

专题: 应用磁学

Sc-La-Zn 共取代 M 型钡铁氧体的磁性能及其在自偏置环行器中的应用*

占学谦 李嘉澍 钟铭 史慧刚 蒋长军†

(兰州大学物理科学与技术学院, 磁学与磁功能材料教育部重点实验室, 兰州 730000)

(2025 年 11 月 14 日收到; 2025 年 12 月 12 日收到修改稿)

为适应自偏置环行器高频化与集成化的发展需求, 六角铁氧体材料性能的提升至关重要. 本研究采用固相反应法制备了 Sc-La-Zn 共取代的 M 型钡铁氧体 ($\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$). X 射线衍射 (XRD) 分析表明, 所有样品均成功形成单一 M 型磁铅石相. 扫描电子显微镜 (SEM) 图像显示, 经湿法择优取向烧结后, 铁氧体颗粒呈现六角板状形貌, 并沿 c 轴定向排列. 基于 XRD 和 SEM 数据计算了样品的晶格参数与颗粒尺寸. 磁性测量结果表明, Sc-La-Zn 掺杂的 M 型铁氧体具有较高的饱和磁化强度 ($M_s > 60 \text{ emu/g}$) 的同时, 通过调控 Sc 掺杂量, 使磁晶各向异性场在 7000—10000 Oe 范围内可调, 且样品表现出较低的铁磁共振线宽 ($\Delta H \approx 260 \text{ Oe}$). 基于样品的磁性能参数, 利用 HFSS 软件设计并仿真了 3 款自偏置环行器, 其中心频率覆盖 25—35 GHz, 展现出较宽的频率调节范围. 环行器的最低插入损耗小于 0.5 dB, 隔离度优于 20 dB 的带宽最高可达 4.4 GHz. 本研究对不同频段自偏置环行器的应用具有重要意义.

关键词: Sc-La-Zn 共掺杂, M 型钡铁氧体, 磁性能, 自偏置环行器**DOI:** 10.7498/aps.75.20251559**CSTR:** 32037.14.aps.75.20251559

1 引言

近年来, 空间雷达技术, 特别是基于有源相控阵体制的先进系统, 已成为对地观测、战略预警与情报获取等领域的核心手段, 表现出重要的推动作用^[1-5]. 此类系统通过集成大量独立的发射/接收 (T/R) 模块实现波束的电子扫描与灵活重构, 具备多目标跟踪、高抗干扰性、强隐身目标探测能力以及低概率截获等优势, 显著提升了雷达系统的可靠性与功能多样性. 为获得更大的信号吞吐量 (更宽带宽)、更高的空间分辨率, 并缓解低频微波频谱资源短缺, 雷达系统的工作频段正逐步向毫米波范围扩展^[6,7]. 这一趋势对 T/R 模块中的核心部件——环行器的小型化与集成化提出了更高要求. 目前, 传统环行器依赖外置永磁体提供偏置场以实现非

互易特性, 且随着工作频率增大, 所需永磁体体积亦显著增大, 严重制约了器件的小型化发展. 因此, 基于永磁六角铁氧体的自偏置环行器成为研究热点^[8-11]. 永磁六角铁氧体具有磁铅石型晶体结构, 不仅具备高饱和磁化强度 (M_s)、高剩磁 (M_r) 和较大的磁晶各向异性场 (H_a) 等优异磁性能, 可实现自偏置功能, 并且在实际应用中表现出良好的成本效益与温度稳定性^[12].

近年来, 研究人员在永磁六角铁氧体及自偏置环行器方面开展了系统研究. 例如, Li 等^[13]通过 Zn-Hf 共掺杂实现了 H_a 在 12000—5800 Oe 范围内的可调性; Lu 等^[14]采用 La-Zn 共取代制备出高剩磁比 ($M_r/M_s = 0.83$)、 H_a 约为 10000 Oe 的 BaM 材料, 其铁磁共振线宽约为 900 Oe; Jiang 等^[15]制备的 $\text{BaFe}_{11.5}\text{Sc}_{0.5}\text{O}_{19}$ 材料展现出 0.84 的剩磁比、13.9 kOe 的 H_a 以及 482 Oe 的线宽; Peng 等^[16]

* 国家自然科学基金 (批准号: 52271179) 和甘肃省自然科学基金 (批准号: 24YFGA006) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: jiangchj@lzu.edu.cn

在锶铁氧体的研究中使用 Bi_2O_3 作为助烧剂, 发现添加 3% Bi_2O_3 可在 900 °C 甚至更低的烧结温度下获得优异磁性能 ($M_s = 285.6 \text{ kA/m}$, $H_a = 1564.6 \text{ kA/m}$), 展现出在 34—40 GHz 自偏置低温共烧陶瓷环行器中的应用潜力; Liu 等^[17] 在 Sn-Zn 共取代研究中引入 $\text{Bi}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2\text{-ZnO}$ (BBSZ) 作为烧结助剂, 发现添加质量分数 3% 时可将铁磁共振线宽降低 719 Oe.

综上所述, 诸多研究在六角铁氧体性能优化方面取得了显著进展. 然而, M 型铁氧体在自偏置环行器应用中仍面临若干技术挑战, 包括铁磁共振线宽较大, 以及在降低磁晶各向异性场的同时难以维持优异磁性能等. 本研究通过固相烧结法制备了一系列 c 轴取向、具有高剩磁的六角铁氧体 ($\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$), 系统研究了 Sc 掺杂量对 Sc-La-Zn 共取代 BaM 型铁氧体晶体结构和磁性能的影响. 结果表明, 当 Sc 掺杂量 x 在 0—0.4 范围内变化时, 材料的磁晶各向异性场可在约 7000—10000 Oe 范围内调控, 同时仍保持高饱和磁化强度 ($M_s > 60 \text{ emu/g}$) 与高剩磁比 ($M_r/M_s > 0.84$). 此外, 样品的铁磁共振线宽约为 260 Oe, 处于多晶铁氧体材料中的较低水平. 基于所获磁性能参数, 本研究进一步开展仿真设计, 构建了 3 款工作于不同中心频率的自偏置环行器, 其中插入损耗最低值小于 0.5 dB, 带宽最高值可达 4.4 GHz, 展现出良好的环行特性.

