

Research  
Rare Earth Permanent Magnets—Article

## 永磁材料稀土减量化的计算设计

Alexander Kovacs<sup>a</sup>, Johann Fischbacher<sup>a</sup>, Markus Gusenbauer<sup>a</sup>, Harald Oezelt<sup>a</sup>, Heike C. Herper<sup>b</sup>, Olga Yu. Vekilova<sup>b</sup>, Pablo Nieves<sup>c,d</sup>, Sergiu Arapan<sup>c,d</sup>, Thomas Schrefl<sup>a,\*</sup>

<sup>a</sup> Department for Integrated Sensor Systems, Danube University Krems, Wiener Neustadt 2700, Austria

<sup>b</sup> Department of Physics and Astronomy, Uppsala University, Uppsala 75120, Sweden

<sup>c</sup> International Research Centre in Critical Raw Materials for Advanced Industrial Technologies, University of Burgos, Burgos 09001, Spain

<sup>d</sup> IT4Innovations, VSB-Technical University of Ostrava, Ostrava-Poruba 70833, Czech Republic

### ARTICLE INFO

#### Article history:

Received 29 June 2018

Revised 20 December 2018

Accepted 11 March 2019

Available online 21 November 2019

#### 关键词

稀土

永磁体

微磁学

### 摘要

多尺度模拟是研究新型永磁材料的关键工具。从第一性原理出发，我们利用一系列模拟方法计算出由新型磁性材料构成的永磁体的可能的最大矫顽力和最大磁能积。利用自适应遗传算法，我们发现了有利于形成永磁体的多种富铁（Fe）磁性相。我们利用从头计算模拟得到的材料本征特性作为微磁学模拟的输入参数，对具有真实结构的永磁体的磁滞特性进行了微磁模拟。我们利用机器学习技术对永磁体的微结构进行了优化，从而预测出该磁性相的矫顽力和最大磁能积的理论上限。我们计算了由几种候选硬磁相构造的永磁体的结构-性能关系，并用[矫顽力（T），最大磁能积（ $\text{kJ}\cdot\text{m}^{-3}$ ）]表示，具体结果如下：铁-锡-锑（ $\text{Fe}_3\text{Sn}_{0.75}\text{Sb}_{0.25}$ ）永磁体为（0.49, 290）； $L1_0$ 型有序相的铁-镍（ $L1_0\text{FeNi}$ ）永磁体为（1, 400）；钴-铁-钽（ $\text{CoFe}_6\text{Ta}$ ）永磁体为（0.87, 425）；锰-铝（ $\text{MnAl}$ ）永磁体为（0.53, 80）。

© 2020 THE AUTHORS. Published by Elsevier LTD on behalf of Chinese Academy of Engineering and Higher Education Press Limited Company This is an open access article under the CC BY-NC-ND license (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>).

## 1. 引言

永磁体在现代社会中得到了广泛的应用。永磁体[1]的重要应用市场包括风力发电、混合动力和电动汽车、电动自行车、空调、声音传感器以及硬盘驱动器。随着环境友好型交通运输业和能源发电行业对永磁体需求的不断增长[2]，人们一直在寻求减少稀土含量或可作为备选的高效利用稀土或无稀土的硬磁相。某些备选的硬磁相性能介于铁氧体和高性能 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 磁体之间[3]。

在本研究中，我们从第一性原理出发，概述了如何预测虚拟磁体的磁性。本文所研究的材料建模工作流程

是一个具有参数传递特征的传统多尺度模拟实例。为了计算永磁体的磁滞特性，我们将几个物理模型联合在一起，如将遗传算法与密度泛函理论相结合，用以指导寻找稳定的单轴铁磁相。这个过程可以由材料数据库的数据挖掘辅助完成。然后，我们应用密度泛函理论计算自发磁化、磁晶各向异性及交换积分等内禀磁性。将结果输入到原子自旋动力学模型，我们可以计算出磁化强度、各向异性常数和交换积分常数的温度特性。然后将这些与温度相关的属性用作微磁学模拟的输入参数。数值优化工具有助于调整微观结构，从而在给定的内禀磁性下使矫顽力或磁能积达到最大值。

\* Corresponding author.

E-mail address: [thomas.schrefl@donau-uni.ac.at](mailto:thomas.schrefl@donau-uni.ac.at) (T. Schrefl).

另外，我们研究了热起伏对矫顽力的影响[4]。通过对微磁学模拟结果的分析，我们可以确定相对于材料的各向异性场，晶粒取向、退磁场和热起伏等因素对矫顽力的影响程度的差异。

本文的研究重点是根据预期的矫顽力和磁能积等外禀磁性预测各种无稀土或少稀土的永磁相可能性。一个足够高的矫顽力和磁能积是新磁性相应用的关键。这些性能是永磁体的内禀磁性、微观结构和热起伏之间相互作用的结果。因此，本文的主要内容是关于磁滞特性的微磁学模拟结果，这部分将介绍已知的磁性相（ $L1_0$  FeNi、 $Nd_{0.2}Zr_{0.8}Fe_{10}Si_2$ 、 $Sm_{0.7}Zr_{0.3}Fe_{10}Si_2$ ），以及用遗传算法和密度泛函理论预测的磁性相（ $Fe_5Ge$ 、 $CoFe_6Ta$ ）。通过第一性原理模拟（ $Fe_5Ge$ 、 $CoFe_6Ta$ 、 $Fe_3Sn_{0.75}Sb_{0.25}$ ）和原子自旋动力学（MnAl）计算了部分磁性相的内禀磁性。

