トルク解析による磁気記録媒体の磁気異方性と磁化反転機構の評価

Characterization of Magnetization Reversal Mechanism for Magnetic Recording Media
by Rotational Hysteresis Loss Analysis

島津武仁、高橋 研

東北大学工学部電子工学科、仙台市青葉区荒巻字青葉 (〒980)

T. Shimatsu and M. Takahashi

Dept. of Electronic Engng., Faculty of Engng., Tohoku Univ., Aoba-ku, Sendai 980

Experimental characterization of magnetic anisotropy and intergranular magnetic coupling for currently developed recording media was carried out with magnetic torque analysis. In thin film media, the magnitude of the magnetic field where rotational hysteresis loss vanishes shows an almost constant value in each material independent of coercive force H_c . It is concluded that this field nearly corresponds to magnetic anisotropy field of grains. Experimental results shows that the increase of H_c in almost all thin film media is mainly caused by the decrease of the strength of intergranular exchange coupling. On the other hand, with decreasing the strength of intergranular coupling, the number of grains where H_c is determined by reversible rotation of magnetization gradually increases. Furthermore, the existence of incoherent magnetization reversal in grains is suggested in the real films especially in CoCrTa media.

key words: magnetic recording media, rotational hysteresis loss analysis, magnetic anisotropy of grains, intergranular coupling of magnetization, coercive force, remanence, magnetization reversal

1. 序論

将来の高密度記録に対応した媒体には、低ノイズ・高保磁力であることが必要不可欠である。しかし現在のCo基の薄膜媒体では、結晶粒間の磁化結合が、高保磁力の出現を妨げ、さらに、記録ノイズに強い影響を及ぼしているものと考えられている¹⁾。

将来の薄膜媒体の開発プロセスを検討するためには、結晶粒配向・結晶粒径といった構造的な諸量の他に、結晶粒の磁気異方性ならびに結晶粒間の磁化結合の強さといった磁気的な知見を合わせた総合的な検討が必要である。しかし、薄膜媒体のこのような磁気的諸量は、定量的には未だ明確ではない。

今回は、磁気トルク解析による測定を基に、主に

現行の磁気記録媒体における、種々の磁気異方性と結晶粒間の磁化結合の強さについて、定量的な評価を試みた。また、その結果を基に、磁気異方性および粒間相互作用の強さと、磁気特性との相関を検討した。

2. 実験方法

薄膜媒体に関しては、CoCrTa、CoCrTaPt、CoNiPt、CoCrPt、CoPt等の材料系に関して行なった。いずれの媒体も、テクスチャ処理を施したNiP/Al基板、あるいは平滑なガラス基板上に作製した。CoNiPt薄膜を除き下地層としてCrを用いた。磁性層の厚みは400~600Åとした。

塗布型媒体に関しては、表面にCo被着したFe系針状メタル粉(MP; 長軸径 $0.18\mu\text{m}$, 軸比7.5程度)をPETフィルム上に塗布した試料、ならびにBaフェライト(BF; 軸比3.2程度)のテープに関して行なった。いずれも、粒子の作製条件および配向方向が異なる種々の試料を用いている。

磁化曲線は、V.S.M.により膜面内において測定した。トルク磁力計による回転ヒステリシス損失の測定²⁾は、消磁後の試料を用い、印加磁界を徐々に増加させながら膜面内において測定した。構造解析は、Co-K α あるいはCu-K α の線源によるX線回折、あるいは透過電子顕微鏡(TEM)により行なった。

3. 結果並びに考察

3.1. トルク計測により評価される磁気異方性

Fig.1には、保磁力の異なる3種類のCoNiPt薄膜媒体を例に、回転ヒステリシス損失 W_r の値を印加磁界の逆数 $1/H$ に対して示した。

全ての媒体において、 $1/H$ の低下にともない、 W_r の値は徐々に増加し極大を示した後で、単調に減少する。ここで、 W_r が極大を示す印加磁界を、

Fig.1 Change of W_r against $1/H$ for three kinds of CoNiPt films. H corresponds to applied magnetic field.

