

磁気記録媒体の熱揺らぎ解析

Analysis of Thermal Fluctuation in Magnetic Recording Media

成重真治・鈴木良夫*

(株)日立製作所ストレージ事業部 神奈川県小田原市国府津 2880 (〒256-8510)

*株)日立製作所中央研究所 東京都国分寺市東恋ヶ窪1-280 (〒185-8601)

S. Narishige and Y. Suzuki*

Data Storage Systems Division, Hitachi, Ltd., 2880 Kozu, Odawara-shi, Kanagawa 256-8510

* Central Research Laboratory, Hitachi, Ltd. 1-280 Higashi-koigakubo, Kokubunji-shi, Tokyo 185-8601

A new analytical formula for thermal fluctuation in magnetic recording media is presented. The thermal fluctuation of isolated particles in the presence of a small magnetic field is evaluated by introducing a simple and precise energy barrier formula. The thermal decay and the remanent coercivity of the recording medium, which has grain size distribution and inter-granular exchange interaction, are numerically computed. These results are approximated by an equation in terms of the thermal fluctuation in the magnetic recording media. This analytical formula shows good agreement with previous experimental results, which indicates an increase in the activation volume in the presence of a small magnetic field. Both the increase in the activation volume and a decrease in the magnetic viscosity coefficient in the presence of a small magnetic field can be explained by the mixture of thermally reversed and re-reversed particles. Reducing the demagnetization field for the recording media is most effective for decreasing the signal decay. From this point of view, an AFC medium, which can reduce the demagnetization field without decreasing the magnetic anisotropy energy of the particles, has a strong potential for realizing higher recording density.

Key words: recording media, energy barrier, magnetic viscosity, exchange interaction, grain size distribution

1. はじめに

高記録密度HDDを実現するためには磁気記録媒体の低ノイズ化と記録性能確保が必須である。低ノイズ化は結晶粒径の微細化、記録性能確保は異方性磁界を適度な値に設定することで実現する。このことは、粒子の磁気異方性エネルギーを余り大きく出来ないことを意味している。粒子の異方性エネルギーと熱エネルギーの比がある値以下では、磁化が時間的に減衰する熱揺らぎが起こる。記録媒体の熱揺らぎ現象に関して、実験的・理論的に多くの報告がある¹⁾⁻¹⁰⁾。

熱エネルギーにより、エネルギーバリアーを越えて磁化反転する現象が熱揺らぎであることから、正確なエネルギーバリアーの値を知ることが重要である。臨界反転磁界 H_{nc} より僅かに小さい磁界下での高エネルギー状態から低エネルギー状態への遷移エネルギーバリアーはVictoraらから報告されている¹¹⁾。Victoraの式と著者らの数値計算で求めた正確なエネルギーバリアーを比較すると、高磁界では数%程度の誤差である。一方、Victoraの式を低磁界まで適用すると、磁界と磁化容易軸のなす角度が $0, \pi/2$ に近い領域では、正確なエネルギーバリアーより50%以下と小さく、誤差が大きい。第二章では、磁界及び磁界と磁化容易軸のなす角度が共に広い範囲で精度の良いエネルギーバリアー近似解析式を示す。その解析式を用いて、粒子間相互作用と粒径分布の無い孤立粒子磁化の時間変化を記述する。近似解析式で求まるエネルギーバリアーの値は高磁界で誤差を含むことから、数値計算で求めた厳密なエネルギーバリアーの値を用いて、粒子間相互作用と粒径分布の無い粒子系の残留保磁力の時間依存性を計算した結果を述べる。

実際の媒体では粒子間交換相互作用と粒径分布を考慮する必要がある。粒子間交換相互作用を考慮した熱揺らぎ解析法として、所謂LLG法^{12), 13)}が知られている。一方、粒子系を母集団として取り扱うマスター方程式法を使った熱揺らぎ解析が報告されているが²⁾⁻⁴⁾、粒子間交換相互作用は考慮されていない。第三章では、マスター方程式法を使って、粒子間交換相互作用と粒径分布のある多粒子系の熱揺らぎ現象を解析した結果を述べる。

2. 孤立粒子の熱揺らぎ

2.1 孤立粒子の磁化反転とマスター方程式法

粒子の飽和磁化を M_s 、異方性エネルギー定数を K_u 、体積を V 、磁界 H と磁化容易軸とのなす角度を ϕ と表す。磁界は x 軸方向とする。磁界と粒子の磁化方向のなす角度を θ とすると、粒子のエネルギー E は式(1)で表される。

$$E = K_u V \sin^2(\theta - \phi) - H M_s V \cos \theta \quad (1)$$

角度 ϕ で決まる臨界反転磁界 H_{nuc} より磁界 H が小さい場合、式(1)のエネルギーが極小となる磁化方向は θ_1 , θ_2 の二つある。負磁界印加時にエネルギーの高い磁化方向を θ_1 , エネルギーの低い磁化方向を θ_2 と定義し, $m_1 = \cos \theta_1$, $m_2 = \cos \theta_2$ と表す。 θ_1 と θ_2 の間にはエネルギー極大となる鞍点磁化方向 θ_{sp} がある。 θ_{sp} のエネルギーと θ_1 , θ_2 のエネルギー差を各々 Eb_u , Eb_s とする。粒子のエネルギーと熱エネルギーの比がある値以下では、磁化 m_1 からエネルギーバリア Eb_u を越えて磁化 m_2 へ、 m_2 からエネルギーバリア Eb_s を越えて m_1 へ磁化反転する。高エネルギー状態から低エネルギー状態に反転する緩和時間 τ_1 , 低エネルギー状態から高エネルギー状態に反転する緩和時間 τ_2 は各々式(2)で表される。

$$1/\tau_1 = f_0 \exp(-Eb_u/kT) \quad (2-1)$$

$$1/\tau_2 = f_0 \exp(-Eb_s/kT) \quad (2-2)$$

ここで、 f_0 は周波数因子と呼ばれており、異方性磁界等で変わる量である¹⁴⁾。本研究では f_0 として 2 GHz の値を採用した。また、 k はボルツマン定数、 T は絶対温度である。

