

激光与光电子学进展

飞秒激光作用铝-玻璃界面的分子动力学模拟研究

闻锦程¹, 张琳^{1*}, 吴寒¹, 李萌^{1,2}, 马修泉^{1,2}¹华中科技大学机械科学与工程学院数字制造装备与技术国家重点实验室, 湖北 武汉 430074;²广东省智能机器人研究院, 广东 东莞 523808

摘要 异质材料连接,尤其是金属和玻璃,广泛应用在各种工业产品上。超快激光焊接异质材料是一种快速、清洁和非接触的新技术,近年来得到了广泛研究。采用分子动力学方法对飞秒激光作用铝和石英玻璃界面进行了理论模拟研究,模拟根据石英玻璃的熔点和弹性常数,构建了石英玻璃的Lennard-Jones(LJ)相互作用势函数。根据铝-石英玻璃之间的黏附功,建立了铝-石英玻璃之间的LJ相互作用势函数,从而在保持宏观特性的同时简化和加速模拟过程。采用耦合到分子动力学的双温模型对飞秒激光作用铝和石英玻璃界面进行了小规模分子动力学模拟。飞秒激光辐照后,焊接区局部瞬时温度高达10000 K,应力高达20 GPa,出现铝原子向石英玻璃一侧扩散移动的现象。铝和石英玻璃的混合区由于高温粒子的持续碰撞而不断扩大,同时两种材料的混合区域中心向石英玻璃一侧移动,在微观上揭示了飞秒激光作用铝-石英玻璃界面皮秒时间尺度的分子动力学演化过程,为飞秒激光焊接异质材料提供理论基础。

关键词 超快激光焊接; 势能函数; 玻璃; 铝; 分子动力学仿真; 异质材料

中图分类号 O562.4

文献标志码 A

DOI: 10.3788/LOP222640

Molecular Dynamics Simulation of Aluminum-Fused Silica Interface Shot by Femtosecond Laser

Wen Jincheng¹, Zhang Lin^{1*}, Wu Han¹, Li Meng^{1,2}, Ma Xiuquan^{1,2}¹State Key Laboratory of Digital Manufacturing Equipment and Technology, School of Mechanical Science and Engineering, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, Hubei, China;²Guangdong Intelligent Robotics Institute, Dongguan 523808, Guangdong, China

Abstract The joining of dissimilar materials, especially metals and glass, is widespread in various industrial products. Ultrafast laser welding of heterogeneous materials is a fast, clean, and non-contact technique that has been extensively studied in recent years. In this study, molecular dynamics methods are used for simulating the femtosecond laser action at the interface between aluminum and quartz glass. The simulation constructed a Lennard-Jones (LJ) interaction potential for quartz glass according to its melting point and elastic constants. The construction of the LJ interaction potential between aluminum and quartz glass is based on the adhesion work between the two materials, thus simplifying and accelerating the simulation process while maintaining the macroscopic properties. A small-scale molecular dynamics simulation of the femtosecond laser action at the aluminum and quartz glass interface is performed using the two-temperature model coupled to molecular dynamics method. After femtosecond laser irradiation, the local transient temperature in the welding zone and stress are as high as 10000 K and 20 GPa, respectively, and diffusive movement of aluminum atoms to the quartz glass side occurs. The continuous collision of high-temperature particles causes the mixing zone of aluminum and quartz glass to expand, and the center of the mixing zone of the two materials moves toward the quartz glass side. The simulation reveals the molecular dynamics evolution of the femtosecond laser-action aluminum-quartz glass interface on the picosecond time scale at the microscopic level, providing a theoretical basis for femtosecond laser welding of dissimilar materials.

Key words ultrafast laser welding; potential energy function; fused silica; aluminum; molecular dynamics simulation; dissimilar material

收稿日期: 2022-09-27; 修回日期: 2022-10-10; 录用日期: 2022-11-08; 网络首发日期: 2022-11-18

基金项目: 国家自然科学基金(81927805)、中国博士后科学基金(2018M632837)、广东省科技计划(2018B090944001)、广东省基础与应用研究重大专项(2019B030302003)、东莞市创新团队计划(201536000100031)、华中科技大学中央高校基本科研业务费专项资金(2019kfyXKJC062)

通信作者: *d202180306@hust.edu.cn

1 引言

异种材料连接尤其是金属和玻璃的连接,在电子工业、汽车制造等领域展现出广阔的应用前景。传统的金属与玻璃连接工艺包括润湿封接^[1],阳极键合^[2],胶接^[3],半固体连接^[4]等。与传统方法相比,异种材料超快激光焊接具有精度高、焊接速度快、热影响区小、连接质量高等优点,近年来受到广泛关注。到目前为止,大多数研究都是实验性的,重点对焊接参数、焊接质量评估和焊接接头的微观表征进行了大量的实验和理论分析。Utsumi等^[5]使用5 ns脉冲激光直接把玻璃和金属结合起来,发现焊接区域旁边出现大的颗粒,随着脉冲能量增加和辐照次数增加,颗粒也越来越多,连接强度越来越大。Ozeki等^[6]使用飞秒脉冲实现了玻璃和铜基板的直接微焊接,在二者交界面处可能存在玻璃与铜的混合区。Zhang等^[7]利用1 kHz飞秒激光脉冲实现了铝硅玻璃与金属的直接焊接,阐述了焊接过程:电子吸收能量,将能量传递给晶格,晶格达到热平衡,之后扩散、熔化、产生相变和等离子体形成,产生的反冲压力将铜离子反射到玻璃缝隙中,之后冷凝形成连接。Carter等^[8-9]利用皮秒激光实现金属和玻璃焊接,并对焊接截面进行表征,发现交界面处有Si和Al元素5 μm左右的过渡区域,揭示超快激光焊接存在扩散现象。Carter等^[10]还比较了6082铝合金与石英玻璃和BK7玻璃的皮秒激光微焊接,当功率提高到一定程度时,提高功率并不能明显提高剪切强度,且由于热膨胀系数差异,6082铝合金与BK7玻璃的焊接强度优于石英玻璃。Li等^[11]用激光对钛合金表面氧化处理,实现钛合金和高硼硅玻璃透射焊接,处理后的连接强度提高5倍,在交界处出现4 μm Si-Ti元素过渡层。张敏等^[12]讨论了激光封接玻璃与可伐合金的连接机理,发现连接区域主要为Fe-Si化合物,其他黏附物起到辅助连接作用。此外,张国栋等^[13]实现了硅基底与硅硼酸玻璃飞秒激光焊接,在两种材料的交界面处,存在大约10 μm的Si元素过渡区域。而在理论上,超快激光与金属-玻璃界面的相互作用机制尚未完全揭示。

