

# $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 软磁复合材料的磁性及损耗特性\*

王文彪 吴鹏 乔亮† 吴伟 涂成发 杨晟宇 李发伸

(兰州大学应用磁学研究所, 磁学与磁性材料教育部重点实验室, 兰州 730000)

(2022 年 12 月 10 日收到; 2023 年 5 月 7 日收到修改稿)

软磁复合材料在光伏逆变器、新能源汽车及充电桩等新兴电力电子行业的应用前景广阔. 目前研究者们聚焦于开发新型软磁复合材料, 达到匹配以 SiC 和 GaN 为主的第 3 代高频宽禁带半导体的目标. 本文利用氨气氮化羰基铁粉制备得到高电阻率的  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N, 并证实其具备优异的软磁性能, 对  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 进行球磨处理使其成为静磁易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 粉体, 所获得的易面粉体与聚氨酯 (PU) 混合制成软磁复合材料. 与未球磨静磁易面化处理的非易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合材料相比, 静磁易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 软磁复合材料具有更高的磁导率, 更低的功率损耗. 与同类软磁复合材料相比, 通过氮化工艺降低磁性铁颗粒内涡流效应, 静磁易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 软磁复合材料具有优异的高频软磁性能. 静磁易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 为软磁复合材料匹配第 3 代宽禁带半导体的高频应用提供了一种新思路.

**关键词:**  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N, 氮化, 球磨, 功率损耗**PACS:** 75.50.Bb, 75.20.En, 72.80.Tm, 75.30.Gw**DOI:** 10.7498/aps.72.20222352

## 1 引言

近年来, 由于以燃油为动力的驱动模式正在逐渐被清洁无污染的电力驱动所取代, 电力设备向着高频化、小型化、集约化、轻量化的方向发展. 磁性材料作为其重要组成部分, 它的磁性能和损耗性能备受关注. 过去由于功率半导体工作频率低, 磁性材料在低频下可以正常工作. 随着 SiC 和 GaN 为主的第 3 代宽禁带半导体 (WBG) 的逐渐市场化, 开关电源以及片上电压等其高频开关损耗在电力设备中的总损耗占比显著降低, 功率效率大幅提高. WBG 的出现将工作频率推向 MHz 频段, 软磁材料在 MHz 频段下损耗急剧升高, 因此目前没有任何一种软磁材料能完全释放 WBG 的潜力, 这使得高频低损耗的高频软磁材料的开发显得更加紧迫<sup>[1]</sup>. 软磁复合材料 (SMCs) 是将磁性基体与高电

阻率的绝缘材料按比例均匀混合, 使得更易压制成指定形状, SMCs 电阻率的增大使其涡流损耗大幅减小, SMCs 的高磁通密度又保证其具有较高的功率转换效率, 因此 SMCs 有望充分释放 WBG 的潜力<sup>[2]</sup>. SMCs 中的磁性基体主要以铁基化合物为主, 电阻率低、涡流损耗大, 为此研究者们希望找到一种具有优异磁性能且电阻率高的基体材料. 由于  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 的 N 原子进入 Fe 晶格间隙, 其电阻率由铁的  $9.78 \times 10^{-8} \Omega \cdot m$  增至  $1.165 \times 10^{-6} \Omega \cdot m$ <sup>[3]</sup>, 且拥有与铁相当的饱和磁化强度 (1.86 T) 和较低的矫顽力 (55.4 Oe, 1 Oe = 79.5775 A/m), 其居里温度为 767 K, 具有良好的稳定性和抗氧化性能, 是一种理想的 SMCs 新型磁性基体材料<sup>[4-7]</sup>.

铁氮化合物最早应用于钢铁冶金领域. 1972 年, Kim 和 Takahashi<sup>[8]</sup> 研究发现饱和磁化强度高达 2.3 T 的 Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> 在室温下不稳定, 因此具有高居里温度的  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 引起了大家的注意<sup>[5-7,9]</sup>. 理论

\* 国家重点研发计划 (批准号: 2021YFB3501302)、国家自然科学基金 (批准号: 51731001) 和白云鄂博稀土资源研究与综合利用国家重点实验室重点研发项目资助的课题.

† 通信作者. E-mail: qiaoliang@lzu.edu.cn

方面,  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 是体心立方结构, N 原子占据体心位置, 由于其结构简单, 学者利用密度泛函理论的局域密度近似对其进行了大量的研究, 得到了其不同位置的 Fe 原子磁矩和  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 的总磁矩. 成泰民等<sup>[10]</sup>通过密度泛函理论研究了高压下的 Fe<sub>4</sub>N 晶态合金, 并从理论的角度预测了 Fe<sub>4</sub>N 的高压新相  $P2/m$ -Fe<sub>4</sub>N. 在磁性材料的静磁性能拟合方面, 由于 Jiles-Atherton (J-A) 模型的拟合参数少, 且每个参数均有具体的物理意义, 使其被广泛应用, 但是对  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 的磁滞回线进行 J-A 的拟合却鲜有报道<sup>[11]</sup>. 在实验方面, Yu 等<sup>[12]</sup>对  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物的电磁波吸收性能进行研究, 当吸波层厚度为 3 mm 时, 在 3.5 GHz 下得到最小反射损耗 -33 dB. 瞿志学等<sup>[13]</sup>通过对  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 进行扁平化处理在一定程度上改善了其电磁性能, 使得样品的磁导率的实部和虚部略有增大. Narahara 等<sup>[14]</sup>通过分子束外延法成功在 MgO(001) 衬底上长出了 (100) 取向的  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N, 通过点接触安德鲁反射测得  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 的低温自旋极化率为 -59%. 卢启海等<sup>[15]</sup>对  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 薄膜的晶相转变进行研究, 发现从室温 -800 °C,  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 薄膜经历了 5 次相变, 并最终确定在氮气气氛下溅射得到单相  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 薄膜的最佳温度. 1996 年, 薛德胜等<sup>[16]</sup>在氨气/氢气混合气氛下研究了  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 的制备, 并测得不同条件下的穆斯堡尔谱, 得到了不同条件下氮化产物的超精细场参数, 实验结果证明:  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 的制备工艺中氨氢比和热处理温度是生成单相  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 的主要影响因素. 随后研究了 Ni 和 Sn 取代的  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 的结构和超精细相互作用, 通过对 X 射线衍射分析穆斯堡尔谱图发现, Sn 和 Ni 会优先取代角位置的 Fe 原子<sup>[17,18]</sup>. 大多数  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 均采用氨气/氢气混合气

氛制备, 氢气的加入使得实验的危险性大大增加, 此外目前对  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 的高频损耗研究寥寥无几<sup>[19]</sup>.

