

Magnetic Field Dependence of the Activation Volume for Sr-ferrite Particles

Hyeon Soo Kim and Soon Young Jeong*

Department of Physics and Research Institute of Natural Science, Gyeongsang National University, Jinju 52828, Korea

Kyung Min Kim and Hae-Woong Kwon*

Pukyong National University, Busan 48547, Korea

(Received 30 November 2016, Received in final form 19 December 2016, Accepted 19 December 2016)

In this study the mechanisms of magnetization reversal and magnetic interaction effects on activation volumes for Sr-ferrite with different particle sizes are investigated. The activation volumes of C2 sample are larger than those of C3 sample in the range of low magnetic fields. But the fields above the coercivity of sample C2, the activation volumes of both samples are decreased linearly with increasing the applied magnetic field. These phenomena can be explained by the strengths of two critical fields representing the reverse domain nucleation field and the domain wall pinning field as well as the strength of dipolar interaction.

Keywords : Sr-ferrite, activation volume, nucleation field, pinning field, dipolar interaction

Sr-페라이트 자성 입자의 활성화 부피의 자기장 의존성

김현수 · 정순영*

경상대학교 자연과학대학 물리학과 및 기초과학 연구소, 경남 진주시 진주대로 501, 52828

김경민 · 권해웅*

부경대학교 재료공학과, 부산시 남구 신선로 365, 48547

(2016년 11월 30일 받음, 2016년 12월 19일 최종수정본 받음, 2016년 12월 19일 게재확정)

크기가 서로 다른 Sr-페라이트 분말에 대한 활성화 부피의 자기장 의존성을 조사하였다. 그 결과, 입자의 크기가 큰 시료 C2는 낮은 자기장 영역에서는 활성화 부피가 컸으나 자기장이 증가할수록 감소하였으며, 크기가 작은 시료 C3의 경우는 보자력과 거의 같은 고착 자기장에서 최대를 보이다가 감소하는 경향을 보였다. 이와 같은 현상은 자화 역전 현상을 설명하는 지구생성 및 자벽고착 자기장의 상대적 위치 그리고 쌍극자 상호작용의 세기에 밀접하게 관련되는 것으로 판단된다.

주제어 : Sr-페라이트, 활성화 부피, 지구생성 자기장, 자벽고착 자기장, 쌍극자 상호작용

I. 서 론

육방정계 페라이트 $MFe_{12}O_{19}$ ($M = Ba, Sr, Pb$)은 magnetoplumbite형(M-type) 경자성 재료로 우수한 자기적 성질, 화학적 열적 안정성 그리고 저렴한 생산단가 때문에 영구자석뿐만 아니라 자기기록 매체, 전자통신, 광자기와 마이크로파 등

각종 응용 소자로 많이 활용되고 있다[1-3].

고밀도 자기 기록매체로 이용될 경우 활성화 부피는 기록 밀도와 열적 안정성을 평가하는데 매우 중요한 물리량으로 인식되어 이에 대한 연구가 많이 이루어지고 있다. 높은 기록 밀도와 우수한 신호 대 잡음비를 실현하기 위한 조건으로는 가능한 난알(grain)의 물리적 크기는 물론 난알 사이의 상호작용이 작아야 한다. 자기 기록매체에서는 정보 크기인 1bit의 크기를 물리적인 난알의 크기가 아닌 활성화 부피로 취급하며, 이 활성화 부피가 작을수록 기록밀도가 향상되지만 열적 안정성이 떨어지는 단점이 있다. 자기 기록매체에서 잡음은 보자력 근처에서의 활성화 부피 크기와 깊이 관련되고 저

© The Korean Magnetics Society. All rights reserved.

