

文章编号: 0253-2239(2006)10-1522-4

Tm³⁺ 掺杂玻璃激光致冷新方案的理论分析*

孙海生 贾佑华 印建平

(华东师范大学物理系光谱学与波谱学教育部重点实验室, 上海 200062)

摘要: 提出了一种用于块状 Tm³⁺ 掺杂玻璃 ZBLANP(ZrF₄-BaF₂-LaF₃-NaF-PbF₂)激光致冷的新方案,即通过两组相互垂直的高反射率平面镜的多次反射,增加对抽运光的吸收,为了减少抽运光在样品表面入射时的反射损失,抽运光以布儒斯特角入射。重点就该方案的样品致冷温度和时间常量进行了详细的理论计算与分析,从理论上分析了入射激光功率为 1 W 时致冷功率和反射次数的关系,研究了不同入射激光功率下致冷温度和反射次数的关系。结果表明,入射激光功率分别为 3 W、4 W、5 W 时,样品可以分别从室温(300 K)被冷却到 275.7 K、267.4 K、259.1 K。特别是在入射激光功率为 4.5 W 时,样品从室温开始被冷却到 263.2 K,即致冷后样品的温度下降了 36.8 K,比传统致冷方法提高了约 53.3%,相应的致冷时间常量为 22.7 min。

关键词: 光学材料; 固体材料的激光冷却; 反斯托克斯荧光; 多次反射

中图分类号: O482.2; O482.31 文献标识码: A

Theoretical Analysis on New Scheme to Cool Tm³⁺-Doped Glass Sample

Sun Haisheng Jia Youhua Yin Jianping

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

Abstract: A new scheme to realize laser cooling of blocky Tm³⁺-doped glass ZBLANP (ZrF₄-BaF₂-LaF₃-NaF-PbF₂) is proposed. In this scheme, the absorption of pumping laser power is greatly enhanced by multiple reflections between two sets of mirrors with high reflectance, and with the incident angle of the pumping laser being Brewster angle, the reflection losses on the two end-faces of the sample are reduced to nearly zero. The cooling temperature of the bulk sample and its cooling time constant in this scheme are calculated in detail, and the relationship between cooling power and number of passes with 1 W incident laser power and between sample temperature and number of passes under the different incident laser power is studied. It is found that the sample is cooled from ambient temperature (300 K) to 275.7 K, 267.4 K and 259.1 K when the incident laser power are 3 W, 4 W and 5 W respectively. Especially, when the incident laser power is 4.5 W, the sample temperature is reduced to 263.2 K, namely, the sample temperature change is 36.8 K, which is 1.53 times of that from a conventional scheme, and the corresponding cooling time constant is about 22.7 min.

Key words: optical materials; laser cooling of solids; anti-Stokes fluorescence; multiple reflections

1 引 言

反斯托克斯荧光致冷(即激光致冷)是利用荧光辐射带走材料内部的能量以达到致冷的目的。近年来发展起来的该项激光致冷技术具有全光型、无机械振动、无电磁辐射、不受外界电磁辐射的影响和工作寿命长等特点,因而在许多领域中有着广阔的应用前景,特别是在遥控、遥测和空间技术等领域具有重要的应用^[1,2]。国内对固体材料激光致冷的研究相对较

晚,目前已有几个小组在进行这方面的工作,提出了新的理论模型和致冷机理^[3],并对稀土离子掺杂材料的光谱性质和应用方面进行了研究^[4~8]。

尽管激光致冷在实验上已经取得了突破性进展,但是样品尺寸及其冷却温度有限,尚未得到实际的应用。其主要原因是较好的致冷效果仅在体积很小的光纤致冷实验中获得^[9~11],因而负载能力较小。现有的实验只是证明了反斯托克斯荧光致冷原理的正确

* 国家教育部博士点基金(20040269010)、上海市重点学科和教育部 211 工程专项基金资助课题。

作者简介: 孙海生(1974~),男,山东聊城人,华东师范大学光谱学与波谱学教育部重点实验室硕士研究生,主要从事激光冷却、原子分子与量子光学方面的研究。E-mail: ys03122032@student.ecnu.edu.cn

