

磁感应强度和冷却速率对  $Tb_{0.27}Dy_{0.73}Fe_{1.95}$  合金凝固过程中取向行为的影响

高鹏飞 刘铁 柴少伟 董蒙 王强

Influence of magnetic flux density and cooling rate on orientation behavior of  $Tb_{0.27}Dy_{0.73}Fe_{1.95}$  alloy during solidification process

Gao Peng-Fei Liu Tie Chai Shao-Wei Dong Meng Wang Qiang

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 038104 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.038104

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.038104>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I3>

---

## 您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

激光立体成形中熔池凝固微观组织的元胞自动机模拟

Cellular automaton simulation of the molten pool of laser solid forming process

物理学报.2015, 64(1): 018103 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.018103>

基于体积平均法模拟铸锭凝固过程的可靠性分析

The reliability analysis of using the volume averaging method to simulate the solidification process in a ingot

物理学报.2014, 63(12): 128103 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.128103>

二元层片共晶凝固过程的特征尺度选择

Characteristic scale selection of lamellar spacings in binary eutectic solidification

物理学报.2014, 63(6): 068104 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.068104>

抽拉速度对 SCN-DC 共晶生长形貌的影响

Influence of pulling velocity on microstructure and morphologies of SCN-DC eutectic alloy

物理学报.2013, 62(21): 218103 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.218103>

强磁场对 Mn-Sb 包晶合金相变及凝固组织的影响

Influence of high magnetic fields on phase transition and solidification microstructure in Mn-Sb peritectic alloy

物理学报.2013, 62(20): 208106 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.208106>

# 磁感应强度和冷却速率对 $Tb_{0.27}Dy_{0.73}Fe_{1.95}$ 合金凝固过程中取向行为的影响\*

高鹏飞 刘铁<sup>†</sup> 柴少伟 董蒙 王强

(东北大学, 材料电磁过程研究教育部重点实验室, 沈阳 110819)

(2015年7月18日收到; 2015年10月22日收到修改稿)

实验研究了磁感应强度和冷却速率对  $Tb_{0.27}Dy_{0.73}Fe_{1.95}$  合金凝固过程中  $(Tb, Dy)Fe_2$  相取向行为及合金磁性能的影响。结果表明, 将强磁场作用于  $Tb_{0.27}Dy_{0.73}Fe_{1.95}$  合金的凝固过程可以制备出  $(Tb, Dy)Fe_2$  相沿  $\langle 111 \rangle$  取向的组织, 同时显著提高了合金的磁致伸缩性能; 通过提高磁感应强度可以在更快的冷却速率下得到  $\langle 111 \rangle$  取向的组织; 在 4—10 T 范围内, 随着冷却速率的增加,  $(Tb, Dy)Fe_2$  相沿  $\langle 111 \rangle$  取向所需的磁感应强度增加, 而发生  $\langle 110 \rangle$  取向的磁感应强度减小。随着冷却速率的增加, 合金的饱和磁化强度增加, 而强磁场的施加对合金饱和磁化强度的变化没有明显影响。 $(Tb, Dy)Fe_2$  相的取向行为受  $(Tb, Dy)Fe_3$  相取向行为的影响, 且由磁晶各向异性能与磁场作用时间共同控制。

**关键词:** 磁感应强度, 冷却速率,  $Tb_{0.27}Dy_{0.73}Fe_{1.95}$  合金, 晶体取向

**PACS:** 81.30.Fb, 81.05.Bx, 85.25.Am

**DOI:** 10.7498/aps.65.038104

## 1 引言

作为重要的磁性功能材料, 稀土-铁基巨磁致伸缩材料凭借其饱和磁致伸缩系数高、机电耦合系数高、输出能量大、响应速度快、能量密度高及非接触驱动等特点被广泛应用于声纳、致动器、精密机械、磁力传感器、自适应控制系统等高技术领域功能器件的制造<sup>[1-8]</sup>。 $Tb_xDy_{1-x}Fe_y$  ( $x = 0.2$ — $0.35$ ,  $y = 1.9$ — $2.0$ ) 合金便是这类巨磁致伸缩材料中的一个典型代表, 其功能相  $(Tb, Dy)Fe_2$  相具有 C-15 型立方 Lave 相结构和较强的磁晶各向异性, 沿其易磁化轴  $\langle 111 \rangle$ <sup>[9]</sup> 方向择优取向将使它具有更出色的磁致伸缩性能。因此, 如何制备出  $(Tb, Dy)Fe_2$  相沿  $\langle 111 \rangle$  或与  $\langle 111 \rangle$  相近的方向择优取向的  $Tb_xDy_{1-x}Fe_y$  合金进而获得磁致伸缩性能更优秀的稀土-铁基巨磁致伸缩材料是近年来研究人员关注的热点之一。目前, 稀土-铁基巨磁致伸

缩材料的研究中最为常用的制备方法主要包括定向凝固法<sup>[10-15]</sup>、烧结法<sup>[16]</sup>、黏结法等<sup>[17]</sup>。Zhao 等<sup>[10]</sup> 研究了生长速率对浮区熔法制备高  $\langle 110 \rangle$  晶体取向的  $Tb_{0.3}Dy_{0.7}Fe_{1.95}$  合金磁致伸缩性能的影响, 发现当生长速率为 720 mm/h 时合金在外加磁场强度为 5000 Oe 无压应力下的最大磁致伸缩系数为 1011 ppm。Palit 等<sup>[11]</sup> 使用定向凝固法制备的沿  $\langle 112 \rangle$  方向择优取向的 Tb-Dy-Fe 合金在 5000 Oe 无压应力下的最大磁致伸缩系数接近 1300 ppm。沿  $\langle 110 \rangle$  和  $\langle 112 \rangle$  方向择优取向的 Tb-Dy-Fe 合金需要在较高的外加磁场或较大的压应力下才能显现出高的磁致伸缩性能。在定向凝固中亦有籽晶法可以制备出具有  $\langle 111 \rangle$  取向的单晶稀土-铁基合金<sup>[13,14]</sup>。然而该方法生长速率缓慢, 制备效率较低, 同时由于稀土元素的挥发和较慢的生长速率<sup>[15]</sup> 使得合金基体中出现大量魏氏体  $(Tb, Dy)Fe_3$  组织, 对机械性能产生不利的影响。此外, 尽管烧结法和黏结法

\* 国家自然科学基金(批准号: 51425401, 51574073, 51174056) 和中央高校基本科研业务费(批准号: N140901001, N130302005)资助的课题。

† 通信作者。E-mail: liutie@epm.neu.edu.cn.

