

大尺寸连熔N31型掺钕磷酸盐激光玻璃的性能研究

唐景平 胡丽丽* 陈树彬 陈伟 王标 翁泽安 徐永春 陈尤阔 邹兆松
胡俊江 温磊 李顺光

中国科学院上海光学精密机械研究所激光玻璃研发中心, 上海 201800

摘要 报道了磷酸盐激光钕玻璃的连续熔炼线,以及采用连续熔炼工艺获得的400 mm口径N31钕玻璃的主要性能。连熔所制备的N31-35钕玻璃的掺杂离子浓度为 $3.47(\pm 0.02)\times 10^{20}\text{ cm}^{-3}$;1053 nm处的折射率为 1.5336 ± 0.0005 ;400 nm处的吸收系数平均值为 0.098 cm^{-1} ;1053 nm处的激光波长损耗为 $0.13\sim 0.15\%\text{ cm}^{-1}$;3000 cm^{-1} 处的吸收系数平均值为 0.83 cm^{-1} 。400 mm口径连熔N31钕玻璃的透射波前畸变在633 nm处小于 $\lambda/3$ 波长。采用1053 nm、脉冲为3 ns激光作用下连熔钕玻璃的体破坏阈值大于 40 J/cm^2 。结果表明,在N31钕玻璃的连续熔炼工艺中,除铂金和除水都取得了很好的效果。

关键词 光学制造;激光钕玻璃;连续熔炼工艺;损耗;增益系数

中图分类号 TB321;TN244

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201542.0206003

Properties of Large Size N31 Nd:Phosphate Laser Glass Prepared by Continuous Melting

Tang Jingping Hu Lili Chen Shubin Chen Wei Wang Biao Weng Zean
Xu Yongchun Chen Youkuo Zou Zhaosong Hu junjiang Wen Lei Li Shunguang
Shanghai Institute of Optics & Fine Mechanics, Chinese Academy of Science, Shanghai 201800, China

Abstracts The continuous melting technology is reported. The 400 mm aperture N31 Nd:phosphate laser glass prepared from continuous melting technology is fabricated. The main properties of N31-35 glass have been disclosed. Its Nd^{3+} ion concentration is $3.47 (\pm 0.02)\times 10^{20}\text{ cm}^{-3}$. The refractive index at 1053 nm is 1.5336 ± 0.0005 . The absorption coefficients at 400 nm and 3000 cm^{-1} , the laser wavelength loss at 1053 nm are 0.098 cm^{-1} and 0.83 cm^{-1} , $0.13\sim 0.15\%\text{ cm}^{-1}$, respectively. The PV value of transmitted wavefront is less than $\lambda/3$ at 633 nm. Its bulk damage threshold with 1053 nm, 3 ns pulse laser is larger than 40 J/cm^2 . The results indicate that the dehydration and platinum particle removing processes are very effective during the continuous melting.

Key words optical fabrication; Nd-doped laser glass; continuous melting technology; optical loss; gain coefficient

OCIS codes 160.2750; 160.3380; 160.4760; 140.3380; 140.3390

1 引 言

随着激光惯性约束核聚变(ICF)研究的兴起,大型激光装置的建设需要大量高性能、大尺寸的激光钕玻璃元件^[1-2]。由于激光束多,对各路激光的输出性能一致性要求高,因此,大型ICF装置对钕玻璃元件的性能一致性也提出了很高的要求。与硅酸盐玻璃相比,磷酸盐玻璃对稀土离子具有良好的溶解性,声子能量适中,非线性折射率较低,铂金粒子溶解能力强以及钕离子光谱特性优良。自20世纪70年代后期,针对高峰值功率激光装置的应用需求,人们研发了掺钕磷酸盐激光玻璃。为满足ICF装置研究要求,日本保谷公司和

