

Wolfgang Demtröder

Laserspektroskopie

Grundlagen und Techniken

Fünfte, erweiterte und neubearbeitete Auflage
Mit 560 Abbildungen

 Springer

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Emission und Absorption von Licht	5
2.1	Die Moden des elektromagnetischen Feldes in einem Hohlraum	5
2.2	Thermische Strahlung; Planck'sches Gesetz	8
2.3	Absorption, induzierte und spontane Emission, Einstein-Koeffizienten	10
2.4	Grundbegriffe der Strahlungsmessung	13
2.5	Polarisation von Licht	17
2.6	Absorption und Dispersion	18
2.6.1	Linienpektren und kontinuierliche Spektren	18
2.6.2	Klassisches Modell	20
2.6.3	Oszillatorenstärken und Einstein-Koeffizienten	24
2.7	Übergangswahrscheinlichkeiten	27
2.7.1	Lebensdauer angeregter Zustände	27
2.7.2	Semiklassische Behandlung der Übergangswahrscheinlichkeit	29
2.8	Kohärenz	30
2.8.1	Kohärenz eines Strahlungsfeldes	31
2.8.2	Zeitliche Kohärenz	32
2.8.3	Räumliche Kohärenz	33
2.8.4	Kohärenzvolumen	35
2.8.5	Kohärenz atomarer Zustände	37
3	Linienbreiten und Profile von Spektrallinien	41
3.1	Natürliche Linienbreite	42
3.2	Doppler-Verbreiterung	45
3.3	Stoßverbreiterung von Spektrallinien	49
3.4	Homogene und inhomogene Linienverbreiterung	55
3.5	Sättigungsverbreiterung	56
3.5.1	Änderung der Besetzungsdichten durch optisches Pumpen	57
3.5.2	Sättigungsverbreiterung von Absorptionslinien	60
3.6	Flugzeit-Linienbreiten	62
3.7	Linienbreiten in Flüssigkeiten und Festkörpern	65

4	Experimentelle Hilfsmittel des Spektroskopikers	67
4.1	Spektrographen und Monochromatoren	68
4.1.1	Grundbegriffe	69
4.1.2	Prismenspektrograph	74
4.1.3	Gitterspektrograph	76
4.2	Interferometer	81
4.2.1	Michelson-Interferometer	82
4.2.2	Vielstrahlinterferenz	86
4.2.3	Planparalleles Fabry-Perot-Interferometer	92
4.2.4	Konfokales Interferometer	96
4.2.5	Dielektrische Vielfachschichten	99
4.2.6	Interferenzfilter	102
4.2.7	Durchstimbare Interferometer	104
4.2.8	Lyot-Filter	106
4.3	Auflösungsvermögen und Lichtstärke von Spektrometern und Interferometern	110
4.4	Moderne Methoden der Wellenlängen-Messung	113
4.4.1	Das Michelson-Lambdameter	114
4.4.2	Sigameter	117
4.4.3	Computergesteuertes Fabry-Perot-Wellenlängenmessgerät	119
4.4.4	Fizeau-Lambdameter	122
4.5	Detektoren	124
4.5.1	Thermische Detektoren	126
4.5.2	Photodioden	131
4.5.3	Diodenanordnungen und CCD-Detektoren	138
4.5.4	Photomultiplier	141
4.5.5	Photonenzählmethode	145
4.5.6	Bildverstärker und optische Vielkanal-Analysatoren	146
5	Der Laser als spektroskopische Lichtquelle	149
5.1	Elementare Grundlagen des Lasers	149
5.1.1	Schwellwertbedingung	150
5.1.2	Bilanzgleichungen	152
5.2	Optische Resonatoren	154
5.2.1	Offene Resonatoren	155
5.2.2	Räumliche Modenstrukturen im offenen Resonator	157
5.2.3	Beugungsverluste offener Resonatoren	162
5.2.4	Stabile und instabile Resonatoren	163
5.2.5	Frequenzspektrum passiver optischer Resonatoren	166
5.3	Laser-Moden	169
5.3.1	Frequenzspektrum des aktiven Resonators	169
5.3.2	Beeinflussung der Modenfrequenz durch das aktive Medium	171
5.3.3	Verstärkungssättigung und Modenwechselwirkung	172
5.3.4	Das Frequenzspektrum realer Mehrmoden-Laser	176

