

核  $((\text{Nd}_{0.7}, \text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B})$ -壳  $(\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B})$  型磁体反磁化的微磁学模拟\*李栋 董生智<sup>†</sup> 李磊 徐吉元 陈红升 李卫

(钢铁研究总院, 功能材料研究所, 北京 100081)

(2020年3月23日收到; 2020年4月28日收到修改稿)

以核  $((\text{Nd}_{0.7}, \text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B})$ -壳  $(\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B})$  型晶粒为研究对象, 利用 C++ 语言进行编程建模, 通过微磁学模拟软件 OOMMF 进行计算仿真, 系统讨论了核的尺寸、壳层厚度以及壳层分布对单晶粒磁体反磁化过程的影响. 对于核  $((\text{Nd}_{0.7}, \text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B})$ -壳  $(\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B})$  型晶粒, 当壳层厚度不变时, 矫顽力随核的尺寸增加而单调递减. 当核的尺寸不变时, 壳层厚度的增加使得矫顽力先增加后降低. 当核的尺寸不变, 壳层总体积也不变时, 壳层的不同分布会影响矫顽力的大小, 其中当壳层仅平均分布于核的  $z$  面 (垂直于  $z$  轴的两个面) 时, 矫顽力达到最大值.

**关键词:** 微磁学模拟, 含铈磁体, 核-壳结构, 矫顽力

**PACS:** 75.78.Cd, 75.50.Ww, 75.78.-n

**DOI:** 10.7498/aps.69.20200435

## 1 引言

Nd-Fe-B 磁体具有优良的室温磁性能和较低的生产成本, 成为当今应用最为广泛的永磁材料<sup>[1-4]</sup>. 自 1984 年问世以来, 烧结 Nd-Fe-B 磁体已经广泛应用于新能源汽车、航天航空等领域<sup>[5-7]</sup>. 然而, 钕铁硼产量的快速增加导致稀土元素 Nd 的大量消耗, 而使得其共伴生元素铈 Ce 积压过剩. 以价格更便宜且储量更丰富的 Ce 部分替代 Nd, 是解决 Ce 积压囤积问题同时实现稀土资源平衡利用的良好途径<sup>[8,9]</sup>.

因为用 Ce 取代  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  中的 Nd 将会导致磁体的磁晶各向异性降低, 所以人们希望能找到有效的方法来提高 Ce 磁体的矫顽力. 早期研究<sup>[10-13]</sup> 大多采用传统的粉末冶金工艺来制备 Ce 磁体, 但这种工艺下生产的磁体表现出比较差的磁性能. 经

过长期的探索, 已经证明速凝 (SC) + 氢破 (HD) + 气流磨 (JM) 工艺流程可以有效地使 Ce 磁体获得更好的磁性能<sup>[14]</sup>. 近年来, 李卫团队<sup>[15-19]</sup> 发明了双主相法, 通过该方法制备的 Ce 磁体可具有明显高于单主相法制得磁体的矫顽力.

除了工艺技术方面的创新外<sup>[20,21]</sup>, 研究者们还进行了许多关于 Ce 磁体的模拟计算<sup>[22,23]</sup>. 微磁学研究<sup>[24]</sup> 已经证明, 在四种含 Ce 单晶粒结构的比较中, 当晶粒总 Ce 含量相同时, 核  $((\text{Nd}, \text{Ce})_2\text{Fe}_{14}\text{B})$ -壳  $(\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B})$  型晶粒通常具有最高的矫顽力. 本文围绕该种核壳模型, 选择核的成分为  $(\text{Nd}_{0.7}, \text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  (0.7 与 0.3 表示 Nd 与 Ce 占晶粒总稀土元素的原子百分比分别为 70 at.% 和 30 at.%), 通过微磁学模拟方法, 在纳米尺度深入探究了核的尺寸、壳层厚度及壳层分布对晶粒矫顽力的影响, 并从理论层面解释了矫顽力变化的原因. 本文旨在通过模拟计算, 提供一种具有较高矫顽力的晶粒结

\* 国家自然科学基金重大项目 (批准号: 51590882) 和国家自然科学基金 (批准号: 51871063) 资助的课题.

<sup>†</sup> 通信作者. E-mail: [dong\\_shengzhi@163.com](mailto:dong_shengzhi@163.com)

构, 为实验及实际生产提供一定的理论支持及借鉴帮助.

## 2 微磁学模型

本实验通过 OOMMF 软件进行建模计算与理论分析: 程序编写时, 选择 Oxs\_Time Driver 作为驱动器, Oxs\_Runge KuttaEvolve 作为求解器, 模型均通过 C++ 语言搭建. 实际磁体中, 单晶粒  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  尺寸为  $10\ \mu\text{m}$  左右, 由于计算机的运算能力有限, 本实验工作所建晶粒模型均为纳米级别, 旨在以较小尺寸模型探究各种因素对实际磁体磁性能的影响规律. 从理论上讲, 通过纳米模型所得到的结果可以定性预测和解释各种因素对实际磁体磁性能的影响, 比如晶粒尺寸对磁体矫顽力的影响<sup>[24]</sup>. 本实验所涉及的模型均为单晶粒模型, 不考虑晶界相或周围其他晶粒对磁矩翻转的影响.

对于本文所探讨的单晶粒核  $(\text{Nd}_{0.7}, \text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ -壳  $(\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B})$  型模型, 室温下的内禀磁性参数选择如下: 对于壳层的成分  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ , 磁晶各向异性常数  $K_1 = 4.5\ \text{MJ}/\text{m}^3$ , 饱和磁化强度  $M_s = 1281.5\ \text{kA}/\text{m}$ , 交换积分常数  $A = 12.5\ \text{pJ}/\text{m}$ <sup>[25]</sup>; 对于  $(\text{Nd}_x, \text{Ce}_{1-x})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ , 假设其  $K_1$ ,  $M_s$  和  $A$  与 Nd 和 Ce 的原子百分比一致, 因为对于  $\text{Ce}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ ,  $K_1 = 1.5\ \text{MJ}/\text{m}^3$ ,  $M_s = 931\ \text{kA}/\text{m}$ ,  $A = 5\ \text{pJ}/\text{m}$ <sup>[26]</sup>, 所以对于核的成分  $(\text{Nd}_{0.7}, \text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ , 根据 Nd 与 Ce 所占总稀土元素的原子百分比分别为 70% 与 30%, 其  $K_1 = 4.5 \times 0.7 + 1.5 \times 0.3 = 3.6\ \text{MJ}/\text{m}^3$ ,  $M_s = 1281 \times 0.7 + 931 \times 0.3 = 1176\ \text{kA}/\text{m}$ ,  $A = 12.5 \times 0.7 + 5 \times 0.3 = 10.25\ \text{pJ}/\text{m}$ . 根据畴壁宽度  $l_w$  的计算公式 ((1) 式) 及静磁交换长度  $l_{\text{ex}}$  的计算公式 ((2) 式) 得到  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  的畴壁宽度  $l_w$  为  $5.24\ \text{nm}$ , 静磁交换长度  $l_{\text{ex}}$  为  $3.48\ \text{nm}$ ,  $(\text{Nd}_{0.7}, \text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  的  $l_w$  为  $5.3\ \text{nm}$ ,  $l_{\text{ex}}$  为  $3.43\ \text{nm}$ . 布朗方程要求模型网格尺寸小于  $l_w$  与  $l_{\text{ex}}$ , 所以综合考虑计算机计算能力与计算精度, 在本文“保持壳层体积不变, 壳层分布对矫顽力的影响”的探究中, 模型网格尺寸选择为  $1\ \text{nm} \times 1\ \text{nm} \times 1\ \text{nm}$  (因模型尺寸相对较小), 本文其他方面的探究中模型网格尺寸均选择为  $2\ \text{nm} \times 2\ \text{nm} \times 2\ \text{nm}$  (模型尺寸相对较大). 本文所有晶粒的初始磁化方向均为  $+z$  方向. 所加外场  $H_{\text{ext}}$  与  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  单晶粒的初始磁化

