

# Nd<sub>x</sub>Fe<sub>94-x</sub>B<sub>6</sub>微波磁导率的研究

谢建良, 冯少东, 连利仙

(电子科技大学电子薄膜与集成器件国家重点实验室 成都 610054)

**【摘要】**采用熔体快淬法制备成分为Nd<sub>x</sub>Fe<sub>94-x</sub>B<sub>6</sub>( $x=9.5, 10.5, 11.5$ )的纳米复相Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B/ $\alpha$ -Fe材料。研究了稀土Nd含量对该材料的微波磁导率和自然共振峰频率的影响。采用XRD、VSM、矢量网络分析仪等方法对材料相组成、微结构、静态磁性能及微波磁导率特性进行测试分析。结果表明:当Nd的原子百分含量由9.5%增加至11.5%,材料的自然共振峰频率由6.53 GHz增加至15.91 GHz,微波磁导率 $\mu''_{\max}$ 由1.59( $x=9.5$ )降至0.56( $x=11.5$ )。

**关键词** 微波磁导率; 纳米晶; Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B/ $\alpha$ -Fe; 双相  
**中图分类号** TB34 **文献标识码** A

## Study of Microwave Permeability of Nd<sub>x</sub>Fe<sub>94-x</sub>B<sub>6</sub> Materials

XIE Jian-liang, FENG Shao-dong, and LIAN Li-xian

(The Key Laboratory of Electronic Thin Films and Integrated Devices, University of Electronic Science and Technology of China Chengdu 610054)

**Abstract** Nanocomposites consisting of particles of Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B and  $\alpha$ -Fe have been prepared from a compound Nd<sub>x</sub>Fe<sub>94-x</sub>B<sub>6</sub> ( $x=9.5, 10.5, 11.5$ ) by melt-spinning techniques. The effect of Nd content on microwave permeability and the nature resonance frequency was studied. Phase structure, microstructure, static magnetic property, and microwave electromagnetism property were analyzed by the ways of XRD, VSM, and a vector network analyzer. The result shows that the nature resonance frequency of the nanocomposites increase from 6.53 GHz to 15.91 GHz, and the imaginary permeability ( $\mu''$ ) of the nanocomposites gradually reduces from 1.59 to 0.56 with the increase of Nd content from 9.5% to 11.5%.

**Key words** microwave permeability; nanocrystalline; Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B/ $\alpha$ -Fe; two phases

随着现代技术的发展,对吸波材料的要求是“薄、轻、宽、强”,但是传统的吸波材料远远不能满足上述要求。因此,世界各国都在竞相开发高性能的新型吸波材料。纳米晶Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B/ $\alpha$ -Fe双相材料兼具有硬磁相Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B高磁晶各向异性场 $H_A$ 和软磁相 $\alpha$ -Fe高饱和磁化强度的优点,可以通过纳米尺度下双相间的交换耦合作用,使材料具有更加优异的磁性能<sup>[1]</sup>,是永磁材料领域研究的热点。

日本东北大学和大坂大学对 $\alpha$ -Fe/SmO、Y<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B/Fe<sub>3</sub>B、 $\alpha$ -Fe/Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>等纳米双相材料的吸波特性进行了初步研究。研究表明,上述双相材料在0.73~40 GHz范围内,对电磁波有优良的吸波性能,以及宽的吸收频带<sup>[2-6]</sup>。但是,目前关于Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B/ $\alpha$ -Fe双相材料微波磁导率的研究在国内外报道尚少,本文就稀土Nd含量对纳米晶Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B/ $\alpha$ -Fe双相材料微波磁导率和自然共振频率的影响进行研究。

## 1 样品制备及实验方法基

原料选用99.95%的纯金属钕、99.4%的纯金属铁以及工业硼铁(含硼19.16%)。采用NMS-0.01型真空感应熔炼炉熔炼母合金;用NMS-II型熔体超速急冷炉以辊轮线速度28 m/s快淬得到非晶薄带。使用NMS-III型旋转式真空连续晶化炉将粉碎后的非晶薄带在700℃下晶化处理,得到纳米晶Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B/ $\alpha$ -Fe双相材料。最后将磁粉与介质球按料:球=1:20的比例放入球磨罐中,并加入一定量乙二醇作为过程控制剂PCA,球磨30 h,得到颗粒尺寸为亚微米级的纳米晶Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B/ $\alpha$ -Fe双相粉末材料。

