

# 影响固体材料激光冷却若干因素的研究\*

贾佑华<sup>1)</sup> 纪宪明<sup>1) 2)</sup> 印建平<sup>1) †</sup>

1) 光谱学与波谱学教育部重点实验室, 华东师范大学物理系, 上海 200062)

2) 南通大学理学院, 南通 226007)

(2006 年 7 月 5 日收到, 2006 年 9 月 1 日收到修改稿)

采用一个简单的二能级系统来分析激光冷却的微观物理过程, 从微观的离子数等方面讨论制冷功率, 从而计算出温度的变化, 同时讨论了影响制冷功率的因素, 找到了提高制冷功率的途径, 详细分析了掺杂离子浓度、抽运功率、有效吸收截面对冷却极限的影响. 最后比较了计算结果与实验数据, 二者基本一致, 从而验证了采用该二能级系统理论分析反斯托克斯荧光制冷的合理性.

关键词: 激光制冷, 反斯托克斯荧光, 掺杂浓度, 制冷功率

PACC: 7855, 7830

## 1. 引 言

早在 1929 年, Pringsheim 提出了利用反斯托克斯荧光对材料进行制冷的思想<sup>[1]</sup>, 它指出某些材料可通过吸收某一长波长的激光并辐射短波长荧光而实现光学冷却. 该思想一提出, 就遭到很多人的反对, 大家都认为该现象不符合热力学第二定律, 人们很难把激光与制冷这两件事联系起来. 然而 1995 年, Epstein 等人成功实现了掺杂  $\text{Yb}^{3+}$  重金属氟化物玻璃 ZBLAN( $\text{ZrF}_4$ - $\text{BaF}_2$ - $\text{LaF}_3$ - $\text{AlF}_3$ - $\text{NaF}$ - $\text{PbF}_2$ ) 的激光冷却<sup>[2]</sup>, 从而实验验证了上述固体材料激光冷却的思想. 此后国际上激光冷却固体材料的领域得到了长足的发展<sup>[3-13]</sup>. 国内在该领域起步较晚, 先后有几个小组在理论上进行了探讨<sup>[14, 15]</sup>, 在实验上研究了掺杂稀土离子材料的光谱性质<sup>[16-18]</sup>, 这些都促进了固体材料激光冷却的新突破.

反斯托克斯荧光制冷既然在实验上已经成功实现, 则必须要在理论上给予合理解释. 其中 Lamouche 等人<sup>[13]</sup>建立了理论模型, 该模型需要对测到的光谱数据进行拟合, 可以得到任何温度下的制冷效率. 他们对不同温度下的实验光谱进行了实验拟合和评估, 得到了平均出射荧光波长随温度的变化关系, 并分析了影响制冷效率的因素. Lamouche 等人的模型

是相当复杂的. 本文将采用一个简单的二能级系统来分析激光冷却的微观物理过程, 从而讨论影响制冷功率的若干因素, 并分析温度随时间的变化关系.

## 2. 基本理论模型

我们采用一个二能级系统模型来分析  $\text{Yb}^{3+}$  离子  $^2F_{7/2} \rightarrow ^2F_{5/2}$  能级之间的吸收与受激辐射过程, 激发态能级上总的稳态粒子数密度可描述为<sup>[3]</sup>

$$\frac{dn_{\uparrow}}{dt} = 0 = \frac{P\lambda}{\alpha_{\text{eff}} hc} [n_{\downarrow} \sigma_{\text{abs}}(\lambda) - n_{\uparrow} \sigma_{\text{sc}}(\lambda)] - \gamma_{\text{rad}} n_{\uparrow}, \quad (1)$$

其中  $n_{\uparrow}$  和  $n_{\downarrow}$  分别代表激发态和基态的粒子数密度,  $P$  为抽运光功率,  $\gamma_{\text{rad}}$  为激发态辐射弛豫速率(常温下为  $526 \text{ s}^{-1}$ ),  $\alpha_{\text{eff}}$  为有效的光抽运面积,  $\sigma_{\text{abs}}(\lambda)$  和  $\sigma_{\text{sc}}(\lambda)$  分别代表吸收截面与受激辐射截面, 该系数用来解释该模型二能级系统中的均匀加宽现象.