强度方向反向平行, 以  $+0.5\ \text{kOe}$  的梯度从  $0\ \text{kOe}$  均匀地增加到  $100\ \text{kOe}$ .

$$l_w = \pi\sqrt{A/K_1}, \quad (1)$$

$$l_{\text{ex}} = \sqrt{2A/(\mu_0 M_s^2)}. \quad (2)$$

## 3 结果与讨论

### 3.1 保持壳层厚度不变, 核的尺寸对矫顽力的影响

以壳层均匀包覆于核的四周的核  $(\text{Nd}_{0.7}, \text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ -壳  $(\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B})$  立方体模型为研究对象. 如图 1 所示, 将壳层厚度  $t$  设定为常数 (比如  $t = 6\ \text{nm}$ ), 核的边长设定为变量  $x\ \text{nm}$ , 探究随着核的尺寸增加, 矫顽力的变化规律.

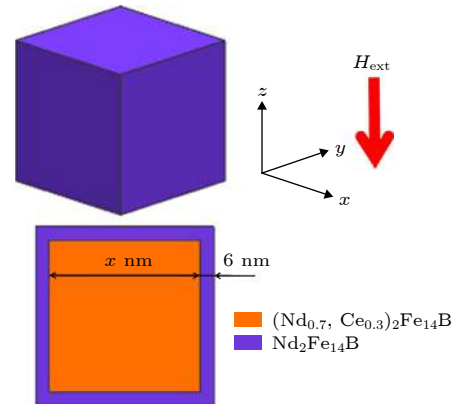


图 1 壳层厚度为常数  $6\ \text{nm}$ , 核的尺寸为变量的核  $(\text{Nd}_{0.7}, \text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ -壳  $(\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B})$  模型  
Fig. 1. The illustration of core  $(\text{Nd}_{0.7}, \text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  - shell  $(\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B})$  model of which the shell thickness is a constant of  $6\ \text{nm}$  while the core size is variable.

如图 2(a) 所示, 当壳层厚度保持为  $2\ \text{nm}$  时, 核的尺寸越大, 矫顽力越小. 当将壳层厚度增加  $2$  或  $4\ \text{nm}$ , 即壳层厚度保持为  $4$  或  $6\ \text{nm}$  时, 随着核的尺寸增加, 矫顽力依然呈现逐渐降低的趋势.

以壳层厚度  $t = 6\ \text{nm}$  为例, 讨论矫顽力逐渐降低的原因. 图 2(b) 反映了随着外场增加,  $t = 6\ \text{nm}$  时不同核尺寸的晶粒易轴方向磁化强度的变化. 一方面通过计算发现 (如表 1 所列), 在壳层厚度不变的情况下, 核的尺寸增加会导致晶粒的总 Ce 含量明显地增加. 因为  $\text{Ce}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  的磁晶各向异性场比  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  小<sup>[16]</sup>, 所以 Ce 含量的增加使得晶粒平均磁晶各向异性场出现明显降低的趋势. 我们知道, 晶粒的磁晶各向异性场具有使磁矩保持初

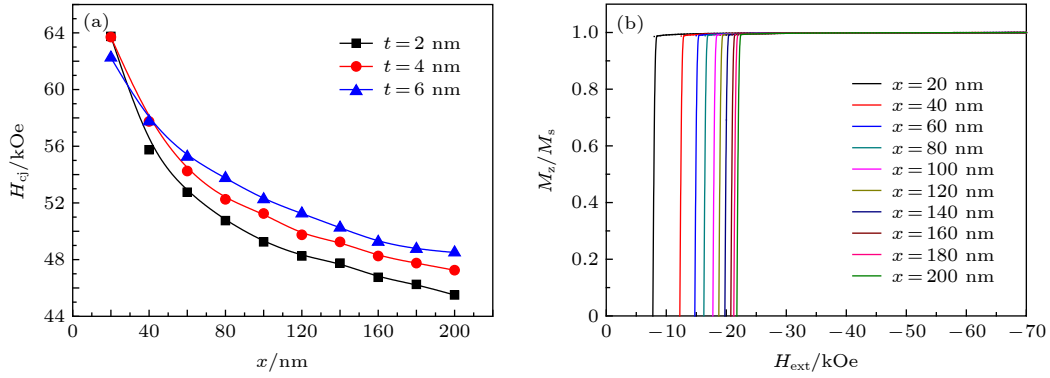


图 2 (a) 矫顽力随核的尺寸 (边长  $x$ ) 的变化规律; (b)  $t = 6$  nm 时不同核尺寸 (边长  $x$ ) 的晶粒的退磁曲线  
 Fig. 2. (a) The relevance of the coercivity to the core size (side length  $x$ ); (b) the demagnetization curves of grains with different core size (side length  $x$ ) when  $t = 6$  nm.

表 1 壳层厚度保持为 6 nm 时, 不同核尺寸 (边长) 的晶粒的总 Ce 含量及内禀磁性参数

Table 1. The total Ce content and intrinsic magnetic parameters of the grain with the same shell thickness 6 nm but different core size (side length).

Core size( $x$ )/nm	Total Ce content/at. %	Average $K_1$ /MJ·m <sup>-3</sup>	Average $M_s$ /kA·m <sup>-1</sup>	Average $H_A$ /kA·m <sup>-1</sup> ·kOe <sup>-1</sup>
20	7.32	4.28	1255.37	(5428.72)/(68.2)
40	13.65	4.09	1233.21	(5277.48)/(66.3)
60	17.36	3.98	1220.24	(5189.92)/(65.2)
80	19.73	3.91	1211.96	(5134.20)/(64.5)
100	21.35	3.86	1206.26	(5094.40)/(64.0)
120	22.54	3.82	1202.11	(5062.56)/(63.6)
140	23.44	3.80	1198.96	(5038.68)/(63.3)
160	24.15	3.78	1196.48	(5022.76)/(63.1)
180	24.72	3.76	1194.48	(5006.84)/(62.9)
200	25.19	3.74	1192.84	(4998.88)/(62.8)

始方向而不被轻易翻转的作用, 因此, 晶粒平均磁晶各向异性场的降低将导致晶粒的磁矩在较小的外场作用下即发生翻转, 从而矫顽力降低.

另一方面, 综合比较每种核尺寸的晶粒的退磁过程, 如图 3 所示, 可以发现, 在相同的外场下, 晶

粒的核尺寸越大, 晶粒的总体积越大, 其总退磁能  $E_d$  越大. 因为退磁场有利于磁体反磁化, 而退磁能是退磁场与磁体内磁化强度的相互作用能, 所以, 晶粒总退磁能的增大是导致矫顽力减小的又一重要原因.

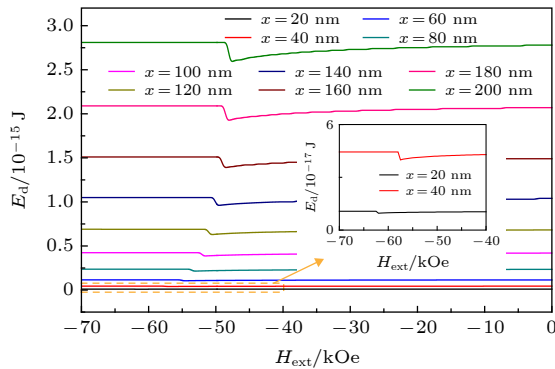


图 3 不同核尺寸 (边长) 的晶粒总退磁能  $E_d$  的比较  
 Fig. 3. Comparisons of the total demagnetization energy  $E_d$  of grains with various core size (side length).

