文章编号:1007 - 4252(2023)05 - 0005 - 351　　DOI: 10.20027/j.gncq.2023.0038

SiO_2 绝缘 FeSiCr 软磁复合材料的磁特性优化研究

万堃[1],吴鹏[2],高洁[3],韩钰[4],刘伟[1,*],苏海林[1]

(1.安徽瑞德磁电科技股份有限公司,安徽 芜湖 241002;2. 国网江苏省电力有限公司电力科学研究院,南京 211103;3. 国家电网有限公司,北京 100031;4. 国网智能电网研究院有限公司先进输电技术国家重点实验室,北京 102211)

摘要:本文通过改进的 stöber 工艺,制备了薄、均匀、电阻率高的 SiO_2 绝缘层,研究了绝缘层和压制压强对 FeSiCr 软磁复合材料磁电性能的影响机制。研究发现:SiO_2 绝缘层的引入显著优化了 FeSiCr 软磁复合材料的体电阻率,高频涡流损耗大幅减小,总损耗降低至未绝缘粉芯的 30%。同时,提高压制压强有利于减小磁粉内部气隙占比和提高密度,从而实现磁导率的升高和磁滞损耗的降低。根据损耗分离,涡流损耗与磁滞损耗存在竞争性。当成型压强为 2170 MPa 时,软磁复合材料具有较高的磁导率 62.6(1000 kHz)和相对最低的总磁损耗 615 mW · cm^{-3}(25 mT@ 1000 kHz)。

关键词:金属软磁粉芯;氧化硅;压制压强;磁导率;损耗

中图分类号:TM272　　**文献标志码**:A

Investigation on improved magnetic propertiesof SiO_2 -insulated FeSiCr soft magnetic composites

WAN Kun[1], WU Peng[2], GAO Jie[3], HAN Yu[4], LIU Wei[1,*], SU Hai-lin[1]

(1. Anhui Red Magneto-Electric Technology Co., Ltd., Wuhu 241002, China;2. State Grid Jiangsu Electric Power Co., Ltd. Research Institute, Nanjing 211103, China;3. State Grid Corporation of China, Beijing 100031, China;4. State Key Laboratory of Advanced Transmission Technology, State Grid Smart Grid Research Institute Co., Ltd, Beijing 102211, China)

Abstract: In this work, a modified stöber method was conducted to fabricate uniform and thin SiO_2 insulation layer with high resistivity on FeSiCr magnetic particles. The effects of SiO_2 insulating layer and compacting pressure on the magnetic and electrical properties of FeSiCr soft magnetic composites (SMCs) were studied. The introduction of SiO_2 layer was found to optimize the volume resistivity of FeSiCr SMCs. After insulation, the high-frequency eddy current loss is greatly reduced. This reduces core loss to 30% of uninsulated FeSiCr SMCs. Moreover, enhancing compacting pressure contributes to decreasing the width of air gaps among magnetic particles and improving SMC's density. As a result, higher permeabili-

收稿日期:2023-08-14;　　**修订日期**:2023-10-07

基金项目:国家电网公司总部科技项目(5500-202118252A-0-0-00).

作者简介:万 堃(1996-), 男, 博士, 主要研究方向为电磁功能材料(E-mail:1171096139@ qq.com).

通信作者:刘 伟(1992-), 男, 博士, 讲师, 主要研究方向为电磁功能材料(E-mail:nuaahflw@ 163.com).

ty and lower hysteresis loss can be obtained. In addition, loss separation has shown that there is competition between hysteresis loss and eddy current loss. The satisfying permeability of 62.6 (1000 kHz) and relatively lowest core loss of 615 mW · cm^{-3} (25 mT@ 1000 kHz) could be achieved at the compacting pressure of 2170 MPa.

Key words: Soft magnetic composites; SiO_2; Compacting pressure; Permeability; Core loss

0 引言

软磁复合材料(SMCs)作为电感和电抗器的核心组件,广泛应用于光伏逆变器、DC/DC 变换器、不间断电源等电力电子设备中[1-5]。上述设备高频化、高效化的发展趋势对具有更高电阻率、更高磁导率和更低磁芯损耗(P_{CV})的软磁复合材料提出了迫切的需求[6-9]。

从工作原理上看,由于交流电流经过线圈产生交变磁场,激发铁芯内部产生涡流,从而不可避免地引发涡流损耗,同时也导致磁导率下降,因此制约了器件的高频化、高效化发展[10]。为了抑制涡流,研究者通常可以采用减小磁粉粒径和提高电阻率两个技术手段。然而,现有的小尺寸磁粉制备工艺的收得率较低,经济性较差;而磁粉本身电阻率的调节又会受到成本以及饱和磁感应强度、磁导率等磁性参数的限制。因此,研究者广泛采用高电阻率氧化物对磁粉进行绝缘包覆处理来提高软磁复合材料的体电阻率,即使用包括 SiO_2、Al_2O_3、TiO_2、MgO 等在内的氧化物作为绝缘介质,均匀涂覆在磁性颗粒表面,从而阻断颗粒之间的涡流路径[11-14]。例如,Dong 等通过在 FeSiCr 表面包覆 MgO 显著降低了高频下的涡流损耗和总损耗[14]。Zhang 等以 SiO_2 为包覆层,开发出了具有优异高频性能的 FeNi@ SiO_2 复合材料,1MHz/50mT 的磁损耗为 1727 mW · cm^{-3}[15]。在众多制备方法中,stöber 工艺由于制备流程简单,重复性良好,被广泛应用于 SiO_2 颗粒和 SiO_2 包覆层的制备。在软磁复合材料的绝缘包覆研究中,由于磁粉颗粒粒径较大,分散性较差,常规的 stöber 工艺往往可能导致 SiO_2 包覆层分布不均匀或者与磁粉基体结合力较差。为了确保粉芯产品在压制、退火后磁粉颗粒表面仍存在均匀的 SiO_2 绝缘层,必须采用有效的技术手段优化 stöber 法所得 SiO_2 包覆层的分布形态并增强与磁粉的结合力。

