

# 纳米晶 FeB 合金的微波磁性

卢晓明<sup>1</sup>, 张 骏<sup>2</sup>, 蒋正生<sup>1</sup>

(1 南京大学物理系, 江苏 南京 210093)

(2 南京大学材料科学与工程系, 江苏 南京 210093)

**[摘要]** 系统地研究了纳米晶 FeB 合金颗粒的微波磁性. 样品由机械合金化方法制备, X 射线衍射实验表明合金颗粒是由尺寸约为 10 nm 左右的纳米微晶组成的. 对 FeB 合金系列样品进行直流及微波磁性测量, 结果表明: (1) 纳米晶 FeB 合金颗粒的饱和磁化强度  $\sigma_s$  随 B 含量增加而单调下降. (2) FeB 合金颗粒的磁损耗  $\mu''$ , 在 B 含量约为 5at % 时达到最大值, 其有效复数磁导率为  $\mu = 3.06 - j3.44$ , 相应的内禀磁导率  $\mu_i = 5.67 - j12.11$ . 当 B 含量超过 10at % 时, 磁损耗  $\mu''$  显著降低. (3) 磁损耗  $\mu''$  的峰值频率随 B 含量的增加, 基本呈下降趋势. 通过上述研究, 我们得出如下结论: (1) 合理地选择纳米晶 FeB 合金颗粒的成分, 可以有效地提高磁损耗  $\mu''$ . (2) 金属间化合物 FeB 相的出现, 对材料的微波磁性将产生不利影响.

**[关键词]** 纳米晶 FeB 合金颗粒, 微波磁性, 磁损耗, 金属间化合物

**[中图分类号]** O482.54 **[文献标识码]** A **[文章编号]** 1001-4616(2007)01-0039-05

## Magnetic Properties in Microwave of Nanocrystalline FeB Alloy Grain

Lu Xiaoming<sup>1</sup>, Zhao Tao<sup>2</sup>, Jiang Zhengsheng<sup>1</sup>

(1 Department of Physics, Nanjing University, Nanjing 210093, China)

(2 Department of Materials Science and Engineering, Nanjing University, Nanjing 210093, China)

**Abstract** The systematic and detailed study has been carried out on the magnetic properties of nanocrystalline FeB alloys. The samples are prepared by mechanical alloying method and grain size are analyzed by X-ray diffraction measurements. It is found that alloy particles are composed of nano-sized granules of approximately 10 nm. The magnetic measurements in the static and microwave frequency regime on a series of FeB alloy samples indicate that (1) the specific saturation magnetization  $\sigma_s$  of FeB alloy grain decreases with B content. (2) magnetic dissipation reaches a maximum value at B concentration around 5at %, and the effective magnetic permeability and intrinsic magnetic permeability take the value  $\mu = 3.06 - j3.44$  and  $\mu_i = 5.67 - j12.11$ , respectively, plus further increase in B content beyond 10at % brings about rapid decrease in magnetic dissipation. (3) the frequency corresponding to the peak value of magnetic dissipation generally decreases with B concentration. Based on above observations, we conclude that (1) component optimization in nanocrystalline FeB alloys is of vital importance in enhancing the magnetic dissipation. (2) the occurrence of intermetallic FeB phase must be avoided since it is unfavorable to the magnetic dissipation.

**Key words** nanocrystalline FeB alloy grain, magnetic properties in microwave frequency regime, magnetic dissipation, intermetallic compound

## 0 引言

纳米材料是一种新型的功能材料, 它具有一系列独特的物理和化学性质. 通常磁性纳米颗粒可引起较大的磁滞损耗<sup>[1]</sup>, 并且纳米颗粒的等离子吸收频率与粒子尺寸有关. 另一方面, 随着颗粒的细化, 颗粒的界面效应和量子尺寸效应变得更为突出. 颗粒的界面极化和多重散射可能成为重要的吸波机制<sup>[2]</sup>.

