

ISSP ワークショップ

東京大学アウトステーション(SPring-8 BL07LSU) の現状と偏光制御実験への展開

日時：2013 年 2 月 15 日(金) 10:00~17:40

場所：東京大学物性研究所 6 階大講義室

提案者：辛 埴、小森 文夫、松田 巖、原田 慈久

報告：小森 文夫

SPring-8 に設置された東京大学放射光アウトステーション物質科学ビームライン BL07LSU では、アンジュレータビームラインおよび時間分解光電子分光、3 次元ナノ光電子分光、軟 X 線発光分光の 3 つのエンドステーション実験設備の建設が 2 年前に完了し、これらエンドステーションとフリーポートを利用した共同利用実験が行われています。また、平成 24 年度からは、各エンドステーションの建設チームによる長期課題が始まり新しい研究が展開されていると同時に、一般課題の共同利用からも大きな成果が公表されつつあります。さらに、平成 25 年度にはアンジュレータの偏光制御を用いた研究を本格的に始める予定です。そこで、今回のワークショップでは、この 1 年の共同利用実験で得られた研究成果を報告するとともに、このアンジュレータビームラインで行われている高速偏光スイッチングへの改良に対応した、偏光制御を用いた研究の展望を議論しました。1 日だけの研究会でしたが、参加者は 54 名であり、活発で有意義な議論がなされました。VUV/SX 放射光コミュニティの皆様のご参加・ご支援に深く感謝したいと思います。以下にプログラムと、ビームライン・エンドステーションに関する現状報告を簡単にまとめました。

プログラム

10:00-10:10 東京大学アウトステーション計画の概要と共同利用について 東大 尾嶋 正治

[偏光スイッチング]

10:10-10:35 BL07LSU アンジュレータ・ビームラインの現状と偏光制御に向けて 東大物性研 松田 巖

10:35-11:00 BL07LSU アンジュレータの光源特性 JASRI/SPring-8 田中 隆次

11:00-11:25 磁性材料研究における軟 X 線円偏光スイッチングの利活用と将来展望
JASRI/SPring-8 中村 哲也(東大客員)

11:25-11:50 ダイヤモンド移相子による硬 X 線領域での偏光制御 JASRI/SPring-8 鈴木 基寛

[偏光利用]

13:00-13:25 円偏光 X 線を用いた共鳴回折：カイラリティ構造研究の展開 理研/SPring-8 田中 良和

13:25-13:50 高分解能広立体角 2 次元光電子顕微分光器(DELMA)の開発とその応用 NAIST 大門 寛

[各実験ステーション]

13:50-14:15 <S 課題>時間分解光電子分光法による半導体表面キャリアダイナミクスの研究 東大物性研 山本 達

14:15-14:40 アナターゼ型 TiO₂ 単結晶表面における光励起キャリアの緩和過程 東工大 小澤 健一

15:00-15:25 <S 課題>三次元 nanoESCA 装置の現状 KEK-PF 堀場 弘司、東大 永村 直佳

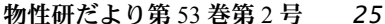
15:25-15:50 三次元 nanoESCA によるグラフェン・デバイスのその場観察に向けて 東北大 吹留 博一

物性研だより第53巻第2号 23

3次元ナノ ESCA ステーションは、ナノメートルスケールの空間分解能で、物質の電子・化学状態分布を3次元的に可視化するための実験ステーションである。ビームラインからの超高輝度放射光をフレネルゾーンプレート(FZP)で集光することにより得られる放射光ナノビームを用いて、空間分解(x,y)した光電子スペクトルを測定し、さらに、そのスペクトルの放出角度依存性を最大エントロピー法で解析することにより深さ方向分析(z)を行っている。これらの技術の融合により、3次元(x,y + z)空間解析を行うことができる。面内空間分解能としては走査型光電子顕微鏡における世界最高レベルの70 nmを達成し、また同時に、ゾーンプレート集光した状態での60°にわたる光電子放出角度依存性を一括して取得することが可能である。

S 課題では、非白金系燃料電池正極触媒(カーボンアロイ触媒)のオペランド分光およびモデル触媒(窒素ドーブ HOPG)を用いた酸素ガス吸着の in situ 実験が行われた。オペランド分光では、実燃料電池環境である膜電極複合体(MEA)を用

Age Group	Percentage
18-24	12%
25-34	10%
35-44	8%
45-54	6%
55-64	4%
65+	1%



と N₂ 充填(下)の場合。それぞれ正極電位を開放電位(OCV)と発電条件(0.4V)で測定した。

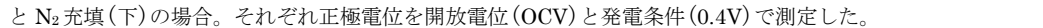


図 4. FePc/フェノール樹脂由来燃料電池正極触媒の Fe に対する酸素吸着効果。正極が O₂ 充填の場合(上)と N₂ 充填(下)の場合。それぞれ正極電位を開放電位(OCV)と発電条件(0.4V)で測定した。

