

氏 名 (本 籍)	蛭 名 良 雄 (宮 城 県)
学 位 の 種 類	工 学 博 士
学 位 記 番 号	工 第 25 号
学 位 授 与 年 月 日	昭 和 4 2 年 2 月 8 日
学 位 授 与 の 要 件	学 位 規 則 第 5 条 第 2 項 該 当 昭 和 3 6 年 3 月
最 終 学 歴	東 北 大 学 大 学 院 工 学 研 究 科 修 士 課 程 電 気 及 通 信 工 学 専 攻 修 了
学 位 論 文 題 目	稀 土 類 鉄 ガ ー ネ ッ ト の 磁 性 に 関 す る 理 論 的 研 究
	(主 査)
論 文 審 査 委 員	教 授 津 屋 昇 教 授 柴 田 幸 男 教 授 堀 江 忠 児 教 授 武 内 義 尙

論 文 内 容 要 旨

第 1 章 序 説

電子工学及び磁気物性の分野で最近注目を浴びている稀土類鉄ガーネット (R I G) はフェライトの一種でその特徴として低温で極めて大きな磁気異方性、磁歪を示す。稀土類イオン R^{3+} としてイットリウム Y^{3+} の入った Y I G は磁気共鳴の線巾が非常に狭く、弾性的損失が小さい。この特徴のため電子工学的にはマイクロ波帯装置としての非線形特性が検討されている。本研究は R I G の磁気異方性、磁歪、磁気モーメント等を理論的に研究し、この知識をもとにして電子工学への一つの応用例としてパラメトリック増巾器素子の磁気的特性を検討したことを述べている。

第2章 結晶中の R^{3+} イオンの電子構造

RIGの磁性はその中の R^{3+} の電子構造に強く依存するので、RIG中での R^{3+} の挙動を知る必要がある。本章では R^{3+} のまわりの結晶対称性を立方対称とする近似をとって議論を進める。まず任意の大きさの4次及び6次の立方対称の結晶場

$$V_{4c} \equiv B\Gamma_1 \langle r^4 \rangle \bar{\beta} F_4(J), \quad V_{6c} \equiv C\Gamma_1 \langle r^6 \rangle \bar{\gamma} F_6(J)$$

$$[\bar{\beta}, \bar{\gamma} : \text{Stevens 因子}, \quad B\Gamma_1 \langle r^4 \rangle, \quad C\Gamma_1 \langle r^6 \rangle : \text{結晶場の係数}, \quad (1)]$$

$$F_4(J), F_6(J) : J \text{ の } x, y, z \text{ 成分 } J_x, J_y, J_z \text{ の関数}],$$

が全角運動量 J の磁気イオンに働いたときを群論的に研究し、その結果従来の知識では不足していた $J \leq 8$ までのすべての場合について系統的にエネルギー準位、固有関数を解析的に決定することができた。この結果から R^{3+} ($R \equiv \text{Tb, Tm, Dy, Er, Ho, Yb}$) のスピンの固有関数、エネルギー準位、 J_z の平均値 $\langle M_J \rangle$ を求めたが、その一例を Yb^{3+} について1表に示した。

1表 Yb^{3+} のエネルギー準位、 $\langle M_J \rangle$ 値

群論的表示	V_{4c}	V_{6c}	$\langle M_J \rangle$
$2\Gamma_6$	$14 B\Gamma_1 \langle r^4 \rangle / 77$	$50 C\Gamma_1 \langle r^6 \rangle / 429$	$\pm 7/6$
$2\Gamma_7$	$-18 B\Gamma_1 \langle r^4 \rangle / 77$	$30 C\Gamma_1 \langle r^6 \rangle / 429$	$\pm 3/2$
$4\Gamma_8$	$2 B\Gamma_1 \langle r^4 \rangle / 77$	$-40 C\Gamma_1 \langle r^6 \rangle / 429$	$\pm 1/2, \pm 11/6$

