研磨されたガラス基板上に、初めに Ge を 6 Å を蒸着した上に、Pb や Bi を蒸着している。文献 [3] でも数原子層で超伝導が観測されているが、本研究では、より薄い膜厚で超伝導が観測できた。これは、清浄な劈開表面では、原子レベルでフラットな面が得られ、彼らの実験よりも基板の凹凸が少ないからだと考えられる。

Pb 薄膜の膜厚 2.2 Å を面密度 (単位面積当たりの原子密度) に換算すると、 $7.2$  nm<sup>-2</sup> に相当する。一方、劈開面である GaAs (110) 面の表面原子密度を考えると、 $8.9$  nm<sup>-2</sup> である。また、バルクの Pb (111) 面の面密度は  $9.4$  nm<sup>-2</sup> である。また、In の原子密度の 3 分の 2 乗は、 $11.4$  nm<sup>-2</sup> になる。また、STS による Si (111) 上の金属単原

子層の超伝導の報告 [16] によれば、SIC Pb 相は  $10.44 \text{ nm}^{-2}$  であり、 $\sqrt{7} \times \sqrt{3}$  Pb 相と  $\sqrt{7} \times \sqrt{3}$  In 相では、 $9.40 \text{ nm}^{-2}$  である。 $7.2 \text{ nm}^{-2}$  はいずれの面密度より小さく、単原子層以下に相当する薄膜であると期待される。

Pb、Bi、In の他にも、Sn、Zn、Al の超薄膜で超伝導が観測された [57]。同じ GaAs 劈開表面に形成した超薄膜でも、超伝導状態になる膜厚は物質によって異なる。そもそも電気伝導測定が可能になる膜厚も物質によって異なっている。それは接触抵抗の問題かもしれないが、電気伝導が取れ始めた薄膜の常伝導状態の抵抗自体も大きいいため、単純に薄膜の抵抗の問題と考えられる。先行研究でも Pb や In 以外では単原子層の超伝導は観測されておらず、本研究の系でも単原子層の超伝導が観測されたのは、Pb と In だけである。同じ低温蒸着という手法で形成した薄膜でも、原子がかたまって粒になりやすいか否かなど、取りやすい構造が異なるかもしれない。また、均一に電流が流れているかや、パーコレーション・ネットワークのように電流が流れるかなど電流の流れ方にも違いがあるかもしれない。薄膜の構造も、それと電気伝導度の関係も分からないため、現状では詳しいことは分からない。

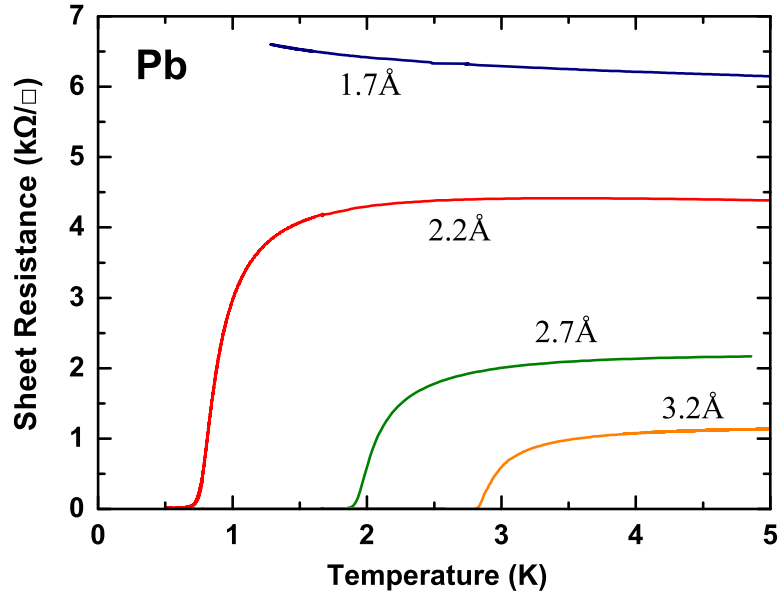


図 3.1: GaAs 劈開表面に蒸着した Pb 超薄膜の面抵抗の温度依存性

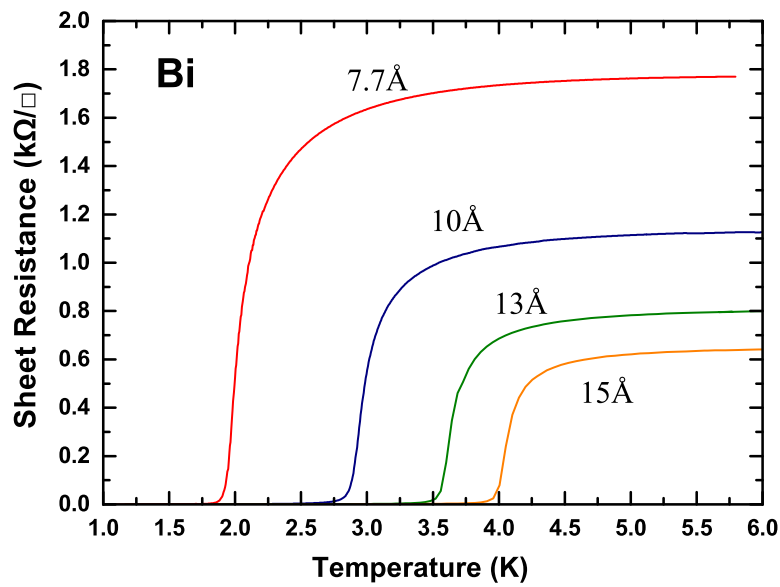


図 3.2: GaAs 劈開表面に蒸着した Bi 超薄膜の面抵抗の温度依存性



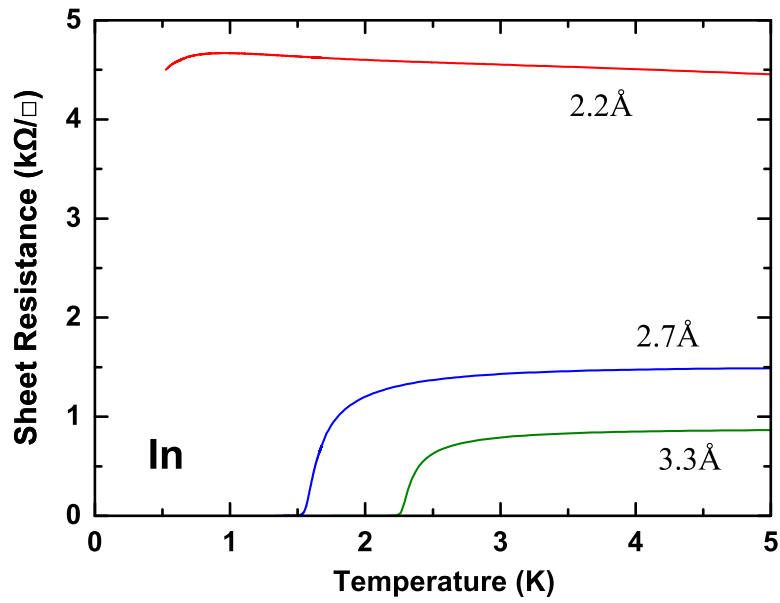


図 3.3: GaAs 劈開表面に蒸着した In 超薄膜の面抵抗の温度依存性

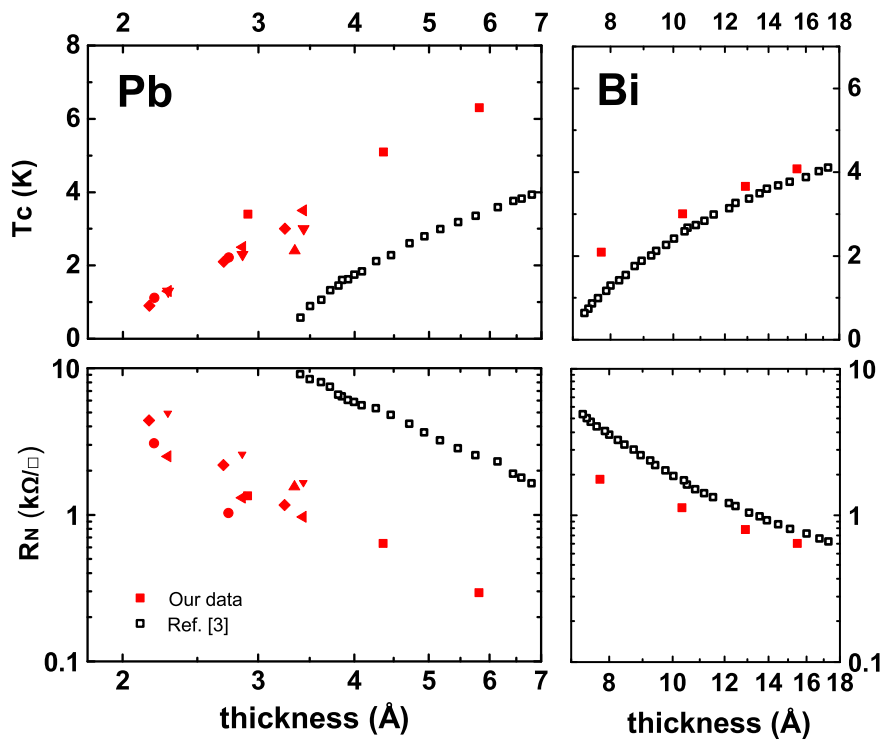


図 3.4: 膜厚と超伝導転移温度  $T_c$ 、常伝導状態での面抵抗  $R_N$  の関係

## 3.2 Pb 単原子層膜での超伝導の平行磁場依存性

### 3.2.1 平行磁場を印加した状態での面抵抗の温度依存性

図 3.5 は、面密度  $7.2 \text{ nm}^{-2}$  の Pb 単原子層膜でのゼロ磁場の場合と平行磁場 8.5 T を印加した場合の面抵抗の温度依存性である。ゼロ磁場での超伝導転移温度  $T_{c0} = 0.90 \text{ K}$ 、 $R_N = 4.35 \text{ k}\Omega/\square$  である。この薄膜では、超伝導転移温度は、平行方向に 8.5 T の磁場を印加しても、ほとんど変化しなかった。

さらに、図 3.6 は、面密度  $9.4 \text{ nm}^{-2}$  と  $11.3 \text{ nm}^{-2}$  の Pb 単原子層膜でのゼロ磁場の場合と平行磁場 13.7 T を印加した場合の面抵抗の温度依存性である。面密度  $9.4 \text{ nm}^{-2}$  の単原子層膜では、 $T_{c0} = 2.6 \text{ K}$ 、 $R_N = 1.31 \text{ k}\Omega/\square$  である。面密度  $11.3 \text{ nm}^{-2}$  の単原子層膜では、 $T_{c0} = 3.3 \text{ K}$ 、 $R_N = 967 \Omega/\square$  である。これらの単原子層でも、平行磁場 14 T を印加しても超伝導転移温度は 2% ほどしか減少しなかった。

### 3.2.2 平行磁場に対する超伝導転移温度の変化量

面密度  $9.4 \text{ nm}^{-2}$  と  $11.3 \text{ nm}^{-2}$  の Pb 単原子層膜の超伝導転移温度の変化量の平行磁場依存性を図 3.7 を示す。超伝導転移温度は平行磁場に対して 2 乗に比例してわずかに減少する。

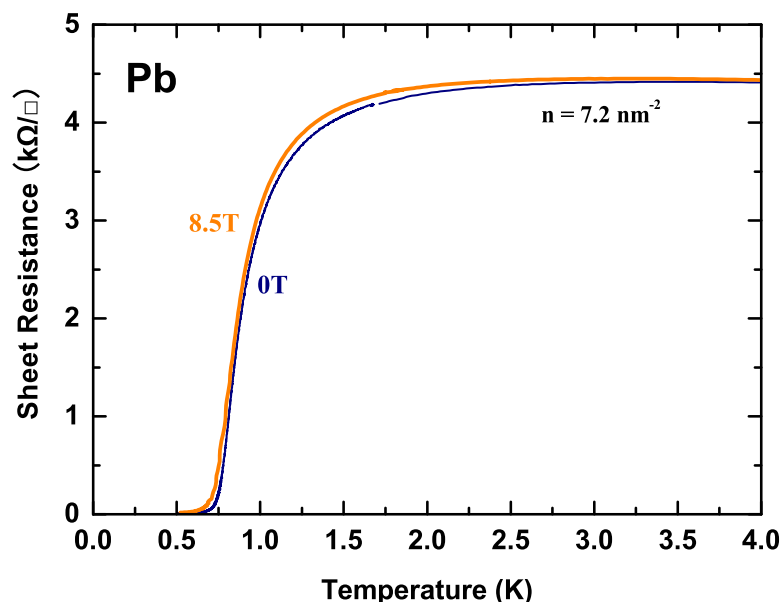


図 3.5: 面密度  $7.2 \text{ nm}^{-2}$  の Pb 単原子層膜でのゼロ磁場の場合と平行磁場 8.5 T を印加した場合の面抵抗の温度依存性

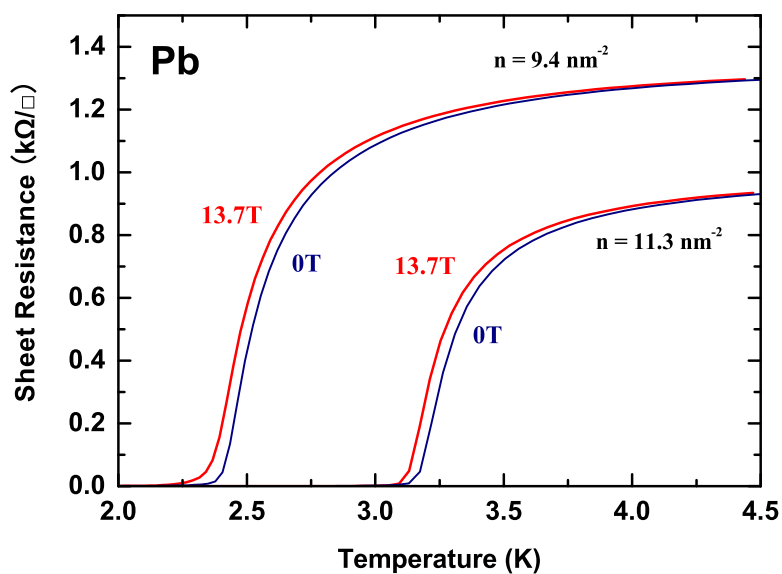


図 3.6: 面密度  $9.4 \text{ nm}^{-2}$  と  $11.3 \text{ nm}^{-2}$  の Pb 単原子層膜でのゼロ磁場の場合と平行磁場 13.7 T を印加した場合の面抵抗の温度依存性

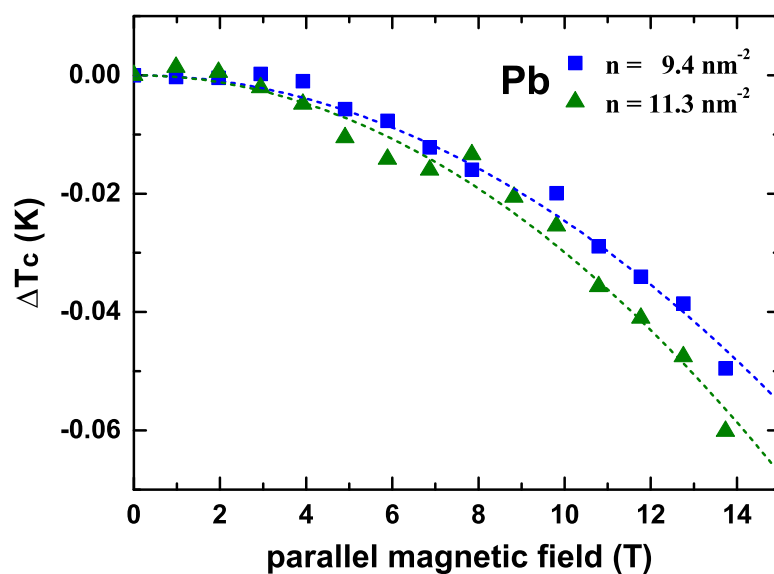


図 3.7: 面密度  $9.4 \text{ nm}^{-2}$  と  $11.3 \text{ nm}^{-2}$  の Pb 単原子層膜の平行磁場に対する超伝導転移温度の変化量

### 3.2.3 垂直磁場を印加した状態での面抵抗の温度依存性

図 3.5 は、面密度  $7.2 \text{ nm}^{-2}$  の Pb 単原子層膜のゼロ磁場の場合と垂直方向に 0.10、0.30、0.50、0.80、1.00、3.00、8.50 T の磁場を印加した場合の面抵抗の温度依存性である。平行方向に 8.5 T を印加しても、超伝導転移温度はほとんど変化しなかったのに対し、垂直方向では、わずかな磁場で大きな変化がみられる。垂直方向の臨界磁場  $H_{c2\perp}(0)$  として、超伝導体と絶縁体の境となる磁場値である 0.60 T を用い、臨界磁場の表式 [58]

$$H_{c2\perp}(0) = \frac{\phi_0}{2\pi\xi^2(0)} \quad (3.1)$$

から Ginzburg-Landau コヒーレンス長  $\xi(0)$  を計算すると 23 nm になった。ここで、 $\phi_0$  は磁束量子 ( $\phi_0 = h/2e = 2.07 \times 10^{-15} \text{ Wb}$ ) である。

