

高密度磁気記録における記録再生特性と磁化の熱安定性に関する研究

田中, 輝光

<https://doi.org/10.15017/1398259>

出版情報：九州芸術工科大学, 2002, 博士（工学）, 課程博士
バージョン：
権利関係：

第5章

超微粒子記録媒体の記録特性と熱緩和特性

5.1 節 序言

近年、磁気記録媒体に用いられる磁性粒子および磁性膜は微細化、薄膜化される傾向が顕著である。これは記録の分解能を高めると同時にノイズの低下を目的としている。磁性粒子の微細化は磁化転移幅を減少させ、再生パルスをシャープにし、転移性ノイズの低下を促進する。磁性膜の薄膜化は記録層の磁気クラスタ体積を小さくし、各種ノイズを低下させる。

磁気記録では高面密度化が第一の目的とされている。高面密度化とは一定の面積にいかに多くの情報を記録し、かつ、その記録した情報をエラーなく再生するということである。

現在の高密度記録を制限しているのは記録系よりむしろ再生系と言える。再生系では S/N が一番重要とされている。現状のハードディスク装置では非常に高感度の GMR ヘッドが用いられているためシステムノイズが全体の S/N に与える影響は少なく、記録磁化および記録媒体によるノイズが全体のノイズの大部分を占めている。これまでの記録・再生特性の研究は記録した信号を即座に再生して、その特性を改善することにあった。しかし、近年では上述した磁性粒子の微細化および磁性膜の薄膜化などにより、磁化の熱安定性が低下し、記録した磁化が時間とともに減衰し、再生時に S/N が悪くなるなどの現象が顕著になりつつある[36]-[40]。そこで、本章では磁性粒子の微細化による記録性能（記録分解能）の向上、そして微細化された粒子の磁化の熱安定性について述べる。

信号を記録する場合、線方向の分解能は磁化転移幅の広がりに大きく依存する(Fig. 5.1)。簡単に考えると、磁化単位となる粒子または粒が大きいほど磁化転移幅が大きくなり、3.3.1 項で述べた再生パルス幅(PW_{50})が大きくなるため高線密度化に不向きとなる。また、磁化転移領域のノイズ（転移性ノイズ）が大きくなり、メディアノイズも大きくなる。逆に、小さいと磁化転移幅は小さくなり、 PW_{50} は小さく高線密度化が可能で、さらに転移性ノイズも小さくなる。5.2 節では超微粒子から構成される媒体を用いて、その記録密度特性から、計算によって、それら超微粒子媒体のものについて記録性能について検討する。

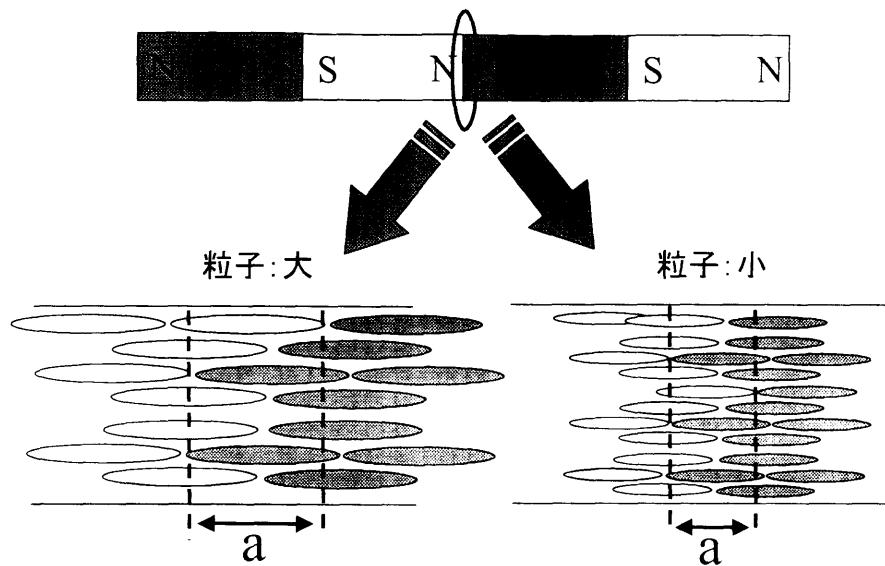


Fig. 5.1 粒子の大きさによる記録磁化転移幅の違い。

連続薄膜媒体であるハードディスクにおける磁化の熱安定性の解析は非常に困難である。その理由は、現在のハードディスクには磁化を熱的に安定させるために反強磁性膜や減磁界を小さくするため軟磁性膜など様々な磁性層があり、それら各層間での交換結合、また、磁壁の移動など解析を複雑化する要素が大量に入り混じっている。一方、磁気テープは磁性粒子が不連続に分布しているためハードディスクのような連続膜に比べ磁性粒子の磁気的な孤立性が幾分高く、磁化の熱安定性の基礎的な解析に適している。そこで、本章ではその物理特性が明確で、かつ体積が非常に小さい超微小磁性粒子からなるテープ媒体を用いて磁化の熱安定性について解析を行った。

磁性粒子の微細化はその粒子の持つ磁気的エネルギーの減少を引き起こす。この磁気的なエネルギーの減少により、磁化は周囲の熱エネルギー支援により反転を起こす可能性がある。つまり、記録した情報が消えてしまうということである。先にも述べたように現在では磁性粒子の微細化が進んでおり、ここ2年から3年の間で、多くの研究者が磁化の熱安定性を気にするようになった。最近では学会等でも記録・再生特性の改善を述べると同時に磁化の熱安定性の検証を必ず行っている。つまり、現在の磁性媒体の熱安定性は既に限界に近づいていると考えられる。

磁化の熱安定性の研究は約半世紀前に始まった。1949年に R. Street と J. C.

Woolly は回転磁化の熱活性エネルギーに基づいた磁気余効を考え、磁化の変化量(磁化が反転する量)が経過時間の対数に比例することを示した[41]。この比例定数を磁気粘性とし、磁気粘性と非可逆磁化率との関係を理論付け、揺らぎ場と磁気粘性の関係を導いた[42]。また、L. Néel は磁化反転の確率と活性化エネルギーの関係を導き出した[43]。

回転磁化の熱による磁化反転の根本原理は、磁化が反転を起こすのに必要なエネルギー障壁の高さに等しい、またはそれ以上のエネルギーが熱エネルギーにより与えられることによる。Arrhenius は温度上昇と共に磁化反転の確率が増すことを理論的に示した[43]。これは温度の上昇と共に磁化が不安定になることを示しており、磁化の熱安定性を考える際に温度を考慮することが重要であることを示す。

本研究で使用した磁性粒子は、その体積が非常に小さいため粒子自身の持つ磁気エネルギーは非常に小さいと考えられる。このように磁気エネルギーの小さな粒子では磁壁がない、または磁壁があっても動けない状態にあると考えることが出来る。そこで、本研究では磁化反転は全て回転磁化型によるものと考えた。

5.2 節で述べるが、磁化の熱安定性を左右するのは磁気異方性エネルギー ($K_u V$) と熱エネルギー (kT) の比($K_u V/kT$)である。5.4 節では粒子体積が非常に小さな長手配向超微粒子媒体を用いて、その記録特性と熱安定性について検討する。そして、活性化体積の推定方法である Street と Woolly によって提唱された方法と waiting time 法による推定結果を比較検討する[44][45]。

5.2 節 微粒子化による記録特性の改善

記録特性の評価に使用したサンプルの諸元を Table 5.1 に示す。BF-1, 2 は超微粒子からなる最新[†]の Ba フェライトテープ媒体、BF-3 は従来の比較的大きな粒子からなる Ba フェライトテープ媒体、そして、MP は粒子体積が非常に大きなメタルテープ媒体である。