导师简介: 印建平(1955~),男,江苏江阴人,教授,博士生导师,主要从事原子分子与量子光学方面的研究。E-mail: jpyin@phy.ecnu.edu.cn

收稿日期: 2005-11-03; 收到修改稿日期: 2006-04-12

性,并就该致冷技术能够实现的致冷温度进行了一系列的探索性研究。要获得实际应用,必须增加致冷样品的体积,并提高致冷效果,使负载能力大大增加。为此,本文提出了一种适用于块状大体积固体样品激光致冷的新方案,并采用简化的理论模型就本方案的致冷效果进行了理论计算与分析。

2 激光致冷实验中需要解决的问题

激光致冷是利用介质发射反斯托克斯荧光时,入射光子和出射光子之间的能量差带走介质的能量,这一能量差来自对介质声子的吸收。致冷循环过程包括:抽运(吸收激光光子)、热弛豫(吸收热量)和自发辐射(放出荧光光子)。在反斯托克斯荧光致冷过程中,首先吸收入射光子跃迁到激发态,通过热弛豫吸收介质中的声子,然后把介质的振动能量转化为荧光光子的能量发射出去,从而实现介质的冷却。在一个冷却循环过程中,吸收一个能量为 $h\nu$ 的激光光子,放出平均能量为 $h\nu_f$ 的荧光光子,带走了 $h\nu_f - h\nu$ 的热能,这里 $h\nu_f$ 为荧光辐射的平均能量。由此可见,只有抽运波长大于荧光平均波长,即 $\lambda > \lambda_f$ 时,才能使样品辐射荧光带走的能量大于吸收激光的能量,通过 N 次的冷却循环实现材料温度的有效降低;反之,样品被加热。目前,在实验中使用的固体材料主要有:稀土离子 Yb^{3+} 或 Tm^{3+} 掺杂的玻璃、 Yb^{3+} 离子掺杂的晶体和半导体材料等^[12]。

尽管激光致冷的原理并不复杂,但是在实验中要实现大的有效净致冷,难度比较大,主要是在抽运光的吸收过程中产生加热的机理比较多,要实现致冷必须提高材料的性能,解决如下几个有关抑制加热效应的问题:1)提高荧光辐射的量子效率,使量子效率尽可能接近于1;2)提高样品的纯度,尽可能地减少杂质对光子吸收造成的加热;3)增加稀土离子对抽运光的吸收,同时减少荧光的再吸收;4)减少样品与周围环境之间的耦合。因此,在激光致冷实验中人们选择高纯度、高量子效率的发光材料作成光纤样品,放在真空室内,用硅丝支撑,使致冷样品的热负载主要来自周围环境的黑体辐射,这些措施使样品致冷的效果较好,但是考虑到光纤的特点,难以获得广泛的实际应用^[13]。

Hoyt 和 Heeg 等分别对体积较大样品的激光致冷进行了实验研究,美国洛斯阿拉莫斯(Los Alamos)实验室设计了第一代激光致冷器^[14]。在这些实验中,采用的样品体积相对比较大,为了增加对抽运光的吸收,利用反射镜(或法布里-珀罗腔)使抽

运光多次经过样品。洛斯阿拉莫斯实验室设计的致冷器,在致冷介质两端镀介质膜,抽运光在介质膜之间多次反射,达到增加吸收抽运光的目的,但是有部分激光被反射膜吸收,造成加热,增加热负载,严重时甚至会超过致冷,而且反射层不利于荧光出射,使荧光再吸收比较严重,也影响致冷效果^[15]。Hoyt 把样品放在由平面镜和曲面镜组成的腔内致冷^[16],这样避免了直接镀在样品表面的反射膜吸收激光而造成的加热,但是抽运光在入射到样品表面时会发生反射,使部分抽运光不能进入样品,造成抽运光的反射损失。在另外一种方案中,虽然抽运光以布儒斯特角入射,减少了第一次入射时的反射损失,但是经过曲面镜反射后抽运光的入射角不再等于布儒斯特角,在样品表面的反射损失仍然存在。另外,他们使用的样品是圆柱体,不可能使整个样品全部受到抽运光的照射,这样没有被激光照射的样品部分就相当于负载,不利于提高致冷效果,而且利用 Hoyt 的方案增加抽运光的反射次数也是非常有限的^[17]。