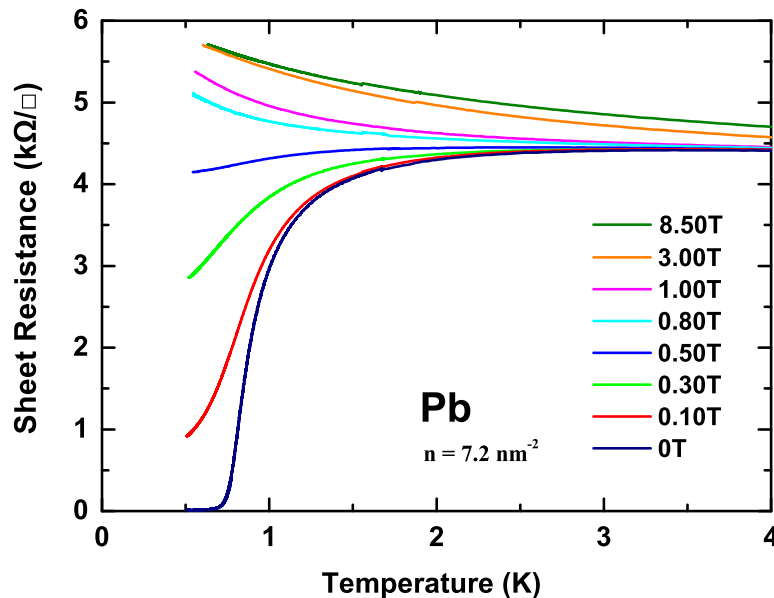


図 3.8: 面密度  $7.2 \text{ nm}^{-2}$  の Pb 単原子層膜のゼロ磁場の場合と垂直磁場を印加した場合の面抵抗の温度依存性

### 3.2.4 面抵抗の垂直磁場依存性

0.51 K での面密度  $7.2 \text{ nm}^{-2}$  の Pb 単原子層膜の面抵抗の垂直磁場依存性を図 3.9 に示す。青線は、試料に対し垂直方向に 0 T から磁場を上昇させた場合の結果である。軌道効果によって 1 T 程の磁場で超伝導は完全に破壊される。それに対し、赤丸は、平行方向に 9 T を印加した状態から、試料台を回転させ、垂直成分を増加させた場合の結果である。両者はほとんど一致している。つまり、この薄膜での

超伝導は、垂直方向の磁場に対しては非常に鋭敏に反応するのに対し、平行方向の磁場に対しては、測定の範囲内ではほとんど影響されなかった。

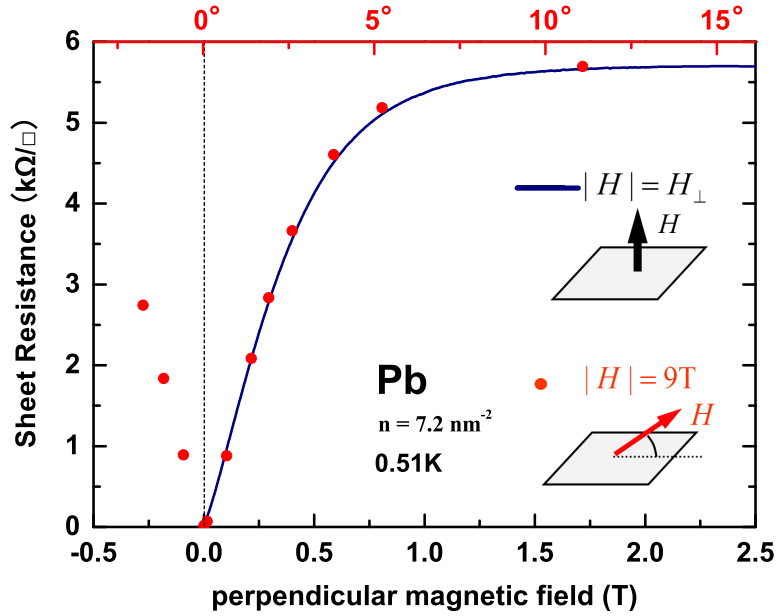


図 3.9: 0.51 K での面密度  $7.2 \text{ nm}^{-2}$  の Pb 単原子層膜の面抵抗の垂直磁場依存性

### 3.2.5 パウリ限界による考察

Pb 単原子層の超伝導は、平行磁場に対してほとんど変化しないことが分かった。

上向きスピンと下向きスピンの電子対からなるスピン一重項の超伝導体 ( $\chi_{\text{SC}} = 0$ ) であれば、外部磁場によって、電子のスピンの向きがそろうことでクーパ対を組めなくなる。このパウリ常磁性効果によって超伝導状態の破壊が起こる磁場はパウリ限界と呼ばれる [59, 60]。パウリ限界  $H_P$  は、絶対零度での、常伝導状態と超伝導状態の自由エネルギーの差

$$F_{\text{Normal}} - F_{\text{SC}} = -\frac{1}{2}\chi_{\text{Normal}}H^2 + \frac{1}{2}N(0)\Delta_0^2 \quad (3.2)$$

$$\propto -(\mu_B H)^2 + \frac{1}{2}\Delta_0^2 \quad (3.3)$$

が 0 になるところで決まり、

$$H_P = \Delta_0 / \sqrt{2}\mu_B \quad (3.4)$$

となる。

弱結合のBCS型超伝導体であれば、 $\Delta_0 = 1.76k_B T_{c0}$  より  $H_P(T) = 1.86T_{c0}(K)$  と求まる。今回の単原子層膜の超伝導では、 $T_c$  が 2.6 K と 3.3 K であり、この値から計算すると  $H_P$  は、4.8 T と 6.1 T である。平行磁場 14 T を印加すれば、超伝導は完全に破壊されるはずであり、パウリ限界とは大きく矛盾する。

実際には、Pb は強結合の超伝導体で  $\Delta_0/k_B T_{c0}$  は、2.15 である。また、乱れの大きい系では、 $\Delta_0/k_B T_c$  の値が通常より大きくなるという報告もある [61]。しかし、 $\Delta_0$  として Pb のバルクの値 1.34 meV の値を用いても、 $H_P$  は 16 T ほどである。実験結果では、約 14 T かけてもほとんど変化せず、やはりパウリ限界では説明できない。

### 3.2.6 スピン軌道散乱による臨界磁場の上昇としての考察

スピン軌道散乱が頻繁に起こると臨界磁場がパウリ限界を超えることは広く知られている [62]。スピン軌道散乱とは、電子の散乱に伴い、電子のスピンが反転する散乱である。

文献 [63, 64] によると、スピン軌道散乱が強い場合を考慮し、軌道効果による寄与を無視した場合、臨界磁場と温度の関係は、

$$\log\left(\frac{T}{T_{c0}}\right) + \psi\left(\frac{1}{2} + \frac{3\tau_{so}(\mu_B H_c)^2}{4\pi\hbar k_B T}\right) - \psi\left(\frac{1}{2}\right) = 0 \quad (3.5)$$

のように与えられる。 $\tau_{so}$  はスピン軌道散乱時間、 $\psi(x)$  は digamma 関数である。これを絶対零度 ( $T \rightarrow 0$ ) のもとで解くと、式 (B.45) より、

$$H_c = \frac{1}{\mu_B} \sqrt{\frac{\pi\hbar k_B T_{c0}}{3e^{\gamma}\tau_{so}}} = 0.602 \sqrt{\frac{\hbar}{\tau_{so}k_B T_{c0}}} H_P \quad (3.6)$$

が得られる。スピン軌道散乱が強い ( $\hbar\tau_{so}^{-1} \gg k_B T_{c0}$ ) 場合、臨界磁場はパウリ限界を超える。

一方で、磁場が小さい ( $T_c \approx T_{c0}$ 、 $H \ll H_c$ ) 場合、式 (B.48) より、

$$\log\left(\frac{T}{T_{c0}}\right) = -\frac{\pi^2}{2} \frac{3\tau_{so}(\mu_B H)^2}{4\pi\hbar k_B T_c} \quad (3.7)$$

が得られる。これを变形し、

$$T_c = T_{c0} - \frac{3\pi\tau_{so}}{8\hbar k_B} (\mu_B H_{\parallel})^2 \quad (3.8)$$

を得る。

Pb 単原子層膜における、常伝導状態の面抵抗  $R_N$  から見積もった散乱時間  $\tau_{RN}$  と図 3.7 中の  $\Delta T_c$  の磁場依存性の実験結果を式 (3.8) にフィットして求めたスピン軌

表 3.1:  $R_N$  から見積もった散乱時間  $\tau_{R_N}$  とスピン軌道散乱時間  $\tau_{so}$

	$n$ [nm <sup>-2</sup> ]	$T_{c0}$ [K]	$R_N$ [ $\Omega/\square$ ]	$\tau_{R_N}$ [fs]	$\tau_{so}$ [fs]	$\tau_{so}^{-1}/\tau_{R_N}^{-1}$
Pb	9.4	2.57	1309	3.1	3.5	0.89
	11.3	3.31	967	3.5	4.3	0.81

道散乱時間  $\tau_{so}$  とその比を表 3.1 に示す。常伝導状態の面抵抗  $R_N$  からの散乱時間の見積もり方は、付録 A 節に詳しく述べる。

スピン軌道散乱が起こる要因としては、磁性不純物による散乱、表面散乱、格子欠陥による散乱が一般的に考えられている。磁性不純物による散乱は、磁性不純物が入っていないので、ここでは考える必要はない。10 nm の Au 薄膜に意図的に Ar イオンで格子欠陥を加えていった系に対し、弱局在効果による磁気抵抗の測定により、表面散乱と格子欠陥による寄与の大きさを見積もった実験がある [65]。それによれば、格子欠陥によってスピン軌道散乱が起こる確率  $\tau_{so}^{-1}/\tau^{-1}$  は、 $4 \times 10^{-4}$  である。表面散乱による  $\tau_{so}^{-1}/\tau^{-1}$  は、 $2 \times 10^{-2}$  である。単原子層膜ならば、 $z$  軸方向に運動の自由度がないため、表面散乱による寄与は無視できるはずである。スピン軌道相互作用の強さは、原子番号の 4 乗に比例する。Au の原子番号は 79 で、Pb の原子番号は 82 であり、その差は小さい。にもかかわらず、GaAs 劈開表面上の Pb 単原子層では、 $\tau_{so}^{-1}/\tau_{R_N}^{-1} \sim 0.8$  であり、Au の実験結果よりずっと大きいスピン軌道散乱が観測された。

### 3.2.7 空間反転対称性の破れた 2 次元超伝導としての考察

GaAs 劈開表面に形成した金属単原子層膜では、下は絶縁体基板で上は真空であり、空間反転対称性が破れている。加えて、2 次元系であるため、Rashba 効果によって、フェルミ面がスピン方向によって分裂していることが期待できる。Rashba スピン分裂したフェルミ面上でクーパー対を組めば、平行磁場を印加すると、超伝導オーダーパラメータが空間変調した相が出現することによって、臨界磁場が巨大になり得る。

#### ストライプ相

1.4.3 節で紹介したように、Rashba スピン分裂が超伝導エネルギーギャップよりずっと大きい ( $\Delta_R \gg \Delta_0$ ) 場合、ストライプ相における臨界磁場は

$$H_c = \frac{1}{\mu_B} \sqrt{\Delta_0 \Delta_R} = \frac{1}{\mu_B} \sqrt{\frac{\pi k_B T_{c0} \Delta_R}{e^\gamma}} \quad (3.9)$$

で与えられ、Rashba スピン分裂の大きさを臨界磁場が決まる。Pb の単原子層と同じオーダーと考えられる  $\Delta_R = 0.1$  eV と  $T_{c0} = 3$  K の値を代入すると、 $H_c \gtrsim 100$  T と非常に大きな値が得られる。

しかし、弱い磁場中での超伝導転移温度は、

$$T_c = T_{c0} - \frac{7\zeta(3)}{8\pi^2 k_B^2 T_{c0}} (\mu_B H_{\parallel})^2 \quad (3.10)$$

$$= T_{c0} - 0.0481 \times \frac{H_{\parallel}^2}{T_{c0}} \quad (3.11)$$

で与えられており、 $H_{\parallel} = 13.7$  T と  $T_{c0} = 3.3$  K の値を代入すると、超伝導転移温度の変化量  $\Delta T_c = 2.7$  K となる。これは平行磁場に対して超伝導転移温度がほとんど変化しない、Pb 単原子層の実験結果とは大きく矛盾する。本研究の実験結果は、ストライプ相では説明できない。

## ヘリカル相

1.4.4 節で紹介したように、乱れが大きい系では、ストライプ相ではなく、ヘリカル相が出現すると言われている。低温蒸着で形成した薄膜はアモルファス薄膜と考えられ、測定した常伝導状態の面抵抗も大きい。実際、散乱確率と超伝導エネルギーギャップの比  $\hbar\tau^{-1}/2k_B T_{c0}$  は 100 を超えており、ヘリカル相が出現していると考えるのが妥当である。

文献 [47] によれば、Rashba スピン分裂が散乱確率より非常に大きい ( $\Delta_R \gg \hbar\tau^{-1}$ ) 場合、ヘリカル相における臨界磁場は

$$H_c = \frac{1}{\mu_B} \sqrt{\frac{\pi\hbar k_B T_{c0}}{4e\gamma\tau}} \quad (3.12)$$

で与えられ、散乱時間  $\tau$  で臨界磁場が決まる。この場合でも、Pb の単原子層と同程度の  $\tau = 3$  fs ( $\hbar\tau^{-1} = 0.219$  eV) と  $T_{c0} = 3$  K の値を代入すると、 $H_c \sim 80$  T と非常に大きな値が得られ、臨界磁場がパウリ限界を大きく超えることを説明できる。

このような巨大な磁場を印加することは実験的に困難であり、ここでは超伝導転移温度の変化量  $\Delta T_c$  の平行磁場依存性から更なる考察を加える。文献 [47] では、 $\Delta T_c$  の磁場依存性の式は与えられていないため、計算し、理論式を導いた。導出は付録 B 節に示す。

図 3.7 における  $\Delta T_c$  の磁場依存性の実験結果から、散乱時間を見積もった。表 3.2 に示す。Pb は原子番号 82 であり、Rashba スピン分裂が散乱確率より非常に大きい ( $\Delta_R \gg \hbar\tau^{-1}$ ) と仮定し、 $T_c$  はほとんど減少していないため、臨界磁場に対して磁場が小さい ( $T_c \approx T_{c0}$ 、 $H \ll H_c$ ) 場合の超伝導転移温度の式

$$T_c = T_{c0} - \frac{\pi\tau_{\text{fit}}}{2k_B\hbar} (\mu_B H_{\parallel})^2 \quad (3.13)$$



表 3.2:  $R_N$  から見積もった散乱時間  $\tau_{R_N}$  と実験結果からフィットした散乱時間  $\tau_{\text{fit}}$

	$n$ [ $\text{nm}^{-2}$ ]	$T_{c0}$ [K]	$R_N$ [ $\Omega/\square$ ]	$\tau_{R_N}$ [fs]	$\tau_{\text{fit}}$ [fs]
Pb	9.4	2.57	1309	3.1	2.6
	11.3	3.31	967	3.5	3.2

でフィットした。

見積もった2つの散乱時間  $\tau_{R_N}$ 、 $\tau_{\text{fit}}$  はほぼ一致する。つまり、この実験結果は、Rashba スピン分裂した2次元超伝導に対し、平行磁場を印加することでヘリカル相が出現したと考えると説明できる。また、散乱確率  $\hbar\tau^{-1} \sim 0.2$  eV であり、式 (3.13) で実験結果が再現されるため、GaAs 劈開表面上の Pb 単原子層の Rashba スピン分裂の大きさは、それと同程度かそれ以上であると考えられる。薄膜の結晶構造により、Rashba スピン分裂の大きさも変わるという報告 [66] もあるが、角度分解型光電子分光による絶縁体基板上的 Bi[28–30] や Pb[31] の単原子層の Rashba スピン分裂の観測結果も同じオーダーである。GaAs 劈開表面上の Pb 単原子層の Rashba スピン分裂の大きさが、0.2 eV 程度だとしても不思議ではない。Rashba スピン分裂が 6~22ML で、10 数 meV でおおよそ一定になっているという報告 [67] もあり、それを外挿して考えれば、Pb 単原子層でも 10 数 meV である可能性もある。しかし、Rashba スピン分裂がその程度の大きさだと、Pb 単原子層でスピン軌道散乱時間が散乱時間と同程度であることや、超伝導転移温度の平行磁場に対する変化量が非常に小さいことはうまく説明できない。

### 3.3 In 単原子層膜での超伝導の平行磁場依存性

#### 3.3.1 平行磁場を印加した状態での面抵抗の温度依存性

図 3.10 は、面密度  $10.4 \text{ nm}^{-2}$  と  $12.5 \text{ nm}^{-2}$  の In 単原子層膜のゼロ磁場の場合と平行磁場 14 T を印加した場合の面抵抗の温度依存性である。面密度  $10.4 \text{ nm}^{-2}$  の単原子層膜では、 $T_{c0} = 1.7 \text{ K}$ 、 $R_N = 1.49 \text{ k}\Omega/\square$  である。面密度  $12.5 \text{ nm}^{-2}$  の単原子層膜では、 $T_{c0} = 2.4 \text{ K}$ 、 $R_N = 865 \Omega/\square$  である。In 単原子層膜でも、パウリ限界を大きく超える磁場を印加しても超伝導状態が完全に破壊されることはなかった。しかし、Pb の単原子層膜では、平行方向に約 14 T を印加しても超伝導転移温度はわずかにしか減少しなかったのに対し、In の単原子層膜では、14 T を印加することで、超伝導転移温度  $T_c$  は、面密度  $10.4 \text{ nm}^{-2}$  の単原子層膜では、1.7 K から 0.90 K まで、面密度  $12.5 \text{ nm}^{-2}$  の単原子層膜では、2.4 K から 1.7 K までの明らかな減少が見られた。