本文所涉及的研究结果主要集中于各种硬磁相预期性能的微磁学计算领域。关于自适应遗传算法（AGA）用于搜索新磁相的详细信息，请读者查阅最近的文章。在这些文章中，我们利用该方法研究了 $Fe_3Sn$  [5]、 $CoFe_2P$  [6]和 $L1_0$ 结构[7]中的磁性相。关于第一性原理模拟计算磁性的结果见参考文献[8]。Fischbacher等[9]概述了计算微观组织影响矫顽力和磁能积的微磁学基本技术。

## 2. 方法

我们将AGA [7]与维也纳从头计算模拟软件包（VASP）[10]相结合，扫描了稳定的非立方富铁（Fe）化合物的相空间；利用相对论自旋极化工具包（RSPt）[8]中的全电子赝势线性muffin-tin轨道法计算了材料的磁性；采用开源三维（3D）多晶结构生成工具Neper [11]构建了人造微结构。

通过一个Python脚本控制开源计算机辅助设计（CAD）软件Salome [12]，我们引入具有特定厚度的晶界相，并生成有限元网格。对于这些人造微结构，我们可以利用预先设定好的非线性共轭梯度法，通过微磁能最小化方式来计算其退磁曲线[13]。开源优化软件Dakota [14]可被用于管理更高的矫顽力 $\mu_0H_c$ 和最大磁能积 $(BH)_{max}$ 的搜索。因此，我们可以找到给定硬磁相的最佳结构。我们用 $M(H_{ext})$ 回线，即磁化强度随外磁场的变化曲线，来表征磁体的磁性。退磁曲线经过退磁场修正。在实验中，当样品的磁滞回线不是在闭路情况下被测试

时，我们将采用类似的退磁场修正。接下来，我们将磁化强度变换为磁感应强度 $B$ ，来获得 $B(H_{int})$ 曲线和最大磁能积。这里的 $H_{int}$ 是样品内部磁场强度。

最后，我们考虑通过热激活方式来降低矫顽力。我们计算了使形核势垒减小到 $25 k_B T$ 时的外场临界值，其中 $k_B$ 是玻尔兹曼常数， $T$ 是测量温度。由于热起伏，该系统可以在1 s的等待时间内越过这一能量势垒[15]。我们采用字符串修正（modified string）算法[16]，计算了 $T = 300$  K时不同外磁场下的形核势垒。通过对由热激活方法引起的矫顽力的减小量进行计算，我们给出了某种硬磁相矫顽力[4]的极限值。

## 3. 结果

### 3.1. 无稀土相

利用AGA遗传算法[7]，我们对铁-钴-钽（Fe-Co-Ta）体系的晶体结构相空间进行搜索，以寻找高稳定性的非立方晶系的晶体结构。对于 $CoFe_6Ta$ 而言，我们对每个分别包含有8个和16个原子体系的晶胞进行了两次模拟。我们确定了各种非立方稳定相。一些最稳定的非立方相分别是四方晶系（空间群115）、三角晶系（空间群160）、正交晶系（空间群38）和正交晶系（空间群63，其中晶格参数 $a$ 和 $b$ 值是非常接近的），它们的体系生成焓分别为 $-0.07033$  eV/原子、 $-0.06353$  eV/原子、 $-0.06025$  eV/原子和 $-0.05929$  eV/原子。这些理论计算的数据和结果可以在Novomag数据库[17]以及相应的参考文献[18–21]中找到。其中，基态能量最低的体系出现在单斜晶系（空间群8），其形成焓为 $-0.07488$  eV/原子[22]。这些结果与使用AGA遗传算法的高通量密度泛函理论（在绝对零度温度下）的计算结果相一致，其中所有采用广义梯度近似（GGA）的计算结果都使用了相似的默认设置。为了更详细地分析这些相的稳定性，我们建议计算有限温度下的自由能，具体的表达式包含了电子的自由能项、声子的自由能项和磁相互作用的自由能项[23]。在空间群号为63和160的体系中， $CoFe_6Ta$ 表现出了单轴磁晶各向异性特性。这些相体系的完整理论研究正在进行中，并计划在不久的将来对其进行专题报道，所以在这里我们仅选择性地提及了部分初步结果。通过使用RSPt代码[8]，我们计算出空间群号为63的 $CoFe_6Ta$ 的各向异性常数（ $K$ ）和自发磁化强度（ $\mu_0M_s$ ），分别为 $K = 1$  MJ·m<sup>-3</sup>和 $\mu_0M_s = 1.82$  T。