易面软磁材料是一种具有特殊结构的材料, 它的磁矩会“平躺”在同一个类型的平面内, 这个平面被称为易磁化面. 在易磁化面上磁化, 磁化强度会更容易达到饱和, 并且具有较高的磁导率. 通常将磁晶各向异性导致的易面材料称之为磁晶易面材料, 将形状各向异性导致的易面材料称为静磁易面材料. 王国武等<sup>[20]</sup>研究发现, 通过机械球磨 (例如行星球磨), 球磨介质和球形金属粉末发生碰撞、挤压、摩擦等作用, 球形金属粉末发生塑性变形, 得到高径厚比的片状粉末, 这种高径厚比的片状结构, 在零场下磁矩会受到退磁作用的影响“躺”在面内, 从而形成易磁化面, 制备得到易面材料. 当在采用易面软磁材料制备成易面软磁复合材料的过程中进行旋转取向并压制成型, 所有片状粉末的易磁化面都统一近似平行于环所在的平面.

本文以具有良好磁性能且高电阻率的  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 为研究对象, 首先利用氨气氮化羰基铁粉的方法, 制备得到纯相  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N, 并对氮化得到的纯相  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 进行球磨处理; 然后与聚氨酯 (PU) 混合得到  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N/PU 复合材料, 研究球磨静磁易面对  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N/PU 复合材料的软磁性能及损耗的影响.

## 2 实验

图 1 为  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物的制备示意图. 实验原料为球形羰基铁粉, 实验步骤如下.

1) 称量 20 g 球形羰基铁粉并置于管式炉中, 用 Ar<sub>2</sub> 洗气 3 次, 抽至  $5 \times 10^{-3}$  Pa, 加热至 400—800 °C 并通入氨气 (200 mL/min). 将所得样品研磨并过两百目筛网 (约 75  $\mu$ m).

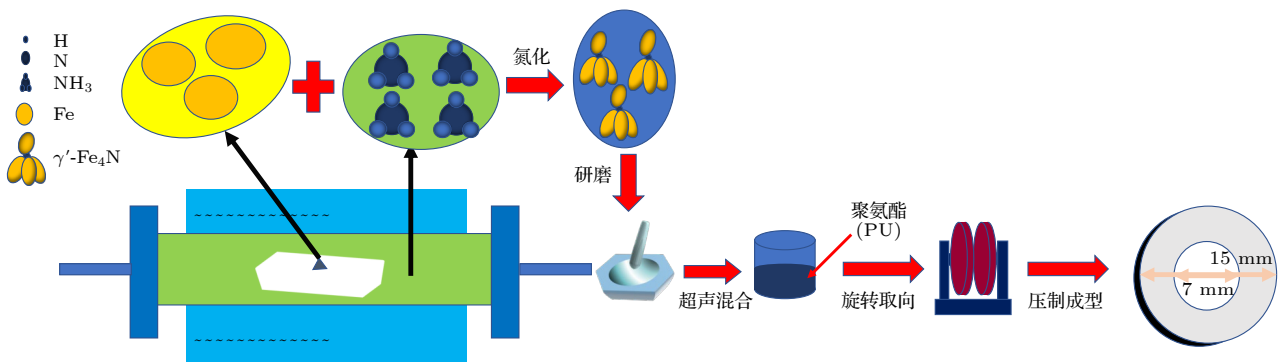


图 1  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物制备示意图

Fig. 1. Schematic diagram of the preparation of  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N composite.

2) 将得到的纯相  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 分别放进球磨机球磨 12 h.

3) 将球磨后的  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 和未球磨的  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 粉末都与 PU (体积分数为 35 %) 混合, 然后对球磨后的  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 和 PU 的混合物进行取向, 最后以相同的工艺分别制成 7 mm×15 mm 和 3.04 mm×7.00 mm 的环.

实验将采用 X 射线衍射仪 (CuK $\alpha$ , 飞利浦) 来对氮化样品进行物相检测, 用扫描电子显微镜 (SEM) 进行微观形貌表征. 磁滞回线将由振动样品磁强计 VSM 来进行测定, 动态磁谱采用阻抗分析仪 (Agilent E4991B) 和矢量网络分析仪 (Agilent E8363B) 共同测量, 最后将利用精密  $BH$  ( $B$  为磁通密度,  $H$  为磁场强度) 分析仪来测定易面与非易面的  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物 (100—1000 kHz) 的功率损耗.

### 3 结果与讨论

如图 2 所示, 当反应温度为 400 °C 时, 只有部分羰基铁粉合成了  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N, 有部分生成物为 Fe<sub>3</sub>N, 还有未反应的铁; 当反应温度高于 500 °C 时, 大部分反应物为  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N, 仅有小部分为未反应的羰基铁粉. 当反应温度为 600 °C 左右时, 杂相较少, 因此生成纯相  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 的最佳温度约为 600 °C. 氮化反应是由外向内反应, 当氮化温度较低时, 首先生成 Fe<sub>3</sub>N, 随着氮化温度的升高, Fe<sub>3</sub>N 转化为  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N; 温度继续升高,  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 又分解为铁粉, 反应温度为 650 °C 时已经生成的  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 不会分解为羰基铁粉或 Fe<sub>3</sub>N. 因此在延长反应时间, 减小羰基铁粉含量的条件下获得了纯相  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N, 故反应温度是制备纯相  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 粉体最关键的因素.

图 3(a) 为非易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 粉末的微观结构, 图 3(b) 为易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 粉末的形态和微观结构, 图 3(c) 为单个  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 颗粒的侧面图. 非易面  $\gamma'$ -

Fe<sub>4</sub>N 的颗粒呈球形, 直径在 1—3  $\mu$ m 之间, 径厚比低, 而球磨之后的易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 颗粒呈片状, 直径约为 2  $\mu$ m, 厚度约为 0.3  $\mu$ m, 径厚比变得很大.

