

مطالعه گذار فاز هماتیت- آهن در فرایند تولید نانوذرات هسته- پوسته

آهن- کربن و بررسی خواص مغناطیسی و الکترومغناطیسی آنها

امید خانی^۱، مرتضی زرگر شوشتری^۱، محمد جزیره پور^۲ و منصور فرید^۱

گروه فیزیک، دانشکده علوم، دانشگاه شهید چمران اهواز، اهواز

پژوهشکده الکتروسرام و فناوری‌های رادار، دانشگاه صنعتی مالک اشتر شاهین شهر، اصفهان

پست الکترونیکی: omidkhani@mut-es.ac.ir

(دریافت مقاله: ۱۳۹۴/۱۲/۲۱؛ دریافت نسخه نهایی: ۱۳۹۵/۹/۳۰)

چکیده

در مقاله حاضر، خصوصیات ساختاری و قابلیت جذب امواج میکروی نانوذرات آهن و نانوذرات هسته- پوسته آهن- کربن مورد مطالعه قرار گرفته است. نانوذرات مورد مطالعه با استفاده از روش هیدروترمال و با احیای نانوذرات هماتیت در حین عملیات حرارتی در محیط آرگون- هیدروژن تولید شدند. گذار فاز هماتیت به آهن در فرایند احیاء با استفاده از الگوهای پراش پرتو ایکس مورد بررسی قرار گرفت. نتایج الگوهای XRD حاکی از آن هستند که گذار فاز هماتیت به آهن در مورد نانوذرات آهن، پس از ۳۰ دقیقه حرارت‌دهی تکمیل می‌شود ولی درباره نانوکپسول‌های آهن- کربن زمان مورد نیاز برای تکمیل گذار فاز ۶۵ دقیقه است و قبل از آن، فاز ناخالصی ووستیت (FeO) همچنان در الگوهای پراش قابل مشاهده است. حلقه‌های پسماند مغناطیسی و طیف‌های تراوایی مغناطیسی و گذردهی الکتریکی نانوذرات آهن و نانوکپسول‌های Fe-C نیز مورد مطالعه قرار گرفتند. بررسی طیف‌های E و μ در بازه بسامدی ۱۸-۱ GHz نشان داد که ایجاد پوشش کربن بر خواص امواج میکروی نانوذرات آهن تأثیرگذار است و منجر به کاهش گذردهی الکتریکی و تراوایی مغناطیسی در کامپوزیت‌های حاوی نانوذرات آهن می‌گردد.

واژه‌های کلیدی: نانوذرات هسته- پوسته آهن- کربن، روش هیدروترمال، گذار فاز هماتیت- آهن، جاذب امواج میکرو

۱. مقدمه

آنها در گزارش‌های بسیاری بررسی شده است [۱-۴]. اخیراً علاقه رو به افزایشی برای به کار گیری ذرات آهن و دیگر ذرات فلزی به عنوان جاذب‌های موج میکرو به وجود آمده است [۵-۷]. علت این امر، تراوایی بالای این ذرات در بسامدهای بالا، مغناطش اشباع زیاد و حد اسنوک بزرگ این ترکیبات است [۸، ۹]. با این حال، شکل‌گیری جریان‌های

در سال‌های اخیر، به دلیل رشد چشم‌گیر به کار گیری ادوات الکترونیکی، حفاظ‌های الکترومغناطیس نقش بسیار مهمی را در دستاوردهای فناوری بشر ایفا کرده‌اند. مواد کامپوزیتی که در خود مواد جاذب امواج رادار را جای می‌دهند، به طور گسترده مورد مطالعه قرار گرفته‌اند و قابلیت جذب امواج میکرو توسط

پوسته کربنی به راحتی و با تغییر میزان پیش ماده گلوکز به نحو مؤثری قابل تغییر است. طبق مطالعات صورت گرفته، به نظر می‌رسد اولاً گذار فاز هماتیت- آهن در حین فرایند تولید نانوذرات هسته- پوسته آهن- کربن پیش از این در مقاله دیگری بررسی نشده است و ثانیاً نانوذرات آهن تولید شده در این گزارش در مقایسه با نتایج سایر محققین در دمای پایین‌تر و زمان کمتری تشکیل شده‌اند [۱۸-۲۰]. از سوی دیگر، طبق بررسی‌ها این نخستین بار است که تأثیر ایجاد پوشش کربن بر ویژگی‌های موج میکرو نانوذرات آهنی که از احیای هماتیت تولید شده‌اند، مورد بررسی قرار می‌گیرد.

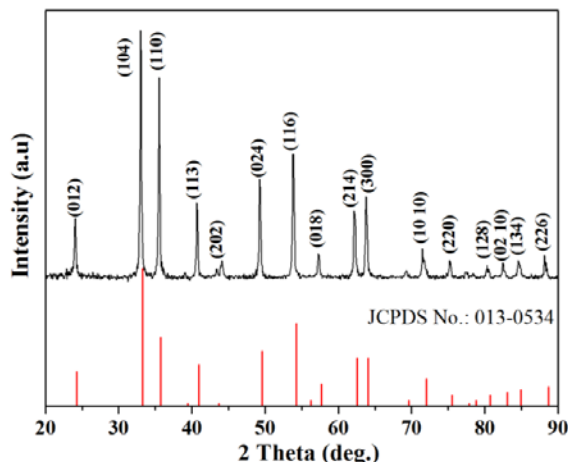
۲. بخش آزمایشگاهی

۲.۱. شیوه مشخصه‌یابی نمونه‌های تولید شده

به منظور بررسی فازهای بلورین موجود در مواد مورد مطالعه، از دستگاه پراش پرتو ایکس مدل ۱۸۴۰ PW با لامپ مسی با طول موج $\lambda = 1.5406 \text{ \AA}$ $\text{CuK}\alpha$ استفاده شد. توزیع اندازه و ریخت نانوذرات تولید شده با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی (FESEM) ساخت شرکت TESCAN، مدل MIRA-۳ بررسی شد و به منظور تعیین ساختار درونی نانوذرات هسته- پوسته تولید شده، از میکروسکوپ TEM فیلپس، مدل CM۱۲۰ استفاده گردید. در این پژوهش جهت اندازه‌گیری طیف رامان نانوذرات هسته- پوسته آهن- کربن از دستگاه رامان (۲۰۰۹) SENTERRA ساخت شرکت Bruker مجهز به آشکارساز CCD و لیزر هم‌کانون با طول موج ۷۸۵ nm و توان ۱ mW استفاده گردید. منحنی‌های پسماند مواد تولید شده با استفاده از مغناطیس‌سنج نیروی گرادیانی متغیر (AGFM) ساخت شرکت ایرانی مغناطیس دقیق کویر اندازه‌گیری شد. از تحلیل‌گر برداری شبکه Agilent N۵۲۲۲ برای اندازه‌گیری گذردهی الکتریکی و تراوایی مغناطیسی نانوذرات تولید شده استفاده گردید. این اندازه‌گیری نیازمند آن است که نمونه‌ها به شکلی خاص قالب‌گیری شوند. از این‌رو در ابتدا ذرات تولید شده با نسبت جرمی ۴۰ درصد در پارافین مذاب پخش شدند. ترکیب حاصل به صورت یک حلقه با قطر خارجی ۶/۹ mm و