同时制冷功率可表示为<sup>[3]</sup>

$$P_{\text{cool}}(\lambda) = \alpha_{\text{eff}} L \left[ -\frac{P}{\alpha_{\text{eff}}} (n_{\downarrow} \sigma_{\text{abs}} - n_{\uparrow} \sigma_{\text{sc}}) + \frac{hc}{\lambda_F} \gamma_{\text{rad}} n_{\uparrow} - \kappa n_{\uparrow} \right], \quad (2)$$

其中  $L$  是制冷样品光纤的长度,  $\lambda_F$  是样品材料的平均出射荧光波长, 系数  $\kappa$  表征无辐射跃迁所致的加

\* 国家自然科学基金(批准号: 30174050 和 10374029), 上海市重点学科和教育部 211 工程专项基金资助的课题.

† 通讯作者: JPYin@Phy.ecnu.edu.cn

热过程. 联立(1)式和(2)式, 利用  $n_{\uparrow} + n_{\downarrow} = N$ ,  $N$  代表材料中  $\text{Yb}^{3+}$  的粒子数浓度, 制冷功率的表达式可转化为

$$P_{\text{cool}} = \frac{N\sigma_{\text{abs}}I\alpha_{\text{eff}}I_s(\lambda/\lambda_{F^*} - 1)}{1 + \sigma_{\text{se}}/\sigma_{\text{abs}} + \alpha_{\text{eff}}I_s/P}, \quad (3)$$

其中  $I_s$  为特定波长的饱和光强, 定义为<sup>[31]</sup>

$$I_s = hc\gamma_{\text{rad}}/\lambda\sigma_{\text{abs}}, \quad (4)$$

$\lambda_{F^*}$  指有效的平均出射荧光波长, 定义为<sup>[31]</sup>

$$\lambda_{F^*} = \left( \frac{1}{\lambda_F} - \frac{\kappa}{hc\gamma_{\text{rad}}} \right)^{-1}, \quad (5)$$

其中  $\sigma_{\text{se}}$ ,  $\sigma_{\text{abs}}$  这两个参数满足如下两个关系式<sup>[12]</sup>:

$$\sigma_{\text{abs}}(T_s) = \sigma_{\text{abs}}(T_r) + \frac{\partial\sigma_{\text{abs}}}{\partial T}(T_s - T_r), \quad (6)$$

$$\frac{\sigma_{\text{se}}(T)}{\sigma_{\text{abs}}(T)} = \frac{Z_{\frac{1}{2}}(T)}{Z_{\frac{3}{2}}(T)} \exp\left[ \frac{hc}{kT} \left( \frac{1}{\lambda_{0V}} - \frac{1}{\lambda} \right) \right], \quad (7)$$

其中  $Z$  的比值代表上下两个能级的简并度之比(约为 1.33),  $\lambda$  指入射激光波长,  $\lambda_{0V}$  代表  $\text{Yb}^{3+}$  离子  $^2F_{7/2}$  和  $^2F_{5/2}$  最低的分裂能级之间所对应的波长.

另一方面, 样品材料由于黑体辐射的净吸收所致的热负载为<sup>[31]</sup>

$$P_{\text{load}} = A \int \epsilon_{\nu} \pi B_{\nu}(T_r) - B_{\nu}(T_s) d\nu, \quad (8)$$

其中  $A$  是样品的表面面积,  $\pi B_{\nu}(T)$  指温度为  $T$  时黑体单位面积在频率  $\nu$  处的辐射半球能量出射率,  $\epsilon$  代表样品的出射率,  $T_r$  和  $T_s$  分别代表室温和样品温度. 当温差  $\Delta T = T_r - T_s$  较小时, (8) 式可近似为

$$\begin{aligned} P_{\text{load}} &= A \int \epsilon_{\nu} \pi \frac{\partial B_{\nu}(T)}{\partial T} \Delta T d\nu \\ &= 4\pi D\epsilon\sigma_B T_r^3 \Delta T \\ &= \pi D\epsilon\sigma_B (T_r^4 - T_s^4), \end{aligned} \quad (9)$$

其中  $D$  为样品光纤的直径.

