

# 谐波和脉冲磁场在结晶器内的分布和对高纯铜凝固组织的影响

宝磊<sup>1</sup>, 贾永辉<sup>1</sup>, 王翺<sup>1</sup>, 赵胤吉<sup>1</sup>, 乐启焱<sup>1</sup>, 罗俊峰<sup>2</sup>, 曾浩<sup>2</sup>

(1. 东北大学材料电磁过程研究教育部重点实验室, 辽宁沈阳 110819; 2. 有研亿金新材料有限公司北京市高纯金属溅射靶材工程研究中心, 北京 102200)

**摘要:** 通过模拟和试验手段研究了谐波和脉冲两种磁场的磁感强度和洛伦兹力在结晶器内部的分布特点及两种磁场对高纯铜熔体凝固行为和微观组织的影响规律及机理。结果表明, 谐波磁场和脉冲磁场作用下, 结晶器内最大磁感强度分别为0.065 T和0.084 T, 最大洛伦兹力分别达到了170 000 N/m<sup>3</sup>和325 000 N/m<sup>3</sup>。谐波磁场所产生的洛伦兹力方向不断发生变化, 虽然可使熔体产生强烈的横向振荡, 但不利于熔体形成稳定的对流。相反, 脉冲磁场可在短时间内产生极大的单方向洛伦兹力, 使熔体产生较大加速度并促进熔体对流。总之, 相比谐波磁场, 脉冲磁场产生更高的磁感强度、更大的洛伦兹力和更深的作用区域, 有效地提高了高纯铜凝固过程的热量传输并优化凝固行为, 最终获得更均匀细小的微观组织。

**关键词:** 高纯铜; 谐波磁场; 脉冲磁场; 半连续铸造; 晶粒细化

## 作者简介:

宝磊(1981-), 男, 副教授, 博士, 主要研究方向为铜、镁合金先进制备技术。E-mail: baolei@epm.neu.edu.cn

中图分类号: TG146.1<sup>+</sup>1  
文献标识码: A  
文章编号: 1001-4977(2020)12-1284-09

## 基金项目:

国家重点研发计划(2017YFB0305504)。  
收稿日期:  
2020-08-28 收到初稿,  
2020-10-13 收到修订稿。

近10余年, 随着微电子、超大规模集成电路和平板显示技术的飞速发展, 半导体产业对溅射用靶材的需求大大增加<sup>[1-2]</sup>。溅射技术是半导体行业中薄膜制备的主要技术之一, 所制备的薄膜致密度高、附着性好。它利用真空中的高能离子束轰击靶材表面, 使其表面原子获得高能量而离开靶材并沉积到基材表面, 该靶材作为溅射技术所需的基本原料与耗材, 被称为溅射靶材。目前, 高质量溅射靶材主要由日本、美国和德国企业所垄断, 我国靶材产业的研发和生产相对滞后, 大量高端靶材需要进口<sup>[3]</sup>。

在众多金属靶材中, 高纯铜靶材是使用量最大的靶材之一, 广泛应用于电子、信息和平面显示领域, 如液晶显示屏、激光存储器、电子控制器件、电极互连薄膜、阻挡层薄膜、接触薄膜、电容器电极膜、电阻薄膜等<sup>[4]</sup>。

针对靶材微观组织和溅射薄膜质量之间关系的研究表明, 靶材晶粒尺寸、均匀性和取向对薄膜质量有较大影响。具有细小均匀组织的靶材在溅射时的等离子体阻抗较低, 薄膜沉积速率高并且薄膜厚度均匀<sup>[4-5]</sup>。因此, 为提高溅射效率及保证沉积薄膜质量稳定, 现代半导体产业对高纯铜溅射靶材的微观组织控制提出日益严苛的要求。

然而, 在大规格高纯铜旋转靶材制备过程中, 大尺寸高纯度铜坯料通常是由DC铸造(Direct Chill)生产, 由于DC铸造特有传热模式和熔体凝固行为, 导致锭坯普遍存在微观组织不均匀和柱状晶高度发达等问题。如作为溅射靶材使用, 会导致溅射薄膜的质量和性能急剧变差。因此, 目前大规格高纯铜靶材制备领域急需改善其微观组织的技术和方法。经过数十年的研究发现, 在传统DC铸造过程中引入电磁场可利用洛伦兹力对熔体进行搅拌和振动, 改变结晶器内铜熔体的温度/流动等宏观场, 从而改善熔体的凝固行为, 消除柱状晶组织, 提高晶粒尺寸均匀性<sup>[6-7]</sup>。另外, 电磁铸造技术由于其成本低、细化效果显著等优势, 在大规格铝合金及镁合金DC铸造中已经得到广泛的应用。

不同的磁场对金属熔体产生不同作用效果,直流磁场通常用于抑制热对流或波动<sup>[8-9]</sup>,多相交流磁场通常用于熔体电磁搅拌<sup>[10]</sup>,高频谐波磁场通常用于改善锭坯表面质量<sup>[11]</sup>。目前,在铝合金及镁合金工业化制备中应用较成熟的电磁铸造一般采用的是低频谐波磁场,其特点是磁感强度和洛伦兹力呈现实时的低频正弦变化,该磁场在熔体净化、除杂和细化晶粒方面具有显著效果<sup>[12]</sup>。除上述磁场外,脉冲磁场由于储能较大,瞬时激发作用强等优势受到学者们的关注和研究,尝试将其施加于金属凝固过程中用来控制和改善金属的凝固组织<sup>[13]</sup>。

因此,脉冲磁场被认为是显著改善金属材料铸态组织的有效方法<sup>[14-15]</sup>。然而,由于现代测试技术在金属凝固过程中测量快速变化瞬态脉冲电磁场和熔体流动存在很大困难,目前研究者对脉冲磁场如何改变金属熔体的宏微观场以及凝固行为的机制的理解并没有像对其他磁场那样深入。

脉冲磁场作用下金属凝固行为的研究表明,脉冲磁场在一定条件下可以细化凝固组织,在传统DC铸造中施加脉冲磁场在改善微观组织和晶粒细化方面是一种很有应用前景的技术,但目前研究者在脉冲磁场细化晶粒机理方面仍存在争议,脉冲磁场作用下金属熔体的宏微观场、金属的凝固行为仍需要进行系统深入的研究。基于此,通过数值模拟和试验相结合的方法,研究谐波和脉冲两种磁场的磁感强度和洛伦兹力在结晶器内部的分布特点,利用常规DC铸造、谐波磁场和脉冲磁场分别在工业条件下制备直径300 mm的高纯铜锭坯,通过对二者的比较,在一定程度上揭示谐波和脉冲磁场对高纯铜凝固行为和微观组织的影响和机理,这将为高纯铜电磁铸造工艺的升级提供可借鉴的技术途径,同时也将对进一步提高大规格高纯铜喷射靶材锭坯的冶金质量及其稳定性提供理论基础。