此外,需要注意的是,过多氧化物加入软磁复合材料中,会导致显著的磁稀释效应,引起饱和磁感应强度和有效磁导率的降低,还可能造成磁滞损耗的显著增大。更不利的是,过厚的粗糙包覆层还会增加颗粒之间的摩擦阻力,使得软磁复合材料内部产生更多的气隙,进一步造成磁导率和磁损耗的恶化。为了解决上述问题,除了需要控制绝缘层厚度之外,提高压制压强已成为减小气隙、降低磁滞损耗、提高致密度和磁导率的有效手段[16]。例如,Tian 等人已经证明了提高压制压强有利于获得致密的微观结构,并获得了磁导率为 84.0、50kHz/100mT 的损耗为 174 mW · cm^{-3} 的高性能软磁复合材料[17]。但是,提高压制压强可能会造成部分磁粉因表面绝缘层的破损而发生直接接触,从而导致软磁复合材料电阻率的降低和涡流损耗的增强[18]。

总的来看,制备均匀致密的氧化物绝缘层是提高电阻率、降低涡流损耗的重要途径,也是确保绝缘层在大压制压强下不破损的基础,而控制绝缘层厚、减小气隙是限制磁滞损耗、提高磁导率的有效方法。基于二者的协同效应,有望改善软磁复合材料的综合性能,满足电力电子设备的高频化、高效化发展需求。据此,本文以-1200 目的 FeSiCr 合金粉末为原料,优化 stöber 工艺,在磁粉表面包覆了均匀致密的纳米级 SiO_2 绝缘层,而后通过提高压制压强,实现了软磁复合材料综合磁性能的改善。本文系统研究了 SiO_2 绝缘层对软磁复合材料微观结构和磁电性能的影响规律,探究了压制压强对软磁复合材料磁导率和磁损耗的改善机制。本研究不仅为制备均匀致密的 SiO_2 绝缘层提出了可行的思路,也为设计制造高磁导率、低损耗的软磁复合材料提供了有益参考。

1 实验

1.1 实验原料

本实验所采用的-1200 目气雾化 FeSiCr 粉末购自湖州惠金材料科技有限公司;3-氨丙基三乙氧基硅烷(APTES)、正硅酸乙酯(TEOS)、氨水、乙醇均

购自国药集团化学试剂有限公司;固体树脂粘结剂和硬脂酸锌脱模剂由安徽瑞德磁电科技有限公司提供。

1.2　FeSiCr@SiO_2绝缘粉末的制备

本文基于传统 stöber 法以及改进后的 stöber 法分别制备了 FeSiCr@ SiO_2绝缘粉末。具体工艺如下:

stöber 法:称取 50 gFeSiCr 粉末加入盛有 350 mL 乙醇的三颈烧瓶中,在搅拌 10 min 后依次加入 12 mL TEOS、10 mL H_2O 和 0.5 mL 氨水,设置水浴温度为 60 ℃,持续搅拌 24 h。反应结束后,经磁分离、洗涤、干燥得到 FeSiCr@ SiO_2绝缘粉末。

改进后的 stöber 法:称取 50 g FeSiCr 加入盛有 30 mL 乙醇的烧杯中,搅拌均匀。随后加入 1 mL APTES 和 1 mL 去离子水,充分搅拌使试剂完全分散。将反应体系在 60 ℃下持续搅拌至烘干,获得表面处理后的复合粉末。取 50 g 表面改性后的复合粉末加入盛有 350 mL 乙醇的三颈烧瓶中,在搅拌 10 min 后依次加入 12 mL TEOS、10 mL H_2O 和 0.5 mL 氨水,设置水浴温度为 60 ℃,持续搅拌 24 h。反应结束后,经磁分离、洗涤、干燥得到 FeSiCr@ SiO_2绝缘粉末。

1.3　FeSiCr@SiO_2软磁复合材料磁芯的制备

称取 0.4%(相对于绝缘粉末的质量分数,下同)的树脂粘结剂和 0.3%的脱模剂,并与绝缘粉末充分混合搅拌均匀。参考国际标准的规定和行业共识,在 1860 MPa 压强下将所得粉末压制为外径 26.92 mm、内径 14.73 mm、高 11.18 mm 的环形磁芯。作为对比,在相同条件下制备了未绝缘的 FeSiCr 磁芯。为了探究压制压强的影响,另外又分别采用 1240,1550 和 2170 MPa 的压制压强制备了 FeSiCr@ SiO_2磁芯。最后,将所得磁芯在氮气气氛中 700℃退火 2 h,得到本文研究的成品磁芯。

1.4　样品的分析表征

采用热场发射扫描电子显微镜(SEM,德国 ZEISS 公司,Gemini 500)观察 FeSiCr 粉末包覆前后的形貌变化;采用 X 射线衍射仪(XRD,荷兰 PANalytical 公司,X-Pert PRO MPD)来分析粉末的物相信息,衍射角范围为 5°~90°;通过场发射透射电子显微镜(TEM,日本电子株式会社,JEM-2100F)获取磁粉表面绝缘包覆层的厚度和结构信息。在进行 TEM 测试前,需要取少量绝缘或未绝缘粉末在超声和机械振动的辅助下,分散到乙醇中。而后,使用胶头滴管在体系中的合适位置吸取少量液体,随后滴加到 200 目的双联铜网上烘干,获得 TEM 观察用样品。利用振动样品磁强计(VSM,美国 Lake Shore 公司,Lake Shore-7410)在室温下测量 FeSiCr 粉末包覆前后的磁滞回线,磁场范围为-1200000~1200000 $A \cdot m^{-1}$,步长为 800 $A \cdot m^{-1}$;利用称重法获取磁芯的密度;通过直流电阻分析仪(常州同惠电子,TH2683A)测试磁芯的电阻率;采用 LCR 表(常州同惠电子,TH2838H)测试磁芯在 100~2000 kHz 的复数磁导率;通过 B-H 分析仪(日本岩崎,SY-8218)测量磁芯在磁感应强度 5~25 mT、频率 100~1000 kHz 条件下的损耗。

