蒸着テープの磁気異方性

Magnetic Anisotropy of Metal-Evaporated Tapes

河本 修・C. Alexander, Jr.*

岡山大学教養部物理学教室, 岡山市津島中 2-1-1 (〒700)

*アラバマ大学物理学天文学教室, タスカルーサ市, アラバマ州, AL 35487, アメリカ合衆国

O. Kohmoto and C. Alexander, Jr.*

College of Liberal Arts and Sciences, Okayama Univ., 2-1-1 Tsushima-Naka, Okayama 700

*Department of Physics and Astronomy, Univ. of Alabama, Tuscaloosa, AL 35487, U.S.A.

The oblique magnetic anisotropy of metal-evaporated tapes for audio recording has been studied, using ferromagnetic resonance techniques at 34 GHz. The static field was rotated in the tape plane and the vertical plane. The resonance equation in the tape plane has been derived without approximation. By fitting of the data of the resonance field (H_r) to the equation in the tape plane, the following values of the saturation magnetization ($4\pi M$), the intrinsic anisotropy field (H_k), and the oblique angle of the anisotropy axis from the film normal (α) were determined: $4\pi M = 9.63$ kG, $H_k = 1.06$ kOe, and $\alpha = 60.0^\circ$. The resonance fields in the vertical plane are also well fitted, except for a few high-field data. The effect of surface roughness on H_r is discussed.

Key words: oblique anisotropy, ferromagnetic resonance, recording media, metal-evaporated tape, audio recording, anisotropy field, saturation magnetization, demagnetizing factor

1. はじめに

蒸着テープはオーディオ用テープおよびビデオ用テープとして実用化されており, その磁性膜の蒸着方法は CVI (Continuously Valid Incidence) 法¹⁾を用いるために, 柱状晶はその成長に伴い湾曲している. この蒸着テープの磁気異方性については, 磁化曲線から考察されているが^{2)~4)}, トルク法による報告は少ない⁵⁾. また, それらの測定で異方性の方向と大きさを決めるのは容易ではない. 一方, 強磁性共鳴 (FMR) は薄膜の異方性磁界を求めるのに有効な方法であるが⁶⁾, 磁気記録媒体についての研究は少なく, これは理論式が複雑であったり, 十分には確立されていないためである. しかし, 近年塗布型媒体について実験結果が報告されてきたし^{7), 8)}, 蒸着テープについても FMR の理論や実験結果が報告されている^{9), 10)}.

本研究では, 斜め異方性をもつ膜の FMR の共鳴条件式を近似せずに求め, 蒸着テープの共鳴磁場の測定値をフィッティングすることで, 斜め蒸着によって誘導された一軸異方性の容易軸の角度 (α) と異方性磁場 (H_k), および飽和磁化 ($4\pi M$) を求めることを目的とする. ただし, 解析では湾曲した磁化容易軸は直線状と仮定した.

2. 実験方法

市販のオーディオ用蒸着テープ (オングローム) について, 34.48 GHz FMR スペクトロメーターにより共鳴磁界 (H_r) の角度依存性を測定した. 印加磁界は, (i) テープ面 (面内) または (ii) テープ走行方向と膜垂直方向を含む面 (垂直面) の二つの面内で回転させ, $5 \sim 20^\circ$ おきにマイクロ波の吸収の一次微分を測定し, 極大と極小の中間点を H_r とした. 静磁気特性は振動試料型磁力計で測定した. 膜の断面組織は透過型電子顕微鏡 (TEM) で観察した.

3. FMR の理論

強磁性共鳴の条件式は, エネルギーの微分から求めることができる. いま, テープが xy 面にあり, 磁化容易軸 (k) は x 軸方向に傾いており z 軸からの角度を α とする. 磁化 (M) の天頂角と方位角を θ, ϕ とし, 磁場 (H) のそれらの角度を β, ψ とする (Fig. 1). また, 一軸異方性定数を K とすると, 単位体積当たりのエネルギー G は, 異方性エネルギー, 磁場による磁化のエネルギー, 反磁場によるエネルギーからなるので次のように表される.

