

Magnetic Field Dependence of Brownian Motion in Iron-oxide Nanoparticles

Eun Kyung Jung, Seok Soo Yoon, and Dong Young Kim*

Department of Physics, Andong National University, Andong 36729, Korea

(Received 25 January 2016, Received in final form 17 February 2016, Accepted 17 February 2016)

The ac magnetic susceptibility was measured in iron-oxide nanoparticles with average size of 26 nm, which were uniformly dispersed in organic solvent. The ac magnetic susceptibility measured under zero magnetic fields was well fitted with Debye relaxation model and the relaxation frequency was 370 Hz. The relaxation frequency of the nanoparticles coincided with relaxation time of the Brownian motion, which is due to the viscosity of the liquid medium in which magnetic nanoparticles dwell. The Brown relaxation frequencies were linearly increased with magnetic field.

Keywords : nanoparticles, Ac magnetic susceptibility, brownian motion, relaxation frequency

산화철 나노입자의 브라운 운동에 대한 자기장 의존성 연구

정은경 · 윤석수 · 김동영*

안동대학교 물리학과, 경북 안동시 경동로 1375, 36729

(2016년 1월 25일 받음, 2016년 2월 17일 최종수정본 받음, 2016년 2월 17일 게재확정)

유기 용매에 고르게 분산되어 있는 26 nm 크기의 산화철 나노입자를 사용하여 주파수에 따른 교류 자화율을 측정하였다. 자기장이 없는 조건에서 측정된 나노입자의 자화율은 Debye 완화 모델로 계산한 결과와 일치하였으며, 완화 주파수(relaxation frequency)는 370 Hz였다. 나노입자의 완화 주파수는 용매의 점성에 의한 브라운 운동(Brownian motion)의 완화 시간과 일치하였다. 브라운 운동에 의한 나노입자의 완화 주파수는 자기장의 세기에 따라 선형적으로 증가하는 특성을 보였다.

주제어 : 나노입자, 브라운 운동, 교류 자화율, 완화 주파수

I. 서 론

초상자성 나노입자는 약물 전달의 효율을 향상시키고, 자기 공명 영상 장치의 해상도 향상 및 종양 제거를 위한 Hyperthermia 기법 등 생명 공학 분야에 활용하기 위한 연구가 활발히 진행되고 있다[1]. 특히, Hyperthermia 기법은 크기가 균일한 초상자성 나노입자를 사용하여 종양(tumor)을 선택적으로 제거하는 방법으로 종양과 보통 조직의 온도 특성을 활용한다. 생명체를 구성하는 보통 조직은 약 46 °C의 온도까지 상승해도 파괴되지 않고 정상 상태를 유지한다. 그러나 종양은 42 °C의 온도에서 약 30분 동안 노출시키면 파괴되는 특성이 있다[2]. 보통 조직보다 낮은 온도에서 파괴되는 종양 조직의 독특한 온도 특성을 활용하여, 종양 부근에 나

노입자를 주입하고 교류 자기장을 인가하여 종양 부근의 온도를 42~46 °C로 유지시켜 종양만 선택적으로 제거하는 것이 가능하게 된다. 이때 균일한 초상자성 나노입자에 교류 자기장을 인가하면 나노입자들의 이완 손실(relaxation loss)에 의한 열로 온도가 상승된다. 정상 조직의 파괴를 최소화하고 종양 조직만 제거하기 위하여 종양 부근의 온도를 46 °C 이하로만 유지시킬 수 있어야 한다[3, 4].

Hyperthermia 기법에서 사용하는 초상자성 나노입자는 상온에서 열적 진동에 의하여 자화 방향이 무작위 방향으로 배열되어 낮은 자기장에서는 상자성과 같은 특성 보인다. 그러나 고자기장에서는 자성 나노입자의 포화 자화량에 근접하는 자화곡선을 나타낸다. 이때 초상자성 나노입자의 보자력은 0의 값을 보인다[5, 6]. 따라서 초상자성 나노입자는 자기 이력 손실은 무시되므로, Hyperthermia 기법에서는 나노입자의 브라운 운동(Brownian motion)에 의한 완화 손실과 널 운동(Neel motion)에 의한 완화 손실을 활용하고 있다[7, 8]. 초

상자성 나노입자의 브라운 완화 손실과 널 완화 손실을 극대화하고 온도 상승을 최적화하기 위하여, 주파수에 따른 교류 자화율(magnetic susceptibility)의 완화 주파수 특성 분석에 대한 연구가 꾸준히 진행되고 있다[9-13].

