

In situ 電気伝導測定による Rashba 型表面構造 (Tl, Pb)/Si(111) の超伝導の観測[†]

一ノ倉 聖¹・保原 麗¹・高山あかり¹・長谷川修司¹・Andrey V. MATETSKIY^{2,3}

Leonid V. BONDARENKO^{2,3}・Alexandra Y. TUPCHAYA^{2,3}・Dimitry V. GRUZNEV^{2,3}

Andrey V. ZOTOV^{2,3}・Alexander A. SARANIN^{2,3}

¹東京大学大学院理学系研究科物理学専攻 ☎ 113-0033 東京都文京区本郷 7-3-1

²Institute of Automation and Control Processes FEB RAS, 690041 Vladivostok, Russia

³School of Natural Sciences, Far Eastern Federal University, 690000 Vladivostok, Russia

(2016 年 3 月 14 日受付；2016 年 5 月 21 日掲載決定)

Observation of Superconductivity on the Rashba-Type Surface Reconstruction (Tl, Pb)/Si(111) by *in situ* Electrical Transport Measurements

Satoru ICHINOKURA¹, Rei HOBARA¹, Akari TAKAYAMA¹, Shuji HASEGAWA¹, Andrey V. MATETSKIY^{2,3},

Leonid V. BONDARENKO^{2,3}, Alexandra Y. TUPCHAYA^{2,3}, Dimitry V. GRUZNEV^{2,3},

Andrey V. ZOTOV^{2,3} and Alexander A. SARANIN^{2,3}

¹University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-0033

²Institute of Automation and Control Processes FEB RAS, 690041 Vladivostok, Russia

³School of Natural Sciences, Far Eastern Federal University, 690000 Vladivostok, Russia

(Received March 14, 2016 ; Accepted May 21, 2016)

A surface reconstruction consisting of one monolayer of Tl and one-third monolayer of Pb on a Si(111) was found to exhibit a large Rashba-type spin splitting in the metallic surface-state bands together with two-dimensional superconductivity. Temperature dependent angle-resolved photoelectron spectroscopy revealed a strong electron-phonon interaction in one of the bands. *In situ* four-point-probe resistivity measurements with and without magnetic field demonstrated that the (Tl, Pb)/Si(111) system transited into the superconducting state at 2.3 K. The (Tl, Pb)/Si(111) is a prototypical system for prospective studies of intriguing properties of the space-inversion-symmetry-broken superconductor.

KEYWORDS : silicon surface, Rashba effect, superconductivity, electrical transport

1. は じ め に

2010 年, Zhang らの走査トンネル分光 (STS) 測定により Si(111) 面上の Pb, In 吸着表面において超伝導ギャップが観測¹⁾されて以来, 金属吸着半導体表面における超伝導の研究が盛んになった。ほぼ同時期に超高真空中

の電気伝導測定装置において 1 K 前後の低温が達成され, Uchihashi らや Yamada らによってそれらの系のゼロ抵抗状態への転移が観測された^{2~4)}。これらの研究では超伝導転移の前後で緩やかな電気抵抗の変化が見られ, 二次元超伝導体に特徴的な熱揺らぎの影響とされている。最近はこれらの研究から波及し, 非常に薄い超伝導体の研究が盛んに行われている。たとえば, GaN 基板上にエピタキシャル成長した Ga 二原子層⁵⁾, SrTiO₃ 上の FeSe 単ユニット層^{6,7)}において, 対応するバルク物

[†] 第 35 回表面科学学術講演会 (2015 年 12 月 1 日~3 日) にて発表

E-mail : ichinokura@surface.phys.s.u-tokyo.ac.jp

質よりも高い超伝導転移温度が報告されている。金属ドーピングされたグラフェン^{8,9)}や、単層化された遷移金属カルコゲナイド^{10,11)}といった層状物質においても超伝導は主要な興味の対象である。