大きな正磁界印加から残留磁化を経て、負磁界を印加したとする。この初期状態で磁化 m_1 にある確率を n_0 とすると、 t 時間後に磁化 m_1 にある確率 n_1 は式(3)で与えられる³⁾。

$$n_1 = \tau/\tau_2 + (n_0 - \tau/\tau_2) \exp(-t/\tau) \quad (3)$$

ここで、 τ は式(4)で与えられる。

$$1/\tau = 1/\tau_1 + 1/\tau_2 \quad (4)$$

飽和磁化 M_s で規格化した母集団磁化 m を式(5)で計算する方法をマスター方程式法と呼んでいる^{2), 4)}。

$$m = M/M_s = n_1 m_1 + (1 - n_1) m_2 \quad (5)$$

大きな正磁界印加から残留磁化あるいは負磁界を受けた状態を経て、再度正磁界を受けている状態では、エネルギーバリアの関係が逆転する。この場合の磁化 m_1 にある確率 n_1 は式(6)となる。

$$n_1 = (\tau/\tau_1) + (n_0 - \tau/\tau_1) \exp(-t/\tau) \quad (6)$$

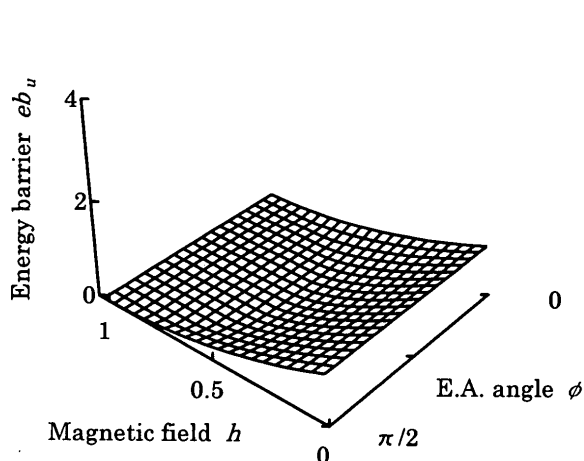
後述する交換相互作用と粒径分布のある多粒子系では、負の外部磁界でも、粒子の受ける実効磁界が正となる場合が起こり得る。本論文では磁界 H を異方性磁界 H_k で割った規格化磁界 $h = H/H_k$ を磁界とも表現した。

式(3), (6)に於いて、時間 t が τ に比べて十分に長い状態が熱平衡状態である。磁界の正負に於ける熱平衡状態の n_1 は式(3), (6)の右辺第一項である。熱平衡状態の n_1 を n_{10} と表す。粒子系を標本として取り扱う LLG 法では、熱平衡にある微細粒子は n_{10} にあるとして、微細粒子の磁化を計算する。熱平衡状態に達していない大きな粒子は $n_0 = 1$, $n_{10} = 0$ と見なし、 t 時間後の反転割合を式(3), (6)とし、確率計算する。しかし、計算された個々の粒子の n_1 はあくまでも1あるいは0のいずれかである。活性化体積を求める Chantrell らの方法も n_1 は1か0のどちらか一方の値のみをとっている¹⁵⁾。一方、母集団を取り扱うマスター方程式法では何れの条件でも、 n_1 , n_0 , n_{10} とも1から0の間の計算された値である。VSM等で測定されるサイズのサンプル中には1兆個程度の粒子が含まれている。このような多数の粒子系の場合には、母集団を取り扱うマスター方程式法は有効である。

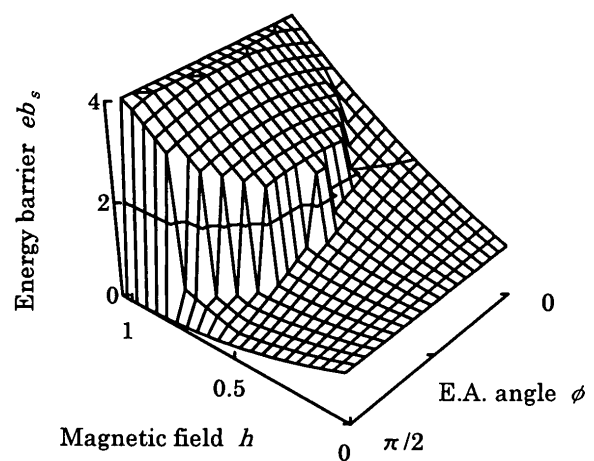
2.2 エネルギーバリア解析式

Fig. 1 では数値計算で求めた各 ϕ , h に対する二つのエネルギーバリアを図示した。磁界がない場合の粒子のエネルギーバリア $K_u V$ で規格化した $eb_u = Eb_u/(K_u V)$, $eb_s = Eb_s/(K_u V)$ を示してある。 eb_u は $\phi = \pi/4$ に対して対称であり、 eb_s は ϕ に対して振れている。 $\phi = \pi/2$ の eb_s は eb_u と同じであることから、 n_{10} は磁界に依らず0.5の一定値となる。

テイラー展開法で求めた二つのエネルギーバリア eb_u , eb_s の近似解析式は式(7), (8)である。ここで、磁界 h は正の値である。



(a) Energy barrier between saddle point and higher



(b) Energy barrier between saddle point and lower energy state m_2 .

Fig. 1 Energy barrier distributions as a function of the magnetic field and the angle between the magnetic field and the easy axis.

$$eb_u = 1 - 2(\cos \phi + \sin \phi)h + h^2 + \sin \phi \cos \phi (\cos \phi + \sin \phi)h^3 \quad (7)$$

$$eb_s = 1 + 2(\cos \phi - \sin \phi)h + h^2 + \sin \phi \cos \phi (\cos \phi - \sin \phi)h^3 \quad (8)$$

式(7), (8)は $\phi = 0, \pi/2$ で厳密解と一致する h の2次関数となっている。

記録性能確保の観点から、10 kOeから14 kOe程度の異方性磁界の媒体が実用になっている。記録磁化の反磁界 H_d は0.5 kOe程度であることから、規格化反磁界 $h_d = H_d / H_k$ は0.05ないし、それ以下である。 h が0.1以下であれば、 h の1次の項までの式(7), (8)と数値計算厳密解との差は全角度範囲で1.5%以内である。 eb_u, eb_s の解析式が求まったので、低磁界下での孤立粒子の熱揺らぎの式を示す。(3), (7), (8)より、 t 時間後と熱平衡の磁化 m_1 にある確率 n_1, n_{10} は各々式(9), (10)となる。

$$n_1 = n_{10} + (n_0 - n_{10}) \exp \left[-f_0 t \{1 + \exp(F_1)\} / \exp(F_2) \right] \quad (9)$$

$$n_{10} = 1 / \{1 + \exp(F_1)\} \quad (10)$$

ここで、 F_1, F_2 は式(11), (12)で与えられる。

$$F_1 = (4K_u V h / kT) \cos \phi \quad (11)$$

$$F_2 = (K_u V / kT) \{1 + 2h(\cos \phi - \sin \phi)\} \quad (12)$$

磁界 h が小さい場合、磁化 m_1, m_2 は容易軸方向にあると近似出来、 $m_1 = \cos \phi, m_2 = -\cos \phi$ となる。母集団粒子磁化 m は式(5)より、

$$m = (2n_1 - 1) \cos \phi \quad (13)$$

と表される。

2.3 磁化反転磁界

磁化反転に要する磁界は次の様になる。初期状態 n_0 を1とする。 ϕ が $\pi/2$ に近い粒子の n_{10} は0.5に近い値であるが、磁化 m が小さいことから、全ての ϕ に対して $n_{10} = 0$ と近似する。式(9), (11), (12)より、時間 t で n_1 が0.5となる磁界 h_{50} は式(14)となる。

$$h_{50} = \{0.5 / (\cos \phi + \sin \phi)\} \cdot \{1 - (kT / K_u V) \ln(f_0 t / 0.693)\} \quad (14)$$