2　结果与讨论

2.1　绝缘前后粉末的微结构表征

2.1.1 SEM 表征

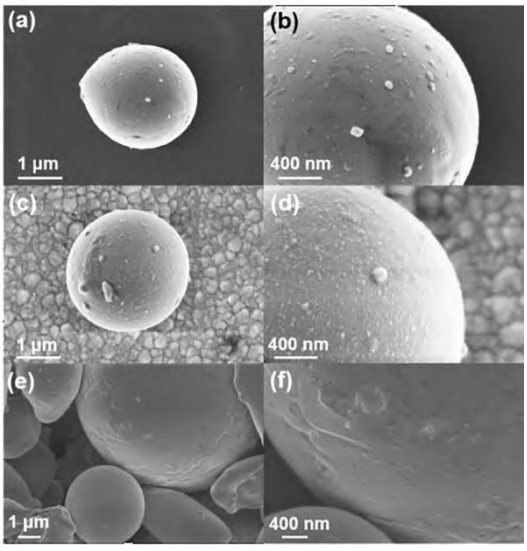

图 1　FeSiCr 粉末的 SEM 照片:(a、b)绝缘前;(c、d)绝缘后(改进后的 stöber 法);(e、f)绝缘后(stöber 法)

Fig. 1 SEM images of FeSiCr powders: (a, b) before insulation; (c, d) after insulation (modified stöber method); (e, f) after insulation (stöber method)

图 1 为 FeSiCr 磁粉包覆前后的表面形貌照片。

由图可见,未绝缘的 FeSiCr 粉末表面相对平滑,可以观察到较多纳米级碎片的附着,这应归因于气雾化制粉冷凝时细小液滴的聚集。如图 1(c、d)所示,采用改进后的 stöber 法所得的 FeSiCr 粉末表面形貌发生了明显改变,在区域放大图中可以明显看出粉末表面被大量极小的氧化硅颗粒均匀覆盖,呈现树莓状形貌。然而相比之下,采用传统 stöber 法所得的 FeSiCr 粉末表面难以观察到 SiO_2 绝缘层,甚至存在明显的源自磁粉的鳞片状结构特征,表明了此时传统的 stöber 工艺包覆效果很差,如图 1(e、f)所示。

2.1.2 XRD 表征

图 2 展示了 FeSiCr 磁粉经不同绝缘包覆工艺后所得样品的 XRD 谱图。在未绝缘的 FeSiCr 的谱图中(图 2(a)),可以观察到仅在 44.85°,65.16°,82.34°出现了三个明显的衍射峰,分别对应于 α-Fe 的(110)(200)和(211)晶面。在采用不同的绝缘工艺之后,所得粉末的 XRD 谱图中也均可以清楚看到属于 α-Fe 的尖锐衍射峰,表明绝缘处理并未影响基体 FeSiCr 的物相特性。除此之外,图中并未观察到其它衍射峰,这可能与沉积的氧化硅处于无定形状态或其含量低于仪器检测限有关[19]。

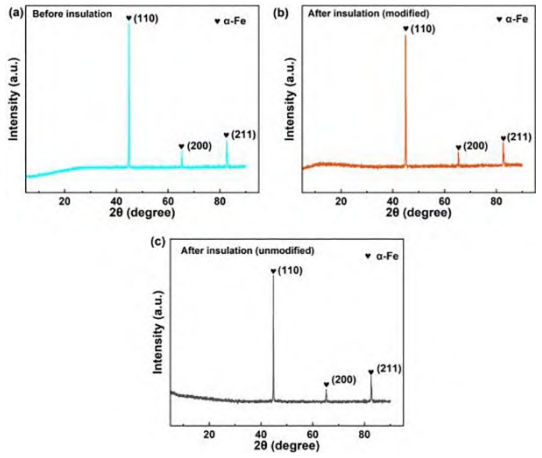

图 2 FeSiCr 粉末的 XRD 谱图:(a)绝缘前;(b)绝缘后(改进后的 stöber 法);(c)绝缘后(stöber 法)

Fig. 2 XRD patterns of FeSiCr powders: (a) before insulation; (b) after insulation (modified stöber method); (c) after insulation (unmodified stöber method)

2.1.3 TEM 表征

为了进一步分析绝缘层的厚度与微观结构,我们利用 TEM 照片对部分绝缘前后的 FeSiCr 磁粉进行了分析,如图 3 所示。由图 3(a、b)可见,由于电子束无法完全穿透 FeSiCr 磁粉颗粒,因此未绝缘的磁粉呈现出均匀的黑色实心球形状态。从放大区域可以看出,原粉表面相对干净平坦。由图 3(c、d)可见,在包覆之后,磁粉颗粒四周呈现灰白色,局部出现絮状物凸起。显然,SiO_2 颗粒已均匀地生长在磁粉表面,且由于包覆层与衬底物理性质的不同,TEM 照片中展现出不同的衬度和颜色。根据图 3(d)测量可知,SiO_2 包覆层的厚度约为 28 nm,整体均匀且致密,与磁粉结合紧密。为了确定 SiO_2 包覆层的结晶状态,图 3(f)展示出了图 3(e)中包覆层选定区域的选区电子衍射花样,图中仅可以观察到一个明亮的大中心圆斑和部分弥散光晕,这表明包覆层为典型的非晶态结构。