*Co-corresponding author: Tel: +82-55-772-1404,

Fax: +82-55-772-1400, e-mail: syjeong@gnu.ac.kr

Tel: +82-51-629-6362,

Fax: +82-51-629-6353, e-mail: hkwon@pknu.ac.kr

장된 정보는 잔류 자기화 상태에 있으므로 인가 자기장에 따라 활성화 부피가 어떻게 변하는가를 조사하는 것은 응용적인 측면에서 특히 중요하다. 분말이나 막(film)으로 형성된 자성 물질의 자기 상호작용 기구와 세기 그리고 자화 역전 현상은 제작 조건, 조성비, 채우기 비율, 입자의 형상이나 크기 등에 의존하며, 자기 상호작용 기구와 세기 그리고 자화 역전 현상이 활성화 부피에 크게 영향을 끼치는 것으로 알려져 있다.

따라서 본 연구에서는 입자의 크기에 따라 보자력뿐만 아니라 자화 역전 기구와 자기 상호작용 세기가 서로 다른 것으로 밝혀진[4] 크기가 다른 두 종류의 Sr-페라이트 자성 분말을 택하여 인가 자기장에 따른 활성화 부피를 조사하고, 자기 역전현상, 자기 상호작용의 종류 및 세기가 활성화 부피와 어떤 관계를 갖는지 규명하고자 시도하였다.

II. 실험 방법

본 연구에 사용된 시료는 육방정계 구조의 magnetoplumbite 형 strontium ferrite($SrFe_{12}O_{19}$)로, 합성 시료의 입도를 조절하기 위하여 일차적으로 습식 분쇄기(pulverizer)로 30분 파쇄하여 수십 μm 에서 약 100 μm 크기의 입도를 가진 조대분말(Coarse: C2)을 제조하였다. C2 시료 입자의 크기는 아주 미세한 크기에서부터 약 100 μm 크기의 넓은 입도 분포를 하고 있지만, 수십 μm 에서 약 100 μm 크기의 입도를 갖는 입자들이 전체 체적의 대부분을 차지하고 있으며, 합성 상태의 미세한 결정립 크기를 감안하면 C2 입자 대부분은 한 입자 내에 많은 수의 결정립을 포함하는 다결정립으로 취급할 수 있다. 입도를 더욱 줄인 미세분말 시료 C3 입자의 대부분은 그 크기가 약 2 μm 이하의 미세 입자로 되어 있다. 위에서 언급한 것처럼 크기가 약 2 μm 이하인 합성 상태의 결정립들이 파쇄과정에서 각 결정립들이 분리되고 또한 그 일부는 더욱더 파쇄가 진행되어 합성상태에서의 결정립 크기보다 훨씬 작은 미세입자로 가공된다[4]. 따라서 이 시료 C3의 입자들은 대부분이 단결정 입자인 것으로 판단할 수 있다. 합성 직후 시료의 상은 X선 회절분석기(Cu-K α)를 이용하여 분석하였고 가소체 및 분쇄 분말의 조직은 SEM을 이용하여 관찰하였다.

보자력, 포화자화, 잔류자화와 각형비 등 시료의 자기적 성질은 시료 진동형 자력계(Vibrating Sample Magnetometer: VSM)를 사용하여 상온에서 측정하기 위해 분말을 액상 파라핀왁스와 충분히 혼합한 후 10 kOe의 자장을 인가하여 배향시킨 다음 고화시켜 입자들을 고정시켜 약 6 × 6 mm 크기의 막(film)을 제작하였다. 활성화 부피의 자기장 의존성을 규명하기 위해 자기모멘트 감쇠의 시간 의존성과 직류 자기소거

잔류 자화(DC Demagnetized Remanence: DCD) 곡선을 측정하였다. 자기모멘트 감쇠의 시간 의존성은 시료를 포화시킨 다음 자기장과 반대 방향의 일정 크기의 자기장을 600초 동안 인가한 상태에서 측정하였다. 일반적으로 자기모멘트는 보자력 근처에서 감쇄가 가장 급격하게 일어나므로 보자력 영역의 자기장을 다수 선정하여 자기모멘트의 거동을 집중적으로 측정하였다. DCD 곡선은 시료를 양(+)의 방향으로 완전히 포화시킨 다음 음(-)의 방향으로 일정 자기장을 인가한 후, 자기장을 0으로 둔 상태에서 자기모멘트를 측정하되 시료가 음의 방향으로 완전히 포화될 때까지 자기장을 일정 크기로 증가시킨 상태에서 반복적으로 측정하였다.