時間 t より以前に n_1 が0.5となる場合、 h_{50} は負の値となる。 $K_u V / kT$ と h が共に小さい場合、 ϕ が0に近い角度でも $n_{10} = 0$ と見なせなくなり、式(10)を計算する必要がある(後述)。

ϕ の小さい粒子が多数ある配向媒体は熱揺らぎ反転磁界 h_{50} が大きいことから、熱揺らぎ耐性に優れている。一方、熱揺らぎが起こり始めると、 ϕ の小さい粒子の磁化変化量は大きい。従って、配向媒体と2Dランダム媒体では、磁化減衰曲線の形が変わることになる。記録性能確保の観点から、2Dランダム媒体に比べて配向媒体の H_k を小さくするのが一般的である。エネルギーバリアは規格化磁界 $h = H / H_k$ で決まっている。同じ磁界 H で比較した場合、 H_k の小さい配向媒体は規格化磁界が低下し、この点も考慮すべきである。

母集団孤立粒子磁化 m を角度 ϕ に関して積分すれば、粒子間相互作用と粒径分布が無い多粒子系の平均磁化 $\langle m \rangle$

が求まる。その後のマイナーループを同様に計算すれば残留保磁力が求まる。求めた残留保磁力の式はBertramらの報告の式⁷⁾と類似の式(15)である、

$$H_{cr}(t) = 0.555 H_k [1 - \{(kT / K_u V) \cdot \ln(f_0 t / 0.693)\}^{2/3}] \quad (15)$$

Bertramら報告の式と H_k の前の係数と時間に依存する項の係数が異なるのは、エネルギーバリアにVictora近似関数を用いたか、数値計算厳密解を用いたかの違いと思われる。

3. 多粒子系の熱揺らぎ

3.1 粒径分布

本章では、各粒子の飽和磁化と異方性磁界は同じで、磁化容易軸は膜面内に有り、膜面内の磁化容易軸は一樣な2Dランダム媒体で、粒径分布と粒子間に交換相互作用がある多粒子系媒体の熱揺らぎ現象を取り扱う。

対数正規分布あるいはRosin - Rammler分布等がCoCrPtTa系媒体等の粒径分布を表すと報告されている¹⁶⁾。しかし、式(16)で表されるD²ガウス分布が最近のCoCrPtB系媒体の粒径分布を良く表現することから、本解析ではD²ガウス粒径分布関数を採用した。

$$P_D = D^2 \exp \{-0.5 (D_0 - D)^2 / \Sigma^2\} \quad (16)$$

ここで、 D は粒径、 D_0 は最頻粒径、 Σ は分布の広がりを表す。下地膜材料と磁性膜材料との組み合わせで、粒径分散 sd (標準偏差を平均粒径で割った値)を低減した媒体に於いても、最小粒径分散は30%程度であった。そこで、本解析では主に30%粒径分散の媒体について計算した。

熱揺らぎで磁化が時間変化するの、緩和時間 τ が磁界印加時間 t と同程度の粒子である。緩和時間 τ は、磁界 h 、粒径体積 V 、容易軸角度 ϕ 、磁気異方性定数 K_u 等の関数である。磁化変化を計算するには、磁界印加時間と同程度の緩和時間を有する粒子を選択し、熱平衡にある粒子と緩和時間の長い粒子は全粒子に対する比率を求めておけば良い。そこで、以下の方法により磁界印加時間と同程度の緩和時間を有する粒子径範囲を求めた。磁界印加最短時間を t_{min} 、最長時間を t_{max} とする。磁化 m_1 から磁化 m_2 への緩和時間 τ_1 の最も長い粒子が $0.01 t_{min}$ より短かければ、それ以下の緩和時間の粒子は熱平衡状態に近い。粒径 D が同じで、緩和時間が最も長くなるのは、 $\phi = 0$ の粒子である。緩和時間 τ_1 の最も短い粒子が $1000 t_{max}$ より長ければ、それ以上の緩和時間の粒子磁化は時間的に変化しない。粒径 D が同じで、緩和時間が最も短くなるのは $\phi = \pi/4$ の粒子である。外部磁界と交換相互作用磁界の和である実効磁界が粒子に加わるために、最短・最長緩和時間幅を t_{min} から t_{max} の幅より拡大した。全粒径分布の中から、磁化が時間的に変化する最小粒径 D_{min} と最大粒径 D_{max} を式(17), (18)で求め、 D_{min} から D_{max} の間の粒径を24分割した。

$$V_{min} = \pi D_{min}^2 \delta / 4 = [kT / \{K_u eb_u(h, \phi=0)\} \cdot \ln(0.01 f_0 t_{min})] \quad (17)$$

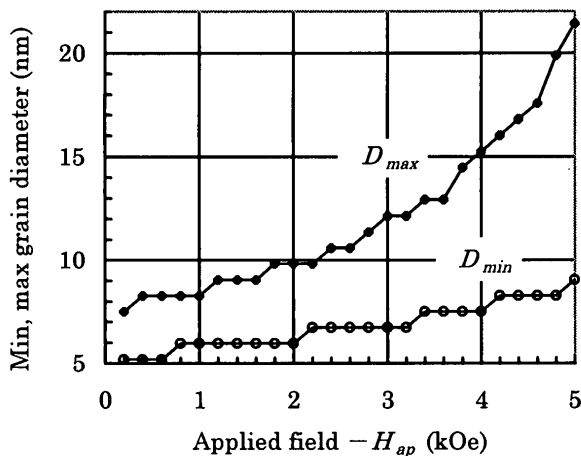


Fig. 2 Minimum and maximum grain diameter dependence of the applied field.

$$V_{max} = \pi D_{max}^2 \delta / 4 = [kT / \{K_u e b_u (h, \phi = \pi/4)\}] \cdot \ln(1000 f_o t_{max}) \quad (18)$$

$M_s = 366 \text{ emu/cm}^3$, $H_k = 12.5 \text{ kOe}$, 膜厚 $\delta = 15 \text{ nm}$, 平均粒径 $D_{av} = 10 \text{ nm}$ の媒体における, $T = 25 \text{ }^\circ\text{C}$, $t_{min} = 7.5 \text{ s}$ から $t_{max} = 960 \text{ s}$ の間に, 各印加磁界に対して磁化が時間的に変化する最小粒径 D_{min} と最大粒径 D_{max} の計算結果を Fig. 2 に示す. 大きな磁界では, 磁化の時間変化が観測される粒子径は大きくなる.

