

Mössbauer 분광법에 의한 $\text{CoCr}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$ 의 연구

채광표 · 이혁진 · 이재광 · 이성호

전국대학교 자연과학대학, 응용물리학과, 충주 380-701

이영배

동해대학교 이공대학, 물리학과, 동해 240-150

(1999년 12월 29일 받음, 2000년 3월 8일 최종수정본 받음)

Sol-gel 방법을 이용하여 $\text{CoCr}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$ 페라이트를 제조하여 Cr의 치환량에 따른 결정학적 특성과 자기적 특성을 x-ray, SEM, Mössbauer 분광기와 VSM 등으로 분석하였다. 시료는 cubic spinel 구조를 가지며, Cr의 치환량이 증가함에 따라 격자상수는 약간씩 감소하였으며, 입자 크기도 Cr의 치환량이 증가함에 따라 감소하였다. 상온에서의 Mössbauer 스펙트럼은 Fe^{3+} 이온에 의한 두 개의 육중선 세트($0.0 \leq x \leq 0.6$)에서 상자성의 이중선($0.8 \leq x \leq 1.0$)으로 변해갔다. Cr의 치환량의 증가에 따라 초미세자기장 값은 감소하였으나 이성질체이동 값과 사중극자분열 값은 거의 일정하였다. 온도 변화에 따른 Mössbauer 스펙트럼 분석 결과 $0.8 \leq x \leq 1.0$ 시료에서 나타난 이중선은 열에 의한 전자적 완화 현상으로 생각되었다. $\text{CoCr}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$ 시료에서 $x=0.0$ 의 보자력은 2024 Oe이고, 포화 자화는 78.1 emu/g의 값을 나타냈으며, $x=1.0$ 에서는 보자력이 7.858 Oe, 포화 자화는 12.07 emu/g의 값으로 감소하였다. 특이한 점은 $x=0.1$ 에서 보자력이 1095 Oe로 $x=0.0$ 값에 비해 약 절반 정도의 값으로 감소한 것으로 Cr의 미량 치환에 의해 자기적 특성이 급격히 변함을 알았다.

I. 서 론

정보 산업의 발달과 산업에서의 컴퓨터 활용 증가에 따라 고밀도 정보저장의 필요성이 증가하여 왔다. 고밀도 정보저장 물질에서 공통적으로 요구되는 입자 크기는 10 nm 정도이고, 자기적 특성으로는 2500~4500 Oe의 보자력(coercivity)과 70~80 emu/g 정도의 포화자화를 가지고 있어야 한다. 또한 화학적인 안정성과 충분한 내구성을 가지고 있어야 한다. 이와 같은 조건을 만족시키는 산화물중의 하나로 CoFe_2O_4 가 있으며, 이 코발트 페라이트는 준강자성 물질로서 높은 보자력(6500 Oe)과 적당한 크기의 포화자화(80 emu/g)를 나타낸다[1,2].

최근에는 원하는 특성에 맞고 저온에서 합성할 수 있으며, 양질의 정보 저장 능력을 가지는 다양한 원소로 치환하려는 연구가 활발히 진행되고 있다[3-6]. 본 연구 내용도 이러한 연구 추세에 따른 것으로서 CoFe_2O_4 페라이트에서 Fe 이온을 Cr 이온으로 다양하게 치환하였다. Cr^{3+} 의 이온 반경(0.063 nm)과 Fe^{3+} 의 이온 반경(0.064 nm)은 유사한 크기를 가지므로 쉽게 치환될 수 있으며, Cr이 B-site 선호도를 가지므로 치환에 따른 자기적 특성 분석이 용이하다. 그러나, 아직까지 이러한 Cr의 치환에 따른 구조 및 자기적 특성 변화에 관한 상세한 연구가 부족한 상태이다.

본 연구에서는 sol-gel 법을 이용하여 600 °C의 온도에서 12시간 열처리하여 $\text{CoCr}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$ ($0.0 \leq x \leq 1.0$) 합성하였으며, XRD, SEM, Mössbauer 분광기와 VSM을 사용하여 Cr의 치환량에 따른 결정구조 및 자기적 특성을 연구하였다. 특히 이번에 치환하려는 Fe와 Cr의 이온 반경 크기가 비슷하여 결정구조의 변화가 없으며, sol-gel법을 이용한 제조로 낮은 온도에서 반응이 용이하며 입자 크기를 보다 작게 만들 수 있어서 Co 페라이트 실용화에 보다 응용성이 높다고 생각된다.

