

## 取向易面各向异性羰基铁粉体的高频磁性研究\*

霍天旭 乔亮† 王涛 李发伸

(兰州大学磁学与磁性材料教育部重点实验室, 兰州 730000)

(2014年2月24日收到; 2014年4月22日收到修改稿)

研究了取向度对羰基铁粉体复合材料微波磁性的影响. 理论上构造了取向片状磁性颗粒磁矩的高斯分布, 并通过 Landau-Lifshitz-Gilbert 方程得到了有取向度的软磁材料复数磁导率的求解方法, 模拟计算了羰基铁样品高频复数磁导率随频率的变化. 研究发现: 随着样品取向角  $\langle\theta\rangle$  的变大, 高斯分布标准偏差  $\sigma$  减小, 取向度  $f$  增大; 随着片状样品取向度的提高, 材料初始有效磁导率的实部值增大. 为了对照, 利用穆斯堡尔谱得到磁体的取向度, 并通过网络分析仪测量了磁体的高频磁导率, 所获得的实验结果与理论预期值相符.

**关键词:** 羰基铁粉体, 高斯分布, 取向度, 高频磁性**PACS:** 75.47.Np, 02.50.Ng, 76.80.+y, 76.20.+q**DOI:** 10.7498/aps.63.167503

## 1 引言

新一代微波吸波材料对软磁材料的高频性能提出了更高的要求<sup>[1]</sup>. 相对于铁氧体而言, 羰基铁粉体具有更高的饱和磁化强度和低频磁导率, 已成为软磁材料领域研究的热点之一<sup>[2-5]</sup>. 文献<sup>[6-8]</sup>研究了片状羰基铁颗粒复合材料的微波磁性, 结果表明, 相对于球形颗粒, 片状羰基铁材料因其磁导率和共振频率的乘积可以超过 Snoke 极限而具有更好的微波磁性, 并表现出良好的吸收特性<sup>[6-8]</sup>.

对软磁材料的研究发现取向度的改善可进一步提高其高频软磁性能<sup>[9]</sup>, 如易面性的  $\text{Co}_2\text{Z}$  型铁氧体的初始磁导率仅为 11, 而在样品形成过程中加上取向磁场后, 其初始磁导率上升为 27. 文献<sup>[7]</sup>对片状羰基铁粉体复合材料旋转取向后发现, 材料的初始磁导率实部  $\mu_r'$  从无取向时的 9.3 升高为 12. 增大取向度可以使片状软磁材料的微波磁谱性能得到进一步提高, 从而充分发挥易面性磁体的潜力. 当铁磁体存在易面性时, 铁磁体具有更好的高

频软磁性能, 这可由下列方程加以解释<sup>[10]</sup>:

$$f_{\text{res}}(\mu_r - 1) = \frac{4}{3}\gamma M_s \left[ \frac{1}{2} \sqrt{\frac{H_\theta^A}{H_\phi^A}} + \frac{1}{2} \sqrt{\frac{H_\phi^A}{H_\theta^A}} \right], \quad (1)$$

其中,  $f_{\text{res}}$  为共振频率,  $\mu_r$  为初始磁导率,  $\gamma$  为旋磁比,  $M_s$  为饱和磁化强度,  $H_\phi^A$  为面内各向异性场,  $H_\theta^A$  为面外各向异性场.  $f_{\text{res}}$  与  $\mu_r$  的乘积取决于材料的内禀属性(如  $\gamma$ ,  $M_s$ ,  $H_\phi^A$ ,  $H_\theta^A$ ). 对于各向同性的铁磁体, 因为  $H_\theta^A = H_\phi^A$ , (1) 式右端括号中的因子等于 1, 因此初始磁导率  $\mu_r$  仅取决于  $M_s$ ; 当铁磁体存在易面性或磁矩择优取向时, 面内各向异性场  $H_\phi^A$  小于面外各向异性场  $H_\theta^A$ , (1) 式右端括号中的因子大于 1, 当共振频率  $f_{\text{res}}$  不变时, 初始磁导率  $\mu_r$  会增大.

虽然取向度与软磁材料高频磁性之间关系非常紧密, 但是目前相关的报道却很少见. Soohoo<sup>[11]</sup>提出了磁矩空间角度与张量磁导率之间的关系, 在此基础上, 本文给出了片状颗粒磁矩任意取向时软磁材料的复数磁导率求解方法, 引入了取向磁矩的高斯分布表达方式, 还计算了取向磁性颗粒复合材料的有效磁导率. 最后考察了取向度对羰基铁复合

\* 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2012CB933101)、国家自然科学基金(批准号: 513620124)和中央高等学校基本科研基金(批准号: lzujbky-2013-179)资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: qiaoliang@lzu.edu.cn

材料高频磁性的影响.

## 2 理论模拟方法

### 2.1 理论方法

Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程被广泛用于计算磁性材料在高频下的磁导率<sup>[11]</sup>,

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma(\mathbf{M} \times \mathbf{H}) + \frac{\alpha}{M_s} \mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt}, \quad (2)$$

其中,  $\mathbf{M}$  为磁化强度;  $\mathbf{H}$  为有效场, 其方向是磁化强度静态下的稳定方向;  $\alpha$  为阻尼因子. 方程 (2) 右端第一项表示力矩, 第二项表示 Gilbert 阻尼, 若没有外场提供能量, 由于阻尼项的存在, 磁性材料的磁化强度最终与有效磁场的方向一致.