超快激光与材料相互作用的过程,使用有限元等传统方法难以模拟,而分子动力学常用于研究超快激光烧蚀、表面改性等,这将是模拟微观尺度超快激光与异种材料相互作用的理想方法。吴寒等^[14]构建了Ar-Al相互作用势能函数并给出了飞秒激光在氩气环境中烧蚀铝靶分子动力学模拟结果,喷射物由中等大小的团簇和单原子混合物组成,前端是低密度的气态原子,后端喷射物则来自材料内部烧蚀后的分解和扩张等慢过程。Cheng等^[15]使用势能函数(Beest Kramer van Santen potentials, BKS)研究了玻璃超快激光烧蚀的分子动力学过程,模型考虑了电子的产生和复合,烧蚀过程在材料内部模拟得到了空泡,而不考虑自由电子效应,则在材料内部模拟未发现空泡。陈冰等^[16]采

用结合双温方程的分子动力学方法,数值模拟了飞秒激光与CuZr非晶合金的相互作用,结果表明超快激光作用下CuZr非晶材料中原子加热速度比普通晶态金属慢得多,且烧蚀深度随着能量密度增大而增加。Karim等^[17]开发了一个耦合到分子动力学的双温模型(TTM-MD)来模拟在固体透明覆盖层空间约束条件下短脉冲激光与金属的相互作用,在约束下更容易产生局部高温高压条件,减弱应力波的产生,从而减少熔池深度,抑制金属表面破裂和喷发。Karim等^[18]通过进一步的实验研究,证明分子模拟能够揭示材料在焊接过程中微观结构的演变。孙诗壮等^[19]使用分子动力学方法计算了Mo、Si原子发生反射和再溅射的概率,以及原子的反射、再溅射角度和能量分布,发现当沉积原子传递给基底的能量降低时,发生反射的概率增加,发生再溅射的概率降低。吴雪峰等^[20]分析了飞秒激光仿真所采用的双温模型、分子动力学模型及复合模型的特点及其适用范围,为飞秒激光加工的理论研究提供依据。侯超剑等^[21]基于分子动力学仿真分析了纳米颗粒钎料在SiO₂基底上的激光熔融过程,发现为了获得可靠的纳米互连结点,激光辐照下温度对纳米颗粒与衬底之间吸附能的调控是影响纳米互连结点稳定性的主要因素。周榆等^[22]和牛泽伟等^[23]通过双温模型耦合分子动力学方法研究了飞秒激光作用于金属纳米结构的物理过程。这些研究显示了分子动力学方法在模拟飞秒激光与异种材料作用中的可行性。

由于石英玻璃中原子间主要的相互作用力为共价键,其精确计算需要较高的计算成本,此时简化的相互作用势能函数就具有重要意义。本文初步实现飞秒激光作用石英玻璃和铝界面的模拟研究,构建了SiO₂粒子间相互作用Lennard-Jones(LJ)势能函数、铝和SiO₂相互作用LJ势能函数和飞秒激光作用铝和石英玻璃界面的分子动力学模型。所有模拟研究均使用分子动力学方法,该方法专注于系统中每个粒子的运动,揭示了超快激光作用异种材料界面的微观机制,提供了飞秒激光焊接异质材料的一般物理图像。

2 分子动力学模型的构建

使用由桑迪亚国家实验室开发的LAMMPS开源代码包^[24],在广州国家超级计算机中心(NSCC-GZ)天河二号超级计算机上进行模拟求解,仿真域被划分为小子域并分配给每个处理器,执行并行分子动力学模拟。

2.1 SiO₂粒子之间的相互作用势

石英玻璃由具有复杂原子间相互作用和拓扑结构的无定形SiO₂组成,其中包含了氧原子-氧原子、氧原子-硅原子、硅原子-硅原子的相互作用势等,增加粒子模拟的复杂性,导致计算成本增加。因此对SiO₂粒子之间的相互作用势能函数进行简化,将SiO₂整体简化为单一粒子,建立SiO₂粒子之间的相互作用势函数。

2 个 SiO_2 粒子之间的相互作用势指定为 LJ 势^[25], 可表示为

$$U(r_{ij}) = 4\epsilon \left[\left(\frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^6 \right], \quad (1)$$

式中: r_{ij} 为 2 个 SiO_2 粒子之间的距离; σ 为势能 (PE) 为零时 2 个分子之间的距离; ϵ 为最小势能的绝对值。为了建立 SiO_2 粒子相互作用势函数, 需指定 LJ 势中提到的分子质量 m 、 σ 和 ϵ 。这些参数可根据材料的部分宏观性质 (密度 $\rho = 2.2 \text{ g/cm}^3$ 、熔化温度 $T_m = 1938 \text{ K}$ 和弹性常数 $C_{11} = 76.6 \text{ GPa}$)^[26] 拟合得到。

通常, 一种宏观性质与多个微观参数有关。因此, 在拟合过程中应同时调整相关微观参数, 以获得最佳理论值。此外, 为简化模型, 假定 SiO_2 粒子的晶体结构为面心立方晶格 (fcc), 具有 LJ 原子间势的 fcc 晶体的晶格常数为 $2^{2/3}\sigma$ ^[27]。而 m 和 σ 之间存在精确的关系, 即 $m = \rho\sigma^3$ 。未确定参数由 3 个减少到 2 个, 只需确定 σ 和 ϵ , 即可确定 SiO_2 粒子之间的 LJ 势。通过模拟 SiO_2 粒子的微观加热过程和弛豫后对晶格施加应变的过程, 将微观参数与石英玻璃熔化温度 T_m 和弹性常数 C_{11} 建立联系, 确定 SiO_2 粒子 LJ 势函数中的 m 、 ϵ 和 σ 参数值。

2.2 铝原子与 SiO_2 粒子之间的相互作用势

选择 LJ 势作为铝原子和 SiO_2 粒子之间的相互作用势函数。LJ 势函数中参数 σ 为铝和 SiO_2 粒子平衡时间距为两种材料各自的粒子间平衡距离的算术平均值^[17]。LJ 势函数中参数 ϵ 根据铝液滴和石英玻璃之间润湿过程中的黏附功拟合求解。实验上石英玻璃和铝在 1073 K 下的黏附功为 0.844 J/m^2 ^[28-29], 建立微观铝与 SiO_2 基材之间分子动力学模型模拟润湿过程, 模型中使用的 SiO_2 粒子之间的势能函数为式 (1) 得到的 LJ 势函数, 铝原子之间的势函数使用改进的嵌入原子势函数, 该模型在激光烧蚀模拟中与实验结果较一致^[30]。模拟中使铝原子和 SiO_2 粒子分别在 1073 K 时弛豫, 铝原子移动到石英玻璃基底表面, 系统稳定在 1073 K。铝液滴在 SiO_2 表面延伸并逐渐达到稳定状态, 黏附功可以根据润湿面积和润湿过程前后的总能量差来计算。