3.2 交換相互作用

Bertram らは, 連続的な強磁性体間の交換相互作用エネルギーの式を離散的な粒子系に直し, 隣接粒子間の交換相互作用エネルギーの式を報告している¹⁷⁾. すなわち, 隣接粒子から受ける異方性磁界で規格化した交換相互作用磁界 H_{ex} / H_k は式(19)で与えられるとしている.

$$H_{ex} / H_k = (A^* / K_u D^2) \sum_i m_i = h_{ex} \sum_i m_i \quad (19)$$

A^* は粒子間交換定数 (以下交換定数と略す), m_i は隣接粒子磁化である. 磁気異方性定数 K_u が大きい媒体の場合, 粒子内部の磁化は一樣で, 磁化変化は粒界で起こると考えられる. この場合, 粒子間の交換エネルギーは粒界面積に比例すると考えられる. 単位体積当たりの交換エネルギーは粒径 D に反比例となる. 単位粒界面積当たりの交換エネルギーを σ_{ex} で表すと, $\sigma_{ex} = 2A^* / D_{av}$. と表せる. ここで, D_{av} は平均粒径である. 今, 隣接粒子磁化の和 $\sum_i m_i$ を粒子系の平均磁化 $\langle m \rangle$ とする平均場近似を採用すると, 粒径 D の粒子の受ける交換相互作用磁界は式(20)となる.

$$H_{ex} / H_k = \sigma_{ex} D \langle m \rangle / (2K_u D^2) \\ = (A^* / K_u D_{av} D) \langle m \rangle = h_{ex} \langle m \rangle \quad (20)$$

本解析の交換相互作用磁界は式(20)で計算した. 粒径分布 P_D の面積平均粒径を D_{av} と表すと, 平均磁化 $\langle m \rangle$ の項を除いた平均交換相互作用磁界定数 h_{exav} は式(21)となる.

$$h_{exav} = A^* / K_u D_{av} D_{av} \quad (21)$$

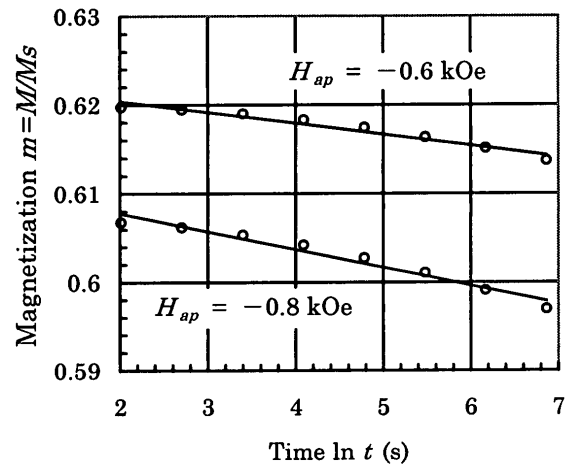


Fig. 3 Magnetization decay curves under each applied field.

30%分散 D^2 ガウス分布の場合, $D_{aav} = 1.12 D_{av}$ である. 外部磁界 H_{ap} と交換相互作用磁界 H_{ex} の和である実効磁界 H が粒子に加わる磁界である. 粒径 D と粒径分布関数 P_D とから, 体積 V , 体積分布関数 P_V , 平均体積 V_{av} を求め, 多粒子系の平均磁化 $\langle m \rangle$ を式(22)で計算した.

$$\langle m \rangle = (1 / V_{av}) \int \int P_V P_\phi m(h, \phi) V dV d\phi \quad (22)$$

P_ϕ は磁化容易軸の分布関数であり, 2D ランダム媒体では一定値である. 各粒子には式(20)の平均磁化 $\langle m \rangle$ の項を含むことから, 各粒子磁化とそれら粒子系の平均磁化をセルフコンシステントに計算した.

3.3 磁化減衰

以下数値計算エネルギーバリアを使った具体的計算結果を示す. 以下の記述では, 外部磁界は全て負磁界とする. Fig. 2 と同じ媒体・温度・時間条件, 交換定数 A^* を $0 \sim 0.15 \mu\text{erg/cm}$ とし, 外部磁界 H_{ap} が -0.2 kOe から -5 kOe の範囲の粒子系平均磁化等を計算した. 以下の本文及び図では簡単のために, 粒子系平均磁化を単に磁化 m と表す. $A^* = 0.1 \mu\text{erg/cm}$, $H_{ap} = -0.6, -0.8 \text{ kOe}$ の磁化減衰曲線を Fig. 3 に示す. 対数時間 $\ln t$ に対して磁化をプロットした磁化減衰曲線は正確には対数時間に対して非線形であるが (後述), 非線形項は小さい. 磁化減衰曲線を対数時間に対して線形と近似した場合, 対数時間の比例係数が磁気粘性係数 S である. また, 二つの異なる磁界の磁化減衰曲線に於いて, 同じ磁化となる時間差から活性化径 D_a を計算する方法が, waiting time 法⁶⁾ と呼ばれている. Fig. 2 と同じ媒体, 温度, 時間条件で磁気粘性係数 S と活性化径 D_a を計算した. 外部磁界 $-H_{ap}$ に対して, 磁気粘性係数の対数 $\ln S$ をプロットしたのが Fig. 4, 活性化径 D_a をプロットしたのが Fig. 5 である. 低磁界側で $\ln S$ が急激に低下することに対応して, D_a は急激に増大している. 交換定数 A^* が大きい程, 磁気粘性係数の低下, 活性化径の増大も著しい. Fig. 2 との比較から, 低磁界の D_a は磁化反転粒子径 D_{min} , D_{max} よりも大き

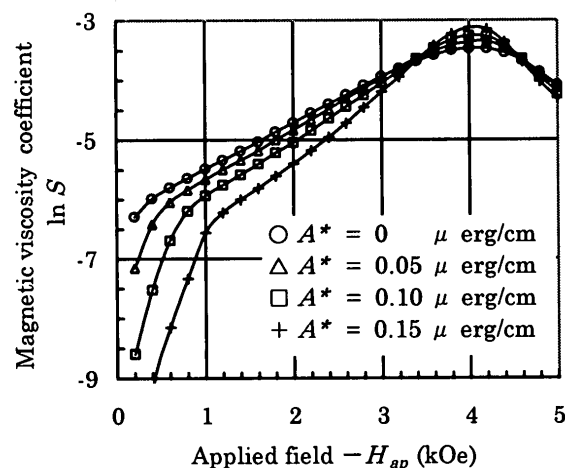


Fig. 4 Magnetic viscosity coefficient as a function of the applied field.

