热压烧结多颗粒纳米铜聚结行为分子动力学

张 霖[1],郝媛媛[1],宋 娇[1],黄 虎[2]

（1.长春工业大学 机电工程学院,长春 130012;2.吉林大学 机械与航空航天工程学院,长春 130022）

摘 要:纳米铜烧结材料因其优异导电/导热性成为大功率封装核心材料,但其多颗粒原子尺度聚结机制缺乏系统性研究。针对上述不足,研究了基于分子动力学构建多颗粒纳米铜模型,模拟热压烧结过程以揭示聚结行为。研究结果表明,升温过程位错动力学主导颗粒接触演化,诱发Shockley位错网络与位错缠结结构形成;加压促进孔隙由连通态向隔离态演化,其中晶格取向差异型孔隙因动力学迟滞较接触型孔隙难弥合,同时Lomer-Cottrell位错锁形成,HCP相含量增加10.02%。本文研究阐明了多颗粒体系热压烧结的微观动态机制,可为纳米烧结材料工艺优化提供理论依据。

关键词:材料物理与化学;分子动力学;多颗粒纳米铜;热压烧结;聚结行为;位错演化

中图分类号:TG425 **文献标志码**:A **文章编号**:1671-5497(2026)06-1499-13

DOI:10.13229/j.cnki.jdxbgxb.20250312

Molecular dynamics of coalescing behavior of hot-press sintered multi-particle nano-copper

ZHANG Lin[1],HAO Yuan-yuan[1],SONG Jiao[1],HUANG Hu[2]

(1. *School of Mechanical and Electrical Engineering*, *Changchun University of Technology*, *Changchun* 130012, *China*;
2. *School of Mechanical and Aerospace Engineering*, *Jilin University*, *Changchun* 130022, *China*)

Abstract: Nano-copper sintered materials have become core materials for high-power packaging due to their excellent electrical/thermal conductivity, but there is a lack of systematic research on the mechanism of their multi-particle atomic-scale coalescence. This study constructed a model of multi-particle nanoparticle copper based on the molecular dynamics and revealed the coalescence behavior by simulating its hot-pressing sintering process. Results demonstrate that temperature-driven dislocation dynamics dominates particle contact evolution, inducing Shockley partial dislocation networks and dislocation entanglement structures. Pressurization promotes pores evolution from interconnected to isolated states. Among them, lattice orientation difference-type pores are harder to bridge than contact-type pores due to kinetic hysteresis. Concurrently, Lomer-Cottrell dislocation locks form. The HCP phase content increases by 10.02%. These findings elucidate the microscopic mechanisms of hot-press sintering in multi-particle systems and provide a theoretical basis for process optimization of nano-sintered materials.

收稿日期:2025-04-10.

基金项目:国家自然科学基金项目(52305445,22FAA01871);吉林省教育厅科学研究项目(JJKH20250708BS);机械系统与振动全国重点实验室开放基金项目(MSV202412).

作者简介:张霖(1988-),男,教授,博士.研究方向:精密光学加工.E-mail:zhanglin@ccut.edu.cn

Key words: materials physics and chemistry; molecular dynamics; multi-particle nano-copper; hot press sintering; coalescence behavior; dislocation evolution

0 引 言

碳化硅/氮化镓等宽带隙半导体因耐高温、高功率密度用于大功率器件[1,2],但封装可靠性受互连层多场耦合性能制约。传统焊料因低熔点、脆性易热疲劳失效[3];纳米银烧结虽热性能优异,却面临高成本与离子迁移缺陷[4,5];纳米铜材料因兼具银特性与低成本优势备受关注。尽管纳米铜烧结仍面临工艺稳定性与规模化挑战,但其应用前景已引发广泛关注。当前研究围绕纳米铜热压烧结,从颗粒体系优化、原子动力学行为及烧结机制等多尺度展开:Luo等[6]研究表明,调整成分与提高温度可优化电力电子封装中纳米铜的机械性能;Li等[7]发现600 K是铜-铜直接烧结的关键温度,此时表面原子快速运动促使颗粒结构重排,显著降低孔隙率;Abedini等[8]研究则指出,Al-Cu纳米颗粒高温烧结提升屈服强度,而低温下位错滑移为主导机制。已有研究虽阐明铜纳米热压烧结中扩散动力学与单颗粒变形机制,但受限于低维模型(如双粒子或球-板体系),难以揭示多颗粒系统特有的晶界迁移协同效应、位错交互作用网络以及三维孔隙演化等关键科学问题。为此,本研究基于分子动力学模拟方法,构建了多颗粒纳米铜三维烧结模型,并综合运用共邻分析(Common neighbor analysis, CNA)晶格识别技术、位错提取算法(Dislocation extraction algorithm, DXA)对Burgers矢量的定量解析,以及原子均方位移(Mean square displacement, MSD)对扩散机制的动态追踪等手段,系统揭示了多颗粒聚结过程中微观结构的时空演化规律。研究聚焦于多颗粒体系的聚结行为,为纳米烧结材料工艺优化提供理论依据。

1 多颗粒纳米铜热压烧结的建模和方法

1.1 铜颗粒的具体建模

本研究所有模拟均通过大规模原子分子并行模拟器(Large-scale atomic/molecular massively parallel simulator, LAMMPS)[9]完成,并利用OVITO三维可视化软件[10]对原子构型的演化过程进行可视化分析。模型的尺寸设为25 nm×25 nm× 25 nm的立方盒子,初始晶格严格遵循面心立方(Face-centered cubic, FCC)铜的晶体学参数,晶格常数设定为0.361 5 nm。晶体学取向沿笛卡尔坐标系的三轴定向排列:x轴对应〈100〉晶向,y轴对应〈010〉晶向,z轴对应〈001〉晶向。

嵌入原子法(Embedded atom method, EAM)势函数常用于面心立方金属铜热压烧结过程中[11-15],基于此势函数得到Cu的熔点为1 273±30 K,与实验观测值1 358 K较为接近。特别的,EAM势函数在模拟FCC结构金属体系方面具有显著优势,已成功应用于平衡晶格参数、结合能、弹性常数、位错的形成与迁移以及空位形成能等多种物理性质的精确表征[16,17]。其数学表达为:

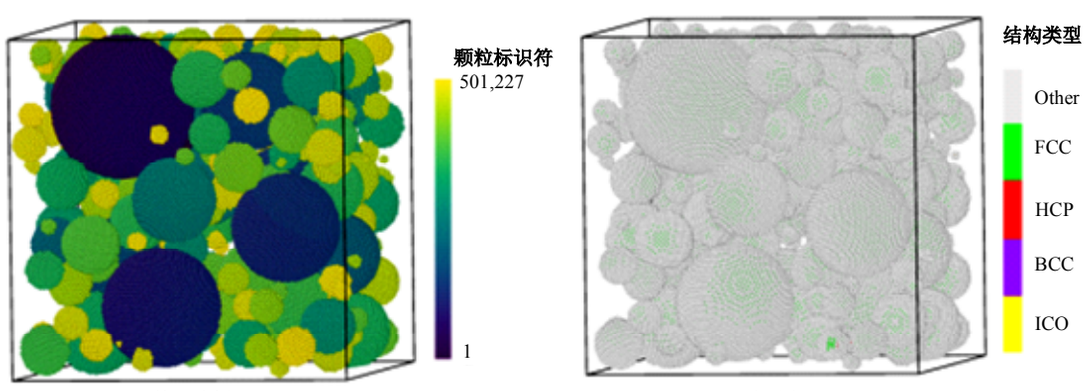


图1 模型初始状态原子构型表征

Fig. 1 Characterization of model initial state atomic configurations

$$E_{\mathrm{tot}}=\sum_i F_i(\rho_{h,i})+\frac{1}{2}\sum_i\sum_{j(\neq i)}\phi_{ij}(R_{ij}) \quad (1)$$

$$\rho_{h,i}=\sum_{j(\neq i)}\rho_j^a(R_{ij}) \quad (2)$$

式中：E_{tot}为体系的总势能，是对所有单个原子能量值求和；$F_i(\rho)$为嵌入原子i进入背景电子密度ρ的能量，反映了原子在不同电子环境下的能量状态。在模拟过程中，当温度变化或外力作用导致原子位置移动时，其局域电子环境随之改变，嵌入能也相应变化。而嵌入能的变化能够驱动铜原子的重新排列和结构演化；$\phi_{ij}(R_{ij})$是距离为R_{ij}的第i个原子与第j个原子之间的对势作用，表示两个铜原子之间的成对相互作用。在外力作用下，原子间距的改变导致两体势变化，同样推动原子的位置调整与结构演化。铜原子间的相互作用是复杂多体效应的体现，不仅包括直接的成对相互作用，还受到周围电子环境的影响。通过嵌入能和两体势的协同作用，EAM势能更全面且准确地描述铜原子在不同条件下的演化行为。