求解材料在高频交变磁场  $\mathbf{h}$  中的磁导率或磁化率时需要在磁化强度表达式中引入磁化强度交变分量  $\mathbf{m}$ , 同时在有效场中加入交变磁场  $\mathbf{h}$ . 为了研究方便, 选取  $z$  轴方向为软磁体面内易磁化场方向, 并记易磁化有效场为  $H_z$ . 对于圆片状样品, 由于易磁化面的存在, 磁矩分布趋向于在面内, 而没有垂直于面的磁矩分布, 因此只需要考虑沿易面方向的退磁因子. 对任意一个片状颗粒, 总磁化强度和总磁场可以写成如下矢量形式:

$$\begin{aligned} \mathbf{M} &= \hat{z}M_z + \mathbf{m}e^{j\omega t}, \\ \mathbf{H} &= \hat{z}H_z + \mathbf{h}e^{j\omega t}, \end{aligned} \quad (3)$$

其中,  $j$  为虚数单位;  $\hat{z}$  为  $z$  轴单位矢量;  $\omega$  为电磁波的角频率;  $M_z$  为饱和磁化强度  $M_s$  在  $z$  轴的分量,  $M_z$  和  $M_s$  在沿易磁化有效场方向分布时非常接近. 将 (3) 式代入 LLG 方程, 由于  $|\mathbf{m}| \ll |\mathbf{M}| = M_s \approx M_z$ , 并考虑电磁波交变磁场强度  $|\mathbf{h}| \ll H_z$  和感生磁化强度  $|\mathbf{m}| \ll M_z$ , 且略去高阶小量, 得到

$$j\omega\mathbf{m} = \alpha M_z(\hat{z} \times \mathbf{h}) + (\omega_0 + j\omega\alpha)(\hat{z} \times \mathbf{m}), \quad (4)$$

其中  $\omega_0$  为电子在有效场  $H_z$  下的拉莫尔进动频率,  $\omega_0 = -\gamma H_z$ . 再结合

$$\mathbf{m} = \|\chi\|\mathbf{h}, \quad (5)$$

可以求得感生磁化强度为

$$\begin{bmatrix} m_x \\ m_y \\ m_z \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \chi & -j\kappa & 0 \\ j\kappa & \chi & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} h_x \\ h_y \\ h_z \end{bmatrix}, \quad (6)$$

其中  $\|\chi\|$  为张量磁化率,

$$\|\chi\| = \begin{bmatrix} \chi & -j\kappa & 0 \\ j\kappa & \chi & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}. \quad (7)$$

由张量磁化率容易得到张量磁导率<sup>[12]</sup>,

$$\|\mu\| = \begin{bmatrix} \mu & -j\kappa & 0 \\ j\kappa & \mu & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}, \quad (8)$$

其中  $\mu = \chi + 1$ . 求得张量磁导率表达式中对角元  $\mu$  和非对角元  $\kappa$  分别为

$$\begin{aligned} \mu &= 1 + \frac{m_x}{h_x} \\ &= 1 + \frac{\omega_m(\omega_0 + \omega_m)(\omega_r^2 - \omega^2) + \alpha^2\omega^2\omega_m\omega_0}{[\omega_r^2 - \omega^2(1 + \alpha^2)]^2 + \alpha^2\omega^2(2\omega_0 + \omega_m)^2} \\ &\quad - j\omega\omega_m\alpha \\ &\quad \times \frac{(\omega_0 + \omega_m)^2 + \omega^2(1 + \alpha^2)}{[\omega_r^2 - \omega^2(1 + \alpha^2)]^2 + \alpha^2\omega^2(2\omega_0 + \omega_m)^2}, \end{aligned} \quad (9)$$

$$\begin{aligned} \kappa &= \frac{m_y}{h_x} \\ &= \frac{-\omega\omega_m[\omega_r^2 - \omega^2(1 + \alpha^2)]}{[\omega_r^2 - \omega^2(1 + \alpha^2)]^2 + \alpha^2\omega^2(\omega_0 + \omega_m)^2} \\ &\quad + j \frac{\omega_m\omega^2\alpha(2\omega_0 + \omega_m)}{[\omega_r^2 - \omega^2(1 + \alpha^2)]^2 + \alpha^2\omega^2(\omega_0 + \omega_m)^2}, \end{aligned} \quad (10)$$

其中,  $\omega_m = 4\pi M_s$ ,  $\omega_r$  为自由进动圆频率. 考虑到 3 个方向上的样品退磁因子并不相同, 由基特尔公式得到  $\omega_r$  表达式为

$$\omega_r = [\omega_0(\omega_0 + \omega_m)]^{1/2}. \quad (11)$$

由磁感应强度和交变磁场的关系

$$\mathbf{b} = \mu_0\|\mu\|\mathbf{h}, \quad (12)$$

最终得到磁感应强度  $\mathbf{b}$  的张量表达式为

$$\mathbf{b} = \mu_0 \begin{bmatrix} \mu & -j\kappa & 0 \\ j\kappa & \mu & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} h_x \\ h_y \\ h_z \end{bmatrix} \quad (13)$$

其中  $\mu_0$  为真空磁导率. 利用 LLG 方程求解得到了磁感应强度表达式, 当软磁体的磁导率为张量形式时, 某一方向的交变磁场不仅会产生同一方向上的磁感应强度, 同时还能产生其他方向的磁感应强度分量.