2 实验

采用固相反应法制备了 $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ ($x = 0, 0.2, 0.4, 0.6$) 样品. 按化学计量比

称量 Fe_2O_3 , BaCO_3 , $\text{La}(\text{OH})_3$, ZnO 和 Sc_2O_3 原料, 在球磨机中以 200 r/min 转速与蒸馏水混合 4 h. 混合粉末在马弗炉中于空气气氛下 1150 °C 预烧 3 h, 随后加入质量分数为 3% Bi_2O_3 作为烧结助剂, 再以 300 r/min 转速与蒸馏水球磨 6 h, 使粉末细化至单畴临界尺寸以下. 控制浆料含水量约 30%, 在 10 kOe 磁场和 1.5 MPa 压力下成型, 获得 c 轴择优取向的生坯, 经 1050 °C 烧结 2 h 后得到致密磁体.

样品的晶体结构和微观形貌分别采用 X 射线衍射仪 (XRD) 和扫描电子显微镜 (SEM) 进行表征, 并利用图像分析软件测定其平均颗粒尺寸 (D). 体积密度 (d_s) 通过阿基米德排水法测定, 并结合理论密度 (d_x) 计算孔隙率 (P). 样品的磁性能采用振动样品磁强计 (VSM) 进行测量. 铁磁共振线宽通过矢量网络分析仪 (VNA) 基于波导反射法测量: 将样品 c 轴垂直于微波传输方向置于终端短路的波导腔中, 在零外场条件下进行扫频测试, 通过 S_{11} 参数提取线宽值. 与传统的谐振腔定频扫场法相比, 该方法能更准确地表征材料在自偏置状态下的性能, 具有测试频带宽、频率精度高且不受固定谐振频点限制等优势.

3 结果与讨论

图 1(a) 展示了在 1150 °C 烧结 3 h 的 $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ ($x = 0\text{—}0.6$) 六角铁氧体的 XRD 图谱. 所有样品的衍射峰均可通过 PDF#04-002-1906 进行索引, 且归属于空间群 $P6_3/mmc$, 表明 La^{3+} , Zn^{2+} 和 Sc^{3+} 成功进入磁铅石结构的晶格, 形成完整的固溶体.

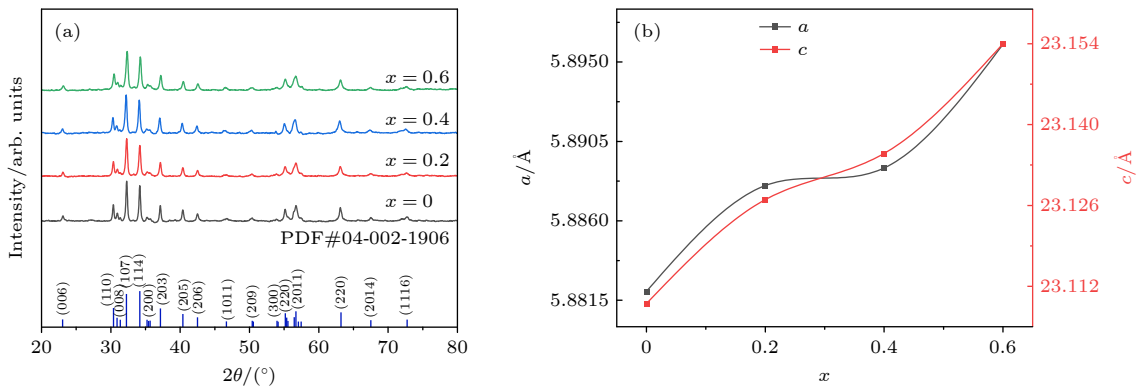


图 1 $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ ($x = 0\text{—}0.6$) 预烧粉末的 (a) X 射线衍射图谱和 (b) 晶格参数 a 和 c

Fig. 1. (a) X-ray diffraction patterns and (b) lattice parameter of a , c of pre-calcined $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ ($x = 0\text{—}0.6$) powders.

基于衍射峰数据, 采用布拉格方程计算晶格常数 a 和 c ^[18]. 晶格体积 V 根据六方晶系体积公式计算, 理论密度 d_x 则通过相对分子质量和晶格体积确定:

$$n\lambda = 2d \sin \theta, \quad (1)$$

$$d = \frac{1}{\sqrt{\frac{4}{3} \frac{h^2 + hk + l^2}{a^2} + \frac{l^2}{c^2}}}, \quad (2)$$

$$V = \frac{\sqrt{3}}{2} a^2 c, \quad (3)$$

$$d_x = \frac{2M}{N_A V}, \quad (4)$$

其中, n 是反射级数, d 是晶面间距, λ 是 X 射线波长, θ 是衍射角, $(h k l)$ 为晶面指数, M 是相对分子质量, N_A 是阿伏伽德罗常数.

计算结果展示于图 1(b) 及表 1. La^{3+} 进入 Ba 点位会导致晶胞沿 c 轴方向显著收缩^[19], 而 Zn^{2+} 取代四面体位置的 Fe^{3+} 时因离子半径细微变化而对 a 轴影响较小^[20]. 这解释了 $x = 0$ 时样品 c 轴参数较纯 BaM 减小而 a 轴参数基本不变的现象. 随着 Sc 掺杂量增大, 晶格常数呈现上升趋势, 主要归因于 Sc^{3+} 离子半径大于 Fe^{3+} , 且倾向于占据 2b 位点, 从而在 a 和 c 两方向引入晶格膨胀^[21]. 此外, c/a 比值从 3.929 随掺杂量增大而轻微下降至 3.927, 进一步支持 Sc 成功进入 BaM 的磁铅石六方结构.

