

高磁光性能 $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ 多晶体的制备及磁学性能研究

栾丽君, 徐长艳, 张子莽, 谢海晨

(长安大学, 陕西西安 710064)

摘要: 采用优化的溶胶-凝胶法制备了 Ce^{3+} 掺杂的石榴石型 $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$; Ce: YIG) 多晶体, 优化方案是通过预烧处理和 $900 \sim 1400^\circ C$ 宽温度范围烧结获得无衍生杂质和高磁光性能的晶体。首先用热重分析确定了该晶体的合成温度为 $890^\circ C$ 。XRD 结果表明该晶体的晶格常数在 12.37241 \AA 至 12.4121 \AA 之间变化, 当 $Ce>0.2$ 时出现杂质相 CeO_2 。SEM 分析表明 Ce: YIG 的晶粒尺寸随着烧结温度和 Ce^{3+} 含量的增加而增加, 其尺寸分布范围为 $0.257 \sim 6.52 \mu m$, 该粒度值是目目前获得的 YIG 晶体粒度的最大值。所有 Ce: YIG 样品在室温下呈现亚铁磁性, 饱和磁化强度在 $23.47 \sim 28.10 \text{ emu/g}$ 范围内变化。经过 $1200 \sim 1300^\circ C$ 烧结的 $Ce_{0.1}Y_{2.9}Fe_5O_{12}$ 晶体的磁导率高达 $3.68 \sim 3.90$ 。根据法拉第旋转角与磁导率的关系可知, 该温度范围烧结的多晶体有可能获得最佳的法拉第旋转性能。

关键词: 溶胶-凝胶法; 钇铁石榴石; 烧结温度; 磁性能

中图分类号: TG?? **文献标识码:** A **文章编号:** 1002-185X(2017)0?-0??-0?

稀土铁石榴石 (RIG) 自 1957 年被发现以来, 由于其高居里温度^[1]、高介电常数^[2]、垂直磁各向异性^[3]和化学稳定性, 已在光纤通信^[4]、国防工业^[5]、航空航天和生物医学^[6]等领域得到广泛应用。作为 RIG 家族的一员, 钇铁石榴石已成为制作非互易器件^[7-9]的热门材料, 如磁光隔离器^[4,10,11]、谐振器^[12,13]、磁光传感器^[14,15]、磁光学开关^[16]和可调谐滤波器^[17,18]等, 这些器件的工作原理皆源于 YIG 巨大的法拉第效应^[19]。随着 5G 时代的到来, 适用于通信频带中非互易设备的 YIG 单晶芯片引起了广泛的研究兴趣^[20]。目前制备单晶体使用的方法包括熔盐法^[21]、光学浮区法^[14,22]和液相外延法^[23,24]。然而, 由于 YIG 单晶的非一致熔融性, 其晶体生长变得极其困难。为了满足目前国际形势下国产替代的需要, 透明 YIG 陶瓷^[25,26]、YIG 薄膜^[3,27-29]和陶瓷粉体材料^[30-32]已竞相被研究。

除了巨法拉第效应外, 出色的磁性如高饱和磁化强度^[33,34]、窄铁磁共振线宽^[35]和高法拉第转角也为 YIG 多晶粉体在微波领域内的应用提供了可能, 其丰富的磁性来源于钇铁石榴石巧妙的晶体结构。YIG 的分子式为 $Y_3Fe_5O_{12}$, 属于立方晶系, 每个单位晶胞内含八个 $Y_3Fe_5O_{12}$ 分子。YIG 的晶体结构由氧多面体围绕着阳离子组成, 分别形成三个亚晶格: 四面体 d 位置由三个铁离子占据、八面体 a 位置和十二面体 c 位置分别由两个铁离子和三个钇离子占据。其中 a 位和 d 位上的铁离子磁矩通过超交换相互作用抵消, 剩余 d 位的铁离子提供

了 YIG 的磁性^[36]。因此当用不同元素掺杂 YIG 可显著改变其磁性。例如, 掺杂钴会导致 YIG 纳米颗粒的饱和磁化强度降低^[37]; Sm^{3+} 掺杂的 YIG 引起晶格畸变, 导致其饱和磁化强度降低^[38]; Sn 取代导致居里温度降低, 饱和磁化强度略有增加^[39]。

目前制备 YIG 晶体的方法包括溶胶-凝胶法^[6,40,41]、化学共沉淀法^[42]、固态法^[43,44]、溶液燃烧法^[45]、水热法^[46]和微乳液法^[47]。其中, 溶胶-凝胶法因其成本低、简单以及能够在相对较低的温度下合成单相 YIG 而备受关注。无论使用何种合成方法, YIG 晶相合成都需要较高的温度 ($800 \sim 1400^\circ C$)。Aleksandr Spivakov 等人^[48]使用溶胶-凝胶法在 $650 \sim 800^\circ C$ 的空气气氛中对 Bi:YIG 纳米颗粒进行退火, 发现随着退火温度的升高, 晶粒尺寸增加到 44.5 nm , 并伴随着磁畴的转变。尽管合成 Ce: YIG 的技术相对成熟, 但 Ce 在 YIG 陶瓷中的溶解度低, 导致相关性能受到影响。为此研究人员相继开发出 Eu 掺杂^[29]以及热循环^[49]等提高 Ce 的固溶度的方法。各种方法合成的 Ce: YIG 陶瓷中 Ce 亦展现出不同的溶解度极限。其中, 溶胶凝胶法合成 Ce: YIG 薄膜的 Ce 含量最大可达到 0.25 ^[50]; 固相法合成 Ce: YIG 颗粒的溶解度极限为 0.1 ^[51]。

根据实践经验, 我们发现传统溶胶-凝胶法虽然可以在较低的温度下合成 YIG 多晶体, 但获得的 YIG 多晶体不仅含有 $YFeO_3$ (YIP)、赤铁矿、 CeO_2 等杂质相, 而且较低的烧结温度下晶粒生长不完全导致晶体质量也很

基金项目: 国家重点研发计划“政府间国家科技创新合作”重点专项项目(批准号: 2023YFE0108500)和中央高校基本科研业务费专项(编号: 300102312401)

作者简介: 栾丽君, 女, 1976 年生, 博士, 副教授, 长安大学材料科学工程学院, 陕西西安 710064, 电话: 13309278863, E-mail: nmlj050@chd.edu.cn

低^[52,53]。同时，固相烧结合也存在原料均匀性和分散性差的问题，导致性能较差^[54]，因此我们拟通过优化传统溶胶-凝胶法的烧结工艺来制备可应用于微波器件的高磁光性能 Ce: YIG 粉末多晶体。优化方案是通过预烧处理和 900 ~ 1400℃ 的宽温度范围烧结获得无衍生杂质和高磁光性能的晶体。本文系统地研究了 Ce 掺杂和烧结温度对 Ce: YIG 晶体结构、烧结过程、磁性能和法拉第效应的影响。

1 实验

采用分析纯 $Y(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$, $Fe(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ 和 $Ce(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$ 作为溶胶-凝胶法制备 $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) 多晶粉体的原料。按照化学计量比称量原料并溶解在 120ml 去离子水中，滴入少量乙二醇不断搅拌至充分溶解，然后加入 1M $C_6H_8O_7 \cdot H_2O$ 作为络合剂并搅拌均匀，合成暗红色的前驱体溶液。溶液的 PH 值是成功制备凝胶的关键，在前驱体溶液中逐滴加入氨水使其 PH 值为 2^[55]，此时溶液变为浅黄绿色。将混合溶液在 80℃ 下水浴加热 6 ~ 10h 使其缓慢蒸发获得湿凝胶。湿凝胶在 110℃ 下干燥 36h 得到疏松多孔的干凝胶，研磨 30min 后得到原粉。最后，将原粉先在 450℃ 预烧 1 小时后分别在 900 ~ 1400℃ 下烧结 6 小时得到 $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) 多晶体。

