

熔融石英玻璃无水环境固结磨粒抛光特性*

刘文俊, 杨 炜, 郭隐彪

(厦门大学 航空航天学院, 福建 厦门 361005)

摘 要: 为了克服游离磨粒抛光的随机性、磨料浪费以及产生的水合层等问题,提出了一种无水环境下熔融石英玻璃固结磨粒抛光技术。研究实现了稳定的抛光轮烧结工艺,并应用于熔融石英玻璃抛光加工,通过对加工产物和抛光轮粉末进行EDS能谱分析和XRD衍射分析,从微观上初步阐述了固结磨粒抛光的去除机理;从宏观上探索压力和转速对去除效率和表面粗糙度的影响。实验结果表明:加工过程中,在法向力和剪切力作用下,CeO₂磨粒和熔融石英发生化学反应,CeO₂将SiO₂带出玻璃,实现材料去除;同时,压力和转速对加工效率影响并不遵循Preston公式,温升和排屑成为决定去除效率的关键。

关键词: 固结磨粒抛光; 熔融石英; 粗糙度; 去除率; 烧结工艺

中图分类号: TH16 **文献标志码:** A **doi:**10.11884/HPLPB201830.180028

大功率激光器,例如美国国家点火装置(NIF)^[1]、法国的“兆焦耳激光”工程(LMJ)、中国神光激光聚变装置^[2],需要成千上万高质量的光学元件,对于这些光学元件的基本加工要求是面型精度峰谷(PV)小于 $\lambda/3$ ($\lambda=632.8\text{ nm}$),表面粗糙度均方根值(RMS)小于0.4 nm,表面和亚表面无瑕疵,以保证均匀的波前和激光通过时散射最小化^[3]。熔融石英玻璃凭借其良好的物理和化学性能被广泛应用于制造窗口和屏蔽片。熔融石英玻璃(熔融石英)属于难加工硬脆性材料,传统上是利用磨削和抛光以实现高表面和亚表面质量。磨削阶段包括固结磨粒磨削和游离磨粒研磨,主要是为了降低面型精度误差和粗糙度,但是无论是精磨或者粗磨(包括延性模型)不可避免会出现表面破碎、表面残余应力、表面塑性流动和亚表面损伤等缺陷^[4-5]。为了去除磨削阶段残余的缺陷,一般采用抛光对玻璃进行进一步加工。传统的抛光主要是利用比玻璃硬度低的稀土和金属氧化物,混合去离子水和一定的化学添加物,利用机械化学去除机理进行材料去除,以获得无损伤的玻璃表面。

虽然游离磨粒抛光技术在光学玻璃加工中得到了广泛的应用,但是它也存在一些显著的缺点。首先,游离磨粒在抛光过程运动的随机性,以及玻璃-磨粒-抛光垫在抛光溶液中复杂的物理和化学相互作用,难以建立一个准确材料去除模型,使其无法成为一项确定性的抛光技术^[6];其次,游离磨粒抛光会在玻璃表面产生几nm到几百nm的水合层,水合层机械化学性质和玻璃本体材料有着本质的区别,从而降低了玻璃的光学性能^[7];再者,抛光溶液会造成环境污染,而且仅有少量的磨粒参与材料去除,从而造成了大量材料浪费。因此,国内外学者开展了固结磨粒抛光技术研究,以期能在抛光阶段确定性地控制材料去除,获得高质量的光学玻璃表面。例如,美国Rochester大学Stephen D. Jacobs教授开发了氧化铈固结磨粒抛光技术,使得熔融石英玻璃能够在1 h内粗糙度均方根值超过400nm降低到1.5 nm^[8];乌克兰Yuriy D. Filatov学者利用簇模型对固结磨粒抛光片对玻璃光学材料去除机理进行了研究^[9],进一步阐述了固结磨粒抛光的去除机制;日本茨城大学L. Zhou教授利用氧化铈固结磨粒抛光砂轮,实现了对单晶硅片无缺陷加工^[9],随后在这项技术基础上,日本秋田县里大学Yongbo Wu教授和中国工程物理研究院激光聚变研究中心Yaguo Li学者成功将二维椭圆超声振动辅助技术引入到了熔融石英无水环境固结磨粒抛光加工过程,显著提高了材料去除率和表面质量^[10]。国内对于固结磨粒抛光技术研究不多^[11],一个显著的原因在于固结磨粒抛光砂轮配方和烧结工艺不成熟,美国、日本和乌克兰都对这项技术进行了封锁。在课题组前期的研究过程中,已实现了稳定的抛光砂轮配方和烧结工艺,成功将自制的氧化铈固结磨粒抛光轮应用在熔融石英无水环境加工中。前期实验已证明,抛光磨削之后的熔融石英玻璃,相对于聚氨酯抛光垫游离磨粒抛光,固结磨粒抛光技术体现了很大的优势,表面面型精度和粗糙度收敛速度显著提高,且抛光砂轮不破碎,磨损均匀。据此,本文将进一步介绍氧化铈固结砂轮的制造工艺,分析加工产物获得加工机理,以及分析压力和转速对去除效率的影响,以期能实现固结磨粒抛光技术的确定性控制。