$$\begin{aligned} G = & -K[\sin^2 \theta (\cos 2\alpha + \sin^2 \alpha \sin^2 \phi) \\ & - (1/2) \sin 2\theta \sin 2\alpha \cos \phi] \\ & - MH[\cos \theta \cos \beta + \sin \theta \sin \beta \cos (\phi - \psi)] \\ & - 2\pi M^2 \sin^2 \theta \end{aligned} \quad (1)$$

共鳴条件は¹¹⁾,

$$(\omega/\gamma)^2 = [(\partial^2 G / \partial \theta^2)(\partial^2 G / \partial \phi^2)$$

Fig. 1 Geometrical coordination. The magnetic film is in the x-y plane and the x-axis is the tape direction. The uniaxial anisotropy axis k is in the vertical plane. The angles θ and ϕ of the magnetization M are measured from the z-axis and the x-axis. The angles β and ϕ of the applied field H are measured from the z-axis and the x-axis.

$$-(\partial^2 G / \partial \theta \partial \phi)^2 / M^2 \sin^2 \theta \quad (2)$$

と表される。ここで、 ω は角周波数、 γ はジャイロ磁気定数である。また、 θ と ϕ は、 $\partial G / \partial \theta = 0, \partial G / \partial \phi = 0$ の平衡条件を満たさねばならない。

そこで、まず面内 ($\beta = \pi/2$) については、平衡条件が

$$(2K/M)[\sin 2\theta(\cos 2\alpha + \sin^2 \alpha \sin 2\phi) - \cos 2\theta \sin 2\alpha \cos \phi] - 2H \cos \theta \cos(\phi - \psi) - 4\pi M \sin 2\theta = 0, \quad (3)$$

$$(2K/M)(\sin \theta \sin^2 \alpha \sin 2\phi + \cos \theta \sin 2\alpha \sin \phi) + 2H \sin(\phi - \psi) = 0 \quad (4)$$

である。共鳴条件は

$$\begin{aligned} (\omega/\gamma)^2 \sin^2 \theta = & \{ (2K/M)[\cos 2\theta(\cos 2\alpha + \sin^2 \alpha \sin^2 \phi) + \sin 2\theta \sin 2\alpha \cos \phi] \\ & + H \sin \theta \cos(\phi - \psi) - 4\pi M \cos 2\theta \} \\ & \times \{ (2K/M)[\sin^2 \theta \sin^2 \alpha \cos 2\phi \\ & + (1/4) \sin 2\theta \sin 2\alpha \cos \phi] \\ & + H \sin \theta \cos(\phi - \psi) \} - [(1/2)(2K/M) \\ & \times (\sin 2\theta \sin^2 \alpha \sin 2\phi + \cos 2\theta \sin 2\alpha \sin \phi) \\ & + H \cos \theta \sin(\phi - \psi)]^2 \end{aligned} \quad (5)$$

と表される。Layadi らは⁹⁾、 ϕ が 0 と $\pi/2$ の角度のみにて近似的解を求めているが、ここでは ϕ をパラメータとして厳密解を求めた。

次に、垂直面 ($\phi = 0$) については、すでに Layadi ら⁹⁾ によって求められており、平衡条件は次の式である。

Fig. 2 TEM micrograph of a cross-section of the tape.

$$MH \sin(\beta - \theta) = K \sin(2\theta - 2\alpha) - 2\pi M^2 \sin 2\theta \quad (6)$$

$$\phi = 0 \quad (7)$$

共鳴条件は、

$$\begin{aligned} (\omega/\gamma)^2 = & [H \cos(\beta - \theta) + (2K/M) \cos 2(\theta - \alpha) \\ & - 4\pi M \cos 2\theta] \times [H \cos(\beta - \theta) \\ & + (2K/M)[\sin^2 \alpha + \cos \theta \cos(\theta - 2\alpha)] \\ & - 4\pi M \cos^2 \theta] \end{aligned} \quad (8)$$

である。

4. 実験結果と考察

テープの走方向 (x 軸方向) の保磁力は 680 Oe、角型比は 0.7 であった。磁性層の構造は Fig. 2 に示すように、厚さ約 1500 Å の磁性層が 3 層積層されており、各層の柱状晶は同一方向に成長している。柱状晶の直径は 100 Å で初期成長方向の傾き角度は垂直方向から 60° である。柱状晶は明確に分離されているように見えるところもあり、これは蒸着中にわずかに導入されていると推定される酸素によって酸化層が柱状晶表面に形成されているものと考えられる。