收稿日期: 2006-10-27 修回日期: 2006-12-31

作者简介: 卢晓明 (1981-), 硕士研究生, 主要从事铁磁材料的磁性和输运性质的学习与研究. E-mail: youngtoo@sina.com.cn

通讯联系人: 蒋正生 (1956-), 教授, 主要从事磁性材料的教学与研究. E-mail: zsjiang@nju.edu.cn

选择纳米晶 FeB 合金颗粒作为研究对象, 主要基于如下考虑: 材料的静态磁导率可表示为

$$\mu_0 \propto M_s^2 K_{eff}$$

其中  $M_s$  和  $K_{eff}$  分别是颗粒的饱和磁化强度和有效各向异性常数<sup>[3]</sup>. 这表明  $M_s$  和  $K_{eff}$  共同决定了材料的磁导率. 通过调节合金的成分, 有可能优化  $M_s$  和  $K_{eff}$ , 进而获得较大的磁导率和磁损耗.

1 纳米晶 FeB 合金颗粒的制备和结构表征

1.1 FeB 合金颗粒样品制备

FeB 合金系列样品由机械合金化方法制备<sup>[4]</sup>. 合金采用的原料为 Fe 粉 (纯度大于 99.9%) 和高纯 20BFe 合金粉, 制备设备为 Spex 8000 型高能球磨机, 合金化过程在氩气环境中进行. 按预先设计的 B (at %) 含量进行配料, 经 40h 的高能球磨, 成功地制备了不同 B 含量的 FeB 合金系列样品.

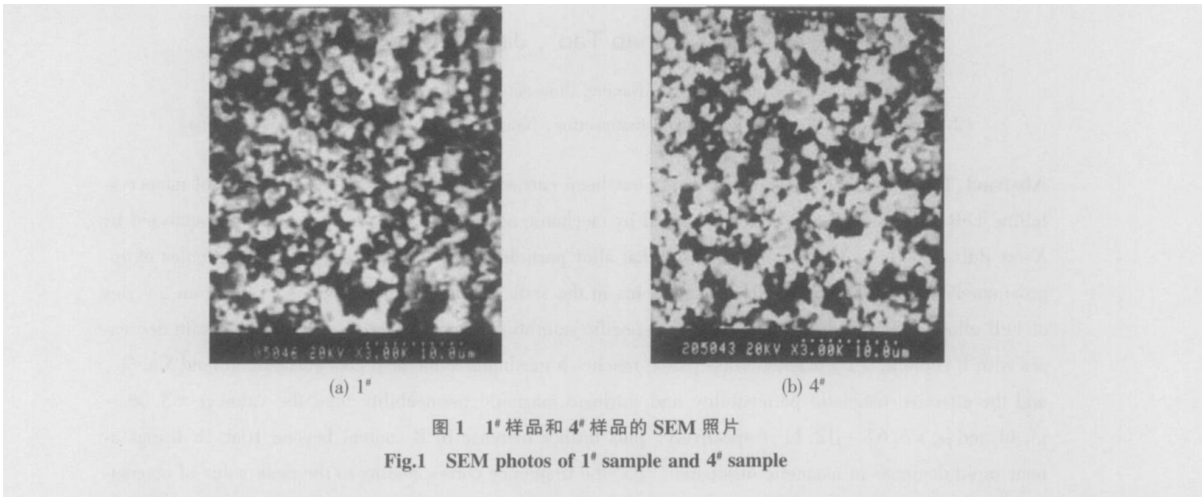
1.2 FeB 合金颗粒的成分、形貌分析和结构表征

通常样品的实际成分与配料比例并不完全一致. 为了精确测定合金颗粒的成分, 实验中对样品进行了电感耦合等离子光谱 (ICP) 成分分析, 结果见表 1. 由表 1 可见, 随着 B 含量的增大, ICP 实测结果与配料比例的差别也越大.

利用扫描电镜 SEM 和 X 射线衍射仪, 对上述样品的形貌和结构进行了分析. FeB 合金颗粒的 SEM 照片由图 1 表示. 由图可见, 颗粒的形状不很规则, 且尺寸分布也不均匀, 直径从几百纳米到几微米不等.

