

Übersicht

Das Emissionsspektrum eines Vielmoden-Lasers reagiert äußerst empfindlich auf spektral selektive Verluste im Resonator. Diese Eigenschaft wird bei der Absorptionsspektroskopie im Resonator eines Vielmoden-Lasers, ICAS (*intracavity absorption spectroscopy*), ausgenutzt. Die Empfindlichkeit beim Nachweis resonatorinterner Absorption ist sehr hoch, sie ist vergleichbar der von herkömmlichen Absorptionsmessungen mit Lichtwegen durch die Probe von einigen zehn bis vielen tausend Kilometern. In dieser Arbeit werden zu ICAS experimentelle Untersuchungen mit Farbstoff-Lasern hinsichtlich der Realisierung höchster Empfindlichkeit und spektraler Auflösung und der Anwendung zur quantitativen Messung schwacher atmosphärischer Absorption dargestellt.

Die Empfindlichkeit von ICA-Messungen ist bei kontinuierlichem Laser-Betrieb durch Phasenstörungen des resonatorinternen Lichtfeldes begrenzt. Die Messung der spektralen Dynamik in Abhängigkeit von verschiedenen Laser-Parametern zeigt beim Farbstoff-Laser die Abnahme der Empfindlichkeit mit steigender Pumprate und steigendem Resonatorverlust und ermöglicht für diesen Laser-Typ die Vier-Wellen-Mischung durch Besetzungszuständen des oberen Laser-Niveaus (PP) als dominierende Störung zu identifizieren. Durch Unterdrücken dieser Störung wurde die Empfindlichkeit bis nahe an die durch Quantenrauschen gegebene fundamentale Grenze dieses Lasers gesteigert und erreicht mit einem Lichtweg durch die Probe von fast 70.000 km den bislang höchsten Wert für Absorptionsmessungen überhaupt. Die Steigerung der Empfindlichkeit von ICA-Messungen mit anderen Laser-Typen erfordert Kenntnis über die bei diesen dominierenden Störungen. In Lasern mit langem Verstärkungsmedium, z. B. Ti:Saphir- oder dotierte Faser-Laser, ist Rayleigh-Streuung als Phasenstörung des Lichtfeldes in einzelnen Moden von Bedeutung. Die experimentelle Simulation dieser Störung im Farbstoff-Laser legt den Zusammenhang nahe zwischen Rayleigh-Streuung und Minderung der Empfindlichkeit von ICA-Messungen.

Zusätzliche Verbesserung der Empfindlichkeit von Absorptionsmessungen ist durch Minderung von Rauschen beim Nachweis kleinster Unterschiede im Lichtfluß möglich. Dieses zeigt der Nachweis resonatorinterner Jod-Absorption mit einer externen photoakustischen Zelle beispielhaft. Die Nachweisempfindlichkeit wird hier um den Faktor 2 bis 3 und der dynamische Bereich der Konzentrationsmessung um den Faktor 100 verbessert im Vergleich zu Messungen mit einem hochauflösenden Gitterspektrographen und einer Diodenzeile. Weitere Steigerung der Nachweisempfindlichkeit mit dieser Versuchsanordnung ist möglich.

Die Steigerung der spektralen Auflösung über das durch den Frequenzabstand der Laser-Moden gegebene Maß hinaus wird für ICA-Messungen erstmals vorgeschlagen und experimentell umgesetzt. Die Frequenz aller Laser-Moden wird über das Intervall, welches dem Frequenzabstand der Moden entspricht, verstimmt und gleichzeitig der spektrale Lichtfluß in einer einzelnen Mode nachgewiesen. Das Experiment zeigt, daß die spektrale Auflösung von ICAS, analog zu Messungen mit Einmoden-Lasern, fundamental nur durch die Bandbreite der einzelnen Laser-Moden begrenzt ist. Als Verallgemeinerung der Schawlow-Townes-Bedingung wird für die spektrale Bandbreite einzelner Laser-Moden der Zusammenhang mit der spektralen Sättigungszeit verifiziert: Das Produkt beider Größen ist eins. Für alle Techniken der Laser-Spektroskopie läßt sich hieraus ableiten, daß mit den meisten Lasern die fundamentale Grenze der spektralen Auflösung und der Empfindlichkeit nicht erreicht werden kann, da die Störung ihrer spektralen Laser-Dynamik durch andere Mechanismen als Quantenrauschen dominiert wird.