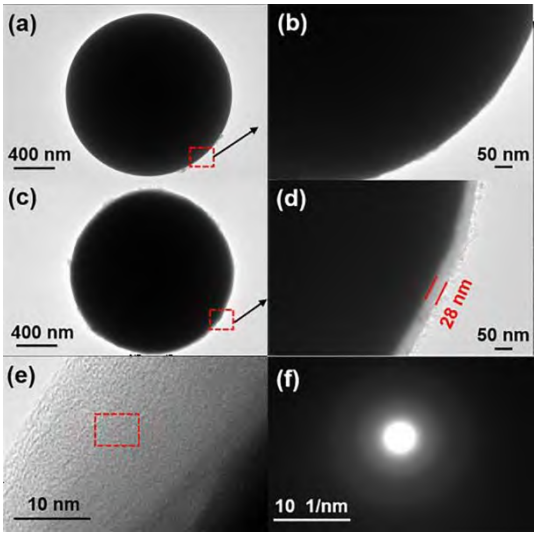

图 3 (a、b)绝缘前的 FeSiCr 粉末的 TEM 照片;(c、d、e)改进 stöber 法绝缘后的 FeSiCr 粉末的 TEM 照片;(f)包覆层的选区电子衍射花样

Fig. 3 (a, b) TEM images of FeSiCr powders before insulation; (c, d, e) TEM images of FeSiCr powders after insulation via modified stöber method; (f) SAED pattern of insulation layer

2.1.4 VSM 表征

图 4 展示了绝缘前后的 FeSiCr 磁粉的磁滞回线。可见,FeSiCr 具有高饱和磁化强度(M_S)和低矫顽力,呈现典型的软磁特性。未绝缘 FeSiCr 磁粉的 M_S 为 174.94 emu · g^{-1},改进 stöber 法绝缘后 FeSiCr 磁粉的 M_S 为 166.92 emu · g^{-1}。这是由于氧化硅是非磁性物质,它的存在会减少绝缘磁粉单位质量内磁矩的数量,从而导致饱和磁化强度的下降。而从

图 4 中的局部放大图中可以发现,磁粉绝缘前后的矫顽力极为接近,在 800 A · m^{-1}上下,绝缘后磁粉的矫顽力略微增大。

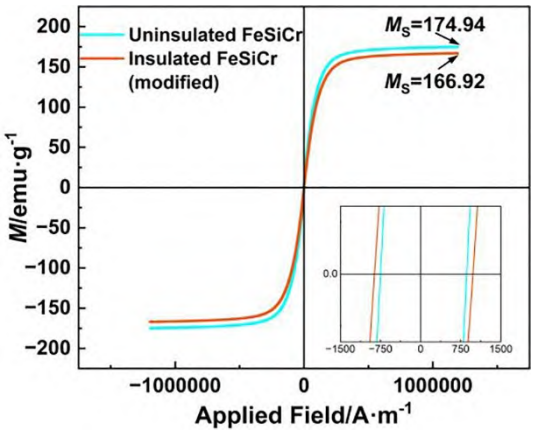

图 4　绝缘前后的 FeSiCr 粉末的磁滞回线

Fig. 4 Hysteresis loops of FeSiCr powders before and after insulation

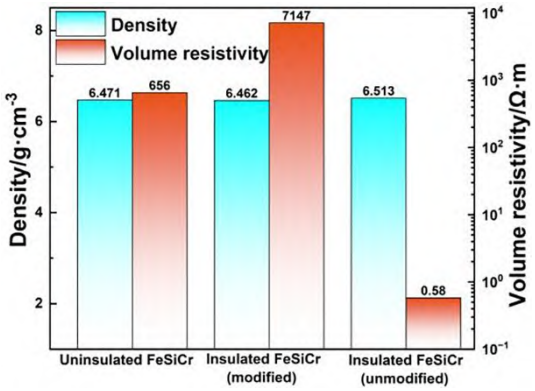

图 5　采用不同工艺绝缘和未绝缘的 FeSiCr 磁芯的密度和体电阻率

Fig. 5 Densities and volume resistivities of insulated FeSiCr SMCs through different insulating techniques and uninsulated FeSiCr SMCs

2.2　绝缘前后磁芯的性能表征

2.2.1 密度和体电阻率表征

图 5 对比了采用不同工艺绝缘前后的 FeSiCr 磁芯的密度和体电阻率。由图可知,得益于厚度薄且致密的绝缘层,经改进后的 stöber 法制备的 FeSiCr 磁芯的密度相较未绝缘磁芯的下降幅度极小,仅减小了 0.01 g · cm^{-3}左右,这对高磁导率的维持极为有利。而采用传统 stöber 法制备的 FeSiCr 磁芯密度略高,这可能与此时粉末表面极低的绝缘物含量以及极低绝缘量导致的优良的粉末流动性有关。由于氧化硅包覆层的引入,经改进后的 stöber 法绝缘后的 FeSiCr 磁芯的体电阻率较未绝缘磁芯提高了近 10 倍。而经传统 stöber 法绝缘后的 FeSiCr 磁芯的体电阻率与未绝缘磁芯相比下降了近两个数量级,这必然会导致极高的涡流损耗。总之,采用改进后的 stöber 法可以获得薄、致密、电阻率高的氧化硅绝缘层,有利于抑制磁粉颗粒间的涡流,优化磁芯的综合性能。

