

液态 Ga 在石英玻璃表面的声致铺展行为

张茗瑄¹, 马志鹏¹, 于海洋², 夏法锋¹, 王德胜¹

(1. 东北石油大学, 大庆, 163318; 2. 中工国际工程股份有限公司, 北京, 100080)

摘要: 研究超声波工具头作用于液态 Ga 表面时, 液态 Ga 在石英玻璃表面的铺展行为, 并通过 Comsol Multiphysics 软件对液态 Ga 的流动过程和压力变化情况进行模拟分析。结果表明, 液态 Ga 在铺展过程中初始阶段铺展缓慢, 超声波作用时间为 24 ms 时液态 Ga 的铺展面积为 2.754 cm^2 ; 超声波作用时间为 72 ms 时液态 Ga 的铺展面积迅速增大至 5.459 cm^2 ; 超声波作用时间 84 ms 时达到平衡状态, 铺展面积为 5.508 cm^2 。铺展过程中, 液态 Ga 表面可以观察到明显的空化泡和涟漪状波纹。施加超声波后, 液态 Ga 内部压力在一个周期内发生变化, 液态 Ga 顶部以负压为主, 并且沿半径向圆心方向压力递增至正压, 在超声波作用时间为 1.7 ms 时液态 Ga 内部压力以正压为主。在超声波作用下, 液态 Ga 表面所受压力幅值自上而下逐渐减小, 同时液态 Ga 在内部压力偏移量、Laplace 压强差和“坍塌效应”的共同作用下铺展, 最终形貌发生显著变化。

创新点: (1) 将超声波直接加入至液态钎料中并促进其铺展。

(2) 提出了一种保护脆性材料的直接超声波辅助钎焊方法。

关键词: 超声波; 液态 Ga; 铺展; 压力

中图分类号: TG 454

文献标识码: A

doi: 10.12073/j.hjxb.20210608002

0 序言

石英玻璃具有熔点高、热稳定性强、电绝缘性好等优点, 广泛应用于电子通讯、冶金化工以及航空航天领域^[1], 但其本身也存在着延展性低、冲击韧性差等缺点, 从而阻碍了在工程中的应用^[2]。由于石英玻璃为硅氧四面体结构, 化学稳定性较强, 常规焊接方法难以将其与同种或异种材料连接^[3]。而超声波辅助钎焊是通过超声波在液态钎料中产生空化作用, 在空化泡发生破裂或挤压的瞬间产生一定范围的高压气流, 破除母材表面的氧化膜, 使得液态钎料与母材表面更好地接触, 从而降低成本, 实现有效连接^[4], 该方法成为了近年来研究的热点。

赵恺等人^[5-6]研究了在超声波作用下, 钎料 Sn-Ag-Cu 在母材 Cu 表面的润湿铺展性能, 发现超声波的空化作用可有效去除母材表面的氧化膜, 提高钎料在母材表面的润湿性。闫久春等人^[7]采用纯 Sn 和纯 Zn 作为液态钎料, 成功钎焊了铝合金和石英玻璃, 液态钎料内部的空化泡在崩溃时产生的高

温高压微射流冲击母材表面, 促进了液态钎料的润湿铺展。Deepu 等人^[8]发现在超声波作用下液滴发生震荡并发生了不对称的铺展变形, 并且在表面观察到了表面张力波, 认为超声波产生的径向声压是液滴发生铺展的驱动力。

当前对于超声波辅助钎焊的研究主要是将超声波通过母材导入液态钎料, 且集中在润湿铺展后的结果分析与表征上。当超声波直接导入至液态钎料内部时, 相关的润湿铺展机理和动态过程研究较少。因此以液态 Ga 和石英玻璃为研究对象, 将超声波工具头直接作用在液态 Ga 表面, 并采用 Comsol Multiphysics 软件, 对超声波作用下液态 Ga 的动态铺展过程进行数值模拟, 分析液态 Ga 内部的压力变化情况及铺展机理。

1 试验与数值模拟

1.1 试验材料及设备

试验中采用的母材为石英玻璃, 尺寸为 $60 \text{ mm} \times 30 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$, 主要物理性质如表 1 所示^[9-10]。铺展材料为 99.9% Ga, 主要物理性质如表 2 所示^[11]。

试验设备采用超声波辅助钎焊系统,可输出的超声波频率为 $20\text{ kHz} \pm 0.1\text{ kHz}$,最大输出功率为 1 kW .整个钎焊过程通过 CCD 高速摄影机进行记录,图像采集频率为 $20\,000\text{ 帧/s}$.

