

# Исследование текстуры слитка поликристаллического сплава системы $Ni_2MnGa$

Мусабилов И.И.<sup>†</sup>, Мулюков Х.Я., Сафаров И.М.

<sup>†</sup>irekmusabirov@imsp.ru

Институт проблем сверхпластичности металлов РАН, ул. Халтурина 39, 450001 Уфа

## Investigation of texture in the polycrystalline ingot of $Ni_2MnGa$ alloy system

I.I. Musabirov, Kh.Ya. Mulyukov, I.M. Safarov

Institute for Metals Superplasticity Problems RAS, Khalturin St. 39, 450001 Ufa

В работе представлены результаты исследования структуры поликристаллического слитка сплава  $Ni_{2,08}Mn_{0,96}Ga_{0,96}$  изготовленного методом электронно-дуговой плавки. Исследование кристаллографической структуры высокотемпературной фазы показывает наличие в слитке сплава кристаллографической текстуры роста типа (110)<110>. Исследование двойниковой структуры низкотемпературной фазы сплава показывает, что в результате мартенситного превращения в образце формируется преимущественная ориентация двойников, и образец испытывает скачкообразное изменение длины.

**Ключевые слова:** мартенситное превращение, двойниковая структура, сплавы Ni-Mn-Ga, кристаллографическая текстура.

The work presents structural studies of polycrystalline  $Ni_{2,08}Mn_{0,96}Ga_{0,96}$  alloy produced by arc melting method in argon atmosphere. Analysis of the high temperature phase crystallographic structure reveals the presence of the growth texture of (110)<110> type. Investigations of the twin structure of low temperature phase shows that martensitic transformation leads to formation of dominating twin orientation that results in stepwise sample length change.

**Keywords:** martensitic transformation, twinning structure, Ni-Mn-Ga alloys, crystallographic texture.

### 1. Введение

Сплавы Гейслера системы  $Ni_2MnGa$  относятся к новому классу интеллектуальных материалов, обладающих ферромагнитным эффектом памяти формы с коротким временем отклика по сравнению с обычными сплавами с эффектом памяти формы [1-7]. Благодаря этому эффекту на основе сплавов возможно изготовление новых высокотехнологичных устройств, например актюаторов, в которых энергия магнитного поля преобразуется в механическую работу [8,9]. Наличие в сплавах данной системы эффекта памяти формы обусловлено происходящим в них структурным фазовым превращением мартенситного типа. В процессе фазового превращения высокотемпературная фаза с кубической решеткой типа  $L2_1$  переходит, в зависимости от состава, в тетрагональный, орторомбический либо моноклинный мартенсит [10,11]. В сплавах близких по составу к стехиометрическому чаще наблюдается тетрагональный мартенсит. Из

литературных данных известно, что в процессе мартенситного превращения монокристаллический образец сплава данной системы испытывает скачкообразное изменение геометрических размеров, что обусловлено изменением типа кристаллической решетки [3]. Поликристаллический образец сплава данной системы по некоторым данным скачкообразно сокращается в процессе мартенситного превращения, по другим нет [2,3]. В связи с этим, представляет интерес зависимость термического расширения образца, измеренная в области фазового превращения, от распределения двойников в структуре низкотемпературной фазы поликристаллического сплава системы  $Ni_2MnGa$ .

### 2. Материал и методы исследования

Поликристаллический сплав  $Ni_{2,08}Mn_{0,96}Ga_{0,96}$  был приготовлен дуговой плавкой в атмосфере аргона из Ni, Mn и Ga высокой чистоты. Для гомогенизации получен-

ные образцы отжигались в течение 9 дней при 1100 К, с последующей закалкой в воду с тающим льдом. Слиток сплава имел продолговатую форму (форму прутка), поскольку кристаллизация расплава проходила в медном продолговатом тигле с углублением и размерами 10 × 100 мм. Для идентификации направлений в слитке выбрана следующая схема. Направления в слитке выбраны таким образом, что ось N1 параллельна оси слитка, а ось N2 перпендикулярна оси N1 и лежит в горизонтальной плоскости слитка. Точки фазовых превращений имеют следующие значения:  $M_s = 294$  К (21°C);  $M_f = 267$  К (-6°C);  $A_s = 287$  К (14°C);  $A_f = 304$  (31°C);  $T_c = 375$  К (102°C). Здесь  $M_s$  ( $M_f$ ) и  $A_s$  ( $A_f$ ), соответственно, температуры начала (конца) фазовых переходов аустенит→мартенсит и мартенсит→аустенит, а точка  $T_c$  - температура Кюри.

