

文章编号 1004-924X(2016)12-2969-06

激光钕玻璃连续熔炼技术

唐景平, 王 标, 陈树彬, 陈 伟, 胡丽丽*
(中国科学院 上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

摘要:介绍了中国科学院上海光学精密机械研究所开展的激光钕玻璃连续熔炼技术,描述了该项技术近年来的研究进展和研究成果。给出了 N31 激光钕玻璃的连续熔炼流程,介绍了开展的磷酸盐钕玻璃连续熔炼单元技术的模拟,连续熔炼实验线的设计、建设、改造和验证等大量工作。成功完成了除羟基、除铂颗粒、过渡金属杂质离子控制、大尺寸成型和低应力隧道窑退火等一系列关键单元技术,实现了 N31 钕玻璃的连续熔炼批量制造。实验显示:连续熔炼 N31 激光钕玻璃的荧光寿命、激光波长吸收损耗、光学均匀性等指标达到了神光装置的使用要求。比较结果显示:连续熔炼钕玻璃的参数一致性和 400 nm 吸收系数指标均优于坩埚熔炼的激光玻璃;而它的 3 333 nm 吸收系数和铂颗粒破坏阈值优于美国劳伦斯利弗莫尔国家实验室报道的连续熔炼 LHG-8 钕玻璃。

关键词:激光玻璃,钕玻璃;连续熔炼,除羟基,除铂颗粒,综述

中图分类号:TN244;TQ171.776 **文献标识码:**A **doi:**10.3788/OPE.20162412.2969

Continuous melting technology of neodymium laser glass

TANG Jing-ping, WANG Biao, CHEN Shu-bin, CHEN Wei, HU Li-li*

(Shanghai Institute of Optics & Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

* Corresponding author, E-mail: hulili@siom.ac.cn

Abstract: This paper focuses on the continuous melting technology of neodymium laser glass carried out by Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics of the Chinese Academy of Sciences since 2005. It describes the research progress and some achievements of the technology. The continuous melting processing of N31 laser Nd glass is given, continuous melting of phosphate glass is simulated and a lots of experiments on the design, establishment, improvement and verification of the continuous melting line are carried out. A series of key technologies of continuous melting such as hydroxyl-removal, Pt-inclusion removal, and transition metal impurity control, large size casting and birefringence control in lehr annealing are solved and the mass production of N31 laser glass is realized. The experimental achievements show that the fluorescent lifetime, laser attenuation at 1 053 nm, optical homogeneity and other properties of the continuous melted laser glass meet the requirements of the Shenguang facility. The comparison experiments show that the optical parameter homogeneity and absorption coefficient at 400 nm of the continuous melted laser glass are superior to those of the pot melted glass. Moreover, the absorption coefficient at 3 333 nm and larger laser damage threshold caused by platinum inclusion of the N31 laser glass are better than those of LHG-8 glass used in Law-

收稿日期:2016-10-13;修订日期:2016-12-01.

基金项目:国家 863 高技术研究发展计划资助项目;国家重大科技专项资助项目;中国科学院知识创新工程重要方向项目

rence Livermore National Laboratory in the United States.

Key words: neodymium laser glass; phosphate laser glass; continuous melting; hydroxylation removal, Pt-inclusion removal; review

1 引言

磷酸盐激光钕玻璃具有优良的光谱物理和增益放大特性,被广泛应用于大型激光装置中^[1-3]。为适应美国 NIF 和法国 LMJ 激光装置对激光玻璃物理性质、参数一致性和数千片的数量要求^[4-5],由美国和法国政府投资,Shotto 和 Hoya 从 20 世纪 90 年代起开展激光钕玻璃的连续熔炼工艺技术研究,经过 6 年的努力,于 2000 年试制成功,最终两家公司在美国本土建立了 2 条磷酸盐激光钕玻璃连续熔炼生产线,2002 年美国 NIF 装置需要的 3 072 片大尺寸钕玻璃及备片全部完成。磷酸盐激光钕玻璃的连续熔炼研制成果被认为是美国 NIF 装置建设中取得的 7 大奇迹之首。他们对这项技术极为保密,其钕玻璃产品研究结果发表在一些公开的杂志上^[4-7],迄今为止却未见到其相关的磷酸盐玻璃连续熔炼装置和工艺技术的报道。

