

Hochauflösende Spektroskopie mit einem Diodenlaser

FP2-Praktikum, Versuch Nr.119, Raum 4/33

Betreuer: Christian Roos (Zi. 4/05, Tel. 507-6315, Christian.Roos@uibk.ac.at)

Zielsetzung:

Ziel des Versuchs ist es, verschiedene Werkzeuge und Methoden der Laserspektroskopie kennenzulernen. Wir benutzen dazu einen gitterstabilisierten Diodenlaser, der Licht mit einer Wellenlänge von ca. 780nm emittiert, um in einem atomaren Rubidium-Dampf Übergänge vom $5^2S_{1/2}$ Grundzustand in den angeregten $5^2P_{3/2}$ Zustand anzuregen. Aus den beobachteten Spektren lässt sich die Hyperfeinstrukturaufspaltung des angeregten Zustands bestimmen.

Dopplerbegrenzte Spektroskopie und Sättigungsspektroskopie

Die Untersuchung von Materie durch optische Spektroskopie beruht traditionellerweise auf der spektralen Aufspaltung des von der Materie ausgesandten Lichts durch dispergierende Elemente wie Prismen und Beugungsgitter. Seitdem frequenz-abstimmbare Laser zur Verfügung stehen, hat eine zweite Methode weite Verbreitung gefunden: in der Laserspektroskopie wird die Frequenz eines Lasers über einen bestimmten Spektralbereich variiert und die Intensität des von der Probe emittierten oder absorbierten Lichts als Funktion der Frequenz gemessen. Diese Technik ist hinsichtlich der spektralen Auflösung der klassischen Spektroskopie bei weitem überlegen und hat eine Vielzahl von Anwendungen in Physik, Umweltanalyse, Chemie und Technik gefunden. So beruht zum Beispiel die Messung der Zeit in den gegenwärtigen primären Frequenzstandards (Atomuhren) auf der hochpräzisen Messung der Hyperfeinstruktur-Aufspaltung des $S_{1/2}$ Grundzustandes von Cäsiumatomen. Diese Aufspaltung kann mit einer Genauigkeit von $\delta\nu/\nu < 10^{-14}$ bestimmt werden. Um jedoch eine derart hohe Auflösung erreichen zu können, müssen viele das Spektrum verbreiternde Mechanismen wie z.B. der Dopplereffekt unterdrückt werden. Sättigungsspektroskopie ist eine den Dopplereffekt überwindende Technik und zugleich ein Beispiel für eine nichtlineare optische Spektroskopietechnik.

Laserspektroskopie erfordert einen quasi-monochromatischen, verstimmbaren Laserstrahl, um Atome von einem energetisch tiefer liegenden Niveau $|g\rangle$ in ein höher liegendes Niveau $|e\rangle$ anzuregen. Für Atome, die sich bezüglich der Laserstrahlrichtung in Ruhe befinden, wird die maximale Anregungsrate erreicht, wenn die Laserfrequenz ν_L mit der atomaren Übergangsfrequenz ν_0 übereinstimmt. Diese Situation ändert sich, wenn ein Atom relativ zum Laserstrahl nicht in Ruhe ist. Bewegt sich das Atom auf den Laser zu, so erscheint dessen Frequenz im Bezugssystem des Atoms um den Betrag $\delta\nu = (v/c)\nu$ erhöht; bewegt es sich weg, so reduziert sich die Frequenz um den entsprechenden Betrag. Dieser Dopplereffekt 1. Ordnung führt in gasförmigen Proben zu einer Verbreiterung der Spektrallinien, wenn die mittlere atomare Geschwindigkeit $\langle v \rangle = \sqrt{kT/m}$ zu Frequenzverschiebungen führt, die größer als die natürliche Linienbreite Γ sind. In einem Gas gehorchen die atomaren Geschwindigkeiten in Richtung des Strahls einer Maxwell-Verteilung mit Verteilung $P(v)dv \sim \exp(-mv^2/(2kT)) dv$. Folglich sind die Frequenzverschiebungen ebenfalls auch Gauß-verteilt, und die Form der Spektrallinie wird durch eine Gaußkurve mit Halbwertsbreite