也能制备出沿 $\langle 111 \rangle$ 方向择优取向的稀土-铁基复合材料<sup>[16,17]</sup>,但是和定向凝固法制备的沿 $\langle 110 \rangle$ 和 $\langle 111 \rangle$ 取向的合金相比在磁致伸缩性能上仍存在较大差距。

近年来随着科学技术的发展,强磁场(通常指的是磁感应强度大于2 T的磁场)作为一种非接触作用被广泛应用于如凝固等<sup>[18-25]</sup>材料制备过程中。通过强磁场对物质产生的洛伦兹力和磁化力作用,以及对具有磁晶各向异性晶体产生的磁力矩作用,强磁场可以显著影响晶体的生长过程并诱导晶体发生同磁场方向呈特定关系的晶体取向<sup>[26,27]</sup>。最近,本课题组将磁感应强度为4.4 T的强磁场施加到Tb<sub>0.3</sub>Dy<sub>0.7</sub>Fe<sub>1.9</sub>合金的自由凝固过程,在1.5 °C/min的冷却速率下得到(Tb, Dy)Fe<sub>2</sub>相呈高 $\langle 111 \rangle$ 取向的凝固组织,同时合金的最大磁致伸缩系数、在低场区的磁致伸缩性能、动态磁致伸缩系数和磁机械耦合系数等均得到了显著提高。但是,较低的冷却速率也导致合金中出现了魏氏体组织<sup>[18,19]</sup>。根据磁场诱导晶体发生取向的相关理论,物质具有磁晶各向异性、在磁场中的磁化能大于热扰动能、充分的作用时间及旋转空间是物质在强磁场作用下发生旋转取向的四个必要条件<sup>[26,27]</sup>。这就意味着在实现晶体取向的基础上,如果进一步提高磁感应强度必然可以通过提高磁力矩而提高晶体发生旋转取向的效率,缩短取向时间。因此,通过增大所施加磁场的磁感应强度,有可能在更大的冷却速率下制备出具有高 $\langle 111 \rangle$ 取向的Tb-Dy-Fe合金,进而提高材料的制备效率,并抑制魏氏体组织的形成,实现提高材料综合性能的目的。本文在不同磁感应强度及冷却速率下进行了Tb<sub>0.27</sub>Dy<sub>0.73</sub>Fe<sub>1.95</sub>合金的凝固实验,考察了磁感应强度及冷却速率对合金中(Tb, Dy)Fe<sub>2</sub>相取向行为及合金磁性能的影响规律,初步讨论了磁感应强度及冷却速率对Tb<sub>0.27</sub>Dy<sub>0.73</sub>Fe<sub>1.95</sub>合金在凝固过程中凝固组织产生影响的作用机理。

## 2 实验方法

本实验采用真空感应熔炼的方法熔炼母合金,原材料选用纯度为99.9%的Tb, Dy, Fe纯物质,制备出来的Tb-Dy-Fe合金锭经化学成分分析得到合金的原子比为Tb<sub>0.27</sub>Dy<sub>0.73</sub>Fe<sub>1.95</sub>,通过金相分析确认母合金凝固组织均匀。将熔炼好的母合金线切割成Φ10 mm × 15 mm的圆柱形样品经打磨和清洗

后封装于充有氩气保护的石英管中。将样品固定在置于超导强磁体内的感应加热装置中并处于磁场的中心位置。将试样从室温加热至1350 °C,保温5 min后以不同冷却速率降温至800 °C,然后关闭加热电源,使样品随炉冷却至室温。采用的磁场条件分别为4, 4.4, 6, 8和10 T,冷却速率分别为2, 4, 5, 6和8 °C/min,共18个试样。开始励磁、降磁的温度都为800 °C。将凝固后的试样沿横、纵截面切开后打磨、抛光。通过金相显微镜观察试样的微观组织;采用X射线衍射仪(XRD)(Cu Ka)对合金平行于磁场方向截面上的(Tb, Dy)Fe<sub>2</sub>相的晶体学取向进行分析;使用振动样品磁强计(VSM)测试了试样的磁滞回线;利用静态电阻应变仪对部分样品进行了无压应力下磁致伸缩性能的检测。

## 3 实验结果

### 3.1 强磁场对Tb<sub>0.27</sub>Dy<sub>0.73</sub>Fe<sub>1.95</sub>合金磁致伸缩性能的作用效果

根据本课题组先前的研究结果,首先进行了有、无4.4 T强磁场作用和5 °C/min的冷却速率时合金的凝固实验。图1为在有、无强磁场作用时凝固的试样沿平行于磁场方向截面的XRD谱线。可以看出,在无磁场作用下,试样中(Tb, Dy)Fe<sub>2</sub>相的晶体取向呈随机分布;而将4.4 T强磁场作用于Tb<sub>0.27</sub>Dy<sub>0.73</sub>Fe<sub>1.95</sub>合金的凝固过程后,试样中的(Tb, Dy)Fe<sub>2</sub>相沿 $\langle 111 \rangle$ 方向择优取向。图2为无