表 1 FeB 合金颗粒样品的成分

Table 1 Component content of FeB alloy samples			
样品编号	配料比例		ICP 实测结果
	Fe/(at %)	B/(at %)	B/(at %)
1 <sup>#</sup>	98	2	1.85
2 <sup>#</sup>	95	5	4.65
3 <sup>#</sup>	85	15	14.66
4 <sup>#</sup>	75	25	21.83
5 <sup>#</sup>	50	50	41.54



FeB 合金颗粒的 X 射线衍射图由图 2 表示, 其中 B 含量较低 (B 含量  $\leq 20\%$ ) 样品的 X 射线衍射图较为简单, 只具有明确的  $\alpha$ -Fe 特征峰 (见 1<sup>#</sup> 和 2<sup>#</sup> 样品). 这表明在合金化过程中, B 原子是固溶入 Fe 的晶格中的. 当 B 含量继续增大时, 样品的 X 射线衍射图变得较为复杂. 除了  $\alpha$ -Fe 特征峰外, 还出现了金属间化合物 FeB 相的特征峰 (见 4<sup>#</sup> 和 5<sup>#</sup> 样品), 并且随着 B 含量的增加, 这些第二相的衍射峰强度也逐渐增大.

另一方面与标准的 Fe 衍射峰相比, FeB 合金颗粒的衍射峰有较大幅度的展宽, 这种展宽主要是在合金化过程中颗粒的细化造成的. 根据 Sherrer 公式<sup>[5]</sup>, 颗粒的平均直径  $D$  与衍射峰宽度  $\beta$  具有如下关系:

$$D = \frac{K \lambda}{\beta \cos \theta}$$
 (1)

其中  $K = 0.89$  为常数,  $\lambda = 1.54 \times 10^{-10}$  m 为 X 射线波长,  $\theta$  为发生衍射的布拉格角度.

由 X 射线衍射峰宽和 Sherrer 公式可求出颗粒样品的平均尺寸, 结果列于表 2 中.

这样从 SEM 照片, 看到 FeB 合金颗粒的尺寸在几百纳米到几微米

表 2 颗粒平均尺寸

Table 2 Average size of grains					
样品	1 <sup>#</sup>	2 <sup>#</sup>	3 <sup>#</sup>	4 <sup>#</sup>	5 <sup>#</sup>
$D / \text{nm}$	9.3	10.9	9.7	10.4	11.2

之间; 而从 X 射线衍射分析, 颗粒的尺寸为 10 nm 左右. 因此, 可以认为 FeB 颗粒实际上是由许多尺寸为 10 nm 左右纳米晶微粒组成的二次粒子.