通过 TGA/DSC (TA DSC/TGA Discovery SDT 650) 确定 $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ 原粉在不同加热阶段的热分解温度及立方石榴石相的形成温度。用 X 射线衍射 (AXS D8ADVANCE) 分析 $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ 样品的晶体结构。再用扫描电子显微镜 (ZEISS Sigma 300) 分析样品的形貌特征及晶粒尺寸。使用振动样品磁强计 (美国 LakeShore 公司 7404 型) 获得样品在常温下的磁滞回线，重点研究样品的饱和磁化强度随烧结温度的变化关系。

2 结果与讨论

2.1 TG-DSC 法确定 YIG 的合成工艺

图 1 所示为溶胶-凝胶法制备 YIG 晶体的 TG-DSC 曲线。从 TG 曲线上可以看出温度低于 180℃ 之前失重率约为 7%，对应于 DSC 曲线上 100.82℃ 处的吸热峰和 172.24℃ 的放热峰，分别为湿凝胶脱水及氨基消除。随着温度升高到 582℃，失重持续增加到 74.04%，该过程为凝胶中氢氧化物、柠檬酸等有机物分解。柠檬酸的分解温度为 350℃ 左右^[56]，对应于 DSC 曲线上 383℃ 的放热峰。因此，在正式退火之前，应先选择合适的温度预烧处理，从而抑制杂质相的形成，根据 TG-DSC 数据和文献数据，最终确定在 450℃ 下预烧 1h。当温度高于 582℃ 以后，TG 曲线略微下降，后趋于平稳，该趋势对应于

有机物的进一步分解。在 795.16℃ 处出现一个放热峰，代表着有序相复合氧化物 $YFeO_3$ (YIP) 在此温度下开始结晶。871℃ 处的放热峰可能代表着立方 YIG 相的形成。失重持续到约 890℃，高于 890℃ 以后没有任何失重，表明采用溶胶-凝胶法制备 Ce: YIG 晶体的最低烧结温度为 890℃。传统溶胶-凝胶法在 900 ~ 1100℃ 的烧结温度范围合成的 YIG 晶体质量不高，本文选定 900 ~ 1400℃ 作为 YIG 的烧结温度范围。葛

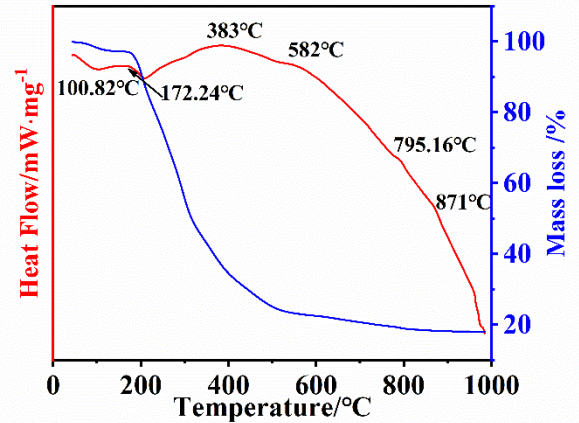


图 1 溶胶-凝胶法制备 YIG 原粉的 TG-DSC 曲线。该曲线是在空气气氛中以 10℃/min 的加热速率从室温升温到 1000℃ 进行测量的
Fig.1 TG-DSC curve of YIG raw powder prepared by sol-gel method.

The curve was measured in air atmosphere at a heating rate of 10℃/min from room temperature to 1000 °C

2.2 单相 YIG 的 XRD 分析

2.2.1 烧结温度对晶体结构的影响

为了探究预烧在烧结过程中是否必要，我们测试了未经预烧在 900℃ 下直接烧结的样品和 450℃ 预烧后再烧结的样品的 XRD 衍射数据，结果如图 2 所示。从图中可以看出，未经预烧样品的主晶相为 $YFeO_3$ (YIP)，同时含有少量 Fe_2O_3 ，而经 450℃ 预烧后烧结的试样仅显示为 YIG 相。因此，在正式烧结之前的预烧结过程是获得纯 YIG 的关键步骤。

在 900 ~ 1400℃ 下烧结 6h 的 $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) 晶体的 XRD 图谱如图 3 所示。所有样品都表现出结晶相，并形成了石榴石结构，其衍射峰与 $Y_3Fe_5O_{12}$ 的标准衍射卡片 (PDF # 43-0507) 非常匹配。 $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) 样品各晶面的衍射峰强度随烧结温度的升高而增大，其半峰宽度随烧结温度升高而变窄，表明 $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ 的晶粒尺寸增大，同时结晶度增大。如图 3 (c) 和 (d) 所示，由于 Ce 在 YIG 中的溶解度有限^[50]，随着 Ce 浓度的升高，样品中开始出现 CeO_2 第二相，分别对应于 x 等于 0.2 和 0.3。同时，

随着烧结温度的升高，检测到的 CeO_2 含量变小，表明高温烧结可使 Ce^{3+} 更多的溶解到 YIG 中。

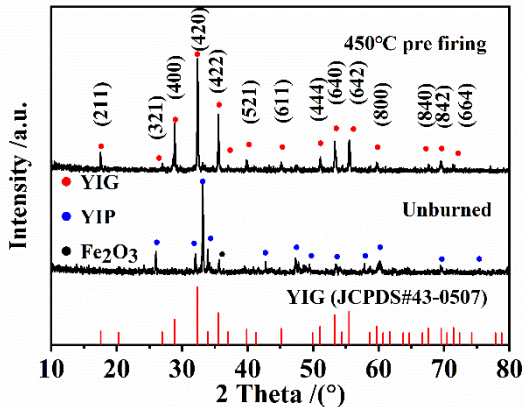


图 2 900 °C 下未预烧样品和 450 °C 预烧样品的 XRD 衍射图。未预烧样品的主晶相为 YFeO_3 (YIP) 相，而预烧样品则为 YIG 相

Fig.2 XRD diffraction patterns of pre-fired samples at 900 °C and pre-fired samples at 450 °C. The main crystal phase of the unburned sample is YFeO_3 (YIP) phase, while the pre-fired sample is YIG phase

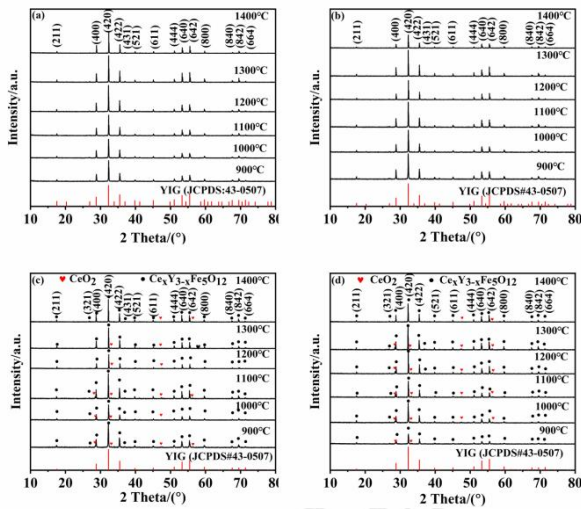


图 3 $\text{Ce}_x \text{Y}_{3-x} \text{Fe}_5 \text{O}_{12}$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) 在 900 ~ 1400 °C 烧结时的 XRD 衍射图: (a) $x=0$; (b) $x=0.1$; (c) $x=0.2$; (d) $x=0.3$ 。所有衍射峰与 PDF# 43-0507 的标准衍射峰匹配良好，当 x 大于 0.2 时，出现 CeO_2 峰

Fig.3 XRD diffraction patterns of $\text{Ce}_x \text{Y}_{3-x} \text{Fe}_5 \text{O}_{12}$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) sintered at 900-1400 °C: (a) $x=0$; (b) $x=0.1$; (c) $x=0.2$; (d) $x=0.3$. All diffraction peaks match well with the standard diffraction peaks of PDF # 43-0507. When x is greater than 0.2, a CeO_2 peak appears

2. 2. 2Ce 含量对晶体结构的影响

为了确定 Ce 含量对晶体结构的影响，我们选择了比较合适的烧结温度 1300 °C 的 $\text{Ce}_x \text{Y}_{3-x} \text{Fe}_5 \text{O}_{12}$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) 的 XRD 图谱进行精修，结果如图 4 所示，将图