当考虑麦克斯韦方程组求解时, 可以得到磁感应强度  $\mathbf{b}$  的另一种形式的解, 通过两种解的等价性

可以得到磁导率与取向度之间的关系. 由麦克斯韦方程组<sup>[11]</sup>可知,

$$\frac{k}{j\omega} \mathbf{E} \times \hat{k} = -\mathbf{b}, \quad (14)$$

$$\frac{k}{j\omega} \mathbf{h} \times \hat{k} = \mathbf{D}, \quad (15)$$

其中,  $\hat{k}$  为电磁波波矢,  $\mathbf{h}$  为电磁波磁场强度,  $\mathbf{E}$  为

电磁波电场强度.  $\hat{k}$ ,  $\mathbf{h}$ ,  $\mathbf{E}$  互相垂直, 电磁波传播方向为波矢  $\hat{k}$  的方向. 利用 (14), (15) 两式, 得到  $\mathbf{b}$  的表达式为

$$\mathbf{b} = \frac{1}{\varepsilon} \left( \frac{\delta}{j\omega} \right)^2 [\mathbf{h} - (\mathbf{h} \times \hat{k})\hat{k}]. \quad (16)$$

令表征磁感应强度  $\mathbf{b}$  的 (12), (16) 两式相等并在直角坐标系中展开, 得到张量磁导率  $\|\boldsymbol{\mu}(\theta, \phi)\|$  为

$$\|\boldsymbol{\mu}(\theta, \phi)\| = \frac{1}{\varepsilon} \left( \frac{\delta}{j\omega} \right)^2 \begin{bmatrix} 1 - \sin^2 \theta \cos^2 \theta & -\sin^2 \theta \sin \theta \cos \phi & -\sin \theta \cos \theta \cos \phi \\ -\sin^2 \theta \sin \phi \cos \phi & 1 - \sin^2 \theta \sin^2 \phi & -\sin \theta \cos \theta \sin \phi \\ -\sin \theta \cos \theta \cos \phi & -\sin \theta \cos \theta \sin \phi & 1 - \cos^2 \theta \end{bmatrix}, \quad (17)$$

其中,

$$\begin{aligned} \delta &= j\omega(\mu_0 \mu_{\mu\kappa} \varepsilon)^{1/2}, \\ \mu_{\mu\kappa} &= \frac{(\mu^2 - \mu - \kappa^2) \sin^2 \theta + 2\mu \mp [(\mu^2 - \mu - \kappa^2) \sin^2 \theta + \kappa^2 \cos^2 \theta]^{1/2}}{2[(\mu - 1) \sin^2 \theta + 1]}; \end{aligned} \quad (18)$$

$\theta$  为材料中片状磁性颗粒磁矩与电磁波波矢 ( $z$  轴) 的夹角.  $\mu_{\mu\kappa}$  为复数总磁导率,  $\mu_{\mu\kappa}$  同时与张量磁导率的对角元、非对角元和夹角  $\theta$  三者有关. 软磁材料的磁矩矢量分布给定后, 依据 (17), (18) 式可得到任意角度的一个颗粒磁矩对材料总磁导率的贡献, 记为  $\|\boldsymbol{\mu}_i(\theta, \phi)\|$ , 则材料平均张量磁导率为

$$\|\bar{\boldsymbol{\mu}}\| = \frac{\sum_{i=1}^N \|\boldsymbol{\mu}_i(\theta, \phi)\|}{N}, \quad (19)$$

其中  $N$  为总磁矩矢量数. 本征磁导率  $\mu_i$  可以通过求张量磁导率的本征值获得, 通过上面的步骤, 我们可求得反映磁性材料高频物理性质的理论本征磁导率  $\mu_i$ .

## 2.2 取向磁矩的分布

已有研究表明铁磁材料受加工取向压型、烧结温度等随机因素的影响, 最终片状颗粒磁矩取向分布近似为高斯分布<sup>[13,14]</sup>. 在构造磁矩高斯分布时, 为了定量描述每个磁矩易面取向的程度, 我们定义  $z$  轴为磁体的易磁化方向, 磁矩矢量分布为高斯分布,

$$g(\theta) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} e^{-\frac{\theta^2}{2\sigma^2}}, \quad (20)$$

$$\sigma = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (\theta_i - \bar{\theta})^2}{N - 1}}, \quad (21)$$

其中,  $\sigma$  为高斯分布的标准偏差,  $\theta$  为磁矩与易磁化方向 ( $z$  轴) 的夹角. 磁矩矢量与易磁化方向夹角  $\theta$  呈高斯分布 (图 1(a)), 当磁矩理想取向 ( $\sigma = 0$ ) 时, 磁体中所有磁矩方向将平行于  $z$  轴. 当磁矩取向角度相对于  $z$  轴不为零时, 对于每个  $\theta$  角,  $\phi$  从 0 到  $2\pi$  等步长取值 (图 1(b)), 可以生成沿易磁化方向呈高斯分布的磁矩矢量.