图 6 展示了采用不同工艺绝缘前后的 FeSiCr 磁芯复数磁导率和磁损耗的变化情况。在图 6(a)中,未绝缘的磁芯和经改进 stöber 法绝缘的磁芯的磁导率实部在 100~2000 kHz 的测试频段内均保持良好的频率稳定性。这表明磁芯内部没有形成明显的涡流场阻碍磁化。在未绝缘的磁芯中,磁导率并未出现明显下降的趋势可以归因于所用磁粉的粒径较小。具体来说,首先,小粒径限制了颗粒内涡流,极大削弱了趋肤效应;其次,较小的粒径降低了粉末流动性,导致压制后粉芯内部存在较多的气隙,进一步扩大了分布式气隙结构的优势,有效缓解了颗粒间涡流的加剧。在改进 stöber 法绝缘后的粉芯中,高电阻率氧化硅层的存在则更有效地避免相邻磁粉颗粒的直接接触,进一步确保了粉芯磁导率的频率稳定性。需要指出,传统 stöber 法制备的磁芯的磁导率实部随着频率升高逐渐下降,这表明涡流在高频下显著增强,所产生的涡流场大大抵消了加载磁场,磁化难度剧增。具体来说,由于磁粉与 TEOS 水解缩聚生成的 SiO_2结合力较弱,磁粉表面难以生长或附着 SiO_2颗粒,因此,传统 stöber 法未能起到绝缘作用,导致磁粉在压制过程中直接接触,从而引起较大的涡流,降低磁导率的频率稳定性。需注意,与未绝缘的 FeSiCr 粉芯相比,经改进 stöber 法绝缘后的粉芯磁导率实部从 1000 kHz 下的 83.5 降低至 59.9。这与包覆的非磁性物质增强了粉芯的结构退磁场有关[20-21]。而传统 stöber 法绝缘后的磁芯在 100 kHz 下的磁导率实部甚至略高于未绝缘磁芯,这也表明该方法所生成的氧化硅包覆层含量极少。另外,还需注意经传统 stöber 法绝缘的 FeSiCr 粉芯的磁导率虚部最高,即其损耗可能最大。显然,传统 stöber 法制备的 FeSiCr 粉芯磁导率频率稳定性和损耗均难以满足实际需求。

2.2.2 磁导率和磁损耗表征

粉芯的高频交流磁性能除了磁导率外,磁损耗也是评价能量转换效率的关键性能指标。基于磁谱分析已知传统 stöber 法制备的粉芯损耗明显高于其它样品,因此后续着重评估分析未绝缘和改进 stöber 法绝缘的磁芯。图 6(b)所示为两种粉芯随频率和磁感应强度变化的三维图。由图中的实测点可知,粉芯的磁损耗随频率或磁感应强度增加都呈现上升的趋势。相比于未绝缘的粉芯,改进 stöber 法绝缘后粉芯的损耗明显降低,并且在高频、高磁感应强度时两者差距更显著,在 B_m = 25 mT, f = 1000 kHz 时,改进 stöber 法绝缘后粉芯的总损耗仅为未绝缘粉芯的 30%左右。为了进一步分析损耗降低的原因,我们对粉芯进行了损耗分离。根据经典的 Bertotti 损耗分离理论,粉芯的总损耗(P_{CV})可分为三个部分:磁滞损耗(P_{hyst})、涡流损耗(P_{ec})和剩余损耗(P_{exc})。需要指出,剩余损耗来源于磁后效,只有在很高的频率和很低的磁通密度才被考虑,在粉芯的应用条件中通常忽略。因此,损耗模型可以表示为[22]:

$$P_{CV} \approx P_{hyst} + P_{ec} \quad (1)$$

其中,磁滞损耗来源于动态磁化过程中畴壁移动和磁矩转动克服各种阻尼作用而损耗的能量,在数值上等于磁滞回线的面积,可表示为[23]:

$$P_{hyst} = C_{hyst} B\alpha\ mf \quad (2)$$

式中:C_{hyst}为磁滞损耗系数,B_m为最大磁感应强度,α 为拟合系数,f 为频率。通常,粉芯的磁滞损耗除了受磁粉成分决定的矫顽力以及磁粉尺寸和形状决定的磁粉内退磁场的影响之外,还与磁粉间的结构退磁场有关。磁粉内退磁场和结构退磁场会影响粉芯实际负载磁场的大小,也因此影响了固定成分粉芯的磁滞损耗的高低。需要说明,结构退磁场主要由磁粉间气隙的宽度与非磁性绝缘层的厚度所决定。当所用磁粉相同时,粉芯结构退磁场强度的高低可由粉芯密度间接反映。一般,密度越低,结构退磁场强度越高,减弱外磁场效应越明显,磁化越困难,磁滞损耗愈高。

铁磁体内部存在涡流使磁芯发热造成的能量损耗称为涡流损耗。在磁化时,尤其是在高频条件下,涡流严重制约了磁芯的磁性能。为了适应高频化的趋势,必须要降低高频涡流损耗。通常,涡流损耗可以表示为[23]:

$$P_{ec} = C_{ec} B2\ mf^2 \quad (3)$$

式中:C_{ec}为涡流损耗系数。在软磁材料中,可以将涡流损耗进一步分为颗粒内涡流损耗($P_{e-intra}$)和颗粒间涡流损耗($P_{e-inter}$)。前者产生于单个磁粉颗粒内部,与颗粒尺寸和合金电阻率有关。后者产生于磁芯内的涡流流动,与磁芯的尺寸和电阻率有关。在实际应用中,通常根据公式 3 确定粉芯的涡流损耗。基于以上理论,可以将总损耗表示为:

$$P_{CV} \approx C_{hyst} B\alpha\ mf + C_{ec} B2\ mf^2 \quad (4)$$

图 6(b)中的三维曲面显示了公式 4 的拟合结果,式中各项系数见表 1。可以发现,拟合结果的确定系数均为 0.9999,表明拟合方法合理。根据磁滞和涡流损耗系数,图 6(c、d)直观地对比了绝缘前后的粉芯在不同频率和饱和磁感应强度下的磁滞损耗和涡流损耗。可以发现,改进 stöber 法绝缘后粉芯的磁滞损耗略有升高,这与绝缘层的加入增加了矫顽力、增强了结构退磁场有关。而由于致密的高电阻率氧化硅绝缘层的隔绝,粉芯的体电阻率显著上升,因此涡流损耗大幅降低,改进 stöber 法绝缘后的粉芯涡流损耗仅有未绝缘粉芯的 1/10 左右,且优化效果在高频时更显著。