粉末样品的相结构采用Philips X' Pert Pro X射线衍射仪(XRD)测量,并根据Scherrer公式计算晶粒尺寸,采用振动样品磁强计(VSM)测量材料的静态磁性能。

收稿日期:2006-06-15; 修回日期:2007-03-25

基金项目: 部级预研基金

作者简介: 谢建良(1967-),男,副教授,主要从事电子功能复合材料方面的研究。

将球磨后磁粉与石蜡按5:1的质量比混合, 压制成外径7.0 mm、内径3.0 mm、厚度3.0 mm的环状样品。使用Agilent 8720E型矢量网络分析仪测定样品在500 MHz~18 GHz频段的微波磁导率。

## 2 实验结果及分析

Nd<sub>x</sub>Fe<sub>94-x</sub>B<sub>6</sub>( $x=9.5, 10.5, 11.5$ )样品X射线衍射图谱如图1所示。图谱分析表明, 制得材料由Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B和 $\alpha$ -Fe双相构成。由Scherrer计算可得其平均晶粒尺寸在10 nm左右。随着Nd含量的增加, 硬磁相Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B的衍射峰强度相对增强, 变得更加尖锐, 软磁相 $\alpha$ -Fe的衍射峰强度则相对减弱, 表明Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B相比比例含量增加而 $\alpha$ -Fe相比比例含量减少。

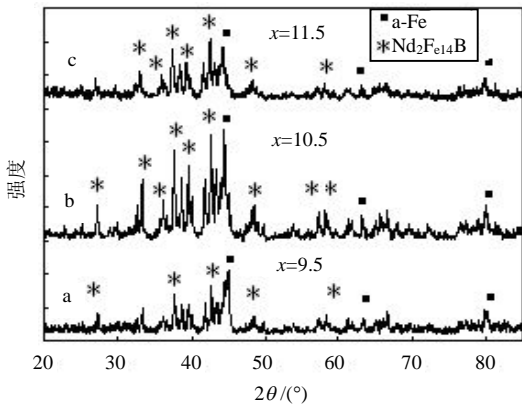
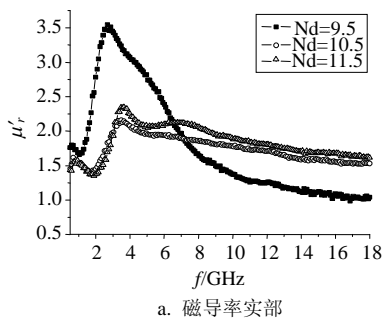


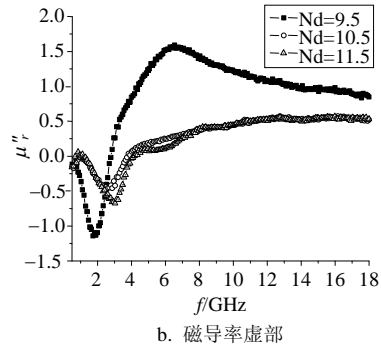
图1 Nd<sub>x</sub>Fe<sub>94-x</sub>B<sub>6</sub>快淬薄带经700°C退火40 min后的X射线衍射图

Nd<sub>x</sub>Fe<sub>94-x</sub>B<sub>6</sub>样品在0.5~18 GHz频段的微波磁导率曲线如图2所示。由图可知, 磁导率实部( $\mu'_r$ )的峰值在 $x=9.5$ 时较高, 共振峰频带较窄; 磁导率实部在 $x=10.5$ 和 $x=11.5$ 时相差不大。