为有效减小边界效应对模拟结果的影响，本研究在x、y、z三个方向均采用周期性边界条件，并对初始结构进行能量最小化处理，以确保模型的稳定性和可靠性。在此基础上，通过随机生成具有不同尺寸、空间位置和晶体取向的单晶铜颗粒，从而更好地模拟实际的微观结构特征。采用正态分布随机生成粒径（均值为4 nm，标准差为1 nm），使颗粒尺寸在3～5 nm范围内随机波动。通过精确控制颗粒生成数量，使初始模型的填充率达到36.5%。为了确保多颗粒纳米铜分布的均匀性并避免原子堆积，在颗粒生成过程中引入了硬球排斥模型。当检测到新生成的颗粒与现有颗粒发生空间重叠时，系统自动终止当前颗粒的生成，从而保证模型的合理性和物理意义。最终，成功构建了一个多颗粒纳米铜热压烧结模型，该模型包含277个颗粒，由501 227个原子构成。图1为模型初始状态原子构型表征，为了更直观地展示模型初始状态，本研究通过颗粒标识符对模型进行了可视化着色，并采用共邻分析的方法对铜FCC结构进行了表征。

1.2　热压烧结流程及温度与压力的动态响应

图2为本研究多颗粒纳米铜热压烧结流程图及表征方法。首先，将铜颗粒置入具有周期性边界条件的仿真箱体中，构建多颗粒分子动力学模型，随后，基于该模型模拟铜的热压烧结过程，研究其微观结构演化。

在本研究的模拟计算过程中，采用等温等压（NPT）系综，设定时间步长为0.001 ps。基于铜热压烧结MD模拟和实验的文献分析，设定以下参数范围以确保物理合理性与领域一致性。烧结压力范围（0～1 GPa）：参照前期铜热压烧结模拟压力区间（0～2 GPa）[18,19]，选定0～1 GPa为模拟适用子域，并以几何中心点0.5 GPa表征中等压力下的聚结行为。烧结温度范围（300～1 100 K）：涵盖室温初始态（300 K）至近熔点（1 100 K（$0.8T_{\mathrm{m}}$，T_{m}为纳米颗粒的熔点）），避免熔化的同时激活扩散，其中选定875 K（约$0.65T_{\mathrm{m}}$）作为中间温度分析烧结行为，类似的温度设计在前期铜热压烧结模拟和实验中已被使用[20,21]。根据温度和压力的变化，将其热压烧结过程划分为4个阶段：阶段I升温阶段（0 GPa，300～875 K）；阶段II中间加压阶段（875 K，0～0.5 GPa）；阶段III最终升温加压阶段（0.5 GPa，875～1 100 K；1 100 K，0.5～1 GPa；1 100 K和1 GPa保持）；阶段IV冷却

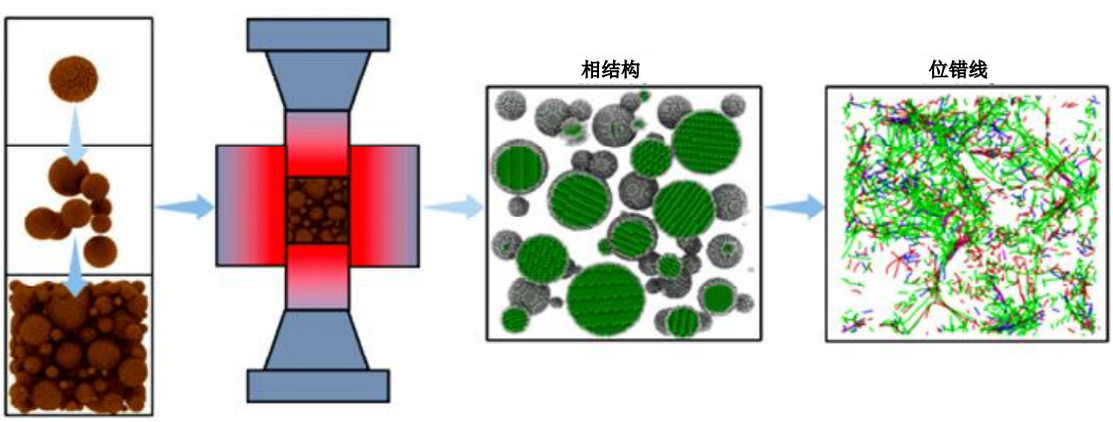


图2　多颗粒纳米铜热压烧结流程图及表征方法

Fig. 2　Flow chart and characterization of hot press sintering of multi-particle nano-copper

降压阶段(1 100～875 K,1～0.5 GPa;875～300 K,0.5～0 GPa;0 GPa,300 K保持)。通过这种划分,可以系统地研究不同条件下铜颗粒的微观结构演变。图3为热压烧结中温度与压力的施加流程。图3中各阶段达到平衡的核心判定标准为达到设定的温度和压力目标值,且该阶段需保持稳定的参数需在指定范围内波动(温度±5 K,压力±0.02 GPa)。具体表现为:阶段Ⅰ温度达到设定值875 K,同时压力保持0 GPa稳定(波动范围±0.02 GPa);阶段Ⅱ压力达到设定值0.5 GPa,同时温度维持875 K稳定(波动范围±5 K);阶段Ⅲ温度保持1100 K稳定(波动范围±5 K)),同时压力保持1 GPa稳定(波动范围±0.02 GPa);阶段Ⅳ温度保持300 K稳定(波动范围±5 K),同时压力保持0 GPa稳定(波动范围±0.02 GPa)。

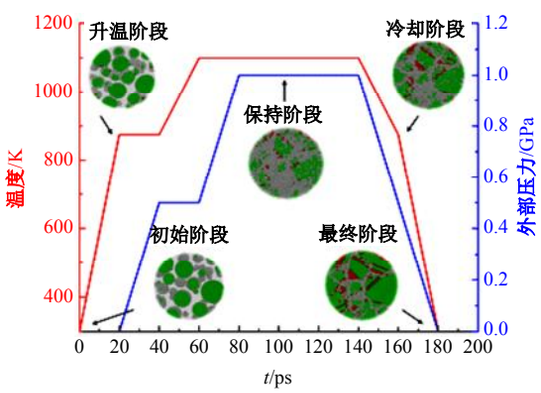


图3 热压烧结中温度与压力的施加流程

Fig. 3 Flow chart of temperature and pressure application in hot press sintering

1.3 分析方法

为表征热压烧结过程中原子的运动特征,本研究采用均方位移(Mean square displacement, MSD)方法进行定量分析[22]。MSD的计算公式如下:

$$\mathrm{MSD}=\frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}\left[r_i(t+\triangle t)-r_i(t)\right]^2 \tag{3}$$

$$D=\lim_{t\to\infty}\frac{\mathrm{MSD}(t)}{6t} \tag{4}$$

式中:$r_i(t)$为第i个原子在t时刻的空间位置矢量;N为体系中原子的总数;Δt为分子动力学模拟的时间步长;D为原子扩散系数。

本研究采用CNA和DXA方法表征铜颗粒微观结构的演变。CNA通过解析原子对及其近邻原子的键合拓扑关系,能够准确识别面心立方、密排六方(Hexagonal close-packed, HCP)、体心立方(Body-centered cubic, BCC)等晶体结构,同时表征晶界、相界及非晶相等缺陷结构[23]。DXA方法用于分析位错演化机制,能够自动识别位错网络并精确测定伯氏矢量(Burgers vector),为研究热压烧结及其变形过程中的位错行为提供定量依据[24]。在使用CNA和DXA方法之前,需要预先设定截止半径(r_{cut}),其取值由径向分布函数(Radial distribution function, RDF)的第一个峰谷位置确定[25]。对于FCC结构,其截止半径计算式如下:

$$r_{\mathrm{cut}}^{\mathrm{fcc}}=\frac{1}{2}\left(\sqrt{\frac{1}{2}}+1\right)a_{\mathrm{fcc}}\simeq 0.854a_{\mathrm{fcc}} \tag{5}$$

