

INVESTIGATION OF ELECTROMAGNETIC WAVE ABSORPTION PROPERTIES OF Fe/La_{1.5}Sr_{0.5}NiO₄ COMPOSITES

Nguyen Thi Xuan¹, Le My Phuong¹, Chu Thi Anh Xuan^{2*}

¹Vietnam Maritime University, ²TNU - University of Sciences

ARTICLE INFO		ABSTRACT
Received:	31/01/2024	In this paper, we propose an effective method to improve the broadband absorption performance of composite materials based on Fe magnetic metal nanoparticles. The capability of absorbing electromagnetic waves in the frequency range from 2-18 GHz of Fe-xLa _{1.5} Sr _{0.5} NiO ₄ (Fe-xLSNO) composites is systematically investigated. Experimental results confirm that Fe-xLSNO composites not only maintain good broadband absorption (EAB) but also improve absorption performance. The Fe-xLSNO composites with LSNO replacement concentration up to 50% gives the lowest reflection loss value at the resonance peak reaching $RL = -19.62$ dB at $f_R = 9.84$ GHz and EAB = 10.56 GHz. On the other hand, the results also show the effect of shifting the resonance peak toward the high frequency region with increasing LSNO concentration. Our results contribute to the search for materials that absorption electromagnetic waves materials in the GHz frequency range based on the combination of magnetic metal nanoparticles with dielectrics.
Revised:	23/02/2024	
Published:	23/02/2024	
KEYWORDS		
Electromagnetic Wave		
Absorption		
Composite		
Reflection Loss		
Impedance		
Magnetic metal		

NGHIÊN CỨU TÍNH CHẤT HẤP THỤ SÓNG ĐIỆN TỪ CỦA VẬT LIỆU TỔ HỢP Fe/La_{1.5}Sr_{0.5}NiO₄

Nguyễn Thị Xuân¹, Lê Mỹ Phương¹, Chu Thị Anh Xuân^{2*}

¹Trường Đại học Hàng hải Việt Nam, ²Trường Đại học Khoa học - ĐH Thái Nguyên

THÔNG TIN BÀI BÁO		TÓM TẮT
Ngày nhận bài:	31/01/2024	Trong bài báo này, chúng tôi đề xuất một phương pháp hiệu quả nhằm nâng cao hiệu suất hấp thụ băng thông rộng của vật liệu tổ hợp dựa trên các hạt nano kim loại từ tính Fe. Khả năng hấp thụ sóng điện từ trong vùng tần số từ 2-18 GHz của các mẫu tổ hợp Fe-x La _{1.5} Sr _{0.5} NiO ₄ (Fe-xLSNO) được nghiên cứu một cách hệ thống. Kết quả thực nghiệm xác nhận rằng các mẫu tổ hợp Fe-xLSNO không những duy trì tốt hiệu năng hấp thụ băng thông rộng (EAB) mà còn được cải thiện về hiệu suất hấp thụ. Mẫu tổ hợp Fe-xLSNO với nồng độ thay thế LSNO lên đến 50% cho giá trị độ tổn hao phản xạ thấp nhất tại đỉnh cộng hưởng đạt $RL = -19,62$ dB tại $f_R = 9,84$ GHz và EAB = 10,56 GHz. Mặt khác, kết quả cũng cho thấy hiệu ứng dịch đỉnh cộng hưởng về phía vùng tần số cao theo nồng độ LSNO tăng dần. Nghiên cứu này của chúng tôi góp phần vào việc tìm kiếm các vật liệu hấp thụ sóng điện từ vùng tần số GHz dựa trên việc tổ hợp các hạt nano kim loại từ tính với các chất điện môi điển hình.
Ngày hoàn thiện:	23/02/2024	
Ngày đăng:	23/02/2024	
TỪ KHÓA		
Hấp thụ sóng điện từ		
Vật liệu tổ hợp		
Tổn hao phản xạ		
Trở kháng		
Kim loại từ tính		