## 1 试验方法

### 1.1 试验材料和电磁铸造系统

试验所采用的材料为纯度4N的高纯铜,具体成分如表1所示。

试验采用课题组自主开发的电磁铸造系统,包括电磁控制系统和装配有激励线圈的结晶器两部分,如图1所示。基本工作原理为:利用整流元件组成的可控硅组件将交变电压转变为单向脉动直流电压,并利用电容组滤波,通过IGBT控制器和无极电容生成阻尼振荡电流,通过PLC核心组件控制系统中信号输出,最终通过励磁线圈在结晶器内部产生相应的谐波磁场和脉冲磁场。结晶器直径为300 mm,由内套、外套、水循环系统和激励线圈组成。电磁控制系统用于在结晶器

内产生磁场和涡流,通过二者的交互作用,在熔体中产生洛伦兹力并形成磁致对流,最终在凝固过程中改善热量运输和凝固行为<sup>[16]</sup>。

### 1.2 试验与微观组织检测方法

试验包括铸造和微观组织检测两部分。常规DC铸造不开启电磁控制系统,谐波和脉冲磁场浇注开始前10 min开启电磁控制系统,所采用的谐波磁场参数为:电流强度140 A、频率20 Hz和线圈80匝;脉冲磁场参数为:电流强度80 A、频率20 Hz、占空比20%和线圈80匝。图2为实测的谐波磁场和脉冲磁场的电流波形。在一个周期内,谐波磁场的电流强度分别于0.012 5 s和0.037 5 s达到正最大值和负最大值,脉冲磁场的电流强度于0.009 s达到峰值。

微观组织样品取自高纯铜锭坯的中部,沿锭坯横截面切取50 mm厚圆片,在圆片中心部位切取宽度约50 mm的正方形试样进行金相分析,如图3。试样依次使用200<sup>#</sup>、400<sup>#</sup>、800<sup>#</sup>、1 200<sup>#</sup>和3 000<sup>#</sup>金相砂纸打磨并利用抛光机抛光,随后用硝酸:甲醛=1:3的腐蚀液进行60~90 s腐蚀,最后用LeicaDM/LM观察并拍摄金相照片。

### 1.3 计算模型

为了准确描述磁场作用下的高纯铜凝固过程中多物理场的相互作用,需对电磁场、流体流动、热量传输和熔体凝固进行耦合计算。在计算模型中,由于熔融高纯铜具有优良的导电性,电荷释放时间远小于电磁波传输周期,因此忽略位移电流。由于磁雷诺数远小于1,因此忽略熔体流场对电磁场的影响。

表1 高纯铜成分

Table 1 Composition of high purity Cu							$w_B / \%$
Cu	Si	S	P	Fe	Al	O	杂质
>99.993	0.000 4	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	<0.001



图1 电磁铸造系统示意图

Fig. 1 Schematic diagram of electromagnetic casting system

本模型基于Maxwell方程组进行磁场计算,该方程组由安培环路定律、法拉第电磁感应定律、高斯电通定律和高斯磁通定律组成,其微分形式如公式(1)-(4)所示。

$$\nabla \times \{H\} = \{J\} + \left\{ \frac{\partial D}{\partial t} \right\} = \{J_s\} + \{J_e\} + \{J_v\} + \frac{\partial D}{\partial t} \quad (1)$$

$$\nabla \times \{E\} = - \left\{ \frac{\partial B}{\partial t} \right\} \quad (2)$$

$$\nabla \cdot \{B\} = 0 \quad (3)$$

$$\nabla \cdot \{D\} = \rho_e \quad (4)$$

式中:  $\nabla \times$  为旋度算子;  $\nabla \cdot$  为散度算子;  $\{H\}$  为磁场强度矢量;  $\{J\}$  为总电流密度矢量;  $\{J_s\}$  为外施激励源电流密度矢量;  $\{J_e\}$  为感应涡流密度矢量;  $\{J_v\}$  为速度电流密度矢量;  $\{D\}$  为电位移矢量;  $t$  为时间;  $\{E\}$  为电场强度矢量;  $\{B\}$  为磁感强度矢量;  $\rho_e$  为体电荷密度。

本模型采用有限元法,利用自行编制的代码计算铸造过程中温度场和流场的分布。该模型在整个凝固系统通过控制方程来整合所有的模型方程,通过求解模型方程的能量分布定义凝固系统的各个区域,求解方程如公式(5)-(7)所示:

质量守恒方程:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho U) = 0 \quad (5)$$

动量守恒方程:

$$\frac{\partial (\rho U)}{\partial t} + \nabla \cdot [(\rho U) U] = \nabla \cdot (\mu_{\text{eff}} \nabla U) - \nabla P + S_m \quad (6)$$

能量守恒方程:

$$\rho \left( \frac{\partial T}{\partial t} + C_{\text{eff}} v_r \frac{\partial T}{\partial r} + C_{\text{eff}} v_z \frac{\partial T}{\partial z} \right) = k \left( \frac{\partial^2 T}{\partial r^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right) + S_{\text{th}} \quad (7)$$

式中:  $\mu_{\text{eff}}$  为有效粘度系数,  $\mu_{\text{eff}} = \mu_l + \mu_T$ , 其中  $\mu_l$  为液体的层流粘度,  $\mu_T$  为湍流粘度;  $S_{\text{th}}$  是热源项,包括焦耳热和结晶潜热;  $\rho$  为密度;  $S_m$  为动量源项,包括Darcy源项和外场源项,其表达式为:  $S_m = F_D + F_{\text{FL}z}$ , 其中  $F_D$  表示Darcy源项,表达式为:  $-\frac{\mu_l}{K + \chi} (v - v_p)$ ,  $\chi = 0.0001$ ,  $v_p$  为铸造速度,  $F_{\text{FL}z}$  为外场源项,表示电磁铸造的洛伦兹力;洛伦兹力的表达式为:  $F_{\text{FL}z} = \{J\} \times \{B\}$ 。

