

飞秒激光脉冲焊接透明微晶玻璃的实验研究

陈观华^{1,2,3}, 肖蒲庐^{1,2,3}, 张翔^{1,2,3}, 陈宇⁴, 袁孝^{1,2,3*}¹苏州大学光电科学与工程学院, 江苏 苏州 215006;²江苏省先进光学制造技术重点实验室, 江苏 苏州 215006;³江苏省苏州大学现代光学技术教育部重点实验室, 江苏 苏州 215006;⁴奥徒(上海)激光技术有限公司, 江苏 苏州 215123

摘要 利用飞秒激光脉冲开展了零热膨胀系数 $\text{Li}_2\text{O}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ (LAS) 透明微晶玻璃的非光学接触式焊接研究, 分析了不同能量飞秒激光焊接 LAS 透明微晶玻璃的焊缝形貌和剪切强度, 并对焊接后 LAS 透明微晶玻璃的透过率进行了测量。在激光脉冲宽度为 300 fs、波长为 1030 nm、单脉冲能量为 3.0 μJ 时, 焊接后 LAS 透明微晶玻璃的剪切强度高达 23.51 MPa, 光学透过率相对于原始 LAS 透明微晶玻璃下降了 5%。随着单脉冲能量的增加, LAS 透明微晶玻璃的光学透过率发生不同程度的下降, 改性区域逐渐远离焦点, 向激光源方向移动, 使得分界面处的焊缝宽度先增大至 10.7 μm 而后逐渐减小。X 射线衍射分析结果表明, 在该激光参数下实现了 LAS 透明微晶玻璃焊接而未产生新的晶相。

关键词 激光技术; 飞秒激光; 透明微晶玻璃; 玻璃焊接; 单脉冲能量; 非光学接触

中图分类号 TG44

文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL221445

1 引言

人类社会和科技的不断发展促使消费电子和医疗等行业的产品向小型化、精密化方向转型, 这对制造材料的微连接提出了新的要求。玻璃等硬脆材料具有优异的物理和化学性能, 可靠和稳定连接玻璃的要求很高, 近些年已成为研究热点^[1]。传统的玻璃连接方式有黏合剂黏接^[2]、固相键合^[3]等方式, 但存在易老化、释放有害气体、要求连接材料热膨胀系数相近等缺点。而传统的连续激光焊接^[4]存在激光能量难以被透明材料吸收, 玻璃材料受热易破裂, 热影响区极大影响玻璃材料透过率的问题, 难以实现透明材料高质量焊接。以纳秒激光为代表的短脉冲激光焊接玻璃材料^[5]时, 巨大热积累导致的热应力会引发微裂纹和微孔, 需要在材料间隙内预置一层吸收材料以获得更好的焊接效果, 而吸收层的加入会大大降低材料的透过率, 影响其光学特性。飞秒激光脉冲作为近些年来一种很有前景的微加工工具, 具有峰值功率高、引起的材料内热影响区小、加工精度高、材料适用范围广等特点, 在微加工领域获得了广泛的应用^[6-8]。2005年, 日本大阪大学的 Tamaki 等^[9]首次采用 1 kHz 低重复频率飞秒激光完成了石英基板间的直接焊接, 拉开了超短脉冲激光微焊接的研究序幕。近年来, 大量的研究者对不同种类的玻璃进行了微焊接研究^[10-17]。

前人的研究都是基于未经强化的玻璃进行焊接, 强化玻璃的连接一般采用黏合剂黏接和“先玻璃焊接, 再进行强化”的方式, 强化后的玻璃焊接鲜有报道。直到 2021 年, Alpakut 等^[18]利用飞秒激光脉冲结合显微物镜螺旋扫描的方式首次实现了化学强化玻璃的焊接。玻璃强化的方式有两种, 一种是化学强化, 另一种是热强化。热强化玻璃可以缓冲部分外部应力, 抑制熔体填充玻璃间隙, 从而增大玻璃焊接难度。透明微晶玻璃^[19-20]作为一种既含玻璃相又含微晶相的多相复合透明材料, 是基础母玻璃经过特殊的晶化热处理工艺后获得的。热处理过程实质也是一个热强化过程, 强化后获得的透明微晶玻璃具有极细的晶粒尺寸、致密的结构和低热膨胀系数, 在精密光学仪器、消费电子和生物医学^[21-22]等领域得到了广泛应用。

鉴于透明微晶玻璃的优异性能和飞秒激光微加工的独特优势, 开展飞秒激光焊接透明微晶的研究具有重要意义。由于红外光束在玻璃焊接过程中引起的裂纹倾向更小^[23], 因此实验中采用波长为 1030 nm 的光束进行玻璃焊接研究。长焦距平场镜聚焦下光斑的温度梯度更加平缓, 可以减小焊接时诱导的残余应力^[16]。此外, 长焦距透镜聚焦后光束的瑞利长度更长, 极大地减小了焊接过程的定位难度。本文通过长焦距扫描振镜系统聚焦红外飞秒激光脉冲, 开展了 $\text{Li}_2\text{O}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ (LAS) 透明微晶玻璃的焊接研究。在玻璃焊接过

收稿日期: 2022-11-23; 修回日期: 2022-12-15; 录用日期: 2022-12-20; 网络首发日期: 2023-01-06

基金项目: 国家自然科学基金(U1930106)、江苏高校优势学科建设工程资助项目(PAPD)

通信作者: *xyuan@suda.edu.cn

程中,脉冲能量决定了辐照区域的峰值光强,进而影响飞秒激光在玻璃材料中的非线性吸收,对玻璃的焊接效果具有重要影响。通过改变飞秒激光单脉冲能量,研究了飞秒激光脉冲在 LAS 透明微晶玻璃内引起的改性区偏移以及 LAS 透明微晶玻璃焊接后的焊缝形貌、力学性能和光学性能。

2 实验及方法

2.1 实验材料

本研究采用的实验材料为成都光明光电股份有限

公司的商用 LAS 透明微晶玻璃,其物理参数如表 1 所示。实验前先将 LAS 透明微晶玻璃制备成 $15\text{ mm} \times 15\text{ mm} \times 1.12\text{ mm}$ 的样片,用无水乙醇和无尘布将其表面擦拭干净,再用压缩空气进行吹干。通过共聚焦显微镜测量得到原始 LAS 透明微晶玻璃表面的平均粗糙度(S_a)为 5.2 nm ,光学显微镜测得 LAS 透明微晶玻璃的总厚度变化为 $10.4\text{ }\mu\text{m}$ 。由于光学接触^[11,24-25]要求材料表面的平均粗糙度 $S_a < 0.5\text{ nm}$,总厚度变化小于 $5\text{ }\mu\text{m}$,因此本研究中 LAS 透明微晶玻璃微焊接属于非光学接触式焊接。