表 1 石英玻璃的物理性质
Table 1 Physical properties of quartz glass

弹性模量 E/GPa	泊松比 ν	密度 $\rho/(\text{g}\cdot\text{cm}^{-3})$
77.8	0.17	2.1

表 2 液态 Ga 的物理性质
Table 2 Physical properties of liquid Ga

熔点 $T/^\circ\text{C}$	粘度 $\eta/(\text{MPa}\cdot\text{s})$	密度 $\rho/(\text{g}\cdot\text{cm}^{-3})$
29.76	2.3 (50 $^\circ\text{C}$)	5.904

1.2 试验方法

试验采用带有空隙的夹具将母材固定,利用不锈钢注射器将液态 Ga 制成质量约 1 g 的小球并放置在母材表面,将母材表面和液态 Ga 加热至 $50\text{ }^\circ\text{C}$ 直至试验结束,使得试验结束后铺展材料 Ga 仍为液态.随后,通过超声波工具头在钎料表面施加超声波.其中超声波频率为 20 kHz ,振幅为 $4\text{ }\mu\text{m}$,整个铺展过程通过 CCD 高速摄影机从底部拍摄记录,拍摄过程为 1 s ,试验过程示意图如图 1 所示.

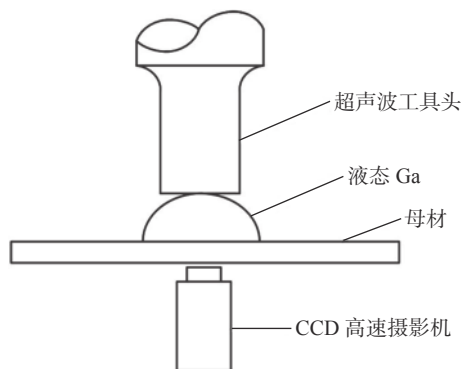


图 1 液态 Ga 铺展试验示意图

Fig. 1 Schematic diagram of liquid Ga spreading test

1.3 几何模型的建立

采用 Comsol Multiphysics 软件对液态 Ga 的动态铺展过程进行二维多物理场建模和仿真分析,所建立的网格模型如图 2 所示.模型中底部长方形为母材,半椭圆形为液态 Ga,顶部长方形为超声波工具头.

在 Comsol Multiphysics 软件中,选用“湍流”和“水平集”模块进行建模,模拟流体计算的控制方程^[12-13].

连续性方程为

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i}(\rho u_i) = 0 \quad (1)$$

式中: ρ 为液态 Ga 密度; μ 为液态 Ga 的粘度系数; x_i 为坐标方向 i 的坐标值; u_i 为坐标方向 i 的速度分量.

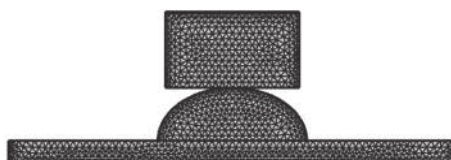


图 2 二维网格示意图

Fig. 2 Schematic of diagram 2D grid

雷诺方程为

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho u_i) + \frac{\partial}{\partial x_j}(\rho u_i u_j) = -\frac{\partial \rho}{\partial x_i} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\mu \frac{\partial u_i}{\partial x_j} - \rho \overline{u'_i u'_j} \right) + S_i \quad (2)$$

式中: x_j 为坐标方向 j 的坐标值; u_j 为 j 坐标方向的速度分量; S 为源项.

k 运输方程为

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho k) + \frac{\partial}{\partial x_i}(\rho k u_i) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[\left(\mu + \frac{\mu_t}{\sigma_k} \right) \frac{\partial k}{\partial x_j} \right] + \mu_t \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \frac{\partial u_i}{\partial x_j} - \rho C_D \quad (3)$$

式中: $\sigma_k = 1$; k 为湍动能; μ_t 为液态 Ga 的有效粘度系数; C_D 为经验常数.

k - ε 模型方程为

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho k) + \frac{\partial}{\partial x_i}(\rho k u_i) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[\left(\mu + \frac{\mu_t}{\sigma_k} \right) \frac{\partial k}{\partial x_j} \right] + G_k + G_b - \rho \varepsilon - Y_M + S \quad (4)$$

式中: ε 为湍动能耗散率; G_k 为平均流速变化引起的湍动能; G_b 为浮力变化引起的湍动能; Y_M 为湍流变化对总耗散率的影响.

