

Nd-Ce-Fe-B 纳米复合薄膜的磁性及交换耦合作用

孙亚超 朱明刚 石晓宁 宋利伟 李卫

Magnetic properties and exchange coupling of Nd-Ce-Fe-B nanocomposite films

Sun Ya-Chao Zhu Ming-Gang Shi Xiao-Ning Song Li-Wei Li Wei

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, **66**, 157502 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.157502

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.157502>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I15>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

磁性多层膜 CoFeB/Ni 的垂直磁各向异性研究

Perpendicular magnetic anisotropy study of CoFeB/Ni multilayers by anomalous Hall effect

物理学报.2016, 65(24): 247502 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.247502>

Mo 覆盖层对 MgO/CoFeB/Mo 结构磁各向异性的影响

Influence of Mo capping layer on magnetic anisotropy of MgO/CoFeB/Mo

物理学报.2015, 64(24): 247504 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.247504>

MgO/Pt 界面对增强 Co/Ni 多层膜垂直磁各向异性及热稳定性的研究

Enhancement of perpendicular magnetic anisotropy and thermal stability in Co/Ni multilayers by MgO/Pt interfaces

物理学报.2015, 64(19): 197501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.197501>

Co/Ni 多层膜垂直磁各向异性的研究

Perpendicular magnetic anisotropy in Co/Ni multilayers studied by anomalous Hall effect

物理学报.2015, 64(9): 097501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.097501>

FeMn 掺杂 AlN 薄膜的制备及其特性研究

Study on preparation and characteristics of Fe- and Mn-doped AlN thin films

物理学报.2013, 62(21): 217504 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.217504>

# Nd-Ce-Fe-B 纳米复合薄膜的磁性及交换耦合作用\*

孙亚超 朱明刚<sup>†</sup> 石晓宁 宋利伟 李卫

(钢铁研究总院功能材料研究所, 北京 100081)

(2017年3月22日收到; 2017年5月2日收到修改稿)

采用磁控溅射技术制备了具有永磁特征的Nd-Ce-Fe-B多层纳米复合薄膜, 并对其进行了退火处理. 通过改变退火温度, 研究其对薄膜磁性能和晶体结构的影响. 结果表明, 随着退火温度的提高薄膜磁性能逐渐增大, 但当温度达到695 °C以上时, 薄膜的磁性能急剧下降. 当退火温度为675 °C时, 薄膜的矫顽力  $H_{ci} = 10.1$  kOe ( $1 \text{ Oe} = 79.5775 \text{ A/m}$ ), 垂直于薄膜表面方向的剩余磁化强度  $4\pi M_{r\perp} = 5.91$  kG ( $1 \text{ G} = 10^3/(4\pi) \text{ A/m}$ ). 薄膜的X射线衍射结果表明, 磁性薄膜具有较好的 $c$ 轴取向. 通过对薄膜磁化反转过程的研究, 发现随着外加磁场的增大,  $M_{rev}$ 的极小值向  $M_{irr}$  减小的方向移动, 这与畴壁弯曲模型类似, 表明在薄膜中存在较强烈的局部钉扎作用, 而剩余磁化强度曲线表明这种钉扎作用在薄膜矫顽力机制中并不占支配作用. 此外, 薄膜的Henkel曲线结果表明在薄膜中存在较强的交换耦合作用, 在经过685 °C退火的薄膜中磁相互作用更加显著.

**关键词:** 永磁薄膜, 磁性能, 磁化反转, 交换耦合作用

**PACS:** 75.70.-i, 75.60.Nt, 68.55.-a

**DOI:** 10.7498/aps.66.157502

## 1 引言

Nd-Fe-B磁体因其具有优异的磁性能而受到科研人员的广泛关注<sup>[1-6]</sup>, 然而由于 $\text{Ce}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 的磁晶各向异性性能场只有4.6 T, 远远低于 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 的各向异性性能场(7.5 T), 而且 $\text{Ce}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 的理论饱和磁化强度(1.17 T)也比 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ (1.61 T)的低很多<sup>[7]</sup>. 采用常规方法, 用Ce元素部分或者全部替代Nd-Fe-B中的Nd元素, 都面临着剩余磁化强度和内禀矫顽力急剧降低的问题, 因而很长一段时间内人们都认为Ce-Fe-B磁体没有开发和使用价值.

近期, Zhu等<sup>[8,9]</sup>制备出了实用的双永磁主相Nd-Ce-Fe-B烧结磁体, 其剩磁也没有像单主相磁体那样明显降低, 矫顽力还有所提高. 其实, 早在20世纪80年代末, 人们就提出了软、硬磁纳米双相

永磁材料的概念, 建立了交换耦合作用模型<sup>[10-13]</sup>, 并从实验上验证了可以通过软硬磁之间的交换耦合作用实现剩磁增强效应, 但对于不同硬磁纳米颗粒之间的交换耦合效应研究甚少. 我们在研究软、硬磁纳米双相永磁材料矫顽力随晶粒尺寸变化的关系时, 提出硬、硬磁相之间也存在一定的交换耦合作用<sup>[14]</sup>. 然而, 双永磁主相烧结Ce磁体不同于软、硬磁纳米双相永磁材料, 由于烧结磁体晶体结构和相组成的复杂性, 不同各向异性常数的永磁主相之间的作用机制以及Ce元素对磁体主相和晶界相的影响还不完全清楚. 因此, 在本文中我们选取结构和相组成相对简单的薄膜材料作为研究对象, 探索、研究不同热处理温度对Nd-Ce-Fe-B复合薄膜磁性能和晶体结构的影响; 通过对薄膜样品磁性行为测量, 研究薄膜中相组成和不同主相之间的相

\* 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2014CB643701)和国家自然科学基金(批准号: 51571064)资助的课题.