图 2 展示了取向 $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ ($x = 0-0.6$) 样品断面 SEM 微观形貌和对应的颗

粒尺寸分布. 所有样品均呈现边界清晰的六边形片状结构, 表明 BaM 相的成功形成, 与 XRD 分析结果一致. 所有样品的平均颗粒尺寸在 2.79—4.35 μm 范围内变化, 且随 Sc 掺杂量的增大呈现先增大后减小的趋势. 这一现象可归因于以下原因: La^{3+} 离子半径较小, 使晶格常数减小, 产生收缩型晶格畸变, 从而抑制颗粒生长^[14]. 随着 Sc 掺杂量的增大, 晶格常数增大, 结构畸变得得到有效缓解, 有利于颗粒生长, 并在 $x = 0.4$ 时达到最大平均颗粒尺寸 (4.35 μm). 然而, 过量的 Sc 掺杂 ($x > 0.4$) 使晶格常数过度增大, 引发新的晶格畸变, 从而再次抑制颗粒生长^[22].

表 1 $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ 预烧粉末的晶格参数、单位胞体积和理论密度

Table 1. Lattice parameters, unit cell volume, and theoretical density of pre-calcined $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ powders.

x	$a/\text{\AA}$	$c/\text{\AA}$	c/a	$V/\text{\AA}^3$	$d_x/(\text{g}\cdot\text{cm}^{-3})$
0	5.882	23.109	3.929	693.01	5.33
0.2	5.888	23.127	3.928	693.89	5.32
0.4	5.889	23.135	3.928	694.72	5.31
0.6	5.896	23.154	3.927	697.05	5.30

图 3 展示了取向 $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ 磁体的理论密度 d_s 、实际密度 d_x 以及孔隙率 P . 孔隙率由下式计算:

$$P = \left(1 - \frac{d_s}{d_x}\right) \times 100\%, \quad (5)$$

式中 d_s 和 d_x 分别为实际密度和理论密度. 结果表明, 随着 Sc 掺杂量的增大, 孔隙率先上升后下降.

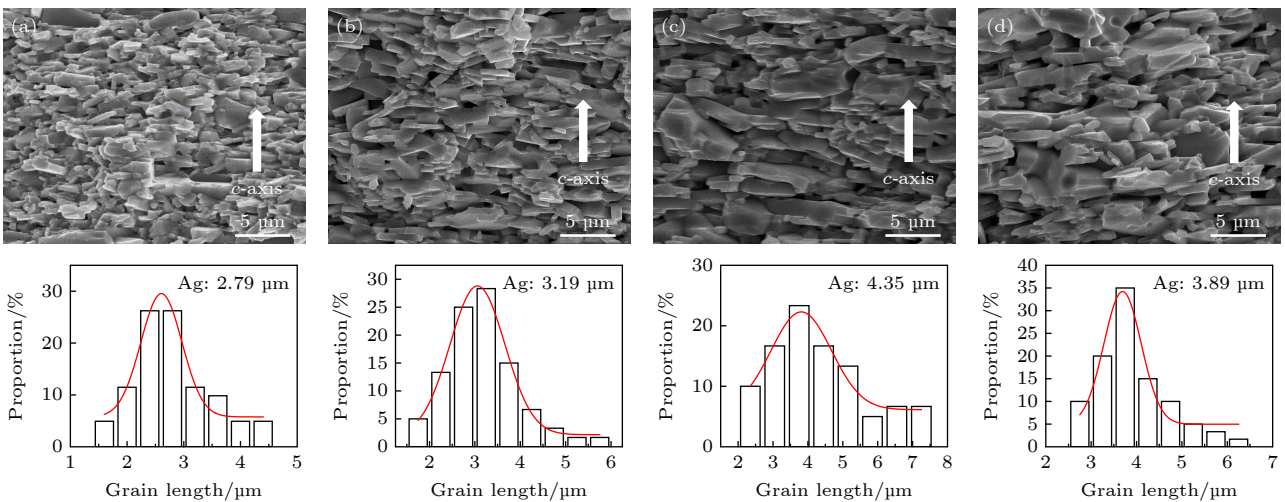


图 2 $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ 磁体的断面 SEM 微观照片及其颗粒尺寸分布 (a) $x = 0$; (b) $x = 0.2$; (c) $x = 0.4$; (d) $x = 0.6$

Fig. 2. SEM micrographs of fractured surfaces and particle size distribution of oriented $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ magnets: (a) $x = 0$; (b) $x = 0.2$; (c) $x = 0.4$; (d) $x = 0.6$.

该变化与烧结过程中的致密化机制密切相关: 生坯的致密化主要通过晶界快速扩散实现气孔排除^[23]. 当颗粒生长过快时, 会从两方面对致密化产生负面影响: 一方面, 单位体积内晶界数量显著减少, 降低了物质传输和气孔排除的有效通道, 从而削弱致密化驱动力; 另一方面, 当晶界迁移速率超过气孔迁移速率时, 快速移动的晶界会使气孔滞留于颗粒内部, 形成永久性孔隙. 因此, 颗粒的过快生长会降低材料致密化程度, 导致结构疏松和密度下降.

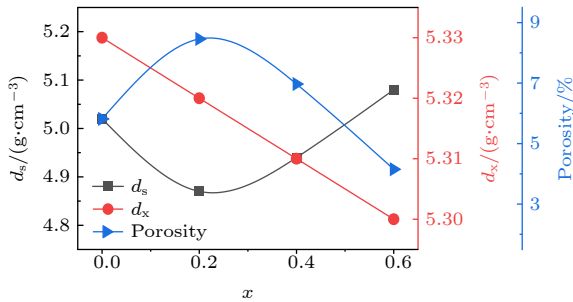


图 3 $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ 磁体的理论密度 d_s 、实际密度 d_x 与孔隙率 P

Fig. 3. Theoretical density (d_s), measured density (d_x), and porosity (P) of oriented $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ magnets.