$$\Delta\nu_{1/2} = 2\frac{n}{c} \sqrt{\frac{kT}{m}} 2\log 2 \quad (1)$$

beschrieben. Die Dopplerverbreiterung beträgt für Atome bei Raumtemperatur typischerweise einige 100 MHz und ist damit viel größer als die typischen Linienbreiten (einige MHz). Für lange Zeit begrenzte der Dopplereffekt die erreichbare Präzision in Spektroskopie-Experimenten mit Atomen und Molekülen. Die Technik der Sättigungsspektroskopie wurde mit dem Ziel entwickelt, den Dopplereffekt zu unterdrücken, um „Doppler-freie“ Spektren zu erhalten.

Die Verbreiterung der Spektren durch den Dopplereffekt wird als „inhomogene“ Verbreiterung bezeichnet, da die Absorptionseigenschaften eines Atoms davon abhängen, welcher Geschwindigkeitsklasse es gehört. Die gemessene Absorption der Probe entsteht dann durch die Mittelung über die Absorption aller Geschwindigkeitsklasse. Spricht man von der Geschwindigkeitsklasse $N(v)dv$, so meint man alle Atome mit Geschwindigkeiten zwischen v und $v+dv$. Im thermischen Gleichgewicht teilen sich die Atome –wie bereits erwähnt– entsprechend einer Maxwell-Verteilung auf die verschiedenen Geschwindigkeitsklassen auf. Die Besetzung von Grundzustand $|g\rangle$ und angeregtem Zustand $|e\rangle$ folgt ebenfalls einer Maxwellverteilung, wobei im Allgemeinen sich im angeregten Zustand nur ein winziger Bruchteil der Atome befindet.

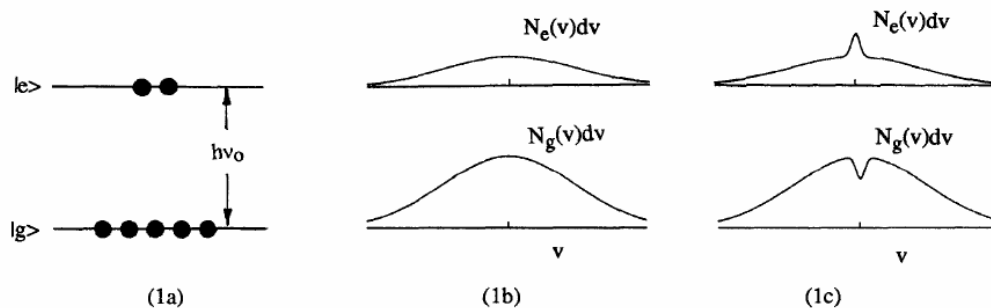


Abb. 1. Im thermischen Gleichgewicht sind die Besetzungen der atomaren Zustände (1a) und der atomaren Geschwindigkeiten (1b) Maxwell-verteilt. Durch die Anregung mit einem Laser werden die Verteilungen modifiziert (1c). Für die mit dem Laser resonante Geschwindigkeitsklasse reduziert sich die Besetzung im Grundzustand und erhöht sich im angeregten Zustand.

Die Anregung mit einem Laser stört dieses thermische Gleichgewicht. Atome der mit dem Laser resonanten Geschwindigkeitsklasse werden aus dem Grundzustand $|g\rangle$ in den angeregten Zustand $|e\rangle$ angeregt, wodurch sich ein neuer stationärer Zustand einstellt, in dem die Besetzung im angeregten Zustand aus dem Verhältnis von stimulierter Absorptionsrate von Laserphotonen und Spontanemissionsrate ergibt. Die modifizierten Besetzungen sind in Abb. 1c skizziert. Die Reduktion der Besetzung im Grundzustand wird auch „Lochbrennen“ (englisch „hole burning“) genannt. Die Breite des vom Laser in die Verteilung gebrannten Loches ist durch die natürliche Linienbreite des Übergangs bestimmt. Verstimmt man nun die Frequenz des Lasers über die atomare Resonanz, so wandert in entsprechender Weise auch das in die Verteilung „gebrannte Loch“ über die Gaußkurve von Geschwindigkeitsklasse zu Geschwindigkeitsklasse.