* 收稿日期:2018-01-22; 修订日期:2018-04-18

基金项目:国家科技重大专项(2017ZX04022001-207);福建省引导项目(2017H0036)

作者简介:刘文俊(1993—),男,硕士,从事固结磨粒抛光研究;97591078@qq.com。

1 实 验

1.1 氧化铈固结砂轮制造工艺

在固结磨粒抛光实验中选用硬度与熔融石英玻璃硬度相当的 CeO_2 磨料,减少磨料抛光时引起的机械损伤,在无水环境下玻璃外层不断与磨料实现化学反应,在与 CeO_2 磨料产生相对运动的机械作用下带出熔融石英原材料,磨料不断剥落重新参与反应完成整个抛光过程,从而获得无水合层的高质量表面^[10]。

砂轮的成分质量比例为:70% CeO_2 (上海元成光学器材有限公司 Regipol 830)抛光粉,平均粒径(2.0~2.5 μm);15%酚醛树脂(河南铂润铸造材料有限公司,酚醛树脂 2132);15%空心玻璃微球(美国 3M 公司,玻璃微球 S15)。其中酚醛树脂为热固性树脂,淡黄色粉末,固化温度为 150 $^\circ\text{C}$,作为砂轮粘接剂;空心玻璃微球为添加剂,其主要成分是硼硅酸盐,粒度 10~250 μm ,壁厚为 1~2 μm ,主要作用是在加工过程中会破碎,破碎后产生容屑空间,同时破碎的硼硅酸盐硬度比烧结后的酚醛树脂大,能刮落酚醛树脂,有利于 CeO_2 磨料的进一步裸露。将磨料混合均匀研磨后,在 $\phi 13 \text{ mm}$ 的圆柱形模具进行填充压片,之后将压片在常压和 180 $^\circ\text{C}$ 下按一定的升温程序进行烧制,抛光轮制作流程图如图 1(a)所示,升温 and 降温部分采取了分段升降,确保抛光轮丸片内部受热和散热均匀,实现稳定成型,成型后的丸片如图 1(b)所示。

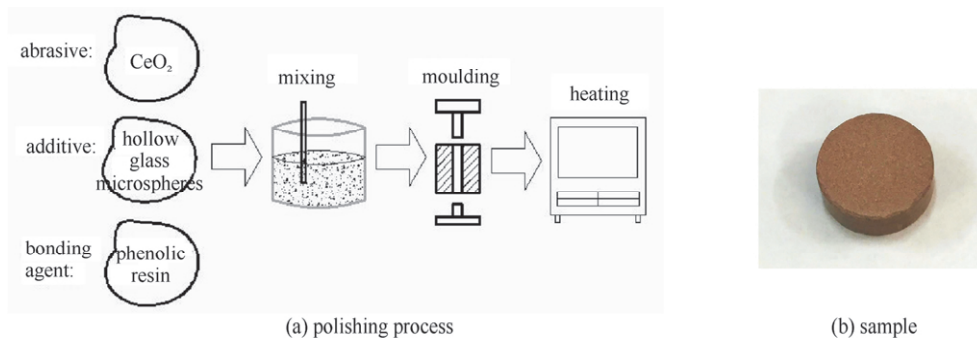


Fig.1 Manufacture process of polishing wheel and a product sample

图 1 抛光轮制作流程图及成型样品

1.2 材料去除实验过程

本实验采取的实验装置示意图如图 2(a)所示,该装置主要由数控机床、粘结氧化铈砂轮的工头、工件和铝板底座组成。熔融石英工件用胶粘附在铝板底座上,铝板底座放置在机床工作磁台,周围用厚铁块固定装夹,实验所需的载荷由机床主轴下压量提供。加工运动简化模型如图 2(b)所示,磁台和工件以 ω_1 旋转的同时,工具头以 ω_2 同方向旋转并在 x 方向以速度 v_x 、行程 6 mm 做周期往复运动。根据图 2(b)所示的加工方式,砂轮的初始偏心距 $e=32 \text{ mm}$,玻璃的加工区域为一个环带。