图 4(a) 展示了取向 $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ ($x = 0-0.6$) 磁体的 X 射线衍射图谱. 与粉末样品的 XRD 图谱 (图 1(a)) 相比, 样品的衍射峰显示出明显的取向特征, 具体表现为 (0 0 6), (0 0 8) 和 (0 0 14) 晶面衍射峰的相对强度显著增强. 这一现象可归因于在磁场取向过程中, BaM 颗粒沿其易磁化轴 (c 轴) 发生择优排列. 为定量评估颗粒取向程度, 采用 Lotgering 因子计算织构系数 f ^[24]:

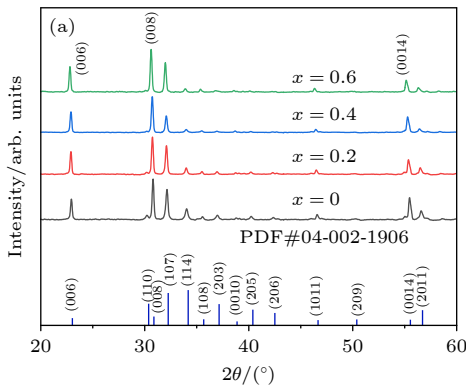


图 4 $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ ($x = 0-0.6$) 磁体的 (a) X 射线衍射图谱和 (b) 织构系数

Fig. 4. (a) X-ray diffraction patterns and (b) texture coefficient of oriented $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ ($x = 0-0.6$) magnets.

$$f = \frac{\frac{\sum I_{(00l)}}{\sum I_{(hkl)}} - \frac{\sum I_{0(00l)}}{\sum I_{0(hkl)}}}{1 - \frac{\sum I_{0(00l)}}{\sum I_{0(hkl)}}}, \quad (6)$$

其中 I 代表取向样品的衍射峰强度, I_0 代表 PDF# 04-002-1906 标准卡片中随机取向粉末的衍射峰强度.

如图 4(b) 所示, 随着 Sc 掺杂量的增大, f 值先上升后下降, 在 $x = 0.4$ 时达到最大. 结合前文颗粒尺寸分析可以发现, f 值与平均颗粒尺寸呈正相关关系. 其机理可解释为: 在磁场成型阶段, 颗粒受到的取向力矩与其磁矩 (正比于颗粒体积) 有关, 而浆料黏滞阻力与粒径成正比^[25]. 因此, 大尺寸颗粒更易沿外加磁场精确定向. 在后续烧结过程中, 这些良好取向且尺寸较大的颗粒作为优势颗粒会通过吞并周围取向较差的小颗粒优先生长, 从而降低随机取向颗粒的比例, 进一步增强了材料的取向效果^[26].

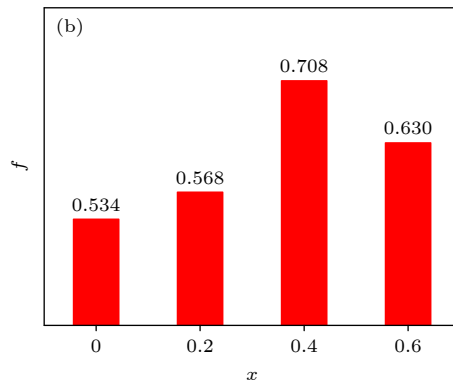
图 5(a)–(d) 所示为取向 $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ ($x = 0-0.6$) 磁体的磁滞回线. 依据趋近饱和定律^[27], 通过 (7) 式–(9) 式计算了磁晶各向异性场 H_a 及各向异性常数 K_1 :

$$M = M_s \left(1 + \frac{A}{H} + \frac{B}{H^2} \right) + \chi H, \quad (7)$$

$$B = \frac{1}{15} H_a^2, \quad (8)$$

$$K_1 = \frac{H_a \mu_0 M_s}{2}, \quad (9)$$

其中, A 和 χ 在大场近似下被忽略.



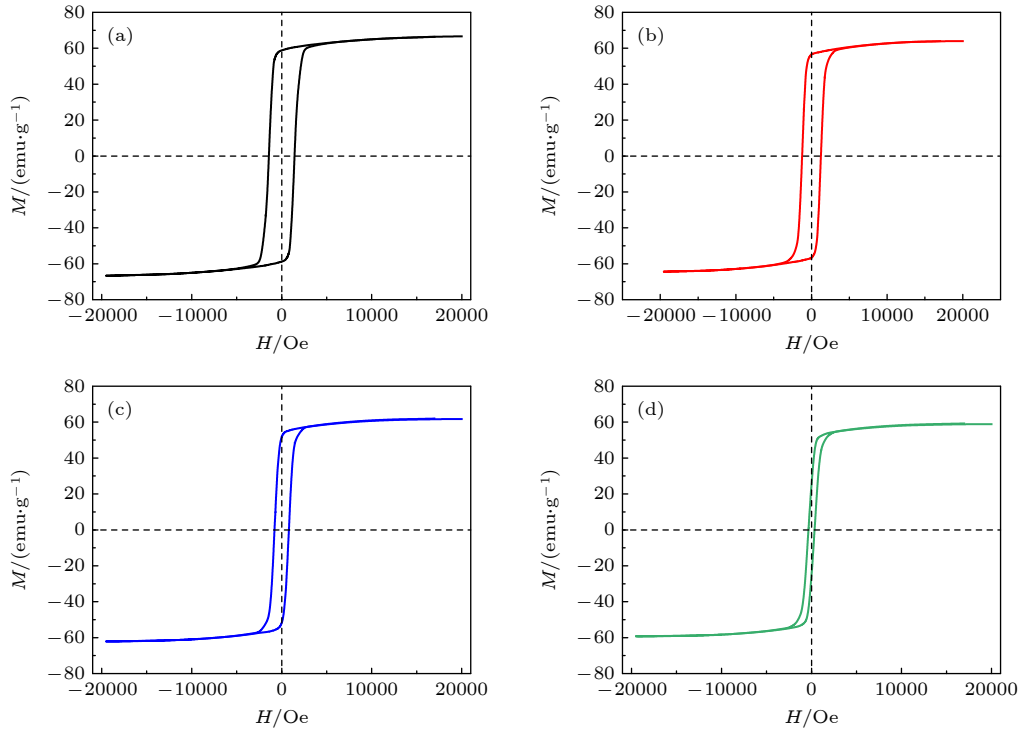


图 5 $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ ($x = 0-0.6$) 磁体的磁滞回线 (a) $x = 0$; (b) $x = 0.2$; (c) $x = 0.4$; (d) $x = 0.6$

Fig. 5. Magnetic hysteresis loops of oriented $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ ($x = 0-0.6$) magnets: (a) $x = 0$; (b) $x = 0.2$; (c) $x = 0.4$; (d) $x = 0.6$.