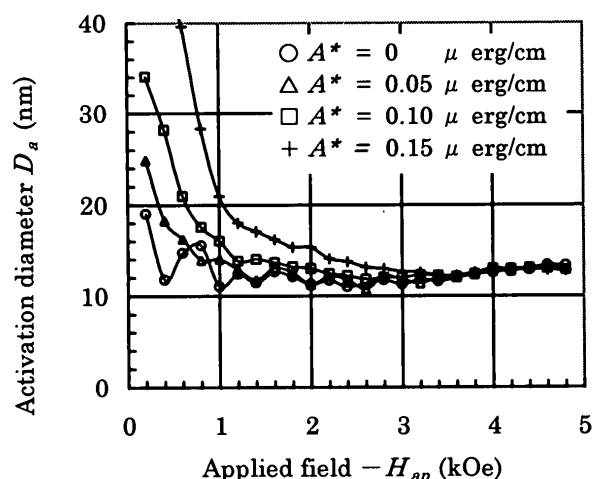
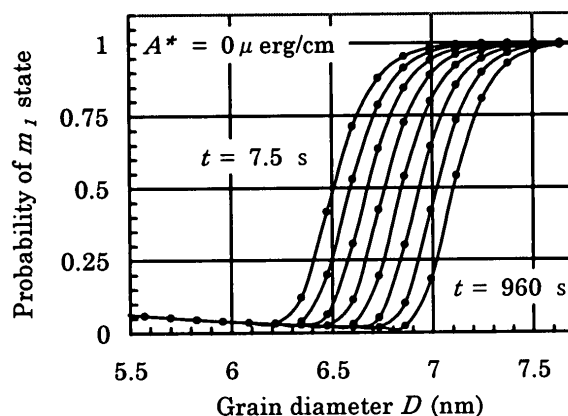


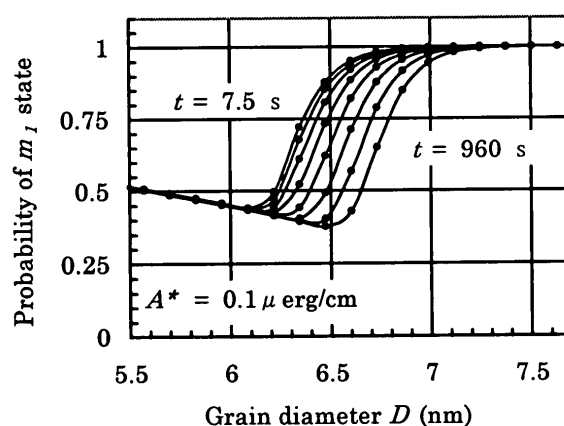
Fig. 5 Activation diameter D_a as a function of the applied field.

く、高磁界の D_a は D_{min} と D_{max} の間にある。低磁界での $\ln S$ の急激な低下、 D_a の急激な増大は以下のように理解出来る。

磁化減衰曲線は磁化 m_1 にある確率 n_1 の時間変化を表していることから、 n_1 の時間変化を調べた。典型例として、 $\phi = \pi/4$ 、交換定数 A^* が0と $0.1 \mu \text{ erg/cm}$ の粒子について、外部磁界 $H_{ap} = -0.6 \text{ kOe}$ に於ける各粒子の7.5秒から960秒までの n_1 の時間経過をFig. 6(a), (b)に示す。粒子間交換相互作用が無い場合、時間経過と共に順次大きな粒子の磁化反転が起こり、各粒子の n_1 は式(10), (11)で決まる熱平衡状態の n_{10} に漸近する。粒子間交換相互作用がある場合、 n_1 がゼロ近くまでは磁化反転しない。これは粒子の受ける実効磁界が小さいことから、熱平衡状態の n_{10} が大きいことによる。今、規格化外部磁界 h は、 $h = -0.6/12.5 = -0.048$ である。Fig. 3より、平均磁化は0.62程度である。式(20)より粒径6.5 nmの粒子の受ける規格化交換磁界は $+0.042$ であることから、規格化実効磁界は -0.006 と小さい。式(10)より、この規格化実効磁界に於ける熱平衡状態の n_{10} は0.38



(a) Non-exchange interaction.



(b) Exchange interaction.

Fig. 6 Probability of a higher energy state m_1 for particles of each grain diameter at each time under $H_{ap} = -600 \text{ Oe}$.

程度と大きい。すなわち、二つのエネルギーバリアの差 $Eb_u - Eb_d$ が小さいことから、磁化 m_1 から磁化 m_2 への反転と共に、磁化 m_2 から磁化 m_1 への再反転も無視出来なくなり、 n_{10} が大きくなる。外部磁界が小さい程実効磁界は小さくなり、磁化 m_2 から磁化 m_1 への再反転割合が増加する。

このような磁化 m_1 から磁化 m_2 への反転粒子と、磁化 m_2 から磁化 m_1 へ再反転粒子が共存している状態が、低磁界下での磁気粘性係数の減少、活性化径増大の内容である。このような現象が現れるのは外部磁界が小さく、粒子間交換相互作用磁界が大きい場合である。粒子間交換相互作用が無くても、非常に小さな外部磁界であれば、 Eb_u と Eb_d の差が小さくなり、本現象は起こる。しかし、磁化変化量は少なくなる。交換相互作用磁界は式(20)で与えられることから、交換定数 A^* 大、異方性エネルギー定数 K_u 小、平均粒径 D_{av} 小、平均磁化 m 大の場合に本現象が顕著となる。

次に、磁化減衰の式について述べる。磁化減衰は対数時間に比例する式で表すのが一般的である。しかし、Acharyaら⁵⁾報告の低磁界磁化減衰曲線は対数時間に対して上に凸

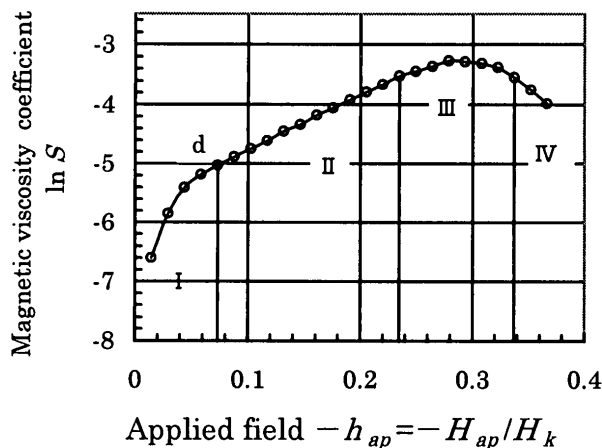


Fig. 7 $\ln S$ vs. applied field. In regions II and IV, $\ln S$ is linear for the applied field. On the other hand, in regions I and III, it is nonlinear for the applied field.