<sup>†</sup> 通信作者. E-mail: mgzhu@sina.com

互作用以及对磁性能的影响, 为深入开展双永磁主相烧结磁体研究积累知识.

## 2 样品制备及测试方法

利用多靶磁控溅射技术制备了 Si/Ta(50 nm)/NdFeB (100 nm)/Ta (2 nm)/ NdCeFeB (100 nm)/Ta(2 nm)/NdFeB(100 nm)/Ta(40 nm) 纳米薄膜, 所选用的靶材为烧结 Nd<sub>15</sub>Fe<sub>75</sub>B<sub>10</sub>, (Nd<sub>1</sub>Ce<sub>1</sub>)<sub>15</sub>-Fe<sub>75</sub>B<sub>10</sub> 合金靶, 以及纯度优于 99.9% 的 Ta 靶. 溅射腔的本底真空高于  $7 \times 10^{-6}$  Pa, 溅射过程中 Ar 气气压为 1.2 Pa. 此外, 为了消除靶材表面氧化物对薄膜成分的影响, 在制备薄膜前所有的靶材预溅时间不少于 30 min. 样品中 NdFeB 和 NdCeFeB 层的溅射温度分别为 630 °C 和 610 °C, 沉积速率分别为 12.36 nm/min 和 14.88 nm/min. 为了促使磁性相的形成并防止样品氧化, 在薄膜中增加了缓冲层 Ta (50 nm) 和保护层 Ta (40 nm), 隔离层 Ta (2 nm) 能够有效抑制不同磁层间的元素扩散. 溅射后薄膜样品在真空状态下进行热处理, 热处理温度为 645—705 °C, 时间均为 30 min.

利用称重法标定薄膜沉积速率; 薄膜表面形

貌和磁畴结构用原子力显微镜 (AFM) 和磁力显微镜 (MFM) 进行观察; 薄膜结构采用 X 射线衍射 (XRD) 进行分析; 磁性能采用振动样品磁强计 (VSM) 测量. 如果没有特别说明, 所有样品磁性能测量的磁场方向均垂直于薄膜表面.

## 3 实验结果与讨论

图 1 是经过不同温度退火后 Si/Ta (50 nm)/NdFeB(100 nm)/Ta (2 nm)/NdCeFeB (100 nm)/Ta(2 nm)/NdFeB (100 nm)/Ta(40 nm) 薄膜的 XRD 图. 由于 Nd 和 Ce 元素同属稀土元素, 且原子序数和化学性质非常接近, 所以在 XRD 中无法完全区分 Nd 和 Ce, 因此 XRD 结果中的  $RE_2Fe_{14}B$  硬磁相中的 RE 可能是 Ce, Nd 或 NdCe 中的一种. 对于薄膜中的  $RE_2Fe_{14}B$  ( $RE = Nd, Ce, NdCe$ ) 相, (105) 峰和 (006) 峰是最为敏感的, 因此 XRD 图表明所制备的薄膜样品具有明显的  $c$  轴取向, 同时薄膜中也存在一些其他取向的晶粒. 图 1(a) 和图 1(d) 中的 XRD 结果表明经过 645 °C 和 705 °C 退火的薄膜中存在 CeFe<sub>2</sub> 相, 而在其他温度退火的薄膜中并未发现 CeFe<sub>2</sub> 相, 说明适当的退火温度有