式中:a_{fcc}为FCC结构的晶格常数。本研究中,铜原子的截止半径设定为0.308 nm。

2 结果与分析

2.1 多颗粒纳米铜在热压烧结中的颗粒演化

为了更清晰地描述多颗粒纳米铜在热压烧结过程中颗粒演化的动态演变规律,本研究选取$(00\bar{1})$晶面进行深入分析。

图4(a)(b)(c)为在压力0 GPa、温度从300 K升至687 K时多颗粒纳米铜演化过程。铜颗粒呈现两种典型分布状态:如图4(a)中的区域Ⅰ和Ⅱ所示,区域Ⅰ的颗粒以孤立状态分布,彼此间未形成直接接触;而区域Ⅱ的颗粒则通过点接触形成早期颈部结构,这是颗粒聚集的初始特征。随着温度升至501 K,如图4(b)所示,区域Ⅰ中原本孤立的颗粒通过原子扩散形成新接触,而区域Ⅱ中已有的点接触则进一步演化为表面接触,这种转变主要源于颗粒进入表面力场的作用范围,引发颗粒间的接触、结合以及结构重排。当温度达到687 K,如图4(c)的区域Ⅱ所示,Ⅱ中颗粒间的接触进一步扩大,原子扩散活动更加显著。

图4(d)(e)(f)为较大多颗粒纳米铜的颗粒边界变化过程。在444 K时,大部分颗粒边界与初始状态基本一致,如图4(d)所示,表明此时原子运动所需的活化能尚未达到临界值,这与Zhu等[26]的研究相一致,即初始接触面积随温度升高而增大。随着温度的持续升高,如图4(f)所示,颗粒边界进一步扩展,表明原子扩散速率加快,颗粒间接触面积显著增加。与300 K的初始状态相比,阶段Ⅰ结束时模型的体积缩小36.9%,表现出了热压烧结过程中温度对铜颗粒致密化的显著效果。

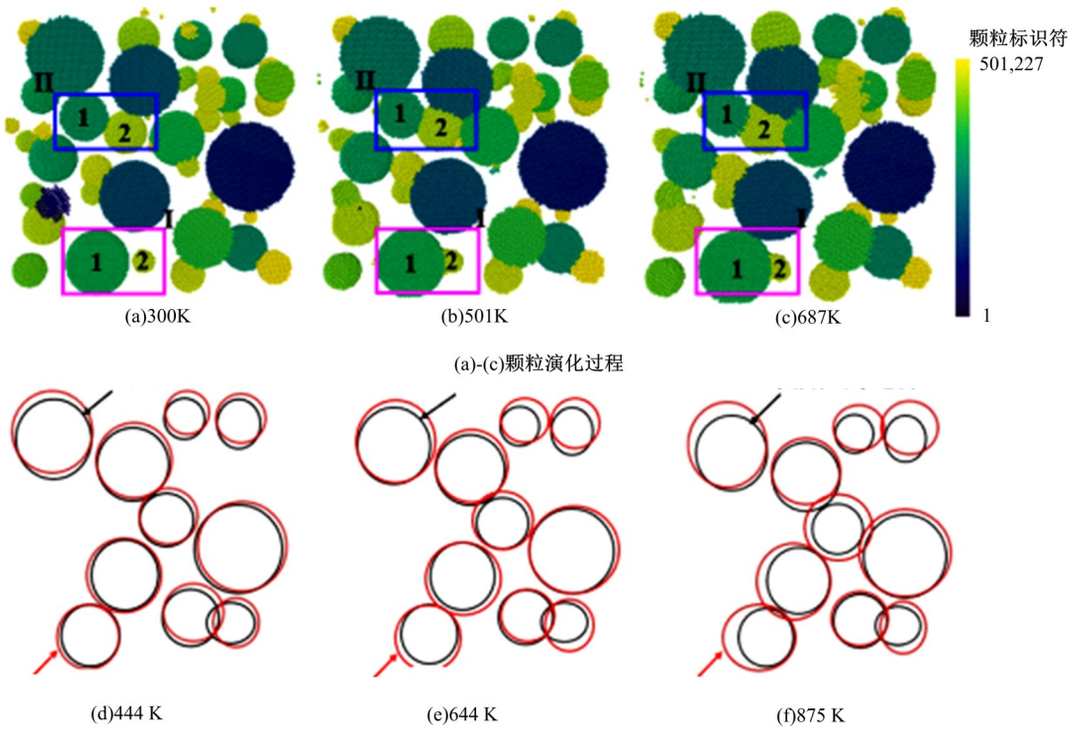


图 4　压力为 0 GPa，温度从 300 K 升至 687 K 时多颗粒纳米铜的颗粒演化及较大颗粒边界变化过程

Fig. 4　Particle evolution and larger particle boundary change process of multi-particle nano-copper under 0 GPa pressure with temperature rising from 300 K to 687 K

图 5 为在热压温度 875 K 下，压力从 0 升至 0.5 GPa 过程中多颗粒纳米铜孔隙的演变过程。施加压力显著促进该阶段的致密化过程，其机制可划分为两个特征鲜明的阶段：连通孔阶段和相隔离孔阶段。在连通孔阶段，如图 5(a)中的区域Ⅰ和Ⅱ所示，未施加压力时，颗粒内部的孔隙仍保持相互连通状态。在相隔离孔阶段，如图 5(b)(c)(d)所示，随着压力增加至 0.5 GPa，颗粒接触面持续扩展，促使球形颗粒向多边形结构转变，同时固-气比表面积迅速减小，晶界处形成孤立气孔。颗粒聚集体逐渐演变为晶粒聚集体，表明颗粒边界转化为晶界结构。最终，晶界处孔隙不断缩小，如图 5(d)所示，铜致密化程度显著提升。模拟数据显示，压力作用下模型体积缩减率达 55.54%，证实了增大接触面积与降低孔隙率是压力加速致密化的核心机制。

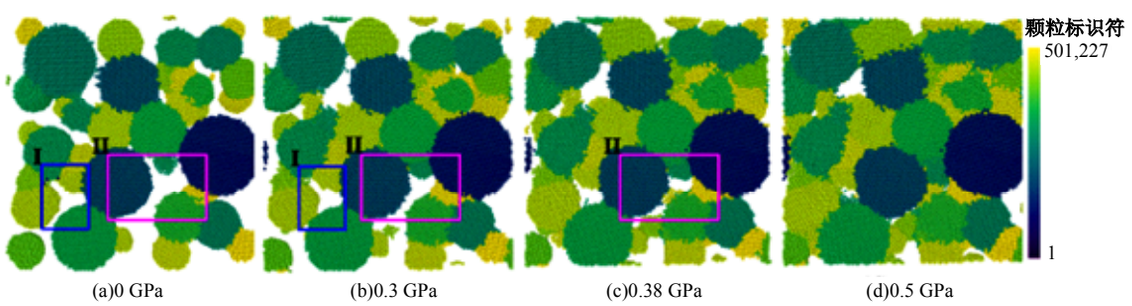


图 5　在热压温度 875 K 下，压力从 0 升至 0.5 GPa 过程中多颗粒纳米铜孔隙演变过程

Fig. 5　Pores evolution in multi-particle nano-copper during pressure rising from 0 to 0. 5 GPa at hot pressing temperature 875 K

图 6 为阶段Ⅲ和Ⅳ多颗粒纳米铜的颗粒演变过程。在 1 100 K 温度、0.5 GPa 压力的条件下，如图 6(a)所示，热压烧结体内部仍存在孔隙缺陷，表明当前热压参数尚未实现完全致密化。当温度保持 1 100 K、压力升至 1 GPa 时，如图 6(b)所示，孔隙缺陷被完全消除，晶界结构变得清晰可

见,展现出致密化现象。最终,铜样品呈现出优异的致密化特征,如图6(e)所示,模型体积收缩率达到60.48%。这一结果表明,在优化条件下(1 100 K、1 GPa),热压烧结体实现了高度致密化,孔隙缺陷的消除和晶界结构的清晰化进一步验证了致密化的有效性。

