

Optische Detektion magnetischer Resonanz

- Kohärente Ramanstreuung
- Lochbrennspektroskopie

Björn Maiworm

Seminarvortrag:

Magnetische Resonanz:
Methoden und Anwendungen

Dortmund, den 16. Januar 2003

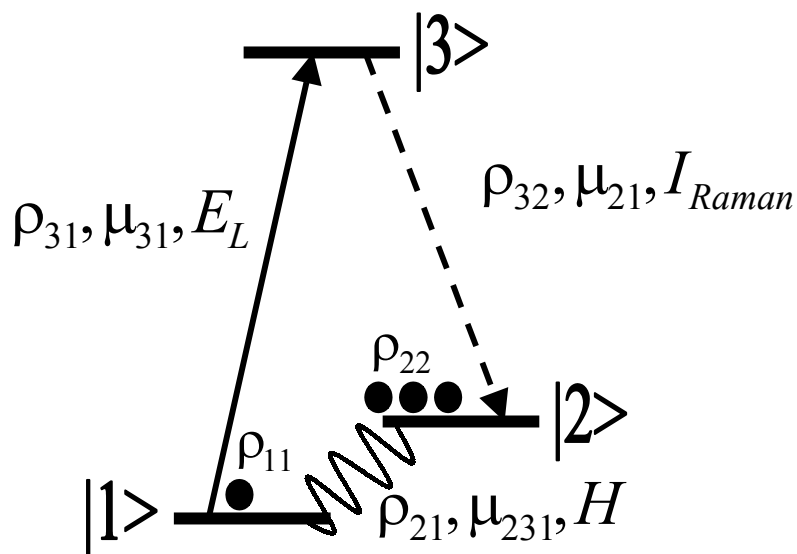
Ramanstreuung: Anwendungen

- a) Auflösung der Hyperfeinstruktur
- b) Kernspin- und Elektronenspinübergänge
- c) Vibrationsspektroskopie

Anwendung auf schmale optische Übergänge

Ramanstreuung: Dreineiveausystem

- Einstrahlen eines Laserfeldes:
Übergang $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$
- Einstrahlen eines Radiofrequenzfeldes:
Übergang $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$
ergibt kohärenten Superpositionszustand
zwischen Grundniveau $|2\rangle$ und angeregtem
Niveau $|3\rangle$



Ramanstreuung: Heterodynedetektion

Nachweis der Ramanwelle: Schwebung zwischen eingestrahlem Laserfeld und Ramanfeld

→ Messung der Intensität mittels Photodiode

→ Amplitude nicht relevant

Das Schwebungssignal wird als Heterodyne-Beat-Signal bezeichnet

$$I_{Raman} \propto \mu_{12} \mu_{13} \mu_{23} |E|^2 |H| (\rho_{22} - \rho_{11})$$

H: Raman-RF-Feld E: Laser-Feld

μ : Übergangsmatrixelemente

ρ : Populationsdichte des Niveaus

Ramanstreuung: Unterscheidungen

- Stokes / Antistokes Prozess:

Bei der Ramanstreuung wird zwischen zwei Prozessen unterschieden: Ist die Energie des emittierten Photons niedriger als das absorbierte Photon ist dies der sogenannte „Stokesprozess“. Wird hingegen ein Photon mit größerer Energie emittiert, ist dies der „Antistokesprozess“.