为了更好地表征高纯铜熔体中磁感强度和洛伦兹力的水平和竖直方向的分布特点,计算过程中提取了图4所示结晶器中水平方向(a-e点)和竖直方向(f、e和g点)的数据进行分析。

## 2 结果与讨论

### 2.1 谐波磁场在高纯铜熔体中的分布

图5为谐波磁场一个周期内的四个时刻(0.005 s、

0.01 s、0.025 s和0.04 s),磁感强度和洛伦兹力在结晶器内部高纯铜熔体中的分布情况。可知,结晶器边部的磁感强度和洛伦兹力最大。随着与结晶器边部距离增加,磁感强度和洛伦兹力逐渐减小。在一个谐波周期内,磁感强度的作用深度逐渐增加,在0.04 s时达到最大值,磁场方向不断变化。洛伦兹力的大小和方向均发生连续变化。

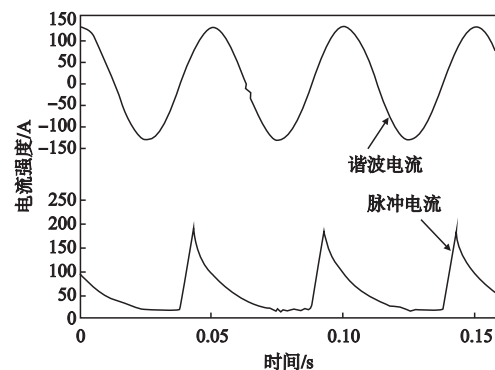


图2 谐波和脉冲磁场的实测电流波形  
Fig. 2 Measured current waveforms of harmonic and pulsed magnetic fields

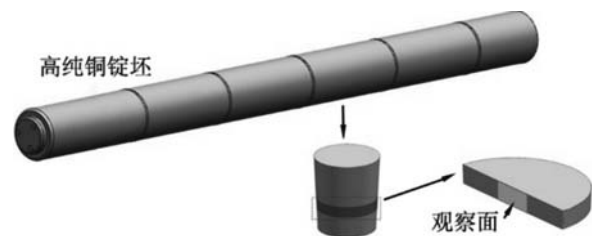


图3 微观组织观察面位置  
Fig. 3 Area for microstructure observation

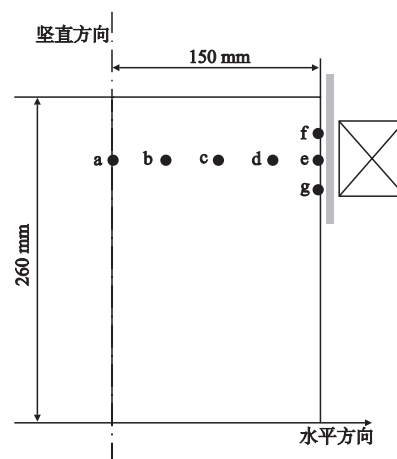


图4 结晶器内分析点位置示意图  
Fig. 4 Schematic diagram of the locations of analysis points in crystallizer

在谐波磁场作用下，沿结晶器水平方向（a-e点）磁感强度的水平分量和竖直分量随时间的变化曲线如图6所示。由图6a可知，高纯铜熔体中磁感强度水平分量随与结晶器表面距离的增大而减小，结晶器中心的磁感强度几乎为零（图6a中a点），边部最大值约为0.000 24 T。结晶器中心的磁感强度竖直分量几乎为零（图6b中的a点），结晶器边部磁感强度竖直分量的最大值约为0.065 T，远高于水平分量。

在谐波磁场作用下，a-e点的洛伦兹力随时间的变化如图7所示。可知结晶器边部的洛伦兹力（图7中e

点）远大于中心处（图7中a点）。洛伦兹力的水平分量随时间呈现压力（ $F < 0$ ）和拉力（ $F > 0$ ）交替变化的规律（图7a）。当 $t=0.038$  s时，锭坯边部最大压力值约为 $24\ 000\ \text{N/m}^3$ ， $t=0.026$  s时边部最大拉力值约为 $6\ 900\ \text{N/m}^3$ ，其余各点处的洛伦兹力几乎为零。洛伦兹力的竖直分量随着时间变化呈现出不断变化的拉力，拉力于 $t=0.038$  s时达到最大值 $890\ \text{N/m}^3$ ，远小于水平分量。

沿结晶器竖直方向（f、e和g点）磁感强度的水平分量和竖直分量随时间的变化曲线如图8所示。磁感强度水平分量以负值为主（指向结晶器中心方向），f点

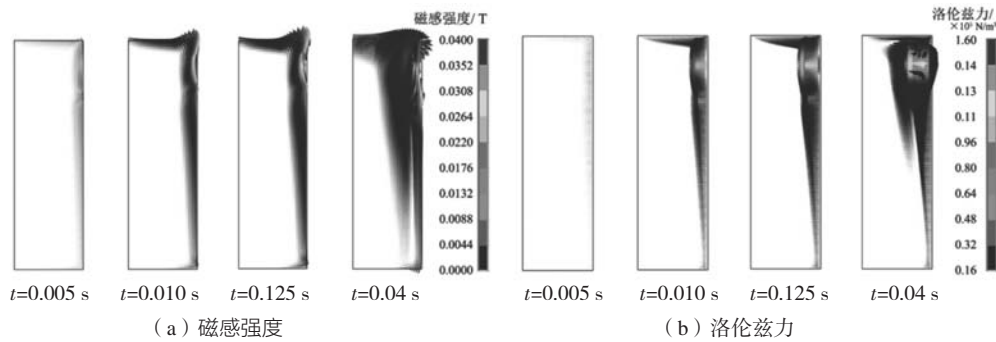


图5 谐波磁场作用下结晶器中磁感强度和洛伦兹力分布矢量图

Fig. 5 Vector distribution diagram of magnetic flux density and Lorentz force under harmonic magnetic field