2.3 飞秒激光作用玻璃-铝界面皮秒时间尺度的分子动力学过程

超快激光作用物质, 在时间尺度大体可分为以下几个过程: 在 1~1000 fs 的时间内, 物质内产生自由电子、等离子体, 随后电子与晶格进行能量交换, 在 1~100 ps 时间内, 出现相变、库伦爆炸、超临界流体等现象, 随后在 1~100 ns 发生熔化流动、组织形变、表面形变、冷凝等过程^[31]。模拟频率为 1 kHz, 脉冲宽度为 35 fs, 能量密度为 1.0 J/cm^2 的飞秒激光作用于石英玻璃和铝的交界面。在单脉冲作用后, 下一个脉冲到来之前, 1 ms 时间内已完成了上述过程, 因此模拟计算只考虑单个脉冲的作用, 未考虑多脉冲累加效应。通

过飞秒激光作用在石英玻璃和铝交界面的分子动力学过程模拟, 小规模地定性揭示焊接物理现象, 计算模型的示意图如图 1 所示。使用经典的分子动力学方法 (MD) 结合铝的双温度模型 (TTM) 来描述激光与铝的相互作用。石英玻璃部分只使用 MD 方法, 因为脉冲能量吸收主要发生在铝区域。在传统的 TTM 中, 有两个热传导方程分别描述了电子和晶格的热传导过程。而在 TTM-MD 方法中, 晶格方程被分子动力学方程所取代, 即晶格中的热传导是通过原子或分子运动实现的^[32]。

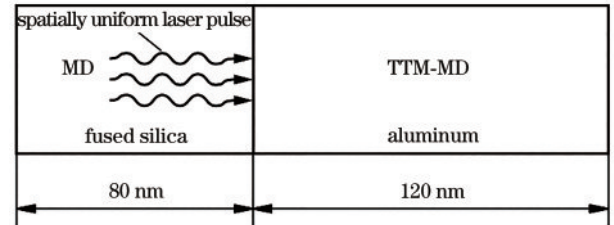


图 1 石英玻璃-铝焊接区域分子动力学模拟示意图

Fig. 1 Schematic of the fused silica-Al molecular dynamics welding simulation

脉宽为 35 fs、能量密度为 1.0 J/cm^2 的飞秒激光脉冲沿 x 轴从左到右穿过石英玻璃区域, 照射在铝和石英玻璃的界面上。模拟区域外设定为真空环境, y 、 z 方向设定为周期性边界条件。铝区域的长度为 120 nm, 石英玻璃区域长度为 80 nm, 在 y 、 z 方向上宽度和高度均设置为 10 nm。由于模拟区域 y - z 截面 ($10 \text{ nm} \times 10 \text{ nm}$) 取自实际焊接区域中的一块小区域, 施加在模拟区域的激光可以认为是均匀分布的。此外, 小尺度模型模拟会引起应力波在模拟边界的强烈反射, 应力波大约需要 20 ps 传输到系统的左右边界。为避免应力波反射对两种材料界面的影响, 仿真时间尺度设为 30 ps。

3 模拟结果与分析讨论

3.1 SiO_2 粒子之间相互作用势参数求解

模拟中调整 SiO_2 粒子 LJ 势函数中的 σ 和 ϵ 参数, 计算不同参数时石英玻璃的熔点和弹性常数, 使模拟的宏观性质与石英玻璃的实验结果足够接近, 以此来确定 LJ 势函数中的参数值。不同的 σ 和 ϵ 参数值下模拟石英玻璃熔化温度 T_m 和弹性常数 C_{11} 值, 如表 1 所示。

由表 1 可知, 保持 ϵ 在 0.200 eV, 随着 σ 的增加, C_{11} 呈下降趋势, 逐渐从 87.094 GPa 减小到 63.457 GPa, 而熔化温度保持在 $1920 \pm 10 \text{ K}$ 。结果显示材料系数 σ 值越大, 柔软度更高。保持 σ 在 0.280 nm 下, 随着 ϵ 的增加, T_m 和 C_{11} 均呈线性上升。根据上述参数组得到的结果, 最终选择了参数 $\sigma = 0.285 \text{ nm}$, $\epsilon = 0.200 \text{ eV}$, 此时模拟的宏观性质为 $T_m = 1925.0 \text{ K}$, $C_{11} = 75.413 \text{ GPa}$, 与实验结果 $T_m = 1938.0 \text{ K}$, $C_{11} = 76.6 \text{ GPa}$ 比较接近。

表 1 不同 LJ 参数 σ ($\epsilon=0.200$ eV) 和 ϵ ($\sigma=0.280$ nm) 下熔融温度 T_m 和弹性常数 C_{11}

Table 1 Statistics of melting temperature T_m and elastic constant C_{11} with respect to different LJ parameters σ @ $\epsilon=0.200$ eV and ϵ @ $\sigma=0.280$ nm

$\epsilon=0.200$ eV					
σ /nm	0.270	0.280	0.285	0.290	0.300
T_m /K	1922.1	1914.7	1925.0	1930.0	1938.4
C_{11} /GPa	87.094	79.381	75.413	70.961	63.457
$\sigma=0.280$ nm					
ϵ /eV	0.180	0.190	0.195	0.200	0.210
T_m /K	1737.8	1826.2	1878.9	1914.7	2031.8
C_{11} /GPa	69.050	74.730	76.058	79.381	81.083

3.2 铝原子与 SiO₂ 粒子之间的相互作用势参数

通过模拟铝液滴和石英玻璃基底之间的润湿过程,确定铝原子与 SiO₂ 粒子之间 LJ 势函数中的 σ 和 ϵ 值,浸润过程模拟图像如图 2 所示。

由图 2(a)~图 2(c) 可发现铝液滴在接触石英玻璃基底后开始在基底上扩展。而由图 2(d)~图 2(f) 可发现铝液滴在 SiO₂ 表面扩散到一定程度后,铝液滴保持稳定的形状,系统达到稳定状态。取 SiO₂ 粒子与铝原子相互作用 LJ 势参数 σ 为 0.2695 nm。为了计算宏观系统黏附功,需要计算润湿过程中释放的能量和最终润湿面积。为此研究了润湿过程中 ϵ 不同值下系统势能随时间变化,并将其绘制在图 3(a),势能差随着 ϵ 的变化如图 3(b) 所示。