の形状である。著者らの計算した磁化減衰曲線も正確には対数時間の2次の項を含む式(23)で表される。

$$m = m_0^* - S_1 \ln t - S_2 \ln^2 t \quad (23)$$

ここで、 m_0^* は時間1秒に於ける磁化を表す。上に凸の磁化減衰曲線は S_2 が正、下に凸の磁化減衰曲線は S_2 が負を意味する。式(23)の磁気粘性係数比 S_2/S_1 が大きいと、非線形性が顕著となる。 S_2 は小さくともゼロでないことから、何れの媒体でも時間範囲の広い磁化減衰は対数時間の2次の項が影響する。本解析の時間範囲は7.5秒から960秒と狭く、 S_2/S_1 が小さい条件のみを取り扱ったことから、磁化減衰の式は一般に採用されている式(24)とした。

$$m = m_0 - S \ln t \quad (24)$$

計算した磁化 m の時間変化と式(24)から m_0 と S を媒体変数と磁界の関数として表せば、熱揺らぎによる磁化減衰特性が理解出来る。

3.4 磁気粘性係数

まず、磁気粘性係数 S についての計算・解析結果を述べる。計算した全ての磁気粘性係数の対数 $\ln S$ を外部磁界 $|h_{ap}|$ に対してプロットすると、Fig. 7に示す4つの磁界領域に分けられた。即ち、 $\ln S$ が $|h_{ap}|$ に対して非線形な領域I、IIIと線形領域II、IVである。領域Iは、前記のように微細粒子の受ける粒子間交換相互作用が関係している。磁気粘性係数が最大となる領域IIIで、磁化 m の極性が正から負に変わる。従って、磁化 m の時間変化の途中で交換磁界が正から負に変化する。このことから、領域IIIの磁気粘性係数は交換定数によって変化する。但し、領域IIIでは、熱揺らぎに関与する粒子は大きく、磁化 m も小さいことから、交換磁界そのものは小さい。従って、低磁界に比べて粒子間交換相互作用の影響は小さい。

領域IIの対数磁気粘性係数 $\ln S$ は外部磁界 $|h_{ap}|$ に対して線形であることから、式(25)のように表される。

$$\ln S = a |h_{ap}| + b \quad (25)$$

領域IとIIの境界の磁界を $|d|$ と定義する。計算した全ての媒体に対して、領域Iの対数磁気粘性係数は式(26)で表されることが分かった。

$$\ln S = a |h_{ap}| + b - c (|d| - |h_{ap}|)^3 \quad (26)$$

ここで、係数 a, b, c, d が媒体変数で決まる量である。係数 a, b, c, d の媒体特性依存性を明らかにするために、 M_s, H_k, A^*, D_{av} の異なる27条件の2Dランダム媒体の磁化減衰を計算した。 A^* を0, 0.05, 0.1 $\mu\text{erg/cm}$, D_{av} を8, 9, 10 nm, 膜厚を15 nmとし、 M_s, H_k, D_{av} の組み合わせを変えることにより、 $K_u V_{av}/kT$ を43から99の範囲で変えた。温度は25 $^{\circ}\text{C}$ 一定とした。磁界25条件、各磁界に対して時間7.5秒から960秒までの8条件で、磁化 m を計算し、式(25), (26)の各係数を求めた。解析結果は以下の通りである。係数 a, b, d は各々式(27), (28), (29)で表される。

$$a = \{ 1 + 1.65 \times 10^{17} (A^* kT / K_u V_{av})^2 \} \cdot \{ 12.7 - 20 \exp(-0.024 K_u V_{av} / kT) \} \quad (27)$$

$$b = \{ 1 + 0.6 \times 10^{17} (A^* kT / K_u V_{av})^2 \} \cdot \{ -10.7 + 10 \exp(-0.01 K_u V_{av} / kT) \} \quad (28)$$

$$d = \{ 1 + 6 \times 10^{13} A^{*2} \} \cdot \{ -0.028 + 0.1 \exp(-0.003 K_u V_{av} / kT) \} \quad (29)$$

ここで、 A^* は $\mu\text{erg/cm}$ 単位で表した数値である。粒子間交換相互作用がない場合の係数 c は 4×10^3 、粒子間交換相互作用がある場合の係数 c は 8×10^3 である。式(29)より、 $K_u V_{av} / kT$ が小さく、交換定数が大きい媒体では、磁化 m_2 から磁化 m_1 への再反転効果が観測される磁界 d が大きくなることが分かる。

以上より、粒径分散30 %の D^2 ガウス分布、2Dランダム媒体に対する領域I、IIに於ける磁気粘性係数の媒体変数依存性と磁界依存性が求まったことになる。異なる粒径分散・粒径分布関数での具体的計算は行っていないが、以下ようになる。粒径分散の小さい媒体では、低磁界で熱揺らぎを受ける小さな粒子の全粒子系に占める割合が少ないことから、低磁界磁気粘性係数は小さい。磁界増加に伴って熱揺らぎを受ける粒子が多くなり、磁気粘性係数は大きくなる。従って、磁界に対する対数磁気粘性係数の勾配 a は大きくなる。配向媒体では磁化容易軸に分布があることから、式(27)の係数 a は大きくなる。 a, b, d に対する分散角 σ の関数形を求めるには、2Dランダム媒体と同様の計算を必要とする。

式(25)より、領域IIの磁気粘性係数は外部磁界の指数関数となっている。従って、外部磁界を小さくすれば、指数関数的に磁化減衰は改善されることになる。このことは、エネルギーバリアが式(7)の形となっており、熱揺らぎの緩和時間がエネルギーバリアの指数関数である式(2)の形になっているためである。粒子間交換相互作用が関係する領域Iの磁気粘性係数は、磁界の3次の項も加わった指数関数

となっている。従って、耐熱揺らぎ特性を確保するには、磁界を低減することが最も有効であることが分かる。

磁化減衰の式(24)の m_0 、即ち時間1秒に於ける磁化 m に関する報告は少ない。時間1秒でも熱揺らぎの影響を受けることから、領域Ⅰ、Ⅱの m_0 の式も示しておく。数値計算による m_0 の近似解析式は式(30)–(35)で与えられる。

$$m_0 = A \cdot B \cdot C \quad (30)$$

$$A = 1 / \{ 1 + (K_u V_{av} / kT)^{-0.65} \} \quad (31)$$

$$B = 1 - 0.365 \exp(-3 h_{exav}) \quad (32)$$

$$C = [64.9 - 23.9 \exp \{ (|h_{ap}| / h_{cr5})^n \}] / [40 + \exp \{ (|h_{ap}| / h_{cr5})^n \}] \quad (33)$$

$$n = 2 \tanh^2 (K_u V_{av} / 45 kT) \quad (34)$$

$$h_{cr5} = 0.555 (1 - 0.5 h_{exav}) \cdot [1 - \{ (kT / 1.3 K_u V_{av}) \ln(7.2 f_0) \}^{2/3}] \quad (35)$$