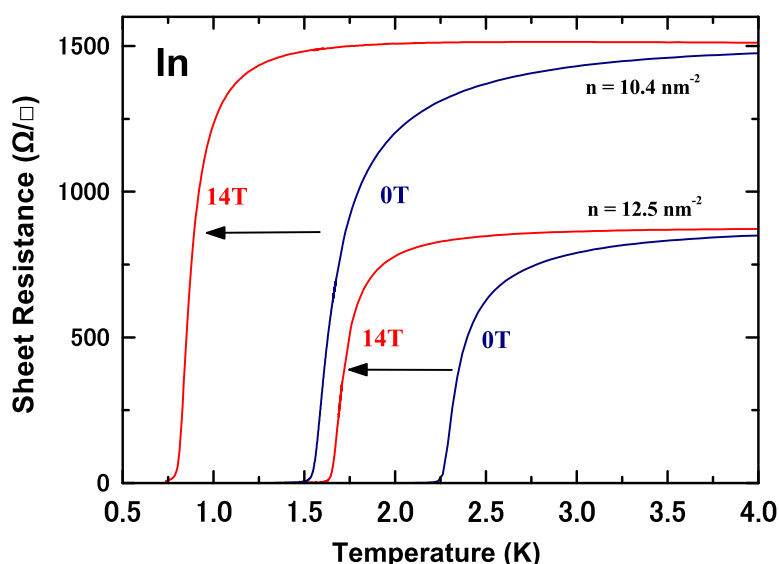


図 3.10: 面密度  $10.4 \text{ nm}^{-2}$  と  $12.5 \text{ nm}^{-2}$  薄膜の In 単原子層膜のゼロ磁場の場合と平行磁場 14 T を印加した場合の面抵抗の温度依存性

#### 3.3.2 平行磁場に対する超伝導転移温度の変化量

面密度  $10.4 \text{ nm}^{-2}$  と  $12.5 \text{ nm}^{-2}$  の In 単原子層膜の超伝導転移温度の変化量の平行磁場依存性を図 3.11 を示す。図 3.11 には、比較として Pb のデータも示してある。In 単原子層でも、超伝導転移温度は平行磁場の 2 乗に比例して減少する。面密度

10.4 nm<sup>-2</sup> の In 単原子層では、14T 印加すると超伝導転移温度は 47 % 減少し、面密度 12.5 nm<sup>-2</sup> の In 単原子層では、29 % 減少した。

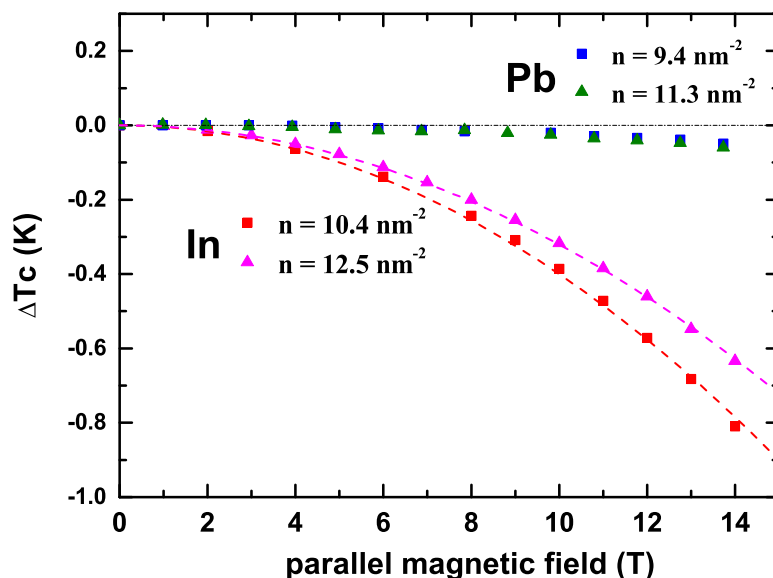


図 3.11: 面密度 10.4 nm<sup>-2</sup> と 12.5 nm<sup>-2</sup> の In 単原子層膜の平行磁場に対する超伝導転移温度の変化量

### 3.3.3 垂直磁場依存性

In 単原子層の垂直磁場依存性の結果も示す。青線は、試料に対し垂直方向に 0 T から磁場を上昇させた場合の結果である。それに対し、赤丸は、平行方向に 14 T を印加した状態から、試料台を回転させ、垂直成分を増加させた場合の結果である。0.70 K での面密度 10.4 nm<sup>-2</sup> の In 単原子層膜の面抵抗の垂直磁場依存性を図 3.12 に、0.83 K での面密度 12.5 nm<sup>-2</sup> の In 単原子層膜の面抵抗の垂直磁場依存性を図 3.13 に示す。Pb 単原子層膜では、青線と赤丸がほとんど一致していたのに対し、In の単原子層膜では、両者は大きく乖離している。

### 3.3.4 スピン緩和機構についての考察

ヘリカル相は、物理的には、散乱によりスピナップとスピンドアウンの電子状態が混成される状態と考えられる。そのため、スピンの反転する散乱であるスピン軌道散乱による解釈を拡張して、散乱によりスピン緩和が起こると考えれば、類推しやすい。格子欠陥による散乱では、スピンの方向自体は変化しないが、Rashba 効果によってスピン方向によって分裂したフェルミ面上では、散乱した先で電子

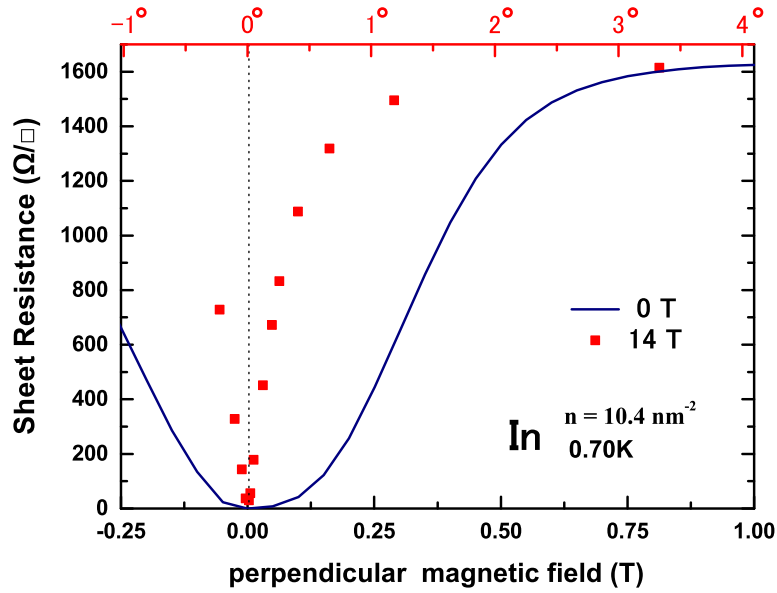


図 3.12: 0.70 K での面密度  $10.4 \text{ nm}^{-2}$  の In 単原子層膜の面抵抗の垂直磁場依存性

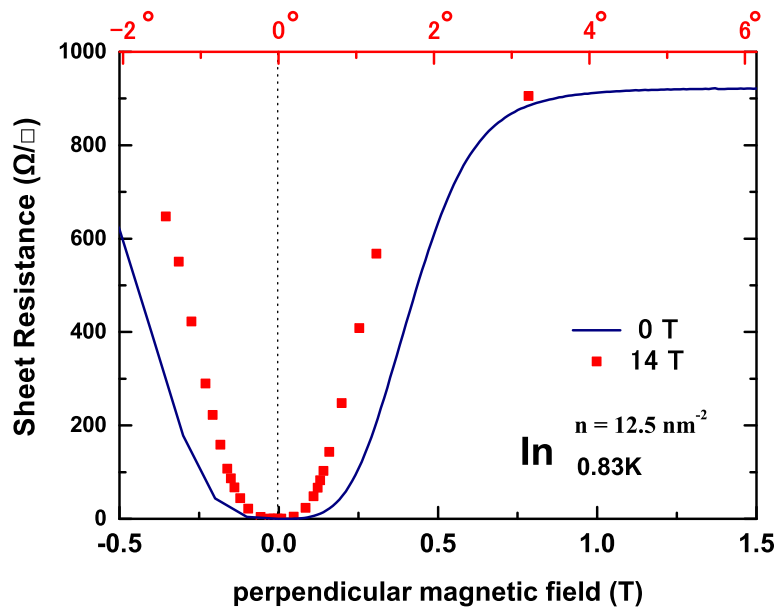


図 3.13: 0.83 K での面密度  $12.5 \text{ nm}^{-2}$  の In 単原子層膜の面抵抗の垂直磁場依存性

が Rashba 効果による有効磁場を感じ、スピンの歳差運動が起こりうる。有効磁場によるスピン緩和機構は D'yakonov-Perel' 機構として知られている [68]。

スピン緩和時間として、図 3.11 中の  $\Delta T_c$  の磁場依存性の実験結果を式 (3.8) でフィットして見積もったスピン軌道散乱時間  $\tau_{so}$  を仮定し、その結果を Pb 単原子層膜の結果も含めて、表 3.3 に示す。

表 3.3:  $R_N$  から見積もった散乱時間  $\tau_{R_N}$  とスピン軌道散乱時間  $\tau_s^*$

	$n$ [nm <sup>-2</sup> ]	$T_{c0}$ [K]	$R_N$ [ $\Omega/\square$ ]	$\tau_{R_N}$ [fs]	$\tau_s^*$ [fs]	$\tau_s^{*-1}/\tau_{R_N}^{-1}$
Pb	9.4	2.57	1309	3.1	3.5	0.89
	11.3	3.31	967	3.5	4.3	0.81
In	10.4	1.67	1489	2.8	57	0.049
	12.5	2.37	865	4.0	45	0.089

Rashba スピン分裂が散乱確率より大きい ( $\Delta_R \gg \hbar\tau^{-1}$ ) 場合、歳差運動の周波数  $\Omega_R = \hbar^{-1}\Delta_R$  が大きくなる ( $\Omega_R\tau \gg 1$ )。これは、散乱されたときの非常に短い時間でスピンの向きが変わることになり、実効的にはスピン軌道散乱が起こるのと同じであり、スピン緩和時間  $\tau_s^*$  は散乱時間  $\tau$  と同程度 ( $\tau_s^* \sim \tau$ ) になる。実際、Rashba スピン分裂が大きいと期待される Pb 単原子層膜では、 $\tau_s^*/\tau_{R_N}^{-1} \sim 0.8$  である。

逆に、Rashba スピン分裂が散乱確率より小さい ( $\Delta_R \ll \hbar\tau^{-1}$ ) 場合、歳差運動の周波数は小さくなる ( $\Omega_R\tau \ll 1$ )。たいてい D'yakonov-Perel' 機構とは狭義でこちらの場合を指すことが多い。電子スピンは、次の散乱までに  $\Omega_R\tau$  の小さい角度しか回転できない。スピン緩和時間  $\tau_s^*$  は散乱時間  $\tau$  よりずっと小さくなる ( $\tau_s^* \sim (\Omega_R\tau)^{-1} \ll \tau$ )。In 単原子層膜では、 $\tau_s^{*-1}/\tau_{R_N}^{-1} \sim 0.05$  であり、散乱時間  $\tau_{R_N}$  が大きくなるとスピン緩和時間  $\tau_s^*$  が小さくなっていることから、こちらの場合に近いと考えられる。

### 3.3.5 Rashba スピン分裂の大きさの見積もり

In 単原子層膜でも、平行方向の臨界磁場が大きすぎて測定できなかった。そのため、超伝導転移温度の変化量  $\Delta T_c$  の平行磁場依存性から考察を加える。しかし、文献 [47] では、Rashba スピン分裂が散乱確率に比べて非常に大きい ( $\Delta_R \gg \hbar\tau^{-1}$ ) 場合しか計算されておらず、In は原子番号 49 であり、Rashba スピン分裂はそれほど大きくないと考えられ、そのままでは適用できない。そのため、Rashba スピン分裂がそれほど大きくない ( $\Delta_R \lesssim \hbar\tau^{-1}$ ) 場合まで拡張した。導出は付録 B 節に示す。

図 3.11 における  $\Delta T_c$  の磁場依存性の実験結果から、In 単原子層膜の散乱時間を見積もった。Pb 単原子層膜も含めて表 3.4 に示す。In 単原子層膜の実験結果は、

$$\frac{T}{T_{c0}} = \exp \left[ -\frac{2\pi k_B T}{\hbar} \sum_{\omega>0} \frac{1}{\omega} \frac{2\tau_{\text{fit}}\hbar_{\parallel}^2}{\omega^2\tau' + \omega + 2\tau_{\text{fit}}\hbar_{\parallel}^2} \right] \quad (3.14)$$

でフィットした。ここで、 $h_{\parallel} = \mu_B H / \hbar$ 、 $\tau' = 4 / \Omega_R^2 \tau$ 、 $\Omega_R = \hbar^{-1} \Delta_R$ 、

$$\tau_{\text{fit}} = \left( 1 + \frac{1}{2\Omega_R^2 \tau^2} \right) \tau \quad (3.15)$$

である。

表 3.4:  $R_N$  から見積もった散乱時間  $\tau_{R_N}$  と実験データからフィットした散乱時間  $\tau_{\text{fit}}$

	$n$ [ $\text{nm}^{-2}$ ]	$T_{c0}$ [K]	$R_N$ [ $\Omega/\square$ ]	$\tau_{R_N}$ [fs]	$\tau_{\text{fit}}$ [fs]
Pb	9.4	2.57	1309	3.1	2.6
	11.3	3.31	967	3.5	3.2
In	10.4	1.67	1489	2.8	54
	12.5	2.37	865	4.0	48

In 単原子層膜の場合、散乱時間  $\tau$  が常伝導状態から見積もった散乱時間  $\tau_{R_N}$  であると仮定すると、式 (3.15) を変形し、

$$\Delta_R = \frac{\hbar}{\sqrt{2\tau_{R_N}(\tau_{\text{fit}} - \tau_{R_N})}} \quad (3.16)$$

のように Rashba スピン分裂の大きさ  $\Delta_R$  を見積もることができる。面密度  $10.4 \text{ nm}^{-2}$  の単原子層膜では、 $39 \text{ meV}$  となった。面密度  $12.5 \text{ nm}^{-2}$  の単原子層膜では、 $35 \text{ meV}$  となった。tight-binding モデルでの計算によれば、Rashba スピン分裂の大きさは、スピン軌道相互作用の大きさに依存する [69]。スピン軌道相互作用の大きさは、原子番号の 4 乗に比例する。GaAs 劈開面上の Pb 単原子層の Rashba スピン分裂が、 $0.2 \text{ eV}$  程度かそれ以上であることと、Pb の原子番号 81 と In の原子番号 49 の差を考えると、In の Rashba スピン分裂の大きさが、Pb に比べて一桁小さい  $0.04 \text{ eV}$  程度であるとしても矛盾はない。

## 3.4 熱処理による効果

単原子層の超伝導の物性を電気伝導測定だけではなく、核磁気共鳴法など他の測定方法で評価するには、室温まで上げる必要がある。ここでは、予備実験として、室温まで温度を上げた時の抵抗の変化の様子と、途中で再び冷却した時の実験結果を紹介する。

### 3.4.1 単原子層膜への影響

温度を上げていくと、超伝導転移温度や膜厚にもよるが、おおよそ 30 K を超えると温度とともに抵抗が急に小さくなり始める。これは途中で再び温度を下げて、元の点には戻らない不可逆変化である。そのため、局在などの物理的な現象ではなく、温度が上がったことにより薄膜の構造自体が変化しつつあるからだと考えられる。さらに 200 K 近くまで上昇すると、面抵抗が急激に増大して発散する。この急激な上昇の原因ははっきり分かっていないが、薄膜と GaAs 基板の金端子の接触抵抗がある温度以上になると発散し、4 端子電気伝導測定が不可能になったためと考えている。あるいは、液体  $^4\text{He}$  中では断熱真空管に付着していた空気が、温度上昇により気体になり、薄膜が酸化したためだと考えている。

### 3.4.2 超伝導状態への影響

温度を上げることが単原子層膜の超伝導にどのような影響を与えるか調べた。一般には、半導体試料の熱処理のことを指すが、ここでは、薄膜を液体  $^4\text{He}$  温度から目標温度まで加熱し、また液体  $^4\text{He}$  温度に戻す工程をアニールと呼ぶことにする。アニールすると常伝導状態の面抵抗が変化するので、もちろん超伝導転移温度も変わる。図 3.14 に 160 K までアニールした前後での、面密度  $9.0 \text{ nm}^{-2}$  の Pb 単原子層膜のゼロ磁場の場合と平行磁場 14 T を印加した場合の面抵抗の温度依存性を示す。

まず、ゼロ磁場の場合の温度依存性に注目すると、アニール前は、 $R_N = 1.03 \text{ k}\Omega/\square$  で  $T_{c0} = 2.2 \text{ K}$  の超伝導であったのが、160 K までアニールすることで、 $R_N = 669 \Omega/\square$  まで下がり、 $T_{c0} = 3.6 \text{ K}$  まで上昇した。アニールした後の面抵抗と超伝導転移温度の関係は、膜厚を変化させた場合 (図 3.4) とあまり変わらない。先行研究では、超伝導薄膜をアニールすると、常伝導状態の抵抗が上がり、超伝導転移温度も下がっている [70–72]。一方で、本研究の系では、アニールによって常伝導状態の抵抗値は小さくなり、超伝導転移温度は上昇する。薄膜の超伝導の研究として、これは一つの発見である。

平行磁場 14 T を印加した場合、アニール前では、平行磁場に対してほとんど変化していなかった超伝導転移温度が、アニール後では明らかな減少を示すようになった。常伝導状態から見積もった散乱時間  $\tau_{R_N}$  は、4.1 fs から 6.4 fs になった。一