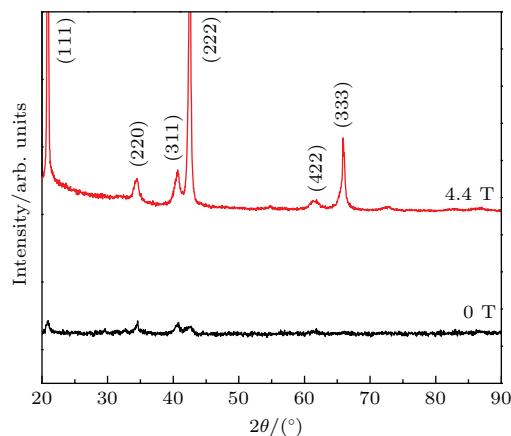


图1 在有、无4.4 T强磁场作用下以5 °C/min冷却速率凝固的Tb<sub>0.27</sub>Dy<sub>0.73</sub>Fe<sub>1.95</sub>合金沿平行于磁场方向截面的XRD谱线(图中仅标出了(Tb, Dy)Fe<sub>2</sub>相的衍射峰)

Fig. 1. XRD patterns of Tb<sub>0.27</sub>Dy<sub>0.73</sub>Fe<sub>1.95</sub> alloys solidified under 5 °C/min cooling rate with and without 4.4 T high magnetic field in the plane parallel to the magnetic field direction (only (Tb, Dy)Fe<sub>2</sub> phase peak).

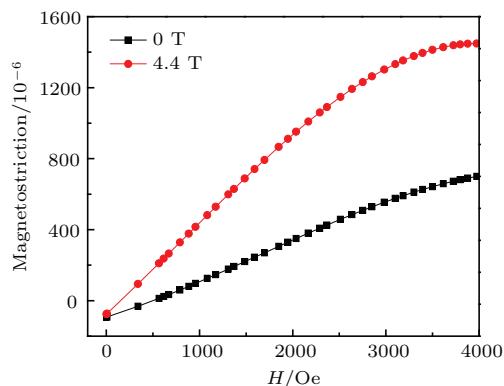


图2 在有、无4.4 T强磁场作用下以5 °C/min冷却速率凝固的Tb<sub>0.27</sub>Dy<sub>0.73</sub>Fe<sub>1.95</sub>合金在无压应力下的磁致伸缩曲线

Fig. 2. Magnetostriective curve of under free pressure Tb<sub>0.27</sub>Dy<sub>0.73</sub>Fe<sub>1.95</sub> alloy solidified under 5 °C/min cooling rate with and without 4.4 T high magnetic field.

压应力下试样沿平行于磁场方向的磁致伸缩曲线。从图2可以看出，沿〈111〉方向择优取向的试样(4.4 T)的磁致伸缩性能远远大于随机取向的试样(0 T)，而且在低外场作用下沿〈111〉方向取向的试样仍具有较大的磁致伸缩系数。上述结果进一步验证，将强磁场作用于Tb<sub>0.27</sub>Dy<sub>0.73</sub>Fe<sub>1.95</sub>合金的凝固过程可以诱导其中的(Tb, Dy)Fe<sub>2</sub>相沿〈111〉方向择优取向进而大幅提高合金的磁致伸缩性能。另外，上述结果也初步确定了可以发生〈111〉取向的磁感应强度和冷却速率范围。在此基础上分别选取4, 6, 8和10 T的磁场条件以及2, 4, 6和8 °C/min的冷却速率进行了系统的实验研究，考察了磁感应强度和冷却速率对Tb<sub>0.27</sub>Dy<sub>0.73</sub>Fe<sub>1.95</sub>合金凝固组织的影响。

### 3.2 磁感应强度及冷却速率对(Tb, Dy)Fe<sub>2</sub>相取向行为的影响

通过对母合金和重熔后凝固的合金进行组织观察发现，母合金主要由(Tb, Dy)Fe<sub>2</sub>相组成，仅有少量的富稀土相分布在(Tb, Dy)Fe<sub>2</sub>相晶界周围(图3(a))；但是所有在有、无磁场作用下重熔后凝固的试样中除了(Tb, Dy)Fe<sub>2</sub>相和富稀土相外，都出现了条状的(Tb, Dy)Fe<sub>3</sub>相(如图3(b))显示的在8 T和2 °C/min条件下凝固的合金组织)。在组织观察的基础上研究了不同磁感应强度和冷却速率下凝固的Tb<sub>0.27</sub>Dy<sub>0.73</sub>Fe<sub>1.95</sub>合金中(Tb, Dy)Fe<sub>2</sub>相的晶体取向。图4(a)–(d)分别为

4, 6, 8和10 T磁场条件下以不同冷却速率凝固的Tb<sub>0.27</sub>Dy<sub>0.73</sub>Fe<sub>1.95</sub>合金试样沿磁场方向截面的XRD谱线。从图4(a)中可以看出将4 T强磁场作用于Tb<sub>0.27</sub>Dy<sub>0.73</sub>Fe<sub>1.95</sub>合金的凝固过程中，试样中(Tb, Dy)Fe<sub>2</sub>相的择优取向随着冷却速率的升高沿由〈111〉方向向〈211〉再向〈311〉最后向〈110〉方向转变。而当磁感应强度增加至6 T后随着冷却速率的升高试样中的(Tb, Dy)Fe<sub>2</sub>相的择优取向由〈110〉向〈311〉方向再向〈111〉方向偏转。当磁感应强度进一步增大至8 T时，试样中的(Tb, Dy)Fe<sub>2</sub>相的择优取向由〈110〉方向转向〈311〉方向。将10 T的强磁场作用于Tb<sub>0.27</sub>Dy<sub>0.73</sub>Fe<sub>1.95</sub>合金的凝固过程后，合金中(Tb, Dy)Fe<sub>2</sub>相的择优取向随着冷却速率的升高由〈110〉方向向〈311〉方向再向〈211〉方向最后又转回〈110〉方向；10 T强磁场作用下以8 °C/min冷却速率制得的Tb<sub>0.27</sub>Dy<sub>0.73</sub>Fe<sub>1.95</sub>合金中的(Tb, Dy)Fe<sub>2</sub>相尽管沿〈110〉方向择优取