Двойники в структуре низкотемпературной фазы имеют размеры от единиц до нескольких десятков микрометров в поперечнике. Это позволяет проводить наблюдения структуры низкотемпературной фазы методом оптической микроскопии. Соответствующие исследования проводились на оптическом микроскопе Axiovert-100A. Для охлаждения исследуемого образца до температур ниже точки окончания мартенситного превращения использовалась специальная приставка к микроскопу.

Исследование кристаллографических ориентировок в сплаве проводили методом дифракции обратно-отраженных электронов (Electron Back-Scattered Diffraction - EBSD). Съемка проводилась детектором обратно-отраженных электронов (Nordlys detector, Oxford Instruments) установленном на высоко разрешающем растровом электронном микроскопе Mira-3LMH (пр-во Чехия) с холодным полевым катодом. Поскольку на оборудовании отсутствует температурная приставка, для выявления кристаллографической структуры высокотемпературной фазы исследуемый образец вместе с держателем и столиком нагревался до температуры ~50°C, чтобы полностью завершилось обратное мартенситное превращение (мартенсит→аустенит). Затем столик с образцом помещался в камеру микроскопа, где его температура опускалась не ниже комнатной температуры (25°C). При этой температуре мартенситное превращение не начинается.

Исследование термического расширения сплава проводилось на dilatометре с датчиком изменения размера образца на основе дифференциального трансформатора.

### 3. Результаты и их обсуждение

Исследование кристаллографической структуры высокотемпературной фазы поликристаллического сплава  $Ni_{2,08}Mn_{0,96}Ga_{0,96}$  проводилось методом EBSD анализа на образце размером 4 × 5 × 1 мм. Он был вырезан из слитка таким образом, что длинная сторона образца параллельна оси слитка (вдоль оси N1), а сторона длиной 4 мм лежит поперек оси слитка (вдоль оси N2). Большая площадь исследуемого образца лежит в горизонтальной плоскости слитка.

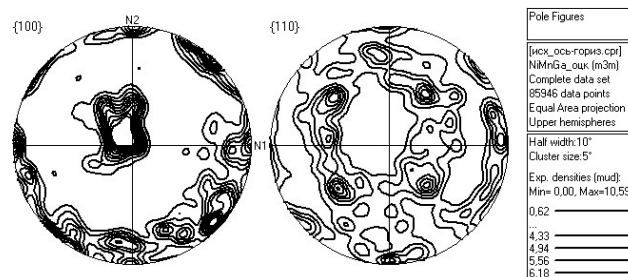


Рис. 1. Прямые полюсные фигуры высокотемпературной фазы образца сплава  $Ni_{2,08}Mn_{0,96}Ga_{0,96}$  в литом состоянии.

На рис. 1 представлены прямые полюсные фигуры для плоскостей типа {100} и {110}. Как видно из рисунка наблюдается максимум интенсивности от плоскостей семейства {100}, показывающий, что они лежат в исследуемой плоскости образца. Отображение интенсивностей отражения от семейства плоскостей {110} показывает, что в этом случае также имеются локализованные участки максимумов. Они расположены симметрично от осей координат приблизительно в середине каждого квадранта. Это говорит о том, что плоскости составляют угол порядка 45° с плоскостью N1N2 (плоскостью образца). Таким образом, поликристаллический образец сплава  $Ni_{2,08}Mn_{0,96}Ga_{0,96}$  обладает явно выраженной текстурой роста (литья) типа (110)<110>.

Наличие такой кристаллографической текстуры роста характерно для сплавов, изготовленных методом литья. Как упоминалось выше, исследуемый сплав был выплавлен в печи с электронно-дуговой плавкой. В течение этого процесса расплав находился в специальном охлаждаемом водой медном тигле. После завершения процесса плавки происходило отключение разности потенциалов, и сплав начинал кристаллизоваться. Процесс охлаждения шел от поверхности (стенок) медного тигля к центру заготовки. Таким образом, в объеме слитка присутствовал градиент температуры, который приводил к формированию текстуры в объеме заготовки.

В ряде случаев в процессе кристаллизации расплава исследователями наблюдалось формирование зерен с вытянутой структурой [12,13]. Исследование кристаллографической структуры низкотемпературной фазы на данном оборудовании не представлялось возможным ввиду отсутствия на нем температурной приставки. А для изучения структуры низкотемпературной фазы необходимо охлаждение исследуемого образца ниже точки окончания мартенситного превращения  $M_f$ , которое составляет 267 К.