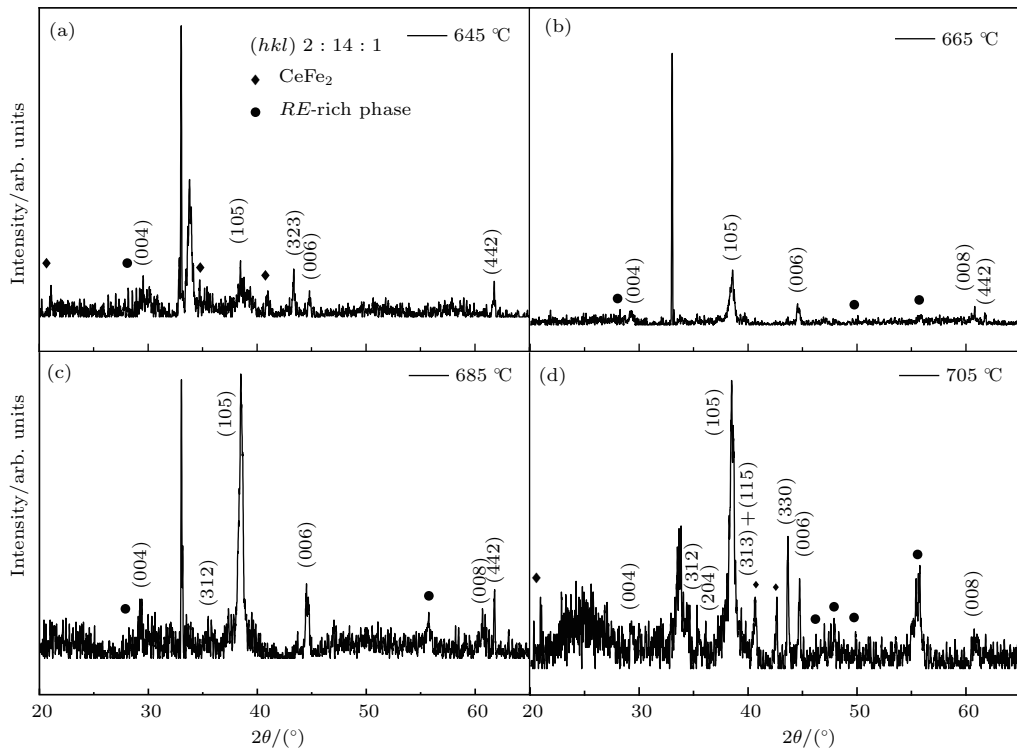


图 1 经过不同温度退火后 Nd-Ce-Fe-B 薄膜的 XRD 谱 (a) 645 °C; (b) 665 °C; (c) 685 °C; (d) 705 °C  
 Fig. 1. XRD patterns for the Nd-Ce-Fe-B thin films annealed at different temperatures: (a) 645 °C; (b) 665 °C; (c) 685 °C; (d) 705 °C.

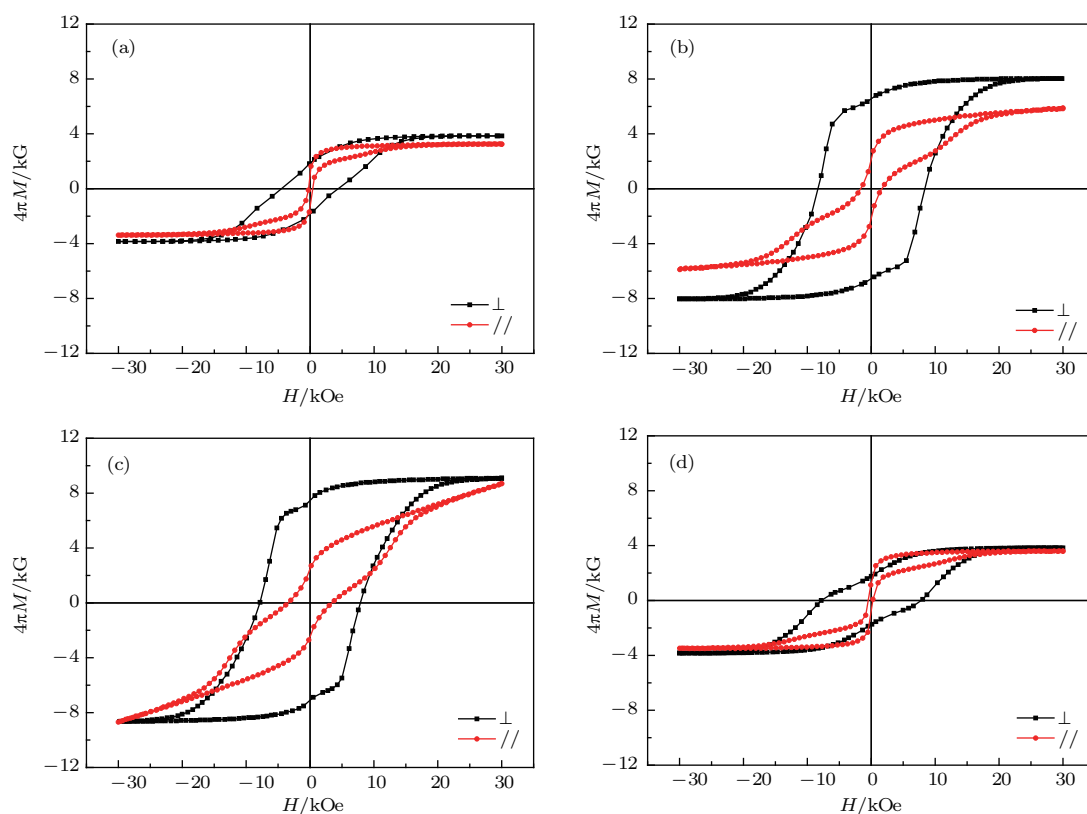


图2 (网刊彩色) 经过不同温度退火后 Nd-Ce-Fe-B 薄膜平行 (//) 和垂直 ( $\perp$ ) 于薄膜表面方向的磁滞回线 (a) 645 °C; (b) 665 °C; (c) 685 °C; (d) 705 °C

Fig. 2. (color online) Hysteresis loops with the magnetic field applied parallel (//) and perpendicular ( $\perp$ ) to the plane for the Nd-Ce-Fe-B thin films annealed at different temperatures: (a) 645 °C; (b) 665 °C; (c) 685 °C; (d) 705 °C.

助于抑制  $\text{CeFe}_2$  相形成. 图 1 (d) 中出现了更多的硬磁相峰, 表明薄膜中晶粒取向更加杂乱, 这对于薄膜的磁性能会起到削弱作用. 如图 1 (d) 所示, 在  $20^\circ$  到  $30^\circ$  之间出现了平缓的峰, 表明在经过 705 °C 退火的薄膜中出现了非晶相. 此外, 由于  $\alpha\text{-Fe}$  的 (110) 峰和  $\text{RE}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  相的 (006) 峰重叠, 很难确定薄膜中是否有  $\alpha\text{-Fe}$  相的存在.

