

Yb³⁺:LuLiF₄ 晶体激光制冷的热负载管理

罗昊¹, 钟标^{1,2}, 雷永清¹, 石艳玲², 印建平¹

- (1. 华东师范大学 精密光谱科学与技术国家重点实验室, 上海 200062;
2. 华东师范大学 信息科学技术学院, 上海 200062)

摘要: 为了研究 Yb³⁺:LuLiF₄ 晶体在反 Stokes 荧光制冷过程中的热负载管理机制, 开展了在常压 (1.0×10⁵ Pa) 和高真空 (2.5×10⁻³ Pa) 状态下的激光制冷实验。掺杂浓度为 5 mol% 的样品由两根光纤支撑, 被放置在真空状态不同的腔体内。利用波长 1 020 nm, 功率 3 W 的激光激发样品。在常压下, 样品温度相对室温下降了 $\Delta T \approx 12$ K; 在高真空下, $\Delta T \approx 26$ K。对于常压状态, 空气热对流负载约 11.23 mW, 光纤热传导负载约 0.03 mW, 腔体热辐射负载约 4.8 mW。对于高真空状态, 空气热对流负载约 0.03 mW, 光纤热传导负载约 0.07 mW, 腔体热辐射负载约 10.4 mW。实验结果表明, 当腔体压强由 -10⁵ Pa 降至 -10⁻³ Pa 时, 空气热对流负载几乎忽略不计, 而腔体热辐射负载则成为作用在制冷样品上最主要的热负载。

关键词: 反 Stokes 荧光制冷; 热负载; 热对流; 热传导; 热辐射

中图分类号: O437.3 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA201847.1206005

Thermal load management of laser cooling of Yb³⁺:LuLiF₄ crystal

Luo Hao¹, Zhong Biao^{1,2}, Lei Yongqing¹, Shi Yanling², Yin Jianping¹

- (1. State Key Laboratory of Precision Spectroscopy, East China Normal University, Shanghai 200062, China;
2. School of Information Science Technology, East China Normal University, Shanghai 200062, China)

Abstract: In order to study the thermal load management mechanism of Yb³⁺:LuLiF₄ crystal in anti-Stokes fluorescence process, laser cooling experiment based on standard pressure (1.0×10⁵ Pa) and high vacuum (2.5×10⁻³ Pa) states were carried out. The 5 mol% doped sample was supported by two optical fibers, and was placed in chamber with different vacuum states. The sample was excited via a 1 020 nm, 3 W laser. A temperature drop from room temperature of the sample was about $\Delta T \approx 12$ K under standard pressure, and $\Delta T \approx 26$ K under high vacuum. As for standard pressure state, thermal convection load of air was about 11.23 mW, thermal conduction load of the fibers was about 0.03 mW, thermal radiation load of the chamber was about 4.8 mW. As for high vacuum state, convection load of air was about 0.03 mW, conduction load of the fibers was about 0.07 mW, radiation load of the chamber was about 10.4 mW. As experimental results show, with the decrease of the pressure of the chamber from -10⁵ Pa

收稿日期: 2018-07-11; 修订日期: 2018-08-15

基金项目: 国家自然科学基金(10904037); 国家自然科学基金青年科学基金(61405168, 11604100); 中国博士后科学基金特别资助(2016T90346)

作者简介: 罗昊(1988-), 男, 硕士生, 主要从事晶体材料激光制冷实验研究。Email: rohaox@outlook.com

导师简介: 印建平(1955-), 男, 教授, 博士, 主要从事原子光学、分子激光冷却与囚禁、固体材料激光制冷、电子 EDM 精密测量等方面的研究。Email: jpyin@phy.ecnu.edu.cn

to -10^3 Pa, convection load of air is almost negligible, radiation load of the chamber becomes the most important thermal load of the refrigeration sample.