表 1 LAS 透明微晶玻璃物理性能参数

Table 1 Physical performance parameters of LAS transparent glass-ceramics

Coefficient of thermal expansion at $50\text{ }^\circ\text{C} / (10^{-7}\text{ }^\circ\text{C}^{-1})$	Thermal conductivity at $20\text{ }^\circ\text{C} / [\text{W} \cdot (\text{m} \cdot \text{K})^{-1}]$	Specific heat capacity at $20\text{ }^\circ\text{C} / [\text{J} \cdot (\text{g} \cdot \text{K})^{-1}]$	Young modulus at $20\text{ }^\circ\text{C} / \text{GPa}$	Poisson rate	Density / $(\text{g} \cdot \text{cm}^{-3})$
0 ± 1.0	1.483	0.75	90.67	0.246	2.54

2.2 实验装置与内容

实验采用的激光器为光纤飞秒激光器,中心波长为 1030 nm ,脉宽为 300 fs ,光束质量 $M^2 < 1.2$,平均输出功率为 $0 \sim 20\text{ W}$ 。实验采用的重复频率为 500 kHz ,有利于飞秒激光脉冲在 LAS 透明微晶玻璃材料内部实现较强的热积累效应。实验装置如图 1 所示,飞秒激

光束经过 3 倍扩束准直后,被反射镜引至扫描振镜系统。扫描振镜系统搭载了焦距为 100 mm 的平场镜,可以在 $35\text{ mm} \times 35\text{ mm}$ 的范围内准确地加工预先加载的图样。光束经平场镜聚焦在待加工平面,利用面积推算法^[26]测得的聚焦光斑直径 $D \approx 25\text{ }\mu\text{m}$,与理论计算的聚焦光斑大小一致。

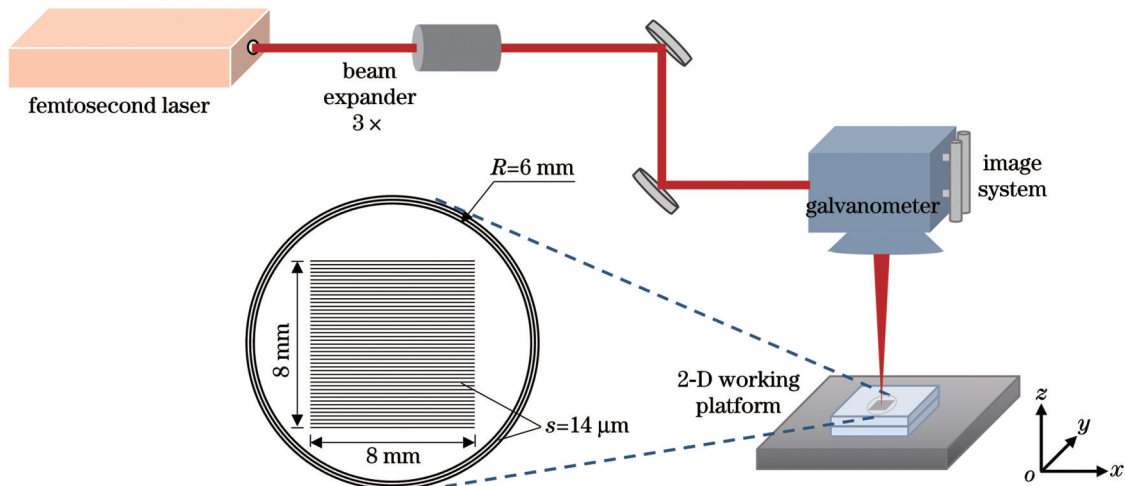


图 1 飞秒激光脉冲焊接 LAS 透明微晶玻璃示意图

Fig. 1 Schematic of femtosecond laser pulse welding of LAS transparent glass-ceramics

保持其他参数不变,将不同能量的飞秒激光脉冲聚焦在单片 LAS 透明微晶玻璃样片内部,观察飞秒激光脉冲经长焦距扫描振镜系统聚焦后在 LAS 透明微晶玻璃内部引起的截面改性形貌。在 LAS 透明微晶玻璃焊接之前,将两块玻璃贴合至有均匀的彩色干涉条纹出现,不采用夹具以避免引入过大的应力。在飞秒激光脉冲焊接 LAS 透明玻璃材料过程中,需要考虑激光束在玻璃中发生的偏折(假设 LAS 透明微晶玻璃样片间的空气间隙极小)。当 D 较小时,焦点在折射率为 n 的玻璃介质内的移动量 $\Delta z'$ 是空气中 z 轴移动量 Δz 的 n 倍,即 $\Delta z' = n \Delta z$ 。飞秒激光光束的焦点被预

先置于上层玻璃上表面,考虑 LAS 透明微晶玻璃的折射率为 1.54 ,将平台沿 z 轴方向下移 1.01 mm ,从而激光在玻璃内部传播后的理论几何焦点处于下层玻璃上且距离分界面 $400\text{ }\mu\text{m}$ 。在垂直于激光传播方向上以 100 mm/s 的速度进行单次扫描,扫描路径如图 1 所示,外侧三个圆形路径保证 LAS 透明微晶玻璃均匀贴合,内部扫描线构成的 $8\text{ mm} \times 8\text{ mm}$ 方形区域为焊接区,最内侧圆的半径(R)为 6 mm 。在焊接过程中,扫描线间距影响一定区域内激光能量的沉积量和焊接(改性)区的大小,进而影响玻璃焊接的最终效果。前期的实验结果表明,随着扫描线间距的增大, LAS 透

明微晶玻璃焊接后的剪切强度会逐渐下降。本研究中固定扫描线的间距并保证扫描线之间的光斑存在一定的重叠,进而重点研究不同激光能量对焊接效果的影响。圆形路径和方形焊接区域的扫描线间距 s 均

为 $14\ \mu\text{m}$,此时扫描线之间的光斑搭接率为 44% 。如表 2 所示,分别设置不同的单脉冲能量,研究 LAS 透明微晶玻璃焊接的焊缝宽度、力学性能和光学性能。

表 2 飞秒激光焊接 LAS 透明微晶玻璃实验参数

Table 2 Experimental parameters of femtosecond laser welding of LAS transparent glass-ceramics