收稿日期:2014-08-12;收到修改稿日期:2014-09-17

作者简介:唐景平(1973—),男,博士,高级工程师,主要从事激光玻璃及熔炼工艺方面的研究。E-mail:jjpptang@siom.ac.cn

*通信联系人。E-mail:hulili@siom.ac.cn

本文电子版彩色效果请详见中国光学期刊网www.opticsjournal.net

德国肖特公司分别开发了LHG-8和LG-770掺钕磷酸盐激光玻璃的连续熔炼生产工艺,并于2000年成功实现了上述二种钕玻璃连续熔炼工艺的突破。LHG-8和LG-770被成功应用于美国国家点火装置(NIF)^[1]。20世纪90年代上海光学精密机械研究所成功开发了N31型激光玻璃,并已经在中国的神光系列高功率激光装置中应用了十多年^[4-5]。上海光学精密机械研究所2000年中后期开始启动N31型掺钕磷酸盐激光玻璃的连续熔炼工艺研究,开展了包括磷酸盐钕玻璃连续熔炼关键单元技术的模拟与验证、连续熔炼线的设计建设和改造、以及钕玻璃连续熔炼关键单元技术集成在内的大量工作^[6-7],并采用连熔工艺成功获得了批量N31-35钕玻璃。本文将阐述N31钕玻璃连续熔炼工艺的主要流程,以及采用连续熔炼工艺获得的N31连熔钕玻璃的主要性能指标及其波动范围,测试对比了400 mm口径连熔和坩熔N31-35钕玻璃的增益系数。

2 实验方法

图1为钕玻璃连续熔炼工艺流程图,过程如下:将按照N31钕玻璃配方配置并混合好的原料加入到池炉,经过高温反应熔化后除水,经过除水后的玻璃液流入澄清池进行脱气泡和除铂金的工艺过程。澄清后的玻璃液流入到均化池经过高温搅拌去除条纹,之后玻璃液流入成型池调整到合适粘度进行成型。成型后的玻璃进入隧道窑进行粗退火。在隧道窑的尾部将玻璃切割成所需要的长度。图1中钕玻璃连熔的熔化池由特殊的高纯耐火材料制成,并且采用特殊的加热技术,以防止杂质污染,同时耐火材料还需要保持足够的耐侵蚀特性。通过对工艺流程中每个环节的精确工艺参数控制,获得了成型宽度大于480 mm的N31-35连熔钕玻璃。

对隧道窑退火后的钕玻璃进行检验加工,检测条纹、气泡、折射率、400 nm、3000 cm⁻¹、1053 nm处吸收系数和铂金颗粒,并抽样检测玻璃中的钕离子浓度。将合格钕玻璃进行精密退火之后进行精密抛光加工,达到所需要的光学质量。对应用于ICF装置的钕玻璃,精密退火后需要检测应力,再进行消除横向放大自发辐射的包边工艺过程后才能进入精密抛光工艺环节。

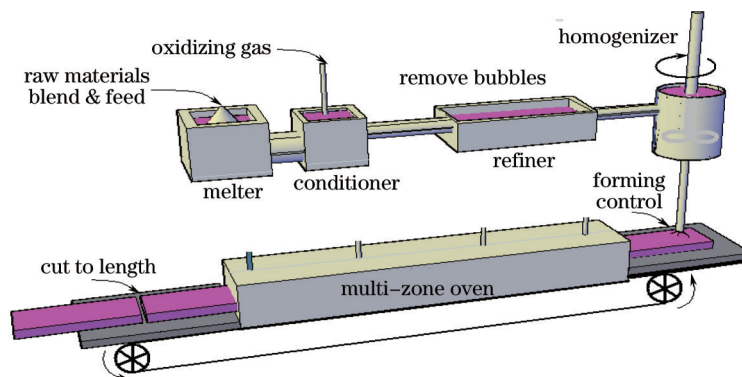


图1 钕玻璃连续熔炼线工艺流程示意图

Fig.1 Schematic diagram of continuous melting line for Nd:phosphate laser glass

将钕玻璃样品加工成10 mm×10 mm×20 mm大小用于测试折射率、400 nm和3000 cm⁻¹处的吸收系数。采用从日本进口的KPR-2000V棱镜折射仪测试钕玻璃样品的折射率,采用Model 2010/M型棱镜耦合仪测量1053 nm处的折射率。采用P-E950型分光光度计测试玻璃样品400 nm处的吸收系数,采用NICOLET 6700型傅里叶变换红外光谱仪测试玻璃3000 cm⁻¹处的吸收系数,1053 nm吸收系数采用自研设备测试,测试样品尺寸Φ8 mm×160 mm。精密抛光后400 mm口径钕玻璃片的光学均匀性采用Φ600 mm口径Zygo Fizeau型干涉仪测试。400 mm口径钕玻璃片的铂金颗粒采用660 nm的激光二极管(LD)光源根据散射原理测试。钕玻璃中钕离子浓度和杂质铁含量采用ICP-AES化学分析仪器(IRIS Intrepid)检测。