4 中(420)峰局部放大得到图 5。如图 5 所示，随着 Ce 含量的增加，主峰位置略微向左移动，这是因为 Ce^{3+} 的离子半径(1.01 Å) 大于 Y^{3+} (0.9 Å)。根据布拉格方程 $\lambda = 2d \sin \theta$ ，当 d 增大时，衍射角减小。

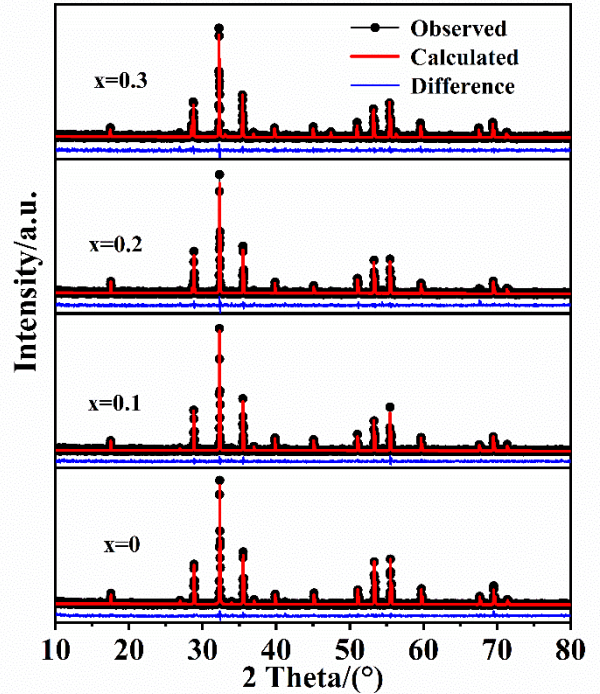


图 4 1300 °C 烧结的 $\text{Ce}_x \text{Y}_{3-x} \text{Fe}_5 \text{O}_{12}$ 晶体的精修 XRD 图谱
Fig.4 The refined XRD patterns of $\text{Ce}_x \text{Y}_{3-x} \text{Fe}_5 \text{O}_{12}$ crystal sintered at 1300 °C

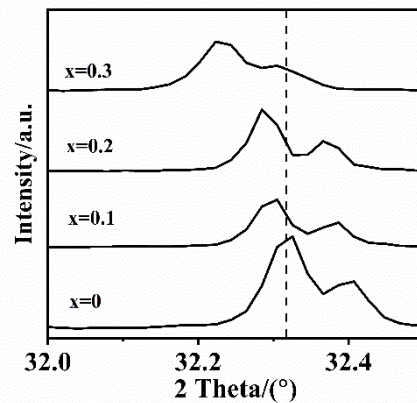


图 5 1300 °C 烧结的 $\text{Ce}_x \text{Y}_{3-x} \text{Fe}_5 \text{O}_{12}$ 晶体的 (420) 峰的放大图
Fig.5 Enlarged image of (420) peak in $\text{Ce}_x \text{Y}_{3-x} \text{Fe}_5 \text{O}_{12}$ crystal sintered at 1300 °C

衍射峰位随 x 值的增大而左移表明 Ce^{3+} 成功取代 Y^{3+} 进入了 YIG 晶格，形成石榴石结构^[27]。为了进一步分析 Ce^{3+} 含量对晶格常数的影响，我们根据上述 XRD 结果获得了 $\text{Ce}_x \text{Y}_{3-x} \text{Fe}_5 \text{O}_{12}$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) 的晶格参数

列于表 1。如表 1 数据所示, 在相同的烧结温度下, Ce_xY_{3-x}Fe₅O₁₂ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) 的晶格常数随着 Ce 含量的增加而增加, 这归因于大半径离子 Ce³⁺ 的成功掺杂。实验中任一掺杂浓度的 Ce_xY_{3-x}Fe₅O₁₂ 晶体的晶格常数都随着烧结温度的升高而降低 (如图 6 (a) 所示)。原因是随着烧结温度提高, 晶粒尺寸增大, 从而导致晶格参数变小。P.Vaqueiro 等人^[56]的研究结果证实了这一点, 他们研究了在不同的烧结温度 (800 ~ 900°C) 下获得的 YIG 的平均粒径和晶格常数之间的关系, 发现平均粒径越大, 晶格常数越小。这种晶格收缩源于相对大尺寸晶粒中的晶粒表面排斥偶极相互作用的减少^[57]。图 6 (b) 显示了基于 XRD 精修数据的 Ce_xY_{3-x}Fe₅O₁₂ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) 中结晶各相含量与烧结温度之间的关系。可以看出, 随着温度的升高, 更多的 Ce³⁺ 固溶于 YIG 中, 形成 Ce_xY_{3-x}Fe₅O₁₂ 晶相, 而第二相的含量却相应地降低。这也证实了高温烧结对 Ce³⁺ 在 YIG 中的固溶性的贡献。

表 1 通过 XRD 数据精修的 900 ~ 1400°C 下烧结的 Ce_xY_{3-x}Fe₅O₁₂ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) 样品的晶格常数(Å)

Table 1 Lattice constants (Å) of Ce_xY_{3-x}Fe₅O₁₂ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) samples sintered at 900-1400 °C using XRD

		data refinement			
Ce (x)		0	0.1	0.2	0.3
T (°C)	900	12.38925	12.39591	12.40606	12.4121
	1000	12.38341	12.38938	12.39964	12.4098
	1100	12.383	12.38796	12.39964	12.4098
	1200	12.38121	12.38427	12.39524	12.40968
	1300	12.37731	12.38465	12.39383	12.4079
	1400	12.37241	12.3836	12.39273	12.40447

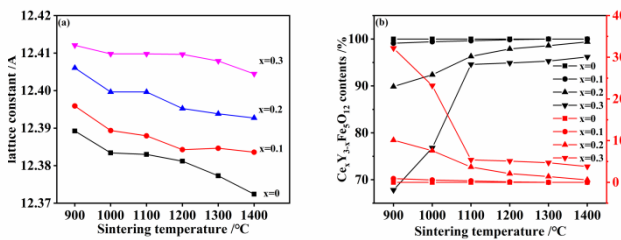


图 6(a) 不同 Ce 含量下 Ce_xY_{3-x}Fe₅O₁₂ 的晶格常数随烧结温度的变化; (b) Ce_xY_{3-x}Fe₅O₁₂ 中 YIG 和 CeO₂ 含量与烧结温度的关系
Fig.6(a) Changes in lattice constants of Ce_xY_{3-x}Fe₅O₁₂ with sintering temperature under different Ce contents; (b) The relationship between

2.3 SEM 表面形貌和烧结过程分析

为了研究 Ce_xY_{3-x}Fe₅O₁₂ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) 样品在不同烧结条件下的形貌, 对样品进行了扫描电子显微镜 (SEM) 分析。图 7 显示了在 900 ~ 1400°C 下烧结 6 小时的 Ce_xY_{3-x}Fe₅O₁₂ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) 样品的微观形貌。根据 SEM 图像, 所有样品都表现出与 XRD 结果一致的多晶形态, 证实了通过溶胶凝胶法成功合成了 Ce_xY_{3-x}Fe₅O₁₂ 多晶体。统计 Ce_xY_{3-x}Fe₅O₁₂ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) 在不同烧结温度下的平均晶粒尺寸列于表 2, 其平均粒度分布在 0.257 至 6.52μm 范围内, 且晶粒尺寸随着烧结温度增加而增大, 在如表 2 所示的任一烧结温度下, 随着越来越多的 Ce³⁺ 进入 YIG 晶格, Ce_xY_{3-x}Fe₅O₁₂ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) 的晶粒尺寸逐渐增大, 这与 XRD 粒度分析结果一致。与固相法和传统溶胶-凝胶法相比, 优化的溶胶-凝胶法工艺获得的晶粒尺寸大于传统固相法 (最大晶粒尺寸为 5μm^[58]) 和普通溶胶-凝胶法 (晶粒尺寸为 1.36μm^[59]), 本工作获得的粒度值是目前获得的 YIG 晶体粒径的最大值。随着烧结温度的持续升高, 晶粒从柱状晶转变为等轴晶粒。