한편 자기 역전 현상과 자기 상호작용이 활성화 부피에 어떤 영향을 주는가를 규명하기 위해 앞에서 설명한 DCD 곡선, 등은 잔류 자화(Isothermal Remanence: IRM)곡선, minor loop, 초기 자화곡선을 상온에서 측정하였다. IRM 곡선은 완전히 자기소거 시킨 시료에 양의 방향으로 일정 크기의 자기장을 인가한 후 자기장을 0으로 둔 상태에서 자기모멘트를 측정하였다. 이와 같은 방법으로 인가 자기장을 단계적으로 증가시킨 상태에서 계속 측정하되 시료가 포화될 때까지 반복적으로 측정하였다.

III. 실험결과 및 논의

자기이력곡선에 나타나는 자기모멘트는 가역적인 성분과 비가역적인 성분이 포함되어 있다. 시간 의존성이 없는 가역적인 성분에 비해 시간 의존성이 큰 비가역적인 성분은 인가 자기장과 시간에 따라 $M(H, t) = M_0(H, T_0) \pm S(H) \ln t$ 로 표현된다[5]. 여기서 M 과 M_0 는 시각 t 와 t_0 에서의 자화 값이며 S 는 자기 점성계수(magnetic viscosity coefficient)로 인가 자기장 의존성을 갖는다.

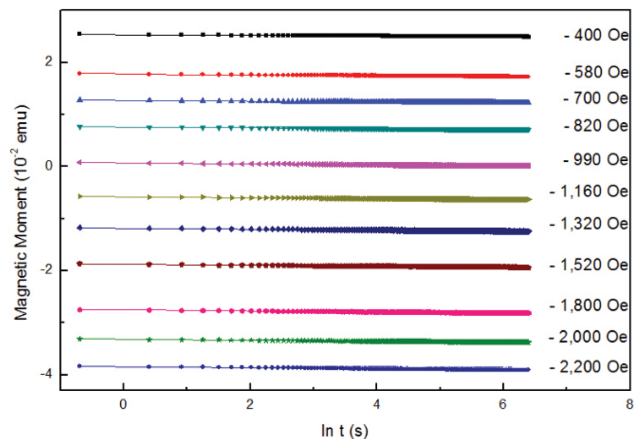


Fig. 1. (Color online) Magnetic moment decay curves as a function of $\ln t$ for C2 sample.

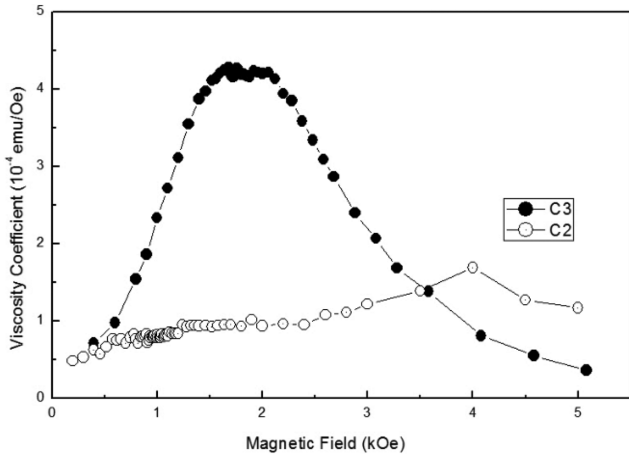


Fig. 2. Field dependence of the magnetic viscosity coefficients.