3 激光致冷方案的改进

为了避免样品表面镀反射层造成的加热,减少抽运光在入射到介质表面时的反射损失,同时让抽运光多次反射,增加抽运光在样品中通过的距离,使样品尽可能多地吸收抽运光,并尽可能让荧光光子辐射出去,以减少荧光辐射的再吸收。我们设计的改进光路如图1所示,采用的样品比较薄,有利于荧光出射,线偏振的抽运激光沿着反射镜 M_1 和 M_2 的对称轴以布儒斯特角 i_b ($\text{Tm}^{3+}:\text{ZBLANP}$ 材料折射率为1.49, $i_b = 56.3^\circ$)入射到样品上, M_1 和 M_2 相互垂直,透射光经过反射率很高的反射镜 M_3 和 M_4 反射,这里 M_3 和 M_4 也是相互垂直放置的,使反射光仍然以布儒斯特角 i_b 再次入射到样品上,经过样品后再经过反射镜 M_1 和 M_2 的反射,抽运光在两组平面镜之间经过多次反射后可以增加样品对抽运

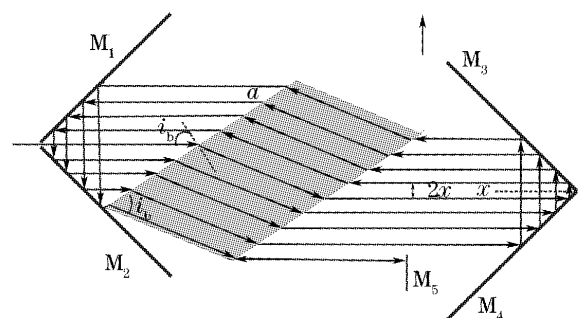


图1 多次反射的示意图

Fig. 1 Multiple-pass illustration

光的吸收,以提高致冷效果。当抽运光在两组反射镜之间多次反射后,将不能再进入样品,而反射镜 M_5 与入射抽运光垂直,可将抽运光再反射进入样品,实现第二次的抽运光多次反射。这样既可利用反射增加抽运光在样品中的光程,又可保证每次抽运光均是以布儒斯特角入射到样品中,以减少抽运光入射到样品表面时的反射损失。此外,利用图 1 所示的实验方案还可以沿着箭头方向移动反射镜 M_3 和 M_4 ,通过改变入射光第一次从样品透射出的透射光与 M_3 、 M_4 间对称轴的距离,控制或改变抽运光的反射次数,其反射次数可表示为

$$n = a \cos 56.3^\circ / x, \quad (1)$$

式中 a 为样品的长度。可通过改变抽运光在样品中的总光程 $L = nl$ (这里 l 为样品的宽度),研究入射激光功率相同的情况下反射次数对致冷效果的影响。

4 致冷的理论计算与分析

4.1 理论模型

样品吸收的抽运功率为^[16]

$$P_{\text{abs}} = P_{\text{in}} [1 - \exp(-\alpha_{\text{total}} l)] \times [1 + R^2 \exp(-\alpha_{\text{total}} l) + R^4 \exp(-2\alpha_{\text{total}} l) + \dots] = P_{\text{in}} [1 - \exp(-\alpha_{\text{total}} l)] \frac{1 - s^n}{1 - s}, \quad (2)$$

$$s = R^2 \exp(-\alpha_{\text{total}} l), \quad (3)$$

式中 P_{in} 和 P_{abs} 分别是入射功率和吸收功率, $\alpha_{\text{total}} = \alpha_r + \alpha_b$ 分别是总吸收系数、共振吸收系数和背景吸收系数, R 是反射镜的反射率, l 是抽运光在样品中透射一次经过的距离。理想情况下,致冷功率为 $P_{\text{cool}} = P_{\text{abs}}(\lambda)(\lambda - \lambda_f)/\lambda_f$,但是由于发射荧光的量子效率通常小于 1,而且考虑到介质对抽运光的背景吸收造成的加热效应,致冷功率改写为^[16]

$$P_{\text{cool}}(\lambda) = P_{\text{abs}} \left[\frac{\eta \lambda \alpha_r}{\lambda_f (\alpha_r + \alpha_b)} - 1 \right], \quad (4)$$