Fig. 3 に面内の共鳴磁場 (H_r) の角度依存性を示す。 $\phi = 0^\circ$ (テープ長手方向に静磁界を印加) では H_r が 7.6 kOe であるが、 ϕ の増加に伴い増加し、 $\phi = 90^\circ$ (テープ幅方向) では 9.0 kOe になる。簡単のため、 $\gamma/2\pi = 2.80$ GHz/kOe として、式 (5) によりフィッティングすると、 $4\pi M = 9.63$ kG、 $H_k (= 2K/M) = 1.06$ kOe、 $\alpha = 60.0^\circ$ と求まった。 α の値はテープ断面の TEM 観察結果 (Fig. 2) から得られた柱状晶成長の初期の角度と一致している。 $4\pi M$ の値はバルク $\text{Co}_{80}\text{Ni}_{20}$ の値より小さいが、酸素の少ない蒸着雰囲気中で成膜した膜の値 (9.5 kG)¹²⁾ に一致している。 H_k の値は保磁力の値の約 1.6 倍であり妥当な値といえる。しかし、柱状晶を回転楕円体の形状をもつ粒子と仮定し H_k の値から軸比を求めると 1.5 と小さ

Fig. 3 Angular dependence of the resonance field (H_r) and linewidth (ΔH) in the film plane ($\beta = \pi/2$). The solid line for H_r is the best fit, with $4\pi M = 9.63$ kG, $H_k = 1.06$ kOe, $\alpha = 60.0^\circ$, and $\gamma/2\pi = 2.80$ GHz/kOe.

Fig. 4 Angular dependence of the resonance field (H_r) on the angle β in the vertical plane ($\phi = 0$). The circles show the measured values; (a) shows the calculated curve for $4\pi M = 6.05$ kG, $H_k = 2.06$ kOe, $\alpha = 70.6^\circ$, $\gamma/2\pi = 2.80$ GHz/kOe, and (b) shows the calculated curve for $4\pi M = 9.63$ kG, $H_k = 1.06$ kOe, $\alpha = 60.0^\circ$, $\gamma/2\pi = 2.80$ GHz/kOe.

い。TEM 像からは軸比が大きく見えるが、粒子間の相互作用のため実効的な H_k は小さくなっていると言える。 H_k と $4\pi M$ の値から一軸異方性定数 K を求めると、 4×10^5 erg/cm³ が得られる。なお、TEM 写真からは磁性層は均質な連続膜ではないように見えるが、この解析では一定の $4\pi M$ と H_k をもつ均質膜と仮定している。

Fig. 5 Critical angle θ_1 . At angles $\theta < \theta_1$, H_r is strongly influenced by the surface roughness of the tape.

半値幅 (ΔH) は $\phi = 0$ で 3.8 kOe であり、この値は薄膜では大きい値であり、また、 $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ の値 (1.8 kOe)⁷⁾ の約 2 倍である。これは結晶粒子の大きさが 100 Å と極めて小さいこと、磁化容易軸が柱状晶の湾曲のため分布をもつこと、膜表面に凹凸があることなどによる。

Fig. 4 には、垂直面での H_r の角度依存性を示す。測定に用いた電磁石による発生磁界の最大は 18 kOe であり、この試料の半値幅が大きいことから、 H_r は 16 kOe までしか測定できなかった。最大の H_r は $\beta = -5^\circ$ 付近であり、最小の H_r は $\beta = 80^\circ$ であるので、実効的な磁化容易軸は膜面から 10° 傾いている。これはビデオ用蒸着テープについて磁化曲線から求められた結果^{2)~4)} とほぼ一致する。式 (8) を用いてフィッティングすることにより、曲線 (a) と $4\pi M = 6.05$ kG, $H_k = 2.06$ kOe, $\alpha = 70.6^\circ$ が得られ、これらの値は膜面での結果と少し異なる。面内の値を用いて垂直面での H_r を計算すると曲線 (b) となり、高磁界の点を除けば測定値と良く合っている。