在4×2×3的模块装置上测试了400 mm口径N31玻璃的增益特性,这里n×m×q表示用于测量小信号增益系数的平行放大通道在三个维度(高度×宽度×长度)的钕玻璃坯片数目。将810 mm×460 mm×40 mm的长方形测试片置于放大模块中,相对于380 mm×380 mm口径的输入光束成布儒斯特角方向。中央的闪光灯箱装有8支氙灯,从两个方向对钕玻璃片进行抽运,而两边的灯箱每一个装有6支氙灯并装配有大的银面反射镜,从一个方向对钕玻璃抽运。这些氙灯形成20个回路,每一个回路有两支氙灯,每一个回路的电容为

308 μF , 放电时间是 360 μs , 工作电压从 15~23.5 kV。在主放电脉冲中, 当充电电压达到 23.5 kV 时, 充电模块理论上会给每一对氙灯输送 92 kJ 能量。

3 结果和讨论

3.1 大尺寸连熔 N31 磷酸盐激光钕玻璃性质

由于 ICF 装置应用的磷酸盐激光钕玻璃参数指标要求高并且多, 磷酸盐激光钕玻璃的连续熔炼是一个极其复杂的工艺过程。它需要经历除水、除铂金等普通光学玻璃连续熔炼没有的特殊工艺过程。并且 ICF 装置应用的激光钕玻璃尺寸大、光学均匀性 (Δn) 要求高于一般光学玻璃, 为 2×10^{-6} 。激光玻璃损耗要求高 ($\leq 0.15\% \text{ cm}^{-1}$)。 10^{-6} 级的铁离子和 10^{-9} 级的铜离子都可能造成钕玻璃激光波长的损耗超标, 这将严重影响钕玻璃的增益性能和 ICF 装置的激光效率。在钕玻璃连续熔炼工艺的全过程需要严格防止杂质污染, 控制原料中过渡金属离子杂质总含量小于 15×10^{-5} 。 ICF 装置应用磷酸盐钕玻璃荧光寿命直接影响反转粒子数及增益系数。磷酸盐钕玻璃由于其特殊的结构, 其网络结构中存在 P=O 双键, 非常容易键合来自原料和空气中的一OH。为达到应用要求的荧光寿命指标, 需要采用反应性气体除去玻璃液中与磷键合的一OH。通过这一除水工艺可以大大提高钕玻璃的荧光寿命。钕玻璃连续熔炼工艺中除水是一个动态过程, 连续熔炼过程中钕玻璃除水难度远高于静态坩埚熔炼的除水。铂金颗粒数量是 ICF 装置使用钕玻璃一个重要指标, 一般要求铂金颗粒数小于 $2 \times 10^{-4} \text{ cm}^{-3}$ 。因为颗粒状的铂金吸收强激光的能量后会发生气化导致玻璃炸裂。因此, 激光钕玻璃的连续熔炼是一项难度极高的工艺过程。通过多年研究, 已成功掌握激光钕玻璃连续熔炼工艺装置设计技术和工艺控制技术。获得了参数满足应用要求的 400 mm 口径大尺寸连熔 N31-35 钕玻璃。以下就 400 mm 口径大尺寸连熔 N31-35 型钕玻璃的主要性能指标进行阐述。

表 1 汇总了连熔 N31-35 型钕玻璃的主要性能指标及其波动范围, 并与部分技术说明书要求的主要指标进行了对比。可以看到连续熔炼 N31-35 钕玻璃的主要性能指标满足技术说明书要求。部分指标优于技术说明书的要求。其中 3333 nm 处的吸收系数指标好于美国 NIF 报告的指标(平均值: 1.46 cm^{-1})^[9]。从图 2 可以看到, 400 mm 口径连熔 N31-35 磷酸盐钕玻璃的透射波前畸变小于 $\lambda/3$ ^[8], 已经达到 $\lambda/5$ 。表 1 数据和图 2 结果说明本课题组所开发的钕玻璃连续熔炼工艺能有效地控制熔制过程的动态除水、铂金及条纹消除。