본 연구에서는 유기 용매에 든 산화철 나노입자의 주파수에 따른 교류 자화율을 측정하였으며, 자기장의 세기에 따른 브라운 운동의 완화 주파수 특성을 분석하였다.

II. 실험 방법

주파수에 따른 교류 자화율 분석에 사용한 산화철 나노입자는 Trioctylamine(TOA) 용매에 젤 형태의 Fe-Oleate complex($Fe(OL)_3$) 전구체(precursor)를 고르게 섞은 반응 원액을 사용하여 고온 열분해 방법으로 제조하였다. 산화철 나노입자 제조시 15 g의 TOA와 1.8 g의 $Fe(OL)_3$ 를 섞은 용액을 플라스크에 넣고 자석 회전체를 회전시켜 고루 섞이도록 하였다. 플라스크에는 용액의 온도를 측정하기 위한 온도계, Ar 버블을 생성하기 위한 피펫 및 반응 원액을 추출하기 위한 주사기를 각각 장착하였다. Ar 가스는 균일한 나노입자를 제조하기 위하여 사용하였으며 30 ml/min의 흐름율로 주입하였다. 온도 조절기를 이용하여 3.0 °C/min의 온도 증가율로 324 °C의 온도까지 증가시켜 1 시간 동안 유지하도록 설정하였다. 반응 원액 속에서 나노입자가 형성되었음을 확인하고 약 3분을 기다린 후 주사기를 이용하여 약 0.2 ml의 반응 원액을 추출하였다. 추출한 반응 원액의 0.1 ml는 나노입자들의 크기 분포 및 모양을 분석하기 위하여 TEM 시편 제작에 사용하였으며, 주파수에 따른 교류 자화율을 측정하기 위하여 나머지 0.1 ml를 사용하였다. TEM 시편은 반응 원액을 에탄올에 희석시켜 잔류 유기 용매를 제거한 후 원심분리기를 이용하여 산화철 나노입자를 추출한 후, 초음파 세척기를 이용하여 핵산 용액에 균일하게 분산시킨 후 Cu-grid 위에 분산시켜 제작하였다. TEM 사진은 고분해능 JEM-2010 장비를 사용하여 촬영하였으며, 교류 자화율은 10 Hz~100 kHz의 주파수 범위에서 Lock-in 증폭기를 사용하여 측정하였다.

III. 실험 결과 및 고찰

주파수에 따른 자화율을 측정하기 위하여 고온 열분해법으로 제조한 산화철 나노입자의 모양, 크기 및 결정 구조는 TEM 사진과 전자 회절 무늬(Electron Diffraction Pattern)를 이용하여 분석하였다. Fig. 1(a)는 고온 열분해법으로 제조한 산화철 나노입자의 TEM 사진을 보인 것이다. TEM 사진으로부터 산화철 나노입자는 육면체, 구형, 타원체 등 다양한 모양이 혼재하고 있음을 보이고 있다. 또한 다양한 크기의 나

