

23. 2H 型 TaS₂ 遷移金属層間化合物の電子状態と磁性

富 嶋 茂 樹

遷移金属ダイカルコゲナイドは、遷移金属の作る三角格子をカルコゲン原子の三角格子が上下からはさんでできたサンドイッチを積み重ねた層状物質である。その広い層間には、種々の原子や分子を侵入させる（インターカレートする）ことが可能で、母体とは異なる物性や機能をもついわゆる層間化合物が合成され得る。特に、侵入原子が 3d 遷移金属の場合の層間化合物は多様な磁性を示し大変興味深い。

2H 型 TaS₂ に Mn をインターカレートした Mn_{1/4}TaS₂ は実験的に詳しく研究されており次の様な磁性が明らかにされている：

- (1) T_c ~ 80 K の強磁性体である。
- (2) モーメントの値は MnTa₄S₈ あたり 3.9 ~ 4.2 μ_B である。
- (3) Ta 原子上にもすくなからぬモーメントが誘起されている。
- (4) スピン波の分散は c-軸方向に非常に大きく、c-面内では小さい。

従来は、Mn の 3d 電子は局在していて（局在モデル）、Mn から供給された電子は母体の伝導帯をその分散を変えることなく占める（リジッドバンドモデル）と考えられており、RKKY 相互作用が主要な磁氣的相互作用であるとみなされてきた。しかし、最近行われた RKKY 相互作用の評価によれば、c-面内の相互作用に比較して c-軸方向の相互作用は 1 桁小さく、RKKY 相互作用では実験事実（4）を説明できないことが明らかにされており、局在モデルとリジッドバンドモデルの見直しが迫られている。

本修士論文では、遍歴電子の立場から Mn_{1/4}TaS₂ の磁性を理解することを目的としてこの物質の電子帯構造を計算し、Mn 原子のインターカレーションにより母体の電子帯構造がどのように変化するかまた Mn 原子と母体とがどのように結合するのかを明らかにした。電子帯構造の計算方法は、自己無撞着 LAPW 法で、非磁性状態並びに強磁性状態の 2 つの場合について計算を行った。得られた主な結果は以下の通りである。

[I] 非磁性状態：

- (1) Mn の 3d バンド巾は、約 2 eV で非常に狭いとは言えない。
- (2) Mn の 3d 状態は S の p 状態とはあまり混成しないが Ta の dz² 状態とは強く混成し、母体のフェルミレベル近傍の電子帯構造を著しく変える。

この結果、局在モデルとリジッドバンドモデルの仮定は妥当でないことが明かとなった。また、Mn 原子の上下にある Ta 原子の dz² 軌道（c-軸方向にのびた軌道）と Mn の 3d 軌道が強く混成していることから、Ta 原子の dz² 軌道を媒介とした c-軸方向の Mn 原子間の強い相互作用が期待できることも明かとなった。

[II] 強磁性状態：

- (1) スピン分極は、ほとんど Mn の 3d バンドのみにおこる。
- (2) MnTa₄S₈ あたりのモーメントは、4.35 μ_B である。
- (3) マッフィンティン球内のモーメントは、Mn で ~ 3.6 μ_B 、Ta で ~ 0.05 μ_B 、S で ~ 0.01 μ_B である。

これらの結果は実験結果とほぼよい一致を示す。

以上の結果により、Mn_{1/4}TaS₂ の磁性は Mn の 3d 電子を遍歴電子とみなす立場で理解できることが明かとなった。今後の重要な課題は、遍歴電子の立場で Mn_{1/4}TaS₂ のスピン波励起を計算することである。