H_p と定義した。 H_p はトルク計測における磁化のスイッチング磁界に対応する。

H_p よりも高印加磁界側において、 W_r 曲線の直線部を外挿することで求められる $W_r = 0$ となる磁界の大きさを H_k^{grain} と定義した。磁性膜を構成する結晶粒が磁氣的に孤立している場合、 W_r が消失する印加磁界 H_k^{grain} は、結晶粒配向あるいは結晶粒内部の磁化反転機構に依存せず、結晶粒の磁気異方性による粒内部の異方性磁界に一致する。本文中の塗布型媒体に関する記述に関しては、 H_k^{grain} の代わりに H_k^{plc} (particleの磁気異方性の意味) として表記している。

一方、 H_p あるいは H_k^{grain} (H_k^{plc}) の他に、 W_r が消失した後の高印加磁界において測定されるトルク振幅の大きさから、膜面内に巨視的に誘導されている一軸磁気異方性 $K_u(2\theta)$ の大きさについても評価を行なった。ここで、巨視的な磁気異方性のと、 H_p あるいは H_k^{grain} といった他の指数の大きさの比較を行い易くするために、本文中では、 $K_u(2\theta)$ の大きさを場の次元に換算した値を $H_k(2\theta)$ と定義 ($= 2 K_u(2\theta)/M_s$) し、用いている。

3.2. 塗布型媒体における磁気異方性と磁気特性

(a) H_k^{plc} の定量評価

MPの磁気異方性は主に形状異方性に依存しているものと考えられ、またBF粒子においても、形状異方性が粒の磁気異方性を決定する一つの要因となっている。粒の磁気異方性が形状異方性に起因する場合には、古典的な永久磁石に見られるように粒間の静磁氣的な磁化の結合の強さに依存して、粒子の磁気異方性は変化するものと考えられる。したがっ

て、粒子の異方性が形状異方性に依存する塗布型媒体では、トルク計測により求めた H_k^{plc} は、静磁氣的な磁化の結合により変化しているものと考えられる。

Fig.2左図には、同一のMPを用いて配向を変化させて塗布した2種類の試料に関して、 W_r の値を印加磁界の逆数 $1/H$ に対して示した。2種類の試料は、テープの走行方向に磁化容易軸を配向させた試料、ならびに無配向 (3次元ランダム) の試料である。また、Fig.2右図には、同一のBF粒子を用いて、配向を変化させて塗布した3種類の試料 (充填率 $P=0.48\sim0.5$) に関して、 W_r の値を同様に示した。3種類の試料は、それぞれ、テープの走行方向に磁化容易軸を配向させた試料、無配向 (3次元ランダム) の試料、ならびにテープ面に垂直方向に配向させた試料である。ここで、理論的には、粒の磁化容易軸が完全に膜面に垂直方向に配向している場合は、膜面内のトルク測定では有限な W_r は観測されないが、実際の試料では、全ての粒の磁化容易軸の方向を完全に垂直方向に揃えることが不可能であるため、 W_r 測定が可能となっている。

MPおよびBF粒子のいずれにおいても、外挿により求められる W_r が消失する磁界 H_k^{plc} は配向に依存せず、6.1kOe程度 (MP) ならびに 3.7kOe程度 (BF) のほぼ一定値を示している。このことから、粒間に静磁氣的な相互作用が存在する場合でも、トルク解析により求められる H_k^{plc} は粒の配向には依存しないことが実験的に明らかである。

一方、MPのように粒子の磁気異方性が形状異方性に依存する場合には、粒子間の静磁氣的相互作用が磁気トルクにより評価した H_k^{plc} に与える影響はNeelの有効磁界近似を用いることで評価できる³⁾。

Fig.2 Change of W_r against $1/H$ for MP (metal particles) and Ba-Ferrite.

