

Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe,M)_{1.95}合金的晶体轴向取向 与磁致伸缩性能

张茂才 蒋成保 赵青 高学绪 史振华

北京科技大学新金属材料国家重点实验室,北京 100083

摘要 研究了 Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}M_x)_{1.95} (M=Mn, Al, B, Ti, $x = 0.03$) 合金在高温梯度区熔定向凝固过程中,晶体轴向取向、结晶形貌随晶体生长速度的变化规律和不同晶体轴向取向与磁致伸缩应变之间的关系,结果发现,晶体生长速度由低变高时,晶体由平面晶向胞状晶、胞枝晶、树枝晶生长转化,晶体也相应地由 $\langle 110 \rangle$ 、 $\langle 112 \rangle$ 变化为 $\langle 110 \rangle + \langle 113 \rangle + \langle 112 \rangle$ 混合轴向取向,完全的 $\langle 112 \rangle$ 轴向取向可获得优异的磁致伸缩性能。

关键词 稀土磁致伸缩材料,区熔定向凝固,晶体轴向取向

中图分类号 TG132.2

Clark 等^[1,2]发现 Tb_xDy_{1-x}Fe_y, $x = 0.27 \sim 0.35$, $y = 1.9 \sim 1.95$ 合金具有很高的饱和磁致伸缩应变 ($\lambda_s = 1.5 \times 10^{-3} \sim 2.0 \times 10^{-3}$) 和低的各向异性 ($K_1 = -6 \times 10^{-3} \text{ J/cm}^3$). 该合金称为超磁致伸缩合金,它在水声或电声换能器技术、声纳技术、传感器技术和微位移驱动器技术等高新技术领域有广泛的应用前景,该合金具有 MgCu₂ 型结构,是 AB₂ 型的立方 Laves 相^[3],它的 $\langle 111 \rangle$ 是易磁化方向,磁致伸缩的各向异性特别大, $\lambda_{111} = 16.4\lambda_{100}$, λ_{111} 和 λ_{100} 分别是晶体 $\langle 111 \rangle$ 和 $\langle 100 \rangle$ 方向的磁致伸缩应变,为获得高的磁致伸缩性能,理想的情况是制备 $\langle 111 \rangle$ 单晶或 $\langle 111 \rangle$ 轴向取向的多晶样品,但这是十分困难的,Verhoeven 等人^[4]研究表明 Tb_{0.3}Dy_{0.7}Fe_{1.95} 合金以片状的树枝晶生长, $\langle 112 \rangle$ 是择优生长方向,本文对 Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe,M)_{1.95} 合金的结晶轴向取向、结晶形貌作进一步研究。

1 实验方法

成分为 Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}M_x)_{1.95}, M = Mn, Al, B, Ti 等, $x = 0.03$ 的母合金,用电弧炉或真空感应炉冶炼,原材料 Tb, Dy, Fe, Mn 等成分(质量分数)为 99.5% ~ 99.6%,将母合金铸成 $\phi 10 \text{ mm}$ 、长 150 mm 的棒,用超高温梯度区熔定向凝固技术,使合金定向凝固,温度梯度 (G_L),固定为 700 K/cm,晶体生长速度 v 选用 1, 4, 12, 20 和 30 mm/min,定向凝固棒状样品经 950 ~ 1050 °C、Ar 气保护热处理 2 h 后,切取长度为 50 ~ 80 mm,用于测量磁致伸缩应变,测量时可同时沿轴向施加 0 ~ 10 MPa 的压应力,用 X 射线衍射仪测定晶体取向,用 H-800 型透射电镜和光学显微镜观察显微组织结构。