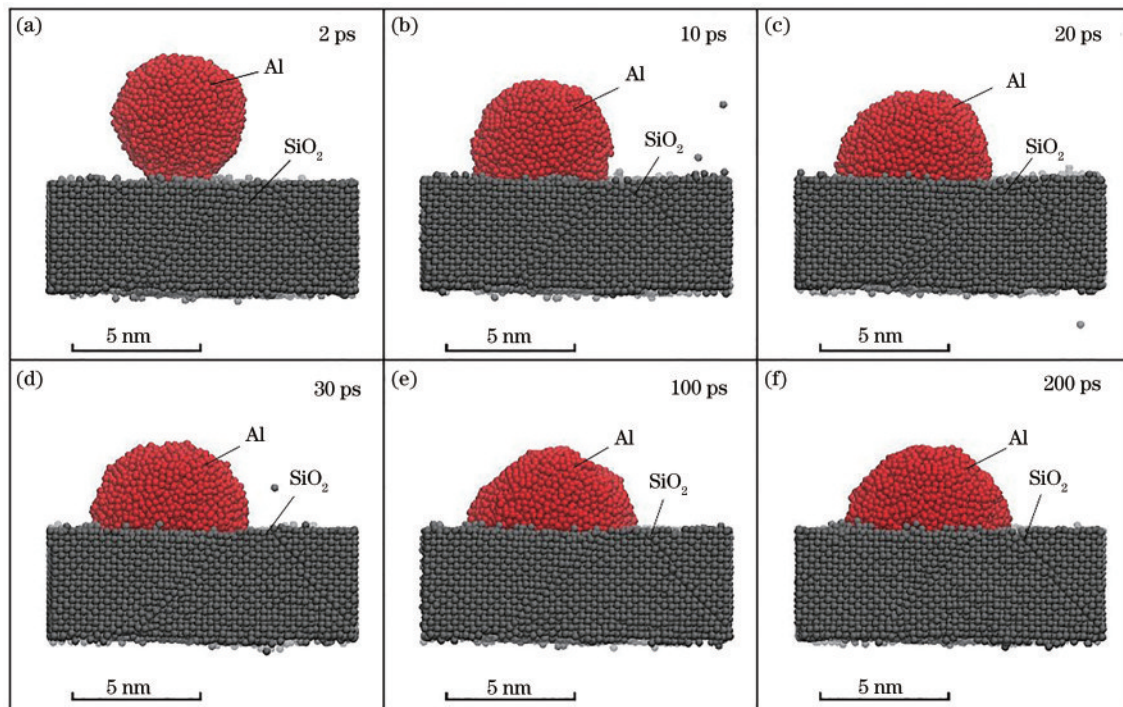


图 2 铝液滴向石英玻璃移动后不同时间的润湿模拟图像(由 VMD^[33] 绘制)。(a) 2 ps; (b) 10 ps; (c) 20 ps; (d) 30 ps; (e) 100 ps; (f) 200 ps

Fig. 2 Snapshot of wetting simulation at different time after the aluminum is moved towards the fused silica (Drawn by VMD^[33]). (a) 2 ps; (b) 10 ps; (c) 20 ps; (d) 30 ps; (e) 100 ps; (f) 200 ps

由图 3(a) 可知,不同 ϵ 值下,系统势能随时间逐渐降低,然后在特定值上下波动,系统趋于稳定。随着 ϵ 值的增加,润湿过程中系统势能逐渐降低,即势能差增加。由图 3(b) 可知,随着 ϵ 值的增加,势能差呈线性增长。由于润湿区域的形状不规则,润湿面积采用近似方法计算。铝-石英玻璃界面被分成小网格,润湿面积可以通过计算铝原子覆盖的网格来计算。得到不同 ϵ 下润湿面积随时间变化如图 4(a) 所示,模拟得到的平均润湿面积随 ϵ 变化如图 4(b) 所示。

图 4(a) 显示的是整个润湿过程开始后不久,润湿面积随着铝液滴与石英玻璃接触面积的扩大而快速增加,随后整个系统趋于稳定,润湿面积保持在某一

特定值附近,与图 2(d)、图 2(e) 和图 2(f) 的润湿图像保持一致。图 4(b) 浸润面积为系统稳定后润湿面积随时间的平均值,从中可以看出,润湿面积随着 ϵ 值的增加呈线性增加。最终,通过系统势能差和润湿面积比值计算不同 ϵ 值下的系统黏附功,如图 5 所示。图 5 显示系统的黏附功随着 ϵ 值呈线性增长,对二者的关系进行线性拟合以定量描述,根据实验上二者的黏附功为 0.844 J/m²,确定 ϵ 为 0.0970 eV。

3.3 焊接模拟的结果

基于上述建立的 SiO₂-SiO₂、铝-SiO₂ 相互作用势函数,模拟石英玻璃和铝的焊接微观过程,其中的铝原子之间的势能函数使用改进的嵌入原子势函数。向铝-

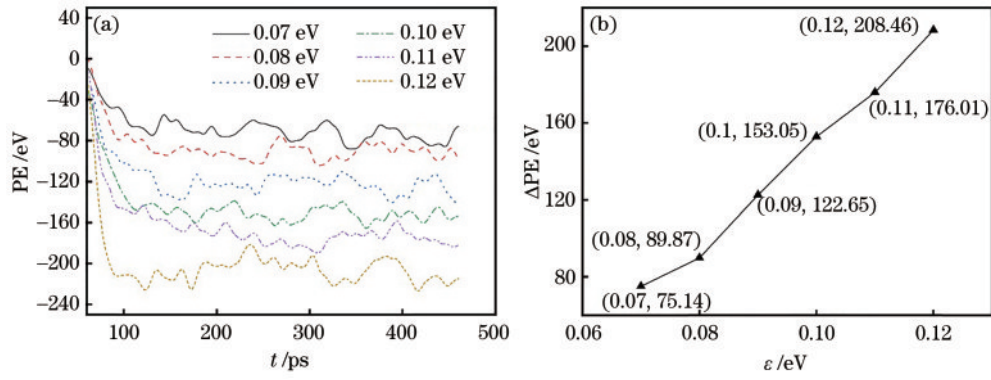


图 3 润湿过程系统势能变化。(a)ε值在 0.07~0.12 eV 下系统势能变化;(b)不同 ε 值下系统势能差变化

Fig. 3 PE change during the wetting process. (a) PE change for different ε values during 0.07–0.12 eV; (b) ΔPE following the change of ε

