

### 3. Optisches Pumpen von Edelgasen

Der Begriff des optischen Pumpens bezeichnet die selektive Bevölkering oder Entleerung atomarer oder molekularer Niveaus durch Absorption von Licht. Die sich daraus ergebende Ungleichbesetzung von Zuständen kann erheblich von der Besetzung im thermischen Gleichgewicht abweichen.

Bereits 1924, noch bevor die resonante Wechselwirkung von Licht mit Atomen vollständig quantenmechanisch verstanden war, wurde von HANLE die Polarisation von Fluoreszenzlicht an Quecksilber-Atomen in Abhängigkeit von der Stärke eines äußeren Magnetfeldes gemessen und daraus die selektive Anregung von ZEEMAN-Niveaus des oberen Zustandes gezeigt [Han24]. Es dauerte jedoch bis 1949, als KASTLER theoretisch zeigte, dass durch „« pompage optique »“ [Kas50] auch eine Ungleichbesetzung von Grundzuständen erzielbar sein sollte. Zuerst wurde dies von BROSEL, BITTER und KASTLER an Quecksilber-Atomen [Bro52] und von HAWKINS und DIKE an Natrium-Atomen [Haw53] nachgewiesen. Von da an begannen viele Gruppen, diese Methode einzusetzen, da die Verwendung von Atomen mit hoch polarisiertem Elektronenspin, oder Kernspin in der Grundlagenforschung sehr vielversprechend schien. Dies ist unter anderem in den zahlreichen Übersichtsartikeln zum Ausdruck gekommen [Car63, CT66, Hap72, Kni88].

In diesem Kapitel soll auf die physikalischen Grundlagen des optischen Pumpens zur Erzeugung von hohen Kernspin-Polarisationen in Edelgasatomen eingegangen werden. Auf das Prinzip des optischen Spinaustausch-Pumpens, welches im Rahmen dieser Arbeit für Rubidium und  $^{129}\text{Xe}$  eingesetzt wurde, wird zuerst näher eingegangen, wohingegen das Pumpen eines metastabilen Zustandes mit folgendem Polarisationstransfer in den Grundzustand nur kurz erwähnt werden soll, da diesbezüglich nur Vorexperimente für  $^{129}\text{Xe}$  durchgeführt werden konnten.

#### 3.1. Hyperpolarisierung durch optisches Spinaustausch-Pumpen

Obwohl das optische Pumpen von Alkalimetall-Atomen bereits seit den 50er Jahren untersucht wurde [Haw53], befassen sich bis heute Gruppen mit der Bestimmung der Raten bei unterschiedlichsten Bedingungen. So wurde das Pumpen in optisch dichten Alkalimetall-Dämpfen mit der Verfügbarkeit von Hochleistungs-Halbleiterlasern erneut untersucht [Cum95, Wag94]. Der Transfer der Polarisation der Elektronenhülle auf den Kernspin von Edelgasatomen wurde (nach Vorarbeiten von BOUCHIAT *et al.* [Bou69, Bou72] an der ENS-Paris) seit Anfang der 80er Jahre intensiv in der Gruppe um W. HAPPER (Princeton University) untersucht [Bha80a, Bha82] und theoretisch erklärt [Hap84]. So ist der Gesamtprozess des optischen Spinaustausch-Pumpens physikalisch größtenteils verstanden und wurde in Veröffentlichungen des öfteren zusammengefasst [App99, Wal97]. Dennoch werden mit den bisher realisierten Apparaturen zur Polarisation hoher Xe-Gasvolumina nur etwa ein Drittel der theoretisch

zu erwartenden  $^{129}\text{Xe}$ -Kernspin-Polarisation erzielt [Dri96]. So treten in Pumpzellen unter Verwendung hoher Laserleistung, wie sie an solchen Apparaturen eingesetzt werden, Effekte auf, die nicht durch die bestehende Theorie beschrieben werden können und deren Vermeidung neue konstruktive Lösungen fordern. Der zweite Prozess, der noch nicht gänzlich verstanden ist, ist das Verhalten der  $^{129}\text{Xe}$ -Kernspins während des Ausfrierens und Auftauens von Xenon, bei dem, je nach apparativen Bedingungen, unterschiedlich hohe Verluste in der Kernspin-Polarisation auftreten.