گردابی در میان ذرات باعث افت خواص این ترکیبات، به خصوص در بسامدهای میکرو موج می‌شود؛ چرا که توان تلف شده در مواد در اثر جریان‌های گردابی با مجذور بسامد موج تابشی رابطه مستقیم دارد. یک روش مؤثر برای غلبه بر این مشکل، ایجاد یک پوسته دی‌الکتریک بر روی ذرات فلزی است. در چنین شرایطی تأثیر مخرب جریان‌های گردابی تا حد بسیار زیادی از بین می‌رود [۸، ۱۰]. از سوی دیگر این ذرات در اثر مجاورت با رطوبت موجود در محیط اکسید می‌شوند و این فرایند اکسیداسیون منجر به تضعیف خواص مغناطیسی آنها می‌گردد. یک روش مؤثر برای محافظت این نانوذرات از اکسید شدن، ایجاد یک پوسته مقاوم در برابر رطوبت در اطراف آنهاست. این پوسته محافظ، علاوه بر ایفای نقش فوق‌قادر است به تنظیم منحنی‌های پاشندگی گذردهی الکتریکی ($\epsilon = \epsilon' + i\epsilon''$) و تراوایی مغناطیسی ($\mu = \mu' + i\mu''$) این ذرات در گستره موج میکرو نیز کمک کند و منجر به بهبود خصوصیات جذب امواج الکترومغناطیس در محدوده امواج میکرو در این ذرات گردد. از این‌رو محققین بسیاری به مطالعه وابستگی بسامدی گذردهی الکتریکی و تراوایی مغناطیسی دسته وسیعی از نانوذرات هسته- پوسته پایه آهن نظیر نانو ساختارهای هسته- پوسته Fe-C، Fe-ZnO، Fe-SnO_۲، Fe_۳O_۴-C پرداخته‌اند [۱۱-۱۴]. این نانوذرات هسته- پوسته به روش‌های مختلفی چون تخلیه قوس الکتریکی [۱۱]، سل-ژل [۱۵]، هم‌رسوبی [۱۶] و هیدروترمال [۲] قابل تولید هستند.

در مقاله حاضر، تولید نانوذرات آهن و نانوذرات هسته- پوسته آهن- کربن با استفاده از یک روش دو مرحله‌ای انجام شده است. در مرحله اول از روش هیدروترمال برای تولید نانوذرات هماتیت و نانو کپسول‌های هماتیت- کربن استفاده شده و منبع تولید کربن در این مرحله، گلوکز بوده که ارزان قیمت و زیست سازگار است [۱۷]. در مرحله دوم، رسوب به دست آمده از مرحله اول در محیط آرگون- هیدروژن پخت شده است. با پخت نانوذرات تولیدی در محیط آرگون- هیدروژن، می‌توان نانوذرات هماتیت را تا تشکیل فاز آهن به طور کامل احیاء نمود. مزیت اصلی روش فوق برای تولید نانوذرات هسته- پوسته آهن- کربن آن است که ضخامت



شکل ۱. (رنگی در نسخه الکترونیکی) الگوی پراش پرتو ایکس، شکل گیری ذرات هماتیت در فرایند هیدروترمال مرحله اول را تأیید می‌کند.

این الگو با کارت JCPDS به شماره ۰۵۳۴-۰۱۳-۰۰، شکل گیری فاز غیرمغناطیسی هماتیت (Fe_3O_4) تأیید شد. طبق الگوی استاندارد نشان داده شده در شکل ۱، هیچ قله‌ای مربوط به ناخالصی‌های احتمالی در رسوب حاصل دیده نشد.

بررسی ریخت ذرات با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی (FESEM) حاکی از آن است که ذرات هماتیت تولید شده به روش هیدروترمال، کروی شکل هستند (شکل ۲ را مشاهده کنید). متوسط اندازه ذرات تولید شده با میانگین گیری بر روی قطر همه ذراتی که در ناحیه‌ای با ابعاد $1 \times 1 \mu\text{m}^2$ قرار گرفته بودند، 68 nm به دست آمد. وضعیت توزیع اندازه ذرات در ناحیه فوق در نمودار میله‌ای که درون شکل ۲ الف نشان داده شده، قابل مشاهده است.

در مرحله بعد، ابتدا 0.5 g هماتیت حاصل از مرحله اول در 30 mL آب یونزدایی شده ریخته شد. پس از آن 0.5 g گلوکز نیز در 30 mL آب یونزدایی شده حل و این محلول به تعلیق^۲ هماتیت افزوده شد. مخلوط حاصل به مدت 10 دقیقه در یک حمام فراصوت قرار گرفت و پس از آن 10 mL اتانول به آن افزوده شد و حجم مخلوط با افزودن آب یونزدایی شده به 80 mL رسید. این مخلوط به یک اتوکلاو با حجم 100 mL منتقل و به مدت 24 h در دمای 185°C در اجاق قرار گرفت. این بار نیز پس

قطر داخلی 3 mm و ضخامت حدود $1/5 \text{ mm}$ پرس گردید. کمیت‌های الکترومغناطیسی با قراردادن این نمونه در یک موجبر هم محور اندازه‌گیری شدند. تحلیل گر برداری شبکه در دو درگاه خود با استفاده از روش کالیبراسیون SOLT، درجه بندی شد. گذردهی الکتریکی و تراوایی مغناطیسی نسبی مختلط با استفاده از پارامترهای پراکندگی اندازه‌گیری شده در روش عبور- بازتاب و طبق استاندارد ASTM ۷۴۴۹ محاسبه شدند.

