

文章编号: 0258-7025(2010)09-2198-04

中国激光玻璃研究进展

(邀请论文)

姜中宏^{1,2} 杨中民²

(¹ 中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800; ² 华南理工大学, 广东 广州 510641)

摘要 概述了激光玻璃发明近五十年的发展历史,重点阐述了中国激光钕玻璃的研究发展历程,国内外高功率磷酸盐激光钕玻璃的性质,以及它们在国内外大型激光核聚变装置中的应用。介绍了用于激光产生与放大的掺稀土多组分玻璃光纤。

关键词 激光玻璃;惯性约束聚变;玻璃光纤;稀土离子

中图分类号 TN244 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/CJL20103709.2198

Progress on Research and Development of Laser Glass in China

(Invited Paper)

Jiang Zhonghong^{1,2} Yang Zhongmin²

(¹ Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)
(² South China University of Technology, Guangzhou, Guangdong 510641, China)

Abstract This paper has reviewed the development history of laser glass in China since its invention in 1961. The properties and applications of several commercial Nd:phosphate high power laser glasses used in facility of inertial confinement fusion have been described. The performance of rare earth ions doped multi-component glass fibers applied in generation and amplification of laser has been introduced.

Key words laser glass; inertial confinement fusion; glass fibers; rare earth ions

1 国外大型激光核聚变装置研究进展

自 1961 年 E. Snitzer^[1] 发明激光玻璃以来,已经在掺钕、掺铒、掺镱、掺铥、掺钕的多组分玻璃或石英光纤中实现了激光输出。2005 年俄罗斯科学家 E. Dianov 等^[2] 首次实现了掺铍离子的石英光纤的激光输出。

迄今为止,作为块体激光玻璃,钕玻璃在激光核聚变能装置中得到了最为广泛的应用,作为纤维状激光材料,掺铒石英光纤在光通信上得到了最广泛的应用。2010 年 5 月 29 日美国能源部劳伦斯利弗莫尔(LLNL)国家实验室宣布历时 12 年、花费 40 亿美元的世界最大的激光装置——国家点火装置(NIF)建成,将于 2011 年开展实验工作,预计在

2012 年实现点火目标。法国也建有同样规模的实验装置,计划于近年建成。这两座装置由 192 束钕玻璃激光聚焦产生 10^{15} W 的高功率最终实现点火。美国 NIF 装置比世界第二大的罗彻斯特大学的欧米伽装置的功率大 60 倍。俄罗斯正在建造一座火星 6 号激光聚变装置,计划使用 128 束钕玻璃激光,2014 年建成。我国神光 III 后也计划建造更高功率的激光装置。

2 中国激光玻璃研制的回顾

我国的激光玻璃的研制在 1962 年中期由于福熹提出,姜中宏具体负责进行激光玻璃的研制工作。其历程可简单概括为:1962 年开展玻璃成分及 12 种稀

收稿日期:2010-06-10; 收到修改稿日期:2010-07-10

作者简介: 姜中宏(1930—),男,无机非金属材料专家,1999 年当选为中国科学院院士。长期从事光学材料和激光玻璃领域的研究,先后研制成功三种强激光用钕玻璃材料,分别为:高能激光系统用的硅酸盐钕玻璃;高功率激光系统“神光 II”和“神光 III”预研装置用的 II 型(N21)和 III 型(N31)磷酸盐钕玻璃。在理论研究中,根据混合键型玻璃形成特性,首次提出用相图热力学算法,实现了玻璃形成区的半定量预测。采用连续相变方法推导出非对称不溶区。研究玻璃结构的相图模型,提出玻璃是由最邻近的同成分熔融化合物的混合物构成理论,可计算玻璃中的基团及硼酸位数比例。将热力学反应判据用于清除铂金机理研究,通过预测的计算,找到了合适的工艺条件。作为主编撰写有《新型光功能玻璃》一部著作。曾获 1985 年,1987 年国家科技进步二等奖,1990 年中国科学院科技进步一等奖,2000 年上海市科技进步一等奖。