基板上に作製された単原子層において期待されているのが「空間反転対称性の破れた超伝導」である。それはCePtSi₃などの反転対称性の破れた結晶構造を持つバルク超伝導体において提唱された相で、一重項-三重項が混合したCooper対や、常磁性対破壊による臨界磁場(Pauli限界)の著しい増大が理論的に予想され¹²⁾、CeRhSi₃において実験的に30 T以上の臨界磁場が観測された¹³⁾。これらの特異な超伝導現象はRashba効果など、スピン軌道相互作用によってスピン分裂したFermi面で生じる。したがって重元素を吸着した半導体表面において実現する可能性があり、実際、GaAs劈開面上に低温蒸着によって作製されたPb単原子層薄膜において15 Tを超える面内臨界磁場が報告されている¹⁴⁾。しかし、これらのバルクやアモルファス薄膜では角度分解光電子分光(ARPES)によるバンド分散測定が難しく、スピン状態の詳細はわかっていない。

一方、半導体表面ではARPES測定によりRashba効果を示す系が数多く見ついている。しかし、その多くは絶縁体的な電子状態を持ち、導電性は期待できなかった。例外としてPb/Ge(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 構造は200 meVと大きくRashba分裂した金属的表面状態を持ち¹⁵⁾、9 Kまで金属的な伝導を保つことが知られている¹⁶⁾。このような系において空間反転対称性の破れた超伝導の実現が期待される。しかし、これまでのところARPESによってRashba効果が確認された系において超伝導も観測された例はない。

Pb/Ge(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 以降は新たな候補が報告されていなかったが、Gruznevらにより重元素を含む二種の金属を共吸着させることで金属的なRashba系表面を容易に作製できることが報告された¹⁷⁾。これまで、Si(111)面上について(Bi, Na)¹⁷⁾、(Tl, Pb)¹⁷⁾、(Tl, Sn)¹⁸⁾/Si- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 構造が知られている。本研究では250 meVと大きなRashba分裂を持ち、 $\bar{\Gamma}$ 点を中心とした大きなFermi面を持つ(Tl, Pb)/Si(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 構造に着目し、原子構造、電子状態、電気伝導特性の詳細を調べた。

2. 実験方法

原子構造と電子状態の測定はSaranin研究室のOmicron製STM-ARPES複合装置を用いた。電気伝導測定は長谷川研究室の超低温、強磁場印加、超高真空STM(ユニソク製USM1300)でSTM探針に替えて四端子プローブを用いて行った。各々の装置が測定室と真空接続され

た試料準備室を持ち、通電加熱による表面清浄化と電子回折による観察および蒸着法による試料作製を行い、*in situ*で各測定をする³⁾。

電気伝導測定方法の詳細は文献³⁾に詳しく述べられている。⁴Heをソーブションポンプによって減圧することで最低温度は830 mKに達する。超伝導マグネットにより印加できる最大磁場は7 Tで、試料表面に対して面直である。 ϕ 0.1 mmの銅線を用いて作られた四端子プローブをピエゾ駆動により試料にアプローチ・接触させてその場で電気伝導測定を行う。電流-電圧測定により、原点付近での傾きから面抵抗を求める。Jule熱加熱および非線形性の影響を避けるため、電流値は最大 $\pm 10 \mu\text{A}$ 程度の範囲で行っている。高速動作できるスイッチ回路を用い、プログラム制御によって自動で複数の電流・電圧端子の組み合わせによる測定を行い、Dual configuration法によりプローブ接触点のずれによる誤差を軽減している^{3,19)}。

3. 原子構造、電子状態

3.1 原子構造

Si(111)- 7×7 清浄表面に570 Kで1 ML ($= 7.8 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$)のTlを蒸着すると T_4 サイトに吸着し、 1×1 構造が形成される²¹⁾。この構造は絶縁体的な電子状態を持つが、 $\bar{\Gamma}$ 点に極大点を持つ価電子帯、および $\bar{K}$ 点に極小点を持つ非占有状態がスピン軌道相互作用によって分裂していることはよく知られている^{22,23)}。さらに、室温で $1/3$ MLのPbを追加蒸着すると、原子配列は大きく変わってFig. 1aに示すようなかごめ格子状のSTM像が観測されるようになる^{17,20)}。後に示すARPES測定で求められたバンド分散を再現する構造モデルをFig. 1bに示す。六角形を構成するのはTl原子であり、Pbは六角形の中心(T_4 サイト)に位置する。単位格子はFig. 1bに示すように 1×1 に対して $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ ($R30^\circ$)の周期を持つ^{17,20)}。断面図に示すようにTlとPbは単原子層を