值得注意的是, 在掺杂过程中, 除了 YIG 晶粒生长外, 还出现了第二相。当 $x=0.1$ 时, 观察到 CeO₂ 第二相附着在 Ce_xY_{3-x}Fe₅O₁₂ 晶界处, 这也反映在图 7 中。但 Ce_{0.1}Y_{2.9}Fe₅O₁₂ 中的杂质相仅存在于 900 ~ 1200°C 的烧结过程中。超过 1300°C 后, Ce³⁺ 完全固溶到 YIG 晶格中, 形成单相 Ce_{0.1}Y_{2.9}Fe₅O₁₂。当 x 为 0.2 和 0.3 时, 实验中的任一烧结温度下都观察到了 CeO₂ 杂质相, 因此用溶胶-凝胶法制备 Ce: YIG 时, Ce 的固溶极限小于 0.2。

为了研究不同烧结温度下晶体的生长和扩散, 我们使用 Cobel 理论^[60]的 Arrhenius 方程^[61]来预测晶体生长的活化能:

$$\lg D = \left(\frac{-Q}{2.303R} \right) \frac{1}{T} + A \quad (1)$$

式中, D 为晶粒度; Q 是晶体生长的活化能 (kJ/mol); R 是理想气体常数, 其值为 8.314 J/mol; T 是绝对温度 (K); A 是常数。根据上述公式绘制 Ce_xY_{3-x}Fe₅O₁₂ 的 $\lg D-1/T$ 曲线, 如图 8 所示, 通过曲线可以计算烧结的活化能。

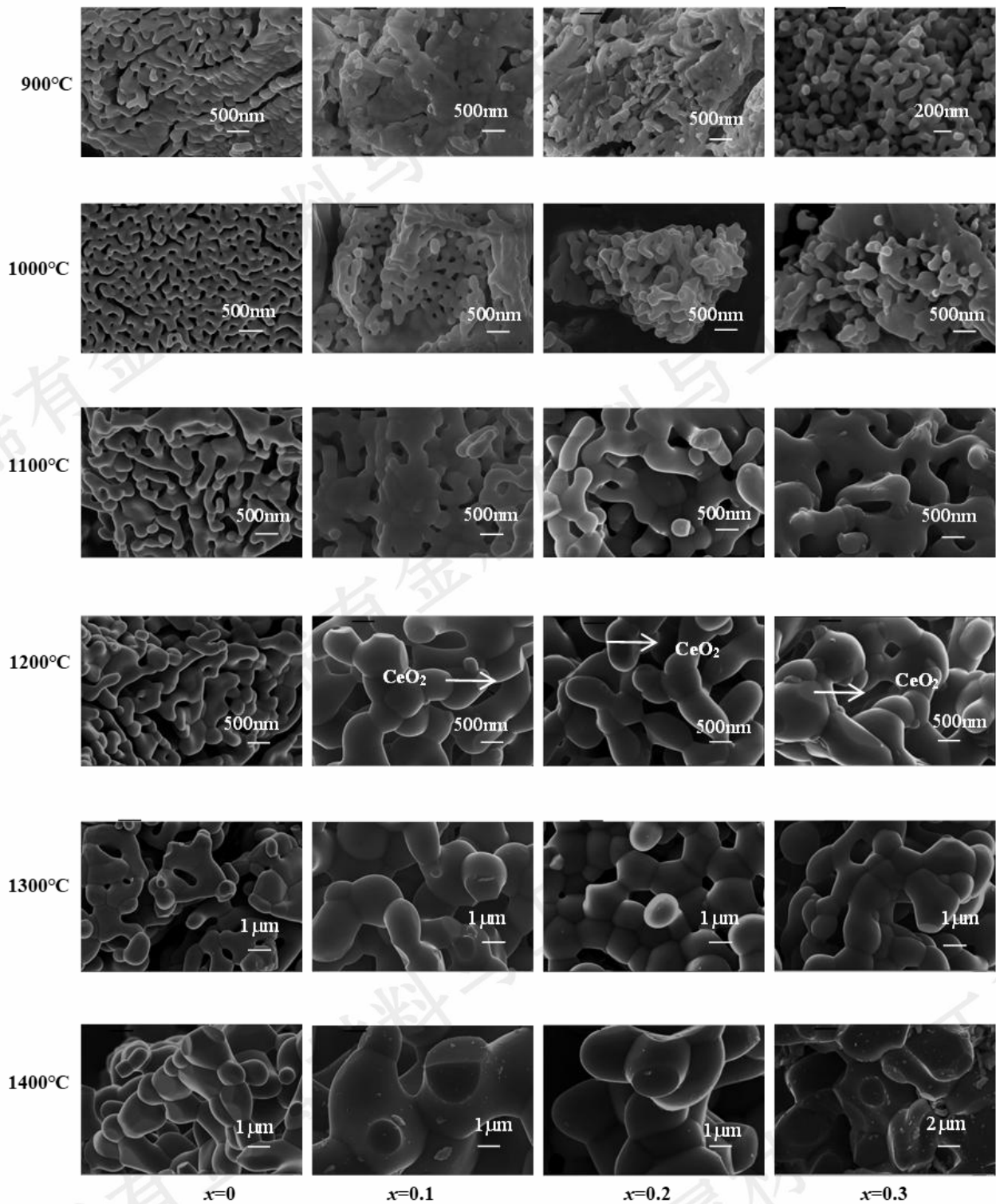


图 7 $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ ($x=0,0.1,0.2,0.3$)在 900 ~ 1400°C 下烧结 6 小时的 SEM 图像。在烧结过程的早期阶段 (900 ~ 1000°C), 形成烧结的颈部; 在烧结过程的中期阶段 (1100 ~ 1200°C), 形成了柱状晶体; 在烧结过程的最后阶段 (1300 ~ 1400°C), 形成了等轴晶; 烧结温度为 1200 ~ 1300°C 时, 最佳晶粒形态出现。图中水平方向的每一行具有同一烧结温度, 从 900 ~ 1400°C; 竖直方向的每一列具有同一 Ce 含量 x , 为 0 ~ 0.3

Fig. 7 SEM images of $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) sintered at 900-1400 °C for 6 hours. In the early stages of the sintering process (900-1000 °C), a sintered neck is formed; In the middle stage of the sintering process (1100-1200 °C), columnar crystals are formed; In the final stage of the sintering process (1300-1400 °C), equiaxed crystals are formed; When the sintering temperature is between 1200-1300 °C, the optimal grain morphology appears. Each row in the horizontal direction in the figure has the same sintering

temperature, ranging from 900 to 1400 °C; Each vertical column has the same Ce content x , ranging from 0 to 0.3

表 2 900 ~ 1400°C 烧结的 $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ ($x = 0, 0.1, 0.2, 0.3$) 晶体的平均晶粒尺寸 (μm)

Table 2 Average grain size (μm) of $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ ($x = 0, 0.1, 0.2, 0.3$) crystal sintered at 900-1400 °C

Ce (x) T (°C)	0	0.1	0.2	0.3
900	0.257	0.27	0.297	0.314
1000	0.268	0.281	0.312	0.434
1100	0.311	0.485	0.61	0.75
1200	0.435	0.99	1.05	1.11
1300	0.902	1.95	2.02	2.36
1400	1.64	2.84	4.42	6.52