Sample No.	1	2	3	4	5	6
Average power P/W	1.00	1.25	1.50	1.75	2.00	2.25
Pulse energy $E/\mu\text{J}$	2.00	2.50	3.00	3.50	4.00	4.50

3 分析与讨论

与传统的显微镜焊接后改性区呈泪滴状结构不同,飞秒激光脉冲被长焦距扫描振镜聚焦后,在 LAS 透明微晶玻璃辐照区域内产生纵向长丝状结构,如图 2 所示,这是长焦距透镜聚焦下的飞秒激光脉冲在 LAS 透明微晶玻璃内部的自聚焦效应与由光束衍射和等离子体产生所形成的自散焦效应相互平衡所导致的^[27]。本实验中,飞秒激光脉冲经长焦距透镜聚焦后,聚焦区域的峰值光强达到 $10^{12}\sim 10^{13}\ \text{W}/\text{cm}^2$,LAS 透明微晶玻璃内产生弱等离子体;激光束传播过程中会发生衍射,通过由辐照区域产生的微弱的等离子体时会发生散焦。当激光束达到临界功率时,由于克尔透镜效应,会在玻璃内部发生自聚焦现象。对于高斯光束,玻璃材料中自聚焦效应发生的临界功率^[28]为

$$P_{\text{crit}} = \frac{3.77\lambda^2}{8\pi n_0 n_2}, \quad (1)$$

式中: n_0 为玻璃材料的线性折射率; n_2 为非线性折射率。铝硅酸盐玻璃的非线性折射率系数 n_2 约为 $3\times 10^{-20}\ \text{m}^2/\text{W}$ ^[29],LAS 透明微晶玻璃中自聚焦效应发生

的临界功率为 $3.4\times 10^6\ \text{W}$ 。在飞秒激光脉冲辐照区域,峰值功率达到 $10^7\ \text{W}$,自聚焦效应与由光束衍射和等离子体产生所形成的自散焦效应相互作用达到平衡,直到激光强度不足以形成等离子体,从而形成长丝结构。长丝结构可以大大降低焊接过程的定位难度,这对 LAS 透明微晶玻璃的焊接非常有利。从改性区的截面图可以看出,随着激光能量从 $3.08\ \mu\text{J}$ 逐渐增加至 $5.88\ \mu\text{J}$,LAS 透明微晶玻璃内部改性区域逐渐远离焦点,向激光光源方向移动。一方面,当辐照区域的峰值光强达到 $10^{12}\ \text{W}/\text{cm}^2$ 时,辐照区域的 LAS 透明微晶玻璃材料会通过多光子电离和雪崩电离等方式吸收激光能量,从而发生改性。随着单脉冲能量的增加,偏离激光焦点的辐照区域处的能量密度也可达到 LAS 透明微晶玻璃材料的非线性吸收阈值,飞秒激光脉冲能量被玻璃上层区域吸收,该区域材料发生改性,改性区的折射率发生变化,到达玻璃下层区域的激光能量减少,导致改性区域上移;另一方面,当脉冲能量为 $3.08\ \mu\text{J}$ 时,辐照区域的峰值功率为 $1.02\times 10^7\ \text{W}$,超过自聚焦效应发生的临界功率,飞秒激光在 LAS 透明微晶玻璃内部传输时会发生自聚焦效应,随着单脉冲能量的

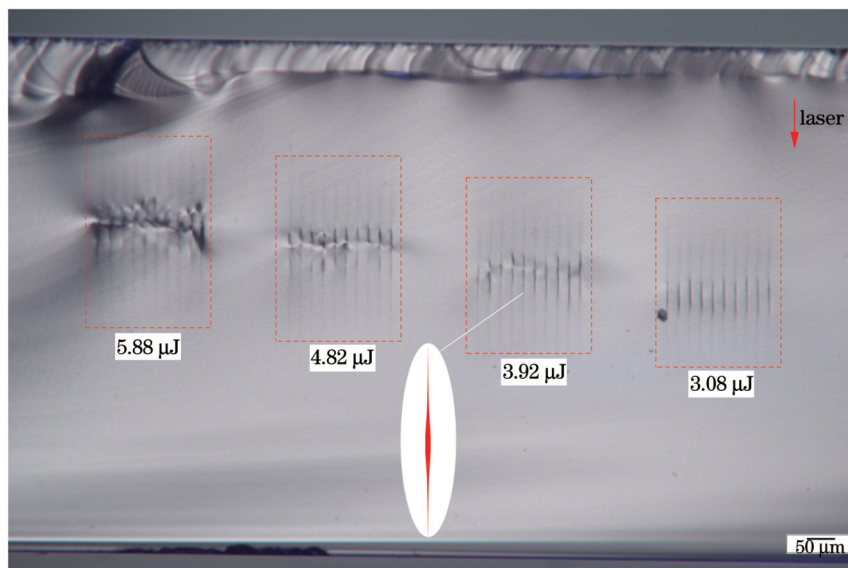


图 2 不同单脉冲能量飞秒激光辐照 LAS 透明微晶玻璃后改性区域的横截面图

Fig. 2 Cross sections of modification areas of LAS transparent glass-ceramic after irradiation by femtosecond lasers with different pulse energies

增加,辐照区域的峰值强度增加,自聚焦效应增强,焦点上移,使得改性区向上移动。

红外飞秒激光辐照下层 LAS 透明微晶玻璃靠近分界面位置时,辐照区域非线性吸收激光能量并通过电子-声子耦合最终将能量传递给晶格^[15],材料熔化形成熔池,冷却形成焊接区,从而实现分界面有效连接。如图 3(a)、(b)所示,单脉冲能量为 2.0 μJ 和 2.5 μJ 时, LAS 透明微晶玻璃分界面处未观察到焊缝结构,此时的能量密度分别为 0.4 J/cm^2 和 0.5 J/cm^2 ,辐照区域沉积的激光能量低,仅在下层 LAS 透明微晶玻璃内部形成较小的改性区域,熔池无法到达分界面。当脉冲能量为 3.0 μJ 时,改性区中心上移至待焊接界面处,呈现均匀焊缝结构, LAS 透明微晶玻璃实现连接;将连接的 LAS 透明微晶玻璃分离后,分界面焊缝区域有明显棱角和撕裂痕迹,在表面仍粘附有大量玻璃碎屑,表明玻璃间形成了有效连接。随着脉冲能量继续增加至 3.5 μJ 以上,改性区逐渐上移至上层 LAS 透明微晶玻璃,分界面处的熔池逐渐减小,高峰值光强使得分界面发生烧蚀,焊接效果开始变差甚至无法实现连接。在相同参数下的不同焊接区域,分界面处焊缝形貌不一致,这主要是由玻璃焊接过程中玻璃间隙差异引起的,