DOI: <https://doi.org/10.34238/tnu-jst.9664>

* Corresponding author. Email: xuancta@tnus.edu.vn

1. Giới thiệu

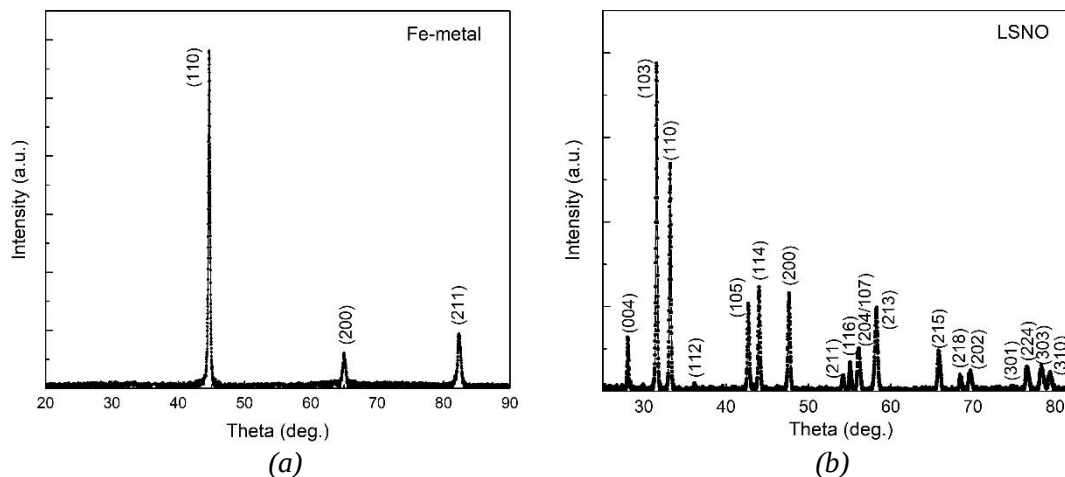
Cùng với sự phát triển vượt bậc của hệ thống thiết bị điện tử, công nghệ truyền thông không dây phục vụ cho các nhiệm vụ thông tin liên lạc trong dân sự và quân sự, vấn đề ô nhiễm bức xạ điện từ với những tác hại rất lớn của chúng trở nên đặc biệt nghiêm trọng [1] – [3]. Chính vì vậy, việc nghiên cứu và phát triển các vật liệu hấp thụ sóng điện từ (EMW) với hiệu suất cao và dải tần số hấp thụ rộng là rất cần thiết. Các vật liệu hấp thụ hoàn hảo sóng điện từ cần phải có các đặc tính điển hình như hấp thụ mạnh sóng điện từ, dải tần số hấp thụ rộng, các lớp hấp thụ mỏng và có trọng lượng nhẹ [4]. Hiện nay, các chất hấp thụ sóng điện từ được phân chia thành ba loại theo các cơ chế tổn hao chính xảy ra bao gồm (i) tổn hao dẫn, (ii) tổn hao từ tính và (iii) tổn hao điện môi. Theo đó, các vật liệu hấp thụ tổn hao dẫn dựa trên vật liệu carbon và vật liệu tổ hợp nền carbon là đối tượng nghiên cứu phổ biến với các ưu điểm như độ tổn hao dẫn điện cao, độ phân cực mạnh và mật độ thấp. Tuy nhiên, chúng có đặc tính phối hợp trở kháng kém và độ phản xạ cao, vì vậy sóng điện từ rất khó xâm nhập vào trong môi trường vật liệu và gây ra hiện tượng phản xạ mạnh sóng điện từ tại bề mặt thứ nhất của các lớp hấp thụ, dẫn đến hiện tượng ô nhiễm thứ cấp EMW trong không gian [5]. Mặt khác, các chất hấp thụ điện môi thường thể hiện các đặc tính phối hợp trở kháng tốt, độ ổn định hóa học cao, nhưng khả năng tổn hao năng lượng từ của chúng thường rất yếu [6]. Các nghiên cứu [3], [7], [8] cho thấy các vật liệu kim loại từ tính, điển hình là vật liệu kim loại Fe dạng hạt, là đối tượng tiềm năng trong phát triển các chất hấp thụ EMW với các đặc tính vượt trội như hằng số điện môi và độ từ thẩm cao, độ tổn hao từ lớn, độ ổn định nhiệt tốt, nhiệt độ Curie và tần số giới hạn Snoek cao. Tuy nhiên, vật liệu kim loại Fe thường thể hiện hiệu ứng phù hợp trở kháng kém, dễ bị oxy hóa bởi môi trường và hiệu ứng “skin” mạnh, dẫn đến hiệu suất hấp thụ EMW chưa cao. Nhìn chung, các chất hấp thụ sóng điện từ dựa trên các hạt nano kim loại từ tính chủ yếu liên quan đến tính dị hướng từ bề mặt và tổn hao dòng xoáy thông qua hiệu ứng giảm kích thước hạt. Trong nghiên cứu của R. Che và các cộng sự [1], mẫu hấp thụ dựa trên các hạt nano Fe nguyên chất gần như không có khả năng hấp thụ sóng điện từ trong dải tần số từ 2-18 GHz và được cho là do điện trở thấp và hiệu ứng skin mạnh tại tần số cao. Tuy nhiên, khi tổ hợp các hạt nano Fe với CNTs, độ tổn hao phản xạ của các mẫu giảm xuống dưới -5 dB, tương ứng với độ hấp thụ lên trên 70% năng lượng sóng điện từ. Ngoài ra, nghiên cứu của nhóm Q. Liu [8] cho thấy vật liệu nano Fe dạng sợi thể hiện tính chất hấp thụ sóng điện từ khá tốt với độ tổn hao phản xạ thấp nhất đạt cỡ -17,8 dB tại 9,9 GHz cho mẫu có độ dày 2 mm. Nghiên cứu này cũng chỉ ra hiệu năng hấp thụ băng thông rộng với $RL < -10$ dB trong một dải tần số từ 7,3-11,7 GHz. Trong một nghiên cứu khác [9], vật liệu tổ hợp với 72% khối lượng các hạt carbonyl sắt (CIP) trong chất mang polymer (PDMS) thể hiện hiệu suất hấp thụ băng thông rộng (EAB ~ 6,8 GHz) với giá trị RL thấp nhất đạt đến -27 dB tại 14,6 GHz cho lớp hấp thụ dày 1,5 mm. Để cải thiện khả năng hấp thụ sóng điện từ của vật liệu, có hai hướng nghiên cứu được đưa ra: một là nâng cao hiệu suất hấp thụ EMW bằng các thiết kế cấu trúc, hình dạng cho các mẫu hấp thụ; hai là tăng cường tổn hao năng lượng EMW theo nhiều cơ chế khác nhau trên cơ sở tổ hợp các thành phần vật liệu điện môi, từ tính và do đó tối ưu khả năng phù hợp trở kháng của chúng. $\text{La}_{1,5}\text{Sr}_{0,5}\text{NiO}_4$ là vật liệu điện môi điển hình với hằng số điện môi khổng lồ ($\epsilon_r > 10^7$) và là vật liệu thể hiện tính chất từ giống như một chất siêu thuận từ có độ từ thẩm rất nhỏ ($\mu_r = 1,006$) [8]. Các đặc trưng này cho thấy LSNO hầu như không làm tổn hao năng lượng từ trường của sóng điện từ do khoảng cách rất lớn giữa giá trị độ từ thẩm và hằng số điện môi đến sự không thỏa mãn điều kiện phù hợp trở kháng của vật liệu. Như đã biết, vật liệu tổ hợp giữa vật liệu từ tính và điện môi sẽ làm tăng cường hiệu ứng phù hợp trở kháng. Do đó, LSNO thường được sử dụng để kết hợp với các vật liệu từ tính để cải thiện khả năng phù hợp trở kháng bằng cách tăng cường độ tổn hao từ tính. Trong nghiên cứu này, chúng tôi đề xuất một phương pháp tổng hợp đơn giản để thu được vật liệu tổ hợp dựa trên các hạt nano kim loại từ tính Fe và vật liệu điện môi điển hình $\text{La}_{1,5}\text{Sr}_{0,5}\text{NiO}_4$. Điều đáng chú ý là chưa có báo cáo nào về tính chất hấp thụ sóng điện từ của vật liệu tổ hợp dựa trên Fe-xLSNO. Tính chất hấp thụ sóng điện từ đã được

nghiên cứu một cách có hệ thống ở dải tần số từ 2-18 GHz và độ dày các mẫu hấp thụ là 3 mm. Cơ chế tổn hao năng lượng sóng điện từ của vật liệu tổ hợp cũng được nghiên cứu chi tiết và có hệ thống.