土氧化物玻璃光谱工作。1963年4月27日采用王之江设计的球形装置,用3 cm 钽玻璃棒,经汤星里测定首次出现1064 nm 的激光,1963年底输出1 J 的激光能量。1964年成立中国科学院上海光学精密机械研究所(简称上海光机所)。1964年原定红宝石激光输出的指标为100 J,但到年中红宝石激光输出仍不能突破10 J,当时李明哲副所长决定与玻璃室另组突击队,由姜中宏、蔡英时、李锡善、沈冠群、李成富组成,在10月获得107 J 的激光输出,当即决定采用钽玻璃主攻1000 J 激光输出任务,并组织中国科学院长春光学精密机械研究所、上海光机所和新沪玻璃厂提供大尺寸激光玻璃。经过王之江、沈冠群改进激光装置,年底完成了1000 J 输出任务。1965年钽玻璃输出达到 1×10^4 J(当时美国最高输出为7000 J)。

文化大革命期间,在王之江主持下,大能量装置的激光输出超过 3×10^5 J,当时在新沪玻璃厂生产的钽玻璃棒长度达到5 m,直径超过25 cm,都是世界最大的。但因为激光亮度无法提高,最后由王之江提出,经钱学森同意,停止大能量激光钽玻璃的研制工作。与此同时,由邓锡铭、余文炎负责的高功率激光取得突破,继打出中子(10^9 W)后激光功率提高的工作进展顺利,因此决定将大能量工作与大功率工作合并,钽玻璃的研制也从硅酸盐激光玻璃进入磷酸盐激光玻璃。

1980年后,中国科学院上海光机所建成了我国最大的激光驱动器,时任国务院副总理兼国防部长张爱萍亲笔为该装置题名“神光”,上海光机所根据装置使用要求,进行了磷酸盐玻璃的脱水、除铂金工艺试验取得成功。与此同时,蒋亚丝进行了氟磷钽玻璃的研制工作。

20世纪90年代为了适应神光装置的升级要求,上海光机所研制成功了与HOYA的LHG-8性能相当的N31钽玻璃和一批非线性折射率较低、受激发射截面较高的磷酸盐激光钽玻璃,改进了除水、除铂工艺,形成了二步法、半连续熔炼工艺,并开始了连续熔炼工艺试验。半连续熔炼制备的钽玻璃产品达到国外同类产品水平,提供给有关装置使用,并获得了国家科技进步二等奖二次、中国科学院一等奖一次、上海市科技进步一、二等奖各一次。

3 高功率激光钽玻璃研究进展

单次脉冲峰值功率大于 10^9 W 的输出激光称为高功率激光,应用在这类激光器中的激光钽玻璃称为高峰值功率激光钽玻璃,简称高功率激光钽玻璃。高

功率激光钽玻璃经历了从20世纪70年代以ED-2为代表的掺钽硅酸盐激光玻璃发展到20世纪80年代初以来以LHG-8为代表的掺钽磷酸盐激光玻璃。其制备工艺也从最初的单坩埚熔炼发展到现在的连续熔炼工艺^[3]。20世纪80年代以来,以美国为首的西方国家相继开展大型激光器驱动的惯性约束聚变(ICF)装置的研究,以解决人类共同面对的能源紧缺问题。该大型激光装置使用的激光放大器工作物质就是高功率激光钽玻璃。磷酸盐玻璃由于其声子能量适中、对稀土离子溶解度高、稀土离子在其中的光谱性能好、对铂金离子的溶解度高、非线性系数小,成为ICF装置中广泛使用的激光玻璃介质。磷酸盐激光玻璃最早的研究开始于20世纪70年代,应用于国内外大型ICF装置的高功率激光钽玻璃的典型代表是HOYA公司的LHG-8和Schott公司的LG-770,中国上海光机所的N31钽玻璃^[4,5],以及俄罗斯的KGSS-0180^[6]。表1是LG-770, LHG-8, N31和KGSS-0180钽玻璃的性能比较。上述4种玻璃在国内外大型ICF装置中发挥着重要的作用。

在过去的几十年中,由于ICF装置的输出功率要求不断提高,对磷酸盐激光钽玻璃的质量和数量的要求也不断提高,钽玻璃的制备工艺技术也获得了突飞猛进的发展,从单坩埚熔炼、半连续熔炼发展到了连续熔炼,ICF装置上使用的钽玻璃从通光口径为100 mm小尺寸、单块体积 2×10^{-3} m³的元件发展到了现今400 mm通光口径、单块体积 1.5×10^{-2} m³,尺寸为460 mm×810 mm×40 mm的特大光学元件。

相比于一般光学玻璃,大型高功率激光装置应用的激光钽玻璃性能要求极其特殊,激光钽玻璃的制备工艺包括配料、熔制、成型、粗退火、光学和光谱性能检测、精密退火、应力检测、包边和精密抛光加工的诸多环节。钽玻璃的制备工艺必须同时满足高光学均匀性、气泡、荧光寿命、吸收损耗、铂颗粒和应力均匀性的指标要求。制造难度非常之大。