Fig. 1은 시료 C2를 포화시킨 자기장의 방향과 반대 방향으로 인가한 일정 크기의 자기장별 자기모멘트 거동을 나타낸 것으로, 각각의 기울기가 인가 자기장별 자기 점성계수 S 에 해당한다. 인가 자기장에 따른 자기 점성계수는 Fig. 2와 같다. 이 그림으로부터 입자의 크기가 큰 시료 C2에 비해 크기가 작은 시료 C3의 자기 점성계수가 훨씬 크고, C3는 보자력 근처에서 자기모멘트가 크게 감쇠하는데 비해 C2는 보자력보다 매우 높은 자기장 영역에서 감쇠가 크게 일어남을 확인할 수 있었다.

한편 지구 생성에 대한 에너지장벽 분포를 반영하는 DCD 곡선의 미분형인 DC 비가역 자화율(irreversible magnetic susceptibility: χ_{irr}^{dcd})은 Fig. 3과 같다. Street와 Woolley[6]에 의하면 요동장(fluctuation field: H_f)은 $H_f = S/\chi_{irr}^{dcd}$ 으로 표현되며, 활성화 부피는 자기모멘트가 집단적으로 함께 역전을 일으키는 최소단위 부피로 $V_{act}(H) = (k_B T/M_s)/(S/\chi_{irr}^{dcd})$ 로 표현된다[7]. 여기서 k_B 는 Boltzmann 상수, T 는 절대온도,

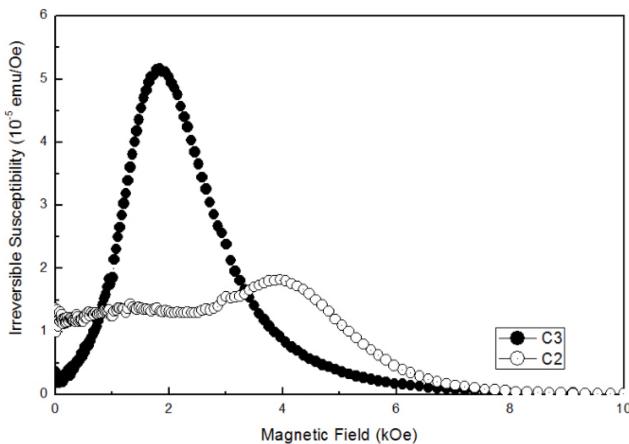


Fig. 3. Irreversible susceptibilities obtained from DCD remanence curves.

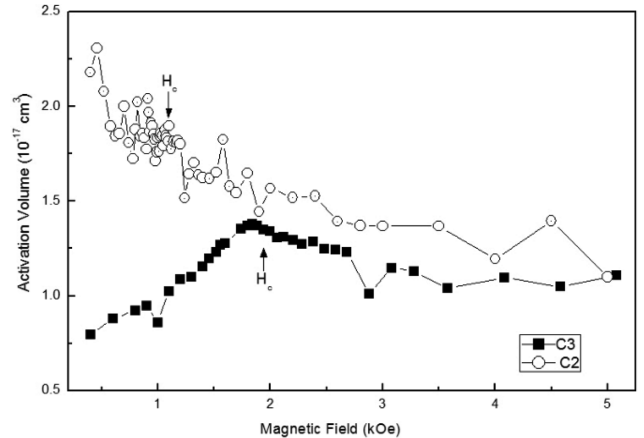


Fig. 4. Magnetic field dependence of the activation volumes.

M_s 는 포화 자화 값이다.

