

# 铜-铝扩散焊及拉伸的分子动力学模拟<sup>\*</sup>

刘 浩<sup>1)2)</sup> 柯孚久<sup>1)2)†</sup> 潘 晖<sup>1)2)</sup> 周 敏<sup>3)</sup>

1)(北京航空航天大学物理系,北京 100083)

2)(中国科学院力学研究所非线性力学国家重点实验室,北京 100080)

3)(美国乔治亚理工学院机械工程学院及材料科学与工程学院,乔治亚 30332-0405)

(2006 年 3 月 1 日收到;2006 年 5 月 23 日收到修改稿)

采用分子动力学方法模拟了铜-铝扩散焊过程,分析了理想平面铜-铝试件(001)晶面间扩散焊的过渡层厚度,并利用径向分布、键对分析方法分析了在不同的降温速率下过渡层的结构变化.降温速率大时,过渡层保持原有无序结构,降温速率小时,过渡层从无序结构向面心立方结构转变.还对扩散焊后的铜-铝试件进行了拉伸模拟,并与尺寸大小相近的单晶铜和单晶铝的拉伸模拟结果进行比较.结果发现焊接后的强度比单晶铝和单晶铜的强度都要小,最大应变值也小.

**关键词:** 分子动力学, 扩散焊, 拉伸, 应力应变

**PACC:** 6185, 6630, 0630M

## 1. 引 言

扩散焊是在一定温度、一定压力下,经过焊接区原子充分的相互扩散以及塑性变形,或者在界面产生微量液相而实现结合的焊接方法<sup>[1]</sup>.扩散焊突出的优点是焊接接头的显微组织与母材接近或相同,不存在过热组织的热影响区<sup>[1]</sup>.扩散焊不仅可以实现异种金属之间的焊接,而且可以将非金属材料 and 金属材料相焊接,如石墨、玻璃、陶瓷与金属的连接.除此之外,扩散焊还有工艺简单,工艺参数易控制,易于实现大断面接头的焊接等优点.扩散焊在实验上已经有了大量的研究<sup>[2-5]</sup>,也有人做了焊接的数值模拟研究<sup>[6,7]</sup>,但对于原子尺度上焊接的模拟尚未见报道.由于铜和铝的线膨胀系数不同,并且铝在加热时易形成氧化膜,所以不利于铜-铝的钎焊<sup>[8]</sup>.铜和铝的熔点相差较大,互溶性有限,所以熔焊也有困难,现在主要用压焊(扩散焊等)焊接铜铝.Chen 等人用分子动力学初步模拟了铜和银之间的扩散焊,讨论了压强对扩散焊的影响<sup>[8]</sup>,模拟发现压强越大扩散区的厚度越大.纳米尺度下的金属材料具有独特的力学性能,它的硬度、强度等都有很大的变

化<sup>[9,10]</sup>,已有文献用分子动力学方法研究了纳米尺度范围内的尺度效应,以及表面和温度对纳米铜线拉伸的影响<sup>[11]</sup>;也有文献研究了纳米晶铜的单向拉伸变形过程<sup>[12]</sup>以及铜孪晶的能量<sup>[13]</sup>.然而对于不同金属的扩散焊过程的分子动力学模拟的研究还很少,目前尚未见到从原子层次上研究扩散后金属的力学性质的工作,而从事扩散焊的实验工作者很希望了解扩散焊过程中原子的动态过程.本文将用分子动力学模拟铜和铝的扩散焊,并模拟尺寸相近的单晶铜、单晶铝和扩散焊后的铜-铝试件在受单向拉伸时的演化过程.