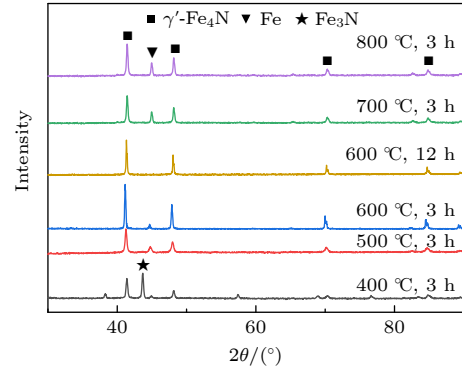


图 2 不同温度、时间下氮化产物的 X 射线衍射图  
Fig. 2. X-ray diffraction patterns of nitriding products synthesized under different temperatures and times.

根据 J-A 模型理论:

$$\frac{dM}{dH} = \frac{1}{1 + c \mu_0 \delta k - \alpha (M_{an} - M)} \frac{1}{(M_{an} - M)} (M_{an} - M) + \frac{c}{1 + c} \frac{dM_{an}}{dH}, \quad (1)$$

式中,  $M$  为实际磁化强度.  $M_{an}$  为无磁滞磁化强度, 表达式为

$$M_{an} = M_s \left[ \coth \left( \frac{H + \alpha M_{an}}{a} \right) - \left( \frac{a}{H + \alpha M_{an}} \right) \right],$$

其中,  $H$  为外加场;  $\alpha$  为实验准确测定的磁畴之间的耦合系数;  $a$  为无磁滞磁化曲线形状参量,  $a = K_B T / (\mu_0 \langle m \rangle)^{[1]}$ . 这里,  $K_B$  为玻尔兹曼常数,  $T$  为温度,  $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7}$ ;  $\langle m \rangle$  为典型磁畴平均尺寸.  $n$  为单位体积钉扎位的浓度,  $k = n\epsilon\pi / (2m)$  表征矫顽力,  $c$  由正常和无磁滞磁化曲线的初始微分磁化率的比值确定,  $\mu_0$  为真空磁导率,  $\delta$  为方向系数, 当  $dH/dt > 0$  时,  $\delta = 1$ ; 当  $dH/dt < 0$  时,  $\delta = -1$ .

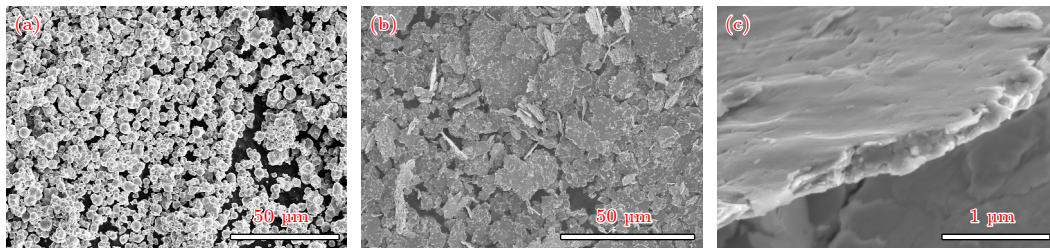


图 3 (a) 非易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 颗粒的 SEM 图像; (b) 易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 颗粒的 SEM 图像; (c) 单个易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 颗粒侧面的 SEM 图像  
Fig. 3. (a) SEM image of none easy plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N particles; (b) SEM image of easy plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N particles; (c) SEM image of a single easy plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N particle profile.

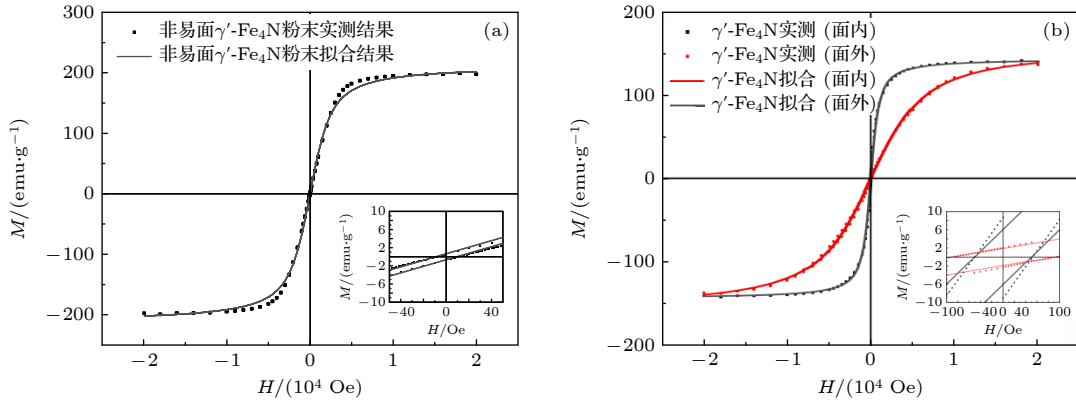

 图 4 磁滞回线的实测及 J-A 模型拟合结果 (a) 非易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 粉末; (b) 易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物面内以及面外

 Fig. 4. Hysteresis loop measured and J-A model fitted: (a) None easy plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N powder; (b) in-plane and out-of-plane of easy plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N composite.

利用 J-A 模型对非易面的  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 粉末进行拟合, 拟合结果与实测结果如图 4(a) 所示, 非易面的  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 饱和磁化强度为 185.6 emu/g, 矫顽力为 31.658 Oe. 图 4(b) 为易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物面内面外磁滞回线的实测及 J-A 模型拟合结果. 表 1 为非易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 粉末及易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物的 J-A 拟合参数对比, 由表征矫顽力  $k$  值的变化可以看出, 对其进行球磨处理后的  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物, 矫顽力增大, 这是因为  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 获得了高径厚比的各向异性, 以及球磨过程中引入了应力. 从图 4(b) 可以看出, 不同方向的磁滞回线大不相同, 面内要比面外更容易磁化. 面内的磁化强度在大约 5000 Oe 的磁场下就可以达到饱和, 但面外磁化到饱和时外场强度为  $1.8 \times 10^4$  Oe. 并且面外相较于面内, 剩磁有所减小, 矫顽力明显增大.

通过测量面内和面外方向的磁滞回线, 依据取向度 (DPO) 公式<sup>[21]</sup>:

$$\text{DPO} = \frac{M_s - M_{r,z-zis}}{M_s} \times 100\%, \quad (2)$$

 表 1 非易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 粉末及易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 的 J-A 拟合参数

 Table 1. J-A fitting parameters of none easy plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N powder and easy plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N composite.