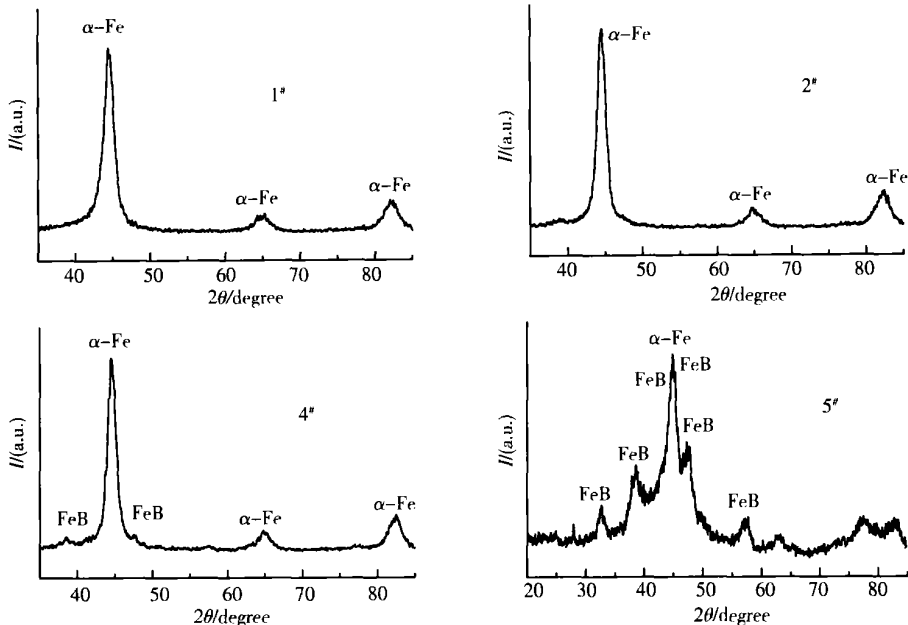


图 2 FeB 合金的 XRD 谱  
Fig.2 XRD diffraction patterns of FeB alloy

2 纳米晶 FeB 合金颗粒的直流磁性和微波电磁性能测量

2.1 纳米晶 FeB 合金颗粒饱和磁化强度  $\sigma_s$  的测量

利用振动样品磁强计 (VSM), 对颗粒样品的饱和磁化强度  $\sigma_s$  进行了测量, 结果见表 3

为了便于比较, 在表 3 中列入了 Fe 颗粒的  $\sigma_s$ . 根据表 3 作  $\sigma_s \sim B$  (at %) 图. 由图 3 可见, 由于 B 含量的增加, FeB 合金颗粒的饱和磁化强度  $\sigma_s$  逐渐减小. 当 B 含量在 10~ 20 at % 时,  $\sigma_s$  减小的更为迅速. 对照 X 射线衍射图可知, 在此区间内, B 含量增加的同时, 样品中还出现了弱磁性的金属间化合物相. 由于这种第二相的产生, 使得  $\sigma_s$  迅速减小. 当 B 含量大于 20% 时, 随 B 含量的变化  $\sigma_s$  逐渐趋于平缓.

2.2 纳米晶 FeB 合金颗粒的微波磁性测量

实验采用环氧树脂作为 FeB 合金粉末的粘结剂, 两者经充分调和后, 制成环状同轴试样. 其中 FeB 合金粉末的重量比固定为 87%; 测量的频率范围为 2~ 18 GHz 图 4 是 1#~ 5# 样品有效磁导率  $\mu$  ( $\mu' - \mu''$ ) 的频率响应曲线, 由图可见 FeB 合金颗粒的磁损耗  $\mu''$ , 在相同的重量百分比的情况下, 随 B 含量的变化较为复杂, 其中 2# 试样的有效磁导率, 在频率  $f_r = 5.7$  GHz 时, 为  $\mu = 3.06 - j3.44$  根据 Bruggeman 公式<sup>[6, 7]</sup>, 可求出其相应的内禀磁导率达到  $\mu_i = 5.67 - j12.11$ . 表 4 列出了不同 B 含量试样的磁损耗  $\mu''$  峰值及相应的峰值频率  $f_r$ .

为了清楚起见, 将上述数据绘制成  $\mu''$  峰值、 $f_r$  与 B 含量的关系曲线图 5 由图可见, 峰值频率  $f_r$ , 随着 B 含量的增加, 有下降的趋势; 而  $\mu''$  峰值则在 B 含量约为 5at % 达到最大, 然后随着 B 含量的增大而减小. 如引言中所述, 磁性材料的磁导率及其共振频率依赖于  $M_s$  (或  $\sigma_s$ ) 和  $K_{eff}$ . 由于材料成分的改变, 其  $M_s$

表 3 样品的饱和磁化强度  $\sigma_s$   
Table 3 Specific saturation magnetization  $\sigma_s$  of the samples

样品	Fe	1#	2#	3#	4#	5#
$\sigma_s / (\text{emu/g})$	190.2	184.3	175.1	137.7	108.8	89.8

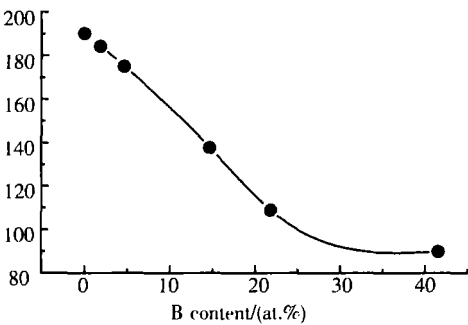


图 3 FeB 合金颗粒的  $\sigma_s$  随 B 含量的变化曲线  
Fig.3 B content dependence of  $\sigma_s$  for FeB alloy grains