II. 실험

분말 합성을 위해 사용한 시약은 $\text{Co}(\text{CH}_3\text{CO}_2)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$, $\text{Cr}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ 와 $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ 이다. 우선 2-Methoxyethanol를 용매로 사용하여 적정 당량비로 ultra cleaner에 30분간 희석시킨 후에 hot plate에서 70~80 °C의 온도로 약 12시간의 반응 과정을 거친 후, 어느 정도 희석된 용액을 건조기에 넣어서 90~110 °C의 온도로 3시간 동안 2-Methoxyethanol를 제거하였다.

이러한 sol-gel 방법으로 만들어 건조시킨 분말을 유발을 사용하여 분쇄시킨 후, 전기로에서 약 600 °C의 온도로 12시간 열처리하였다. 분말을 우선 XRD를 사용하여 입자의 결정구조를 확인하였고, SEM, Mössbauer 분광기,

VSM를 이용하여 치환량에 따른 Co-ferrite 분말의 자기적 성질을 측정하였다.

X-ray 회절 실험은 Cu-K α 선($\lambda = 1.5418 \text{ \AA}$)을 사용하여 20 mA, 30 KV에서 Ni filter를 써서 분말법으로 측정하였다. 측정되어 나오는 Bragg각과 면 간격의 값을 JCPDS(The Joint Committee on Powder Diffraction Standards) 카드와 대조하여 Miller지수를 정하였다. 또한 보다 정확한 격자상수를 알아내기 위하여 Nelson-Riley 함수를 쓰고 컴퓨터를 사용하여 최소 자승법으로 결정하였다. SEM 장치인 JEOL JSM 6400을 이용하여 거시적인 분말의 모양을 측정하였다. 초미세 상호작용, 원소의 결합 상태, 이온 분포 등을 밝히기 위하여 Mössbauer 스펙트럼을 측정하였다. 측정된 Mössbauer data는 Lorentzian 함수를 써서 최소 자승법으로 컴퓨터로 fitting 하였다. VSM 장치인 Lake shore 7300을 이용하여 Fe자리에 Cr을 치환함으로써 생기게 되는 보자력과 포화자화 값의 변화를 측정하기 위하여 외부에서 15 kOe 정도의 자기장을 걸어 상온에서 Cr의 치환량을 증가에 따른 자기이력곡선을 측정하였다.

III. 결과 및 논의

$\text{CoCr}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$ 에서 x 값이 $0.0 \leq x \leq 1.0$ 인 시료의 x-선 회절상은 그림 1에서 보듯이 결정이 잘 형성되었다. 회절선의 위치와 모양이 조성의 차이에도 불구하고 매우 유사하게 나타났으며, 분석 결과 단일상의 cubic spinel 구조를 가지고 있음을 알 수 있었다. 격자 상수를 정하기 위하여 Bragg식, cubic 구조와 Miller 지수와의 관계식과 Nelson-Riley 함수를 사용하였다. 격자상수 a 값은 그림 2에서 보듯이 Cr의 치환량에 따라 8.372 \AA ($x=0.0$)에서 8.350 \AA ($x=1.0$)으로 선형적으로 약간 감소하였다. 이는 Cr^{3+} 의 이온 반경(0.063 nm)이 Fe^{3+} 의 이온 반경(0.064 nm) 보다 약간 작기 때문이라고 생각된다.

치환에 따른 평균입자의 크기를 구하기 위해 x-선의 회절도로부터 Sherrer 공식

$$t = \frac{0.9\lambda}{B\cos\theta_B}$$

을 이용하였으며 t 는 결정의 크기, λ 는 x-선의 파장, B 는 주 peak(311)의 반폭치, θ_B 는 주 peak(311)의 각도를 나타낸다.