2 实验结果和讨论

图 1 是晶体生长速度分别为 1, 4, 12, 20 和 30 mm/min 样品横截面 X 射线衍射谱. 为便于比较, 同时给出非取向粉末样品的 X 射线衍射谱. 可见当晶体生长速度为 1 mm/min 时, 220 的衍射峰为主峰, 其他, 如 113, 112, 440 的衍射峰甚弱, 说明 $[110]$ 晶轴沿棒状样品的轴向择优取向. 当 $v = 4$ mm/min 时, 仍然是 $[110]$ 轴向取向为主, 但同时出现了少量的 $\langle 113 \rangle$ 轴向取向. 当 $v = 12$ mm/min 时, 422 衍射峰为最强峰, 其他衍射峰甚弱, 说明 $\langle 112 \rangle$ 沿轴向择优取向. 当 $v = 20$ 和 30 mm/min 时, $\langle 110 \rangle$ 和 $\langle 113 \rangle$ 轴向取向逐渐增强, $\langle 112 \rangle$ 轴向取向逐渐减弱, 说明在温度梯度为一定 ($G_L = 700$ K/cm) 的情况下, 晶体轴向择优取向随 v 而变化. 当 $v = 8 \sim 12$ mm/min 时, 可获得较完整的 $\langle 112 \rangle$ 轴向取向.

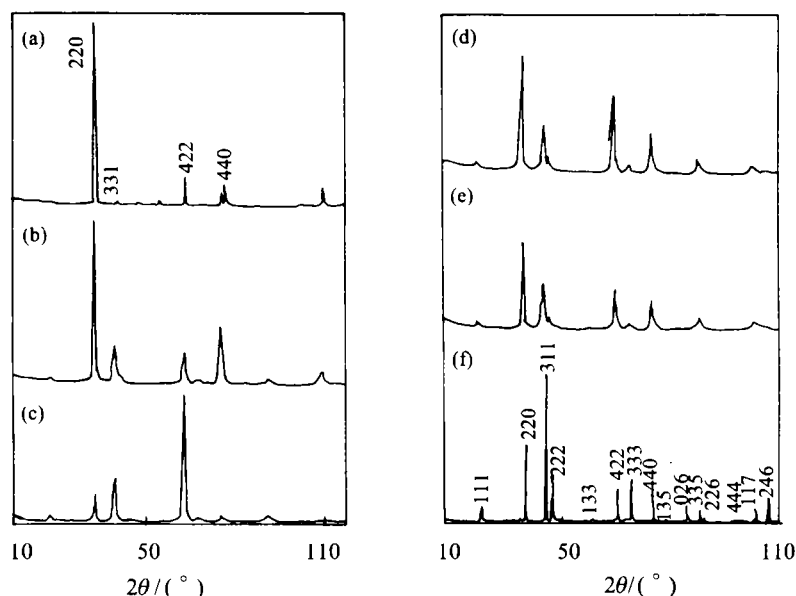


图 1 $G_L = 700$ K/cm 条件下, 晶体轴向取向与 v 的关系 ((a) $v = 1$ mm/min; (b) $v = 4$ mm/min; (c) $v = 12$ mm/min; (d) $v = 20$ mm/min; (e) $v = 30$ mm/min; (f) 非取向粉末样品)

图 2 是在 $G_L = 700$ K/cm, 不同晶体生长速度 v 所得到的结晶形貌金相照片. 图 2(a) 是 $v = 1$ mm/min 样品的结晶形貌. 为保留区熔时的固液相界面, 在区熔过程中, 突然快速冷却. 该照片的上部为液体淬火区, 下部为定向凝固区, 照片中箭头指的是区熔时固液相界面. 可见在定向凝固区, 颗粒状富稀土相 ($R = Tb_{0.3}Dy_{0.7}$) 以颗粒状分布于基体相内, 基体是 RFe_2 相, 而液体的快淬区存在等轴晶粒. 在晶界上存在富 R 相, 说明当 $v = 1$ mm/min 时, 晶体以平面晶方式生长, 对照图 1(a), 可知此时晶体是 $\langle 110 \rangle$ 轴向取向. 照片中的固液相界面不完全是平面状, 可能是冷却速度不够快, 造成界面失稳有关. 图 2(b) 清晰地表明, $v = 4$ mm/min 样品的晶体以胞状晶的方式生长. 富稀土相 R 沿胞状晶的边界分布, 此时晶体轴向择优生长方向是 $\langle 110 \rangle$. 当 $v = 12$ mm/min 时, 晶体以胞枝晶方式生长, 如图 2(c) 所示. 它以一次臂为主, 二次臂处于萌芽状态, 此时晶体是 $\langle 112 \rangle$ 轴向取向. 图 2(d) 表明 $v = 20$ mm/min 样品, 晶体以发达