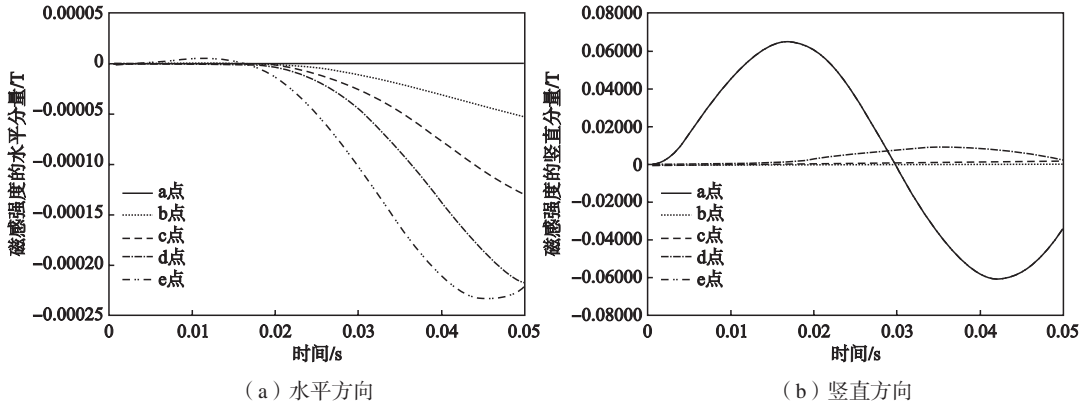


图6 谐波磁场作用下a-e点磁感强度的水平方向分量和竖直方向分量在一个周期内的变化

Fig. 6 Horizontal component and vertical component of magnetic flux density of points a-e under harmonic magnetic field in a cycle

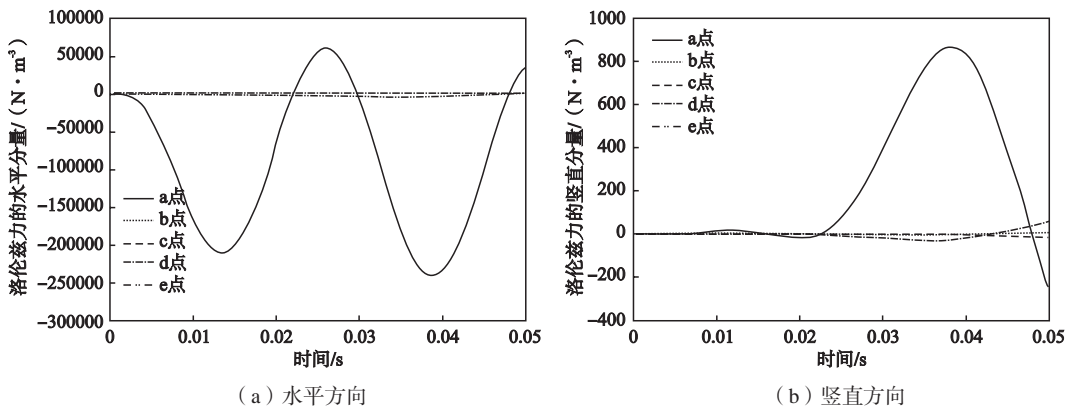


图7 谐波磁场作用下a-e点洛伦兹力的水平方向分量和竖直方向分量在一个周期内的变化

Fig. 7 Horizontal component and vertical component of Lorentz force of points a-e under harmonic magnetic field in a cycle

在0.035 s后变为正值（指向结晶器边部方向），最大值为0.002 7 T（图8a）。三点的磁感强度竖直分量变化规律（图8b）与水平分量刚好相反，主要以正值为主（指向结晶器上方），e点在0.03 s后变为负值（指向结晶器下方），最大值约为0.065 T（图8b）。

图9为谐波磁场作用下沿结晶器竖直方向（f、e和g点）洛伦兹力随时间的变化。f、g点的水平分量基本为零，其他洛伦兹力的水平和竖直分量均表现出正负（拉力、压力）交替变化。e点的洛伦兹力水平分量以谐波规律变化，分别在0.026 s和0.038 s达到最大拉力和最大压力，分别为6 500 N/m<sup>3</sup>和24 000 N/m<sup>3</sup>（图9a）。e点的洛伦兹力竖直分量以拉力为主，0.038 s时达到最大拉力890 N/m<sup>3</sup>，f、g两点的洛伦兹力竖直分量以压力为主，最大压力值分别为760 N/m<sup>3</sup>和240 N/m<sup>3</sup>，三点的洛伦兹力竖直分量均小于水平分量（图9a）。

由以上数据可知，在结晶器内施加谐波磁场时，水平方向的洛伦兹力起主要作用，推动高纯铜熔体在水平方向产生强烈的横向振荡作用，从而影响凝固过程中温度场的分布。但作用于熔体的洛伦兹力方向不断发生变化，高密度和大惯性的高纯铜熔体在这种交替变化的拉力和压力作用下难以产生较大的位移，因

此不利于高纯铜熔体对流。

## 2.2 脉冲磁场在高纯铜熔体中的分布

脉冲磁场作用于高纯铜熔体时，磁感强度和洛伦兹力在一个周期内的4个时刻的分布如图10所示。磁感强度和洛伦兹力在0.010 s后迅速增大，结晶器边部磁感强度和洛伦兹力减小，结晶器边部到中心的磁感强度值趋于一致，磁场作用深度增加。洛伦兹力在0.125 s时达到最大值325 000 N/m<sup>3</sup>，大于谐波磁场所产生的最大洛伦兹力171 000 N/m<sup>3</sup>。由此可见脉冲磁场可在短时间对熔体施加极大的洛伦兹力并使之产生较大加速度。

图11为脉冲磁场作用下沿结晶器水平方向（a-e点）磁感强度的水平分量和竖直分量随时间的变化曲线。磁感强度水平的变化规律与谐波磁场的变化规律基本相同，但磁感强度竖直分量以正值为主，而谐波磁场的磁感强度竖直分量则正负交替，这意味着两种磁场将对熔体产生完全不同的作用机制和效果。

图12为洛伦兹力在a-e点随时间的变化曲线。洛伦兹力的水平分量以压力为主，在0.012 s达到最大，约为440 000 N/m<sup>3</sup>。洛伦兹力竖直分量以拉力为主，在0.05 s