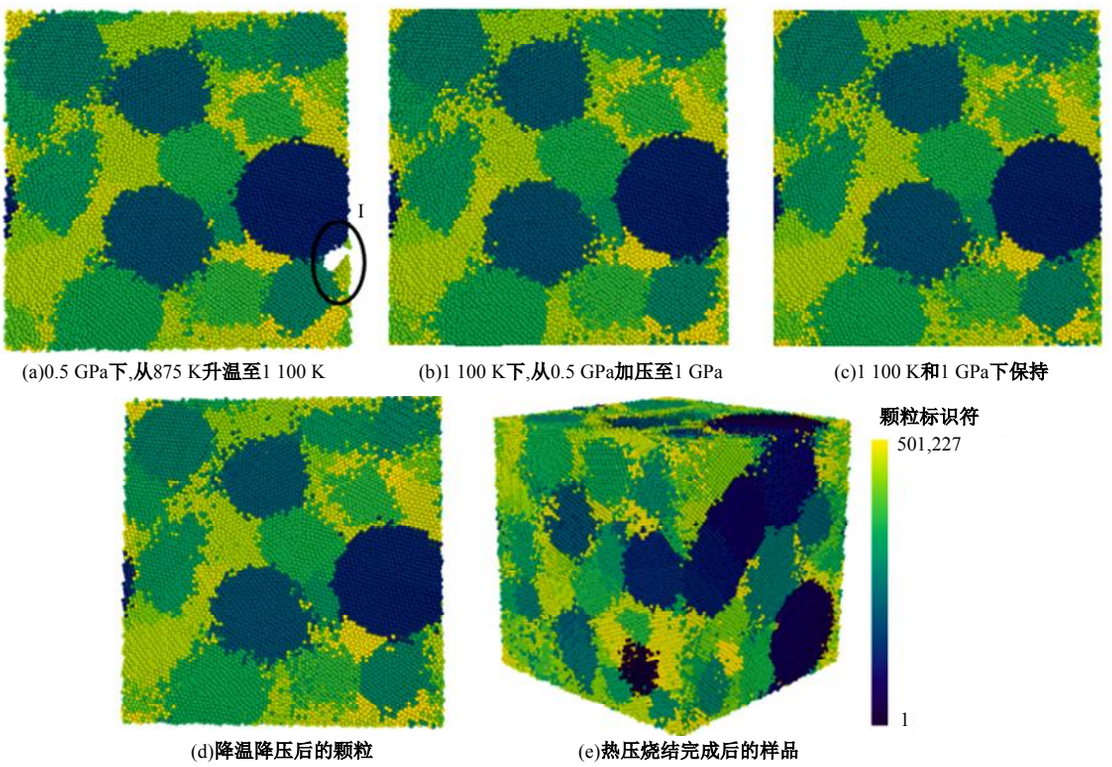


图6 阶段Ⅲ和Ⅳ多颗粒纳米铜的颗粒演变过程

Fig. 6 Particle evolution in stage III and IV of multi-particulate nano-copper

根据连通性可将孔隙划分为连通孔与孤立孔两类。孤立孔指被完全包裹且不与体系外部空间或其他孔隙连通的空腔,其形态类似于孤立气泡。连通孔则形成相互连接的孔道网络,延伸至体系边界(或模拟盒子边界)。图7展示了热压烧结过程中孔隙结构的动态演变。在烧结初期(300 K),体系内存在高密度的相互连通孔隙(该现象与图4(a)所示的二维孔隙形貌特征一致),且以连通孔为主。随着烧结进行,初始大尺寸孔隙区域持续收缩并碎片化(图7(f)清晰展示了此趋势),同时观察到孤立孔隙。最终,在1 GPa压力和1 100 K温度条件下,孔隙被完全消除。图8的孔隙表面积随时间的变化曲线同步佐证该过程:随烧结推进,表面积持续衰减,并于80 ps趋零,标志孔隙彻底消失。孔隙的比例影响铜的致密化,孔隙比例越大致密化越差,此规律在图7的形态演变中得以验证。

2.2 多颗粒纳米铜在热压烧结中的聚结动力学

为进一步深入探究多颗粒纳米铜热压烧结过程,通过选取具有高晶界密度的$(00\bar{1})$晶面作为特征观测面,结合位错密度场重构与层错能定量分析,系统揭示了多颗粒纳米铜热压烧结的微观结构动态演化机制。

如图9所示,整个热压烧结过程中原子均方位移、相结构含量和位错密度的演变分别呈现为图9(a)(b)(c)。3个图中的区域划分与烧结过程的4个阶段相对应:A区对应阶段I,B区对应阶段II,C、D、E区对应阶段III,而F、G、H区则对应阶段IV。通过这种分阶段的分析,可以清晰地观察到微观结构在不同烧结阶段的动态变化特征及其内在机制。

图10为升温阶段I的微观结构和位错演化过程。从图10(a)(b)(c)可以观察到,颗粒接触形貌经历3个特征演化期:(Ⅰ)点接触期(见图10(a)),表面原子通过热振动诱导的跳跃扩散形成初始接触;(Ⅱ)表面接触期(见图10(b)),颗粒间从初始点接触逐渐发展为表面接触,诱发局部应力集中,驱动颈部形成和Shockley不全位错的产生;(Ⅲ)颈部形成期(见图10(c)),颈部进一步生