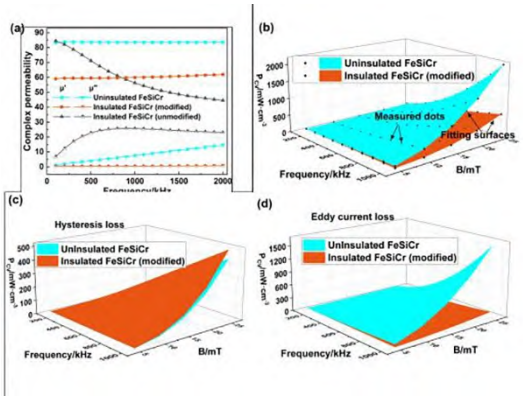

图 6 改进 stöber 法绝缘和未绝缘 FeSiCr 磁芯的磁性能:(a)复数磁导率的频谱图;(b)总损耗与频率和磁通密度的变化关系图;(c)磁滞损耗与频率和磁通密度的变化关系图;(d)涡流损耗与频率和磁通密度的变化关系图

Fig. 6 Magnetic performance for FeSiCr SMCs before and after insulation via modified stöber method: (a) frequency dependence of complex permeability; (b) core loss vs. frequency and magnetic flux density; (c) hysteresis loss vs. frequency and magnetic flux density; (d) eddy current loss vs. frequency and magnetic flux

表 1 改进 stöber 法绝缘前后的 FeSiCr 粉芯磁损耗中的各项系数和确定系数(R^2)

Table1 Coefficients of each term andR－square（R^2）for core loss of FeSiCr SMCs before and after insulation（modified stöber method）

	C_{hyst}	α	C_{ec}	R−square
Uninsulated FeSiCr	0.7159×10^{-4}	2.718	2.644×10^{-6}	0.9999
Insulated FeSiCr	0.8770×10^{-4}	2.698	0.2341×10^{-6}	0.9999

2.3　不同压强制备的磁芯的性能表征

2.3.1 密度和体电阻率表征

为了进一步优化改进 stöber 法制得粉芯的磁导率、降低总损耗,本文继续研究了压制压强对磁性能的影响规律。图 7 展示了粉芯密度和体电阻率随压强的变化关系。随着压强增加,粉芯密度升高,粉芯内部非磁性相的体积占比减小,这会导致结构退磁场强度的大幅降低。粉芯的体电阻率呈现与密度相反的趋势,这是由于压强提高后大量空气被挤压排出,磁粉颗粒的间距缩小,造成整体电阻率下降。

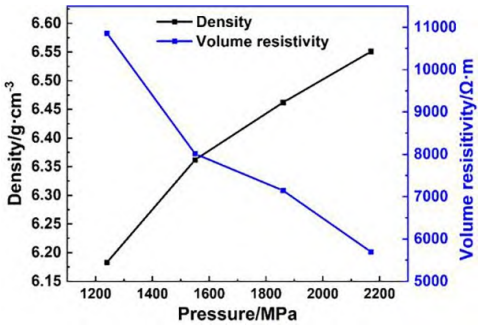

图 7　不同压制压强下的 FeSiCr 粉芯的密度和体电阻率变化图

Fig. 7 Densities and volume resistivities of FeSiCr SMCs under different compacting pressures

2.3.2 磁导率和磁损耗表征

图 8(a)示出了不同压制压强制备的粉芯的复磁导率。结果表明,得益于良好的绝缘层和独特的分布式气隙结构,所有样品都具备良好的频率稳定性。同时,随着压制压强的增加,1000 kHz 时粉芯的磁导率实部从 50 单调增长至 62,这与气隙所产生的结构退磁场强度的降低有关[20-21]。而磁导率虚部总体数值较低,呈现随压强升高而变大的趋势,这可以归因于电阻率降低引起的涡流损耗的增加。图 8(b)示出了不同压制压强制备的粉芯的磁损耗。可见,随压制压强升高,粉芯磁损耗呈现单调降低的规律,2170 MPa 制备的粉芯的总损耗最低,在 B_m = 25 mT,f = 1000 kHz 时仅为 615 mW · cm^{-3}。为了分析损耗变化的原因,文中同样地根据公式 4 对不同压强制备的粉芯样品的磁损耗进行损耗分离。具体的拟合系数和确定系数见表 2。根据三维损耗曲面和确定系数,拟合结果和实测数据吻合程度较高。图 8(c、d)展示了根据损耗分离结果计算的磁滞损耗和涡流损耗。如图所示,压强的增加有利于磁滞损耗的降低,其数值(B_m = 25 mT, f = 1000 kHz)从 1240 MPa 下的 640 mW · cm^{-3}下降到 2170 MPa 下的 467 mW · cm^{-3},其原因来源于结构退磁场强度的减弱。具体而言,增大压强后磁粉颗粒间的空气被更多排出,造成结构退磁场强度减小,磁芯中磁矩实际负载的磁场强度变强,因此磁化难度降低,磁滞损耗逐渐下降。对于涡流损耗,所有样品表现出接近的数值,总体呈现出随压强增大而升高的规律。总之,一方面虽然在压强升高之后电阻率降低,涡流损耗有所增加,但由于致密的氧化硅绝缘层的阻断,所有粉芯的涡流场都被抑制在较低的水平,因此整体涡流损耗都较小;另一方面,由于压强增大造成气隙大幅减小,造成结构退磁场明显变弱,因此磁滞损耗显著降低,磁滞损耗降低的数值大于涡流损耗增大的数值,从而使粉芯总损耗得到优化。