	非易面 $\gamma'$ -Fe <sub>4</sub> N	易面 $\gamma'$ -Fe <sub>4</sub> N (面内)	易面 $\gamma'$ -Fe <sub>4</sub> N (面外)
J-A拟合参数 $a/10^4$	60.0	3.2	20.0
J-A拟合参数 $k/10^3$	3.1	4.0	12.0
$M_r/(\text{emu}\cdot\text{g}^{-1})$	3.496	8.840	2.170
$H_c/\text{Oe}$	31.658	51.293	91.460

可以得出易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物的取向度为 98.46%, 说明  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 是典型的静磁易面软磁材料. 根据 SEM 结果可知颗粒呈片状, 在垂直与面外的方向颗粒尺寸远小于面内的颗粒尺寸, 这也是面外  $a$  值远大于面内的原因. 综合图 4 与表 1 可以发现,  $a$  值与磁化的难易程度相关, 易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 面内磁滞回线的  $a$  最大, 磁滞回线的倾斜度最高. 这说明经过球磨处理后, 静态下易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 的磁导率更高, 更易磁化至饱和.

图 5(a) 为易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 和非易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 的磁谱. 通过磁谱可以看出, 球磨前的非易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物的磁导率实部为 10.5, 而球磨之后的易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物的磁导率实部达到 11.5. 这是由于在球磨过程中,  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 颗粒变成了高径厚比的片状, 使得易面型  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物在旋转取向时更容易将磁矩拉到易面上, 最终导致磁导率的增大.

为了分析磁导率的起源, 对易面和非易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物样品的测量数据进行拟合. 对于一般的多畴结构铁磁体, 磁化过程中同时存在畴壁位移和磁化矢量转动机制. 因此, 铁磁体的磁谱曲线为畴壁位移和磁化矢量转动的磁谱曲线叠加重合的结果. Tsutaoka<sup>[22]</sup> 将畴壁位移和磁化矢量转动引起的磁频散公式结合起来, 得出磁谱拟合公式:

$$\mu' = \mu'_{\text{dw}} + \mu'_{\text{spin}} + 1 = \frac{\omega_{\text{dw}}^2 \chi_{\text{dw}} (\omega_{\text{dw}}^2 - \omega^2)}{(\omega_{\text{dw}}^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \beta^2} + \frac{\omega_{\text{spin}}^2 \chi_{\text{spin}} \left[ (\omega_{\text{spin}}^2 - \omega^2) + \omega^2 \vartheta^2 \right]}{\left[ \omega_{\text{spin}}^2 - \omega^2 (1 + \vartheta^2) \right]^2 + 4\omega^2 \omega_{\text{spin}}^2 \vartheta^2} + 1, \quad (3)$$

$$\mu'' = \mu''_{\text{dw}} + \mu''_{\text{spin}} = \frac{\omega_{\text{dw}}^2 \chi_{\text{dw}} \omega \beta}{(\omega_{\text{dw}}^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \beta^2} + \frac{\chi_{\text{spin}} \omega_{\text{spin}}^2 \omega \vartheta \left[ \omega_{\text{spin}}^2 + \omega^2 (1 + \vartheta^2) \right]}{\left[ \omega_{\text{spin}}^2 - \omega^2 (1 + \vartheta^2) \right]^2 + 4\omega^2 \omega_{\text{spin}}^2 \vartheta^2}. \quad (4)$$

图 5(b), (c) 是易面和非易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物磁谱的拟合结果, 拟合相对吻合. 根据表 2 可知磁

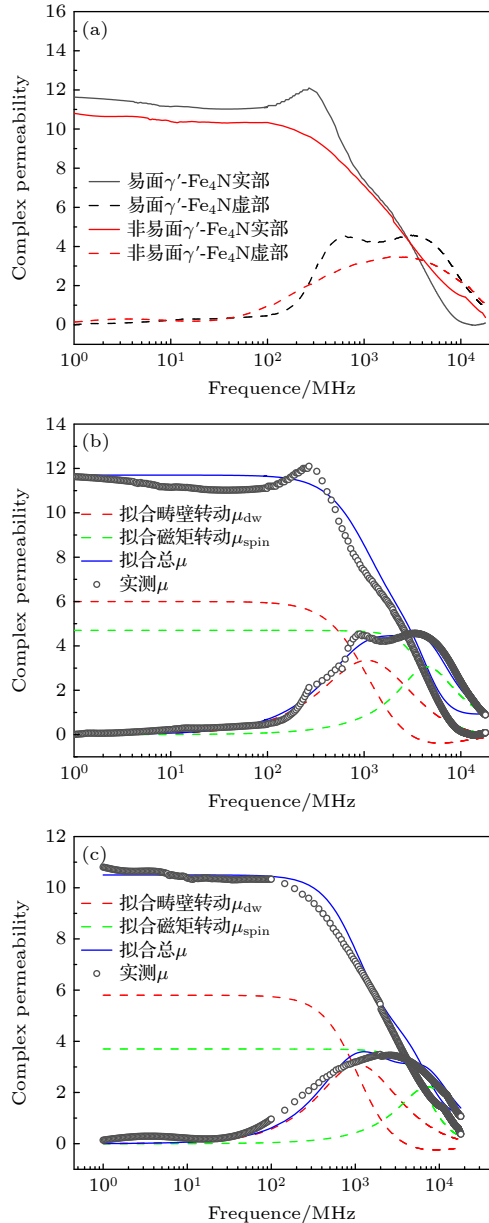


图 5 (a) 易面和非易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物的磁谱实测结果; (b) 易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物的磁谱拟合结果与实测结果; (c) 非易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物的磁谱拟合结果及实测结果

Fig. 5. (a) Magnetic spectrum measurement of easy plane and none plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N composite; (b) magnetic spectrum measurement and fitting results of easy plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N composite; (c) magnetic spectrum measurement and fitting results of none easy plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N composite.

导率主要由磁矩转动和畴壁位移贡献, 而磁导率的上升主要源于易面磁矩转动贡献的部分.

表 2 易面及非易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物的磁谱拟合参数  
Table 2. Magnetic spectral fitting parameters of easy plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N and none easy plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N composite.