表 1 连熔 N31-35 钕玻璃的主要性能指标及其波动范围

Table 1 Main technical parameters of N31-35 glass from continuous melting and its specification

Parameters	N31-35	Specification
Lasing properties		
Nd ³⁺ ions concentration / (10^{20} cm^{-3})	3.47±0.02	
Fe ₂ O ₃ content	< 20×10^{-6}	
Stimulated emission cross section / (10^{-20} cm^2)	3.85	≥3.80
Fluorescent lifetime / μs	310	≥310
Full width at half maximum (FWHM) / nm	25.4	
Lasing wavelength / nm	1053	
Absorption coefficient at 400 nm / cm^{-1}	0.098±20%	≤0.25
3333 nm / cm^{-1}	0.83±25%	≤2
1064 nm / $\% \text{ cm}^{-1}$	0.13~0.15	≤0.15
Bulk damage threshold at 1064 nm 3 ns pulse width	>40 J/cm ²	
Platinum inclusion	No	
Optical properties		
Refractive index		
n_o (587.3 nm)	1.5406±0.0005	
n_i (1053 nm)	1.5336±0.0005	≤1.535
Optical homogeneity	2×10^{-6}	2×10^{-6}
Transmitted wavefront PV	< $\lambda/3$ (633 nm)	

Parameters	N31-35	Specification
Thermal properties		
Transformation temp. T_g / $^{\circ}\text{C}$	450	
Softening temp. T_f / $^{\circ}\text{C}$	488	
Coefficient thermal expansion (10^{-7} K)(20~300 $^{\circ}\text{C}$)	125	
Mechanical properties		
Density /(g/cm 3)	2.88	
Knoop hardness /(0.5 HK)	390	
Birefringence	≤ 4 nm/cm	≤ 5 nm/cm

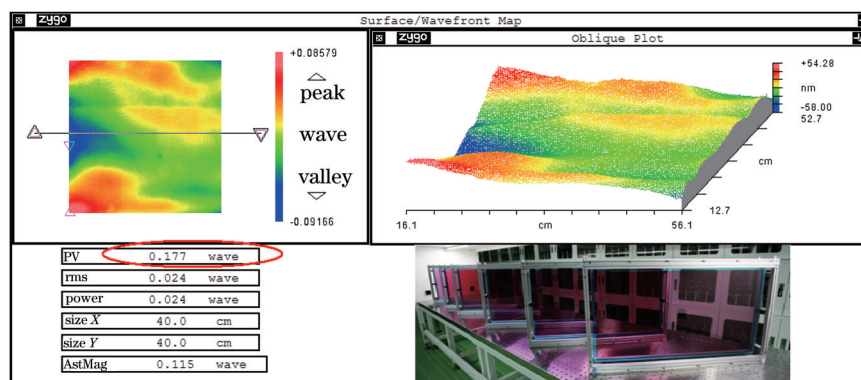


图 2 400 mm 口径连熔 N31-35 磷酸盐钕玻璃的光学均匀性

Fig.2 Optical homogeneity of N31-35 Nd:phosphate laser glass with 400 mm clear aperture prepared by continuous melting

3.2 连熔和坩熔钕玻璃性质对比

20 世纪 90 年代上海光学精密机械研究所开发了磷酸盐激光钕玻璃半连续熔炼工艺装置^[9]。该半连续熔炼工艺已经成功应用于神光系列激光钕玻璃的研制。与坩熔熔炼相比,连续熔炼具有生产效率高、产能大、产品一致性好的特点。上述已经报道了采用连续熔炼工艺研制的 N31-35 钕玻璃的主要性质。表 2 对比了坩熔熔炼和连续熔炼 N31-35 钕玻璃的主要性质,可以看出钕连续熔炼玻璃 400 nm 处的吸收系数指标优于坩熔熔炼钕玻璃^[10],但荧光寿命和半峰全宽(FWHM)一致。两种制备工艺研制的 N31-35 钕玻璃发射截面基本相同,荧光寿命相同。但连续熔炼钕玻璃的损耗略高于坩熔熔炼的钕玻璃。因此,后续工作需要进一步降低连续熔炼钕玻璃的损耗。

