

Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95} 合金的结构与磁致伸缩特性研究

马 垒^{1,2}, 顾正飞¹, 袁 乐¹, 赵家成¹

(1. 桂林电子科技大学, 广西 桂林 541004)

(2. 玉林师范学院, 广西 玉林 537000)

摘 要: 利用 XRD、SEM 和电阻应变片等方法研究了 Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95}($x=0.00, 0.02, 0.04, 0.06, 0.08$)合金的微观结构和磁致伸缩特性。结果表明: 当 Pt 含量 $x \leq 0.06$ 时, 合金为具有立方 MgCu₂ 型结构的 Laves 单相, Pt 置换 Fe 导致合金相的晶格常数 a 线性增大; 磁致伸缩系数 λ 随 Pt 含量的增加不断减小, 随外磁场 ($H \leq 500$ mT) 的增大而单调增大; 当合金在 950 °C 退火 4 h, 可获得较好的磁伸缩性能。在 $x=0.08$ 时, 合金中出现微量第二相 Fe₃Dy, 证实 Pt 在 Tb_{0.3}Dy_{0.7}Fe_{1.95} 合金中的最大固溶度小于 5at%。

关键词: Tb-Dy-Fe 合金; 热处理; 磁致伸缩; 立方 Laves 相; 显微组织

中图分类号: TG132.27; TM271.3

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2009)01-0072-04

在 Fe-Dy 二元合金相图中^[1], Fe₂Dy 化合物对 Fe 和 Dy 均没有固溶度, 是一个线性化合物。在研究 Fe-Pt-Dy 三元合金相图过程中, 发现 Pt 在 Fe₂Dy 化合物中有 5at% 的固溶度^[2], 这对发展新型磁致伸缩材料 Tb_{0.3}Dy_{0.7}Fe_{1.95} 有重要意义。三元稀土-铁合金 Tb_{0.3}Dy_{0.7}Fe₂ 是一种高性能超磁致伸缩材料, 商业上俗称 Terfenol-D, 具有巨磁致伸缩和低磁晶各向异性^[3], 在超声传感器和微动致动器等领域得到广泛应用。由于其存在低拉伸韧性、易碎性、低电阻率和相对高的饱和场等不利特性, 许多研究人员着眼于通过引入其他元素, 如 Mn、Co、Ni、Ga、Al、B、Ti、V、Zr 等部分地置换化合物中的 Fe, 以改善其宏观应用性能^[4-6], 也可以改变化合物磁晶各向异性从而改变合金的磁致伸缩性能^[7,8]。人们尝试用不同的稀土元素和铁的组合获得不同性能的磁致伸缩材料, 如 Sm_{0.85}Dy_{0.15}-Fe₂、Tb_{0.27}Dy_{0.73}Fe₂、Pr_{0.15}Ce_{0.85}Fe₂ 等。当稀土元素之间达到一定的比例时各向异性常数最低, 合金的低场磁致伸缩系数最高。同时还研究用 Ce、Pr、Nd 等轻稀土替代 Tb_{0.3}Dy_{0.7}Fe₂ 中的一部分 Tb 或 Dy, 结果发现, 这种替代不仅能改善材料的磁致伸缩性能, 而且由于轻稀土价格较低, 可大大提高材料的性能价格比。

关于 Pt 对 Tb_{0.3}Dy_{0.7}Fe₂ 合金性能的影响还未见报道。因此, 尝试用一部分 Pt 去取代 Fe, 对 Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95}($x=0.00, 0.02, 0.04, 0.06, 0.08$)化合物

的微观结构和磁特性进行研究。

1 实验方法

材料的组成和纯度如下: 铁的纯度为 99.95%, 铂纯度为 99.99%, 稀土 Tb、Dy 的纯度均为 99.99%, 材料的组成为 Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95}($x=0.00, 0.02, 0.04, 0.06, 0.08$)。熔炼采用 WK-II 型非自耗真空电弧炉, 在高纯 Ar 气保护下的水冷铜坩埚中进行。熔炼前先将电弧炉抽真空, 当炉体内真空度达到 3×10^{-3} Pa 后充入高纯 Ar 气, 反复清洗两遍, 最后重新充入 Ar 气, 以保护样品不受氧化。炉体内的气压略低于外部气压, 保证受热气体膨胀时气压不至过大。为使合金成分均匀, 样品反复翻转熔炼 4 次, 最后浇注在水冷铜模具中, 制得直径为 6 mm 的棒状实心试样。随后将样品封装在充有高纯 Ar 气保护的石英管中, 在 950 °C 均匀化退火不同的时间, 再快速在冰水中淬火。利用 X 射线衍射、扫描电子显微镜和电阻应变片法对其进行微观结构分析和磁性能测试。

