

保温冒口对高纯钇稀土靶材铸锭内部质量影响

侯现重¹, 乐启焱¹, 蒋燕超¹, 张永健², 容构华², 王 彤¹

(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. 福建省长汀金龙稀土有限公司, 福建龙岩 366300)

摘要: 采用ProCAST软件对稀土钇铸锭铸造工艺进行数值模拟, 研究不同工艺对钇铸锭充型凝固过程中温度场分布、固相率分布和缩孔缺陷分布影响。计算和试验结果表明: 初始工艺方案的数值模拟结果与实际铸锭产生的缩孔位置基本一致; 改进冒口设计, 当保温冒口的高度为100 mm时, 钇铸锭中的缩孔缺陷率最小, 缺陷体积减少了98%以上。

关键词: 高纯稀土钇; 靶材; 缩孔缺陷; 数值模拟

金属钇(Y)作为一种重要的重稀土金属, 在有色合金、电子工业、石油化工和军工等领域都有着广泛的应用。特别是在电子工业领域, 当前随着集成电路产业的蓬勃发展, 采用磁控溅射方法制备的高质量薄膜材料在半导体产业中的应用日趋广泛, 而高纯稀土Y靶材作为功能性薄膜制备所需要的原材料之一, 其需求也在快速增长^[1-3]。但由于稀土Y具有低比热容和低导热系数的特点, 在铸造大尺寸稀土靶材锭坯过程中极易产生缩松缩孔缺陷, 以及在磁控溅射过程中存在溅射功率高、成膜速率低和溅射薄膜易开裂等缺点^[4-5], 无法满足磁控溅射靶材的使用需求。

目前, 高纯稀土靶材的制备以模铸方式为主, 由于Y具有高熔点、极易氧化的特性, 铸造过程在真空炉内进行, 熔体由坩埚直接浇入模具内, 得到的大尺寸锭坯宏观缩松较大, 锭坯的成品使用率极低。因此, 只能进行小坯料的铸造, 导致实际生产效率低, 并且小锭坯中仍然存在微观缩孔缺陷。针对铸锭内部易产生缺陷这一问题, 以增加保温冒口的方式减少缺陷产生已成为铸造过程中常使用的工艺方法, 对于铝合金铸锭头部易形成缩孔这一问题, 肖颖等通过优化补缩工艺, 降低了冒口高度, 提高了铸锭成品率^[6]; 杨思维利用ProCAST软件计算了黄铜浇注过程, 并通过改进浇注系统和添加保温冒口的方式, 有效对熔体进行了补缩并提高了成品率^[7]; 王建武等通过数值模拟研究了热顶的高度和预热温度对镍基高温合金铸锭疏松缺陷的影响, 确定了最佳工艺参数, 优化了镍基高温合金铸锭的生产工艺^[8]。

本研究针对高纯钇靶材铸造过程中出现的缩孔问题, 结合钇的凝固特点, 增加保温冒口, 并通过ProCAST软件进行数值模拟, 比较冒口高度在减少铸锭缺陷上的优劣, 优化了铸造工艺, 减少了试验成本。

1 计算域内靶材铸锭等几何实体造型与网格单元生成

1.1 铸件及模具结构设计

为控制缺陷尺寸, 目前稀土Y磁控溅射靶材锭坯的常用生产尺寸为137 mm × 190 mm × 12 mm, 为提高生产效率, 设计锭坯尺寸为137 mm × 126 mm × 190 mm, 质量约为14 kg。采用金属型重力铸造, 模具材质为Q235钢, 厚度15 mm; 底部为高密石墨板, 厚度25 mm; 上方铺设中空型盖板, 材质为Q235钢, 壁厚5 mm, 盖板下部填充保温棉, 达到模具上方保温的效果, 盖板总厚度10 mm。采用UG软件绘制上述模型, 如图1所示。

作者简介:

侯现重(1997-), 男, 硕士, 主要研究方向为高纯稀土靶材铸造工艺的数值模拟。E-mail: xianzhong_hou@163.com

通讯作者:

乐启焱, 男, 教授。电话: 024-83683312, E-mail: qichil@mail.neu.edu.cn

中图分类号: TG146.4⁺52

文献标识码: A

文章编号: 1001-4977(2023)