图1显示了 $CoFe_6Ta$ 体系不同纳米结构的微磁学模拟

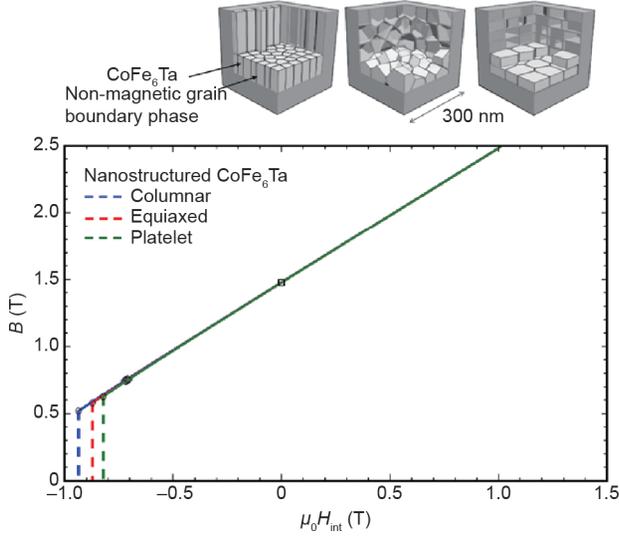


图1. 不同纳米结构的CoFe<sub>6</sub>Ta的B-H的曲线关系。纳米结构化是获得高矫顽力的关键因素。矫顽力随着晶粒长径比的增大而增大。柱状晶、等轴晶和片状晶晶粒长径比分别为4.3:1、1:1和0.47:1。

$B(H_{int})$ 曲线。对于具有柱状晶、等轴晶和片状晶的纳米结构，它们的晶粒体积大致相同，分别为 $34 \text{ nm} \times 34 \text{ nm} \times 146 \text{ nm}$ 、 $56 \text{ nm} \times 56 \text{ nm} \times 56 \text{ nm}$ 和 $72 \text{ nm} \times 72 \text{ nm} \times 34 \text{ nm}$ 。磁体的宏观形状是边长为 $300 \text{ nm}$ 的立方体。当非磁性晶界相的体积分数为18%时，最大磁能积为 $425 \text{ kJ} \cdot \text{m}^{-3}$ 。

具有非立方单轴晶体结构的富铁基材料是无稀土永磁体的理想候选材料。由于它们具有六方晶体结构和高自发磁化强度的特点，所以我们考虑采用Fe<sub>3</sub>Sn基化合物作为无稀土永磁材料。然而，Fe<sub>3</sub>Sn在模拟和实验过程中均显示出易面各向异性[24]。用锑(Sb)替代锡(Sn)会将易面各向异性转变为单轴各向异性。实验结果表明，Fe<sub>3</sub>Sn<sub>0.75</sub>Sb<sub>0.25</sub>的单轴各向异性常数 $K = 0.33 \text{ MJ} \cdot \text{m}^{-3}$ 、自发磁化强度为 $\mu_0 M_s = 1.52 \text{ T}$  [25]。将这些特性分配给平均晶粒大小为 $50 \text{ nm}$ 的人造晶粒。我们所使用的主相交换积分常数 $A = 10 \text{ pJ} \cdot \text{m}^{-1}$ 。分割主相晶粒的弱铁磁晶界(gb)相的磁化强度为 $\mu_0 M_{s,gb} = 0.81 \text{ T}$ 、交换积分常数为 $A_{gb} = 3.7 \text{ pJ} \cdot \text{m}^{-1}$ 。使用以上参数进行的反磁化过程的微磁学模拟结果(图2 [25])显示，由于晶界处的畴壁钉扎作用，多畴态在不可逆翻转过程后仍保持稳定。计算出的最大磁能积由矫顽力决定。仅当纳米结构化永磁体的晶粒尺寸小于 $50 \text{ nm}$ 时，永磁体的磁能积才能达到 $290 \text{ kJ} \cdot \text{m}^{-3}$ 的最大值。不幸的是，Fe<sub>3</sub>Sn<sub>0.75</sub>Sb<sub>0.25</sub>不稳定。我们尝试通过添加少量锰(Mn)来稳定Fe<sub>3</sub>Sn<sub>0.75</sub>Sb<sub>0.25</sub>相的做法是可行的。但是，由于电子结构和价电子数的变化，锰掺杂Fe<sub>3</sub>Sn<sub>0.75</sub>Sb<sub>0.25</sub>体系又

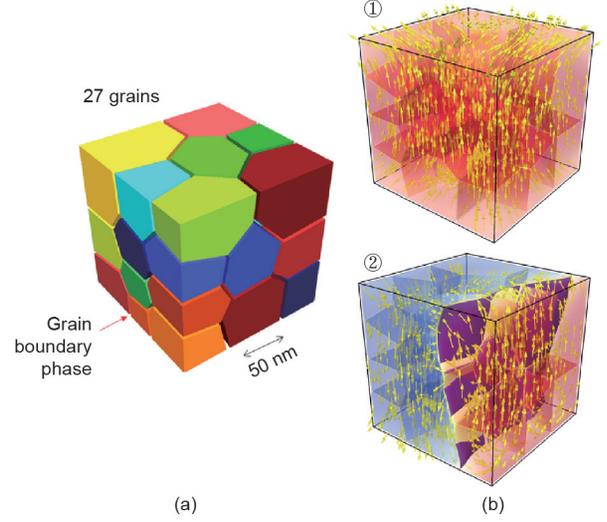


图2. Fe<sub>3</sub>Sn<sub>0.75</sub>Sb<sub>0.25</sub>磁体中的畴壁-微观结构相互作用。(a) 晶粒结构；(b) 在内磁场 $\mu_0 H_{int} = 0.49 \text{ T}$ 时，由于晶界处的畴壁钉扎作用，花状磁畴态①分裂为双磁畴态②。该图经美国物理学会许可，转载自参考文献[25]，©2019。