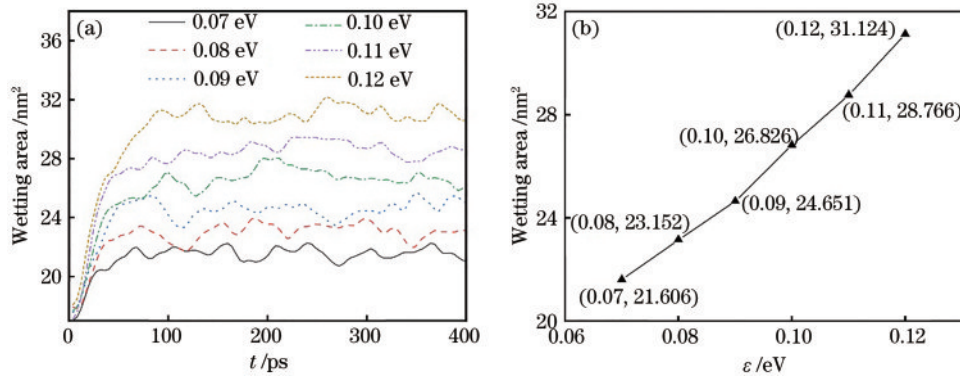


图 4 润湿过程的润湿面积变化。(a)不同 ε 下润湿模拟过程的润湿面积变化;(b)不同 ε 取值对应的润湿面积

Fig. 4 Wetting area variation during the wetting process. (a) Wetting area variation during wetting simulations for different ε; (b) wetting area following the change of ε

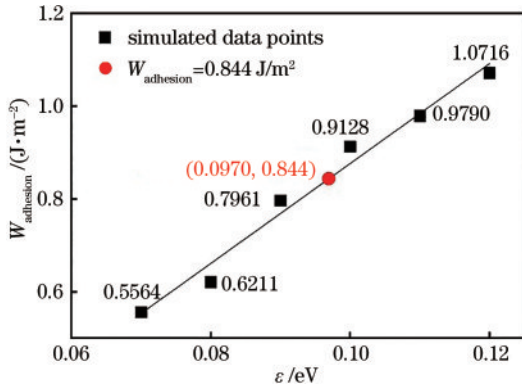


图 5 黏附功的拟合结果

Fig. 5 Fitting result of the work of adhesion

石英玻璃界面施加强度为 $1.0 J/cm^2$ 的 35 fs 激光脉冲, 得到前 30 ps 的粒子演化, 如图 6 所示。

由图 6 可知, 在 1 ps 时, 铝区域完全无序, 这意味着最初的铝内部结构被破坏, 原子在随机剧烈热运动。接下来从 1 ps 到 30 ps, 铝原子产生的应力使得铝原子向石英玻璃内部扩散, 两种材料的界面向石英玻璃一侧移动。在 30 ps 时, 明显可以看出铝原子进入到石英玻璃区域, 而 SiO_2 粒子也进入到铝中, 界面附近的两种粒子由于剧烈的热运动而呈现出扩散趋势。此外,

界面附近的 SiO_2 粒子变得无序, 而距离界面约 10 nm 的 SiO_2 粒子依旧保持有序状态。整个系统空间上温度和应力随时间变化如图 7(a)、图 7(b) 所示。

图 7(a) 显示激光脉冲作用在铝-石英玻璃界面 ($x=0$ nm) 后铝一侧区域温度迅速上升, 温度在长约为 100 nm 的范围内保持稳定, 而石英玻璃一侧区域由于热传导系数较低, 温度上升相对较慢。铝一侧的温度, 在 1~10 ps 迅速从 1000 K 左右增长到 7500 K 左右, 而在 10~30 ps 仅从 7500 K 增长到 10000 K 左右, 温度梯度变化随着时间逐渐降低。在石英玻璃一侧, 在 1~30 ps, 温度稳定增长到 2000 K 左右, 温度梯度变化先增加后减小。随着铝原子的热扩散, 更高能量的铝原子进入到石英玻璃一侧, 整个温度交界处随着铝原子的扩散, 向石英玻璃一侧移动, 温度主要集中在 Al 一侧 100 nm 的深度内。在文献 [17] 中也报道了相似的温度云图仿真结果, 激光作用 transparent overlayer-Ag 的双层结构时, 在皮秒时间尺度内, Ag 温度上升到 9000 K 左右, 温度主要集中在 transparent overlayer-Ag 交界面下 100 nm 深度内。