图 2 为经过不同温度退火后 Si/Ta(50 nm)/NdFeB(100 nm)/Ta(2 nm)/NdCeFeB(100 nm)/Ta(2 nm)/NdFeB(100 nm)/Ta(40 nm) 复合薄膜在室温下的磁滞回线, 测量磁场分别垂直 (黑色曲线) 和平行 (红色曲线) 于样品表面, 所有磁性测量均未考虑退磁因子的影响. 图 2 中所有测量磁场平行于样品表面的磁滞回线都表现出明显的软磁材料特征, 且与测量磁场垂直于样品表面的曲线有较大区别, 说明薄膜具有很强的各向异性和  $c$  轴取向. 从图 2 (a) 和图 2 (d) 中测量磁场垂直于薄膜表面的磁滞回线可以发现, 经过 645 °C 退火处理后薄膜矫顽力  $H_{\text{ci}\perp}$  和剩余磁化强度  $4\pi M_{\text{r}\perp}$  都非常小, 表明较低的热处理温度不利于  $\text{RE}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  硬

磁相的形成, 而 705 °C 退火后薄膜的矫顽力  $H_{\text{ci}\perp}$  虽然有所增大, 但是其饱和磁化强度  $4\pi M_{\text{s}\perp}$  和剩余磁化强度  $4\pi M_{\text{r}\perp}$  都非常小, 结合 XRD 结果分析表明该温度的退火虽然促使薄膜中形成了较多的  $\text{RE}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  硬磁相, 但同时也促进了稀土氧化物的形成. 图 2 (b) 和图 2 (c) 中垂直于样品表面的磁滞回线在退磁部分出现了不同程度的塌腰, 这可能是由于多层薄膜中存在少量  $\text{CeFe}_2$  相微晶引起的, 但是因为  $\text{CeFe}_2$  相所占体积分数太少, 相应薄膜的 XRD 结果中没有明显的  $\text{CeFe}_2$  相峰.

表 1 为 Si/Ta(50 nm)/NdFeB(100 nm)/Ta(2 nm)/NdCeFeB(100 nm)/Ta(2 nm)/NdFeB(100 nm)/Ta(40 nm) 薄膜经过不同温度退火后的磁性能及表面平均粗糙度  $R_{\text{a}}$ . 表 1 中的测量结果表明退火温度对于薄膜的磁性能和表面形貌具有非常明显的影响. 当退火温度较高 ( $>685^\circ\text{C}$ ) 或者较低 ( $<655^\circ\text{C}$ ) 时, 样品的剩余磁化强度  $4\pi M_{\text{r}\perp}$  和饱和磁化强度  $4\pi M_{\text{s}\perp}$  都急剧下降. 经过 705 °C 退火薄膜的矫顽力达 10.45 kOe ( $1 \text{ Oe} = 79.5775 \text{ A/m}$ ), 但是其剩余磁化强度和饱和磁化强度明显降低. 此

外, 样品表面的平均粗糙度  $R_a$  随着退火温度的升高而先增加后下降. 高温退火后平均粗糙度的降低

可能是由于该样品中形成了少量的非晶相, 有助于改善表面形貌.

表 1 经过不同温度退火后薄膜的磁性能及表面平均粗糙度 ( $1 \text{ G} = 10^3/(4\pi) \text{ A/m}$ )

Table 1. Magnetic properties and surface roughness for the films annealed at different temperatures.

样品	退火温度 $T_d/^\circ\text{C}$	$H_{ci\perp}/\text{kOe}$	$4\pi M_{r\perp}/\text{kG}$	$4\pi M_{s\perp}/\text{kG}$	平均粗糙度 $R_a/\text{nm}$
1	645	4.68	1.88	3.85	7.61
2	655	8.45	6.59	8.02	—
3	665	9.79	5.97	8.34	16.9
4	675	10.1	5.91	7.88	—
5	685	7.82	7.47	9.11	21.9
6	695	7.82	1.76	3.83	18.3
7	705	10.45	1.95	3.99	16.3