显示出易面各向异性[25]。

### 3.2. 微观结构优化

为了计算微观结构对磁滞回线特性的影响，我们改变了晶粒尺寸、晶粒形状、晶界相厚度和晶界相中的磁化强度。利用软件工具Dakota [14]，我们设计了模拟的样品空间结构。

我们采用无量纲单位处理，以便得到微观结构特征对矫顽力影响的一般性趋势。矫顽力的单位用各向异性场的单位 $2 K / (\mu_0 M_s)$ 进行表示。晶界磁化强度以硬磁主相的磁化强度 $M_{s,bulk}$ 为单位进行测算。晶粒尺寸和晶界厚度以硬磁材料的特征长度，即布洛赫参数 $\delta_0 = (A/K)^{1/2}$ ，为单位进行表述。通过改变由L1<sub>0</sub> FeNi (块状)、MnAl和Nd<sub>0.2</sub>Zr<sub>0.8</sub>Fe<sub>10</sub>Si<sub>2</sub> (表1) [25–30]体系构成的磁体微观结构，得到如图3、图4所示的结果。微磁学模拟所采用的晶粒结构如图3 (c) 所示。由于我们采用了无量纲单位制，所以晶界相、晶粒尺寸和晶粒纵横比对其他硬磁相矫顽力的影响可以从给出的数据中得到。

为了分析晶界性质对矫顽力和最大磁能积的影响，我们在多晶结构模型中考虑了晶界相的厚度和磁化强度。在磁体尺寸不变的情况下，晶界相厚度的变动范围设定为 $1.1 \delta_0 \sim 4.4 \delta_0$ 。晶界相磁化强度的变化范围为 $0.05 M_{s,bulk}$ 至 $0.55 M_{s,bulk}$ 。根据公式 $A_{gb} = A_{bulk} (M_{s,gb} / M_{s,bulk})^2$ ，晶界相的交换积分常数与磁化强度的平方成正比[31]，因此，晶界相从几乎无磁性相变化到铁磁性相。模拟过程中的多晶结构如图3所示，平均晶粒尺寸为 $37 \delta_0$ 。

表1 各向异性常数 ( $K$ )、自发磁化强度 ( $\mu_0 M_s$ ) 和图5模拟计算中采用的交换积分常数 ( $A$ )

Phase	$K$ ( $\text{MJ}\cdot\text{m}^{-3}$ )	$\mu_0 M_s$ (T)	$A$ ( $\text{pJ}\cdot\text{m}^{-1}$ )	References
$\text{Fe}_5\text{Ge}$	0.23	1.8	14.7	
$\text{Ll}_0\text{FeNi}$ (Si substrate)	0.38	1.5	10	[26]
$\text{Fe}_3\text{Sn}_{0.75}\text{Sb}_{0.25}$	0.33	1.52	10	[25]
$\text{CoFe}_6\text{Ta}$	1	1.82	14.9	[21]
$\text{Ll}_0\text{FeNi}$ (bulk)	1.1	1.38	10	[27]
$\text{MnAl}$	0.7	0.8	7.6	[28]
$(\text{Nd}_{0.2}\text{Zr}_{0.8})\text{Fe}_{10}\text{Si}_2$	1.16	1.12	10	[29]
$(\text{Sm}_{0.7}\text{Zr}_{0.3})\text{Fe}_{10}\text{Si}_2$	3.5	1.08	10	[30]