強相関電子系における価数揺らぎと量子臨界性

場所：東京大学物性研究所本館(本館A615室)

ワークショップの提案が開催の一月まえに行われ、アナウンスに時間がなかったにも関わらず、当日は予想を大きく上回る総勢 38 名の方が学外、学内から参加された。まず、量子臨界価数揺らぎの理論について阪大の三宅氏による特別講演が行われ、その物理描像について活発な議論が行われた。また、実験からは価数揺らぎの量子臨界現象の可能性が、 $\beta\text{-YbAlB}_4$ の系を中心に、さまざまな測定手段の結果をもとに議論が行われた。熱力学的特性による臨界性の異常のみならず、電気・熱輸送特性による明瞭な量子臨界性が磁場中、圧力下で観測され、それらが従来型の反強磁性に隣接した磁気量子臨界現象と明瞭に異なることが報告された。また、メスbauerや核磁気共鳴などの微視的な実験手段の立場からの議論も活発に行われた。特に、兵庫県立大学の小林氏からは最近初めて可能になった放射光を用いたメスbauer一分光についての最新結果が報告され、極めてゆっくりとした価数揺らぎの存在が指摘された。また、価数の磁場制御の現状が物性研の松田氏より紹介され、価数変化と量子臨界現象について議論が活発になされた。さらには、新しい価数揺らぎのダイナミックスの測定方法として時間分解光電子分光による実験例が紹介された。また、Zigzag 格子を持つ異常物性と超伝導についての議論が神戸大学の播磨氏から提供され、新しい方向性が指摘された。以上を通じて、今後、この新しい量子臨界現象についての知見をますます深めていくための方向性がはっきりした。

プ ロ グ ラ ム

2 月 25 日(月)

9:20 ~ 9:25 中辻 知 (物性研) Opening

中辻 知 (物性研)

9:25 ~ 10:15 三宅 和正 (阪大) Valence Quantum Criticality, Thoery Overview

10:15 ~ 10:40 松本 洋介 (物性研) Overview of Experiments on Intermediate Valent YbAlB₄ systems

休み 10:40 ~ 10:50

10:50 ~ 11:25 町田 洋 (東工大) Thermal Transport Properties of the Quantum Critical β -YbAlB₄

11:25 ~ 12:00 小林 寿夫 (兵庫県立大) Valence Fluctuation probed by Mossbauer Spectroscopy

休み 12:00 ~ 13:00

松田 康弘 (物性研)

13:00 ~ 13:35 Mihael Grbic (物性研) Low temperature NMR study on YbAlB₄

13:35 ~ 14:05 富田 崇弘 (日大) Strange Metal Phase Without Magnetic Criticality

14:05 ~ 14:30 E.T.C. O'Farrell (物性研) Anisotropic Metamagnetism in YbAlB₄

14:30 ~ 14:55 久我 健太郎 (物性研) Valence Instability and Quantum Criticality

休み 14:55 ~ 15:20

瀧川 仁 (物性研)

15:20 ~ 15:50 松田 康弘 (物性研) High Magnetic Field Effect on Valence in Yb systems

15:50 ~ 16:10 辛 埴 (物性研) Photoemission Spectroscopy as a Probe for Valence Fluctuations

16:10 ~ 16:40 播磨 尚朝 (神戸大) Local symmetry effect on electronic structure in the zigzag structure material YbAlB₄

16:40 ~ 17:40 Discussion/Summary

Abstracts

Valence fluctuations and quantum criticality

K. Miyake¹ and S. Watanabe²

¹Graduate School of Engineering Science, Osaka University

²Department of Basic Sciences, Kyushu Institute of Technology

Some Yb-based heavy fermion compounds exhibit non-Fermi liquid behaviors which cannot be understood as those near magnetic quantum critical points. They are β -YbAlB₄, α -YbAl_{1-x}Fe_xB₄, YbRh₂Si₂, YbAuCu₄, YbCu_{3.5}Al_{1.5}, Yb₁₅Au₅₁Al₃₁, and so on. The behavior of CeCu_{5.9}Au_{0.1} also cannot be understood as that of magnetic quantum critical phenomena. On the other hand, anomalous properties of CeCu₂(Si,Ge)₂ under pressures can be understood in a unified way if those are triggered by sharp valence crossover of Ce ion from the Kondo regime to valence-fluctuation one.

In this talk, I will discuss that non-Fermi liquid behaviors of Yb-based compounds above can be explained in a unified way if it is assumed that those compounds are located near the critical point of valence transition of Yb ion [1,2]. Namely, this implies that there exists a new universality class of quantum critical phenomena other than that based on magnetic quantum critical point.

[1] S. Watanabe and K.Miyake, J. Phys.: Condens. Matter **24**, 294208 (2012).