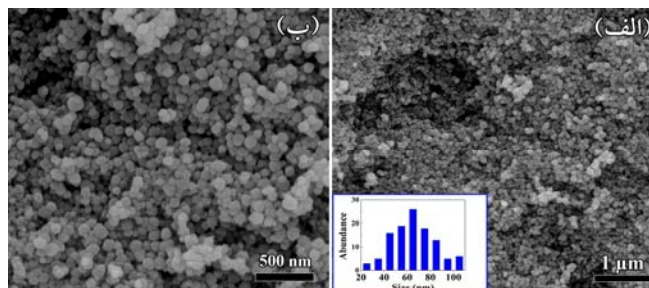
۲.۲. تولید و مطالعه خواص ساختاری نانوذرات آهن و

نانوکپسول‌های آهن- کربن

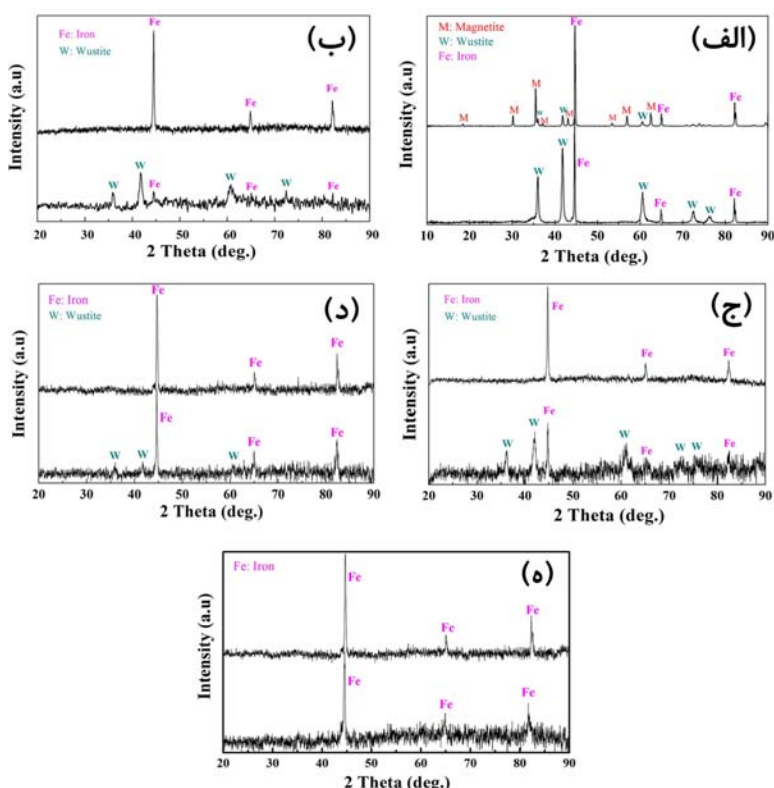
روش کربن‌دار کردن هیدروترمال^۱، یک روش دو مرحله‌ای برای تولید ساختارهای هسته- پوسته با پوسته کربنی است. به منظور تولید نانوذرات هسته- پوسته آهن- کربن به این روش، ابتدا ذرات هسته تولید گردیدند. برای تولید نانوذرات تشکیل دهنده هسته، 8 g نیترات آهن نه آب- $(\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O})$ در 25 mL آب یونزدایی شده حل گردید. پس از آن، محلول اتیلن دی‌آمین تتراسنتیک اسید (EDTA) با حل کردن 0.64 g از این ماده در 25 mL آب یونزدایی شده تهیه شد. در حین هم‌زدن محلول نیترات آهن، محلول EDTA به آن افزوده و محلول حاصل به مدت 5 دقیقه هم‌زده شد. با توجه به این که جرم مولی $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ و EDTA به ترتیب 404 و 292 g است، نسبت مولی این دو ماده در مخلوط حاصل، 9 به 1 خواهد بود. به این مخلوط، حدود 30 mL محلول 2 مولار هیدروکسید سدیم (NaOH) افزوده شد تا pH ترکیب حاصل به 7 برسد. محلول قرمز- قهوه‌ای حاصل، درون یک اتوکلاو ریخته و به مدت 16 ساعت در اجاق در دمای 130°C نگه داشته شد. اتوکلاو مورد استفاده از جنس استیل بود که یک ظرف تفلونی در درون آن قرار داده می‌شد. پس از سرد شدن اتوکلاو تا دمای محیط، رسوب قرمز- قهوه‌ای رنگ حاصل، دو مرتبه با آب یونزدایی شده شستشو داده شد و در نهایت، در اجاق در دمای 120°C خشک گردید. الگوی XRD نمونه خشک شده در شکل ۱ نشان داده شده است. با مقایسه

۱. suspension

۱. hydrothermal carbonization



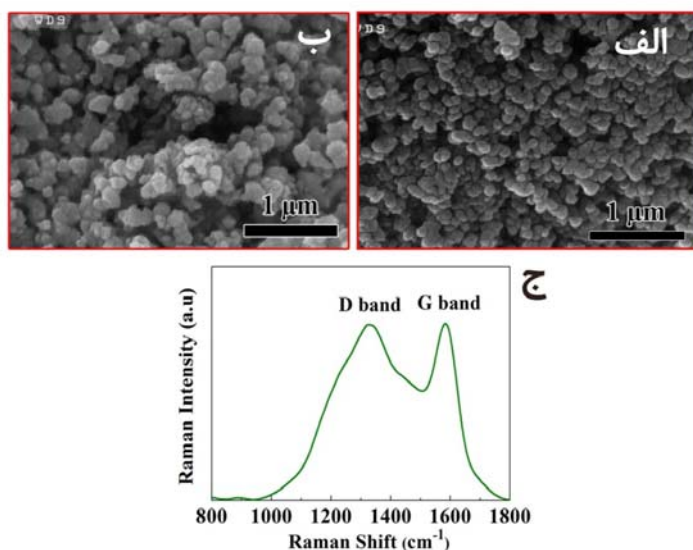
شکل ۲. (رنگی در نسخه الکترونیکی) تصویرهای FESEM نانوذرات هماتیت با دو بزرگنمایی مختلف که به روش هیدروترمال تولید شده‌اند.



شکل ۳. (رنگی در نسخه الکترونیکی) الگوهای XRD نانوذرات هماتیت (الگوی بالایی در تصاویر الف-د) و نانوذرات هسته-پوسته هماتیت-کربن (الگوی پایینی در تصاویر الف-د) پس از (الف) ۱۵، (ب) ۳۰، (ج) ۴۰، (د) ۵۵ و (ه) ۶۵ دقیقه پخت در محیط آرگون-هیدروژن.