粒子間の静磁氣的相互作用が存在しない場合の、個々の針状粒子の本質的な異方性磁界 $H_k^{ptc}(int)$ は、Neelの有効磁界近似により、実験的に求めた $H_k^{ptc}(exp)$ を用いて以下のように表すことができる。

$$H_k^{ptc}(int) = H_k^{ptc}(exp) / (1 - P) \quad (1).$$

ここで、 P は充填率を表し、以下のように表すことができる。

$$P = \langle M_s \rangle / M_s \quad (2).$$

ここで、 $\langle M_s \rangle$ は塗膜の単位体積当たりの平均的な磁化の値を、また、 M_s は針状粒内部の磁化反転に寄与する領域の飽和磁化の値を、それぞれ示す。

このように実験から求められる $H_k^{ptc}(exp)$ に、充填率 P を考慮した有効磁界近似による補正を行なうことで、静磁氣的な相互作用が存在しない場合の粒子の異方性磁界 $H_k^{ptc}(int)$ を評価することが可能であると考えられる。

一方、粒子が磁氣的に連続な細長回転楕円体（葉巻型）結晶であると仮定すると、磁氣的に孤立した粒子内部には、形状異方性により、長軸方向に沿った次式に示す異方性磁界 $H_k^{ptc}(int)$ が作用する。

$$H_k^{ptc}(int) = f(N) \cdot M_s \quad (3).$$

ここで $f(N)$ は粒子形状により定まる反磁界係数の関数であり、粒子が無限長の場合には 2π となる。

実際の針状粒の M_s の値を実験的に求めることが困難であるが、上式 (1)~(3) を基に、 M_s の値、ならびに、 $H_k^{ptc}(int)$ について検討を行なうことが可能である。

Fig.3には、 $H_k^{ptc}(exp) = 6.76 \text{ kOe}$ のMPの塗膜を例に、有効磁界近似による $H_k^{ptc}(int)$ の補正值（式(1), (2)）を、補正の際に仮定した針状粒子の M_s に対して示した。また、実験に用いた針状粒子の形状比は、作製条件によらず7.5程度であったため、図中には針状粒子が磁氣的に完全に連続な、軸比7.5:1の細長回転楕円体（葉巻型）であると仮定した場合の式(3)にしたがう $H_k^{ptc}(int)$ の計算値を M_s に対して一点鎖線で示してある。比較のために、軸比5:1の計算値についても点線で示した。

充填率の補正により求められる $H_k^{ptc}(int)$ の曲線は、形状から求めた $H_k^{ptc}(int)$ の計算値と $M_s = 1360 \text{ emu/cc}$ 程度、 $H_k^{ptc}(int) = 7.7 \text{ kOe}$ 程度において交わっていることがわかる。したがって、測定した針状粒子内部の M_s の値は 1360 emu/cc 程度

Fig.3 Change of calculated $H_k^{ptc}(int)$ taking account of packing density against M_s of particles. Calculated $H_k^{ptc}(int)$ due to the shape anisotropy is also shown.

であり、粒子内部の異方性磁界の値は 7.7 kOe 程度であると評価することができる。ここで、粒子の不完全性により、磁氣的に連続な針状粒の軸比が 7.5:1 よりも短いことも予想される。その場合、図中に示した5:1の軸比における計算結果を参考にすると、 M_s の値は 1360 emu/cc よりも大きいものと考えられるが、 $H_k^{ptc}(int)$ の値は、軸比に対してあまり大きく変化せず、ほぼ一定である。

(b) 粒子配向の定量評価と磁気特性

塗膜を形成した際に巨視的に観測される一軸磁気異方性の起因は、主に、粒子の異方的な配向により針状粒子の磁気異方性が巨視的に観測されるものであると考えることができる。上述したように粒子の磁気異方性が形状異方性に依存する塗膜の場合は、 $H_k^{ptc}(exp)$ の値は本質的な $H_k^{ptc}(int)$ の値よりも低下していると考えられる。したがって、巨視的な一軸磁気異方性が針状粒子の配向のみに起因することを仮定すると、両者の間には、以下のような関係が存在するものと考えられる。

$$H_k(2\theta) = G(\phi) \cdot H_k^{ptc}(exp) \quad (5).$$

関数 $G(\phi)$ は、配向の度合いを示す関数で、完全に等方的な場合には0、また、針状粒子が完全に一方向に並んだ場合には1となる関数である。ここで G は、塗膜の巨視的な磁化容易軸方向と、各針状粒子の磁化容易軸のなす角度 ϕ の関数である。したがって、 $H_k(2\theta)$ と $H_k^{ptc}(exp)$ の比として実験的に求められる $G(\phi)$ の値は、粒子の配向の度合いを定量