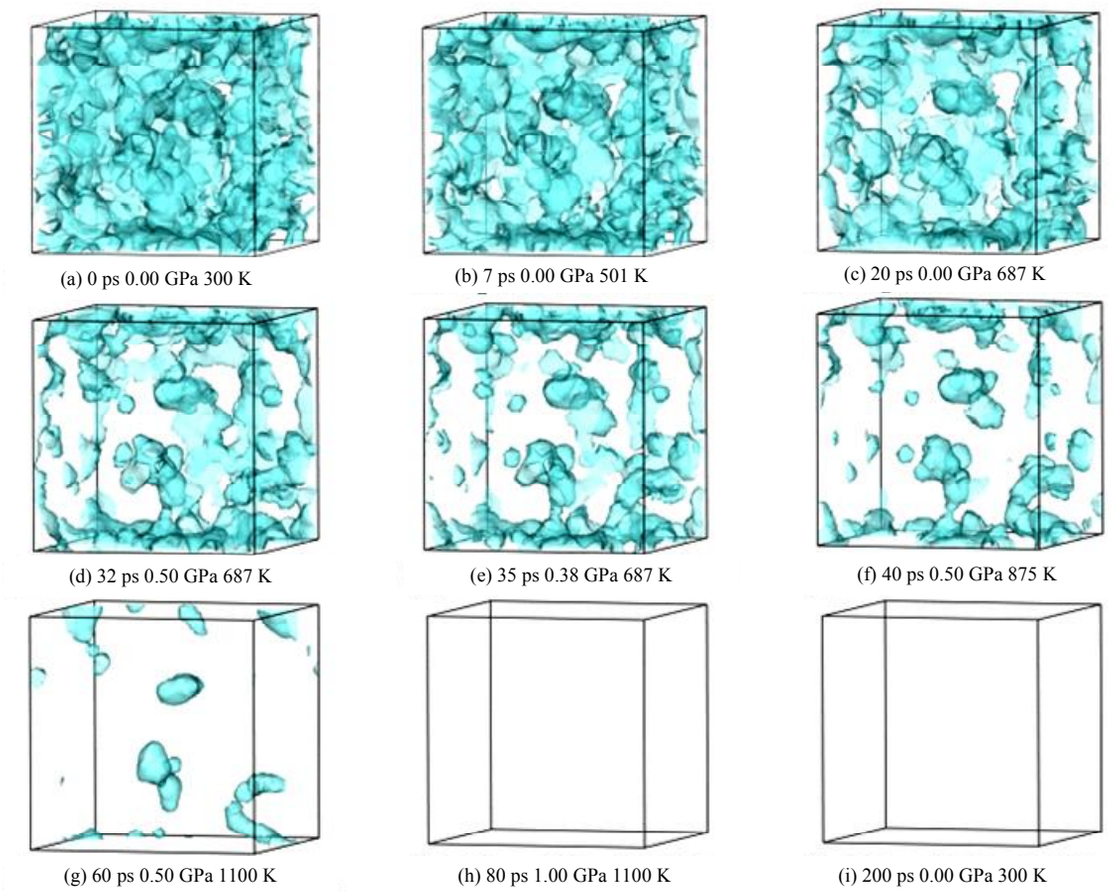


图 7　热压烧结过程中孔隙的演化过程

Fig. 7　Evolution of pores during hot pressing sintering

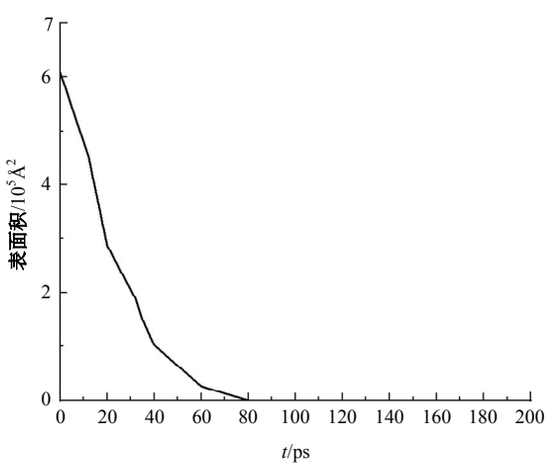
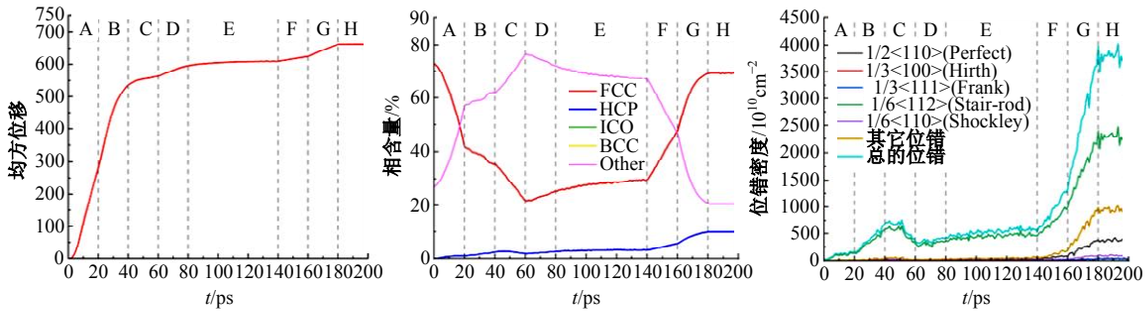


图 8　孔隙表面积随烧结时间的变化

Fig. 8　Change in pore surface area with sintering time

长,位错密度升高引发HCP相变并形成内在堆垛结构。需特别说明的是,HCP相变结构中不同层错类型的判定标准:单个紧密排列的六边形层对应于孪晶界(Twin boundary, TB);两个相邻HCP层代表内在堆垛层错(Intrinsic stacking fault, ISF);两个HCP层插入一个FCC层则形成外在堆垛层错(Extrinsic stacking fault, ESF)[27,28]。值得注意的是,ISF主要形成于颗粒内部,如图10(c)中的区域II所示。

从扩散行为的角度分析,图9(a)中的均方位移曲线定量揭示了铜原子的传质机制。在A区(阶段Ⅰ)中,MSD曲线呈现出较大的斜率,表明表面扩散在该阶段占主导地位。另外,由于铜作为典型的FCC结构金属,其层错能(Stacking fault energy, SFE)较低,因此在加热、压紧或塑性变形[29]等热力学或机械刺激作用下,FCC结构与HCP结构之间容易发生相互转化。基于这一特性,图9(b)和9(c)分别展示了相结构含量及位错密度随热压烧结过程的演变规律。根据图9(b)的定量分析,A区中FCC含量为73%,其余27%为其他结构。然而,随着温度升高,原子获得足够能量脱离其原有晶体结构,导致部分FCC结构向非晶结构和HCP结构转变。具体表现为HCP结构含量上升1%,其他结构含量上升30.1%,而FCC结构含量下降31.2%。

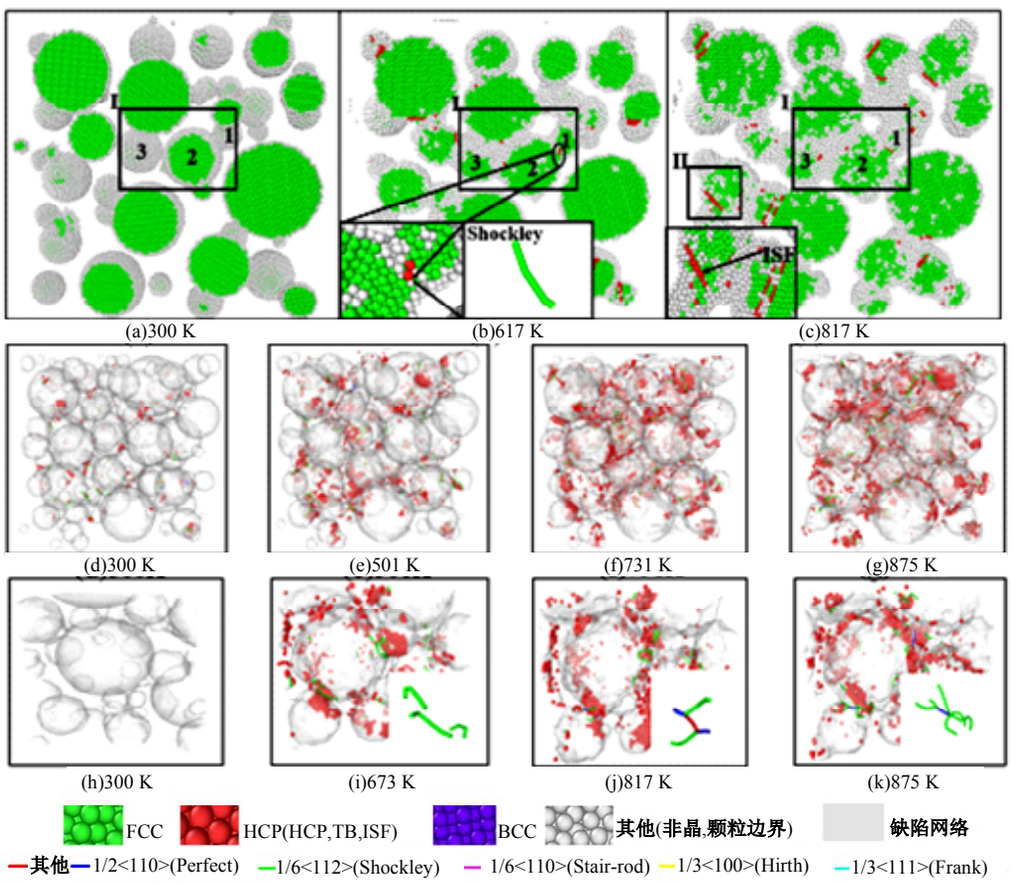


(a)原子均方位移变化 (b)相结构含量的变化 (c)位错密度演化趋势

A区对应阶段I，B区对应阶段II，C、D、E区对应阶段III，F、G、H区对应阶段IV

图 9 热压烧结过程中均方位移、相结构含量和位错密度的演变

Fig. 9 Mean square displacement, phase content and dislocation density evolution during hot press sintering



(a)~(c)微观结构演化过程；(d)~(k)位错演化(图中TB为孪晶界,ISF是内在堆垛层错)

图 10 阶段 I 的微观结构和位错演化过程(图中 TB 为孪晶界,ISF 是内在堆垛层错)