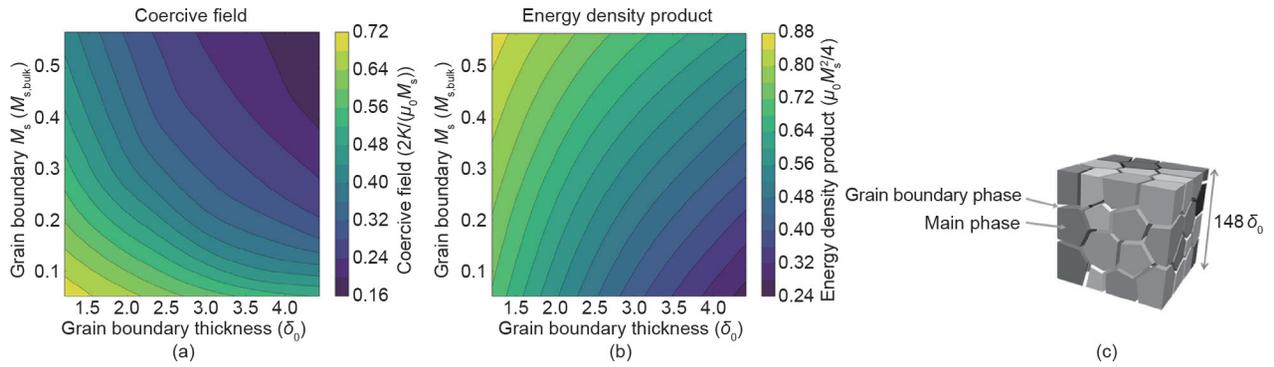


图3. 矫顽力 (a) 和磁能积 (b) 随晶界特性的变化关系; (c) 模拟中的晶粒结构。

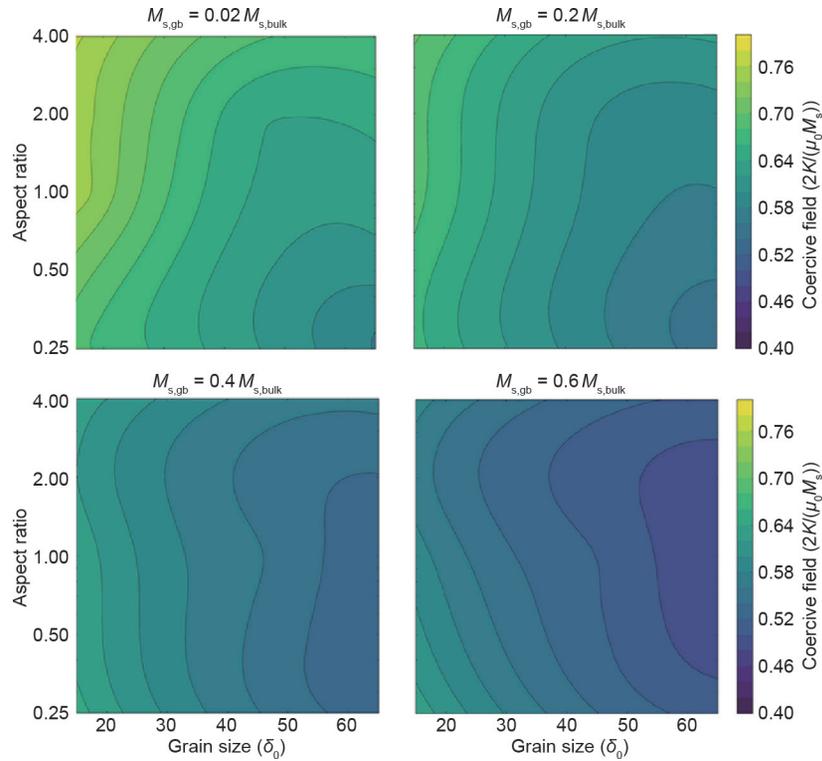


图4. 晶粒尺寸和晶粒形状的影响。等高线表示矫顽力与晶粒尺寸和晶粒长径比的变化关系。不同的区域表示晶界相厚度为  $\delta_0$  的不同饱和磁化强度条件下的模拟结果。

显然，最大矫顽力是在一个薄且几乎无磁性的晶界相条件下达到的。不论是晶界厚度的增加还是晶界磁化强度的增加都会减弱矫顽力。晶界相的磁化强度对总磁化强度是有贡献的。因此，最大磁能积出现在当晶界较薄且晶界处磁化强度中等的条件下。我们可以得出结论，即使是铁磁性晶界相，只要厚度足够小，也可以获得性能良好的磁滞回线特性。例如，当晶界相的磁化强度约为硬磁主相的一半时，晶界厚度为 $2\delta_0$ 时的矫顽力可以达到 $0.4 \times 2K/(\mu_0 M_s)$ 。

弱软磁晶界相可以看作一种软磁缺陷。一些微磁学研究表明，磁化翻转起始于这样的晶界[32]。模拟结果表明，矫顽力随着晶界相自发磁化强度的增加而减小。此外，矫顽力随着晶界相厚度的增加而减小。虽然具有弱软磁晶界相的多晶磁体的微观结构更为复杂，但利用其得到的研究结果与Richter报道的结果相类似[33]。Richter的研究工作表明一维微磁学模型中软磁缺陷尺寸与成核场有相似的依赖关系。反向畴壁的形核能随软磁缺陷厚度的减小而增加。在晶界相较薄的磁体中，晶核的畴壁向硬磁主相扩展，并且畴壁能量将增大。因此，晶界相较薄的磁体具有较高的矫顽力。

接下来，我们对模型进行了修改。在晶界厚度为 $\delta_0$ 不变的情况下，我们改变晶界相的磁化强度、晶粒尺寸和晶粒的长径比。我们将长径比大于1:1的晶粒定义为细长的针状晶粒，将长径比小于1:1的晶粒定义为片状晶粒。

图4显示了晶界相不同磁化强度时磁体的矫顽力随晶粒尺寸和长径比的变化规律。对于几乎无磁性的晶界相，矫顽力随长径比的增大而增强。这意味着针状晶粒的磁体比片状晶粒的磁体具有更高的矫顽力。当晶界相的磁化强度增加时，晶粒尺寸和长径比对矫顽力的增强效应将减弱。对于 $M_{s,gb} = 0.4 M_{s,bulk}$ ，矫顽力几乎不会随着长径比的变化而变化。当晶界相的磁化强度较大时，这种变化趋势正好相反，即片状晶粒的矫顽力比针状晶粒的略高。晶粒尺寸效应对矫顽力的影响在片状晶粒中更为明显。

图3中的结果还表明，几乎无磁性的晶界( $0.05 M_{s,bulk}$ )可以获得最高的矫顽力。而且，这个矫顽力比自发磁化强度为 $0.55 M_{s,bulk}$ 的晶界相时的强4.5倍。图4表明，矫顽力随晶粒尺寸的减小而增加。我们可以得出结论，晶粒尺寸小且互相解耦的磁体具有最强的矫顽力。实际上，在图4左上图的左上点，我们可以发现最强矫顽力，即 $M_{s,gb} = 0.02 M_{s,bulk}$ 。在这里，我们采用的是一个纳米结