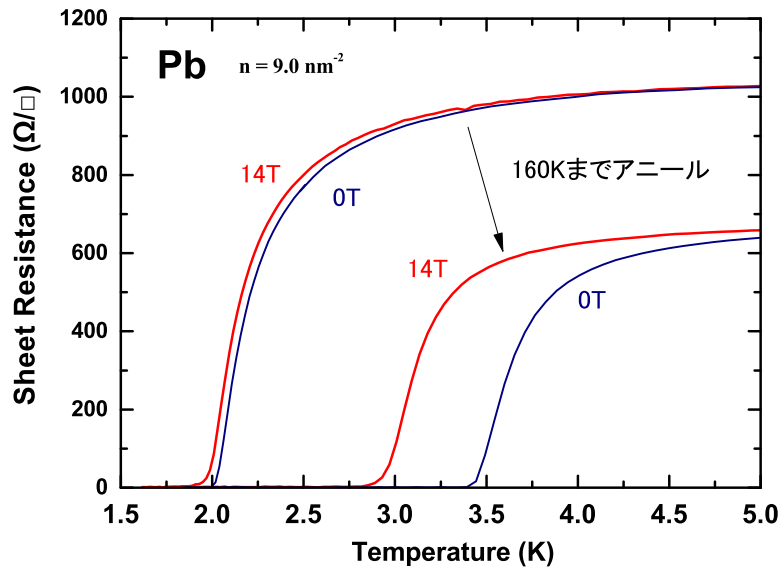


図 3.14: 160 K までアニールした前後での、面密度  $9.0 \text{ nm}^{-2}$  の Pb 単原子層膜のゼロ磁場の場合と平行磁場 14 T を印加した場合の面抵抗の温度依存性

方で、14 T までの超伝導転移温度の変化量から見積もった散乱時間  $\tau_{\text{fit}}$  は、2.6 fs から 28.6 fs になった。平行磁場は 14 T でしか印加していないので、特にアニール前の見積もりは参考程度に考えてほしい。Rashba スピン分裂の大きさ  $\Delta_R$  を見積もると、アニール前では、160 meV 以上だったのが、アニール後は 40 meV まで減少した。アニール前は、Pb 単原子層なので、3.2.7 節と同様に、アニール後の見積もりは、平行磁場による超伝導転移温度が変化量が In 単原子層膜と同じくらいだったので、3.3.5 節と同様におこなった。

アニールによって、超伝導転移温度の平行磁場依存性が大きく変化したのは、薄膜の構造が変化したからであろう。薄膜の構造の変化の仕方としていくつか考えられる。

- ランダムに位置している原子が全体的に規則的に並び出す変化  
これは、面抵抗が小さくなる理由にはなるが、平行磁場依存性が大きくなる理由にはならない。
- 一層に並んでいた原子の一部が他の原子の上に乗る、二層以上になる変化  
薄膜が単原子層膜ではなくなり、Rashba スピン分裂の大きさも小さくなり、平行磁場依存性も大きくなる。しかし、次節で紹介する Bi 二原子層膜の結果を見る限り、二層になったとしても、Rashba スピン分裂の大きさが急激に減少するとは思えない。
- 薄膜のある領域ごとに結晶化する変化  
アニール前の Pb 単原子層膜では、実験結果から見積もった弾性散乱時間



と常伝導状態から見積もった散乱時間がおおよそ一致おり、パーコレーション・ネットワークのように接合しているとは考えづらい。しかし、この変化が起こると、弾性散乱が運動量散乱ではなく、結晶化した部分の間の接合によって決まり、散乱時間が大きく変化する可能性がある。

- Pb 単原子層膜と In 単原子層膜でそもそも膜の構造が異なっていて、後者に近づく変化

Pb 単原子層膜と In 単原子層膜の Rashba スピン分裂の大きさの違いとして、前節では原子のスピン軌道相互作用の大きさとして考察したが、Rashba スピン分裂の大きさは薄膜の構造にも依存すると言われている [66]。本研究でも Pb 単原子層膜と In 単原子層膜とで構造が異なっており、それが見積もった Rashba スピン分裂の大きさの違いとして現れている可能性もある。後者の方が Rashba スピン分裂は小さいので、Pb 単原子層膜をアニールしたことで In 単原子層膜の構造に近づき、Rashba スピン分裂が小さくなったのかもしれない。In 単原子層膜をアニールする実験をすれば、この可能性が妥当か分かるであろう。

他にもいろいろな仮説は立てられるかもしれないが、薄膜の構造自体を直接観察できているわけではないので、現状では詳しいことは分からない。

### 3.5 Bi二原子層膜での平行磁場に対する超伝導転移温度の変化量

単原子層の超伝導はPbとInでしか観測できなかったが、ここで、Bi超薄膜で得られた中で、最も薄い膜での超伝導転移温度の平行磁場依存性を紹介する。図3.15に膜厚7.7 ÅのBi超薄膜のゼロ磁場の場合と平行磁場13.7 Tを印加した場合の面抵抗の温度依存性を示す。さらに、挿入図にその平行磁場に対する超伝導転移温度の変化量も示す。膜厚7.7 Åは、面密度で $22 \text{ nm}^{-2}$ に相当し、およそ二原子層に相当する。二原子層膜なので、完全な2次元系ではなく、単原子層膜と同じ理論は適用できない。また、バルクのBiは超伝導にならないので、常伝導状態の散乱時間の見積もりは難しい。

Pb単原子層膜では、14 Tで超伝導転移温度が2%しか減少しなかったが、Bi二原子層膜では、5%ほど減少した。超伝導転移温度と常伝導状態の面抵抗は、面密度 $9.4 \text{ nm}^{-2}$ のPb単原子層膜と同じくらいなのにも関わらず、平行磁場依存性が2倍以上大きくなる。

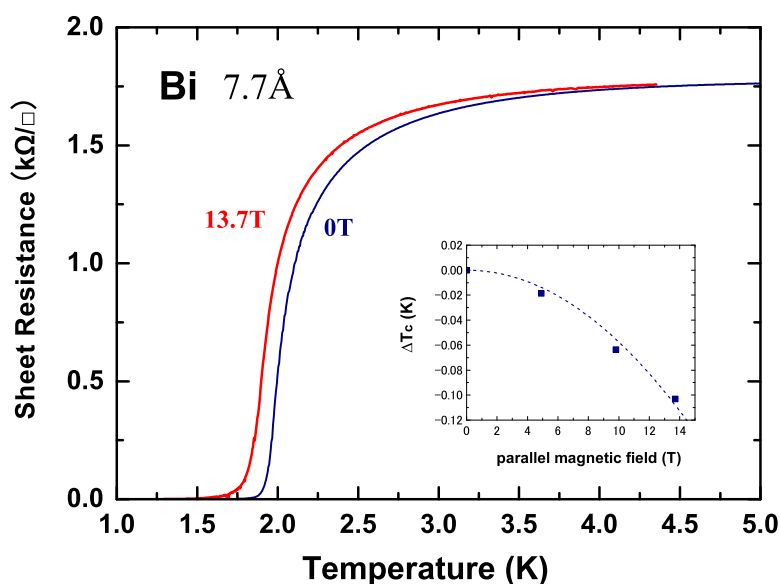


図 3.15: 膜厚 7.7 Å の Bi 超薄膜のゼロ磁場の場合と平行磁場 13.7 T を印加した場合の面抵抗の温度依存性 (挿入図: 平行磁場に対する超伝導転移温度の変化量)

## 3.6 Bi 超薄膜と Pb 単原子層膜の電流-電圧特性

2次元系特有の相転移として Kosterlitz-Thouless(KT) 転移がある。KT 転移は、電流-電圧特性において特徴的な振る舞いを示すため、薄膜など2次元に近い系では、電流-電圧特性が測定されることが多い。電流-電圧特性を測定することで、本研究の系でKT転移が起きているかどうか調べてみた。

### 3.6.1 KT 転移の基礎知識

KT 転移は、2次元のXY スピン系や2次元ジョセフソン接合アレイのゼロ磁場などで起こる、2次元系特有の相転移である [62]。この転移を特徴づけるのは、熱ゆらぎによって発生した渦と反渦の存在である。低温ではまず渦・反渦間距離が短い渦対が生成される。温度の上昇によって、渦・反渦間距離が長い渦対も生成されるようになり、ある温度  $T_{KT}$  で渦と反渦の解離が起こり、自由な渦ができ、系の相関を破壊すると考えられている。超伝導体の場合、渦とは磁束量子をもつ量子渦糸のことであり、磁場をかけなくても自発的に渦と反渦が発生する。

超伝導相から温度を上げていき、自由な渦(反渦)が生成されると、これらはエネルギー散逸に寄与するため、 $T_{KT} < T < T_c$  において、有限の抵抗が現れる。このときの抵抗は、フラックスフロー抵抗と呼ばれ、自由な渦の密度に比例するため、

$$R = AR_N \exp \left[ -2b \left( \frac{T_c - T_{KT}}{T - T_{KT}} \right)^{\frac{1}{2}} \right] \quad (3.17)$$

と表される。ただし、 $A$  と  $b$  はオーダー 1 の定数で、 $T_{KT}$  は KT 転移温度である。指数関数の部分は、解離した渦と反渦の数をあらわしている。

また電流が及ぼすローレンツ力は渦と反渦に対して逆向きに働くため、十分に大きな電流密度は渦・反渦対の解離を引き起こす。この効果は電流 ( $I$ )-電圧 ( $V$ ) 特性に反映される。 $T > T_{KT}$  では、オーミックなふるまい ( $V \propto I$ ) である。 $T_{KT} > T$  では、非線形性が強くなる。 $V \propto I^a$  としたときのべき  $a$  は  $T = T_{KT}$  において 1 から 3 に跳ぶ (universal jump)。この跳びが KT 転移の特徴の 1 つである。

ここで、超伝導細線ネットワークでみられた KT 転移の紹介をする [74]。図 3.16 は抵抗の温度依存性を示したものである。図 3.17 は電流-電圧特性  $V \propto I^a$  のべき  $a$  の温度依存性である。図中のパラメータ  $f$  は単位胞あたりの磁束量子の数である。実践は式 3.17 のフラックスフロー抵抗の温度依存性をあらわしたものである。図中の  $\tau$  は

$$\tau = \frac{k_B T}{J(T)}, \quad J(T) = \frac{3\sqrt{3}\xi(T)}{4\pi s} \frac{h}{2e} J_c(T) \quad (3.18)$$

という再規格化された温度 ( $s$  は単位胞の一辺の長さ) であり、 $\tau = 1$  が  $T_{KT}$  に対応する。ゼロ磁場 ( $f = 0$ ) での振る舞いは式 (3.17) とよく合っており、図 3.17 では  $a$  が 1 から 3 に跳んでいる。

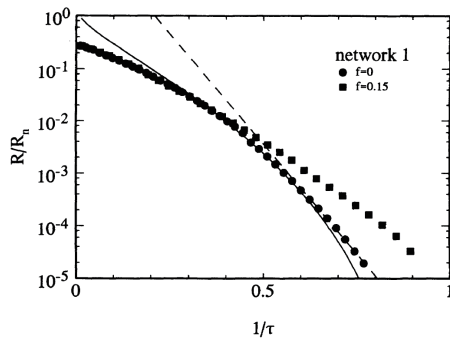


図 3.16: 超伝導細線ネットワークの抵抗の温度依存性 [73]

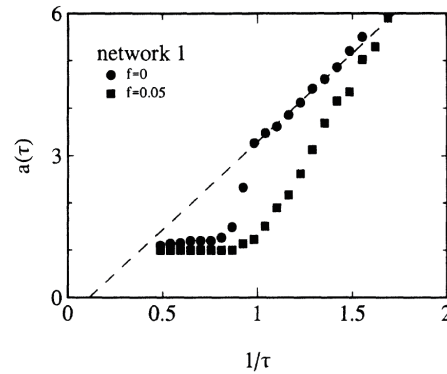


図 3.17: 超伝導細線ネットワークの I-V 特性のべきの温度依存性 [73]

### 3.6.2 実験結果と考察

GaAs 劈開表面に形成した金属超薄膜で、電流-電圧特性を測定し、KT 転移が起きているかどうか調べた。膜厚  $7.7 \text{ \AA}$  の Bi 超薄膜の電流-電圧特性を図 3.18 に示す。また、膜厚  $15 \text{ \AA}$  の Bi 超薄膜の電流-電圧特性を図 3.19 に示す。膜厚  $7.7 \text{ \AA}$  の Bi 超薄膜では、超伝導転移温度  $2.1 \text{ K}$  より十分低い  $1.23 \text{ K}$  でも、 $V \propto I^a$  のべき  $a$  が 1 を少し超える程度であった。一方で、膜厚  $15 \text{ \AA}$  の Bi 超薄膜では、 $1.17 \text{ K}$  でべきは 4 近く、温度とともにべきは下がっていった。図 3.20 に膜厚  $15 \text{ \AA}$  の Bi 超薄膜のべき  $a$  の温度依存性を示す。べきを算出する際は、高電流側は発熱のため、低電流側は電圧の測定誤差のため、本来の値から大きくずれていると考え、中間の電流領域で求めた。KT 転移特有の universal jump であれば、べきが 1 から 3 に小さい温度領域で急峻に増加するはずである。実験結果では、温度に対する傾きが変化しているべきが 2 前後で、しかも、べきが 1 から 2 の間の傾きの方が、より低温度側より緩やかである。これだけでは KT 転移を起こしているとは断言できない。起こしているのだとすれば、より薄い薄膜である膜厚  $7.7 \text{ \AA}$  で KT 転移のような振る舞いを示さないことが説明できない。

さらに考察を加えるため、単原子層での超伝導でも電流-電圧特性を測定した。膜厚  $2.2 \text{ \AA}$  の Pb 超薄膜の電流-電圧特性を図 3.19 に示す。膜厚  $2.2 \text{ \AA}$  の Pb 超薄膜では、 $1 \mu\text{A}$  を超える電流で、電圧が急に上昇した。これは、超伝導状態が臨界電流で破壊されたのではなく、温度が上昇したからである。その理由として、単原子層膜では接触抵抗が大きく、接触抵抗の部分で発熱しているのではないかと思い、その影響を調べることにした。

膜厚  $2.2 \text{ \AA}$  の Pb 超薄膜の電流-電圧特性を、 $\pm 1 \mu\text{A}$  の範囲で上げ下げ両方の方向で、線型に変化させた結果を図 3.22 に示す。文献 [17] で見られたようなヒステリシスは見られなかった。約  $600 \text{ nA}$  の電流で超伝導状態は破壊され始めた。図 3.22 では、電流端子として、側面両側を用いている。図 3.23 に、電流端子として、劈

開の傷を入れた側面の金端子の代わりに、一番それに近い電圧端子の2つを用いた。これにより接触抵抗が約1 M $\Omega$ であったのを100 k $\Omega$ まで下げることができた。図3.23では、3 $\mu$ Aで超伝導状態が破壊され、図3.22と比べるとずっと大きい電流まで超伝導状態のままであった。超伝導状態が破壊されたときの電流値が、超伝導臨界電流であるとするれば、それが端子のとり方に依存するのはおかしい。超伝導状態が破壊されたのは、臨界電流ではなく、接触抵抗の部分で発熱しているためであると確認された。

温度は、温度計の値が一定になるようにPID制御で一定にしている。温度依存性を測定するときは、回転台についているヒーターを加熱するため、試料と温度計の熱平衡が保てる。しかし、ジュール熱により薄膜と金端子の接触部分で発熱していれば、薄膜と温度計に温度勾配がついてもおかしくない。薄い膜ほど、接触抵抗が大きくなる傾向があり、膜厚7.7 Åと15 ÅのBi超薄膜で電流-電圧特性の整合性が取れないのも、膜厚7.7 Åではその影響がより大きく出たためであると考えられる。膜厚15 Åの比較的厚い膜でも端子の2端子間抵抗は約400  $\Omega$ あり、導線の抵抗を除いても、接触抵抗として200  $\Omega$ 近く残る。温度計の温度と試料の温度が完全に一致している確証はなく、結局、KT転移を起こしているかは分からなかった。

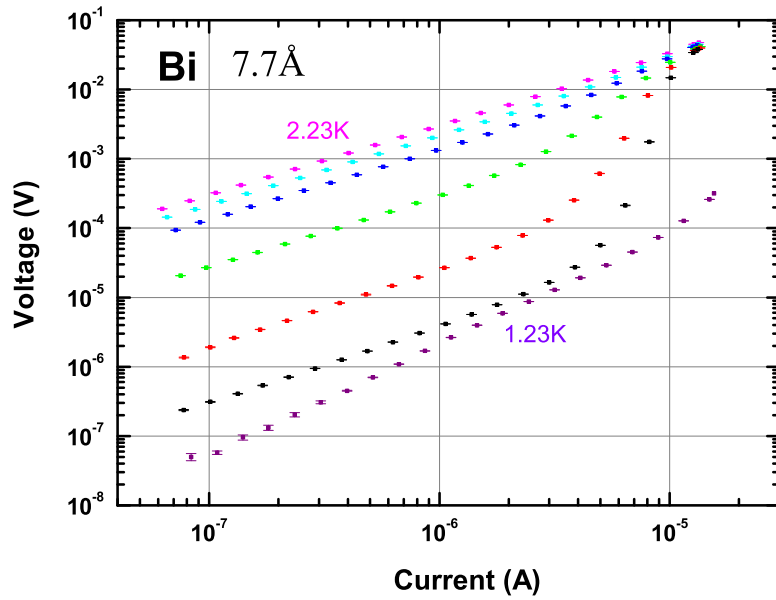


図 3.18: 膜厚 7.7 Å の Bi 超薄膜の電流-電圧特性 (1.23, 1.86, 1.91, 1.96, 2.03, 2.09, 2.23 K)

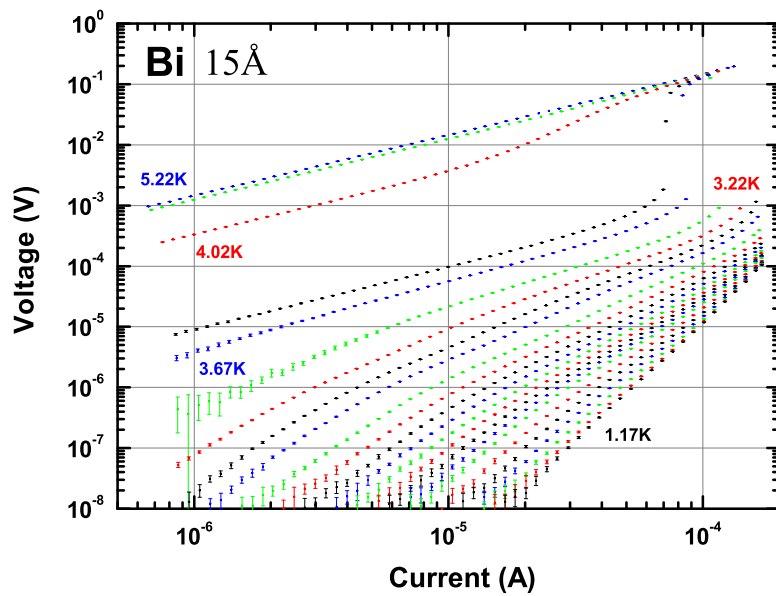


図 3.19: 膜厚 15 Å の Bi 超薄膜の電流-電圧特性 (温度は図 3.20 を参照)