式中 η 为荧光量子效率, λ 和 λ_f 分别为抽运光波长和荧光辐射的平均波长。致冷过程中,随着介质温度的降低,能量高的激发态子能级的布居数减少,荧光平均能量降低,辐射荧光的平均波长增大,每一次致冷循环吸收声子的能量减少,致冷效率降低。Lamouche 从理论上分析了材料发射的荧光平均波长和温度之间的关系^[18],发现荧光波长与温度之间的关系近似为线性关系。参考 Hoyt 等对 $\text{Tm}^{3+}:\text{ZBLANP}$ 样品激光致冷时的实验数据^[17],拟合得到了 $\text{Tm}^{3+}:\text{ZBLANP}$ 材料发射的荧光平均波长和样品温度间的

关系: $\lambda_f = 1858.66 - 0.195904 \times T$, 这里波长单位为 nm, 温度单位为 K。(4)式可以进一步改写为

$$P_{\text{cool}}(\lambda) = P_{\text{abs}} \left[\frac{\eta \lambda \alpha_r}{(1858.66 - 0.195905 \times T) \times (\alpha_r + \alpha_b)} - 1 \right]. \quad (5)$$

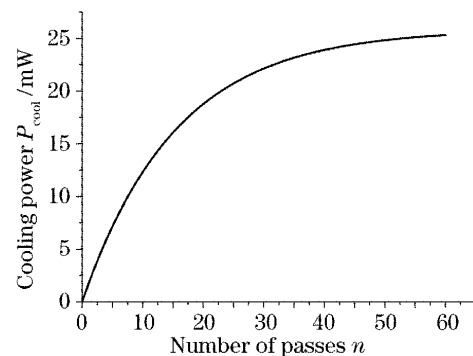
通常,样品被绝热性很好的材料支撑在真空室内,可忽略热传导和热对流造成的样品与周围环境的能量交换。因此,样品与周围环境的耦合仅来自真空室的黑体辐射^[16]:

$$P_{\text{load}} = \frac{1}{1 + \chi} \epsilon_s A_s \sigma (T_c^4 - T_s^4), \quad (6)$$

$$\chi = \frac{\epsilon_s A_s}{\epsilon_c A_c} (1 - \epsilon_c), \quad (7)$$

这里 ϵ_s 和 ϵ_c 为样品和真空室的发射系数, A_s 和 A_c 为样品和真空室的表面积, σ 为斯特藩-玻尔兹曼常量, T_s 和 T_c 分别为样品和真空室的温度。在计算中可认为真空室的温度等于周围环境的温度。当样品温度达到稳定状态时,致冷功率将等于热负载,即 $P_{\text{cool}} = P_{\text{load}}$ 。根据(4)式、(5)式和(6)式,可以计算致冷功率和样品冷却的温度。

设如图 1 中所示样品的长度 a 和宽度 l 分别为 40 mm 和 25 mm,厚度为 2 mm,当入射光功率为 1 W 时,计算得到的致冷功率与反射次数的关系如图 2 所示。在计算中所取的参量分别为^[16,19]: 荧光量子效率 0.99,抽运波长 1.9 μm ,共振吸收系数 0.024706 cm^{-1} ,背景吸收系数 $4 \times 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$,反射镜的反射率为 0.999。由图 2 可以看出,致冷功率随着反射次数的增加而增加,且当反射次数接近 60 次时,致冷功率趋向稳定值。图 3 是入射激光功率分别为 3 W、4 W 和 5 W 时样品温度与反射次数之间的关系。考虑到激光束的直径和发散问题,可以采用 0 阶贝塞尔光束,按照样品的大小,控制第一次



当入射光功率为 1 W 时,致冷功率与反射次数的关系
Fig. 2 Relationship between cooling power and number of passes when the incident laser power is 1 W