분석결과 입자의 크기는 그림 3에서와 같이 Cr의 치환

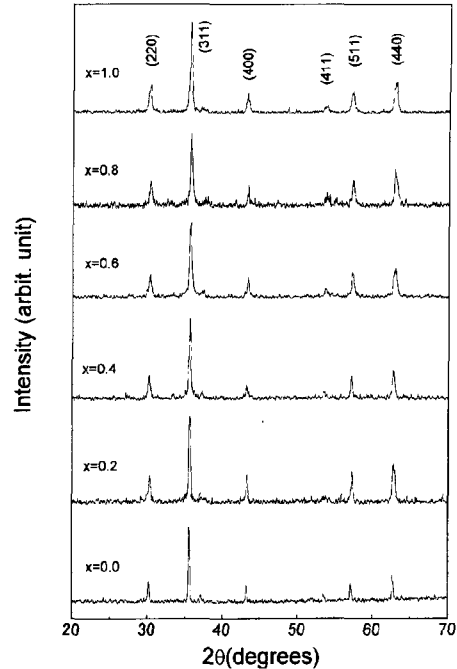


Fig. 1. X-ray diffraction patterns of $\text{CoCr}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$ at room temperature.

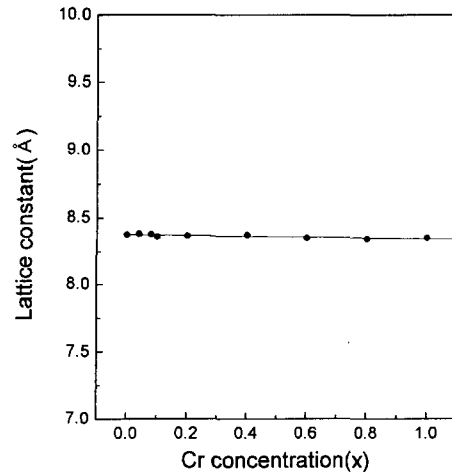


Fig. 2. Variation of the lattice parameter of $\text{CoCr}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$ at room temperature.

량이 많을수록 작아짐을 알 수 있으며, $x=0.0$ 에서는 입자 크기가 104 nm 이고 $x=1.0$ 에서는 22.1 nm 로 감소했는데 특히 $x=0.0$ 과 $x=0.1$ 사이에서 가장 급격하게 감소했다.

거시적인 결정 모양을 보기 위하여 SEM을 측정하였다. 그림 4에서 보듯이 Cr 치환량이 증가함에 따라 상대적으로 크기가 작은 입자가 많이 나타나서 x-선 실험 결과와

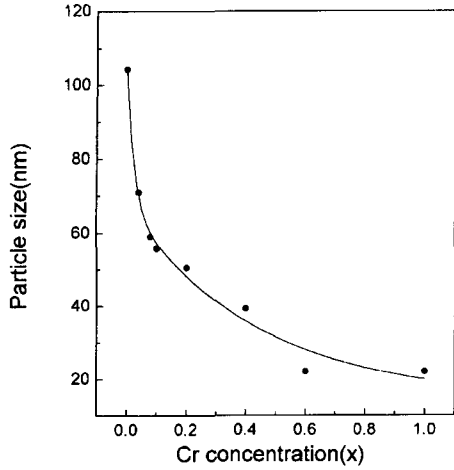


Fig. 3. Variation of the particle size with Cr concentration in $\text{CoCr}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$.

일치함을 확인할 수 있었는데 이로부터 Cr이 준강자성인 Co-페라이트에 들어가면서 결정성장을 억제함을 알 수 있었다. 또한 시료안에 존재하던 수분이 증발하면서 생긴 구멍들이 곳곳에서 보이는데 이는 sol-gel방법으로 제조한 시료에서 보이는 특징이다.

상온에서 $\text{CoCr}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$ 의 Mössbauer spectrum을 측정 한 결과 그림 5에서 보듯이 Cr의 치환량의 증가에 따라

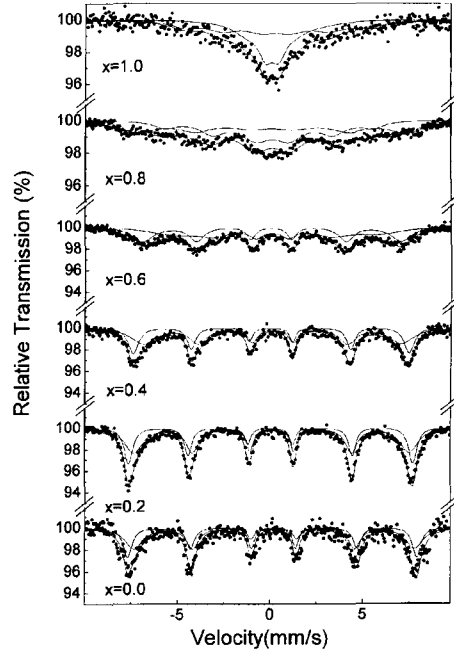


Fig. 5. Mössbauer spectra of $\text{CoCr}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$ at room temperature.