结合(3)式和(9)式, 制冷过程中样品温度的变化过程可描述为

$$\begin{aligned} \frac{C_m \rho_m \pi D^2}{4} \frac{dT_s - T_r}{dt} \\ = P_{\text{load}}(T_s) - P_{\text{cool}}(T_s), \end{aligned} \quad (10)$$

式中  $C_m$  和  $\rho_m$  分别代表基体材料的热容和密度.

(5) 式中的  $\sigma_{\text{abs}}$ ,  $I_s$  和  $\sigma_{\text{se}}$  参量都会随着制冷过程中温度的变化而变化, 并最终趋于平衡.

根据上面的公式, 我们可以来分析制冷的过程, 其中所采用的计算参数和常量有光纤长度  $L = 4$  cm, 光纤直径  $D = 250$   $\mu\text{m}$ , 入射激光波长  $\lambda = 1015$  nm, 有效的平均出射荧光波长  $\lambda_{F^*} = 996$  nm, 光纤出

射率  $\epsilon = 0.9$ , ZBLANP 材料的密度  $\rho_m = 4.31$   $\text{gcm}^{-3}$ , 材料的热容  $C_m = 0.586$   $\text{Jg}^{-1}\text{K}^{-1}$ . 这些参数是大部分实验中所用的参数<sup>[3, 8, 12]</sup>. 下面我们将着重分析抽运光功率、有效的吸收截面、掺杂浓度这三个可变参数对制冷效果的影响.

### 3. 抽运光功率对制冷效果的影响

为了分析抽运光功率的影响, 还是要从制冷功率的角度来解释. 制冷功率的表达式如(3)式所示. 由(3)式看到抽运光功率的提高将减小了分母, 从而提高制冷功率. 图 1(a) 所示的是抽运功率分别是  $P = 0.77$  W,  $P = 0.85$  W,  $P = 1.36$  W,  $P = 2.2$  W 时的曲线, 其他条件相同 ( $\alpha_{\text{eff}} = 3.2 \times 10^{-5}$   $\text{cm}^2$ ,  $N = 1$  wt%). 上述四种功率分别是目前已成功实现激光冷却实验中所使用的抽运光功率.

由图 1(a) 可看出, 抽运光功率对制冷产生的温降有一定的影响, 但影响不太明显. 同时抽运光功率通常会受到抽运激光的限制. 计算结果表明上述四种不同的功率分别实现了 12.4 K, 12.8 K, 14.8 K 和 16.5 K 的温降. 这些计算结果分别与文献中的实验结果具有较好的符合. 如图 1(b) 所示, 我们还分析了抽运功率的饱和效应, 当抽运功率不断增大时, 会

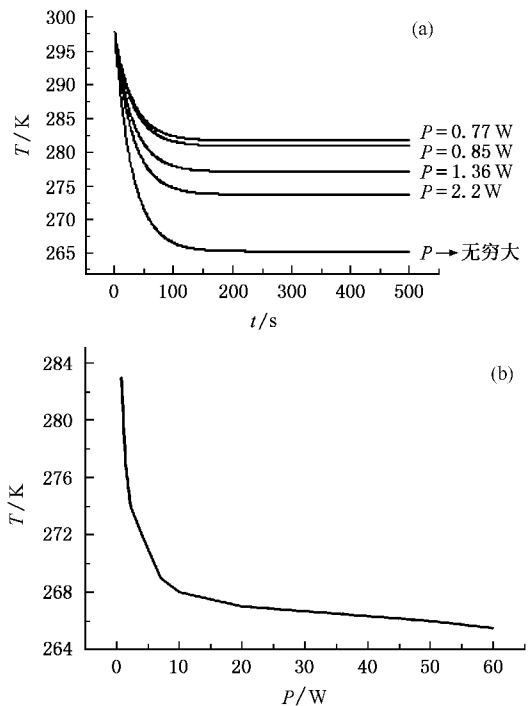


图 1 (a) 不同抽运光功率时制冷效果的比较 (b) 最终温度与抽运功率的关系

有更好的制冷效果,但对应此时的其他参数,抽运功率即使提高到极限,最多只能降到 265 K.