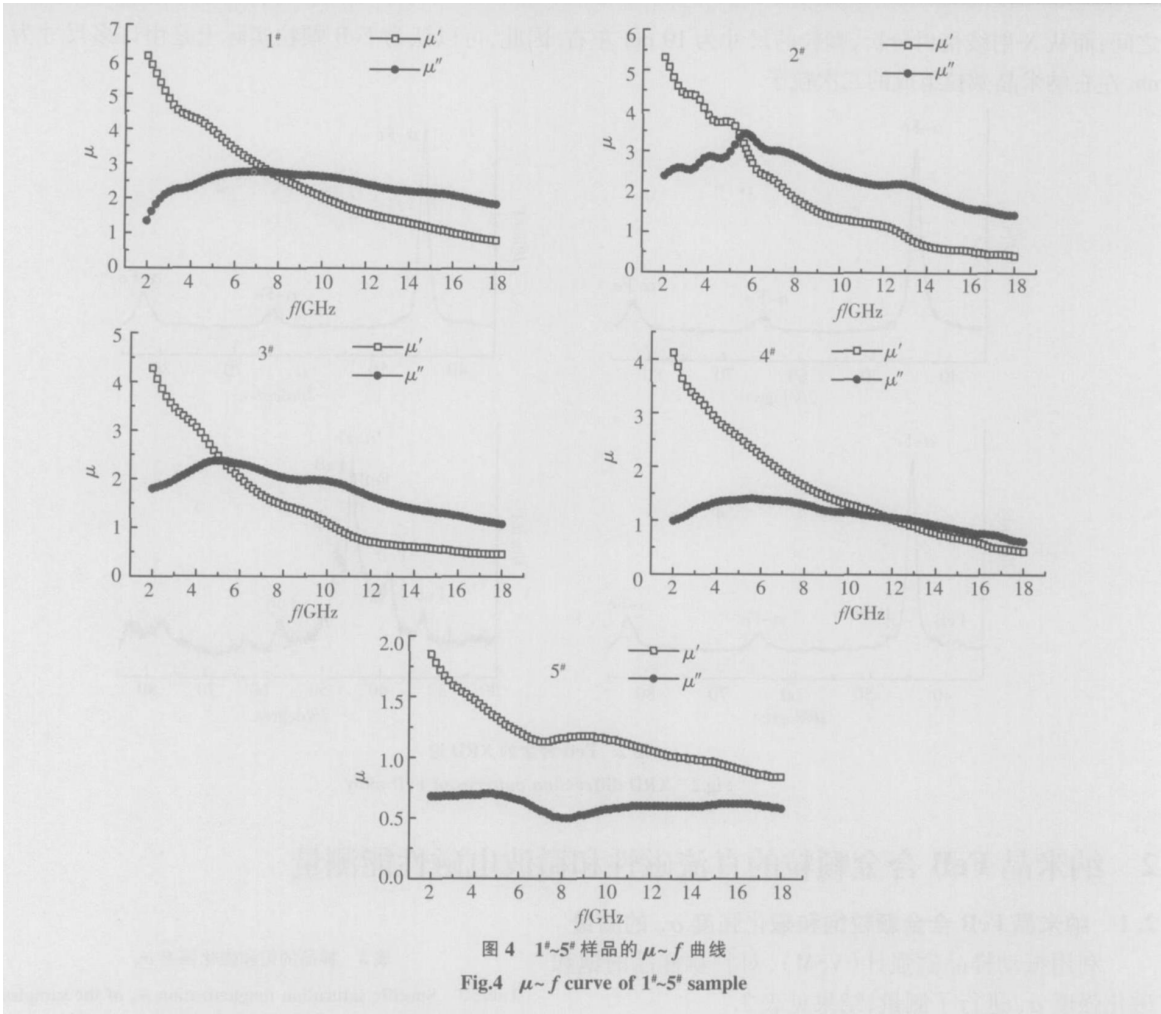


表 4 1<sup>#</sup>~5<sup>#</sup> 样品的磁损耗  $\mu''$  峰值及其相应的频率  $f_r$   
Table 4 The peak value of magnetic dissipation  $\mu''$  and relevant frequency  $f_r$  of 1<sup>#</sup>~5<sup>#</sup> sample

样品	1 <sup>#</sup>	2 <sup>#</sup>	3 <sup>#</sup>	4 <sup>#</sup>	5 <sup>#</sup>
$\mu''$ 峰值	2.78	3.44	2.37	1.41	0.70
$f_r$ /GHz	7.0	5.7	5.0	5.6	4.6

和  $K_{\text{eff}}$  均随之变化. 当  $M_s$  与  $K_{\text{eff}}$  之比达到最大值时, 就有可能获得大的磁导率和低的共振频率. 基于上述分析可以推断, 纳米晶 FeB 合金颗粒在 B 含量约为 5at % 时, 其  $M_s$  与  $K_{\text{eff}}$  最为优化. 由于有效各向异性常数  $K_{\text{eff}}$  包含了材料的磁晶各向异性、应力各向异性和形状各向异性等, 目前尚无法精确测量. 因此, 究竟哪种各向异性在纳米晶 FeB 合金颗粒的微波磁性中起主导作用仍有待于进一步研究.