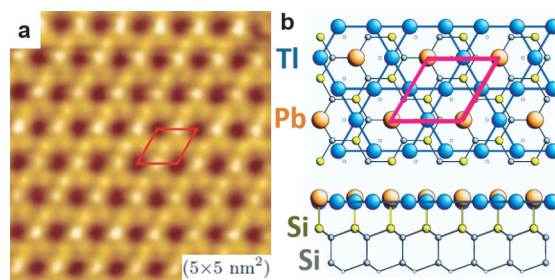


Fig. 1. (color online). (a), High-resolution ($5 \times 5 \text{ nm}^2$) STM image of the (Tl, Pb)/Si(111) surface.²⁰⁾ (b) Schematic atomic structure of the (Tl, Pb)/Si(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ surface.²⁰⁾

Si(111)上につくっており、Si表面上に金属原子が密集しているために各原子の波動関数同士が重なり、二次元金属状態となる¹⁷⁾。

3.2 電子状態

ARPES測定によって得られた(Tl, Pb)/SiのFermi面をFig. 2a上に示す¹⁷⁾。四つの金属的なバンド(Σ_1 , Σ'_1 , Σ_2 , Σ'_2)が観測されている。内側のバンド Σ_1 , Σ'_1 は円形に近い形状を持ち、外側のバンド Σ_2 , Σ'_2 は六角形に近い形状である。スピン軌道相互作用を取り入れたDFT計算結果(Fig. 2a下)により、四つのバンドはRashba分裂した二組のバンドであることが明らかとなっている¹⁷⁾。計算結果における矢印は面内スピン成分の向きを表し、Fermi面プロットの濃淡は面直スピン成分の大きさを表す。 $\bar{\Gamma}$ - $\bar{M}$ 方向は最も面直に大きくスピン分裂している。一方、 $\bar{\Gamma}$ - $\bar{K}$ 方向では面直成分はなく、内側の円形のFermi面についてはほとんど縮退している。Fig. 2aに示した $\bar{\Gamma}$ - $\bar{M}$ 方向はFermi面近傍での Σ_1 , Σ'_1 の分裂幅が最大となる方向である。分散はFig. 2b上図のようになっており、波数方向に $\Delta k_R = 0.038 \text{ \AA}^{-1}$ 、エネルギー方向に $\Delta E_R = 250 \text{ meV}$ 分裂している。

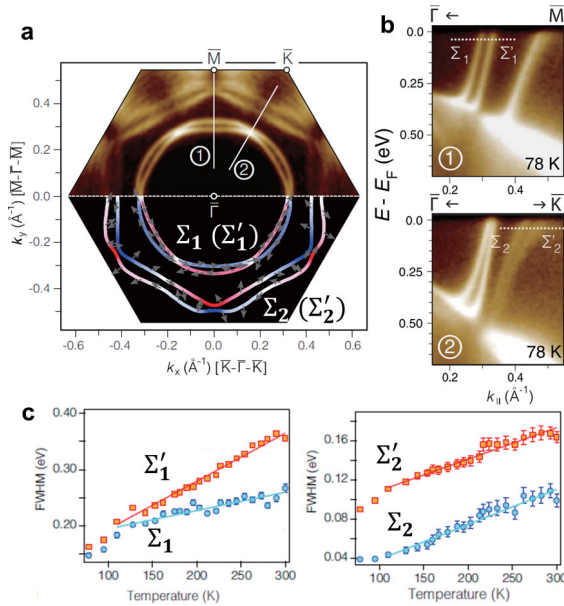


Fig. 2. (color online). (a) Experimental (upper panel) and calculated (lower panel) Fermi contours of the (Tl, Pb)/Si(111) in the $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ surface Brillouin zone.²⁰⁾ Small arrows in the lower panel indicate the in-plane spin components, while the intensity of the plot indicates the out-of-plane components. (b) Band dispersion of Σ_1 (Σ'_1) and Σ_2 (Σ'_2) bands near the Fermi level along $\bar{\Gamma}$ - $\bar{M}$ and $\bar{\Gamma}$ - $\bar{K}$ directions [solid lines ① and ② in (a)].²⁰⁾ (c) Typical temperature dependencies of energy width (ΔE) in the photoemission peaks of (Σ_1 , Σ'_1 , Σ_2 , Σ'_2) surface-state bands²⁰⁾ at dashed lines in (b).