### 4. 有效的吸收截面对制冷效果的影响

由(3)式可以看出,有效的吸收截面系数既影响分子,也影响分母,但通过计算与分析,该因素与制冷功率的变化方向是同向的,在物理上表现为对抽运光吸收的增加可以提高制冷功率.因此,为了提高制冷效果,设法提高有效的吸收截面系数是一种有效的方法.常用的方法有两种,一种方法是采用光纤状介质,并使荧光可以从光纤的表面射出,减少荧光再吸收的概率;另一种方法是采用 F-P 腔的结构,将制冷介质置于腔内,这样就可以增加抽运光在介质内的往返次数,加大了制冷介质对抽运光的吸收.

图 2 所示的是吸收截面分别是  $\alpha_{\text{eff}} = 3.2 \times 10^{-5} \text{ cm}^2$  ( $\Delta T = 17 \text{ K}$ ),  $\alpha_{\text{eff}} = 6.8 \times 10^{-5} \text{ cm}^2$  ( $\Delta T = 24 \text{ K}$ ) 时,其他条件相同时 ( $P = 0.85 \text{ W}$ ,  $N = 1 \text{ wt}\%$ ) 激光制冷过程的变化曲线.上述两个吸收截面的数值是研究者们通过改进实验装置得到的数值<sup>[3]</sup>.由图 2 可看出吸收截面的提高可大大提高制冷效果,实验中把抽运激光束尽可能耦合进光纤也是提高吸收截面的一种有效方法.

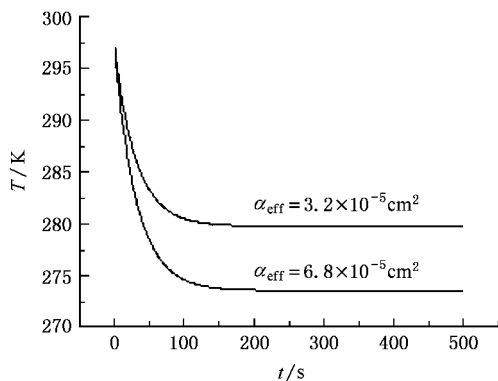


图 2 不同吸收截面时制冷效果的比较

### 5. 稀土离子掺杂浓度对制冷效果的影响

在理论分析中我们用到了  $n_{\uparrow} + n_{\downarrow} = N$ , 即激发态的粒子数浓度与基态的粒子数浓度之和应等于材料中总的稀土离子浓度.由于该参数对制冷功率存在影响,因此它将影响冷却过程,并对实验结果起着举足轻重的作用.

迄今为止,有关掺杂稀土离子浓度对材料光谱性质的影响已经受到研究者们重视<sup>[19-22]</sup>.研究表明,材料中  $\text{Yb}^{3+}$  离子峰值吸收波长位置与  $\text{Yb}^{3+}$  离子

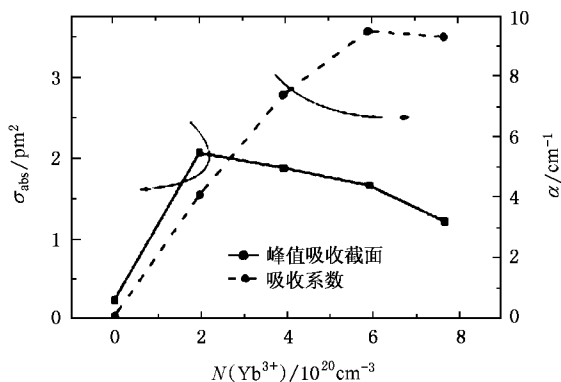


图 3 不同  $\text{Yb}^{3+}$  掺杂浓度下吸收系数和峰值吸收截面斯塔克能级分裂有关,主要受基质玻璃组分影响.在  $\text{Yb}^{3+}$  离子浓度较低时,随着  $\text{Yb}^{3+}$  离子浓度增加其吸收截面也增加,制冷功率增加;但是  $\text{Yb}^{3+}$  离子浓度太高会使  $\text{Yb}^{3+}$  离子间间距缩短,引起  $\text{Yb}^{3+}$  离子的团簇效应,降低  $\text{Yb}^{3+}$  离子吸收特性,反而削弱了制冷效果<sup>[22]</sup>.