دمای 52°C پخت شدند. در این فرایند، آهنگ حرارت‌دهی نمونه‌ها تا دمای 35°C مقدار $1^{\circ}\text{C}/\text{min}$ و از دمای 35°C تا 52°C میزان $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$ انتخاب شد. آهنگ تزریق گازهای آرگون و هیدروژن، به ترتیب 84° و $280 \text{ mL}/\text{min}$ در نظر گرفته شد. الگوهای پراش پرتو ایکس نانوذرات هماتیت و نانوذرات هسته-پوسته هماتیت-کربن که در مدت زمان‌های ۱۵، ۳۰، ۴۰، ۵۵ و ۶۵ دقیقه پخت شده‌اند، در شکل ۳ الف-ه

از سرد شدن اتوکلاو تا دمای محیط، محصول سه مرتبه با آب یونزدایی شده شستشو و در دمای 105°C خشک شد. به منظور تولید نانوذرات آهن، نانوذرات هماتیت خالص و برای ساخت نانوذرات آهن پوشیده با کربن، نانوذراتی که در مرحله دوم تولید شده بودند (و در آنها نسبت هماتیت به گلوکز ۱ به ۱ است)، تحت جریان مخلوطی از گازهای آرگون و هیدروژن قرار گرفتند و در مدت زمان‌های ۱۵، ۳۰، ۴۰، ۵۵ و ۶۵ دقیقه در



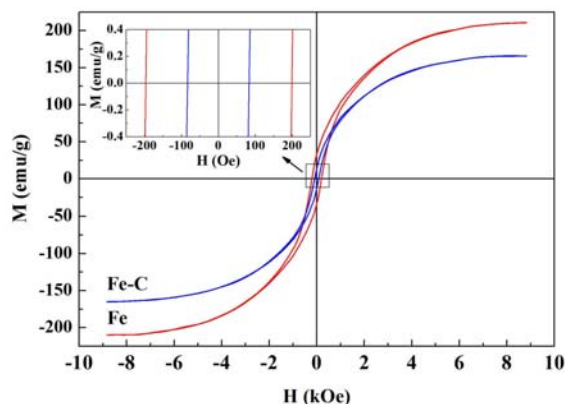
شکل ۴. (رنگی در نسخه الکترونیکی) تصویر FESEM (الف) نمونه Fe-C، (ب) نمونه Fe-C، (ج) طیف رامان نمونه Fe-C.

در نانوذرات هماتیت- کربن را می‌توان در اثر نقش مانعی پوشش کربن در این نانوذرات دانست. در حین عملیات احیای نانوذرات هماتیت، اتم‌های اکسیژن آزاد شده از فرایند احیای هماتیت قادر نیستند که به راحتی از پوشش کربن عبور و از درون نانوذرات فرار کنند، از این‌رو فرایند احیای نانوذرات هماتیت دارای پوشش، کندتر انجام می‌شود. کندتر بودن فرایند احیاء منجر به آن می‌شود که برای تکمیل گذار فاز هماتیت- آهن به مدت زمان پخت بیشتری نیاز باشد. نتیجه‌ای که الگوهای XRD نشان داده شده در شکل ۳ نیز آن را تأیید می‌کنند. علت دیگر برای کندتر بودن گذار فاز در نانوکپسول‌های هماتیت- کربن، راحتی بودن شکل‌گیری فاز ووستیت در نانوذرات هماتیت حاوی کربن است. فاز FeO حضور هیدروژن و در محیط‌های غنی از کربن به راحتی شکل می‌گیرد [۲۱، ۲۲]. از این‌رو در حین عملیات حرارتی، احتمال شکل‌گیری این فاز در نانوذرات دارای پوشش کربن بیشتر است. به منظور احیای این فاز به آهن خالص، نیاز است که نانوذرات دارای پوشش کربن مدت زمان بیشتری در معرض محیط کاهنده هیدروژن قرار گیرند.

تصویرهای FESEM تهیه شده از نمونه Fe و نمونه Fe-C به ترتیب در شکل ۴. الف و ب نشان داده شده‌اند. همان

قابل مشاهده هستند. در هر یک از شکل‌های ۳. الف- ه الگوی بالایی مربوط به فازهای حاصل از پخت نانوذرات هماتیت خالص و الگوی پایینی مربوط به فازهای حاصل از پخت نانوذرات هماتیت پوشیده با کربن هستند. الگوهای XRD نشان می‌دهند که در مورد نانوذرات هماتیت، پس از ۳۰ دقیقه عملیات حرارتی در محیط آرگون- هیدروژن، قله‌های مربوط به فاز هماتیت به طور کامل محو و قله‌های مربوط به فاز آهن bcc با کارت JCPDS به شماره ۰۶-۰۰۶-۰۶۹۶ ظاهر می‌شوند. نمونه تک فاز آهن ایجاد شده در این مرحله را از این پس نمونه (Fe) می‌نامیم. همان گونه که در الگوی پایینی شکل ۳. ب دیده می‌شود؛ در مورد نانوکپسول‌های هماتیت- کربن، پس از ۳۰ دقیقه عملیات حرارتی، همچنان فاز ناخالصی ووستیت (FeO) با کارت JCPDS به شماره ۱۸۸۴-۰۷۴-۰۱ در الگوی پراش قابل مشاهده است و با افزایش زمان پخت تا ۵۵ دقیقه، شدت قله‌های مربوط به این فاز رفته رفته کم می‌شوند و پس از ۶۵ دقیقه، قله‌های مربوط به فاز ناخالصی ووستیت به طور کامل محو و گذار فاز هماتیت- آهن کامل می‌شود. نمونه تک‌فاز آهن تولید شده از انجام عملیات حرارتی بر روی نانوذرات هماتیت- کربن را از این پس نمونه (Fe-C) نام گذاری می‌کنیم.

بیشتر بودن زمان لازم برای تکمیل گذار فاز هماتیت- آهن

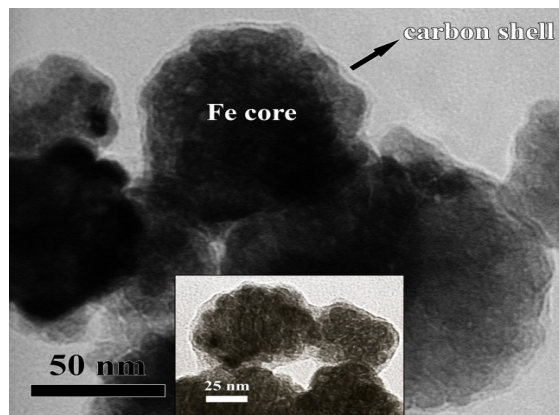


شکل ۶. رنگی در نسخه الکترونیکی) نمودار M-H نمونه‌های (Fe) و (Fe-C).