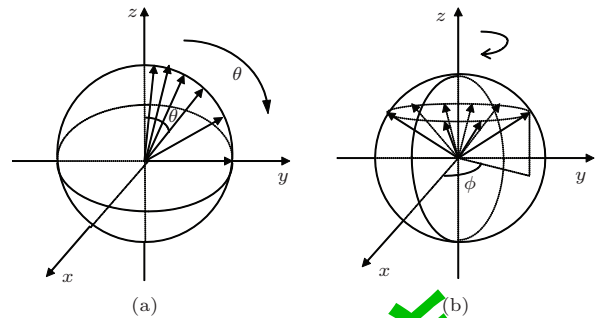


图1 磁矩矢量的分布 (a) 磁矩矢量在  $\theta$  角中的高斯分布; (b) 对于每一个  $\theta$  角,  $\phi$  从 0 到  $2\pi$  等步长生成得到的均匀磁矩矢量的分布

为了准确地描述铁磁材料的高频磁性与磁矩矢量的高斯分布  $g(\theta)$  之间的关系, 需考察  $g(\theta)$  的标准偏差  $\sigma$  和材料取向角  $\theta$  与取向度  $f$  的关系. 考虑到磁矩与  $z$  轴成  $\theta$  角时生成磁矩矢量数量的权重因子为  $\sin \theta$ , 所以求磁矩矢量与  $z$  轴的夹角平均值  $\bar{\theta}$  需引入  $\sin \theta$  和归一化因子  $C$ , 容易得到  $\bar{\theta}$  为

$$\bar{\theta} = C \int_0^{\pi/2} [g(\theta) \sin \theta] \theta d\theta. \quad (22)$$

(22) 式的积分区间为  $[0, \pi/2]$ , 这是因为经外加强磁场旋转取向成型后, 磁体内片状颗粒的磁矩矢量都指向  $z$  轴上半轴方向.

本文规定取向角  $\langle \theta \rangle$  是生成的平均磁矩矢量与  $x$  轴的夹角, 根据 (22) 式得到取向角

$$\begin{aligned} \langle \theta \rangle &= \frac{\pi}{2} - \bar{\theta} \\ &= \frac{\pi}{2} - C \int_0^{\pi/2} \frac{\sin \theta}{\sqrt{2\pi}\sigma} e^{-\frac{\theta^2}{2\sigma^2}} \theta d\theta. \end{aligned} \quad (23)$$

由取向角  $\langle \theta \rangle$  可计算取向度  $f$  为<sup>[15]</sup>

$$f = \sin \langle \theta \rangle. \quad (24)$$

但构造样品时生成了有限个呈高斯分布的磁矩矢量, 此时平均磁矩矢量与  $z$  轴夹角  $\bar{\theta}$  为

$$\bar{\theta} = \frac{\sum_{i=1}^N m_i(\theta, \phi)}{N}. \quad (25)$$

由于生成的磁矩矢量沿易磁化轴呈高斯分布, 容易得到如下关系:

$$\begin{aligned} \langle \theta \rangle &= \frac{\pi}{2} - \bar{\theta} \\ &= \frac{\pi}{2} - \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{\sum_{i=1}^N m_i(\theta, \phi)}{N} \\ &= \frac{\pi}{2} - C \int_0^{\pi/2} \frac{\sin \theta}{\sqrt{2\pi}\sigma} e^{-\frac{\theta^2}{2\sigma^2}} \theta d\theta. \end{aligned} \quad (26)$$

将生成的磁矩矢量代入 (25) 式, 计算其与易磁化轴 ( $z$  轴) 的平均角, 所获得的结果与 (22) 式的理论值相同, 进一步验证了 (26) 式的正确性. 由 (24), (26) 两式可得到  $g(\theta)$  的标准偏差  $\sigma$ 、取向角  $\langle \theta \rangle$  和取向度  $f$  三者之间的关系. 图 2(a) 描述了  $\sigma$ ,  $\langle \theta \rangle$ ,  $f$  三者之间的关系, 随着  $\sigma$  的增大,  $\langle \theta \rangle$  和  $f$  均减小.

### 2.3 磁体高频特性的模拟

本文实验中穆斯堡尔谱测量得到的 3 个磁体的实际取向度分别为 81.6%, 91.9%, 97.3%, 取向度依次增高. 根据磁体的取向度, 利用 (22), (23) 式可得到磁体实际取向度对应的取向角  $\langle \theta \rangle$  分别为  $54.7^\circ$ ,  $65.4^\circ$ ,  $76.7^\circ$ , 磁矩矢量的高斯分布  $g(\theta)$  的标准偏差  $\sigma$  分别为  $30.5^\circ$ ,  $20^\circ$ ,  $10.5^\circ$ . 利用上述构造样品的方法分别生成  $\sigma = 30.5^\circ$ ,  $20^\circ$ ,  $10.5^\circ$  时的高斯分布  $g(\theta)$ , 结果如图 2(b) 所示, 生成的高斯分布和理论高斯曲线拟合得很好 (图 2(b) 中只显示了部分数据, 实际生成了约 10000 个磁矩矢量). 依据磁

矩矢量与电磁波波矢  $\hat{k}$  之间的关系 ((17), (18) 式) 可分别计算每一个磁矩矢量对磁导率的贡献, 最后通过求平均张量磁导率的本征值得反映磁体高频磁性能的本征磁导率  $\mu_i$ .