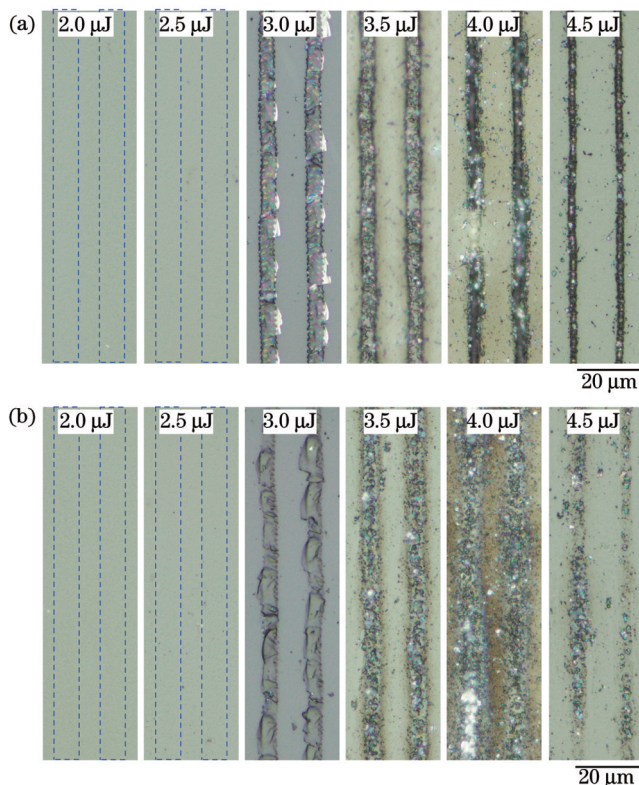


图 3 不同脉冲能量下 LAS 透明微晶玻璃焊接区分界面处的光学显微镜形貌。(a) 上层玻璃下表面; (b) 下层玻璃上表面;

Fig. 3 Optical microscopy morphologies at welding interface of LAS transparent glass-ceramics under different pulse energies. (a) Lower surface of upper glass; (b) upper surface of lower glass

间隙的不同会导致激光传播时的光程以及等离子体在间隙中的消散程度产生差异,进而影响激光焊接后的最终效果。

利用光学显微镜分别测量了不同单脉冲能量下 LAS 透明微晶玻璃焊接后分界面处的焊缝宽度,如图 4 所示。由于熔体在填充间隙的过程中受重力影响,未成功焊接的上层玻璃下表面焊缝的宽度总是比下层玻璃上表面焊缝的宽度小。当脉冲能量为 2.5 μJ 时,聚焦的飞秒激光脉冲能量较低,诱导辐照区域发生改性,但玻璃材料不足以熔化形成熔池或熔池不足以到达分界面处,此时 LAS 透明微晶玻璃分界面处的焊缝大小为 0。随着单脉冲能量从 2.0 μJ 逐渐增加到 4.5 μJ ,焊缝宽度出现先增大后减小的趋势,最大焊缝宽度达 10.7 μm 。一方面,单脉冲能量增加会使得熔池增大,焊缝变宽;另一方面,随着单脉冲能量的增加,长丝状的改性区逐渐远离焦点,向激光源方向移动。当脉冲能量到达某一个值时,改性区大部分集中在上层玻璃,从而使得分界面处的焊缝宽度减小。

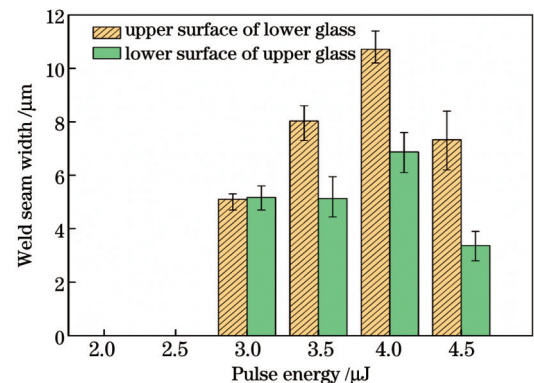


图 4 不同单脉冲能量飞秒激光焊接 LAS 透明微晶玻璃的焊缝宽度

Fig. 4 Weld seam widths of LAS transparent glass-ceramics after welding with different pulse energies

利用拉力剪切力测试仪对焊接后的 LAS 透明微晶玻璃进行剪切强度测试,通过剪切强度来表征其力学性能。剪切强度定义为

$$\sigma = \frac{F}{S}, \quad (2)$$

式中: F 为分离两块玻璃所需的剪切力; S 为焊接区域的面积。如图 5(a)所示,每组参数下重复三次实验。单脉冲能量为 3.0 μJ 时, LAS 透明微晶玻璃实现有效焊接,剪切力测试曲线如图 5(b)所示,实验测得的剪切强度为 $\sigma = (23.51 \pm 1.32) \text{MPa}$ 。如图 5(c)所示,单脉冲能量为 2.75 μJ 时,焊接后 LAS 透明微晶玻璃的剪切强度为 $(6.74 \pm 0.72) \text{MPa}$;单脉冲能量为 3.25 μJ 时,其剪切强度为 $(5.25 \pm 0.96) \text{MPa}$ 。对于非光学接触式玻璃焊接,飞秒激光与 LAS 透明微晶玻璃材料相互作用产生的熔融材料有限,低能量的激光脉冲在低热膨