Key words: anti-Stokes fluorescent cooling; thermal load; thermal convection; thermal conduction; thermal radiation

0 引言

在人们的印象中, 激光制冷通常与原子气体的冷却与囚禁联系起来。事实上, 激光也可以冷却固体材料^[1]。早在 1929 年, 德国物理学家 Pringsheim 就提出了荧光上转换冷却凝聚态物质的思想^[2]。受限于材料科学与激光技术的发展, 直到 1995 年才由美国洛斯阿拉莫斯国家实验室的 Epstein 等人首次观测到固体材料($\text{Yb}^{3+}:\text{ZBLANP}$ 玻璃)的净制冷现象^[3]。自此以后, 固体激光制冷领域取得了迅速发展。2010 年, 美国新墨西哥大学的 Sheik-Bahae 小组率先将晶体材料($\text{Yb}^{3+}:\text{YLiF}_4$ 晶体)的激光制冷推进到了低温学温度(<123 K)范畴^[4]。2013 年, 新加坡南洋理工大学的熊启华小组成功实现了半导体材料 (CdS 纳米带) 激光制冷零的突破^[5]。中国吉林大学的秦伟平小组^[6]、哈尔滨工程大学的张新陆小组^[7]、中国科学院半导体研究所的张俊小组^[8]、华东师范大学的印建平小组^[9-10]等也开展了一系列研究工作。与此同时, 用于空间红外探测的光学全固态制冷机^[11-12]的构想应运而生。

实现固体材料的净制冷, 需要满足两项基本条件^[13]: (1) 极高的外部量子效率(足够低的声子能量); (2) 极高的材料纯度(极低的背景吸收)。稀土离子掺杂氟化物晶体^[14]不但从理论上符合上述要求, 而且在实验中被验证具有卓越的制冷性能。特别是 $\text{Yb}^{3+}:\text{YLiF}_4$ 晶体, 更是一再刷新固体材料的最低激光制冷温度记录, 最新记录是 91 K^[15]。此外, 印建平小组也发现了制冷潜力媲美前者的 $\text{Yb}^{3+}:\text{LuLiF}_4$ 晶体^[9-10,16-17]。在 2014 年, 他们在大气环境下首次实现了 $\text{Yb}^{3+}:\text{LuLiF}_4$ 晶体的激光制冷, 获得了相对室温 $\Delta T \approx 2$ K 的温降^[9]。

理论^[18]和实验^[19-20]研究表明, 稀土离子掺杂氟化物晶体要获得更低的制冷温度, 就必须综合考虑材料的内在属性(外部量子效率、稀土离子掺杂浓度、纯度)和外在属性(泵浦源、热负载)并加以改进。这里

侧重研究热负载对材料制冷效果的影响。

为了揭示 $\text{Yb}^{3+}:\text{YLiF}_4$ 晶体激光制冷的热负载管理机制, 开展了在常压(1.0×10^5 Pa)和高真空(2.5×10^{-3} Pa)状态下的激光制冷实验。首先测量了样品的制冷温度, 接着分析了作用在样品上的热负载来源, 然后分别计算了各自的热导和热负载功率, 最后讨论了热负载功率的构成比例以及热负载与制冷温度的相互影响关系。

1 反Stokes 荧光制冷的基本原理

不同于原子气体激光制冷的 Doppler 效应, 固体激光制冷基于反 Stokes 荧光过程。以玻璃和晶体材料为例(如图 1 所示), 一个完整的激光制冷循环^[21]描述如下。

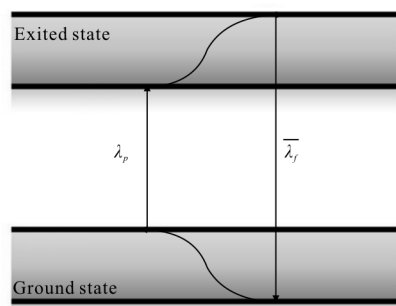


图 1 反 Stokes 荧光过程示意图

Fig.1 Schematic diagram of anti-Stokes fluorescence process

(1) 当被波长 λ_p 的激光激发后, 电子从基态顶部跃迁到激发态底部。

(2) 电子吸收声子, 迅速热化, 从激发态底部跃迁到顶部。

(3) 电子自发辐射平均波长 λ_f 的荧光, 从激发态顶部跃迁到基态底部。

(4) 电子吸收声子, 迅速热化, 从基态底部跃迁到顶部。

只有当平均荧光波长 λ_f 短于泵浦光波长 λ_p 时, 固体材料才会净制冷。荧光光子与泵浦光子之间的能量差来源于电子对声子的吸收。由于整个制冷循

环无机械振动,无流体移动,是全光学过程,因而固体激光制冷也被称为光学制冷。

根据 Sheik-Bahae/Epstein 理论^[22],固体材料的激光制冷效率 η_c 定义为制冷功率 P_{cool} 与吸收功率 P_{abs} 之比:

$$\eta_c = \frac{P_{cool}}{P_{abs}} = \eta_{ext} \eta_{abs} \frac{\lambda_p}{\lambda_f(T)} - 1 \quad (1)$$