表 2 连续熔炼和坩熔熔炼 N31-35 钕玻璃主要性能比较

Table 2 Comparison of mach technical parameters of N31-35 glass between continuous melting and pot melting

Parameters	Continuous melting	Pot melting
Lasing properties		
Nd^{3+} ions concentration /(10 20 cm 3)	3.47 \pm 0.02	3.46 \pm 0.10
Stimulated emission cross section /(10 $^{-20}$ cm 2)	3.85	3.80
Fluorescent lifetime / μs	310	310
FWHM /nm	25.4	25.4
Lasing wavelength /nm	1053	1053
Absorption coefficient at 400 nm /cm $^{-1}$	0.098 \pm 20%	0.23 \pm 20%
3333 nm /cm $^{-1}$	0.83 \pm 25%	0.72 \pm 150%
1053 nm /% cm $^{-1}$	0.13~0.15	0.10~0.12
Optical properties		
n_i (1053 nm)	1.5336 \pm 0.0005	1.5337 \pm 0.0012

表 2 数据表明连续熔炼钕玻璃的绝大多数指标的波动幅度小于坩熔玻璃。尤其是与光学性能和增益特性密切相关的钕离子浓度和折射率两个参数,连熔玻璃的波动范围明显小于坩熔玻璃。预示着连熔钕玻璃

片与片之间一致性要优于坩熔钕玻璃。这将为由数百路激光束组成的大型ICF激光装置各路激光束的增益特性一致性带来益处。

图3~4给出了连熔和坩熔N31-35钕玻璃400 nm处的吸收系数,1053 nm处的损耗,折射率(n_d 和 n_{1053})和3000 cm^{-1} 处吸收系数的波动范围。可以看出图3中连熔钕玻璃400 nm处的吸收系数明显小于坩熔N31-35钕玻璃,这表明连熔钕玻璃中铂金离子浓度小于坩熔钕玻璃^[10]。图4给出了连熔和坩熔N31-35钕玻璃1053 nm处吸收损耗参数的比较。从表中可以看出在这一指标上,连熔与坩熔钕玻璃还存在差距。连熔N31-35钕玻璃损耗在0.13~0.15% cm^{-1} ,坩熔钕玻璃N31-35的损耗在0.10~0.12% cm^{-1} 。连熔钕玻璃的激光波长损耗略高于坩熔钕玻璃,这与玻璃中的过渡金属杂质含量有关^[11]。而连熔玻璃的杂质含量又可能与连熔工艺过程中采用的耐火材料纯度有关。

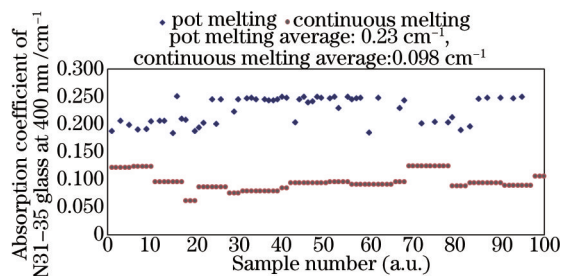


图3 连熔N31-35钕玻璃400 nm吸收系数

Fig.3 Absorption coefficient at 400 nm of N31-35 glass from continuous melting

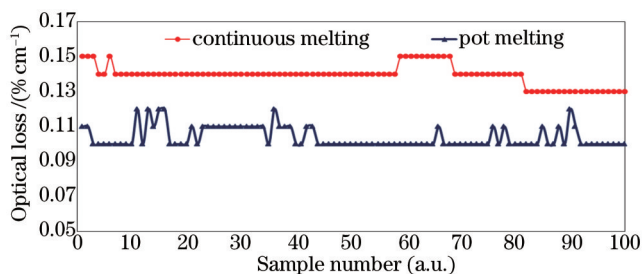


图4 连熔和坩熔N31-35钕玻璃的光吸收系数

Fig.4 Optical loss of N31-35 Nd:phosphate laser glass by continuous melting and pot melting