图 3 反映的是不同  $\text{Yb}^{3+}$  掺杂浓度下吸收系数和峰值吸收截面的变化情况.其中实线代表峰值吸收截面的变化,虚线代表吸收系数的变化.

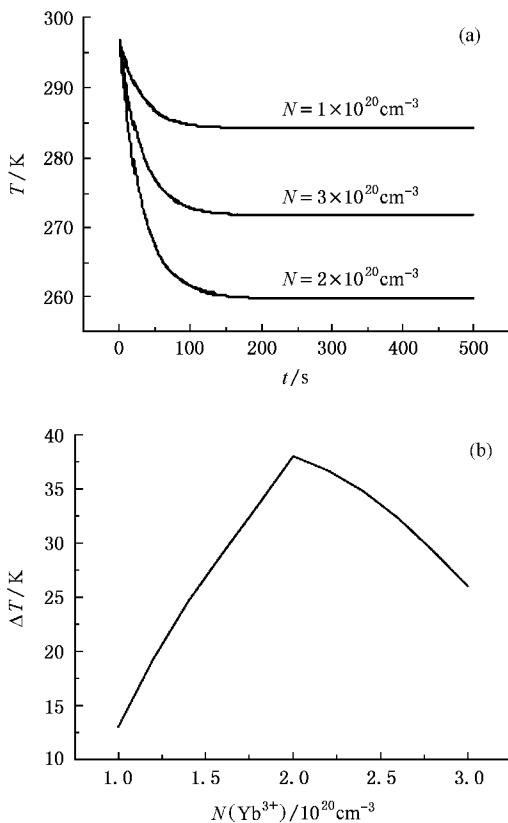


图 4 (a) 不同掺杂浓度时制冷结果的比较 (b) 不同掺杂浓度时产生的温降

由图 3 可看出,吸收系数随着掺杂浓度的提高而提高,但随后渐显下降趋势,峰值吸收截面则明显显示出先上升后下降的趋势,这就显示出掺杂浓度存在一个最佳值,从而获得最大的吸收截面.上述现象同样可以从制冷功率的表达式(3)中得出: $N$ 的增大可以提高分子,但随着 $N$ 的继续增大,吸收截面 $\sigma_{\text{abs}}$ 减小,这样导致分母增大,大大限制了制冷功率,故不能无限制提高制冷效果.

图 4(a)所示的为不同  $\text{Yb}^{3+}$  掺杂浓度下制冷结果理论计算图( $\alpha_{\text{eff}} = 7.9 \times 10^{-5} \text{ cm}^2$ ,  $P = 2.2 \text{ W}$ ).由图 4(b)可以看出,最佳的掺杂浓度约在  $2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ ,而所有实验中使用的掺杂的质量分数是 1wt%,近似等价于  $2.4 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ ,这与理论分析结果基本一致.

## 6. 激光冷却实验结果的实验验证

1997 年, Mungan 等人实现了掺杂  $\text{Yb}^{3+}$  光纤材料从 298 K 到 282 K 的激光冷却<sup>[8]</sup>. 实验所用的主要参数为:样品光纤直径为 250  $\mu\text{m}$ ,抽运波长为 1015 nm,掺杂浓度为 1 wt%,有效的吸收截面为  $3.2 \times 10^{-5} \text{ cm}^2$ ,抽运功率为 0.77 W. 利用以上参数并结合一些常量,我们得到了温度随时间的变化曲线,如图 5 所示.

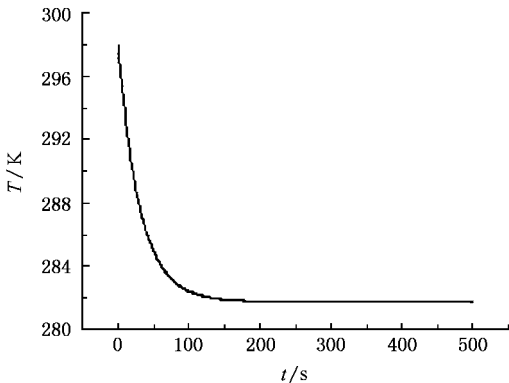


图 5  $N = 1\%$ ,  $\alpha_{\text{eff}} = 3.2 \times 10^{-5} \text{ cm}^2$ ,  $P = 0.77 \text{ W}$  时的冷却过程

图 5 表明,当  $N = 1\%$ ,  $\alpha_{\text{eff}} = 3.2 \times 10^{-5} \text{ cm}^2$ ,  $P = 0.77 \text{ W}$  时,可实现样品温度从 298 K 到 281.73 K 的降温,这与 Mungan 等人的实验结果<sup>[8]</sup>基本符合.