Zum Abschluß demonstriert der Vergleich des im Spektralbereich von 571 nm bis 605 nm gemessenen Spektrums atmosphärischer Absorption mit einem auf Basis der HITRAN-Datenbank berechneten Referenzspektrum die Möglichkeit, mit ICAS die spektrale Position, die Stärke und die Form schwacher Absorptionslinien zuverlässig zu bestimmen. Aufgrund der hohen Empfindlichkeit der Messung konnten vor allem in Bereichen mit schwacher atmosphärischer Absorption über 150 spektrale Strukturen nachgewiesen werden, die bislang nicht in HITRAN verzeichnet sind.

Abstract

Emission spectra of multimode lasers are very sensitive to spectrally selective extinction in their cavity. The method of *intracavity absorption spectroscopy* ICAS is taking advantage of this property. The sensitivity of measurements of intracavity absorption is very high. It compares with the sensitivity of conventional measurements with an optical path length of absorption from a few ten kilometers to several thousand kilometers. In this work experimental investigations into ICAS with dye lasers are presented. They are aiming at achieving highest sensitivity and spectral resolution, and at applying ICAS to quantitative measurement of weak atmospheric absorption.

The sensitivity of measurements of intracavity absorption obtained with a cw laser is set by various perturbations of the light coherence. The measurement of the spectral dynamics' dependence on various laser parameters shows decrease of sensitivity with increasing pump rate and increasing cavity loss in dye lasers and allows identification of four-wave mixing by population pulsations of the upper laser level (PP) as the dominant perturbation of the light coherence in this type of laser. By suppressing this perturbation, sensitivity has been enhanced close to its fundamental limit given by quantum noise. The highest sensitivity obtained corresponds to 70,000 km effective length of the absorption path and sets a record for all absorption measurements. Improving the sensitivity of ICA-measurements with other laser types demands knowledge of the dominating perturbation of their emission dynamics. In lasers with a long gain medium, such as doped fiber lasers, or Ti:sapphire laser, Rayleigh scattering is an important perturbation of the light coherence within laser modes. Experimental simulation of this perturbation inside a dye laser shows for the first time the relation between Rayleigh scattering and substantial reduction of the sensitivity to intracavity absorption.

Additional improvement of the sensitivity of absorption measurements can be obtained by enhancing the signal-to-noise ratio in the recorded signal. This is exemplified by the detection of intracavity absorption from iodine with an external photoacoustic cell. As a first step the sensitivity is improved by a factor of 2 to 3 and the dynamic range for the detection of iodine concentration by a factor 100, compared to the detection of ICA absorption with a high-resolution spectrograph and a diode array. Further improvement of the sensitivity with the same experimental setup is possible.

ICA measurements with spectral resolution higher than the resolution determined by the spectral separation of the laser modes is proposed and achieved for the first time. The spectral positions of the emitting laser modes are scanned continuously over the frequency interval given by their spectral separation and the emission of an individual laser mode is recorded. This experiment demonstrates that the ultimate spectral resolution of ICAS equals the bandwidth of a laser mode as in measurements with single-mode lasers. As a generalization of the Schawlow and Townes condition the universal relationship between the bandwidth of an individual laser mode and the saturation time of the spectral laser dynamics is verified: the product of the two quantities is unity. This result shows that the fundamental limit of spectral resolution in laser spectroscopy and sensitivity of ICA measurements, which are both calculated with the assumption of quantum noise as the only perturbation of the laser light, is inaccessible with most lasers, as a consequence of the superimposed perturbations by Rayleigh scattering or other mechanisms.

Finally the comparison of the atmospheric absorption spectrum obtained in the spectral range from 571 nm to 605 nm with a reference synthesized from the HITRAN-database demonstrates the feasibility of accurate quantitative measurements of the spectral positions, strengths, and shapes of weak absorption lines by ICAS. Due to the high sensitivity more than 150 spectral structures – mainly in regions of weak atmospheric absorption – have been detected, which are not yet registered in HITRAN.