### 3.2 保持核的尺寸不变, 壳层厚度对矫顽力的影响

以核  $(\text{Nd}_{0.7}, \text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ -壳  $(\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B})$  立方体模型为研究对象 (图 4), 设定核的尺寸为常数 (比如  $200 \text{ nm} \times 200 \text{ nm} \times 200 \text{ nm}$ ), 壳层厚度  $t$  设定为变量, 探究壳层厚度的变化对单晶粒磁体矫顽力的影响.

如图 5(a) 所示, 当核的尺寸保持为  $50 \text{ nm} \times 50 \text{ nm}$  时, 随着壳层厚度  $t$  由 2 nm 增加至 20 nm, 矫顽力先逐渐增加, 并在  $t = 6 \text{ nm}$  时取得最大值, 之后逐渐降低. 当将核的尺寸增加至

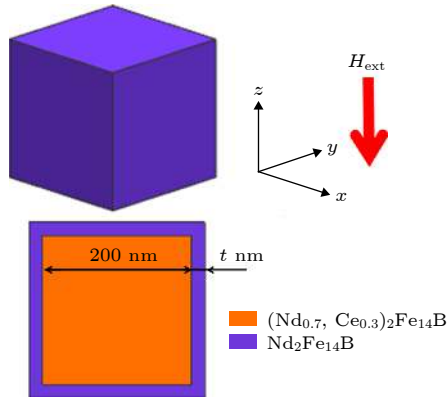


图4 核的尺寸为常数  $200\text{ nm} \times 200\text{ nm} \times 200\text{ nm}$ , 壳层厚度  $t$  为变量的核  $(\text{Nd}_{0.7}, \text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ -壳  $(\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B})$  模型  
Fig. 4. Illustration of core  $(\text{Nd}_{0.7}, \text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  - shell  $(\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B})$  model of which the core size is a constant of  $200\text{ nm} \times 200\text{ nm} \times 200\text{ nm}$  while the shell thickness  $t$  is variable.

$100\text{ nm} \times 100\text{ nm} \times 100\text{ nm}$  甚至  $200\text{ nm} \times 200\text{ nm} \times 200\text{ nm}$  时, 可以发现, 随着壳层厚度的增加, 矫顽力依然呈现先增加后降低的趋势. 接下来, 以核的尺寸为  $200\text{ nm} \times 200\text{ nm} \times 200\text{ nm}$  为例, 讨论随着壳层厚度由  $2\text{ nm}$  增加至  $20\text{ nm}$ , 矫顽力先增加后降低的原因. 图 5(b) 反映了随着外场增加, 核为  $200\text{ nm} \times 200\text{ nm} \times 200\text{ nm}$  时不同壳层厚度的晶粒易轴方向磁化强度的变化.

在同一外加磁场下, 磁矩会随着时间动态演化, 本节则通过采用时间分辨率模拟的方法来揭示退磁过程中的形核与长大现象. 同样基于该方法, 选择形核点来讨论壳层厚度  $t$  影响矫顽力的原因. 以  $x$ - $z$  面视图体现, 如图 6 所示, 不同壳层厚度的晶粒形核点位置不同.

根据图 6 的模拟结果可以发现, 当壳层厚度  $t$  为  $2\text{--}10\text{ nm}$  时, 形核点均出现在核壳交界处且属于核的部分; 当壳层厚度  $t$  为  $12\text{--}20\text{ nm}$  时, 形核点均出现在壳层顶角处 (即晶粒顶角处). 对比图 5(a) 中矫顽力随壳层厚度的变化, 可以发现, 壳层厚度  $t$  为  $2\text{--}10\text{ nm}$  恰好对应矫顽力增加的阶段, 而壳层厚度  $t$  为  $12\text{--}20\text{ nm}$  恰好对应矫顽力缓缓降低的阶段. 因此, 根据形核点位置的不同, 可以将  $t = 2\text{--}20\text{ nm}$  分为  $t = 2\text{--}10\text{ nm}$  和  $t = 12\text{--}20\text{ nm}$  两部分讨论矫顽力变化的原因.

1) 当  $t = 2\text{--}10\text{ nm}$  时, 形核点位于核壳交界处且属于核的部分, 此时形核点的成分为具有较低磁晶各向异性场的  $(\text{Nd}_{0.7}, \text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ . 如图 7 所示, 以  $t = 6\text{ nm}$  的晶粒的磁化反转过程为例进行

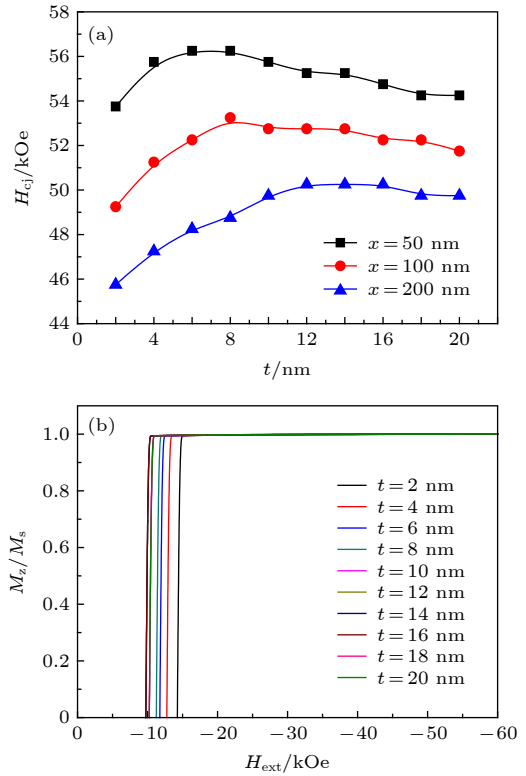


图5 (a) 不同核尺寸下矫顽力随壳层厚度的变化规律; (b) 核尺寸为  $200\text{ nm} \times 200\text{ nm} \times 200\text{ nm}$  时不同壳层厚度的晶粒的退磁曲线

Fig. 5. (a) The relevance of the coercivity to the shell thickness; (b) the demagnetization curves of grains with different shell thicknesses when the core size is kept at  $200\text{ nm} \times 200\text{ nm} \times 200\text{ nm}$ .

说明. 因形核发生在核壳边界处, 所以反磁化畴的形核将受到核壳边界效应的影响, 即壳层磁矩与形核点处磁矩的交换耦合作用会阻止反磁化畴形核, 实现退磁需要较大的外场辅助. 随着具有较高磁晶各向异性场的  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  壳层的厚度增加, 核壳边界效应逐渐增强, 实现退磁所需要的外场逐渐增大, 从而矫顽力逐渐增加. 另外, 如表 2 所列, 随着壳层厚度的增加, 晶粒总 Ce 含量在逐渐降低, 导致晶粒平均磁晶各向异性场增加. 基于磁晶各向异性场对磁矩维持初始方向的有利作用及对退磁的阻碍作用, 可认为晶粒平均磁晶各向异性场的增加是引起矫顽力增加的另一因素.