5.4	Experimentelle Realisierung von stabilen Einmoden-Lasern	178
5.4.1	Linien-Selektion	178
5.4.2	Moden-Selektion	179
5.4.3	Intensitätsstabilisierung	186
5.4.4	Wellenlängenstabilisierung von Lasern	187
5.4.5	Kontrollierte Wellenlängendurchstimmung	194
5.4.6	Wellenlängeneichung	197
5.5	Linienbreiten von Einmoden-Lasern	200
5.6	Durchstimbare Laser	203
5.6.1	Halbleiterlaser	204
5.6.2	Durchstimbare vibronische Festkörperlaser	209
5.6.3	Farbzentrenlaser	211
5.6.4	Farbstofflaser	215
5.6.5	Excimer-Laser	226
5.7	Kohärente Strahlungsquellen durch nichtlineare Frequenzverdoppelung und Mischung	228
5.7.1	Grundlagen	229
5.7.2	Optische Frequenzverdopplung	233
5.7.3	Frequenzmischung	238
5.7.4	Erzeugung kohärenter VUV-Strahlung	239
5.7.5	Röntgen-Laser	242
5.7.6	Differenzfrequenz-Spektrometer	243
5.7.7	Optische parametrische Oszillatoren	246
5.7.8	Raman-Frequenz-Konversion	249
6	Doppler-begrenzte Absorptions- und Fluoreszenz-Spektroskopie mit Lasern	251
6.1	Vorteile des Lasers für die Spektroskopie	251
6.2	Empfindliche Verfahren der Absorptionsspektroskopie	256
6.2.1	Frequenzmodulation des Lasers	256
6.2.2	Absorptionsspektroskopie durch Messung der Abklingzeit eines optischen Resonators	260
6.2.3	Absorptionsspektroskopie innerhalb des Laserresonators ...	263
6.3	Direkte Messung der absorbierten Photonen	268
6.3.1	Anregungsspektroskopie	268
6.3.2	Photoakustische Spektroskopie	271
6.3.3	Ionisationsspektroskopie	274
6.3.4	Optogalvanische Spektroskopie	279
6.3.5	Optothermische Spektroskopie	282
6.4	Magnetische Resonanz- und Stark-Spektroskopie mit Lasern	285
6.5	Geschwindigkeitsmodulations-Spektroskopie	288
6.6	Laserinduzierte Fluoreszenz	290
6.7	Vergleich zwischen den verschiedenen Verfahren	295

7	Nichtlineare Spektroskopie	299
7.1	Lineare und nichtlineare Absorption	299
7.2	Sättigung inhomogen verbreiteter Absorptionsübergänge	303
7.3	Sättigungs-Spektroskopie	308
7.4	Polarisations-Spektroskopie	317
7.4.1	Anschauliche Darstellung	317
7.4.2	Die Frequenzabhängigkeit des Polarisationssignals	319
7.4.3	Größe der Polarisationssignale	322
7.4.4	Empfindlichkeit der Polarisations-Spektroskopie	326
7.5	Mehrphotonen-Spektroskopie	328
7.5.1	Grundlagen der Zweiphotonen-Absorption	328
7.5.2	Doppler-freie Zweiphotonen-Spektroskopie	331
7.5.3	Abhängigkeit des Zweiphotonen-Signals von der Fokussierung	335
7.5.4	Mehrphotonen-Spektroskopie	336
7.6	Anwendungsbeispiele und spezielle Techniken der nichtlinearen Spektroskopie	338
8	Laser-Raman-Spektroskopie	345
8.1	Grundlagen	345
8.2	Neuere Techniken der linearen Raman-Spektroskopie	349
8.3	Nichtlineare Raman-Spektroskopie	355
8.3.1	Induzierte Raman-Streuung	355
8.3.2	Kohärente Anti-Stokes Raman-Spektroskopie	360
8.3.3	Resonante CARS und Box-CARS	364
8.3.4	Hyper-Raman-Effekt	365
8.4	Anwendungen der nichtlinearen Raman-Spektroskopie	366
9	Laserspektroskopie in Molekularstrahlen	369
9.1	Reduktion der Doppler-Breite in kollimierten Strahlen	369
9.2	Abkühlung von Molekülen in Überschallstrahlen	375
9.3	Nichtlineare Spektroskopie in Molekularstrahlen	382
9.4	Kollineare Laserspektroskopie in schnellen Ionenstrahlen	385
9.5	Spektroskopie in kalten Ionenstrahlen	390
9.6	Massenselektive Laserspektroskopie in Molekularstrahlen	391
10	Optisches Pumpen und Doppelresonanz-Verfahren	397
10.1	Optisches Pumpen	398
10.2	Optische/Radiofrequenz-Doppelresonanz	403
10.2.1	Grundlagen	403
10.2.2	Laser-Hochfrequenz-Doppelresonanz-Spektroskopie in Molekularstrahlen	405
10.3	Optische/ Mikrowellen-Doppelresonanz	408
10.4	Optische/ Optische Doppelresonanz	412
10.4.1	Vereinfachung komplexer Absorptionsspektren	412