X 射线衍射仪型号是 Bruker 公司的 D8 Advance, XRD 的测试采用 Cu 靶 K α 辐射。电子扫描显微镜型号是日本电子公司的 JSM-5610LV。用软件 Gufi5.0 计算样品的晶格常数 a 。

2 结果与讨论

收稿日期: 2008-02-30

基金项目: 广西自然科学基金项目 (0575095) 资助

作者简介: 马 垒, 男, 1978 年生, 硕士, 广西玉林师范学院物理与信息科学系, 广西 玉林 537000, E-mail: malei2008@sohu.com

图 1 为 $Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95}$ ($x=0.00, 0.02, 0.04, 0.06$) 合金样品经 $950^{\circ}C$ 退火 1 h 后的 XRD 图谱。可以看出, 图中衍射线(111)、(220)、(311)、(222)、(422)、(511)、(440)、(531)的位置和强度都与 Fe_2Dy 化合物的谱线相符合, 表明它们都具有立方 $MgCu_2$ 型 Laves 相结构, 是单相合金。Si 峰的出现是在做 XRD 时有意加入 Si 片做定标的结果。根据这些 X 射线的衍射数据, 利用 Gufi5.0 软件, 计算了合金样品的晶格常量 a , 其结果如图 2 所示。从中可以观察到, 晶格常数 a 随 Pt 含量 x 的增加几乎呈线性增长。这是由于 Pt 原子的半径比 Fe 原子半径大, 一部分 Pt 原子代替 Fe 原子后, 随着 Pt 替代量的增大, 致使 Laves 立方相的晶格常量 a 不断增大。

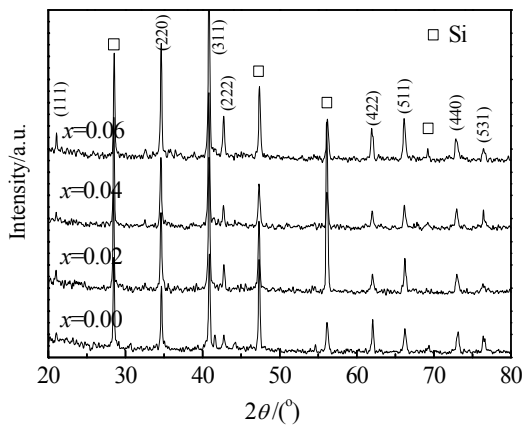


图 1 $Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95}$ 合金在 $950^{\circ}C$ 保温 1 h 的 XRD 图谱

Fig.1 Patterns of $Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95}$ alloy annealed at $950^{\circ}C$ for 1 h

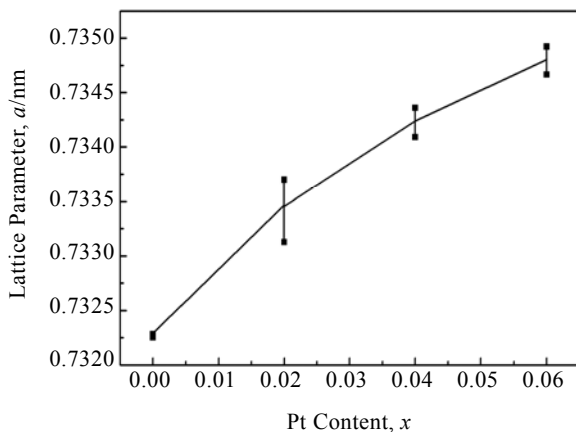


图 2 $Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95}$ 合金在 $950^{\circ}C$ 保温 1 h 后的晶格常量 a 随 Pt 含量 x 的变化趋势

Fig.2 The lattice constants dependence of Pt content

图 3 是 $x=0.08$ 时合金 $Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95}$ 的 X 图谱, 从图中可以看出, 该化合物为多晶样品, 主相是 Fe_2Dy 物相, 微量的第二相是 Fe_3Dy 。 RFe_2 相是 Terfenol-D 磁致伸缩材料的主相, 而 RFe_3 相也有较大的磁致伸缩性能, 但它作为第二相存在会严重阻碍畴壁的移动和磁畴的转动, 对获得高的磁致伸缩性能是不利的, RFe_3 相进一步增加会使磁致伸缩性能下降^[9]。图 4 是 $Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95}$ 合金在 $950^{\circ}C$ 退火 2 h 的 SEM 照片。从中清晰的显示有两相混合存在。由此可知: 对于 $Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95}$ 合金, 当 Pt 替代 Fe 的含量 $x=0.08$ 时, 为 Fe_2Dy 和 Fe_3Dy 组成的两相合金。