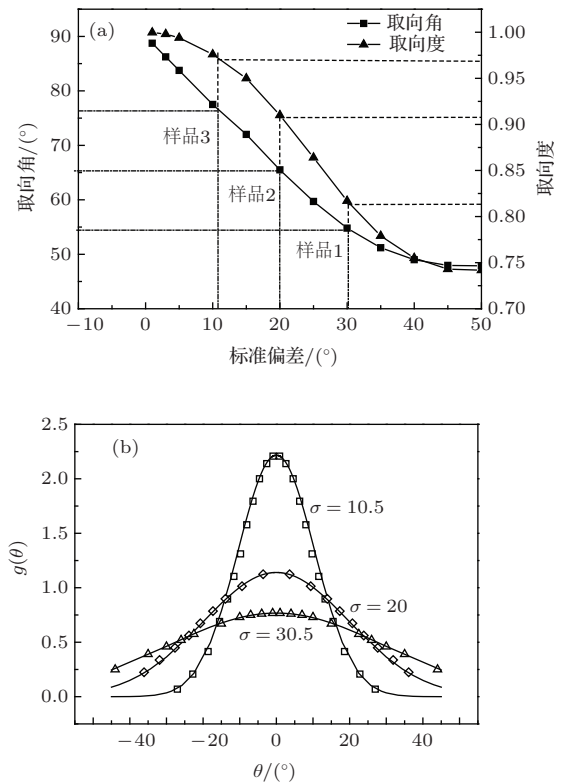


图 2 磁矩矢量高斯分布  $g(\theta)$  的标准偏差  $\sigma$  与取向角  $\langle \theta \rangle$ 、取向度  $f$  的关系及模拟生成沿易磁化轴的磁矩矢量的高斯分布 (a)  $\sigma$  与  $\langle \theta \rangle$ ,  $f$  的关系 (样品 1、样品 2、样品 3 的取向度分别为 81.6%, 91.9%, 97.3%); (b) 模拟生成沿易磁化轴的磁矩矢量的高斯分布 (实线为理论高斯曲线, 数据点为生成的模拟点)

实验中我们得到了羰基铁粉体和黏结剂 (石蜡) 组成的复合材料, 测量得到的高频磁导率为复合材料的有效磁导率  $\mu_e$ , 对于磁性颗粒/黏结剂复合材料, 其本征磁导率与复合材料的有效磁导率之间的关系可以用 Bruggeman 有效介质理论进行描述<sup>[16]</sup>,

$$P \frac{\mu_i - \mu_e}{\mu_i + 2\mu_e} + (1 - P) \frac{\mu_m - \mu_e}{\mu_m + 2\mu_e} = 0. \quad (27)$$

这里,  $\mu_e$  为实验测量得到的磁性粉体与黏结剂混合后复合材料的有效磁导率,  $\mu_m$  为黏结剂的本征磁导率 (非磁性黏结剂的  $\mu_m = 1$ ),  $P$  为复合体中磁性粉体的体积分数 (本实验中羰基铁体积分数为 25%). 综上可知, 本征磁导率  $\mu_i$  结合有效介质理论最终可得到有效磁导率  $\mu_e$ .



### 3 实验结果

#### 3.1 实验样品

将球形羰基铁样品用德国 Fritsch 公司生产的 Pulverisette-4 型行星式高能球磨机进行湿磨(加入 50 mL 乙醇), 球料比为 1 : 20, 球磨速度为 600 r/min, 球磨时间为 8 h. 球磨 8 h 后, 将样品放在真空干燥箱(25 °C)内干燥备用. 称取一定量的干燥样品和石蜡以 25% 体积浓度混合均匀. 称取 3 份混合样品分别放入无磁钢模具中, 将模具在不同强度的外磁场内旋转取向(磁场与圆环平面平行). 随后分别将样品压制制成同轴环形, 其内径为 3.04 mm, 外径为 7.00 mm, 厚度为 3 mm.

#### 3.2 形貌观察

使用日本 Hitachi 公司生产的 S-4800 型扫描电子显微镜观察粉末的形貌. 羰基铁磁性粉体呈扁平片状, 厚度小于 0.3 μm, 径向尺度在 1—10 μm 范围. 由于片状粉体可以突破 Snoke 极限, 同时, 片状羰基铁粉体厚度(小于 0.3 μm)低于羰基铁的趋肤深度, 从而可有效降低样品的涡流效应<sup>[17]</sup>, 预期实验样品可获得较高的复数磁导率.