取向 $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ ($x = 0-0.6$) 磁体的磁滞回线的拟合曲线如图 6 所示, 相应的磁性能参数汇总于表 2. 结果显示, 当 $x = 0-0.4$ 时, 样品均保持较高饱和磁化强度和剩磁比, 且随着 Sc 掺杂量增大, 磁晶各向异性场由 10821 Oe 逐渐降低至 7086 Oe. 然而, 当 $x = 0.6$ 时, 过量的 Sc 掺杂导致矫顽力降低至仅 336 Oe, 使样品呈现出一定的软磁特性, 引起剩磁大幅下降.

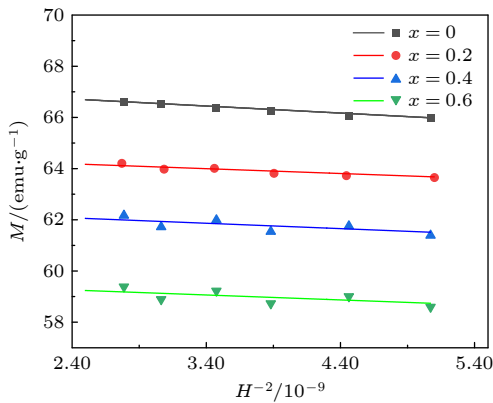


图 6 $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ ($x = 0-0.6$) 磁体的磁滞回线的拟合曲线 (a) $x = 0$; (b) $x = 0.2$; (c) $x = 0.4$; (d) $x = 0.6$

Fig. 6. Fitting curves of magnetic hysteresis loops of oriented $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ ($x = 0-0.6$) magnets: (a) $x = 0$; (b) $x = 0.2$; (c) $x = 0.4$; (d) $x = 0.6$.

表 2 $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ ($x = 0-0.6$) 磁体的磁性能

Table 2. Magnetic properties of $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ ($x = 0-0.6$) magnets.

x	M_s /($\text{emu}\cdot\text{g}^{-1}$)	M_r / $M_s/\%$	H_c /Oe	H_a /Oe	K_1 /($10^5 \text{ erg}\cdot\text{g}^{-1}$)	ΔH /Oe
0	66.6	90.5	1527	10821	3.60	257
0.2	64.0	88.4	1245	8612	2.76	268
0.4	61.7	84.1	796	7086	2.19	254
0.6	58.9	42.4	336	6369	1.88	/

为进一步阐明上述磁性能变化的原因, 有必要从晶格占位与磁交换机制角度对其微观机理进行分析. BaM 中 Fe^{3+} 离子占据 5 种不同的晶格位置, 其晶体学位置、自旋方向、玻尔磁子数及各向异性场系数如表 3 所列 [28].

对于具有较大半径的 La^{3+} 离子, 其受体积效应影响, 倾向于取代占据六配位或八配位位点的 Ba^{2+} 离子, 从而导致晶体结构畸变, 这种畸变能够增强 12k 和 2b 位点间的超交换作用, 有助于提高饱和磁化强度 [29]. 然而, La^{3+} 取代后, 为维持晶格电中性, 部分位于 2a 或 $4f_2$ 位点的 Fe^{3+} 会被还原为 Fe^{2+} [19]. Fe^{2+} 含量的增大会促进 Fe^{2+} 与 Fe^{3+} 间的电子跃迁, 导致介电损耗的增大. 同时, 由于 Fe^{2+}

的玻尔磁子数小于 Fe^{3+} , 也会引起饱和磁化强度降低. 因此, 需要引入等量的 Zn^{2+} 以维持电荷平衡. Zn^{2+} 离子倾向于取代占据 $4f_1$ 位点的 Fe^{3+} 离子^[30], 作为非磁性离子, Zn^{2+} 的引入将消除 $4f_1$ 位点的向下自旋的磁矩及其对各向异性常数的贡献, 从而提高晶格净磁矩, 增强样品的饱和磁化强度, 并降低磁晶各向异性场. 由表 3 可知, $2b$ 位点上的 Fe^{3+} 对各向异性常数的贡献最高, 因此, 优先取代该位置非磁性 Sc^{3+} 离子, 能够有效降低磁晶各向异性场. 然而, 由于 Sc^{3+} 离子无磁矩, 其取代会导致晶格净磁矩的减小, 从而减小饱和磁化强度.

表 3 M 型六角铁氧体不同晶格位置对磁晶各向异性的贡献^[28]

Table 3. Contributions of different crystal sites to magnetocrystalline anisotropy in M-type hexaferrites^[28].

晶位	配位数	$K_1/(\text{cm}^{-1}\cdot\text{ion}^{-1})$	自旋方向
12k	6	-0.18	↑
$4f_2$	6	0.51	↓
2a	6	0.23	↑
$4f_1$	4	0.18	↓
2b	5	1.40	↑

图 7 所示为取向 $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ ($x = 0-0.6$) 磁体在零外场条件下的微分共振曲线. 表 2 列出了根据 (10) 式计算得到的铁磁共振线宽 ΔH :

$$\Delta H = \frac{2\pi\Delta f}{\gamma}, \quad (10)$$

其中, Δf 是频率峰的半高宽, γ 是旋磁比.