图 5 是采用电阻应变片法并利用惠斯登电桥测出的磁致伸缩系数对磁场的依赖关系。从该图可以看出, 随 Pt 含量的增加, $Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95}$ 合金的磁致伸

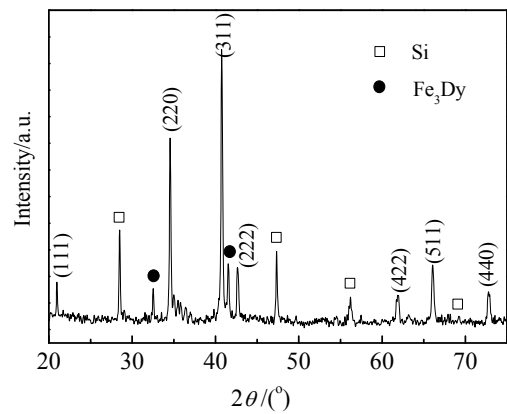


图 3 $x=0.08$ 时 $Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95}$ 合金在 $950^{\circ}C$ 的 XRD 图谱

Fig.3 XRD pattern of $Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95}$ ($x=0.08$) sample annealed at $950^{\circ}C$

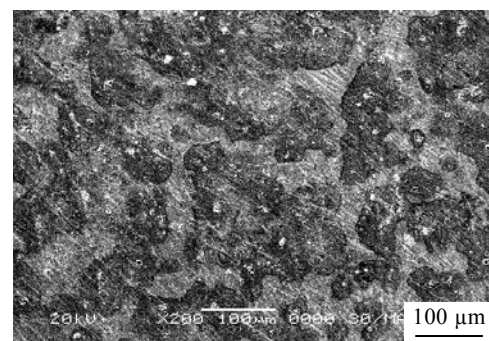


图 4 $Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95}$ 合金($x=0.08$)在 $950^{\circ}C$ 的 SEM 照片

Fig.4 SEM micrograph of $Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95}$ ($x=0.08$) sample annealed at $950^{\circ}C$

缩系数 λ 不断下降, 由 $Tb_{0.3}Dy_{0.7}Fe_{1.95}$ 的 820×10^{-6} 减小到 x 为 0.06 时的 390×10^{-6} 。从中还可看出, 磁致伸缩系数 λ 随外加磁场增加而单调增大, 在 500 mT 的磁场下仍未能使磁致伸缩量达到饱和, 如果增大磁场还会有增大的趋势。这表明添加 Pt 会导致合金相的磁晶各向异性增大, 提高饱和磁场值。

图 6 是 $Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95}$ 合金在 950 °C 保温不同时间对磁致伸缩量的影响。从中可以看出, 铸态合金的磁致伸缩性能很低, 经过 2 h 的热处理, 磁致伸缩系数 λ 增加很大, 当退火时间为 4 h 的时候 λ 还有小幅度的增加。之后再延长退火时间, 磁致伸缩系数 λ 又有减小的趋势。由此可知, 合金在 950 °C 退火 4 h 可以得到较好的磁致伸缩性能。

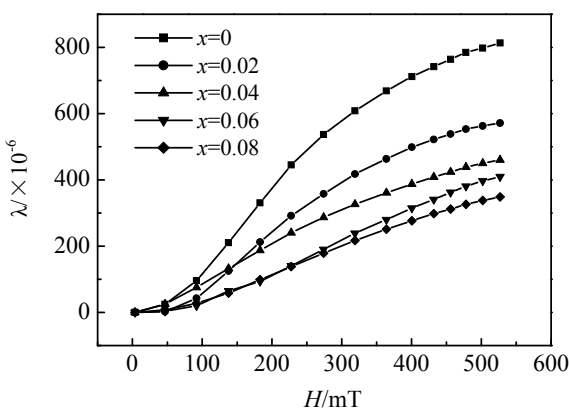


图 5 在 950 °C $Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95}$ 合金保温 2 h 后磁致伸缩系数随磁场的变化关系

Fig.5 The relationship between magnetostriction and H of $Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95}$ samples annealed at 950 °C for 2 h

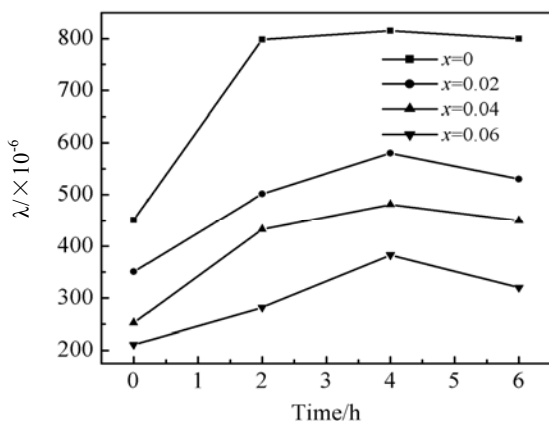


图 6 在 950 °C $Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95}$ 合金保温不同时间的磁致伸缩量

