



ランダウ理論から見た磁化状態の熱安定性と反転磁場

Thermal stability of magnetization states and reversal fields from the perspective of Landau theory

三俣千春^{a)†}・小嗣真人^{a)}・岡本聡^{b)}

^{a)} 東京理科大, 東京都葛飾区新宿 6-3-1 (〒125-8585)

^{b)} 東北大学, 宮城県仙台市青葉区片平 2-2-1 (〒980-8577)

C. Mitsumata,^{a)} M. Kotsug,^{a)} and S. Okamoto^{b)}

^{a)} Tokyo University of Science, 6-3-1, Nijjuku, Katsushika, Tokyo, 125-8585 Japan

^{b)} IMRAM, Tohoku University, 2-2-1, Katahira, Aoba, Sendai, Miyagi, 980-8577 Japan

A method for achieving both the thermal stability of magnetic signals and the reduction of the magnetization reversal field was investigated using the Landau theory. We give some examples of slope shapes in a free-energy landscape, and performs calculations for reversal fields. It is clarified that linear slopes without irregularities are suitable for the energy landscape to reduce the switching field. We also show that the method of suppressing the reduction in the energy barrier height and reducing the reversal magnetic field by bonding the soft phase/hard phase contributes to flattening the energy landscape. It is shown that the energy distribution of the domain wall motion studied in a previous simulation is consistent with the linear energy landscape in Landau theory.

Key words: free energy, entropy, energy landscape, magnetization reversal, magnetization process

1 はじめに

磁化状態を情報信号として利用する場合、その熱安定性と書き込み性能の間には磁気異方性エネルギー $K_u V$ を対象としてジレンマにあると考えられている ($K_u V$ は異方性定数と体積の積)。磁化反転に対する熱安定性は磁化の平衡状態を隔てるエネルギー障壁の高さに依存し、 $K_u V$ が大きいほど安定である。磁化情報の記録には保磁力を超える外部磁場を印加する必要があり、保磁力は K_u に比例すると考えられている。よって熱安定性確保のために K_u を大きくするか、記録用の磁化反転を容易にするために K_u を小さく抑制するかを選択を迫られる。このような背景の下、熱安定性を損なうことなく磁気記録媒体における記録性能の向上のために、交換結合するソフト相 / ハード相の接合技術が提案されている^{1,2)}。この方法は、永久磁石における欠陥相が保磁力に及ぼす影響を解析した模型³⁾と結果として同じ形になっており、ソフト層の存在を積極的に利用したものとなっている。さらに媒体材料構成の探索によって記録性能の確認や保磁力の温度依存性について検討された^{4,5)}。また効果のシミュレーションが行われ、ソフト相を利用してもわずかなエネルギー障壁の低減にとどめた上で、保磁力を抑制する効果が確認された⁶⁾。この記録磁場の低減は磁壁移動に対するピン止めサイトが同時性をもって大域的に作用することが理由とされた。

磁性材料の保磁力機構については、永久磁石を対象として様々な検討が行われてきた⁷⁾。また保磁力の温度依存性についても詳細な模型が示されている⁸⁾。しかし、これらはどれも保磁力性能の向上を中心とした議論であり、磁気記録を対象とした場合の磁化の熱安定性と保磁力の低減というジレンマでは議

論されていない。一方、保磁力の温度依存性については、ランダウ理論⁹⁾を用いることで解析的な数式表現が可能であることが示されている¹⁰⁾。ここではランダウ理論の視点から、磁気信号の熱安定性と提案された⁶⁾磁化反転磁場低減の原理を解釈する。

2 エネルギー障壁高さ

ランダウ理論では秩序変数の関数として自由エネルギーを記述し、エネルギー極小状態を実現する秩序変数が系の状態を決定する。磁性材料の場合、系の磁化が秩序変数となるので、磁化反転などの現象にランダウ理論を利用することが可能である。系の自由エネルギー $F = U - k_B T S$ について、内部エネルギー U とエントロピー S が以下の関数で与えられるとする。ここでは簡単のため、全磁気モーメント m の関数として二重極小ポテンシャルを表現する U と磁気状態の乱雑性を表現する尤度がガウス分布で近似されると仮定した。

$$U(m) = \frac{K_u V}{\sigma^4 m_s^4} m^4 - 2 \frac{K_u V}{\sigma^2 m_s^2} m^2 + K_u V, \quad (1)$$