值得一提的是,20世纪末,随着美国NIF和法国LMJ二大高功率激光装置的兴建,需要总量为近8000片的810 mm×460 mm×40 mm尺寸的磷酸盐钽玻璃。坩埚熔炼难以在短时间满足上述二装置对大量钽玻璃的需求。自20世纪90年代后期,SCHOTT和HOYA公司在美国开始了激光钽玻璃的连续熔炼探索,经过长达6年的努力,于2001年成功实现了磷酸盐激光钽玻璃的连续熔炼^[3],这项技术被誉为美国NIF六大成就之一,这项技术的

研究成功标志着特种光学玻璃的制造技术的重要突破。采用连续熔炼技术极大地提高了钕玻璃片与片之间性能的一致性,使得大型激光装置各放大光路之间的功率平衡比较容易实现,同时钕玻璃的光学

均匀性也提高了一倍,这有利于光束质量的提高。激光波长的光吸收损耗也大大降低,也意味着连续熔炼钕玻璃的增益能力将得到进一步提高。表 2 是采用坩埚熔炼和连续熔炼钕玻璃的性能比较^[7]。

表 1 N31, LHG-8, LG-770 和 KGSS-0180 钕玻璃的性能比较

Table 1 Properties of N31, LHG-8, LG-770 and KGSS-0180 neodymium phosphate laser glasses

Properties	N31	LHG-8	LG-770	KGSS-0180
Stimulated emission cross section $\sigma / (10^{-20} \text{ cm}^2)$	3.8	3.6	3.9	3.6
Radiative lifetime $\tau_{\text{rad}} / \mu\text{s}$	351	365	350	—
Lasing wavelength λ_L / nm	1053	1053	1052.7	1053
Effective emission band width $\Delta\lambda_{\text{eff}} / \text{nm}$	25.8	26.5	25.4	—
Density $d / (\text{g}/\text{cm}^3)$	2.83	2.83	2.585	2.83
Refractive index $/n_d$	1.5392	1.5296	1.5086	1.532
Refractive index at lasing wavelength	1.5306	1.5201	1.4996	—
Abbe number	66.2	66.5	68.4	—
Nonlinear refractive index $n_2 / (10^{-13} \text{ esu})$	1.15	1.12	1.02	1.12
Glass transition temperature $/^\circ\text{C}$	450	485	461	460
$\alpha(30^\circ\text{C} \sim 70^\circ\text{C}) / (10^{-7} \text{ K}^{-1})$	107	115	116	116
$dn/dT(30^\circ\text{C} \sim 70^\circ\text{C}) / (10^{-7} \text{ K}^{-1})$	-43	-53	-47	-39.5
$dS/dT(30^\circ\text{C} \sim 70^\circ\text{C}) / (10^{-7} \text{ K}^{-1})$	14	6	11	—
$\alpha(30^\circ\text{C} \sim 300^\circ\text{C}) / (10^{-7} \text{ K}^{-1})$	127	127	133.6	—
Thermal conductivity $k(25^\circ\text{C}) / (\text{W}/\text{m}\cdot\text{K})$	0.56	0.58	0.57	—
Young's modulus $/\text{GPa}$	56.4	50.1	47.3	59

表 2 坩埚熔炼和连续熔炼制备的钕玻璃性质比较

Table 2 Comparison on the production rate and properties of neodymium phosphate laser glasses by pot melting and continuous melting

Properties	Pot melting	Continuous melting	Better, worse or the same	
Production rate	2~3 pieces/week	70~300 pieces/week	20× better	
Homogeneity (at 633 nm)	Astigmatism	0.35λ	0.11λ	3× better
	Power	0.30λ	0.15λ	2× better
Nd-doping uniformity	±5%	±2.5%	2× better	
Optical transmission(1053 nm, 1 cm thick)		≥99.95%	≥99.95%	same
	OH-	<1×10 ⁻⁴	<1×10 ⁻⁴	same
Fe impurity	<2×10 ⁻⁵	<2×10 ⁻⁵	same	