## 2. 模型与方法

分子动力学<sup>[14]</sup>模拟中势函数的选择是十分重要的.对金属而言,嵌入势(embedded atomic method, EAM)是使用很广,也较精确的势函数之一,在模拟中我们采用的是由 Johnson 等人改进的 EAM 势函数<sup>[15]</sup>.铜和铝接触面均为理想平面(见图 1),原胞大小分别为  $27 \times 27 \times 18(a_{Cu})^3$ ,  $24 \times 24 \times 20(a_{Al})^3$  ( $a_{Cu} = 0.3615$  nm 和  $a_{Al} = 0.4082$  nm 分别是铜和铝的晶格常数),铜和铝原子数分别为 52488 个和 46080

<sup>\*</sup> 国家自然科学基金(批准号:10372012, 10432050, 10528205)和“中国科学院数学与系统科学研究院”的计算数学所的《科学与工程计算国家重点实验室》万亿次机群系统及其合作人资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: kefj@lnm.imech.ac.cn

个.在  $x, y$  方向均采用周期边界条件,铜的上表面与铝的下表面均固定三层原子.原子的初始速度由麦克斯韦速率分布给出,原子的牛顿运动方程采用蛙跳法<sup>[16]</sup>进行数值积分,采用时间步长为 2 fs.

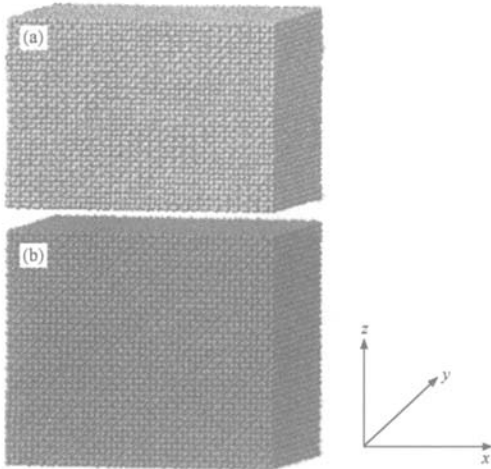


图 1 扩散焊试件的初始位型(上面为铜,下面为铝)

模拟过程中,在 1 K 下,先分别对铜和铝进行零压的弛豫平衡,再将铜和铝进行接触.当铜和铝接触后采用位移控制将铜下压一段距离后(此时铜并未压入铝中)改为压强控制,在 20 MPa 压强下将系统升温到 800 K,保温 200 ps.扩散后将铜-铝试件以  $5 \times 10^{11}$  至  $5 \times 10^{13}$  K/s 的不同降温速率降温到 300 K,然后我们沿  $Z$  轴方向拉伸(垂直于(100)面)进行单

向拉伸,每次拉伸应变量为 0.005,弛豫 4000 步(8 ps),通过跟 16 ps 的弛豫时间的结果对比,没有明显变化,表明这是一个准静态的加载.然后再进行拉伸,拉伸应变总量为 0.25.在拉伸过程中,同时调节  $X, Y$  方向,以保证  $X, Y$  方向保持一个大气压.我们用此方法同样模拟了尺寸相近的单晶铜和单晶铝的拉伸过程以作比较.

### 3. 结果与讨论

#### 3.1. Cu/Al 扩散焊

图 2 是铜和铝的初始位型图及扩散焊在 100 ps 和 200 ps 时的模拟结果.模拟发现,室温下当铝-铜接触在一起时,界面原子并没有进行扩散(图 2(a),接触面有起伏),只有当温度升到 800 K,并保温一段时间后才能观察到界面原子的扩散(图 2(b)).扩散主要是界面层附近的铜原子扩散到铝的内部,只有少量的铝原子扩散到了铜的内部.这是由于铜的熔点比铝的熔点高,说明铜-铜键比铝-铝键强,也就是说铝-铝键更容易断裂,铝的面心立方结构也就会被破坏;而铜-铜键不易断裂,在此温度下只有一部分的铜-铜键断裂,原有的结构基本上保持不变.这就造成了铜和铝的扩散主要是铜原子向铝层扩散.经过 200 ps 的保温后,在铜和铝的之间形成了一个过渡层.同时我们发现过渡层呈现无序化状态.在这里