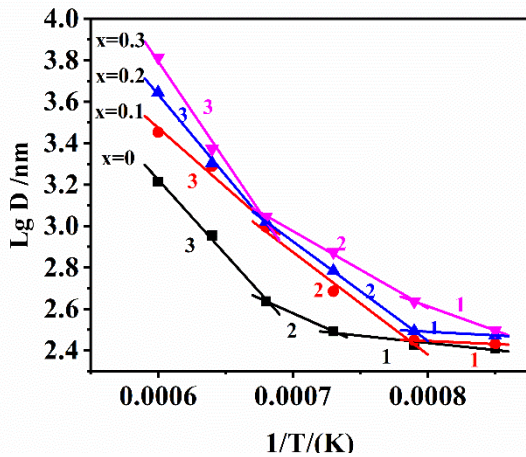


图 8 三种烧结工艺条件下, 根据公式 (1) 拟合的 LgD 和 $1/T$ 的关系图。对于不同的 x , 两个低温数据确定一条拟合线, 两个中温数据和两个高温数据分别确定另外两条拟合线

Fig. 8 The relationship between LgD and $1/T$ fitted according to formula (1) under three sintering process conditions. For different x values, two low temperature data determine one fitting line, and two medium temperature data and two high temperature data determine the other two fitting lines, respectively

基于上述拟合结果, 计算出 $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) 在各个阶段的活化能并列于表 3。晶粒生长经历三个阶段: 第一阶段是生长早期 (对应相对较低的烧结温度), 第二阶段是生长中期 (中温), 而第三阶段 (高温) 是生长后期。从第一阶段到第三阶段, 所有样品的活化能显著增加。在晶粒生长的初始阶段, 起始粉末达到纳米尺寸 (257 ~ 311nm)。这些纳米颗粒具有更大的表面积来刺激晶粒生长, 因此活化能较低^[62]。该阶段 Ce: YIG 的主要扩散方式是表面扩散, 其中纳米颗粒相互接

触形成颈部连接, 原子沿着表面扩散到颈部区域。在生长中期, 晶粒和颈部继续生长, 但表面原子的扩散逐渐转变为晶界扩散, 晶界的移动需要更多的能量, 从而活化能进一步增加。在生长的最后阶段, 晶界扩散开始转变为体扩散, 并伴随着晶粒的连续生长, 从而导致更高的活化能。整个烧结过程中, 原子扩散从早期的表面扩散过渡到中期的晶界扩散, 在生长的最后阶段过渡到体扩散, 其中体扩散过程晶粒生长最快。

表 3 $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ ($x = 0, 0.1, 0.2, 0.3$) 在不同烧结过程中的活化能值 (kJ/mol)

Table 3 Activation energy values (kJ/mol) of $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ ($x = 0, 0.1, 0.2, 0.3$) in the different sintering processes

Ce (x) Steps	0	0.1	0.2	0.3
1	13.24	5.74	6.70	63.11
2	55.53	94.57	91.77	71.18
3	138.10	109.38	149.35	184.05

2.4 磁学性能和法拉第旋转分析

2.4.1 烧结温度和 Ce 浓度对磁学性能的影响

磁学性能分析是研究 $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ 晶体磁光性能的必要手段, 实验测试了 900 ~ 1400°C 烧结的 $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) 样品的磁滞回线, 结果如图 9 所示, 所有样品在室温下均表现出亚铁磁性。纯 YIG 在 900 ~ 1400°C 烧结后的饱和磁化强度 (M_s) 分别为 26.17, 26.65, 27.75, 27.51, 28.10 和 26.96 emu/g。随着结晶度的进一步提高和晶粒尺寸的不断增大, 比表面积减小, 可以推测非磁性表面层^[63]难以形成, 使 M_s 值增加, 但实验结果并非如此。这是由于烧结温度高于 1200°C 的烧结过程中引入的氧空位抑制了磁矩之间的超交换作用, 导致 M_s 降低。因此, 1400°C 烧结的 M_s 值低于 1100 ~ 1300°C, 但高于 900°C。图 9 (b) 显示, 当温度超过 1000°C 时, $Ce_{0.1}Y_{2.9}Fe_5O_{12}$ 的 M_s 开始下降, 然后上升, 表明在 1100 ~ 1200°C 范围内氧空位的影响占主导地位。图 9 (c) 显示, 当 $x=0.2$ 时, 在 1200°C 烧结的 $Ce_{0.2}Y_{2.8}Fe_5O_{12}$ 的 M_s 值达到最大值 27.77 emu/g, 而在 1400°C 烧结的 M_s 值却低于 900°C 时的值, 仅为 25.87 emu/g, 这意味着在 1300 ~ 1400°C 时氧空位的影响远大于结晶度的影响。图 9 (d) 显示, $Ce_{0.3}Y_{2.7}Fe_5O_{12}$ 晶体在 900 ~ 1400°C 烧结的 M_s 分别为 23.47, 24.61, 23.83, 26.74, 24.99 和 27.27 emu/g, 在 1100°C 和 1300°C 时的轻微下降也归因于氧空位的影响。

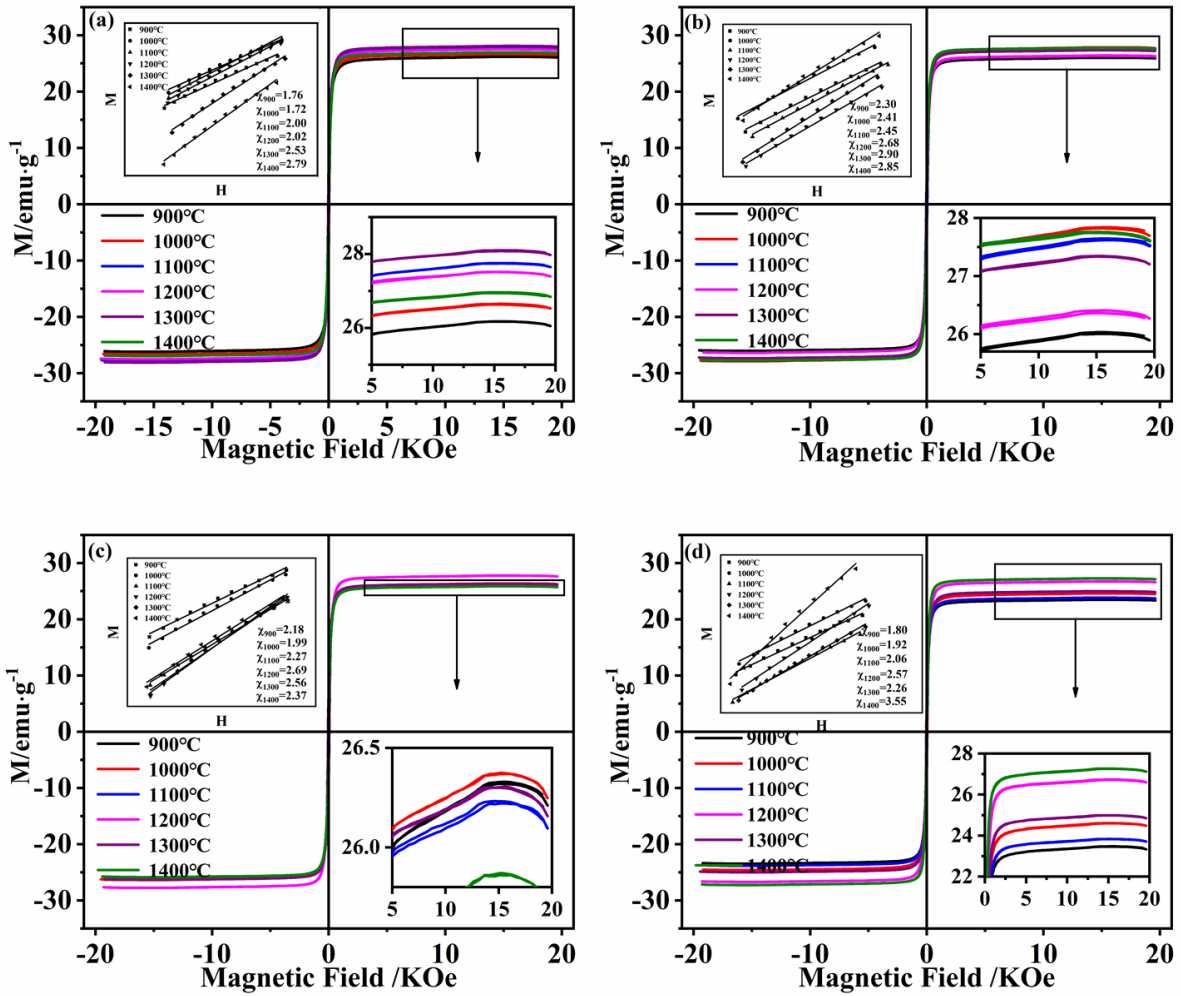


图9 900 ~ 1400 °C 烧结 6 h 的 $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) 晶体的磁滞回线: (a) $x=0$; (b) $x=0.1$; (c) $x=0.2$; (d) $x=0.3$ 。图中左上角显示了根据公式 $\chi=M/H$, 在 0 ~ 250 Oe 的初始磁化范围内拟合的 M-H 图。其中直线的斜率表示初始磁化率(χ_0)

