Al가 치환된 Z-type hexaferrite의 뫼스바우어 연구

임정태*, 김철성†
국민대학교 물리학과

1. 서론

hexaferrite 물질은 spin current model에 의하여 발생하는 magnetoelectric (ME) effect가 나타나며, 이로 인해 다중강체 물질로 많은 연구가 진행되고 있다. 최근 hexaferrite 물질 중에 Al 이온이 치환된 $BaSrCo_2Fe_{11}AlO_{22}$ Y-type hexaferrite는 상온 부근에서 ME effect가 관찰되었으며, 이는 Z-type hexaferrite 물질 중에서도 Al 이온이 치환되면 ME effect가 발생 할 가능성을 의미한다. 하지만, Sr 이온과 Al 이온이 치환된 Z-type hexaferrite는 좁은 상형성 온도구간에 의해 직접합성법을 이용하여 단일상 형성에 어려운 점이 있다. 따라서, 본 연구에서는 polymerizable complex method으로 통해 $Sr_{1.5}Ba_{1.5}Co_{2(}Fe_{1-x}Al_x)_{24}O_{41}$ (x = 0.00, 0.05) 시료를 제조 후 결정학적 및 자기적 특성에 대해 연구하였다.

2. 실험방법

Polymerizable complex method는 저온에서 유기-금속 복합체를 이용하여 1차적인 상을 형성하여 직접합성법보다 쉽게 Z-type ferrite의 단일상을 형성 할 수 있다. 따라서, 이를 통해 $Sr_{1.5}Ba_{1.5}Co_{2(}Fe_{1-x}Al_x)_{24}O_{41}$ (x = 0.00, 0.05) 시료를 제조하였다. 증류수에 출발물질인 $SrCO_3$, BaCO3, $Co(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$, $Fe(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$와 $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$를 당량비에 맞춘 후, 구연산을 첨가 하여 70 °C에서 1시간 동안 용해시킨다. 제조 된 metal-citrate 용액에 ethylene glycol를 첨가한 후, 이를 120 °C에서 건조하여, 유기-금속 복합체를 제조하였다. 제조 된 복합체를 320 °C에서 하소 하였으며, 이를 분쇄 후 1180 °C에서 1차 소결을 진행하였다. 최종적으로 상의 균일성과 2차 상을 제거하기 위해, 1230 °C에서 2차 소결 후 단일상의 $Sr_{1.5}Ba_{1.5}Co_{2(}Fe_{1-x}Al_x)_{24}O_{41}$ (x = 0.00, 0.05) 시료를 합성하였다. X-선 회절 실험 (XRD)룰 통해 시료의 결정학적 특성을 연구하였으며, 4.2 K부터 상온까지 다양한 온도 구간에서 진동시료 자화율 측정 (VSM) 실험와 뫼스바우어 분광 실험을 통해 자기적 특성을 연구하였다.

3. 실험결과 및 고찰

상온에서 XRD 실험을 실시하여, 이를 Rietveld 정련법을 통해 분석하였다. 그 결과, $Sr_{1.5}Ba_{1.5}Co_2(Fe_{1-x}Al_x)_{24}O_{41}$ (x = 0.00, 0.05) 시료는 $P6_3/mmc$ 공간군을 가지는 hexagonal 구조로 분석 되었으며, 시료의 격자상수는 x = 0.00 일 때 a_0 = 5.87 c_0 = 52.12 Å에서 x = 0.05일 때 a_0 = 5.84 c_0 = 52.04 Å으로 감소하였다. 이는 Fe 이온보다 작은 이온반경을 가지는 Al 이온에 의한 것으로, Vegard's 법칙을 만족함을 알 수 있다. 거시적인 자기적 특성을 확인하기 위해, 4.2 K부터 상온까지 다양한 온도 구간에서 VSM 실험을 실시하였다. 상온에서 20 kOe까지의 자기이력곡선을 측정한 결과, Al 이온의 치환량이 증가함에 따라 시료는 포화되지 않았으며, 이는 Al 이온에 의한 자기이방성의 변화에 의한 것으로 판단된다. 시료의 20 kOe의 자화값 (M_{20kOe})는 x = 0.00일 때 49.05 emu/g에서 x = 0.05일 때 39.87 emu/g으로 감소한 반면에 보자력 (H_c)는 x = 0.00일 때 38.70 Oe에서 x = 0.05일 때 60.27 Oe으로 증가하였다. 이는 비자성 Al 이온이 up-spin 방향의 octahedral site로 치환과 자기이방성의 감소로 의한 것으로 판단된다. 4.2부터 상온까지 Mössbauer 분광 실험을 통해 시료 내의 미세 상호작용 대해 연구하였다. 뫼스바우어 분석 결과, 비자성 Al 이온이 up-spin 방향의 octahedral site로 치환되었으며, 이성질체 이동치를 통해 모든 온도구간에서 철이온는 Fe^{3+}임을 확인하였다.

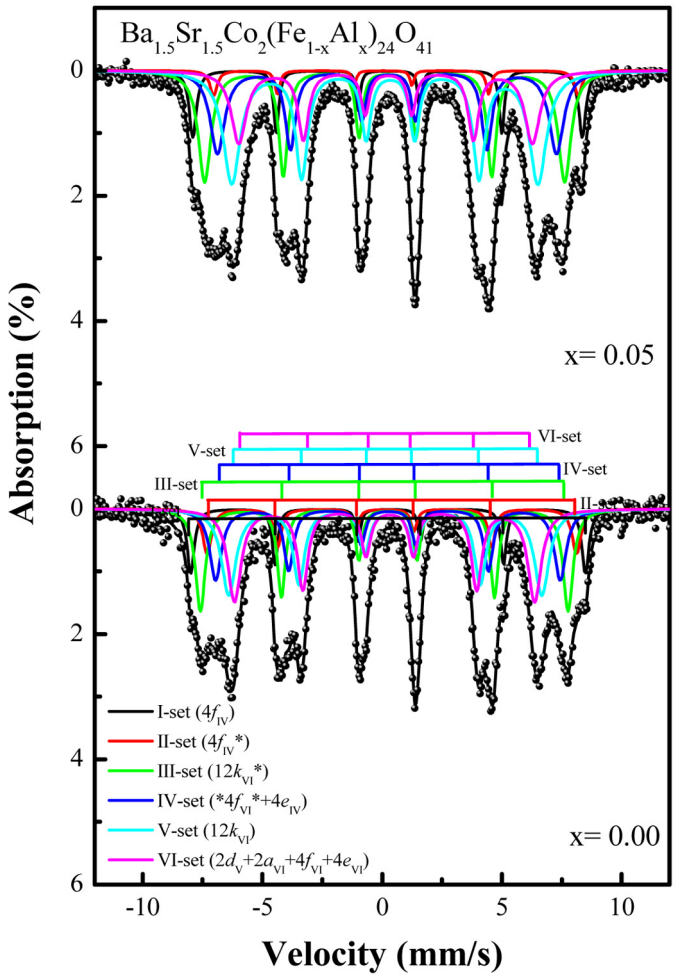

Fig. 1. Mössbauer spectra of $Sr_{1.5}Ba_{1.5}Co_2(Fe1\text{-}_xAlx)_{24}O_{41}$ (x = 0.00, 0.05) at 295 K.

참고문헌

[1] T. Nakajima, Y. Tokunaga, M. Matsuda, S. Dissanayake, J. Fernandez-Baca, K. Kakurai, Y. Taguchi, Y. Tokura, and T.-h. Arima, Phys. Rev. B 94, 195154 (2016).