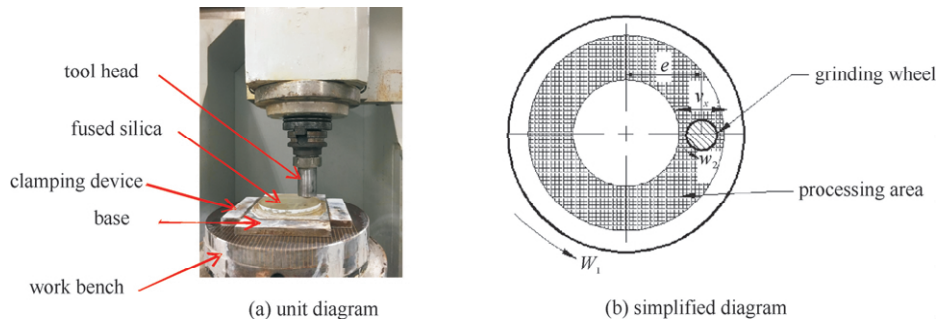


Fig.2 Processing unit diagram and simplified diagram

图 2 加工装置示意图及简化图

实验采用直径 100 mm、厚度 10 mm 熔融石英玻璃(Corning 7980),原始粗糙度 250~300 nm,原始面型 PV 值小于 0.5 μm , $v_x=2 \text{ mm/s}$,磨头尺寸 $\phi 13 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ 。设计五组对比试验,依据聚氨酯抛光垫游离磨粒快速抛光技术加工压力和转速范围,选定固结磨粒抛光实验参数,以便以之形成对比^[7]。实验设定:恒压实验,50 kPa 压力条件下,100,150,200 r/min 三组不同转速实验;恒转速实验,100 r/min 转速条件下,25,50,75 kPa 三组不同压力实验,每组实验中工件转速和砂轮转速取一定偏差,以防止由于周期性运动造成工件表面出

现凹坑^[7]。同时,在加工过程不采取任何其他额外的排屑和降温措施。具体实验参数见表 1。

表 1 实验参数

No.	downward load /kPa	rotating speed of polishing wheel $\omega_1/(r \cdot \text{min}^{-1})$	rotating speed of sample $\omega_2/(r \cdot \text{min}^{-1})$
1	50	95	105
2	50	145	155
3	50	195	205
4	25	95	105
5	70	95	105

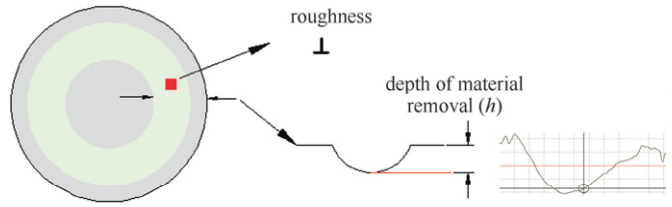


Fig.3 Evaluation method for surface roughness and material removal

图 3 表面粗糙度与材料去除深度的评价方法

每组实验总共加工 70 min,每加工 10 min 后

使用无水乙醇清洗玻璃表面,利用表面轮廓仪(英国泰勒霍普森,PGI1240)测量粗糙度和去除深度。固结磨粒抛光砂轮在每组实验前由中值粒径 $9 \mu\text{m}$ 的氧化铝砂轮进行修整,以保证磨粒充分裸露。由于样品和砂轮的初始面型无法达到绝对平整,为了确保去除深度和粗糙度测量准确性,测量区域选取第一个 10 min 加工后粗糙度最低的区域,即熔融石英玻璃最先被加工到的区域,如图 3 所示,在这个区域里取相对分散的五个临近位置进行测量,取五次测量的平均值作为测量值,后续 60 min 实验取相同测量区域。