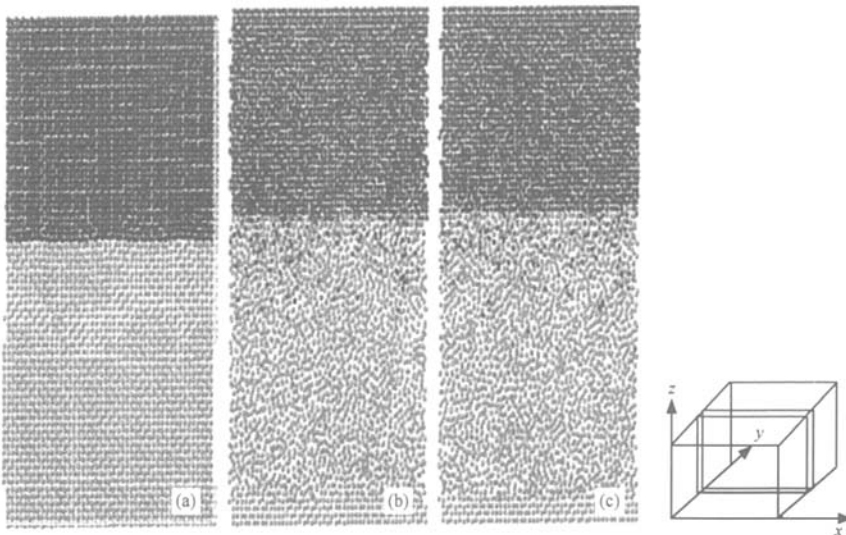


图 2 扩散焊的截面图( $y$  方向截取  $10 a_0$  到  $12 a_0$  的区间图,上面为铜原子,下面为铝原子,  $a_0 = 0.707 a_{Al}$ )(a)初始状态;(b)100 ps;(c)200 ps;(压强 20 MPa,温度 800 K)

我们规定铜和铝的原子浓度均超过5%的区域为过渡层.模拟发现过渡层主要分布在原先被铝原子占据的区域(图2(c)).

通过原子浓度图3可以看到在铜和铝的接触表面有一个过渡层,其宽度为 $12 a_0$  ( $a_0 = 0.707 a_{al}$ ).从图中也可以看到有较多的铜原子扩散到了铝层中,而铝则是少量地扩散到铜层中.

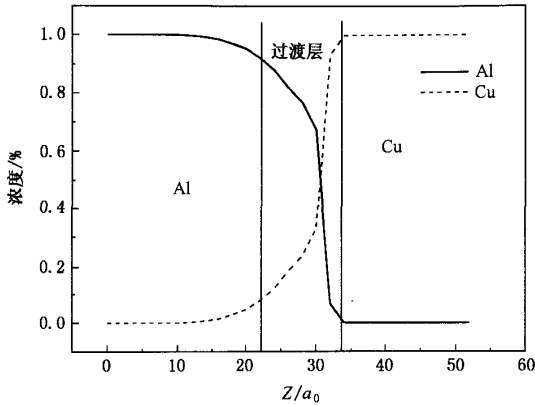


图3 原子浓度图(20 MPa, 800 K, 200 ps)

我们分析了压强 20 MPa 下得到的过渡层的冷却过程.分别采用了三个降温速率( $5 \times 10^{11}$  K/s,  $5 \times 10^{12}$  K/s 和  $5 \times 10^{13}$  K/s),将系统由 800 K 冷却到室温.径向分布函数  $g(r)$  (radial distribution function, RDF)<sup>[17]</sup> 是描述系统结构的很有用的方法,它可以表征结构的无序化程度.该分布函数是距离一个原子为  $r$  时找到另一个原子的概率,如果在半径  $r$  到  $r + \delta r$  的球壳内的粒子数为  $n(r)$ ,理想晶体的原子密度为  $\rho_0$ ,对面心立方晶体而言为 4.由此可以得到

$$g(r) = \frac{1}{\rho_0} \frac{n(r)}{V} \approx \frac{1}{\rho_0} \frac{n(r)}{4\pi r^2 \delta r}. \quad (1)$$

已有的文献表明<sup>[17]</sup>,可以使用总的 RDF 来对系统的有序、无序状态进行初步判断.图4所示为不同的冷却速率下得到的过渡层的径向分布函数随温度变化的曲线.从该图中可以看出,对于不同的冷却速率,径向分布函数的变化有着不同的变化趋势.图4(a)表明在降温速率是  $5 \times 10^{11}$  K/s 时,当温度降至低于 500 K 时径向分布函数出现了多峰,这说明过渡层从无序向有序转变.在降温速率是  $5 \times 10^{12}$  K/s 时,当温度降至低于 400 K 的时候,径向分布函数出现了多峰(图4(b)),这说明过渡层从无序向有序转变.而当降温速率是  $5 \times 10^{13}$  K/s 时,每个温度下的径向分布函数都是近似相似的,并且只有一个主要