上海光机所在过去几十年工作积累中,形成了以 N31 玻璃为代表,半连续熔炼技术为核心的包括磷酸盐激光钕玻璃配方、工艺、生产设备和性能检测在内的一系列研究成果。神光 III 主机装置建设和未来国家专项工程对钕玻璃的需求量急剧增长,半连续熔炼的产能不能满足要求。更为重要的是,为实现激光聚变所需的巨大能量,后续的神光系列装置光束路数多,并且要求每路激光输出的能量和光束质量保持高度一致性。采用坩埚熔炼方法制备的钕玻璃片较难满足其性能要求,必须研究激光钕玻璃连续熔炼的新技术,为国家专项工程的实施做好前期技术准备。

2 N31 激光钕玻璃的连续熔炼流程

激光钕玻璃的连续熔炼过程如图 1 所示,高纯度的粉料混合均匀后 24 h 不间断地投入熔化池中,这些原料仅含有痕量的过渡金属杂质离子(<10 ppm)。配合料在熔化池中熔化并混合均匀后流入功能池,在功能池中通入氧气和反应性

气体以去除玻璃中的残余水分,通过控制铂金坩埚中的氧化-还原气氛去除玻璃中的铂金颗粒。玻璃从功能池流入澄清池,通过高温和使用适当的澄清剂去除玻璃中的气泡。澄清后的玻璃流入均化池,通过搅拌在这里进行充分均匀混合以达到 10^{-6} 的光学均匀性。均化后的钕玻璃通过铂金管导入成型模具,形成厚约 5 cm、宽 0.5 m 的钕玻璃进入隧道窑,经过隧道窑退火后,钕玻璃从 500~600 °C 的高温慢慢冷却到室温,在隧道窑的末端切割成约 1 m 的钕玻璃片。

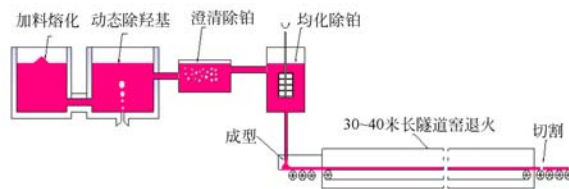


图 1 激光钕玻璃的连续熔炼过程示意图

Fig. 1 Schematic representation of laser glass melting systems

3 N31 激光钕玻璃连续熔炼技术研究进展

自 2005 年起,上海光机所启动了 N31 磷酸盐激光钕玻璃的连续熔炼关键单元技术的前期研究。10 年来开展了包括磷酸盐钕玻璃连续熔炼单元技术的模拟、连续熔炼实验线的设计建设和改造、验证并集成连熔关键单元技术、连续熔炼中试线设计建设及实验等工作,获得了批量性能指标符合神光系列装置要求的 400 mm 口径 N31-35 钕玻璃连续熔炼玻璃样片,制定了熔制工艺和在线参数检测规范文件。为后续激光钕玻璃的批量制备奠定了基础。N31 激光钕玻璃的连续熔炼技术研究进程分为二个阶段:

第一阶段:2005~2011 年,主要开展磷酸盐激光钕玻璃连续熔炼关键单元技术的研究和实验线的设计建设和运行^[8-9]。

2005 年开展理论研究,建立熔窑等关键单元技术的模型;2006 年完成钕玻璃连续熔炼实验线

的设计,并在实验线上开展了数次 N31 激光钕玻璃的连续熔炼实验。通过研究,在实验线上攻克了 N31 钕玻璃连续熔炼动态除羟基、杂质控制、除铂颗粒、隧道窑退火炸裂、成型条纹等系列关键技术难题。2011 年成功地在钕玻璃连续熔炼实验线上获得了 400 mm 口径 N31 钕玻璃连续熔炼钕玻璃样片。

第二阶段:2011~2015 年,主要开展磷酸盐激光钕玻璃连续熔炼中试线的设计建设和运行,并实现 N31 激光钕玻璃连续熔炼批量制造的验证。

以连续熔炼实验线设计为参考,以满足神光系列装置技术指标的 400 mm 口径 N31 钕玻璃批量研制为目标,开展 N31 钕玻璃连续熔炼中试线的设计建设。并开展了 3 次连续熔炼中试实验。在中试线上集成了 N31 激光钕玻璃的连续熔炼关键单元技术,稳定了连续熔炼工艺,获得了批量 400 mm 口径 N31 连熔钕玻璃合格片,并成功实现了在神光装置上的批量应用。标志着连续熔炼 N31 激光钕玻璃进入实用阶段。