为了明确加工过程中的材料去除机理,在加工实验中,收集加工产物残屑,同时研磨破碎抛光轮形成粉末,对两个样品进行 EDS 能谱分析(德国卡尔蔡司公司,ZEISS Sigma)和 XRD 衍射分析(日本理学公司,Ultima IV),确认样品中各种主要元素含量以及对应化合物的种类。

2 实验结果分析

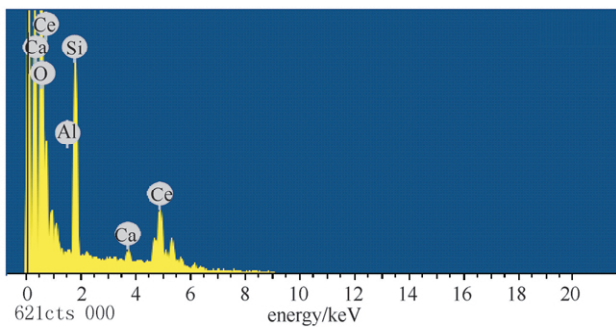
2.1 去除机理分析

图 4 为抛光轮粉末和加工产物残屑的 EDS 能谱图,表 2 为相应能谱图中元素质量分数对比表。从图 4 中可以看出,两种样品都包含 O, Al, Si, Ca 和 Ce 等几种主要元素,熔融石英玻璃和硼硅酸盐玻璃微球主要成分是 Si 和 O 元素,抛光磨粒主要成分是 Ce 和 O 元素。从表 2 中可以看出,在抛光砂轮粉末中,O 元素、Si 元素和 Ce 元素质量分数为 32.32% : 11.42% : 54.34%,在加工产物残屑中,O 元素、Si 元素和 Ce 元素质量分数为 43.98% : 22.52% : 32.38%,加工产物残屑中 Si 元素和 O 元素的含量明显提高,Ce 元素的含量变低,Si 元素从熔融石英玻璃中转移到了加工产物残屑中,实现了玻璃表面的材料去除。

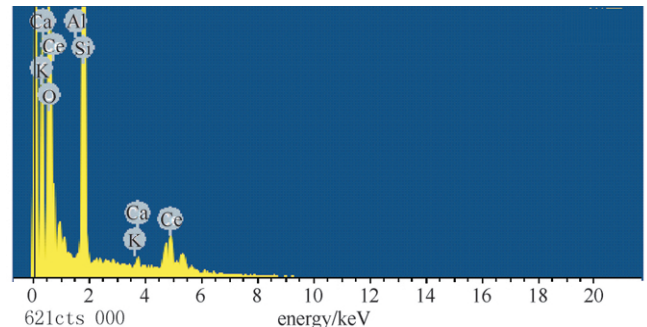
表 2 砂轮粉和磨削屑的元素质量分数对比

Table 2 Contrast of element fractions of grinding wheel powder and grinding chips

element	fraction of polishing wheel/%	fraction of grinding chips/%
O	32.32	43.98
Al	0.06	0.04
Si	11.42	22.52
Ca	1.85	1.08
Ce	54.34	32.38



(a) grinding wheel powder



(b) grinding chips

Fig.4 EDS spectrum images of grinding wheel powder and grinding chips

图 4 抛光轮粉末能谱图和加工产物残屑能谱图

为了进一步探究在加工过程的化学反应和机械作用,明确加工机理,分别对抛光轮粉末、加工产物残屑和

熔融石英玻璃粉进行了 X 射线衍射分析,测量结果如图 5 所示。从三组 XRD 对比图可以看出,在抛光轮粉末中,有很明显的 CeO₂ 四组衍射峰,即 543, 200, 241, 166, 左端显示含有微量的无定形物质,是硼硅酸盐玻璃微球成分;在熔融石英粉末中,含有大量的无定形物质;在加工产物残屑中,可以看出除了 CeO₂ 四组明显衍射峰,同时还具有一定量的无定形组织。根据 XRD 的分析结果,结合 EDS 元素表,可以判断加工产物中包含了熔融石英(SiO₂)、CeO₂、少量的硼硅酸盐玻璃微球以及其他一些杂质,熔融石英玻璃在无水环境固结磨粒抛光中实现了材料去除。