连熔N31-35钕玻璃折射率(n_d 和 n_{1053})及其波动范围见图5~6,连熔与坩熔的折射率平均值基本一致,但是连熔钕玻璃折射率的波动要远小于坩熔钕玻璃。说明连熔N31-35钕玻璃片与片之间光学参数的一致性优于坩熔钕玻璃。

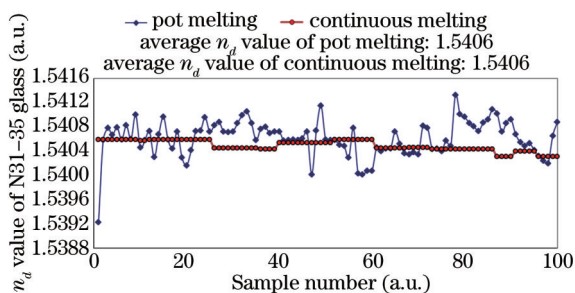


图5 连熔和坩熔N31-35钕玻璃 n_d 折射率分布

Fig.5 Refractive index n_d of N31-35 glass from continuous melting and pot melting

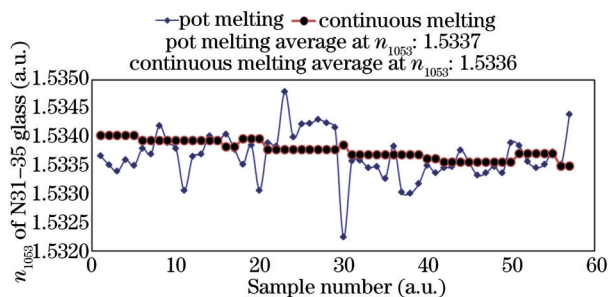


图6 连熔和坩熔N31-35钕玻璃1053 nm折射率分布

Fig.6 Refractive index at 1053 nm of N31-35 Nd³⁺-doped glass from continuous melting and pot melting

图7显示了连熔N31-35钕玻璃在3000 cm^{-1} 处的吸收系数与坩熔钕玻璃相当,说明已经很好地掌握了连熔动态除水工艺过程。

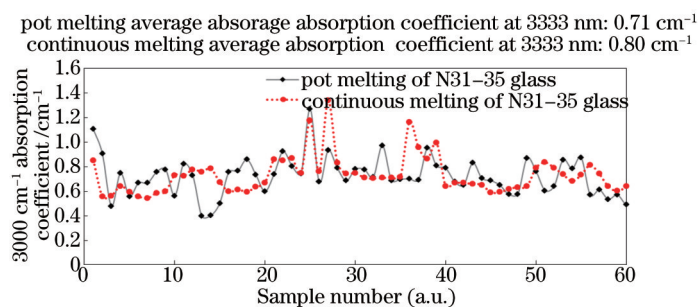


图7 连熔与坩熔 N31-35 钕玻璃 3000 cm⁻¹吸收系数

Fig.7 Absorption coefficient at 3000 cm⁻¹ of N31-35 Nd³⁺-doped glass from continuous melting and pot melting

在 4×2×3 装置上测试 400 mm 口径 N31-35 钕玻璃在不同抽运能量下的增益系数,如图 8 所示。从图中可以看出在相同的抽运能量下连熔和坩熔 N31-35 钕玻璃二者的增益系数基本相同。这一参数为连熔钕玻璃的装置应用提供了重要依据。

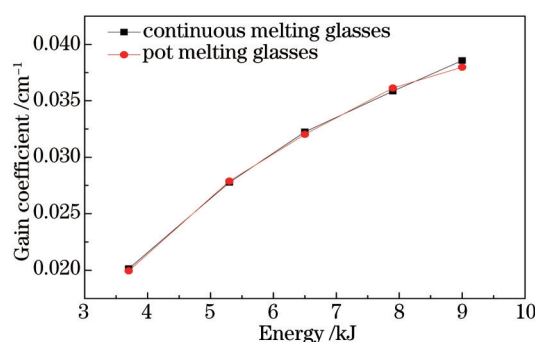


图8 400 mm 口径连熔和坩熔 N31-35 钕玻璃增益系数对比

Fig.8 Comparison on the gain coefficient of 400 mm aperture N31-35 glass prepared by pot melting and continuous melting