Fig.9 Hysteresis loop of $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) crystal sintered at 900-1400 °C for 6 hours: (a) $x=0$; (b) $x=0.1$; (c) $x=0.2$; (d) $x=0.3$. The upper left corner of the figure shows the M-H plot fitted according formula $\chi=M/H$ within the initial magnetization range of 0-250 Oe. The slope of the straight line represents the initial magnetic susceptibility (χ_0)

毫无疑问, Ce 掺杂对 YIG 的 M_s 也有一定的影响。 $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) 在 900°C 烧结时的 M_s 分别为 26.17, 26.03, 26.33 和 23.47 emu/g。根据理论分析, 纯 YIG 中 Fe^{3+} 在 a 和 d 位置的磁矩是反平行排列。而 Y^{3+} 在 c 位置的磁矩为零。当非零磁矩稀土离子进入 c 位时, c 位置的磁矩将与 a 和 d 的磁矩的矢量和反平行, 因此 YIG 的总净磁矩由公式(2)^[64]确定:

$$M_s = M_c - |M_d - M_a| \quad (2)$$

式中, M_s 为 YIG 的总净磁矩; M_c , M_d 和 M_a 对应于 YIG 中的 c、a 和 d 位点的磁矩。当 Ce^{3+} ($1\mu_B$) 取代 Y^{3+} 并进入 c 位置, 将形成更多的磁矩与耦合磁矩 $|M_d - M_a|$ 反平行, 这导致 M_s 值降低。因此, M_s 随着 Ce 掺杂量的增加而减少。然而, 当 $x=0.2$ 时, M_s 值略有增加, 作为一种离子晶体, YIG 中的金属阳离子之间被更大半径的氧离子隔开从而距离较远, 因此其磁性主要来自不同亚晶格与氧离子之间的超交换相互作用。而高 Ce (x 超过 0.2) 将增强由氧离子介导的 Fe^{3+} 之间的超交换相互作用^[65], 从而增加 M_s 值。总之, 由于 Ce^{3+} 既可以降低 YIG 的净磁矩, 又可以增强 YIG 的超交换效应, 因此在特定的烧结温度下, M_s 不存在随 x 变化的特定变化规律。

图 9 的左上角显示了在 0 ~ 250 Oe 初始磁化范围内根据公式 $\chi=M/H$ 拟合的 M-H 图, 其中直线的斜率为初始磁化率 (χ_0) 的值。每个样品的饱和磁化强度 (M_s)、剩余磁化强度 (M_r)、矫顽力 (H_c)、 M_r/M_s 和基于初始磁化率 (χ_0) 以及公式: $\mu_0=\chi_0+1$ 求得的 0 ~ 250 Oe 初始磁导率 (μ_0) 值在表 4 中列出。

尽管 $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) 晶体的 μ_0 值存在局部波动, 但它们都随着烧结温度的升高而增加。值

值得注意的是, 1200 ~ 1400°C 烧结的 $\text{Ce}_{0.1}\text{Y}_{2.9}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 的 μ_0 值都相对更高。对此, 我们推测适量的 Ce 掺杂可以提高 YIG 的 μ_0 值, 但当 Ce 含量超过一定限度 (约 0.2) 时 μ_0 值没有显著增加, 可能是由于高 Ce 掺杂下 CeO_2 杂质相的存在导致。

表 4 900-1400°C 烧结 $\text{Ce}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) 的室温饱和磁化强度 (M_s)、残余磁化强度 (M_r)、矫顽力 (H_c)、 $\frac{M_r}{M_s}$ 和初始磁导率 (μ_0)

Table 4 Room temperature saturation magnetization (M_s), residual magnetization (M_r), coercive force (H_c), $\frac{M_r}{M_s}$, and initial permeability (μ_0) of $\text{Ce}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ ($x = 0, 0.1, 0.2, 0.3$) sintered at 900-1400°C

Cerium doped level (x)	Sintering Temperature (°C)	M_s (emu/g)	M_r (emu/g)	$\frac{M_r}{M_s}$	H_c (Oe)	μ_0
0	900	26.17	7.03	0.27	37.92	2.76
	1000	26.65	6.73	0.25	29.79	2.72
	1100	27.75	5.46	0.20	25.42	3.00
	1200	27.51	5.27	0.19	23.43	3.02
	1300	28.10	2.53	0.09	11.73	3.53
	1400	26.96	1.26	0.05	5.81	3.79
0.1	900	26.03	5.96	0.23	40.24	3.30
	1000	27.84	5.87	0.21	34.49	3.41
	1100	27.64	4.76	0.17	28.49	3.45
	1200	26.41	2.00	0.08	12.06	3.68
	1300	27.35	1.16	0.04	6.90	3.90
	1400	27.75	0.67	0.02	4.24	3.85
0.2	900	26.33	8.22	0.31	48.58	3.18
	1000	26.37	6.37	0.24	35.30	2.99
	1100	26.23	4.62	0.18	24.92	3.27
	1200	27.77	2.65	0.10	14.92	3.69
	1300	26.31	1.53	0.06	8.26	3.56
	1400	25.87	0.94	0.04	5.08	3.37
0.3	900	23.47	6.16	0.26	37.09	2.80
	1000	24.61	5.57	0.23	33.40	2.92
	1100	23.83	4.44	0.19	25.61	3.06
	1200	26.74	2.79	0.10	16.14	3.57
	1300	24.99	2.09	0.08	9.70	3.26
	1400	27.27	0.53	0.02	5.10	4.55

通常, 矫顽力 (H_c) 值用于表示材料易于被磁化的程度。根据表 4 中 H_c 的结果, 在任一 Ce 掺杂量 x 下, $\text{Ce}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) 的 H_c 随着烧结温度的升高而持续降低。在 900°C 时, 矫顽力首先从 37.92 Oe 增加到 48.58 Oe, 平均晶粒尺寸相应地从 257 nm 增加到 297 nm。然而, 随着晶粒尺寸进一步增加到 314nm, 矫顽力降低到 37.09Oe。磁性陶瓷颗粒的矫顽力与其尺寸密切相关, 这是由于材料结构从单畴区域向多畴区域转变^[66]。由此推断, 900°C 烧结的 $\text{Ce}_{0.2}\text{Y}_{2.8}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 从单畴过渡到多畴的临界尺寸为 297nm。单畴和多畴区域中矫顽力的尺寸依赖性可以通过以下方程^[67]近似表达:

$$H_c = g - \frac{h}{D^2} \text{ (单畴区域)} \quad (3)$$

$$H_c = a + \frac{b}{D} \text{ (多畴区域)} \quad (4)$$

式中 g, h, a, b 都是常数。在 1000 ~ 1100°C 时, H_c 值随 Ce 含量的变化与 900°C 时相似。因此, $\text{Ce}_{0.2}\text{Y}_{2.8}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 在 1000°C 烧结时的临界尺寸为 312nm, 在 1100°C 烧结的 $\text{Ce}_{0.1}\text{Y}_{2.9}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 的临界尺寸为 485nm。对 1200 ~ 1400°C, H_c 值总体上随着 x 的增加而降低, 表明当烧结温度超过 1200°C 时, $\text{Ce}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) 表现出多畴结构。 H_c 在 $x=0.3$ 处的轻微增加可能是由于在高 Ce 掺杂下在晶界处形成 CeO_2 的钉扎位点, 使得磁畴难以转动增加了 H_c 。