磁导率虚部 $\mu''_r$ 在相对较宽的频段(3~18 GHz)内均保持较高的值, 随着Nd含量的增加,  $\mu''_r$ 值下降。 $\mu''_r$ - $f$ 曲线中, 自然共振峰位置以及 $\mu''_r$ 最大值如表1所示。



a. 磁导率实部



b. 磁导率虚部

图2 Nd<sub>x</sub>Fe<sub>94-x</sub>B<sub>6</sub>样品的微波磁导率曲线

表1 Nd含量不同的Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B/ $\alpha$ -Fe自然共振频率( $f_r$ )位置及 $\mu''_r$ 最大值

$x$ (%)	$f_r$ /GHz	$\mu''_{r \max}$
9.5	6.53	1.59
10.5	12.75	0.57
11.5	15.91	0.56

由表1可知, 随着Nd的原子百分含量由9.5%增加至11.5%, 硬磁相Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B体积含量相对增加, 而软磁相 $\alpha$ -Fe体积含量相对下降, Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B/ $\alpha$ -Fe的微波磁导率虚部 $\mu''_r$ 最大值由1.59( $x=9.5$ )降至0.56( $x=11.5$ );  $f_r$ 值由6.53 GHz( $x=9.5$ )增至15.91 GHz( $x=11.5$ ), 即自然共振峰频率 $f_r$ 随着Nd含量的增加向高频移动。并且随着 $x$ 值的增加, 磁导率随频率变化, 曲线由共振型向弛豫型转变。

Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B/ $\alpha$ -Fe的自然共振频率 $f_r$ 的变化与它的磁晶各向异性场 $H_A$ 有关, 磁导率虚部 $\mu''_r$ 的变化与其饱和磁化强度 $M_s$ 和磁晶各向异性场 $H_A$ 均有关, 即:

$$2\pi f_r = \gamma H_A \tag{1}$$

$$\mu''_r = M_s / (3\mu_0 H_A \alpha) \tag{2}$$

式中  $\gamma$  为旋磁比;  $\mu_0$  为真空磁导率;  $\alpha$  为常数<sup>[2]</sup>。由式(1)可知,  $H_A$  的增大将引起  $f_r$  的增加, 使得Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B/ $\alpha$ -Fe的自然共振频率 $f_r$ 随Nd含量的增加向高频移动。由式(2)可知,  $M_s$  的下降和 $H_A$  的增大将导致 $\mu''_r$  的降低。

硬磁/软磁纳米双相复合材料的饱和磁化强度 $M_s$ 和有效磁晶各向异性常数 $K_{\text{eff}}$ 与软、硬磁双相的比例分数密切相关, 即:

$$M_s = f_s M_s^s + (1 - f_s) M_s^H \tag{3}$$

$$K_{\text{eff}} = \int \varphi(\gamma) K_1(\gamma) \varphi(\gamma) d\gamma = \langle K_1(\gamma) \rangle = f_s K_s + (1 - f_s) K_H \tag{4}$$

式中  $M_s^s$  和  $K_s$  表示软磁相 $\alpha$ -Fe的饱和磁化强度和

磁晶各向异性常数;  $M_s^H$  和  $K_H$  表示硬磁相  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  的饱和磁化强度和磁晶各向异性常数;  $f_s$  表示软磁相的体积分数;  $M_s^s > M_s^H$ ,  $K_s < K_H$  [7-9]。

在试验中, Nd含量的增加, 引起了高磁晶各向异性场的硬磁相  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  体积含量的增加和高饱和磁化强度的软磁相  $\alpha\text{-Fe}$  体积含量  $f_s$  的下降, 如图1所示。结合式(3)和式(4)可知, 软磁相  $\alpha\text{-Fe}$  体积含量  $f_s$  的降低使得  $M_s$  下降,  $K_{\text{eff}}$  上升。

为了进一步确定样品的饱和磁化强度和磁晶各向异性的变化, 进行了样品的静态磁性能测定实验, 实验结果如图3所示。由图可见, 随Nd含量的增加, 饱和磁化强度  $M_s$  明显下降, 矫顽力显著升高。而矫顽力主要反映了磁晶各向异性的强弱。因此磁滞回线中矫顽力和饱和磁化强度的变化, 与前面所作的软磁相  $f_s$  的降低使  $M_s$  下降和  $K_{\text{eff}}$  上升的分析结果相一致。