$$\omega_{Stokes} = \omega_{Laser} - \omega_{RF}$$

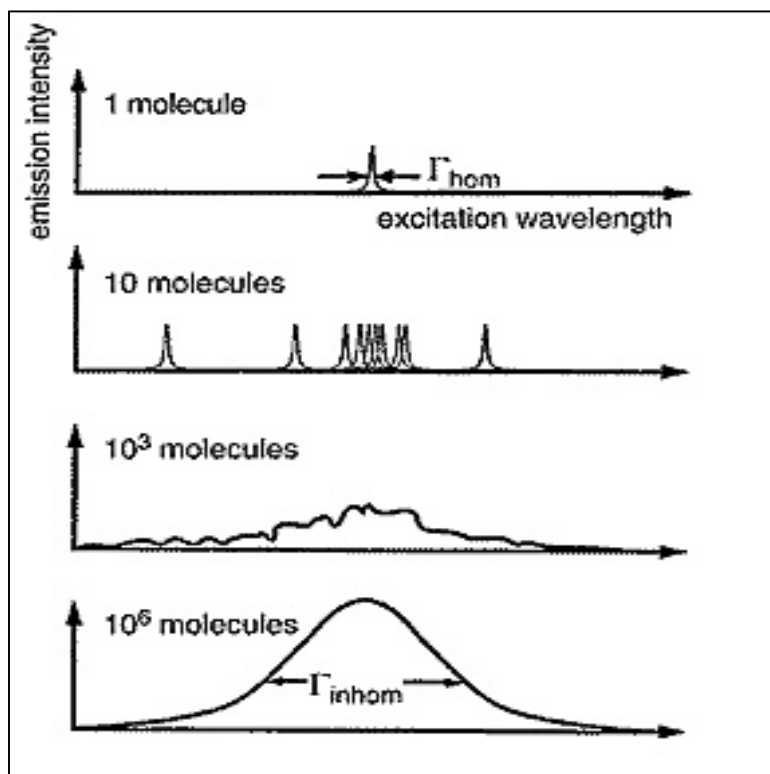
$$\omega_{Anti-Stokes} = \omega_{Laser} + \omega_{RF}$$

- V-Typ / Λ -Typ:

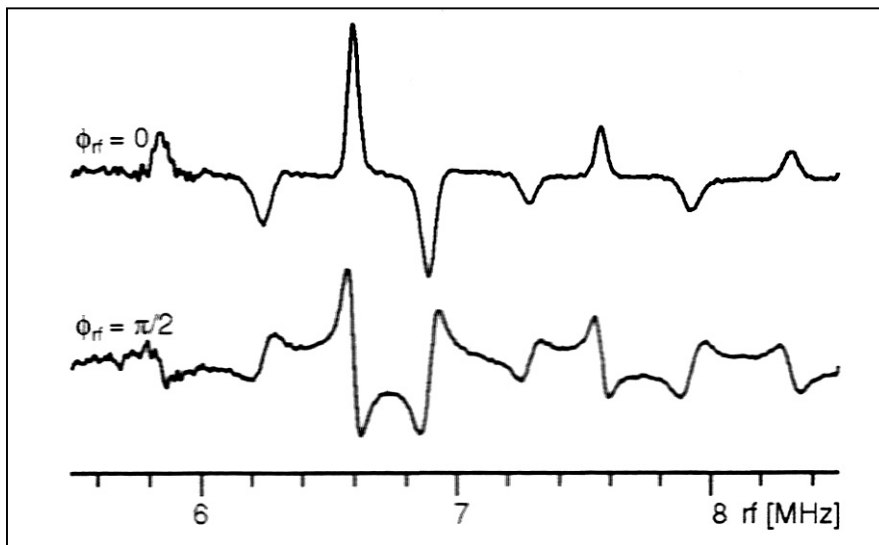
Je nachdem, ob man in den Grundzustand oder in den angeregten Zustand einstrahlt, unterscheidet man ein Raman-System als V-Typ oder Λ -Typ. Die Buchstaben beschreiben die Anordnung der Energieniveaus.

Ramanstreuung: inhomogene Linienverbreiterung

Das Signal ist, wie beschrieben, linear in den Übergangsmatrixelementen. Daher kann zwischen Stokes- und Antistokesprozess Interferenz stattfinden. Außerdem finden beide Prozesse zeitgleich statt, da die Linien stark inhomogen verbreitert sind, wenn sich die Probe in einem realen Kristall befindet.