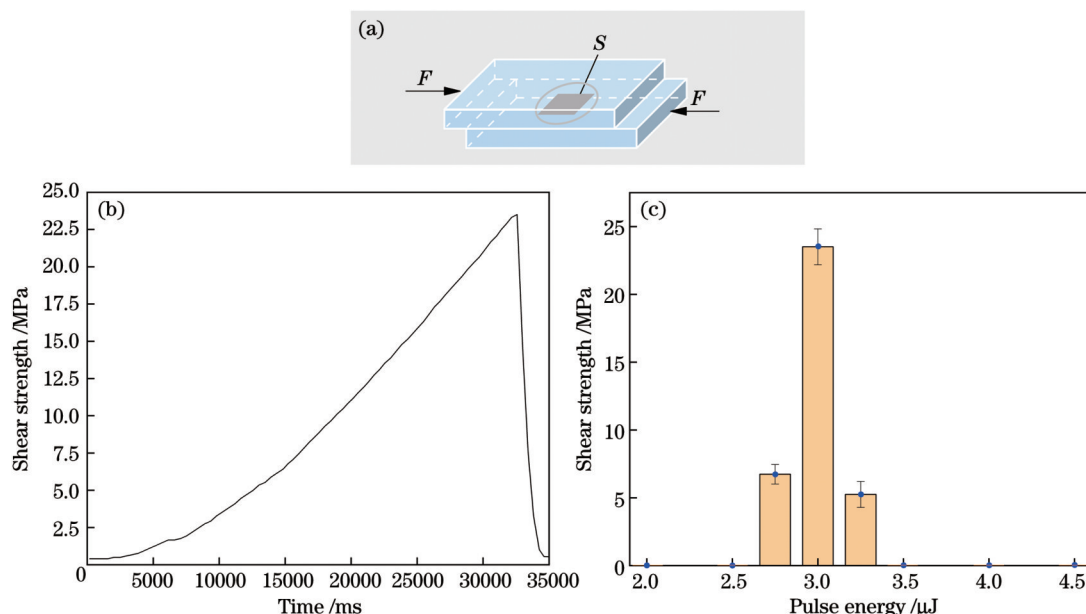


图 5 LAS 透明微晶玻璃的焊接强度测试。(a)剪切强度测试示意图;(b)剪切力测试曲线($E=3.0 \mu\text{J}$);(c)不同单脉冲能量下 LAS 透明微晶玻璃焊后的剪切强度

Fig. 5 Welding strength test of LAS transparent glass-ceramics. (a) Schematic of shear strength test; (b) shear force test curve ($E=3.0 \mu\text{J}$); (c) shear strength of LAS transparent glass-ceramics after welding with different pulse energies

胀系数 LAS 透明微晶玻璃中产生的熔池不足以填充由粗糙度、厚度变化和平坦度等表面质量引起的自然堆叠下的大间隙 ($\approx 3 \mu\text{m}$); 高能激光脉冲产生的等离子体容易在间隙处消散, 从而引起焊接界面发生烧蚀。

焊接后 LAS 透明微晶玻璃的透光性是表征其焊接效果的重要方面。采用紫外-可见-近红外分光光度计测量了焊接区域的光学透过率, 并分别使用单片和两片堆叠的原始 LAS 透明微晶玻璃进行对比测试, 如图 6 所示。由于空气间隙的存在, 两片堆叠的原始 LAS 透明微晶玻璃的透过率相对于单片原始 LAS 透明玻璃下降了 8%。单脉冲能量为 $3.0 \mu\text{J}$ 时, 焊接后样品的光学透过率相对于单片原始 LAS 透明微晶玻璃

下降了 5%, 相对于两片堆叠的原始 LAS 透明微晶玻璃增大了 3%。这表明, 两片 LAS 透明微晶玻璃在焊接区域实现了良好结合, 从而极大减小了空气层, 玻璃间形成了有效焊接。随着脉冲能量从 $2.0 \mu\text{J}$ 逐渐增加到 $4.5 \mu\text{J}$, 飞秒激光辐照区域的透过率发生了不同程度的降低。单脉冲能量为 $2.5 \mu\text{J}$ 时, 飞秒激光辐照后 LAS 透明微晶玻璃的透过率相对于两片堆叠的原始 LAS 透明微晶玻璃下降了 3%。红外飞秒激光引起了 LAS 透明微晶玻璃辐照区域折射率的变化^[30], 影响了光在 LAS 透明微晶玻璃内部的传输特性, 但飞秒激光的能量不足以在玻璃中产生微纳孔洞, 在玻璃的分界面处仅有玻璃原始表面形貌而未观察到焊缝结构, 如图 7 所示。前人的研究也表明, 玻璃经强红外光照射

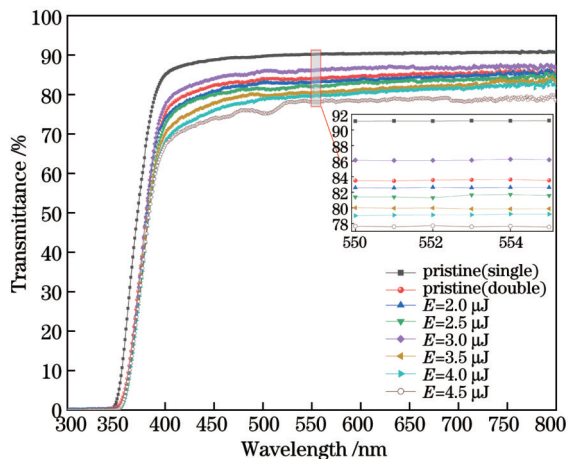


图 6 不同单脉冲能量焊接 LAS 透明微晶玻璃的透过率曲线
Fig. 6 Transmittance curves of LAS transparent glass-ceramics after welding with different pulse energies

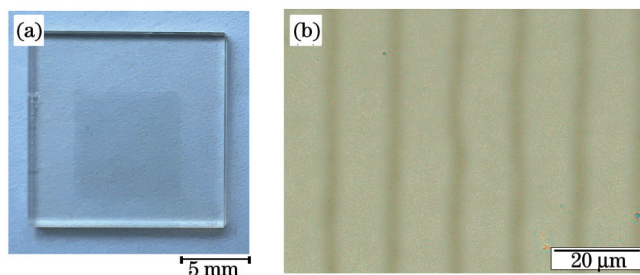


图 7 单脉冲能量为 $2.5 \mu\text{J}$ 的飞秒激光脉冲辐照后的 LAS 透明微晶玻璃。(a) 下层 LAS 透明微晶玻璃实物图; (b) 下层 LAS 透明微晶玻璃的透射显微图像

Fig. 7 LAS transparent glass-ceramic irradiated by femtosecond laser pulses with pulse energy of $2.5 \mu\text{J}$. (a) Physical diagram of lower LAS transparent glass-ceramic; (b) transmission microscopy image of lower LAS transparent glass-ceramic

后会发生光致暗化现象^[31],其透过性能会下降。飞秒激光聚焦在LAS透明微晶玻璃材料内部,引起聚焦区域的非线性吸收,LAS透明微晶玻璃中的价带电子被激发到导带中,同时在价带中留下空穴。当材料中激发的自由电子和空穴在LAS透明微晶玻璃中移动时,易被玻璃中的缺陷捕获,从而形成色心^[32],导致辐照区域的光学透过率下降。单脉冲能量增加至4.5 μJ时,飞秒激光辐照后LAS透明微晶玻璃的透过率相对于两片堆叠的原始LAS透明微晶玻璃下降了8%。高能量的飞秒激光脉冲作用于LAS透明微晶玻璃样品后,焊接区域产生了许多微纳孔洞,焊缝周围产生大量飞溅物,这些孔洞和飞溅物会对传输光产生散射作用,从而降低LAS透明微晶玻璃的透过率。