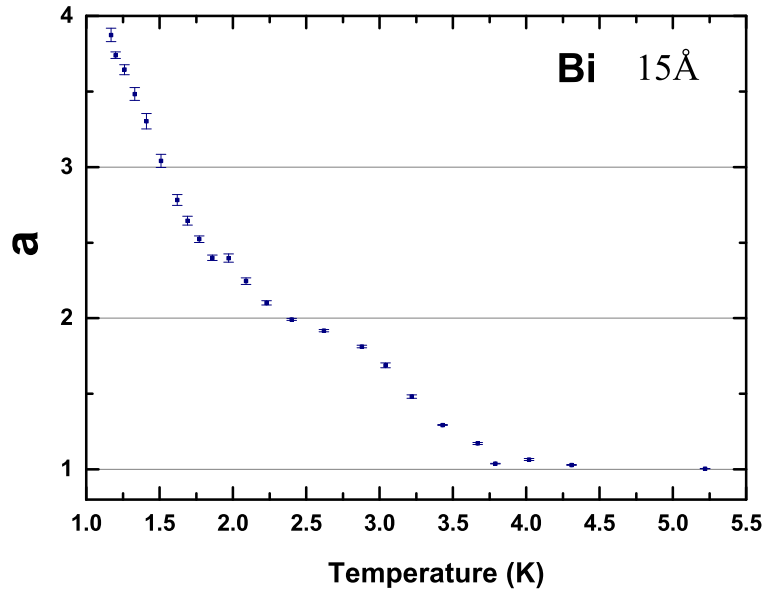


図 3.20: 膜厚 15 Å の Bi 超薄膜の電流-電圧特性のべきの温度依存性

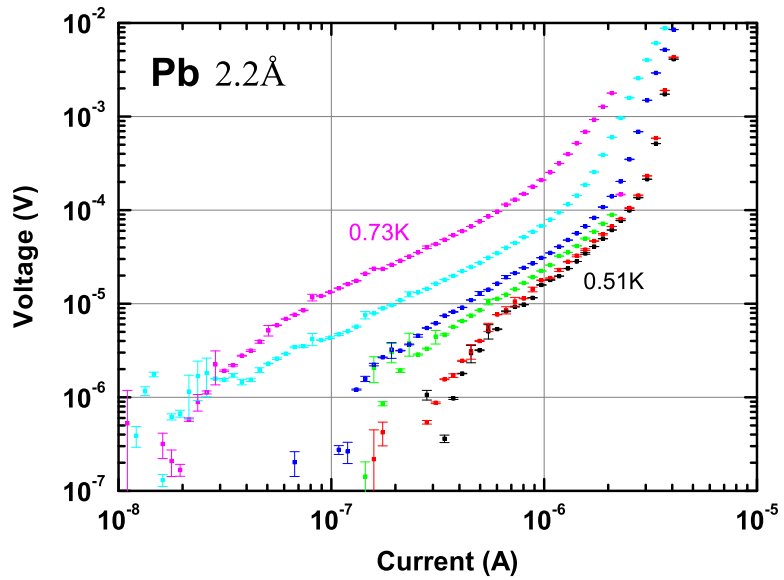


図 3.21: 膜厚 2.2 Å の Pb 単原子層膜の電流-電圧特性 (0.51, 0.53, 0.58, 0.63, 0.69, 0.73 K)

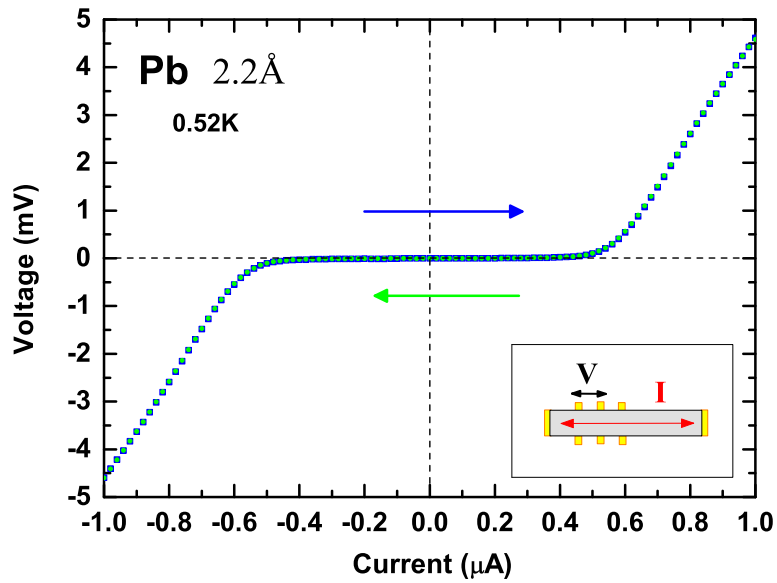


図 3.22: 0.52 K での線型プロットによる膜厚 2.2 Å の Pb 単原子層膜の電流-電圧特性 (挿入図は劈開面での電流と電圧の取り方)

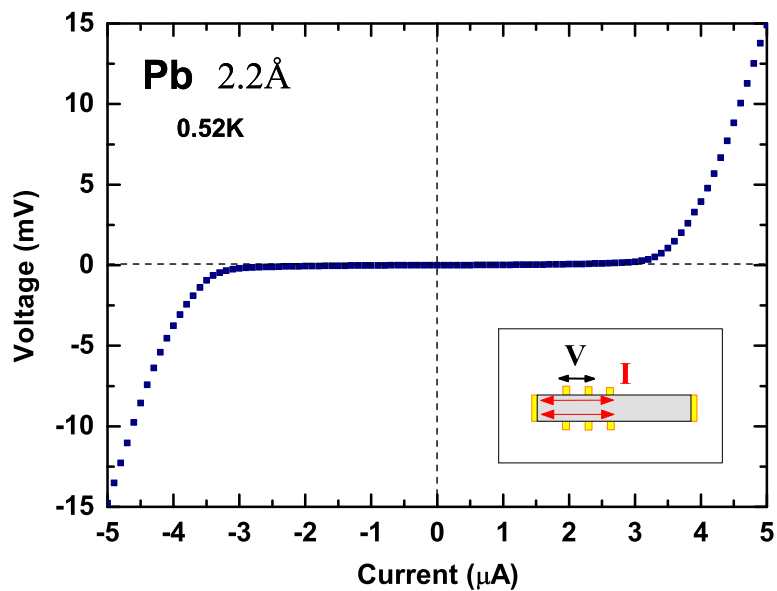


図 3.23: 0.52 K での電流端子の片側を使わない場合の、線型プロットによる膜厚 2.2 Å の Pb 単原子層膜の電流-電圧特性 (挿入図は劈開面での電流と電圧の取り方)



## 第4章 総括

### 4.1 まとめ

本研究では、回転台による劈開機構を備えた<sup>3</sup>He蒸発冷却冷凍機により、低温・高真空中で劈開したGaAs(110)面に、低温蒸着により金属超薄膜を形成し、その場で電気伝導測定をおこなった。PbとInでは単原子層かそれ以下に相当する膜厚で超伝導転移を観測した。

#### 1. Pb単原子層膜の場合

- (a) 平行磁場を印加した状態で面抵抗の温度依存性を調べた。パウリ限界を大きく超える14 Tもの平行磁場に対しても、超伝導転移温度は2%ほどしか減少しなかった。
- (b) 面抵抗の垂直磁場依存性においても、9 Tの平行成分がある場合と無い場合での違いはほとんど見られなかった。
- (c) 超伝導転移温度の平行磁場依存性から見積もったスピン軌道散乱時間と、常伝導状態から見積もった散乱時間の比は、先行研究に比べて非常に大きいものとなった。
- (d) 測定した超伝導転移温度の平行磁場依存性に対し、空間反転対称性の破れた2次元超伝導で提唱されているヘリカル相と呼ばれる相の理論式を適用した。Rashbaスピン分裂が散乱確率に比べて非常に大きい( $\Delta_R \gg \hbar\tau^{-1}$ )と仮定した理論式でよく説明される。実験結果から見積もった散乱時間と常伝導状態から見積もった散乱時間の値がほとんど一致した。

2. In単原子層膜でも、パウリ限界を大きく超える平行磁場を印加しても、超伝導状態が完全に破壊されることはなかった。In単原子層膜では、ヘリカル相の理論式を、Rashbaスピン分裂がそれほど大きくない( $k_B T_{c0} \ll \Delta_R \lesssim \hbar\tau^{-1}$ )場合まで拡張し、Rashbaスピン分裂の大きさを見積もった。その大きさは約0.04 eVで、Pb単原子層膜で期待される値より一桁小さく、原子の重さによる違いとして理解できる。

3. 熱処理による効果を調べた。温度を一度上げることでPb単原子層膜の超伝導転移温度が上昇することが分かった。超伝導転移温度の平行磁場に対する依存性は、常伝導状態の面抵抗の減少量から考えると異常に大きくなった。

4. Bi 二原子層膜の超伝導転移温度の変化量の平行磁場依存性は、Pb 単原子層膜におけるものよりも大きかった。
5. 超薄膜の電流-電圧特性について調べた。KT 転移しているかどうかまでは分からなかった。

## 4.2 今後の展望

本研究では、電気伝導測定法によって単原子層膜の超伝導を測定した。電気伝導測定法を用いて調べるべきことも多いが、別の測定方法を用いれば、新しい発見を期待できる。最後に、測定法ごとに課題と展望について述べる。

### 4.2.1 電気伝導測定法を用いた研究

- 3.4 節で紹介したように、低温蒸着により形成した薄膜では、アニールすることで、常伝導状態の抵抗を下げるのが可能である。現在の  $1000 \Omega$  近い抵抗を  $10 \Omega$  近くまで下げられれば、臨界磁場は 10 分の 1 程度になるはずであり、空間反転対称性の破れた 2 次元超伝導の相図も大きく変化する。その場合、ヘリカル相でなくストライプ相が出現する可能性もある。現在のところ、14 T の定常磁場では、Pb 単原子層膜では弱磁場極限の部分しか観測できていないのが、相図全体との比較が可能になるかもしれない。
- 3.5 節で Bi 二原子層膜における結果を紹介したが、数層分の厚みになり、多数のサブバンドが占有されると 2 次元の理論が適用できなくなるため、本研究では、Pb と In の単原子層膜のみに注目して空間反転対称性の破れた 2 次元超伝導体として考察した。一方で、 $20 \text{ \AA}$  程度の Pb 超薄膜に対し、平行磁場を印加したところ超伝導転移温度が上昇したという報告がある [77]。その結果は理論的な予想とも整合しておらず、本研究の実験手法で追実験するべきであろう。
- 金属薄膜に対して垂直方向に磁場を印加すると、(反)弱局在効果による伝導度の変化を観測できる。その変化量から、弾性散乱時間や非弾性散乱時間、スピン軌道散乱時間を見積もることができる。超伝導揺らぎが消えるくらいの温度で、常伝導状態の面抵抗の垂直磁場依存性を調べることで、超伝導状態と常伝導状態のスピン軌道散乱時間を比較することができる。本研究でも、Pb 単原子層膜における反弱局在効果について付録 C で考察した。しかし、Pb 単原子層膜では、弾性散乱時間やスピン軌道散乱時間が非弾性散乱時間よりずっと短いので、スピン軌道散乱時間を見積もることまではできなかった。In 単原子層膜では、比較的スピン軌道散乱時間が長いので、詳しく議論することができるかもしれない。

- 本研究の手法では、フィラメントを段階的に飛ばすため、形成した薄膜に不純物の導入も可能である。Bi 超薄膜に磁性不純物を蒸着したところ、超伝導転移温度は減少した [48]。磁性不純物を蒸着した Pb 単原子層膜では、超伝導転移温度の平行磁場依存性が大きく変わる可能性がある。非磁性体を蒸着した場合、超伝導転移温度が上昇したという報告もある [75, 76]。超伝導薄膜に不純物を蒸着した研究は少なく、本研究の実験手法で追実験しても面白い。
- 本研究により、低温真空中で劈開した GaAs 表面では、元素によっては、単原子層程度から電気伝導測定が可能ながことが分かった。本研究ではあまり詳しく調べなかったため分からなかったが、Bi 単原子層膜でも電気伝導を測定できる可能性がある。本研究では、この手法による研究対象を超伝導薄膜としたが、他の 2 次元系の物理を研究することももちろん可能である。Fe や Co などの磁性薄膜における異常ホール効果の研究もされている。

#### 4.2.2 走査トンネル顕微鏡を用いた研究

本研究室では、走査トンネル顕微鏡観察 (STM) を用いて、劈開した半導体の表面状態や走査トンネル分光法 (STS) による局所状態密度の測定が行われている [78]。現在のところ、4.2 K の温度領域でしか動作しないが、この STM/STS を用いて、Pb の 6 ~ 8 層膜で超伝導エネルギーギャップらしきものを観測した [79]。この STM/STS 装置に  $^3\text{He}$  蒸発冷却の機構を新たに加えられれば、低温にしたまま超伝導薄膜の超伝導転移温度を 2 つの方法で測定することができる。一つは、本研究でおこなった電気伝導測定というマクロなスケールの測定であり、もう一つは STS による超伝導エネルギーギャップの観測というミクロなスケールの測定による方法である。これら 2 種類の測定法で求められた超伝導転移温度が一致するかどうかは定かではない。局所的にはクーパー対が形成される超伝導状態でありながらも、系全体では位相がコヒーレントでなく超伝導状態ではないという特異な状態が存在する可能性があることが言われている [18]。改良した STM/STS 装置では、この問題に対して実験的に新たな提言をすることができる。

さらに、平行磁場を印加することで、超伝導エネルギーギャップの空間変調が直接観測できる可能性がある。もし観測できれば、本研究で出現している可能性が示唆されたヘリカル相やストライプ相の強い証拠となる。

また、垂直磁場を印加すれば、超伝導薄膜内の渦糸状態が電気抵抗とともに観測可能である。3.6 節で詳しく考察したように、GaAs 劈開表面上の金属単原子層膜では、端子部の発熱の影響のせいで、電気伝導測定法では KT 転移が起きているかは分からなかった。渦と反渦の状態や渦対の乖離の様子が観測できれば、KT 転移を起こすかどうか判明させることができる。

このように、 $^3\text{He}$  蒸発冷却機構を備えた STM/STS 装置が完成すれば、金属超薄膜の超伝導の研究が大いに進展すると考えている。

### 4.2.3 他の測定方法へ向けて

電気伝導測定法ではなく、核磁気共鳴法や磁化測定など、電子スピンの状態を直接的に調べるためには、室温に上げて、大気中に出すことが必要になる。室温まで温度を上げるには、温度上昇により、接触抵抗がどのように変化するかより詳細に調べる必要がある。スパッタリングで金端子をつけた GaAs 基板では、接触抵抗はほとんど膜厚で決まっている。30 Å 程度の Al 超薄膜なら室温まで上げて、接触抵抗は発散せず、再び冷却しても超伝導状態を観測できた。AuGeNiなどを蒸着した GaAs 基板では、接触抵抗が下がる可能性もある。また、大気中にさらすことによる酸化を防ぐためには、低温・高真空中で保護膜を蒸着する必要がある。保護膜として何が理想的かは今のところ分からないが、Ge などの単体の物質ならば、比較的容易に蒸着することができる。

最近では、トポロジカル超伝導や奇周波数超伝導が理論的に提唱され、注目を集めている。トポロジカル超伝導は、トポロジカル絶縁体のように、ギャップレスなエッジ状態が現れる超伝導体である。その候補の一つとして、強い平行磁場下の半導体と s 波超伝導体の接合が挙げられている [80]。通常の s 波超伝導体であれば、軌道効果によって、超伝導状態は簡単に破壊されてしまうが、本研究で観測された単原子層での超伝導は、面内方向に非常に大きい臨界磁場を持つ。基板をしっかりと精査すれば、トポロジカル超伝導を目指すことも可能になるかもしれない。

単原子層膜の超伝導は、電気二重層トランジスタなど、電場による超伝導制御ができる超伝導素子への応用も期待できる。また、Rashba 効果は、フェルミ面によって電子スピンの方向が決定されるため、電子のスピンを制御・識別する目的でスピントロニクス分野でも研究されている。単原子層でも超伝導が起こり、加えて Rashba 効果によってスピン方向の縮退が解けているという本研究で得られた知見が、将来的に、新しいタイプの超伝導の発見や、新規デバイスへの応用につながることに期待したい。

## 付録A 常伝導状態の面抵抗から見積もった散乱時間

常伝導状態の面抵抗からの散乱時間の見積もりは、Drude モデルに基づき、

$$\tau = \frac{m_e}{e^2 N_e \rho} \quad (\text{A.1})$$

として求めた。ここで、 $m_e$  は電子の質量、 $N_e$  は電子密度、 $\rho$  は (3次元の) 抵抗率である。

しかし、超伝導状態における電子の質量と電子密度は、自由電子の場合と異なっている。超伝導体薄膜中の電子の質量や密度は測定されていないため、バルクの超伝導状態の値をもとにして、補正をかけた。

$$\tau = \frac{m_e}{e^2 N_e \rho} = \alpha' \frac{m_e^{\text{free}}}{e^2 N_e^{\text{free}} \rho} \quad \left( \alpha' \equiv \frac{m_e}{m_e^{\text{free}}} \frac{N_e^{\text{free}}}{N_e} \right) \quad (\text{A.2})$$