In der Sättigungsspektroskopie detektiert man die Modifikation der Besetzung durch folgenden Trick: Der Laserstrahl wird in einen starken und einen schwachen Teilstrahl aufgespalten. Der als „Pumpstrahl“ bezeichnete starke Teilstrahl wird durch die Probe gesandt und verändert die atomare Besetzungsverteilung wie oben beschrieben. Der schwache „Probestrahl“ kann jetzt dazu verwendet werden, um diese Veränderung zu detektieren. Dazu wird der schwache Strahl gegenläufig zum Pumpstrahl durch die Probe gesandt und seine

Absorption durch die Probe wird mit einer Photodiode gemessen. Diese Anordnung bewirkt, dass ein Atom, welches sich auf den Pumpstrahl zu bewegt, für diesen eine positive Dopplerverschiebung besitzt, während es sich gleichzeitig vom Probestrahl weg bewegt, also eine negative Dopplerverschiebung bezüglich dieses Strahls aufweist. Solange die Laserfrequenz ν_L nicht mit der atomaren Frequenz ν_0 übereinstimmt, wechselwirken Pump- und Probestrahl mit Atomen verschiedener Geschwindigkeitsklassen (Abb. 2b).

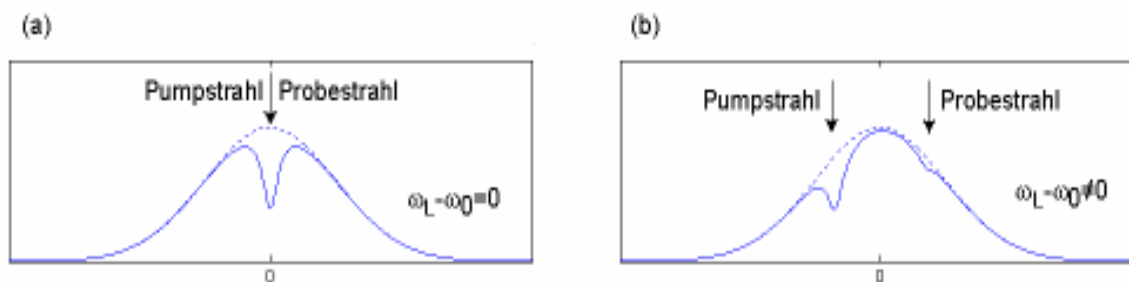


Abb. 2: (a) Ist der Laser resonant mit dem atomaren Übergang, dann wechselwirken Pump- und Probestrahl beide mit der Geschwindigkeitsklasse $v=0$; die Absorption des Probestrahls wird durch den Pumpstrahl reduziert. (b) Ist der Laser gegenüber dem atomaren Übergang verstimmt, dann treten Pump- und Probestrahl mit verschiedenen Geschwindigkeitsklassen in Wechselwirkung. Die Absorption des Probestrahls wird durch den Pumpstrahl nicht reduziert.