10.4.2	Stufenweise Anregung und Spektroskopie von Rydberg-Zuständen	416
10.4.3	Molekulare Rydbergzustände	421
10.4.4	Resonante induzierte Raman-Streuung	424
10.4.5	Beispiele für Doppelresonanz-Experimente	427
10.5	Spezielle Doppelresonanz-Techniken	428
10.5.1	Polarisations-Markierung	428
10.5.2	Mikrowellen/Optische Doppelresonanz-Polarisations-Spektroskopie	430
10.5.3	STIRAP-Technik	430
11	Zeitaufgelöste Laserspektroskopie	433
11.1	Erzeugung kurzer Lichtpulse	433
11.1.1	Zeitverhalten gepulster Laser	433
11.1.2	Güteschaltung von Laserresonatoren	435
11.1.3	Modenkopplung und Pikosekundenpulse	439
11.1.4	Erzeugung von Femtosekunden-Pulsen	447
11.1.5	Erzeugung durchstimmbarer kurzer Pulse	459
11.1.6	Solitonenlaser	462
11.1.7	Erzeugung leistungsstarker ultrakurzer Pulse	464
11.1.8	Der Vorstoß in den Attosekunden-Bereich	467
11.2	Messung kurzer Lichtpulse	469
11.2.1	Streakkamera	469
11.2.2	Optischer Korrelator zur Messung kurzer Lichtpulse	471
11.2.3	FROG-Technik	477
11.2.4	SPIDER-Technik	477
11.3	Lebensdauermessungen mit Lasern	479
11.3.1	Die Phasenmethode	481
11.3.2	Messung der Abklingkurve nach Einzelpulsanregung	483
11.3.3	Die Methode der verzögerten Koinzidenzen	484
11.3.4	Lebensdauermessungen in schnellen Atom- und Ionenstrahlen	486
11.4	Spektroskopie im Piko- und Femtosekundenbereich	488
11.4.1	Stoßinduzierte Relaxation von Molekülen in Flüssigkeiten ..	490
11.4.2	Elektronische Relaxation in Halbleitern	490
11.4.3	Untersuchung molekularer Dynamik auf der Femtosekundenskala	491
12	Kohärente Spektroskopie	495
12.1	Level-Crossing-Spektroskopie	496
12.1.1	Grundlagen	497
12.1.2	Quantenmechanisches Modell	500
12.2	Quantenbeat-Spektroskopie	501
12.3	Photonen-Echo	506
12.4	Optische Nutation und freier Induktionszerfall	511