同様に、 $\bar{\Gamma}$ - $\bar{K}$ 方向は Σ_2 , Σ'_2 の分裂幅が最大となる方向である。分散はFig. 2b下図で、波数方向に $\Delta k_R = 0.050 \text{ \AA}^{-1}$ 、エネルギー方向に $\Delta E_R = 140 \text{ meV}$ 分裂している。さらに、各分散の電子格子相互作用定数 λ が見積もられた。ARPESスペクトルから λ を見積もる方法はいくつかあるが、エネルギー方向のスペクトル幅(ΔE)の温度依存性から次の式(1)を用いて求めた²⁴⁾。

$$\lambda = \frac{1}{2\pi k_B} \frac{d\Delta E}{dT} \quad (1)$$

ここで k_B はBoltzmann定数である。Fig. 2bに示した分散からFermi面近傍(点線)のエネルギー方向のスペクトル幅の温度依存性をプロットすると、Fig. 2cの結果となり、それぞれの λ を求めた²⁰⁾。注目すべきは Σ'_1 が大きな電子格子相互作用 $\lambda = 1.58$ を持つことである。他の分散は $\lambda = 0.6$ 前後である。一般に、異なる波数では相互作用するフォノン状態が異なるため、異なる λ の値をとりうる²⁵⁾。すなわち、(Σ_1 , Σ'_1)と(Σ_2 , Σ'_2)では波数の違いによって λ が異なってもよい。しかし Σ_1 と Σ'_1 はもともとスピン縮退していた対なので、波数に大きな差がないため、これでは説明できない。Pb/Ge(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ でもRashba分裂した二本のバンドにおいて、同様の方法で異なる電子格子相互作用定数が観測された¹⁶⁾。これは光電子分光における終状態効果であると説明されており、(Tl, Pb)/Siでも同様であると考えられる。

測定された λ の値と、バルクTl, PbのDebye温度(Θ_D)の文献値²⁶⁾を用いると、次の式(2)に示すMcMillanの式から超伝導転移温度を推定することができる。

$$T_c = \frac{\Theta_D}{1.45} \left(-\frac{1.04(1+\lambda)}{\lambda - \mu^*(1+0.62\lambda)} \right) \quad (2)$$

ここで μ^* は電子間クーロン相互作用の強さを表すパラメータで、典型的には0.1~0.15の値をとる。推定の結果をTable 1にまとめる。 λ の値に応じて各バンドから予想される転移温度に有意な差がある。

Table 1. (color online). Parameters of the electronic structure of the (Tl, Pb)/Si(111): energy splitting by Rashba effect ΔE_R , electron-phonon coupling constant λ obtained from temperature-dependent ARPES measurements, possible superconducting transition temperature T_c estimated from λ by McMillan equation.

band	ΔE_R (meV)	λ	Max T_c (K)
Σ_1	250	0.60	1.5 K
Σ'_1		1.58	7.8 K
Σ_2	140	0.66	2.0 K
Σ'_2		0.59	1.4 K

4. 電気伝導特性

4.1 超伝導転移

比較のため (Tl, Pb)/Si に加えて Tl/Si-1×1 の面抵抗測定も行った。それぞれの RHEED 図形を Fig. 3a, b に示す。Tl/Si-1×1 は絶縁体的な電子状態を持つため、室温付近での温度依存性を測定した。すると Fig. 3c のように室温で約 10 kΩ の面抵抗値を示し、冷却すると約 240 K で絶縁化した。一方で (Tl, Pb)/Si は 10 K 以下で約 300 Ω の面抵抗値と金属的な温度依存性を示し、約 2 K で急激に抵抗が減少した。リニアスケールでプロットしなおすと Fig. 4a のようにゼロ抵抗、すなわち超伝導状態へ転移していることがわかる²⁰⁾。Pb1/3 ML を加えただけでこのような劇的な変化が生じたことは特筆すべき事実であり、物質最表面が物性を支配していることを示している。転移点より高温側から緩やかに抵抗の減少が始まっており、低次元性が現れている²⁰⁾。この振る舞いは超伝導オーダーパラメータの振幅揺らぎと呼ばれており、次式

$$\rho = \frac{1}{\sigma_0 + \sigma_{AL} + \sigma_{MT}} \quad (3)$$

ただし、

$$\sigma_{AL} = \frac{e^2}{16\hbar} \cdot \frac{T_c}{T - T_c}, \quad \sigma_{MT} = \frac{e^2}{8\hbar} \cdot \frac{T_c}{T - (1 + \delta)T_c} \ln \frac{T - T_c}{\delta T_c}$$