中国科学院上海光机所于 20 世纪 90 年代发明了半连续熔炼法制造大尺寸磷酸盐激光钕玻璃的方法,并成功解决了除水、除铂和均匀性的问题,降低了钕玻璃的吸收损耗,已具备批量研制 810 mm×460 mm×40 mm 大尺寸磷酸盐钕玻璃的能力和装备。近年来在钕玻璃连续熔炼工艺上也开展了研究工作,并在 400mm 口径钕玻璃连续熔炼工艺的除水、除铂、除气泡、除条纹的单元技术上取得了重要突破,为发展中国的大型 ICF 装置提供了重要的钕玻璃工作物质保障。

4 用于激光产生与放大的多组分玻璃光纤

光纤激光器与体材料作增益介质的激光器相

比,具有以下优点:1) 具有大的比表面积,易于散热;2) 体积小,重量轻,易于制作集成器件;3) 具有波导结构,输出激光光束质量好,激光功率密度高。因此光纤激光器已成为目前激光发展的一个重要方向。目前广泛研究并已经开始应用的光纤激光器主要以高功率输出为特征,其增益介质是石英玻璃光纤,掺杂稀土离子主要是 Nd³⁺, Yb³⁺, Er³⁺, Tm³⁺ 以及 Ho³⁺, 激光输出波长主要集中在 1.0, 1.5 和 2.0 μm 波段。对于其他波长的激光,如短波长(可见光范围)和长波长(2.0 μm 和 3.0 μm)的激光输出,由于石英玻璃具有较大的声子能量,很难实现。另外,由于稀土离子在石英玻璃中存在分相区,石英玻璃光纤的掺杂浓度一般不大于 0.1%,这限制了石英光纤单位长度的增益。为了实现更高的增益,需要增大光纤的长度,但较长的光纤长度则不利于

器件的小型化。

为了研制具有更大增益带宽^[8]、更高单位长度增益系数和更低非线性系数光纤,近年来国际上一些著名的光纤材料研究机构纷纷开始研究非石英基的掺稀土离子光纤。日本著名玻璃制造商旭硝子公司和日本京都大学联合研究小组 S. Ohara 等^[9]研制了一种掺铋 $\text{Bi}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 玻璃光纤。在光纤长度为 22 cm,输入信号功率为 1 mW,抽运波长为 980 nm,功率为 260 mW 条件下,在通信 C 波段范围内获得的增益与石英基质相当,同时在 L 波段范围的增益明显优于石英基质,实现了从 1500 nm 到 1620 nm 达 120 nm 的增益带宽,并利用该光纤实现了可调谐激光发射;日本电报电话公共公司(NTT)的 Y. Ohishi 等^[10]研制了碲酸盐玻璃光纤,其损耗从最初的 10 dB/m 降低到 0.02 dB/m,并在此基础上研制出了商品化的掺铋碲酸盐玻璃光纤元器件。美国 Kigre 公司从 20 世纪 80 年代末开始到现在一直致力于稀土离子掺杂磷酸盐玻璃光纤的研究工作,其开发的高增益磷酸盐玻璃光纤在 1.5 μm 的增益达 5 dB/cm^[11,12]。2007 年美国 NP 光子公司的 M. Leigh 等^[13]利用 2 cm 的高增益磷酸盐玻璃光纤构建了全光纤调 Q 光纤激光器,在 1.0 μm 实现了重复频率在 10 Hz~700 kHz 可调,脉宽最小为 18.8 ns,峰值功率最大为 14 W 的单一频率脉冲激光输出。2008 年 M. Leigh 等^[14]利用 12 cm 的高增益磷酸盐玻璃光纤在 1.5 μm 实现了峰值功率大于 51 kW,重复频率从 500 Hz 到 1 MHz 可调,脉宽为几个纳秒,激光线宽为 50~500 MHz 的单一频率脉冲激光输出。在国内华南理工大学 2001 年开始从事多组分玻璃光纤与器件的研究工作,经过数年努力,解决了多组分玻璃光纤制备工艺和熔接工艺问题^[15~17],研制出的碲酸盐玻璃光纤荧光线条宽达 130 nm,磷酸盐玻璃光纤在 1.5 μm 单位长度增益系数达到 12 dB/cm,比国外报道的最好水平高 1 倍以上,利用 1.8 cm 该光纤,在 1.5 μm 实现输出功率大于 300 mW 的单频激光输出,激光线宽小于 3 kHz^[16]。在此基础上,Z. Luo 等^[17]利用 2 cm 磷酸盐玻璃光纤在 1.5 μm 初步实现了重复频率为 10.7 MHz、激光脉宽为 5.8 ps 的短脉冲激光输出。最近,华南理工大学利用最新研制的 0.8 cm 掺 Yb^{3+} 磷酸盐玻璃光纤,在 1.06 μm 实现了大于 240 mW 的单频激光输出。中国科学院上海光机所研制的掺 Tm^{3+} 碲酸盐玻璃光纤实现了 1.12 W 的 1.93 μm 激光输出。