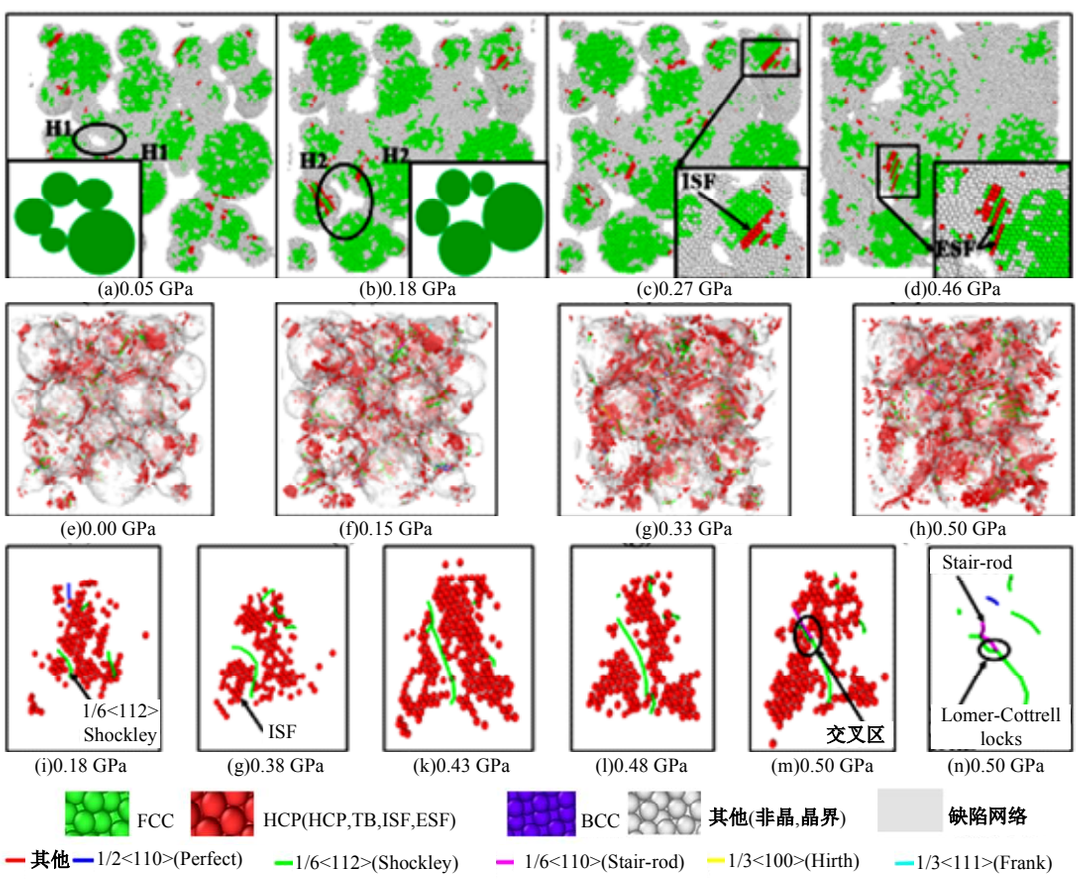
Fig. 10 Microstructure and dislocation evolution in stage I(In the figures, TB is the twin boundary, and ISF is the intrinsic stacking fault)

位错演化分析进一步揭示了微观结构演变机制,从图 10(d)~10(k)位错演化的角度分析,当颗粒在边界处因颗粒碰撞产生的局部应力超过临界分解剪应力时,位错开始在晶格中滑移。在此过程中,相互接触的颗粒通过旋转或重新排列来降低晶界能量,当接触颗粒的晶体取向趋于一致时,颗粒边界在接触区域逐渐消失,颗粒开始融合。同时,在颗粒的接触区观察到层错和位错的形成。在位错的演化过程中,缠结位错(主要包括 1/2〈110〉Perfect 位错和 1/6〈112〉Shockley 位错)逐渐成为阻碍进一步滑移的新障碍,如图 10(h)~10(k)所示。在图 9(c)的 A 区中,1/6〈112〉

Shockley 位错占主导地位，且该阶段 1/6〈112〉Shockley 位错密度与总位错密度几乎相同。

综上所述，烧结初期（阶段Ⅰ）的热压烧结过程主要呈现以下特征：随着温度的升高，铜颗粒间的接触模式由初始的点接触逐渐转变为颈部的形成。在此过程中，表面扩散在初期占主导地位，且 FCC 结构向非晶结构和 HCP 结构转变。在位错演化中，Shockley 位错在初期占主导地位。

图 11 为中间加压阶段Ⅱ的微观结构和位错演化过程。从图 11(a)～11(d)可以观察到，随着压力从 0.05 GPa 增至 0.46 GPa，颗粒接触区域进一步扩大，颗粒发生聚集，并在此过程中观察到 ISF 和 ESF 的形成。颈部形成产生的附加表面自由能驱动原子通过扩散机制向颈区迁移，实现孔隙填充[30]。此外，外界压力和塑性变形的耦合作用加速了孔隙的填充过程[31]。



(a)~(d)微观结构演化过程；(e)~(n)位错演化(图中TB为孪晶界，ISF为内在堆垛层错,ESF为外在堆垛层错)

图 11　阶段Ⅱ的微观结构和位错演化过程

Fig. 11　Microstructure and dislocation evolution in Stage Ⅱ (In the figures, TB is the twin boundary, ISF is the intrinsic stacking fault and ESF is the extrinsic stacking fault)

从孔隙结构演变的角度分析，观察到两种典型的孔隙结构：第一种孔隙（H1）是由 5、6 个颗粒相互接触形成，如图 11(a)所示，这类孔隙可通过外部压力和塑性流动实现快速填充，从而在热压烧结过程中被有效消除；第二种孔隙（H2）是由于颗粒取向错误导致的，由于这些孔隙尺寸较大，即使在外加压力作用下，表面扩散和塑性流动机制仍难以在短时间实现孔隙的快速有效填充，如图 11(b)～11(d)所示。

从位错演化的角度分析，压力作用促进了颗粒的聚集，并在晶界和晶粒内部产生了大量孪晶、堆垛层错和 HCP 相，如图 11(e)～11(h)所示。值得注意的是，移动中的层错受到不可动位错的阻滞作用，可滑移位错的一端与不可滑移位错相互连接，形成了具有阶梯状特征的位错结构，即 Lomer-Cottrell 位错锁，如图 11(i)～11(n)所示。形成阶梯位错的反应如下：

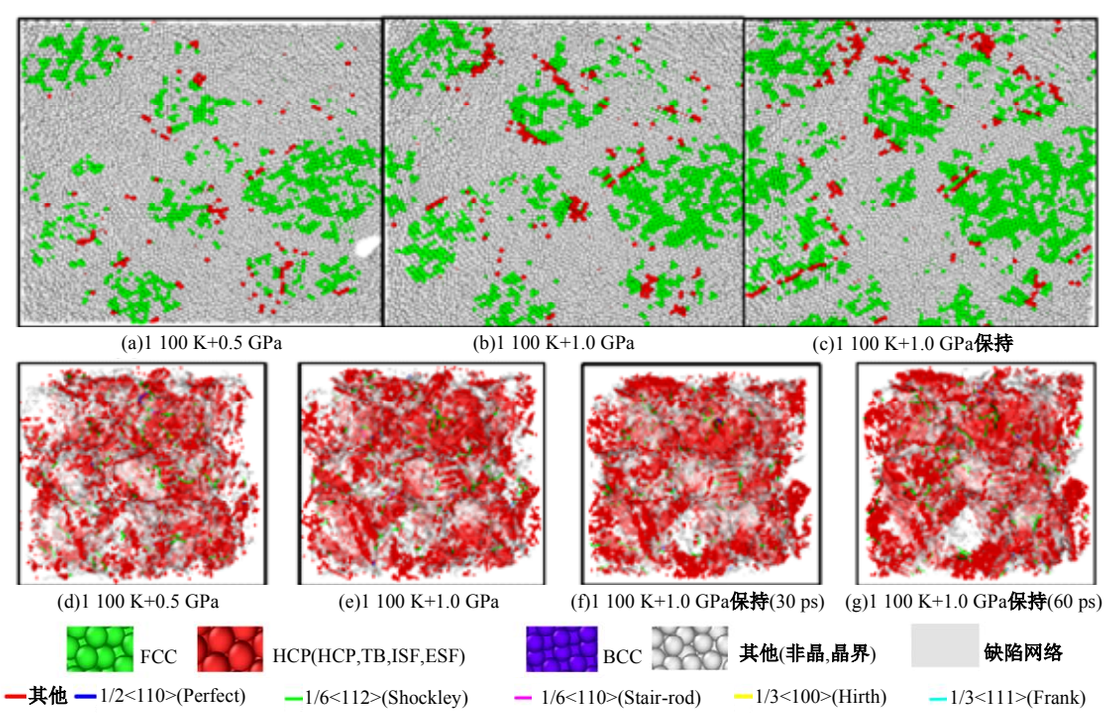
$$\frac{a}{6}[2\bar{1}1]+\frac{a}{6}[2\overline{\bar{1}1}]\rightarrow\frac{a}{6}[110] \qquad (6)$$

$$\frac{a}{6}[1\bar{2}\bar{1}]+\frac{a}{6}[\bar{2}11]\rightarrow\frac{a}{6}[\bar{1}\bar{1}0] \tag{7}$$

综上所述,中间加压阶段Ⅱ的微观结构演变特征充分体现了压力对铜颗粒致密化过程的多重作用机制。压力的增加不仅促进了颗粒接触区域的扩大和孔隙的填充,还通过位错演化形成了Lomer-Cottrell位错锁。