ここで、 h_{exav} は式(21)で与えられる平均交換磁界定数、 h_{cr5} は時間5秒の残留保磁力を表す。式(35)中の $K_u V_{av}$ の前の係数1.3は粒径分散30%の効果を意味する。式(31)の A は熱揺らぎによる残留磁化の減小を表す。式(32)の B は交換相互作用磁界による残留磁化の増大を表し、2Dランダム単磁区SW粒子系可逆回転領域のアンサンブル平均メジャーグループと類似した式である。式(33)の C は残留磁化状態から瞬時に所定の磁界とし、その磁界に1秒間保持した時のメジャーグループを表す。式(34)の次数 n は熱揺らぎによるメジャーグループ形状への影響度合いを表す。30%粒径分散、 D^2 ガウス粒径分布、2Dランダム媒体の場合、媒体諸特性、磁界、温度条件から式(25)–(35)を計算し、その値を式(24)に代入すれば、時間 t に於ける磁化 m の値が求まる。

3.5 活性化体積

Lauhoffらによる⁶⁾ SRC媒体の活性化体積 V_a の磁界依存性実験データと本解析結果の比較を次に示す。媒体特性を

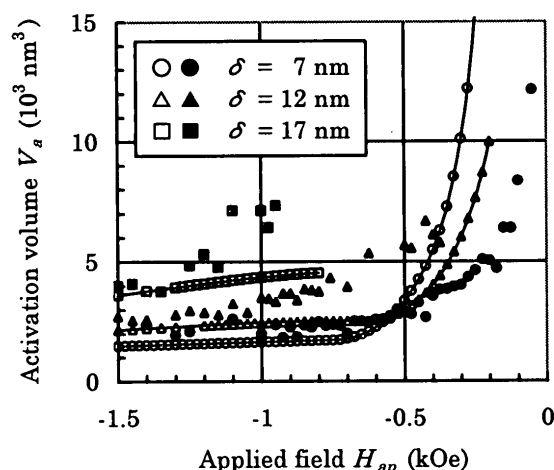


Fig. 8 Activation volume V_a vs. applied field for media thickness δ of 7, 12, 17 nm, respectively. Closed and open marks show experimental⁶⁾ and calculated data, respectively.

$M_s = 430 \text{ emu/cm}^3$, $A^* = 0.05 \mu\text{erg/cm}$, $H_k = 8 \text{ kOe}$ とした。 H_k の値は H_k 測定値と後述する残留保磁力解析式から推定した。膜厚17 nmの測定値 $D_{av} = 12.5 \text{ nm}$ を平均粒径とした。粒径分散の測定値は30%より大きい。ここでは30%分散の式(27)–(35)を用いて活性化体積 V_a の磁界依存性を計算した。文献6)の膜厚 $\delta = 7, 12, 17 \text{ nm}$ の実験結果と本計算結果をFig. 8に示す。膜厚7 nmの V_a が増加し始める磁界は実験値に比べて200 Oe程度高磁界側にシフトしており、膜厚12 nmの V_a が増加し始める磁界は実験値に比べて200 Oe程度低磁界側にシフトしているが、計算結果と実験結果の全体傾向は一致している。 V_a が増加し始める磁界の実験値に対し $\pm 200 \text{ Oe}$ 程度差が生じるのは、各膜厚により粒径分布に違いがあると推定されること、粒子間交換相互作用定数の不確定性等が原因していると思われる。以上より、解析式(24)–(35)は2Dランダム媒体の磁化減衰を比較的良く表していると言える。

3.6 通常媒体の残留保磁力

残留保磁力の式には対数時間項の前に $kT/K_u V$ の項が含まれていることから、残留保磁力の実験値から熱安定性指数 $K_u V/kT$ を算出するのが一般的である。また、異方性磁界 H_k を含む残留保磁力の式を用いて、 H_k を求めることも試みられている。残留保磁力の式は多数提案されていることから^{2), 7)–10)}、採用する残留保磁力の式により、 H_k , $K_u V/kT$ は異なった値として計算される。

粒径分布が無い場合の残留保磁力は前記のように式(15)で与えられるので、ここでは粒径分布と粒子間交換相互作用のある多粒子系の残留保磁力の式を示す。粒子間交換相互作用のない D^2 ガウス粒径分布、粒径分散 sd (標準偏差を平均粒径で割った値) 0から30%の計算した残留保磁力 $H_{cr}(t)$ は式(15)の粒子体積 V を実効粒子体積 V_{eff} に置き換えた式(36)となっていた。

$$H_{cr}(t) = 0.555 H_k [1 - \{ (kT / K_u V_{eff}) \cdot \ln(f_0 t / 0.693) \}^{2/3}] \quad (36)$$

$$V_{eff} = V_{av} (1 + sd) \quad (37)$$

ここで、 V_{av} は平均粒子体積を表す。同じ粒径分散でも、 D^2 ガウス分布に比べて対数正規分布は粒径の大きい側に分布が広がっている。 D^2 ガウス分布と比べて、対数正規分布は実効粒子体積 V_{eff} が大きくなることから、実効熱安定性指数 $K_u V_{eff} / kT$ は大きくなる。粒径分散30%のケースについて、残留保磁力に対する粒子間交換相互作用の影響を計算した結果、式(36)の0.555を $0.555 (1 - 0.5 h_{exav})$ に置き換えた式となっていた。Bertramらは交換相互作用の定義を式(19)とし、静磁気相互作用も考慮した残留保磁力の式を提案している⁷⁾。Bertramの式では、本検討の $0.555 (1 - 0.5 h_{exav})$ に相当する部分は0.474と非常に小さな値である。静磁気相互作用係数 M_s / H_k が0.05と大きな媒体を取り扱っていること、本検討では静磁気相互作用を考慮していないことの違いが残留保磁力の式の違いとなっている。

円周方向に機械的テクスチャリングを施してある基板上に形成した媒体には、磁化容易軸の面内分布に異方性が生じる。容易軸分布関数 P_ϕ をガウス分布と類似の

$P_\phi = \sum_n \exp[-0.5\{(\phi - n\pi)/\sigma\}^2]$, $n = -1, 0, 1$. とした。ここで、 σ は容易軸分散角を表す。 $K_u V_{av}$ 等の実用的な媒体条件、 σ が0.35から $\pi/3$ の範囲、VSM測定等に相当する時間では、式(36)の係数0.555を $0.555\{1 + 0.16(\pi/3 - \sigma)^2\}$ に置き換えた式が残留保磁力となっており、対数時間項の次数は2/3であった。なお、保磁力配向比1.3-1.5となる分散角 σ は $\pi/6 - 0.9$ rad程度である。

3.7 AFC媒体の残留保磁力

薄いRuを介して磁性膜を二層化し、上下粒子間に反強磁性的相互作用をもたせ、下層粒子磁化の緩和時間を1秒程度以内に制御した粒子系はAFC媒体（あるいはSFM）と呼ばれている^{18)・19)}。ここでは、AFC媒体の残留保磁力の式を求める。上下粒子の磁化容易軸 ϕ は同じで、膜面内にあるとする。上層粒子をtの記号、下層粒子をbの記号で表すと、AFC粒子のエネルギー E は式(38)で表される。

$$E = K_{ut} V_t \sin^2(\phi - \theta_t) - H M_{st} V_t \cos \theta_t + K_{ub} V_b \sin^2(\phi - \theta_b) - H M_{sb} V_b \cos \theta_b + J_{eff} S_D \cos(\theta_b - \theta_t) \quad (38)$$