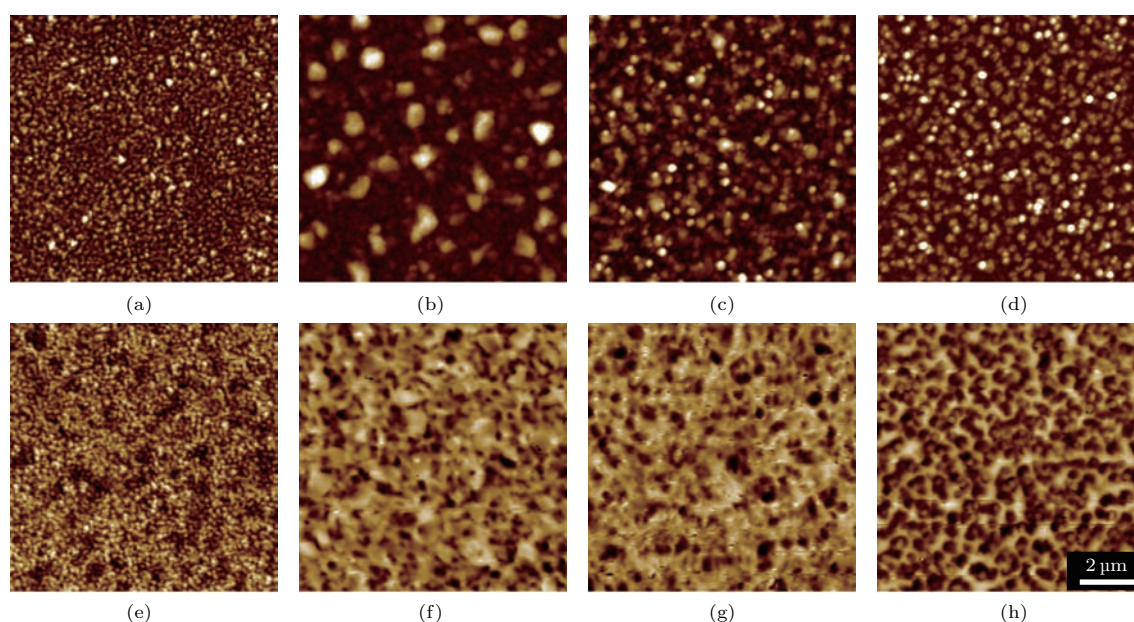


图 3 (网刊彩色) Nd-Ce-Fe-B 薄膜不同温度退火后的表面 (a)—(d) AFM 和 (e)—(h) MFM 图 (a), (e) 645 °C; (b), (f) 665 °C; (c), (g) 685 °C; (d), (h) 705 °C

Fig. 3. (color online) (a)–(d) AFM and (e)–(h) MFM images for the Nd-Ce-Fe-B thin films with various annealing temperatures: (a), (e) 645 °C; (b), (f) 665 °C; (c), (g) 685 °C; (d), (h) 705 °C.

经过不同温度退火 Si/Ta(50 nm)/NdFeB (100 nm)/Ta(2 nm)/NdCeFeB (100 nm)/Ta(2 nm)/NdFeB (100 nm)/Ta(40 nm) 薄膜的 AFM 和 MFM 图如图 3 所示. 从图 3(a)—(d) 中可以发现所有样品的晶粒大小比较均匀, 即使是经过 705 °C 高温退火后的样品晶粒都没有出现异常长大现象. 图 3(a), (b), (c) 和 (d) 中样品的平均晶粒尺寸分别为 43.1, 56.7, 65.6 和 75.9 nm, 说明晶粒尺寸随着退火温度升高而增大. 对比图 3 中的 AFM 和 MFM 图, 可以发现经过 665 和 685 °C 退火样品的云状磁畴中都包含多个晶粒, 表明这些硬磁晶粒之间

存在交换耦合作用. 图 3(e) 和图 3(h) 中出现了更多的岛状畴, 结合 XRD 结果可以得到以下结论: 645 °C 退火处理不利于薄膜中  $RE_2Fe_{14}B$  相的形成, 而 705 °C 热处理后的样品中虽然形成了较多的  $RE_2Fe_{14}B$  相, 但同时也形成了大量稀土氧化物非磁性相, 从而造成样品的剩磁急剧下降.

磁体剩余磁化强度曲线通常被用来研究磁性材料的矫顽力机制<sup>[15,16]</sup>. 假设薄膜中单畴颗粒之间没有相互作用, 且畴壁在起始磁化和退磁过程中所遭遇的钉扎为相同类型, 则材料的剩余磁化强度数据应该满足以下关系式<sup>[17]</sup>

$$M_d(H) = M_r(\infty) - 2M_r(H), \quad (1)$$

其中,  $M_r(H)$ 为施加正向磁场 $H$ 后的起始剩余磁化强度,  $M_r(\infty)$ 为饱和磁化强度,  $M_d(H)$ 为施加反向磁场 $-H$ 后的退磁剩余磁化强度. 图4给出了Nd-Ce-Fe-B薄膜经过685 °C退火后的 $M_d(H)/M_r(\infty)$  vs.  $M_r(H)/M_r(\infty)$ 图. 如果满足等式(1), 则所有的数据点应该落在从

$$\frac{M_d(H)}{M_r(\infty)} = 1, \quad \frac{M_r(H)}{M_r(\infty)} = 0$$

到

$$\frac{M_d(H)}{M_r(\infty)} = -1, \quad \frac{M_r(H)}{M_r(\infty)} = 1$$

的直线上, 如图4中虚线所示. 然而, 实际测量得到数据点明显偏离了该理论线, 这表明矫顽力钉扎机制在薄膜磁化反转过程中并不起支配作用.

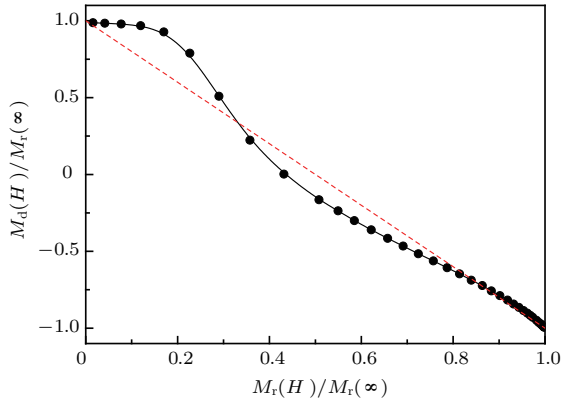


图4 Nd-Ce-Fe-B薄膜经过685 °C退火后的 $M_d(H)/M_r(\infty)$  vs.  $M_r(H)/M_r(\infty)$ 图, 其中实线为实验测量数据, 虚线为由等(1)式得到的理论线

Fig. 4.  $M_d(H)/M_r(\infty)$  vs.  $M_r(H)/M_r(\infty)$  for the Nd-Ce-Fe-B thin film annealed at 685 °C. The solid line and dashed straight line, respectively, correspond to the experimental data and theoretical data describing Eq. (1).