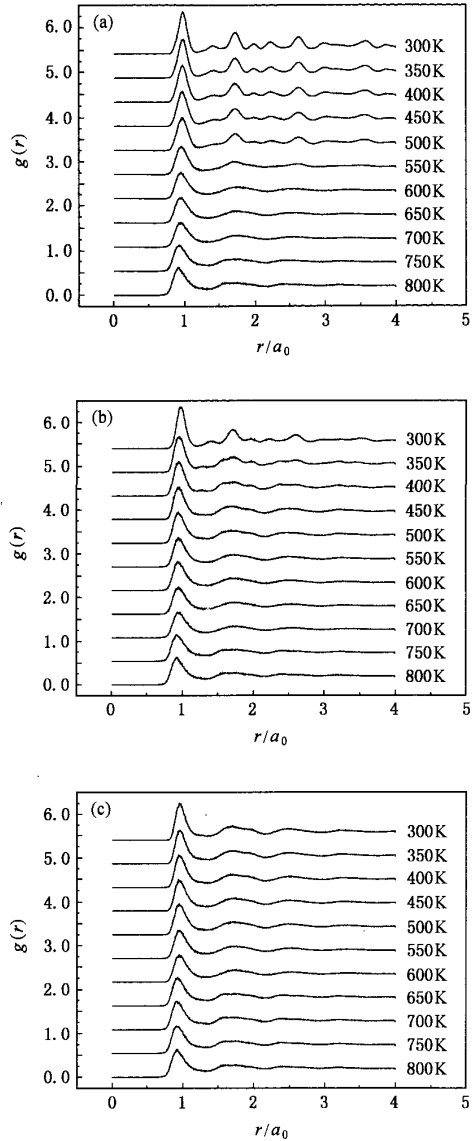


图4 不同温度下的径向分布函数( $a_0 = 0.707 a_{al}$ ) (a)冷却速率为  $5 \times 10^{11}$  K/s; (b)冷却速率为  $5 \times 10^{12}$  K/s; (c)冷却速率为  $5 \times 10^{13}$  K/s

峰值(图4(c)),即使冷却到了室温,过渡层依然保持着无序结构.这是由于降温速率大的时候原子被“冻结”在了原来的位置,系统的结构来不及发生变化,因而在高温和低温的时候径向分布函数变化不大.当降温速率小的时候,在降温过程中每个温度下都有较长的弛豫时间,过渡层的结构可以发生变化,这就造成了不同温度下过渡层的径向分布函数有明显的变化.

径向分布函数是对结构无序化程度的整体描

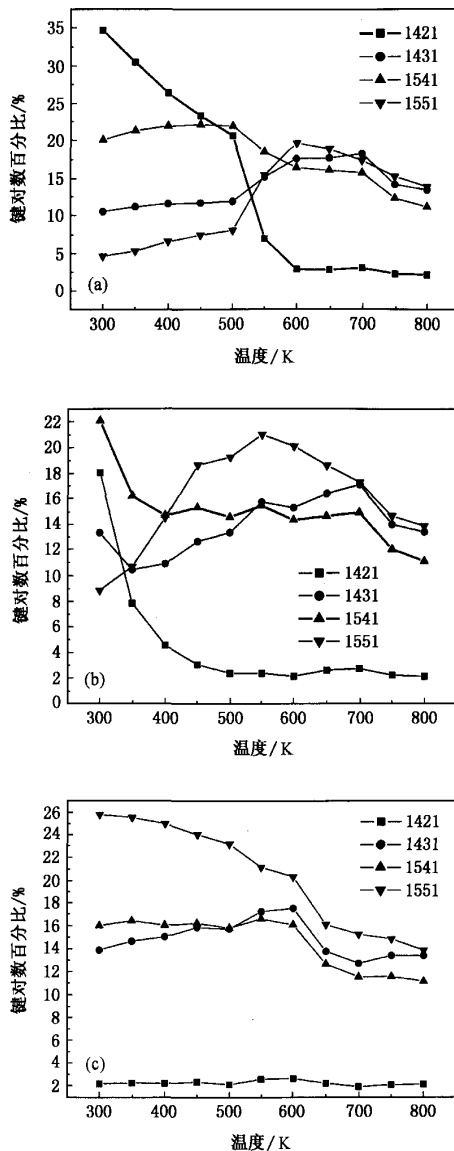


图5 过渡层键对百分含量随温度的变化曲线 (a)  $5 \times 10^{11}$  K/s; (b)  $5 \times 10^{12}$  K/s; (c)  $5 \times 10^{13}$  K/s