图 7(b) 显示的是 $y-z$ 平面的法向应力 σ_z 随时间在不同空间上的演化。铝一侧的应力在 1~10 ps, 从 4 GPa

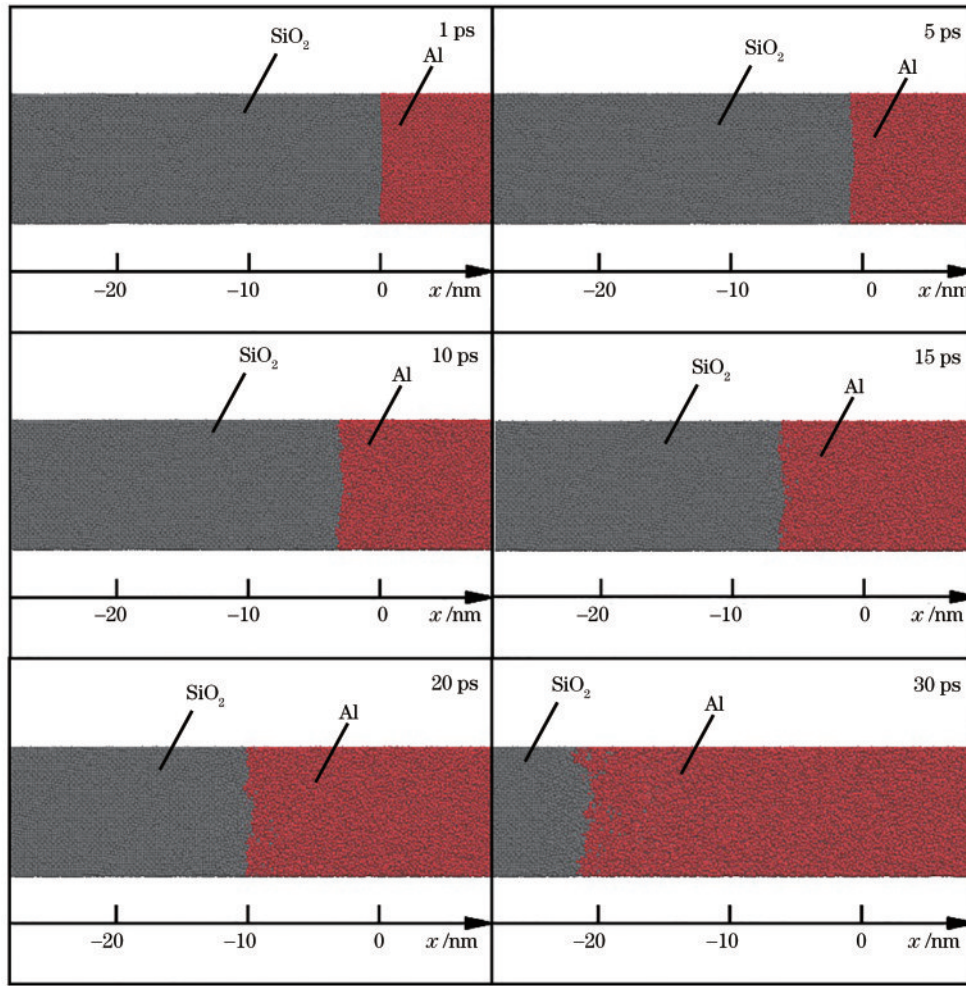


图 6 分子动力学模拟铝-石英玻璃焊接过程图像

Fig. 6 Snapshots of the aluminum-silica glass welding process simulated by molecular dynamics

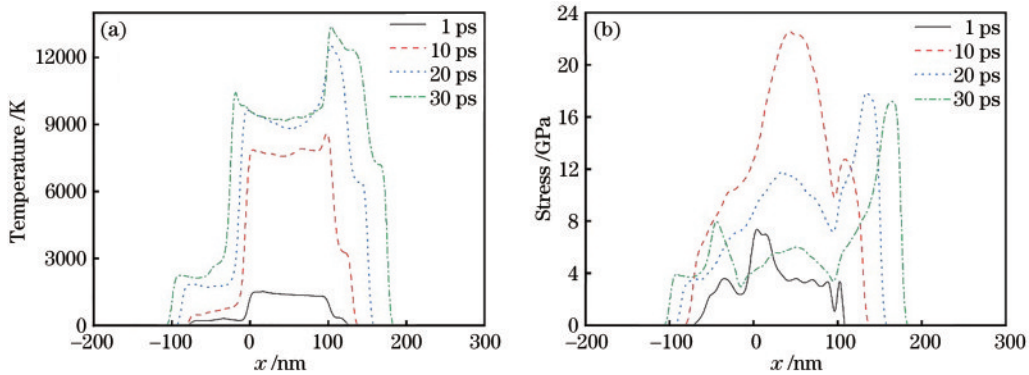


图 7 系统的温度、应力分布。(a)不同演化时间下的系统温度随空间变化;(b)不同演化时间下系统 $y-z$ 平面法向应力随空间变化
Fig. 7 Temperature and stress distribution of the system. (a) Temperature profile of the system at different time; (b) normal stress profile in the $y-z$ plane of the system at different time

迅速增长到 20 GPa, 随后在 10~30 ps, 迅速降低到 5 GPa 左右。在激光作用的一瞬间, 应力梯度非常大, 应力在 10 ps 内迅速变化, 之后应力从 $x=0$ nm 开始向 Al 内部传递并衰减, 在时空上呈现传递特性。与文献 [34] 报道的飞秒激光作用 Al 表面产生的应力波时空传递特性相似, 应力波峰值最高达 15 GPa, 随着向 Al 内部的传递而衰减。而在石英玻璃一侧交界面处, 1~

10 ps, 应力也快速增长到 10 GPa, 随后 10~30 ps 下降到 4 GPa 左右。沿着玻璃内部, 应力从交界面处向石英玻璃内部传递。铝-石英玻璃交界面处存在温度和应力梯度表明两种颗粒正发生剧烈的碰撞和混合。文献 [17] 报道了相近仿真结果, 在激光作用于 transparent overlayer-Ag 交界面后, Ag 内部应力最高可达 30 GPa, 交界两侧温度和应力存在梯度变化。

为了研究铝-SiO₂粒子的混合区域变化,将沿 x 轴方向同时包含铝原子和 SiO₂ 粒子的区域定义为混合区域,来分析焊接过程中焊接区域的微观分子运动,混合区域的长度和中心位置如图 8 所示。由图 8(a)可知,随着时间演化,混合区域一直在扩大,混合速率逐渐变大。在 30 ps 末,混合区域的长度增长到 10 nm。另一方面,随着铝原子不断地向石英玻璃一侧碰撞,混合区域中心向石英玻璃区域移动,在 30 ps 时混合区域

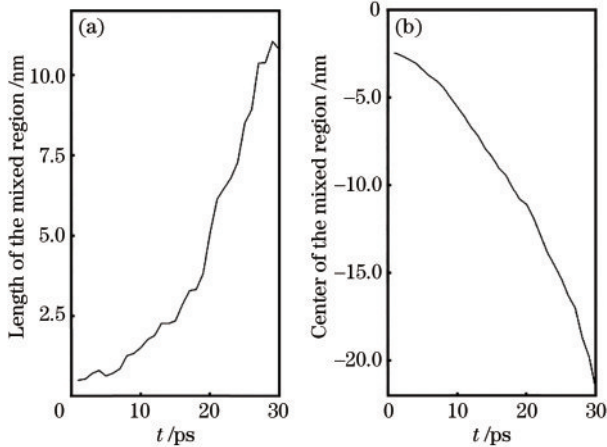


图 8 混合区域几何参数随时间变化。(a)混合区域长度随时间变化;(b)混合区域中心位置随时间变化

Fig. 8 Geometric parameters of the mixed region over time. (a) Length of the mixed region over time; (b) central position of the mixed region over time