图12为最终升温升压阶段Ⅲ的微观结构和位错演化过程。从图12(a)(b)可以观察到,多颗粒纳米铜体系经历显著的结构优化:在温度为1 100 K、压力为0.5 GPa的条件下,多颗粒纳米铜体系内的孔隙缺陷减少,但并未完全消除;然而,当温度保持在1 100 K、压力从0.5 GPa提升至1 GPa时,残余孔隙被完全消除,标志着烧结体达到高度致密化状态。在随后的1 100 K和1 GPa恒温恒压保持过程中,通过对照图9(b)中相结构演变曲线的定量分析显示,FCC结构含量增加4.3%,其他结构含量减少4.8%,而HCP结构则保持相对稳定,最终其含量稳定在3.2%左右(包括HCP相、孪晶、内在堆垛层错和外在堆垛层错),这一转变表明其他结构在该过程主要转变为FCC结构。图12(d)~12(g)的位错演变快照清晰展示了HCP相及位错的动态演变过程,其中位错和孪晶主要富集于晶界区域。

综上所述,最终升温升压阶段Ⅲ随着压力的增加,铜颗粒的孔隙被完全消除,同时FCC结构含量增加,而HCP结构保持稳定(约3.2%),位错和孪晶富集于晶界区域。



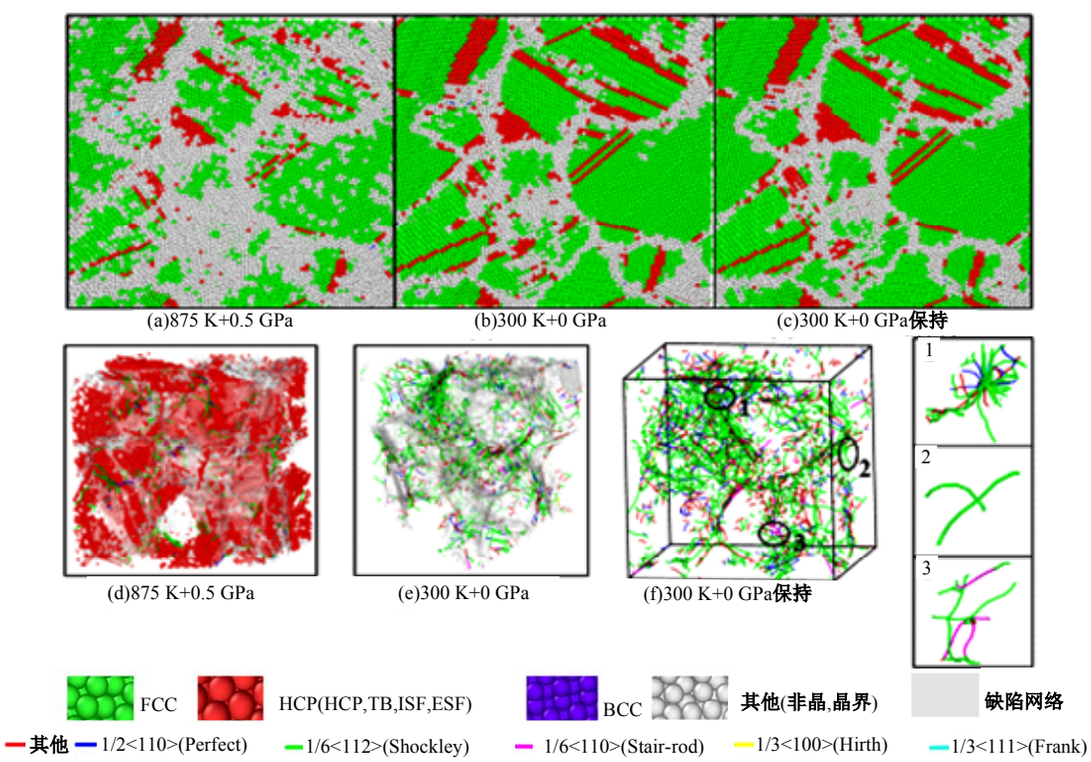
(a)~(c)微观结构演化过程;(d)~(g)位错演化(图中TB为孪晶界,ISF为内在堆垛层错,ESF为外在堆垛层错)

图12 阶段Ⅲ的微观结构和位错演化过程(图中TB为孪晶界,ISF为内在堆垛层错,ESF为外在堆垛层错)

Fig. 12 Microstructure and dislocation evolution in stage III(In the figures, TB is the twin boundary, ISF is the intrinsic stacking fault and ESF is the extrinsic stacking fault)

图13为冷却降压阶段Ⅳ的微观结构和位错演化过程,从图13(a)(b)可以观察到,体系微观结构演化呈现显著相重构特征:随着其他结构区域减少,FCC和HCP结构区域呈现增加趋势,这一演化特征与图9(b)中F区和G区的相含量变化相互印证。对铜颗粒在300 K保温阶段的微观结构进行定量表征,如图9(b)中的H区所示,发现在此阶段各相组成保持相对稳定,表明铜在热压烧结后期达到了结构平衡状态。具体相分析结果显示,FCC结构的含量为69.29%,较初始含量降低3.71%,其他结构(包括晶界和非晶相)的总含量为20.69%,较初始含量降低6.13%,而HCP含量增加10.02%。这种相结构变化特征表明铜在热压烧结过程中发生结构重组与相变,具体表

现为部分FCC结构和其他结构转变为HCP结构。最终烧结产物的微观结构特征，如图13(c)所示，晶粒是由多个颗粒聚集而成，通过相结构分析可见，原始面心立方铜发生多相转变，即观察到许多晶界(Other)和退火孪晶界(HCP)，该现象也得到了Feng等[20]的观察支持。进一步观察图9(c)中H区域的位错密度可以发现，热压烧结体的位错密度显著增加，这一现象主要归因于HCP结构的形成。此外，在晶界区域观察到众多的位错缠结，如图13(f)所示，包括由1/6〈112〉Shockley位错、1/3〈111〉Frank位错、1/2〈110〉Perfect位错和1/3〈100〉Hirth位错形成的复杂位错缠结(见图13(f)中1)；1/6〈112〉Shockley位错之间的互相缠结结构(见图13(f)中2)；以及由1/6〈112〉Shockley部分位错和1/6〈110〉Stair-rod位错形成的Lomer-Cottrell位错锁(见图13(f)中3)。这些位错缠结结构通过位错相互作用机制可以提高铜的加工硬化率。综上，铜晶粒是由多个颗粒聚集而成，同时伴随着由部分FCC结构和其他结构形成的HCP结构，导致烧结体中位错密度显著增加，在晶界区域观察到的大量位错缠结有助于提高铜加工硬化率。



(a)~(c)微观结构演化过程；(d)~(f)位错演化(图中TB是孪晶边界，ISF内在堆垛堆叠层错，ESF是外在堆垛层错)

图13　阶段Ⅳ的微观结构和位错演化过程(图中TB是孪晶边界，ISF内在堆垛堆叠层错，ESF是外在堆垛层错)

Fig. 13　Microstructure and dislocation evolution in Stage Ⅳ(In the figures, TB is the twin boundary, ISF is the intrinsic stacking fault and ESF is the extrinsic stacking fault.)