式中: η_{ext} 为材料的外部量子效率; $\eta_{abs} = \left[1 + \frac{\alpha_b}{\alpha_r(\lambda_p, T)} \right]^{-1}$ 为材料的吸收效率,其中 $\alpha_r(\lambda_p, T)$ 为表征稀土离子掺杂浓度的共振吸收系数, α_b 为表征材料纯度的背景吸收系数; $\eta_{ext} \eta_{abs}$ 为被吸收的泵浦光子转化为荧光光子逃离材料的比例。固体材料的净制冷意味着 $\eta_{cool} > 0$, 主要通过三种方式达成净制冷: (1) $\lambda_f < \lambda_p$, (2) $\eta_{ext} \rightarrow 1$, (3) $\alpha_b \rightarrow 0$ 。

当被施加负载时,制冷材料的温度变化遵循能量守恒定律^[23]。

$$C(T) \frac{dT}{dt} = -P_{cool} + \dot{Q}_{load} \quad (2)$$

式中: $C(T)$ 为材料的比热容; $P_{cool} = \eta_c P_0 \left| 1 - e^{-\alpha(\lambda_p, T)l} \right|$ 是材料的制冷功率,其中 P_0 是激光泵浦功率, $\alpha(\lambda_p, T)$ 为材料的总吸收系数, l 是激光通过材料的距离; $\dot{Q}_{load} = K\Delta T$ 是材料的热负载功率,其中 K 是相应的(热对流、热传导和热辐射)热导, ΔT 是材料的温度变化。当材料与周边环境达到热平衡时,材料温度不再发生变化,制冷功率与热负载功率相等。材料要达到尽可能低的制冷温度,就必须在提高制冷效率和增强材料对泵浦激光吸收的同时,减少作用在材料上的热负载。

2 激光制冷实验

2.1 实验装置

制冷材料是采用 Czochralski 提拉法生长的 $Yb^{3+} : LuLiF_4$ 晶体,掺杂浓度为 5 mol%, 发射率为 0.9。样品被切割成 Brewster 角,尺寸为 3 mm×3 mm×5 mm, 表面积为 78 mm²。样品由两根导热系数为 1.0 W·m⁻²·K⁻¹、直径为 200 μm、长度为 15 mm 的玻璃光纤支撑,而光纤则粘连在两对支架上。样品被放置在 304 不锈钢(已抛光)材质的腔体内,腔体内壁发

射率为 0.10~0.15^[24], 表面积超过 10⁵ mm²。起初腔体不抽真空,维持约 1.0×10⁵ Pa 的压强,进行在常压状态(空气对流传热系数约 12 W·m⁻²·K⁻¹)下的激光制冷实验。接着,利用干泵和分子泵对腔体抽真空,将压强降至 2.5×10⁻³ Pa,进行在高真空状态(空气对流传热系数约 1.0×10⁻² W·m⁻²·K⁻¹)下的激光制冷实验。

实验装置如图 2 所示。波长 1 020 nm, 泵浦功率分别为 1、2、3 W 的激光从光纤激光器出发,依次经过光隔离器,高反镜,一对模式匹配透镜后,进入腔体内,以 $E//c$ 的偏振方式单次通过样品,最终抵达束流收集器。样品的荧光信号由与光栅光谱仪相连的荧光探测装置采集。样品的制冷温度基于差分荧光光谱测温法^[25]实时测量。