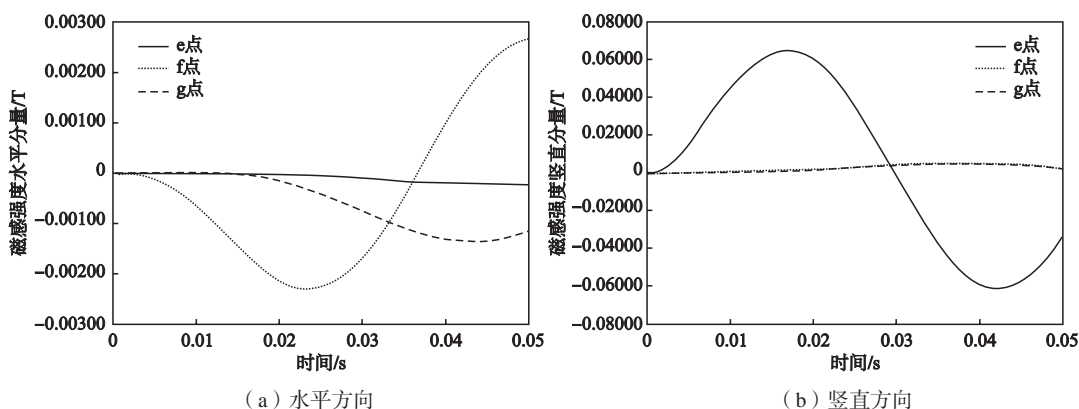


图8 谐波磁场作用下f、e和g点磁感强度的水平方向分量和竖直方向分量在一个周期内的变化

Fig. 8 Horizontal component and vertical component of magnetic flux density of points f, e and g under harmonic magnetic field in a cycle

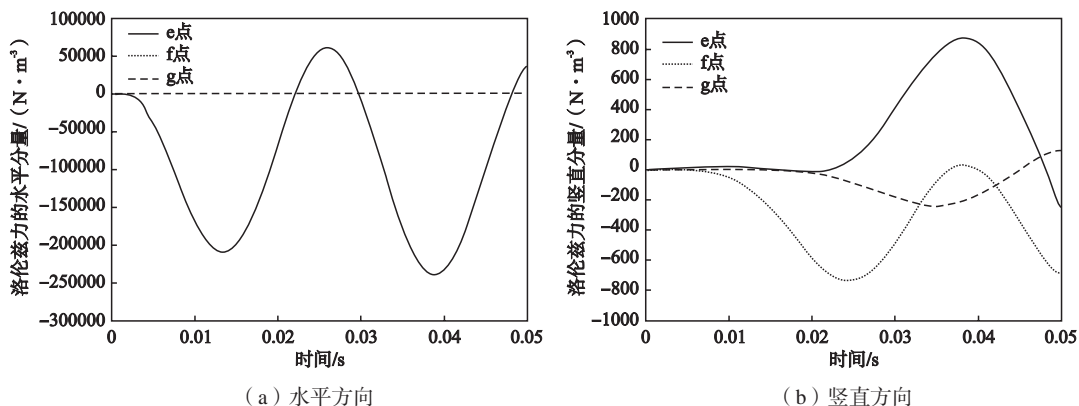


图9 谐波磁场作用下f、e和g点洛伦兹力的水平方向分量和竖直方向分量在一个周期内的变化

Fig. 9 Horizontal component and vertical component of Lorentz force of points f, e and g under harmonic magnetic field in a cycle

时达到最大, 约为 $470 \text{ N/m}^3$ , 远小于洛伦兹力的水平分量。

图13为f、e和g点的磁感强度随时间的变化曲线。线圈高度方向中心位置整个周期内磁感强度波动较小(图13a中e点曲线), 线圈上下两侧磁感强度水平分量方向相同, 最大值约为 $0.003 \text{ T}$ (图13a中f和g点曲线)。三点的磁感强度竖直分量均为正值, 最大值为 $0.085 \text{ T}$ (图13b)。可见结晶器内磁感强度竖直分量远大于水平分量。

图14为脉冲磁场作用下点f、e和g点处的洛伦兹力变化曲线。f、g两点处的洛伦兹力水平分量约为零。e点的洛伦兹力竖直分量以拉力为主, 最大值为 $490 \text{ N/m}^3$ , f、g两点处的洛伦兹力为压力, 最大值分别为 $1400 \text{ N/m}^3$ 和 $630 \text{ N/m}^3$ 。综上可知, 脉冲磁场作用时, 熔体水平方向主要受指向结晶器中心的压力和指向边部的拉力影响, 二者的交互作用使熔体在结晶器内壁附近产生水平方向的振荡和对流, 金属熔体液面位置受向上拉力和向下的压力作用, 因此在竖直方向产生对流。

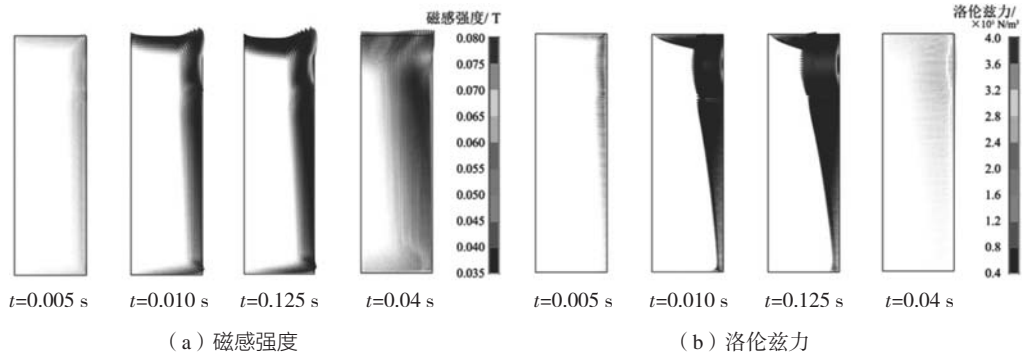


图10 脉冲磁场作用下结晶器中磁感强度和洛伦兹力分布矢量图

Fig. 10 Vector distribution diagram of magnetic flux density and Lorentz force under pulsed magnetic field

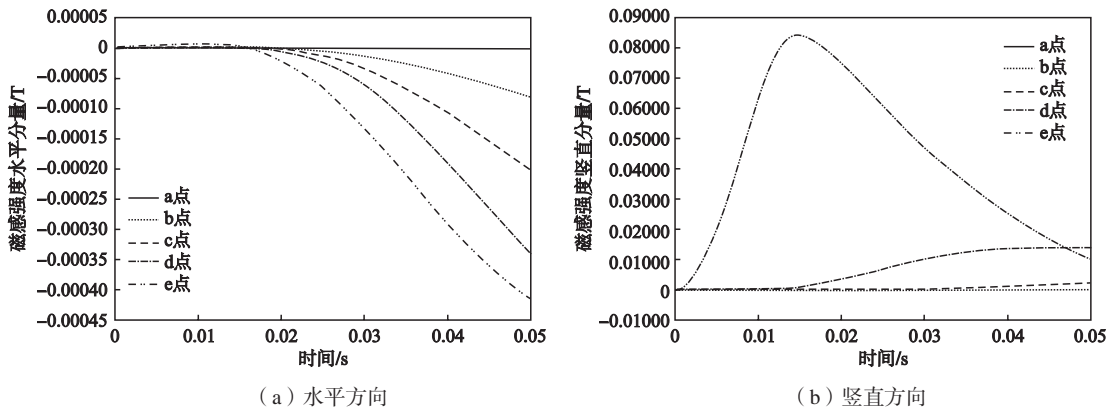


图11 脉冲磁场作用下a-e点磁感强度的水平方向分量和竖直方向分量在一个周期内的变化

Fig. 11 Horizontal component and vertical component of magnetic flux density of points a-e under pulsed magnetic field in a cycle