Ramanstreuung: Beispielspektrum

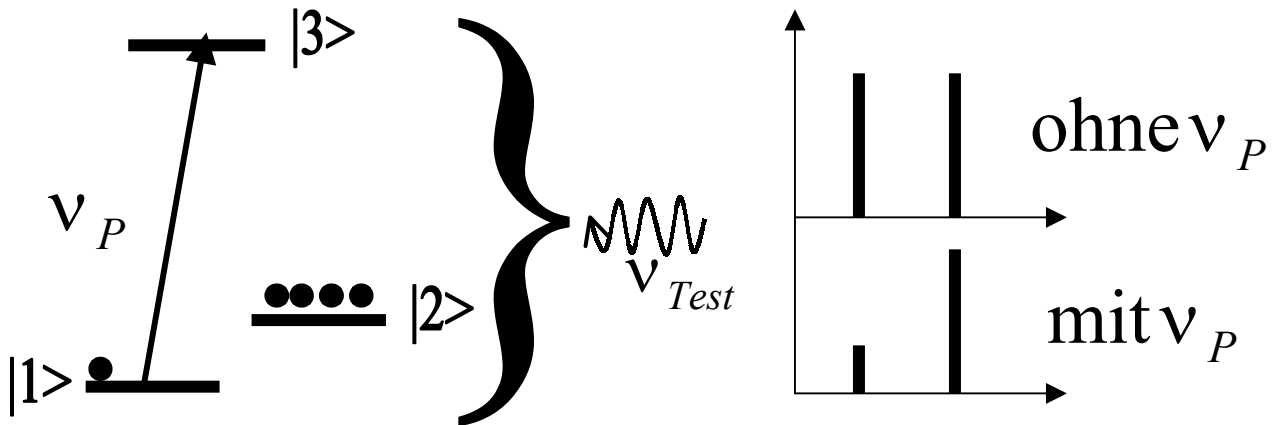


Raman-Heterodyn-Spektrum für die Grundzustand-Übergänge $|\pm 1/2\rangle \leftrightarrow |\pm 3/2\rangle$ von $\text{Pr}^{3+}:\text{YAlO}_3$

Lochbrennspektroskopie: Anwendungen

- a) Hyperfeinstrukturauflösung
- b) Kernspinübergänge (insbesondere seltene Erden)
- c) Dynamik von Molekülen
- d) bei zeitlich „langer“ Relaxation:
Speicherung von Informationen

Lochbrennspektroskopie: Prinzip



Ein intensiver Laserstrahl ist in der Lage durch optisches Pumpen einen elektronischen Grundzustand nahezu vollständig zu entleeren. Die Population relaxiert nach einer gewissen Zeit wieder aus dem angeregten in den Grundzustand - direkt oder über Zwischenniveaus. Solange die Pumprate größer als die Relaxation ist, kann der Laser den Grundzustand entleeren.

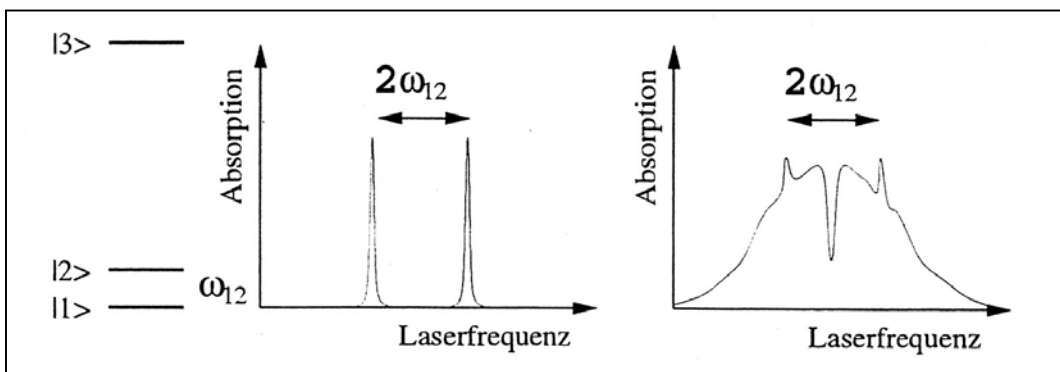
Normalerweise sind Niveau $|1\rangle$ und $|2\rangle$ im Mittel gleich stark besetzt. Wird zum Beispiel Niveau $|1\rangle$ „gepumpt“, ist es also niedriger besetzt als $|2\rangle$.