透射的抽运光和 M_3 、 M_4 之间对称轴的距离,可以使反射次数达到 40 次,则样品可分别被冷却到 275.7 K、267.4 K 和 259.1 K。这里假设真空室的温度为 300 K,样品和真空室的发射系数 ϵ_s 、 ϵ_c 分别为 0.9 和 0.07^[10,15],真空室的横截面积为 100 cm²。

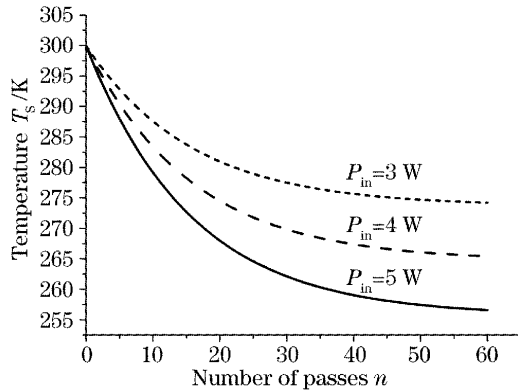


图 3 在不同入射激光功率下,致冷温度与反射次数间的关系
Fig. 3 Relationship between sample temperature and number of passes under different incident laser power

4.2 时间常量

在温度变化比较小的情况下,(6)式可以近似表示为^[16]

$$P_{\text{load}} \approx \frac{4}{1+\chi} \epsilon_s A_s \sigma T_c^3 \Delta T, \quad (8)$$

样品温度随时间的变化将满足

$$C \frac{dT_s}{dt} = P_{\text{cool}} + P_{\text{load}} = P_{\text{cool}} + \frac{4}{1+\chi} \epsilon_s A_s \sigma T_c^3 \Delta T, \quad (9)$$

结合初始条件, $t=0$ 时 $\Delta T = T_c - T_s = 0$,解微分方程(9)可以得到

$$T_s = T_c + \frac{P_{\text{cool}}}{\kappa C} [1 - \exp(-t/\tau)], \quad (10)$$

式中 $C = c_m \rho V_s$, c_m 为材料的比热, ρ 为密度, V_s 为样品的体积, $\kappa = \frac{4\epsilon_s \sigma A_s T_c^3}{C(1+\chi)}$, $\tau = 1/\kappa$, τ 即致冷的时间常量,计算得到的致冷时间常量为 22.7 min。

5 结 论

本文提出了一种用于块状大体积样品激光致冷的新方案,分析与研究了样品致冷温度与反射次数的关系,并计算了样品致冷的时间常量。研究发现当入射激光功率为 4.5 W 时,样品被冷却 36.8 K,比传统致冷方法提高了约 53.3%,相应的致冷时间常量为 22.7 min。