低温でのRIGでは鉄イオンによる交換相互作用磁場 H_{ex}^* を考える必要がある。そこで H_{ex}^* が $[100]$, $[111]$ 方向に働いた場合の R^{3+} のエネルギー準位、固有関数、 $\langle M_J \rangle$ をも知る必要がある。計算の便宜上、 H_{ex}^* , $\beta\Gamma_1 \langle r^4 \rangle$, $C\Gamma_1 \langle r^6 \rangle$ の代りに新しいパラメータ k, u, H_{ex} を用い、 $\bar{\beta}, \bar{\gamma}$ の代りに v_S, w_S , 及びボーア磁子 μ_B , ランデ因子 g_J で表わした次のハミルトニアン

$$[-(1-|u|)(g_J-1)J_z + u(1-|k|)v_S F_4(J) + ukw_S F_6(J)] (\mu_B H_{\text{ex}}) \quad (2)$$

に対して電子計算機を用い、 $-1.0 \leq k \leq 1.0$, $-1 \leq u \leq 1$ の範囲で数値計算を行ない、従来の研究範囲を大巾に拡張したより一般的な場合のエネルギー準位、固有関数、及び $\langle M_J \rangle$ を得た。

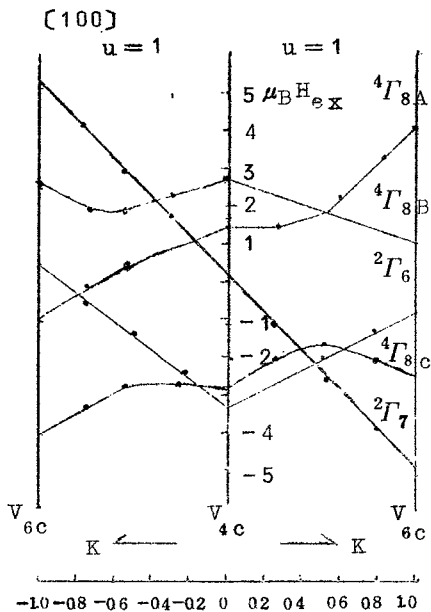


図1. Dy^{3+} のエネルギー準位
 Γ は群論的表示記号

一例として Dy^{3+} のエネルギー準位を図1に $0^{\circ}K$ での $\langle M_J \rangle$ を図2に示した。他の R^{3+} について得られる同種の図表から、 H_{ex} 、 V_{6c} 、 V_{4c} が任意の大きさに R^{3+} に働いているすべての場合の R^{3+} の電子構造がわかる。

すなわち R^{3+} を磁気イオンとして含む、あらゆる種類の立方対称の磁性化合物の磁気モーメントの値を、結晶場の大きさ、あるいはパラメータ K 、 u の値がわかれば理論的に求めることができる。また逆に、磁気モーメントを実験的に求めることができる場合は、結晶場の値を求めることができる。

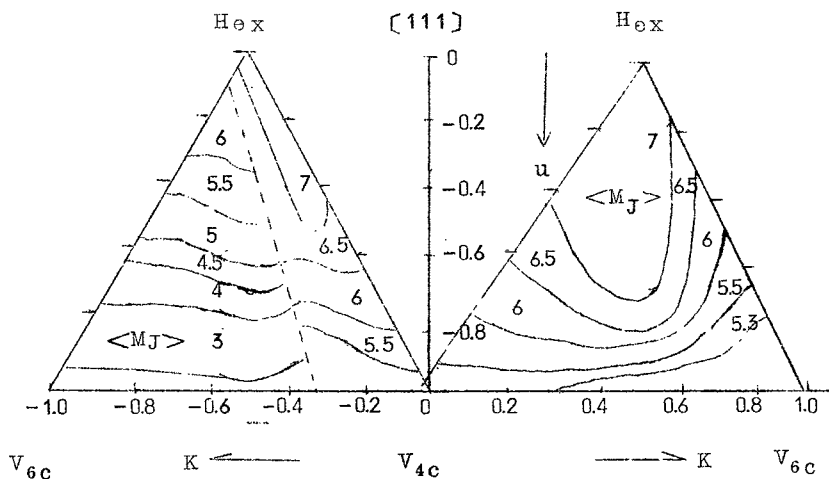


図2. Dy^{3+} の $\langle M_J \rangle$ 値。点線は基底状態のエネルギー準位の交鎖点を表わす。

第3章 RIGの磁氣的性質の解析

本章では RIG の磁化、磁気異方性常数、磁歪常数を前章の結果等を利用して理論的に求めた。すなわち RIG の磁化の値は1個の R^{3+} の磁気モーメント $g_J \langle M_J \rangle$ の値がわかれば求めるこ