为了实现LAS透明微晶玻璃焊接,需保证激光脉冲引起的改性区横跨玻璃分界面,并且保证激光能量在分界面处引起足够的熔化量,避免能量过大引发界面烧蚀。脉冲能量的增加会使得改性区向激光源方向偏移,导致熔池在分界面处偏向激光源方向。通过调控激光束单脉冲能量及焦点相对于分界面的偏移量(简称相对偏移量),获得了不同激光能量与偏移量的焊接窗口,如图8(a)所示。通过焦点位置的偏移来补偿由脉冲能量增加引起的改性区偏移,增大了LAS透明微晶玻璃的能量焊接窗口,同时获得了更高的剪切强度,如图8(b)所示,在焦点偏移量为-500 μm、脉冲能量为3.5 μJ时,焊接后的LAS透明微晶玻璃的剪切强度高达(30.41±1.54)MPa。

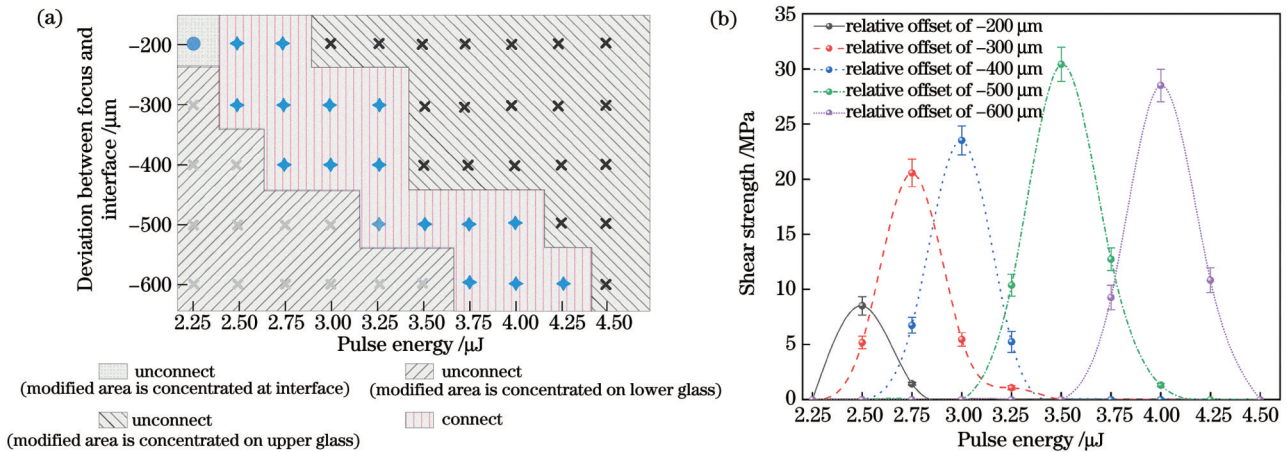


图8 不同激光能量与焦点偏移量下LAS透明微晶玻璃的焊接。(a)焊接工艺窗口;(b)剪切强度曲线

Fig. 8 Welding of LAS transparent glass-ceramics at different laser pulse energies and deviations between focus and interface. (a) Welding process windows; (b) curve of shear strength

飞秒激光脉冲辐照LAS透明微晶玻璃前、后的X射线衍射图谱(XRD)如图9所示。飞秒激光脉冲辐照LAS透明微晶玻璃样品前、后的衍射峰一致,衍射峰强度未发生明显变化,说明单脉冲能量为3.0 μJ的飞秒激光辐照LAS透明微晶玻璃后未产生新的晶相。

样品含有SiO₂相和β-石英固溶体(Li_xAl_xSi_{3-x}O₆)晶相,β-石英固溶体比SiO₂具有更高的热稳定性。随着温度的升高,LAS透明微晶玻璃中的β-石英固溶体晶相转变为β-锂辉石晶相,最后变为液相^[33]。倘若β-石英固溶体发生熔化后冷却,则辐照区域可产生新的β-锂辉石晶相。因此,在LAS透明微晶玻璃焊接过程中,SiO₂玻璃相熔化形成熔池后冷却,从而建立起焊接区域。

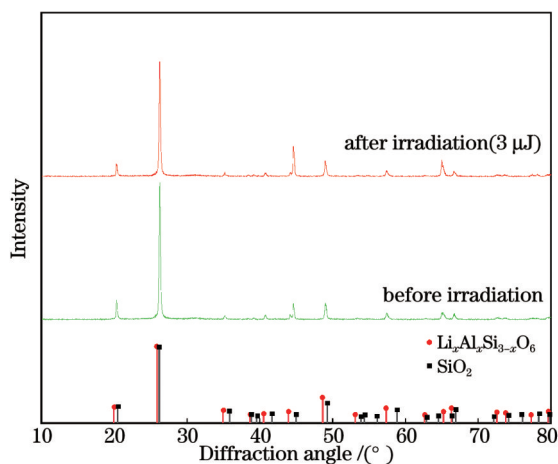


图9 飞秒激光辐照LAS透明微晶玻璃前、后的XRD图谱

Fig. 9 XRD patterns of LAS transparent glass-ceramics before and after femtosecond laser irradiation

4 结 论

飞秒激光脉冲经长焦距扫描振镜系统聚焦后,在LAS透明微晶玻璃内部产生长丝状纵向改性区域,长丝状改性区的出现大大降低了焊接过程中的定位难度。利用飞秒激光脉冲实现了LAS透明微晶玻璃的非光学接触式单次扫描焊接。实验表明,随着激光脉冲能量的增加,改性区逐渐远离焦点向激光源方向移动,从而使得分界面处的焊缝宽度先上升至10.7 μm后逐渐减小。焊接过程中透过率下降主要是两种机制:低脉冲能量下折射率改变引起玻璃内部的光传输变化和高脉冲能量下微纳孔洞引起散射损失。在激光

脉冲宽度为 300 fs、波长为 1030 nm、单脉冲能量为 3.0 μJ 时,利用 500 kHz 高重复频率下的热积累效应,实现了 LAS 透明微晶玻璃在 100 mm/s 高速扫描下分界面处的有效焊接,焊接后剪切强度高达 23.51 MPa,透过率相对于两片堆叠的原始 LAS 透明微晶玻璃增大了 3%。通过调控激光束能量及焦点相对于玻璃分界面的偏移量,增大了 LAS 透明微晶玻璃焊接的能量窗口,获得了更高的剪切强度,焊接后 LAS 透明微晶玻璃最大剪切强度为 30.41 MPa。XRD 结果表明,飞秒激光脉冲辐照 LAS 透明微晶玻璃样品后未产生新的晶相,其焊接过程主要是 SiO_2 玻璃相熔化后实现焊接面的强连接。