参 考 文 献

1 R. I. Epstein, M. I. Buchwald, B. C. Edwards *et al.*. Observation of laser-induced fluorescent cooling of a solid[J].

Nature, 1995, **377**(6549): 500~503
2 B. C. Edwards, M. I. Buchwald, R. I. Epstein. Development of the Los Alamos solid-state optical refrigerator[J]. *Rev. Sci. Instruments*, 1998, **69**(5): 2050~2055
3 Qin Weiping, Zhang Jiahua, Huang Shihua. Study on the fluorescent cooling by energy transfer within inhomogenous line shape in solids[J]. *Acta Physica Sinica*, 1998, **47**(8): 1397~1403 (in Chinese)
秦伟平,张家骅,黄世华. 固体中非均匀线形内能量传递引起的荧光致冷效应[J]. *物理学报*, 1998, **47**(8): 1397~1403
4 Jia Youhua, Yin Jianping. Research on laser cooling in thulium-doped materials[J]. *Acta Optica Sinica*, 2005, **25**(10): 1375~1379 (in Chinese)
贾佑华,印建平. Tm^{3+} 掺杂材料激光冷却的研究[J]. *光学学报*, 2005, **25**(10): 1375~1379
5 Zhang Long, Qi Changhong, Lin Fengying *et al.*. IR emission and frequency upconversion in Tm^{3+} doped fluoroaluminate glass [J]. *Acta Optica Sinica*, 2002, **22**(2): 233~237 (in Chinese)
张龙,祁长鸿,林凤英等. Tm^{3+} 离子掺杂氟铝酸盐玻璃红外及上转换光谱性质[J]. *光学学报*, 2002, **22**(2): 233~237
6 Li Jiacheng, Li Shunguang, Hu Hefang *et al.*. Spectroscopy of Yb^{3+} -doped fluoroaluminate glasses[J]. *Chin. J. Lasers*, 2004, **31**(2): 232~236 (in Chinese)
李家成,李顺光,胡和方等. Yb^{3+} 掺杂氟铝酸盐玻璃的光谱性质[J]. *中国激光*, 2004, **31**(2): 232~236
7 Xu Shiqing, Yang Zhongmin, Wang Guonian *et al.*. The up conversion luminescence of $\text{Er}^{3+}/\text{Yb}^{3+}$ codoped oxyfluorosilicate glasses[J]. *Acta Optica Sinica*, 2004, **24**(8): 1103~1106 (in Chinese)
徐时清,杨中民,汪国年等. $\text{Er}^{3+}/\text{Yb}^{3+}$ 共掺杂氧氟硅酸盐玻璃的上转换发光[J]. *光学学报*, 2004, **24**(8): 1103~1106
8 Xu Shiqing, Wang Guonian, Yang Zhongmin *et al.*. Spectra properties and Upconversion mechanisms of Er^{3+} doped heavy metal oxyfluoride germanate glass[J]. *Chin. J. Lasers*, 2004, **31**(10): 1198~1202 (in Chinese)
徐时清,汪国年,杨中民等. Er^{3+} 掺杂重金属氧氟锗酸盐玻璃的光谱性质和上转换机理[J]. *中国激光*, 2004, **31**(10): 1198~1202
9 C. E. Mungan, M. I. Buchwald, B. C. Edward *et al.*. Laser cooling of a solid by 16 K starting from room temperature[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1997, **78**(6): 1030~1033
10 X. Luo, M. D. Eisaman, T. R. Gosnell. Laser cooling of a solid by 21 K starting from room temperature[J]. *Opt. Lett.*, 1998, **23**(8): 639~641
11 T. R. Gosnell. Laser cooling of a solid by 65 K starting from room temperature[J]. *Opt. Lett.*, 1999, **24**(15): 1041~1043
12 A. Rayner, N. R. Heckenberg, H. Rubinsztein-Dunlop. Condensed-phase optical refrigeration[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2003, **20**(5): 1037~1053
13 Qin Weiping, Chen Baojiu, Zhang Yongxu *et al.*. Development of fluorescent cryocooler in future[J]. *Chin. J. Luminescence*, 2001, **22**(1): 37~42 (in Chinese)
秦伟平,陈宝玖,张永旭等. 荧光致冷器的未来发展[J]. *发光学报*, 2001, **22**(1): 37~42
14 B. C. Edwards, M. I. Buchwald, R. I. Epstein. Optical refrigerator using reflectivity tuned dielectric mirrors[P]. U. S. patent, 2000, 6,041,610
15 B. Heeg, M. D. Stone, A. Khizhnyak *et al.*. Experimental demonstration of intracavity solid-state laser cooling of $\text{Yb}^{3+} : \text{ZrF}_4\text{-BaF}_2\text{-LaF}_3\text{-AlF}_3\text{-NaF}$ glass [J]. *Phys. Rev. A*, 2004, **70**(2): 021401-1~021401-4
16 C. W. Hoyt, M. P. Hasselbeck, M. Sheik-Bahae *et al.*. Advances in laser cooling of thulium-doped glass[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2003, **20**(5): 1066~1074
17 C. W. Hoyt. Laser cooling in thulium-doped solids [D]. New Mexico: University of New Mexico Albuquerque, 2003. 5, 65~80
18 G. Lamouche, P. Lavallard, R. Suris *et al.*. Low temperature laser cooling with a rare-earth doped glass[J]. *J. App. Phys.*, 1998, **84**(1): 509~516
19 C. W. Hoyt, M. Sheik-Bahae, R. I. Epstein *et al.*. Observation of anti-Stokes fluorescence cooling in thulium-doped glass[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2000, **85**(17): 3600~3603