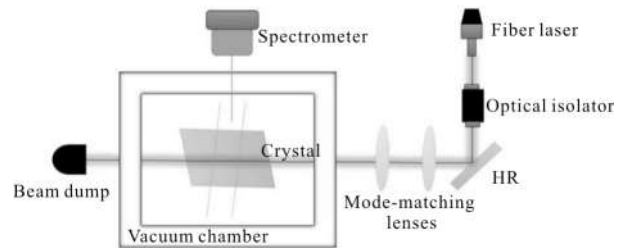


图 2 实验装置图

Fig.2 Schematic diagram of experimental setup

2.2 制冷温度的变化

当激光照射样品时,样品发射反 Stokes 荧光,自身温度逐渐下降。大约 10 min 后,样品温度趋于稳定。在激光照射过程中,腔体内壁温度在室温(293.2 K)附近略微波动。在不同真空状态下,样品温度对于泵浦功率的依赖关系如图 3 所示。

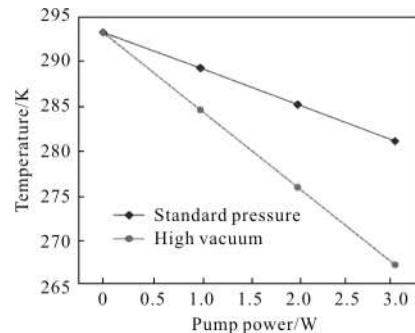


图 3 在不同真空状态下,样品温度对于泵浦功率的依赖关系

Fig.3 Temperature vs pump power under different vacuum states

由图 3 可知,在不同真空状态下,经过不同功率

的激光泵浦后,样品温度相继出现了不同程度的下降。在常压下,样品温度分别为 289.2、285.1、281.0 K,相对室温最多下降了 $\Delta T \approx 12$ K。在高真空下,样品温度分别为 284.5、275.8、267.1 K,相对室温最多下降了 $\Delta T \approx 26$ K。从温度变化趋势来看,样品温度与泵浦功率大致呈线性关系。在常压下的变化率为 4.1 K/W,在高真空下则为 8.7 K/W。

3 热负载管理

3.1 热负载的来源

从实验条件来看,作用在制冷样品上的热负载主要来源于空气热对流、光纤热传导和腔体热辐射。

热对流表现为空气在腔体内壁与样品之间循环流动带来的热交换。热量从温度较高的腔体内壁流向温度较低的样品表面。根据 Newton 冷却定律,空气热对流功率定义为:

$$\dot{Q}_{\text{conv}} = h_{\text{air}} A_s (T_c - T_s) \quad (3)$$

式中: h_{air} 为空气对流传热系数; A_s 为样品表面积; T_c 为腔体内壁温度; T_s 为样品温度。由于 h_{air} 随压强降低而衰减,因而将腔体压强降至 $\sim 10^{-3}$ Pa 或以下,即可减少热对流负载。

热传导表现为相互接触的样品和光纤因冷热不均引起的热扩散。热量从温度较高的光纤与支架粘连点一端流向温度较低的光纤与样品接触点一端。根据 Fourier 导热定律,光纤热传导功率定义为:

$$\dot{Q}_{\text{conv}} = k_f \frac{A_f}{d_f} (T_c - T_s) \quad (4)$$

式中: k_f 为光纤的导热系数; A_f 为样品与光纤的接触面积; d_f 为光纤的传热距离。由于光纤与样品的接触面积积极小,并且光纤具有导热系数小、抗挤压等特性,因而使用光纤支撑样品,有利于减少热传导负载。

热辐射表现为腔体内壁既吸收来自样品的自发辐射荧光,又向样品辐射传热。热量从温度较高的腔体内壁流向温度较低的样品表面。腔体热辐射功率定义为:

$$\dot{Q}_{\text{rad}} = \frac{\sigma(T_c^4 - T_s^4)}{\frac{1-\varepsilon_s}{A_s \varepsilon_s} + \frac{1}{A_s} + \frac{1-\varepsilon_c}{A_c \varepsilon_c}} \quad (5)$$

式中: $\sigma = 5.67 \times 10^{-8} \text{ Wm}^{-2} \text{ K}^{-4}$, 是 Stefan-Boltzmann 常

数; ε_s 为样品发射率; ε_c 为腔体内壁发射率; A_c 为腔体内壁表面积。根据公式(5),如果腔体大小与样品相当($A_c \approx A_s$),并且腔体内壁镀有对于近红外波长具有高吸收率同时保持低发射率特性的太阳能选择性吸收涂层($\varepsilon_c \ll \varepsilon_s$),那么热辐射负载将会显著减少。