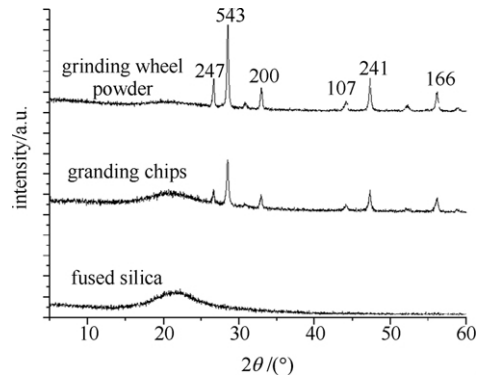


Fig.5 XRD analysis of grinding wheel powder grinding chips and fused silica

图 5 砂轮、磨削屑和熔融石英的 XRD 分析

依据 Cook^[12]和 K. Osseo-Asare^[13]学者研究成果,含有 CeO₂ 磨粒的抛光液加工熔融石英玻璃,事实上是一个吸附性的材料去除过程,如公式(1)和(2)所示。在有水加工环境中,CeO₂ 中的 Ce 原子会以 H₂O 反应,生成 Ce 的氢氧化物,同时 Ce 的氢氧化物又会与硅醇(SiO₂ 与水反应产生的水合物)发生反应,形成 Ce—O—Si 键,Ce—O—Si 键能大于 Si—O—Si 键能,随着 CeO₂ 的相对运动,将 SiO₂ 从熔融石英玻璃中带出,实现材料去除。

结合前人的研究成果和 EDS, XRD 检测结果可以初步推断 CeO₂ 在无水环境下加工熔融石英玻璃的材料去除机理:在无水干磨的加工环境下,CeO₂ 中的 Ce 原子比较不稳定,会以 3 价或者 4 价的形式存在,CeO₂ 磨粒中心是 4 价 Ce 原子,表面是 3 价 Ce 原子,在外界法向力作用下,Ce 原子会与 Si—O 键中的 O 原子结合,形成 Ce—O—Si 键,Ce—O—Si 键的键能大与 Si—O—Si 键,在外界切向力的作用下,SiO₂ 材料形成屑团被 CeO₂ 从熔融石英玻璃中剥离出来,生成的 3 价 CeO₂ 在空气中富足氧环境下会被氧化为 4 价的 CeO₂。材料去除过程如图 6 所示,具体的反应过程如公式(3)和(4)所示。

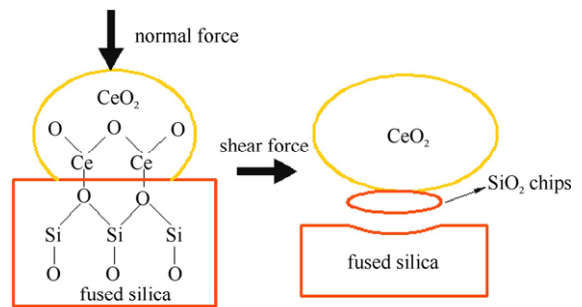
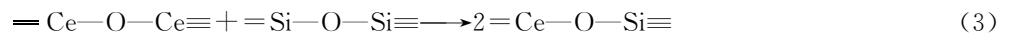
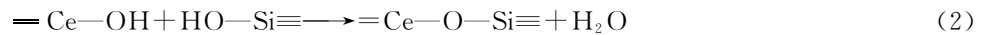