#### 3.3 取向度分析

相对于采用 X 射线衍射方法测量磁体的取向度, 穆斯堡尔效应具有非常高的能量分辨能力, 可更有效地研究原子核与核外环境之间的超精细相互作用, 从而准确地得出磁性材料的取向度<sup>[18]</sup>. 本文选择穆斯堡尔谱仪测量羰基铁的取向度, 得到的不同取向度的羰基铁复合材料的六线谱强度如图 3 所示, 并运用下式计算了样品的取向角<sup>[19]</sup>:

$$\frac{I_{2,5}}{I_{1,6}} = \frac{4 \sin^2(\theta)}{3(1 + \sin^2(\theta))}, \quad (28)$$

其中,  $\langle \theta \rangle$  为  $\gamma$  射线与样品磁矩之间的夹角(取向角),  $I_{2,5}$  为穆斯堡尔谱 2, 5 峰的峰强,  $I_{1,6}$  为穆斯堡尔谱 1, 6 峰的峰强. 根据实验测量的取向角结

果, 由 (24) 和 (26) 式可以计算得到取向度和磁矩高斯分布的标准偏差值. 表 1 列出了利用穆斯堡尔谱计算得到的样品参数. 由表 1 可知, 取向角随取向度的增加而增大, 这表明磁矩趋向于易面方向分布.

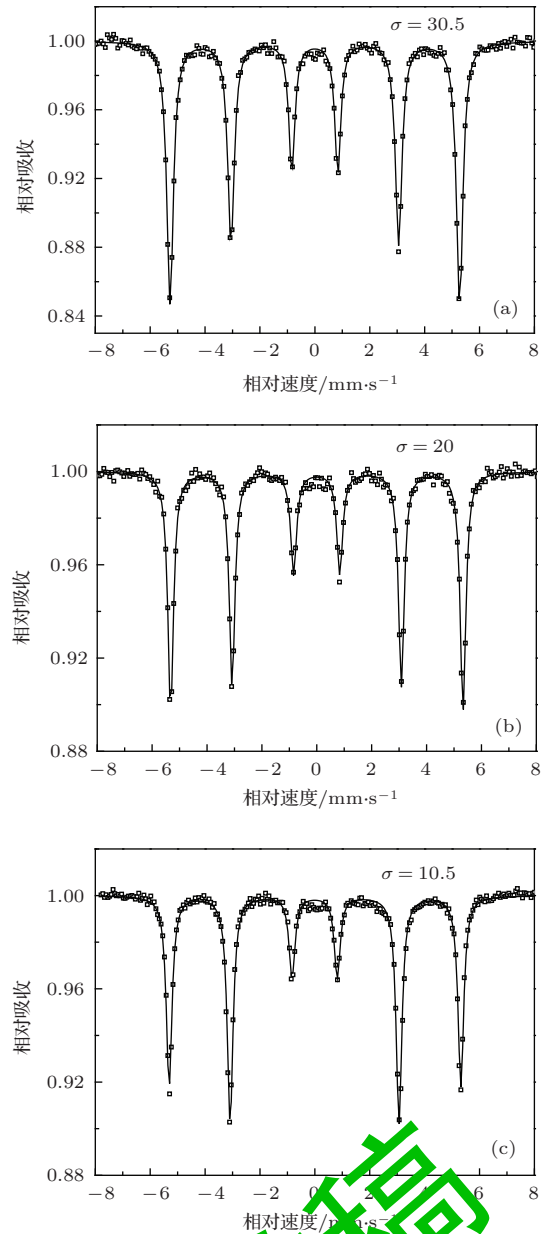


图 3 取向度  $f = 81.60\%$ ,  $90.90\%$ ,  $97.30\%$  时样品的穆斯堡尔谱 (a)  $f = 81.60\%$ ; (b)  $f = 90.90\%$ ; (c)  $f = 97.30\%$

表 1 3 个羰基铁样品参数的计算结果

$I_{2,5}/I_{1,6}$	取向角/ $^\circ$	标准偏差 $\sigma/^\circ$	取向度 $f$	阻尼因子 $\alpha$	$H_2/10^4 \text{ A}\cdot\text{m}^{-1}$
0.670	54.7	30.5	81.60%	0.61	1.04
0.939	65.4	20.0	90.90%	0.36	1.60
1.200	76.7	10.0	97.30%	0.10	2.30

### 3.4 样品磁性测量分析

利用美国 Agilent 公司生产的 E8363B 型矢量网络分析仪测量环形样品在 0.1—12 GHz 范围内的复数磁导率, 并把高频磁导率测量谱与拟合得到的结果加以对照, 所得结果如图 4 所示. 从图 4 可以看出, 磁体初始磁导率随着取向变好而明显增大, 共振频率向高频方向移动, 如在 0.1 GHz 处, 样品 1 (取向度为 81.6%) 的初始磁导率实部  $\mu_r'$  为 2.8, 虚部比较平坦, 样品 2 (取向度为 90.9%) 的  $\mu_r'$  为 3.4,