Das bedeutet, dass die Besetzungen der Atome, die resonant mit dem Probestrahl sind, durch den Pumpstrahl nicht verändert werden. Ist dagegen der Laser resonant mit dem atomaren Übergang ($\nu_L = \nu_0$), dann wechselwirken beide Strahlen mit der gleichen Geschwindigkeitsklasse (Abb. 2a). Jetzt ist die Anzahl der Atome, die vom Probestrahl in den angeregten Zustand gebracht werden können, reduziert, da der Pumpstrahl bereits viele Atome in das Niveau $|e\rangle$ angeregt hat. Dies bewirkt eine Reduktion der Absorption des Pumpstrahls. Im Spektrum des über die Resonanz gestimmten Probestrahls erscheint folglich eine Lamb-Dip genannte Reduktion der Absorption, wenn die Laserfrequenz gerade mit der atomaren Frequenz übereinstimmt. Die minimale spektrale Breite des Lamb-Dips ist durch die natürliche Linienbreite gegeben (in unserem Versuch wird die natürliche Linienbreite nicht erreicht, da der Laser nicht aktiv frequenzstabilisiert ist). Der Lamb-Dip kann also eine Breite besitzen, die um ein Vielfaches schmaler ist als die Dopplerverbreiterung des Übergangs.

Laserspektroskopie mit Rubidium : Fein- und Hyperfeinstruktur

Rubidium ist ein Alkalimetall, das bei einer Temperatur von ca. 40°C flüssig wird. Das natürliche Isotopengemisch besteht zu etwa 72% aus ^{85}Rb und zu 28% aus ^{87}Rb . Im Versuch wird eine Glaszelle verwendet, die einen Dampf aus atomarem Rubidium enthält.

Wir verwenden einen Diodenlaser mit einer Wellenlänge von 780,027 nm, um den Übergang vom $5^2\text{S}_{1/2}$ Grundzustand in das $5^2\text{P}_{3/2}$ Niveau anzuregen. Dieser Übergang besitzt eine natürliche Linienbreite $\Gamma/2\pi = 6$ MHz. Der 5P Zustand wird durch die Spin-Bahn-Wechselwirkung in einen $\text{P}_{1/2}$ und einen $\text{P}_{3/2}$ Zustand aufgespalten. Die Feinstrukturaufspaltung ist dabei so groß, dass der Übergang in den $\text{P}_{3/2}$ Zustand mit dem Praktikums-Laser nicht angeregt werden kann (dazu wäre eine Wellenlänge von 795 nm erforderlich).

Durch die Kopplung des Drehimpulses J der Elektronenhülle mit dem Kernspin I zum Gesamtdrehimpuls kommt es zur Hyperfeinstrukturaufspaltung, die in Abb. 3 dargestellt ist.