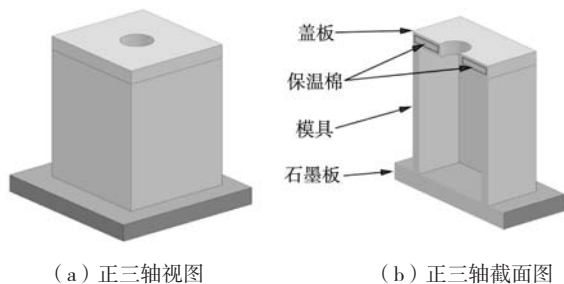
09-1163-05

基金项目:

国家自然科学基金(52274377); 国家自然科学基金(51901037)。

收稿日期:

2022-11-14 收到初稿,
2023-02-07 收到修订稿。



(a) 正三轴视图 (b) 正三轴截面图

图1 模具三维模型

Fig. 1 3D model of mold

1.2 网格生成与计算条件

将计算域内三维模型以.igs文件格式导入到ProCAST软件中进行网格划分。检查模型无误后,首先对铸锭和模具进行面网格划分,铸锭的面单元网格尺寸设置为4 mm,模具的面单元网格尺寸设置为8 mm。在面网格划分无误的基础上,进行体网格划分,生成体网格的数量约为35万。铸锭及模具的网格划分结果如图2所示。

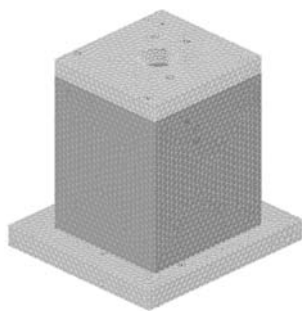


图2 计算域网格划分

Fig. 2 Meshing of the calculation area

计算过程中的工艺参数:浇注温度为1 600 ℃,浇注速度为1 kg/s,浇注系统真空度为400 Pa,模具与周围环境的换热条件为黑体辐射,辐射值为0.8,环境温度为30 ℃。Y靶材液相线为1 508 ℃,固相线为1 491 ℃,凝固潜热为130 kJ/kg,其密度和导热系数如图3所示。计算域界面换热系数见表1。

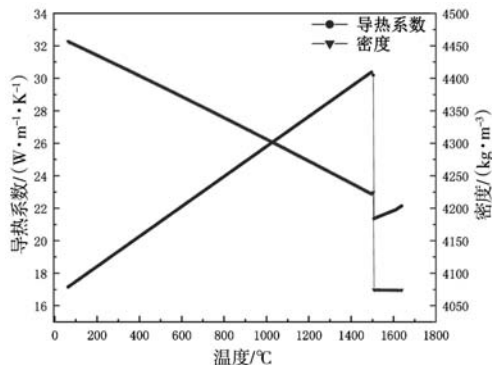


图3 Y靶材铸件导热系数和密度曲线

Fig. 3 Thermal conductivity and density curves of Y target casting

表1 计算域界面换热系数
Table 1 Interface Heat-Transfer Coefficients for the calculation area

界面位置	界面换热系数/(W·m ⁻² ·K ⁻¹)
铸件-Q235钢	750
铸件-石墨板	900
Q235钢-保温棉	200
Q235钢-石墨板	500

1.3 缩松缩孔预测准则

目前,预测铸件缩松缩孔缺陷的方法和判据主要有收缩量法、等值线法、温度梯度法和Niyama判据等^[9],其中Niyama是一种基于枝晶间显微缩松的预测判据,该判据应用较广,其表达式为:

$$\frac{G}{\sqrt{R}} < C_{\text{Niyama}} \quad (1)$$

式中: G 是判断区域局部温度梯度; R 是冷却速度; C_{Niyama} 为临界值,为有量纲值,通常取1 ℃^{1/2}·min^{1/2}·cm⁻¹。

在ProCAST软件中使用Niyama判据进行缩松预测^[10],可较为准确地预测缩松缺陷出现的位置,由于高纯Y靶材对组织质量的要求较高,对铸件质量影响较大的是缩孔缺陷,其形成机理与缩松有所不同。