	畴壁移动			畴内转动		
	$\chi_{\text{d0}}$	$\omega_{\text{d0}}/10^{10}$	$\beta/10^{10}$	$\chi_{\text{s0}}$	$\omega_{\text{s0}}/10^{10}$	$\vartheta$
易面 $\gamma'$ -Fe <sub>4</sub> N 复合物	6.0	0.3	5.8	4.7	0.7	1.2
非易面 $\gamma'$ -Fe <sub>4</sub> N 复合物	5.8	4.0	10.0	3.7	1.3	1.5

图 6 为易面型和非易面型  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物在 8 mT 下, 不同频率的铁芯损耗以及易面型和非易面型  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物的损耗分离结果, 具体数值结果见表 3. 从图 6 可以看出, 在相同条件下, 易面型  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物的损耗功率要明显低于非易面型  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物. 例如在 1 MHz, 8 mT 的测试条件下, 易面型损耗只有 142.17 kW/m<sup>3</sup>, 非易面型损耗已经达到 205.48 kW/m<sup>3</sup>. 根据铁磁学理论可知铁芯损耗可分为磁滞损耗、涡流损耗和剩余损耗:

$$P_{\text{cv}} = P_{\text{hyst}} + P_{\text{eddy}} + P_{\text{exc}}. \quad (5)$$

根据 Kollár<sup>[23]</sup> 修正的 Steinmetz 模型的损耗分离公式:

$$W_{\text{cv}} = W_{\text{hyst}} + W_{\text{eddy}} + W_{\text{exc}} = K_{\text{h}} B_{\text{m}}^x + K_{\text{e}}^{\text{int}} B_{\text{m}}^{y_1} f + K_{\text{e}}^{\text{intra}} B_{\text{m}}^{y_2} f + K_{\text{r}} B_{\text{m}}^{y_3} f^{z_3}, \quad (6)$$

式中  $K_{\text{h}}$ ,  $K_{\text{e}}^{\text{int}}$ ,  $K_{\text{e}}^{\text{intra}}$ ,  $K_{\text{r}}$  分别为磁滞损耗、颗粒间涡流、颗粒内涡流和剩余损耗. 磁性物中的功耗  $P_{\text{cv}}$  可通过将 (5) 式乘以系数  $f$  获得:

$$P_{\text{cv}} = W_{\text{cv}} \cdot f = P_{\text{hyst}} + P_{\text{eddy}} + P_{\text{exc}} = c_{\text{hyst}} B_{\text{m}}^h f + c_{\text{eddy}}^{\text{inter}} B_{\text{m}}^2 f^2 + c_{\text{eddy}}^{\text{intra}} B_{\text{m}}^2 f^2 + c_{\text{exc}} B_{\text{m}}^x f^y. \quad (7)$$

由图 6(e), (f) 和图 7 可以看出涡流损耗非常低. 在低频段, 磁滞损耗为主要损耗, 随着频率的逐步增大, 剩余损耗占比逐渐上升, 在频率更高的频段剩余损耗将超越磁滞损耗成为主要损耗, 这也就是高频下损耗增大的主要原因.

将测得的  $P_{\text{cv}}$  除以频率得到不同频率下的  $W_{\text{cv}}$ , 然后反推至频率为零, 得到的  $W_{\text{cv}}$  再乘以原来的频率就是磁滞损耗. 这样就得到不同  $B_{\text{m}}$  下的磁滞损耗, 对其进行非线性拟合就可以拟合出磁滞损耗系数和  $B_{\text{m}}$  的幂指数. 然后根据已有的涡流公式<sup>[24-26]</sup>