2. Thực nghiệm

Vật liệu kim loại từ tính Fe được chúng tôi chế tạo từ tiền chất là bột kim loại Fe có kích thước hạt cỡ 10 μm (Sigma-Aldrich) bằng phương pháp nghiền bi năng lượng cao trong dung môi cồn tuyệt đối sử dụng máy nghiền bi Retsch MM200 (CHLB Đức) với tốc độ nghiền 250 vòng/phút và tỷ lệ khối lượng bi/bột là 3/1 trong 24h. Vật liệu điện môi $\text{La}_{1.5}\text{Sr}_{0.5}\text{NiO}_4$ được tổng hợp theo phương pháp phản ứng pha rắn với các tiền chất ban đầu là các oxit kim loại La_2O_3 , SrO, NiO (Sigma-Aldrich) có độ sạch trên 99,9%. Các tiền chất ban đầu được nghiền trộn trong dung môi cồn tuyệt đối trong 2h sử dụng máy nghiền bi, sau đó ép thành viên và thiêu kết tại nhiệt độ 1100°C/10h. Quá trình này được lặp lại hai lần, sản phẩm thu được là mẫu gốm tiếp tục được phá vỡ và nghiền trộn trong 1h để thu được vật liệu điện môi $\text{La}_{1.5}\text{Sr}_{0.5}\text{NiO}_4$ dạng bột. Phép đo nhiễu xạ tia X (XRD) và hình ảnh điện tử quét (SEM) được thực hiện trên hệ đo D2 Phase Bruker với bức xạ Cu- K_α và hệ kính hiển vi điện tử quét Hitachi S-4800 để xác định cấu trúc, chất lượng pha, hình thái và kích thước hạt của các vật liệu chế tạo. Phép đo đường cong từ trễ $M(H)$ được tiến hành trên hệ đo từ kế mẫu rung VSM tại nhiệt độ phòng trong từ trường lên đến 11 kOe. Để chuẩn bị các mẫu hấp thụ tổ hợp Fe-xLSNO, hai thành phần vật liệu điện môi LSNO và hạt nano Fe được cân và trộn vật lý theo tỷ lệ phần trăm thể tích của LSNO tăng dần với $x = 0, 10, 30$, và 50% (kí hiệu mẫu tương ứng là M0, M1, M3 và M5), sau đó các hỗn hợp này phân tán đều trong chất mang paraffin theo tỷ lệ thể tích 40:60 và ép thành viên dạng xuyên có đường kính ngoài và trong lần lượt là 7 mm và 3 mm. Phép đo tính chất hấp thụ sóng điện từ của các mẫu tổ hợp được tiến hành trên hệ đo phân tích mạng vector (VNA, PNA-X N5242A, Keysight) trong dải tần số từ 2-18 GHz. Số liệu thực nghiệm thu được là bộ tham số S (S-parameters: S_{11} , S_{12} , S_{21} và S_{22}) được phân tích và xử lý sử dụng phương pháp Nicolson-Ross-Weir (NRW) để thu được hằng số điện môi và độ từ thẩm của vật liệu. Cuối cùng, các đại lượng sử dụng để đánh giá khả năng hấp thụ sóng điện từ của các mẫu hấp thụ tổ hợp Fe-xLSNO như độ tổn hao phản xạ RL (Reflection Loss) và độ hấp thụ tương đối (%) được tính toán bằng lý thuyết đường truyền.

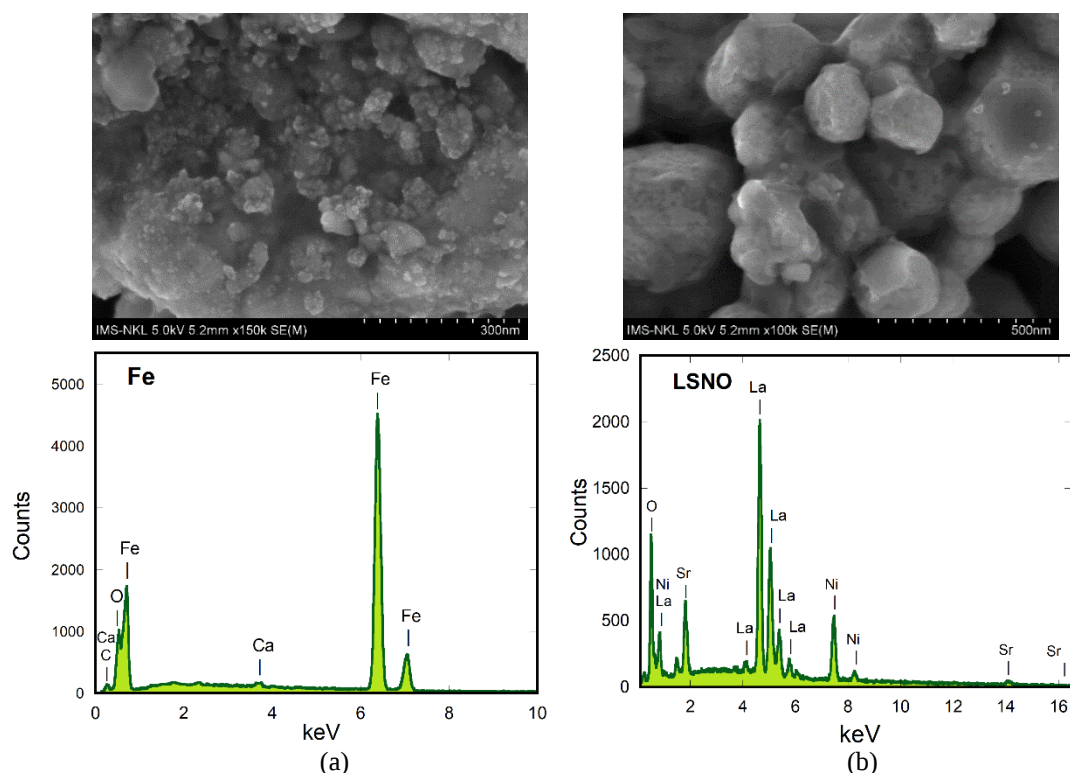
3. Kết quả và thảo luận



Hình 1. Giản đồ nhiễu xạ tia X (XRD) của vật liệu (a) điện môi $\text{La}_{1.5}\text{Sr}_{0.5}\text{NiO}_4$ và (b) kim loại từ tính Fe