この垂直方向での不一致は膜の凹凸に関係するといえ、反磁界から考察する。Fig. 5 に示すように、磁性膜表面は回転楕円体の一部からなる面の集合体と仮定する。また、実効的な反磁界係数を z 軸と x 軸の方向で N_z と N_x とする。反磁界は磁性体表面に生じた磁極がつくる内部磁場であるので、磁極の生じる面の曲線で決まる。今、磁化の方向が θ_1 以下の位置では点線で規定される凸面による反磁界を生ずる。この場合 N_x は一定である。 θ_1 と θ_2 の間ではその隣の凸面の形状による反磁界を生じるがこの面は原点 O から見た時は回転楕円体ではなく、 N_z は一定の値をとらない。大ざっぱに回転楕円体で近似するなら一点鎖線の形状に近い。次に、 θ_2 と θ_3 の間では、2 点鎖線の回転楕円体で近似できるので、急速に薄膜に近似できるようになる。そこで、磁化の傾き

θ の増加に伴い実効的反磁界係数は変化し、 N_z は 4π に近づき、 N_x は 0 に近づく。 θ が $\pi/2$ では、表面の凹凸の影響は表面層の磁化は受けるがそれ以外の大部分の磁化が受ける反磁界はほぼ 0 であるので、実効的に $N_x=0$ 、 $N_z=4\pi$ となる。そこで共鳴式で考えてみると、式 (1) 右辺の最後の項の $N_z M^2 \sin^2 \theta / 2$ ($N_z=4\pi$) が、凹凸の影響を受ける方向では N_z の値が小さくなり、そのため共鳴磁界 H_r が小さくなる。例えば、 $N_z=4\pi \times 0.73$ 程度に減少させると、曲線 (a) にほぼ合う。ただし、このように凹凸があると反磁界係数は一定の値をとらないので半値幅の増加の要因となる。Fig. 4 では、高磁界の点を無視すると、面内測定から得られた $4\pi M$ 、 H_k 、 α の値を用いた計算値と良く合うので、それらの値を決めるには面内測定が好ましいと言える。

5. ま と め

斜め異方性をもつ膜について、強磁性共鳴 (FMR) の面内での共鳴条件式を近似せず求め、市販のオーディオ用蒸着テープの共鳴磁場を 34 GHz で測定し、測定値をフィッティングすることで $4\pi M$ 、 H_k 、 α の値を求めた。得られた値は $4\pi M=9.63$ kG、 $H_k=1.06$ kOe、 $\alpha=60.0^\circ$ であった。 α の値は TEM 観察結果と一致し、 $4\pi M$ の値は $\text{Co}_{80}\text{Ni}_{20}$ の報告値と一致している。また、垂直面での共鳴磁場も、垂直近傍の測定点を無視すると面内測定で求めた $4\pi M$ 、 H_k 、 α の値で良く合う。この垂直方向での不一致の原因は磁性膜表面の凹凸に起因すると考えられ

る。

謝 辞 TEM による断面観察をしていただいた TDK (株) 開発研究所杉原洋課長および中田昭雄課長に感謝いたします。

文 献

- 1) K. Shinohara, H. Yoshida, M. Odagiri, and A. Tomago: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-20**, 824 (1984).
- 2) J. S. Gau and W. E. Yetter: *J. Appl. Phys.*, **61**, 3807 (1987).
- 3) G. Krijnen, S. B. Luitjens, R. W. de Bie and J. C. Lodder: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-24**, 1817 (1988).
- 4) H. J. Richter and H. Hibst: *J. Magn. Magn. Mat.*, **95**, 118 (1991).
- 5) M. Noda: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-27**, 4864 (1991).
- 6) O. Kohmoto and C. Alexander, Jr.: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **31**, 2101 (1992).
- 7) U. Netzelmann: *J. Appl. Phys.*, **68**, 1800 (1990).
- 8) O. Kohmoto, C. Alexander, Jr., O. Kubo and J. C. Cates: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **31**, 788 (1992); *ibid.*, **31**, 3346 (1992).
- 9) A. Layadi, F. W. Ciarallo and J. O. Artman: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-23**, 3642 (1987).
- 10) O. Kohmoto and C. Alexander, Jr.: *J. Magn. Magn. Mat.*, **116**, 405 (1992).
- 11) J. Smit and H. G. Beljers: *Philips Res. Rep.*, **10**, 113 (1955).
- 12) D. Kishimoto, M. Kume, T. Tanuma and K. Matsuura: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **15** (Suppl. No. S2), 229 (1991).

1992 年 11 月 17 日受理, 1993 年 2 月 2 日採録