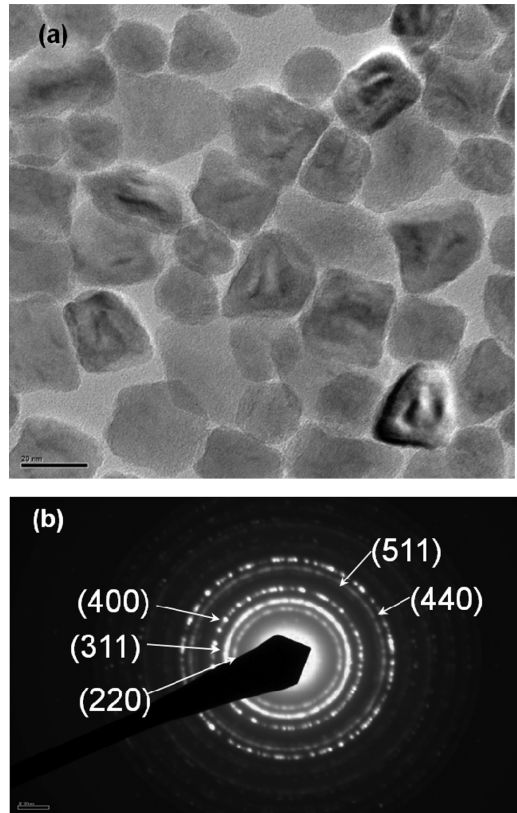


Fig. 1. (a) TEM images and (b) Electron diffraction pattern of iron oxide nanoparticles.

노입자들이 혼재하고 있는 나노입자들의 평균 크기는 약 $d = 26$ nm였다. Fig. 1(b)는 산화철 나노입자의 전자 회절 무늬를 보인 것이다. 전자 회절 무늬에서 (220), (311), (440), (511), (440) 면에서의 회절 무늬가 뚜렷이 나타났다. 특히 (311) 면에서의 회절 무늬가 가장 밝게 나타나는 것으로 보아, 산화철 나노입자는 면심 입방(FCC; face centered cubic) 형태의 격자 구조를 갖고 있음을 알 수 있다. 산화철 재료 중에서 면심 입방 구조를 갖는 재료는 다른 구조의 산화철 재료보다 자화량이 매우 크다. 따라서 본 연구에서 제조한 산화철 나노입자는 자화량이 큰 재료로 교류 자화율 측정에 유리한 재료임을 전자회절 무늬의 분석 결과로부터 알 수 있다.

초상자성 나노입자에서 교류 자기장의 주파수에 따른 완화 작용은 널 운동과 브라운 운동 두 가지로 구분된다. 널 운동은 초상자성 나노입자 내부 자화의 열적 요동 특성이며, 브라운 운동은 나노입자 자체의 열적 요동 특성이다. 따라서 널 운동과 브라운 운동은 모두 열적 요동에 기인하므로 온도에 의존할 뿐만 아니라 나노입자의 부피에 의존한다. 나노입자의 부피 V 가 작아질수록 열에 의한 자화 방향의 요동 특성은 증가하며, 교류 자기장의 주파수가 나노입자 내부 자화 방향의 요동 주파수와 일치하는 조건에서 자화율의 완화 특성이 측

정된다. 즉, 나노입자에 인가되는 교류 자기장의 주파수가 열에 의한 자화 방향의 요동 주파수 보다 낮은 경우, 자화 방향은 교류 자기장의 진동 방향과 동일한 방향으로 진동하게 되며, 이러한 자화 방향의 진동 특성이 자화율로 나타난다. 그러나 나노입자에 인가되는 교류 자기장의 주파수가 열에 의한 자화 방향의 요동 주파수 보다 높은 경우, 자화 방향의 진동 특성이 주파수가 증가함에 따라 완화되어 나타난다. 자화의 요동 운동 보다 높은 주파수에서는 교류 자기장의 방향으로 자화 방향이 회전하지 못하게 되므로 자화율은 감소하게 된다. 나노입자 내부 자화의 열적 요동 운동을 널 운동이라고 하며, 널 완화 시간(Neel relaxation time) τ_N 은 입자의 부피 V 에 따라 지수함수적으로 증가한다[11, 13].

$$\tau_N = \tau_o \exp\left(\frac{K_{eff}V}{k_B T}\right) \quad (1)$$

여기서 τ_o 는 널 운동의 최소 완화 시간으로 10^{-9} s~ 10^{-10} s의 값을 가지며, K_{eff} , T 는 각각 유효 자기 이방성 상수 및 절대 온도이고, 볼츠만 상수 $k_B = 1.38 \times 10^{-23}$ m²kg/sK이다. 식(1)에서 τ_N 은 온도가 일정한 조건에서 나노입자의 부피 V 가 증가하면 지수함수적으로 증가하게 되며, 따라서 널 완화 주파수는 초저주파수로 이동하게 된다.