[†] 最新の超微粒子 Ba フェライトテープと、その磁性紛データは富士写真フィルム（株）に提供して頂いた。

Table 5.1 サンプル諸元

	BF-1	BF-2	BF-3	MP
Media (longitudinal)				
H_c (Oe)	2673	2203	1361	1541
H_r (Oe)	3225	2334	1420	1676
M_s (emu/cm ³)	100	123	169	226
SQ	0.58	0.74	0.69	0.75
SFDr	0.33	0.22	0.19	0.36
Ra	4.1	4.2	7.0	5.3
Particle				
M_s (emu/cm ³)	243	263	338	699
Ku (erg/cm ³)	7.64×10^5	7.78×10^5	6.00×10^5	2.03×10^6
Av. dia./length				
Dm or Lm (nm)	22.7	41.8	50	147.7
Aspect ratio	3.55	4.14	3.5	7.75
Volume (cm ³)	2.21×10^{-18}	1.15×10^{-17}	2.23×10^{-17}	4.23×10^{-17}
Comment	Advanced Ba-ferrite particle	Advanced Ba-ferrite particle	Conventional Ba-ferrite particle	Super fine particle type

Fig. 5.2 に各サンプルの記録密度特性を示す。記録・再生に使用したヘッドはトラック幅 21μm, ギャップ長 0.2μm の MIG ヘッドで、ヘッド・ディスク間の相対速度を 5m/s とし、ドラムテスターを使用して方形波記録を行った。また、再生出力はスペクトラムアナライザで再生信号出力の基本波成分を読み取った。Fig. 5.2において低線密度領域では残留磁化($M_r = M_s \times SQ$)の大きな MP の出力が一番大きくなっているが、高線密度になると BF-1, 2 の出力が大きくなっている。これは粒子寸法が小さいため、Fig. 5.1 に示すような磁化転移幅が小さくなることで、dΦ/dt が大きくなり出力が大きくなったことと微粒子化により磁性層表面の粗さ Ra が小さくなつたことによる。つまり高分解能化されたことが要因であると考えられる。また、低 M_s 化により自己減磁界が小さくなつたこと、さらに高保磁力（高 H_c ）化により減磁界作用を抑圧できたことも、高線密度領域での高出力化の要因であると考えられる。

記録媒体の記録性能を再生信号によって評価する場合、必ず再生ヘッドの分解能の影響（特にギャップ損失）が現れるため、記録媒体のもつ性能のみを評価することが出来ない。一般には、再生ヘッド分解能の影響の分を補正するために、Fig. 5.2 のような実測データの外挿曲線を描き、その高密度領域の再生出力が飽和再生出力の 50% または 20% となる線記録密度を D_{50}^* , D_{20}^* として簡便に評価することが多い。本研究では損失項の計算により D_{50}^* , D_{20}^* を推定し、記録媒体の性能を評価する

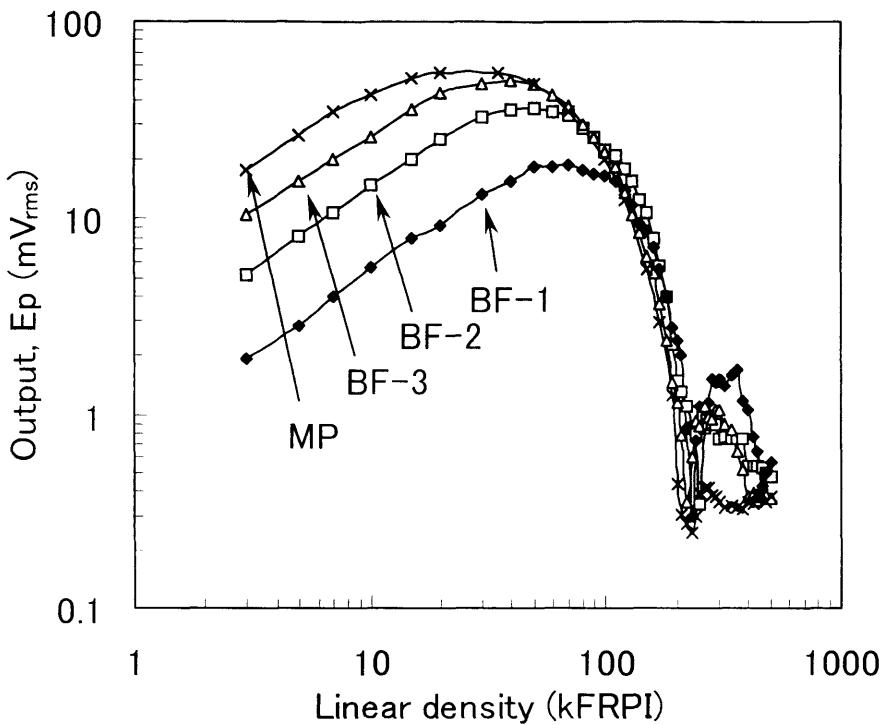


Fig. 5.2 記録密度特性.

[46]-[49]. 計算式を以下に示す.

$$E_p = k \cdot GL(g, \lambda) \cdot SL(d, \lambda) \cdot PL(L_m, \sigma, \lambda) \quad (5.1)$$

$$GL = \frac{\sin(\pi g / \lambda)}{\pi g / \lambda} \left[1 + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{A_n}{U_0} \cdot \frac{(-1)^n 4n\pi}{4 - (2n\lambda/g)^2} \right] \quad (5.2)$$

$$\begin{aligned} A_1 &= -0.08454U_0, & A_2 &= 0.02327U_0, & A_3 &= -0.01108U_0 \\ A_4 &= 0.00651U_0, & A_5 &= -0.00429U_0, & A_6 &= 0.00305U_0 \end{aligned}$$

$$SL = \exp\left(\frac{2\pi d}{\lambda}\right) \quad (5.3)$$

$$PL = \frac{\int_0^\infty \frac{\sin(\pi L / \lambda)}{\pi L / \lambda} \cdot f(L) dL}{\int_0^\infty f(L) dL} \quad (5.4)$$

$$f(L) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma}} \cdot \exp\left[\frac{(L - L_m)^2}{2\sigma^2}\right] \quad (5.5)$$

(5.1)式において、再生出力(E_p)はギャップ損失の項 GL 、スペーシング損失の項 SL 、粒子長の分散を考慮した粒子長による損失の項 PL から計算される。ここで、 k : 定数、 g : ギャップ長、 λ : 記録波長、 d : スペーシング、 L : 粒子長 (Ba フエライト粒子では直径 D)、 L_m : 平均粒子長 (同平均直径 D_m)、 σ : 粒子長 (同直径) の標準偏差とする。各損失項の計算式を(5.2)式から(5.5)式に示す。ギャップ損失は 6 次の項まで補正を行った Baird の関数を用いた[50]。スペーシング損失は一般的な計算式を用いた。スペーシングは媒体の表面粗さに比例することがわかっている。粒子長による損失は、Fig. 5.1 に示した磁化転移領域の鋭敏さを決定する粒子分解能を示していると言える。この粒子長による損失項の計算式は粒子の長軸長分布 ($f(L)$) が正規分布に従い、短軸長が無視できるほど小さく、全ての粒子が完全に配向されていると仮定すると、Thurlings のモデルにより(5.4)式で表される[51]。ギャップ長、平均粒子長とその分散に実測値を入れた計算値と実測値とのフィッティングポイントを 100 k FRPI とし、それ以上の記録密度について実測値との合わせ込みを(5.3)式のスペーシング d を変化させて記録性能をシミュレートした。Fig. 5.3 に BF-1 の実測値と計算値の合わせ込みを行った様子を示す。同図から実ギャップ長に対する実測値と計算値の一一致は線記録密度 $D \geq 100$ kFRPI において極めて良好であることが分かる。さらに、上述のシミュレーションで再生ギャップ長 g を $g \rightarrow 0$ とすれば与えられたスペーシングでの各媒体の記録性能を評価できる。このフィッティングと推定を各媒体について行い各媒体の記録性能を推定した。計算結果を Fig. 5.4 に示す。最も粒子体積の小さい BF-1 は全領域にわたって出力損失が小さく、最も高密度化に適していることがわかる。一方、粒子体積の大きな MP は 400 kFRPI あたりでディップを示しているが、これは(5.1)式において粒子寸法(平均粒子長 $L_m=147.7$ nm)による PL のディップが記録分解能を制限しているためである。Table 5.2 に実測による D_{50} 、 D_{20} および計算によって得られた D_{50}^* 、 D_{20}^* を示す。一般には実測による D_{50} 、 D_{20} は再生出力の最大値を基準として求めるが、本研究ではフィッティングを行った後の計算値の最大値を基準としているため本来の D_{50} 、 D_{20} の値よりも小さく評価されている。各サンプルにおける D_{50} と D_{50}^* 、 D_{20} と D_{20}^* を比較すると、粒子体積の小さい BF-1 は D_{50} がおよそ 30 k FRPI、 D_{20} では 2 倍に上昇しており媒体の持つ記録能力は非常に高く、シールド間隔が小さな MR ヘッドで再生すれば良好