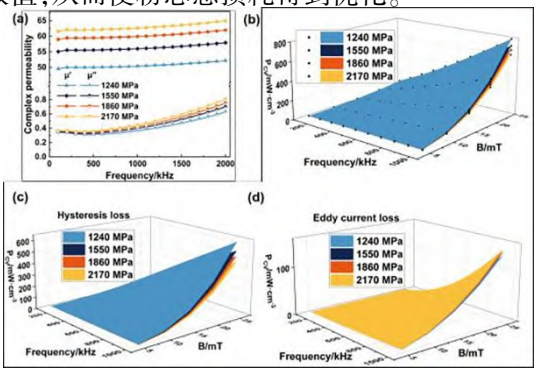

图 8　不同压制压强下的 FeSiCr 粉芯的磁性能:(a)复磁导率的频谱图;(b)总损耗与频率和磁通密度的变化关系图;(c)磁滞损耗与频率和磁通密度的变化关系图;(d)涡流损耗与频率和磁通密度的变化关系图

Fig. 8 Magnetic performance for FeSiCr SMCs under different compacting pressures: (a) frequency dependence of complex permeability; (b) core loss vs. frequency and magnetic flux density; (c) hysteresis loss vs. frequency and magnetic flux density; (d) eddy current loss vs. frequency and magnetic flux density

表 2 不同压制压强下的 FeSiCr 粉芯磁损耗中的各项系数和确定系数(R^2)

Table 2 Coefficients of each term and R-square (R^2) for core loss of FeSiCr SMCs under different compacting pressures

Pressure (MPa)	C_{hyst}	α	C_{ec}	R-square
1240	1.1510×10^{-4}	2.679	0.2227×10^{-6}	0.9999
1550	0.9964×10^{-4}	2.685	0.2332×10^{-6}	0.9999
1860	0.8770×10^{-4}	2.698	0.2341×10^{-6}	0.9999
2170	0.7769×10^{-4}	2.730	0.2419×10^{-6}	0.9999

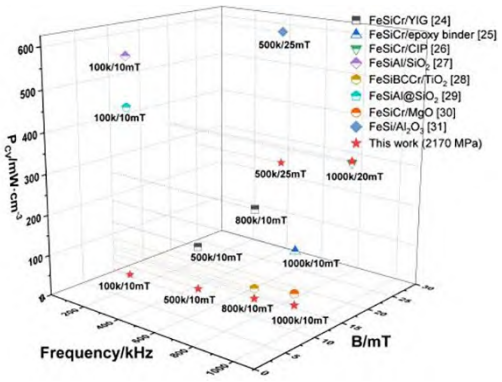

图 9 本工作与其他磁芯的损耗的对比[24-31]

Fig.9 A comparison of core loss between this work and other SMCs[24-31]

图 9 显示了本研究与已发表的文献中磁芯损耗的对比结果。结果表明,在相同频率和磁通密度下,2170 MPa 下压制的磁芯均具有一定的优势,表现出较低的损耗。

3 结论

本文通过改进的 stöber 工艺在 FeSiCr 磁粉表面成功制备了薄、致密且电阻率高的纳米级均匀 SiO_2 绝缘层,并揭示了绝缘层、压制压强对磁导率和磁损耗的影响机制。结果表明:

(1)通过改进后的 APTES/TEOS 复合液相水解包覆工艺,可在磁粉表面生长均匀且薄的 SiO_2 层。该绝缘层由小颗粒堆积形成,呈树莓状,为无定形态 SiO_2。非磁性 SiO_2 层的引入使得绝缘后 FeSiCr 磁粉的饱和磁化强度下降至 166.92 emu · g^{-1}。同时,与未绝缘的 FeSiCr 粉芯相比,绝缘后粉芯电阻率增长了近十倍,磁导率实部降低至 59.9(1000 kHz),磁损耗显著降低至 664 mW · cm^{-3}(25 mT@ 1000 kHz)。

(2)提高压制压强有利于减小磁粉间气隙,提高粉芯密度,从而降低结构退磁场,实现磁导率和总损耗的有效改善。当压强从 1550 MPa 提高到 2170 MPa,粉芯密度升高至 6.551 g · cm^{-2},磁导率实部增加至 62.6(1000 kHz),电阻率小幅降低至 5692 Ω · m,磁损耗减少到 615 mW · cm^{-3}(25 mT@ 1000 kHz)。

参考文献:

[1] Silveyra J M, Ferrara E, Huber D L, et al. Soft magnetic materials for a sustainable and electrified world [J]. Science, 2018, 362(6413): 418-429.

[2] Gutfleisch O, Willard M A, Bruck E, et al. Magnetic materials and devices for the 21st century: stronger, lighter, and more energy efficient [J]. Advanced Materials, 2011, 23: 821-842.

[3] Shokrollahi H, Janghorban K. Soft magnetic composite materials (SMCs) [J] Journal of Materials Processing Technology, 2007, 189: 1-12.

[4] Luo Z G, Fan X A, Zhang Y L, et al. Formation mechanism and magnetic performance of Fe-Si soft magnetic composites coated with MnO-SiO_2 composite coatings [J]. Advanced Powder Technology, 2021, 32: 3364-3371.

[5] Sunday K J, Taheri M L. Soft magnetic composites: recent advancements in the technology [J]. Metal Powder Report, 2017, 72: 425-429.

[6] Tuballa M L, Abundo M L. A review of the development of Smart Grid technologies [J]. Renewable and Sustainable Energy Reviews, 2016, 59: 710-725.