Fig.6 Material removal process

图 6 材料去除过程



生成的 3 价 CeO₂ 在空气中富足氧环境下会被氧化为 4 价的 CeO₂, 即



综上所述,在最后的加工产物残屑中主要成分是 CeO₂ 和 SiO₂。

2.2 去除效率和粗糙度分析

恒压和恒转速五组实验的去除深度 *h* 汇总如图 7 所示,图 8 表示在恒压和恒转速条件下粗糙度 *R_a* 随时间的变化,图中标出了测量的标准偏差。由图 7 可以看出,在固结磨粒抛光实验中压力和转速对去除率的影响并不遵循 Preston 公式^[14],去除率不随压力和转速呈线性变化。五组加工实验中粗糙度均能降低到低于 2 nm,最好的加工状态的粗糙度 *R_a* = 1.7 nm。当加工参数取压力 50 kPa、转速 150 r/min 时,材料去除率可达最大,约为 4.2 μm/h。图 9(a)为压力 50 kPa、转速 150 r/min 时,显微镜拍摄(Keyence 高景深显微镜, VHX)熔融石英表面图,图 9(b)为对应的粗糙度检测图。从图 9(a)可以看出,加工后的熔融石英无破碎、凹坑和划痕等表面瑕疵。将固结磨粒抛光技术这两项指标同游离磨粒抛光技术相比较^[7],材料去除率 4.2 μm/h,指标略高于游离磨粒抛光技术(4 μm/h),粗糙度 *R_a* 小于 2 nm,指标高于游离磨粒抛光技术(小于 1 nm);而同 Yongbo Wu 和 Yaguo Li 学者的研究成果相比较^[10],本文所研制的抛光砂轮同日本 Tokyo Diamond 公司研制的抛光砂轮,在不添加二维超声振动加工条件下,两项加工指标与之基本持平。

进一步分析实验条件下,熔融石英玻璃去除率不遵循 Preston 公式原因在于温度和排屑能力对于材料去

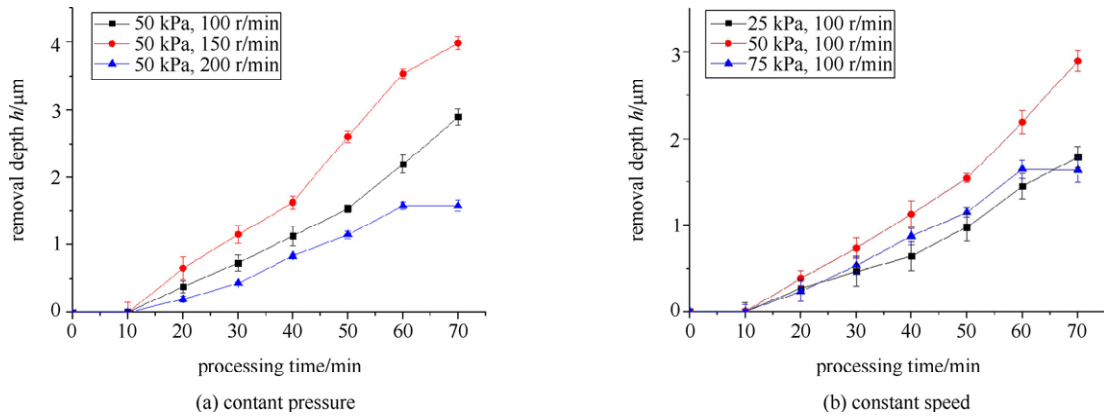


Fig.7 Relationship between the removal depth of constant pressure and constant rotating speed with the processing time

图 7 恒压和恒转速的去除深度随加工时间变化关系

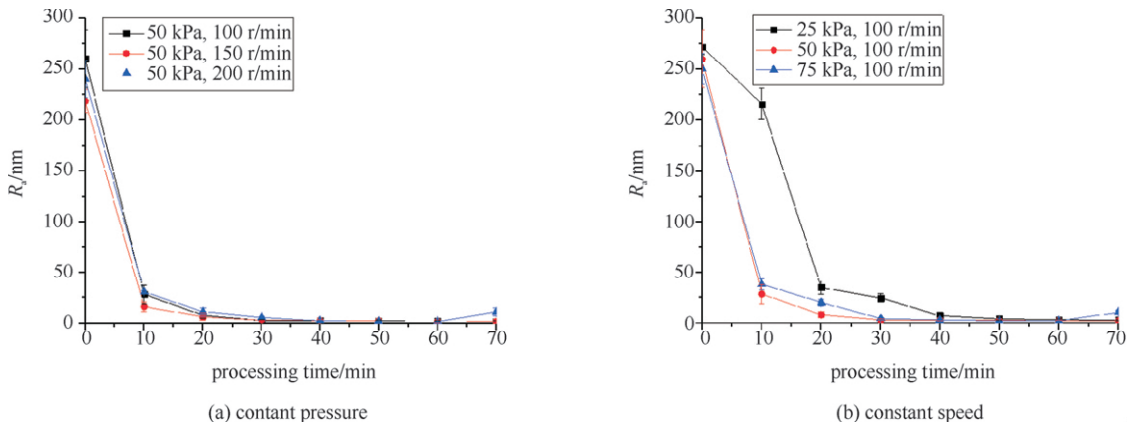


Fig.8 Relationship between the roughness of constant pressure and constant rotating speed with the processing time