2) 当  $t = 12\text{--}20\text{ nm}$  时, 形核点位于壳层顶角处 (即晶粒顶角处), 此时形核点的成分为具有较高磁晶各向异性场的  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ . 如图 8 所示, 选择  $t = 16\text{ nm}$  的晶粒的磁化反转过程为例进行说明. 当反磁化畴形核后, 畴壁逐渐由形核点向晶粒内部位移, 最终实现晶粒内所有磁矩的翻转. 结合

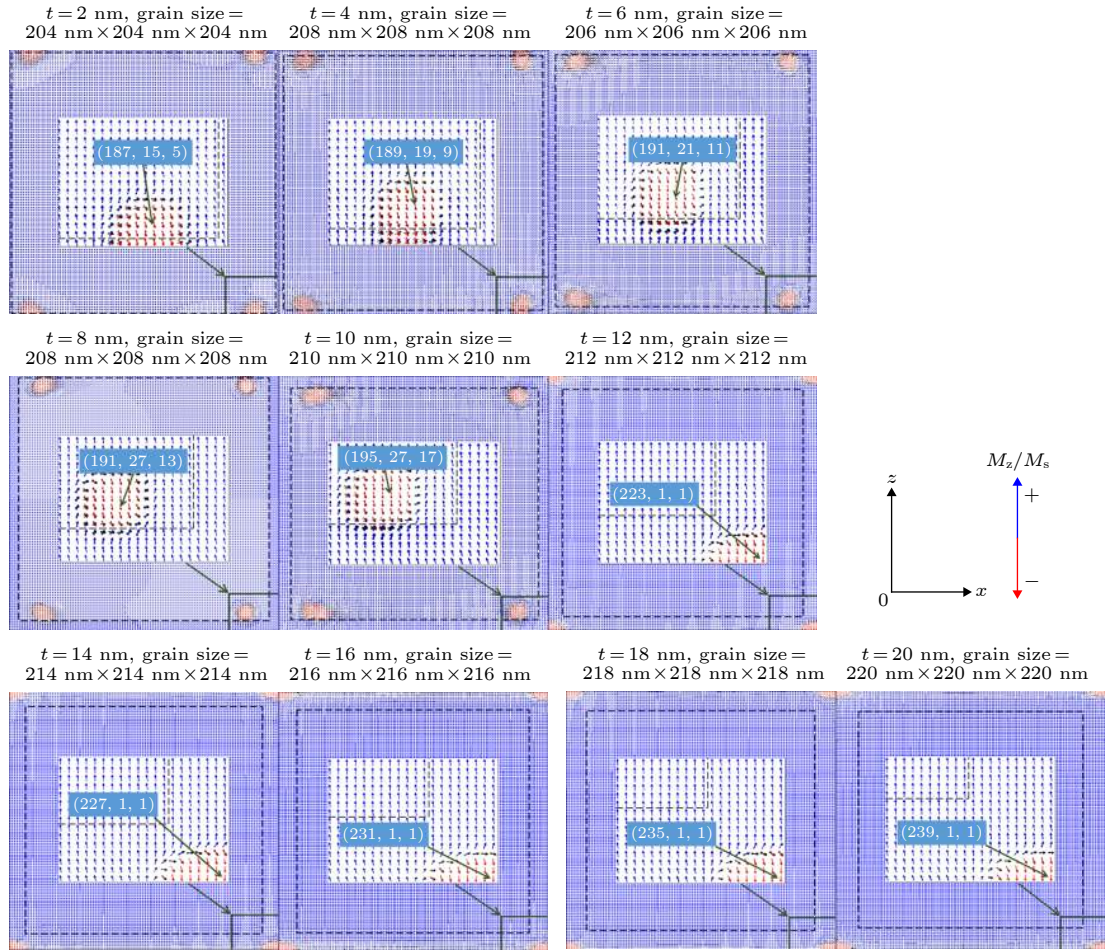


图 6 壳层厚度为 2—20 nm 时不同的形核点 ( $x$ - $z$  面视图)(虚线表示核与壳层的边界; 图中放大区域特别标出位置的点表示该模型的形核点; 蓝色箭头代表磁矩与初始磁化方向相同, 即磁矩未发生明显反转, 红色箭头磁矩已经发生反转)

Fig. 6. Illustration of the nucleation points for  $t = 2$ –20 nm (view of  $x$ - $z$  plane) (The dotted lines represent the boundary between the core and the shell; the point in the magnified area specifically indicates the nucleation point of the model; the blue arrow indicates that the magnetic moment is the same as the initial magnetization direction, that is, the magnetic moment is not reflected. Reversal, the magnetic moment of the red arrow has reversed).

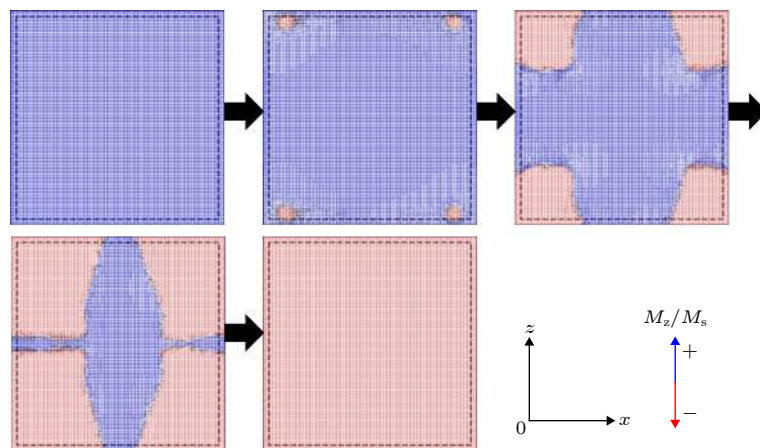


图 7 外场为 48.25 kOe (与矫顽力大小相同) 时,  $t = 6$  nm 晶粒的磁化反转过程 ( $x$ - $z$  面视图,  $y = 21$  nm)(虚线表示核与壳层的边界; 蓝色箭头代表磁矩与初始磁化方向相同, 即磁矩未发生明显反转, 红色箭头磁矩已经发生反转)

Fig. 7. The reversal process for  $t = 6$  nm (view of  $x$ - $z$  plane at  $y = 21$  nm) under external field of 48.25 kOe (equal to the coercivity) (The dotted lines represent the boundary between the core and the shell; the blue arrow indicates that the magnetic moment is the same as the initial magnetization direction, that is, the magnetic moment is not reflected. Reversal, the magnetic moment of the red arrow has reversed).

表 2 核的尺寸保持为  $200 \text{ nm} \times 200 \text{ nm} \times 200 \text{ nm}$  时, 不同壳层厚度  $t$  的晶粒的总 Ce 含量及内禀磁性参数  
 Table 2. The total Ce content and intrinsic magnetic parameters of the grain with the same core size  $200 \text{ nm} \times 200 \text{ nm} \times 200 \text{ nm}$  but different shell thicknesses  $t$ .