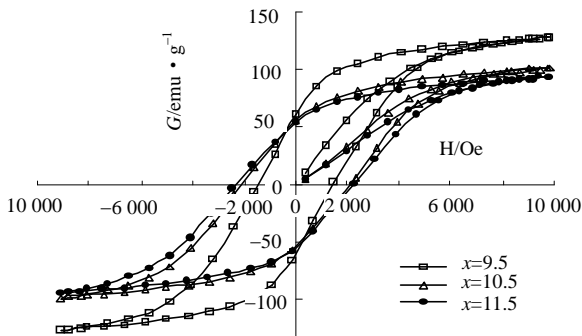


图3  $\text{Nd}_x\text{Fe}_{94-x}\text{B}_6$ 样品的磁滞回线图

### 3 结论

随着Nd含量的增加(9.5~11.5), 纳米晶  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$  双相材料的微波磁导率下降, 其自然共振吸收峰向高频移动(6.53~15.91 GHz)。通过Nd含量的调节, 硬磁相  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  和软磁相  $\alpha\text{-Fe}$  的比例含量发生变化, 引起  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$  双相材料饱和磁化强度和磁晶各向异性发生变化, 导致双相材料微波磁导率虚部  $\mu_r''$  变化。并且可以通过双相含量的变化, 来调节材料磁晶各向异性的大小, 以此来控制自然共振吸收峰  $f_r$  的移动。

### 参 考 文 献

- [1] 周寿增, 张茂才. 纳米晶复合永磁材料(一)[J]. 磁性材料及器件, 1995, 26(4): 11-15.  
ZHOU Shou-zeng, ZHANG Mao-cai. Nanocomposite permanent magnet materials ( I ) [J]. Journal of Magnetic Materials and Devices, 1995, 26(4): 11-15.
- [2] MAEDA T, SUGUMOTO S, KAGOTANI T, et al. Effect of the soft/hard exchange interaction on natural resonance frequency and electromagnetic wave absorption of the rare earth-iron-boron compounds[J]. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 2004, 281: 195-205.
- [3] SUGIMOTO S, MAEDA T, BOOK D, et al. GHz microwave absorption of a fine  $\alpha\text{-Fe}$  structure produced by the disproportionation of  $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$  in hydrogen[J]. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 2002, 330: 301-306.
- [4] LIU Jiu-rong, ITOH M, JIANG Jian-zhuang, et al. A GHz range electromagnetic wave absorber with wide bandwidth made of  $\text{FeCo}/\text{Y}_2\text{O}_3$  nanocomposites[J]. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 2004, 271: 147-152.
- [5] LIU Jiu-rong, ITOH M, JIANG Jian-zhuang, et al. Electromagnetic wave absorption properties of  $\epsilon\text{-Fe}_3\text{N}/\text{Y}_2\text{O}_3$  nanocomposites derived from  $\text{Y}_2\text{Fe}_{17}$  intermetallic compound[J]. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 2004, 277: 251-256.
- [6] LIU Jiu-rong, ITOH M, JIANG Jian-zhuang, et al. Electromagnetic wave absorption properties of  $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x/\text{Y}_2\text{O}_3$  ( $x=0.33, 0.5, 0.67$ ) nanocomposites in gigahertz range[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2005, 389: 265-269.
- [7] SCHREFFL T, FIDLER J, KRONMULLER H. Remanence and coercivity in isotropic nanocrystalline permanent magnets[J]. Physical Review B, 1994, 49: 6100-6113.
- [8] SKOMSKI R, COEY J M D. Giant energy product in nanostructured two phase magnets [J]. Physical Review B, 1993, 48: 15812-15816.
- [9] 冯维存, 高汝伟, 韩广兵, 等.  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$  纳米复合永磁材料的有效各向异性[J]. 功能材料, 2004, 35(3): 288-290.  
FENG Wei-cun, GAO Ru-wei, HAN Guang-bin, et al. Effective anisotropy in  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$  nanocomposite permanent material[J]. Journal of Functional Materials, 2004, 35(3): 288-290.

编辑 熊思亮