随后, Luo 等人在 1998 年实现了掺杂  $\text{Yb}^{3+}$  光纤材料从 298 K 到 277 K 的温度降低<sup>[3]</sup>. 实验所用的主要参数与 Mungan 等人采用的实验参数相同,只是制冷功率增大到了 1.36 W. 根据这些参数,我们计算了激光冷却样品的温度变化,其结果如图 6 所示.

由图 6 可以看出,随着激光冷却时间的增加,样品温度从 298 K 降到了 277.1 K,实现了 20.9 K 的降温.显然,这一理论计算结果与 Luo 等人的实验结果 21 K 完全一致.

另一方面,产生温度变化的时间计算结果与实验也基本符合.实验表明,该制冷过程的时间常数为 40 s<sup>[12]</sup>,此时温度下降到  $1/e$  处,这与我们的计算曲线基本一致.这进一步表明我们提出的用于分析固体激光制冷效果的二能级模型是合理可行的.

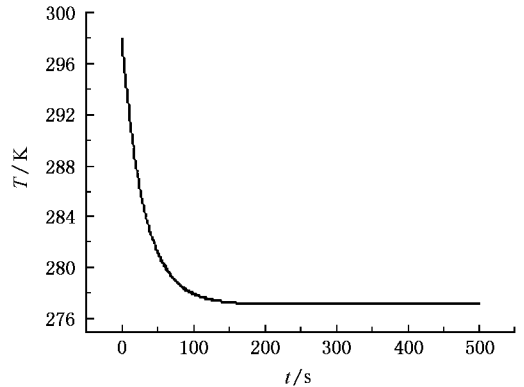


图 6  $N = 1\%$ ,  $\alpha_{\text{eff}} = 3.2 \times 10^{-5} \text{ cm}^2$ ,  $P = 0.85 \text{ W}$  时的冷却过程

## 7. 结 论

本文提出采用一个二能级系统模型来分析  $\text{Yb}^{3+}$  离子  $^2F_{7/2} \rightarrow ^2F_{5/2}$  能级之间的吸收与受激辐射过程,讨论了影响制冷功率的因素,找到了提高制冷功率的途径,详细分析了掺杂离子浓度、抽运功率、有效吸收截面对冷却极限的影响,得到最佳的掺杂浓度在  $2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ ,实质上就是掺杂离子在该浓度下具有最大的吸收截面.这些都会给实验中温度测量提供一个基准,并可以参照以上结果优化实验参数,从而获得更好的制冷结果,为反斯托克斯荧光制冷器的研制及其实用化创造条件<sup>[23]</sup>.