Zeeman 효과에 의한 육중선 모양에서 점차적으로 이중선 모양으로 변함을 알 수 있었다.

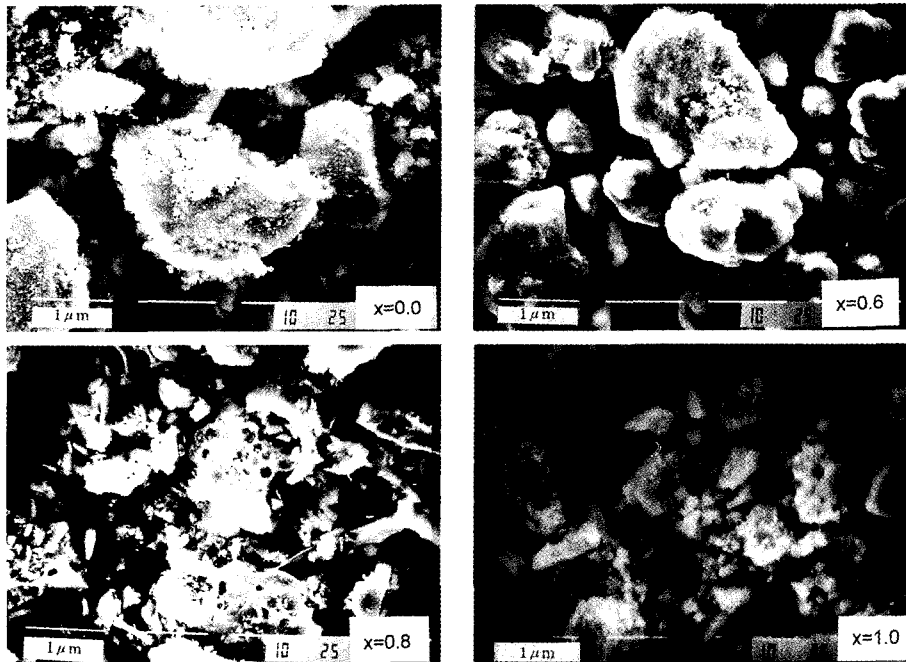


Fig. 4. Scanning electron micrographs of $\text{CoCr}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$.

Table 1. Mössbauer parameters of $\text{CoCr}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$ at room temperature.

x	Hhf(kOe)		IS(mm/s)		QS(mm/s)	
	A	B	A	B	A	B
0.0	514.0	471.9	0.153	0.242	-0.033	-0.170
0.2	482.6	467.7	0.160	0.225	0.022	-0.032
0.4	468.5	437.9	0.166	0.245	0.008	-0.028
0.6	436.1	318.1	0.200	0.273	0.0275	0.105
0.8	414.2	299.8	0.232	0.344	0.168	0.034
1.0	315.4	103.3	0.321	0.313	0.236	-0.051

표 1은 컴퓨터 fitting한 값으로써 이성질체 이동(IS), 전기 사중극자 분열(QS) 및 초미세 자기장(H_{hf})을 나타낸 것이다. 표에서 보듯이 IS값이 0.153 mm/s~0.344 mm/s 범위로 A, B-site 모두 Fe^{3+} 상태로 존재함을 알 수 있다. 또한 IS 값은 Cr의 치환량 증가에 따라 큰 차이는 보이지 않았으나 B-site의 IS 값이 상대적으로 A-site의 IS 값보다 약간 큰 것은 보통의 spinel 페라이트에서와 마찬가지로 B-site의 공유 결합성이 더 크다는 것을 뜻한다. QS값은 Cr의 치환량에 큰 영향을 받지 않고 A, B-site 모두 0에 가까운 값으로 Cr의 치환이 구대칭적 전자 분포에 영향을 거의 주지 않음을 알 수 있었다.