### 3.1.1. Optisches Pumpen von Alkalimetall-Atomen

Der eigentliche Prozess des optischen Pumpens wird in zwei oft konkurrierende Mechanismen aufgeteilt: Das Entvölkerungspumpen durch resonante Absorption von Photonen und das Bevölkerungspumpen durch die Relaxation aus dem angeregtem Zustand. Im Weiteren soll dies anhand der D1-Linie der Alkalimetalle unter Vernachlässigung der Hyperfein-Unterniveaus beschrieben werden.

#### Entvölkerungspumpen

Durch selektive Anregung eines der beiden ZEEMAN-Grundniveaus kann dieses entvölkert werden. Die Selektivität der Anregung kann durch drei Mechanismen erzielt werden:

- Durch **Frequenzselektion des Pumplichtes** können bei genügend großem äußeren  $B_0$ -Feld die ZEEMAN-Linien selektiv angeregt werden.
- Durch **Pumpen mit polarisiertem Licht** kann ausgewählt werden, welche der Übergänge angeregt werden soll, wobei  $\pi$ -Licht auch  $\sigma^\pm$ -Übergänge anregen kann,  $\sigma^\pm$ -Licht aber nur den jeweils entsprechenden Übergang.
- Durch **Einstrahlen des Lichts entlang der  $B_0$ -Feldachse** können nur  $\sigma^\pm$ -Übergänge induziert werden. Dies kann bei Atomen mit drei magnetischen Zuständen ( $m = 0, \pm 1$ ) im Grundzustand ausgenutzt werden, um auch mit unpolarisiertem Licht den Zustand mit  $m = 0$  zu bevölkern

Beim optischen Pumpen von Alkalimetall-Atomen in schwachen Magnetfeldern wird rechts- oder linkszirkular polarisiertes Licht parallel oder antiparallel zum  $B_0$ -Feld eingestrahlt, um selektiv einen der beiden  $\sigma$ -Übergänge anzuregen.

Für die Absorptionsrate  $\gamma^\pm$  des  $\sigma^\pm$ -Übergangs ergibt sich für 100 % polarisiertes Licht mit der spektralen Photonen-Flussdichte  $\Phi^\pm(\nu, \vec{r}) = \frac{I^\pm(\vec{r})}{h\nu_0} g_L(\nu)$  und dem Absorptionswirkungsquerschnitt  $\sigma^\pm(\nu) = \frac{\lambda_0^2 \Delta\nu_{nat}}{4} g_{abs}(\nu)$

$$\gamma^\pm(\vec{r}) = \int \Phi^\pm(\nu, \vec{r}) \sigma^\pm(\nu) d\nu = \frac{I^\pm(\vec{r})}{h\nu_0} \frac{\lambda_0^2 \Delta\nu_{nat}}{4} \int g_L(\nu) g_{abs}(\nu) d\nu. \quad (3.1)$$

Um bei der Verwendung von breitbandigen Hochleistungs-Halbleiterlasern das Integral möglichst groß werden zu lassen, also um möglichst viele Photonen nutzen zu können, wird beim optischen Spinaustausch-Pumpen von Edelgasen bei Drücken von mehreren Atmosphären gearbeitet. Bei  $^3\text{He}$  kann dieser Druck durch das  $^3\text{He}$  selbst erzeugt werden, da hier die Spinzerstörungsraten durch  $^3\text{He}$ - $^3\text{He}$ -Stöße klein sind. Bei Spinaustausch-Pumpen von  $^{129}\text{Xe}$  ist dies nicht mehr der Fall (siehe Kap. 3.1.2), weshalb der Druck durch ein zusätzliches Puffergas ( $^4\text{He}$ ) erzeugt wird.

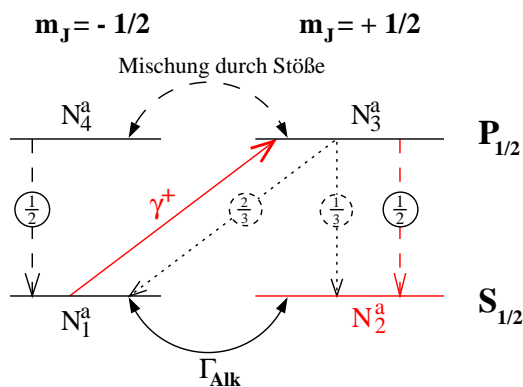


Abbildung 3.1.:

Pumpschema für optische Anregung des D1- $\sigma^+$ -Überganges eines Alkalimetall-Atoms. Der  $S_{1/2}$  Grundzustand mit  $m_J^g = -\frac{1}{2}$  wird durch Lichtabsorption entvölkert. Durch Stöße werden die Zustände der beiden angeregten  $P_{1/2}$ -Niveaus gemischt und die Abregung gleichermassen auf die beiden  $S_{1/2}$ -Zustände aufgeteilt (gestrichelte Pfeile). Wäre kein Puffergas zur Fluoreszenzlicht-Unterdrückung beteiligt, so würde der angeregte  $P_{1/2}$ -Zustand mit  $m_J^a = +\frac{1}{2}$ , wie mit den gepunkteten Pfeilen angedeutet, relaxieren.  $N_1^a, \dots, N_4^a$  sind die Besetzungszahlen der vier Alkalimetall-Zustände.