的树枝晶生长. 晶体的一次臂的体积分数甚少, 二次臂十分发达, 二次臂间夹角为 109.5° , 也就是说二次臂沿轴向约 55° 角对称分布. 此时晶体同时存在 $\langle 110 \rangle$, $\langle 113 \rangle$ 和 $\langle 112 \rangle$ 轴向取向. X 射线衍射峰的相对强度定性地表明, $\langle 110 \rangle$ 轴向取向的分数较多, 其次是 $\langle 112 \rangle$, 再其次是 $\langle 113 \rangle$. 金相观察表明 $v = 30 \text{ mm/min}$ 的样品, 它以细胞状晶方式生长, 富稀土 R 相沿胞状晶界上分布. 此时晶体轴向取向与 $v = 20 \text{ mm/min}$ 的相似.

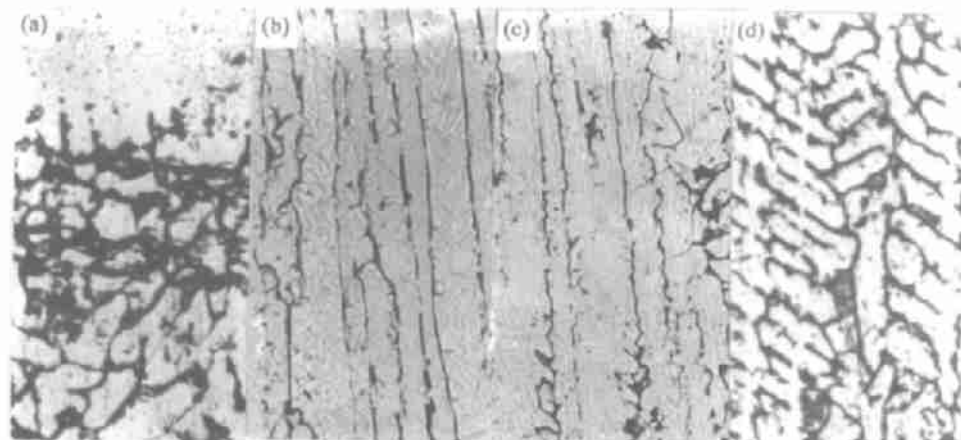


图 2 $G_L = 700 \text{ K/cm}$. 不同晶体生长速度时的结晶形貌

不同 v 与不同轴向取向样品的磁致伸缩应变如表 1 所示. 可见 $v = 1 \sim 4 \text{ mm/min}$, 晶体以平面晶或胞状晶生长, 具有 $\langle 110 \rangle$ 轴向取向的样品不仅磁致伸缩应变值低, 而且压应力效应不明显. $v = 20 \sim 30 \text{ mm/min}$, 具有 $\langle 110 \rangle + \langle 113 \rangle + \langle 112 \rangle$ 混合轴向取向样品也是如此. $v = 12 \text{ mm/min}$, 具有单一 $\langle 112 \rangle$ 轴向取向并经热处理后的样品, 不仅其磁致伸缩应变值高, 而且有显著的压应力效应. 在 79.577 A/m 和 10 MPa 时, $\langle 112 \rangle$ 轴向取向样品的 $\lambda_{11} = 1.080 \times 10^{-3}$. 在 79.577 A/m 磁场下, 当压应力由 0.6 增加到 10 MPa 时, 其 λ_{11} 则由 0.650×10^{-3} , 1.040×10^{-3} 增加到 1.080×10^{-3} . 图 3 是 $\langle 112 \rangle$ 轴向取向样品经热处理后在 0 和 10 MPa 压应力下的磁致伸缩应变曲线. 可见在 80 kA/m 的磁场下, 在应力为 0 和 10 MPa 时, 磁致伸缩应变分别为 0.560×10^{-3} 和 1.080×10^{-3} . 在 400 kA/m 磁场下, 压应力为 0 和 10 MPa 时, 磁致伸缩应变分别为 1.150×10^{-3} 和 1.700×10^{-3} , 具有显著的压应力效应, 并且 d_{33} 达到 $2.262 \times 10^{-8} \text{ m/A}$ 以上. 所研制的 $\langle 112 \rangle$ 轴向取向的 Tb-Dy-Fe 合金材料, 已应用于制造低频大功率水声换能器, 取得了十分满意结果.