Bột kim loại sắt (Fe) có kích thước hạt cỡ 10 μm (Sigma-Aldrich) được sử dụng làm tiền chất ban đầu. Chất lượng pha, tính chất từ (như đường cong từ trễ, độ từ hóa bão hòa M_s và lực kháng từ H_C), cấu trúc tinh thể và kích thước hạt của vật liệu bột thường xuyên được kiểm tra trong toàn

bộ quá trình nghiền bi năng lượng cao theo thời gian (t). Kích thước hạt trung bình của vật liệu ban đầu giảm khá mạnh trong 10 giờ nghiền ban đầu và hầu như không thay đổi khi thời gian nghiền $t > 10$ giờ. Ngoài ra, chất lượng của các hạt kim loại từ tính bắt đầu suy giảm do quá trình oxi hóa trong môi trường không khí và hiện tượng nhiễm tạp từ bi và cối nghiền khi $t > 10$ giờ, vì vậy chúng tôi lựa chọn bột kim loại từ tính Fe sau 10 giờ nghiền cho các nghiên cứu tiếp theo. Chi tiết quá trình nghiền bi và kết quả khảo sát theo thời gian nghiền không được trình bày trong báo cáo này. Hình 1 trình bày giản đồ nhiễu xạ tia X (XRD) của các mẫu Fe nghiền trong 10h (Hình 1a) và mẫu điện môi $\text{La}_{1,5}\text{Sr}_{0,5}\text{NiO}_4$ (Hình 1b). Kết quả cho thấy vật liệu kim loại từ tính Fe thể hiện tính chất đơn pha có cấu trúc tinh thể lập phương tâm khối với sự xuất hiện của các đỉnh cực đại nhiễu xạ đặc trưng tại $2\theta = 44,67^\circ$; 65° và $82,33^\circ$, tương ứng với các mặt phẳng mạng có chỉ số Miller lần lượt là (110); (200) và (211) (theo thẻ chuẩn JCPDS số 87-0722 của Fe) [10]. Kích thước hạt tinh thể của Fe đạt cỡ 18 nm được tính toán theo công thức Scherrer, $D = k\lambda/\beta\cos\theta$ (với k là thừa số hình dạng, λ là bước sóng của bức xạ tia X, β là độ rộng bán phổ tại góc nhiễu xạ θ). Mặt khác, vật liệu điện môi LSNO kết tinh đơn pha cấu trúc tinh thể tứ giác (K_2NiF_4) thuộc nhóm đối xứng không gian $I4/mmm$ [11] và không có bất kỳ pha tạp chất nào được quan sát thấy, như Hình 1b. Các mặt phẳng tinh thể tương ứng với sự xuất hiện của các đỉnh nhiễu xạ cực đại được ghi nhận theo thẻ chuẩn JCPDS số 32-1241 lần lượt là (004), (103), (110), (112), (006), (114), (200), (211), (116), (107), (204), (213), (215), (218), (220), (301), (224), (303) và (310). Các hằng số mạng và thể tích ô cơ sở của LSNO được tính toán theo phương pháp Rietveld và có giá trị lần lượt là $a = b = 3,83 \text{ \AA}$, $c = 12,74 \text{ \AA}$ và $V = 186,88 \text{ \AA}^3$, kết quả tính toán của chúng tôi là phù hợp với các báo cáo trước đó [12]. Cần lưu ý rằng, giá trị kích thước hạt được tính toán thông qua số liệu XRD phản ánh kích thước hạt tinh thể bên trong mỗi hạt chứ không phải là kích thước hạt thực và do đó chúng thường nhỏ hơn kích thước hạt được quan sát trực tiếp bằng phép đo kính hiển vi điện tử quét (SEM).



Hình 2. Ảnh SEM và phổ EDX tương ứng của các mẫu (a) Fe và (b) $\text{La}_{1,5}\text{Sr}_{0,5}\text{NiO}_4$ tại T_p

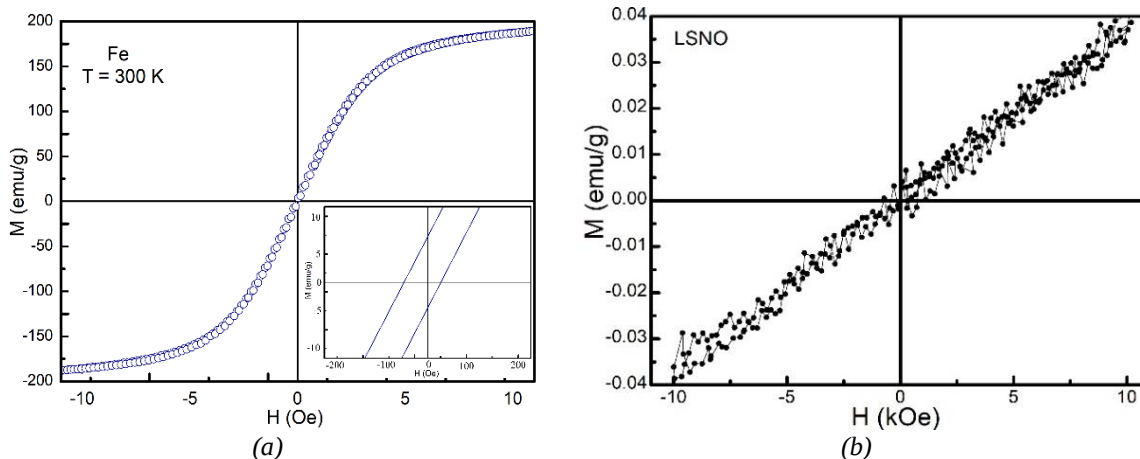
Ảnh SEM và phổ EDX của các mẫu bột Fe và LSNO được trình bày trong Hình 2, trong đó ta thấy các hạt đều có dạng hình cầu cho cả vật liệu kim loại từ tính Fe và vật liệu điện môi. Đối với bột Fe, các hạt có kích thước rất nhỏ cỡ 20 nm nằm trên bề mặt các đám hạt lớn (Hình 2a), trong khi bột LSNO có các hạt hình dạng khá đồng đều, biên hạt khá rõ ràng và kích thước lớn cỡ khoảng 150- 200 nm (Hình 2b). Phân tích EDX tương ứng cho thấy tỷ lệ phần trăm trọng lượng của nguyên tố Fe trong mẫu bột chiếm khoảng 96,67%, phần còn lại bao gồm tỷ lệ phần trăm trọng lượng của các nguyên tố O, C và Ca. Sự xuất hiện của nguyên tố O liên quan đến quá trình oxy hóa của kim loại Fe khi quá trình nghiền bi được thực hiện trong môi trường không khí. Ngoài ra, đỉnh của nguyên tố C hay Ca xuất hiện trong phổ EDX là do đế carbon gắn mẫu trong phép đo và tạp chất từ bình hoặc bi nghiền.