3.2 热负载的结果

在常压和高真空状态下,样品温度相对室温分别最多下降了 12 K 和 26 K。因而样品在最低制冷温度下的热对流、热传导和热辐射负载功率(热导)分别由公式(3)~(5)得到。

空气热对流受腔体真空状态变化的影响。在常压下,空气热对流热导约 $9.36 \times 10^{-4} \text{ W/K}$,负载功率约 11.23 mW。在高真空下,空气热对流热导约 $1.0 \times 10^{-6} \text{ W/K}$,负载功率约 0.03 mW。

光纤热传导不受腔体真空状态变化的影响。光纤热传导热导与样品的温度变化无关,约为 $2.5 \times 10^{-6} \text{ W/K}$ 。在常压下,负载功率约 0.03 mW;在高真空下,约 0.07 mW。

腔体热辐射不受腔体真空状态变化的影响。由于样品表面积远小于腔体内壁表面积 ($78/10^5 \ll 1$),并且温度变化幅度较小 ($267.1/293.2 \approx 1$),因而公式(5)可改写为 $\dot{Q}_{\text{rad}} \approx 4\sigma\varepsilon_s A_s T_c^3 (T_c - T_s)$,于是粗略地认为腔体热辐射热导与样品的温度变化无关,约为 $4.0 \times 10^{-4} \text{ W/K}$ 。在常压下,负载功率约 4.8 mW;在高真空下,约 10.4 mW。

3.3 热负载的讨论

统计各部分热负载功率在总的热负载功率中所占的比重,可以发现:在常压下,样品热负载的主要来源是空气热对流 (69.93%),其次是腔体热辐射 (29.89%),而光纤热传导(0.18%)微乎其微。在高真空下,样品热负载的主要来源是腔体热辐射(99.05%),至于光纤热传导(0.67%)和空气热对流(0.28%),则忽略不计。

由上可知,腔体热辐射取代空气热对流,成为制冷样品在高真空状态下最主要的热负载来源。腔体真空状态的明显改善有利于消除空气热对流负载对样品制冷的影响,为样品带来更大幅度的温降。然而随着制冷温度的持续降低,不断增强的腔体热辐射负载阻碍了样品的进一步制冷。

4 结 论

研究了 $\text{Yb}^{3+}:\text{YLiF}_4$ 晶体在常压($1.013 \times 10^5 \text{ Pa}$)和高真空($2.5 \times 10^{-3} \text{ Pa}$)状态下激光制冷的热负载管理机制。掺杂浓度为 5 mol% 的样品由两根光纤支撑,被放置在真空状态不同的腔体内。利用波长 1 020 nm、功率 3 W 的激光激发样品。在常压下,样品温度相对室温下降了 $\Delta T \approx 12 \text{ K}$,作用在样品上的热负载主要来源于空气热对流(负载功率:11.23 mW;在总的负载功率中占比:69.93%)和腔体热辐射(4.8 mW;29.89%)。在高真空下,样品温度相对室温下降了 $\Delta T \approx 26 \text{ K}$,作用在样品上的热负载几乎全部来源于腔体热辐射(10.4 mW;99.05%)。

实验结果表明,随着腔体压强由 $\sim 10^5 \text{ Pa}$ 降至 $\sim 10^{-3} \text{ Pa}$,腔体热辐射取代空气热对流,成为作用在制冷样品上最主要的热负载。因此,如何有效减少腔体热辐射负载,突破激光制冷温度极限,成为固体激光制冷热负载管理中亟需解决的关键问题。

参考文献:

- [1] Seletskiy D V, Epstein R, Sheik-Bahae M, et al. Laser cooling in solids: advances and prospects [J]. *Rep Prog Phys*, 2016, 79(9): 096401–096423.
- [2] Pringsheim P. Zwei bemerkungen über den Unterschied von Lumineszenz- und Temperaturstrahlung [J]. *Z Phys*, 1929, 57: 739–746.
- [3] Epstein R I, Buchwald M I. Observation of laser-induced fluorescence cooling of a solids [J]. *Nature*, 1995, 377: 500–502.
- [4] Seletskiy D V, Sheik-Bahae M. Laser cooling of solids to cryogenic temperatures [J]. *Nat Photonics*, 2010, 4 (3): 161–164.
- [5] Zhang J, Xiong Q H. Laser cooling of semiconductor by 40 Kelvin [J]. *Nature*, 2013, 493: 504–508.
- [6] Qin W P, Zhang J H. Two basic mechanism in anti-Stokes fluorescence cooling of solids [J]. *Chinese Journal of Luminescence*, 1999, 20(2): 126–129. (in Chinese)
- [7] Dong G, Zhang X L. Energy transfer enhanced laser cooling in Ho^{3+} and Tm^{3+} co-doped lithium yttrium fluoride [J]. *J Opt Soc Am B*, 2013, 30(4): 939–944.
- [8] Zhang J, Xiong Q H. Laser cooling of organic-inorganic lead halide perovskites [J]. *Nat Photonics*, 2016, 10 (2): 115–122.
- [9] Zhong B, Yin J P. Laser cooling of Yb^{3+} -doped LuLiF_4 crystal[J]. *Opt Lett*, 2014, 39(9): 2747–2750.
- [10] Zhong B, Yin J P. Cavity-enhanced laser cooling for Yb^{3+} -doped fluoride crystal using a low-power diode laser [J]. *J Opt Soc Am B*, 2014, 31(9): 2116–2120.
- [11] Zhang C Q, Xu L. Study on anti-Stokes fluorescent cooling technique [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2002, 31(2): 95–100. (in Chinese)
- [12] Fang H, Wu Yunong. Expectation of anti-Stokes fluorescence cooling to space remote sensing [J]. *Chinese Journal of Quantum Electronics*, 2004, 21(4): 411–414. (in Chinese)
- [13] MHehlenP, Sheik-Bahae M, Epstein R I, et al. Materials for optical cryocoolers [J]. *J Mater Chem C*, 2013, 1: 7471–7478.
- [14] Dong G Z. Research on novel mechanism for laser cooling of rare-earth doped fluoride crystals [D]. Harbin: Harbin Engineering University, 2015. (in Chinese)
- [15] Melgaard S D, Sheik-Bahae M. Solid state optical refrigeration to sub-100 Kelvin regime[J]. *Sci Rep*, 2016, 6: 20380–20386.
- [16] Zhong B, Yin J P. Laser cooling of 5 mol% $\text{Yb}^{3+}:\text{LuLiF}_4$ crystal in air [J]. *Opt Eng*, 2017, 56(1): 011102–011113.
- [17] Zhong B, Yin J P. Laser cooling performance of Yb^{3+} -doped LuLiF_4 crystal[C]//Proc SPIE, 2016, 9765: 976506.
- [18] Jia Y H, Ji X M, Yin J P. Research on several parameters influencing on laser cooling of solids [J]. *Acta Phys Sin*, 2007, 56(3): 1770–1774. (in Chinese)
- [19] Zhong B. Laser cooling of the Yb^{3+} -doped fluoride crystal [D]. Shanghai: East China Normal University, 2014. (in Chinese)
- [20] Melgaard S D. Cryogenic optical refrigeration: laser cooling of solids below 123 K [D]. Albuquerque: University of New Mexico, 2013.
- [21] Yan X P, Wang D S. Summary of anti-Stokes fluorescent cooling technique [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2008, 37(3): 474–480. (in Chinese)
- [22] Sheik-Bahae M, Epstein R I. Laser cooling of solids [J]. *Laser Photonics Rev*, 2009, 3(1–2): 67–84.
- [23] Edwards B C, Epstein R I. Demonstration of a solid-state optical cooler: an approach to cryogenic refrigeration [J]. *J Appl Phys*, 1999, 86(11): 6489–6493.
- [24] Optotherm, Inc. Emissivity in the Infrared [DB/OL]. 2018–01–25. <http://www.optotherm.com/emiss-table.htm>.
- [25] Imangholi B, Sheik-Bahae M, Epstein R I, et al. Differential luminescence thermometry in semiconductor laser cooling [C]// Proc SPIE, 2006, 6115: 61151C.