的に表す指数であると考えられる。

このような観点から、実験的に求めた $H_k(2\theta)$ ならびに $H_k^{ptc}(\text{exp})$ の比を、配向の度合いを示す指数と考え、塗膜の角型比、保磁力、および残留保磁力との相関を検討した。

Fig. 4には、MP塗膜の磁化容易軸および磁化困難軸方向の磁化曲線の角型比 M_r/M_s を、 $H_k(2\theta)/H_k^{ptc}(\text{exp})$ に対して示した。 $H_k(2\theta)/H_k^{ptc}(\text{exp})$ が増加するにしたがって、 M_r/M_s の値は、磁化容易軸方向では単調に増加しており、磁化困難軸方向では単調に減少していることがわかる。このことは、 M_r/M_s の値と、粒子の長手方向への配向との相関を、定量的に示している。

Fig. 5には、磁化容易軸および磁化困難軸方向の保磁力 H_c を $H_k^{ptc}(\text{int})$ で規格化した値を、配向を示す $H_k(2\theta)/H_k^{ptc}(\text{exp})$ に対して示した。図中には、両軸方向での残留保磁力 H_r (remanence coercive force) を $H_k^{ptc}(\text{int})$ で規格化した値についても同様に示してある。

磁化容易軸方向では、 $H_k(2\theta)/H_k^{ptc}(\text{exp})$ の増加にともなって、 $H_c/H_k^{ptc}(\text{int})$ の値は0.24程度から0.22程度まで少しずつ低下している。また、 $H_k(2\theta)/H_k^{ptc}(\text{exp})$ が小さな領域では、 $H_r/H_k^{ptc}(\text{int})$ の値は、 $H_c/H_k^{ptc}(\text{int})$ よりも大きい、 $H_k(2\theta)/H_k^{ptc}(\text{exp})$ が増加するにしたがい、両者の差は減少している。

これに対し、磁化困難軸方向の $H_c/H_k^{ptc}(\text{int})$ の値は、 $H_k(2\theta)/H_k^{ptc}(\text{exp})$ の増加にともない単調に減少し、 $H_k(2\theta)/H_k^{ptc}(\text{exp})$ が0.9を越

Fig. 4 Change of M_r/M_s along hard and easy axes of magnetization against $H_k(2\theta)/H_k^{ptc}(\text{exp})$.

Fig. 5 Change of $H_r/H_k^{ptc}(\text{int})$ and $H_c/H_k^{ptc}(\text{int})$ against $H_k(2\theta)/H_k^{ptc}(\text{exp})$.

える試料では、 $H_c/H_k^{ptc}(\text{int}) < 0.15$ まで低下している。また、磁化容易軸方向に比較して、 $H_r/H_k^{ptc}(\text{int})$ と $H_c/H_k^{ptc}(\text{int})$ の差が大きく、両者の差は、 $H_k(2\theta)/H_k^{ptc}(\text{exp})$ が0.8を越える領域で2倍程度に達していることがわかる。

これらのことから、媒体を構成しているMP内部ではインコヒーレントな磁化反転が生じており、粒子の磁化容易軸と印加磁界とのなす角度が非常に大きな角度にいたるまで、スイッチングにより磁化反転が生じていることを示している。また、粒子が長手方向に配向するにしたがい、磁化困難軸方向の保磁力が徐々に磁化回転により決定されるようになることを示している。

3. 3. 薄膜媒体における磁気異方性と磁気特性

(a) H_k^{crain} の絶対値と保磁力

薄膜媒体における粒子の磁気異方性は主に結晶磁気異方性に依存していると考えられる。したがって粒子の磁気異方性が形状異方性に起因する場合と異なり、薄膜媒体において評価される H_k^{crain} と本質的な粒子の磁気異方性との相関を、物性的な近似により明確にすることは困難である。そこで、実際の薄膜媒体において観測される H_k^{crain} と保磁力との相関の検討を通して、結晶粒の磁気異方性の絶対値ならびに薄膜媒体の保磁力を決定している要因について検討した。

Fig. 6には、種々の薄膜媒体の H_c^{AV} の値を実験により求めた H_k^{crain} に対して示した。 H_c^{AV} は、膜面内における磁化容易軸方向と磁化困難軸方向の保磁力の平均値として定義し、両方位の保磁力が大きく異なる試料に関しては、保磁力の最大値（磁化

Fig.6 Relation between H_c^{AV} and H_k^{grain} . H_c^{AV} is the averaged coercive force along easy and hard axes of magnetization. H_k^{grain} is defined as the magnetic field where W_r vanishes.