Hyperfeinstruktur der Rubidium D2-Linie

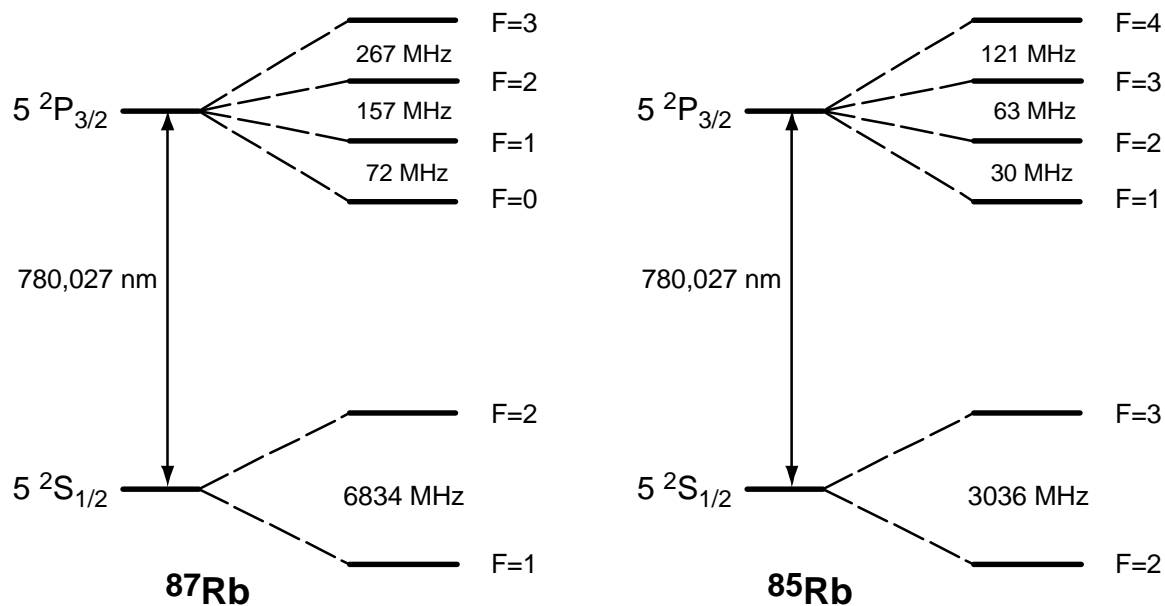


Abb. 3: Ausschnitt aus dem Termschema von Rubidium

Die Hyperfeinwechselwirkung führt zu einer Aufspaltung der Energieniveaus, die innerhalb einer $^{2S+1}L_J$ -Mannigfaltigkeit durch die Formel

$$\nu_F = \nu_J + \frac{AC}{2} + \frac{B \left[\frac{3C(C+1)}{4} - I(I+1)J(J+1) \right]}{2I(2I-1)J(2J-1)}$$

beschrieben werden kann, wobei $C = F(F+1) - J(J+1) - I(I+1)$ ist und die Hyperfein-Kopplungskonstanten A, B die Größe der Aufspaltung bestimmen.

Sättigungsspektroskopie mit Rubidium

Bei der Sättigungsspektroskopie mit Rubidium treten Phänomene auf, die im Rahmen des oben beschriebenen, idealisierten Atoms mit zwei Energieniveaus nicht auftraten:

(a) crossover-Resonanzen

Es kann passieren, dass für eine bestimmte Laserfrequenz für eine bestimmte, atomare Geschwindigkeitsklasse der Pumpstrahl resonant mit dem Übergang $|g\rangle \rightarrow |e1\rangle$ ist, während der Probestrahl für die gleiche Geschwindigkeitsklasse resonant mit dem Übergang $|g\rangle \rightarrow |e2\rangle$ ist ($|g\rangle$ steht hier für einen Hyperfeinzustand von $S_{1/2}$, $|e1\rangle, |e2\rangle$ für Hyperfeinzustände des $P_{3/2}$ Niveaus. In diesem Fall beobachtet man analog zum Fall der Lamb-Dips eine Reduktion der Absorption des Probestrahls. Resonanzen dieser Art bezeichnet man als crossover-Resonanzen. Ihre Frequenz entspricht immer dem Mittelwert der Frequenzen, bei denen man Lamb-Dips für $|e1\rangle$ und $|e2\rangle$ beobachtet.

Könnte ein ähnliches Phänomen auch auftreten, an dem zwei Grundzustände $|g_1\rangle, |g_2\rangle$ und ein angeregter Zustand $|e\rangle$ beteiligt wären ?

Beispiel für eine crossover-Resonanz: für ^{87}Rb ist der Pumpstrahl mit dem Übergang $S_{1/2}, F=2 \rightarrow P_{3/2}, F'=2$, der Probestrahle dagegen mit dem Übergang $S_{1/2}, F=2 \rightarrow P_{3/2}, F'=3$. Die resultierende crossover-Resonanz, genannt CO ^{87}Rb $F=2$ $F'=2,3$ liegt bei einer Frequenz genau in der Mitte der resonanten Wellenlängen für die Übergänge ^{87}Rb $F=2$ $F'=2$ und ^{87}Rb $F=2$ $F'=3$.