如图 7 所示, 样品的共振频率 (f_r) 随 Sc 掺杂量的增大而逐渐降低, 这一变化趋势与磁晶各向异性场的变化规律一致. 当 $x = 0-0.4$ 时, 样品均表现出较窄的铁磁共振线宽 (<270 Oe), 这主要得益于较高的致密度和良好的取向性, 使得气孔等缺陷对线宽的影响显著降低. 根据 Chen 等^[21] 的研究, 多晶 M 型六角铁氧体的线宽主要由本征线宽 ΔH_i 、磁晶各向异性致宽 ΔH_a 以及气孔致宽 ΔH_p 三部分构成. 前两项之和理论上仅为约 100 Oe. 值得注意的是, $x = 0.6$ 时未观察到共振峰, 这可能是由于过量的 Sc 掺杂使材料呈现软磁特性, 从而无法维持足够的剩磁以激发可检测的共振信号.

图 8 展示了基于 $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ 磁性能仿真设计的 3 款自偏置环形器的 S 参数曲

线及结构示意图. 3 款环形器均依据 Bosma 提出的带线结环形器理论^[34] 设计, 并通过 HFSS 的参数扫描功能进行优化, 具体结构参数列于表 4. 仿真结果表明, 3 款环形器均表现出良好的环行特性. 随着 Sc 掺杂量的改变, 器件中心频率可在较宽范围内改变, 这对实现覆盖不同工作频段的自偏置环形器具有重要意义. 随着材料磁晶各向异性场的降低, 环形器插入损耗也逐渐降低, 这种现象可以归因于较低的磁晶各向异性场有助于减少低场损耗. 此外, 较高的饱和磁化强度可以带来较宽的工作带宽, 这是由于 M_s 增大能够增强铁氧体张量磁导率中非对角元与对角元之比, 而该比值与器件带宽呈正相关关系^[32].

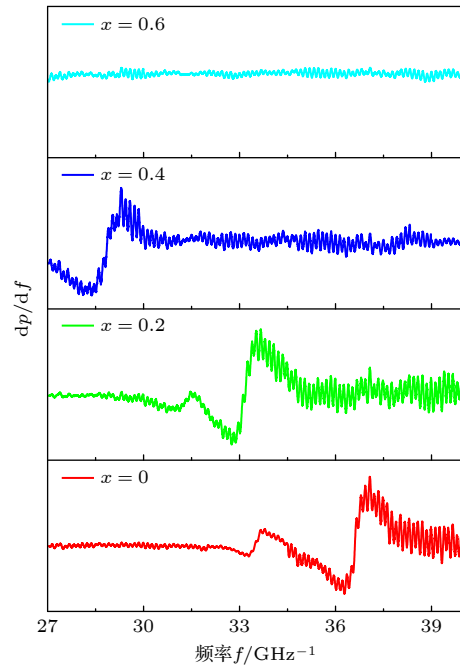


图 7 $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ ($x = 0-0.6$) 磁体的自偏置微分共振曲线

Fig. 7. Self-biased differential resonance spectra of oriented $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ ($x = 0-0.6$) magnets.

表 4 根据 $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ 磁体磁性能设计的自偏置环形器的尺寸参数

Table 4. Dimensional parameters of self-biased circulators designed based on magnetic properties of oriented $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ magnets.

x	$D/$ mm	$W_1/$ mm	$W_2/$ mm	$L/$ mm
0	10.8	0.28	0.08	0.45
0.2	14.0	0.3	0.085	0.575
0.4	14.5	0.35	0.09	0.65

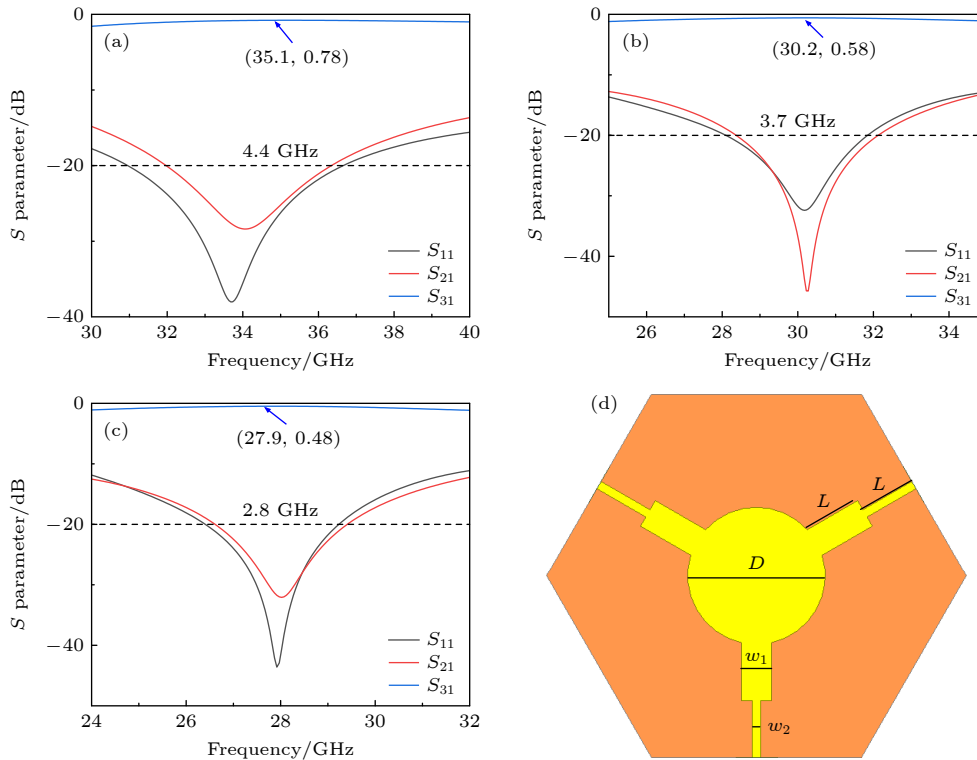


图 8 根据 $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ 磁体磁性能设计的自偏置环行器的 (a)–(c) S 参数和 (d) 环行器示意图 (a) $x = 0$; (b) $x = 0.2$; (c) $x = 0.4$; (d) 示意图

Fig. 8. (a)–(c) S -parameters and (d) schematic illustration of self-biased circulators based on magnetic properties of oriented $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ magnets: (a) $x = 0$; (b) $x = 0.2$; (c) $x = 0.4$; (d) schematic diagram.