で表される²⁷⁾。 σ_{AL} は揺らぎにより生じた Cooper 対による伝導度、 σ_{MT} は揺らぎによる常伝導度の増加分を表す。 δ は pair-breaking parameter と呼ばれ平均場近似からの逸脱を表す。(3) によるフィッティング結果を Fig. 4a 中に実線で示す。緩やかな抵抗の減少を良く再現しており、転移温度をフィッティングパラメータとして用いることで $T_c = 2.2568 \pm 0.0002$ K が得られた²⁰⁾。Table 1 の電子格子相互作用定数 λ による見積もりと比較すると、電気伝導測定から得られた転移温度は Σ'_1 バンドによって予想される温度よりも低く、他の表面バンドの予想よりも高い。 λ による見積もりは理想的な転移温度、つまり上限値である。また、一般に金属吸着表面における Debye 温度は対応するバルク物質よりも低下することが知られている²⁸⁾。したがって、 $\lambda = 1.58$ の Σ'_1 バンドが超伝導を担っていると考えられる。前述したように ARPES による電子格子相互作用定数の見積もりは終状態効果の影響を受けるため²³⁾、定量的な一致は難しい。しかし、転移温度から考察する限り、強い電子格子相互作用が超伝導の発現に寄与している可能性は高いといえる。Fig. 2 に示した内側の Fermi 面対においては、 $\Delta E_R = 250$ meV という大きなスピン分裂が生じている。観測された T_c から BCS 理論によって超伝導ギャップの

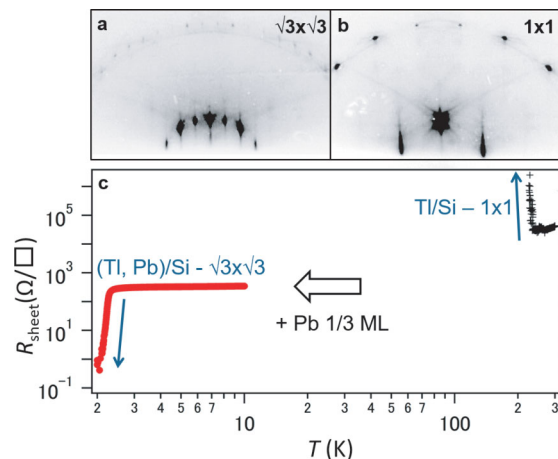


Fig. 3. (color online). RHEED patterns of (a) (Tl, Pb)/Si(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ and (b) Tl/Si(111)-1×1, respectively. (c) Temperature-dependent sheet resistance R_{sheet} in Tl/Si and (Tl, Pb)/Si surfaces.

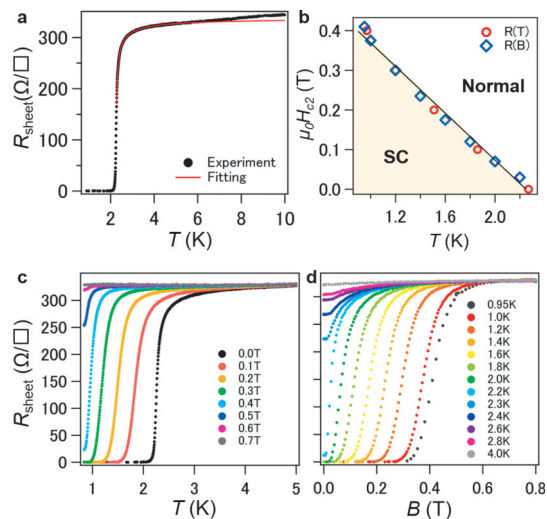


Fig. 4. (color online). (a) Temperature dependence of the sheet resistance of (Tl, Pb)/Si(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ surface. Solid line is a result of the least-squares fit to Eq. (3) of para conductivity with $T_c = 2.26$ K. (b) Temperature dependence of the upper critical field extracted from temperature (circles) and magnetic field (squares) dependencies of the sheet resistance [from (c) and (d), respectively]. Solid line is a result of the least-squares fit to Eq. (4) (c) The change of the sheet resistance with temperature under different magnetic fields and (d) with magnetic field under different temperatures.