한편, 용액 속에 든 나노입자는 열적 요동에 의하여 용액 속을 자유롭게 움직일 수 있으나, 입자의 운동은 용액의 점성 η 에 의한 영향을 받는다. 용액 속을 자유롭게 움직일 수 있는 초상자성 나노입자는 교류 자기장에 따라 진동하는 특성을 보이며, 교류 자기장에 따른 나노입자의 진동에 의하여 자화율이 측정된다. 그러나 나노입자에 인가되는 교류 자기장의 주파수가 증가하면 용액의 점성에 의하여 입자의 진동이 완화 된다. 따라서 교류 자기장의 진동수가 완화 특성 이상으로 증가하면 자화율은 감소한다. 이렇듯 용액의 점성에 의한 영향을 받는 입자의 요동 운동 특성을 브라운(Brownian) 운동이라고 한다. 초상자성 나노입자에서 나타나는 브라운 완화 시간(Brown relaxation time) τ_B 는 입자의 유효 부피 V_{eff} 에 선형적으로 비례한다[11, 13].

$$\tau_B = \frac{3\eta V_{eff}}{k_B T} \quad (2)$$

용액 속에 든 초상자성 나노입자는 널 운동과 브라운 운동 두 가지가 복합적으로 영향을 미치게 되며, 이때 유효 완화 시간 τ_{eff} 는 다음과 같이 표현된다.

$$\frac{1}{\tau_{eff}} = \frac{1}{\tau_N} + \frac{1}{\tau_B} \quad (3)$$

유효 완화 시간은 널 운동과 브라운 운동을 비교하여 완화

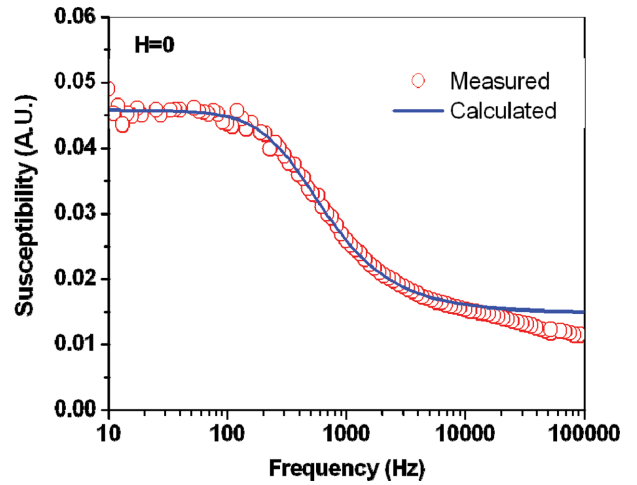


Fig. 2. (Color online) Frequency dependent ac magnetic susceptibility of iron oxide nanoparticles dispersed in organic solvent at $H = 0$ Oe. The line calculated according to Eq. (4).

시간이 짧은 완화 특성이 특징적으로 나타난다. 즉, 나노입자의 부피가 작은 경우 널 운동의 완화 시간이 브라운 운동의 완화 시간 보다 짧아 널 운동이 현저하게 나타난다. 그러나 나노입자의 부피가 증가하여 브라운 운동의 완화 시간이 널 운동의 완화 시간보다 짧아지면 브라운 운동이 현저하게 나타나게 된다.

Fig. 2는 산화철 나노입자의 제조 과정에서 추출한 반응 용액을 사용하여 교류 자기장의 주파수에 따른 자화율을 측정 한 결과를 보인 것이다. Fig. 2에서 원형 표식(○)은 측정 결과이며, 실선(-)은 Debye 완화 모델을 사용하여 계산한 결과이다. 복소 자화율 χ^* 의 주파수 의존성에 대한 Debye 완화 모델은 다음과 같이 표현된다[14].

$$\chi^* = \frac{\chi_o}{1 + if\tau} + \chi_\infty \quad (4)$$

여기서 f 는 교류 자기장의 주파수이고 τ 는 완화 시간이며, $i = \sqrt{-1}$ 는 허수이다. χ_o 는 완화에 기여하는 자화율을 나타내며, χ_∞ 는 무한대 주파수일 때의 자화율이다. Fig. 2에서 보인 주파수에 따른 자화율 측정 결과를 식(4)를 사용하여 계산 결과로부터 본 연구에서 사용한 유기 용매에 든 산화철 나노입자의 완화 주파수는 $f_r = 370$ Hz를 얻었다. 완화 주파수로부터 본 연구에서 사용한 산화철 나노입자의 완화 시간은 $\tau_{eff} = 1/f_r = 2.7 \times 10^{-3}$ s를 얻었다.