$t/\text{nm}$	Total Ce content/at. %	Average $K_1/\text{MJ}\cdot\text{m}^{-3}$	Average $M_s/\text{kA}\cdot\text{m}^{-1}$	Average $H_A/\text{kA}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{kOe}^{-1}$
2	28.27	3.65	1182.06	(4919.28)/(61.8)
4	26.67	3.70	1187.66	(4959.08)/(62.3)
6	25.19	3.74	1192.84	(4998.88)/(62.8)
8	23.81	3.79	1197.65	(5030.72)/(63.2)
10	22.54	3.82	1202.11	(5062.56)/(63.6)
12	21.35	3.86	1206.26	(5094.40)/(64.0)
14	20.25	3.89	1210.13	(5118.28)/(64.3)
16	19.22	3.92	1213.73	(5150.12)/(64.7)
18	18.26	3.95	1217.09	(5174.00)/(65.0)
20	17.36	3.98	1220.24	(5189.92)/(65.2)

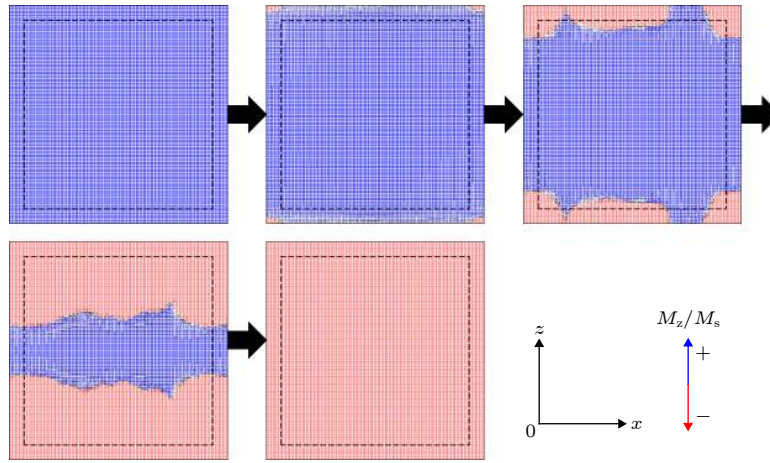


图 8 外场为 50.25 kOe (与矫顽力大小相同) 时,  $t = 16 \text{ nm}$  晶粒的磁化反转过程 ( $x$ - $z$  面视图,  $y = 1 \text{ nm}$ ) (虚线表示核与壳层的边界; 蓝色箭头代表磁矩与初始磁化方向相同, 即磁矩未发生明显反转, 红色箭头磁矩已经发生反转)

Fig. 8. The reversal process for  $t = 16 \text{ nm}$  (view of  $x$ - $z$  plane at  $y = 1 \text{ nm}$ ) under external field of 50.25 kOe (equal to the coercivity) (The dotted lines represent the boundary between the core and the shell; the blue arrow indicates that the magnetic moment is the same as the initial magnetization direction, that is, the magnetic moment is not reflected. Reversal, the magnetic moment of the red arrow has reversed).

表 2 可知, 对于  $t = 12\text{--}20 \text{ nm}$ , 壳层厚度的增加依然使得晶粒的平均磁晶各向异性场逐渐增加, 而如图 9 所示, 壳层厚度的增加也导致晶粒的体积不断增加, 使得晶粒的总退磁能不断增加, 因此可认为, 在该阶段, 退磁能的增加对形核及退磁的促进作用要大于平均磁晶各向异性场的增加对退磁的阻碍作用, 从而导致矫顽力出现缓慢的降低。

对于核尺寸为  $200 \text{ nm} \times 200 \text{ nm} \times 200 \text{ nm}$  的晶粒而言,  $t = 12\text{--}20 \text{ nm}$  时的矫顽力普遍大于  $t = 2\text{--}10 \text{ nm}$  时的矫顽力, 可认为主要原因是  $t = 12\text{--}20 \text{ nm}$  的晶粒形核点处的磁晶各向异性场高于  $t = 2\text{--}10 \text{ nm}$  的晶粒形核点. 而对于核尺寸为

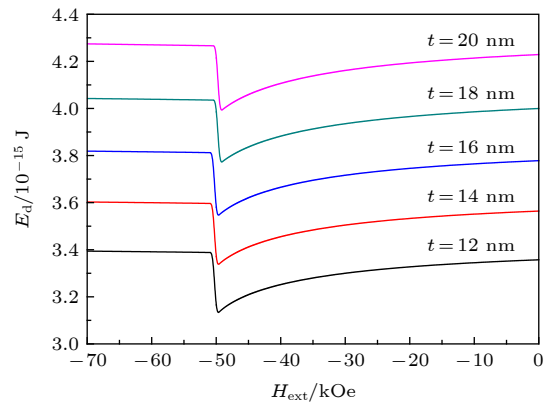


图 9 不同壳层厚度的晶粒总退磁能  $E_d$  随外场的变化

Fig. 9. The change of the total demagnetization energy  $E_d$  for grains with different shell thicknesses under varying external field.

50 以及 100 nm 的晶粒而言, 会出现处于下降阶段的矫顽力小于处于上升阶段的矫顽力的情况, 究其原因, 可认为是随壳层厚度增加, 退磁能增加促进退磁的效应强于形核点处高磁晶各向异性场阻碍退磁的效应。

### 3.3 保持壳层体积不变, 壳层分布对矫顽力的影响

本节进行比较的 6 种核  $(\text{Nd}_{0.7}, \text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ -壳  $(\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B})$  模型如图 10 所示, 核的尺寸均相

同, 探究在壳层体积相同的条件下, 不同的壳层分布对矫顽力的影响. 前两节的探究已经表明, 相同的探究条件下, 较小尺寸的模型与较大尺寸的模型具有相同的规律, 比如 3.1 节中, 随着壳层厚度增加, 核的尺寸为  $50 \text{ nm} \times 50 \text{ nm} \times 50 \text{ nm}$  的晶粒与核的尺寸为  $200 \text{ nm} \times 200 \text{ nm} \times 200 \text{ nm}$  的晶粒在矫顽力方面均呈现先增加后降低的趋势, 本节中将核的尺寸设定为较小值  $40 \text{ nm} \times 40 \text{ nm} \times 40 \text{ nm}$ , 同时为了保证计算精度, 将网格尺寸设定为  $1 \text{ nm} \times 1 \text{ nm} \times 1 \text{ nm}$ .

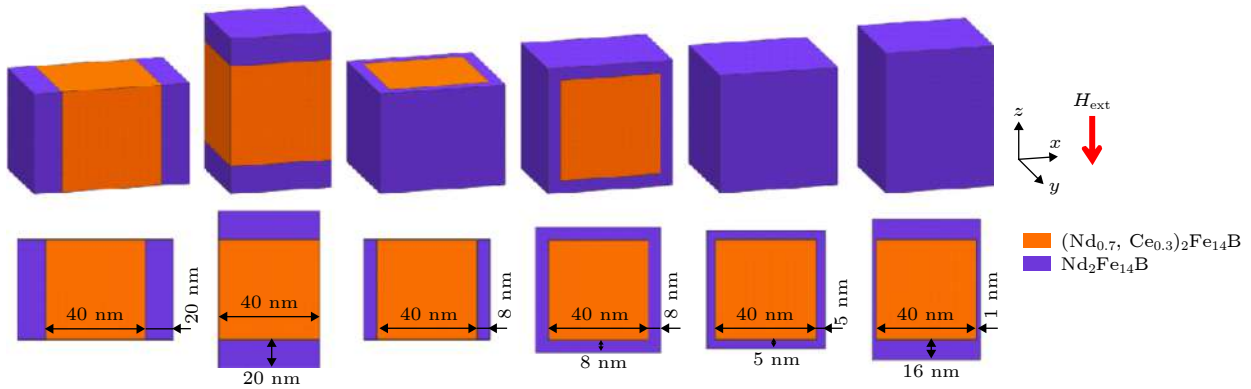


图 10 6 种核  $(\text{Nd}_{0.7}, \text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ -壳  $(\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B})$  模型, 从左到右:  $a_x$  型, 壳层只分布在核的  $x$  面 (即与  $x$  轴垂直的面), 两面各一半;  $a_z$  型, 壳层只分布在核的  $z$  面 (即与  $z$  轴垂直的面), 两面各一半;  $b_{xy}$  型, 壳层均匀分布在核的  $x$  面和  $y$  面;  $b_{xz}$  型, 壳层均匀分布在核的  $x$  面和  $z$  面;  $c$  型, 壳层均匀分布在核的  $x$  面、 $y$  面、 $z$  面 (即均匀包覆);  $c'$  型, 壳层在核的  $x$  面和  $y$  面的厚度均为 1 nm, 在核的  $z$  面厚度随壳层总体积可变 (图中标示尺寸以  $V_{\text{shell}}/V_{\text{grain}} \approx 50\%$  为例)