中试试验过程中,通过完善池炉结构设计,减少了连续熔炼过程 N31 磷酸盐钕玻璃对耐火材料的侵蚀,降低了激光波长的光吸收损耗,延长了池炉使用寿命和连续熔炼有效运行时间。同时,N31 钕玻璃连续熔炼除羟基、除铂颗粒、成型、隧道窑退火及精密退火工艺得到进一步稳定,N31 激光钕玻璃的荧光寿命、损耗、均匀性等各项技术指标和成品率稳步提升。

表 1 所示为 3 次连续熔炼中试试验的 N31 钕玻璃荧光寿命、 $3\ 000\ \text{cm}^{-1}$ 吸收系数、耐火材料和铁等杂质含量及损耗和成品率的进展情况。从表 1 数据可知,连熔 N3135 钕玻璃的主要技术参数得到逐步改进提高,连续熔炼工艺逐年稳定。

表 1 三次连熔中试实验 N3135 钕玻璃的
荧光寿命、铁含量及损耗

Tab. 1 Fluorescent lifetime, iron impurity and optical loss of the laser glass by 3 pilot continuous melting experiments

实验次数	Fe_2O_3 (ppm)	1 053 nm 损耗($\% \text{cm}^{-1}$)	3 333 nm 吸收系数(cm^{-1})	荧光寿命(μs)
第 1 次	10~15	0.14	0.8~1.5	310
第 2 次	10~15	0.13	0.5~1.4	310~315
第 3 次	10~15	0.12	0.5~1.4	310~315

4 连续熔炼 N31 激光钕玻璃的性能

表 2 所示为连续熔炼与坩埚熔炼的 N3135 激光钕玻璃的主要参数,其光学性质与激光性质基本相同,连续熔炼 N3135 钕玻璃 400 nm 吸收系数小,表明连续熔炼 N3135 钕玻璃中的铂离子浓度低于坩埚熔炼,连续熔炼激光玻璃该指标优于坩埚熔炼。

表 2 连续熔炼与坩埚熔炼 N3135 激光玻璃的性质比较
Tab. 2 Properties of N3135 laser glass by continuous melting and discontinuous melting

激光玻璃性质	连续熔炼	坩埚熔炼
激光性质		
Nd^{3+} 浓度. (10^{20} ions/ cm^3)	$3.4 \pm 1\%$	$3.4 \pm 1\%$
受激发射截面 (10^{-20} cm^2)	3.8~3.9	3.8 ± 0.2
荧光寿命 (μs)	310	310
激光波长的有效线宽(nm)	25.4	25.4
激光中心波长(nm)	1 053	1 053
400 nm 吸收系数(cm^{-1})	0.06-0.10	≤ 0.25
3 333 nm 吸收系数(cm^{-1})	< 1.5	< 1.5
1 053 nm 损耗 ($\% \text{cm}^{-1}$)	≤ 0.15	≤ 0.15
表面损伤阈值(1 064 nm, 3 ns)	$12 \sim 16\ \text{J}/\text{cm}^2$	$12 \sim 16\ \text{J}/\text{cm}^2$
光学性质		
折射率		
$n_d(587.3\ \text{nm})$	$1.540\ 7 \pm 0.000$	1.540 ± 0.003
$n_l(1\ 053\ \text{nm})$	$1.533\ 4 \pm 0.000$	1.532 ± 0.003
非线性折射率系数 $n_2(10^{-13}\ \text{esu})$	1.21 ± 0.1	1.15 ± 0.1
光学均匀性	$\pm 2 \times 10^{-6}$	$\pm 2 \times 10^{-6}$
阿贝数	64.9	65.0
$dn/dT(10^{-6}/^\circ\text{C})(20 \sim 100\ ^\circ\text{C})$	-4.2	-4.2
热性质		
转变温度 $T_g(^\circ\text{C})$	451	450
转化温度 $T_f(^\circ\text{C})$	488	485
热膨胀系数($10^{-7}/\text{K})(20 \sim 300\ ^\circ\text{C})$	124	127
热光系数($10^{-6}/^\circ\text{C})(20 \sim 100\ ^\circ\text{C})$	1.4	1.4
机械性质		
密度(g/cm^3)	2.86	2.86
杨氏模量(kgf/mm^2)	5240	5180
泊松比	0.27	0.27
努氏硬度(0.5HK)	390	340