述.我们要具体,要更加确切的分析一个结构就需要用到键对分析,根据 RDF 的第一个波谷的位置,作为第一近邻来判断原子间是否成键<sup>[18]</sup>.键对分析技术已经被广泛用于分析晶体的局部结构特征,可以表征不同的晶体结构.键对分析方法是四个参数  $i, j, m, n$  来表征任意两个原子之间的成键情况:  $i = 1$  表示两个原子之间成键,  $i = 2$  则表示两个原子之间不成键;  $j$  表示都和这两个原子成键的近邻原子个数;  $m$  表示所有近邻原子的成键个数;  $n$  表示

近邻原子之间成键的形式.键对可以用来表征不同的晶体结构,例如面心立方结构的主要键对是 1421,体心立方是 1442 和 1661,液体和非晶则为 1551, 1431 和 1541.

图 5 表示的是过渡层的键对百分含量随温度的变化曲线.可以看出,在不同的降温速率下,键对百分含量有着不同的变化趋势.当冷却速率为  $5 \times 10^{11}$  K/s 时,在 500 K 到 600 K 范围内,键对百分含量有明显的突变,1421 的百分含量迅速增加, 1551 的含量则相应减少, 1541 的百分含量有所增加, 1431 的百分含量从 600 K 到 500 K 时有所降低,在降温的整个过程中, 1431 的百分含量只有小量变化,最后 (300 K) 的百分含量略小于初始 (800 K) 的百分含量.当冷却速率为  $5 \times 10^{12}$  K/s 时,键对百分含量也有类似的变化.由于面心立方的键对主要是 1421,由此可知降温速率较小时过渡层有相当部分晶体由无序状态变为面心立方结构.当降温速率为  $5 \times 10^{13}$  K/s 时,各种键对百分含量变化较小,即冷却速率很大的时候,原子被冻结而来不及发生结构变化.降温速率较大时,可以看到 1431, 1541, 1551 的百分含量较大,而 1421 相对较小,而 1431, 1541, 1551 在键对分析中表征的是液体或非晶结构,因此降温速率较大时,易形成非晶.

### 3.2. 拉 伸

我们对扩散焊后的铜-铝分别进行了拉伸模拟.对于扩散焊后的铜铝拉伸见图 6,当拉伸应变为 10.5% 时达到最大应力值 3.2 GPa,拉伸应变在 12.0% 和 12.5% 时应力值突然下降.我们还模拟了单晶铝和单晶铜的拉伸,发现单晶铝在拉伸应变为 19.0% 时达到最大应力值 4.9 GPa,拉伸应变在 19.0% 和 19.5% 时应力值突然下降.单晶铜在拉伸应变为 11.5% 时达到最大应力值 7.2 GPa,拉伸应变在 11.5% 和 12.0% 时应力值突然下降.通过比较上述三种情况下的拉伸,可以看出单晶铜拉伸的强度最大,扩散后的铜铝拉伸的强度值最小,而单晶铝拉伸的强度值居中.我们的模拟强度值比实验强度值高很多,同样金属的理论强度也比金属的真实强度高,这是由于实验中所用的材料有缺陷,空隙所造成的.我们模拟的铜-铝试件是在冷却速率为  $10^{13}$  K/s 下得到的,这么高的冷却速率会在过渡层形成“玻璃态”结构,而金属玻璃的屈服应力通常比晶态下的相同合金高,因而我们模拟的铜-铝试件的拉伸强度

达到了 3.2 GPa,但其拉伸强度比单晶铜和单晶铝的强度小,这是由于过渡层里有缺陷.