Fig. 3은 식(1)과 식(2)를 사용하여 나노입자의 크기에 따른 널 완화 시간과 브라운 완화 시간을 계산한 결과를 보인 것이다. 계산에 사용한 산화철의 이방성 상수 $K = 11000$ J/m³[11], 절대 온도 $T = 300$ K의 값을 식(1)에 대입하여 τ_N 을 구하였으며, 용액의 점성 $\eta = 0.1$ Pa·s[11], 절대 온도 $T = 300$ K의

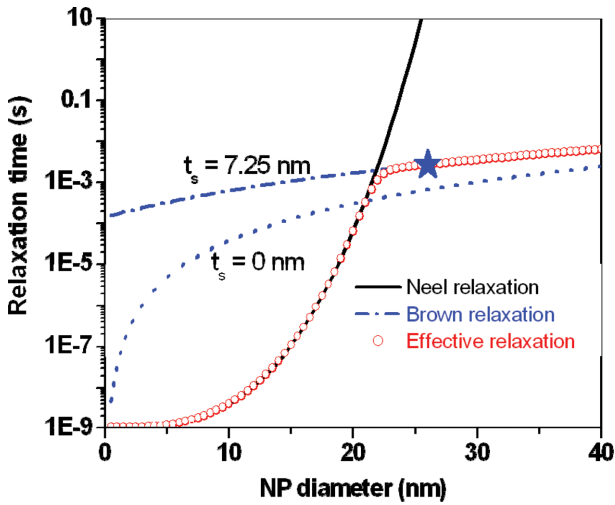


Fig. 3. (Color online) Neel, Brown and effective relaxation times calculated according to (1), (2), and (3), respectively.

값을 식(2)에 대입하여 τ_B 를 구하였다. 이들 계산 결과를 식(3)에 대입하여 τ_{eff} 를 구하였다. 나노입자의 크기 $d = 26 \text{ nm}$ 인 경우, $\tau_N = 41 \text{ s}$ 이고 $\tau_B = 6.6 \times 10^{-4} \text{ s}$ 의 값을 얻었다. 이들 계산 결과로부터 τ_B 의 완화 시간이 τ_N 의 완화 시간보다 매우 작은 값을 보였다. 따라서, 본 연구에서 사용한 나노입자의 유효 완화 시간 τ_{eff} 는 브라운 운동에 기인함을 예상할 수 있다.

용액 속에 든 나노입자의 브라운 운동은 나노입자를 둘러싸고 있는 용액의 점성에 의하여 나노입자의 표면에 붙어 나노입자와 함께 운동하는 용액의 유효 두께가 존재한다. 이러한 용액의 유효 두께는 나노입자의 유효 크기를 증가시켜 브라운 운동의 완화 시간을 감소시키는 역할을 한다. 본 연구에서 측정된 유효 완화 시간 $\tau_{eff} = 2.7 \times 10^{-3} \text{ s}$ 의 값을 갖기 위하여 식(2)로부터 추정된 나노입자의 유효 크기는 $d_{eff} = 40.5 \text{ nm}$ 였으므로 용액의 유효 두께 $t_s = 7.25 \text{ nm}$ 정도로 추정된다. 용액의 유효 두께에 의한 나노입자의 유효 크기 증가는 Fig. 3에서 보인 것과 같이 크기가 다른 나노입자들의 완화 시간 차이를 작게 만든다. 따라서 브라운 운동의 완화 특성이 식(4)에서 보인 Debye 완화 모델로 계산될 수 있다. Fig. 1(a)의 TEM 사진에서 보인 것과 같이 본 연구에서 제조한 나노입자는 크기 및 모양이 다양하게 분포하고 있지만 Debye 완화 모델을 따르는 것은 용액의 유효 두께에 의한 나노입자의 유효 크기 증가에 의한 영향으로 설명될 수 있다. 즉, 용액의 유효 두께에 t_s 의 영향으로 나노입자의 유효 부피 V_{eff} 는 나노입자의 모양과 크기에 무관하게 거의 동일한 완화 주파수 f_s 를 갖게 되어 Debye 완화 모델을 사용한 분석이 가능하다. 그러나 Fig. 3에서 보인 것과 같이 나노입자의 크기가 약 22 nm보다 작은 경우 $\tau_N < \tau_B$ 의 조건을 만족하게 되