大きさを見積もると、 $\Delta(0) = 0.34$ meV を得る。したがって、 $\Delta E_R \gg \Delta(0)$ である。すなわち、スピン軌道相互作用によるスピン分裂のエネルギーが超伝導ギャップよりも十分に大きく、空間反転対称性の破れた超伝導体としての性質を持つことが期待できる。Table 2 で転移温度、Rashba 分裂の大きさを他の表面超構造や空間反転

Table 2. (color online). Comparison of superconducting transition temperature and energy of spin-orbit coupling for different surfaces and non-centrosymmetric bulk crystal systems.

	T_c (K)	ΔE_R (meV)	$\Delta E_R / E_F$
(Tl, Pb)/Si	2.3 ²⁰⁾	250 ¹⁷⁾²⁰⁾	~ 0.1
Pb/Si - SIC	1.8 ¹⁾	- ¹⁾	-
Pb/Ge - $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$	?	200 ¹⁵⁾	~ 0.2
Bi/Ge - $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$	-	270 ³¹⁾	-
CePt ₃ Si	0.75 ³²⁾	200 ³³⁾	~ 0.2 ³³⁾
Li ₂ Pd ₃ B	7 ³⁴⁾	30 ³⁵⁾	~ 0.005 ³⁵⁾

対称性の破れたバルク超伝導体と比較する。(Tl, Pb)/Si は最大級の Rashba 分裂を持つことに加え、比較的高い転移温度を持つことがわかる。

4.2 臨界磁場とコヒーレンス長

Fig. 4c に定磁場下での温度依存性を示す。磁場が大きくなるほど転移温度が低下することがわかる。Fig. 4d に一定温度での磁場依存性を示す。温度が高くなるほど臨界磁場が低くなっている。これらの測定結果から、常伝導抵抗値の 1/2 を転移点として上部臨界磁場の温度依存性をプロットすると、Fig. 4b のようになる。Fig. 4c から得られた点は丸で、Fig. 4d から得られた点は四角形でプロットした。両方のプロットがほぼ同一直線上に乗ることから、測定が高い精度で行われたことがわかる。このデータについて Ginzburg-Landau 理論によるフィッティングを行う²⁹⁾。

$$\mu_0 H_{c2} = \frac{\varphi_0}{2\pi\xi_{GL}(0)^2} \left(1 - \frac{T}{T_c}\right) \quad (4)$$

ここで φ_0 は磁束量子、 $\xi_{GL}(0)$ は GL コヒーレンス長である。 T_c についてはゼロ磁場での温度依存性のフィッティングによって得られた値 2.26 K を用い、自由パラメータをコヒーレンス長 $\xi_{GL}(0)$ とすると $\xi_{GL}(0) = 22.3 \pm 0.2$ nm が得られ、常伝導抵抗 338 Ω から求められる平均自由行程の二倍程度である。

また、外挿によって絶対零度での上部臨界磁場を求めると $\mu_0 H_{c2}(0) = 0.67 \pm 0.02$ T と求められた。BCS 理論の式 $\mu_0 H_p(0) = 1.86 T_c$ より常磁性対破壊磁場 (Pauli 限界) を求めると、 $\mu_0 H_p(0) = 4.2$ T と求められる。一般に二次元超伝導体は面直磁場に対して軌道対破壊が低磁場で起きるため、上部臨界磁場は Pauli 限界より低下する。そのため、このように空間反転対称性の破れに由来する Pauli 限界の上昇は隠れてしまう。Pauli 限界の上昇を観

測するには、軌道対破壊の抑制される条件、すなわち面内磁場を印加することが効果的であるが、本装置では面内磁場の印加は現在のところ不可能である。空間反転対称性が破れている場合、面内磁場に対して秩序パラメータが空間変調し、ストライプ相が形成されることが予想されている³⁰⁾。(Tl, Pb)/Si においてストライプ相が形成された場合、Pauli 限界は最大 200 T まで上昇することが期待される。

5. まとめと今後の展望

本研究では、(Tl, Pb)/Si 表面構造の原子配列、電子状態、および電気伝導の超高真空中での *in situ* 測定を行い、この系が $\Delta E_R = 250$ meV の Rashba 分裂と $T_c = 2.26$ K の超伝導を併せ持つことを明らかにした。この転移温度を ARPES によって求められた電子格子相互作用から予測される温度と比較すると、Rashba 分裂した一つの表面バンドの強い電子格子相互作用が超伝導を引き起こしていることがわかった。超伝導ギャップよりもスピン軌道相互作用エネルギーが大きい状況が実現しているため、空間反転対称性の破れた超伝導としての性質を示すことが期待される。今後の課題としては、