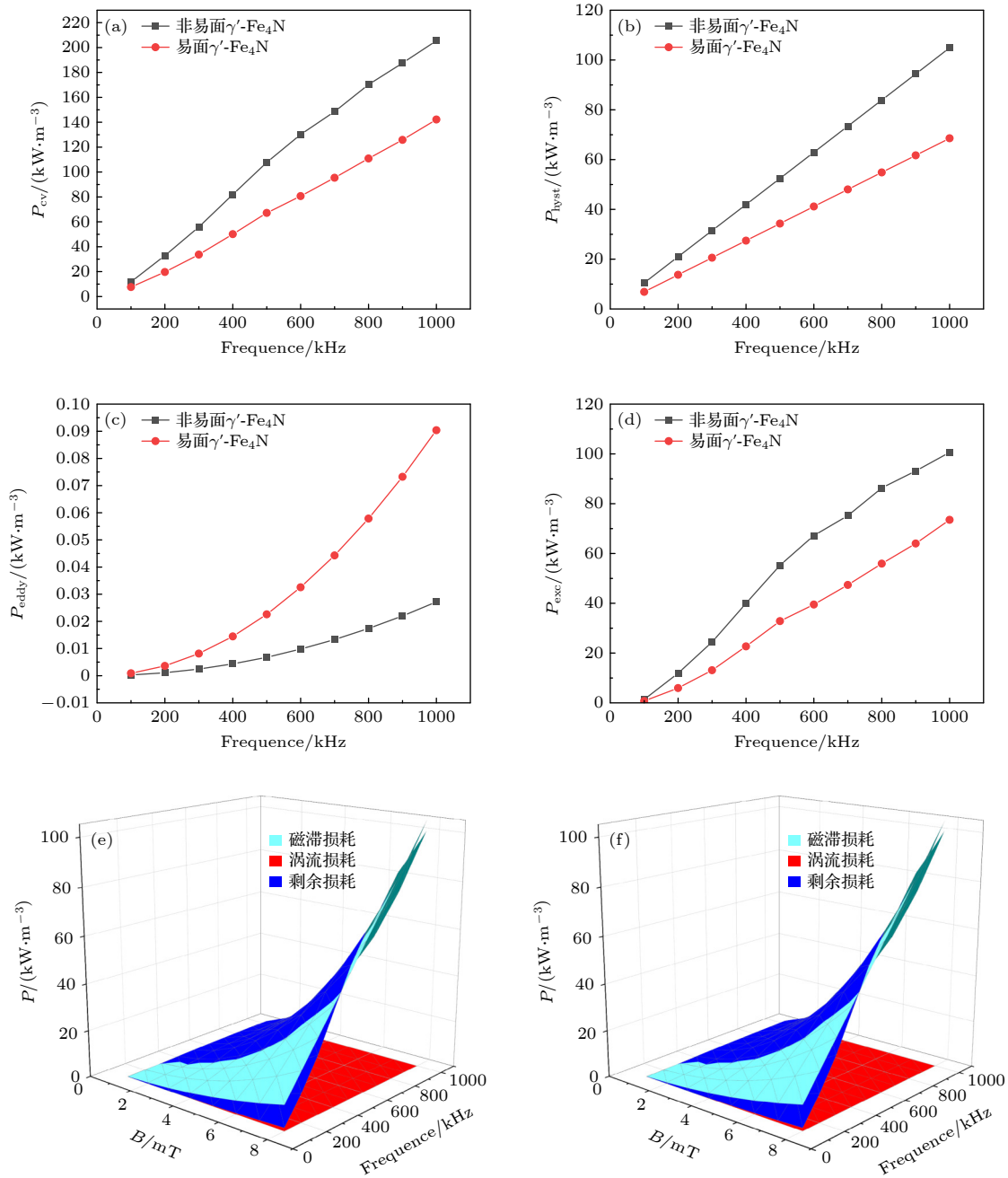


图 6  $B = 8 \text{ mT}$  下易面和非易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物的损耗 (a) 总损耗; (b) 磁滞损耗; (c) 涡流损耗; (d) 剩余损耗; (e) 非易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物的损耗分离结果; (f) 易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物的损耗分离结果

Fig. 6. Losses of easy plane and none plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N composite at  $B = 8 \text{ mT}$ : (a) Total losses; (b) hysteresis losses; (c) eddy current losses; (d) residual losses; (e) depletion separation results of none easy plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N composite; (f) depletion separation results of easy plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N composite.

表 3 非易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合材料和易面  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 复合物损耗分离的拟合参数

Table 3. Simulated parameters for loss separation of none easy plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N composite and easy plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N composite.

	$P_{hyst}/(\text{kW}\cdot\text{m}^{-3})$		$P_{eddy}/(\text{kW}\cdot\text{m}^{-3})$		$P_{ex}/(\text{kW}\cdot\text{m}^{-3})$		
	$c_{hyst}$	$h$	$c_{eddy}^{inter}/10^{-10}$	$c_{eddy}^{intra}/10^{-6}$	$c_{exc}$	$x$	$y$
非易面 $\gamma'$ -Fe <sub>4</sub> N 复合物	3.6383	2.1652	9.24	0.424	1.1965	2.1431	1.0731
易面 $\gamma'$ -Fe <sub>4</sub> N 复合物	5.3096	2.3315	5.00	1.412	0.027678	2.1479	1.3235

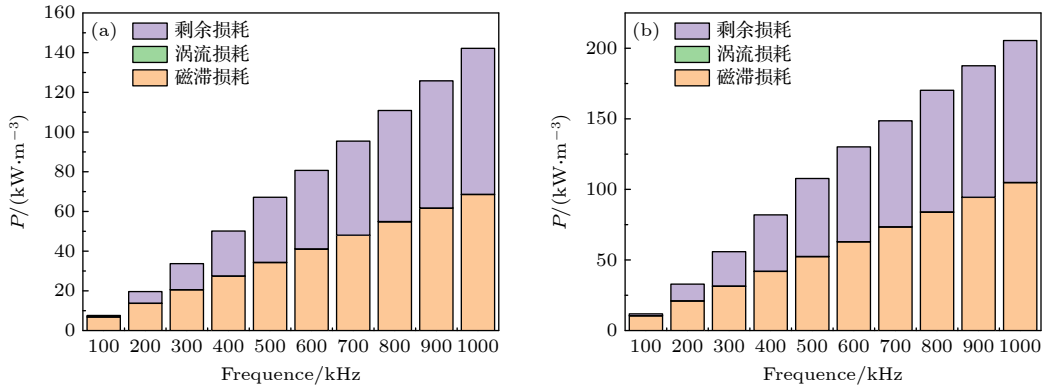


图 7  $B = 8 \text{ mT}$  下的损耗分离 (a) 易面  $\gamma'$ - $\text{Fe}_4\text{N}$  复合物; (b) 非易面  $\gamma'$ - $\text{Fe}_4\text{N}$  复合物

Fig. 7. Loss separation at  $B = 8 \text{ mT}$ : (a) Easy plane  $\gamma'$ - $\text{Fe}_4\text{N}$  composite; (b) none easy plane  $\gamma'$ - $\text{Fe}_4\text{N}$  composite.

就可以计算出涡流损耗, 用总损耗减去前两者的损耗, 就可以得到剩余损耗. 根据损耗分离结果得到图 6(b)—(d), 可以看出, 易面型  $\gamma'$ - $\text{Fe}_4\text{N}$  复合物的磁滞损耗和剩余损耗均有明显降低, 由于易面  $\gamma'$ - $\text{Fe}_4\text{N}$  的磁矩均躺在面内, 在  $\gamma'$ - $\text{Fe}_4\text{N}$  的磁化过程中, 躺在面内的磁矩更容易被磁化, 磁导率更高, 所以磁滞损耗更小, 且涡流损耗仍然很小. 由此可见, 通过球磨使其成为易面型软磁物来降低高频下的剩余损耗是一种有效的办法.

表 3 为拟合得到的不同损耗的系数以及  $B_m$  和  $f$  的幂指数. 性能因子 PF 可以用来表示软磁材料能量转换效率的快慢,  $\text{PF} = B_m \cdot f$ . 通过拟合得到的参数就可以代入原公式计算其性能因子曲线. 从图 8 也可以看出,  $\gamma'$ - $\text{Fe}_4\text{N}$  复合物的性能因子较高, 且制备流程具有简易性, 这使其有望成为一种很好高频软磁材料.

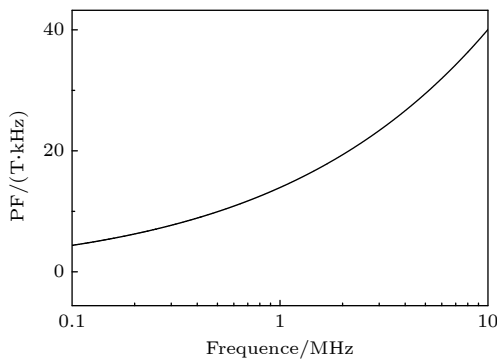


图 8  $P_{cv} = 500 \text{ kW/m}^3$  时, 易面  $\gamma'$ - $\text{Fe}_4\text{N}$  复合物的性能因子曲线

Fig. 8. Performance factor curve of the easy-plane  $\gamma'$ - $\text{Fe}_4\text{N}$  composite at  $P_{cv} = 500 \text{ kW/m}^3$ .