图 2 所示为连续熔炼和坩埚熔炼的 N3135 激光钕玻璃可见到近红外的透过谱。图 3 所示为连续熔炼与坩埚熔炼 N3135 激光钕玻璃在激光波长折射率的波动情况。连续熔炼 N3135 激光

钕玻璃在 400 nm 附近的透过明显好于坩埚熔炼的激光玻璃,再次表明连续熔炼 N3135 钕玻璃中的铂颗粒指标的优异性。连续熔炼 N3135 钕玻璃的杨氏模量和努氏硬度较坩埚熔炼的偏高,表明其具有更高的强度。最为重要的,对大型激光装置的应用,连续熔炼的 N3135 激光钕玻璃折射率波动明显优于坩埚熔炼的钕玻璃,因而具有更好的光学性能一致性。这对多光路的大型激光系统十分有益,体现了连续熔炼技术的优越性。

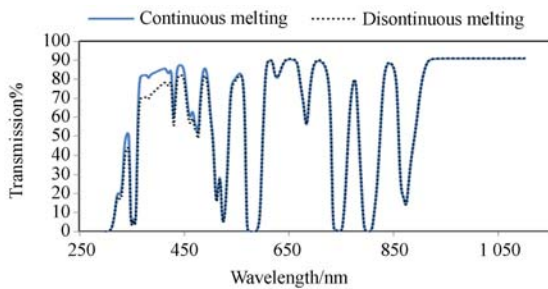


图 2 连续熔炼和坩埚熔炼 N3135 钕玻璃透过光谱
Fig. 2 Spectral transmission of laser glass by continuous melting and discontinuous melting

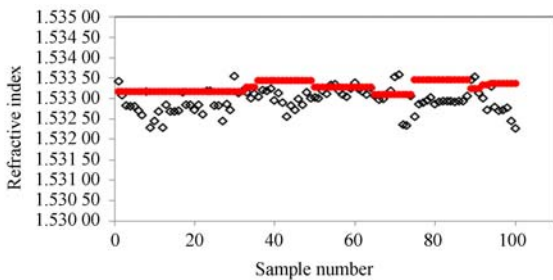


图 3 连续熔炼与坩埚熔炼 N3135 激光钕玻璃在 1 053 nm 波长的折射率波动
Fig. 3 Refractive index fluctuation of N3135 laser glass by continuous melting and discontinuous melting

图 4 所示为连续熔炼和坩埚熔炼的 N3135 激光钕玻璃 3 333 nm 的吸收系数的对比。从图 4 可以看出,2010 年和 2011 年在连续熔炼实验线获得的 N3135 钕玻璃其 3 333 nm 的吸收系数平均值约为 1.2 cm^{-1} ,明显大于 2013 年连续熔炼中试线上 N3135 激光钕玻璃的 0.85 cm^{-1} 。2013 年连续熔炼中试线研制的 N3135 钕玻璃 3 333 nm 的吸收系数平均值与坩埚熔炼的相当。该吸收系数指标优于美国 LLNL 报道的国外连续熔炼 LHG-8 激光钕玻璃 3 333 nm 的吸收系数

(1.46 cm^{-1})^[4]。表明连续熔炼的动态除羟基工艺取得了突破性进展。此外,在用户单位的大能量考核平台测试结果表明,N3135 激光钕玻璃在基频(1 053 nm,5 ns)激光能量密度达到 8.25 J/cm^2 情况下无铂颗粒破坏^[10],而美国报道的连熔 LHG-8 钕玻璃在 6.0 J/cm^2 就出现铂颗粒破坏^[4]。

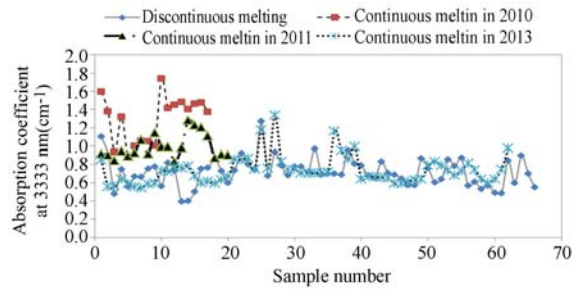


图 4 连熔和坩熔 N3135 钕玻璃 3 333 nm 的吸收系数
Fig. 4 Absorption coefficient at 3 333 nm of N3135 laser glass by continuous melting and discontinuous melting