4 结 论

本研究系统阐明了 Sc^{3+} 掺杂量对 Sc-La-Zn 共取代 M 型钡铁氧体结构与磁性能的调控规律. 通过固相反应法结合磁场取向工艺, 成功制备出一系列具有高 c 轴取向的六角铁氧体 $\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ ($x = 0-0.6$). XRD 与 SEM 分析表明, 所有样品均形成单一磁铅石相, 且呈现规整的六角板状形貌. 系统研究了 Sc 掺杂量对颗粒尺寸和织构系数的影响机制, 发现适量的 Sc 掺杂 ($x = 0.4$) 可促进颗粒生长并提升取向度. 在磁性能方面, La-Zn 共掺杂通过增强 12 k 和 2b 位点间的超交换作用和增加晶格净磁矩, 使材料表现出高饱和和磁化强度 ($M_s > 60 \text{ emu/g}$) 和优异的剩磁比 ($M_r/M_s \approx 0.88$), 同时, Sc^{3+} 的引入实现了磁晶各向异性场在 7000—10000 Oe 范围内的调控. 获得了较窄的铁磁共振线宽 ($\Delta H < 270 \text{ Oe}$), 为降低自偏置环行器插入损耗奠定了材料基础. 基于样品的磁性能参数, 通过 HFSS 仿真设计了 3 款自偏置环行器, 其中心频率覆盖 25—35 GHz. 仿真结果显示, 使用

$x = 0.4$ 的材料时, 环行器的插入损耗最低值小于 0.5 dB, 使用 $x = 0$ 的材料时, 环行器带宽最高达 4.4 GHz, 展现出优异的环行特性与频率适应性. 本研究通过多元素协同掺杂策略, 成功实现了材料磁性能的精准调控, 为发展新一代紧凑型微波系统所需的高性能自偏置环行器提供了有效的材料解决方案, 对推进毫米波集成技术的发展具有重要意义.

参考文献

- [1] Peral E, Im E, Wye L, Lee S, Tanelli S, Rahmat-Samii Y, Horst S, Hoffman J, Yun S H, Imken T, Hawkins D 2018 *Proc. IEEE* **106** 404
- [2] Zhang Q, Fan H, Qin Y, Zhou Y 2025 *Sensors* **25** 4616
- [3] Song R, Wang W, Yu W 2024 *Sensors* **24** 5978
- [4] Patel V, Mittapally V, Nagaraju D, Madhukar H 2021 *International Conference on Control, Automation, Power and Signal Processing (CAPS)* Jabalpur, India, December 10–12, 2021 p1
- [5] Elliott J R 2020 *Surv. Geophys.* **41** 1323
- [6] Saraereh O A 2022 *Comput. Syst. Sci. Eng.* **43** 413
- [7] Singh C, Sharma C, Tripathi S, Sharma M, Agrawal A 2023 *Wirel. Pers. Commun.* **133** 1547
- [8] Harris V G, Sokolov A S 2018 *J. Supercond. Nov. Magn.* **32** 97
- [9] Liu Q, Li H B, You X, Li C, Tan X, Wu C S, Liang T P, Lai Y M 2024 *J. Alloys Compd.* **1008** 176760

- [10] Li X Y, Hou Y H, Chen X, Huang Y L, Li W, Tao X M 2025 *Acta Phys. Sin.* **74** 067501 (in Chinese) [李昕语, 侯育花, 陈璇, 黄有林, 李伟, 陶小马 2025 物理学报 **74** 067501]
- [11] Yang J L, Liu K W, Shen D Z 2017 *Chin. Phys. B* **26** 047308
- [12] Jotania R 2014 *AIP Conf. Proc.* **1621** 596
- [13] Li Y L, Liu Q, Qi M G, Chen Y L 2022 *J. Electron. Mater.* **52** 523
- [14] Lu S F, Liu Y L, Yin Q S, Chen J F, Wu J, Li J, Zhang P J, Chen Z C 2024 *Mater. Res. Bull.* **172** 112640
- [15] Jiang X, Jia H, Wu C, Yu Z, Luo H, Guo R, Li Z, Jiang Y, Nie J, Lan Z, Sun K 2020 *J. Alloys Compd.* **835** 155202
- [16] Peng L, Hu Y B, Guo C, Li L Z, Wang R, Hu Y, Tu X Q 2015 *Chin. Phys. Lett.* **32** 017502
- [17] Liu Q, Wu C S, Wang Y, You X, Li J, Liu Y L, Zhang H W 2019 *J. Magn. Magn. Mater.* **475** 223
- [18] Pope C G 1997 *J. Chem. Educ.* **74** 129
- [19] Liu X S, Zhong W, Yang S, Yu Z, Gu B X, Du Y W 2002 *J. Magn. Magn. Mater.* **238** 207
- [20] Yang Y J, Shao J X, Wang F H, Liu X S, Huang D H 2017 *Appl. Phys. A* **123** 316
- [21] Chen Y, Nedoroscik M J, Geiler A L, Vittoria C, Harris V G 2008 *J. Am. Ceram. Soc.* **91** 2952
- [22] Rezlescu N, Rezlescu E, Popa P D, Doroftei C, Ignat M 2014 *Appl. Catal. B-Environ.* **158–159** 70
- [23] Achari K M R, Ramachander R B 1987 *Bull. Mater. Sci.* **9** 97
- [24] Dawley J T, Clem P G 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 3028
- [25] Erokhin S, Berkov D 2020 *Phys. Status Solidi B* **257** 2000290
- [26] Liu J L, Zeng Y W, Zhang X K, Zhang M 2015 *J. Magn. Magn. Mater.* **382** 188
- [27] Hessien M M, El-Bagoury N, Mahmoud M H H, Alsawat M, Alanazi A K, Rashad M M 2020 *J. Magn. Magn. Mater.* **498** 166187
- [28] Mahmood S H, Dushaq G H, Bsoul I, Awawdeh M, Juwhari H K, Lahlouh B I, AlDamen M A 2014 *J. Appl. Math. Phys.* **2** 77
- [29] Kumar R K S, Manglam M K, Supriya S, Satpal H K 2019 *J. Magn. Magn. Mater.* **473** 312
- [30] Manglam M K, Kumari S, Pradhan L K, Kumar S, Kar M 2020 *Physica B* **588** 412200
- [31] Bosma H 1964 *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.* **12** 61
- [32] Wu C J 2018 *Ph. D. Dissertation* (Chengdu: University of Electronic Science and Technology of China) (in Chinese) [邬传建 2018 博士学位论文 (成都: 电子科技大学)]