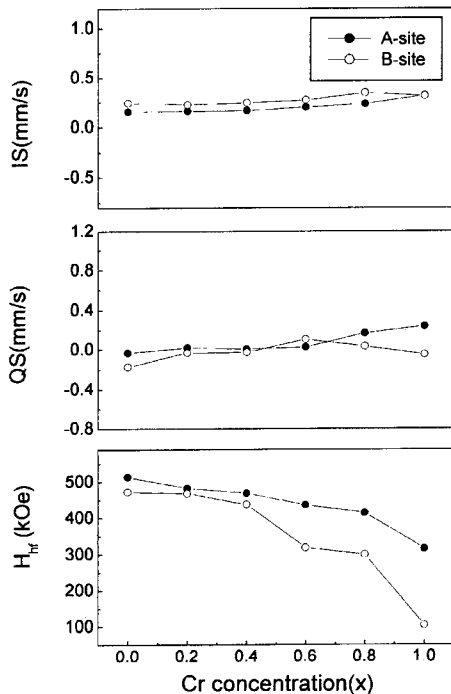


Fig. 6. Variation of the Mössbauer parameters, isomer shift (IS), quadrupole splitting (QS), and magnetic hyperfine fields (H_{hf}).

Cr의 치환량의 증가에 따라 전반적으로 Mössbauer 스펙트럼의 흡수율이 감소하였고, 그림 6에서 보듯이 초미세 자기장 값도 점차로 감소하였다. 이는 Fe^{3+} 이온($5\mu_B$) 대신 치환하여 들어가는 반자성 이온인 Cr^{3+} ($3\mu_B$)의 치환량이 증가함에 따라 A-site와 B-site 사이의 $\text{Fe}_A\text{-O-Fe}_B$ superexchange 상호작용이 약해짐을 의미한다. 그러나 IS와 QS 값은 그림 6에서 보듯이 거의 변하지 않는 것으로 보아 결합 상태의 변화는 없음을 알 수 있다. 이러한 결과는 기존의 세라믹 방법으로 제조된 $\text{CoCr}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$ 의 경우와 유사한 결과이다[7]. 또한 A, B-site의 면적비는 Cr이 B-site를 선호하는 특성이 있기[8] 때문에 상대적으로 A-site의 흡수 면적이 B-site 흡수 면적 보다 점차적으로 커졌다.

Mössbauer 스펙트럼에서 site별 면적비를 이용하면 이온 분포를 추정할 수 있다. 이 때 Cr 이온은 B site를 선호함을 고려하고, Fe^{3+} 를 Mössbauer 스펙트럼의 면적비에 따라 배분하면 이온 분포식을 쓸 수 있다. 50 K에서 측정된 Mössbauer 스펙트럼의 면적비를 기초로 A-site와 B-site간의 이온 분포 상태는 표 2에서와 같이 나타났다. 표에서 보듯이 A-site에서의 Fe^{3+} 양은 치환량에 따라 거의 일정하게 유지됨을 알 수 있었다. 그러나 B-site에서의 Fe^{3+} 양은 Cr^{3+} 이 B-site를 선호하므로 Cr^{3+} 의 치환량에 따라 감소하였다.

상온에서 이중선을 보이는 $x = 1.0$ 시료의 저온에서의 자기적 성질의 변화를 밝히기 위하여, 상온에서부터 50 K까지 Mössbauer 스펙트럼 측정하였다. 그림 7에서 보는 바와 같이 온도가 내려감에 따라 각 시료가 Zeeman 효과에 의한 육중선이 선명해졌다.

일반적으로 Mössbauer 스펙트럼에서 보이는 이중선의 근원은 초상자성 완화 효과(superparamagnetic relaxation effect)[9], A와 B-site에 있는 비자성 최인접 원자 때문에 장거리 자기 질서에 참여하지 못하는 Fe^{3+} 이온의 존재[10], 전자의 스핀-스핀 완화나 스핀-격자완화[11] 등이다.