Fig. 2와 Fig. 3을 이용하여 구한 인가 자기장에 따른 활성화 부피 $V_{act}(H)$ 를 Fig. 4에 표시하였다. 이 그림으로부터 시료 C3의 활성화 부피는 낮은 자기장 영역에서부터 보자력까지는 빠르게 증가하다가 보자력 근처에서 최대를 보였고 그 이상에서부터는 오히려 천천히 감소하였다. 반면 시료 C2의 활성화 부피는 약 2 kOe까지의 자기장에서는 상당히 빠르게 감소하였으나 그 이상에서는 감소 정도가 C3와 거의 비슷한 거동을 보였다. 두 시료의 활성화 부피를 비교한 결과, 낮은 자기장 영역에서는 시료 C3에 비해 C2의 활성화 부피가 최대 2배 정도 컸으나 약 1.8 kOe 이상에서는 C2의 부피가 C3에 비해 다소 크지만 그 차이는 크지 않았다. 제작법을 달리하여 제작한 3종류의 Sr-페라이트의 자화 역전과 상호작용에 대한 J. C. Faloh-Gandarilla et al.[8]에 의하면 3종류 모두 쌍극자 상호작용을 일으키고, 활성화 부피는 자기장이 증가함에 따라 감소하였으며 그 크기는 $1.3\sim 0.8 \times 10^{-17} \text{ cm}^3$ 정도인 것으로 밝혀졌다. 이 결과는 본 연구에서 얻은 활성화 부피에 비해 다소 작았으며 자기장 의존성은 뚜렷하지 않았으나, 각 시료의 보자력 영역에서 최대 활성화 부피가 나타나는 현상은 같았다.

자화 역전 기구로 시료별 활성화 부피의 크기와 자기장 의존성을 규명하기 위해 자기모멘트 감쇠의 시간 의존성, 초기 자화곡선 그리고 비가역 자화율을 조사하였다. 일반적으로 자화 역전은 인가 자기장 전체에 걸쳐 한 가지만의 기구로 일어나는 것이 아니라 인가 자기장에 따라 역전 기구가 다른 특징을 보인다.

자기모멘트는 열적 활성화에 의한 에너지장벽 분포와 장벽의 변화 정도에 따라 감쇠현상이 다르게 나타난다. 만약 에너지장벽 분포가 매우 빠르게 변하면 자기모멘트는 $\ln t$ 에 따라 비선형적으로 감소하지만 그렇지 않을 경우에는 선형적으

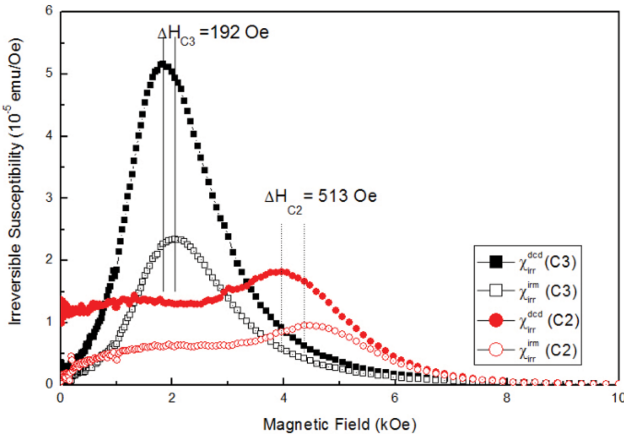


Fig. 5. (Color online) Irreversible magnetic susceptibilities obtained from DCD and IRM curves.

로 감쇠를 일으킨다. 자기모멘트 감쇠가 비선형적인 경우는 자구생성(domain nucleation), 선형적으로 감쇠하는 경우를 자벽고착(domain wall pinning)에 의해 역전을 일으키는 것으로 설명하고 있다[9]. Fig. 1에 나타난 것처럼 시료 C2의 자기모멘트는 $1nI$ 에 따라 선형적으로 감쇠하였고, 시료 C3 또한 선형적으로 감쇠하므로, 시료 모두 자화 역전 기구를 자벽고착으로 취급할 수 있다. 한편 초기 자화곡선 등으로부터 자화 역전 기구를 설명한 H.S. Kim 등의 연구결과[4]에 따르면 낮은 자기장 영역에서 시료 C2의 역전 기구는 자구생성에 의한 것으로, C3는 자벽고착 또는 단자구 회전이지만 자벽고착에 의한 자벽운동이 지배적인 역전 기구인 것으로 판단된다.