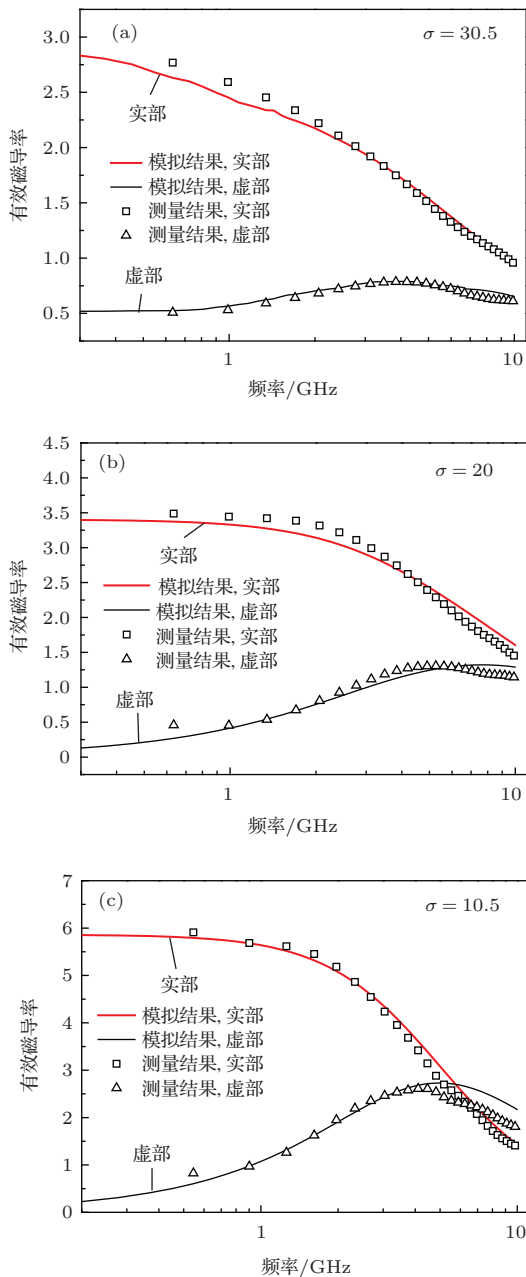


图4 取向度  $f = 81.6\%$ ,  $91.9\%$ ,  $97.3\%$  时样品的有效磁导率随频率的变化 (a)  $f = 81.6\%$ ; (b)  $f = 91.9\%$ ; (c)  $f = 97.3\%$

虚部在 4 GHz 处出现共振峰, 样品 3 (取向度为 97.3%) 的  $\mu_r''$  为 5.8, 在 4 GHz 处虚部共振峰的峰值显著提高. 由此可见, 在一定范围内, 随着高斯分布标准偏差  $\sigma$  的减小, 取向角和取向度增大, 磁矩趋向于易面分布, 初始磁导率实部逐渐升高, 共振频率向高频方向移动, 当取向度为 97.3% 时虚部出现明显的自然共振峰.

在理论拟合过程中, 得到了样品的阻尼因子  $\alpha$  和有效场  $H_z$  (表 1), 随着取向度的增大, 有效场从  $1.04 \times 10^4$  A/m 逐渐增大到  $2.30 \times 10^4$  A/m, 而阻尼因子则从 0.61 逐渐减小至 0.1, 这说明取向度的增加会导致有效场增加, 从而进一步提高复合材料的共振频率  $f_{res}$ . 阻尼因子变化机理与取向度也紧密相关, Chechenin 等 [20–22] 对两相体系的研究表明, 软磁材料中与阻尼因子相关的共振线宽可表示为  $\langle \Delta\omega^2 \rangle = 2^{1/2} \pi \gamma^2 N_d M_s^2 \beta_0^2$ , 其中,  $N_d$  为退磁因子,  $\beta_0$  为最大磁色散偏角. 随着材料取向度的提高, 材料的最大磁色散角变小, 共振线宽变窄, 阻尼因子随之减小.

综上所述可知, 对于片状羰基铁粉体, 经磁场旋转取向后片状颗粒的易磁化轴趋向于平行环形样品的表面, 取向度越高的磁体 (即高斯分布  $g(\theta)$  的标准偏差  $\sigma$  越小), 磁矩趋向于易面分布越明显, 相同频率下磁导率值增大, 共振频率增加, 最终复合材料突破 Snoek 极限. 因此, 改善片状磁性样品的取向度可以发挥易面性的潜力, 提高材料的高频磁性性能.

## 4 结 论

本文研究了经磁场旋转取向后片状羰基铁材料的高频复数磁导率随频率的变化, 并发展了 Soohoo 提出的理论, 将其拓展到任意取向样品的高频磁性模拟中, 利用高斯分布标准偏差  $\sigma$  与取向角  $\langle \theta \rangle$  和取向度  $f$  之间的关系构造了取向样品的磁矩分布. 结合上述理论, 得到了样品的高频复数磁导率谱以及阻尼因子和有效场等重要参数, 实验结果和理论结果符合得很好. 随着材料取向度的提高, 样品阻尼因子变小, 有效场增加, 复数磁导率明显增大, 共振频率向高频方向移动, 进而复合材料的高频磁性得到显著改善.