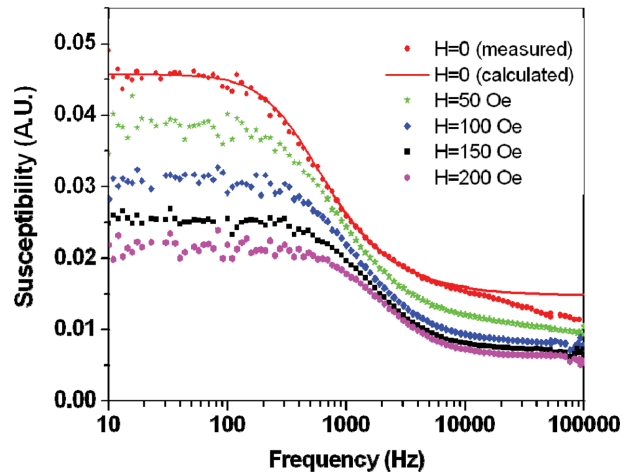


Fig. 4. (Color online) Frequency dependent ac magnetic susceptibility of iron oxide nanoparticles dispersed in organic solvent measured under magnetic field of $H = 0, 50, 100, 150, 200 \text{ Oe}$, respectively.

고, 널 운동에 의한 완화 작용이 나타나게 된다. 널 운동에 의한 완화 작용은 식(1)에서 보인 것과 같이 입자의 크기에 따라 지수함수적으로 변화된다.

Fig. 2에서 보인 것과 같이 주파수에 따른 자화율은 완화 주파수 이상에서 점진적으로 감소하는 특성을 나타낸다. 이는 용액 속에 완화 시간의 변화가 큰 나노입자들이 함께 존재하고 있음을 의미한다. 완화 시간의 큰 변화는 널 운동에 기여하는 나노입자로 볼 수 있으며, 크기가 22 nm보다 작은 입자들이 용액 속에 함께 존재함을 추정할 수 있다. 따라서 식(4)는 다음과 같이 표현될 수 있다.

$$\chi^* = \frac{\chi_B}{1 + if\tau_B} + \chi_N \quad (5)$$

본 연구에서는 Debye 완화 모델로 분석이 가능한 브라운 완화 특성에 대한 자기장 의존성을 분석하였다. Fig. 4는 직류 자기장을 인가한 상태에서 나노입자의 주파수에 따른 교류 자화율을 측정된 결과를 보인 것이다. 이때 자기장의 세기는 $H = 0, 50, 100, 150, 200 \text{ Oe}$ 를 각각 인가하였다. 자기장의 세기에 따른 $\chi_B(H), \chi_N(H), f_B(H)$ 는 식(5)를 이용한 계산 결과로부터 도출하였다. 초기 자화율은 $\chi_i = \chi_B + \chi_N$ 로 정의 하였으며, 자기장에 따른 초기 자화율 $\chi(H)$ 는 자기장의 세기에 따른 $\chi_B(H)$ 과 $\chi_N(H)$ 를 사용하였다.

Fig. 5(a)는 자기장에 따른 초기 자화율 $\chi(H)$ 특성을 보인 것이다. 초기 자화율은 자기장의 세기에 따라 감소하는 특성을 보이며, 일반적인 자성재료에서 보이는 자기장에 따른 자화율 특성과 동일한 경향이다. 자기장의 세기에 따른 초기 자화율은 재료의 유효 이방성 자기장과 인가 자기장의 합인 $H_{eff} + H$ 에 반비례하는 특성이 있다.