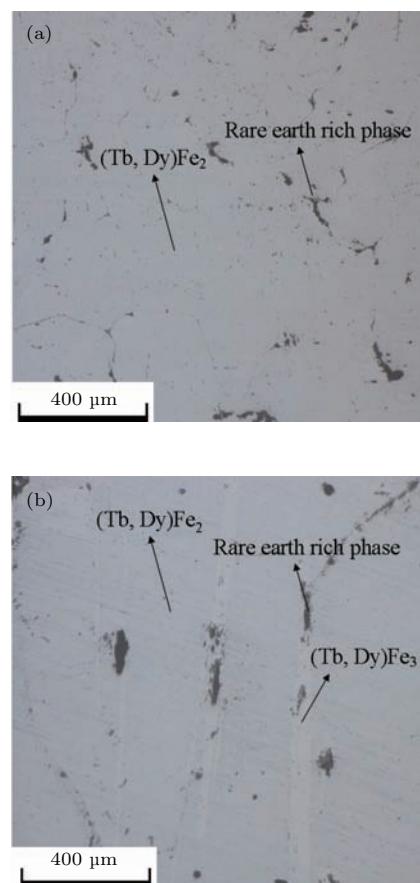


图3 Tb<sub>0.27</sub>Dy<sub>0.73</sub>Fe<sub>1.95</sub>合金的微观组织 (a) 母合金; (b) 在8 T强磁场和2 °C/min冷却速率条件下凝固的试样  
Fig. 3. Microstructure of Tb<sub>0.27</sub>Dy<sub>0.73</sub>Fe<sub>1.95</sub>alloy: (a) As-cast alloy; (b) specimen solidified under 2 °C/min cooling rate with 8 T high magnetic field.

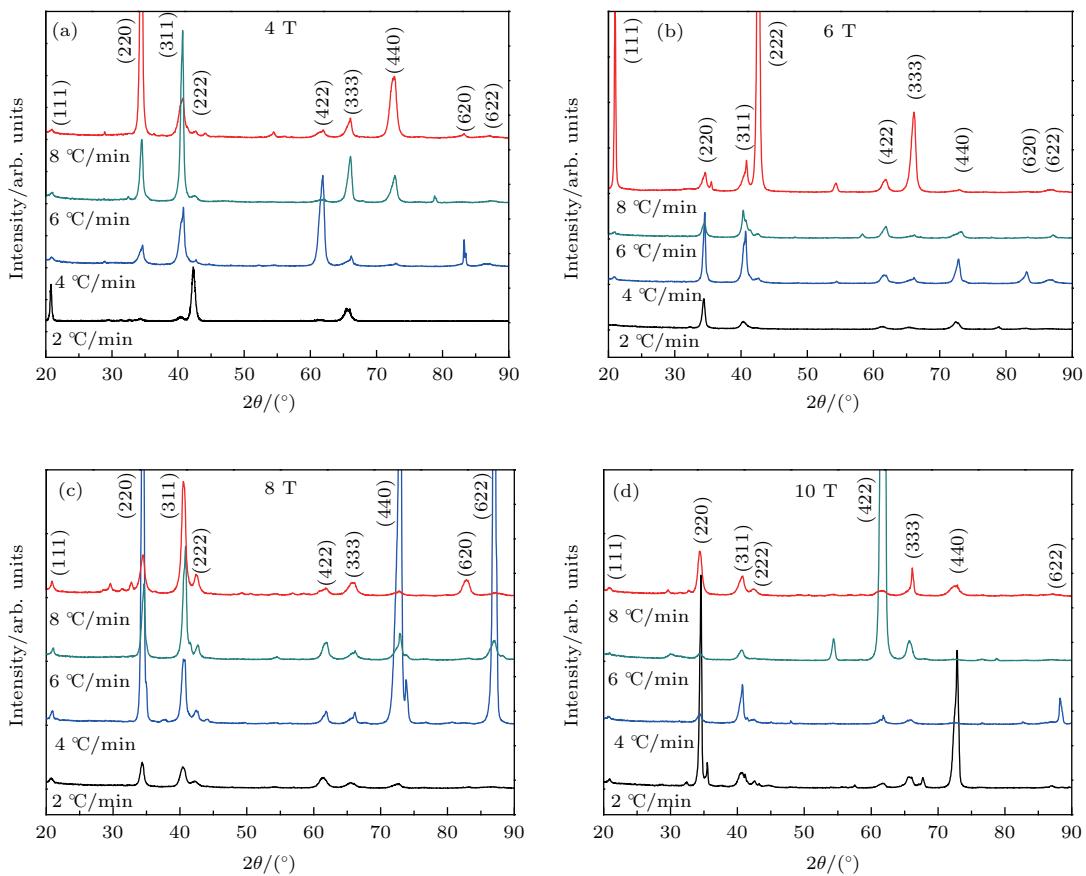


图4 (网刊彩色) 不同磁感应强度下  $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$  合金以不同冷却速率凝固试样的XRD谱线(图中仅标出了 $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$ 相的衍射峰) (a) 4 T; (b) 6 T; (c) 8 T; (d) 10 T

Fig. 4. (color online) XRD patterns of  $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$  alloys solidified under different cooling rates with different magnetic flux densities (only  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  phase peak): (a) 4 T; (b) 6 T; (c) 8 T; (d) 10 T.

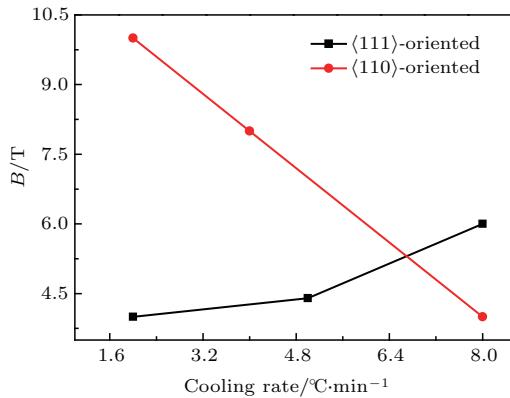


图5  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相发生  $\langle 111 \rangle$  和  $\langle 110 \rangle$  取向时所需的磁感应强度随冷却速率的变化

Fig. 5. The functional relationship between magnetic flux density and cooling rate for  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  phase oriented along  $\langle 111 \rangle$  and  $\langle 110 \rangle$  directions.