[7] Hsiang H, Fan L F, Ho K T. Minor yttrium nitrate addition effect on FeSiCr alloy powder core electromagnetic properties [J]. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 2017, 444: 1-6.

[8] Li J, Peng X L, Yang Y T, et al. Preparation and characterization of MnZn/FeSiAl soft magnetic composites [J]. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 2017, 426: 132-136.

[9] Wang M G, Zan Z, Deng N, et al. Preparation of pure iron/Ni-Zn ferrite high strength soft magnetic composite by spark plasma sintering [J]. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 2014, 361: 166-169.

[10]Slovensky P, Kollár P, Mei N X, et al. Mechanical surface smoothing of micron-sized iron powder for improved silica coating performance as soft magnetic composites [J]. Applied Surface Science, 2020, 531: 147340.

[11]Li L Y, Gao Z, Li A K, et al. Fabrication of carbonyl iron powder/SiO_2 - reduced iron powder/SiO_2 soft magnetic composites with a high resistivity and low core loss [J]. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 2018, 464: 161-167.

[12]Zheng J W, Zheng H D, Lei J, et al. Magnetic properties and microstructure of iron-based soft magnetic composites with Al_2O_3 insulating coating by one-pot synthesis method [J]. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 2020, 499: 166255.

[13]Sun H B, Zhou G H, Guo Z L, et al. Efficient synthesis of TiO_2-coated layer for Fe-based soft magnetic composites and their regulation mechanism analysis on magnetic properties [J]. Journal of Materials Science: Materials in Electronics, 2022, 33: 13956-13967.

[14]Dong B R, Qin W, Su Y R, et al. Magnetic properties of FeSiCr@ MgO soft magnetic composites prepared by magnesium acetate pyrolysis for high-frequency applications [J]. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 2021, 539: 168350.

[15]Zhang C, Liu X S, Kan X C, et al. Soft magnetic properties of nano-SiO_2 coated FeNi alloy powder at high frequencies [J]. Journal of Materials Science: Materials in Electronics, 2022, 33: 25383-25391.

[16]王尧,朱乾科,陈哲,等. 成型压强对 FeSiB 磁粉芯磁性能的影响 [J].功能材料, 2020,51(8):08165-08169.

[17]Tian M Y, Xu J, Yang S, et al. Effects of heat treatment and compaction pressure on the microstructure and magnetic properties of core-shell structured FeSiBNbCu/SiO_2 soft magnetic composites [J]. Journal of Alloys and Compounds, 2022, 923: 166394.

[18]Li W C, Yan H Q, Ying H, et al. Analysis of the magnetic properties of a silicate-coated spherical FeSiAl-based soft magnetic composite for high-frequency power-applications [J]. Applied Physics Letters, 2019, 115: 212401.

[19]Yuan W L, Sun K, Tian J H, et al. Improved magnetic properties of iron-based soft magnetic composites with a double phosphate-SiO_2 shells structure [J]. Journal of Materials Science: Materials in Electronics, 2021, 32: 21472-21482.

[20]Zhang H, Zhu X, Zhang X B, et al. Great reduction in pressure by particle grading for Fe-Si-Al SMCs with good low-frequency magnetic properties [J]. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 2022, 555: 169325.

[21]杨天生,卢克超,王健,等. Fe-6.5wt%Si/纳米 Fe_3O_4复合磁粉芯的组织结构及磁性能研究 [J].功能材料, 2021,52(10):10023-10028.

[22]Chang J S, Zhan T K, Peng X L, et al. Improved permeability and core loss of amorphous FeSiB/Ni-Zn ferrite soft magnetic composites prepared in an external magnetic field [J]. Journal of Alloys and Compounds, 2021, 886: 161335.

[23]Li W C, Cai H W, Kang Y, et al. High permeability and low loss bioinspired soft magnetic composites with nacre-like structure for high frequency applications [J]. Acta Materialia, 2019, 167: 267-274.

[24]Li W J, Li J, Li H, et al. FeSiCr soft magnetic composites with significant improvement of high-frequency magnetic properties by compositing nano-YIG ferrite insulating layer [J]. Ceramics International, 2023, 49(16): 27247-27254.

[25]Choi Y J, Ahn J H, Kim D H, et al. Core-loss reduction of Fe-Si-Cr crystalline alloy according to particle size in the high frequency band [J]. Current Applied Physics, 2022, 39: 324-330.

[26]Xia C, Peng Y D, Yi X W, et al. Improved magnetic properties of FeSiCr amorphous soft magnetic composites by adding carbonyl iron powder [J]. Journal of Non-Crystalline Solids, 2021,559: 120673.

[27]Wu Z Y, Kang L, Liao X W, et al. Realizing high-resistivity and low-loss Fe-Si-Al based soft magnetic powder cores through interfacial chemistry regulation [J]. Ceramics International, 2023, 49(12): 19870-19878.

[28]Zhou B, Chi Q, Dong Y Q, et al. Effects of annealing on the magnetic properties of Fe-based amorphous powder cores with inorganic-organic hybrid insulating layer [J]. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 2020, 494: 165827.

[29]Wang R, Liao X W, Kang L, et al. Evolution of insulating layers during Heat-Treatment and their effects on magnetic behavior of Fe-Si-Al based soft magnetic composites [J]. Ceramics International, 2023, 49(11): 17876-17884.

[30]Wu S D, Dong Y Q, Li X B, et al. Microstructure and magnetic properties of FeSiCr soft magnetic powder cores with a MgO insulating layer prepared by the sol-gel method [J]. Ceramics International, 2022, 48(15): 22237-22245.

[31]Wang J, Liu X, Zheng Z G, et al. Reduction of core loss

for FeSi soft magnetic composites prepared using atomic layer deposition-based coating and high-temperature annealing [J]. Journal of Alloys and Compounds, 2022, 909: 164655.