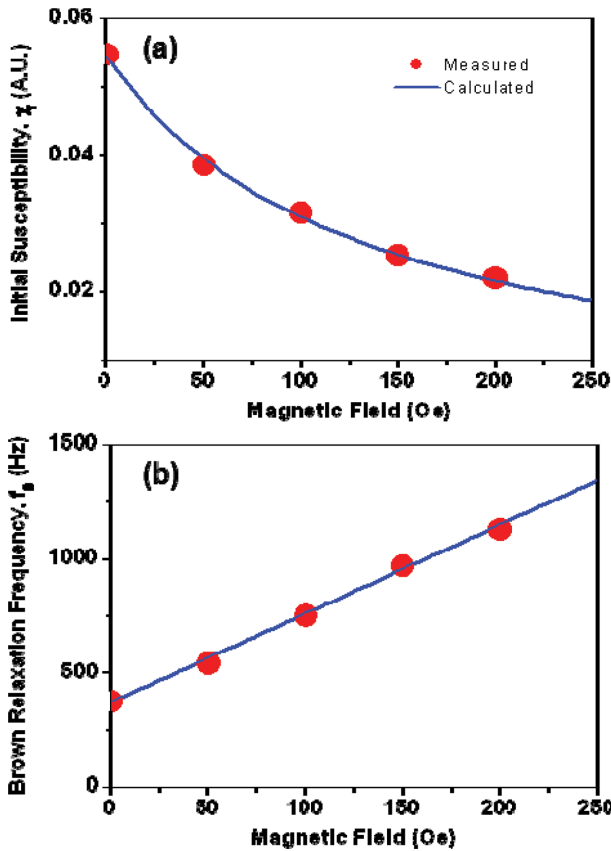


Fig. 5. (Color online) Magnetic field dependence of (a) initial susceptibility χ_i and (b) Brown relaxation frequency f_B .

$$\chi_i(H) \propto \frac{1}{H_{eff} + H} \quad (6)$$

Fig. 5(a)에서 실선은 식(6)을 사용하여 계산 결과이며, 이로부터 본 연구에서 제조한 산화철 나노입자의 유효 이방성 자기장 $H_{eff} = 130$ Oe를 얻었다. Fig. 5(b)는 자기장의 세기에 따른 브라운 운동의 완화 주파수 $f_B(H)$ 를 보인 것이다. 브라운 운동의 완화 주파수 f_B 는 자기장의 세기에 따라 선형적으로 증가하는 특성을 보였으며, 실험 결과로부터 자기장의 세기에 따른 브라운 운동의 완화 주파수 $f_B(H)$ 는 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$f_B(H) = \frac{k_B T}{3\eta V_{eff}} + \alpha H \quad (7)$$

여기서 α 는 자기장의 세기에 따른 완화 주파수 $f_B(H)$ 의 변화량으로 Fig. 5(b)의 기울기이다. 초기 자화율과 완화 주파수의 곱인 $\chi_i f_B$ 은 자성 재료의 포화 자화량 M_s 에 비례하는 특성이 있다[15]. Fig. 5(a)에서 보인 것과 같이 자기장의 세기에 따른 초기 자화율은 유효 이방성 자기장과 인가 자기장의 합인 $H_{eff} + H$ 에 반비례하는 특성을 보였으므로 자기장의

세기에 따른 브라운 운동의 완화 주파수 $f_B(H)$ 는 $H_{eff} + H$ 에 비례하는 특성을 보였음을 알 수 있다. 이러한 결과로부터 초상자성 나노입자의 브라운 운동의 완화 주파수는 나노입자의 유효 이방성 자기장과 인가 자기장에 의존함을 본 연구를 통하여 알 수 있었다. Hyperthermia 기법에서 초상자성 나노입자의 브라운 완화 손실을 활용할 때, 최대 손실을 위한 브라운 완화 주파수는 자기장을 사용하여 조절할 수 있다.

IV. 결 론

본 연구에서는 고온 열분해 방법으로 산화철 나노입자를 제조하였으며, 산화철 제조 과정에서 산화철 나노입자가 유기 용매에 고르게 분포한 상태의 반응 용액을 추출하였다. 추출한 반응 용액 속에 든 산화철 나노입자의 평균 크기는 23 nm임을 TEM 사진으로부터 확인하였다. 유기 용매에 든 산화철 나노입자의 교류 자화율은 Lock in 증폭기를 사용하여 10 Hz~100 kHz의 주파수 범위에서 측정하였다.