Để khảo sát tính chất từ của các vật liệu, các đường cong từ hóa $M(H)$ ở nhiệt độ phòng của các mẫu bột được đo trong từ trường ngoài từ -11 kOe đến 11 kOe, như chỉ ra trong Hình 3. Vật liệu điện môi LSNO thể hiện tính chất thuận từ rất rõ ràng và hầu như không quan sát thấy giá trị của độ từ dư M_R và lực kháng từ H_C (Hình 3b). Giá trị M_S của mẫu LSNO có thể được coi bằng giá trị cực đại của từ độ ở từ trường tác dụng cao nhất và được ghi nhận là $M_S \sim 0,04$ emu/g tại $H = 10$ kOe. Đường cong $M(H)$ của mẫu bột nano kim loại từ tính Fe (Hình 3a) cho thấy hiện tượng gần đến bão hòa độ từ hóa của vật liệu khi từ trường ngoài lên đến 11 kOe. Tuy nhiên, các nghiên cứu trước đây chỉ ra rằng từ trường tác dụng lên đến 11 kOe là chưa đủ để bão hòa hoàn toàn độ từ hóa của vật liệu kim loại từ tính Fe. Điều này có thể được giải thích là do hiệu ứng rối loạn spin tại bề mặt các hạt khi giảm kích thước xuống đến cỡ nanomet bằng quá trình nghiền cơ năng lượng cao [13], [14]. Độ từ hóa bão hòa M_S của mẫu Fe được xác định sử dụng định luật gần đúng bão hòa (Law of Approach to Saturation - LAS) và được biểu diễn bằng biểu thức:

$$M = M_S \left(1 - \frac{a'}{H} - \frac{b}{H^2} \right) + \chi H \quad (1)$$

Trong đó: M là từ độ; H là từ trường tác dụng; a' là độ bất đồng nhất và coi gần bằng không; b là hệ số dị hướng từ tinh thể; số hạng χH là độ cảm từ vì phân từ trường mạnh và chỉ xét đến trong phép phân tích nhiệt độ cao. Do đó, biểu thức (1) được viết lại như sau:

$$M = M_S \left(1 - \frac{b}{H^2} \right) \quad (2)$$



Hình 3. Đường cong từ hóa $M(H)$ của các mẫu (a) Fe và (b) $La_{1,5}Sr_{0,5}NiO_4$

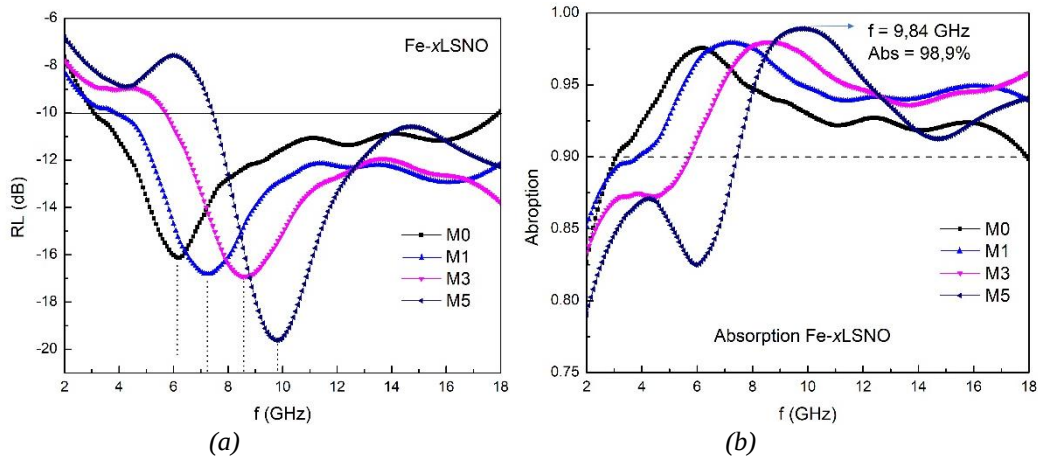
Trong nghiên cứu này, phương trình (2) được sử dụng để làm khớp số liệu $M(H)$ trong từ trường áp dụng từ 5-11 kOe của mẫu bột nano kim loại Fe trên Hình 3a. Kết quả thu được giá trị từ độ bão hòa của các hạt nano Fe là $M_S \sim 185$ emu/g. Ngoài ra, đường cong từ trễ mở (như quan sát thấy trên hình nhỏ bên trong Hình 3a) cho thấy các hạt nano kim loại Fe thể hiện đặc tính chất sắt từ điển hình ở nhiệt độ phòng với giá trị từ độ bão hòa cao.