[2] S. Watanabe and K.Miyake, Solid State Physics **47**, 511 (2012), in Japanese.

Overview of experiments on Intermediate Valent YbAlB₄ systems

Yosuke Matsumoto, K. Kuga, Y. Karaki, T. Tomita, E.T.C. O'Farrell, J. Hong, K. Sone and S. Nakatsuji

Institute for Solid State Physics, University of Tokyo,

Quantum criticality has been frequently discussed based on critical spin fluctuations associated with magnetic quantum critical point. In particular, *4f* electron based heavy fermions have provided the prototypical examples, which have been restricted to the Kondo lattice systems with integer valence. This is because local moments in intermediate valence systems are supposed to be screened at high temperatures. However, in sharp contrast to the conventional understandings, α -, β -YbAlB₄ provide unique examples of quantum criticality in the intermediate valence systems. Here we overview the experiments on these materials focusing on how these systems are different from the normal intermediate valence compounds. The unconventional zero-field quantum criticality in β -YbAlB₄[1] and large anisotropy in the both systems and *T-B* phase diagram will be discussed.

[1] Yosuke Matsumoto, Satoru Nakatsuji, Kentaro Kuga, Yoshitomo Karaki, Yasuyuki Shimura, Toshiro Sakakibara, Andriy H. Nevidomskyy, Piers Coleman, Science **331**, 316 (2011).

Thermal Transport Properties of the Quantum Critical β -YbAlB₄

Y. Machida¹, K. Tomokini¹, C. Ogura¹, K. Izawa¹, G. Lapertot², G. Knebel², J.-P. Brison², J. Flouquet², K. Kuga³, and S. Nakatsuji³

¹Department of Physics, Tokyo Institute of Technology

²INAC, SPSMS, CEA Grenoble

³Institute for Solid State Physics, University of Tokyo

Understanding quantum criticality realized in strongly correlated electron systems is a fascinating and yet unresolved issue. We have addressed this issue by means of thermal transport coefficients as promising probes of low-energy itinerant electronic excitations near a quantum critical point (QCP). Here we present comparative thermal transport studies on the two representative Yb-based quantum critical materials, β -YbAlB₄ and YbRh₂Si₂. In the vicinity of their QCPs, significant differences in the behaviors of the thermal transport coefficients are revealed between the two systems. We will discuss possible distinct type of critical fluctuations influenced on their non-Fermi liquid properties.

Valence Fluctuation probed by Mössbauer Spectroscopy

H. Kobayashi, and Y. Sakaguchi

Graduate School of Material Science and Center for Novel Material Science under Multi-Extreme Condition, University of Hyogo

In Mössbauer spectroscopy using synchrotron radiation, SR, the forward scattering from nuclei excited by a pulsed X-ray of SR is observed in the time domain. So, this nuclear forward scattering, NFS, method is sensitive to the time dependent properties of resonant isotopes in samples. In $4f$ electron systems, valence fluctuation phenomena are observed in Ce, Eu, Sm and Yb compounds. Unfortunately, there is no Mössbauer isotope in a Ce atom. The NFS method is effective for Mössbauer isotopes for ¹⁵¹Eu and ¹⁴⁹Sm but is not easy to be applied to those for ¹⁷⁰Yb and ¹⁷⁴Yb. A new method has been developed that yields Mössbauer absorption spectra measured in the time domain using SR. We have applied this new method to ¹⁷⁴Yb Mössbauer isotope to investigate the electronic states of α - and β -YbAlB₄. We have measured ¹⁷⁴Yb Mössbauer spectra of YbAlB₄ at 5 K using single crystalline samples and evaluated timescales of valence fluctuations in Yb ions from high quality ¹⁷⁴Yb Mössbauer spectra.

Low temperature NMR study of YbAlB₄

M. S. Grbić, K. Kimura, T. Shun, K. Tajima, M. Yoshida, M. Takigawa, K. Kuga, E. C. T. O'Farrell and S. Nakatsuji
Institute for Solid State Physics, University of Tokyo

Quantum critical behavior is a perfect playground of condensed matter physics as it can lead to discovery of new phases of matter and better understanding of strongly correlated systems. Two structural isomorphs of YbAlB₄ (α and β), show an interesting sensitivity of quantum criticality on local symmetry of B ring which encircles the Yb ion. While at ambient pressure and zero magnetic field β -YbAlB₄ shows non-Fermi-liquid properties of quantum criticality [1], α -YbAlB₄ has a Fermi-liquid ground state.

[1] Y. Matsumoto, S. Nakatsuji *et al.*, Science **331**, 316 (2011).