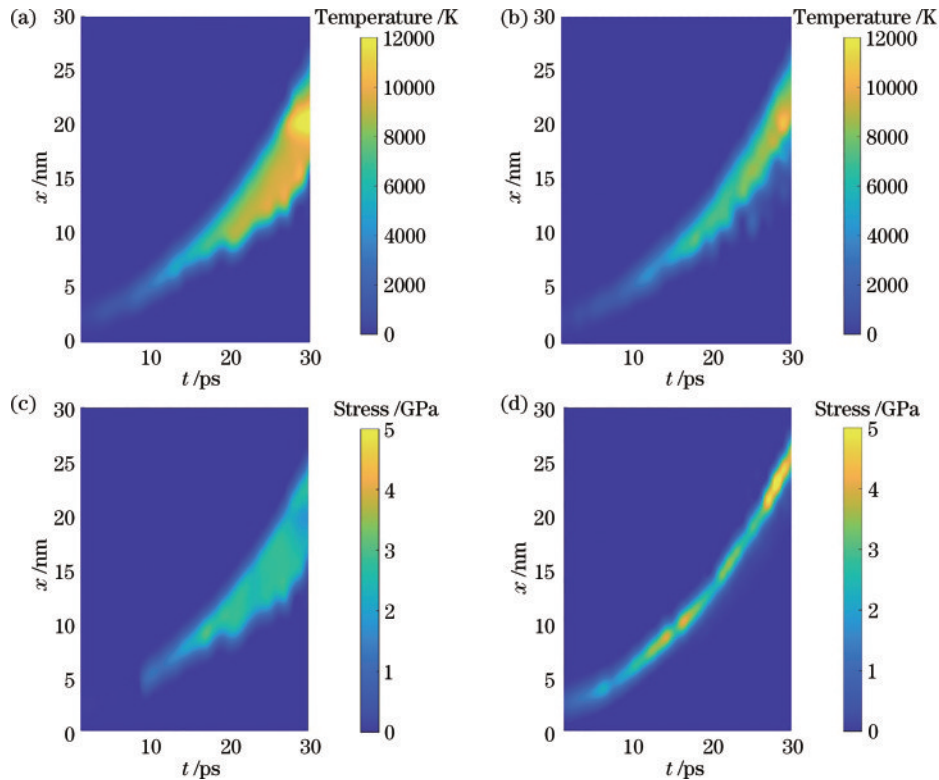


图 9 混合区热力学性质云图。(a)铝原子温度云图;(b)SiO₂温度云图;(c)铝原子应力云图;(d)SiO₂应力云图

Fig. 9 Thermodynamic property contours in the mixed region. (a) Temperature contour plot of aluminum atoms; (b) temperature contour plot of fused silica; (c) stress contour plot of aluminum atoms; (d) stress contour plot of fused silica

中心到了 -20 nm,说明混合区域在玻璃-铝交界处整体向着石英玻璃一侧移动,并逐渐扩大,最终形成大面积混合区,宏观实验上可观察到 SiO₂-Al 的混合区^[9],在其他异质材料焊接中也观察到类似的混合区^[11,13]。为研究混合区原子的状态,混合区域中铝和 SiO₂ 粒子的温度和应力时空分布图如图 9 所示。

很明显由图 9(a)可知,混合区域的温度相当高,达到数千开尔文。激光脉冲作用后 20 ps 时铝原子的温度达到 8000 K,在铝一侧的空间高温区域宽度随着时间逐渐扩展到 10 nm。由图 9(b)可知,混合区域中 SiO₂ 粒子的温度在 20 ps 时达到了 6000 K,在 30 ps 时达到 10000 K,且整个高温区域宽度大约 10 nm,其结果与图 8 结果保持一致。图 9(c)、图 9(d)显示混合区中铝原子部分的应力比 SiO₂ 粒子低,但均达到了 3 GPa 以上,由图中可以看出混合区中高应力的 SiO₂ 粒子都集中在较小的区域内,且偏向石英玻璃一侧,容易在玻璃内部积累应力,产生裂纹,使两种材料连接强度降低。

总之,经过飞秒激光脉冲后,整个模拟系统达到了高能量的非平衡状态。此外,铝中的温度和应力迅速增加到异常高的水平。铝中的能量通过粒子之间的相互碰撞传递给 SiO₂ 粒子。而在界面附近的粒子由于率先吸收激光脉冲能量达到高能状态,导致两材料界面局部产生高温和强应力,从而使得两种粒子在界面附近扩散混合。

4 结 论

构建了一个分子动力学模型,用于模拟飞秒激光作用在铝和石英玻璃界面的分子动力学演变过程。首先,基于玻璃的宏观性质,即单向拉伸模量和熔点,建立了石英玻璃的 LJ 相互作用势函数,确定其中 $\sigma=0.285\text{ nm}$, $\epsilon=0.200\text{ eV}$ 。其次,根据两种材料之间的黏附功,建立了铝和石英玻璃的 LJ 相互作用势。LJ 势函数的参数由 $\sigma=0.2695\text{ nm}$, $\epsilon=0.0970\text{ eV}$ 确定。最后,使用上面计算的参数模拟了小尺寸铝和石英玻璃的超快激光焊接微观过程。根据模拟结果,飞秒激光脉冲发射后,局部超小焊接区瞬时温度高达 10000 K,高温区域大约 10 nm。在两种材料内部,应力高达 20 GPa,在两种材料混合区域,应力均达到了 3 GPa 以上。且在 30 ps 时,更多的铝原子进入到石英玻璃一侧,混合区域中心向着石英玻璃一侧移动,逐渐扩大,最终到了一 20 nm 位置。而后,两种物质的混合区由于相互侵入和高温高压的持续碰撞而不断扩大。这种现象揭示了两种材料结合的扩散机制过程,为超快激光异质材料焊接提供了理论基础。