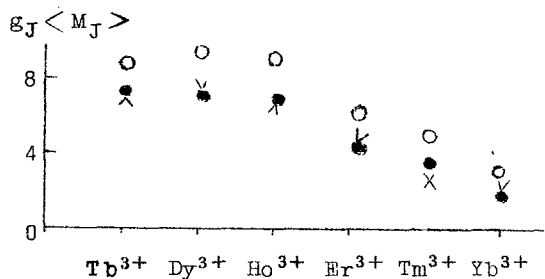


図3. RIGのR³⁺の磁気モーメント

- Whiteらの理論値
- 本研究の結果
- Gellerらの実験値

とができるので、ここではR³⁺の磁気モーメントを求める。2章のパラメータ値として $\mu_B H_{ex}^* = 48 \text{ cm}^{-1}$ 、 $B\Gamma_1 \langle r^4 \rangle = -67 \text{ cm}^{-1}$ 、 $C\Gamma_1 \langle r^6 \rangle = -26 \text{ cm}^{-1}$ とおくと[†]、R³⁺1個当りの磁気モーメントの値は図3に示したように、従来の理論の結果(白丸)よりも実験値との一致ははるかに改善されている。

次に従来YbIGを除くすべてのRIGで知られていなかった磁気異方性常数 K_1 及び今まで理論的研究が行なわれていなかった磁歪常数を量子力学的に計算した。 K_1 は(1)のハミルトニアンを基礎として次のように求まる。

$$K_1 = -(20/3)NB\Gamma_1 \langle r^4 \rangle \bar{\alpha} \langle H \rangle_4 ; N: R^{3+} \text{ の全数} \quad (3)$$

また磁歪常数 λ_{100} 、 λ_{111} は、外からRIGへ歪を与えたときの磁気的エネルギーの変化を摂動として計算することができその結果次式を得る。

$$\lambda_{100} = (1/2) \cdot \bar{\alpha} \langle H \rangle_2 NL \langle r^2 \rangle / (C_{11} - C_{12}), \lambda_{111} = -(1/3) \cdot \bar{\alpha} \langle H \rangle_2 NL \langle r^2 \rangle C_{44}^{-1} \quad (4)$$

($\bar{\alpha}$: Stevens 因子, C : 弾性常数)

L は点電荷モデルでは $41.66e^2$ (e は電子の電荷)と求められ、 $\langle H \rangle_{4,2}$ は温度に依存する量である。 $B\Gamma_1 \langle r^4 \rangle$ に前に用いた -67 cm^{-1} を、 $\langle r^2 \rangle$ にFroemanの結果を用い、更に J の平均値に対する結晶場の効果(J の短縮)をとり込むとRIGの $K_1(0^\circ\text{K})$ 、 $\lambda_{100}(300^\circ\text{K})$ 、 $\lambda_{111}(300^\circ\text{K})$ は図4に示した値となる。図からわかるようにRIG全体としてみると実験値との一致は極めてよく、またYbIGの K_1 では従来のHendersonの値よりも実験値に近い。上で用いたパラメータ値としてWickersheimの得た $\mu_B H_{ex}^* = 20 \text{ cm}^{-1}$ を用いると K_1 の理論値は図4の値の約1/4となり実験値より小さくなる。