자구생성과 자벽고착에 대한 에너지장벽 분포를 반영하는 DCD 및 IRM 곡선의 미분형인 비가역 자화율 $\chi_{irr}^{dc}(H)$ 와 $\chi_{irr}^{dm}(H)$ 은 Fig. 5와 같다. 이 그림으로부터 시료 모두 자구생성 자기장(H_n)이 자벽고착 자기장(H_p)보다 작고, H_n 과 H_p 의 차이($\Delta H = H_p - H_n$)를 조사한 결과 C2는 약 510 Oe이고 시료 C3는 약 190 Oe이었다. $H_n < H_p$ 인 경우는 이미 생성된 역자구에 의해 역전이 일어나고 이어서 자벽의 운동이 방해받기 때문에 역자구가 느리게 성장하는 것을 의미한다. 한편 활성화 부피와 관련되는 DCD 곡선의 미분형 $\chi_{irr}^{dc}(H)$ 를 살펴보면, C3에 비해 C2가 낮은 자기장 영역에서 넓고 낮은 피크를 가진 곡선을 보이는데 그 원인은 역방향의 일정 자기장을 인가해도 고착점의 영향으로 자벽 운동이 원활하지 않기 때문인 것으로 판단된다. 따라서 시료 C2는 상당히 큰 자기장 영역까지 이미 생성된 역자구에 의한 역전에 이어 자벽고착점까지 자벽의 운동을 통해 역자구가 느리게 성장하는 것으로 간주할 수 있다. C3의 경우는 H_p 가 H_n 에 보다 약간 크고 자벽고착이 지배적인 역전기구로 역전을 일으키므로 자구가 보자력과 거의 같은 자벽고착 자기장 H_p 까지 계속 증가

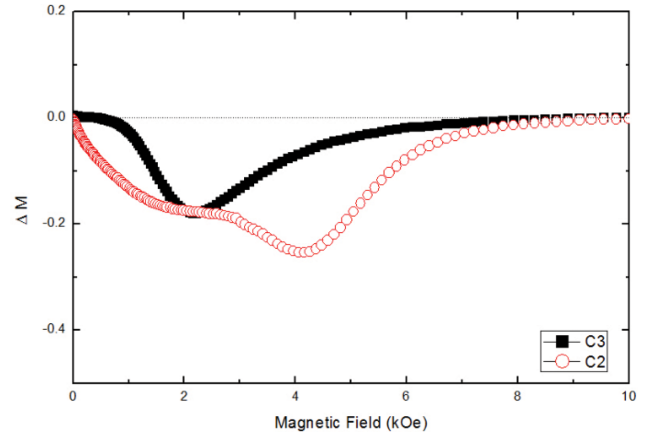


Fig. 6. (Color online) Variation of the DM(H) curves for samples [4].

하면서 역전을 일으키는 것으로 판단된다. 이와 같은 사실로부터 인가 자기장이 더 증가하여도 시료 C2의 활성화 부피는 증가하지 않으며, 시료 C3의 경우는 자구가 어느 정도 증가하다가 고착 자기장에서 최대를 보이고 고착 자기장보다 약간 큰 자기장에서부터는 쉽게 역전을 일으키므로 활성화 부피가 증가하다가 감소하는 경향을 보이는 것으로 판단된다.

한편 자기 상호작용과 활성화 부피와의 관계를 알아보기 위해 DCD, IRM 곡선을 측정하여 식 $\Delta M(H) = M_s(H)/M_s(\infty) - [1 - 2M_s(H)/M_s(\infty)]$ [10]과 $|\Delta area| = \int_0^{H_a} \Delta M(H) dH$ [11-13]에 적용시켜 보았다. 상호작용 기구는 $\Delta M(H)$ 의 부호, 상호작용의 세기는 $\Delta M(H)$ 의 극값과 면적 $|\Delta area|$ 로 설명한다. Fig. 6에 따르면 두 시료 모두 측정 자기장 영역에서 $\Delta M(H) < 0$ 이므로 시료 모두 쌍극자 상호작용을 일으키고, 극값과 면적 또한 C2가 C3에 비해 훨씬 더 크고 넓게 분포되어 있으므로 상호작용의 세기는 C2가 C3에 비해 더 강함을 알 수 있다.