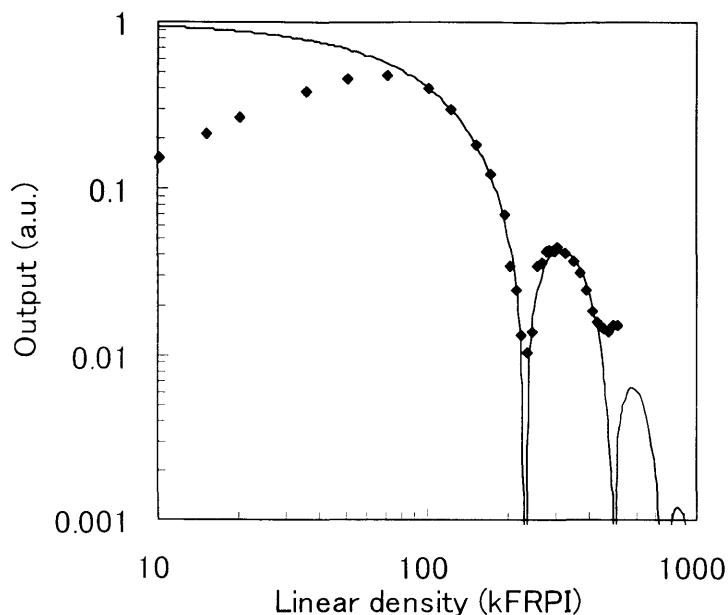


Fig. 5.3 実測値と計算値のフィッティング（フィッティングポイント：100 kFRPI）。

Table 5.2 記録性能の推定値

	BF-1	BF-2	BF-3	MP
D_{50}	82	61	54	67
D_{50}^*	118	73	61	81
D_{20}	147	120	108	122
D_{20}^*	275	173	143	163
(kFRPI)				

な記録特性が得られると考えられる。また BF-1 は粒子体積が小さくノイズが小さいと考えられるため高 S/N 化も期待できる。BF-2, 3 および MP のような粒子体積の大きな媒体では D_{50} , D_{20} ともにいくらかの上昇は見られるが BF-1 ほどの上昇は見られなかった。このように磁性粒子の微細化は記録の高分解能化に大きく貢献しており、それにより高密度記録が可能となっていることがわかる。

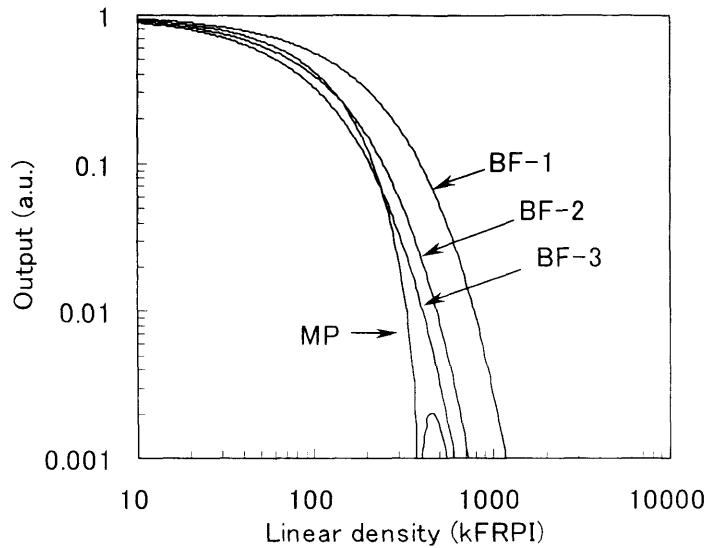


Fig. 5.4 記録性能の推定結果.

5.3節 記録磁化の時間依存と揺らぎ場

磁化の熱安定性について、R. W. Chantrell らはその原理を総括的にまとめている [52]。以下は、R. W. Chantrell らの論文を引用した。

磁化が反転を起こすにはエネルギー障壁と呼ばれるエネルギーの壁を超える必要がある。また、熱エネルギーによる磁化の反転は、エネルギー障壁 (E_b) と熱エネルギー (kT) の比によって確率的に生じると考えられている ((5.6)式)。

$$\tau^{-1} = A \exp\left(-\frac{E_b}{kT}\right) \quad (5.6)$$

ここで、 A は自発磁化を形成するスピンを生ずる電子の才差運動の周波数でおよそ 10^9 Hz 程度である。 k をボルツマン定数 (1.38×10^{-16} erg/deg)， T を絶対温度とする。磁化の時間減衰は対数時間上で直線的に減衰することが実験的にも確認されており、その傾きを S とすると、 t 秒後の磁化は(5.7)式で示される。

$$M = M_0 - S \ln(t) \quad (5.7)$$

ここで、 M_0 は $t=0$ での磁化とする。また、 S は磁気粘性係数と呼ばれる。(5.8)式のようにエネルギー障壁の分布を考慮することで対数項が現れる。

$$M(t) = \int_0^\infty f(E_b) \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) dE_b \quad (5.8)$$

$M(t)$ は t 秒後の磁化を表す。ここで、 $t/\tau=1$ となる時のエネルギー (E_c) を用いることで(5.8)式は(5.9)式のように近似できる。

$$M = \int_{E_c}^\infty f(E_b) dE_b \quad (5.9)$$

(5.9)式を $\ln(t)$ で微分すると(5.10)式が得られる。

$$S = -\frac{dM}{d\ln(t)} = 2kTf(E_c) \quad (5.10)$$

ここで、 $f(E_b)$ は E_c の分布関数である。磁気粘性は非可逆的な磁化過程から生じるもので、非可逆磁化率のような他の非可逆磁化過程と比較される。Gaunt はこの非可逆磁化率を(5.11)式で表した[53]。

$$\chi_{irr} = -2f(E_c) \left. \frac{\partial E_b}{\partial H} \right|_{E_b=E_c} \quad (5.11)$$

(5.10)式と(5.11)式の S と χ_{irr} はともに E_c に直接的に依存する。これらの直感的な繋がりが揺らぎ場 H_f として(5.12)式に定義される。

$$H_f = \frac{S}{\chi_{irr}} \quad (5.12)$$

また、(5.12)式は(5.10)式と(5.11)式を用いて(5.13)式で表される。

$$H_f = -kT \left. \left(\frac{\partial E_b}{\partial H} \right) \right|_{E_b=E_c} \quad (5.13)$$