유기 용매에 든 나노입자를 사용하여 자기장이 없는 조건에서 측정된 자화율은 Debye 완화 조건을 만족하였으며, 이때 완화 주파수는 370 Hz였다. 유기 용매에 든 나노입자에 대한 완화 주파수는 용매의 점성에 의한 브라운 운동의 완화 조건과 일치하였다.

자기장의 세기에 따른 교류 투자율 측정 결과를 Debye 완화 식을 사용하여 초기 자화율과 브라운 운동에 의한 완화 주파수를 도출하였다. 초기 자화율은 자기장의 세기에 따라 감소하는 경향을 보였으며, 산화철 나노입자의 유효 이방성 자기장은 130 Oe를 얻었다. 한편, 브라운 운동의 완화 주파수는 자기장의 세기에 따라 선형적으로 증가하는 특성을 보였다. 이러한 결과로부터 초상자성 나노입자의 브라운 완화 주파수는 나노입자의 유효 이방성 자기장과 인가 자기장에 의존함을 본 연구를 통하여 알 수 있었다. Hyperthermia 기법에서 초상자성 나노입자의 브라운 완화 손실을 활용할 때, 최대 손실을 위한 한 브라운 완화 주파수는 자기장을 사용하여 조절할 수 있다.

감사의 글

이 논문은 2015학년도 안동대학교 연구비에 의하여 연구되었음.

References

[1] S. Laurent, D. Forge, M. Port, A. Roch, C. Robic, L. V. Elst, and R. N. Muller, Chem. Rev. **108**, 2064 (2008).
 [2] N. K. Prasad, K. Rathinasamy, D. Panda, and D. Bahadur, J.

- Biomed. Mater. Part B: Appl. Biomater. **85B**, 409 (2007).
- [3] R. Hergt, S. Dutz, and M. Zeisberger, *Nanotechnology* **21**, 015706 (2010).
- [4] I. Hilger, W. Andera, R. Hergt, R. Hiergeist, H. Schubert, and W. A. Kaiser, *Radiology* **218**, 570 (2001).
- [5] J. Kliava and R. Berger, *J. Magn. Magn. Mater.* **205**, 328 (1999).
- [6] Y. M. Jang and M. J. Hwang, *J. Soc. Magn. Reson. Med.* **7**, 39 (2003).
- [7] S. Vasseur, E. Duguet, J. Portier, G. Goglio, S. Mornet, E. Hadová, K. Knižek, M. Maryško, P. Veverka, and E. Pollert, *J. Magn. Magn. Mater.* **302**, 315 (2006).
- [8] S. N. Ahmad, Y. Akin, and S. A. Shaheen, *J. Appl. Phys.* **97**, 10Q902 (2005).
- [9] J. Carrey, B. Mehdaoui, and M. Respaud, *J. Appl. Phys.* **109**, 083921 (2011).
- [10] B. H. Erne, M. Claesson, S. Sacanna, M. Klokkenburg, E. Bakelaar, and B. W. M. Kuipers, *J. Magn. Magn. Mater.* **311**, 145 (2007).
- [11] R. M. Ferguson, A. P. Khandhar, C. Jonasson, J. Blomgren, C. Johansson, and K. M. Krishnan, *IEEE Trans Magn.* **49**, 3442 (2013).
- [12] P. C. Fannin, L. C. Tannoudji, E. Bertrand, A. T. Giannitsis, C. M. Oireachtaigh, and J. Bibette, *J. Magn. Magn. Mater.* **303**, 147 (2006).
- [13] S. Berkum, J. T. Dee, A. P. Philipse, and Ben H. Ern , *Int. J. Mol. Sci.* **14**, 10162 (2013).
- [14] https://en.wikipedia.org/wiki/Dielectric#Debye_relaxation.
- [15] G. F. Dionne, *IEEE Trans. Magn.* **39**, 3121 (2003).