12.5	Optische Pulszug-Interferenzspektroskopie	513
12.6	Kohärente Überlagerungsspektroskopie	515
12.7	Korrelations-Spektroskopie	517
12.7.1	Messung des Homodyn-Spektrums	520
12.7.2	Fluoreszenz-Korrelations-Spektroskopie	522
12.7.3	Heterodyne Korrelations-Spektroskopie	523
13	Laserspektroskopie von Stoßprozessen	525
13.1	Hochauflösende Laserspektroskopie der Stoßverbreiterung und Verschiebung von Spektrallinien	526
13.2	Messung inelastischer Stoßquerschnitte durch LIF	531
13.2.1	Stoß-Satelliten im Fluoreszenzspektrum	531
13.2.2	Andere Verfahren zur Messung von Stößen im angeregten Zustand	534
13.2.3	Stöße zwischen angeregten Atomen	536
13.3	Spektroskopische Bestimmung inelastischer Stoßprozesse im elektronischen Grundzustand	539
13.3.1	Zeitaufgelöster Fluoreszenznachweis	540
13.3.2	Zeitaufgelöste Absorptions- und Doppelresonanz-Methode ..	540
13.3.3	Spektroskopie von Stößen im Grundzustand mit kontinuierlichen Lasern	544
13.4	Spektroskopische Messung differenzieller Stoßquerschnitte in gekreuzten Molekularstrahlen	546
13.5	Spektroskopie reaktiver Stoßprozesse	551
13.6	Stöße im Strahlungsfeld eines Lasers	555
14	Neuere Entwicklungen in der Laserspektroskopie	559
14.1	Optische Ramsey-Resonanzen	559
14.1.1	Grundlagen der Ramsey-Interferenzen	559
14.1.2	Zweiphotonen-Ramsey-Resonanzen	563
14.1.3	Nichtlineare Ramsey-Interferenzen	566
14.2	Photonenrückstoß	568
14.3	Optisches Kühlen und Speichern von Atomen	573
14.3.1	Optisches Kühlen durch Photonenrückstoß	573
14.3.2	Optische Melasse	580
14.3.3	Magneto-optische Falle	582
14.3.4	Grenzen der optischen Kühlung	585
14.3.5	Kräfte auf einen induzierten Dipol im Lichtfeld	588
14.3.6	Bose-Einstein-Kondensation	590
14.3.7	Bildung kalter Moleküle	594
14.4	Spektroskopie an einzelnen Ionen	596
14.4.1	Ionenfallen	596
14.4.2	Seitenbandkühlung	599
14.4.3	Direkte Beobachtung von Quantensprüngen	601
14.4.4	Wigner-Kristalle in Ionenfallen	603

14.5	Der Einatom-Maser	605
14.6	Auflösung innerhalb der natürlichen Linienbreite	607
14.7	Absolute optische Frequenzmessung und Frequenzstandard	615
14.7.1	Optische Frequenzketten	615
14.7.2	Optische Frequenz-Teilung	616
14.7.3	Optischer Frequenzkamm	618
14.8	Kann man das Photonenrauschen überlisten?	620
14.8.1	Phasen- und Amplitudenschwankungen des Lichtfeldes	620
14.8.2	Quetschzustände	623
14.8.3	Realisierung von Quetschzuständen	624
14.8.4	Anwendungen der „Squeezing-Technik“ auf Gravitationswellen-Detektoren	626
15	Anwendungen der Laserspektroskopie	629
15.1	Anwendungen in der Chemie	629
15.1.1	Laserspektroskopie in der analytischen Chemie	629
15.1.2	Laserinduzierte chemische Reaktionen	632
15.2	Isotopentrennung mit Lasern	636
15.3	Laserspektroskopie in der Umwelt- und Atmosphärenforschung	638
15.3.1	Absorptionsmessungen	638
15.3.2	Atmosphärenmessungen mithilfe des LIDAR-Verfahrens ...	640
15.3.3	Analytik von Verunreinigungen in Flüssigkeiten	645
15.4	Anwendungen auf technische Probleme	647
15.4.1	Untersuchung von Verbrennungsvorgängen	647
15.4.2	Einsatz der Laserspektroskopie in der Materialforschung ...	650
15.4.3	Messung von Strömungsgeschwindigkeiten von Gasen	651
15.5	Anwendungen in der Biologie	653
15.5.1	Energietransfer in DNA-Komplexen	654
15.5.2	Zeitaufgelöste Messungen biologischer Prozesse	655
15.5.3	Korrelationsspektroskopie von Mikробenbewegungen	656
15.5.4	Lasermikroskop	657
15.5.5	Konfokale Mikroskopie biologischer Objekte	658
15.5.6	Einzel-Molekül-Nachweis	659
15.6	Medizinische Anwendungen	660
15.6.1	Anwendung der Raman-Spektroskopie in der Medizin	660
15.6.2	Laserspektroskopie in der Ohrenheilkunde	662
15.6.3	Tumordiagnose und Therapie	663
15.6.4	Laserlithotripsie	665
15.6.5	Weitere Anwendungen der Laserspektroskopie in der Medizin	666
	Literatur	667
	Sachverzeichnis	719