Fig. 10. Illustration of six types of core  $(\text{Nd}_{0.7}, \text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ -shell  $(\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B})$  model, from left to right:  $a_x$  type, the shell is evenly distributed on the two  $x$ -planes (the plane perpendicular to the  $x$ -axis) of the core;  $a_z$  type, the shell is evenly distributed on the two  $z$ -planes (the plane perpendicular to the  $z$ -axis) of the core;  $b_{xy}$  type, the shell is evenly distributed on the  $x$ -planes and the  $y$ -planes of the core;  $b_{xz}$  type, the shell is evenly distributed on the  $x$ -planes and the  $z$ -planes of the core;  $c$  type, the shell is evenly distributed on the  $x$ -planes,  $y$ -planes and the  $z$ -planes of the core (evenly distributed around the core);  $c'$  type, both the shell thicknesses for the  $x$ -planes and the  $y$ -planes of the core are 1 nm, and the shell thickness for the  $z$ -planes of the core is variable with changing total shell volume (The size shown in the figure takes  $V_{\text{shell}}/V_{\text{grain}} \approx 50\%$  as an example).

如图 11 所示, 横坐标为壳层体积占晶粒总体积的百分比, 多组纵向比较发现, 在该模拟条件下, 当  $V_{\text{shell}}/V_{\text{grain}}$  相同时,  $a_z$  型晶粒的矫顽力始终最大,  $a_x$  型晶粒的矫顽力始终最小,  $c$  型 (壳层均匀包覆核) 结构并非使晶粒矫顽力达到最大的最优结构。

以  $V_{\text{shell}}/V_{\text{grain}} \approx 50\%$  为例, 探究 6 种结构晶粒矫顽力不同的原因. 采用时间分辨率的模拟方法, 可得到晶粒的反磁化过程. 从  $x$ - $z$  面视图角度, 图 12(a)–(f) 分别展示了  $a_z$  型、 $c'$  型、 $b_{xz}$  型、 $c$  型、 $b_{xy}$  型、 $a_x$  型的晶粒的退磁过程。

根据形核点位置的不同, 将以上 6 种晶粒分两部分讨论, 第一部分为  $a_z$  型、 $c'$  型、 $b_{xz}$  型及  $c$  型, 这 4 种晶粒的形核点均出现在壳层顶角处 (晶粒顶

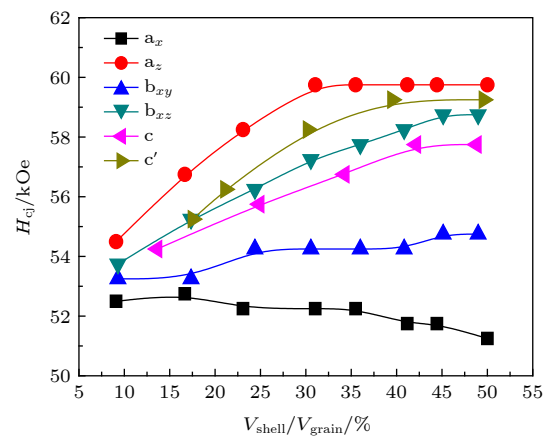


图 11 相同壳层体积下 6 种核壳结构矫顽力的比较

Fig. 11. Comparisons for the coercivity of six types of core-shell grain structure with the same shell volume.