表 4 为不同软磁材料的损耗性能对比 [27–31], 发现静磁易面  $\gamma'$ - $\text{Fe}_4\text{N}$  软磁复合材料具有优异的高

频软磁性能, 在功率损耗相差不大的情况下, 静磁易面  $\gamma'$ - $\text{Fe}_4\text{N}$  软磁复合材料的性能因子更大, 能量转换效率更高. 未来可以通过包覆处理进一步提升  $\gamma'$ - $\text{Fe}_4\text{N}$  的高频软磁性能.

表 4 不同软磁材料的功率损耗对比 [27–31]

Table 4. Comparison of power loss of different soft magnetic materials [27–31].

	$P_{cv}/(\text{kW}\cdot\text{m}^{-3})$	$\text{PF}/(\text{T}\cdot\text{kHz})$	Ref.
This work	235.06 (1000 kHz, 10 mT)	10	—
Fe-Si-Al power	270 (50 kHz, 10 mT)	0.5	[27]
FeNiMo/SiO <sub>2</sub>	217.3 (50 kHz, 50 mT)	2.5	[28]
FeNiMo/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	321.78 (50 kHz, 100 mT)	5	[29]
Fe/NiZn	199.3 (100 kHz, 20 mT)	2	[30]
Fe/Co <sub>2</sub> Z	380 (590 kHz, 5 mT)	2.95	[31]

## 4 结论

本文根据理论设计制备了纯相  $\gamma'$ - $\text{Fe}_4\text{N}$ /PU 复合材料, 拟合及其实测结果相互印证了材料的易面性, 球磨静磁易面材料拥有更高的磁导率. 通过损耗分离结果表明, 在 1 MHz, 10 mT 的激励下, 球磨静磁易面  $\gamma'$ - $\text{Fe}_4\text{N}$ /PU 复合材料的功率总损耗为 235.06 kW/m<sup>3</sup>, 其涡流损耗为 0.14 kW/m<sup>3</sup>, 仅占总损耗的 1%, 在高频尤其是 1 MHz 以上, 剩余损耗会超越磁滞损耗成为铁芯损耗的主要部分, 通过球磨方法, 使其由非易面转化为球磨静磁易面  $\gamma'$ - $\text{Fe}_4\text{N}$  复合材料, 降低了其铁芯损耗. 这说明经过球磨处理后, 软磁复合材料高频下的损耗性能得到改善, 为完全释放 WBG 的潜力提供新思路.

## 参考文献

- [1] Silveyra J M, Ferrara E, Huber D L, Monson T C 2018 *Science* **362** 418
- [2] Périgo E A, Weidenfeller B, Kollár P, Fützer J 2018 *Appl. Phys. Rev.* **5** 031301
- [3] Sun Z W 2013 *M. S. Thesis* (Beijing: Beijing University of Technology) (in Chinese) [孙忠巍 2013 硕士学位论文 (北京: 北京工业大学)]
- [4] Shirane G, Takei W J, Ruby S L 1962 *Phys. Rev.* **126** 49
- [5] Peng X, Yu S, Chang J, Ge M, Li J, Ellis T, Yang Y, Xu J, Hong B, Jin D, Jin H, Wang X, Ge H 2020 *J. Magn. Magn. Mater.* **500** 166407
- [6] Wu X L, Zhong W, Jiang H Y, Tang N J, Zou W Q, Du Y W 2004 *J. Magn. Magn. Mater.* **281** 77
- [7] Wallace W E, Huang M Q 1994 *J. Appl. Phys.* **76** 6648
- [8] Kim T K, Takahashi M 1972 *Appl. Phys. Lett.* **20** 492
- [9] Coey J M D, Smith P A I 1999 *J. Magn. Magn. Mater.* **200** 405
- [10] Cheng T M, Sun T, Zhang L Y, Zhang X X, Zhu L, Li L 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 156301 (in Chinese) [成泰民, 孙腾, 张龙燕, 张新欣, 朱林, 李林 2015 物理学报 **64** 156301]
- [11] Li Z, Li Q M, Li C Y, Sun Q Q, Lou J 2011 *Proceed. CSEE* **31** 124 (in Chinese) [李贞, 李庆民, 李长云, 孙秋芹, 娄杰 2011 中国电机工程学报 **31** 124]
- [12] Yu M J, Xu Y, Mao Q, Li F, Wang C 2016 *J. Alloys Compd.* **656** 362
- [13] Qu Z X, Wang Q, Sun Z W, Pan W 2013 *Rare Metal Mater. Eng.* **42** 126 (in Chinese) [瞿志学, 王群, 孙忠巍, 潘伟 2013 稀有金属材料与工程 **42** 126]
- [14] Narahara A, Ito K, Suemasu T, Takahashi Y K, Ranajikanth A, Hono K 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 202502
- [15] Lu Q H, Tang X L, Song Y Z, Zuo X W, Han G L, Yan P X, Liu W M 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 118101 (in Chinese) [卢启海, 唐晓莉, 宋玉哲, 左显维, 韩根亮, 闫鹏勋, 刘维民 2019 物理学报 **68** 118101]
- [16] Xue D S, Chen Z Y, Li F S 1996 *J. Lanzhou Univ. (Natural Sciences)* **32** 49 (in Chinese) [薛德胜, 陈子瑜, 李发伸 1996 兰州大学学报 (自然科学版) **32** 49]
- [17] Zhao Z J, Xue D S, Li F S 2001 *J. Magn. Magn. Mater.* **232** 155
- [18] Xue D S, Li F S 1997 *Sci. China (Ser. A)* **27** 275 (in Chinese) [薛德胜, 李发伸 1997 中国科学 (A 辑) **27** 275]
- [19] Zhang C, Liu X, Li M, Liu C, Li H, Meng X, Rehman K M U 2017 *J. Mater. Sci. Mater. Electron.* **29** 1254
- [20] Wang G W 2022 *Ph. D. Dissertation* (Lanzhou: Lanzhou University) (in Chinese) [王国武 2022 博士学位论文 (兰州: 兰州大学)]
- [21] Wu P, Zhang Y D, Hao H B, Qiao L, Liu X, Wang T, Li F S 2022 *J. Magn. Magn. Mater.* **549** 168962
- [22] Takanori Tsutaoka 2003 *J. Appl. Phys.* **93** 2789
- [23] Kollár P, Vojtek V, Birčáková Z, Fützer J, Fáberová M, Bureš R 2014 *J. Magn. Magn. Mater.* **353** 65
- [24] Taghvaei A H, Shokrollahi H, Janghorban K 2009 *Mater. Des.* **30** 3989
- [25] Taghvaei A H, Ebrahimi A, Gheisari K 2010 *J. Magn. Magn. Mater.* **322** 3748
- [26] Chiriac H 2003 *IEEE Trans. Magn.* **39** 3040
- [27] Liu H J, Su H L, Geng W B, Sun Z G, Song T T, Tong X C, Zou Z Q, Wu Y C, Du Y W 2016 *J. Supercond. Nov. Magn.* **29** 463
- [28] Xiong Z W, Yang J, Wang Y, Yang L, Guan X, Cao L H, Wang J, Gao Z P 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 157502 (in Chinese) [熊政伟, 杨江, 王雨, 杨陆, 管弦, 曹林洪, 王进, 高志鹏 2022 物理学报 **71** 157502]
- [29] Yao Z, Peng Y, Xia C, Yi X, Mao S, Zhang M 2020 *J. Alloys Compd.* **827** 154345
- [30] Peng Y, Yi Y, Li L, Ai H, Wang X, Chen L 2017 *J. Magn. Magn. Mater.* **428** 148
- [31] Liu J H, Peng X L, Hong B, Xu J C, Han Y B, Li J, Ge H L, Yang Y T, Wang X Q 2021 *J. Magn. Magn. Mater.* **532** 167994