이 사실을 활성화 부피의 자기장 의존성을 나타낸 Fig. 4에 적용시킨 결과 활성화 부피는 쌍극자 상호작용이 우세할수록 더 컸다. 또한 시료 C3의 최대 활성화 부피는 쌍극자 상호작용의 극값과 밀접하게 관계되는 것으로 판단된다. 그러나 C2의 활성화 부피는 상호작용 극값과 뚜렷한 관련성을 나타내지는 않았으나 상호작용이 강한 낮은 자기장 영역에서는 활성화 부피가 큰 경향을 보였다.

IV. 결 론

자화 역전 현상과 자기 상호작용 기구를 통하여 입자의 크기가 서로 다른 시료의 활성화 부피의 자기장 의존성을 조사하였다. 그 결과 입자의 크기가 큰 시료 C2는 낮은 자기장 영역에서 생성된 초기 자구를 중심으로 많은 자구가 쉽게 생성되기 때문에 낮은 자기장 영역에서 활성화 부피가 크고 인가 자기장이 더 증가하여도 활성화 부피는 증가하지 않았다.

그러나 입자 크기가 작은 C3 경우는 생성된 자구가 인가 자기장이 증가함에 따라 자구가 계속 전파하여 보자력과 거의 같은 자벽고착 자기장에서 역전을 일으키므로 활성화 부피가 증가하다가 보자력 이상에서부터 감소하는 경향을 보이는 것으로 판단된다. 또한 활성화 부피는 보자력 영역에서 최대를 보이다가 더 큰 자기장 범위에서는 거의 일정하였다.

감사의 글

본 연구는 부경대학교 학술 진흥 연구비(자율창의 2016) 지원으로 수행되었습니다. 본 연구에서 사용한 시료 제조에 도움을 주신 (주)태평양금속 연구소에 감사를 드립니다. 또한 자성 측정을 위해 수고한 경상대학교 물리학과 김도연 학생에게 고마움을 전합니다.

References

[1] H. Kojimi and E. P. Wohlfarth, *Ferromagnetic Materials*, **305** (1982), North Holland, Amsterdam.
 [2] H. Hibst, *J. Magn. Magn. Mater.* **74**, 193 (1988).

[3] N. Zeina, H. How, C. Vittoria, and R. West, *IEEE Trans. Magn.* **28**, 3219 (1992).
 [4] H. S. Kim, S. Y. Jeong, K. M. Kim, and H. W. Kwon, to be published in *J. Kor. Magn. Soc.*
 [5] C. K. Ong, H. C. Fang, Z. Yang, and Y. Li, *J. Magn. Magn. Mater.* **213**, 413 (2000).
 [6] R. Street and J. C. Woolley, *Proc. Phys. Soc., Sect A* **62**, 562 (1949).
 [7] E. P. Wohlfarth, *J. Phys. F* **14**, L155 (1984).
 [8] J. C. Faloh-Gandarilla, S. Diaz-Castanon, and B. E. Watts, *Phys. Status Solidi B*. 1-7, /DOI 10.1002/pssb.201600393 (2016).
 [9] T. Thomson and K. O'Grady, *J. Appl. Phys.* **30**, 1566 (1997).
 [10] P. E. Kelly, K. O'Grady, P. I. Mayo, and R. W. Chantrell, *IEEE Trans. Magn.* **25**, 3881 (1989).
 [11] P. I. Mayo, K. O'Grady, R. W. Chantrell, J. A. Cambridge, I. L. Sanders, T. Yogi, and J. K. Howard, *J. Magn. Magn. Mater.* **95**, 109 (1991).
 [12] L. Folks, R. Street, and R. Woodward, *J. Appl. Phys.* **75**, 6271 (1994).
 [13] W. Y. Zhang, S. Y. Zhang, A. R. Yan, H. W. Zhang, and B. G. Shen, *J. Magn. Magn. Mater.* **225**, 389 (2001).