

金属絶縁体転移に伴う CuIr_2S_4 の Ir 5d-S 3p 混成バンドの変化

田口幸広, 中島裕一, 三村功次郎, 川邑典之, 塩見健, 市川公一, 石橋広記^A
 阪府大院工, ^A 阪府大院理

スピネル型構造をもつ CuIr_2S_4 は, 室温から温度を下げていくと, 約 230 K で同時に構造, 金属絶縁体および常磁性反磁性転移を示す. また, 転移の際に Ir イオンが電荷分離しユニークな秩序配列をされると考えられている[1]. 転移と密接に関係するフェルミ準位 E_F 近傍は, エネルギーバンド計算[2]によれば Ir 5d-S 3p 混成バンドであるが, Ir 5d 電子構造に関してはバンド計算と価電子帯光電子スペクトルとで不一致が見られる[3]. CuIr_2S_4 の S K XAS 測定[4]では, 金属絶縁体転移に伴って, E_F 近傍の非占有状態密度が減少し, 1.5 eV 程度上の状態密度が増加するのが観測されている. 今回, 我々は, CuIr_2S_4 の占有電子状態側の Ir 5d-S 3p 混成バンドの温度変化を調べるために S $L_{2,3}$ 軟 X 線発光スペクトルを測定した. 実験は BL-19B で行った. 試料は CuIr_2S_4 多結晶焼結体で, 真空槽内でやすりがけによって表面を清浄化し, 275 および 40 K の温度で測定した. 図 1 に CuIr_2S_4 の S $L_{2,3}$ 発光スペクトルを示す. S $2p_{1/2}$ 準位の結合エネルギーを参照して結合エネルギー表示に変換し, S 3s 2p 発光線のピーク強度で規格化した. S $L_{2,3}$ スペクトルでは価電子帯 S $2p_{1/2}$ (L_2) および $2p_{2/3}$ (L_3) への遷移が同時に観測されるので, いくつかの単純な仮定を行なって L_2 および L_3 成分へ分解した. 図 2 に得られた S L_2 発光スペクトルを示す. 低温の絶縁体相になると, E_F から 2 eV 付近の発光強度が減少して, 3.0 eV 付近の強度が増加しているのがわかる. この転移に伴う状態密度の再分布が化学ポテンシャルシフト[5]の原因と考えられる.

- [1] Furubayashi *et al.*, JPSJ **63**, 3333 (1994), Nagata *et al.*, PRB **58**, 6844 (1998), Radaelli *et al.*, Nature **416**, 155 (2002).
 [2] Sasaki *et al.*, JPSJ **73**, 1875 (2004), Oda *et al.*, J. Phys.: Condens. Matter **7**, 4433 (1995).
 [3] Matsuno *et al.*, PRB **55**, R15979 (1997).
 [4] Croft *et al.*, PRB **67**, 201102(R) (2003).
 [5] Takubo *et al.*, PRL **95**, 246401 (2005).

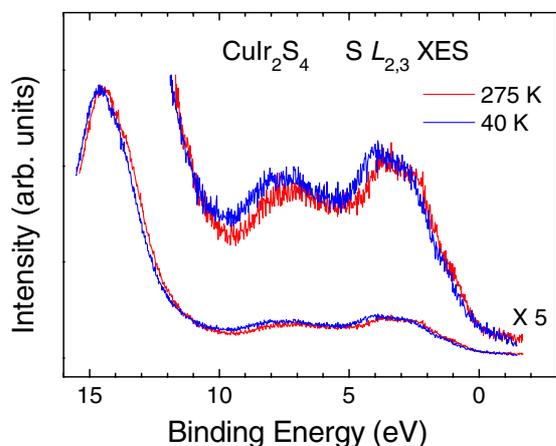


図 1. 275 (赤)および 40 (青) K における CuIr_2S_4 の S $L_{2,3}$ 発光スペクトル.

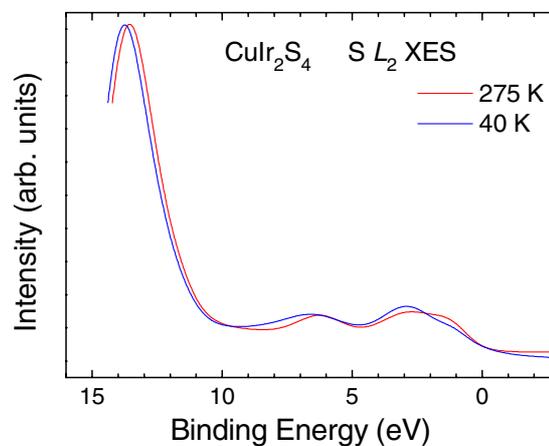


図 2. 分解して得られた 275 (赤) および 40 (青) K での S L_2 発光スペクトル.