ここで、 $m_e^{\text{free}}$  は自由電子の電子の質量  $9.11 \times 10^{-31}$  kg、 $N_e^{\text{free}}$  は、自由電子の場合の電子密度であり、価数  $\nu$  もバルクと同じ値を用い、 $N_e^{\text{free}} = \nu N_{\text{atomic}}$  として原子密度  $N_{\text{atomic}}$  から計算できる。補正係数  $\alpha'$  は London 侵入長  $\lambda$  の値から計算できる。

$$\lambda = \left( \frac{m}{\mu_0 N_e e^2} \right)^{1/2} \quad (\text{A.3})$$

であるため、

$$\alpha' = \left( \frac{\lambda}{\lambda_0} \right)^2 \quad (\text{A.4})$$

となる。ここで、 $\lambda_0$  は、自由電子の値を用いて計算した London 侵入長である。

最後に、 $d$  を薄膜の厚みとして、原子密度  $N_{\text{atomic}}$  を原子の面密度  $n = N_{\text{atomic}} d$  に、抵抗率  $\rho$  を常伝導状態の面抵抗  $R_N = \rho/d$  に直し、

$$\tau = \alpha' \frac{m_e^{\text{free}}}{\nu n e^2 R_N} \quad (\text{A.5})$$

として見積もることができる。

Pb ( $\nu = 4$ ) は、文献 [81] 中の  $\lambda = 30.5$  nm を用い、 $\alpha' = 4.34$  として計算した。

In ( $\nu = 3$ ) は、文献 [82] 中の  $\lambda = 30$  nm を用い、 $\alpha' = 3.665$  として計算した。

## 付録B $\Delta T_c$ の平行磁場依存性の導出

本研究では、空間反転対称性の破れた2次元超伝導の理論として、文献[47]に基づいて、超伝導転移温度の変化量  $\Delta T_c$  の平行磁場依存性について考察した。しかし、文献[47]では  $\Delta T_c$  の磁場依存性の式は与えられていないため、計算を拡張し、理論式を導いた。ここでは、その詳細を述べる。

本研究の系は、文献[47]の非磁性不純物がある場合(第VIII章とAppendix D)に該当する。短距離型の弱い不純物ポテンシャル  $u(\mathbf{r}) = u\delta(\mathbf{r})$  が仮定されているが、格子欠陥による散乱も同じ形で表わされるはずである。不純物密度  $n_{imp}$  として、散乱時間  $\tau$  は  $\tau^{-1} = 2\pi n_{imp} u^2 \nu(\epsilon_F) T$  で決まる。ここでは、文献[47]と同じく、Rashba スピン分裂の大きさ  $\Delta_R$  も、散乱確率  $\hbar\tau^{-1}$  も、超伝導エネルギーギャップよりずっと大きく、フェルミエネルギー  $\epsilon_F$  よりずっと小さい ( $k_B T_{c0} \ll \Delta_R, \hbar\tau^{-1} \ll \epsilon_F$ ) 場合を考える。

文献[47]では、単位系は  $\hbar = k_B = \mu_B = 1$  になっており、ここでは、同じ形で計算し、最後に単位系を戻す。

松原周波数 (Matsubara Frequency)  $\omega = 2\pi(n + \frac{1}{2})T$  (ただし、 $n = 1, 2, 3, \dots$  かつ  $\omega < \omega_D$ ) を用い、超伝導転移温度は、文献[47]中の式(29)により、

$$T_{c0} = \frac{2\omega_D}{\pi} \exp\left(-\frac{1}{\nu(\epsilon_F)U(0)} + \gamma\right) \quad (\text{B.1})$$

と表わされており、これと梯子型ダイヤグラム (ladder diagram) の合計  $C$  が  $C = U(0)^{-1}$  となることから、

$$\frac{1}{\nu(\epsilon_F)U(0)} = \pi T \max_q \sum_{\omega>0} K(\omega, H_+, H_-, \frac{1}{2\tau}) \quad (\text{B.2})$$

となるカーネル  $K$  を計算する。ここで、 $\gamma$  は、一般にオイラー定数と呼ばれ、

$$\gamma \equiv \lim_{n \rightarrow \infty} \left( \sum_{k=1}^n \frac{1}{k} - \log n \right) \quad (\text{B.3})$$

で定義され、 $\gamma = 0.577\dots$  である。 $e^\gamma = 1.78$  で与えられている文献もある。

前提となっているハミルトニアンは、

$$\hat{H}_{int} = \frac{1}{V} \sum_i \sum_{\mathbf{p}, \mathbf{p}'} u e^{-i(\mathbf{p}-\mathbf{p}')\mathbf{R}_i} a_{\mathbf{p}\lambda}^+ M_{\lambda\mu}(\mathbf{p}, \mathbf{p}') a_{\mathbf{p}'\mu}, \quad (\text{B.4})$$

で与えられている。ここで、

$$M_{\lambda\mu}(\mathbf{p}, \mathbf{p}') = \frac{1}{2} \left( 1 + \lambda\mu e^{i(\varphi_p - \varphi_{p'})} \right) \quad (\text{B.5})$$

は、散乱角と等しい分だけ電子スピンの角度を変える行列に対応する。非磁性不純物が存在する金属の準古典型グリーン関数は、 $\xi_\lambda(\mathbf{p}) = p^2/2m - \lambda\alpha p_F - \mu$  として

$$G_\lambda(\omega, \mathbf{p}) = \frac{1}{i\omega - \xi_\lambda(\mathbf{p}) - \lambda H \sin \varphi_p + \frac{i}{2\tau} \text{sgn } \omega} \quad (\text{B.6})$$

で与えられている。

文献 [47] では、Rashba スピン分裂が散乱確率に比べて非常に大きい ( $\Delta_R \gg \hbar\tau^{-1}$ ) 場合を考えているため、2つの電子のカイラリティが異なる場合が無視でき、その寄与は計算されていない。つまり、散乱前後の2つの電子のカイラリティが共通の場合しか計算されていない。ここでは、散乱の前後で、2つの電子のカイラリティが異なる場合を無視せず、計算した。そのため、 $\theta \equiv \varphi_p - \varphi_{p'}$  として、文献 [47] で与えられている不純物線 (impurity line) の解析的表現

$$V_{\lambda\mu}(\varphi_p, \varphi_{p'}) = \frac{1}{8\pi\tau\nu(\epsilon_F)} (1 + \lambda\mu e^{i\theta})^2 \quad (\text{B.7})$$

を、

$$V'_{\lambda_1\lambda_2\mu_1\mu_2}(\varphi_p, \varphi_{p'}) = \frac{1}{8\pi\tau\nu(\epsilon_F)} (1 + \lambda_1\mu_1 e^{i\theta})(1 + \lambda_2\mu_2 e^{i\theta}) \quad (\text{B.8})$$

に拡張する。

また、文献 [47] で「クーパーブロック (Cooper block)」と呼ばれている2つのグリーン関数の積分も拡張して、

$$C'_{\lambda_1\lambda_2}(\omega, \sin \varphi_p) = \begin{cases} C_\lambda(\omega, \sin \varphi_p) & \lambda_1 = \lambda_2 = \lambda \\ D_{\lambda_1\lambda_2}(\omega, \sin \varphi_p) & \lambda_1 \neq \lambda_2 \end{cases} \quad (\text{B.9})$$

とする。2つの電子のカイラリティが共通の場合は、文献 [47] と同じく、

$$C_\lambda(\omega, \sin \varphi_p) = \nu_\lambda(\epsilon_F) \int_{-\infty}^{\infty} d\xi G_\lambda \left( \omega, \mathbf{p} + \frac{\mathbf{q}}{2} \right) G_\lambda \left( -\omega, -\mathbf{p} + \frac{\mathbf{q}}{2} \right) = \frac{i\pi\nu_\lambda(\epsilon_F)}{i\bar{\omega} - H_\lambda \sin \varphi_p} \quad (\text{B.10})$$

である。ここで、 $\bar{\omega} = \omega + \text{sgn } \omega/2\tau$ 、 $H_\lambda = \lambda H + v_F Q/2$ 、 $\nu_\lambda(\epsilon_F) = \nu(\epsilon_F)(1 + \lambda\alpha/v_F)$  である。2つの電子のカイラリティが異なる場合は、

$$D_{+-}(\omega, \sin \varphi_p) = \nu_\lambda(\epsilon_F) \int_{-\infty}^{\infty} d\xi G_+ \left( \omega, \mathbf{p} + \frac{\mathbf{q}}{2} \right) G_- \left( -\omega, -\mathbf{p} + \frac{\mathbf{q}}{2} \right) = \frac{i\pi\nu_\lambda(\epsilon_F)}{i\bar{\omega} + \alpha p_F} \quad (\text{B.11})$$

$$D_{-+}(\omega, \sin \varphi_p) = \nu_\lambda(\epsilon_F) \int_{-\infty}^{\infty} d\xi G_- \left( \omega, \mathbf{p} + \frac{\mathbf{q}}{2} \right) G_+ \left( -\omega, -\mathbf{p} + \frac{\mathbf{q}}{2} \right) = \frac{i\pi\nu_\lambda(\epsilon_F)}{i\bar{\omega} - \alpha p_F} \quad (\text{B.12})$$

で与える。  $D_{\lambda_1, \lambda_2}(\omega, \sin \varphi_{\mathbf{p}})$  は Rashba スピン分裂が散乱確率に比べて大きい ( $\Delta_R \gg \hbar\tau^{-1}$ ) 場合、0 となる。

これに合わせて  $n$  番目の梯子型ダイアグラムから  $n+1$  番目の梯子型ダイアグラムを求める式も

$$L_{\lambda_{n+1}}^{n+1}(\omega, \varphi_{\mathbf{p}_{n+1}}) = \sum_{\lambda_n} \int \frac{d\varphi_{\mathbf{p}_n}}{2\pi} L_{\lambda_n}^n(\omega, \varphi_{\mathbf{p}_n}) C_{\lambda_n}(\omega, \sin \varphi_{\mathbf{p}_n}) V_{\lambda_n, \lambda_{n+1}}(\varphi_{\mathbf{p}_n}, \varphi_{\mathbf{p}_{n+1}}) \quad (\text{B.13})$$

から

$$L_{\lambda_1^{n+1}, \lambda_2^{n+1}}^{m+1}(\omega, \varphi_{\mathbf{p}_{n+1}}) = \sum_{\lambda_1^n} \sum_{\lambda_2^n} \int \frac{d\varphi_{\mathbf{p}_n}}{2\pi} L_{\lambda_1^n, \lambda_2^n}^m(\omega, \varphi_{\mathbf{p}_n}) C'_{\lambda_1^n, \lambda_2^n}(\omega, \sin \varphi_{\mathbf{p}_n}) V'_{\lambda_1^n, \lambda_2^n, \lambda_1^{n+1}, \lambda_2^{n+1}}(\varphi_{\mathbf{p}_n}, \varphi_{\mathbf{p}_{n+1}}) \quad (\text{B.14})$$

に拡張する。文献 [47] 中で与えられている解

$$L_{\lambda_n}^n(\omega, \varphi_{\mathbf{p}_n}) = \{l_n^0(\lambda_n, \omega) + l_n^1(\lambda_n, \omega) \sin \varphi_{\mathbf{p}_n}\} e^{-i\varphi_{\mathbf{p}_n}} \quad (\text{B.15})$$

を参考にして、

$$L_{\lambda_1^n, \lambda_2^n}^m(\omega, \varphi_{\mathbf{p}_n}) = \begin{cases} \{l_n^0(\lambda_n, \omega) + l_n^1(\lambda_n, \omega) \sin \varphi_{\mathbf{p}_n}\} e^{-i\varphi_{\mathbf{p}_n}} & \lambda_1^n = \lambda_2^n = \lambda_n \\ l_n'(\lambda_1^n, \lambda_2^n, \omega) \cos \varphi_{\mathbf{p}_n} e^{-i\varphi_{\mathbf{p}_n}} & \lambda_1^n \neq \lambda_2^n \end{cases} \quad (\text{B.16})$$

と仮定すると、6-ベクトル

$$\vec{l}_n^T = (l_n^0(+), l_n^1(+), l_n^0(-), l_n^1(-), l_n'(+, -), l_n'(-, +)) \quad (\text{B.17})$$

と  $6 \times 6$  行列  $\hat{R}'$  を用いて

$$\vec{l}_{n+1}^T = \hat{R}' \vec{l}_n^T, \quad (\text{B.18})$$

のように書くことができる。

ここで、簡単のため、 $j = 0, 1, 2$  として、

$$I_\lambda^j = \frac{1}{4\tau} \int_0^{2\pi} \frac{d\varphi}{2\pi} \frac{i \sin^j \varphi}{i\bar{\omega} - H_\lambda \sin \varphi} \quad (\text{B.19})$$

と

$$J_\lambda^j = \frac{1}{4\tau} \int_0^{2\pi} \frac{d\varphi}{2\pi} \frac{i \cos^j \varphi}{i\bar{\omega} + \lambda\alpha p_F} \quad (\text{B.20})$$



を導入し、計算しておく、

$$I_\lambda^0 = \frac{1}{4\tau} \frac{1}{\sqrt{\bar{\omega}^2 + H_\lambda^2}} \quad (\text{B.21})$$

$$I_\lambda^1 = \frac{1}{4\tau} \frac{i}{H_\lambda} \left( \frac{|\bar{\omega}|}{\sqrt{\bar{\omega}^2 + H_\lambda^2}} - 1 \right) \quad (\text{B.22})$$

$$I_\lambda^2 = -\frac{1}{4\tau} \frac{|\bar{\omega}|}{H_\lambda^2} \left( \frac{|\bar{\omega}|}{\sqrt{\bar{\omega}^2 + H_\lambda^2}} - 1 \right) \quad (\text{B.23})$$

$$J_\lambda^0 = \frac{1}{4\tau} \frac{i}{i\bar{\omega} + \lambda\alpha p_F} \quad (\text{B.24})$$

$$J_\lambda^1 = 0 \quad (\text{B.25})$$

$$J_\lambda^2 = \frac{1}{8\tau} \frac{i}{i\bar{\omega} + \lambda\alpha p_F} \quad (\text{B.26})$$

となる。これらを用いて、 $6 \times 6$  行列  $\hat{R}'$  を計算すると、

$$\hat{R}' = \begin{pmatrix} I_+^0 & I_+^1 & -I_-^0 & -I_-^1 & 0 & 0 \\ I_+^1 & I_+^2 & I_-^1 & I_-^2 & iJ_+^2 & iJ_-^2 \\ -I_+^0 & -I_+^1 & I_-^0 & I_-^1 & 0 & 0 \\ I_+^1 & I_+^2 & I_-^1 & I_-^2 & iJ_+^2 & iJ_-^2 \\ -iI_+^1 & -iI_+^2 & -iI_-^1 & -iI_-^2 & J_+^2 & J_-^2 \\ -iI_+^1 & -iI_+^2 & -iI_-^1 & -iI_-^2 & J_+^2 & J_-^2 \end{pmatrix} \quad (\text{B.27})$$

を得る。

これらから  $n = 0, 1, 2, \dots$  の梯子型ダイヤグラムの合計  $C$  が計算でき、

$$C = T \sum_{\omega>0} \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{\lambda_1^n} \sum_{\lambda_2^n} \int_0^{2\pi} \frac{d\varphi_{\mathbf{p}_n}}{2\pi} L_{\lambda_1^n, \lambda_2^n}^m(\omega, \varphi_{\mathbf{p}_n}) C'_{\lambda_1^n, \lambda_2^n}(\omega, \sin \varphi_{\mathbf{p}_n}) \lambda_1^n e^{i\varphi_{\mathbf{p}_n}} \quad (\text{B.28})$$

$$= T \sum_{\omega>0} \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{\lambda_n} \int_0^{2\pi} \frac{d\varphi_{\mathbf{p}_n}}{2\pi} (I_n^0(\lambda_n, \omega) + I_n^1(\lambda_n, \omega) \sin \varphi_{\mathbf{p}_n}) C_{\lambda_n}(\omega, \sin \varphi_{\mathbf{p}_n}) \lambda_n \quad (\text{B.29})$$

$$= 4\pi\tau\nu(\epsilon_F) T \sum_{\omega>0} \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{\lambda} \lambda (I_n^0(\lambda) I_\lambda^0 + I_n^1(\lambda) I_\lambda^1) \quad (\text{B.30})$$

$$= 4\pi\tau\nu(\epsilon_F) T \sum_{\omega>0} \vec{I}^T \cdot (1 - \hat{R}')^{-1} \cdot \vec{I}_0 \quad (\text{B.31})$$

となる。ここで、 $\sum_{n=0}^{\infty} \hat{R}'^n = (1 - \hat{R}')^{-1}$  を用いた。また、文献 [47] の初期条件と同じになるよう  $\vec{I}_0^T = (1, 0, -1, 0, 0, 0)$  と  $\vec{I}^T = (I_+^0, I_+^1, -I_-^0, -I_-^1, 0, 0)$  を導入した。フェルミエネルギーが大きい ( $\alpha p_F \ll \epsilon_F$ ) という仮定から、文献 [47] と同じように  $\nu_\lambda(\epsilon_F)$  の違いは無視した。

すると、式 (B.2) から

$$K(\omega) = 4\tau \frac{I_s^0 [1 - I_s^2 - J] + (I_a^1)^2}{(1 - I_s^0) [1 - I_s^2 - J] - (I_a^1)^2} \quad (\text{B.32})$$