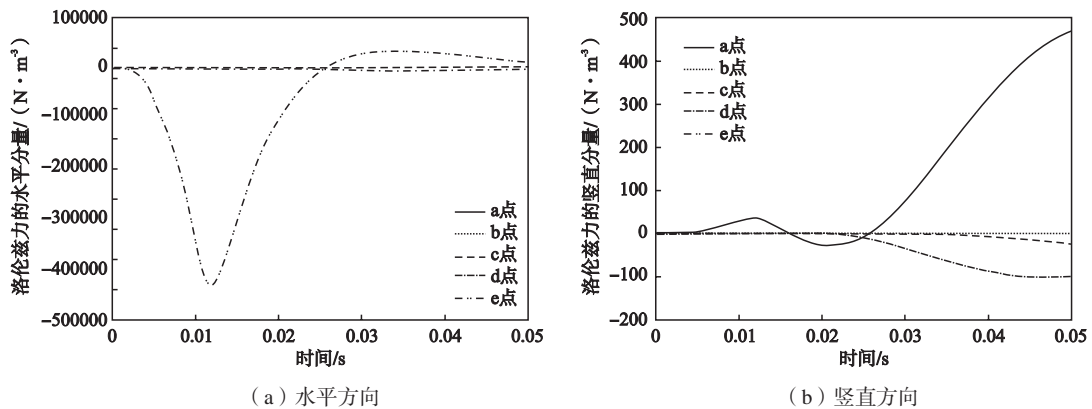


图12 脉冲磁场作用下a-e点洛伦兹力的水平方向分量和竖直方向分量在一个周期内的变化

Fig. 12 Horizontal component and vertical component of Lorentz force of points a-e under pulsed magnetic field in a cycle

图15所示为谐波和脉冲两种磁场作用下最大磁感强度和洛伦兹力在结晶器内的分布。由图可知,从结晶器中心到边部,脉冲磁场在高纯铜熔体中的磁感强度始终大于谐波磁场在熔体中的磁感强度。脉冲磁场在熔体中的最大磁感强度达到0.084 T,谐波磁场在熔体中的最大磁感强度为0.065 T。从结晶器表面到中心,洛伦兹力逐渐减小,从结晶器中心到130 mm范围内,两种磁场的洛伦兹力几乎为零,随着距结晶器边

部的距离减小,脉冲磁场洛伦兹力增加较快,最大洛伦兹力达到 $325\ 000\ \text{N/m}^3$ ,谐波磁场的最大洛伦兹力为 $170\ 000\ \text{N/m}^3$ 。

熔体的流动直接影响高纯铜的凝固行为和最终的凝固组织。合适的熔体对流有助于热量传输。通过以上两种形式的磁场结果对比分析,在相同的电磁条件下,脉冲磁场作用于高纯铜熔体时能够产生较大的洛伦兹力,更有利于熔体的振荡和对流,且更加节能。

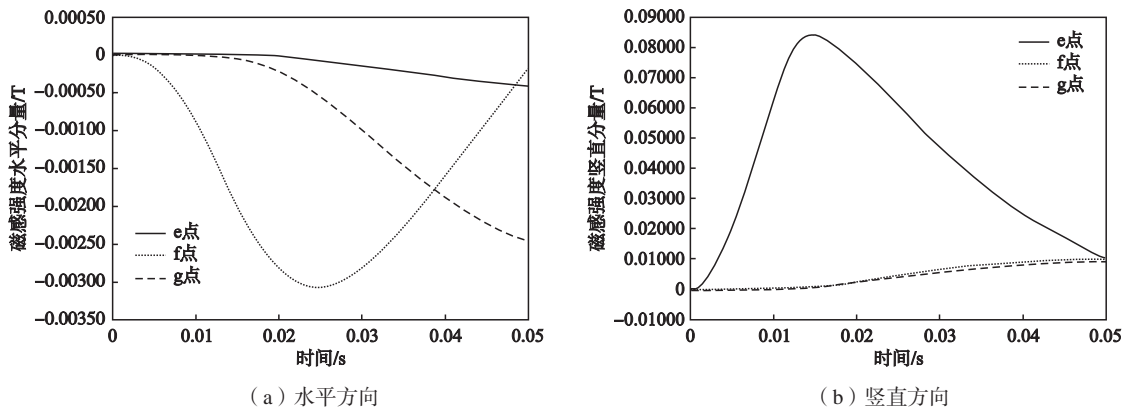


图13 脉冲磁场作用下f、e和g点磁感强度的水平方向分量和竖直方向分量在一个周期内的变化

Fig. 13 Horizontal component and vertical component of magnetic flux density of points f, e and g under pulsed magnetic field in a cycle

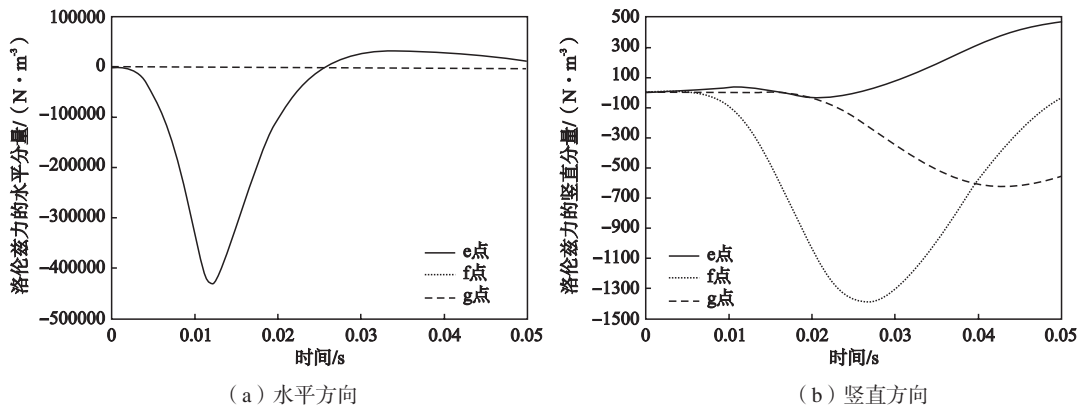


图14 脉冲磁场作用下f、e和g点洛伦兹力的水平方向分量和竖直方向分量在一个周期内的变化

Fig. 14 Horizontal and vertical component of Lorentz force of point f, e and g under pulsed magnetic field in a cycle