Tính chất hấp thụ sóng điện từ của các mẫu hấp thụ tổ hợp Fe-xLSNO ($x = 0, 10, 30$ và 50%) được đánh giá thông qua các tham số điện từ như độ từ thẩm phức (μ_R) và hằng số điện môi phức (ε_R). Những thay đổi về giá trị của μ_R và ε_R của vật liệu sẽ dẫn đến sự thay đổi tính chất hấp thụ EMW của chúng và có thể được xác định từ các giá trị độ tổn hao phản xạ RL như là một hàm của tần số và độ dày của các mẫu hấp thụ. Các giá trị RL và trở kháng của các mẫu hấp thụ tổ hợp được tính toán từ bộ số liệu tham số S bằng cách sử dụng phương pháp NRW [15], [16] và lý thuyết đường truyền [17] theo các biểu thức sau:

$$Z = Z_0 \sqrt{\mu_R / \varepsilon_R} \tanh \left(j \frac{2\pi f d}{c} \sqrt{\varepsilon_R \mu_R} \right) \quad (3)$$

$$RL = 10 \lg \left| \frac{(Z - Z_0)}{(Z + Z_0)} \right| \quad (4)$$

Trong đó, $Z_0 = 377 \Omega$ và Z lần lượt là trở kháng không khí (là môi trường truyền EMW) và trở kháng đặc trưng đầu vào của vật liệu hấp thụ; c , f và d lần lượt là vận tốc ánh sáng trong chân không, tần số EMW và độ dày các mẫu hấp thụ.



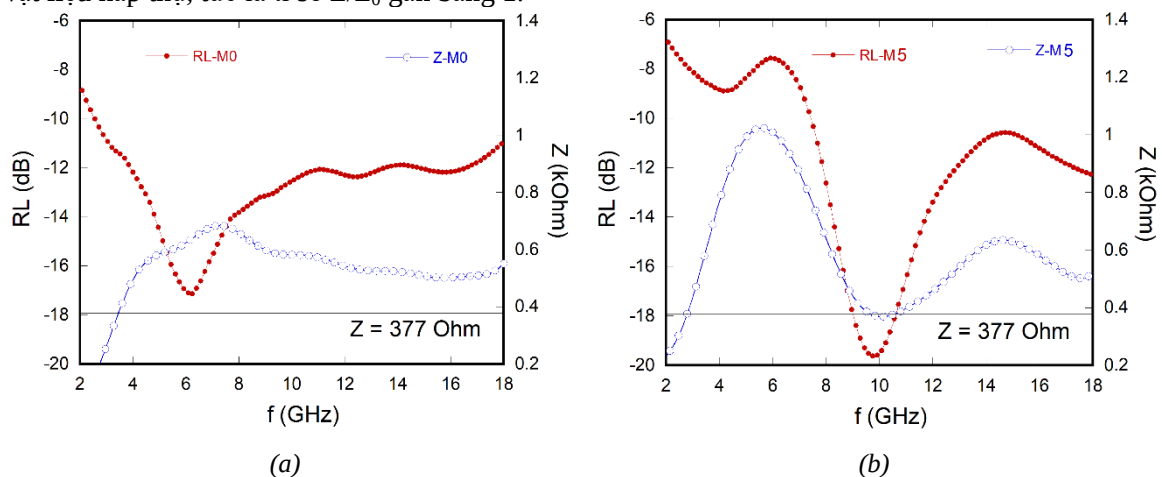
Hình 4. Đường cong biểu diễn sự phụ thuộc của (a) độ tổn hao phản xạ RL và (b) độ hấp thụ tương đối vào tần số cho tất cả các mẫu tổ hợp Fe-xLa_{1,5}Sr_{0,5}NiO₄ với độ dày 3 mm

Hình 4a đưa ra đường cong độ tổn hao phản xạ phụ thuộc tần số, $RL(f)$ của tất cả các mẫu hấp thụ tổ hợp Fe-xLSNO ($x = 0, 10, 30$ và 50%) có độ dày $d = 3$ mm. Kết quả cho thấy trên đường cong $RL(f)$ của các mẫu đều xuất hiện một đỉnh hấp thụ cộng hưởng. Với mẫu M0 khi chưa thêm thành phần điện môi LSNO vào hệ hạt nano kim loại từ tính Fe, giá trị $RL = -17,14$ dB được ghi nhận tại đỉnh cộng hưởng $f_R = 6,21$ GHz. Khi thay thế một phần các hạt nano Fe bằng vật liệu điện môi LSNO, rõ ràng giá trị độ tổn hao phản xạ cực tiểu có xu hướng giảm dần theo nồng độ LSNO tăng và đạt giá trị thấp nhất là $RL = -19,62$ dB tại $f_R = 9,84$ GHz cho mẫu có $x = 50\%$. Tương ứng trên Hình 4b, độ hấp thụ tương đối cũng được tính toán để xác nhận hiệu suất hấp thụ mạnh EMW của vật liệu tổ hợp Fe-xLSNO. Theo đó, độ hấp thụ EMW tương đối có thể đạt đến gần 98,9% năng lượng bức xạ điện từ chiếu đến bề mặt mẫu hấp thụ có nồng độ thay thế 50%LSNO cho các hạt nano từ tính Fe. Ngoài ra, đường cong $RL(f)$ cho thấy các mẫu hấp thụ tổ hợp thể hiện hiệu năng hấp thụ băng thông rộng. Mặc dù giá trị EAB có xu hướng giảm khi x tăng, các giá trị EAB > 10 GHz vẫn được duy trì tương ứng với $RL < -10$ dB cho tất cả các mẫu. Chi tiết các đại lượng đặc trưng cho khả năng hấp thụ sóng điện từ của các mẫu tổ hợp được xác định từ Hình 4a,b được liệt kê trong Bảng 1.