4 结 论

报道了磷酸盐激光钕玻璃连续熔炼工艺及采用连续熔炼工艺研制的 N31 磷酸盐激光钕玻璃的主要性能指标及其波动范围。测试表明所制备的连熔 N31 钕玻璃的主要性能指标达到了高功率激光装置使用的技术要求。连熔 N31-35 钕玻璃 400 nm 处的吸收系数明显优于坩熔钕玻璃。连熔钕玻璃在 3000 cm⁻¹ 处的吸收系数与坩熔玻璃相当,所开发的连续熔炼技术能解决动态除水。连熔钕玻璃的钕离子浓度和折射率参数波动范围明显小于坩熔钕玻璃。对 400 mm 口径 N31-35 型钕玻璃片小信号增益系数的测试结果表明,连熔和坩熔钕玻璃的增益性能相当。连熔钕玻璃的荧光寿命和受激发射截面与坩熔钕玻璃一致,但损耗略高于坩熔钕玻璃,因此,需要进一步降低连熔钕玻璃的损耗指标。

参 考 文 献

- 1 B M V Wonterghem, J R Murray, J H Campbell, *et al.*. Performance of a prototype for a large-aperture multipass Nd:glass laser for inertial confinement fusion[J]. Appl Opt, 1997, 36(21): 4932-4953.
- 2 J T Hun, D R Speck. Present and future performance of the Nova laser system[J]. Opt Eng, 1989, 28(40): 461-468.
- 3 T I Suratwala, J H Campbell, P E Miller, *et al.*. Phosphate laser glass for NIF: Production status, slab selection and recent technical advances[C]. SPIE, 2004, 5341: 102-113.
- 4 Hu Lili, Jiang Zhonghong. Research progress of phosphate laser glass[J]. Bulletin of the Chinese Ceramics Society, 2005, 25(5): 125-135.
胡丽丽,姜中宏.磷酸盐激光玻璃研究进展[J].硅酸盐通报,2005,25(5):125-135.
- 5 Lin Zunqi. Progress of laser fusion[J]. Chinese J Lasers, 2010, 37(9): 2202-2207.
林尊琪.激光核聚变的发展[J].中国激光,2010,37(9):2202-2207.
- 6 Tang Jingping, Hu Lili, Ying Xiongxin, *et al.*. The testing of temperature field in the simulator of rectangler furnace under stable

- condition[J]. *Glass & Enamel (Monograph)*, 2007, 30-34.
- 唐景平, 胡丽丽, 应雄信, 等. 稳态下模拟方池窑的温度场测试[J]. *玻璃与搪瓷(专刊)*, 2007, 30-34.
- 7 Tang Jingping, Wang Biao, Hu Lili, *et al.*. Technology progressing in the continuous melting of phosphate laser glass[C]. *Annual Reports of Inertial Confinement Fusion of China Academy of Engineering Physics*, 2011.
- 唐景平, 王 标, 胡丽丽, 等. 激光玻璃连续熔炼工艺研究进展[C]. *中国工程物理研究院聚变年报*, 2011.
- 8 Guo Guangyan, Fan Zhongwei, Yu Jin, *et al.*. Solid-state laser distortion wavefront adaptive correction technology and its research progress[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2014, 51(3): 030001.
- 郭广妍, 樊仲维, 余 锦, 等. 固体激光器波前畸变自适应校正技术及研究进展[J]. *激光与光电子学进展*, 2014, 51(3): 030001.
- 9 张俊洲, 毛涵芬, 陈树彬, 等. 半连续熔炼磷酸盐玻璃的装置: 中国, 00127617.4[P]. 2001-05-16.
- 10 J H Campbell, E P Wallerstein, J S Hayden, *et al.*. Elimination of Platinum Inclusions in Phosphate Laser Glasses[R]. Lawrence Livermore National Laboratory Report UCRL-53932, 1989.
- 11 Xu Yongchun, Li Shunguang, Hu Lili, *et al.*. Spectral properties of Nd-doped phosphate laser glasses influenced by impurities [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2005, 42(10): 57-59.
- 徐永春, 李顺光, 胡丽丽, 等. 杂质对掺钕磷酸盐激光玻璃光谱性质的影响[J]. *激光与光电子学进展*, 2005, 42(10): 57-59.

栏目编辑: 张浩佳