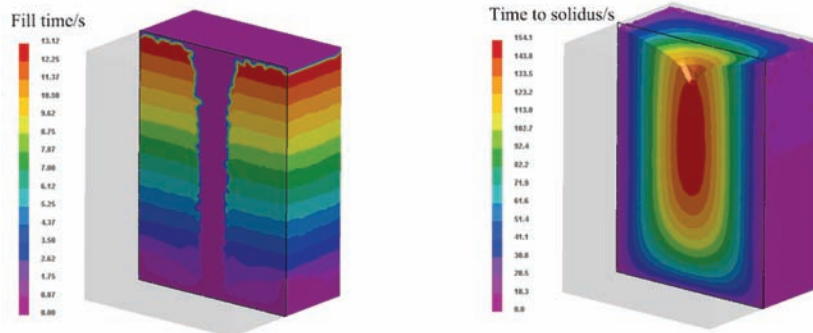
本研究对微观缩孔的预测使用Porosity模型,该模型认为铸件凝固过程中一个区域的密度随温度下降时就会出现缩孔,其统计缩孔的方式分为两部分:①当固相率低于临界值(通常为0.7)区域内所有节点的缩孔;②固相率介于临界值及与临界补缩长度(通常为2 mm)等值区域内节点的缩孔。凝固过程中在每一时间步长内同时进行以上两部分的缩孔计算并求得总的缩孔值^[11]。

2 初始工艺方案数值模拟

2.1 充型与凝固过程

由于金属Y具有高熔点、极易氧化的特性,铸造过程只能在真空炉内进行,由坩埚直接浇入模具内。图4a为充型时间分布图,充型时间为13.12 s,充型过程前2 s时熔体直接流下,在底部造成了轻微飞溅现象,后续过程基本平稳。图4b为铸锭凝固时间分布图,可以看出铸锭的凝固顺序是从四周向中心凝固,并且最后凝固区域较大,在此区域中易产生缺陷。

图5为铸锭凝固过程固相率的数值模拟结果,铸锭凝固时基本符合顺序凝固特征,由四周及底部向中心部分逐步凝固。当铸锭凝固到96.9%时,铸锭外部已经完全凝固,但在中心仍存在一条轴向区域没有凝固,这表明铸锭中心区域无法从四周得到有效补缩,只能依靠上方熔体进行补缩,因此,极易出现缩孔缺陷^[12]。