向, 然而合金中  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相沿  $\langle 111 \rangle$  方向的衍射峰也较强。图5为  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相发生  $\langle 111 \rangle$  和  $\langle 110 \rangle$  取向时所需的磁感应强度随冷却速率的变化。可以看出通过增大  $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$  合金在凝固过程中施加磁场的磁感应强度, 可以在更高

的冷却速率下获得  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相沿  $\langle 111 \rangle$  方向择优取向的凝固组织, 相反若要在更快的冷却速率下获得  $\langle 110 \rangle$  取向则所需的磁感应强度变小。另外,  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相沿  $\langle 111 \rangle$  和  $\langle 110 \rangle$  方向择优取向时磁感应强度随冷却速率的变化是非线性的。

### 3.3 磁感应强度及冷却速率对 $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$ 磁性能的影响

图6描述了图5中各磁场及冷速条件下制得试样平行于磁场方向的VSM曲线, 图7则在图6的基础上描述了各试样饱和磁化强度随冷却速率的变化。可以看出, 当合金中  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相择优取向的方向同为  $\langle 111 \rangle$  方向时, 随着冷却速率由  $2^{\circ}\text{C}/\text{min}$  增大至  $8^{\circ}\text{C}/\text{min}$  时试样饱和磁化强度依次约为 68, 76.5 和 82.5 emu/g, 即呈递增趋势; 而当合金中  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相择优取向的方向同为  $\langle 110 \rangle$  方向时, 随着冷却速率的增大, 试样饱和磁化强度依次为 68.5, 72.5 和 82 emu/g 亦呈递增趋势。此外, 不同取向的试样的饱和磁化强度随冷却速率的变化曲

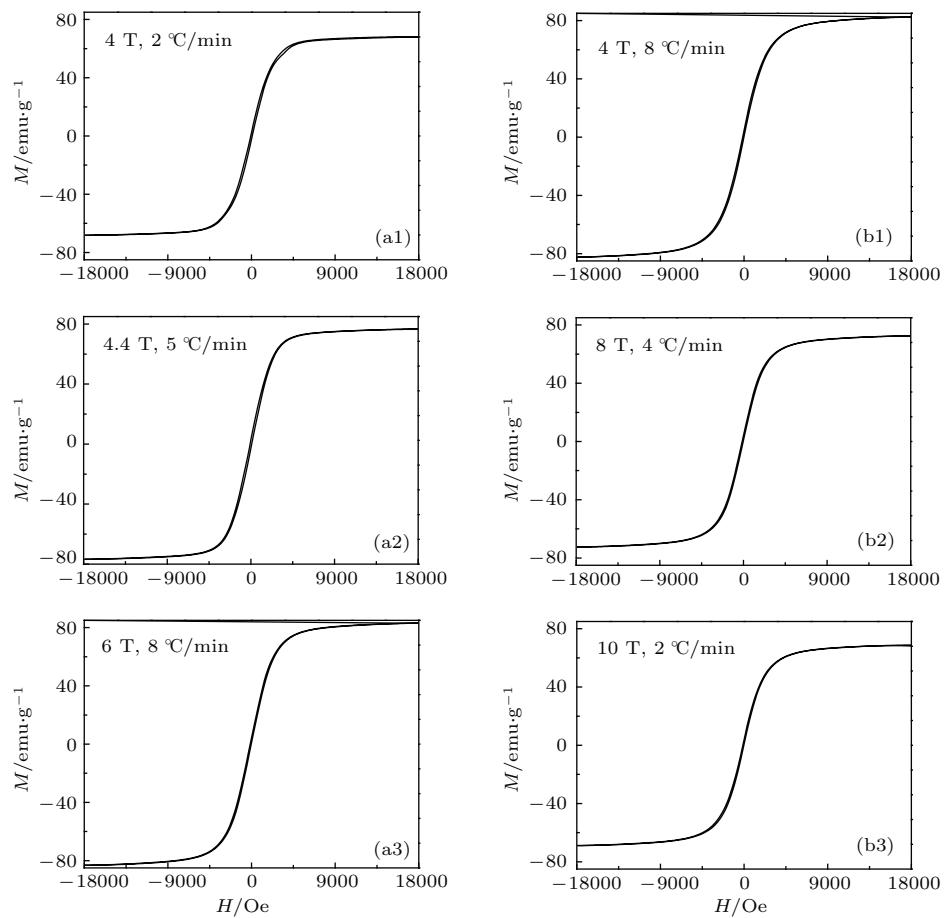


图6 各强磁场及冷速条件下  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相沿  $\langle 111 \rangle$  和  $\langle 110 \rangle$  方向择优取向试样的VSM曲线 (a1) 4 T, 2 °C/min; (a2) 4.4 T, 5 °C/min; (a3) 6 T, 8 °C/min; (b1) 4 T, 8 °C/min; (b2) 8 T, 4 °C/min; (b3) 10 T, 2 °C/min

Fig. 6. VSM curves of  $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$  alloys phase oriented along  $\langle 111 \rangle$  and  $\langle 110 \rangle$  directions under different magnetic flux densities and cooling rates: (a1) 4 T, 2 °C/min; (a2) 4.4 T, 5 °C/min; (a3) 6 T, 8 °C/min; (b1) 4 T, 8 °C/min; (b2) 8 T, 4 °C/min; (b3) 10 T, 2 °C/min.

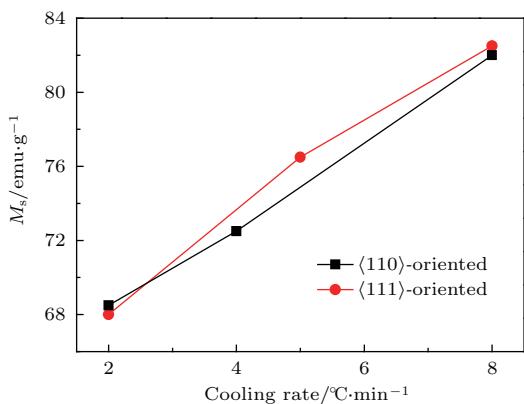


图7  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相沿  $\langle 111 \rangle$  和  $\langle 110 \rangle$  方向择优取向试样的饱和磁化强度随冷却速率的变化

Fig. 7. The functional relationship between saturation magnetization and cooling rate for  $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$  phase oriented along  $\langle 111 \rangle$  and  $\langle 110 \rangle$  directions.