脚注 † この $B\Gamma_1 \langle r^4 \rangle$ には点電荷モデルをもとにして計算したWolfらの結果を用いた。

第4章 YIGのパラメトリック増巾器への応用

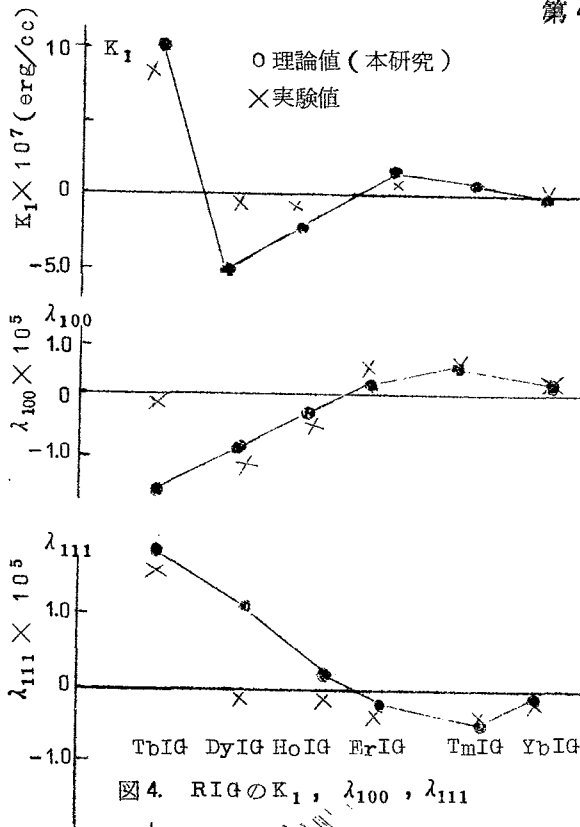


図4. RIGの K_1 , λ_{100} , λ_{111}

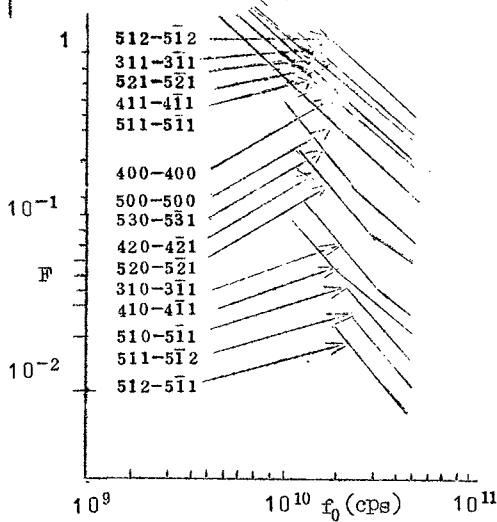


図5. Walker モード対のポンピング周波数 f_0 に対するファイリング因子 F 。ここではモード番号 (n, m, r) を n, m, r で指定した。

本章では前章までのRIGの磁性の応用の一つの例として強いマイクロ波をポンプとして加えたときのパラメトリック増巾器のファイリング因子 (Filling Factor) F を求め、また等価回路を用いて最大利得帯域巾積 (GB) $_{max}$ 、及び雑音指数 NF を求めた結果を述べる。球状試料に5次までのあらゆるWalkerモード対を用いたときの F を図5に示したように、ポンプ周波数 f_0 の関数として系統的に計算し、今まで最も適当であるとして知られているモード対 $(311) - (3\bar{1}1)$ よりも有利なモード対 $(512) - (5\bar{1}2)$ 、等のあることがわかった。 F は線巾 ΔH の関数である。

$(GB)_{max}$ を増し NF を下げるためには F がすでに図に示したように定まっているので増幅器を設計する立場から ΔH を調節して適当な大きさにする必要がある。 ΔH は3章で述べた K_1 , λ_{100} , λ_{111} の関数であるから ΔH の大きさを図4を用いて求めることができる。 Tb^{3+} , Dy^{3+} , Ho^{3+} では ΔH が Yb^{3+} , Tm^{3+} に比べてほぼ1桁程大きくなる。したがって $YIG \rightarrow R^{3+}$ を $dope$ して望みの ΔH を得ようとする場合、上の計算結果並びに現在の単結晶製作上の種々の条件

を考慮すると R^{3+} としては添加濃度に対する ΔH の変化量があまりはげしくない Yb^{3+} , Tm^{3+} を選定することは比較的適切であると言える。例えば ΔH として $0.5 O_e$ を得るためには Tm^{3+} では 0.1% 添加すればよく, F の大きい $(512) - (5\bar{1}2)$ モード対を用いると $\frac{1}{2} f_0 = 10^{10}$ cps では $N F = 10.5$, $(GB)_{\max} = 1.6 \times 10^6$ cps と求まる。またこのときの臨界磁場の大きさは $1.8 O_e$ であった。

第 5 章 論 議

本章では前章までの議論で無視した一軸性結晶場, 異方的交換相互作用の影響, 及びスピン波励起の問題等について検討を加えた。

一軸結晶場, 及び異方的交換相互作用の影響は立方対称結晶場の影響に比べて小さい。しかし完全に無視されうるほどに小さくないので実験値と理論値の間の差の説明にはこれらの影響を取り入れた研究が今後の問題として残されている。