为了进一步探讨矫顽力机制, 我们通过测量可逆磁化强度 $M_{rev}$ 来研究薄膜样品的磁化反转过程, 而 $M_{rev}$ 依赖于不可逆磁化强度 $M_{irr}$ .  $M_{rev}$ 和 $M_{irr}$ 的定义如图5所示<sup>[18]</sup>, 对某方向(+)饱和磁化后剩磁状态的样品, 在反方向(-)施加退磁场 $H$ 随后将其去除后的磁化强度为不可逆磁化强度 $M_{irr}$ , 而磁场 $H$ 的磁化强度 $M(H)$ 为退磁曲线回复过程中对应磁场时的磁化强度.  $M_{irr}$ 的最大值等于施加饱和磁场后的剩余磁化强度, 可逆磁化强度 $M_{rev} = M(H) - M_{irr}$ .

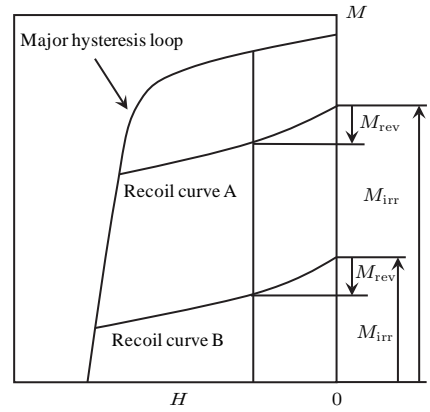


图5 可逆磁化强度和不可逆磁化强度定义示意图  
Fig. 5. Illustration showing the definitions of reversible and irreversible magnetization and the procedures adopted in data analysis.

经过685和705 °C退火后Nd-Ce-Fe-B薄膜不同磁场下的 $M_{rev}$  vs.  $M_{irr}$ 关系图如图6(a)和图6(b)所示, 从图6可以看到, 两个样品在不同磁场下随着 $M_{irr}$ 变化 $M_{rev}$ 都存在极小值, 虽然该极小值并不是很明显, 但都具有同样的变化趋势, 即随着磁场的增大向 $M_{irr}$ 负方向移动(如图中红色箭头所示). 该趋势与畴壁弯曲模型类似<sup>[19,20]</sup>, 表明在薄膜中存在强烈的局部钉扎, 分析其原因, 这可能是由于薄膜中存在 $CeFe_2$ 相或者晶体缺陷造成的. 此外, 从图6(b)中可以发现在 $M_{irr}$ 趋于零值附近,  $M_{rev}$ 出现了明显的台阶跳跃, 这种现象在经过685 °C退火的样品(见图6(a))中并未出现, 这种现象被认为可能是由于经过较高温度的退火, 薄膜中非晶的 $CeFe_2$ 相晶化并长大造成, XRD结果也验证了该推论, 这个有趣的实验结果有待深入研究.

为了研究薄膜中磁性相之间的相互作用, 测量并计算了经过655和685 °C退火Nd-Ce-Fe-B薄膜的 $\delta_m$ 点, 最终得到Henkel曲线, 如图7所示. 其中 $\delta_m$ 为等(1)式的变形,  $\delta_m(H) = (M_d(H) - M_r(\infty) + 2M_r(H))/M_r(\infty)$ , 利用该等式可以表征材料中的磁相互作用<sup>[21,22]</sup>. 从图7中可以看出, 两个薄膜样品的Henkel曲线都存在较大的正值峰, 表明在薄膜中不同硬磁层之间存在较强的交换耦合作用, 随着外加磁场的增强, 经过较高温度的退火的薄膜的磁偶极相互作用更加显著, 这可能是由于晶粒尺寸较大使得长程偶极相互作用增强. 当然, 硬磁层间Ta隔离层的厚度对于层间的交换耦合作用有很大的影响, 我们将另文讨论.