参 考 文 献

- [1] Chern T S, Tsai H L. Wetting and sealing of interface between 7056 Glass and Kovar alloy[J]. *Materials Chemistry and Physics*, 2007, 104(2/3): 472-478.
- [2] Malfait W J, Klemenčič R, Lang B, et al. Optimized solder alloy for glass-to-metal joints by simultaneous soldering and anodic bonding[J]. *Journal of Materials Processing Technology*, 2016, 236: 176-182.
- [3] Oberhammer J, Niklaus F, Stemme G. Sealing of adhesive bonded devices on wafer level[J]. *Sensors and Actuators A: Physical*, 2004, 110(1/2/3): 407-412.
- [4] Sugiyama S, Kiuchi M, Yanagimoto J. Application of semisolid joining: part 4 glass/metal, plastic/metal, or wood/metal joining[J]. *Journal of Materials Processing Technology*, 2008, 201(1/2/3): 623-628.
- [5] Utsumi A, Ooie T, Yano T, et al. Direct bonding of glass and metal using short pulsed laser[J]. *Journal of Laser Micro/Nanoengineering*, 2007, 2(2): 133-136.
- [6] Ozeki Y, Inoue T, Tamaki T, et al. Direct welding between copper and glass substrates with femtosecond laser pulses[J]. *Applied Physics Express*, 2008, 1: 082601.
- [7] Zhang G D, Cheng G H. Direct welding of glass and metal by 1 kHz femtosecond laser pulses[J]. *Applied Optics*, 2015, 54(30): 8957-8961.
- [8] Carter R M, Troughton M, Chen J Y, et al. Picosecond laser bonding of highly dissimilar materials[J]. *Proceedings of SPIE*, 2016, 9992: 999207.
- [9] Ciuca O P, Carter R M, Prangnell P B, et al. Characterisation of weld zone reactions in dissimilar glass-to-aluminium pulsed picosecond laser welds[J]. *Materials Characterization*, 2016, 120: 53-62.
- [10] Carter R M, Troughton M, Chen J Y, et al. Towards industrial ultrafast laser microwelding: SiO₂ and BK₇ to aluminum alloy[J]. *Applied Optics*, 2017, 56(16): 4873-4881.
- [11] Li P, Xu X W, Tan W S, et al. Improvement of laser transmission welding of glass with titanium alloy by laser surface treatment[J]. *Materials*, 2018, 11(10): 2060.
- [12] 张敏, 陈长军, 邹涛, 等. 激光封接玻璃与可伐合金的抗拉性能及其原理分析[J]. *应用激光*, 2016, 36(4): 421-427. Zhang M, Chen C J, Zou T, et al. Study on tensile strength and mechanism of glass-to-kovar alloy with laser welding[J]. *Applied Laser*, 2016, 36(4): 421-427.
- [13] Zhang G D, Stoian R, Zhao W, et al. Femtosecond laser Bessel beam welding of transparent to non-transparent materials with large focal-position tolerant zone[J]. *Optics Express*, 2018, 26(2): 917-926.
- [14] 吴寒, 张楠, 何森, 等. 氩、铝原子相互作用势的计算及其在飞秒激光烧蚀分子动力学模拟中的应用[J]. *中国激光*, 2016, 43(8): 0802004. Wu H, Zhang N, He M, et al. Calculation of argon-aluminum interatomic potential and its application in molecular dynamics simulation of femtosecond laser ablation[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2016, 43(8): 0802004.
- [15] Cheng C, Wu A Q, Xu X. Molecular dynamics simulation of ultrafast laser ablation of fused silica[J]. *Journal of Physics: Conference Series*, 2007, 59: 100-104.
- [16] 陈冰, 朱卫华, 陈鹏, 等. 分子动力学模拟飞秒激光烧蚀 CuZr 非晶合金的机理[J]. *激光与光电子学进展*, 2015, 52(4): 041406. Chen B, Zhu W H, Chen P, et al. Mechanism of femtosecond laser ablating CuZr amorphous alloy[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2015, 52(4): 041406.
- [17] Karim E T, Shugaev M, Wu C P, et al. Atomistic simulation study of short pulse laser interactions with a metal target under conditions of spatial confinement by a transparent overlayer[J]. *Journal of Applied Physics*, 2014, 115(18): 183501.
- [18] Karim E T, Shugaev M V, Wu C P, et al. Experimental characterization and atomistic modeling of interfacial void formation and detachment in short pulse laser processing of metal surfaces covered by solid transparent overlayers[J]. *Applied Physics A*, 2016, 122(4): 407.
- [19] 孙诗壮, 金春水, 喻波, 等. Mo/Si 原子高能量沉积中反射和再溅射的研究[J]. *光学学报*, 2020, 40(11): 1102001. Sun S Z, Jin C S, Yu B, et al. Reflection and resputtering of Mo/Si atoms during high-energy deposition[J]. *Acta Optica Sinica*, 2020, 40(11): 1102001.
- [20] 吴雪峰, 梅三林. 飞秒激光加工机理及仿真研究进展[J]. *激光与光电子学进展*, 2021, 58(19): 1900005. Wu X F, Mei S L. Research progress in femtosecond laser machining mechanism and simulation analysis[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2021, 58(19): 1900005.
- [21] 侯超剑, 王根旺, 王扬, 等. 激光熔融 SiO₂ 基底上银纳米颗粒分子动力学仿真[J]. *中国激光*, 2021, 48(8): 0802025. Hou C J, Wang G W, Wang Y, et al. Molecular

- dynamics simulation of laser melting of silver nanoparticles on SiO₂ substrate[J]. Chinese Journal of Lasers, 2021, 48(8): 0802025.
- [22] 周榆, 胡永祥. 飞秒激光诱导镍生成纳米液滴双温模型耦合分子动力学模拟[J]. 电加工与模具, 2022(1): 45-50. Zhou Y, Hu Y X. Two temperature model coupling with molecular dynamics simulation of femtosecond laser inducing nickel nano-droplet[J]. Electromachining & Mould, 2022(1): 45-50.
- [23] 牛泽伟, 李凌, 关阳. 飞秒激光照射金纳米颗粒的分子动力学模拟[J]. 上海理工大学学报, 2019, 41(2): 103-107, 148. Niu Z W, Li L, Guan Y. Molecular dynamics simulation of the femtosecond laser melting of Au nanoparticles[J]. Journal of University of Shanghai for Science and Technology, 2019, 41(2): 103-107, 148.
- [24] Plimpton S. Fast parallel algorithms for short-range molecular dynamics[J]. Journal of Computational Physics, 1995, 117(1): 1-19.
- [25] Lennard-Jones J E. Cohesion[J]. Proceedings of the Physical Society, 1931, 43(5): 461-482.
- [26] MatWeb. MatWeb, your source for materials information [EB/OL]. [2022-05-08]. <http://www.matweb.com/index.aspx>.
- [27] de Coninck J, Blake T. Wetting and molecular dynamics simulations of simple liquids[J]. Annual Review of Materials Research, 2008, 38(1): 1-22.
- [28] Campbell C T. Ultrathin metal films and particles on oxide surfaces: structural, electronic and chemisorptive properties[J]. Surface Science Reports, 1997, 27(1/2/3): 1-111.
- [29] Sangiorgi R, Muolo M L, Chatain D, et al. Wettability and work of adhesion of nonreactive liquid metals on silica [J]. Journal of the American Ceramic Society, 1988, 71(9): 742-748.
- [30] Zhakhovskii V V, Inogamov N A, Petrov Y V, et al. Molecular dynamics simulation of femtosecond ablation and spallation with different interatomic potentials[J]. Applied Surface Science, 2009, 255(24): 9592-9596.
- [31] Shugaev M V, Wu C P, Armbruster O, et al. Fundamentals of ultrafast laser-material interaction[J]. MRS Bulletin, 2016, 41(12): 960-968.
- [32] Rutherford A M, Duffy D M. The effect of electron-ion interactions on radiation damage simulations[J]. Journal of Physics: Condensed Matter, 2007, 19(49): 496201.
- [33] Humphrey W, Dalke A, Schulten K. VMD: visual molecular dynamics[J]. Journal of Molecular Graphics, 1996, 14(1): 33-38.
- [34] Starikov S V, Pisarev V V. Atomistic simulation of laser-pulse surface modification: predictions of models with various length and time scales[J]. Journal of Applied Physics, 2015, 117(13): 135901.