Исследование двойниковой структуры низкотемпературной фазы текстурированного образца показало, что в процессе мартенситного превращения в образце формируется двойниковая структура с преимущественной ориентацией границ двойников. Для исследований были вырезаны образцы размерами 1 × 2 × 7 мм во взаимно перпендикулярных направлениях. Один образец вырезан таким образом, что его длинная сторона совпадает с направлением N1 слитка, у другого – длинная сторона совпадает с направлением N2 слитка сплава. На рис. 2 и 3 представлены изображения двойниковой струк-

туры первого и второго образцов, соответственно. На обоих изображениях оси образцов (длинные стороны) ориентированы горизонтально относительно плоскости рисунка. Изображения получены с образцов, находящихся при температуре ниже окончания мартенситного превращения, а именно при 263 К (-10°C). Общий анализ рисунков показывает, что в структуре наблюдаются двойники различных размеров: множество достаточно мелких двойников шириной порядка нескольких микрометров, так же имеются более широкие двойники до 50 мкм в поперечнике. Однако важным отличием является то, что в первом образце большинство границ двойников ориентированы перпендикулярно оси образца, т.е. перпендикулярно оси N1 слитка сплава. Во втором образце большинство границ двойников наоборот параллельны оси образца, т.е. параллельны оси N2 слитка сплава. Таким образом, можно заключить, что в образце, в котором высокотемпературная фаза обладает кристаллографической текстурой типа (110)<110>, в процессе мартенситного превращения формируется двойниковая структура с преимущественной ориентацией границ двойников. На исследуемой поверхности они лежат в направлении типа <110>. По материалам литературных данных двойникование кристалла в процессе мартенситного превращения происходит как раз в плоскостях типа {110}, которые являются плоскостями с плотной упаковкой атомов. В слитке двойники они ориентируются таким образом, что большинство границ двойников лежит поперек оси слитка.

Формирование такой специфической двойниковой структуры в процессе мартенситного превращения должно сказываться и на термическом расширении образца, записанном в интервале температур фазового превращения. Для проверки этого предположения на этих образцах были измерены кривые термического расширения, записанные при охлаждении образца.

Отметим, что измерение термического расширения образцов проводилось вдоль их длинной стороны. На рис. 4 представлена кривая термического расширения образца, микроструктура которого представлена на рис. 2. Как видно из рисунка, при остывании образца в интервале с 350 до 290 К его длина линейно уменьшается. Такое поведение, характерно для всех твердых мате-

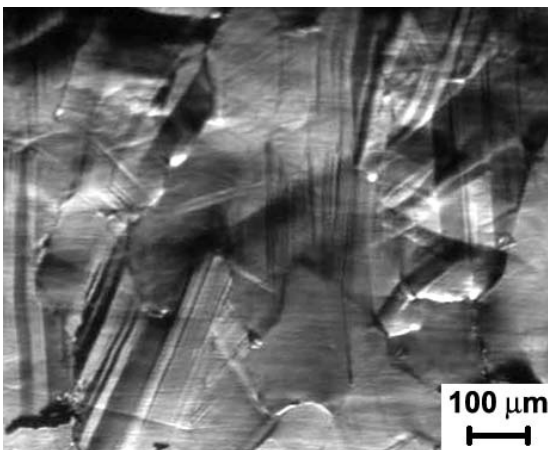


Рис. 2. Изображение микроструктуры низкотемпературной фазы образца сплава  $Ni_{2.08}Mn_{0.96}Ga_{0.96}$  снятое при температуре 263 К. Ось N1 горизонтальна плоскости рисунка.

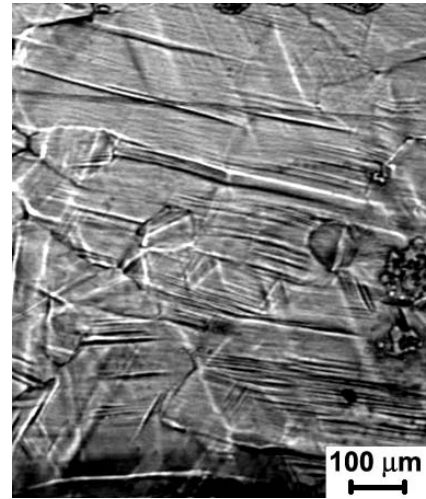


Рис. 3. Изображение микроструктуры низкотемпературной фазы образца сплава  $Ni_{2.08}Mn_{0.96}Ga_{0.96}$  снятое при температуре 263 К. Ось N2 горизонтальна плоскости рисунка.