当液态 Ga 表面受到超声波作用时,设超声波压力载荷为 F_0 ,则超声波作用下产生的交变压力载荷 F_1 为

$$F_1 = F_0 \sin(2\pi f t) \quad (5)$$

式中: f 为超声波频率; t 为超声波作用时间.设超声波振幅为 ζ_1 ,则液态 Ga 所受的位移载荷 ζ 为

$$\zeta = \zeta_1 \sin(2\pi f t) \quad (6)$$

当超声波振幅为 $4\text{ }\mu\text{m}$ 、频率为 20 kHz 时,由式 (6) 可知,此时液态 Ga 所受的位移载荷为

$$\zeta = 4 \sin(2\pi \cdot 20\,000 t) \quad (7)$$

2 结果与讨论

2.1 液态 Ga 铺展试验

图 3 为超声波作用下液态 Ga 的动态铺展过程. 从图 3 可以看出, 当超声波作用时间小于 12 ms 时液态 Ga 无明显变化, 如图 3a 和 3b 所示. 超声波作用时间为 12 ~ 24 ms 时液态 Ga 向四周铺展, 如图 3c 所示. 超声波作用时间为 24 ~ 72 ms 时液态 Ga 铺展面积迅速增大, 在液态 Ga 表面可以观察到明显的空化泡, 并且在空化泡附近出现涟漪状波

纹, 如图 3d ~ 3g 所示. 超声波作用时间为 72 ~ 84 ms 时液态 Ga 表面无明显变化, 可视为铺展结束, 如图 3h 所示. 由此可以得出, 超声波作用下液态 Ga 的铺展过程经历了 4 个不同阶段, 由于液态 Ga 表面存在致密的氧化膜, 在前 24 ms 内铺展较缓慢.

图 4 为超声波作用下液态 Ga 的铺展面积统计. 从图 4 可以看出, 在初始状态下液态 Ga 与母材的接触面积为 2.123 cm^2 ; 超声波作用时间为 24 ms 时液态 Ga 的铺展面积为 2.754 cm^2 ; 超声波作用时间为 72 ms 时液态 Ga 的铺展面积迅速增大至 5.459 cm^2 ; 超声波作用时间为 72 ~ 84 ms 时液态 Ga 铺展速率降低, 最终铺展面积为 5.508 cm^2 .