Valence Instability and Quantum Criticality in α -YbAlB₄

K. Kuga, K. Sone, Y. Matsumoto, E.T.C. O'Farrell, and S. Nakatsuji

Institute for Solid State Physics, University of Tokyo,

Quantum critical phenomena in f-electron systems have been studied enthusiastically by both experiments and theories in the light of spin fluctuation. In mixed valence systems, valence fluctuation generally promotes the screening of local moments and suppresses the critical phenomenon. However, recently, we discovered non Fermi liquid behavior and superconductivity in the mixed valence system β -YbAlB₄ [1,2]. Additionally, we found that mixed valence system α -YbAlB₄ shows valence crossover by doping Fe with accompanying quantum critical behavior. This result provides us the importance of valence fluctuation for the quantum critical phenomena. We will discuss the detail of the physical properties in α -YbAlB₄ induced by Fe doping.

- [1] S. Nakatsuji, K. Kuga, Y. Machida, T. Tayama, T. Sakakibara, Y. Karaki, H. Ishimoto, S. Yonezawa, Y. Maeno, E. Pearson, G.G. Lonzarich, L. Balicas, H. Lee, Z. Fisk, Nature Physics **4**, 603 (2008).
- [2] K. Kuga, Y. Karaki, Y. Matsumoto, Y. Machida, and S. Nakatsuji, Physical Review Letters **101**, 137004 (2008).

High Magnetic Field Effect on Valence in Yb systems

Y. H. Matsuda

Institute for Solid State Physics, University of Tokyo,

Since the electronic state of matter can precisely be controlled by magnetic fields, a high magnetic field is a powerful tool to investigate the quantum phenomena at low temperatures. Valence fluctuation is a phenomenon due to the strong hybridization of wave functions between localized and itinerant electrons. Phase transitions or crossover of the valence in some rare-earth compounds are observed by applying a high magnetic field.

In this presentation, recent results of synchrotron x-ray absorption spectroscopy and high-field magnetization process at pulsed magnetic fields in some Yb-based intermetallic compounds are presented. We found that the valence increased with increasing magnetic field in YbInCu₄, YbAgCu₄, YbRh₂Si₂ and α - and β -YbAl_{1-x}Fe_xB₄. The valence changes Δv of α - and β -YbAl_{1-x}Fe_xB₄ are very small ~ 0.01 at 30-40 T compared to that in a typical valence transition compound YbInCu₄ ($\Delta v \sim 0.13$ at 41 T [1]).

- [1] Y. H. Matsuda, T. Inami, K. Ohwada, Y. Murata, H. Nojiri, Y. Murakami, H. Ohta, W. Zhang and K. Yoshimura, J. Phys. Soc. Jpn. **76** 034702, (2007).

Photoemission Spectroscopy as a Probe for Valence Fluctuations

S. Shin¹, M.Okawa²

¹Institute for Solid State Physics, University of Tokyo,

²Department of Applied Physics, Tokyo University of Science

Electronic structures of the quantum critical superconductor β -YbAlB₄ and its polymorph α -YbAlB₄ are investigated by using bulk-sensitive hard x-ray photoemission spectroscopy. From the Yb 3d core level spectra, the values of the Yb valence are estimated to be 2.73 and 2.75 for α - and β -YbAlB₄, respectively, thus providing clear evidence for valence fluctuations. The valence band spectra of these compounds also show Yb2+ peaks at the Fermi level. These observations establish an unambiguous case of a strong mixed valence at quantum criticality for the first time among heavy fermion systems.

I would like to talk about a plan of the time-resolved photoemission using SX-laser, which will give us the new information about the relaxation time for valence fluctuation in YbAlB₄. We think time-resolved photoemission might be a direct experimental method to know the quantum criticality by valence fluctuation.

- [1] M.Okawa, M.Matsunami, K.Ishizaka, R.Eguchi, M.Taguchi, A.Chainani, Y.Takata, M.Yabashi, K.Tamasaku, Y.Nishino, T.Ishikawa, K.Kuga, N.Horie, S.Nakatsuji, S.Shin, Phys Rev. Lett., 104, (2010) 247201 (1-4)

Local symmetry effect on electronic structure in the zigzag structure material YbAlB₄

Hisatomo Harima

Department of Physics, Graduate School of Science, Kobe University,

Band structure calculations have been performed both for β -type and α -type $RA\text{AlB}_4$ ($R=\text{Yb, Lu}$). The crystal structure of β -type and α -type $RA\text{AlB}_4$ belong to space group #65 Cmmm D_{2h}^{19} and #55 Pbam D_{2h}^9 , respectively. Both are orthorhombic lattices, but the former is the base-center lattice, so contains two (four) R atoms in the primitive (conventional) unit cell, the latter does four R atoms in the primitive cell. However, the local structures of the two crystals are very similar, and then the calculated density of states is very similar. This fact helps us to understand the similar behavior of both Yb-compounds. The β -type has higher symmetric, so the symmetry might be the key issue to distinguish the physical property of these compounds in lower temperatures.