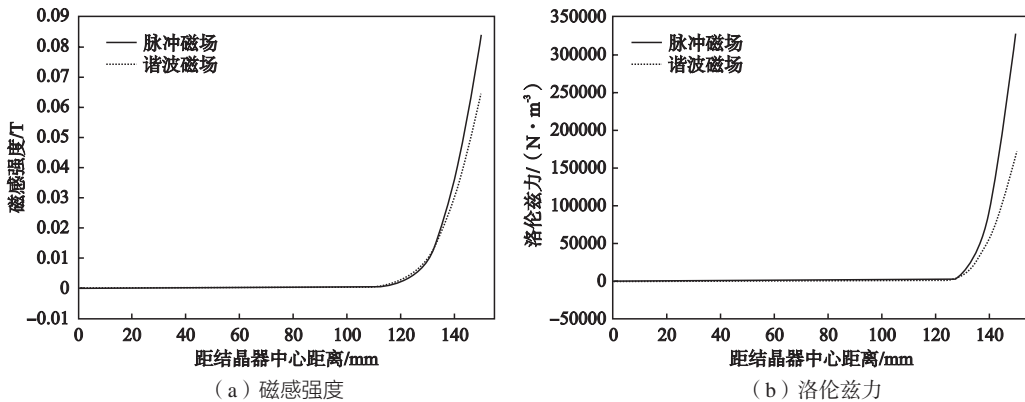


图15 两种磁场作用下结晶器内最大磁感强度和洛伦兹力分布

Fig. 15 Distribution of max magnetic flux density and Lorentz force in crystallizer under two magnetic fields

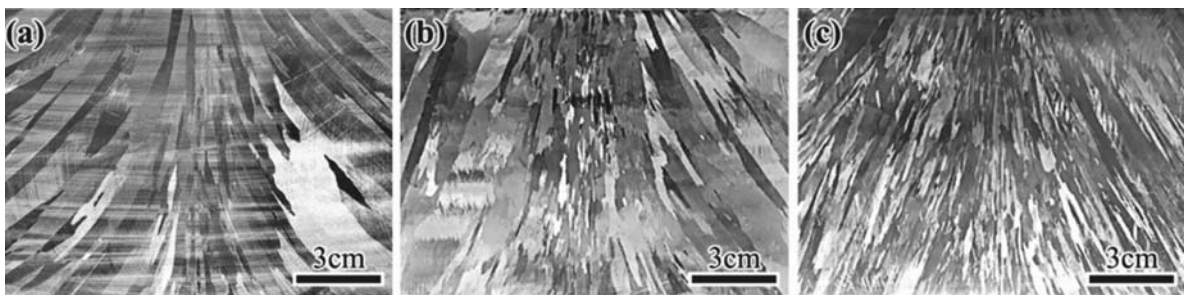
### 2.3 谐波磁场和脉冲磁场作用下高纯铜锭坯的微观组织

图16为采用传统DC铸造、谐波磁场铸造和脉冲磁场铸造三种方式工业化制备的高纯铜锭坯中段的微观组织。在传统DC铸造制备的锭坯中可清楚地观察到高度发达且粗大的柱状晶，其生长方向为凝固时的温度梯度方向（图16a）。在谐波磁场铸造制备的锭坯中，中心部位的晶粒得到细化，但其余位置的组织仍以柱状晶为主（图16b）。在脉冲磁场铸造制备的锭坯中，可清楚地观察到显著细化且分布均匀的微观组织，细小的晶粒沿温度梯度方向生长（图16c）。

基于以上计算和试验结论，谐波磁场和脉冲磁场改善高纯铜铸造组织的主要机制可描述为：一方面，在磁场的作用下，洛伦兹力在液穴内引起较强的磁致对流，推动结晶器边部熔体从液面附近流向结晶器中心，结晶器中心熔体从液穴底部流向结晶器边部，磁致对流将高温熔体推动至晶器边部的一次冷却区，同

时将低温熔体带回结晶器中心部分，因此可有效地提高热量传输效率，降低液穴深度并提高液穴底部曲率半径，进而在很大程度上消除柱状晶所需的大面积平行温度梯度，扩大等轴晶区<sup>[17-18]</sup>。另一方面，在磁致对流的作用下，熔体与凝固前沿发生较强的相对运动，因此在凝固前沿处形成较强的剪切力，在该剪切力的作用下，柱状晶的生长条件受到很大程度破坏<sup>[19-20]</sup>。

谐波磁场和脉冲磁场相比，谐波磁场的洛伦兹力的水平和竖直分量随时间均表现出拉力和压力交替变化，因此不利于高纯铜熔体对流。而脉冲磁场短时间内产生很大的洛伦兹力，使熔体产生较大加速度，有利于推动熔体对流。另外，在功率等效的条件下，脉冲磁场可产生更高的磁感强度和更大的洛伦兹力，且脉冲磁场的洛伦兹力可作用至液面以下更深的区域。综上，由于脉冲磁场产生更高的磁感强度、更大的洛伦兹力和更深的作用区域，可更有效地提高高纯铜凝固过程的热量传输和优化凝固行为，最终获得显著细化的微观组织。



(a) 传统DC铸造

(b) 谐波磁场铸造

(c) 脉冲磁场铸造

图16 高纯铜锭坯微观组织

Fig. 16 Microstructure of high purity Cu billet

## 3 结论

(1) 施加谐波磁场和脉冲磁场时，结晶器内最大磁感强度分别为0.065 T和0.084 T，最大洛伦兹力分别达到了170 000 N/m<sup>3</sup>和325 000 N/m<sup>3</sup>。

(2) 谐波磁场可使熔体在水平方向产生强烈的横向振荡，但由于洛伦兹力方向不断发生变化，不利于高

纯铜熔体对流；脉冲磁场可在短时间内产生极大的洛伦兹力，使熔体产生较大加速度，有利于熔体对流。

(3) 相比谐波磁场，脉冲磁场产生更高的磁感强度、更大的洛伦兹力和更深的作用区域，可更有效地提高高纯铜凝固过程的热量传输和优化凝固行为，最终获得更均匀细小的微观组织。