جدول ۱. مشخصات مغناطیسی نمونه‌های (Fe) و (Fe-C).

نام نمونه	H_c (Oe)	M_s (emu/g)
نمونه Fe	۱۹۹	۲۱۰
نمونه Fe-C	۸۲	۱۶۶

داده شده‌اند. به منظور مقایسه بهتر نتایج، بخشی از نمودارهای پسماند که میدان وادارندگی (H_c) در آن به نحو مناسب‌تری قابل مشاهده هستند، با ابعاد بزرگتر در درون شکل ۶ نشان داده شده و مقادیر M_s و H_c دو نمونه در جدول ۱ آمده است. از شکل ۶ و اطلاعات جدول ۱ واضح است که پس از ایجاد پوشش کربن، مقدار M_s از ۲۱۰ emu/g به ۱۶۶ emu/g کاهش یافته است. علت کاهش M_s در نانوذرات هسته-پوسته آهن-کربن نسبت به نانوذرات آهن خالص آن است که با ایجاد پوشش غیرمغناطیسی کربن، از سهم اتم‌های مغناطیسی آهن کاسته می‌شود و این امر گشتاور مغناطیسی مؤثر موجود در واحد جرم نانوذرات هسته-پوسته را کاهش می‌دهد. کمتر بودن میزان M_s نانوذرات آهن از مقدار نظری برای ذرات آهن (220 emu/g) [۲۶]، را می‌توان ناشی از وجود اسپین‌های سطحی نامنظم بر روی سطح نانوذرات آهن تولیدی دانست. بالا بودن سطح مؤثر در مواد نانو ساختار باعث می‌شود که حالت‌های ناکامل سطحی در نانوذرات آهن تولید شده بیشتر باشند. بیشتر بودن ناکاملی‌های سطحی به نوبه خود منجر به وجود لایه‌های مغناطیسی مرده در نانوذرات می‌شود و این امر



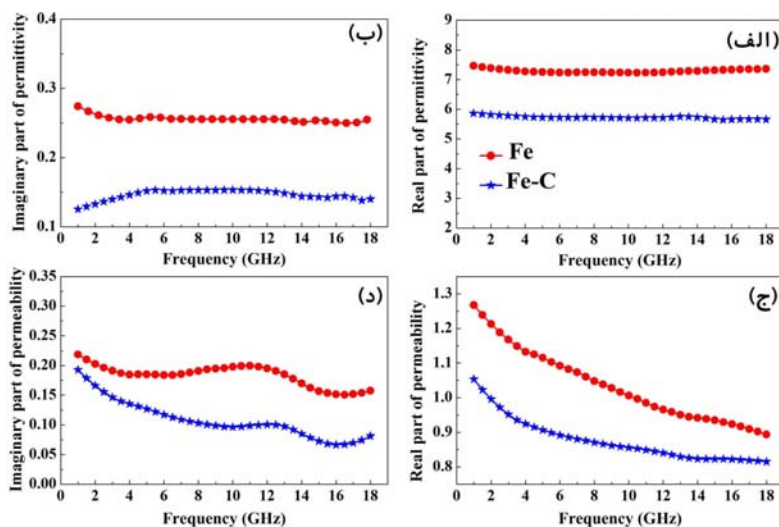
شکل ۵. تصویر TEM نانوذرات هسته-پوسته آهن-کربن.

گونه که در تصویرهای FESEM نیز دیده می‌شود، در هر دو مورد، ریخت اکثر ذرات، همچنان تقریباً به شکل کره است. میانگین قطر این کره‌ها در هر دو تصویر، حدود ۸۰ nm اندازه‌گیری شد. طیف رامان نانوکپسول‌های Fe-C که از احیای هماتیت در محیط هیدروژن تولید شده‌اند، در شکل ۴ ج نمایش داده شده است. در طیف رامان این نانوکپسول‌ها قله‌های G و D که متعلق به ساختارهای کربنی هستند [۲۳-۲۵]، به طور واضح قابل مشاهده‌اند. در طیف رامان این نانوکپسول‌ها، قله‌های G و D به ترتیب در 1580 cm^{-1} و 1325 cm^{-1} روی می‌دهند و نسبت شدت آنها ۰/۹۹ است. وجود این قله‌ها اولاً مؤید وجود کربن در ساختار نانوذرات تولید شده است و ثانیاً طبق نظریه آ. س. فراری، با توجه به محل و نسبت شدت قله‌های G و D، کربن موجود در پوشش نانوذرات هسته-پوسته آهن-کربن، به طور عمده از کربن آمورف تشکیل شده است [۲۴، ۲۵].

تصویرهای TEM گرفته شده از نمونه Fe-C در شکل ۵ نمایش داده شده‌اند. تصویرهای فوق، شکل‌گیری پوسته کربنی در اطراف نانوذرات آهن را تأیید می‌کنند. طبق شکل ۵، این پوسته در نانوذرات مختلف ضخامت نسبتاً یکنواختی دارد و ضخامت آن در نانوذرات موجود در تصویرهای TEM، کمتر از ۵ nm است.

۳.۲. مطالعه خواص مغناطیسی و الکترومغناطیسی

حلقه‌های پسماند نمونه‌های (Fe) و (Fe-C) در شکل ۶ نشان



شکل ۷. (رنگی در نسخه الکترونیکی) بخش‌های حقیقی و موهومی ϵ و μ در گستره بسامدی امواج میکرو.

کاهش Ms را در پی خواهد داشت.

از سوی دیگر، همان‌گونه که در جدول ۱ دیده می‌شود با ایجاد پوشش کربن مقدار Hc نانوذرات آهن از ۱۹۹ Oe به ۸۲ Oe کاهش می‌یابد. طبق نتایج الگوهای پراش پرتو ایکس (شکل ۱ را مشاهده کنید)، مدت زمان لازم برای تکمیل گذار فاز هماتیت- آهن در مورد نانوذرات هسته- پوسته (Fe-C) ۶۵ دقیقه و در مورد نانوذرات آهن (Fe) ۳۰ دقیقه است. از این رو مدت زمان انجام عملیات حرارتی بر روی نمونه (Fe-C)، ۳۵ دقیقه بیش از نمونه (Fe) است. این امر باعث می‌شود که اتم‌های آهن در نمونه (Fe-C) فرصت بیشتری را برای بازآرایی و کاهش ناکاملی‌های بلورین در نانوذرات حاصل داشته باشند. کاهش ناکاملی‌های بلورین باعث می‌شود که مراکز گیراندازی گشتاورهای مغناطیسی در نانوذرات هسته- پوسته کاهش یابد و در نتیجه، چرخش گشتاورهای دوقطبی در نانوذرات هسته- پوسته آهن- کربن راحت‌تر صورت پذیرد. این امر کاهش میدان وادارندگی در نمونه (Fe-C) را در پی خواهد داشت.