构系统，其晶粒尺寸小于 $20\delta_0$ ，且晶粒之间无交换作用。

### 3.3. 矫顽力的极限值

我们可以利用数值微磁学模拟分离出导致磁体的矫顽力相对于各向异性场减小的效应。我们在不考虑静磁场的条件下计算了退磁曲线。如果计算出的矫顽力低于各向异性场，那么这一定是由于晶粒取向或软磁第二相引起的。在第二步中，我们考虑静磁相互作用，并再次模拟退磁曲线。此时矫顽力减弱的原因一定是退磁效应引起的。最后，我们可以对系统如何从一个亚稳态越过最低能垒的过程进行模拟，从而可以给出矫顽力的温度依赖特性[4]。

在接下来的分析中，我们假设不存在软磁第二相。小立方体的边长为40 nm，外磁场的方向偏离小立方体的易轴方向 $1^\circ$ 。减弱各向异性场的因素为：①取向差、②退磁效应和③热起伏。本文计算的矫顽力是一个理想的结构，即晶粒尺寸非常小（40 nm）并且没有缺陷。因此，该矫顽力是给定硬磁相的矫顽力的上限。

我们将此方法应用于无稀土或少稀土磁体的几个候选相结构。对于每个相，我们分别给出了取向差、退磁效应和热起伏条件下的各向异性场（图5）。模拟计算中用到的内禀磁性见表1。我们在温度为300 K的情况下，通过原子自旋动力学计算获取了MnAl的各向异性常数、自发磁化强度和交换积分常数。Fe<sub>5</sub>Ge是AGA预测的富铁二元相。Fe<sub>5</sub>Ge、Fe<sub>3</sub>Sn<sub>0.75</sub>Sb<sub>0.25</sub>和CoFe<sub>6</sub>Ta的各向异性常数和自发磁化强度是在温度为0 K时，通过第一原理模拟获得的。Fe<sub>5</sub>Ge和CoFe<sub>6</sub>Ta的交换积分常数

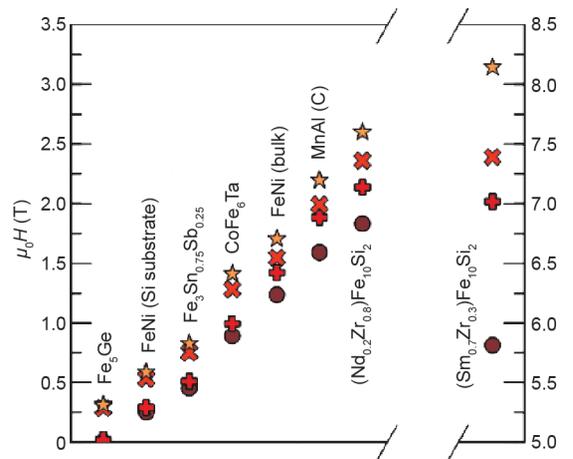


图5. 矫顽力的极限值。不同永磁体候选相中矫顽力的数值。图中的符号代表矫顽力。星号表示各向异性场；X符号表示无静磁场的微磁学模拟结果；加号表示有静磁耦合的微磁学模拟结果；圆形符号表示具有热起伏的微磁学模拟结果。请注意(Sm,Zr)Fe<sub>10</sub>Si<sub>2</sub>的 $\mu_0 H$ 轴的刻度不同。

与自发磁化强度的平方 ( $A = cM_s^2$ ) 成正比, 其中  $c$  通过  $\alpha$ -Fe 的  $M_s$  和  $A$  计算得到。L1<sub>0</sub> FeNi、(Nd<sub>0.2</sub>Zr<sub>0.8</sub>)Fe<sub>10</sub>Si<sub>2</sub> 和 (Sm<sub>0.7</sub>Zr<sub>0.3</sub>)Fe<sub>10</sub>Si<sub>2</sub> 的内禀参数是温度为 300 K 时的实验数据, 该数据来源于文献。如果交换积分常数值没有可获取来源, 我们采用  $A = 10 \text{ pJ} \cdot \text{m}^{-1}$  [34]。

计算结果清楚地表明, 大多数无稀土的磁体的矫顽力很难大于 1 T。对于 FeNi (块状), 我们假定其具有高度均匀的化学有序度, 但是实验合成的 L1<sub>0</sub> FeNi 颗粒可能含有局部化学有序度减弱的斑块。这些相应的磁晶各向异性减弱的局部斑块会使矫顽力变差。类似地, 孪晶或反相晶界等晶体缺陷会降低 MnAl 磁体 [35] 的矫顽力。锆 (Zr) 元素替代的 ThMn<sub>12</sub> 结构的稀土永磁体具有较低的稀土含量。此外, 较高的 ThMn<sub>12</sub> 结构的磁晶各向异性场, 特别是 (Sm,Zr)Fe<sub>10</sub>Si<sub>2</sub> 磁体的磁晶各向异性场, 足以得到一个合理的矫顽力。在考虑热起伏的情况下, 对于 (Nd<sub>0.2</sub>Zr<sub>0.8</sub>)Fe<sub>10</sub>Si<sub>2</sub> 和 (Sm<sub>0.7</sub>Zr<sub>0.3</sub>)Fe<sub>10</sub>Si<sub>2</sub>, 我们计算得到的矫顽力是磁晶各向异性场的 70% (图 5 中的圆点代表的结果)。