Bảng 1. Các đại lượng đặc trưng cho khả năng hấp thụ EMW của tất cả các mẫu tổ hợp Fe-xLSNO ($x = 0, 10, 30$ và 50%)

Mẫu	M0	M1	M3	M5
f_R (GHz)	6,21	7,28	8,56	9,84
RL (dB)	-16,14	-16,82	-16,93	-19,62
Abs (%) tại f_R	97,02	97,92	97,96	98,81
EAB (GHz) ($RL < -10$ dB)	15,5	14,08	12,24	10,56

Vật liệu tổ hợp dựa trên các hạt nano từ tính Fe thường được cho là sẽ hấp thụ sóng điện từ theo nhiều cơ chế tổn hao điện từ khác nhau bao gồm tổn hao dòng xoáy, tổn hao từ trễ, tổn hao hồi phục từ hay tổn hao cộng hưởng sắt từ [18], [19]. Độ tổn hao từ trễ thường xảy ra do sự định hướng của phương từ hóa trong từ trường ngoài xoay chiều, có giá trị tỉ lệ thuận với diện tích đường cong từ trễ và không đáng kể trong tất cả các mẫu tổ hợp. Hiện tượng tổn hao dòng xoáy và hồi phục từ cũng có thể được loại trừ do bản chất cách điện của các chất điện môi và kích thước rất nhỏ của các hạt nano Fe. Dựa trên quan sát thực tế trên đường cong $RL(f)$ của các mẫu hấp thụ tổ hợp (Hình 4a), hiệu ứng dịch chuyển đỉnh cộng hưởng hấp thụ về phía tần số cao khi nồng độ thành phần LSNO (x) tăng dần chứng tỏ cơ chế tổn hao do hiệu ứng cộng hưởng sắt từ có thể chiếm ưu thế. Để xác định rõ hơn các cơ chế hấp thụ sóng điện từ của vật liệu, thông thường hai mô hình phù hợp trở kháng và mô hình phù hợp một phần tư bước sóng được xem xét. Cần lưu ý rằng, cả hai hiệu ứng phù hợp trở kháng và phù hợp một phần tư bước sóng đều dẫn đến một hiệu suất hấp thụ tốt nhất năng lượng bức xạ EM chiếu đến. Tuy nhiên, mô hình một phần tư bước sóng thường liên quan nhiều đến việc khử nhiễu điện từ, trong khi giá trị độ tổn hao phản xạ RL thường được tính toán từ thuật toán NRW và lý thuyết đường truyền (công thức 3 và 4) là để biểu diễn hiệu suất hấp thụ EMW một cách toàn diện. Mặt khác, nếu các cơ chế tổn hao từ tính (do cộng hưởng tự nhiên, cộng hưởng sắt từ, từ hồi phục hay tổn hao dòng xoáy) và tổn hao điện môi chiếm ưu thế trong các mẫu vật liệu tổ hợp Fe-xLSNO, thì độ dày các mẫu hấp thụ cũng sẽ không tuân thủ theo mô hình phù hợp một phần tư bước sóng. Từ phương trình (3), có thể thấy rằng RL sẽ đạt giá trị âm rất lớn, tương ứng với sự hấp thụ tuyệt vời sóng điện từ khi trở kháng của môi trường truyền sóng (Z_0) xấp xỉ giá trị trở kháng đặc trưng đầu vào (Z) của các mẫu vật liệu hấp thụ, tức là tỉ số Z/Z_0 gần bằng 1.

**Hình 5.** Biểu diễn tương quan giữa các đường cong (a) $RL(f)$ và (b) $Z(f)$ của mẫu hấp thụ tổ hợp với 0 và 50% thể tích LSNO và độ dày $d = 3$ mm

Hình 5 biểu diễn sự tương quan giữa các đường phụ thuộc tần số của RL và Z cho hai mẫu đại diện với $x = 0$ (M0) và $x = 50\%$ (M5). Như quan sát trên Hình 5a-b, các giá trị trở kháng của các hạt nano kim loại từ tính Fe (mẫu M0: $x = 0$) đều gần như cao hơn 377Ω trong toàn bộ dải tần số

đo, tuy nhiên sự chênh lệch này vẫn có thể chấp nhận được trong giới hạn xảy ra của mô hình phù hợp trở kháng. Sai số với điều kiện $Z=Z_0=377\ \Omega$ có thể được xem là nguyên nhân dẫn đến giá trị của RL và hiệu suất hấp thụ sóng điện từ chưa cao. Tuy nhiên, với mẫu tổ hợp hấp thụ mạnh nhất EMW (M5: $x=50\%$), một sự phù hợp trở kháng gần như tuyệt đối ($Z=Z_0=377\ \Omega$) được ghi nhận tại lân cận tần số cộng hưởng f_R (Hình 5b). Nhìn chung, sự tổn hao năng lượng sóng điện từ bên trong vật liệu tổ hợp Fe- x LSNO có thể do đồng thời các hiệu ứng tổn hao điện môi (bao gồm phân cực bề mặt và phân cực lưỡng cực), tổn hao từ tính do cộng hưởng sắt từ tự nhiên và hiện tượng phù hợp trở kháng. Ngoài ra, việc phân tán hỗn hợp vật liệu Fe-LSNO vào chất mang parafin cũng sẽ cải thiện khả năng tiêu tán năng lượng nhiệt dễ dàng hơn.

4. Kết luận

Các mẫu vật liệu hấp thụ tổ hợp Fe- x LSNO ($x = 0, 10, 30$ và 50%) đã được chế tạo thành công để nghiên cứu tính chất hấp thụ sóng điện từ trong dải tần số từ 2-18 GHz. Bằng việc thay thế dần vật liệu điện môi LSNO vào các hạt nano kim loại Fe, chúng tôi đã cho thấy rằng khả năng hấp thụ sóng điện từ của vật liệu tổ hợp không chỉ được cải thiện về hiệu suất hấp thụ mà còn duy trì được hiệu năng hấp thụ bằng thông rộng của chúng. Cụ thể, mẫu M0 ($x=0$) có thể hấp thụ khoảng 97% sóng điện từ chiếu tới, trong khi mẫu M5 ($x=50\%$) hấp thụ đến 98,81% sóng điện từ chiếu tới tương ứng với độ tổn hao phản xạ cực tiểu $RL = -19,62$ dB. Mặc dù giá trị cực tiểu của RL không quá cao, nhưng hiệu năng hấp thụ bằng thông rộng với $RL < -10$ dB bao phủ gần như toàn bộ dải tần số đo (EAB > 10 GHz) được quan sát thấy trong tất cả các mẫu. Giá trị khá tốt của RL và EAB đạt được với các lớp hấp thụ có độ dày phù hợp luôn được chờ đợi cho các ứng dụng thực tế trong che chắn và hấp thụ EMW của các vật liệu tổ hợp.