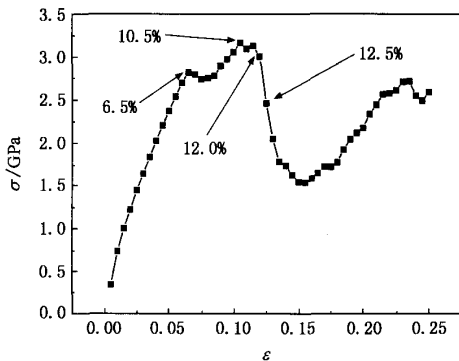


图 6 铜-铝扩散焊后的拉伸应力应变曲线

由金属塑性变形理论可以知道,当金属晶体受到外力作用时,无论外力的方向、大小和作用方式如何,均可以将总的应力分解成垂直于某一滑移面的正应力  $\sigma$  和平行此面的切应力  $\tau$ .正应力  $\sigma$  使试样发生弹性伸长,而切应力能使试样发生弹性歪扭,当  $\tau$  增加到一定值时,则一定晶面两侧的两部分晶体产生相对滑动,在晶体表面形成一条滑移线,大量的滑移线组成了滑移带.因为晶体中最密排晶面上原子间相互作用力最强,而其面间距最大,所以这些晶面间的结合力最弱,滑移阻力最小;同理沿原子密度

最大的晶向滑动时阻力也最小,因此金属晶体的滑移面和滑移方向是晶体的最密排面和密排方向.理论和实验已经证明在面心立方晶格中的滑移面是(111)晶面,滑移方向是[110]晶向,所以在单晶铜和单晶铝中的带状就是拉伸时产生的滑移带.在我们的拉伸模拟中,上表面为(100)面,(111)晶面与水平方向成  $45^\circ$ ,所以滑移(带)线总是与水平成  $45^\circ$  出现.这些滑移带的突然产生,就是导致材料应力发生突然降低的原因.

扩散焊后的铜-铝试件的应力-应变曲线有别于单晶铜和单晶铝.从图 6 和图 7 可以看到,当应变为 6.5% 时应力开始下降,应变为 7.5% 时应力又开始上升直到应力最大值,然后应力值又下降,后面也出现了一个峰值.第一次应力降低就是铝部分出现滑移带造成的.从图 7(b)和图 7(c)还可以看出,铝表面的滑移带只出现在还是面心立方结构的部分,而不能穿过过渡层,因为过渡层的结构不再是面心立方结构,因此铝部分只能产生少量的滑移带.随着进一步的拉伸,滑移带上的位错与过渡层的缺陷之间发生相互作用,这使位错的可动性降低,要使位错进一步运动就需要更大的应力,这种现象称为加工硬化,这也是第一次应力降低后上升以及后面出现应力起伏的原因.第二次出现较大的突然降低,主要是因为铜里面滑移带出现.

图 7 铜-铝扩散焊后拉伸在不同应变下的截面图(y 方向截取  $10 a_0$  到  $12 a_0$  的区间图,上面为铜原子,下面为铝原子,  $a_0 = 0.707 a_{Al}$ ) (a) 应变为 6.0%;(b) 应变为 6.5%;(c) 应变为 7.0%;(d) 应变为 11.5%;(e) 应变为 12.0%;(f) 应变为 12.5%

## 4. 结 论

本文用分子动力学方法模拟研究了铜和铝的扩散焊,对铜和铝形成的扩散区的结构进行了分析.结果表明:1)铜和铝在冷压过程中没有明显的扩散.2)扩散主要是铜原子向铝原子层扩散.3)降温速率对

过渡层结构有重要影响;从径向分布函数和键对分析均可以看出:降温速率大时,过渡层保持原有无序结构,易形成非晶;降温速率小时,过渡层从无序结构向面心立方结构转变.4)从拉伸模拟中可以看到,扩散焊后 Cu/Al 试样具有较好的力学性能,其抗拉强度达到单晶铝抗拉强度的 65% 左右;单晶铜和单晶铝的变形主要为滑移,表面有明显的滑移带;扩

散焊后的 Cu/Al 在铜铝部分产生滑移, 由于过渡层对滑移起障碍作用, 出现了加工硬化.