线基本重合。 $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相是  $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$  合金中的磁性相，其含量的多少直接决定了  $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$  合金饱和磁化强度的大小。因

此，图7中所示的结果说明随着冷却速率的增加，合金中  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相的含量增加，且强磁场的施加对合金中的  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相的含量没有显著影响。在  $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$  合金的凝固过程中，随着冷却速率的升高，合金从液态到固态的转变时间变短，因此稀土元素的挥发得到了抑制进而促进了合金中  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相的形成。另外，更快的冷却速率也有利于  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相形成 [15]。

## 4 分析与讨论

### 4.1 强磁场下 $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$ 相的取向机理

当具有磁晶各向异性的物质置于强磁场时，沿不同方向磁化所需要的磁化能大小不同，该磁化能差，即磁晶各向异性能  $\Delta E$  可由下式表示：

$$\Delta E = -\frac{1}{2\mu_0} \Delta \chi V B^2, \quad (1)$$

其中  $\mu_0$  为真空磁导率,  $\Delta \chi$  为物质在不同方向上的磁化率差值,  $V$  为物质的体积,  $B$  为磁感应强度. 当  $\Delta E$  增大到足够克服系统热扰动能  $kT$  (其中  $k$  代表玻尔兹曼常数,  $T$  代表温度) 的影响时, 物质才可能在磁场的作用下发生旋转取向. 通常情况下, 物质的易磁化轴将沿着平行于磁场方向择优取向. 对稀土-铁基磁致伸缩材料来说, 在强磁场作用下  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相在形成过程中本应沿其易磁化轴  $\langle 111 \rangle$  方向取向. 然而图 4 所示的 XRD 结果则表明, 各磁场条件下  $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$  合金以不同冷却速率凝固, 合金中的  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相分别沿  $\langle 111 \rangle$ ,  $\langle 211 \rangle$ ,  $\langle 311 \rangle$  和  $\langle 110 \rangle$  四个方向择优取向, 各方向与  $\langle 111 \rangle$  方向的夹角依次为  $\alpha_{\langle 111 \rangle} = 0^\circ$ ,  $\alpha_{\langle 112 \rangle} = 19.47^\circ$ ,  $\alpha_{\langle 113 \rangle} = 29.50^\circ$  和  $\alpha_{\langle 110 \rangle} = 35.26^\circ$ .

根据 Tb-Dy-Fe 合金的赝二元相图 [28] 可知,  $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$  合金凝固过程中将发生如下包晶反应:



$(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  由  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_3$  在冷却过程中通过包晶转变形成,  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_3$  同样具有一定的磁晶各向异性, 其易磁化轴为  $b$  轴 [29]. 在  $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$  合金凝固过程中  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  的晶体取向也将受到  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_3$  晶体取向的影响, 这一点也在  $\text{TbFe}_2$  合金的半固态凝固中得到了证实 [30].

当  $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$  合金凝固过程中施加的磁感应强度为 4 T 时, 由于强磁场对  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_3$  相产生的磁晶各向异性作用有限, 不足以克服热扰动对其的影响, 同时该条件强磁场对  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相产生的磁晶各向异性作用又足以克服热扰动而使其沿着易磁化轴方向择优取向, 因此在冷却速率为 2 °C/min 时, 合金中的  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相沿着  $\langle 111 \rangle$  方向择优取向. 再根据 Tb-Dy-Fe 合金的赝二元相图可知, 在  $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$  合金的凝固过程中合金从液态到固态的变化过程中, 仅仅经历了 10 °C 左右的温度区间, 而强磁场下  $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$  合金的凝固过程中, 晶体取向也仅发生在该温度区间内. 当冷却速率为 2 °C/min 时,  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相在形成过程中受到强磁场的作用时间足以让其沿易磁化

轴方向择优取向, 而当冷却速率增大至 4 °C/min 后, 强磁场对  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相作用时间减小为原来的一半. 由于强磁场的作用时间有限,  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相在旋转取向过程中来不及向  $\langle 111 \rangle$  方向择优取向, 导致  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相最终沿着偏离  $\langle 111 \rangle$  方向 19.47° 的  $\langle 112 \rangle$  方向取向. 之后随着冷却速率的进一步增大,  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相受到的磁场的作用时间越来越少,  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相的择优取向的方向偏离  $\langle 111 \rangle$  方向的角度也越来越大. 因此, 当冷却速率分别为 6 °C/min 和 8 °C/min 时,  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相择优取向的方向分别沿  $\langle 113 \rangle$  和  $\langle 110 \rangle$  方向.

## 4.2 $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_3$ 相对 $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$ 相取向行为的影响

由于物质所受磁晶各向异性能的大小正比于磁感应强度的平方 ((1) 式), 当  $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$  合金凝固过程中施加的磁感应强度增大至 6 T 后, 强磁场对  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_3$  相和  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相产生的磁晶各向异性能作用增大为 4 T 强磁场作用时的 2.25 倍, 以至于该作用足以克服热扰动对  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_3$  相的影响而使其沿  $b$  轴择优取向, 同时使  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相沿  $\langle 111 \rangle$  方向旋转取向所需的时间减少. 当  $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$  合金以 2 °C/min 的冷却速率凝固时, 由于 6 T 强磁场在  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_3$  相的形成过程中对其产生的磁晶各向异性能作用时间较为充分, 进而沿  $b$  轴或近  $b$  轴方向择优取向, 导致在该条件下  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相的形成过程中受到  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_3$  相晶体取向的影响较大而沿着偏离  $\langle 111 \rangle$  方向 35.26° 的  $\langle 110 \rangle$  方向择优取向. 6 T 强磁场作用下, 随着冷却速率增大为 4 °C/min 后,  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_3$  相受到强磁场作用的时间减少为原来的一半,  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相形成过程中受到  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_3$  相晶体取向的影响也随之减小, 因此, 6 T 强磁场下以 4 °C/min 冷却速率凝固的  $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$  合金中的  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相沿着较  $\langle 110 \rangle$  方向距  $\langle 111 \rangle$  方向角度更近的  $\langle 113 \rangle$  方向择优取向. 此后, 随着冷却速率进一步增大至 6 °C/min 和 8 °C/min 时,  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_3$  相受到强磁场作用的时间越来越少,  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相形成过程中受到  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_3$  相晶体取向的影响也越来越小; 又由于 6 T 的磁感应强度足以使  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相在冷却速率为 8 °C/min 的条件下沿其易磁化轴方向择优取向, 因此, 随着冷却速率的进一步增大,  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  相择优取向