1. 低温 STM/S による超伝導ギャップの直接測定
2. 表面 Debye 温度の測定
3. 面内磁場の印加による異方的臨界磁場の測定
4. 電気伝導特性を損なわないキャップ層の開発

などがあげられる。1 から強い電子格子相互作用の超伝導への影響を調べるとともに、超伝導波動関数の対称性に関する情報が得られる。2 の Debye 温度は、広い温度領域の電気伝導測定や反射高速陽電子回折により測定が行われている。3 のためにはベクターマグネットの使用が考えられるが、前述したように面内の臨界磁場は非常に増大することが予想されるため、数 T の印加では不足である可能性がある。その場合には、数 10 T 級の強磁場施設中で動作する超高真空、低温装置が必要である。あるいは、4 の適切なキャップ層によって表面を保護して大気中の測定が可能となれば、既存の実験装置を用いて面内磁場中の測定や Meissner 効果の測定も可能となる。2.3 K という転移温度は ³He がなくとも、⁴He で到達可能である。Rashba 効果・スピントロニクスと超伝導の融合的研究が期待される。

文 献

- 1) T. Zhang, P. Cheng, W.-J. Li, Y.-J. Sun, G. Wang, X. -G. Zhu, K. He, L. Wang, X. Ma, X. Chen, Y. Wang, Y. Liu, H.-Q. Lin, J.-F. Jia and Q.-K. Xue : Nat. Phys. **6**, 104 (2010).