3 结论

利用机械合金化方法成功的制备了 FeB 合金颗粒, 这些颗粒是由 10 nm 左右的纳米晶微粒构成的. 在 B 含量小于 10at % 时, FeB 合金颗粒具有单一的 fcc  $\alpha$ -Fe 结构. 当 B 含量大于 20at % 时, 样品中逐渐产生金属间化合物 FeB 相. 这种弱磁性的第二相的出现会对材料的磁性产生不利影响.

对纳米晶 FeB 合金颗粒的微波磁性研究表明, 样品的有效磁损耗  $\mu''$  在 B 含量约为 5at % 时, 达到最大值. 当 B 含量进一步增加时, 样品的  $\mu''$  逐渐减小. 这种现象可用磁共振理论定性解释.

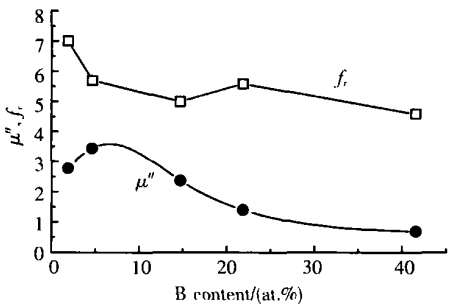


图 5 磁损耗峰值  $\mu''$ ,  $f_r$  与 B 含量的关系曲线  
Fig.5 B content dependence of peak value  $\mu''$  and  $f_r$

[参考文献]

[1] Chien C L. Granular Solids[M] / Hadjipanayis G C, Prinz G A. Science and Technology of Nanostructured Magnetic Materials. New York: Plenum, 1991: 477-479.

[2] Zhang Haijun, Liu Zhichao, Ma Chengliang. Complex permittivity, permeability, and microwave absorption of Zn and Ti substituted barium ferrite by citrate sol-gel process[J]. Materials Science and Engineering: B, 2002, 96(3): 289-295.

[3] 廖绍彬. 铁磁学(下册)[M]. 北京: 科学出版社, 1992: 6-48.

[4] Zhou Tiejun. Preparation of nanocrystalline Fe-Si alloys and their magnetic properties[J]. J Magn Magn Mater, 1996, 164(1/2): 219-224.

[5] 马礼敦. 近代 X 射线多晶体衍射——实验技术与数据分析[M]. 北京: 化学工业出版社, 2004: 498-500.

[6] Stefano Giordano. Effective medium theory for dispersions of dielectric ellipsoids[J]. Journal of Electrostatics, 2003, 58(1/2): 59-76.

[7] 高正娟, 曹茂盛, 朱静. 复合吸波材料等效电磁参数计算的研究进展[J]. 宇航材料工艺, 2004(4): 12-15.

[责任编辑: 丁 蓉]

“光纤询问式 MEMS 压力传感技术研究”  
项目成果通过省级验收和鉴定

2006 年 12 月 31 日, 我校物理科学与技术学院王鸣教授主持的江苏省高新技术项目“光纤询问式 MEMS 压力传感技术研究”顺利通过了省级验收和鉴定。

项目组在光纤 MEMS(微机电系统)压力传感器的原理、设计与加工方面取得了多项创新成果。首次提出了多层压力敏感膜的光纤 MEMS 压力传感器模型, 发明了独特的硅膜-光纤微腔结构, 研制出样品及相应的工艺, 提出和解决了光纤 MEMS 压力传感器解调及复用的关键技术。研究结果已经在国内外权威学术期刊上发表系列论文, 被 SCI 收录 6 篇(其中 2 区 3 篇), EI 收录 6 篇。已申请国家发明专利 5 项(其中 4 项已授权)。

来自清华大学、南京大学、东南大学、南京理工大学、南京邮电大学、电子第 55 研究所和南京玻璃纤维研究院的知名学者和专家参加了验收和鉴定会。鉴定委员会认为项目组在光纤 MEMS 压力传感的技术方面开展了有特色的研究, 研究成果达到国际先进水平。