となる。ここで、単位系も戻し、 $h_{\parallel} = \mu_B H / \hbar$  として、各項を  $\omega\tau \ll 1$  と  $\mathbf{q} \rightarrow 0$  のもとで近似計算すると、

$$I_s^0 = I_+^0 + I_-^0 = 1 - 2\tau^2 h_{\parallel}^2 \quad (\text{B.33})$$

$$I_a^1 = I_+^1 - I_-^1 = -i\tau h_{\parallel} \quad (\text{B.34})$$

$$I_s^2 = I_+^2 + I_-^2 = \frac{1}{2} - \frac{3\tau^2 h_{\parallel}^2}{2} \quad (\text{B.35})$$

$$J = J_+^2 + J_-^2 = \frac{\hbar^2 \bar{\omega}}{4\tau \hbar^2 \bar{\omega}^2 + (\Delta_R/2)^2} = \frac{1}{\tau} \frac{\bar{\omega}}{4\bar{\omega}^2 + \Omega_R^2} \quad (\text{B.36})$$

であり、

$$K(\omega) = \frac{2(\omega\tau' + 1)}{\omega^2\tau' + \omega + 2\tau^* h_{\parallel}^2} \quad (\text{B.37})$$

となる。ここでである。式 (B.1) と式 (B.2) から、

$$\frac{T}{T_{c0}} = \exp \left[ -\frac{2\pi k_B T}{\hbar} \sum_{\omega>0} \frac{1}{\omega} \frac{2\tau^* h_{\parallel}^2}{\omega^2\tau' + \omega + 2\tau^* h_{\parallel}^2} \right] \quad (\text{B.38})$$

を得る。ここで、 $\tau' = 4/\Omega_R^2\tau$ 、 $\Omega_R = \hbar^{-1}\Delta_R$ 、

$$\tau^* = \left( 1 + \frac{1}{2\Omega_R^2\tau^2} \right) \tau \quad (\text{B.39})$$

を導入した。

式 (B.38) を  $T$  について解くと、 $T_c$  の平行磁場依存性が導ける。磁場が小さい ( $T_c \approx T_{c0}$ 、 $H_{\parallel} \ll H_c$ ) 場合、

$$T_c = T_{c0} - \frac{\pi\tau^* f(a)}{2k_B\hbar} (\mu_B H_{\parallel})^2 \quad (\text{B.40})$$

となる。ここで、

$$a = \frac{8\pi\hbar k_B T_{c0}}{\tau\Delta_R^2} \quad (\text{B.41})$$

として

$$f(a) = 1 - \frac{2a}{\pi^2} \left[ \psi \left( \frac{1}{2} + \frac{1}{a} \right) - \psi \left( \frac{1}{2} \right) \right] \quad (\text{B.42})$$

であり、 $\psi(x)$  は digamma 関数である。

## Rashba スピン分裂が非常に大きい場合

Rashba スピン分裂が散乱確率に比べて非常に大きい ( $\Delta_R \gg \hbar\tau^{-1}$ ) 場合

$$K(\omega) = \frac{2}{\omega + 2h_{\parallel}^2\tau} \quad (\text{B.43})$$

であり、式 (B.38) から、

$$\log\left(\frac{T}{T_{c0}}\right) = -\frac{2\pi k_B T}{\hbar} \sum_{\omega>0} \frac{2h_{\parallel}^2\tau}{\omega(\omega + 2h_{\parallel}^2\tau)} = -\psi\left(\frac{1}{2} + \eta\right) + \psi\left(\frac{1}{2}\right) \quad (\text{B.44})$$

となる。ここで、 $\eta = \frac{h_{\parallel}^2\hbar\tau}{\pi k_B T} = \frac{\mu_B^2 H^2 \tau}{\pi \hbar k_B T}$  である。

$$\eta \gg 1 \text{ のとき } \psi(\eta) \approx \log \eta \quad (\text{B.45})$$

$$\psi\left(\frac{1}{2}\right) = -\gamma - \log 4 \quad (\text{B.46})$$

より、絶対零度 ( $T \rightarrow 0$ ) を考えると臨界磁場

$$H_c = \frac{1}{\mu_B} \sqrt{\frac{\pi \hbar k_B T_{c0}}{4e^{\gamma}\tau}} \quad (\text{B.47})$$

が得られる。この結果は、文献 [47] と一致する。

磁場が小さい ( $T_c \approx T_{c0}$ 、 $H_{\parallel} \ll H_c$ ) 場合、

$$\eta \ll 1 \text{ のとき } \psi\left(\frac{1}{2} + \eta\right) - \psi\left(\frac{1}{2}\right) \approx \frac{\pi^2\eta}{2} \quad (\text{B.48})$$

より、

$$T_c = T_{c0} - \frac{\pi\tau}{2k_B\hbar} (\mu_B H_{\parallel})^2 \quad (\text{B.49})$$

が得られる。

# 付録C Pb単原子層膜の反弱局在効果

## C.1 弱局在効果の基礎知識

運動量  $\mathbf{k}$  で入射し、複数回の弾性散乱を繰り返した後、位相を保ったまま逆向きの運動量  $-\mathbf{k}$  で出ていく過程(後方散乱)を考える。後方散乱での、散乱行列要素と時間反転経路の散乱行列要素は、時間反転対称性によって等しい位相を持つことが保証される。この2つの過程は干渉し、強め合う。それ以外の無関係な経路とは、位相の関係がランダムであり、干渉しない。このため、後方散乱過程の確率のみが増し、電子は局在し、電気伝導度が減少する。これが弱局在効果である。

スピン軌道相互作用が強い系では、スピンの向きも考慮しなくてはならない。時間を反転させると、スピンも反転するので、時間反転過程の散乱行列要素は逆位相となる。そのため、後方散乱過程の確率は減る。これが反弱局在効果であり、弱局在効果とは逆に伝導度を増加させる効果をもたらす。

微視的な理論に基づく2次元系の(反)弱局在による伝導度の温度依存性は、

$$\sigma(T) - \sigma(T_0) = \frac{\beta b e^2}{2\hbar} \log\left(\frac{T}{T_0}\right) \quad (\text{C.1})$$

と計算される[83]。ここで、 $\beta$ は弱局在効果では1、反弱局在効果では-0.5、弱局在効果が起きない系では0の値を取る指数である。また、 $b$ は非弾性散乱時間の温度依存性( $\tau_\phi \propto T^{-b}$ )のべきで、電子-格子相互作用による散乱(フォノン散乱)では、2、電子-電子相互作用による散乱(e-e散乱)では、1の値を取る。一般的には、 $\beta$ は $\alpha$ 、 $b$ は $p$ で表記されることが多いが、ここでは間違えやすいのでこの表記にした。

また、垂直方向の磁場に対する伝導度補正項は、氷上-Larkin-長岡の公式[84]によって知られている。ここで、弾性散乱時間 $\tau$ 、非弾性散乱時間(位相緩和時間) $\tau_\phi$ 、位相緩和長 $l_\phi = \sqrt{D\tau_\phi}$ 、拡散係数

$$D = \frac{1}{d'} \frac{l_e^2}{\tau} \quad (\text{C.2})$$

を用いて、

$$B_\phi = \frac{\hbar}{4eD\tau_\phi} \quad (\text{C.3})$$

を定義する。なお、 $d'$  は系の次元である。非弾性散乱時間がスピン軌道散乱時間と弾性散乱時間より大きい ( $\tau_\phi \gg \tau, \tau_{so}$ ) の場合、垂直方向の磁場に対する伝導度補正項は、

$$\Delta\sigma(B) = \frac{\beta e^2}{2\pi^2 \hbar} \left( \psi \left( \frac{1}{2} + \frac{B_\phi}{B} \right) - \log \left( \frac{B_\phi}{B} \right) \right) \quad (\text{C.4})$$

となる。スピン軌道相互作用が強い系での反弱局在効果は、式 (C.4) でよく説明されている [85, 86]。

## C.2 実験結果

Pb 単原子層膜では、スピン軌道相互作用が強いため、反弱局在効果が現れているはずである。(反)弱局在効果は、フォノン散乱と e-e 散乱がなくなる低温の方が見えやすいが、温度が低すぎると超伝導状態になってしまう。また、伝導度の温度依存性から判断しようとして、3.4 節で紹介したように、温度を上げすぎると、薄膜の構造が変化し、抵抗値も変化するため、議論できない。そのため、超伝導揺らぎが十分に消え、フォノン散乱と e-e 散乱が無視できるくらいの低温と考えられる 10 K で、常伝導状態での面抵抗の垂直磁場依存性を測定した。図 C.1 に実験結果を示す。なお、超伝導転移温度は 1.1 K であった。

図 C.2 に、ゼロ磁場からの電気伝導の変化量に直した結果を示す。この単原子層での常伝導状態の面抵抗から見積もった散乱時間  $\tau_{RN}$  は 1.7 fs である。超伝導転移温度の平行磁場依存性は時間的制約から測定しなかったため、他の Pb 単原子層膜と同じ割合 ( $\tau_{so}^{-1}/\tau_{RN}^{-1} \sim 0.8$ ) からスピン軌道散乱時間  $\tau_{so}$  を見積もると、2.2 fs である。Si (111) 上の Pb 単原子層膜の先行研究では、非弾性散乱時間  $\tau_\phi$  は 2 ps である [87]。そのため、非弾性散乱時間がスピン軌道散乱時間と弾性散乱時間より大きい ( $\tau_\phi \gg \tau, \tau_{so}$ ) として、式 (C.4) でフィットした (図 C.2 中では赤い点線)。その結果、 $\beta = -0.51$ 、位相緩和長  $l_\phi = 12$  nm となった。バルクでのフェルミ速度  $v_F = 1.83 \times 10^6$  m/s、弾性散乱時間  $\tau$  として  $\tau_{RN}$  を用いると、弾性散乱長  $l_e = v_F \tau = 3.1$  nm、拡散係数  $D = 2.8 \times 10^{-3}$  m<sup>2</sup>/s、非弾性散乱時間  $\tau_\phi = 51$  fs となった。温度や膜厚といったパラメータを変化させたり、In 単原子層膜でのデータがないので、あまり議論できないが、 $\beta \approx -0.5$  であるので、Pb 単原子層膜において反弱局在効果が観測できたと考えても矛盾しない。

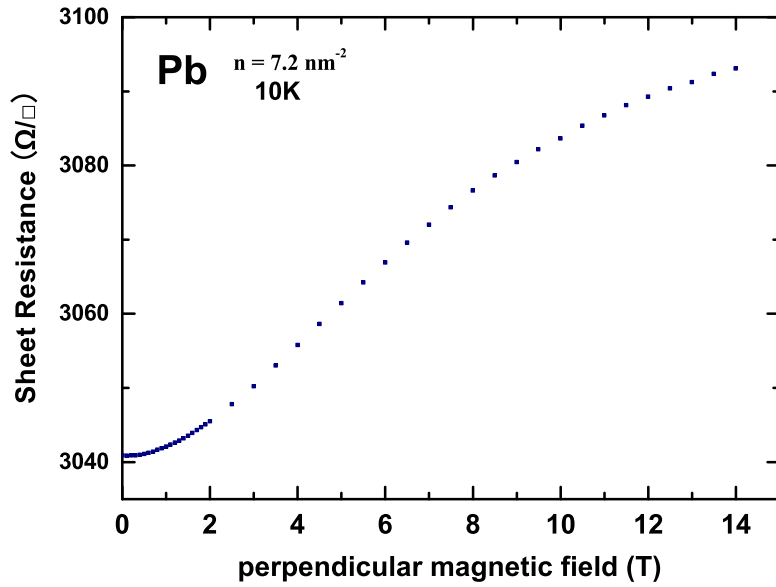


図 C.1: 10 K での面密度  $7.2 \text{ nm}^{-2}$  の Pb 単原子層膜の面抵抗の垂直磁場依存性

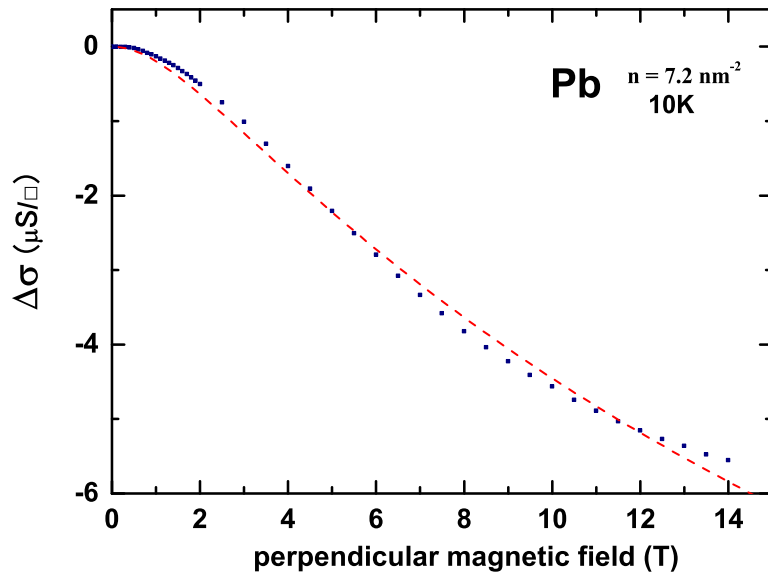


図 C.2: 10 K での面密度  $7.2 \text{ nm}^{-2}$  の Pb 単原子層膜の伝導度変化の垂直磁場依存性 (赤い点線は式 (C.4) でのフィット)

## 参考文献

- [1] 吉田貞史 「応用物理工学選書 薄膜」 培風館 (1990).
- [2] M. Strongin, R. S. Thompson, O. F. Kammerer and J. E. Crow *Physical Review B* **1**, 1078 (1970).
- [3] D. B. Haviland, Y. Liu, and A. M. Goldman, *Physical Review Letters* **62**, 2180 (1989).
- [4] B. G. Orr, H. M. Jaeger, and A. M. Goldman, *Physical Review B* **32**, 7586 (1986).
- [5] A. Frydman, *Physica C* **391**, 189 (2003).
- [6] A. M. Goldman, and N. Marković, *Physics Today* **51**, 39 (1998).
- [7] A. M. Goldman, *Physica E* **18**, 1 (2003).
- [8] V. F. Gantmakher, and V. T. Dolgoplov, *Physics Uspekhi* **53**, 3 (2010).
- [9] Y. Guo, Y. F. Zhang, X. Y. Bao, T. Z. Han, Z. Tang, L. X. Zhang, W. G. Zhu, E. G. Wang, Q. Niu, Z. Q. Qiu, J. F. Jia, Z. X. Zhao, and Q. K. Xue, *Science* **306**, 1915 (2004).
- [10] D. Eom, S. Qin, M. Y. Chou, and C. K. Shih, *Physical Review Letters* **96**, 027005 (2006).
- [11] M. M. Özer, J. R. Thompson, and H. H. Weitering, *Nature Physics* **2**, 173 (2006).
- [12] M. M. Öezer, Y. Jia, Z. Zhang, J. R. Thompson, and H. H. Weitering, *Science* **316**, 1594 (2007).
- [13] T. Nishio, T. An, A. Nomura, K. Miyachi, T. Eguchi, H. Sakata, S. Lin, N. Hayashi, N. Nakai, M. Machida, and Y. Hasegawa, *Physical Review Letters* **101**, 167001 (2008).
- [14] C. Brun, I. P. Hong, F. Patthey, I. Y. Sklyadneva, R. Heid, P. M. Echenique, K. P. Bohnen, E. V. Chulkov, and W.-D. Schneider, *Physical Review Letters* **102**, 207002 (2009).

- [15] S. Qin, J. Kim, Q. Niu, and C.-K. Shih, *Science* **324**, 1314 (2009).
- [16] T. Zhang, P. Cheng, W. J. Li, Y. J. Sun, G. Wang, X. G. Zhu, K. He, L. L. Wang, X. C. Ma, X. Chen, Y. Y. Wang, Y. Liu, H. Q. Lin, J. F. Jia, and Q. K. Xue, *Nature Physics* **6**, 104 (2010).
- [17] T. Uchihashi, P. Mishra, M. Aono, and T. Nakayama, *Physical Review Letters* **107**, 207001 (2011).
- [18] C. K. Shih and G. A. Fiete, *Physics* **4**, 92 (2011).
- [19] M. Yamada, T. Hirahara, and S. Hasegawa, *Physical Review Letters* **110**, 237001 (2013).
- [20] S. Hasegawa and S. Ino, *International Journal of Modern Physics. B* **07**, 3817 (1993).
- [21] J. Kraft, S. L. Surnev, and F. P. Netzer, *Surface Science* **340**, 36 (1995).
- [22] J. W. Park and M. H. Kang, *Physical Review Letters* **109**, 166102 (2012).
- [23] E. I. Rashba, *Soviet Physics Solid State* **2**, 1109 (1960).
- [24] Yu. A. Bychkov and E. I. Rashba, *JETP Letters* **39**, 78 (1984).
- [25] S. LaShell, B. A. McDougall, and E. Jensen, *Physical Review Letters* **77**, 3419 (1996).
- [26] M. Hochstrasser, J. G. Tobin, E. Rotenberg, and S. D. Kevan, *Physical Review Letters* **89**, 216802 (2002).
- [27] Y. M. Koroteev, G. Bihlmayer, J. E. Gayone, E. V. Chulkov, S. Blugel, P. M. Echenique, and P. Hofmann, *Physical Review Letters* **93**, 046403 (2004).
- [28] I. Gierz, T. Suzuki, E. Frantzeskakis, S. Pons, S. Ostanin, A. Ernst, J. Henk, M. Grioni, K. Kern, and C. R. Ast, *Physical Review Letters* **103**, 046803 (2009).
- [29] S. Hatta, T. Aruga, Y. Ohtsubo, and H. Okuyama, *Physical Review B* **80**, 113309 (2009).
- [30] K. Sakamoto, H. Kakuta, K. Sugawara, K. Miyamoto, A. Kimura, T. Kuzumaki, N. Ueno, E. Annese, J. Fujii, A. Kodama, T. Shishidou, H. Namatame, M. Taniguchi, T. Sato, T. Takahashi, and T. Oguchi, *Physical Review Letters* **103**, 156801 (2009).
- [31] K. Yaji, Y. Ohtsubo, S. Hatta, H. Okuyama, K. Miyamoto, T. Okuda, A. Kimura, H. Namatame, M. Taniguchi, and T. Aruga, *Nature Communications* **1**, 17 (2010).