$$S(m) = \eta \left(1 - \frac{m^2}{m_s^2} \right) \quad (2)$$

ここで、 $m_s, k_B, T, \sigma, \eta$ はそれぞれ飽和全磁気モーメント、ボルツマン定数、温度、磁気ヒステリシス曲線の角型比、磁化反転体積によって決定される比例定数 ($\eta > 0$) である。Eq.(1) から求められる磁気安定条件は $m_f = \sigma m_s$ である残留磁化状態であり、これを基準として温度 $T = 0$ の場合のエネルギー障壁高さは $K_u V$ である。

Eq.(1) と (2) のエネルギー地形の例を Fig.1 に示す。(a) は内部エネルギー U とエントロピー S で、この例では $\sigma = 0.9$ として図示した。この自由エネルギー地形において障壁高さが T

[†] Corresponding author: C. Mitsumata (e-mail: mitsumat@rs.tus.ac.jp)

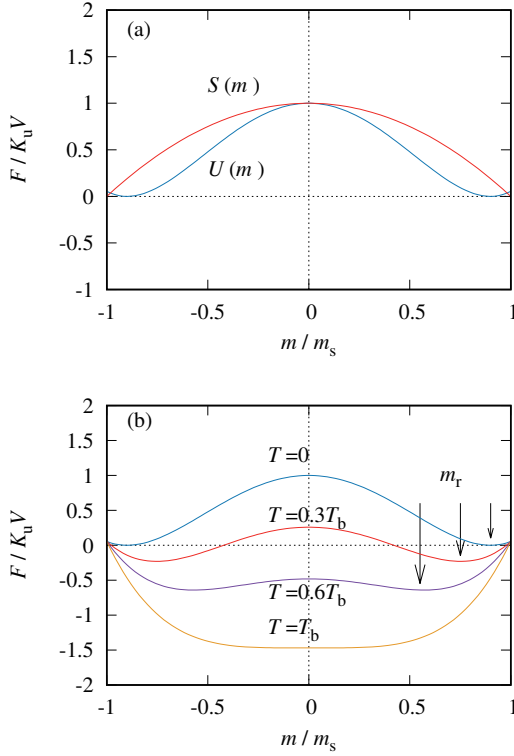


Fig. 1 Free energy landscape. (a) Double well shape of internal energy U and parabolic curve of entropy S . Entropy is normalized by $K_u V/\eta$. (b) Temperature dependence of free energy F . Temperature is defined as function of blocking temperature T_b . Arrows denote magnetization states of remanence m_r .

の上昇と共に低下する様子を (b) に示した。 T_b は超常磁性転移を示すブロッキング温度で、 $2/\eta\sigma^2 = k_B T_b/K_u V$ の条件で決定されている。この条件は関数 F が $|m/m_s| \leq 1$ の全ての状態に対して下に凸となっていることに対応する。したがって、エネルギー安定条件は $m = 0$ となる。矢印は $T < T_b$ のエネルギー安定状態で、それぞれの温度に対する残留磁化状態 m_r に対応している。 T の上昇と共に m_r が 0 に向かって減少する傾向を示すと同時に、エネルギー極小となる m_r からのエネルギー障壁高さが減少する様子が見られる。

3 反転磁場

3.1 反転磁場の計算方法

一方、磁化反転磁場 H_{sw} は $|\partial F/\partial m|$ の最大値によって決定される¹⁰⁾。 Eq.(1) と Eq.(2) の具体例を用いて計算すると、

$$H_{sw} = \left| -\frac{\partial F}{\partial m} \right|_{m=m_c} \text{ at } m_c = \pm \sigma m_s \sqrt{\frac{2K_u V - k_B T \eta \sigma^2}{6K_u V}} \quad (3)$$

のように求められる。これは Fig.2 を用いて以下のように理解される。ただし、簡単のため $T = 0$ として図を説明する。外部磁場 H がない場合、 U は $m = 0$ に対して対称である。外部磁場が印加されると Zeeman エネルギー $-mH$ が加わり、エネルギー地形が傾斜する。(ここでは $H < 0$ で磁化状態は $m > 0$ から $m < 0$ へと反転すると仮定する。) エネルギー安定条件は矢