图 8 恒压力和恒转速的粗糙度随加工时间变化关系

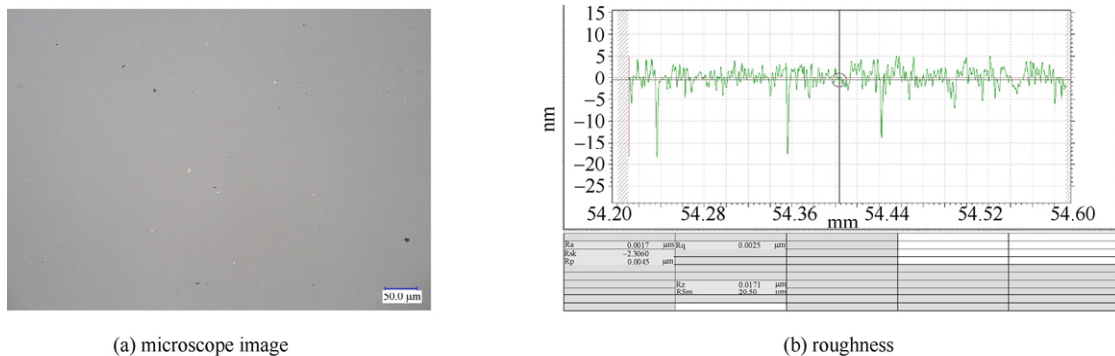


Fig.9 Microscope image and roughness measured under the processing conditions of 50 kPa, 150 r/min

图 9 50 kPa, 150 r/min 加工条件下的显微镜图和粗糙度检测图

除的影响。为了避免产生水合层,在加工过程没有采用含水的冷却液以及其他的排屑手段,熔融石英和 CeO₂ 接触摩擦产生热量,促使反应温度上升,根据 Block 温升公式^[15],接触面的平均温度 T 如公式(5)所示,压力和转速增大,温度上升,熔融石英和 CeO₂ 所示表面化学反应加快,促进材料去除。然而温度过高会导致抛光轮烧伤,大量加工产物残屑堵塞抛光轮表面,导致加工能力下降,减缓材料去除。因此,过低的温度或者过高的温度都无法保证较高的材料去除率,只有当反应温度和抛光轮堵塞达到一个平衡条件,熔融石英的去除深度最深,例如实验参数中所取的压力 50 kPa,转速 150 r/min。

$$T = K \frac{\mu L (v_1 - v_2)}{(c_1 \sqrt{v_1} + c_2 \sqrt{v_2}) \sqrt{\frac{b}{2}}} \quad (5)$$

式中: T 为平均最高表面温升; K 为常数; L 为法向载荷; μ 为摩擦系数; v_1, v_2 为熔融石英和抛光砂轮的

表面速度; c_1, c_2 为熔融石英和抛光轮的材料常数; b 为接触带宽度。

3 结 论

本文针对熔融石英固结磨粒抛光, 研制了抛光轮稳定的配方和烧结工艺, 并将抛光轮丸片应用在熔融石英玻璃无水环境下, 初步达到了高效和无缺陷加工。通过分析 EDS 和 XRD 等检测结果, 确定了材料去除机理和反应过程, 同时, 探索压力和转速对去除效率和表面粗糙度的影响, 实验结果表明材料去除率并不遵循 Preston 公式, 材料去除主要受温升和抛光轮排屑能力的影响。

参考文献:

- [1] Hawleyfedder R A, Stolz C J, Menapace J A, et al. NIF optical materials and fabrication technologies: an overview[C]//Proc of SPIE. 2004, 5341:102-105.
- [2] 郑万国, 魏晓峰, 朱启华, 等. 神光-III 主机装置成功实现 60 TW/180 kJ 三倍频激光输出[J]. 强激光与粒子束, 2016, 28: 019001. (Zheng Wanguo, Wei Xiaofeng, Zhu Qihua, et al. SG-III laser facility has successfully achieved 60 TW/180 kJ ultraviolet laser (351 nm) output. High Power Laser and Particle Beams, 2016, 28: 019001)
- [3] Moses E I, Campbell J N, Stolz C J, et al. The National Ignition Facility: The world's largest optics and laser system [C]//Proc of SPIE. 2003, 5001: 1-15.
- [4] 叶卉, 杨炜, 胡陈林, 等. 磨削加工光学元件亚表面损伤探究[J]. 强激光与粒子束, 2014, 26: 092010. (Ye Hui, Yang Wei, Hu Chenlin, et al. Subsurface damage of ground optical elements. High Power Laser and Particle Beams, 2014, 26: 092010)
- [5] 林晓辉, 马凯威, 黄海滨, 等. 轴对称非球面磨削表面粗糙度和波纹度的分布特性[J]. 强激光与粒子束, 2015, 27: 092013. (Lin Xiaohui, Ma Kaiwei, Huang Haibin, et al. Distribution characteristics of surface roughness and waviness error in axisymmetric aspheric grinding. High Power Laser and Particle Beams, 2015, 27: 092013)
- [6] 杨炜, 郭隐彪, 许乔, 等. 超精抛光中边缘效应对材料去除量的影响 [J]. 强激光与粒子束, 2008, 20(10): 1653-1657. (Yang Wei, Guo Yinbiao, Xu Qiao, et al. Edge effects on material removal amount in ultra-precise polishing process. High Power Laser and Particle Beams, 2008, 20(10): 1653-1657)
- [7] Li Yaguo, Hou Jing, Xu Qiao, et al. The characteristics of optics polished with a polyurethane pad[J]. Optics Express, 2008, 16(14): 10285-10293.
- [8] Gillman B E, Jacobs S D. Bound-abrasive polishers for optical glass.[J]. Applied Optics, 1998, 37(16):3498.
- [9] Zhou L, Eda H, Shimizu J, et al. Defect-free fabrication for single crystal silicon substrate by chemo-mechanical grinding[J]. CIRP Annals-Manufacturing Technology, 2006, 55(1):313-316.
- [10] Li Yaguo, Wu Yongbo, Zhou Libo, et al. Vibration-assisted dry polishing of fused silica using a fixed-abrasive polisher[J]. International Journal of Machine Tools & Manufacture, 2014, 77(1):93-102.
- [11] Tian Y B, Zhou L, Shimizu J, et al. Elimination of surface scratch/texture on the surface of single crystal Si substrate in chemo-mechanical grinding (CMG) process[J]. Applied Surface Science, 2009, 255(7):4205-4211.
- [12] Cook L M. Chemical processes in glass polishing [J]. Journal of Non Crystalline Solids, 1990, 120(1):152-171.
- [13] Osseo-Asare K. Surface chemical processes in chemical mechanical polishing relationship between silica material removal rate and the point of zero charge of the abrasive material[J]. Journal of the Electrochemical Society, 2002, 149(12):G651-G655.
- [14] Preston F W. The structure of abraded glass surfaces[J]. Transactions of the Optical Society, 1922, 23(3):141.
- [15] Block H. Seizure delay method for determining the protection against scuffing afforded by extreme lubricants[J]. Society of Auto Engrs, 1939, 44(5):193-210.

Characteristic of bounded abrasive polishing for fused silica glass in anhydrous environment

Liu Wenjun, Yang Wei, Guo Yinbiao

(School of Aerospace Engineering, Xiamen University, Xiamen 361005, China)

Abstract: In order to overcome the randomness, abrasive waste and hydration layer of free abrasive polishing, a technology of bounded abrasive polishing for fused silica glass under anhydrous environment is proposed. A stable polishing wheel sintering process has been developed and applied to the polishing of fused silica glass. EDS energy spectrum analysis and XRD analysis of the processed products and the polishing wheel powder are carried out. The removal mechanism of consolidation abrasive polishing is preliminarily elaborated, and the effect of pressure and speed on the removal efficiency and surface roughness is explored from the macroscopic point of view. The experimental results show that: in the process, under normal force and shear force, the CeO_2 abrasive reacts with the fused silica, CeO_2 will bring SiO_2 out of the glass, thus to achieve material removal; at the same time, influence of pressure and rotating speed on the processing efficiency does not follow the Preston formula, temperature rise and chip removal of the polishing wheel are the key factors determining the efficiency of removal.

Key words: bounded abrasive polishing; fused silica; roughness; removal rate; sintering process

PACS: 81.65.Ps; 81.70.Jb