риалов и обусловлено ангармонизмом межатомного взаимодействия. Дальнейшее охлаждение образца до 275 К приводит к резкому сокращению его длины на 0,2%. Это связано с тем, что, как показано в предыдущих главах, в этом интервале температур происходит структурное превращение мартенситного типа. После окончания мартенситного превращения и до температуры 230 К вновь происходит линейное уменьшение длины образца.

На рис. 5 представлена кривая термического расширения образца, микроструктура которого представлена на рис. 3. Как видно из рисунка характер этой кривой отличается от предыдущего случая только в интервале температур структурного превращения. При охлаждении образца до температуры 290 К происходит линейное уменьшение его длины. Однако в отличие от предыдущего образца при охлаждении второго образца в интервале температур от 290 К до 275 К его длина скачкообразно возрастает на величину 0,24%. При дальнейшем охлаждении до температуры 230 К изменение длины образца вновь происходит по линейному закону. Таким образом, в интервале температур 290 - 275 К, т.е. в процессе структурного превращения, длина первого образца уменьшается, а второго образца, наоборот, увеличивается.

Таким образом, заключено, что при формировании преимущественной ориентации двойников в процессе мартенситного превращения происходит либо скачкообразное сокращение длины образца, либо его скачкообразное удлинение. Такое изменение геометрических размеров образца в процессе структурного превращения обусловлено изменением типа кристаллической решетки сплава. В сплавах близких к стехиометрическому составу мартенсит имеет тетрагональную решетку. Решетка аустенита сжимается вдоль оси *c* и расширяется вдоль осей *a* и *b*. Ось *c* ориентируется под углом порядка 45° к плоскости двойникования. Как известно из литературных данных, при формировании двойника он разбивается на 180°-градусные магнитные домены [14-16]. При этом их магнитный момент наклонен на угол около 45° к плоскости двойникования. В свою очередь в решетке мартенсита короткая ось *c* является осью легкого намагничивания. Таким образом, она ориентируется

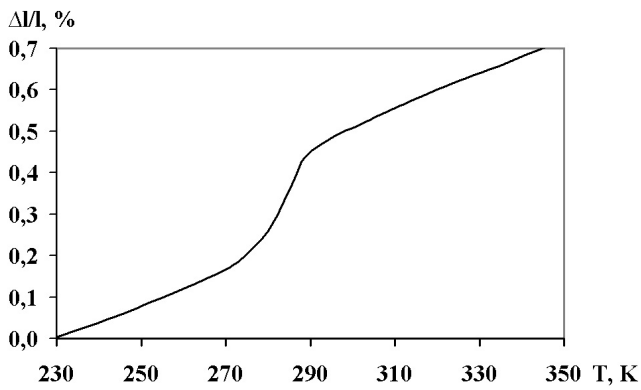


Рис. 4. Температурная зависимость термического расширения, записанная при охлаждении образца сплава  $Ni_{2,08}Mn_{0,96}Ga_{0,96}$  вырезанного в направлении N1.

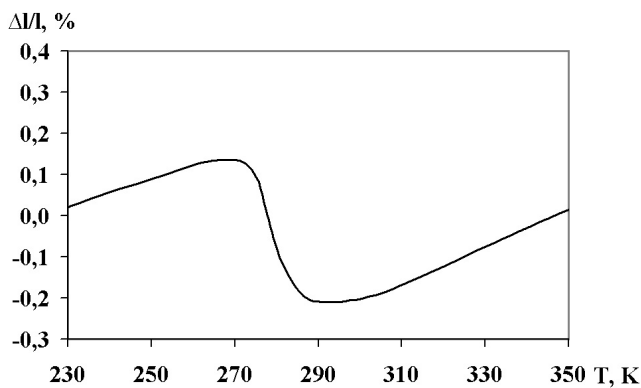


Рис. 5. Температурная зависимость термического расширения, записанная при охлаждении образца сплава  $Ni_{2,08}Mn_{0,96}Ga_{0,96}$  вырезанного в направлении N2.

как и вектор магнитного момента домена, т.е. под углом порядка  $45^\circ$  к плоскости двойникования. При таком изменении решетки в процессе превращения кристалл будет сжиматься в направлении перпендикулярном направлению плоскости двойника и расширяться вдоль этой плоскости. Это наблюдается в случае нашего сплава. Если в образце формируется двойниковая структура, в которой большинство плоскостей двойникования ориентируются перпендикулярно оси образца (см. рис. 2), то он в процессе мартенситного превращения скачкообразно сокращается (см. рис. 4). И наоборот, если в образце формируется двойниковая структура, в которой большинство плоскостей двойникования ориентируются параллельно оси образца (см. рис. 3), то он в процессе мартенситного превращения скачкообразно удлиняется (см. рис. 5).