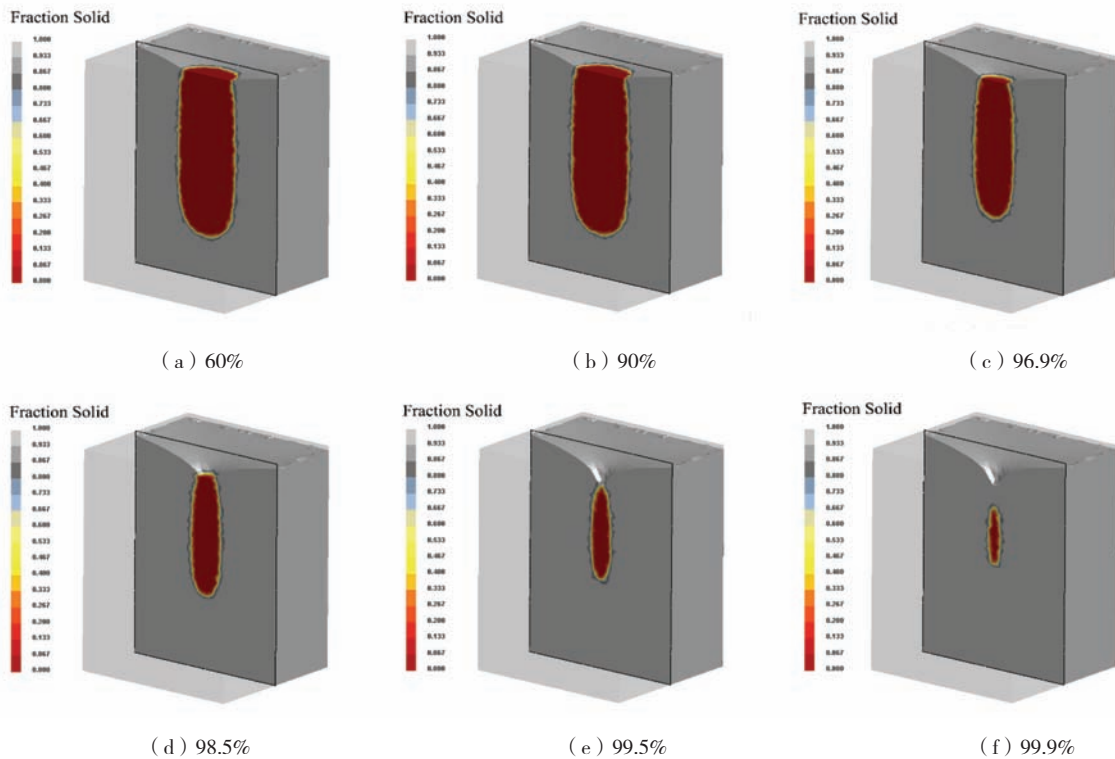


(a) 充型时间分布图

(b) 凝固时间分布图

图4 铸锭充型时间与凝固时间分布图

Fig. 4 Distribution of mold filling time and time to solidus of casting



(a) 60%

(b) 90%

(c) 96.9%

(d) 98.5%

(e) 99.5%

(f) 99.9%

图5 铸锭凝固过程的固相率分布状态

Fig. 5 Distribution of solid fraction during casting solidification

当铸锭凝固到99.5%时，中心仍存在液相区域，而铸锭顶部已完全凝固，液相区的补缩通道关闭，形成了孤立液相区，该区域无法得到补缩，在凝固结束后产生缩孔缺陷。

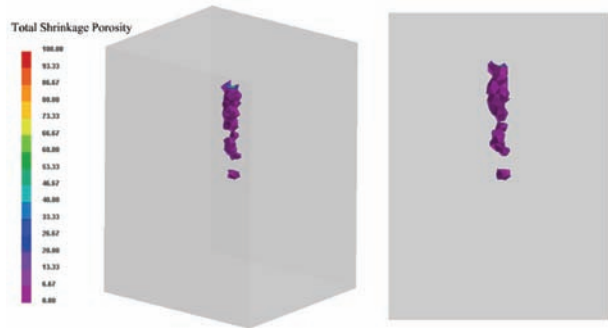
2.2 缩孔缺陷分析

初始方案的缺陷分布结果如图6所示，缺陷集中分布在铸件中心区域，并沿着轴向形成长条状分布，缩孔最低深度在距铸锭顶部115 mm处，预测整体缩孔体积为 0.825 cm^3 ，缺陷产生的位置与凝固过程中孤立液相区产生的位置相吻合，且与实际生产时出现的缩孔

位置相一致。考虑到铸件的结构特点，结合计算结果分析缩孔产生的主要原因包括两方面。

一方面是由于铸件为长方体，铸件与模具接触面积大，冷却时由四周向中心传导，且高纯钇两相区范围极小，冷却速度快，极易在中心部分形成孤立液相区，凝固时产生缩孔^[13-14]。另一方面是由于金属钇的比热容相对非稀土金属来说偏低，在凝固过程中，熔体表面在空冷状态下的凝固速度更快，从而导致铸件表面凝固，而中心仍存在液相区，且无法从上面得到补缩，导致缩孔的产生。