وابستگی بسامدی بخش‌های حقیقی و موهومی گذردهی الکتریکی ($\epsilon = \epsilon' + i\epsilon''$) و تراوایی مغناطیسی ($\mu = \mu' + i\mu''$) برای نمونه‌های (Fe) و (Fe-C) در گستره بسامدی ۱-۱۸ GHz در شکل ۷ الف- د نشان داده شده است. از شکل ۷ الف و ب واضح است که ایجاد پوشش کربن، مقادیر هر دو بخش حقیقی

و موهومی گذردهی الکتریکی نانوذرات تولیدی را کاهش داده است، به نحوی که مقدار ϵ' نمونه (Fe-C)، حدود ۲۰ درصد کاهش را نسبت به نمونه (Fe) از خود نشان می‌دهد و ϵ'' این نمونه نیز پس از ایجاد پوشش، به طور میانگین ۰/۱ واحد کم‌تر از نمونه (الف) شده است. با توجه به این که کربن ایجاد شده بر روی نانوذرات آهن در روش هیدروترمال آمورف است [۲]، کاهش ϵ با ایجاد پوشش را می‌توان ناشی از کاهش سهم اتم‌های آهن در نانوذرات هسته- پوسته آهن- کربن و در نتیجه کاهش رسانایی مؤثر کامپوزیت حاصل دانست.

وابستگی بسامدی بخش‌های حقیقی و موهومی تراوایی موج میکرو نمونه‌های (Fe) و (Fe-C) را می‌توان در شکل ۷ ج و د مشاهده کرد. درباره تراوایی نیز نتیجه مشابه با طیف‌های گذردهی الکتریکی است. بدین معنا که در این مورد نیز، هر دو بخش حقیقی (μ') و موهومی (μ'') تراوایی موج میکرو در مورد نمونه (Fe-C) از نمونه (Fe) کوچک‌تر هستند.

برای توضیح این پدیده نیاز است بدانیم، زمانی که یک میدان موج میکرو به یک ماده مغناطیسی اعمال می‌شود، گشتاورهای دوقطبی مغناطیسی در درون حوزه‌های مغناطیسی یک حرکت تقدیمی را حول راستای تعادلی اولیه خود آغاز می‌کنند. برای یک ماده مغناطیسی که در وضعیت غیرمغناطیده کامل قرار دارد، راستای تعادلی اولیه در هر حوزه توسط میدان ناهمسانگردی

۲.۴. بررسی نمودارهای اتلاف بازتاب (R.L) نمونه‌های

ساخته شده

به منظور بررسی وضعیت جذب نمونه‌های تولید شده در گستره بسامدی ۱-۱۸ GHz، نمودار اتلاف بازتاب نمونه‌ها با استفاده از مقادیر اندازه‌گیری شده ϵ و μ به دست آمد. طبق نظریه خط انتقال، اتلاف بازتاب یک تک‌لایه جاذب که بر روی یک زیرلایه فلزی قرار گرفته به صورت زیر بیان می‌گردد [۳۶]:

$$R.L = -20 \log \left| \frac{Z_{in} - Z_0}{Z_{in} + Z_0} \right|, \quad (2)$$

$$Z_{in} = Z_0 \sqrt{\frac{\mu_r}{\epsilon_r}} \cdot \tanh \left(i \frac{\sqrt{\mu_r \epsilon_r} d}{c} \right), \quad (3)$$

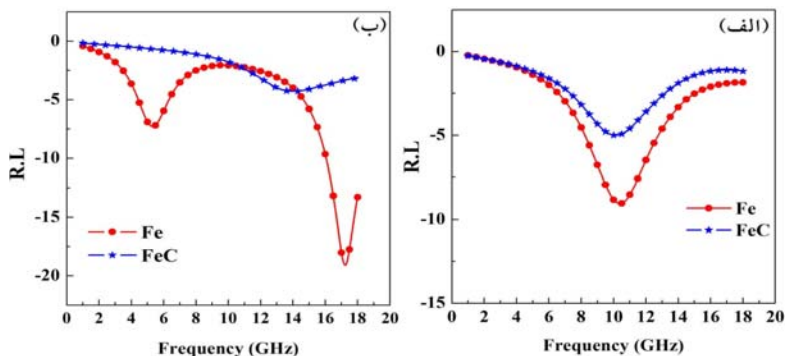
که Z_{in} ، Z_0 ، μ_r ، ϵ_r ، d و c به ترتیب نشان دهنده امپدانس محیط موج ورودی، امپدانس ذاتی خلأ، تراوایی مغناطیسی نسبی مختلط، گذردهی الکتریکی نسبی مختلط، بسامد موج الکترومغناطیس، ضخامت ماده و سرعت نور هستند.

محاسبه اتلاف بازتاب نمونه‌ها با استفاده از یک کد متلب انجام گرفت. این کد قادر است با بهینه‌سازی ضخامت لایه‌های جاذب، میزان جذب بهینه کامپوزیت‌های جاذب را در نوارهای بسامدی مختلف با استفاده از رابطه‌های (۲) و (۳) محاسبه کند. نتایج جذب بهینه برای کامپوزیت‌های Fe و Fe-C در گستره بسامدی بانده X (۸-۱۲ GHz) در شکل ۸ الف و در گستره بسامدی بانده Ku (۱۲-۱۸ GHz) در شکل ۸ ب نشان داده شده‌اند. طبق شکل ۸، در هر دو نمودار، میزان جذب کامپوزیت‌های حاوی نمونه Fe از کامپوزیت‌های حاوی نمونه Fe-C بهتر است. برای دسترسی به جذب حداکثر در یک ماده جاذب، دو شرط اساسی وجود دارد. شرط اول، تطبیق امپدانس بین لایه جاذب و فضای آزاد (هوا) است که باعث می‌شود موج به نحو مناسبی به لایه جاذب وارد شود. شرط دوم، اتلافی بودن لایه جاذب است که توسط بخش موهومی گذردهی الکتریکی (ϵ') و تراوایی مغناطیسی (μ'') تعیین می‌شود [۳۷]. شرط تطبیق امپدانس بدان معناست که امپدانس لایه جاذب موج تا حد ممکن به امپدانس هوا که با رابطه (۴) داده می‌شود، نزدیک باشد.