从上面的 SEM 分析可知, 当温度为 1200 ~ 1300 °C 时, $\text{Ce}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 晶粒形貌从非均匀柱状晶粒转变为等轴晶粒, 晶粒形貌接近完美。这导致晶粒形状各向异性、退磁能力和内应力逐渐降低, 从而 H_c 值降低。晶粒形状的各向异性也可以通过矩形因子 $\frac{M_r}{M_s}$ ^[68] 的值来表征, 如表

4 所示 $\text{Ce}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) 的 $\frac{M_r}{M_s}$ 值随着烧结温度的升高而逐渐减小, 表明晶粒的各向异性随着烧结温度升高而逐渐降低。

相较于传统溶胶-凝胶法, 本文所制备的 $\text{Ce}_{0.1}\text{Y}_{2.9}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 的 μ_0 值达到 3.68 ~ 3.90, 远高于普通的溶胶-凝胶法为 1.9555^[69]。通过优化的溶胶-凝胶法制备的 YIG 晶体的饱和磁化强度、矫顽力和初始磁导率都表现出一定的优势。

2.4.2 烧结温度和 Ce 浓度对法拉第旋转的影响

YIG 作为一种在通信频带中具有巨大法拉第旋转特性的铁氧体材料, 其法拉第旋转性能备受关注。重要的是, Ce^{3+} 掺杂引起的增强的超交换效应可以增强 Ce^{3+} 和 Fe^{3+} 激发态轨道之间的耦合, 导致自旋轨道分裂增加和介电常数张量中非对称分量增加, 磁光法拉第旋转角可以用下式^[64]表示:

$$\theta_F = \frac{-\omega}{2c} \sqrt{\frac{\mu}{\epsilon_0}} \epsilon_1 Z \quad (5)$$

其中 θ_F 是法拉第角; ω 为圆偏振光角频率; c 是光速; μ 是材料的磁导率; ϵ_0 是自由空间的介电常数; Z 是圆偏振光穿过材料的距离; ϵ_1 是材料的介电常数张量的非对称分量。本文优化的溶胶凝胶法、传统溶胶凝胶法和固相烧结法获得的 μ_0 值统计于表 5 中, 可以看出本文在 1200 ~ 1300 °C 烧结的 $\text{Ce}_{0.1}\text{Y}_{2.9}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 晶体获得了较高的 μ_0 值。综合节能和工艺可行性考虑, 采用溶胶凝胶法在 1200 ~ 1300°C 烧结更有可能使 $\text{Ce}_{0.1}\text{Y}_{2.9}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 晶体实现更高的法拉第旋转。因此, 基于该优化烧结工艺的多晶 Ce:YIG 粉体材料有望用于微波频段器件, 如隔离器、环

形器和移相器等。

表 5 优化的溶胶凝胶法、传统溶胶凝胶法和固相法制备

$Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ 的磁学参数

Table 5 Optimization of magnetic parameters of $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ prepared by sol-gel method, traditional sol-gel method and solid phase method

Method	M_s (emu/g)	H_c (Oe)	μ_0	Reference
Optimized sol gel method	28.10	5.81	3.79	This work
Traditional sol gel method	12.71	294.31	1.9555	69
Solid State Method	24.33	33.816	-	51

3 结论

采用优化的溶胶-凝胶法在 900 ~ 1400℃ 条件下成功制备了 $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ ($x=0, 0.1, 0.2, 0.3$) 磁光晶体。研究了 Ce 掺杂和烧结温度对晶体结构和磁学性能的影响。TG-DSC 分析表明了预烧的必要性以及合成 Ce: YIG 的最低温度为 890℃。XRD 结果表明在 900 ~ 1400℃ 范围内, 随着烧结温度的升高, 晶粒逐渐趋于等轴晶, 晶格常数相应地逐渐降低。高 Ce 掺杂下 (x 约为 0.2) 出现 CeO_2 杂质相, 且随 Ce 的掺入 YIG 晶格开始膨胀。SEM 分析表明, 提高 Ce 浓度和烧结温度都会导致平均晶粒尺寸增加。所有晶体在室温下均表现出亚铁磁性, 随着晶粒结构的优化, $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ 的矫顽力 H_c 随着烧结温度的升高而降低, 在 1400℃ 时达到最低值。在 1200 ~ 1300℃ 烧结的 $Ce_{0.1}Y_{2.9}Fe_5O_{12}$ 具有相对较高的初始磁导率 μ_0 值为 3.68 ~ 3.90, 该值为设计基于大法拉第旋转角的 YIG 基微波器件提供了可行的依据和参考。

参考文献 References

[1] E. Baños-López, F. Sánchez-De Jesús, C. A. Cortés-Escobedo et al, *Materials*[J], 2018, 11(9):1652.
[2] Y. J. Siao, X.D. Qi, *J. Alloys Compd*[J], 2017, 691:672.
[3] S. M. Zanjani, M. C. Onbasli, *AIP Adv*[J], 2019, 9(3):035024.
[4] K. Saker, M. Lahoubi, S. Pu, *Opt. Quantum Electron*[J], 2021, 53(6):334.
[5] F. N. Shafiee, Ra. S. Azis, N. H. Abdullah et al, *J. Aust. Ceram. Soc*[J], 2020, 56 (3):1097.
[6] R. Fopase, V. Saxena, P. Seale et al, *Mater. Sci. Eng. C*[J], 2020, 116:

111163.
[7] Z. Jin, H. Zhou, X. Zhanget al, *ACS Mater. Lett*[J], 2023, 5(3): 803.
[8] C. J. Firby, A.Y. Elezzabi, *Appl. Phys. Lett*[J], 2016, 108(5):051111.
[9] K. Saker, T. Bouchemat, M. Lahoubi et al, *J Phys Conf Ser*[J], 2019, 1310(1): 012019.
[10] P. Dulal, A. D. Block, T. E. Gageet al, *ACS Photonics*[J], 2016, 3(10): 1818.
[11] B. Hekmatnia, M. Naser-Moghadasi, M. Khatir, *Opt. Quantum Electron*[J], 2020, 52(1):9.
[12] B. K. Nayak, E. Buks, *J. Appl. Phys*[J], 2022, 132(19): 193905.
[13] A. N. Shaposhnikov, A. R. Prokopov, V. N. Berzhansky et al, *Opt. Mater*[J], 2016, 52: 21.
[14] S. Higuchi, Y. Furukawa, S. Takekawa et al, *Sens. Actuator A Phys*[J], 2003, 105(3): 293.
[15] H. Eftekhari, M.M. Tehranchi, *Optik*[J], 2020, 207: 163830.
[16] A. Frej, I. Razdolski, A. Maziewskiet al, *Phys. Rev. B*[J], 2023, 107(13): 134405.
[17] P. S. Carter, *IEEE Trans Microw Theory Tech*[J], 1961, 9(3): 252.
[18] S. Du, Q. Yang, M. Wang et al, *IEEE Trans. Magn*[J], 2022, 58(8): 1.
[19] D. Yan, H. Chen, Q. Chen et al, *Opt. Laser Technol*[J], 2023, 161: 109193.
[20] D. Zhang, W. Song, G. Chai, *J. Phys. D*[J], 2017, 50(20): 205003.
[21] L. Duan, D. Yang, Z. Wang et al, *J. Alloys Compd*[J], 2023, 966: 171527.
[22] S. Higuchi, Y. Takekawa, O. Kitamura, *Jpn. J. Appl. Phys*[J], 1999, 38(7R): 4122.
[23] M. Imamura, H. Asada, R. Nishimura et al, *J. Magn. Magn. Mater*[J], 2022, 550: 169081.
[24] A. R. Will-Cole, J. L. Hart, V. Lauteret et al, *Phys. Rev. Mater*[J], 2023, 7(5): 054411.
[25] A. Ikesue, Y. L. Aung, *J. Eur. Ceram. Soc*[J], 2022, 42(14): 6762.
[26] Y. L. Aung, A. Ikesue, T. Watanabe et al, *J. Alloys Compd*[J], 2019, 811: 152059.
[27] Y. Zhang, C.T. Wang, X. Liang et al, *J. Alloys Compd*[J], 2017, 703: 591.
[28] T. Bayaraa, C. Xu, D. Campbell et al, *Phys. Rev. B*[J], 2019, 100(21): 214412.
[29] H. X. Zhang, S. Y. Zhu, J. Zhanet al, *Chin. Phys. Lett*[J], 2023, 40(12): 127801.
[30] J. Zheng, Q. Fu, X. Chen et al, *J. Mater. Sci. Mater. Electron*[J], 2021, 32: 290.