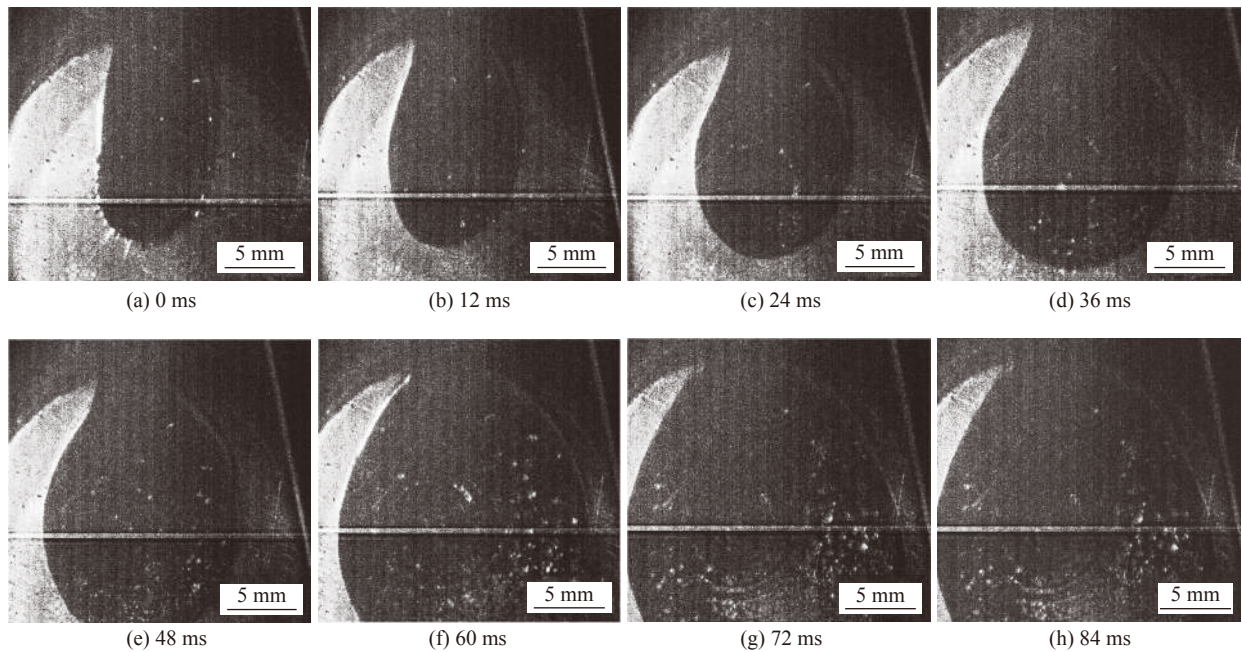


图 3 超声波作用下液态 Ga 的动态铺展情况

Fig. 3 Dynamic spreading of liquid Ga under ultrasound. (a) 0 ms; (b) 12 ms; (c) 24 ms; (d) 36 ms; (e) 48 ms; (f) 60 ms; (g) 72 ms; (h) 84 ms

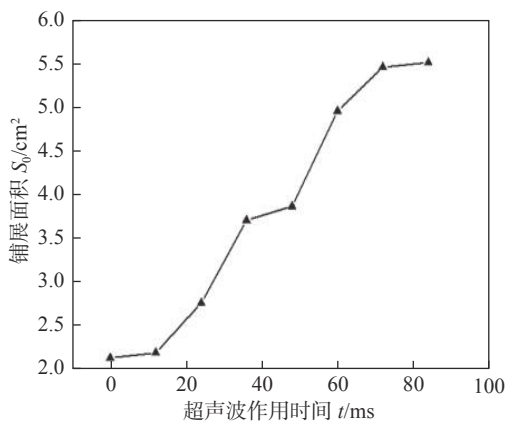


图 4 超声波作用下液态 Ga 的铺展面积统计

Fig. 4 Statistics diagram of spreading area of liquid Ga under ultrasound

2.2 超声波作用下液态 Ga 的铺展行为

图 5 为超声波作用下液态 Ga 的模拟铺展过程. 没有超声波作用时, 液态 Ga 保持液滴状态 (图 5a). 当施加超声波作用时间 12 ms 后液态 Ga 向两侧对称铺展, 如图 5b ~ 5c 所示. 超声波作用时间为 36 ms 时液态 Ga 顶部呈凸起状, 如图 5d 所示. 超声波作用时间为 48 ms 时液态 Ga 铺展至最大值, 底部半径约 20 mm (图 5e). 超声波作用时间为 60 ms 时液态 Ga 顶部形态逐渐由凸起状塌陷至水平状 (图 5f). 由此可以得出, 液态 Ga 向两侧对称铺展需要其顶部向下塌陷部分液体分子以保证流体的连续性.