容易軸方向の保磁力) および最小値 (磁化困難軸方向の保磁力) の値をバーにより図中に示した。

CoCrTa薄膜媒体における H_k^{grain} の値は、 H_c^{AV} が 1 kOe 程度を越える試料では、ほぼ 4 kOe の一定値を示している (この値は結晶粒の磁気異方性エネルギー K_u^{grain} の値で $1.2 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ の大きさに対応する)。CoNiPt および CoCrPt 薄膜媒体における H_k^{grain} の値は、 H_c^{AV} に依存せず、6~8 kOe の範囲 (CoNiPt では $K_u^{grain} = 3.3 \sim 4.3 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ に、CoCrPt では $K_u^{grain} = 1.9 \sim 2.6 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ に、それぞれ対応) に位置しており、この値は、CoCrTa における値に比較して約 2 倍となっている。一方、CoPt 媒体における H_k^{grain} は、非常に大きな 12 kOe もの値を示している。

I. A. Beardsley および V. S. Speriosu は、薄膜媒体が、Stoner-Wohlfarth 型の磁化反転機構を有する結晶粒より構成されていると仮定し、粒間に静磁気的および交換相互作用による磁化の結合を導入したモデルを用いて、トルク損失に関するシミュレーションを行なっている⁴⁾。その結果では、実際の薄膜媒体において予想される程度の粒間相互作用が存在する場合には、 W_r が消失する印加磁界は、実際の結晶粒内部の異方性磁界に比較して非常に小さな値に低下することを示している。また、その場合には、 W_r が消失する印加磁界は、保磁力の低下 (粒間の磁化結合の強さの増加) に伴って大きく減少している。

しかし、実験的に調べた結果では、個々の材料において、 H_k^{grain} の値は H_c^{AV} に依存せず、ほぼ一定の値を示している。また、CoNiPt 媒体における H_k^{grain} の値は、バルクの結晶磁気異方性の値から予想される値と同程度の値を示している⁵⁾。このことは、実際の薄膜において、実験的に評価される H_k^{grain} に結晶粒間の磁化の結合が与える影響は、それほど大きくないことを示している。したがって H_k^{grain} の値は、ほぼ結晶粒内部に作用している一軸的な異方性磁界に対応しており、CoCrTa と他の材料における H_k^{grain} の差は、結晶磁気異方性の差に起因するものであると考えられる。

ここで、 H_c^{AV}/H_k^{grain} の値は、結晶粒間の静磁気的および交換相互作用による磁化の結合の強さの度合いにより、変化しているものと予想される。静磁気的な結晶粒間の磁化の結合が保磁力を低下させる強さは、結晶粒の飽和磁化 M_s 、 H_k^{grain} 、結晶粒径 (結晶粒の中心間の距離)、ならびに結晶粒配向により主に決定されるものと考えられる。したがって、構造的な違いを考慮しない場合には、 M_s と H_k^{grain} の比 $4\pi M_s/H_k^{grain}$ は、静磁気的な粒間の磁化の結合が保磁力を低下させる強さを表すものと考えることができる。 $4\pi M_s/H_k^{grain}$ が増加するにしたがい、保磁力は、静磁気的な相互作用により、徐々に低下することを意味する。

Fig. 7 には、各媒体の H_c^{AV}/H_k^{grain} の値を、 $4\pi M_s/H_k^{grain}$ の値に対して示した。ここで M_s

Fig.7 Relation between H_c^{AV}/H_k^{grain} and $4\pi M_s/H_k^{grain}$. $4\pi M_s/H_k^{grain}$ means the strength of magnetostatic coupling effect on the decrease of coercive force.