ここで、 J_{eff} は上下粒子間の交換相互作用と静磁気相互作用の和を実効的交換相互作用エネルギーで表したものであり、 S_D は粒子対の対向する面積を意味する。上層粒子の受ける実効交換磁界 H_{ext} 、下層粒子の受ける実効交換磁界 H_{exb} は式(39)、(40)である。

$$H_{ext} = J_{eff} / (M_{st} \delta_t) \quad (39)$$

$$H_{exb} = J_{eff} / (M_{sb} \delta_b) \quad (40)$$

式(39)、(40)では上層粒子の受ける静磁気相互作用磁界と下層粒子の受ける静磁気相互作用磁界は同じであると近似した。 J_{eff} の値はMHループ第一象限シフト磁界から求められており、概略0.05 erg/cm²程度である¹⁸⁾。VSM等で残留保磁力を測定する場合には大きな磁界がかかっている。下層粒子の異方性エネルギー $K_{ub} V_b$ は小さく、大きな磁界を印加していることから、下層粒子磁化は低エネルギー状態 m_{2b} にあり、上層粒子磁化が熱揺らぎの影響を受ける。上層の保磁力に比べて下層粒子の受ける実効交換磁界は小さいのが一般であることから、上層粒子磁化が反転しても下層粒子磁化の再反転は起こらず、上層粒子磁化と下層粒子磁化は平行状態である。磁界印加後の残留磁化状態に保持する時間が下層粒子の緩和時間以上の場合、下層粒子磁化は実効交換磁界により、上層粒子磁化と反平行状態になる。式(38)の極小点エネルギーと鞍点エネルギーからエネルギーバリアを求め、下層粒子磁化が前記条件として、単層媒体と同じ手順で粒径分布のあるAFC粒子系の残留保磁力を数値計算した。その結果は式(36)の H_k 及び K_u に含まれる H_k を式(41)の実効 H_{keff} に置き換え、平均粒子体積 V_{av} を上層平均粒子体積 V_{avt} とすれば良いことが分かった。

$$H_{keff} = \{1 + J_{eff} / (K_{ut} \delta_t)\} H_{kt} \quad (41)$$

$J_{eff} / (K_{ut} \delta_t)$ は高々0.03程度であることから、AFC媒体の実効熱安定性指数は3%程度増加するに過ぎない。上層の $K_{ut} V_{avt} / kT$ がある値以上確保して、実効 $M_r \delta = M_{rt} \delta_t - M_{rb} \delta_b$ を小さくすれば、反磁界 H_d を小さく出来る。対数磁気粘性係数の磁界依存性が式(25)、(26)で与えられることから、反磁界を小さく出来るAFC媒体は耐熱揺らぎ特性に優れることが分かる。

4. まとめ

精度の高い低磁界でのエネルギーバリア解析式を導出し、孤立粒子熱揺らぎ現象を解析的に取り扱えるようにした。正確な数値計算エネルギーバリア値を用い、マスター方程式法で交換相互作用と粒径分布のある多粒子系記録媒体の磁化減衰を数値計算し、その結果を整理して多粒子系熱揺らぎ現象を解析的に取り扱えるようにした。本解析式で計算した活性化体積の磁界依存性は報告されている実験結果と良く一致した。低磁界で起こる磁気粘性係数低下・活性化体積増大は、磁化反転粒子と磁化再反転粒子が共存する状態である。粒径分布有り、粒子間交換相互作用有り、配向媒体、AFC媒体の各残留保磁力の式を求めた。

記録磁化の反磁界を小さくすることが、記録磁化減衰を低減する最も有効な方法である。粒子の磁気異方性エネルギーを小さくすることなく記録磁化の反磁界を小さく出来る可能性があるAFC媒体は高いポテンシャルを有している。

謝辞 活性化体積の実験データをご提供頂いた豊田工業大学 鈴木孝雄教授、G. Lauhoff 博士に感謝いたします。

文 献

- 1) A. Moser and D. Weller, *IEEE Trans. Magn.*, **35**, 2808 (1999)
- 2) Y. Zhang and H. N. Bertram, *IEEE Trans. Magn.*, **34**, 3786 (1998)
- 3) C. Yang, J. M. Sivertsen and J. H. Judy, *IEEE Trans. Magn.*, **34**, 1606 (1998)
- 4) Y. Zhang and H. N. Bertram, *IEEE Trans. Magn.*, **35**, 4326 (1999)
- 5) B. R. Acharya, T. Suzuki and K. Takano, *IEEE Trans. Magn.*, **35**, 2652 (1999)
- 6) G. Lauhoff and T. Suzuki, *J. Appl. Phys.*, **87**, 5702 (2000)
- 7) H. N. Bertram and H. J. Richter, *J. Appl. Phys.*, **85**, 4991 (1999)
- 8) S. Batra, T. Mcmillan and F. Torabi, *IEEE Trans. Magn.*, **35**, 2736 (1999)
- 9) M. Alex and D. Wachenschwanz, *IEEE Trans. Magn.*, **35**, 2796 (1999)

- 10) E. N. Abarra, H. Sato, M. Suzuki, and I. Okamoto, *IEEE Trans. Magn.*, **36**, 2450 (2000)
- 11) R. H. Victora, *Phys. Rev. Lett.*, **63**, 457 (1989)
- 12) S. H. Charap, *J. Appl. Phys.*, **63**, 2054 (1988)
- 13) H. Akimoto, Y. Yoshida, C. Okuyama, I. Okamoto, and M. Shinohara, *J. Magn. Magn. Mater.*, **193**, 240 (1999)
- 14) W. F. Brown Jr., *Phys. Rev.*, **30**, 1677 (1963)
- 15) R. W. Chantrell, J. D. Hannay, G. N. Coverdale, G. W. Roberts, and A. Lyberatos, *J. Magn. Soc. Japan*, **23**, 2058 (1999)
- 16) Y. Takahashi, Y. Yajima, S. Kojima, and Y. Hosoe, *J. Appl. Phys.*, **87**, 5699 (2000)
- 17) H. N. Bertram and J. G. Zhu, *Solid State Physics*, **46**, 271, Academic Press 1992
- 18) E. E. Fullerton, D. T. Margulies, M. E. Schabes, M. Carey, B. Gurny, A. Moser, M. Best, G. Zeltzer, K. Rubin, and H. Rosen, *Appl. Phys. Lett.*, **77**, 3806 (2000)
- 19) E. N. Abarra, H. Sato, A. Inomata, I. Okamoto, and Y. Mizoshita, Intermag 2000 Conference, Toronto, 2000, AA06
 2001 年 6 月 18 日受理 , 2001 年 9 月 14 日採録