表 1 轴向取向样品在不同状态和不同应力与磁场下的磁致伸缩应变值 $\lambda_{11}/10^{-4}$

样品状态	$v=1 \sim 4 \text{ mm/min}$		$v=12 \text{ mm/min}$		$v=20 \sim 30 \text{ mm/min}$	
	$\langle 110 \rangle$ 轴向取向		$\langle 112 \rangle$ 轴向取向		$\langle 110 \rangle + \langle 113 \rangle + \langle 112 \rangle$ 混合轴向取向	
	80 kA/m	400 kA/m	80 kA/m	400 kA/m	80 kA/m	400 kA/m
定向凝固态 0 MPa	530	1 050	530	1 070	370	850
热处理后 0 MPa	560	1 050	560	1 150	650	1 050
热处理后 6 MPa	650	1 150	1 040	1 400	700	1 100
热处理后 10 MPa	650	1 150	1 080	1 700	800	1 100

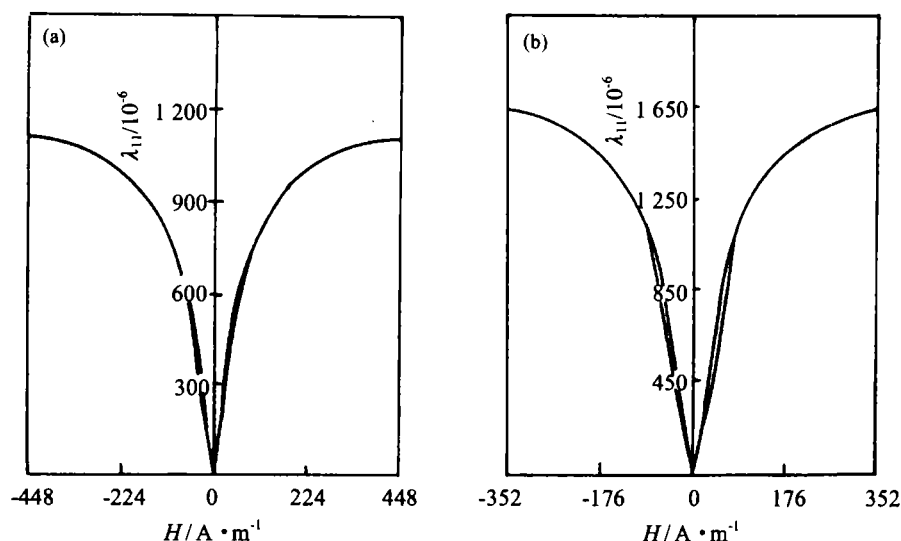


图3 $v = 12 \text{ mm/min}$ 时, $\langle 112 \rangle$ 轴向取向样品在 0 和 10 MPa 的磁致伸缩应变曲线

3 结论

$\text{Tb}_{0.3}\text{Dy}_{0.7}(\text{Fe}_{1-x}\text{M}_x)_{1.95}$, $\text{M} = \text{Mn, Al, B}$, $x = 0.03$ 合金在高温梯度区熔炉进行区熔定向凝固时, 晶体沿样品轴向择优取向与结晶形貌均随晶体生长速度 v 而变化. 在 $G_L = 700 \text{ K/cm}$ 条件下, 当 $v = 1 \text{ mm/min}$ 时, 晶体以平面晶方式生长, $\langle 110 \rangle$ 沿轴向择优取向. 当 $v = 4 \text{ mm/min}$ 时, 晶体以胞状晶生长, 仍然是 $\langle 110 \rangle$ 沿轴向择优取向. $\langle 110 \rangle$ 轴向取向样品的磁致伸缩应变值低, 且没有明显的压应力效应. 当 $v = 12 \text{ mm/min}$ 时, 晶体以胞枝晶方式生长, 以一次臂为主, 二次臂处于萌芽状态, $\langle 112 \rangle$ 沿样品轴向择优取向, 该合金的 $\langle 111 \rangle$ 是易磁化方向, 沿 $\langle 111 \rangle$ 方向存在最大的磁致伸缩应变. 由于 $\langle 112 \rangle$ 与 $\langle 111 \rangle$ 夹角仅有 19.5° , 因此 $\langle 112 \rangle$ 轴向取向样品可获得足够高的磁致伸缩应变值, 并且具有显著的压应力效应. 当 $v = 20 \text{ mm/min}$ 时, 晶体以发达的树枝晶方式生长, 一次臂较小, 二次臂十分发达, 二次臂与样品轴向成 55° 对称分布. 此时是 $\langle 110 \rangle + \langle 113 \rangle + \langle 112 \rangle$ 混合轴向取向. 当 $v = 30 \text{ mm/min}$ 时, 晶体以细小胞状晶方式生长. 此时仍然是 $\langle 110 \rangle + \langle 113 \rangle + \langle 112 \rangle$ 轴向取向. 此种样品的磁致伸缩应变值低且没有明显的压应力效应.

参考文献

- 1 Clark A E, Belson H S. Am Inst Phys Conf Proc, 1973(10): 749
- 2 Clark A E, Cullen J E, McMasters O D, Callen E B. Am Inst Phys Conf Proc, 1976(29): 192
- 3 Clark A E. In: Wohlfarth E P. Ferromagnetic materials, Vol 1. Amsterdam, 1980. 531