- [1] Zheng L B, Wang C Y 2005 *Acta. Phys. Sin.* **54** 5274 (in Chinese)[郑立宝、王崇愚 2005 物理学报 **54** 5274]
- [2] Ren Ji, Li Y, Feng T 2002 *Materials Letters* **56** 647
- [3] Rodrigo H P 2004 *Materials Science and Engineering A* **384** 262
- [4] Liu Li, Zhu M, Pan L, Wu L 2001 *Materials Science and Engineering A* **315** 103
- [5] Qiang L, Chris H, Mark R J 2003 *Materials and Design* **24** 493
- [6] Lu F, Yao S, Lou S, Li Yg 2004 *Computational Materials Science* **29** 371
- [7] Li Y J, Wu H Q, Chen M A 2001 *The Chinese Journal of Nonferrous Metal* **11** 424 (in Chinese)[李亚江、吴会强、陈茂爱 2001 中国有色金属学报 **11** 424]
- [8] Chen S D, Soh A K, Ke F J 2005 *Scripta Materialia* **52** 1135
- [9] Koch CC, Malow TR 1999 *Materials Science Forum* 312
- [10] Wu H A 2006 *Mechanics Research Communications* **33** 9
- [11] Wen Y H, Zhou F X, Liu Y W, Zhou C E 2002 *Acta Mechanica Sinica* **34** 29 (in Chinese)[王玉华、周富信、刘曰武、周承恩 2002 力学学报 **34** 29]
- [12] Yang Q W, Zhu R Z 2005 *Acta. Phys. Sin.* **54** 4245 (in Chinese)[杨全文、朱如曾 2005 物理学报 **54** 4245]
- [13] Zhang J M, Wei X M, Xin H 2005 *Chinese Physics* **14** 1015
- [14] Qiao Y H, Wang S Q 2005 *Acta. Phys. Sin.* **54** 4827 (in Chinese)[乔永红、王绍青 2005 物理学报 **54** 4827]
- [15] Johnson R A 1989 *Phys. Rev. B* **39** 12554
- [16] Honeycutt R W 1970 *Methods in Computational Physics* **9** 136
- [17] Ciccotti G, Guillope M, Pontikis V 1983 *Phys. Rev. B* **27** 5576
- [18] Honeycutt J D, Andersen H C 1987 *J. Phys. Chem.* **91** 4950

## Molecular dynamics simulation of the diffusion bonding and tensile behavior of a Cu-Al interface<sup>\*</sup>

Liu Hao<sup>1)2)</sup> Ke Fu-Jiu<sup>1)2)†</sup> Pan Hui<sup>1)2)</sup> Zhou Min<sup>3)</sup>

1)(Department of Physics, Beihang University, Beijing 100083, China)

2)(State Key Laboratory of Non-linear Mechanics, Institute of Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China)

3)(The George Woodruff School of Mechanical Engineering, Georgia Institute of Technology, Atlanta, GA 30332-0405, USA)

(Received 1 March 2006; revised manuscript received 23 May 2006)

### Abstract

In this paper, we use molecular dynamics simulations to study the diffusion bonding of a Cu/Al interface. The interface analyzed is that between atomically smooth (001) crystalline planes of a Cu and an Al single crystals. The thickness of the transition layer of the bonded interface is obtained. The structural change of the interfacial region under different cooling rates is analyzed by means of the radial distribution function (RDF) and the pair analysis techniques. The interface assumes an amorphous structure upon initial mechanical pressing and remains amorphous if the subsequent cooling rate is high. At lower cooling rates, however, the interface structure becomes crystalline. The diffusion-bonded Cu/Al specimen is subjected to tensile loading and its strength is compared with those of single-crystalline Cu and single-crystalline Al of the same size along the same direction. Calculated results indicate that the specimen with the interface has a lower tensile strength and a lower ductility than the corresponding single-crystalline Cu and Al specimens.

**Keywords:** molecular dynamics, diffusion bonding, tensile strength, ductility

**PACC:** 6185, 6630, 0630M

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10372012, 10432050, 10528205), and the State Key Laboratory of Scientific and Engineering Computing of the Chinese Academy of Sciences.

<sup>†</sup> E-mail: kefj@lmm.imech.ac.cn