根据温度和压力的变化，将铜热压烧结过程划分为4个阶段，分析得到升温阶段(I)通过原子扩散触发烧结颈形成与相变；中间加压阶段(II)耦合塑性变形加速孔隙填充；最终升温升压阶段(III)主导孔隙闭合与晶粒融合；冷却降压阶段(IV)形成了多种位错缠结结构。温度-压力协同作用通过调控扩散机制与位错动态，驱动多尺度结构定向演化。

Du等[11]利用旋进电子衍射(Precession electron diffraction，PED)观察到，铜烧结纳米颗粒在垂直于压力方向上的孔洞较小且不规则，而在平行方向上则较大且拉长。这与模拟中观察到的颗粒沿压力方向显著扁平化的现象高度一致。Yan等[12]对铜热压烧结的研究揭示，在30%应变下孔隙塌陷/颗粒扁平化主导变形，同时位错在晶界重组为致密网络。该机制与透射电子显微镜(Transmission electron microscopy，TEM)观测相印证：50%应变下晶粒显著扁平化，位错介导的致密化虽有效降低孔隙率，但受颗粒键合动力学

限制,最终仍残留微空隙。上述两篇文献分别从孔隙演化规律和微观变形机制这两个关键层面,为模拟结果的可靠性提供了有力支持。

3 结束语

本研究采用分子动力学模拟方法,构建了多颗粒纳米铜烧结模型,基于该模型对热压烧结过程进行了模拟以揭示多颗粒纳米铜的聚结行为,并得出以下结论:温度升高驱动多颗粒纳米铜从孤立状态向接触状态转变,从点接触向颈部演化,同时生成Shockley位错和位错缠结结构;压力促使颗粒接触面扩展,孔隙从连通状态向隔离状态演化,其中接触形成的孔隙能通过塑性流动快速填充,而取向错误导致的孔隙难以短时消除。此外,形成Lomer-Cottrell位错锁;在1 100 K和1 GPa条件下,孔隙完全消除,烧结体达到高度致密化;最终相结构显示,面心立方结构含量减少3.71%,其他结构含量减少6.13%,密排六方结构含量增加10.02%,密排六方结构的形成导致位错密度显著增加,晶界区域出现大量位错缠结,提高加工硬化率。该研究在原子尺度对多颗粒纳米铜烧结机理进行了深入探讨和分析,为优化热压烧结工艺提供了理论依据。

参考文献:

[1] Jones Edward A, Wang Fei Fred, Costinett Daniel. Review of commercial GaN power devices and GaN-based converter design challenges[J]. IEEE Journal of Emerging and Selected Topics in Power Electronics, 2016, 4(3): 707-719.

[2] Chen Zhe, Guerrero Josep M, Blaabjerg Frede. A review of the state of the art of power electronics for wind turbines[J]. IEEE Transactions on Power Electronics, 2009, 24(8): 1859-1875.

[3] Yan Jian-feng, Zou Gui-sheng, Liu Lei, et al. Sintering mechanisms and mechanical properties of joints bonded using silver nanoparticles for electronic packaging applications[J]. Welding in the World, 2015, 59: 427-432.

[4] Mo Li-xin, Guo Zhen-xin, Yang Li, et al. Silver nanoparticles based ink with moderate sintering in flexible and printed electronics[J]. International Journal of Molecular Sciences, 2019, 20(9): No. 2124.

[5] Chen Tiam Foo, Siow Kim Shyong. Comparing the mechanical and thermal-electrical properties of sintered copper(Cu) and sintered silver(Ag) joints[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2021, 866: No. 158783.

[6] Luo Run-ding, Hu Dong, Qian Cheng, et al. Molecular dynamics simulations on mechanical behaviors of sintered nanocopper in power electronics packaging[J]. Microelectronics Reliability, 2024, 152: No. 115284.

[7] Li Jing-yan, Song Zi-xian, Liu Zhi-chao, et al. Exploring surface-driven mechanisms for low-temperature sintering of nanoscale copper[J]. Applied Sciences, 2025, 15(1):No. 476.

[8] Abedini A, Malti A, Kardani A, et al. Probing neck growth mechanisms and tensile properties of sintered multi-nanoparticle Al-Cu systems via MD simulation[J]. Advanced Powder Technology, 2023, 34(8): No. 104084.

[9] Plimpton Steve. Fast parallel algorithms for short-range molecular dynamics[J]. Journal of Computational Physics, 1995, 117(1): 1-19.

[10] Stukowski Alexander. Visualization and analysis of atomistic simulation data with OVITO—the open visualization tool[J]. Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering, 2009, 18(1): No. 15012.

[11] Du Lei-ming, Liu Kai, Hu Dong, et al. Microstructural and mechanical anisotropy in pressure-assisted sintered copper nanoparticles[J]. Acta Materialia, 2025, 287: No. 120772.

[12] Yan Xu-yang, Du Lei-ming, Gu Chao, et al. Microscale mechanical properties in sintered copper nanoparticles[J]. Materials Science and Engineering: A, 2025: No. 148684.

[13] Song Zi-xian, Luo Wei, Fan Xue, et al. Atomic fast dynamic motion on the Cu nanoparticle's surface before melting: a molecular dynamics study[J]. Applied Surface Science, 2022, 606: No. 154901.

[14] Liu Xu, Li Shi-zhen, Tan Chun-jian, et al. Coalescence kinetics and microstructure evolution of Cu nanoparticles sintering on substrates: a molecular dynamics study[J]. Journal of Materials Research and Technology, 2022, 17:1132-1145.

[15] Hu Dong, Cui Zhen, Fan Jia-jie, et al. Thermal kinetic and mechanical behaviors of pressure-assisted Cu nanoparticles sintering: a molecular dynamics study[J]. Results in Physics, 2020, 19: No. 103486.

[16] Pishkenari Hossein Nejat, Yousefi Fartash Samie, Taghibakhshi Ali. Determination of surface proper-

ties and elastic constants of FCC metals: a comparison among different EAM potentials in thin film and bulk scale[J]. Materials Research Express, 2018, 6(1): No. 15020.

[17] Sarkar Jit. Investigation of mechanical properties and deformation behavior of single-crystal Al-Cu core-shell nanowire generated using non-equilibrium molecular dynamics simulation[J]. Journal of Nanoparticle Research, 2018, 20(6): No. 153.

[18] Kim Juheon, Chung Hayoung. Atomistic investigation of pressure effects on sintering of bimetallic core-shell nanoparticles[J]. Journal of Materials Science & Technology, 2024, 184: 64-74.

[19] Cheng Bing-qing, Ngan Alfonso H W. The sintering and densification behaviour of many copper nanoparticles: a molecular dynamics study[J]. Computational Materials Science, 2013, 74: 1-11.

[20] Feng Qian-wen, Zhang Xiang. Novel insight into the microstructure evolution and strengthening mechanism of nanocrystalline copper prepared by hot-pressing sintering: a molecular dynamics study[J]. AIP advances, 2024, 14(12): No. 125021.

[21] Felege G N, Gurao N P, Upadhyaya Anish. Evolution of microtexture and microstructure during sintering of copper[J]. Metallurgical and Materials Transactions A, 2019, 50(9): 4193-4204.

[22] Michalet Xavier. Mean square displacement analysis of single-particle trajectories with localization error: Brownian motion in an isotropic medium[J]. Physical Review E—Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics, 2010, 82(4): No. 41914.

[23] Faken Daniel, Jónsson Hannes. Systematic analysis of local atomic structure combined with 3D computer graphics[J]. Computational Materials Science, 1994, 2(2): 279-286.

[24] Stukowski Alexander, Bulatov Vasily V, Arsenlis Athanasios. Automated identification and indexing of dislocations in crystal interfaces[J]. Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering, 2012, 20(8): No. 85007.

[25] Gu Ming-fei, Liu Ting-ting, Xiao Xing-zhi, et al. Simulation and experimental study of the multisized silver nanoparticles sintering process based on molecular dynamics[J]. Nanomaterials, 2022, 12(6): No. 1030.

[26] Zhu Hui-long. Sintering processes of two nanoparticles: a study by molecular dynamics simulations[J]. Philosophical Magazine Letters, 1996, 73(1): 27-33.

[27] Li Jia, Fang Qi-hong, Liu Bin, et al. Atomic-scale analysis of nanoindentation behavior of high-entropy alloy[J]. Journal of Micromechanics and Molecular Physics, 2016, 1(1): No. 1650001.

[28] Cheng J B, Liang X B, Xu B S. Effect of Nb addition on the structure and mechanical behaviors of CoCrCuFeNi high-entropy alloy coatings[J]. Surface and Coatings Technology, 2014, 240: 184-190.

[29] Youssef Khaled, Sakaliyska Miroslava, Bahmanpour Hamed, et al. Effect of stacking fault energy on mechanical behavior of bulk nanocrystalline Cu and Cu alloys[J]. Acta Materialia, 2011, 59(14): 5758-5764.

[30] Wakai Fumihiro, Guillon Olivier, Okuma Gaku, et al. Sintering forces acting among particles during sintering by grain-boundary/surface diffusion[J]. Journal of the American Ceramic Society, 2019, 102(2): 538-547.

[31] Guo Qing-wei, Hou Hua, Wang Kai-le, et al. Coalescence of Al 0.3CoCrFeNi polycrystalline high-entropy alloy in hot-pressed sintering: a molecular dynamics and phase-field study[J]. NPJ Computational Materials, 2023, 9(1): No. 185.