Wohlfarth[54]は H_f を用いて活性化体積 V_{ac} を定義した ((5.14)式)。

$$V_{ac} = \frac{kT}{M_s H_f} \quad (5.14)$$

これは熱減磁による磁化反転の最小体積と考えられている。また、活性化体積は粒子体積のように視覚的に確認できるものではない架空の体積である。

このように、磁気粘性係数と非可逆磁化率から揺らぎ場を推定する方法を本論文では Street-Woolly 法と呼ぶ。

Stoner-Wohlfarth の粒子モデルは揺らぎ場の重要な点を表している。このモデルでは粒子の磁化容易軸方向に磁界を印加して磁化を反転させると、 E_b はエネルギー

一障壁の最小値と最大値の差で表される。よって、 E_b は(5.15)式となる。

$$E_b = K_u V \left(1 - \frac{H}{H_k} \right)^2 \quad (5.15)$$

ここで、 K_u は磁気異方性定数、 $H_k (= 2 K_u / M_s)$ は異方性磁界を表す。粒子体積の分散等を考慮した磁化の時間減衰では(5.13)式は(5.16)式に書き換えられる。

$$H_f = H_k \left(1 - \frac{H}{H_k} \right) / 2 \ln(At) \quad (5.16)$$

エネルギー障壁の分布が極端に小さい場合などでは、磁化が別のある印加磁界によって減衰した磁化に等しくなるまでの対数時間をもとに揺らぎ場を推定する waiting time 法が用いられる (5.17)式)。

$$H_f = - \left. \frac{\partial H}{\partial \ln(t)} \right|_{M_{irr}} \quad (5.17)$$

これは、Street-Woolly 法とは揺らぎ場の推定に用いる測定データが異なり、(5.17)式に示されるように印加磁界間隔を ΔH として揺らぎ場を推定する方法である。5.4 節では、これら Street-Woolly 法と waiting time 法によって揺らぎ場を推定し、活性化体積を求める。

5.4節 熱緩和特性

5.2 節では、超微粒子媒体は良好な記録分解能を有していることを示した。しかし、微粒子化に伴い粒子体積が小さくなるため磁気異方性エネルギーと熱エネルギーとの比($K_u V kT$)が小さくなり、磁化の熱的安定性に注目する必要が生じてくる。そこで、以下では、まず、平均直径 22.7 nm という超微粒子集合体からなる媒体の活性化体積の推定方法について検討する。そして、磁化の経時変化に及ぼす粒子間相互作用の影響、活性化体積との関連について検討する。

(5.13)式と(5.14)式に示されるように活性化体積は揺らぎ場を推定し、そのデータをもとに推定される。揺らぎ場の推定にはいくつかの方法があり、どの方法が最

も信頼できるかということが盛んに議論されている[55]. 本節では従来から用いられてきた Street と Woolley によって提唱された非可逆磁化率および磁気粘性係数を用いる方法[41]と waiting time 法[56]で揺らぎ場を求めて活性化体積を推定し、超微粒子媒体の活性化体積の推定結果を比較検討する.

Street-Woolly 法

Fig. 5.5 に Table 5.1 に示した各サンプルについて測定した非可逆磁化率 χ_{irr} の磁界依存性を示す. 同図で χ_{irr} は 12000 Oe で飽和磁化した後の残留磁化曲線を数値微分して求め、印加磁界(残留保磁力 H_r で規格化)の関数として表したものである. なお、熱緩和の大きな材料の非可逆磁化率の測定法として、測定中の磁化の時間減衰が無視できる程度に充分長い時間が経過した後の全微分磁化率 χ_{tot} および可逆磁化率 χ_{rev} を測定し、 $\chi_{irr} = \chi_{tot} - \chi_{rev}$ として求める方法が報告されている[57][58]. この方法に従って BF-1, 3 の χ_{irr} の磁界依存性を測定した結果は、許容誤差の範囲で Fig. 5.5 と同じであった. Fig. 5.5 より明らかなように、BF-3 と MP は残留保磁力

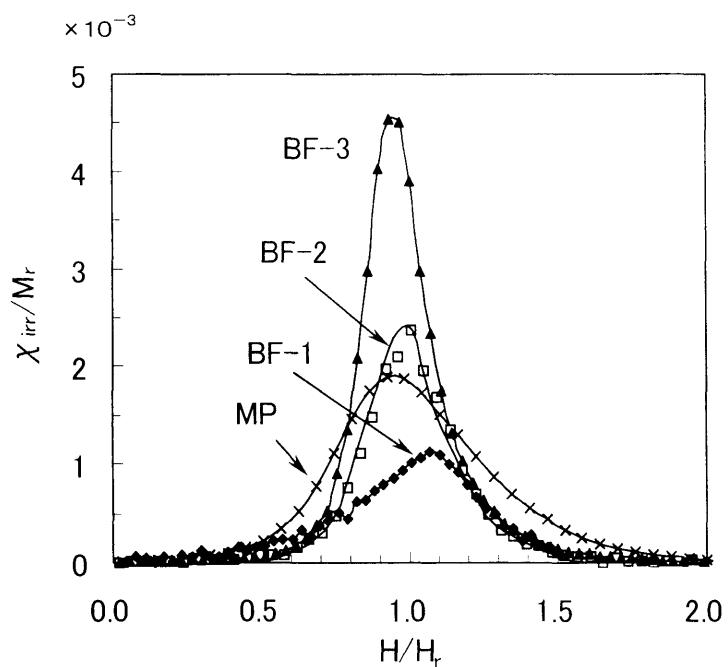


Fig. 5.5 非可逆磁化率.

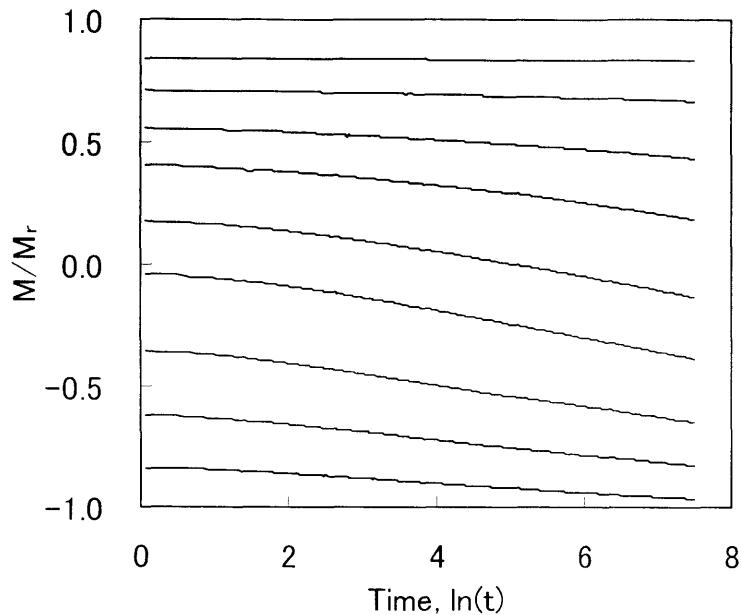


Fig. 5.6 BF-3 の磁化の時間減衰.