SPECIAL TOPIC — Applied magnetism

Sc-La-Zn co-substituted M-type barium ferrites: Magnetic properties and applications in self-biased circulators^{*}

ZHAN Xueqian LI Jiashu ZHONG Ming SHI Huigang JIANG Changjun[†]

(Key Laboratory of Magnetism and Magnetic Materials of Ministry of Education, School of Physical Science and Technology, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China)

(Received 14 November 2025; revised manuscript received 12 December 2025)

Abstract

To meet the requirements for miniaturization and higher operating frequencies in self-biased circulators, improving the performance of hexaferrite materials is essential. In this work, Sc-La-Zn co-substituted M-type barium ferrites ($\text{La}_{0.3}\text{Ba}_{0.7}\text{Fe}_{10.9-x}\text{Zn}_{0.3}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$) are prepared via solid-state reaction. X-ray diffraction (XRD) confirms the formation of a single-phase magnetoplumbite structure in all samples. Scanning electron microscopy (SEM) images shows that the ferrite particles have a hexagonal platelet morphology and are aligned along the *c*-axis after wet pressing and sintering under a magnetic field. Lattice parameters and particle sizes are calculated from the XRD and SEM data. Magnetic measurements indicate that the Sc-La-Zn substituted M-type ferrites have high saturation magnetization ($M_s > 60$ emu/g), and by controlling Sc doping, the magnetocrystalline anisotropy field can be adjusted between 7–10 kOe. Moreover, a narrow ferromagnetic resonance linewidth ($\Delta H \approx 260$ Oe) is achieved. Based on the measured magnetic parameters, three self-biased circulators operating at center frequencies from 25 GHz to 35 GHz are designed, simulated using HFSS, and demonstrate a broad frequency tuning range. The circulators exhibit a minimum insertion loss below 0.5 dB and a maximum isolation bandwidth (isolation >20 dB) of up to 4.4 GHz. This study demonstrates the potential of these materials in achieving self-biased circulators capable of operating across different frequency bands.

Keywords: Sc-La-Zn co-doping, M-type barium ferrite, magnetic properties, self-biased circulator

DOI: [10.7498/aps.75.20251559](https://doi.org/10.7498/aps.75.20251559)

CSTR: [32037.14.aps.75.20251559](https://cstr.cn/32037.14.aps.75.20251559)

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 52271179) and the Natural Science Foundation of Gansu Province, China (Grant No. 24YFGA006).

[†] Corresponding author. E-mail: jiangchj@lzu.edu.cn

Sc-La-Zn共取代M型钡铁氧体的磁性能及其在自偏置环行器中的应用

占学谦 李嘉澍 钟铭 史慧刚 蒋长军

Sc-La-Zn co-substituted M-type barium ferrites: Magnetic properties and applications in self-biased circulators

ZHAN Xueqian LI Jiashu ZHONG Ming SHI Huigang JIANG Changjun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 75, 060806 (2026) DOI: 10.7498/aps.75.20251559

CSTR: 32037.14.aps.75.20251559

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.75.20251559>

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

Ca-Co(Zn)共掺杂对M型锶铁氧体性能影响的第一性原理计算研究

First-principles study of effects of Ca-Co (Zn) co-doping on properties of M-type strontium ferrite

物理学报. 2025, 74(6): 067501 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20241626>

高性能La-Co共替代M型永磁铁氧体的磁各向异性增强机理研究进展

Research progress of magnetic anisotropy enhancement mechanism of high-performance La-Co co-substituted M-type permanent magnet ferrites

物理学报. 2024, 73(12): 126101 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240190>

Fe掺杂对Ni-Mn-Ti全d族Heusler合金马氏体相变和磁性能影响的研究

Effects of Fe doping on Martensitic Transformation and magnetic properties of Ni-Mn-Ti All-d-metal Heusler Alloy

物理学报. 2023, 72(4): 046301 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222037>

FeNiMo/SiO₂复合粉芯的制备与软磁性能调控

Preparation of FeNiMo/SiO₂ composite core and regulation of soft magnetic properties

物理学报. 2022, 71(15): 157502 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212317>

V₂O₅-Al₂O₃助烧剂对低温烧结Li-Zn微波铁氧体性能的影响

Effects of V₂O₅-Al₂O₃ sintering aid on properties of low temperature sintered Li-Zn microwave ferrites

物理学报. 2023, 72(3): 037501 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20221723>

含重稀土元素的(Ln_{0.2}La_{0.2}Nd_{0.2}Sm_{0.2}Eu_{0.2})MnO₃ (Ln = Dy, Ho, Er)高熵钙钛矿陶瓷的制备及磁学性能

Preparation and magnetic properties of (Ln_{0.2}La_{0.2}Nd_{0.2}Sm_{0.2}Eu_{0.2})MnO₃ (Ln = Dy, Ho, Er) high-entropy perovskite ceramics containing heavy rare earth elements

物理学报. 2025, 74(13): 138101 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250256>