# Magnetic and loss characteristics of $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N soft magnetic composites\*

Wang Wen-Biao   Wu Peng   Qiao Liang<sup>†</sup>   Wu Wei   Tu Cheng-Fa  
Yang Sheng-Yu   Li Fa-Shen

(Key Laboratory for Magnetism and Magnetic Materials of Ministry of Education, Institute of Applied Magnetism, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China)

( Received 10 December 2022; revised manuscript received 7 May 2023 )

## Abstract

Soft magnetic composite materials are prepared by mixing magnetic materials and insulating materials, which possess both the excellent magnetism of magnetic materials and the low resistivity of insulating materials. They possess broad application prospects in emerging power electronics industries such as photovoltaic inverters, new energy vehicles, and charging stations. The third-generation high-frequency wide bandgap semiconductors, mainly composed of SiC and GaN, have the operating frequency of soft magnetic materials raised to MHz. However, current soft magnetic materials have significant core losses at high frequencies. Therefore, people are focus their attention on developing new soft magnetic composite materials to reduce iron core losses at high frequencies. In this paper,  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N with high resistivity is prepared by nitriding carbonyl iron powders, showing its excellent soft magnetic properties, and the  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N is ball-milled to become easy plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N powder. Compared with the none easy plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N powders, the none easy plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N powders are spherical in shape, the easy plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N powders exhibit a high aspect to thickness ratio in sheet shape. The obtained easy plane powders are mixed with polyurethane insulation to make the soft magnetic composite. There is a significant difference between the in-plane and out-of-plane hysteresis loop of the magnetostatic easy plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N soft magnetic composite, and the in-plane hysteresis loop is more easily magnetized to saturation state. The degree of plane orientation is 98.46%. The fitting analysis results of the Jiles-Atherton model also prove its easy plane characteristic, and has higher effective permeability and lower power loss than the counterparts of the none easy plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N composite that is not ball-milled. After loss separation, it is found that in a low frequency range, hysteresis loss is the main loss, while in a high frequency range, the excess loss will surpass the hysteresis loss, acting as the main loss, the magnetostatic easy plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N soft magnetic composites material reduces hysteresis loss and excess loss. Comparing with similar soft magnetic composites, the eddy current effect in magnetic iron particles is reduced by nitriding process, and the magnetostatic easy plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N soft magnetic composite has excellent high-frequency soft magnetic properties. Magnetostatic easy plane  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N provides a new idea for the high-frequency application of soft magnetic composites matching the third generation wide bandgap semiconductors.

**Keywords:**  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N, nitride, ball-milled, power loss

**PACS:** 75.50.Bb, 75.20.En, 72.80.Tm, 75.30.Gw

**DOI:** 10.7498/aps.72.20222352

\* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2021YFB3501302), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 51731001), and the State Key Laboratory of Baiyunobo Rare Earth Resource Researches and Comprehensive Utilization's Key Research and Development Projects of China.

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [qiaoliang@lzu.edu.cn](mailto:qiaoliang@lzu.edu.cn)

## $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N软磁复合材料的磁性及损耗特性

王文彪 吴鹏 乔亮 吴伟 涂成发 杨晟宇 李发伸

### Magnetic and loss characteristics of $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N soft magnetic composites

Wang Wen-Biao Wu Peng Qiao Liang Wu Wei Tu Cheng-Fa Yang Sheng-Yu Li Fa-Shen

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 137501 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20222352

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222352>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

### 您可能感兴趣的其他文章

#### Articles you may be interested in

#### 氮化铁薄膜晶相合成热分析及其磁性

Thermal analysis on crystal phase synthesis of iron nitride film and its magnetic properties

物理学报. 2019, 68(11): 118101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20182195>

#### 易面型Y<sub>2</sub>Co<sub>17</sub>稀土软磁复合材料的雷达波吸收和带宽机理

Mechanism of radar wave absorption and bandwidth for easy-plane Y<sub>2</sub>Co<sub>17</sub> rare earth soft magnetic composites

物理学报. 2022, 71(18): 184201 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220665>

#### 空心Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>纳米微球的制备及超顺磁性

Synthesis and superparamagnetism of Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> hollow nano-microspheres

物理学报. 2018, 67(17): 177501 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180579>

#### Verwey相变处Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>的结构、磁性和电输运特性

Structure, magnetic and transport properties of Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> near verwey transition

物理学报. 2020, 69(4): 040505 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191763>

#### 应变诱导单层NbSi<sub>2</sub>N<sub>4</sub>材料磁转变的第一性原理研究

First principles study of magnetic transition of strain induced monolayer NbSi<sub>2</sub>N<sub>4</sub>

物理学报. 2022, 71(20): 206303 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220939>

#### N<sup>+</sup>注入修复外延Fe膜面内六重磁对称

Recovering in-plane six-fold magnetic symmetry of epitaxial Fe films by N<sup>+</sup> implantation

物理学报. 2019, 68(12): 126102 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190131>