的方向与  $\langle 111 \rangle$  方向的夹角逐渐减小, 分别沿  $\langle 112 \rangle$  和  $\langle 111 \rangle$  方向取向。

随着  $Tb_{0.27}Dy_{0.73}Fe_{1.95}$  合金凝固过程中施加的磁感应强度的进一步增大, 强磁场对  $Tb_{0.27}Dy_{0.73}Fe_{1.95}$  合金凝固过程中  $(Tb, Dy)Fe_3$  相的晶体取向的作用越来越明显, 以至于  $8\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{min}$  冷却速率产生的热扰动能都不足以抵消磁场对  $(Tb, Dy)Fe_3$  相产生的磁晶各向异性能。因此在  $8\text{ T}$  和  $10\text{ T}$  强磁场作用下, 冷却速率小于  $8\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{min}$  时, 试样中的  $(Tb, Dy)Fe_2$  相的择优取向的方向都与其易磁化轴方向呈一定的角度关系。

与  $\langle 311 \rangle$  和  $\langle 211 \rangle$  两方向相比,  $\langle 110 \rangle$  方向与  $\langle 111 \rangle$  方向所呈的夹角最大,  $(Tb, Dy)Fe_2$  相在磁场中沿  $\langle 110 \rangle$  方向所需旋转的角度最小, 因此,  $Tb_{0.27}Dy_{0.73}Fe_{1.95}$  合金凝固过程中  $(Tb, Dy)Fe_2$  相沿  $\langle 110 \rangle$  取向时所需的磁感应强度最小。文献[21]中的结果表明将  $1\text{ T}$  强磁场作用于 Tb-Dy-Fe 合金的凝固过程中, 即可得到  $(Tb, Dy)Fe_2$  相沿  $\langle 110 \rangle$  方向取向的合金。故可以推断在较低磁场范围内,  $(Tb, Dy)Fe_2$  相发生  $\langle 110 \rangle$  取向时所需的磁感应强度随冷却速率的变化与  $4\text{--}10\text{ T}$  强磁场范围内  $\langle 111 \rangle$  取向随冷却速率变化的趋势一致。然而在  $4\text{--}10\text{ T}$  强磁场范围内随着磁感应强度的增大之所以出现  $(Tb, Dy)Fe_2$  相发生  $\langle 110 \rangle$  取向所需的冷却速率降低, 是因为当磁感应强度较大时,  $(Tb, Dy)Fe_2$  相的取向将受到  $(Tb, Dy)Fe_3$  相取向影响的结果。

## 5 结 论

本文对  $Tb_{0.27}Dy_{0.73}Fe_{1.95}$  合金在不同强磁场下, 以不同冷却速率进行了凝固实验, 研究了磁感应强度和冷却速率对  $Tb_{0.27}Dy_{0.73}Fe_{1.95}$  合金凝固过程中  $(Tb, Dy)Fe_2$  相取向行为的影响。主要结论如下:

- 1) 利用强磁场可以制备出  $(Tb, Dy)Fe_2$  相沿  $\langle 111 \rangle$  取向的  $Tb_{0.27}Dy_{0.73}Fe_{1.95}$  合金, 且合金的磁致伸缩性能显著增加;
- 2) 在  $4\text{--}10\text{ T}$  范围内, 随着冷却速率的增加, 实现  $(Tb, Dy)Fe_2$  相发生  $\langle 111 \rangle$  取向所需的磁感应强度增加, 而发生  $\langle 110 \rangle$  取向所需的磁感应强度减小;

- 3) 随着冷却速率的增加, 合金的饱和磁化强度增加, 强磁场的施加对合金饱和磁化强度的变化没

有明显影响;