より幾分小さい磁界 ($H/H_r=0.95$) で非可逆磁化率が最大値を示した。粒子体積の小さな BF-2 は $H/H_r=0.98$ で最大となり、粒子体積の最も小さな BF-1 は $H/H_r=1.05$ で最大値を示した。このように、Ba フェライト媒体は磁性粒子の微細化により非可逆磁化率のピークが高磁界へ動く傾向が認められる。

BF-3 を例に磁化の時間減衰の測定結果を Fig. 5.6 に示す。前節で述べたように、Street-Woolley 法では揺らぎ場の推定に非可逆磁化率 (χ_{irr}) と磁気粘性係数 (S) を用いる。Fig. 5.6 における磁化の時間減衰は反転印加磁界を加えて室温で 30 分間の磁化の経時変化を測定したものである。同図において、 $\ln(t)$ が非常に小さい場合の磁化が大きいものほど、印加された反転磁界が小さく、小さいものほど印加された反転磁界は大きくなっている。この Fig. 5.6 のグラフの直線部分の磁化の傾きを $S = \Delta M / \Delta \ln(t)$ として磁気粘性係数を求めた。

Fig. 5.7 に各媒体の S の印加磁界依存性を示す。BF-1, 3 と MP は $H/H_r=0.95$ で S が最大値を示した。粒子体積の小さな BF-2 は $H/H_r=1.0$ で最大となった。

Fig. 5.8 に Street-Woolley 法を用いて推定した活性化体積を示す。活性化体積の推定は、5.3 節で述べたように各印加磁界時の非可逆磁化率 (χ_{irr}) と磁気粘性係数 (S) を測定により求め、(5.12)式から H_f を計算し、その H_f を用いて(5.14)式から行

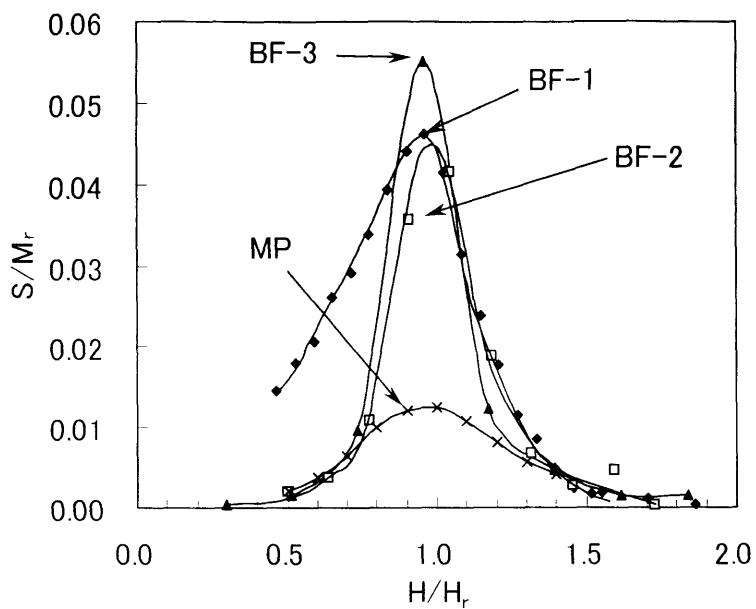


Fig. 5.7 磁気粘性係数.

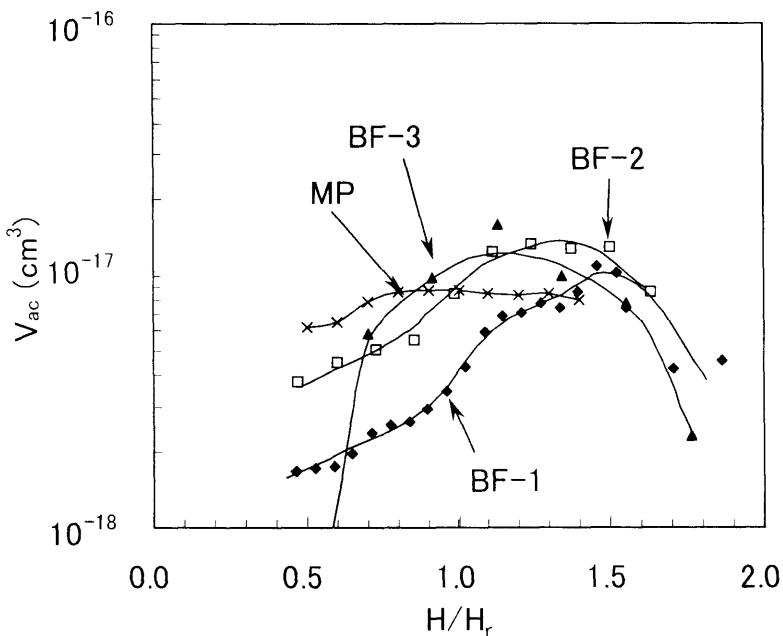


Fig. 5.8 Street-Woolly 法によって推定された活性化体積の印加磁界依存性.

った。ただし、(5.14)式の M_s は粒子の飽和磁化であり、Table 5.1 に示す Particle の M_s を計算に用いる。 $H/H_r > 1.5$ では、活性化体積の算出にかなりの誤差を伴うものの、磁性粒子の微細化により活性化体積が最大値を示す磁界が大きくなる傾向が

みられる。文献[57], [58]では、本実験で用いたよりもわずかに粒径の大きい Ba フェライト磁性粉(無分散・無配向)について、揺らぎ場が比較的低磁界から保磁力近傍までほぼ平坦な最小値をとる(従って、活性化体積は最大となる)ことを示している。上述した本研究の結果には、磁性粉の微細化による効果が現れているものと考えられる。

これまで揺らぎ場および活性化体積の推定方法について多くの議論がなされてきたが、そのほとんどの場合が Figs. 5.5, 5.7 の BF-2, 3 および MP のように非可逆磁化率と磁気粘性係数がともに媒体保磁力または残留保磁力の付近で最大となっていた。また媒体保磁力と残留保磁力の値が近かったため、揺らぎ場の推定には印加磁界を $-H_c$ として磁化の経時変化を測定し、その磁気粘性係数を計算に用いるだけでもよかった。しかし、BF-1 のような超微粒子媒体は保磁力と残留保磁力の値の差が 500 Oe 以上もあり、さらに非可逆磁化率が最大となる磁界の大きさが残留保磁力よりも大きくなっているため、活性化体積を $-H_c$ に等しい印加磁界についてのみ推定するには注意を要する。

Waiting time 法

Waiting time 法を用いて揺らぎ場を求め、活性化体積を推定した。Waiting time 法は、印加磁界 $H_{app} = -H_t + \Delta H/2$ および $H_{app} = -H_t - \Delta H/2$ で磁化の経時変化を測定し、それぞれの磁化がある一定レベルになる対数時間間隔を $\Delta \ln(t)$ として印加磁界 $-H_t$ における揺らぎ場を $H_f = \Delta H / \Delta \ln(t)$ として求め、Street-Woolley 法と同じく (5.14)式により活性化体積を推定する方法である (Fig. 5.9) [56]。Fig. 5.10 にこの方法で求めた活性化体積を示す。同図によると全てのサンプルが残留保磁力付近の印加磁界で活性化体積の最小値を示した。

Table 5.3 に 2 つの測定法を用いて推定される各サンプルの活性化体積の推定結果を示す。Street-Woolley 法により求めた活性化体積はその最大値($V_{ac}(SWM)$)を、waiting time 法で得られたものはその最小値($V_{ac}(WTM)$)とした。また、それらの値を粒子体積(V_{phy})で規格化したものを同表に示す。2 つの測定法による活性化体積は、

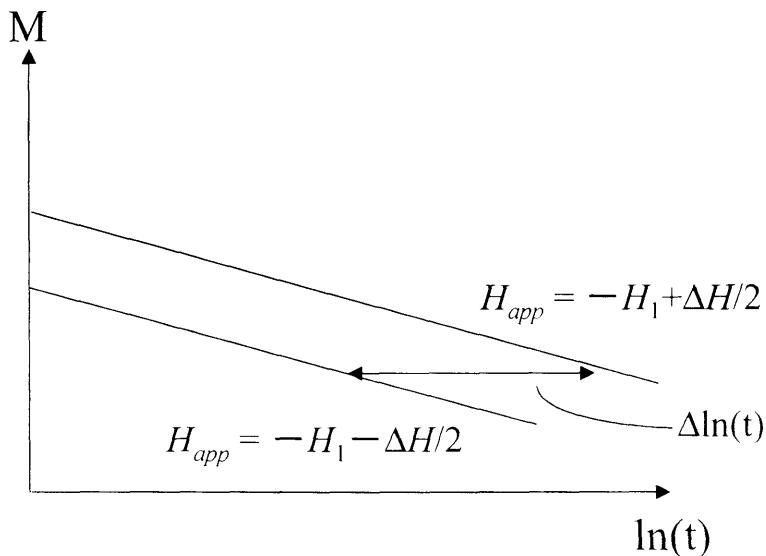


Fig. 5.9 waiting time 法による測定方法.