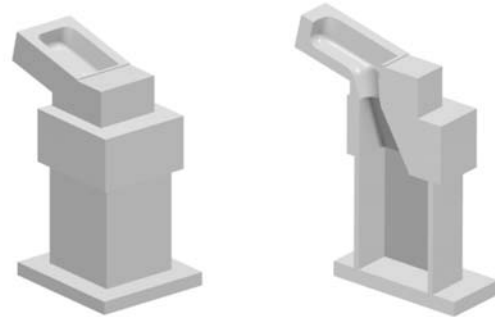
图7为使用初始工艺铸造的高纯钇铸锭。图7a显示



(a) 正三轴视图 (b) 左视图

图6 缩孔分布状态

Fig. 6 Distribution of total shrinkage porosity



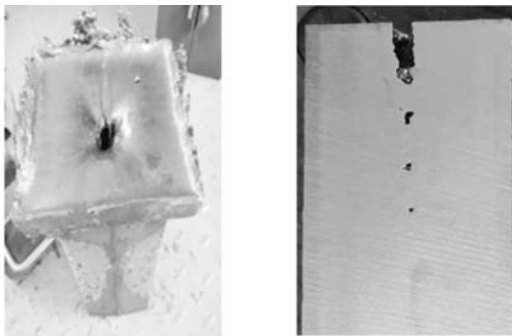
(a) 正三轴视图 (b) 正三轴截面图

图8 改进后模具三维图

Fig. 8 3D model of after improvement mold

上方增加保温冒口使铸件的最后凝固区域集中在冒口处，减少铸件内部缺陷。保温冒口高度的最优设置需要通过数值模拟结果选择，共设计了7个不同高度的保温冒口，计算铸锭充型凝固过程，可有效降低制造不同模具的成本，获得最优方案。

在设置冒口的同时将浇口设置在侧边处，同时增加导流槽，在充型过程中使熔体平缓流下，减少飞溅的现象。基于该金属低比热容和低导热系数的特点，导流槽和冒口的材质选择耐火保温材料氧化锆，减少流动过程中温降，同时保证冒口的保温效果。冒口与铸件接触面的尺寸为100 mm × 115 mm，高度分别为70 mm、80 mm、90 mm、100 mm、110 mm、120 mm和130 mm，比较不同冒口高度下对铸件内部缩孔的大小分布。



(a) 铸锭 (b) 剖面图

图7 初始工艺Y铸锭

Fig. 7 Yttrium ingots cast using the initial process

铸锭产生了较深的宏观缩松，结果与计算结果基本吻合；图7b为铸锭的中心剖面图，铸锭中心区域沿轴向产生了二次缩孔，且缩孔出现的位置和深度与计算结果高度吻合，证明数值模拟参数设置合理，后续对模具结构进行优化。

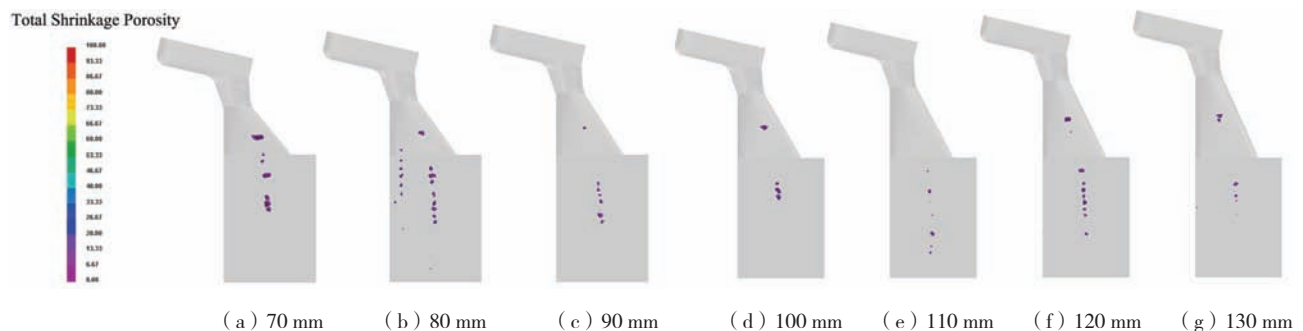
3 浇注和补缩系统结构的改进

3.1 模具结构的改进

通过改进高纯Y铸锭模具结构（图8），在铸件

3.2 结构优化后的数值模拟结果

使用初始工艺方案选定的材料及设置参数进行设定，对工艺改进后的铸锭充型凝固过程进行计算。图9为工艺改进后缩松缩孔缺陷预测图，可以看出缩孔整体出现在铸件中心位置，且出现位置最低深度随保温冒口高度的增加呈起伏趋势，在冒口高度100 mm时缩孔深度最小，相比原始工艺方案缩孔体积显著减小，铸锭内缺陷体积减少了98%以上，提高了铸锭的利用率（图10）。



(a) 70 mm (b) 80 mm (c) 90 mm (d) 100 mm (e) 110 mm (f) 120 mm (g) 130 mm

图9 铸锭在不同高度保温冒口下缩孔分布状态（左视图）

Fig. 9 Total shrinkage porosity distribution at different insulating riser heights (left view)