- 4 Verhoeven J D, Gibson E D, McMasters O D, Baker H H. Metallurgical Transaction, 1987, 18A: 223

partial crystallization of amorphous phase producing Ti_5Si_3 phase; the second is crystallization of the rest amorphous phase producing the corresponding titanium aluminides according to the relative amount of Ti and Al in the elemental mixture; and the last one is grain growth of all the phase in powders. The crystallization result in formation of Ti_3Al , $TiAl$ and Al_3Ti according the powder composition. Ti_5Si_3 is the only silicide produced by crystallization reaction. The annealing treatment (less than 800 °C for A3, A4 and A5, and 750 °C for A6) shows that the grain size of all the phases fall in nanometer range.

KEY WORDS mechanical alloying, nanocrystalline intermetallics, composite, Ti-Al-Si

(上接 88 页)

Crystallographic Orientation and Magnetostrictive Properties of Directionally Solidified Laves-phase $Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe,M)_{1.95}$ Alloys

Zhang Maocai Jiang Chengbao Zhao Qing Gao Xuexu Shi Zhenhua

State Key Laboratory of Advanced Metals and Materials, UST Beijing, Beijing 100083, China

ABSTRACT The crystallographic orientation, morphologies and the relationship between the orientation and magnetostrictive properties of directionally solidified Laves-phase $Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe,M)_{1.95}$ alloys by zone melting with high thermal gradient G_L were studied. With increasing in Laves-phase growth velocity at a high G_L given, it is shown that the solidification structure of alloys are from planar to cellular and to final dendritic structure, and meanwhile the crystallographic orientation of the Laves-phase are various correspondently. The optimum magnetostrictive properties of the alloys with perfect $\langle 112 \rangle$ axial orientation are obtained.

KEY WORDS crystallographic orientation, magnetostrictive properties, directional solidification