2.3 液态 Ga 铺展过程中内部压力变化

为了避免施加超声波时出现声压不稳的现象,

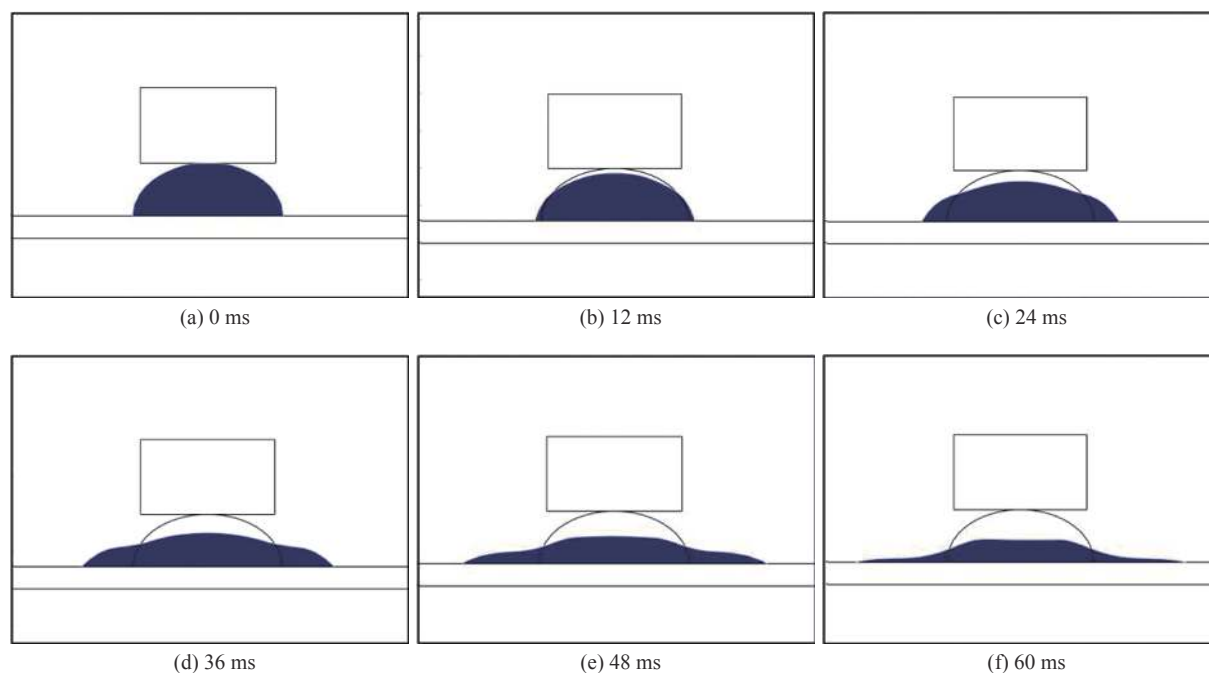


图 5 超声波作用下液态 Ga 的模拟铺展变化过程

Fig. 5 Simulated spreading process of liquid Ga under ultrasound. (a) 0 ms; (b) 12 ms; (c) 24 ms; (d) 36 ms; (e) 48 ms; (f) 60 ms

选取一个周期内 (1.4 ~ 1.9 ms) 的压力变化进行分析。图 6 为液态 Ga 内部压力的变化情况。超声波作用时间为 1.4 ~ 1.6 ms 时液态 Ga 内部以负压为主, 此时最大压力绝对值为 6.73×10^3 Pa; 在超声波作用时间为 1.7 ~ 1.9 ms 时液态 Ga 内部压力转变为正压为主, 此时最大压力绝对值为 8.23×10^3 Pa。在超声波作用下, 液态 Ga 内部压力在一个周期内发生变化, 其顶部以负压为主, 并且沿半径向

圆心方向压力递增, 在液态 Ga 底部两端附近压力达到最大。当负压相中的最大压力绝对值高到足以克服液态 Ga 分子之间的结合力时, 液态 Ga 分子会出现拉断现象, 从而产生空腔, 并且在空腔中产生空化泡; 当压力转为正压时, 将对液态 Ga 内部的液体分子产生压缩力, 空化泡迅速闭合、崩溃, 并相互碰撞, 从而产生强大的微射流, 这也很好地解释了铺展试验中液态 Ga 表面出现明显的空化现象。