Ein so durch den intensiven Pump-Laserstrahl gebranntes Loch kann man mit einem schwächeren Laser im Absorptionsspektrum finden.

Lochbrennspektroskopie: Löcher / Antilöcher

Da im realen System die Linien inhomogen verbreitert sind, lassen sich im Kristallfeld mehr Übergänge anregen, als eigentlich durch die homogene Linienbreite des Atoms zu erwarten wäre. So ergibt sich z.B. bei $\text{Pr}^{3+}:\text{YAlO}_3$ eine inhomogene Linienbreite von etwa 5 Gigahertz (bei 5 Kelvin). Die homogene Linienbreite eines einzelnen Atoms beträgt circa 5 Kilohertz. Die Laserlinie hat eine Breite von etwa 2MHz.

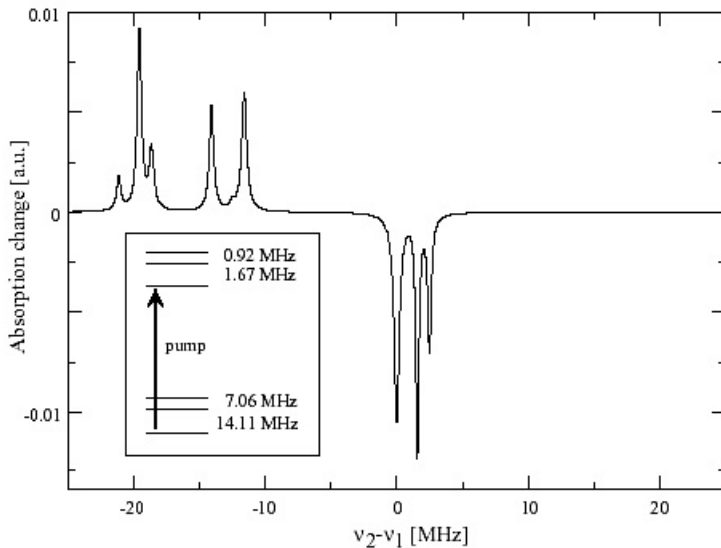
- Löcher: Koppelt nun der Testlaser an einen vom Pumplaser entleerten Übergang, registriert dieser eine erniedrigte Absorption.
- Antilöcher: Trifft der Testlaser einen Teil der Atome, deren unterer Grundzustand verstärkt besetzt ist, und einen Teil der Atome deren oberer Zustand verstärkt besetzt ist, so registriert er eine erhöhte Absorption: → Antiloch. Der Abstand der Antilöcher entspricht der Abstände des Grundniveaus im Praseodym.