- 2) T. Uchihashi, P. Mishra, M. Aono and T. Nakayama : Phys. Rev. Lett. **107**, 207001 (2011).
- 3) M. Yamada, T. Hirahara, R. Hobara, S. Hasegawa, H. Mizuno, Y. Miyatake and T. Nagamura : e-Journal of Surface Science and Nanotechnology **10**, 400 (2012).
- 4) M. Yamada, T. Hirahara and S. Hasegawa : Phys. Rev. Lett. **110**, 237001 (2013).
- 5) H.-M. Zhang, Y. Sun, W. Li, J.-P. Peng, C.-L. Song, Y. Xing, Q. Zhang, J. Guan, Z. Li, Y. Zhao, S. Ji, L. Wang, K. He, X. Chen, L. Gu, L. Ling, M. Tian, L. Li, X.C. Xie, J. Liu, H. Yang, Q.-K. Xue, J. Wang and X. Ma : Phys. Rev. Lett. **114**, 107003 (2015).
- 6) J.-F. Ge, Z.-L. Liu, C. Liu, C.-L. Gao, D. Qian, Q.-K. Xue, Y. Liu and J.-F. Jia : Nat. Mater. **14**, 285 (2015).
- 7) Y. Miyata, K. Nakayama, K. Sugawara, T. Sato and T. Takahashi : Nat. Mater. **14**, 775 (2015).
- 8) B. Ludbrook, G. Levy, P. Nigge, M. Zonno, M. Schneider, D. Dvorak, C. Veenstra, S. Zhdanovich, D. Wong, P. Dosanjh, C. Straßer, A. Stöhr, S. Fortid, C.R. Astd, U. Starked and A. Damascelli : Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. **112**, 11795 (2015).
- 9) S. Ichinokura, K. Sugawara, A. Takayama, T. Takahashi and S. Hasegawa : ACS Nano **10**, 2761 (2016).
- 10) X. Xi, Z. Wang, W. Zhao, J.H. Park, K.T. Law, H. Berger, L. Forró, J. Shan and K.F. Mak : Nat. Phys. **12**, 139 (2016).
- 11) M.M. Ugeda, A.J. Bradley, Y. Zhang, S. Onishi, Y. Chen, W. Ruan, C. Ojeda-Aristizabal, H. Ryu, M.T. Edmonds, H.Z. Tsai, A. Riss, S.K. Mo, D. Lee, A. Zettl, Z. Hussain, Z.-X. Shen and M.F. Crommie : Nat. Phys. **12**, 92 (2016).
- 12) S. Fujimoto : J. Phys. Soc. Jpn. **76**, 051008 (2007).
- 13) N. Kimura, K. Ito, H. Aoki, S. Uji and T. Terashima : Phys. Rev. Lett. **98**, 197001 (2007).
- 14) T. Sekihara, R. Masutomi and T. Okamoto : Phys. Rev. Lett. **111**, 057005 (2013).
- 15) K. Yaji, Y. Ohtsubo, S. Hatta, H. Okuyama, K. Miyamoto, T. Okuda, A. Kimura, H. Namatame, M. Taniguchi and T. Aruga : Nat. Commun. **1**, (2010).
- 16) S. Hatta, T. Noma, H. Okuyama and T. Aruga : Phys. Rev. B **90**, 245407 (2014).
- 17) D.V. Gruznev, L.V. Bondarenko, A.V. Matetskiy, A.A. Yakovlev, A.Y. Tupchaya, S.V. Ereemeev, E.V. Chulkov, J.-P. Chou, C.-M. Wei, M.-Y. Lai, Y.L. Wang, A.V. Zotov and A.A. Saranin : Scientific Reports **4**, 4742 (2014).
- 18) D. Gruznev, L. Bondarenko, A. Matetskiy, A. Tupchaya, A. Alekseev, C. Hsing, C. Wei, S. Ereemeev, A. Zotov and A. Saranin : Phys. Rev. B **91**, 035421 (2015).
- 19) L. Van der Pauw : Philips Technical Review **20**, 220 (1958).
- 20) A.V. Matetskiy, S. Ichinokura, L.V. Bondarenko, A.Y. Tupchaya, D.V. Gruznev, A.V. Zotov, A.A. Saranin, R. Hobara, A. Takayama and S. Hasegawa : Phys. Rev. Lett. **115**, 147003 (2015).
- 21) S. Lee, H. Song, N. Kim, J. Chung, K. Kong, D. Ahn, H. Yi, B. Yu and H. Tochi-hara : Phys. Rev. B **66**, 233312 (2002).
- 22) K. Sakamoto, T.-H. Kim, T. Kuzumaki, B. Müller, Y. Yamamoto, M. Ohtaka, J.R. Osiecki, K. Miyamoto, Y. Takeichi, A. Harasawa, S.D. Stolwijk, A.B. Schmidt, J. Fujii, R.I.G. Uhrberg, M. Donath, H.W. Yeom and T. Oda : Nat. Commun. **4**, 2073 (2013).
- 23) K. Sakamoto, T. Oda, A. Kimura, K. Miyamoto, M. Tsujikawa, A. Imai, N. Ueno, H. Namatame, M. Taniguchi, P. Eriksson and R.I.G. Uhrberg : Phys. Rev. Lett. **102**, 096805 (2009).
- 24) E. Plummer, J. Shi, S.-J. Tang, E. Rotenberg and S. Kevan : Prog. in Surf. Sci. **74**, 251 (2003).
- 25) S.H. Uhm and H.W. Yeom : Phys. Rev. B **86**, 245408 (2012).
- 26) C. Kittel : "Introduction to Solid State Physics" (Wiley, 2005).
- 27) A. Larkin and A. Varlamov : "Theory of Fluctuations in Superconductors" (Clarendon Press, 2005).
- 28) J. Demuth, P. Marcus and D. Jepsen : Phys. Rev. B **11**, 1460 (1975).
- 29) M. Tinkham : "Introduction to Superconductivity" (Dover, New York, 1996).
- 30) Barzykin and Gor'kov : Phys. Rev. Lett. **89**, 227002 (2002).
- 31) S. Hatta, T. Aruga, Y. Ohtsubo and H. Okuyama : Phys. Rev. B **80**, 113309 (2009).
- 32) E. Bauer, G. Hilscher, H. Michor, C. Paul, E.W. Scheidt, A. Griбанov, Y. Seropegin, H. Noël, M. Sigrist and P. Rogl : Phys. Rev. Lett. **92**, 027003 (2004).
- 33) K.V. Samokhin, E.S. Zijlstra and S.K. Bose : Phys. Rev. B **69**, 094514 (2004).
- 34) K. Togano, P. Badica, Y. Nakamori, S. Orimo, H. Takeya and K. Hirata : Phys. Rev. Lett. **93**, 247004 (2004).
- 35) K.-W. Lee and W.E. Pickett : Phys. Rev. B **72**, 174505 (2005).