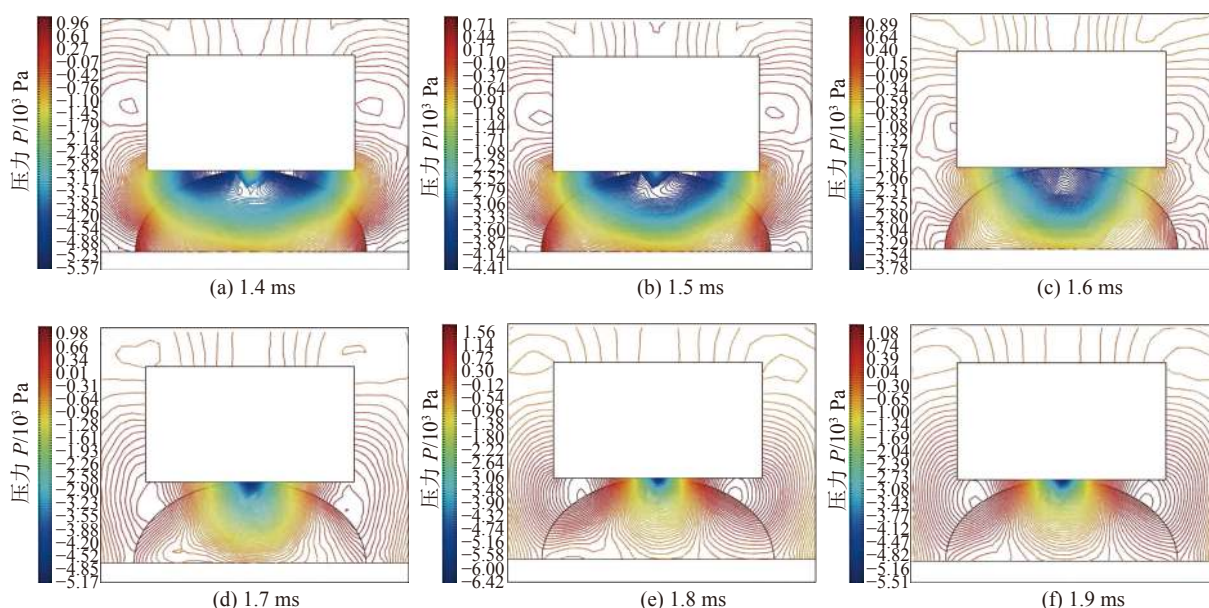


图 6 液态 Ga 内部压力变化

Fig. 6 Changes in the internal pressure of liquid Ga. (a) 1.4 ms; (b) 1.5 ms; (c) 1.6 ms; (d) 1.7 ms; (e) 1.8 ms; (f) 1.9 ms

2.4 液态 Ga 铺展驱动力分析

研究超声波振幅为 $4\text{ }\mu\text{m}$ 时液态 Ga 表面的压力变化情况, 以液态 Ga 圆心为原点, 沿 x 轴正方向取 3 个微元点 A, B, C, 各点的位置如图 7 所示。

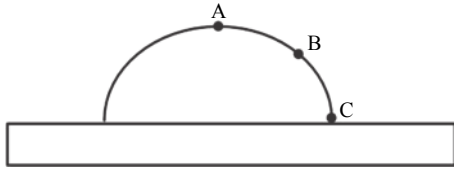


图 7 液态 Ga 表面微元点位置示意图
Fig. 7 Schematic diagram of the location of the micro-elements on the surface of liquid Ga

提取 3 个微元点在 $1.4\sim 1.9\text{ ms}$ 内的压力变化数据并拟合得出压力变化曲线, 如图 8 所示。通过拟合压力变化曲线得出的压力函数表达式为

$$P_A = 2\,099.35 \sin[2\pi \cdot 20\,000(t - 2.5 \times 10^{-5})] + 419.33 \quad (8)$$

$$P_B = 1\,492.52 \sin[2\pi \cdot 20\,000(t - 1.8 \times 10^{-4})] + 368.34 \quad (9)$$

$$P_C = 697.75 \sin[2\pi \cdot 20\,000(t - 6.05 \times 10^{-5})] + 334.52 \quad (10)$$

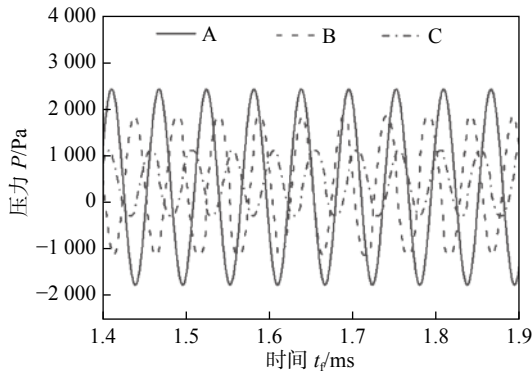


图 8 钎料表面各微元点压力与时间关系曲线
Fig. 8 Relationship between pressure and time of each micro-point on the surface of the solder

由式 (8)~式 (10) 和图 7 可知, 压力变化曲线为类正弦曲线, 其函数表达式为

$$P = P_0 \sin[2\pi f(t - t_0)] + P_L \quad (11)$$

式中: P 为微元所受压力; P_0 为压力幅值, 表示该位置的压力大小; f 为变化频率; t 为超声波作用时间; t_0 为初始相位; P_L 为正负半波偏移量, 即呈类正弦变化的压力向某一方向的偏移值。