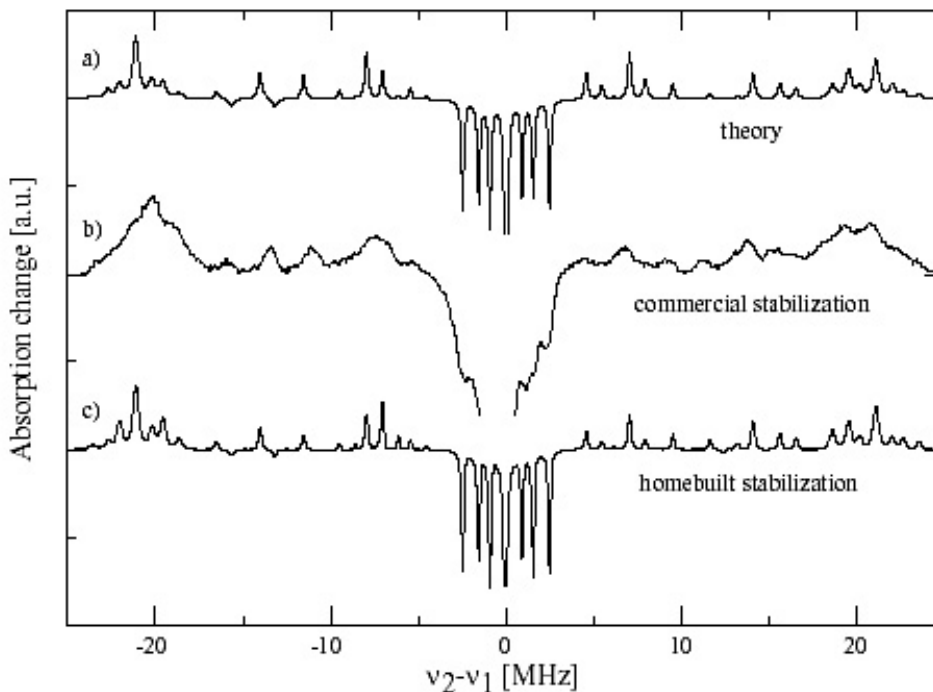
Lochbrennspektroskopie: Seitenlöcher

- Seitenlöcher: Diese entstehen, wenn der angeregte Zustand ebenfalls aufgespalten ist und der Pumplaser auch an diese Bereiche koppelt. Der Teststrahl sieht eine verringerte Absorption nicht nur bei exakt der gleichen Frequenz wie der Pumpstrahl, sondern auch bei einer Frequenzdifferenz, die der Aufspaltung der angeregten Zustände entspricht.

Lochbrennspektroskopie: Beispielspektrum Praseodym



Theoretisches Spektrum für einen der 9 mögl. Pump-Konfigurationen bei $\text{Pr}^{3+}:\text{YAlO}_3$: Simuliert wurde der Übergang vom niedrigsten Grundzustand in den niedrigsten angeregten Zustand



Spektrum für Praseodym:

- a) theoretisch
- b) Kommerzielle Frequenz Stabilisierung
Breite etwa 1 MHz
- c) Eigenbau-Stabilisierung
etwa 30 kHz

Bild- und Literaturverzeichnis:

- Abbildung Seite 6:
<http://www.mpibpc.gwdg.de/inform/MpiNews/cientif/jahrg5/10.99/scta.html#Anker379216>
- Abbildung Seite 7: Rudolf Neuhaus, Mathew J. Sellars, Stephen J. Bingham, Dieter Suter: „Breaking the Stokes-antis-Stokes symmetry in Raman heterodyne detection of magnetic-resonance transitions“, PhysRevA 58, 4962 (1998)
- Abbildung Seite 10: Ralf Köper, „Spektrales Lochbrennen mit variabler Laserfrequenz“, Diplomarbeit im Fach Physik, Fach Physik, Universität Dortmund, Seite 17 (1998)
- Abbildung Seite 12: Robert Klieber, Andreas Michalowski, Rudolf Neuhaus, and Dieter Suter, „Nuclear quadrupole resonance of an electronically excited state from high resolution hole burning spectroscopy“, Universität Dortmund Fachbereich Physik (2002)
- Robert Michael Klieber, „Lochbrenn- und Mehrfach-Resonanz experimente an $\text{Pr}^{3+}:\text{YAlO}_3$ “, Diplomarbeit im Fach Physik, Universität Dortmund (2001)
- Marc Oliver Schweika-Kresimon, Jörg Gutschank, and Dieter Suter, „Magneto-optical and EPR transitions in Raman heterodyne spectroscopy“, PhysRevA 66, 43816 (2002)