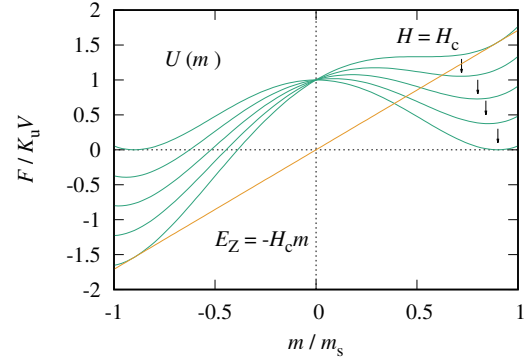


Fig. 2 Deformation of free energy landscape due to applied field. Arrows indicate minima of energy corresponding to magnetization stable state. Zeeman energy E_Z shows linear function, and plotted line is for case of coercivity.

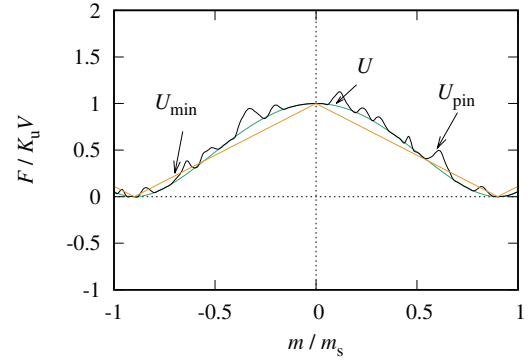


Fig. 3 Slope shape comparison of energy landscape. U is double-minimum shape of Eq.(1). U_{pin} is case where there is significant unevenness in U and pinning is likely to occur. U_{min} is linear slope and when reversal field is minimal.

印で示された磁化状態であり、印加磁場が増加するにしたがって $m = 0$ の方向に減少する。そして、 H_c に達すると $m > 0$ の領域から極小条件が消失し、磁化反転が起こる。この臨界量の定義はエネルギー地形の傾斜および極小条件で規定されるので、自由エネルギーの微分演算で反転磁場が求められることになる。エネルギー極小条件が消失するまで極小値を与える秩序変数を追跡すると、 Eq.(3) の m_c が臨界値となる。臨界点において、 $F = U - m_c H_c$ の地形は傾斜が 0 となる。この値は U の変曲点と一致し、エネルギー地形の傾斜が最大となる点を示している。

3.2 反転磁場の低減方法

前述したとおり Suess のモデル計算⁶⁾ では、ソフト相/ハード相の接合系における磁化反転過程においてはハード相がピン止めサイトとなり、磁壁移動を阻害する。ピン止め効果は、磁壁の局所的な作用であり、磁壁移動の時に磁壁全体が同時にピン止めサイトを通り抜けることで、反転磁場が減少すると説明されている(参考文献⁶⁾ の FIG.3 下段を参照)。これを Eq.(3) で計算されるエネルギー地形からランダウ理論を用いて解釈する。

いくつかの自由エネルギー地形の例を Fig.3 に示す。\$U\$ は Eq.(1) に規定されている関数である。ピン止め効果がある場合には、エネルギー地形に凹凸があると考えられるので、同じ障壁高さの \$U_{pin}\$ を考える。Suess の比較モデルでは単層一様の材料を仮定しているのだから比較的なめらかなエネルギー地形が得られ、保磁力の決定機構では磁気異方性が支配的である。しかし、材料中に複数の結晶粒界や粒界介在物が存在する、あるいは結晶粒内に転位などの結晶欠陥等がある場合は、これらがピン止めサイトとして働くと考えられる。材料中で大きさや位置が異なるピン止めサイトはエネルギー地形に不規則なエネルギー障壁を生成し、エネルギー地形は多谷構造となる。このような状態を模式的に示したのが Fig.3 の \$U_{pin}\$ で示すエネルギー地形である。多谷構造における局所安定点（谷底）から他の局所安定点に磁化変化が起こる場合、その間のエネルギー障壁高さが小さくても障壁の斜面傾斜は \$U\$ と比較して大きくなる。よって、多谷構造においては対応する有効場は増大する。このように局所的に極小状態が多数存在すると、磁化過程はそれぞれの部分で滞留し反転磁場が増大することは明らかである。これを Eq.(3) の表式で見ても、極小条件の周囲では \$|-\partial F/\partial m|\$ が大きくなって反転磁場 \$H_{sw}\$ が増大する。したがって、ピン止め効果によってエネルギー地形に凹凸が存在する場合 \$U_{pin}\$ よりも滑らかな \$U\$ の方が \$H_{sw}\$ を低減できる。