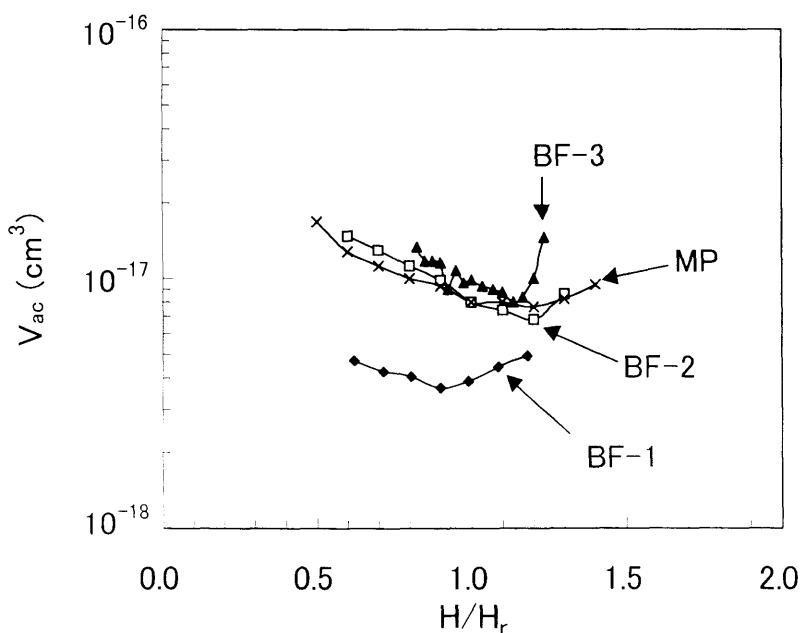


Fig. 5.10 waiting time 法によって推定された活性化体積の印加磁界依存性.

Street-Woolley 法による値が大きく評価されているが、その違いは高々 1.7 倍程度で大きな違いは見られなかった。ただし、それぞれの測定法において活性化体積が極値を示す印加磁界は異なっており、Street-Woolley 法では BF-1, 2 で $H/H_r=1.3 \sim 1.5$, BF-3 および MP では $H/H_r=1.0 \sim 1.1$ 付近、waiting time 法では全てのサンプルで $H/H_r=1.1$ 付近となっている。また、BF-1 では、それぞれの方法で V_{ac}/V_{phy} が 3.9

Table 5.3 活性化体積の推定値

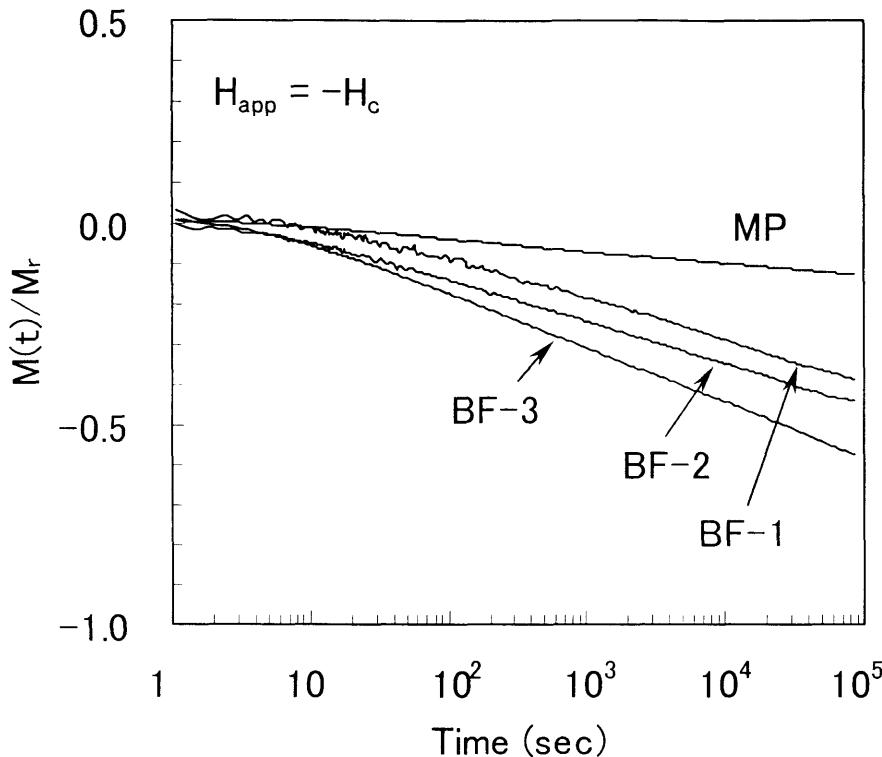
	BF-1	BF-2	BF-3	MP
$V_{ac}(SWM) \text{ (cm}^3)$	8.5×10^{-18}	1.3×10^{-17}	1.4×10^{-17}	9.0×10^{-18}
$V_{ac}(SWM)/V_{phy}$	3.9	1.1	0.6	0.2
$V_{ac}(WTM) \text{ (cm}^3)$	3.7×10^{-18}	7.7×10^{-18}	9.0×10^{-18}	7.7×10^{-18}
$V_{ac}(WTM)/V_{phy}$	1.6	0.7	0.4	0.2

または 1.6 となっており、この値が単一の粒子に対するものであれば、この粒子は超常磁性でありもはや記録媒体には使えないはずである[59]. しかし、実際には BF-1 は 5.2 節に示した通り優れた高密度記録特性を示していることから、この媒体では 2 つから 4 つの粒子が一体となって挙動していると推測される。(蒸着テープにおいても粒体積よりもはるかに大きな活性化体積を実測している[60].)

磁化の熱安定性と粒子間相互作用

記録媒体内部では磁性粒子間に相互作用磁界が働いており、 $H_{app} = -H_c$ のような大きな反転磁界の下で、メタル媒体のような針状粒子では周囲の磁化の反転を抑する負の相互作用、Ba フェライト媒体のような板状粒子では周囲の磁化の反転を助する正の相互作用が働いていると考えられている。この粒子間相互作用の大きさは媒体の残留磁化反転磁界分布 (SFD_r : Switching Field Distribution) に大きな影響を与える。正の相互作用が大きい場合、ひとつの粒子が磁化反転を起こすと相互作用磁界により周囲の粒子も一斉に磁化反転を起こし、媒体全体の磁化が雪崩れのように反転してしまうため SFD_r が小さくなる。逆に負の相互作用が大きい場合、ひとつの磁化が反転すると周囲の磁化の反転を抑制し、周囲の磁化は反転するのにより大きな磁界を必要とするため SFD_r は大きくなる。このような粒子間相互作用は熱減磁過程においても発生していると考えられる。

磁化の熱的安定性について考察するために、磁化の経時変化の測定を行った。その磁化減衰の傾斜の印加磁界依存性は Fig. 5.7 に示したが、本節では材料としての性能と粒子間相互作用の影響を評価する目的で、磁化減衰が顕著な $H_{app} = -H_c$ の条

Fig. 5.11 磁化の時間減衰($H_{app} = -H_c$).