对精密退火和精密抛光加工后的 400 mm 口径连续熔炼 N3135 钕玻璃的光学均匀性和应力双折射进行抽测,图 5 所示为 400 mm 口径的 N3135 钕玻璃 Zygo 干涉仪的透过波前检测结果,经过检测发现其透过波前为 0.286λ ,小于 $1/3\lambda$ 。计算表明该玻璃的光学均匀性已达到 2×10^{-6} 的要求。表明连熔 400 mm 口径 N31 钕玻璃的光学均匀性达到了神光系列装置指标要求。图 6 所示为 400 mm 口径连续熔炼 N3135 激光玻璃片的应力分布检测结果,其应力双折射已达到 5 nm/cm 的指标要求。

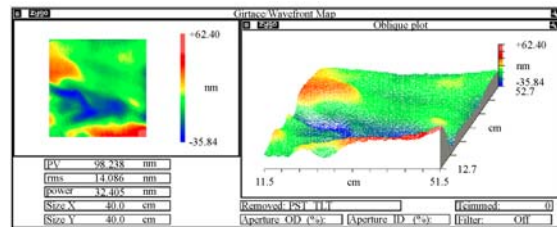


图 5 400 mm 口径连熔 N3135 钕玻璃透过波前图 (PV=0.286λ,λ=633 nm)

Fig. 5 PV value of 400 mm aperture of N3135 neodymium laser glass by continuous melting

在 $4 \times 2 \times 3$ 的 TAB 模块上测试了 400 mm 口径 N3135 钕玻璃片的增益特性,这里 $n \times m \times q$

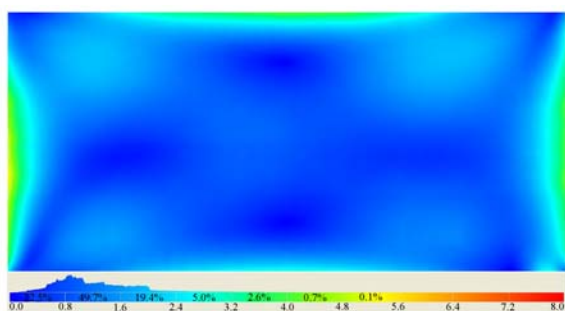
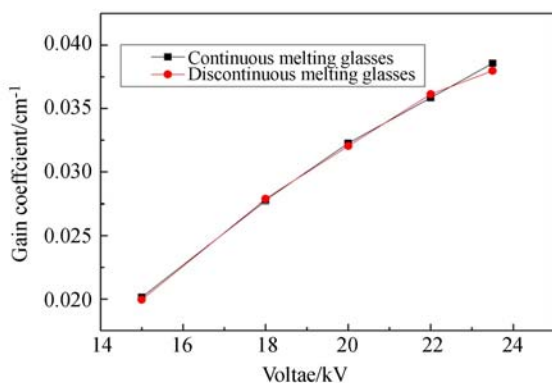


图 6 400 mm 口径连熔 N3135 钕玻璃应力分布图

Fig. 6 Stress distribution of 400 mm aperture of N3135 neodymium laser glass by continuous melting

图 7 $4 \times 2 \times 3$ 装置上 400 mm 口径的连续熔炼与坩埚熔炼 N3135 钕玻璃的增益系数Fig. 7 Gain coefficient of 400 mm aperture of N3135 neodymium laser glass by continuous melting and discontinuous melting in $4 \times 2 \times 3$ laser device

参考文献:

- [1] VAN WONTERGHEM B M, MURRAY J R, CAMPBELL J H, *et al.*. Performance of a prototype for a large-aperture multipass Nd:glass laser for inertial confinement fusion [J]. *Appl Opt*, 1997, 36: 4932-4953.
- [2] HUNT J T, SPECK D R. Present and future performance of the Nova laser system [J]. *Opt Eng.*, 1989, 28 (40): 461-468.
- [3] ZHANG F Q, LIU H, CHEN L Y, *et al.*. Development of measuring parameters system for high-power laser [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2007, 36 (Supl): 68-71.