- [ 1 ] Pringsheim P 1929 *Z. Phys.* **57** 739
- [ 2 ] Epstein R I, Buchwald M I, Edwards B C, Gosnell T R, Mungan C E 1995 *Nature* **377** 500
- [ 3 ] Luo X, Eisaman M D, Gosnell T R 1998 *Opt. Lett.* **23** 639
- [ 4 ] Hoyt C W, Sheik-Bahae M, Epstein R I, Edwards B C, Anderson J E 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 3600
- [ 5 ] Hoyt C W, Hasselbeck M P, Sheik-Bahae M, Epstein R I, Greenfield S, Thiede J, Distel J, Valencia J 2003 *J. Opt. Soc. Am. B* **20** 1066
- [ 6 ] Murtagh M T, Sigel G H Jr, Fajardo J C, Edwards B C, Epstein R I 1999 *J. Non-Cryst. Solids* **253** 50
- [ 7 ] Rayner A, Friese M E J, Truscott A G, Heckenberg N R, Rubinsztein-Dunlop H 2001 *J. Mod. Opt.* **48** 103
- [ 8 ] Mungan C E, Buchwald M I, Edwards B C, Epstein R I, Gosnell T R 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 1030
- [ 9 ] Bowman S R, Mungan C E 2000 *Appl. Phys. B* **71** 807
- [ 10 ] Mendioroz A, Fernandez J, Voda M, Al-Saleh M, Balda R 2002 *Opt. Lett.* **27** 1525
- [ 11 ] Epstein R I, Brown J J, Edwards B C, Gibbs A 2001 *J. Appl. Phys.* **90** 4815
- [ 12 ] Gosnell T R 1999 *Opt. Lett.* **24** 1041
- [ 13 ] Lamouche G, Lavallard P, Suris R, Grousson R 1998 *J. Appl. Phys.* **84** 509
- [ 14 ] Qin W P, Zhang J H, Huang S H 1998 *Acta Phys. Sin.* **47** 1397 (in Chinese) [秦伟平、张家骅、黄世华 1998 物理学报 **47** 1397]
- [ 15 ] Sun H S, Jia Y H, Ji X M, Yin J P 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 3112 (in Chinese) [孙海生、贾佑华、纪宪明、印建平 2006 物理学报 **55** 3112]
- [ 16 ] Duan Z C, Zhang J J, He D B, Dai S X, Hu L L 2006 *Chinese Physics* **15** 209
- [ 17 ] Xu S Q, Fang D W, Zhang Z X, Zhao S L, Zhang L Y, Wang B L, Jiang Z H 2005 *Chinese Physics* **14** 2246
- [ 18 ] Zhao C, Zhang Q Y, Pan Y X, Jiang Z H 2006 *Chinese Physics* **15** 2158
- [ 19 ] Feng Y, Chen X B, Song F *et al* 1999 *Acta Opt. Sin.* **19** 552 (in Chinese) [冯 衍、陈晓波、宋 峰等 1999 光学学报 **19** 552]
- [ 20 ] Wetenkamp L, West G F, Tobben H 1992 *J. Non-Cryst. Solid* **140** 35
- [ 21 ] Li J C, Li S G, Hu H F *et al* 2004 *Chin. J. Lasers* **31** 232
- [ 22 ] Dai N L, Yang J H, Dai S X *et al* 2003 *Acta Opt. Sin.* **23** 892 (in Chinese) [戴能利、杨建虎、戴世勋等 2003 光学学报 **23** 892]
- [ 23 ] Edwards B C, Anderson J E, Epstein R I, Mills G L, Mord A J 1999 *J. Appl. Phys.* **86** 6489

## Research on several parameters influencing on laser cooling of solids<sup>\*</sup>

Jia You-Hua<sup>1)</sup> Ji Xian-Ming<sup>1,2)</sup> Yin Jian-Ping<sup>1)</sup>

1) *Key Laboratory for Optical and Magnetic Resonance Spectroscopy East China Normal University, Shanghai 200062, China*

2) *Science College, Nantong University, Nantong 226007, China*

(Received 5 July 2006; revised manuscript received 1 September 2006)

### Abstract

Laser cooling of solids is also called anti-Stokes fluorescent cooling, it is a new optical cooling technology in recent years. We propose a two-level model to analyze the absorption and stimulated-emission processes between the  $\text{Yb}^{3+} \ ^2\text{F}_{7/2}$  ground-state manifold and the  $\ ^2\text{F}_{5/2}$  excited-state manifold, and discuss several parameters that influence the cooling power, and find some ways to improve the cooling power. The influences of the doped concentration, pumping power and the effective pump-spot area on cooling are particularly analyzed. At the same time, we make computer simulation about the cooling process and obtain the temperature as a function of the cooling time, which is similar to the experimental results. So this shows that our model is reasonable.

**Keywords:** Laser cooling, anti-Stokes fluorescence, doped concentrations, cooling power

**PACC:** 7855, 7830

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10174050 and 10374029), and the Shanghai Priority Academic Discipline and the 211 Foundation of the Educational Ministry of China.

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: JPYin@Phy.ecnu.edu.cn