件のもと室温で 24 時間にわたり磁化の時間減衰を測定した。Fig. 5.11 に測定結果を示す。一般に磁化は $K_u V kT$ が大きいほど安定であり、逆に小さいほど不安定であると考えられている。Table 5.4 に $K_u V_{phy}/kT$ と Street-Woolley 法と waiting time 法で推定される活性化体積を用いた $K_u V_{ad}/kT$ の値を示す。ここで V_{phy} は磁性粒子の体積、 $V_{ac}(SWM)$ は Street-Woolley 法により推定した活性化体積、 $V_{ac}(WTM)$ は waiting time 法により推定した活性化体積である。ただし、活性化体積は $H_{app} = -H_c$ における磁化の経時変化を測定して得られた値である。

一般に磁化の安定性を評価する場合、 $K_u V kT$ の V を活性化体積として考えることが多いが、活性化体積は磁性粒子が粒子間相互作用の影響を受けた結果得られる値であるので、粒子間相互作用と磁化の経時変化との関係を考察するために V として粒子体積 V_{phy} を用いた。Fig. 5.11 において BF-1 は BF-2, 3 よりも $K_u V_{phy}/kT$ の値が小さいにも関わらず磁化は安定であるという結果が得られた。そこで粒子間相互作用のない場合の磁化の経時変化を粒度分布を考慮して計算した[61]。なお測定に使

Table 5.4 各測定法から推定された $K_u V_{ac}/kT$

	BF-1	BF-2	BF-3	MP
$K_u V_{phy}/kT$	41	218	340	2095
$K_u V_{ac}(SWM)/kT$	39	114	132	416
$K_u V_{ac}(WTM)/kT$	75	197	146	416

用した媒体は粒子長が既知であるためメタル粒子は円筒状粒子, Ba フェライト粒子は六角板状粒子としてそれぞれの体積を計算した。粒子体積に分布がない場合の磁化の時間減衰は(5.18)式で与えられる。

$$g = \frac{M(t)}{M_0} = 2 \exp \left\{ -At \exp \left(-\frac{K_u V}{kT} \right) \right\} - 1 \quad (5.18)$$

ここで, M_0 を時刻 $t=0$ における磁化の大きさとし, $M(t)$ を時刻 t における磁化の大きさとする。粒子体積が分散を持つ場合には(5.18)式は(5.19)式のように書き換えられる。

$$m(t) = \frac{\int_0^\infty g(t, L) h(V) dV}{\int_0^\infty h(V) V dV} \quad (5.19)$$

ここで, L は粒子長とし, V を粒子体積とする。また, $h(V) dV$ は(5.20)式を満たす。 $m(t)$ は時刻 t における規格化された磁化とする。

$$h(V) dV = f(L) \frac{3\pi L^2}{4a^2} dL \quad (5.20)$$

$f(L)$ は粒子長が 30% の分散を持つ場合の正規分布関数を示し, 粒子体積の分散は全ての粒子が相似形であるとして計算した。(5.18)式に(5.19)式と(5.20)式を代入すると(5.21)式が得られる。 $h(V)$ は体積分散を表す。

$$m(t) = \frac{\int_0^\infty g(t, L) f(L) L^3 dL}{\int_0^\infty f(L) L^5 dL} \quad (5.21)$$

一方, 粒子が Ba フェライトの場合は, 粒子長(粒子径)を D として(5.20)式は(5.22)式となる。

$$h(V) dV = f(D) \frac{9\sqrt{3}D^3}{8a} dD \quad (5.22)$$

また、(5.21)式は(5.23)式となる。

$$m(t) = \frac{\int_0^{\infty} g(t, D) f(D) D^5 dD}{\int_0^{\infty} f(D) D^5 dD} \quad (5.23)$$

Fig. 5.12 に Table 5.1 に示す粒子の各パラメータを用いた磁化の経時変化の計算結果を示す。磁化の経時変化の測定は $H_{app} = -H_c$ の条件で行っており、これにより磁化が反転を起こす際に超えるべきエネルギー障壁の高さが相対的に低くなっていると考えられる。そこで、印加磁界を与えることによりエネルギー障壁の高さが相対的に低くなることが、印加磁界を与えない場合の粒子の K_u の値が小さくなることに相当すると考え、 K_u の値を Table 5.1 に示す本来の値の 1/5 として磁化の経時変化の計算を行った。同図において、MP では減衰は見られないが他のサンプルでは大きな減衰が見られた。BF-1, 2, 3 の減衰の大きさは $K_u V_{phv} / kT$ の値が小さいほど大きい。これを Fig. 5.11 と比較すると、BF-1, 3 が全く逆になっており、実測の結果には粒子間相互作用が大きく影響を及ぼしていると推測される。

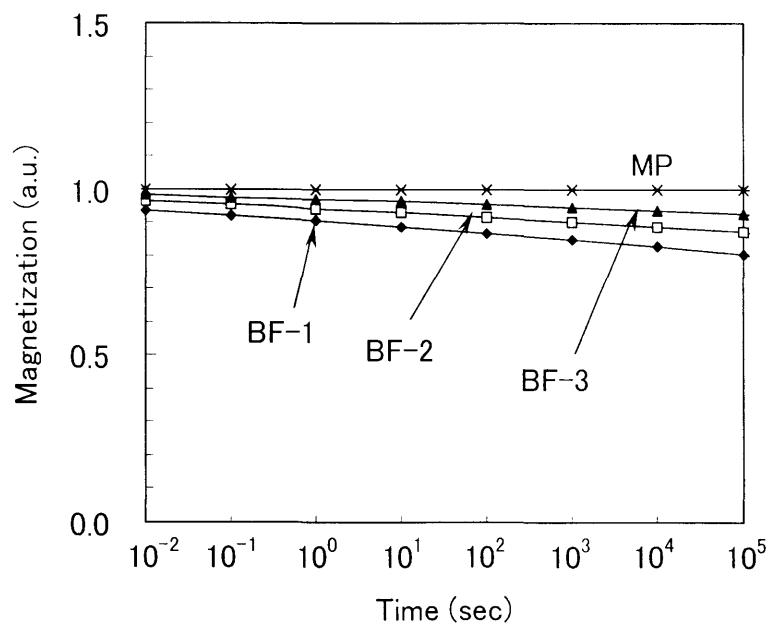
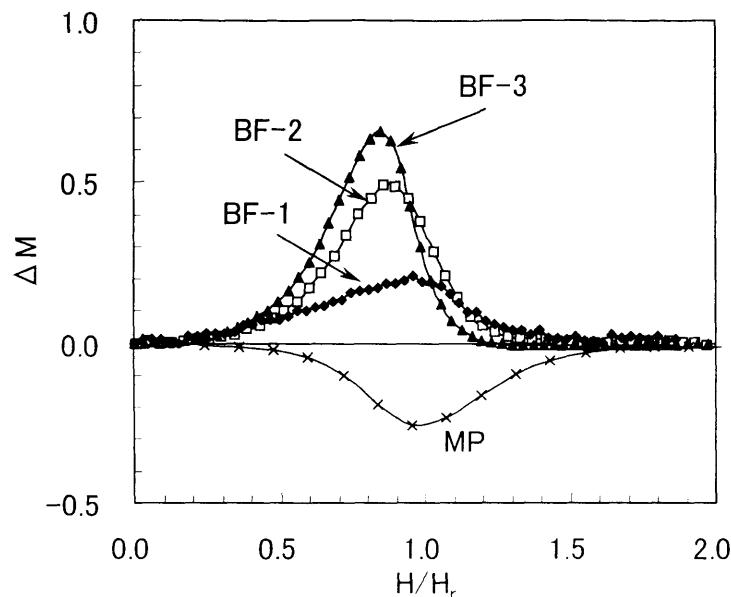


Fig. 5.12 磁化の時間減衰の計算結果。

Fig. 5.13 ΔM 曲線.