Lời cảm ơn

Nghiên cứu này được tài trợ bởi Trường Đại học Hàng hải Việt Nam trong đề tài mã số: DT23-24.115.

TÀI LIỆU THAM KHẢO/ REFERENCES

- [1] Z. Jia, D. Lan, K. Lin, M. Qin, K. Kou, G. Wu, and H. Wu, "Progress in Low-Frequency Microwave Absorbing Materials," *J. Mater. Sci. Mater. Electron.*, vol. 29, 2018, Art. no. 17122.
- [2] W. Yang, B. Jiang, Z. Liu, R. Li, L. Hou, Z. Li, Y. Duan, X. Yan, F. Yang, and Y. Li, "Magnetic Coupling Engineered Porous Dielectric Carbon within Ultralow Filler Loading toward Tunable and High-Performance Microwave Absorption," *J. Mater. Sci. Technol.*, vol. 70, 2021, Art. no. 214.
- [3] W. Zheng, W. Ye, P. Yang, D. Wang, Y. Xiong, Z. Liu, J. Qi, and Y. Zhang, "Recent Progress in Iron-Based Microwave Absorbing Composites: A Review and Prospective," *Molecules*, vol. 27, 2022, Art. no. 4117.
- [4] S. K. Singh, H. Prakash, M. J. Akhtar, and K. K. Kar, "Lightweight and High-Performance Microwave Absorbing Heteroatom-Doped Carbon Derived from Chicken Feather Fibers," *ACS Sustain. Chem. Eng.*, vol. 6, 2018, Art. no. 5381.
- [5] X. Yan *et al.*, "A Theoretical Strategy of Pure Carbon Materials for Lightweight and Excellent Absorption Performance," *Carbon N. Y.*, vol. 174, 2021, Art. no. 662.
- [6] M. Qin, L. Zhang, and H. Wu, "Dielectric Loss Mechanism in Electromagnetic Wave Absorbing Materials," *Adv. Sci.*, vol. 9, 2022, Art. no. 2105553.
- [7] I. Shanenkov, A. Sivkov, A. Ivashutenko, V. Zhuravlev, Q. Guo, L. Li, G. Li, G. Wei, and W. Han, "Magnetite Hollow Microspheres with a Broad Absorption Bandwidth of 11.9 GHz: Toward Promising Lightweight Electromagnetic Microwave Absorption," *Phys. Chem. Chem. Phys.*, vol. 19, 2017, Art. no. 19975.
- [8] Y. Lu, P. Yang, Y. Li, D. Wen, J. Luo, S. Wang, F. Wu, L. Fang, and Y. Pang, "A Facile Synthesis of NiFe-Layered Double Hydroxide and Absorption Properties," *Molecules*, vol. 26, 2021, Art. no. 5046.
- [9] W. Jang, S. Mallesh, and K. H. Kim, "Microwave Absorption Properties of Carbonyl Iron Particles Filled in Polymer Composites," *New Phys. Sae Mulli*, vol. 70, 2020, pp. 311-314.
- [10] D. K. Tung, D. H. Manh, L. T. H. Phong, P. H. Nam, D. N. H. Nam, N. T. N. Anh, H. T. T. Nong, M.

- H. Phan, and N. X. Phuc, "Iron Nanoparticles Fabricated by High-Energy Ball Milling for Magnetic Hyperthermia," *J. Electron. Mater.*, vol. 45, pp. 2644–2650, 2016.
- [11] D. T. Tran, D. LamVu, V. H. Le, T. L. Phan, and S. C. Yu, "Spin Reorientation and Giant Dielectric Response in Multiferroic $\text{La}_{1.5}\text{Sr}_{0.5}\text{NiO}_{4+\gamma}$," *Adv. Nat. Sci. Nanosci. Nanotechnol.*, vol. 4, 2013, Art. no. 025010 (4pp).
- [12] K. Meeporn and P. Thongbai, "Flexible $\text{La}_{1.5}\text{Sr}_{0.5}\text{NiO}_4/\text{Poly}(\text{Vinylidene Fluoride})$ Composites with an Ultra High Dielectric Constant: A Comparative Study," *Compos. Part B Eng.*, vol. 184, 2020, Art. no. 107738.
- [13] H. Khurshid, M. H. Phan, P. Mukherjee, and H. Srikanth, "Tuning Exchange Bias in $\text{Fe}/\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ Core-Shell Nanoparticles: Impacts of Interface and Surface Spins," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 104, 2014, Art. no. 072407.
- [14] X. Sun, A. Gutierrez, M. J. Yacaman, X. Dong, and S. Jin, "Investigations on Magnetic Properties and Structure for Carbon Encapsulated Nanoparticles of Fe, Co, Ni," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 286, 2020, Art. no. 157.
- [15] W. B. Weir, "Automatic Measurement of Complex Dielectric Constant and Permeability at Microwave Frequencies," *Proc. IEEE*, vol. 62, no. 1, pp. 33-36, 1974.
- [16] A. M. Nicolson and G. F. Ross, "Measurement of the Intrinsic Properties Of Materials by Time-Domain Techniques," *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, vol. 19, pp. 377-382, 1970.
- [17] Y. Naito and K. Suetake, "Application of Ferrite to Electromagnetic Wave Absorber and Its Characteristics," *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.*, vol. 19, pp. 65-71, 1971.
- [18] M. Jafarian, S. F. K. Bozorg, A. A. Amadeh, and Y. Atassi, "Nano-Architected NiO Shell vs 3D Microflowers Morphology toward Enhancement of Magneto-Electric Loss in Mesoporous Magneto-Electric Composite," *Ceram. Int.*, vol. 47, 2021, Art. no. 20595.
- [19] B. Lu, X. L. Dong, H. Huang, X. F. Zhang, X. G. Zhu, J. P. Lei, and J. P. Sun, "Microwave Absorption Properties of the Core/Shell-Type Iron and Nickel Nanoparticles," *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 320, 2008, Art. no. 1106.