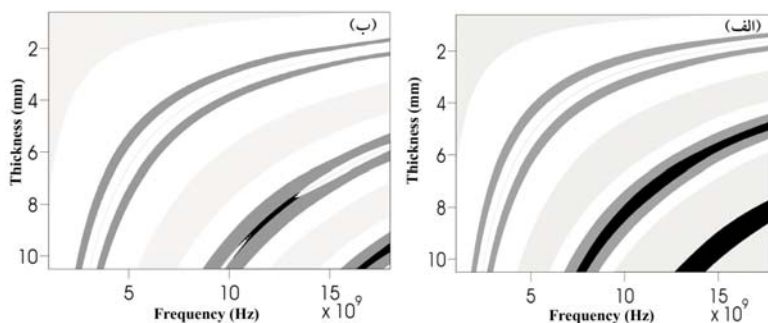
مغناطیبولورین در آن حوزه تعیین می‌شود. سازوکارهای تلفاتی موجود در ماده منجر به میرا شدن این حرکت تقدیمی خواهد شد. دینامیک مغناطش در هر حوزه توسط معادله مشهور لاندائو-لیف‌شیتز-گیلبرت توصیف می‌شود [۲۷]. تحقیقات فراوانی برای حل این معادله در حالت‌های غیرمغناطیده، جزئی مغناطیده و در حالت اشباع کامل با فرضیات مختلف انجام شده است [۲۷-۳۵]. در این مطالعه، خواص الکترومغناطیس در حالت غیرمغناطیده اندازه‌گیری شده‌اند. پولدر و اسمیت نشان دادند در حالتی که ماده مغناطیسی غیرمغناطیده است، قله موجود در بخش موهومی تراوایی مغناطیسی بسیار پهن است [۳۴]. این پهن شدگی به این دلیل اتفاق می‌افتد که در یک ماده مغناطیسی چند حوزه‌ای بس بلور که در حالت جزئی مغناطیده و یا غیرمغناطیده قرار دارد، حوزه‌های مغناطیسی به صورت تصادفی جهت‌گیری کرده‌اند و هر حوزه‌ای پاسخ مربوط به خود را به میدان میکروویو اعمالی به ماده می‌دهد [۲۷، ۳۱]. از این رو پهن‌شدگی قله پراش در دو نمونه بررسی شده می‌تواند ناشی از آن باشد که در حالت غیرمغناطیده، تشدید دارای پهنای بسامدی است. همچنین در حالت غیرمغناطیده روابط نشان می‌دهند که تراوایی مغناطیسی مواد در بسامدهای موج میکرو تا حد زیادی به مغناطش اشباع نمونه ارتباط دارد [۲۷، ۲۹، ۳۰، ۳۵]. مقادیر هر دو بخش حقیقی و موهومی تراوایی مغناطیسی طبق این روابط با افزایش Ms افزایش می‌یابد. به طور مثال طبق مدل گلین-برتو، مقدار تراوایی مغناطیسی در حالت غیرمغناطیده از رابطه زیر به دست می‌آید [۲۷]:

$$\mu = \frac{1}{3} + \frac{2}{3} \frac{(\Omega_a + \omega_m)(\Omega_a + \gamma n \omega_m) - \omega^2}{\Omega_a(\Omega_a + \gamma n \omega_m) - \omega^2}, \quad (1)$$

که در آن $\omega_a = \gamma H_a \omega$ ، $\omega_m = \gamma M_s \omega$ ، $\gamma = 2.8 \text{ MHz/Oe}$ ، α عامل میرایی، $\omega = 2\pi f$ ، $\Omega_a = \omega_a - j\alpha\omega$ و n ضریب مغناطیس‌زدایی حوزه‌هاست. همان گونه که در معادله (۱) دیده می‌شود، تراوایی مختلط به طور مستقیم به مغناطش اشباع نمونه‌ها وابسته است. بنابراین مقادیر بزرگ‌تر μ' و μ'' در نمونه (Fe) در مقایسه با نمونه (Fe-C) می‌تواند ناشی از بزرگ‌تر بودن Ms در این نمونه باشد [۱۱].



شکل ۸. (رنگی در نسخه الکترونیکی) اتلاف بازتاب بهینه برای نمونه‌های Fe و Fe-C به ازای بهینه‌سازی اتلاف بازتاب در (الف) باند X و (ب) باند Ku.



شکل ۹. نمودار تطبیق امپدانس برای (الف) نمونه Fe و (ب) نمونه Fe-C.

به معنای تلفاتی‌تر بودن کامپوزیت‌های حاوی نمونه Fe است. در نتیجه لایه حاوی نمونه Fe، شرایط جذب حداکثری را به نحو مناسب‌تر برآورده می‌کند که این امر در نمودارهای R.L. ترسیم شده در شکل ۸ نیز تأیید شد.

۳. نتیجه‌گیری

نانوذرات کروی هماتیت با اندازه میانگین ۶۸ nm و با استفاده از روش هیدروترمال تولید شدند و به منظور تولید نانوذرات آهن و نانوکپسول‌های آهن- کربن مورد استفاده قرار گرفتند. بررسی گذار فاز هماتیت- آهن در حین فرایند احیای هماتیت در محیط آرگون- هیدروژن نشان داد که تکمیل گذار فاز در نمونه‌های آهن فاقد پوشش سریع‌تر از نانوذرات هسته- پوسته آهن- کربن انجام می‌شود. الگوهای پراش پرتو ایکس تشکیل فاز آهن را در مورد نانوذرات آهن پس از ۳۰ دقیقه و در مورد نانوذرات هسته- پوسته آهن- کربن پس از ۶۵ دقیقه پخت در دمای ۵۲۰°C تأیید کرد و هیچ قله‌ای مربوط به ناخالصی در

$$Z_0 = \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} = 377 \Omega, \quad (4)$$