## 参考文献

- [1] Wen F S, Qiao L, Yin H B, Zhou D, Li F S 2008 *Chin. Phys. Lett.* **25** 751
- [2] Qiao L, Wen F S, Wei J Q, Wei J B, Li F S 2008 *J. Appl. Phys.* **103** 063903
- [3] Zhang B S, Yong F, Jie X, Yang Y, Lu H X 2006 *IEEE Trans. Magn.* **42** 1778
- [4] Viau G, Ravel F, Acher O, Fiévet -Vincent F, Fiévet F 1995 *J. Magn. Magn. Mater.* **140–144** 377
- [5] Ding J, Shi Y, Chen L F, Deng C R, Fuh S H, Li Y 2002 *J. Magn. Magn. Mater.* **247** 249
- [6] Walser R M, Wooseung K 1998 *IEEE Trans. Magn.* **34** 1144
- [7] Han R, Wei J Q, Han X H, Yin H B, Wang T, Li F S 2010 *Chin. Sci. Bull.* **55** 2570 (in Chinese) [韩瑞, 位建强, 韩相华, 伊海波, 王涛, 李发伸 2010 科学通报 **55** 2570]
- [8] Wen F S, Qiao L, Zhou D, Zuo W L, Yin H B, Li F S 2008 *Chin. Phys. B* **17** 2263
- [9] Smit J, Wijn P J 1959 *Ferrites: Physical Properties of Ferrimagnetic Oxides in Relation to Their Technical Applications* (New Jersey: Wiley) p279
- [10] Xue D S, Li F S, Fan X L, Wen F S 2008 *Chin. Phys. Lett.* **25** 4120
- [11] Soohoo R F 1985 *Microwave Magnetism* (New York: Harper and Row Publishers) p182
- [12] Liao S B 1987 *Ferromagnetic Physics* (Vol.2) (Beijing: Science Press) p43 (in Chinese) [廖绍彬 1987 铁磁学 (下册) (北京: 科学出版社) 第 43 页]
- [13] Zou G R, Fu H Z, Hu S P, Jiang Z J, Wang W Z 2000 *Rare Metal Mater. Eng.* **29** 149 (in Chinese) [邹光荣, 傅恒志, 胡世平, 姜战军, 王文照 2000 稀有金属材料与工程 **29** 149]
- [14] He S L, Zhang H W, Rong C B, Chen R J, Sun J R, Shen B G 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 3408 (in Chinese) [贺淑莉, 张宏伟, 荣传兵, 陈仁杰, 孙继荣, 沈保根 2005 物理学报 **54** 3408]
- [15] Xia Y F, Ye C H 1984 *Mössbauer Effect and Application* (Beijing: Atomic Energy Press) p97 (in Chinese) [夏元复, 叶纯灏 1984 穆斯堡尔效应及其应用 (北京: 原子能出版社) 第 97 页]
- [16] Rousselle D, Berthault A, Acher O, Bouchaud J P, Zerah P G 1993 *J. Appl. Phys.* **74** 475
- [17] Liu J R, Itoh M, Machida K 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 062503
- [18] Zhu S Y 2007 *Ph. D. Dissertation* (Hefei: University of Science and Technology of China) (in Chinese) [朱三元 2007 博士学位论文 (合肥: 中国科学技术大学)]
- [19] Zhang B F 1991 *Study of Mössbauer Spectrum* (Tianjin: Tianjin University Press) p215 (in Chinese) [张宝峰 1991 穆斯堡尔谱学 (天津: 天津大学出版社) 第 215 页]
- [20] Chechenin N G, Craus C B, Chezan A R, Vystavel T, Boerma D O, de Hosson J T M, Niesen L 2002 *IEEE Trans. Magn.* **38** 3027
- [21] Chechenin N G 2004 *Phys. Solid State* **46** 479
- [22] Chechenin N G 2006 *J. Magn. Magn. Mater.* **300** 198

已撤稿

# High-frequency magnetic properties of planar anisotropy carbonyl-iron particles\*

Huo Tian-Xu Qiao Liang<sup>†</sup> Wang Tao Li Fa-Shen

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

( Received 24 February 2014; revised manuscript received 22 April 2014 )

## Abstract

The effect of orientation degree on high-frequency magnetic properties of planar anisotropy carbonyl-iron particles is studied. We build the samples for planar carbonyl-iron particles, whose magnetic moments obey Gaussian distribution. Meanwhile, we obtain a new method about complex permeability by utilizing Landau-Lifshitz-Gilbert equation. Then the frequency-dependent complex permeability of sample is calculated using our method. The result shows that with the increase of orientation angle  $\langle\theta\rangle$ , the standard deviation of Gaussian distribution  $\sigma$  decreases and the orientation degree  $f$  increases. Furthermore, the real part of initial permeability of the planar carbonyl-iron sample becomes higher with the increase of orientation degree  $f$ . For comparison, we measured the orientation degree and complex permeability of the sample by Mössbauer spectroscopy and vector network analyzer respectively. It is found that our experimental data accord well with the simulation results.

**Keywords:** carbonyl-iron particles, Gaussian distribution, orientation degree, high-frequency magnetic properties

**PACS:** 75.47.Np, 02.50.Ng, 76.80.+y, 76.20.+q

**DOI:** 10.7498/aps.63.167503

已撤稿

\* Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant No. 2012CB933101), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 51102124), and the Fundamental Scientific Research Foundation for the Central Universities of China (Grant No. lzujbky-2013-179).

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