- [31] A. Kord, D. L. Sounas, A. Alu, *Proc. IEEE*[J], 2020, 108(10): 1728.
- [32] A. Ikesue, *J. Am. Ceram. Soc*[J], 2018, 101(11): 5120.
- [33] H. Aida, R. Watanuki, A. Ito et al, *Mater. Lett*[J], 2020, 276: 128228.
- [34] P. Cao Van, S. Surabhi, V. Dongquoc et al, *Appl. Surf. Sci*[J], 2018, 435: 377.
- [35] C. Kang, T. Wang, C. Jianget al, *J. Alloys Compd*[J], 2021, 865: 158903.
- [36] M. Gharibshahi, *Ceram. Int*[J], 2019, 45(18): 24437.
- [37] R. Peña-Garcia, Y. Guerra, D. M. Buitrago et al, *Ceram. Int*[J], 2018, 44(10): 11314.
- [38] H. Li, *Ceram. Int*[J], 2020, 46(10): 15408.
- [39] N. P. Duong, D. T. Thuy Nguyet, T. T. Loan et al, *Ceram. Int*[J], 2021, 47(5): 6442.
- [40] M. J. Kim, H. J. Ok, Y. Son et al, *Mater. Charact*[J], 2022, 194: 112266.
- [41] M. A. Musa, R. a. S. Azis, N. H. Osman et al, *Results Phys*[J], 2017, 7: 1135.
- [42] J. Liu, Q. Jin, S. Wang et al, *Mater. Chem. Phys*[J], 2018, 208: 169.
- [43] M. Basavad, H. Shokrollahi, H. Ahmadvand et al, *Ceram. Int*[J], 2020, 46(8): 12015.
- [44] H. Yu, L. Zeng, C. Luet et al, *Mater. Charact*[J], 2011, 62(4): 378.
- [45] A. V. Anupama, R. Kumar, H. K. Choudhary et al, *Ceram. Int*[J], 2018, 44(3): 3024.
- [46] M. Mansournia, M. Orae, *J. Rare Earths*[J], 2018, 36(12): 1292.
- [47] Majid N. Akhtar, A. Bakar Sulong, Muhammad A. Khan et al, *J. Magn. Magn. Mater*[J], 2016, 401: 425.
- [48] A. Spivakov, C. R. Lin, C. Y. Tsai et al, *Nanoscale Res. Lett*[J], 2022, 17(1): 70.
- [49] M. Basavad, H. Shokrollahi, M. Golkari, *Ceram. Int*[J], 2020, 46(12): 20144.
- [50] A. Z. Arsad, N. B. Ibrahim, *J. Magn. Magn. Mater*[J], 2016, 410: 128.
- [51] E. Baños López, C. A. Cortés Escobedo, F. Sánchez De Jesús et al, *J. Alloys Compd*[J], 2018, 730: 127.
- [52] M. A. Janifer, C. J. Prabagar, M. M. L. Sonia et al, *J. Supercond. Nov. Magn*[J], 2022, 35(10): 2987.
- [53] K. Wojciechowski, R. Lach, M. Stanet et al, *Materials*[J], 2021, 14(23): 7316.
- [54] A. B. Bhosale, S. B. Somvanshi, V. D. Murumkaret et al, *Ceram. Int*[J], 2020, 46(10): 15372.
- [55] P. Vaqueiro, M. A. López Quintela, *Chem. Mat*[J], 1997, 9(12): 2836.
- [56] 欧阳林峰, 杨晓娇, 李小磊, 等. 溶胶-凝胶法合成导电 SrVO₃ 粉末 (英文) [J]. *稀有金属材料与工程*, 2022, 51 (06): 2039.
- [57] P. Ayyub, V. R. Palkar, S. Chattopadhyay et al, *Phys. Rev. B*[J], 1995, 51(9): 6135.
- [58] A. Ikesue, Y. L. Aung, R. Yasuhara et al, *J. Aust. Ceram. Soc*[J], 2020, 40(15): 6073.
- [59] B. Chacko, A. B. Thirumalasetty, V. Vijayakanthet et al, *ACS Omega*[J], 2023, 8 (22): 19367.
- [60] R. L. Coble, *J. Appl. Phys*[J], 1961, 32(5): 787.
- [61] M. Jarcho, C. H. Bolen, M. B. Thomas et al, *J. Mater. Sci*[J], 1976, 11: 2027.
- [62] 刘佳男, 马伟民, 马雷, 等. Gd₂Ti₂O₇:Ce 粒子的表观活化能及发光性能 [J]. *稀有金属材料与工程*, 2016, 45(03): 802.
- [63] Z. Cheng, H. Yang, L. Yuet et al, *J. Mater. Sci. Mater. Electron*[J], 2008, 19: 442.
- [64] J. Rongjin, Y. Wenhui, F. Caixian et al, *J. Mater. Chem. C*[J], 2013, 1(9): 1763.
- [65] N. B. Ibrahim, A. Z. Arsad, *J. Magn. Magn. Mater*[J], 2016, 401: 572.
- [66] E. C. Stoner, E. P. Wohlfarth, *IEEE Trans. Magn*[J], 1991, 27(4): 3475.
- [67] Cullity B D, Graham C D. Introduction to magnetic materials[M]. John Wiley & Sons, 2011.
- [68] S. M. Masoudpanah, S. A. Seyyed Ebrahimi, *J. Magn. Magn. Mater*[J], 2011, 323(21): 2643.
- [69] M. I. Khan, M. Waqas, M. A. Naeem et al, *Ceram. Int*[J], 2020, 46 (17): 27318

Preparation and magnetic properties of $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ polycrystal with high magneto-optical properties

Luan Lijun, Xu Changyan, Zhang Ziqiu, Xie Haichen

(Chang'an University, Xi'an, 710064, China)

Abstract: The garnet type polycrystal $Ce_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ doped with Ce^{3+} was prepared by an optimized sol-gel method ($x=0,0.1,0.2,0.3$; Ce:YIG), the optimal solution is to obtain crystals with no derived impurities and high magneto-optical properties by pre-sintering and sintering in a wide temperature range of 900-1400 °C. Thermogravimetric analysis was used to determine the synthesis temperature of the crystal at 890 °C. XRD results show that the crystal lattice constant varies from 12.37241 Å to 12.4121 Å, and the impurity phase CeO_2 appears when $Ce>0.2$. SEM analysis shows that the grain size of Ce:YIG increases with the increase of sintering temperature and Ce^{3+} content, and its size distribution ranges from 0.257 to 6.52µm, which is the maximum size of YIG crystal obtained at present. All Ce: YIG samples were ferromagnetic at room temperature, with saturation magnetization varying from 23.47 to 28.10emu/g. The permeability of $Ce_{0.1}Y_{2.9}Fe_5O_{12}$ crystal sintered at 1200~1300°C is as high as 3.68~3.90. According to the relationship between Faraday rotation Angle and permeability, the polycrystal sintered in this temperature range is likely to obtain the best Faraday rotation performance.

Key words: Sol-gel method; Yttrium iron garnet; Sintering temperature; Magnetic properties

Corresponding author: Luan Lijun, female, born in 1976, doctoral, associate professor, School of Materials Science and Engineering, Chang'an University, Xi'an, Shaanxi 710061, telephone: 13309278863, email: nmlj050@chd.edu.cn