(b) Optisches Pumpen

Ein Atom, das aus dem Grundzustand $|g_1\rangle$ in das Niveau $|e\rangle$ angeregt wird, kehrt durch Spontanemission nicht unbedingt in das Ausgangsniveau zurück, wenn es ebenfalls auch in das Niveau $|g_2\rangle$ zerfallen kann. Ist in einer solchen Situation der Laser nur mit dem Übergang $|g_1\rangle \rightarrow |e\rangle$ resonant, nicht aber mit dem Übergang $|g_2\rangle \rightarrow |e\rangle$, wird die atomare Besetzung mit hoher Wahrscheinlichkeit schon nach wenigen Anregungszyklen in das Niveau $|g_2\rangle$ transferiert. Dieses Phänomen nennt man optisches Pumpen. Es trägt dazu bei, dass crossover-Resonanzen sehr ausgeprägt sein können.

Versuchsbeschreibung:

Für den Versuch wird ein gitterstabilisierter Diodenlaser in Littrow-Anordnung verwendet, der einige mW Licht mit einer Wellenlänge von 780 nm emittiert. Die Frequenz des Lasers lässt sich grob über die Einstellung der Temperatur der Laserdiode regeln und feiner durch die Wahl des Beugungsgitterwinkels und des Laserdiodenstroms.

In der ersten Teilaufgabe wird die Absorption eines Lichtstrahls durch Rubidium in einer Atom-Dampfzelle gemessen. Dazu wird das Licht der Laserdiode durch eine Rb-Zelle hindurch justiert und auf einer Photodiode die transmittierte Intensität als Funktion der Laser-Wellenlänge gemessen. Wenn die Wellenlänge des anregenden Lichts auf eine atomare Resonanz fällt, so werden Atome aus dem Grundzustand $5S$ in das $5P$ Niveau gehoben. Unter Aussenden eines Photons zerfallen sie wieder in den Grundzustand. Daher kann die atomare Resonanz einerseits als Absorption des transmittierten Lichts durch die Zelle, andererseits auch mittels der Beobachtung der abgestrahlten Photonen (Fluoreszenz) detektiert werden. Die Transmission des Lichts durch die Zelle bzw. die Fluoreszenz der Rb-Atome in der Zelle wird mit Photodioden aufgenommen.

Messungen :

Für alle folgenden Messungen wird die Frequenz des Diodenlasers über einen Bereich von einigen GHz moduliert. Dazu wird mit einem Funktionsgenerator eine Sägezahnspannung erzeugt und über einen Hochspannungs-Verstärker an eine Piezokeramik angelegt, die den Winkel des Beugungsgitters des Diodenlasers kontrolliert.

1. Doppler-limitierte Fluoreszenz- und -absorptionsmessung

Ziel des Versuchsteils ist die Beobachtung der Hyperfeinstrukturaufspaltung des Grundzustands und die Messung der Dopplerverbreiterung.

Der Hauptstrahl des Lasers wird durch die Rubidium-Dampfzelle hindurchjustiert und auf eine Photodiode (PD2) gelenkt, mit der die Absorption gemessen werden kann. Eine weitere Photodiode (PD3) wird zur Messung der von den Rubidium-Atomen emittierten Fluoreszenz verwendet. Für die Messung der Dopplerverbreiterung muß die Frequenzachse kalibriert werden. Dazu wird ein Teilstrahl des Lasers in einen Fabry-Perot-Resonator eingekoppelt, dessen Transmission mit einer dritten Photodiode (PD1) beobachtet wird. Der Abstand der Spiegel des Resonators beträgt $L=210$ mm. Durch gleichzeitige Messung der Signale von PD1 und PD2/PD3 kann die Achse kalibriert werden.