- [32] S. Datta and B. Das, *Applied Physics Letters* **56**, 665 (1990).
- [33] E. Bauer, G. Hilscher, H. Michor, Ch. Paul, E. W. Scheidt, A. Griбанov, Yu. Seropegin, H. Noel, M. Sigrist, and P. Rogl, *Physical Review Letters* **92**, 027003 (2004).
- [34] N. Kimura, K. Ito, K. Saitoh, Y. Umeda, and H. Aoki, *Physical Review Letters* **95**, 047004 (2005).
- [35] K. Togano<sup>1</sup>, P. Badica, Y. Nakamori, S. Orimo, H. Takeya, and K. Hirata *Physical Review Letters* **93**, 047004 (2007).
- [36] 林 伸彦 · M. Sigrist, 固体物理 **41**, 631 (2006).
- [37] 藤本 聡, 日本物理学会誌 **63**, 18 (2008).
- [38] Ernst Bauer, Manfred Sigrist, 「Non-centrosymmetric Superconductors : Introduction and Overview」 Springer (2012).
- [39] N. Kimura, K. Ito, H. Aoki, S. Uji and T. Terashima, *Physical Review Letters* **98**, 197001 (2007).
- [40] Y. Okuda, Y. Miyauchi, Y. Ida, Y. Takeda, C. Tonohiro, Y. Oduchi, T. Yamada, N. D. Dung, T. D. Matsuda, Y. Haga, T. Takeuchi, M. Hagiwara, K. Kindo, H. Harima, K. Sugiyama, R. Settai, and Y. Onuki, *Journal of the Physical Society of Japan* **76**, 044708 (2007).
- [41] V. M. Edelstein, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **95**, 2151 (1989) [*Soviet Physics JETP* **68**, 1244 (1989)].
- [42] L. P. Gor'kov and E. I. Rashba, *Physical Review Letters* **87**, 037004 (2001).
- [43] P. Fulde and R. A. Ferrell, *Physical Review* **135**, A550 (1964).
- [44] A. I. Larkin and Yu. N. Ovchinnikov, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **47**, 1136 (1964) [*Soviet Physics JETP* **20**, 762 (1965)].
- [45] V. Barzykin and L. P. Gor'kov, *Physical Review Letters* **89**, 227002 (2002).
- [46] O. V. Dimitrova and M. V. Feigel'man, *JETP Letters* **78**, 637 (2003).
- [47] O. Dimitrova and M. V. Feigel'man, *Physical Review B* **76**, 014522 (2007).
- [48] 関原 貴之, 修士論文 (2011).

- [49] Y. Tsuji, T. Mochizuki, and T. Okamoto, *Applied Physics Letters* **87**, 062103 (2005).
- [50] T. Mochizuki, R. Masutomi, and T. Okamoto, *Physical Review Letters* **101**, 267204 (2008).
- [51] T. Okamoto, T. Mochizuki, M. Minowa, K. Komatsuzaki, and R. Masutomi, *Journal of Applied Physics* **109**, 4 (2011).
- [52] R. Masutomi, M. Hio, T. Mochizuki, and T. Okamoto, *Applied Physics Letters* **90**, 202104 (2007).
- [53] 山本 覚, 修士論文 (2009).
- [54] L. Eckertova 「Physics of Thin films 2nd ed.」 PLENUM PRESS (1986).
- [55] Scientific Instruments Inc.  
([http://www.scientificinstruments.com/tempensors\\_ro600.html](http://www.scientificinstruments.com/tempensors_ro600.html))
- [56] M. P. A. Fisher, *Physical Review Letters* **65**, 923 (1990).
- [57] 三宅 貴大, 修士論文 (2014).
- [58] M. Tinkham 「Introduction to Superconductivity 2nd ed.」 McGraw Hill Inc. (1996).
- [59] A. M. Clogston, *Physical Review Letters* **9**, 266 (1962).
- [60] B. S. Chandrasekhar, *Applied Physics Letters* **1**, 7 (1962).
- [61] B. Sacépé, C. Chapelier, T. I. Baturina, V. M. Vinokur, M. R. Baklanov, and M. Sanquer, *Physical Review Letters* **101**, 157006 (2008).
- [62] 家 泰弘 「朝倉物性物理シリーズ5 超伝導」 朝倉書店 (2005).
- [63] K. Maki, *Physical Review* **148**, 362 (1966).
- [64] R. A. Klemm, A. Luther, and M. R. Beasley, *Physical Review B* **12**, 877 (1975).
- [65] B. I. Belevtsev, Y. F. Komnik, and E. Y. Beliayev, *Physical Review B* **58**, 8079 (1998).
- [66] G. Bihlmayer, S. Blugel, and E. V. Chulkov, *Physical Review B* **75**, 195414 (2007).
- [67] J. H. Dil, F. Meier, J. L.-Checa, L. Patthey, G. Bihlmayer, and J. Osterwalder, *Physical Review Letters* **101**, 266802 (2008).

- [68] Igor Žutic, Jaroslav Fabian, and S. Das Sarma, *Review of Modern Physics* **76**, 323 (2004).
- [69] L. Petersen, and P. Hedegård, *Surface Science* **459**, 49 (2000).
- [70] V. Heera, J. Fiedler, M. Voelskow, A. Mücklich, R. Skrotzki, T. Herrmannsdörfer, and W. Skorupa, *Applied Physics Letters* **100**, 262602 (2012).
- [71] O. Crauste, F. Couedo, L. Bergé, C. Marrache, and L. Dumoulin, *Journal of Physics: Conference Series* **400**, 022012 (2012).
- [72] O. Crauste, A. Gentils, F. Couedo, Y. Dolgorouky, L. Bergé, S. Collin, C. A. M.-Kikuchi, and L. Dumoulin, *Physical Review B* **87**, 144514 (2013).
- [73] B. I. Halperin, and D. R. Nelson, *Journal of Low Temperature Physics* **36**, 599 (1979).
- [74] H. S. J. van der Zant, M. N. Webster, J. Romijin, and J. E. Mooiji, *Physical Review B* **50**, 340 (1994).
- [75] N. Nishida, T. Fujiki, K. Okada, and H. Ikeda, *Physica B* **284**, 1950 (2000).
- [76] R. Masutomi, T. Ito, and N. Nishida, *Physica E* **29**, 624 (2005).
- [77] H. J. Gardner, A. Kumar, L. Yu, P. Xiong, M. P. Warusawithana, L. Wang, O. Vafek, and D. G. Schlom, *Nature Physics* **7** 895 (2011).
- [78] 鳥山 順丘, 修士論文 (2014).
- [79] 一ノ宮 弘樹, 修士論文 (2014).
- [80] 佐藤 昌利, *固体物理* **46**, 399 (2011).
- [81] R. F. Gaparovic and W. L. McLean, *Physical Review B* **2**, 2519 (1970).
- [82] V. Kozhevnikov, A. Suter, H. Fritzsche, V. Gladilin, A. Volodin, T. Moorkens, M. Trekels, J. Cuppens, B. M. Wojek, T. Prokscha, E. Morenzoni, G. J. Nieuwenhuys, M. J. Van Bael, K. Temst, C. V. Haesendonck, and J. O. Indekeu, *Physical Review B* **87**, 104508 (2013).
- [83] 長岡 洋介, 安藤 恒也, 高山 一 「現代物理学叢書 局在・量子ホール効果・密度波」 岩波書店 (2000).
- [84] S. Hikami, A. I. Larkin, and Y. Nagaoka, *Progress of Theoretical Physics* **63**, 707 (1980).

- [85] J. Wang, A. M. DaSilva, C. Chang, K. He, J. K. Jain, N. Samarth, X. Ma, Q. Xue, and M. H. W. Chan, *Physical Review B* **83**, 245438 (2011).
- [86] H. He, G. Wang, T. Zhang, I. Sou, G. K. LWong, J. Wang, H. Lu, S. Shen, and F. Zhang, *Physical Review Letters* **106**, 166805 (2011).
- [87] O. Pfennigstorf, A. Petkova, H. L. Guenter, and M. Henzler, *Physical Review B*, **65**, 045412 (2002).

## 謝辞

多くの人達の支えにより、ここまで研究を進めることができました。ここに感謝の言葉を述べさせていただきます。

岡本徹准教授には、実験の技術から物理の考え方まで、非常に多くのことを教えていただきました。実験現場に頻繁に足を運び、常に学生との近い距離を保とうとしていただいたおかげで、気軽に質問したり、アドバイスをいただいたりすることができました。学問についてのみならず、昼食やコーヒータイムでの雑談もおもしろかったです。自由な雰囲気の研究させていただき、自分の考えで研究を進めることができました。

枡富龍一助教には研究で困ったことなどの相談をさせていただき、そのつどの確なアドバイスをもらえました。常ににこやかで、気さくな兄貴分という感じで、そこにいただけで場が和みました。また、枡富さんが酒好きのおかげで、頻繁に飲み会が開かれ、研究室全体の雰囲気の向上に繋がっていたと思います。

佐々木恒平さんとは実験上の関わりは少なかったですが、博士課程の先輩として、私は修士のときから大きく刺激を受けていました。

素晴らしい後輩に恵まれ、楽しい研究室生活を送ることができました。

千葉奨君、鳥山順丘君、須藤香奈美さんとは研究テーマこそ違いましたが、研究に対する考え方から人生観まで様々な価値観があるということを学ばせていただきました。ともに過ごした2年間は非常に充実していました。根がまともな千葉君ならどこでも活躍できると思います。鳥山君にはまったりとした人生を歩む夢を叶えて欲しいです。須藤さんも新社会人としてまだ大変だと思いますが、須藤さんなら今後も自分で努力し続けることができると思います。

花塚真大君は、独自の物理のセンスを持っており、よく物理の議論をしました。また、研究の合間に趣味の話ができました。今後の研究も頑張ってください。素晴らしい研究をしてくれるものと期待しています。

一ノ宮弘樹君と三宅貴大君は、同じGaAs劈開表面の超伝導の研究をしたため、接点が多かったと思います。一ノ宮君はSTM/STSを、三宅君は他種金属での電気伝導をやってくれました。2人の結果は私の研究にも大いに参考になりました。失敗ばかりの実験にも関わらず、2人ともめげずにやってくれました。一ノ宮君は、雑談のネタを豊富に持ち、とても楽しかったです。三宅君とは、仕事観から教育論まで多岐にわたる話ができ、おもしろかったです。2人の就職先での活躍を期待しています。また飲みましょう。

北垣育大君と村上綾さんも、GaAs劈開表面の超伝導の研究をさらに進めるため、

私が最後に面倒を見ることになりました。北垣君は私よりいつも早く来て、意識の高さを示してくれましたが、あまり成果に結び付けてあげることができなかった気がします。研究とはうまくいかないものであるということを知れば、それでよしということにさせてください。村上さんは急に環境が変わって大変だったと思いますが、明るく実験してくれました。1年間で全てを教えられたとは思えませんが、私がいなくても北垣君と村上さんなら何とかできると思っています。

OBの方々にも相変わらずお世話になりました。小松崎一成さんをはじめ、同じ同期として2年間ともに研究した田邊裕貴君と安田一平君、さらに、福山研の川端一成さん、河合直樹さんとは、卒業後も幾度となくいっしょに飲む機会があり、社会の厳しさを教えていただきました。小松崎さんには、私がM1の時お世話になり、その教えはずっと生きていました。自分が後輩の面倒をみる立場になった時、小松崎さんの先輩としての偉大さが分かりました。望月敏光博士、高瀬恵子博士には学会などでお会いすることがあり、そのお話は、博士取得後の進路の参考になりました。アカデミックの世界に残っている数少ない岡本研OB/OGで、博士過程での就職活動というものを見られなかった私には貴重な存在でした。山本覚さんには、会社に誘っていただいて本当に感謝しています。松尾君が京都でも活躍している様子は、私にも励みになりました。一緒に飲めるのが、学会へ行く度に楽しみでした。

京都大学の藤本聡准教授には、ヘリカル相について質問させていただきました。小形研の金尾君とは、私の研究の超伝導について議論し、FFLO超伝導を教えてくださいました。

小林信雄さんを筆頭に、北原商事株式会社の方々には、研究に必要なものを納品していただきました。何でも迅速に取り寄せてもらえ、大変お世話になりました。小林さんが余生を健やかに過ごすことをお祈りしています。

アルバイトとして研究の傍ら塾講師をすることになり、誘ってくれた福永や見上君をはじめ他の同僚とともに良い経験を積むことができました。保護者の方々にも大変お世話になりました。生徒達から教えられることも多く、2年間考えさせられることが多かったです。この場を借りて、御礼申し上げます。

物理学専攻の同期の友人たちも、研究生活には不可欠でした。博士課程までいく人が多く、研究の愚痴をこぼせる仲間はとても有難いものでした。修士で就職した友達にも、自分の進路決定の際に相談にのってもらえました。そして昔と変わらない地元の友達にも感謝いたします。

最後になりましたが、私の長かった学生生活を温かく支えてくれた家族に感謝いたします。ここに挙げた以上に数多くの人たちに支えられて、この学位論文を完成させることができました。

2013年12月 関原 貴之

# 研究業績

## 原著論文

1. Takayuki Sekihara, Ryuichi Masutomi, and Tohru Okamoto  
"Magnetic-field-independent superconductivity of ultrathin Pb films on cleaved GaAs surface"  
*Journal of Physics: Conference Series* **456**, 012034 (2013).
2. Takayuki Sekihara, Ryuichi Masutomi, and Tohru Okamoto  
"Two-Dimensional Superconducting State of Monolayer Pb films on GaAs(110) in a Strong Parallel Magnetic Field"  
*Physical Review Letters* **111**, 057005 (2013).
3. Takayuki Sekihara, Takahiro Miyake, Hiroki Ichinomiya, Ryuichi Masutomi, and Tohru Okamoto  
"Two-dimensional superconductivity with broken inversion symmetry in one-atomic-layer metal films on cleaved GaAs surfaces"  
*JPS Conference Proceedings* to be published.

## 国際会議における発表

1. Takayuki Sekihara, Ryuichi Masutomi, and Tohru Okamoto  
"Two-dimensional superconductivity of ultrathin Bi films on cleaved GaAs surfaces"  
26th International Conference on Low Temperature Physics  
15-PB102 2011.8.15 北京 (中華人民共和国)
2. Takayuki Sekihara, Ryuichi Masutomi, and Tohru Okamoto  
"Magneticfield-independent superconductivity of ultrathin Pb films on cleaved GaAs surface"  
20th International Conference on High Magnetic Fields in Semiconductor Physics  
Thu-8(Oral) 2012.7.26 Chamonix (フランス共和国)

3. Takayuki Sekihara, Ryuichi Masutomi, and Tohru Okamoto  
 "Anomalous Robust Superconductivity against Parallel Magnetic Field  
 in Ultrathin Pb Films on Cleaved GaAs Surface"  
 GCOE International Symposium on Physical Sciences Frontier  
 1-28 2012.12.8 東京大学 武田先端知ビル
4. Takayuki Sekihara, Takahiro Miyake, Hiroki Ichinomiya, Ryuichi Masutomi,  
 and Tohru Okamoto  
 "Two-dimensional superconductivity with broken inversion symmetry  
 in one-atomic-layer metal films on cleaved GaAs surfaces"  
 The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2013  
 7P-117 2013.8.7 東京大学 伊藤国際学術研究センター
5. Takayuki Sekihara, Takahiro Miyake, Hiroki Ichinomiya, Ryuichi Masutomi,  
 and Tohru Okamoto  
 "Two-dimensional superconductivity with broken inversion symmetry  
 in one-atomic-layer metal films on cleaved GaAs surfaces"  
 The March Meeting 2014 of the American Physical Society  
 T52-00007 2014.3.6 Denver (U.S.A)

## 国内学会における発表

1. 関原貴之、枅富龍一、岡本徹  
 「GaAs 劈開表面上に形成した金属超薄膜の超伝導」  
 第3回低温センター研究交流会  
 P-21 2012.3.5 東京大学 小柴ホール
2. 関原貴之、枅富龍一、岡本徹  
 「GaAs 劈開表面上に形成した金属超薄膜の超伝導」  
 日本物理学会 第67次年次大会  
 24pCK-9 2012.3.24 関西学院大学 西宮上ヶ原キャンパス
3. 関原貴之、枅富龍一、岡本徹  
 「GaAs 劈開表面上の金属単原子層膜の超伝導と面内磁場効果」  
 日本物理学会 2012年秋季大会  
 18aFE-9 2012.9.18 横浜国立大学 常盤台キャンパス
4. 関原貴之、三宅貴大、一ノ宮弘樹、枅富龍一、岡本徹  
 「GaAs 劈開表面における空間反転対称性の破れた2次元超伝導」  
 第4回低温センター研究交流会  
 O-12 2013.3.7 東京大学 小柴ホール



5. 関原貴之、三宅貴大、一ノ宮弘樹、枘富龍一、岡本徹  
「GaAs 劈開表面における空間反転対称性の破れた 2 次元超伝導」  
日本物理学会 第 68 次年次大会  
28pXK-5 2013.3.28 広島大学 東広島キャンパス
6. 関原貴之、三宅貴大、一ノ宮弘樹、枘富龍一、岡本徹  
「GaAs 劈開表面上の金属単原子層における空間反転対称性の破れた 2 次元超伝導」  
第 7 回 物性科学領域横断研究会 (領域合同研究会)  
P1-22 2013.12.1 東京大学 武田先端知ビル
7. 関原貴之、三宅貴大、一ノ宮弘樹、枘富龍一、岡本徹  
「GaAs 劈開表面に形成した金属単原子層膜における空間反転対称性の破れた超伝導」  
第 5 回 低温センター研究交流会  
2014.2.27 東京大学 小柴ホール