表示用于测量小信号增益系数的平行放大通道在 3 个维度(高度 \times 宽度 \times 长度)的钕玻璃坯片数。将 $810 \times 460 \times 40 \text{ mm}^3$ 的长方形 N3135 钕玻璃测试片置于放大模块中,相对于 $380 \text{ mm} \times 380 \text{ mm}$ 口径的输入光束成布儒斯特角方向。图 7 测试结果表明,在相同条件下连续熔炼 N3135 钕玻璃的增益系数与坩埚熔炼的激光钕玻璃相当。

5 结 论

通过 10 年的研究开发,上海光机所掌握了 N31 激光玻璃连续熔炼的熔化、除羟基、澄清均化、除铂颗粒、大尺寸成型、低应力隧道窑退火的关键单元技术,并首先在试验线上实现了上述单元技术的集成。通过连续熔炼中试线的设计优化和 3 次连续熔炼中试实验,N31 磷酸盐激光钕玻璃的连续熔炼工艺技术得到稳定和固化。在连续熔炼中试线上获得批量性能指标达标的 400 mm 口径 N31 钕玻璃片。连续熔炼 N3135 激光钕玻璃的主要性能指标优于或达到坩埚熔炼的钕玻璃,连续熔炼激光玻璃的折射率波动远小于坩埚熔炼的激光玻璃,参数一致性显著提高。连续熔炼的 N31 激光钕玻璃满足神光系列装置的应用需求。经对比,N31 激光钕玻璃的 3 333 nm 吸收系数和铂颗粒破坏损伤阈值指标优于国外同类产品。

致谢:2005 年以来上海光机所钕玻璃连续熔炼工艺研究得到了 863-804 专题、中国科学院、国家科技重大专项的大力支持。

- [4] SURATWALA T I, CAMPBELL J H, MILLER P E, *et al.*. Phosphate laser glass for NIF: production status, slab selection and recent technical advances [C]. *SPIE*, 2004, 5341:102-113.
- [5] CAMPBELL J H. 25 Years of laser glass development leading to a 1.8 MJ, 500 TW laser for fusion ignition [C]. *Published on the Proc. of 18th International Congress on Glass, Held in San Francisco*, 1998.
- [6] SURATWALA T, THORSNESS C, CAMPBELL J, *et al.*. Technical advances in the continuous melting of phosphate laser glass [C]. *2nd Conference on Inertial Fusion Sciences and Applications, Kyoto*, 2001, 9-14.

- [7] THORSNESS C B, SURATWALA T I, STEELE R A. Dehydroxylation of Phosphate Laser Glass [C]. SPIE, 2000, 4102:175-194.
- [8] 唐景平, 胡丽丽, 等. 稳态下模拟方池窑的温度场测试[J]. 玻璃与搪瓷(专刊), 2007, 35(S1), 30-35.
TANG J P, HU L L, *et al.*. The testing of temperature field in the simulator of rectangle furnace under stable condition [J]. *Glass & Enamel (Monograph)*.
- [9] 唐景平, 胡丽丽, 千福熹. 稳态下锡电极的轴向温度分布[J]. 武汉理工大学学报, 2007, 29(Suppl)(1): 210-214.
TANG J P, HU L L, GAN F X. Axial temperature gradient of tin oxide electrode in glass melting [J]. *Journal of Wuhan University of Technology*, 2007, 29(supp)(1): 210-214.
- [10] ZHAO J, WANG W, FU X, *et al.*. Recent progress of the integration test bed in SPIE/COS photonics asia [J]. *International Society for Optics and Photonics*, 2014, 92660X-92667.

作者简介:



唐景平(1973—),男,湖南宁远人,博士,正高级工程师,1996年于长春光学精密机械学院获学士学位,2003年于东华大学获得硕士学位,2009年于中国科学院上海光学精密机械研究所获得博士学位,主要从事激光玻璃开发及玻璃熔炼工艺的研究。Email:jjp Tang@siom.ac.cn



胡丽丽(1963—)女,江西南昌人,博士,研究员,博士生导师,1984年于浙江大学获得学士学位,1987年于浙江大学获得硕士学位,1990年于中国科学院上海光学精密机械研究所获得博士学位,长期从事激光玻璃和特种玻璃的应用基础研究工作,稀土掺杂特种光纤的研制。E-mail: hulili@siom.ac.cn