본 실험에서 사용한 방법인 sol-gel법은 기존의 세라믹 방법보다 입자 크기가 작은 분말과 박막을 만들 수 있음이 알려져 있다[12,13]. 또 Cr의 치환량에 무관하게 x-선

Table 2. Cation distribution of $\text{CoCr}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$ ($0.0 \leq x \leq 0.6$)

x	Cation Distribution
0.0	$(\text{Co}_{0.88}^{2+} \text{Fe}_{0.12}^{3+})[\text{Co}_{0.12}^{2+} \text{Fe}_{1.88}^{3+}]\text{O}_4$
0.2	$(\text{Co}_{0.33}^{2+} \text{Fe}_{0.67}^{3+})[\text{Co}_{0.67}^{2+} \text{Fe}_{1.33}^{3+} \text{Cr}_{0.2}^{3+}]\text{O}_4$
0.4	$(\text{Co}_{0.36}^{2+} \text{Fe}_{0.64}^{3+})[\text{Co}_{0.64}^{2+} \text{Fe}_{0.96}^{3+} \text{Cr}_{0.4}^{3+}]\text{O}_4$
0.6	$(\text{Co}_{0.12}^{2+} \text{Fe}_{0.88}^{3+})[\text{Co}_{0.88}^{2+} \text{Fe}_{0.52}^{3+} \text{Cr}_{0.6}^{3+}]\text{O}_4$

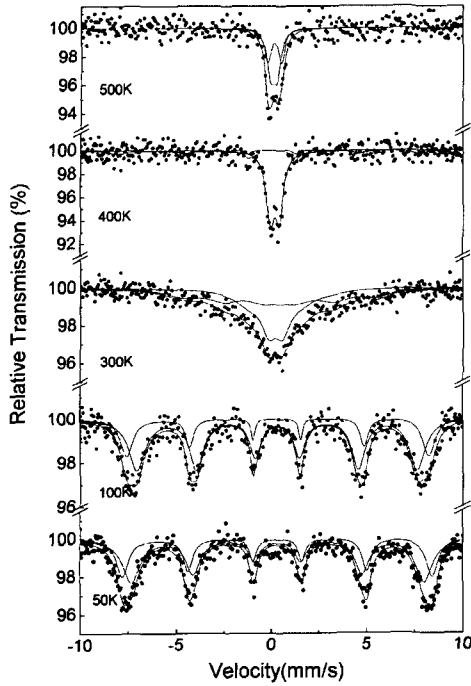


Fig. 7. Mössbauer spectra of $\text{CoCr}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$ ($x=1.0$) at high and low temperature.

실험 결과 단일상이 나타났고, 선행 연구 결과와 비교하여 볼 때 본 시료의 입자 크기가 작고, 온도 변화에 따른

Mössbauer 스펙트럼의 변화도 선행 연구와 유사하여 [6,14]. $x = 0.8$ 과 1.0 시료에서 나타난 이중선의 근원은 초상자성 완화 효과(superparamagnetic relaxation effect)에 의한 것이라고 추정하였다. 그러나 초상자성 완화 효과는 입자 크기가 수 nm 정도로 작고, Neel 온도 보다 훨씬 낮은 온도에서부터 나타나는데 그림 7에서 보듯이 고온 실험 결과 $x = 1.0$ 시료의 Neel 온도가 495 K로 선행 연구의 결과와 거의 일치했다[7]. 따라서 이중선의 근원을 초상자성 완화 효과라고 보기 어렵다. 또한 XRD와 Mössbauer 스펙트럼 분석에서 다른 상을 전혀 발견할 수 없었으므로 두 번째 가능성도 배제된다. 그러므로 본 시료에서 나타나는 이중선의 근원은 열 효과에 의한 전자적 완화 현상이라고 생각된다. $x = 1.0$ 시료의 경우, 상온에서는 육중선이 분명하지 않고 이중선이 두드러지게 나타났다. 온도를 내리면 육중선이 점점 분명해져 100 K에서는 이중선이 없어지고 두 개의 육중선 세트만 남았다. $x = 0.8$ 시료의 경우, 상온에서는 육중선과 이중선이 서로 중첩된 모양이다. 그러나 온도를 내리면 점점 육중선이 분명해지고 200 K에서 이중선이 없어져 두 개의 육중선 세트만 남았다. 이 온도는 $x = 1.0$ 시료의 경우 보다 높다. 즉, Cr의 치환량이 많을수록 A-site와 B-site 사이의 $\text{Fe}_A\text{-O-Fe}_B$ superexchange 상호작용이 약해짐을 알 수 있다.