5 结束语

自 1961 年激光玻璃发明以来,激光玻璃无论在品种还是在制备工艺方面都得到了很大的发展,激光玻璃不仅以大块体的形式在惯性约束聚变装置中发挥了核心作用,还将以光纤的形式在通信和测量等领域得到越来越广的应用。相信随着掺铋离子石英光纤的出现,激光玻璃的研究和发展将进入一个新纪元。

参 考 文 献

- 1 E. Snitzer. Optical maser action of Nd^{3+} in a barium crown glass [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1961, **7**(12): 444~446
- 2 E. Dianov, V. Dvoirin, V. Mashinskii *et al.*. CW Bi fiber laser [J]. *Quantum Electron.*, 2005, **35**(12): 1083~1084
- 3 J. H. Campbell. 25 Years of laser glass development leading to a 1.8 MJ 500 TW laser for fusion Ignition[C]. Proceedings of 18th International Congress on Glass, San Francisco, 1998
- 4 J. H. Campbell, T. I. Suratwala, C. B. Thorsness *et al.*. Continuous melting of phosphate laser glasses [J]. *J. Non-Cryst. Solids*, 2000, **263-264**: 342~357
- 5 Hu Lili, Jiang Zhonghong. Research progress of phosphate laser glass[J]. *Bulletin of Chinese Ceramic Society*, 2005, **24**(5): 125~129
胡丽丽,姜中宏. 磷酸盐激光玻璃研究进展[J]. *硅酸盐通报*, 2005, **24**(5): 125~129
- 6 V. I. Arbuзов, Yu. K. Fyodorov, S. I. Kramarev *et al.*. Neodymium phosphate glasses for the active elements of a 128 channel laser facility[J]. *Glass Technol.*, 2005, **46**(2): 67~70
- 7 T. I. Suratwala, J. H. Campbell, Philip E. Miller *et al.*. Phosphate laser glass for NIF: production status, slab selection and recent technical advances[C]. *SPIE*, 2004, **5341**: 102~113
- 8 M. D. Perry, G. Mourou. Terawatt to petawatt subpicosecond lasers[J]. *Science*, 1994, **264**(5161): 917~924
- 9 S. Ohara, N. Sugimoto. Bi_2O_3 -based erbium-doped fiber laser with a tunable range over 130 nm[J]. *Opt. Lett.*, 2008, **33**(11): 1201~1203
- 10 Y. Ohishi, A. Mori, M. Yamada *et al.*. Gain characteristics of tellurite-based erbium-doped fiber amplifiers for 1.5- μm broadband amplification[J]. *Opt. Lett.*, 1998, **23**(4): 274~276
- 11 L. Li, A. Schulzgen, V. L. Temyanko *et al.*. Ultracompact cladding-pumped 35-mm-short fiber laser with 4.7-W single-mode output power[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2006, **88**(16): 161106
12 <http://www.kigre.com>
- 13 M. Leigh, W. Shi, J. Zong *et al.*. Compact, single-frequency all-fiber Q-switched laser at 1 μm [J]. *Opt. Lett.*, 2007, **32**(8): 897~899
- 14 M. Leigh, W. Shi, J. Zong *et al.*. High peak power single frequency pulses using a short polarization-maintaining phosphate glass fiber with a large core [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2008, **92**(18): 181108
- 15 T. Liu, Z. Yang, S. Xu. 3-Dimensional heat analysis in short-length $\text{Er}^{3+}/\text{Yb}^{3+}$ co-doped phosphate fiber laser with upconversion[J]. *Opt. Express*, 2009, **17**(1): 235~247
- 16 S. Xu, Z. Yang, T. Liu *et al.*. An efficient compact 300 mW narrow-linewidth single frequency fiber laser at 1.5 μm [J]. *Opt. Express*, 2010, **18**(2): 1249~1254
- 17 Z. Luo, W. Xu, C. Song *et al.*. Self-starting passively mode-locked $\text{Er}^{3+}/\text{Yb}^{3+}$ co-doped phosphate glass all-fibre ring laser [J]. *Chin. Phys. Lett.*, 2008, **25**(12): 4280~4282