图 8 为钎料表面各微元点压力与时间关系曲线。从图 8 可以看出, 液态 Ga 顶部 A 点偏移量最大, 压力幅值最大, B 点其次, 液态 Ga 底部 C 点的偏移量和压力幅值最小, 这是由于声波在传播过程中不断衰减所致。根据牛顿力学^[14-16], 当液态 Ga 受到完全正弦变化力的作用时, 液态 Ga 会沿初始位

置做对称往复运动, 宏观上无明显位移变化。当力存在偏移量时, 液态 Ga 会整体发生宏观流动, 使得钎料发生铺展^[17-18]。此外, 在液态 Ga 表面施加超声波振动改变了气液固三相界面处的平衡状态, 位于固液界面处的液体分子率先向前铺展, 且铺展速度较快, 虽然液态 Ga 顶部发生塌陷, 但液体内部存在表面张力, 仍然呈凸起状, 由于弯曲液面存在 Laplace 压强差^[19-20], 当压力差达到一定程度时, 液态 Ga 顶部出现塌陷, 其边缘的液体分子会在“坍塌效应”作用下继续铺展, 随着铺展面积的增大, 三相界面处再次达到平衡状态, 铺展结束。

3 结论

(1) 当超声波工具头作用于液态 Ga 时, 在液态 Ga 表面可以观察到明显的空化泡和涟漪状波纹。液态 Ga 在铺展过程中初始阶段铺展缓慢, 超声波作用时间为 24 ms 时液态 Ga 的铺展面积为 2.754 cm^2 ; 超声波作用时间为 72 ms 时液态 Ga 的铺展面积迅速增大至 5.459 cm^2 ; 超声波作用时间为 84 ms 时达到平衡状态, 铺展面积为 5.508 cm^2 。

(2) 通过 Comsol Multiphysics 软件对液态 Ga 的流动过程和压力变化进行模拟分析, 得出在超声波作用下液态 Ga 内部压力在一个周期内发生变化, 其中液态 Ga 顶部以负压为主, 并且沿半径向圆心方向压力逐渐增大, 在超声波作用时间为 1.7 ms 时液态 Ga 内部压力以正压为主, 此时最大压力绝对值为 $8.23 \times 10^3\text{ Pa}$ 。

(3) 在超声波作用下, 液态 Ga 顶部所受压力幅值最大, 边缘部分所受压力幅值最小, 同时液态 Ga 内部产生压力偏移量, 在与 Laplace 压强差和“坍塌效应”的共同作用下, 促进了液态 Ga 在母材表面的铺展。

参考文献

- [1] Lin Bin, Li Shipeng, Cao Zhongchen, *et al.* Theoretical modeling and experimental analysis of single-grain scratching mechanism of fused quartz glass[J]. Journal of Materials Processing Technology, 2021, 293: 117090.
- [2] 李晓鹏, 张泽宇, 王伟, 等. 基于飞秒激光表面修饰的石英玻璃润湿性分析[J]. 焊接学报, 2020, 41(11): 18-24.
Li Xiaopeng, Zhang Zeyu, Wang Wei, *et al.* Analysis on the wettability of fused silica glass surface modified by femtosecond