## 4. 结论

在本研究中, 我们展示了如何利用材料模拟进行下一代少稀土永磁体的计算设计。根据以上结果, 我们可以得出以下结论:

- (1) 纳米结构化是获得具有中等磁晶各向异性的无稀土化合物的高矫顽力的关键因素。
- (2) 矫顽力随着晶界相的磁化强度和晶界相厚度的增加而降低。
- (3) 然而, 即使是中等铁磁性晶界相, 只要晶界足够薄, 也可以获得优良的永磁性能。
- (4) 晶粒的形状仅对几乎无磁性的晶界十分重要。晶粒形状在铁基铁磁性晶界相的系统中的作用并不大。
- (5) 热起伏可能会大幅度减弱矫顽力。因此, 即使在完美的结构中, 矫顽力也会远远弱于各向异性场。

## Acknowledgements

This work was supported by the EU H2020 project NOVAMAG (686056) and the Austrian Science Fund FWF (I3288-N36). Sergiu Arapan and Pablo Nieves acknowledge the European Regional Development Fund in the IT4Inno-

vations National Supercomputing Center—path to exascale project (CZ 02.1.01/0.0/0.0/16-013/0001791) within the Operational Programme Research, Development and Education, and IT4Innovations computational resources allocated within projects OPEN-11-33, OPEN-14-23, and OPEN-17-14.

## Compliance with ethics guidelines

Alexander Kovacs, Johann Fischbacher, Markus Gusenbauer, Harald Oezelt, Heike C. Herper, Olga Yu. Vekilova, Pablo Nieves, Sergiu Arapan, and Thomas Schrefl declare that they have no conflict of interest or financial conflicts to disclose.

## References

- [1] Constantinides S. Permanent magnets in a changing world market. *Magn Mag* 2016;Spring: 6–9.
- [2] Nakamura H. The current and future status of rare earth permanent magnets. *Scr Mater* 2018;154:273–6.
- [3] Coey JMD. Permanent magnets: plugging the gap. *Scr Mater* 2012;67(6):524–9.
- [4] Fischbacher J, Kovacs A, Oezelt H, Gusenbauer M, Schrefl T, Exl L, et al. On the limits of coercivity in permanent magnets. *Appl Phys Lett* 2017;111(7):072404.
- [5] Nieves P, Arapan S, Hadjipanayis GC, Niarchos D, Barandiaran JM, Cuesta-López S. Applying high-throughput computational techniques for discovering next-generation of permanent magnets. *Phys Status Solidi C* 2016;13(10–12):942–50.
- [6] Nieves P, Arapan S, Cuesta-López S. Exploring the crystal structure space of CoFe<sub>2</sub>P by using adaptive genetic algorithm methods. *IEEE Trans Magn* 2017;53(11):1–5.
- [7] Arapan S, Nieves P, Cuesta-López S. A high-throughput exploration of magnetic materials by using structure predicting methods. *J Appl Phys* 2018;123(8):083904.
- [8] Wills JM, Alouani M, Andersson P, Delin A, Eriksson O, Grechnev O. Full-potential electronic structure method: energy and force calculations with density functional and dynamical mean field theory. Berlin: Springer-Verlag; 2010.
- [9] Fischbacher J, Kovacs A, Gusenbauer M, Oezelt H, Exl L, Bance S, et al. Micromagnetics of rare-earth efficient permanent magnets. *J Phys Appl Phys* 2018;51(19):193002.
- [10] Kresse G, Joubert D. From ultrasoft pseudopotentials to the projector augmented-wave method. *Phys Rev B* 1999;59(3):1758–75.
- [11] Quey R, Renversade L. Optimal polyhedral description of 3D polycrystals: method and application to statistical and synchrotron X-ray diffraction data. *Comput Methods Appl Mech Eng* 2018;330:308–33.
- [12] Salome-platform [Internet]. Guyancourt: OPEN CASCADE SAS; c2005–2019 [cited 2018 Feb 1]. Available from: <http://www.salome-platform.org/>.
- [13] Exl L, Fischbacher J, Kovacs A, Oezelt H, Gusenbauer M, Schrefl T. Preconditioned nonlinear conjugate gradient method for micromagnetic energy minimization. *Comput Phys Commun* 2019;235:179–86.
- [14] Adams BM, Bohnhoff WJ, Dalbey KR, Eddy JP, Eldred MS, Gay DM, et al. Dakota, a multilevel parallel object-oriented framework for design optimization, parameter estimation, uncertainty quantification, and sensitivity analysis: version 5.0 user's manual. Livermore: Sandia National Laboratories; 2009. Report No.: SAND2010-2183.
- [15] Gaunt P. Magnetic viscosity in ferromagnets: I. phenomenological theory. *Philos Mag* 1976;34(5):775–80.
- [16] Carilli MF, Delaney KT, Fredrickson GH. Truncation-based energy weighting string method for efficiently resolving small energy barriers. *J Chem Phys* 2015;143(5):054105.
- [17] Nieves P, Arapan S, Maudes-Raedo J, Marticorena-Sánchez R, Brío N D, Kovacs A, et al. Database of novel magnetic materials for high-performance permanent magnet development. *Comput Mater Sci* 2019;168: 188–202.