#### 4. Выводы

По результатам исследований текстуры слитка поликристаллического сплава  $Ni_{2,08}Mn_{0,96}Ga_{0,96}$  можно сделать следующие выводы:

1. Слиток сплава, изготовленный методом электронно-дуговой плавки (литьем), обладает в состоянии высокотемпературной фазы кристаллографической текстурой роста типа  $(110)\langle 110 \rangle$ .
2. В результате мартенситного превращения текстурированная высокотемпературная фаза переходит в

низкотемпературную фазу с преимущественной ориентацией мартенситных пластин. Большинство двойников ориентируются таким образом, что их границы лежат поперек оси слитка сплава в плоскостях типа  $\{110\}$ .

3. Образец, в котором большинство границ двойников лежат поперек его оси, в процессе мартенситного превращения скачкообразно сокращается на 0,2%. Если же в структуре большинство границ двойников лежат параллельно его оси, то в процессе мартенситного превращения образец скачкообразно удлиняется на 0,35%.

#### Литература

1. K. Ullakko, J.K. Huang, C. Kantner, R.C. O'Handley, V.V. Kokorin. *Appl. Phys. Lett.* **69**(13), 1966 (1996).
2. A.N. Vasilev, E.I. Estrin, V.V. Khovailo, A.D. Bozhko, R.A. Ischuk, M. Matsumoto, T. Takagi, J. Tani. *International Journal of Applied Electromagnetics and Mechanics* **12**, 35 (2000).
3. W.H. Wang, G.H. Wu, J.L. Chen, C.H. Yu, S.X. Gao, W.S. Zhan, Z. Wang, Z.Y. Gao, Y.F. Zheng, L.C. Zhao. *Appl. Phys. Lett.* **77**(20), 3245 (2000).
4. F. Albertini, L. Morellon, P.A. Algarabel, M.R. Ibarra, L. Pareti, Z. Arnold, G. Calestani. *Journal of Appl. Phys.* **89** (10), 5614 (2001).
5. W.H. Wang, F.X. Hu, J.L. Chen, Y.X. Li, Z. Wang, Z.Y. Gao, Y.F. Zheng, L.C. Zhao, G.H. Wu, W.S. Zan. *IEEE Transactions on Magnetics* **37**(4), 2715 (2001).
6. K. Ullakko, Y. Ezer, A. Sozinov, G. Kimmel, P. Yakovenko, V.K. Lindroos. *Scripta Mater.* **44**, 475 (2001).
7. S. Jeong, K. Inoue, S. Inoue, K. Koterazawa, M. Taya, K. Inoue. *Materials and Engineering* **A359**, 253 (2003).
8. A. Nespoli, S. Besseghini, S. Pittaccio, E. Villa, S. Viscuso. *Sensors and Actuators* **A158**, 149 (2010).
9. A. Sadeghzadeh, E. Asua, J. Feuchtwanger, V. Etxebarria, A. Garcia-Arribas. *Sensors and Actuators* **A182**, 122 (2012).
10. L. Straka, O. Heczko. *Journal of Appl. Phys.* **93**(10), 8636 (2003).
11. K. Inoue, Y. Yamaguchi, K. Ohsumi, K. Kusaka, T. Nakagawa. *Mater. Trans.* **46**(6), 1425 (2005).
12. F. Thoss, M. Potschke, U. Gaitzsch, J. Freudenberger, W. Anwand, S. Roth, B. Rellinghaus, L. Schultz. *Journal of Alloys and Compounds* **488**(1), 420 (2009).
13. M. Potschke, U. Gaitzsch, S. Roth, B. Rellinghaus, L. Schultz. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **316**(2), 383 (2007).
14. Y. Ge, O. Heczko, O. Soderberg, V.K. Lindroos. *Journal of Appl. Phys.* **96**(4), 2159 (2004).
15. R.M. Grechishkin, V.V. Koledov, V.G. Shavrov, I.E. Dikshstein, V.V. Khovailo, T. Takagi, V.D. Buchelnikov, S.V. Taskaev. *International Journal of Applied Electromagnetics and Mechanics* **19**, 175 (2004).
16. Y. Ge, O. Heczko, O. Soderberg, S.-P. Hannula, V.K. Lindroos. *Smart Mater. Struct.* **14**, S211 (2005).