参 考 文 献

- [1] Sun Y, Yu D Q, Yang S S, et al. Development of through glass tungsten via interconnect for 3D MEMS packaging[C]//2011 IEEE 13th Electronics Packaging Technology Conference, December 7-9, 2011, Singapore. New York: IEEE Press, 2011: 774-776.
- [2] Hélie D, Lacroix F, Vallée R. Bonding of optical materials by femtosecond laser welding for aerospace and high power laser applications[J]. Proceedings of SPIE, 2012, 8412: 841210.
- [3] Joyce R, Singh K, Varghese S, et al. Effective cleaning process and its influence on surface roughness in anodic bonding for semiconductor device packaging[J]. Materials Science in Semiconductor Processing, 2015, 31: 84-93.
- [4] Pohl L, von Witzendorff P, Suttman O, et al. Automated laser-based glass fusing with powder additive[J]. ICALEO, 2014(2014): 528-532.
- [5] de Pablos-Martin A, Hoeche T. Laser welding of glasses using a nanosecond pulsed Nd:YAG laser[J]. Optics and Lasers in Engineering, 2017, 90: 1-9.
- [6] 李佳群, 闫剑锋, 李欣, 等. 透明介质材料的超快激光微纳加工研究进展[J]. 中国激光, 2021, 48(2): 0202019.
Li J Q, Yan J F, Li X, et al. Research advancement on ultrafast laser microprocessing of transparent dielectrics[J]. Chinese Journal of Lasers, 2021, 48(2): 0202019.
- [7] 梁密生, 李欣, 王猛猛, 等. 空间整形飞秒激光加工金属微细槽实验研究[J]. 中国激光, 2021, 48(2): 0202003.
Liang M S, Li X, Wang M M, et al. Spatially-shaped femtosecond laser manufacturing of microgrooves in metals[J]. Chinese Journal of Lasers, 2021, 48(2): 0202003.
- [8] 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.
- [9] Tamaki T, Watanabe W, Nishii J, et al. Welding of transparent materials using femtosecond laser pulses[J]. Japanese Journal of Applied Physics, 2005, 44(5L): L687-L689.
- [10] Sugioka K, Iida M, Takai H, et al. Efficient microwelding of glass substrates by ultrafast laser irradiation using a double-pulse train[J]. Optics Letters, 2011, 36(14): 2734-2736.
- [11] Butkus S, Gaizauskas E, Paipulas D, et al. Rapid microfabrication of transparent materials using filamented femtosecond laser pulses[J]. Applied Physics A, 2014, 114(1): 81-90.
- [12] Chen J Y, Carter R M, Thomson R R, et al. Avoiding the requirement for pre-existing optical contact during picosecond laser glass-to-glass welding[J]. Optics Express, 2015, 23(21): 28104-28105.
- [13] Richter S, Zimmermann F, Eberhardt R, et al. Toward laser welding of glasses without optical contacting[J]. Applied Physics A, 2015, 121(1): 1-9.
- [14] Richter S, Zimmermann F, Tünnermann A, et al. Laser welding of glasses at high repetition rates-fundamentals and prospects[J]. Optics & Laser Technology, 2016, 83: 59-66.
- [15] Cvecek K, Dehmel S, Miyamoto I, et al. A review on glass welding by ultra-short laser pulses[J]. International Journal of Extreme Manufacturing, 2019, 1(4): 4-13.
- [16] Gstalter M, Chabrol G, Bahouka A, et al. Long focal length high repetition rate femtosecond laser glass welding[J]. Applied Optics, 2019, 58(32): 8858-8864.
- [17] 于森, 黄婷, 肖荣诗. 长焦距绿光飞秒激光玻璃焊接[J]. 中国激光, 2020, 47(9): 0902005.
Yu M, Huang T, Xiao R S. Long focal length green femtosecond laser welding of glass[J]. Chinese Journal of Lasers, 2020, 47(9): 0902005.
- [18] Alpakut G, Ünlü M B, Yavas S. Femtosecond-pulsed glass welding of chemically tempered aluminosilicate glasses[J]. Proceedings of SPIE, 2021, 11674: 116741I.
- [19] Deubener J, Allix M, Davis M J, et al. Updated definition of glass-ceramics[J]. Journal of Non-Crystalline Solids, 2018, 501: 3-10.
- [20] Beall G H, Pinckney L R. Nanophase glass-ceramics[J]. Journal of the American Ceramic Society, 2004, 82(1): 5-16.
- [21] El-Meliogy E, van Noort R. Glasses and glass ceramics for medical applications[M]. New York: Springer, 2012.
- [22] Fu L, Engqvist H, Xia W. Glass-ceramics in dentistry: a review[J]. Materials, 2020, 13(5): 1049.
- [23] Cvecek K, Stenglein F, Miyamoto I, et al. Influence of wavelength on glass welding by ultra-short laser pulses[J]. Journal of Laser Micro, 2017, 12(2): 115-119.
- [24] Tang Z R, Shi T L, Liao G L, et al. Modeling the formation of spontaneous wafer direct bonding under low temperature[J]. Microelectronic Engineering, 2008, 85(8): 1754-1757.
- [25] Cvecek K, Odato R, Dehmel S, et al. Gap bridging in joining of glass using ultra short laser pulses[J]. Optics Express, 2015, 23(5): 5681-5693.
- [26] Maharjan N, Zhou W, Zhou Y, et al. Ablation morphology and ablation threshold of Ti-6Al-4V alloy during femtosecond laser processing[J]. Applied Physics A, 2018, 124(8): 519.
- [27] Senn F, Holtz R, Gross-Barsnick S M, et al. Frequency dependence of nonlinear absorption in fused silica measured with picosecond pulses at various focal lengths[J]. Optics Express, 2019, 27(20): 27628-27636.
- [28] Zhang J J, Chen S H, Lu H L, et al. The effect of gap on the quality of glass-to-glass welding using a picosecond laser[J]. Optics and Lasers in Engineering, 2020, 134: 106248.
- [29] Karras C, Litzkendorf D, Grimm S, et al. Nonlinear refractive index study on SiO_2 - Al_2O_3 - La_2O_3 glasses[J]. Optical Materials Express, 2014, 4(10): 2066-2077.
- [30] Cao J, Poumellec B, Brisset F, et al. Pulse energy dependence of refractive index change in lithium niobium silicate glass during femtosecond laser direct writing[J]. Optics Express, 2018, 26(6): 7460-7474.
- [31] 姜雄伟, 邱建荣, 朱从善, 等. 飞秒激光作用下光学玻璃和激光玻璃的光致暗化及其 ESR 研究[J]. 物理学报, 2001, 50(5): 871-874.
Jiang X W, Qiu J R, Zhu C S, et al. ESR studies and thresholds of femtosecond laser induced darkening in glasses[J]. Acta Physica Sinica, 2001, 50(5): 871-874.
- [32] Efimov O M, Gabel K, Garnov S V, et al. Color-center generation in silicate glasses exposed to infrared femtosecond pulses[J]. Journal of the Optical Society of America B, 1998, 15(1): 193-199.
- [33] 程金树, 李宏, 汤李纓, 等. 微晶玻璃[M]. 北京: 化学工业出版社, 2006: 136.
Cheng J S, Li H, Li T Y, et al. Sital[M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2006: 136.