$\text{CoCr}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$ 의 거시적인 자기적 특성을 VSM을 이용하

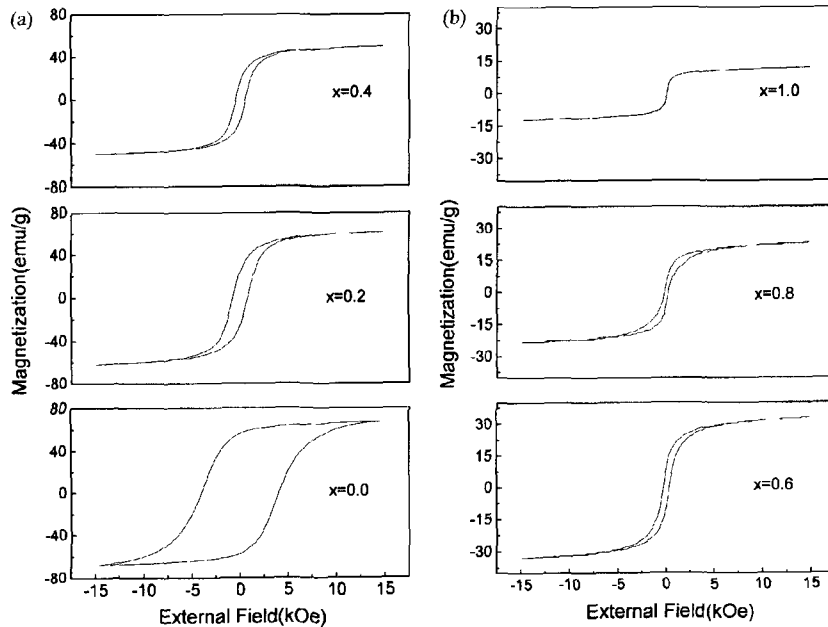


Fig. 8. The magnetic hysteresis loops of $\text{CoCr}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$ under the field of 15 kOe.

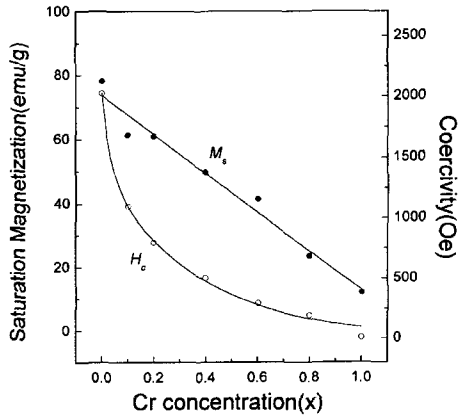


Fig. 9. Variation of the saturation magnetization and coercivity with x in $\text{CoCr}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$.

여 측정하였다. 그림 8은 대표적인 조성비에서의 자기이력 곡선이다. 특히 $x = 1.0$ 시료에서는 상자성의 모양임을 보인다. 보자력(coercivity)과 포화자화(saturation magnetization)는 그림 9에서 보는 바와 같이 Cr의 치환량 증가에 따라 점차 감소하였다. 이는 선행 연구에서 전통적인 세라믹 제조 방법으로 시료를 만든 경우와 동일한 결과이며[7], 우리의 Mössbauer 스펙트럼 분석 결과에서 나타난 Cr이 들어가면서 점차적으로 자기적 상호작용의 세기가 감소한 것과 일치한다. 특이한 사항은 $0.0 \leq x \leq 0.1$ 사이에서 보자력과 포화자화 값이 가장 급격하게 감소하게 된다. 즉 $x = 0.0$ 인 경우 보자력은 78.1 emu/g , 포화자화는 2024 Oe 정도의 값을 가지나 $x = 0.1$ 인 경우의 보자력은 61.4 emu/g , 포화자화는 1095 Oe 정도로 특히 포화자화 값은 거의 절반으로 줄어든다.

IV. 결 론

Sol-gel 방법으로 $\text{CoCr}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4 (0.0 \leq x \leq 1.0)$ 의 시료를 제조하였다. 결정구조는 spinel임을 알 수 있었으며 격자 상수값은 Cr의 치환량이 증가함에 따라 선형적으로 감소하였다. 입자 크기도 Cr의 치환량이 증가함에 따라 작아짐을 알 수 있었다.

Mössbauer 스펙트럼은 상온에서 Cr의 치환량 증가에 따라 Fe^{3+} 에 의한 두 개의 육중선 세트 모양 ($0.0 \leq x \leq 0.6$)에서 이중선 모양 ($0.8 \leq x \leq 1.0$)으로 변화하였으며, Cr의 치환량의 증가에 따라 초미세자기장 값은 감소하였으나

IS, QS값은 거의 일정하였다. 온도 변화에 따른 Mössbauer 스펙트럼 분석 결과 $0.8 \leq x \leq 1.0$ 시료에서 나타나는 이중선은 열에 의한 전자적 완화 현상으로 생각된다.