そこで、 ΔM 曲線により各媒体に働く粒子間相互作用の大きさを考察した。Fig. 5.13 に各媒体における ΔM 曲線の測定結果を示す。一般に知られるようにメタル媒体 (MP) は負の相互作用を示し、Ba フェライト媒体 (BF) は全て正の相互作用を示した。Ba フェライト媒体において、その相互作用の大きさは BF-1, 2, 3 の順に大きくなっている。このように BF-3 は BF-1, 2 よりも大きな正の相互作用があるため、磁化の経時変化において BF-1, 2 よりも大きな減衰を示したと考えられる。また、BF-1 と比較するとその相互作用は BF-3 では非常に大きい。この相互作用の強さの違いが磁化の経時減衰に大きく影響していると思われる。

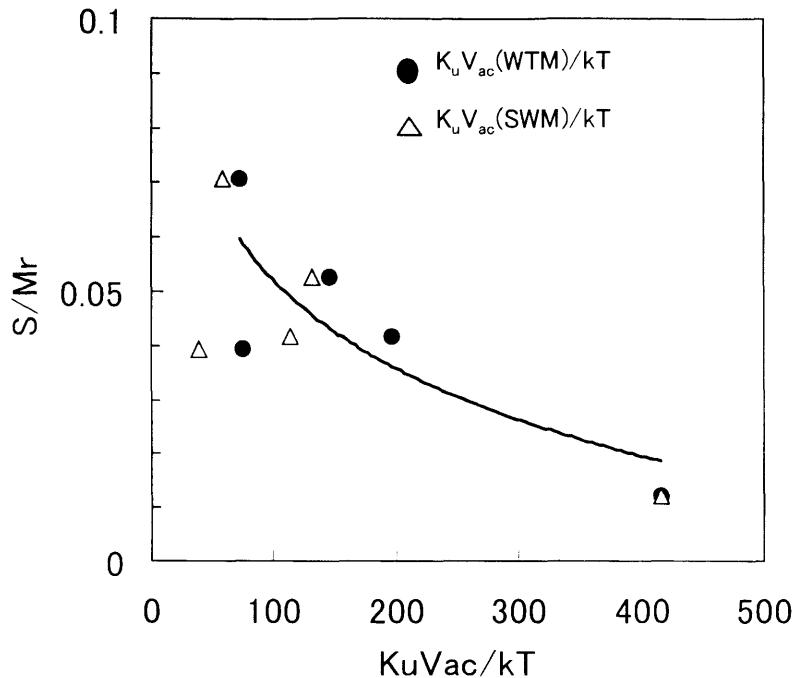
一般に粒子間相互作用の大きさはテープを作る際の磁性粒子の分散に大きく依存するといわれている。粒子の分散が十分であれば粒子間相互作用は小さくなり、不充分であれば大きくなる。特に Ba フェライト粒子はスタッキングを起こしやすいため粒子分散が非常に難しい。Fig. 5.13 に示されるように BF-1 は粒子間相互作用が小さいので粒子分散が十分であるように思えるが、Table 5.3 によると活性化体積が粒子体積のおよそ 1.6~3 倍となっており、スタッキングを起こしていると考えられる。そしてそのスタッキングを起こした粒子間では強い粒子間相互作用がはたらき、数個の粒子があたかも 1 つの粒子であるかのような動作をするため、 ΔM 曲線には

その粒子間の相互作用は現れず、スタッキングを起こした粒子塊の間にはたらく相互作用が小さく現れたと考えられる。つまり、粒子の分散は不充分であるが粒子塊の分散は比較的よくできているということが推測される（このことについては 6.2 節でさらに検討する）。

これまで粒子間相互作用と磁化の熱的安定性について定性的に解析を行ってきたが定量的な関係については不明な点が多いため更に詳細な議論が必要である。

磁化の時間減衰と活性化体積

揺らぎ場を推定する場合、これまで一般的であった非可逆磁化率と磁気粘性係数を用いる Street-Woolley 法と waiting time 法では、粒子の微細化が進むと推定結果が異なることを前項で述べた。超微粒子媒体では保磁力と残留保磁力の値の違いが大きく、非可逆磁化率が最大となる印加磁界の値も残留保磁力よりも大きくなり、更に Street-Woolley 法により推定される活性化体積が最大となる印加磁界は残留保磁力より大きく、計算による誤差の影響も大きいと考えられる。このような理由から Street-Woolley 法による活性化体積の推定値の正確さが疑問視される。更に、 $H_{app} = -H_c$ の場合の Street-Woolley 法と waiting time 法による推定値の不一致についてもその原因は不明確であり、また、それらが正しい値を示しているか疑問となる。そこで、Table 5.4 に示される印加磁界 $H_{app} = -H_c$ における各サンプルの活性化体積を考慮した $K_u V_{ad} / kT$ の値をもとに Fig. 5.11 の磁化減衰の大きさについて検討した。Street-Woolley 法および waiting time 法では、共に磁化の経時変化の測定値をもとに揺らぎ場が推定される。これにより前節で考察した粒子間相互作用の影響が、推定される活性化体積に含まれているはずであり、磁化減衰が $K_u V_{ad} / kT$ の値に依存するという考えに矛盾することはないと考えられる。しかし、Table 5.4 の $K_u V_{ad} / kT$ の値と Fig. 5.11 の磁化減衰の大きさを比較すると Street-Woolley 法で推定される活性化体積を用いた $K_u V_{ac}(\text{SWM}) / kT$ では各サンプルの磁化減衰の大きさを説明できない。一方、waiting time 法では BF-1 については完全には説明できないが、他のサンプルでは $K_u V_{ac}(\text{WTM}) / kT$ が大きいほど磁化減衰が小さくなっている。

Fig. 5.14 磁気粘性係数と $K_u V_{ac}/kT$ の関係.

これにより超微粒子媒体の揺らぎ場の推定には現状では waiting time 法がより適切であると思われる。

Fig. 5.14 に $H_{app} = -H_c$ の場合の規格化磁気粘性係数 S/M_r と $K_u V_{ac}(\text{WTM})/kT$ の関係を示す。これまで磁化の経時変化における減衰の大きさは $K_u V_{ac}/kT$ に依存すると考えられてきたが、Fig. 5.14 は、BF-1 を除き、 $K_u V_{ac}(\text{WTM})/kT$ はその依存関係を実験的に、より具体的に示している。なお、Fig. 5.14 には粒径 28.3 nm の超微粒子媒体の測定データを付加している。

5.5節 結言

超微粒子媒体の記録性能は $D_{20}=250 \text{ kFRPI}$ 以上であると考えられる。超微粒子媒体の非可逆磁化率および磁気粘性係数は残留保磁力よりも高い磁界で最大となる傾向がある。磁性粒子の微細化により磁化が熱的に不安定になること、強い正の粒子

間相互作用により、更に熱的に不安定になりやすいことがわかった。超微粒子媒体の活性化体積の推定において、揺らぎ場の推定方法として一般的であった非可逆磁化率と磁気粘性係数を用いる Street-Woolley 法と waiting time 法では推定結果が異なり、磁化の安定性の観点から waiting time 法の方が幾分簡便であり適切であると考えられる。また、磁化の安定性の指標である $K_u V_{ad} kT$ と磁気粘性係数の間に強い相関があることを実験的に明らかにした。ただし、BF-1 については、 $K_u V_{ad} kT$ と磁気粘性係数との間の関係が理論的に説明できていない。このことは、第7章で述べる印加磁界の立上り時間に依存する磁気余効の影響が大きく現れたため、waiting time 法で測定される $\Delta \ln(t)$ の値が正確でないことが原因であると考えられる。