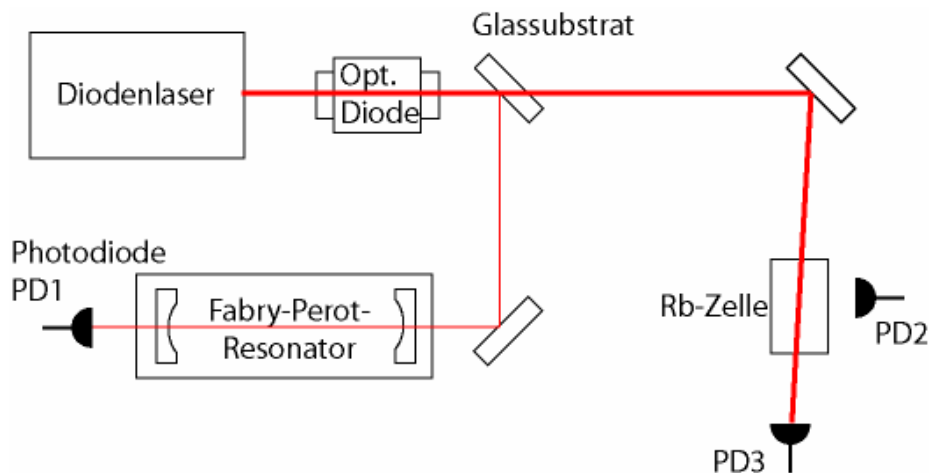


Abb. 4: Schema des experimentellen Aufbaus für die Doppler-begrenzte Absorptions- und Fluoreszenzspektroskopie

2. Dopplerfreie Sättigungsspektroskopie

Im zweiten Teil des Versuchs werden die atomaren Resonanzen "dopplerfrei" mittels Sättigungsspektroskopie angeregt und detektiert. Dazu wird ein weiteres Glassubstrat in den Hauptstrahl gestellt, um etwas Licht für den Probestrahl abzuzweigen, der gegenläufig zum Pumpstrahl durch die Rubidiumzelle gesandt wird. Mit der Photodiode PD2 können jetzt Lambdips und crossover-Resonanzen in der Absorption beobachtet werden.

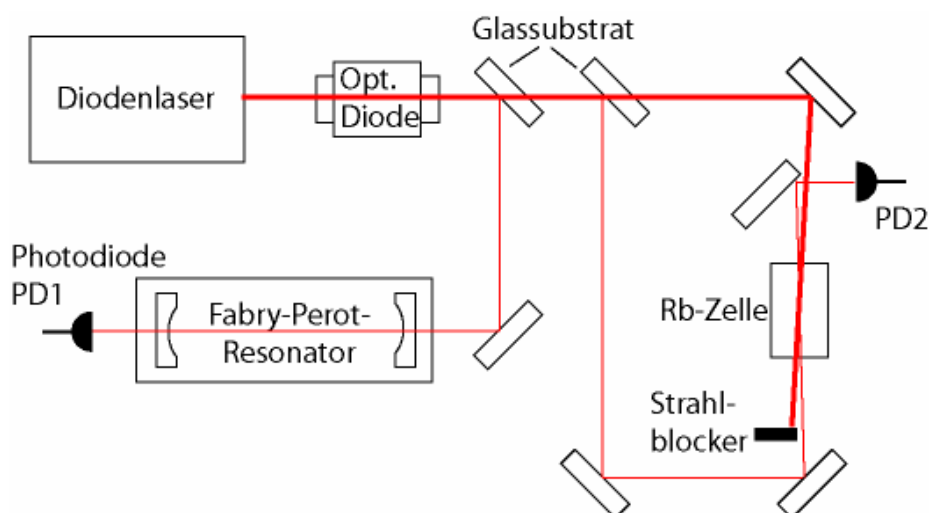


Abb. 5: Schema des Aufbaus der Doppler-freien Sättigungsspektroskopie

Der Doppler-Untergrund kann eliminiert werden, indem die Signale zweier Messungen voneinander abgezogen werden, bei denen einmal die Absorption mit und einmal die Absorption ohne Pumpstrahl gemessen wird.