は薄膜全体として評価した値を粒の M_s として近似的に用いた。

全ての材料において、 H_c^{AV}/H_k^{grain} の値は、 $4\pi M_s/H_k^{grain}$ に依存せず大きく変化していることがわかる。X線回折およびTEMによる構造観察では、 H_c^{AV}/H_k^{grain} 増加にともなった、系統的な結晶粒配向の変化（膜面に垂直な方向から膜面内方向へ磁化容易軸が変化するような変化）あるいは単調な結晶粒径の増加（静磁的に結合する結晶粒数の低下）は、観測されていない。

したがって、 $4\pi M_s/H_k^{grain}$ が同程度の薄膜を比較した場合には、 H_c^{AV}/H_k^{grain} の増加は、主に、交換相互作用による粒間の磁化結合の強さが低下したためであると考えられる。

一方、結晶粒が磁的に孤立した理想的な薄膜における H_c^{AV}/H_k^{grain} の最大値は、0.5となる。しかし、 $4\pi M_s/H_k^{grain}$ が大きなCoCrTaのような実際の薄膜においても、 H_c^{AV}/H_k^{grain} の値が0.3を超える試料が存在している。このことは、CoCrTaよりも $4\pi M_s/H_k^{grain}$ が小さな媒体では、さらに大きな H_c^{AV}/H_k^{grain} の値が実現出来る可能性を示唆している。一方、このような結晶粒間の磁化の結合の低下は、媒体ノイズの低下と強い相関を示す⁵⁾。将来の薄膜媒体の開発にあたってはこのような媒体の $4\pi M_s$ と H_k^{grain} の比、並びにその絶対値を考慮しながら、結晶粒径・結晶粒界を始めとする微細構造を制御することが非常に重要であると考えられる。

(b) 巨視的な磁気異方性と磁気特性

多くの薄膜媒体では、主に基板表面のテクスチャ処理に基づいた巨視的な磁気異方性が膜面内に存在している。このような巨視的な磁気異方性が保磁力に与える影響を明らかにするため、Fig. 8には、 H_c^{AV}/H_k^{grain} の値を $H_k(2\theta)/H_k^{grain}$ に対して示した。

$H_k(2\theta)/H_k^{grain}$ が増加するにしたがい、磁化容易軸と磁化困難軸の保磁力の差が増加していることがわかる。特に、 $H_k(2\theta)/H_k^{grain}$ が大きな薄膜では、磁化容易軸方向の保磁力 H_c^{KA} の H_k^{grain} に対する比が0.4程度の試料も存在している。しかし、 H_c^{AV}/H_k^{grain} に関して見るならば、巨視的な磁気異方性の誘導は、 H_c^{AV}/H_k^{grain} の絶対値には不可欠な要因では無いことがわかる。

一方、測定した媒体の $H_k(2\theta)/H_k^{grain}$ の値は0から1.2程度の範囲で大きく変化している。特に、 $H_k(2\theta)/H_k^{grain}$ の値が1.0前後の媒体では、結晶粒の磁気異方性と同程度の大きさの巨視的な磁気異方性が、基板表面のテクスチャ処理により誘導されていることを示している。このことは、Wr曲線

Fig. 8 Relation between H_c^{AV}/H_k^{grain} and $H_k(2\theta)/H_k^{grain}$. $H_k(2\theta)$ corresponds to the macroscopical uniaxial anisotropy field.

の外挿値として求めた H_k^{grain} の値が、実際の結晶粒内部の異方性磁界よりも僅かに小さな値として評価されている可能性を考慮しても否定できない。

媒体の巨視的な磁気異方性が、結晶粒の磁化容易軸の配向（一方向への集積）にのみ起因して誘導されている場合には、結晶粒の磁化容易軸が完全に一方向に配向した場合でも $H_k(2\theta)/H_k^{grain}$ の値は1.0である。しかし、上述したような $H_k(2\theta)/H_k^{grain}$ が大きな媒体において、結晶粒がほぼ完全に一方向に配向していることは考えにくい。したがって、実験結果は、基板表面のテクスチャ処理により誘導される巨視的な磁気異方性は、結晶粒の磁化容易軸の配向以外の要因にも起因している可能性を示唆している。