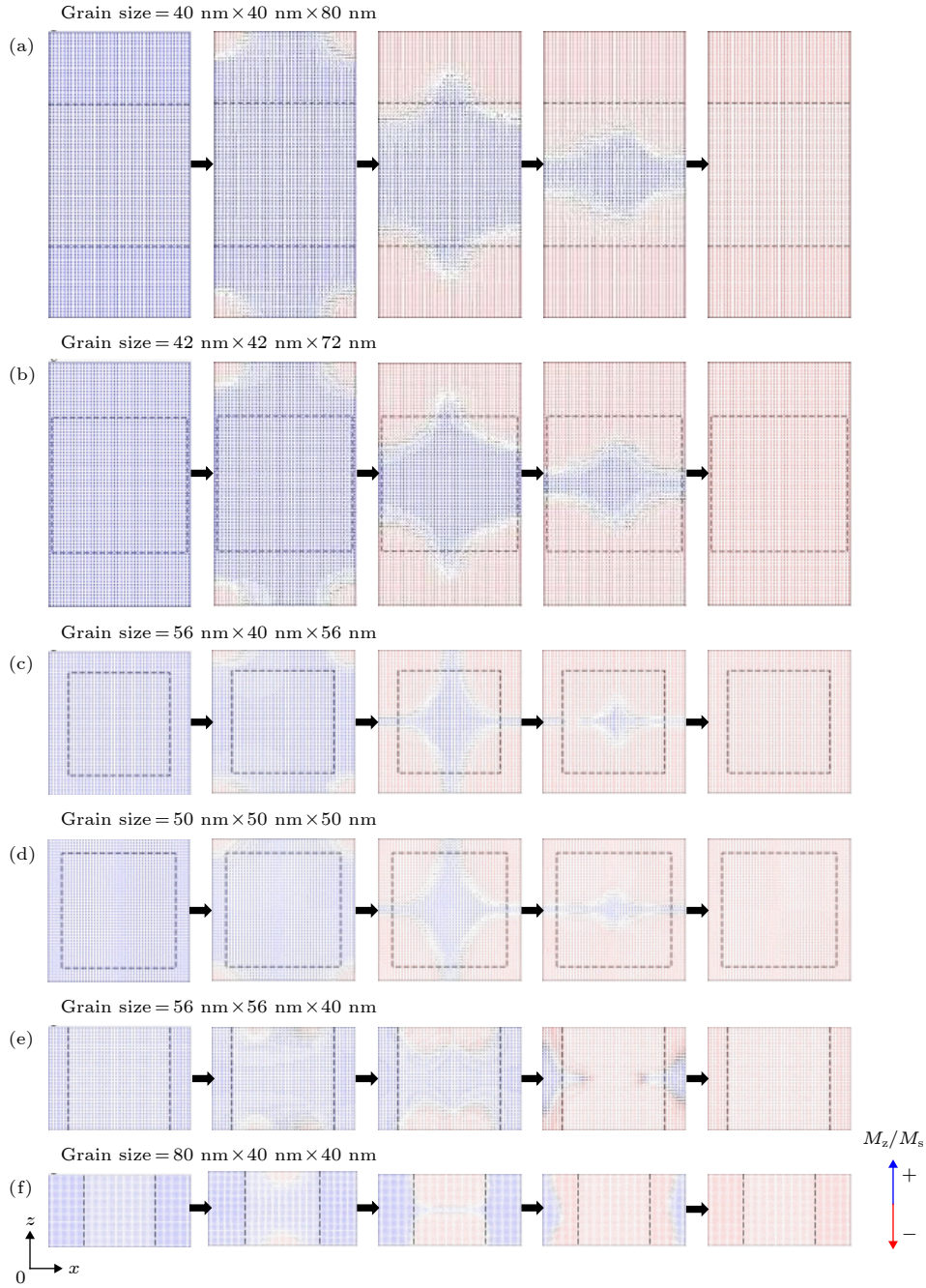


图 12  $V_{\text{shell}}/V_{\text{grain}} \approx 50\%$  时, 6 种晶粒的磁化反转过程图 ( $x$ - $z$  面视图) (a)  $a_z$  型 ( $x$ - $z$  面位置:  $y = 0.5$  nm; 外场为 59.75 kOe, 与矫顽力大小相同); (b)  $c'$  型 ( $x$ - $z$  面位置:  $y = 0.5$  nm; 外场为 59.25 kOe, 与矫顽力大小相同); (c)  $b_{xz}$  型 ( $x$ - $z$  面位置:  $y = 0.5$  nm; 外场为 58.75 kOe, 与矫顽力大小相同); (d)  $c$  型 ( $x$ - $z$  面位置:  $y = 0.5$  nm; 外场为 57.75 kOe, 与矫顽力大小相同); (e)  $b_{xy}$  型 ( $x$ - $z$  面位置:  $y = 18.5$  nm; 外场为 54.75 kOe, 与矫顽力大小相同); (f)  $a_x$  型 ( $x$ - $z$  面位置:  $y = 0.5$  nm; 外场为 51.25 kOe, 与矫顽力大小相同)

Fig. 12. The reversal magnetization processes of six types of grains when  $V_{\text{shell}}/V_{\text{grain}} \approx 50\%$  (view of  $x$ - $z$  plane): (a)  $a_z$  type ( $x$ - $z$  plane position:  $y = 0.5$  nm; external field is 59.75 kOe, same as coercive force); (b)  $c'$  type ( $x$ - $z$  plane position:  $y = 0.5$  nm; external field is 59.25 kOe, and the coercive force is the same); (c)  $b_{xz}$  type ( $x$ - $z$  plane position:  $y = 0.5$  nm; the external field is 58.75 kOe, which is the same as the coercive force); (d)  $c$  type ( $x$ - $z$  plane position:  $y = 0.5$  nm; the external field is 57.75 kOe, which is the same as the coercive force); (e)  $b_{xy}$  type ( $x$ - $z$  plane position:  $y = 18.5$  nm; the external field is 54.75 kOe, which is the same as the coercive force); (f)  $a_x$  type ( $x$ - $z$  plane position:  $y = 0.5$  nm; the external field is 51.25 kOe, which is the same as the coercive force).

角处), 而第二部分为  $b_{xy}$  型和  $a_x$  型, 这两种晶粒的形核点均出现在核部  $z$  面的棱边处. 图 11 的结果表明, 第一部分晶粒的矫顽力均大于第二部分晶粒

的矫顽力, 主要原因是第一部分晶粒的形核点成分为  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ , 具有较高的磁晶各向异性, 从而形核场较高, 矫顽力更大, 而第二部分晶粒的形核点成



分为  $(\text{Nd}_{0.7}\text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ , 具有较低的磁晶各向异性, 形核场较低, 矫顽力相对较低.

图 13 为第一部分 4 种晶粒的退磁曲线, 关于该 4 种晶粒, 其矫顽力大小为:  $a_z$  型  $>$   $c'$  型  $>$   $b_{xz}$  型  $>$   $c$  型. 因其形核点均位于壳层顶角处 (晶粒顶角处), 所以可从形核点处  $z$  轴方向的退磁场以及

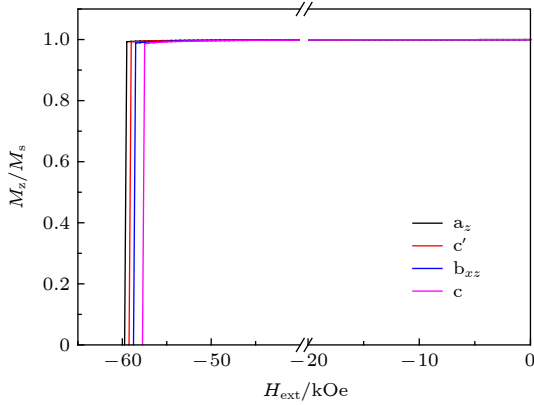


图 13 4 种晶粒的退磁曲线

Fig. 13. The demagnetization curves for four types of grains.

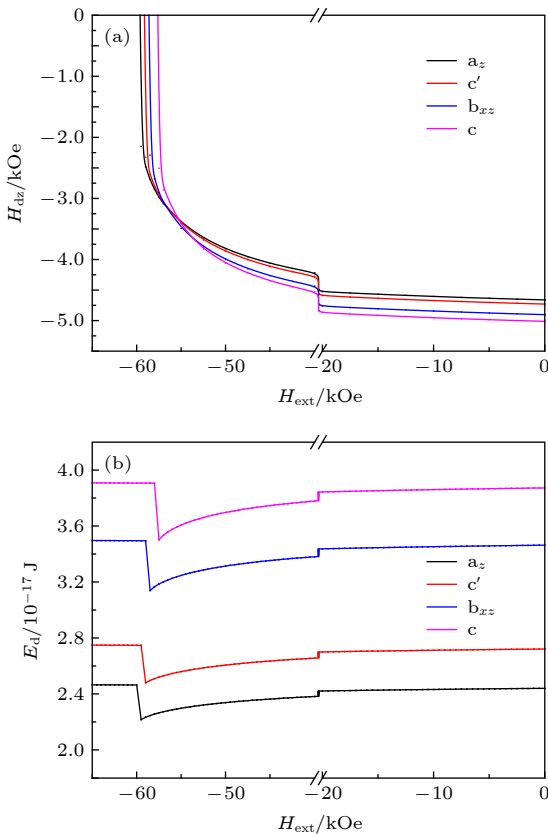


图 14 4 种晶粒 (a) 形核点处  $z$  轴方向退磁场  $H_{dz}$  的比较; (b) 总退磁能  $E_d$  的比较

Fig. 14. (a) Comparisons for the demagnetization field in  $z$ -axis direction  $H_{dz}$  of the nucleation points; (b) the total demagnetization energy  $E_d$  of four types of grains.

晶粒总退磁能的角度, 综合分析其矫顽力出现如此差别的原因. 如图 14 所示, 随着外场增加, 该 4 种晶粒形核点处退磁场的绝对值或晶粒的总退磁能的大小关系始终为:  $a_z$  型  $<$   $c'$  型  $<$   $b_{xz}$  型  $<$   $c$  型. 因为较大的退磁场或较大的退磁能均对退磁起到促进作用, 所以合理解释了该 4 种晶粒矫顽力不同的原因.

关于第二部分的两种晶粒, 其形核点均出现在核的  $z$  面棱边处, 综合图 10 的模型图及图 12(e) 与图 12(f) 的形核图可知,  $b_{xy}$  型晶粒核部与壳层的接触面积要大于  $a_x$  型晶粒, 另外,  $b_{xy}$  型晶粒的形核点与壳层相距较近, 而  $a_x$  型晶粒形核点与壳层相距较远. 两方面因素共同说明:  $b_{xy}$  型晶粒壳层磁矩与形核点处磁矩的交换相互作用要强于  $a_x$  型晶粒, 从而导致  $b_{xy}$  型晶粒形核点处的磁矩更难以翻转, 实现形核及退磁需要更大的外场辅助, 因此矫顽力更大.

## 4 结 论

本文以单晶粒核  $(\text{Nd}_{0.7}\text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ -壳  $(\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B})$  模型为研究对象, 在纳米尺度重点探究了核的尺寸、壳层厚度及壳层分布对磁体矫顽力的影响. 具体结论如下.