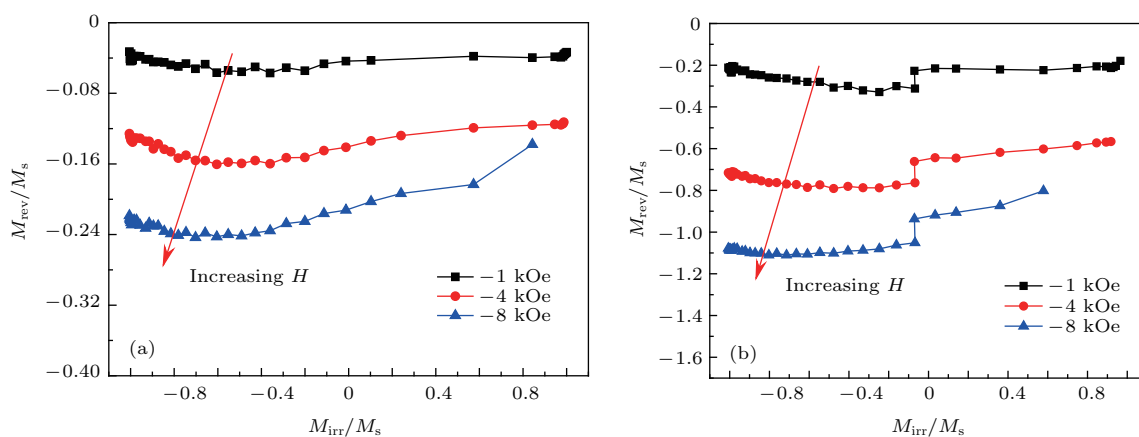


图6 经过 (a) 685 和 (b) 705 °C 退火后 Nd-Ce-Fe-B 薄膜不同磁场下的  $M_{rev}$  vs.  $M_{irr}$  关系

Fig. 6. For the Nd-Ce-Fe-B thin films annealed at (a) 685 and (b) 705 °C, experimental measurements of  $M_{rev}$  as a function of  $M_{irr}$  for demagnetizing curves.

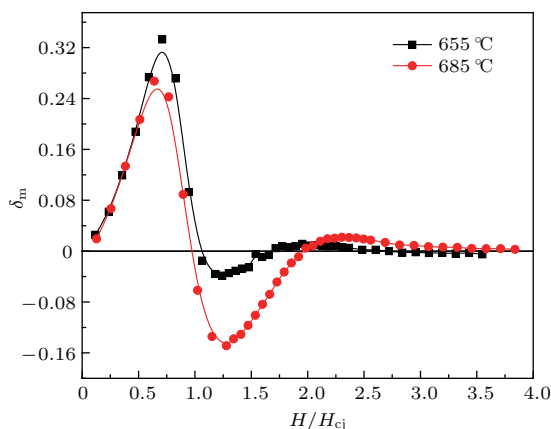


图7 经过 655 和 685 °C 退火 Nd-Ce-Fe-B 薄膜的 Henkel 曲线

Fig. 7. Henkel curves for the Nd-Ce-Fe-B thin films annealed at 655 and 685 °C.

## 4 结 论

采用直流磁控溅射法制备出了 Si/Ta(50 nm)/NdFeB(100 nm)/Ta(2 nm)/NdCeFeB(100 nm)/Ta(2 nm)/NdFeB(100 nm)/Ta(40 nm) 纳米薄膜, 发现退火温度对薄膜磁性能和表面形貌有显著影响. 随着退火温度的升高, 薄膜的磁性能逐渐提高, 但当温度达到 695 °C 以上时, 薄膜的磁性能迅速下降. 同时, 发现随着退火温度的升高, 薄膜晶粒尺寸也逐渐增大, 但是退火温度与薄膜表面的粗糙度没有必然联系. 比较了分别经过 645, 665, 685 和 705 °C 热处理样品的 MFM 图, 发现经过 665 和 685 °C 热处理后的样品中不同  $RE_2Fe_{14}B$  相之间存在耦合作用. 通过对薄膜的剩余磁化曲线和  $M_{rev}$  vs.  $M_{irr}$  曲线的分析, 发现在薄膜中存在

较强烈的局部钉扎, 这可能是薄膜中的  $CeFe_2$  相或者晶体缺陷引起的, 但是, 矫顽力钉扎机制在薄膜中并不起支配作用. 此外, Henkel 曲线表明在所制备的多层复合薄膜中不同硬磁层存在较强的交换耦合作用, 这对于薄膜的磁性能有很大的增强作用.

本文在完成过程中得到了中国科学院沈阳金属研究所刘伟研究员的大力帮助, 在此特别表示感谢.

## 参考文献

- [1] Sagawa M, Togawa N, Yamamoto H, Matsuura Y 1984 *J. Appl. Phys.* **55** 2083
- [2] Sato T, Oka N, Ohsuna T, Kaneko Y, Suzuki S, Shima T 2011 *J. Appl. Phys.* **110** 023903
- [3] Wang W J, Guo Z H, Li A H, Li X M, Li W 2006 *J. Magn. Magn. Mater.* **303** 392
- [4] Zhu M G, Li W, Gao R W, Han G B, Feng W C 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 3171 (in Chinese) [朱明刚, 李卫, 高汝伟, 韩广兵, 冯维存 2004 物理学报 **53** 3171]
- [5] Dai L C, Jian X L, Zhao Y Y, Yao X X, Zhao Z G 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 234101 (in Chinese) [戴存礼, 饒兴亮, 赵艳艳, 姚雪霞, 赵志刚 2016 物理学报 **65** 234101]
- [6] Akdogan O, Dobrynin A, LeRoy D, Dempsey N M, Givord D 2014 *J. Appl. Phys.* **115** 17A764
- [7] Herbst J F 1991 *Rev. Mod. Phys.* **63** 819
- [8] Zhu M G, Li W, Wang J D, Zheng L Y, Li Y F, Zhang K, Feng H B, Liu T 2013 *IEEE Trans. Magn.* **50** 1000104
- [9] Huang S L, Feng H B, Zhu M G, Li A H, Zhang Y, Li W 2014 *AIP Adv.* **4** 107127
- [10] Coehoorn R, de Mooij D B, Duchateau J P W B, Buschow K H J 1988 *J. Phys. Colloques* **49** C8-669
- [11] Skomski R, Coey J M D 1993 *Phys. Rev. B* **48** 15812
- [12] Leineweber T, Kronmüller H J 1997 *Magn. Magn. Mater.* **176** 145