このような磁気異方性と粒間相互作用の強さが、残留磁化 M_r に与える影響を検討するため、Fig. 9左図には、 $H_k(2\theta)/H_k^{grain} < 0.1$ の等方的な試料について、 M_r/M_s の値を H_c^{AV}/H_k^{grain} に対して示した。さらに、Fig. 9の右図には、 $H_c^{AV}/H_k^{grain} = 0.25 \sim 0.32$ である同程度の磁氣的孤立性を示す媒体の M_r/M_s の値を、 $H_k(2\theta)/H_k^{grain}$ に対して示した。

巨視的な一軸磁気異方性の影響が無視できる等方的な媒体に関して見ると、CoPtを除き、結晶粒間の磁化の結合が低下により H_c^{AV}/H_k^{grain} が増加するにしたがい、 M_r/M_s の値は低下することがわかる。ここで、TEM観察の結果、今回測定に用いたCoPt薄膜では、磁化容易軸が膜面に垂直方向に

Fig.9 Change of M_r/M_s against H_c^{AV}/H_k^{grain} (isotropic films) and $H_k(2\theta)/H_k^{grain}$ (for the films where almost the same degree of intergranular coupling realized).

非常に強く配向しているため、他の材料に比較して M_r/M_s が大きく低下しているものと考えられる。一方、同程度の磁氣的孤立性の薄膜を比較した場合には、 $H_k(2\theta)/H_k^{grain}$ の増加により、 M_r/M_s の値が増加していることがわかる。これらのことは現行の多くの薄膜媒体では、大きな抗磁力を実現するために結晶粒の磁氣的孤立性を高めることで生じる M_r/M_s の低下を、基板表面のテクスチャ処理による適度な巨視的磁氣異方性の誘導により保持していることを定量的に示している。

(c) 磁化反転

保磁力と磁化のスイッチング磁界との対応を検討するため、Fig.10には、 H_c^{AV}/H_k^{grain} の値を H_p/H_k^{grain} に対して示した。

H_p/H_k^{grain} が小さな領域では、CoPtを除いて、 H_c^{AV}/H_k^{grain} は H_p/H_k^{grain} よりも僅かに大きな値を示しており、 H_c^{AV}/H_k^{grain} の値は H_p/H_k^{grain} の増加に対して単調に増加する。しかし、 H_p/H_k^{grain} が 0.2程度よりも大きくなるにしたがい、 H_c^{AV}/H_k^{grain} の値は、徐々に H_p/H_k^{grain} よりも小さくなる傾向を示している。

磁化容易軸が膜面から立ち上がった磁氣的に孤立した結晶粒 (Stoner-Wohlfarth型の磁化反転粒) より構成された薄膜では、 H_c^{AV}/H_k^{grain} の値は H_p/H_k^{grain} の値よりも小さい^{5, 6)}。これは、このような薄膜では、磁化回転により保磁力が決定される結晶粒が存在するためである。

X線回折の結果からは、測定を行なったほとんど全ての薄膜の結晶粒の磁化容易軸は、膜面に平行に

Fig.10 Relation between H_c^{AV}/H_k^{grain} and H_p/H_k^{grain} . H_p almost corresponds to the switching field of magnetization in the torque measurement.

は単調に配向していない。しかし、 H_p/H_k^{grain} が小さな薄膜では、 H_c^{AV}/H_k^{grain} の値は結晶粒配向に依存せず、ほぼ H_p/H_k^{grain} と同程度である。このことは、結晶粒間の磁化結合が強い薄膜では、保磁力は、結晶粒配向に依存せず、磁氣的に結合した結晶粒にわたった非可逆的な磁化のスイッチングにより決定されていることを示している。

一方、結晶粒間の磁化の結合の強さが低下するにしたがい、個々の結晶粒の磁化の向きは、周辺の磁化の向きの影響を徐々に受けにくくなるものと考えられる。したがって、 H_p/H_k^{grain} の値が 0.2程度より大きくなるにしたがい、磁化回転により可逆的に保磁力を決定している結晶粒数が徐々に増加することにより、 H_c^{AV}/H_k^{grain} が H_p/H_k^{grain} よりも、徐々に低下していく傾向が観測されるものと考えられる。

Fig.11 には、 H_c^{AV}/H_k^{grain} の値を回転ヒステリシス積分 R_h に対して示した。 R_h の値は 1.3 ~ 2.4 程度の範囲に位置しており、この値は結晶粒が磁氣的に孤立している場合の R_h の値 (約 0.4以下) よりもかなり大きい。