- [18] Material features: NOVAMAG\_theory\_ICCRAM\_Co2Fe12Ta2\_#115\_1 [Internet]. Burgos: ADMIRABLE Group; c2018 [cited 2018 Nov 1]. Available from: [http://crono.ubu.es/novamag/show\\_item\\_features?mafid=1574](http://crono.ubu.es/novamag/show_item_features?mafid=1574).
- [19] Material features: NOVAMAG\_theory\_ICCRAM\_Co1Fe6Ta1\_#160\_1 [Internet]. Burgos: ADMIRABLE Group; c2018 [cited 2018 Nov 1]. Available from: [http://crono.ubu.es/novamag/show\\_item\\_features?mafid=1545](http://crono.ubu.es/novamag/show_item_features?mafid=1545).
- [20] Material features: NOVAMAG\_theory\_ICCRAM\_Co1Fe6Ta1\_#38\_1 [Internet]. Burgos: ADMIRABLE Group; c2018 [cited 2018 Nov 1]. Available from: [http://crono.ubu.es/novamag/show\\_item\\_features?mafid=1534](http://crono.ubu.es/novamag/show_item_features?mafid=1534).
- [21] Material features: NOVAMAG\_theory\_ICCRAM\_Co2Fe12Ta2\_#63\_1 [Internet]. Burgos: ADMIRABLE Group; c2018 [cited 2018 Nov 1]. Available from: [http://crono.ubu.es/novamag/show\\_item\\_features?mafid=1579](http://crono.ubu.es/novamag/show_item_features?mafid=1579).
- [22] Material features: NOVAMAG\_theory\_ICCRAM\_Co4Fe24Ta4\_#8\_1 [Internet]. Burgos: ADMIRABLE Group; c2018 [cited 2018 Nov 1]. Available from: [http://crono.ubu.es/novamag/show\\_item\\_features?mafid=1551](http://crono.ubu.es/novamag/show_item_features?mafid=1551).
- [23] Lizárraga R, Pan F, Bergqvist L, Holmström E, Gercsi Z, Vitos L. First principles theory of the hcp–fcc phase transition in cobalt. *Sci Rep* 2017;7(1):3778.
- [24] Sales BC, Saporov B, McGuire MA, Singh DJ, Parker DS. Ferromagnetism of Fe<sub>3</sub>Sn and alloys. *Sci Rep* 2014;4(1):7024.
- [25] Vekilova OY, Fayyazi B, Skokov KP, Gutfleisch O, Echevarria-Bonet C, Barandiarán JM, et al. Tuning the magnetocrystalline anisotropy of Fe<sub>3</sub>Sn by alloying. *Phys Rev B* 2019;99(2):024421.
- [26] Kovacs A, Fischbacher J, Oezelt H, Schrefl T, Kaidatzis A, Salikhov R, et al. Micromagnetic simulations for coercivity improvement through nano-structuring of rare-earth free L1<sub>0</sub>-FeNi magnets. *IEEE Trans Magn* 2017;53(11):7002205.
- [27] Niarchos D, Gjoka M, Psycharis V, Devlin E. Towards realization of bulk L1<sub>0</sub>-FeNi. In: *Proceedings of 2017 IEEE International Magnetism Conference (INTERMAG)*; 2017 Apr 24–28; Dublin, Ireland; 2017.
- [28] Nieves P, Arapan S, Schrefl T, Cuesta-Lopez S. Atomistic spin dynamics simulations of the MnAl  $\tau$ -phase and its antiphase boundary. *Phys Rev B* 2017;96(22):224411.
- [29] Gjoka M, Psycharis V, Devlin E, Niarchos D, Hadjipanayis G. Effect of Zr substitution on the structural and magnetic properties of the series Nd<sub>1-x</sub>Zr<sub>x</sub>Fe<sub>10</sub>Si<sub>2</sub> with the ThMn<sub>12</sub> type structure. *J Alloys Compd* 2016;687:240–5.
- [30] Gabay AM, Cabassi R, Fabbri S, Albertini F, Hadjipanayis GC. Structure and permanent magnet properties of Zr<sub>1-x</sub>R<sub>x</sub>Fe<sub>10</sub>Si<sub>2</sub> alloys with R = Y, La, Ce, Pr and Sm. *J Alloys Compd* 2016;683:271–5.
- [31] Kronmüller H, Fähnle M. *Micromagnetism and the microstructure of ferromagnetic solids*. Cambridge: Cambridge University Press; 2003.
- [32] Zickler GA, Fidler J, Bernardi J, Schrefl T, Asali A. A combined TEM/STEM and micromagnetic study of the anisotropic nature of grain boundaries and coercivity in Nd–Fe–B magnets. *Adv Mater Sci Eng* 2017;2017:6412042.
- [33] Richter HJ. Model calculations of the angular dependence of the switching field of imperfect ferromagnetic particles with special reference to barium ferrite. *J Appl Phys* 1989;65(9):3597–601.
- [34] Wang D, Sellmyer DJ, Panagiotopoulos I, Niarchos D. Magnetic properties of Nd(Fe,Ti)<sub>12</sub> and Nd(Fe,Ti)<sub>12</sub>N<sub>x</sub> films of perpendicular texture. *J Appl Phys* 1994;75(10):6232–4.
- [35] Bance S, Bittner F, Woodcock TG, Schultz L, Schrefl T. Role of twin and antiphase defects in MnAl permanent magnets. *Acta Mater* 2017;131:48–56.