- [13] Liu X H, Yan G, Cui L Y, Zhou S X, Zheng W, Wang A L, Chen J C 1999 *IEEE Trans. Magn.* **35** 3331
- [14] Feng W C, Li W, Zhu M G, Han G B, Gao R W 2008 *Acta Metall. Sin.* **44** 8 (in Chinese) [冯维存, 李卫, 朱明刚, 韩广兵, 高汝伟 2008 金属学报 **44** 8]
- [15] Ding J, Street R, McCormick P G 1992 *J. Magn. Magn. Mater.* **115** 211
- [16] Hadjipanayis G C, Kim A 1988 *J. Appl. Phys.* **63** 3310
- [17] Wohlfarth E P 1958 *J. Appl. Phys.* **29** 595
- [18] Cammarano R, McCormick P G, Street R 1996 *J. Phys. D* **29** 2327
- [19] Livingston J D 1987 *IEEE Trans. Magn.* **MAG-23** 2109
- [20] Crew D C, McCormick P G, Street R 1999 *J. Appl. Phys.* **86** 3278
- [21] Henkel O 1964 *Phys. Stat. Sol.* **7** 919
- [22] Kelly P E, Grady K O, Mayo P I, Chantrell R W 1989 *IEEE Trans. Magn.* **25** 3881



# Magnetic properties and exchange coupling of Nd-Ce-Fe-B nanocomposite films\*

Sun Ya-Chao Zhu Ming-Gang<sup>†</sup> Shi Xiao-Ning Song Li-Wei Li Wei

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

( Received 22 March 2017; revised manuscript received 2 May 2017 )

## Abstract

In the early 1980 s, the soft and hard magnetic nano-two-phase permanent magnet materials were developed and exchange coupling model was put forward. Moreover, the theoretical maximum magnetic energy product could reach 120 MGOe (1 Oe = 79.5775 A/m). However a great many of experimental research results are always disappointing for theoretical calculation, but previous studies have shown that there exists also a strong exchange coupling in hard magnetic phase, which can improve the magnetic property of magnet.

In this paper, nanocomposite Ta(50 nm)/NdFeB(100 nm)/Ta(2 nm)/NdCeFeB(100 nm)/Ta(2 nm)/NdFeB(100 nm)/Ta(40 nm) multilayer films with Ta underlayers and coverlayers are fabricated on Si substrates by direct current sputtering. A 50 nm Ta underlayer and a 40 nm coverlayer are sputtered at room temperature to align the easy axis of the  $RE_2Fe_{14}B$  grains to the direction perpendicular to the film plane and to prevent the magnetic film from oxidizing, respectively. The 2 nm Ta spacer layer serves as suppressing the diffusion of elements between different magnetic layers. The NdFeB and NdCeFeB magnetic film are deposited at 630 °C and 610 °C, respectively, and then they are followed by *in situ* rapid thermal annealing at 645–705 °C for 30 min. The microstructures and morphologies of the films are characterized by X-ray diffractometry with Cu  $K_\alpha$  radiation, atomic force microscope, and magnetic force microscope. The magnetic properties of the films are measured with vibrating sample magnetometer.

The influences of annealing temperature on magnetic property and crystal structure of the film are investigated. The results show that the magnetic property of the film improves gradually with the increase of annealing temperature, but deteriorates sharply when the temperature reaches above 695 °C. When the annealing temperature is 675 °C, the coercivity  $H_{ci}$  of the film reaches 10.1 kOe and the remanence  $4\pi M_{r\perp}$  is 5.91 kG (1 G =  $10^3/(4\pi)$  A/m), with a magnetic field applied to the direction perpendicular to the plane of the Nd-Ce-Fe-B thin film. The X-ray diffraction results show that the grains of the hard magnetic phase (2 : 14 : 1 phase) grow almost along the substrate normal (*c*-axis direction), of course, with a certain misorientation. Through the magnetization reversal process of the Nd-Ce-Fe-B thin film, it is found that the minimum value of  $M_{rev}$  moves in the direction of decreasing  $M_{irr}$  as the applied magnetic field increases, which is similar to the domain wall bowing model. This indicates that there is a strong local domain wall pinning in the film. Moreover, the remanence curve shows that the pinning type mechanism is indeed not dominant in the magnetization reversal process of the Nd-Ce-Fe-B thin film after annealing at 685 °C. In addition, Henkel plots are also investigated in the films at different annealing temperatures. It is believed that nonzero  $\delta_m$  is due to the interaction between particles in the magnet. It can be stated based on the measuring results that there exists a strong magnetic exchange coupling effect in the Nd-Ce-Fe-B thin film.

**Keywords:** permanent magnetic film, magnetic properties, magnetization reversal, exchange coupling

**PACS:** 75.70.-i, 75.60.Nt, 68.55.-a

**DOI:** 10.7498/aps.66.157502

\* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2014CB643701) and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 51571064).

† Corresponding author. E-mail: [mgzhu@sina.com](mailto:mgzhu@sina.com)