次に Fig.3 に示された \$U_{min}\$ について \$U\$ と比較する。\$U_{min}\$ は以下の関数で定義されている。

$$U_{min}(m) = K_u V \left| 1 - \frac{m}{\sigma m_s} \right| \quad (4)$$

このエネルギー地形の安定条件は \$m_r\$ であり、安定点からのエネルギー障壁高さは \$K_u V\$ と \$U\$ と同じになっている。上述の \$U_{pin}\$ と \$U\$ の比較では、\$U_{pin}\$ のエネルギー地形の斜面上にある凹凸が \$U\$ よりも大きかった。これと同様に \$U\$ は \$U_{min}\$ の直線状の斜面に対して凹凸の形状となっている。したがって、反転磁場 \$H_{sw}\$ は \$U_{min}\$ の方が小さくなるのが分かる。以上のことから、エネルギー地形の斜面が凹凸無く直線的となることが \$H_{sw}\$ を小さくする条件と分かった。具体的に \$T = 0\$ の条件において \$U\$ および \$U_{min}\$ の反転磁場を計算すると、

$$H_{sw}(U) = \frac{4H_k}{\sqrt{27}\sigma}, \quad H_{sw}(U_{min}) = \frac{H_k}{2\sigma} \quad (5)$$

のように、直線的なエネルギー地形の方が反転磁場を低減することが可能である。ただし、ここで異方性磁場は \$H_k = 2K_u V/m_s\$ である。この条件はエネルギー地形の傾斜を最少とする命題をも満足している。直線状のエネルギー地形は内部エネルギーが \$m\$ の 1 次関数となることで実現される。しかし、磁気異方性エネルギーや磁気相互作用は 2 次以上のべきであるため、目的の関数を得ることは容易ではない。完全な直線ではないが、磁気異方性に関して \$K_{u2}, K_{u3}, \dots\$ のような高次項が顕著となる場合や、磁気 4 重極子相互作用などの効果によって \$m\$ の高次のべきを導入し、近似的に直線状のエネルギー関数を生成することは可能と考えられる。

3.3 エントロピーの影響

前節でエネルギー障壁高さを保持して反転磁場を低減する原理を解説した。ここでは、Fig.1(b) に示した有限温度のエネ

ルギー地形について反転磁場との関係を整理する。\$T = 0\$ から温度が上昇して \$T = 0.3T_b\$ に達すると、安定状態である残留磁化 \$m_r\$ からエネルギー障壁の頂上 (\$m = 0\$) のエネルギー差 \$\Delta E\$ は、\$\Delta E \sim 0.49K_u V\$ に減少する。即ち、熱安定性が半分になったわけである。さらに温度が上昇して \$T = 0.6T_b\$ になると、\$\Delta E \sim 0.16K_u V\$ まで減少する。\$T \ge T_b\$ では、エネルギー極小条件が \$m = 0\$ の一状態に限定されて超常磁性状態となり磁化反転現象は存在しない。

一方、\$T < T_b\$ の範囲では、障壁高さが低減されたそれぞれのエネルギー地形の斜面傾斜が反転磁場となる。温度上昇の影響で斜面の傾斜が小さくなっていることは直ぐわかるが、それぞれの条件について具体的に \$H_{sw}\$ を計算してみる。\$T = 0\$ では \$H_{sw} = 4H_k/\sqrt{27}\sigma \sim 0.86H_k\$ である。\$T = 0.3T_b\$ では \$H_{sw} \sim 0.43H_k\$、\$T = 0.6T_b\$ では \$H_{sw} \sim 0.11H_k\$ となった。\$T = 0\$ に対するそれぞれの比をとると、\$T = 0.3T_b\$ で 0.50 および \$T = 0.6T_b\$ で 0.13 となった。