スピン波励起の影響は温度が上昇したときに重要であるが, 現在までに RIG に対する研究は行われていないので特に詳しく検討した。RIG のフェリ磁性体のスピン波の基本的なブランチの一つについてのスペクトルが量子力学的に (波数 K_0 に対して)

$$\lambda + K_0^2 \mu \quad (5)$$

と表わされることを見出した。立方対称結晶場が零でないために存在する第一項の定数項 λ は従来の結果と比べて特徴的である。このスペクトルを用い量子統計力学的計算により, 帯磁率, 比熱, 磁化 $M(T)$ の温度 (T) 変化及び $0^0 K$ での g 因子を表わす式を導びいた。 g 因子を除いた上述の量は λ 項の存在のため極めて特異な温度変化を示す温度因子 $\exp(-\lambda/kT)$ (k : ボルツマン定数) を含むことを見出した。

次に (5) 式のスペクトルの λ の項の影響を合理的に取り込むことのできる R^{3+} から構成される簡単な強磁性系の磁気異方性定数 K_1 , 磁歪定数等をグリーン関数を用いて計算した。この結果, 例えば (2) の異方性定数 K_1 は低温で

$$K_1(T)/K_1(0) \approx \{ M(T)/M(0) \}^{n_4} \quad (6)$$

と表わされる。この n_4 は 3 章のパラメータの値を用いると, TbIG で $n_4 = 6.3$ と求められるが, これは結晶場を零とする従来の理論で得られる $n_4 = 10$ と本質的に異なる。

審査結果の要旨

稀土類鉄ガーネット (RIG) は低温で巨大な磁気異方性、磁歪を示す等の特異な磁気的性質を有し、特に YIG では非線形特性が容易に実現されるために、マイクロ波帯電子装置の素子材料として、最近注視されている磁性体である。この興味ある磁性の起因の解明は、従来結晶中の稀土類イオンの磁気能率の解析が困難なために、容易に解明され得なかつた重要な課題の一つである。本論文は量子力学的手法を以て重い稀土類鉄ガーネットの磁性を系統的に研究したものである。

第1章は緒論である。

第2章では、交換相互作用磁場と立方対称結晶場の両者をパラメータとして、これらの作用の下における各稀土類イオンの電子状態を、群論と電子計算機を用いて系統的に解析した結果について述べている。すなわち、従来無視された稀土類イオンの磁気能率の重要な量子論的短縮効果が、著者により始めて合理的に考慮されたことになり、磁気的性質の説明の基礎となる重要な知見を与えたものと言える。

第3章では、まず前章の結果を用いて Tb~YbIG の自発磁化を計算し、これらに共通な結晶場パラメータの値を用いて、従来の理論よりはるかによく実験と一致する結果を得た。ついで、その巨大な磁気異方性、磁歪を稀土類に本質的な軌道能率を考慮して、量子力学的に算出することに成功し、上記の共通パラメータを用いて RIG の実験事実と統一的に一致する結果を得た。著者は特に四次の結晶場パラメータが、その結晶構造から評価される値とよく一致することを確かめたが、以上 RIG の特異な磁性の基本的説明は重要な新知見である。

第4章および第5章においては、磁性の温度特性に重要なスピン波励起の問題等に検討を加えた。すなわち、スピン波の分散関係に稀土類磁性体に特有な附加項の存在を指摘し、これに新たにグリーン関数法を適用して各種磁気特性の温度変化に検討を加えた。さらに、マイクロ波帯パラメトリック電子装置の重要因子である利得帯域巾積等を理論的に解析し、これらに含まれる磁気特性に前章までの結果を適用すれば、YIG に対する添加元素としては、Yb あるいは Tm を選ぶことが適切であることおよびその添加量に対する新知見をも加えることができた。

以上を要するに、本論文は従来明らかにされなかつた稀土類鉄ガーネットの特異な磁気的性質に量子論的説明を与えたものであり、これは固体物性論として貢献するところ少なくないのみならず、磁性材料学に対する基礎的な知見を与えたものと言える。

よつて本論文は、工学博士の学位論文として合格として認める。

第 6 章 要約及び結論

本章では今までの結果を要約し，結論を述べた。従来の理論では十分に明らかでなかった R I G の磁氣的諸特性は本研究によりはじめて系統的に全 R I G を通じて明らかとなった。この結果を用いると，電子工学的にみて非常に重要な特性である Y I G の線巾の調節に添加すべき R^{3+} の量に対する知見を得ることができた。

最後に，本研究を行なうに当り終始御懇篤なる御指導，御鞭撻を賜りました東北大学電気通信研究所教授，津屋昇先生に深く感謝の意を表します。