1) 保持壳层厚度不变, 矫顽力随核的尺寸增加而降低. 主要原因是核的尺寸增加导致晶粒平均各向异性场降低以及晶粒总退磁能升高, 使得晶粒在较小的外场下即可发生反磁化行为.

2) 保持核的尺寸不变, 矫顽力随壳层厚度增加呈现先增加后降低的趋势. 从形核点位置分析, 前期矫顽力增加的原因是, 形核点处于核壳交界且属于核的部分, 随壳层厚度增加, 壳层磁矩与形核点处磁矩的交换相互作用增强, 需要更大的外场辅助实现形核. 后期矫顽力降低的原因是, 形核点处于壳层顶角 (晶粒顶角), 壳层厚度的增加使得晶粒总退磁能增加, 从而在较小外场下即可形核.

3) 保持核的尺寸及壳层体积不变, 壳层仅均匀分布于核的两个  $z$  面时矫顽力最大. 主要原因是形核点处于壳层顶角 (晶粒顶角), 磁晶各向异性场相对更大, 且形核点处的退磁场较小.

## 参考文献

[1] Skomski R, Coey J M D 2016 *Scr. Mater.* **112** 112  
 [2] Sagawa M, Fujimura S, Togawa N, Yamamoto H, Matsuura

- Y 1984 *J. Appl. Phys.* **55** 2083
- [3] Hono K, Sepelri-Amin H 2012 *Scr. Mater.* **67** 530
- [4] Herbst J F, Meyer M S, Pinkerton F E 2012 *J. Appl. Phys.* **111** 07A718
- [5] Zhang H W, Zhao T Y, Rong C B, Zhang S Y, Han B S, Shen B G 2003 *J. Magn. Magn. Mater.* **267** 224
- [6] Gutfleisch O, Willard M A, Brück E, Chen C H, Sankar S G, Liu J P 2011 *Adv. Mater.* **23** 821
- [7] Minowa T 2008 *Resour. Geol.* **58** 414
- [8] Niu E, Chen Z A, Chen G A, Zhao Y G, Zhang J, Rao X L, Hu B P, Wang Z X 2014 *J. Appl. Phys.* **115** 113912
- [9] Xing M Y, Han J Z, Lin Z, Wan F M, Li C, Liu S Q, Wang C S, Yang J B, Yang Y C 2013 *J. Magn. Magn. Mater.* **331** 140
- [10] Boltich E B, Oswald E, Huang M Q, Hirose S, Wallace W E, Burzo E 1985 *J. Appl. Phys.* **57** 4106
- [11] Zhou S X, Wang Y G, Hoier R 1994 *J. Appl. Phys.* **75** 6268
- [12] Okada M, Sugimoto S, Ishizaka C, Tanaka T, Homma M 1985 *J. Appl. Phys.* **57** 4146
- [13] Li D, Bogatin Y 1991 *J. Appl. Phys.* **69** 5515
- [14] Yan C J, Guo S, Chen R J, Lee D, Yan A R 2014 *IEEE Trans. Magn.* **50** 2102605
- [15] Zhu M G, Han R, Li W, Huang S L, Zheng D W, Song L W, Shi X N 2015 *IEEE Trans. Magn.* **51** 2104604
- [16] Zhu M G, Li W, Wang J D, Zheng L Y, Li Y F, Zhang K, Feng H B, Liu T 2014 *IEEE Trans. Magn.* **50** 1000104
- [17] Huang S L, Feng H B, Zhu M G, Li A H, Li Y F, Sun Y C, Zhang Y, Li W 2015 *Int. J. Miner. Metall. Mater.* **22** 417
- [18] Li W, Li A H, Feng H B, Huang S L, Wang J D, Zhu M G 2015 *IEEE Trans. Magn.* **51** 2103603
- [19] Huang S L, Feng H B, Zhu M G, Li A H, Zhang Y, Li W 2014 *AIP Adv.* **4** 10727
- [20] Rong C B, Shen B G 2018 *Chin. Phys. B* **27** 117502
- [21] Shang R X, Xiong J F, Liu D, Zuo S L, Zhao X, Li R, Zuo W L, Zhao T Y, Chen R J, Sun J R, Shen B G 2017 *Chin. Phys. B* **26** 057502
- [22] Liu D, Zhao T Y, Li R, Zhang M, Shang R X, Xiong J F, Zhang J, Sun J R, Shen B G 2017 *AIP Adv.* **7** 056201
- [23] Li R, Liu Y, Zuo S L, Zhao T Y, Hu F X, Sun J R, Shen B G 2018 *Chin. Phys. B* **27** 047501
- [24] Li L, Dong S Z, Chen H S, Jiang R J, Li D, Han R, Zhou D, Zhu M G, Wei Li W, Sun W 2019 *Chin. Phys. B* **28** 037502
- [25] Sagawa M, Fujimura S, Yamamoto H, Matsuura T, Hirose S 1985 *J. Appl. Phys.* **57** 4094
- [26] Herbst J F 1991 *Rev. Mod. Phys.* **63** 819

# Micromagnetic simulations of reversal magnetization in core ((Nd<sub>0.7</sub>, Ce<sub>0.3</sub>)<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B)-shell (Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B) type\*

Li Dong    Dong Sheng-Zhi<sup>†</sup>    Li Lei    Xu Ji-Yuan  
Chen Hong-Sheng    Li Wei

(Division of Functional Materials Research, Central Iron and Steel Research Institute, Beijing 100081, China)

( Received 23 March 2020; revised manuscript received 28 April 2020 )

## Abstract

The effects of core size, shell thickness and shell distribution on the coercivity of single-grain core ((Nd<sub>0.7</sub>, Ce<sub>0.3</sub>)<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B)-shell (Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B) magnets are studied by programming and modeling them through using the C++ language. All the micromagnetic simulations are carried out via object oriented micro magnetic framework (OOMMF). The results show that the coercivity decreases with the increase of core size when the shell thickness is constant. It is considered that for the grain, the increase in the size of the core leads the average magnetocrystalline anisotropy field to increase and the total demagnetization energy to increase, thereby contributing to the magnetization reversal occurring under a smaller external field. When the core size is unchanged, as the shell thickness increases gradually, the coercivity first increases and then decreases. The analysis of the position of the nucleation point shows that the reason why the coercivity increases in the early period is mainly that the nucleation point is located at the core-shell junction and belongs to the core. As the thickness of the shell increases, the exchange interaction effect between the magnetic moment of the shell and the one of the nucleation point is strengthened, so a larger external field is needed in the nucleation process. As for the decrease of the coercivity in the later period, the main reason is that the nucleation points are exactly the vertices of the shell (also the vertices of the grain), and the increase of the shell thickness conduces to increasing the total demagnetization energy, so the nucleation points can be formed under a smaller external magnetic field. With core size and shell volume kept unchanged, when the shell is distributed on the two easy-axis planes (i.e. the planes perpendicular to the easy axis) of the core, the coercivity of the magnet reaches a largest value. It is because that the nucleation points are located at the vertices of the shell (also the vertices of the grain), of which the magnetocrystalline anisotropy field is larger, and the demagnetization field is smaller. Via magnetocrystalline anisotropy field, the demagnetization energy, nucleation point, etc, the changes of coercivity in above cases can be explained.

**Keywords:** micromagnetic simulation, (Nd, Ce)-Fe-B magnets, core-shell structure, coercivity

**PACS:** 75.78.Cd, 75.50.Ww, 75.78.-n

**DOI:** 10.7498/aps.69.20200435

\* Project supported by the Major Program of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 51590882) and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 51871063).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [dong\\_shengzhi@163.com](mailto:dong_shengzhi@163.com)