以上のエネルギー障壁高さと反転磁場の温度効果を比較する。\$T = 0\$ の条件を基準とすると、反転磁場 \$H_{sw}\$ は \$0.3T_b\$ では障壁高さの低減効果より大きな磁場が必要となったが、\$0.6T_b\$ では反対に障壁高さの低減量から期待される磁場よりも小さな磁場で磁化反転が可能であることがわかった。しかし、両者ともに違いは僅かであり、温度条件によって反転磁場低減効果に利得が生じるような条件は見つからなかった。ただし、この Fig.1 の結果は \$U\$ と \$S\$ がそれぞれ四次関数と二次関数で与えられると単純化した場合であり、実用材料における検討では磁化変化に対するエントロピーの関数形を詳細に検討する必要がある。

最後に斜面形状が直線的な場合の反転磁場の温度依存性について確認する。自由エネルギー地形には Eq.(4) の内部エネルギーと Eq.(2) のエントロピーを用いる。

$$F_{lin}(m) = U_{min}(m) - k_B T S(m) \quad (6)$$

これを微分すると、

$$\left| -\frac{\partial F_{lin}(m)}{\partial m} \right| = \frac{K_u V}{\sigma m_s} + 2k_B T \eta \frac{m}{m_s^2} \quad (7)$$

のように求められる。Eq.(6) は \$T < T_b\$ の条件下では、\$|m| \le m_r(T)\$ の範囲において \$m = 0\$ を頂点とする下に凸の関数である。ただし \$m_r(T)\$ は残留磁化の温度依存性を示す関数で温度が上昇すると \$m_r \to 0\$ に漸近する。厳密には Eq.(6) は \$m = 0\$ で微分不能であるが、エネルギー地形が下に凸の関数形を示していることから \$m \to 0\$ で斜面の傾斜が最大となる。従って、Eq.(7) の最大値は、\$m \to 0\$ の時に与えられて、

$$H_{sw} = \frac{K_u V}{\sigma m_s} \quad (8)$$

と求めることができる。結果としてエネルギー地形の傾斜を直線状に制御した場合には、磁化反転磁場の温度依存性が無くなることが分かった。

4 まとめ

磁気信号の熱安定性と磁化反転磁場の低減を両立する方法に関してランダウ理論を用いた考察を行った。自由エネルギー地

形の斜面形状について、いくつかの例を示して反転磁場の計算を行った。その結果、エネルギー地形の斜面は凹凸のない直線形状が適していることが明らかになった。そして、ソフト相／ハード相の接合によってエネルギー障壁高さの低減を抑制しつつ反転磁場を低減する技術は、エネルギー地形の平坦化に寄ることを示した。シミュレーションによって検討された磁壁移動のエネルギー分布は、ランダウ理論における直線状のエネルギー地形と矛盾しないことが示された。

謝辞 この研究の一部は JSPS の科研費基盤 A (21H04656) の援助によって実施された。

References

- 1) R. H. Victora, and X. Shen: *IEEE Trans. Magn.*, **41**, 517 (2005).
- 2) Y. Inaba, T. Shimatsu, O. Kitakami, H. Sato, T. Oikawa, H. Mu-

- raoka, H. Aoi, and Y. Nakamura: *IEEE Trans. Magn.*, **41**, 3136 (2005).
- 3) H. Kronmuller and H. R. Hilzinger: *J. Magn. Magn. Mat.*, **154**, 3 (1976).
- 4) T. Shimatsu, Y. Inaba, S. Watanabe, O. Kitakami, S. Okamoto, H. Aoi, H. Muraoka, and Y. Nakamura: *IEEE Trans. Magn.*, **43**, 2103 (2007)
- 5) T. Shimatsu, N. Asakura, Y. Inaba, K. Kudo, A. Sato, H. Muraoka, H. Aoi, S. Okamoto, and O. Kitakami: *J. Magn. Magn. Mat.*, **320**, 3088 (2008).
- 6) D. Suess: *Appl. Phys. Lett.*, **89**, 113105 (2006).
- 7) A. Sakuma: *J. Magn. Magn. Mat.*, **88**, 369 (1990).
- 8) Y. Toga, S. Miyashita, A. Sakuma, and T. Miyake: *npj Comput. Mater.*, **6**, 67 (2020)
- 9) L. D. Landau and E. M. Lifshitz: *Statistical Physics*, p.424 (Pergamon, Oxford, 1980)
- 10) C. Mitumata and M. Kotsugi: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **46**, 90 (2022)..

2023 年 10 月 15 日受理, 2023 年 12 月 5 日再受理, 2024 年 1 月 31 日採録