Experimental Study on Transparent Glass-Ceramic Welding with Femtosecond Laser Pulses

Chen Guanhua^{1,2,3}, Xiao Pulu^{1,2,3}, Zhang Xiang^{1,2,3}, Chen Yu⁴, Yuan Xiao^{1,2,3*}

¹*School of Optoelectronic Science and Engineering, Soochow University, Suzhou 215006, Jiangsu, China;*

²*Key Lab of Advanced Optical Manufacturing Technologies of Jiangsu Province, Suzhou 215006, Jiangsu, China;*

³*Key Lab of Modern Optical Technologies of Education Ministry of China, Soochow University, Suzhou 215006, Jiangsu, China;*

⁴*Amplitude (Shanghai) Laser Technology Co., Ltd., Suzhou 215123, Jiangsu, China*

Abstract

Objective Transparent glass-ceramics have attracted widespread attention as a composite material with excellent performance, and potential applications require the welding of the heat-tempered glass. Femtosecond laser, as a promising tool for processing in recent years, has been widely used in the field of processing due to its characteristics of high peak power, small heat-affected zone caused in the material, high processing accuracy, and wide range of applicable materials. However, a great deal of research work has been done based on the welding of untempered glass, and the welding of tempered glass is rarely reported. There are two ways to temper glasses, one is chemical tempering, and the other is thermal tempering. The thermally tempered glass can buffer part of the external stress and inhibit the melt from filling glass gap, thus increasing the difficulty of glass welding. To our knowledge, the non-optical contact welding of Li₂O-Al₂O₃-SiO₂ (LAS) transparent glass-ceramics with zero thermal expansion coefficient has been studied by femtosecond laser pulses for the first time. This study has potential significance for the further expansion of the applications of LAS transparent glass-ceramics.

Methods A femtosecond laser beam with a wavelength of 1030 nm is used for experimental studies of glass welding to reduce the cracking tendency during the glass welding process. A lens with a focal length of 100 mm is used to focus the femtosecond laser beam, and the temperature gradient of the focused spot is smoother, which reduces the residual stresses induced during welding process. In order to achieve a strong heat accumulation effect of the femtosecond laser pulse inside the LAS transparent glass-ceramics, the repetition rate is kept at 500 kHz. And the spots between scanning lines are guaranteed to have certain overlap. The morphology and the shear strength of the welding region of LAS transparent glass-ceramics welded by femtosecond laser with different energies are studied, and the transmittance of the welded glass is measured. The energy window of LAS transparent glass-ceramic welding is obtained by simultaneously changing the energy of laser beam and the deviation between focus and interface. The physical phase analysis of LAS transparent glass-ceramics after welding is carried out using X-ray diffraction pattern.

Results and Discussions Femtosecond laser beam focused by a long focal length scanning galvanometer system produced long filamentary longitudinal modification regions inside LAS transparent glass-ceramics (Fig. 2). It was caused by the self-focusing effect of the femtosecond laser beam propagating inside the LAS transparent glass-ceramics, which was balanced by the self-scattering effect formed by beam diffraction and plasma generation. With the increase in pulse energy from 2.0 μJ to 4.5 μJ, the weld width increased first and then decreased, and the maximum weld width reached 10.7 μm (Fig. 4). The transmittance decrease (Fig. 6) in the welding process is mainly caused by two mechanisms: the change of light transmission inside the glass caused by the change of refractive index at low pulse energy (Fig. 7) and the scattering loss caused by micro-nano pores at high pulse energy. The displacement of the modification region caused by the increase of pulse energy was compensated by the deviation of the focus position, which enlarged the energy welding window of LAS transparent glass-ceramics and obtained higher shear strength (Fig. 8). When the pulse energy was 3.5 μJ and the deviation between focus and interface was -500 μm, the shear strength of welded LAS transparent glass-ceramics reached (30.41 ± 1.54) MPa. The diffraction peaks of the LAS transparent glass-ceramics before and after femtosecond laser irradiating were consistent, and the intensity of the diffraction peaks did not change significantly (Fig. 9), indicating that no new crystalline phase was generated in the irradiated area of the LAS transparent glass-ceramics.

Conclusions Non-optical contact single scanning welding of LAS transparent glass-ceramics is achieved with femtosecond laser pulse for the first time. With the increasing of pulse energy, the optical transmittance of LAS transparent glass-ceramics decreases. The modification areas gradually move in the direction to the laser source as the pulse energy increases, and the widths of the weld seams at the interface increase to 10.7 μm and then decrease. When the laser pulse width is 300 fs, wavelength is 1030 nm, and single pulse energy is 3.0 μJ, the effective welding of LAS transparent glass-ceramics at the interface under the 100 mm/s high-speed scanning is achieved by using the heat accumulation effect at the high repetition rate of 500 kHz, and the shear strength after welding is as high as 23.51 MPa. The transmittance is 3% higher than that of two stacked original LAS transparent glass-ceramics. The energy window of LAS transparent glass-ceramic welding is enlarged and higher shear strength is obtained by controlling the laser beam energy and the deviation between focus and interface. The X-ray diffraction shows that the LAS transparent glass-ceramics welding is achieved without generating new crystal phase. The welding process is mainly establishing a strong connection at the glass interfaces after the melting of the SiO₂ glass phase.

Key words laser technique; femtosecond laser; transparent glass-ceramic; glass welding; single pulse energy; non-optical contact