全ての試料にわたって全体的に見ると、 H_c^{AV}/H_k^{grain} の値は、 R_h の減少にともなって単調に増加する傾向を示す。これは、回転ヒステリシス損失の減少が、粒間の磁化結合の低下と関係していることを意味している。このような傾向は、シミュレーションの結果⁴⁾ と定性的に一致している。

一方、特に CoCrTa 薄膜においては、 $H_c^{AV}/$

Fig.11 Relation between H_c^{AV}/H_k^{grain} and R_h . R_h corresponds to rotational hysteresis integral.

H_k^{grain} の値は、 R_h の値に単調には依存していない。また、今回測定した全ての薄膜の R_h の値は、Stoner-Wohlfarth型の結晶粒からなる薄膜において、粒間の磁化の結合を考慮したシミュレーションから予想される⁴⁾ R_h の値に比較して2倍程度大きい。

結晶粒が磁気的に孤立した場合でも、結晶粒内部にインコヒーレントな磁化反転が生じた場合には、 R_h の値は、磁化反転の単位（結晶粒径）の増加に対して急激に増加することが知られている⁷⁾。したがって、実験結果は、特にCoCrTa薄膜において粒内部にインコヒーレントな磁化反転が生じている可能性を示唆している。これらの薄膜では、粒間の磁化結合の強さのみならず、結晶粒径に関係することが予想される結晶粒内部のインコヒーレントな磁化反転の違いが、磁気特性に影響を与えていることが予想される。

4. 結論

磁気トルク解析により、主に現行の磁気記録媒体における磁気異方性と結晶粒間の磁化結合の強さについて定量的な評価を試み、磁気特性との相関を検討した。その結果、以下のことを明らかとした。

- (1) 粒子の磁気異方性が形状異方性である塗布型媒体では、トルク損失が消失する磁界を基にNeelの近似による補正を行なうことで、粒子内部の磁

化反転に寄与する領域の磁気異方性および飽和磁化の値を求めることができる。

- (2) 結晶粒の磁気異方性が結晶磁気異方性である薄膜媒体において、トルク損失が消失する印加磁界は結晶粒内部の異方性磁界にほぼ対応していると考えられ、材料間の結晶磁気異方性の違いを定量的に評価することが可能である。
- (3) 結晶粒の飽和磁化と磁気異方性の比を考慮した検討の結果、測定した薄膜媒体の保磁力の増加は主に、粒間の交換相互作用の低下により生じており、それに伴って残留磁化の値も低下している。また、粒間の相互作用の低下に伴い、磁化回転により保磁力を決定する結晶粒数が増加している。
- (4) CoCrTa薄膜を始めとする媒体では、粒内部にインコヒーレントな磁化反転が生じていることが予想される。

謝 辞

今回の実験を行なうにあたり、旭コマグ㈱の末包通信氏、宮村賢郎氏、富士電機㈱の山崎 恒氏、㈱富士電機総合研究所の山口希世登氏、および、花王㈱和歌山研究所の井垣通人氏の御協力に感謝いたします。

参考文献

- 1) Tu Chen and T. Yamashita : *IEEE Trans. Magn.*, Vol.MAG-24, 2700 (1988).
- 2) I. S. Jacobs and F. E. Luborsky : *J. Appl. Phys.*, Vol.28, 467 (1957).
- 3) 井垣通人、横田真一、国井 誠、島津武仁、高橋 研 : 日本応用磁気学会誌 Vol.17, No.2, 77 (1993).
- 4) I.A. Beardsley and V. S. Speriosu : *IEEE Trans. Magn.*, Vol.26, 2718 (1990).
- 5) 末包通信、宮村賢郎、島津武仁、高橋 研 : 日本応用磁気学会誌 Vol.16, No.4, 655 (1992).
- 6) M. Takahashi, T. Shimatsu, M. Suekane, M. Miyamura, K. Yamaguchi and H. Yamasaki : *IEEE Trans. Magn.*, Vol.28, No.5, 3285 (1992).
- 7) S. Strikman and D. Treves : *J. Phys. Radium.*, Vol.20, 286 (1959).