4)  $(Tb, Dy)Fe_2$  相的取向行为受  $(Tb, Dy)Fe_3$  相取向行为的影响, 且由磁晶各向异性能与磁场作用时间共同控制。

## 参 考 文 献

- [1] Clark A E, Belson H 1972 *Phys. Rev. B* **5** 3642
- [2] Dhilsha R, Rajeshwari P M, Rajendran V 2005 *Def. Sci. J.* **55** 13
- [3] Xu L H, Jiang C B, Xu H B 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 192507
- [4] Zhang C S, Ma T Y, Yan M 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 037505 (in Chinese) [张昌盛, 马天宇, 严密 2011 物理学报 **60** 037505]
- [5] Ren W J, Zhang Z D 2013 *Chin. Phys. B* **22** 077507
- [6] Yan B P, Tang Z F, Lü F Z, Yang K J, Zhang C M, Li L Y 2014 *Chin. Phys. B* **23** 127504
- [7] Wang K, Liu T, Gao P F, Wang Q, Liu Y, He J C 2015 *Chin. Phys. Lett.* **32** 37502
- [8] Gao P F, Liu T, Dong M, Yuan Y, Wang K, Wang Q 2016 *Funct. Mater. Lett.* **9** 1650003
- [9] Jile D C 1994 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **27** 1
- [10] Zhao Y, Jiang C B, Zhang H, Xu H B 2003 *J. Alloy. Compd.* **354** 263
- [11] Palit M, Banumathy S, Singh A K, Pandian S, Chat-topadhyay K 2011 *Intermetallics* **19** 357
- [12] Bai X B, Jiang C B 2010 *J. Rare Earth* **28** 104
- [13] Kang D Z, Liu J H, Jiang C B, Xu H B 2015 *J. Alloy. Compd.* **621** 331
- [14] Wu G H, Zhao X G, Wang J H, Li J Y, Jia K C, Zhan W S 1997 *Appl. Phys. Lett.* **67** 2005
- [15] Palit M, Arout Chelvane J, Pandian S, Manivel Raja M, Chandrasekaran V 2009 *Mater. Charact.* **60** 40
- [16] Meng H, Zhang T L, Jiang C B, Xu H B 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 102501
- [17] Mei W, Umeda T, Zhou S, Wang R 1997 *J. Magn. Magn. Mater.* **174** 100
- [18] Gao A, Wang Q, Wang C J, Liu T, Zhang C, He J C 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 767 (in Chinese) [高翱, 王强, 王春江, 刘铁, 张超, 赫冀成 2008 物理学报 **57** 767]
- [19] Liu T, Wang Q, Zhang C, Gao A, Li D G, He J C 2009 *J. Mater. Res.* **24** 2321
- [20] Liu T, Liu Y, Wang Q, Iwai K, Gao P F, He J C 2013 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **46** 125005
- [21] Liu Y, Wang Q, Kazuhiko I, Yuan Y, Liu T, He J C 2014 *J. Magn. Magn. Mater.* **357** 18
- [22] Rango P D, Lees M R, Lejay P, Sulpice A, Tournier R, Ingold M, Geumi P, Pernet M 1991 *Nature* **349** 770
- [23] Wang Q, Liu T, Wang K, Gao P F, Liu Y, He J C 2014 *ISIJ Int.* **54** 516
- [24] Yuan Y, Li Y L, Wang Q, Liu T, Gao P F, He J C 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 208106 (in Chinese) [苑轶, 李英龙, 王强, 刘铁, 高鹏飞, 赫冀成 2013 物理学报 **62** 208106]
- [25] Liu T, Wang Q, Gao P F, Wang K, Wang K, Zhang T A, He J C 2014 *IEEE Trans. Magn.* **50** 2505603
- [26] Asai S 2007 *ISIJ Int.* **47** 519

- [27] Wu C Y, Li S, Sassa K, Chino Y, Hattori K, Asai S 2005  
*Mater. Trans.* **46** 1311
- [28] Mei W, Toshimisu O, Takateru U 1997 *J. Alloy. Compd.*  
**248** 132
- [29] Arif S K, Bunbury D S P, Bowden G J 1975 *J. Phys. F: Met. Phys.* **5** 1785
- [30] Gao P F, Wang Q, Liu T, Liu Y, Niu S X, He J C 2015  
*IEEE Trans. Magn.* **51** 2500706

# Influence of magnetic flux density and cooling rate on orientation behavior of $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$ alloy during solidification process\*

Gao Peng-Fei Liu Tie<sup>†</sup> Chai Shao-Wei Dong Meng Wang Qiang

(Key Laboratory of Electromagnetic Processing of Materials (Ministry of Education), Northeastern University, Shenyang 110819, China)

(Received 18 July 2015; revised manuscript received 22 October 2015)

## Abstract

The rare-earth giant magnetostrictive material  $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$  is one of the most important functional magnetic materials. Their superior properties include high saturation magnetostrictive coefficient at room temperature, high electromechanical coupling coefficients, high output power, fast response, high energy density, and non-contact drive. Thus, they can be used to build sensors, precision machinery, magnetomechanical transducers, and adaptive vibration-control systems. In this material, the magnetic phase  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  has a typical  $\text{MgCu}_2$ -type cubic Laves phase structure and exhibits different magnetostrictive properties along different crystal orientations. The  $\langle 111 \rangle$  direction of this phase is the easy magnetization axis, along which the linear magnetostriction is higher than other directions. Thus, researchers have focused on preparing  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  with a crystallographic orientation along or close to the  $\langle 111 \rangle$  direction. Generally, the directional solidification method is used to prepare the  $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$  alloy. However, a crystal orientated along the  $\langle 110 \rangle$  or  $\langle 112 \rangle$  direction is always obtained and both of these directions require a high external magnetic field for improved magnetostrictive performance. The  $\langle 111 \rangle$  preferred growth orientation can be acquired using seed crystal technology. However, the relatively low growth velocity can cause the appearance of the linear  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_3$  phase which induces a high brittleness of the material. Therefore, new methods to prepare  $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$  products with high  $\langle 111 \rangle$  orientation at higher growth velocity are required. In this paper, we solidify the  $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$  alloys under various high magnetic field and cooling rate conditions. We study the effects of the magnetic flux density and cooling rate on the crystal orientation of the  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  phase and the magnetization behavior of the alloys. It is found that after field-treated solidification, a high  $\langle 111 \rangle$  orientation of  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  along the magnetic field direction can be produced. As a consequence, the magnetostriction without applying stress remarkably increases. By increasing the magnetic flux density applied during the solidification of the  $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$  alloys, the  $\langle 111 \rangle$  orientation of  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  could be obtained at higher cooling rates. Ranging from 4 T to 10 T, with increasing cooling rate the magnetic flux density, at which the  $\langle 111 \rangle$  or  $\langle 110 \rangle$  orientation of  $(\text{Tb}, \text{Dy})\text{Fe}_2$  occurs, increases or decreases, respectively. The saturated magnetization of the alloys increases with increasing cooling rate. The application of the magnetic fields does not affect the saturated magnetization.

**Keywords:** magnetic flux density, cooling rate,  $\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73}\text{Fe}_{1.95}$  alloy, crystal orientation

**PACS:** 81.30.Fb, 81.05.Bx, 85.25.Am

**DOI:** 10.7498/aps.65.038104

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 51425401, 51574073, 51174056), and the Fundamental Research Funds for the Central Universities of China (Grant Nos. N140901001, N130302005).

† Corresponding author. E-mail: liutie@epm.neu.edu.cn.