- Laser[J]. Transactions of the China Welding Institution, 2020, 41(11): 18 – 24.
- [3] Li Yuxiang, Chen Chen, Yi Ruixiang. Recent development of ultrasonic brazing[J]. The International Journal of Advanced Manufacturing Technology, 2021, 114: 27 – 62.
- [4] Wu Yongchao, Li Hong, Qu Wenqing, *et al.* Ultrasonic-assisted bonding of Al_2O_3 ceramic, Cu, and 5056 aluminum alloy with Sn-Zn-Sb solders[J]. Welding in the World, 2020, 64(2): 247 – 256.
- [5] 赵恺, 张柯柯. 超声波振动对 Sn2.5Ag0.7Cu0.1RE/Cu 润湿性的影响 [J]. 电焊机, 2013, 43(4): 27 – 30.
- Zhao Kai, Zhang Keke. Effect of ultrasonic vibration on Sn2.5Ag0.7Cu0.1RE/Cu wettability[J]. Electric Welding Machine, 2013, 43(4): 27 – 30.
- [6] 赵恺, 张柯柯. 电场对超声振动辅助 Sn2.5Ag0.7Cu0.1RE/Cu 润湿适配性的影响 [J]. 焊接技术, 2013, 42(10): 7 – 9.
- Zhao Kai, Zhang Keke. Effect of electric field on Sn2.5Ag0.7Cu0.1RE/Cu wettability with ultrasonic vibration assisted[J]. Welding Technology, 2013, 42(10): 7 – 9.
- [7] 闫久春, 孙小磊. 超声波振动辅助钎焊技术 [J]. 焊接, 2009(3): 6 – 13.
- Yan Jiuchun, Sun Xiaolei. Ultrasonic vibration assisted brazing technology[J]. Welding & Joining, 2009(3): 6 – 13.
- [8] Deepu P, Saptarshi Basu, Abhishek Saha, *et al.* Spreading and atomization of droplets on a vibrating surface in a standing pressure field[J]. Applied Physics Letters, 2012, 101(14): 1 – 5.
- [9] 孙小磊. 玻璃连接的研究现状 [J]. 焊接技术, 2015, 44(11): 1 – 4.
- Sun Xiaolei. Research status of soldering glass[J]. Welding Technology, 2015, 44(11): 1 – 4.
- [10] 孟庆森, 俞萍, 张丽娜, 等. 金属与硼硅玻璃场致扩散连接形成机理 [J]. 焊接学报, 2001, 22(4): 63 – 65.
- Meng Qingsen, Yu Ping, Zhang Lina, *et al.* Joining mechanism of field-assisted diffusion bonding of borosilicate glass to metals[J]. Transactions of the China Welding Institution, 2001, 22(4): 63 – 65.
- [11] 柯胜男, 侯斌, 刘锦卉, 等. 赤泥硫酸熟化浸出液中镓的萃取试验 [J]. 科学技术与工程, 2016, 16(26): 203 – 206.
- Ke Shengnan, Hou Bin, Liu Jinhui, *et al.* Experimental study on the extraction of gallium from red mud by sulfuric acid curing[J]. Science Technology and Engineering, 2016, 16(26): 203 – 206.
- [12] Trindade L B, Nadalon J, Vilela A, *et al.* Numerical modeling of inclusion removal in electromagnetic stirred steel billets[J]. Steel Research International, 2009, 78(9): 708 – 713.
- [13] Zhang J, Ma W. Data-driven discovery of governing equations for fluid dynamics based on molecular simulation[J]. Journal of Fluid Mechanics, 2020, 892(A5): 1 – 18.
- [14] Etiner A, Evren B, Budakli M, *et al.* Spreading behavior of droplets impacting over substrates with varying surface topographies[J]. Colloids and Surfaces A Physicochemical and Engineering Aspects, 2020, 606: 1 – 16.
- [15] Guo X, Chen C, Kang R, *et al.* Study of mechanical properties and subsurface damage of quartz glass at high temperature based on MD simulation[J]. Journal of Micromechanics and Molecular Physics, 2019, 4(2): 1 – 14.
- [16] Ba J K, Zhang Y, Wang X, *et al.* Effects of deposition time on the structure and properties of AZO thin films deposited on quartz glass by magnetron sputtering[J]. Key Engineering Materials, 2019, 807: 63 – 67.
- [17] Wang F, Schiller U D. Hysteresis in spreading and retraction of liquid droplets on parallel fiber rails[J]. Soft Matter, 2021, 17(22): 5486 – 5498.
- [18] Shiimoto S, Higuchi H, K Yamaguchi, *et al.* Spreading dynamics of a precursor film of ionic liquid or water on a micropatterned polyelectrolyte brush surface[J]. Langmuir, 2021, 37(10): 3049 – 3056.
- [19] Hu G, Zhou Q, Bhatlawande A, *et al.* Patterned nickel interlayers for enhanced silver wetting, spreading and adhesion on ceramic substrates[J]. Scripta Materialia, 2021, 196(1): 1 – 6.
- [20] Valenza F, Sitzia S, Cacciamani G, *et al.* Wetting and interfacial reactivity of Ni-Al alloys with Al_2O_3 and ZrO_2 ceramics[J]. Journal of Materials Science, 2021, 56: 7849 – 7861.
-
- 第一作者: 张茗瑄, 博士研究生; 主要研究方向为异种材料连接技术; Email: 1295777609@qq.com.
- 通信作者: 马志鹏, 博士, 教授; Email: mazhipeng77@163.com.

(编辑: 戴红)