3. Dopplerfreie Sättigungsspektroskopie: Lock-In Detektion

Die oben beschriebene Eliminierung des Doppleruntergrundes durch Differenzbildung setzt voraus, dass die Frequenz des Diodenlasers zwischen den beiden Messungen nicht schwankt. Um diese Fehlerquelle auszuschließen und zudem einen empfindlicheren Nachweis zu erhalten, kann man sich einer Lock-In-Technik bedienen: Dazu wird der Pumpstrahl durch eine rotierende, lamellenbesetzte Scheibe periodisch unterbrochen („Lichtzerhacker“, engl. „chopper“), und das Absorptionssignal wird mit einem Lock-In-Verstärker demoduliert, wobei als Referenzfrequenz eine mit der Chopperfrequenz oszillierende Rechteckspannung verwendet wird.

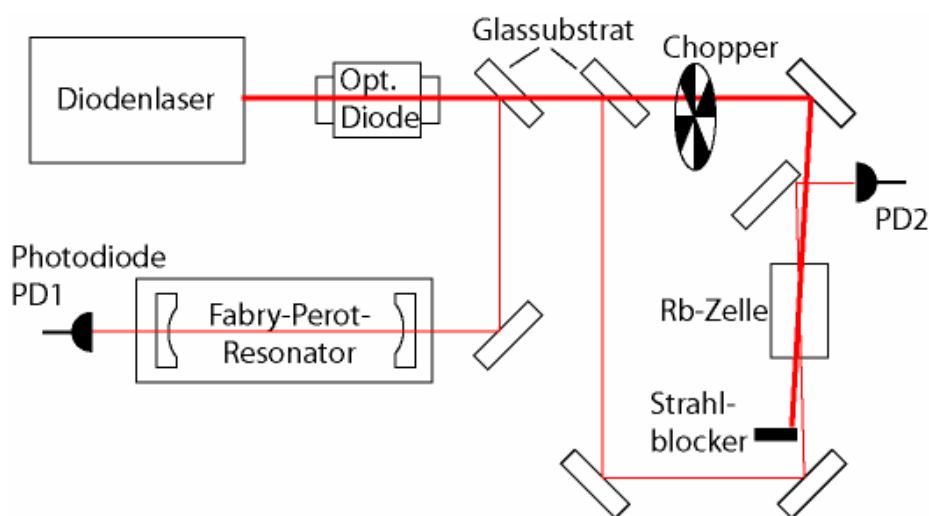


Abb. 6: Sättigungsspektroskopie mit Lock-In-Detektion: ein Chopper unterbricht periodisch den Pumpstrahl. Das Signal der Photodiode wird mit einem Lock-In-Verstärker demoduliert.

In diesem Versuchsteil kann man versuchen, das Sättigungssignal zu optimieren durch Variation der Intensitäten von Pump- und Probestrahl.

Fragen zur Vorbereitung des Versuchs :

1. Leite Formel (1) her und berechne die zu erwartende Dopplerverbreiterung für den $5S \leftrightarrow 5P$ Übergang von Rubidium.
2. Atomstruktur: Welche Quantenzahlen gibt es, wie lauten die Auswahlregeln, welche Übergänge vom $5S_{1/2}$ in den $5P_{3/2}$ von Rubidium-85 und -87 sind erlaubt ?
3. Wie groß ist die Besetzung im $P_{3/2}$ Zustand im thermischen Gleichgewicht (ohne Laseranregung) ?
4. Welche Struktur werden die Doppler-limitierten / Doppler-freien Spektren im Versuch aufweisen ?
5. Wie funktioniert ein gitterstabilisierter Diodenlaser ?
6. Wie funktionieren Lock-In-Verstärker ?

Literatur zur Vorbereitung : W. Demtröder, Laser spectroscopy, Kap. 7.2

Auswertung:

1. Bestimmung der Dopplerbreite der Absorptionslinien und Vergleich mit der theoretischen Vorhersage.
2. Zuordnung der Sättigungslinien als Lambdips oder Crossover-Resonanz. Welche Halbwertsbreiten weisen die Sättigungslinien auf ?
3. Bestimmung der Hyperfeinstrukturaufspaltung des $P_{3/2}$ Zustands von ^{87}Rb oder ^{85}Rb .