### 参考文献:

- [1] CHAO Y B, LING C H. Manufacture and application of sputtering target materials [J]. Vacuum, 2001, 3: 11-15.
- [2] 何金江, 陈明, 朱晓光, 等. 高纯贵金属靶材在半导体制造中的应用与制备技术 [J]. 贵金属, 2013, 34 (S1): 79-83.
- [3] 郭金明, 田云飞, 韦建峰, 等. 溅射用高纯铜靶材制备工艺研究 [J]. 装备制造技术, 2015 (9): 167-169.
- [4] 禹泽海, 孙鹏, 汪春平, 等. 高纯铜溅射靶材的发展及现状 [J]. 山西冶金, 2007, 109 (5): 4-6.
- [5] 尚再艳. 集成电路制造用溅射靶材 [J]. 稀有金属, 2005, 29 (4): 475-477.
- [6] CHEN X, NING F, HOU J, et al. Dual-frequency ultrasonic treatment on microstructure and mechanical properties of ZK60 magnesium alloy [J]. Ultrasonics Sonochemistry, 2018, 40: 433-441.
- [7] LICHY P, CAGALA M. Microstructure and thermo mechanical properties of magnesium alloys castings [J]. Archives of Foundry Engineering, 2012, 12: 49-54.
- [8] WANG Y, KUDO K, INATOMI Y, et al. Growth and structure of CdZnTe crystal from Te solution with THM technique under static



- magnetic field [J]. *Journal of Crystal Growth*, 2005 ( 275 ) : 406–411.
- [9] BENHADID H, HENRY D, TOUIHRI R. Unsteady three-dimensional buoyancy-driven convection in a circular cylindrical cavity and its damping by magnetic field [J]. *Journal of Crystal Growth*, 1997 ( 180 ) : 433–441.
- [10] DESNAIN P, FAUTRELLE Y, MEYER J L, et al. Prediction of equiaxed grain density in multicomponent alloys, stirred electromagnetically [J]. *Acta Metallurgica et Materialia*, 1990, 38 ( 8 ) : 1513–1523.
- [11] AMANO S, IWAI K, ASAI S. Non-contact generation of compression waves in a liquid metal by imposing a high frequency electromagnetic field [J]. *ISIJ Int*, 1997, 37 ( 10 ) : 962–966.
- [12] CREMER P, DRIOLE J. Effects of the electromagnetic stirring on the removal of inclusions of oxide from liquid steel [J]. *Metallurgical and Materials Transactions B*, 1982, 13 ( 1 ) : 45–52.
- [13] 班春燕, 崔建忠, 巴启先, 等. 在脉冲电流或脉冲磁场作用下LY12合金的凝固组织 [J]. *材料研究学报*, 2002, 16: 322–326.
- [14] FU J, YANG Y. Microstructure and mechanical properties of Mg-Al-Zn alloy under a low-voltage pulsed magnetic field [J]. *Materials Letters*, 2012, 67: 252–255.
- [15] KOLESNICHENKO A F, PODOLTSEV A D, KUCHERYAVAYA I N. Action of pulse magnetic field on molten metal [J]. *ISIJ International*, 1994, 34: 715–721.
- [16] LI H, LIU S, JIE J, et al. Effect of pulsed magnetic field on the grain refinement and mechanical properties of 6063 aluminum alloy by direct chill casting [J]. *International Journal of Advanced Design & Manufacturing Technology*, 2017, 93: 3033–3042.
- [17] LI M, TAMURA T, OMURA N, et al. The solidification behavior of the AZ61 magnesium alloy during electromagnetic vibration processing [J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2010, 494: 116–122.
- [18] BAO L, ZHANG Z Q, LE Q C, et al. Heat transfer behavior of AZ80-1%Y alloy during low-frequency electromagnetic casting [J]. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*, 2015, 25: 3618–3624.
- [19] NATARAJAN T T, EL-KADDAH N. Finite element analysis of electromagnetic and fluid flow phenomena in rotary electromagnetic stirring of steel [J]. *Applied Mathematical Modelling*, 2004, 28: 47–61.
- [20] JIA Y H, CHEN X, LE Q, et al. Numerical study on action of HMF, PMF, DHMF, and DPMF on molten metal during electromagnetic casting [J]. *International Journal of Advanced Manufacturing Technology*, 2019, 103: 201–221.

---

## Distribution of Harmonic and Pulsed Magnetic Field in Crystallizer and Their Effects on Solidification Structure of High Purity Cu

BAO Lei<sup>1</sup>, JIA Yong-hui<sup>1</sup>, WANG Xuan<sup>1</sup>, ZHAO Yin-ji<sup>1</sup>, LE Qi-chi<sup>1</sup>, LUO Jun-feng<sup>2</sup>, ZENG Hao<sup>2</sup>

(1. Key Lab of Electromagnetic Processing of Materials, Ministry of Education, Northeastern University, Shenyang 110819, Liaoning, China; 2. Beijing Engineering Research Center of High Purity Metal Sputtering Target, Grikin Advanced Materials Co., Ltd., Beijing 102200, China)

### Abstract:

The distributions of magnetic flux density and Lorentz force of harmonic and pulsed magnetic fields in crystallizer, and the effects of the two magnetic fields on the solidification behavior and microstructure of high purity copper were studied by numerical simulation and experiment. The results show that under the action of harmonic magnetic field and pulsed magnetic field, the maximum magnetic flux density are 0.065 T and 0.084 T, and the maximum Lorentz force are 170 000 N/m<sup>3</sup> and 325 000 N/m<sup>3</sup>, respectively. Although the harmonic magnetic field causes strong transverse oscillation because the direction of Lorentz force changes constantly, it is not conducive to the formation of stable convection. On the contrary, the pulsed magnetic field is capable to generate large unidirectional Lorentz force in a short time, which causes larger acceleration on the melt that is conducive to convection. Compared with the harmonic magnetic field, the pulsed magnetic field can produce higher magnetic flux density, larger Lorentz force and deeper action region that effectively improve the heat transfer and optimize the solidification behavior of high purity copper. Thereby, uniform and fine microstructure is finally obtained.

### Key words:

high purity Cu; harmonic magnetic field; pulsed magnetic field; semi-continuous casting; grain refinement