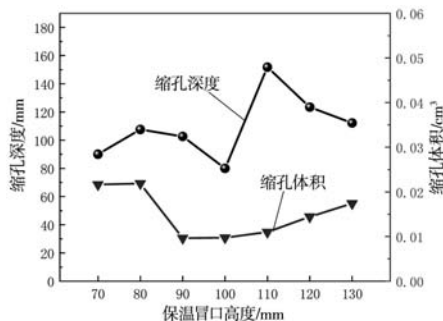


图10 不同高度的保温冒口对铸锭缩孔深度和缩孔体积的影响

Fig. 10 Effect of different insulated riser-heights on the depth and volume of ingot shrinkage

参考文献:

- [1] 唐政刚, 张达, 解志鹏, 等. 稀土材料的制备与高端应用 [J]. 有色金属科学与工程, 2021, 12 (4): 112-125.
- [2] CHEN Xin, WANG Chiming, QI Dongdong, et al. Raman spectra of rare earth double-decker complexes with porphyrinato and 2, 3-naphthalocyaninato ligands [J]. Journal of Porphyrins and Phthalocyanines, 2019, 23 (3): 260-266.
- [3] SONG X, ZHANG J, YUE M, et al. Technique for preparing ultrafine nanocrystalline bulk material of pure rare-earth metals [J]. Advanced Materials, 2006, 18 (9): 1210-1215.
- [4] 徐秀兰. 超高纯铁磁性金属靶材溅射镀膜的性能研究 [D]. 北京: 北京科技大学, 2021.
- [5] 聂海棋, 梁铎强. 稀土金属钇的开发 [J]. 四川冶金, 2013, 35 (1): 75-78.
- [6] 肖颖, 严宝辉, 李俊仓, 等. Zr-4铸锭补缩工艺的研究 [J]. 世界有色金属, 2020 (20): 135-137.
- [7] 杨思维. 基于ProCAST模拟分析的复杂黄铜性能研究 [D]. 沈阳: 东北大学, 2018.
- [8] 王建武, 徐志强, 杨树峰. 热顶设计对镍基高温合金铸锭收缩孔隙的影响 [J]. 中国冶金, 2022, 32 (4): 63-69.
- [9] 崔吉顺, 李文珍. 铸件缩孔缩松多种预测判据的应用 [J]. 清华大学学报 (自然科学版), 2001 (8): 5-8.
- [10] 李日. 铸造工艺仿真ProCAST从入门到精通 [M]. 北京: 中国水利水电出版社, 2010: 201-220.
- [11] 鄯宇, 王业基, 王峰, 等. 低压铸铝件缩孔缺陷数值模拟与工艺改进 [J]. 精密成形工程, 2022, 14 (4): 139-145.
- [12] LIU Cao, LIAO Dunming, SUN Fei, et al. Numerical simulation of cold-lap defects during casting filling process [J]. The International Journal of Advanced Manufacturing Technology, 2018, 97 (5): 2419-2430.
- [13] 洪涛, 王东方, 华逢志. 铝合金轮毂挤压铸造工艺参数优化 [J]. 铸造技术, 2020, 41 (12): 1160-1164.
- [14] 马军义, 高华, 王飞超. ProCAST在铸件精铸工艺确定过程中的应用 [J]. 世界有色金属, 2020 (18): 207-208.

Influence of the Insulating Riser on the Internal Quality of High Purity Yttrium Target Ingots

HOU Xian-zhong¹, LE Qi-chi¹, JIANG Yan-chao¹, ZHANG Yong-jian², RONG Gou-hua², WANG Tong¹

(1. School of Materials Science and Engineering, Northeastern University, Shenyang 110819, Liaoning, China; 2. Fujian Changting Golden Dragon Rare-Earth Co., Ltd., Longyan 366300, Fujian, China)

Abstract:

The ProCAST software is used to numerically simulate the casting process of the rare-earth yttrium ingots to study the effects of different processes on the temperature field distribution, solid fraction distribution and distribution of shrinkage defects in the process of mold filling and solidification of yttrium ingots. The calculation and test results show that the numerical simulation results of the initial process scheme are basically consistent with the location of the shrinkages produced by the actual ingot; after improving the riser design, the shrinkage defect rate in the yttrium ingot is the smallest when the height of the insulating riser is 100 mm, and the defect volume is reduced by more than 98%.

Key words:

high purity yttrium; targets; shrinkage defects; numerical simulation