Fig.6 The magnetostriction with the time annealed at 950 °C for 2, 4 and 6 h

磁致伸缩材料的性能对于化学成分、显微结构以及热处理条件十分敏感, 氩弧熔炼工艺生产的铸件材料不但存在着成分偏析, 残余应力分布不均匀, 而且存在着少量的再生相^[10], 从而使得磁畴间的运动相互制约并卡死, 从而抑制了同时发生的再取向。经过 950 °C 退火处理后, 改善与消除了铸件材料的残余应力和成分偏析, 使存在于这些晶体中再生相颗粒周围局部熔化, 析出的富稀土 Tb、Dy 相大部分消失, 从而使得磁畴运动受到的阻力减小, 磁畴壁卡死状态和程度得到缓和, 或是加强了磁畴矩的转动^[9]。因此, 热处理工艺对提高材料的磁致伸缩性能有明显的效果。

3 结 论

1) $Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95}(x \leq 0.06)$ 合金由单一的立方 $MgCu_2$ 型 Laves 相组成; 随着 Pt 含量的增加, 晶格常数 a 不断增大, 磁致伸缩系数不断减小。

2) $x=0.08$ 的 $Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95}$ 合金由 Fe_2Dy 主相和杂质相 Fe_3Dy 组成, 印证 Pt 在 $Tb_{0.3}Dy_{0.7}Fe_{1.95}$ 合金中的最大固溶度小于 5at%。

3) $Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95}$ 合金的磁致伸缩系数随外加磁场的增加而单调增大, 在 500 mT 的磁场下, 磁致伸缩仍未达到饱和状态; 在 950 °C 退火 4 h 的合金, 磁致伸缩性能较好。

参考文献 References

[1] Kubaschewski. *Binary Alloy Phase Diagrams*[M]. OH: ASM International, Materials Park, 1997: 1572

[2] Ma Lei, Gu Zhengfei, Zhong Xiaping *et al. J Alloys Compd*[J], 2007, 427: 130

[3] Clark A E, Wohlfarth E P eds. *Ferromagnetic Materials*[M]. Anrsterdam: North-Holland, 1980: 531

[4] Funayama T, Kobayashi T, Sakia I *et al. Appl Phys Lett*[J], 1992, 61: 114

[5] Du J, Wang J H, Tang C C *et al. Appl Phys Lett*[J], 1998, 72: 489

[6] Prajapati K, Jenner A G, Schulze M P *et al. Appl Phys* [J], 1993, 73: 6171

[7] Zhong Junhui(钟俊辉). *Materials Review*(材料导报)[J], 1995, 1: 24

[8] He Guo(何 国), Zhou Shouzeng(周寿增), Li Jianguo(李建国) *et al. Materials Review*(材料导报)[J], 1996(5): 12

[9] Mo Quanlong(莫全龙), Li Ying(李瑛). *Heat Treatment of Metal*(金属热处理)[J], 2000, 12

[10] Ma Lei(马 垒), Gu Zhengfei(顾正飞), Cheng Gang(成 钢) *et al. Electrical Engineering Materials* (电工材料)[J], 2006, 1

Microstructure and Magnetostriction of $Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95}$ Alloys

Ma Lei^{1,2}, Gu Zhengfei¹, Yuan Le¹, Zhao Jiacheng¹

(1. Guilin University of Electronic Technology, Guilin 541004, China)

(2. Yulin Normal College, Yulin 537000, China)

Abstract: The microstructure and magnetic properties of the $Tb_{0.3}Dy_{0.7}(Fe_{1-x}Pt_x)_{1.95}$ ($x=0.00, 0.02, 0.04, 0.06, 0.08$) alloys were investigated by X-ray diffraction (XRD), scanning electron microscopy (SEM) and resistance strain gauge techniques. It is found that the alloys are the single phase microstructure of $MgCu_2$ cubic Laves when the Pt content is less than 0.06 at%, with a line increase of the lattice parameters with the increase of Pt content. But the magnetostriction coefficients decrease with the increase of Pt content, and increase with the increase of external magnetic fields. When the alloys were heated for 4 h at 950 °C, a better magnetostriction effect is obtained. A small amount of RFe_3 phase exists when the Pt content is 0.08 at%.

Key words: Tb-Dy-Fe alloy; heat treatment; magnetostriction; cubic Laves phase; microstructure

Biography: Ma Lei, Master, Department of Physics and Information Technology, Yulin Normal College, Yulin 537000, P. R. China, E-mail: malei2008@sohu.com