$\text{CoCr}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$ 시료에서 $x = 0.0$ 의 보자력은 2024 Oe 이고, 포화 자화는 78.1 emu/g 의 값을 나타냈으며, $x = 1.0$ 에서는 보자력이 7.858 Oe , 포화 자화는 12.07 emu/g 의 값으로 감소하였다. 특이한 점은 $x = 0.1$ 에서 보자력이 1095 Oe 로 $x = 0.0$ 값에 비해 약 절반 정도의 값으로 감소한 것으로 Cr의 미량 치환에 의해 자기적 특성이 급격히 변함을 알았다.

감사의 글

이 연구는 1998년 학술진흥재단(1998-015-D00111)의 지원에 의한 것이며 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

- [1] T. Kodama, Y. Kitayama, M. Tsuji and T. Tamaura, J. Magn. Soc. Jpn., **20**, 305(1996).
- [2] A. D. D. Broemme, IEEE Trans. Elec. Insulation **26**, 49(1991).
- [3] S. S. Shinede and K. M. Jadhav, Mater. Lett., **37**, 63(1998).
- [4] C. Yan, F. Cheng, J. Peng, Z. Xu and C. Liao, J. Appl. Phys., **84**, 5703(1998).
- [5] P. Tailhades, C. Villette, A. Rousset, G. U. Kulkarni, K. R. Kannan, and C. N. R. Rao and M. Lenglet, J. Solid State Chem., **141**, 56(1998).
- [6] S. J. Shukla, K. M. Jadhav and G. K. Bichile, J. Magn. Magn. Mater., **195**, 692(1999).
- [7] P. N. Vasambekar, C. B. Kolenkar, A. S. Vaingankar, J. Magn. Magn. Mater., **186**, 333(1998).
- [8] R. V. Upadhyay and J. Pure, Appl. Phys., **31**, 333(1993).
- [9] J. M. Daniels, A. Rogenvaig, Can. J. Phys., **48**, 381(1970).
- [10] K. Muraleedhanra, J. K. Srivastava, V. R. Marathe, R. Vijayraghvan, J. Magn. Mater., **50**, 333(1985).
- [11] N. N. Greenwood and T. G. Gibb, Mossbauer spectroscopy, Chapman Hall Ltd. London, 1971, p.72
- [12] J. G. Lee, J. Y. Park and C. S. Kim, J. Mater. Sci., **53**, 3965(1998)
- [13] F. Cheng, Z. Peng, Z. Xu, C. Liao and C. Yan, Thin solid Films, **339**, 109(1999)
- [14] Q. Chen, A. J. Rondinone, B. C. Chakoumakos, Z. J. Zhang, J. Magn. Magn. Mater., **194**, 1(1999)

Mössbauer study of $\text{CoCr}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$

Kwang Pyo Chae, Hyuck Jin Lee, Jae Gwang Lee and Sung Ho Lee

Dept. of Applied physics, Konkuk University, Chungbuk 380-701, Korea

Young Bae Lee

Dept. of physics, Tonghae University, tonghae 240-150, Korea

(Received 29 December 1999, in final form 8 March 2000)

The $\text{CoCr}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$ ($0.0 \leq x \leq 1.0$) ferrites have been fabricated by sol-gel method. The crystallographic and magnetic properties of the samples were investigated by means of x-ray diffraction, scanning electron microscopy, Mössbauer spectroscopy and vibrating sample magnetometry. The structure of all the samples is cubic spinel type and the lattice constant decrease with increasing Cr content. The substituted Cr ions were located only in the B-site. The particle size also decreases with increasing Cr content. The Mössbauer spectra consist of two sextets due to Fe^{3+} ions at A- and B sites for $0.0 \leq x \leq 0.6$, while, a paramagnetic doublet appears for $0.8 \leq x \leq 1.0$. The magnetic hyperfine field decreases with increasing Cr content. The relaxation spectra was shown at $0.8 \leq x \leq 1.0$ in $\text{CoCr}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$. The coercivity decreases drastically, while, the saturation magnetization decreases linearly with increasing x .