این شرط زمانی برقرار خواهد بود که بخش حقیقی امپدانس لایه جذب که با رابطه (۲) داده می‌شود به 377Ω و بخش موهومی آن به صفر نزدیک باشد. به منظور بررسی میزان تطبیق امپدانس بین لایه‌های جذب حاوی نانوذرات تولید شده و هوا، نمودار تطبیق امپدانس این لایه‌ها در گستره بسامدی ۱۸-۱ GHz و به‌ازای ضخامت‌های بین ۰/۴ تا ۱۰/۲ mm در شکل‌های ۹ الف و ب رسم شده است. بخش‌های سیاه رنگ در شکل ۹ نشان دهنده نواحی است که در آنها بخش موهومی امپدانس لایه، بین صفر تا 377Ω و بخش حقیقی آن در گستره بین 340Ω تا 410Ω قرار دارد. طبق شکل ۹، نواحی سیاه رنگ که در آنها بین لایه جذب و هوا تطبیق امپدانس مناسب‌تری وجود دارد، برای نمونه Fe از نمونه Fe-C بزرگ‌تر هستند. این نتیجه به معنای وجود تطبیق امپدانس مؤثرتر بین نمونه Fe و هواست. از سوی دیگر، در نمونه Fe، بخش‌های موهومی گذردهی الکتریکی و تراوایی مغناطیسی بزرگ‌تر هستند و این

کردند. نتایج بررسی ویژگی‌های موج میکرو نمونه‌ها در گستره بسامدی ۱-۱۸ GHz حاکی از آن است که با ایجاد پوشش کربن می‌توان مقدار گذردهی الکتریکی و تراوایی مغناطیسی نمونه‌ها را تغییر داد.

الگوهای XRD دیده نشد. خواص ساختاری، مغناطیسی و الکترومغناطیسی نانوذرات آهن و نانوذرات آهن پوشیده با کربن مورد مطالعه قرار گرفتند. طیف‌سنجی رامان و تصاویر TEM، وجود پوشش کربن در نانوساختارهای تولیدی را تأیید

مراجع

1. M Jazirehpour, M Shams, and O Khani, *J. Alloys Compd.* **545** (2012) 32.
2. M Jazirehpour and S A Seyyed Ebrahimi, *J. Alloys Compd.* **639** (2015) 280.
3. M H Shams, S M A Salehi, and A Ghasemi, *Mater. Lett.* **62** (2008) 1731.
4. P Kameli, Z Mosleh, M Ranjbar, and H Salamati, *Iranian Journal of Physics Research* **14**, 4 (2015) 341.
۴. پ کاملی، ز مصلح، م رنجبر و هـ سلامتی، مجله پژوهش فیزیک ایران **۱۴**، ۴ (۱۳۹۳) ۳۴۱.
5. K Rozanov, D Petrov, A Maratkanova, and A Chulkina, and S Lomayeva, *Phys. Met. Metallogr.* **115** (2014) 642.
6. L Qiao, R Han, T Wang, L Tang, and F Li, *J. Magn. Magn. Mater.* **375** (2015) 100.
7. S Yan, S Dai, H Ding, Z Wang, and D Liu, *J. Magn. Magn. Mater.* **358** (2014) 170.
8. Y Yang, Z W Li, C P Neo, and J Ding, *J. Phys. Chem. Solids* **75** (2014) 230.
9. R Han, L Qiao, T Wang, and F s Li, *J. Alloys Compd.* **509** (2011) 2734.
10. H Huang, X F Zhang, B Lv, F H Xue, A Shah, L Su, J G Yan, M Yao, and X L Dong, *J. Appl. Phys.* **113** (2013) 084312.
11. Khani, M Zargar Shoushtari, and M Farbod, *Physica B: Condens. Matter.* **477** (2015) 33.
12. X Liu, D Geng, H Meng, P Shang, and Z Zhang, *Appl. Phys. Lett.* **92** (2008) 173117.
13. X Liu, G Zhou, S W Or, and Y Sun, *RSC Adv.* **4** (2014) 51389.
14. Y Du, W Liu, R Qiang, Y Wang, X Han, J Ma, and P Xu, *ACS Appl. Mater. Interfaces.* **6** (2014) 12997.
15. R Ghosh Chaudhuri, and S Paria, *Chem. Rev.* **112** (2011) 2373.
16. Q He, Z Zhang, J Xiong, Y Xiong, and H Xiao, *Opt. Mater.* **31** (2008) 380.
17. J Gu, S Li, M Ju, and E Wang, *J. Cryst. Growth* **320** (2011) 46.
18. C Cao, Z Ma, C Ma, W Pan, Q Liu, and J Wang, *Mater. Lett.* **88** (2012) 61.
19. Karaagac, J Supercond. *Nov. Magn.* **26** (2013) 1707.
20. Karaagac, H Kockar, B Ebin, and S Gurmen, *J. Mater. Sci.: Mater. Electron.* **24** (2013) 2602.
21. W Liu, J Y Lim, M A Saucedo, A N Hayhurst, S A Scott, and J S Dennis, *Chem. Eng. Sci.* **120** (2014) 149.
22. C Trevisanut, F Bosselet, F Cavani, and J Millet, *Catal. Sci. Tech.* **5** (2015) 1280.
23. X Liu, B Li, D Geng, W Cui, F Yang, Z Xie, D Kang, and Z Zhang, *Carbon* **47** (2009) 470.
24. A Ferrari and J Robertson, *Phys. Rev. B* **64** (2001) 075414.
25. A C Ferrari and J Robertson, *Phys. Rev. B* **61** (2000) 14095.
26. H Danan, A Herr, and A J P Meyer, *J. Appl. Phys.* **39** (1968) 669.
27. P Gelin and B P Karine, *IEEE Trans. Microw. Theory Techn.* **45** (1997) 1185.
28. G T Rado, *Phys. Rev.* **89** (1953) 529.
29. E. Schlomann, *J. Appl. Phys.* **41** (1970) 204.
30. P Gelin, P Quéffelec, and F Le Penneç, *J. Appl. Phys.* **98** (2005) 053906.
31. P Gelin and P Queffelec, *IEEE. Trans. Magn.* **44** (2008) 24.
32. D Polder, *Physica* **15** (1949) 253.
33. C Kittel, *Phys. Rev.* **73** (1948) 155.
34. D Polder and J Smit, *Rev. Mod. Phys.* **25** (1953) 89.
35. C Neo, Y Yang, and J Ding, *J. Appl. Phys.* **107** (2010) 083906.
36. D M Pozar, "Microwave engineering", John Wiley & Sons, New York, (2005).
37. G Tong, W Wu, Q Hua, Y Miao, J Guan, and H Qian, *J. Alloys Compd.* **509** (2011) 451.