### Bevölkerungspumpen

Der durch die Lichtabsorption angeregte Zustand kann durch spontane Emission in den Grundzustand diesen selektiv bevölkern. Für die Fluoreszenz-Emission wird das Verzweungsverhältnis durch die Verhältnisse der Quadrate der CLEBSCH-GORDAN-Koeffizienten  $C_{m_p m_g}$  gegeben (siehe Gl. 2.6). Für den D1-Übergang ergibt sich das Verhältnis 2:1 für die Abregung über einen  $\sigma^\pm$ - oder einen  $\pi$ -Übergang, wie in Abb. 3.1 gezeigt. Die spontane Emission hätte also zur Folge, dass im Mittel drei Photonen benötigt würden, um z.B. ein Atom vom Grundzustand mit  $m_J = -\frac{1}{2}$  in den mit  $m_J = +\frac{1}{2}$  zu überführen.

### Absorption von reemittierten Photonen

Ein weit ungünstigerer Effekt beim optischen Pumpen von optisch dicken Medien ist die Vielfachstreuung der Photonen innerhalb des absorbierenden Mediums (in diesem Zusammenhang als *radiation trapping* bekannt). Da die Polarisation der Fluoreszenzstrahlung nicht der Polarisation des Pumplichts entspricht wird bei Absorption von reemittierten Photonen zum optischen Pumpen anderer Übergänge führen und somit die Elektronen-Polarisation zerstören. Dies ist bei optisch gepumpten Quellen, bei denen keine Puffergase verwendet werden können, ein wichtiges Kriterium für die maximal zulässige Alkalimetall-Teilchendichte [And92, Tup86, Tup87].

### Strahlungslose Abregung durch Puffergase

Beim Spinaustausch-Pumpen von Edelgasen kann zur Unterdrückung des *radiation trapping* ein so genanntes *Quenching*-Gas verwendet werden, welches in Stößen das angeregte Alkalimetall-Atom nichtresonant abregt. Hierfür eignet sich Stickstoff sehr gut, da sein Quench-Wirkungsquerschnitt  $\sigma_Q$  ( $\sigma_Q(Rb - N_2) = 5,8 \times 10^{-15} \text{ cm}^2$  [Hry70]) sehr hoch, seine Spin-Zerstörungsrate  $\Gamma_{N_2-Rb} = k_{N_2-Rb} [N_2]$  klein ( $k_{N_2-Rb} \approx 5 \times 10^{-18} \frac{\text{cm}^3}{\text{s}} \hat{=} \sigma_{N_2-Rb} \approx 8 \times 10^{-23} \text{ cm}^2$  siehe Tab. A.6) sowie für *in vivo* Anwendungen völlig unbedenklich ist. Ein günstiger Nebeneffekt ist, dass beim Quenchen der Fluoreszenz auch nicht die Verzweungsverhältnisse der Fluoreszenz-Emission gelten, wie sie sich aus der Drehimpulskopplung ergeben. Vielmehr ist die Wahrscheinlichkeit der Relaxation in die beiden Grundniveaus 1:1 und es werden im Mittel nur zwei Photonen benötigt, um ein Atom aus dem Zustand mit  $m_J = -\frac{1}{2}$  in

den mit  $m_J = +\frac{1}{2}$  zu überführen.

Das sich somit ergebende Pumpschema für das Spinaustauschpumpen bei Anregung des  $\sigma^+$ -Überganges und der Verwendung von Quenching-Gas ist in Abb. 3.1 gezeigt, wobei weitere Anteile der Gesamt-Spin-Zerstörungsrate  $\Gamma_{Alk}$  im Weiteren beschrieben werden.

### Spintemperatur-Gleichgewicht

Bei der bisherigen Betrachtung wurde nicht beachtet, dass alle stabilen Alkalimetall-Atome einen von Null verschiedenen Kernspin besitzen. Bei Atomstößen von optisch gepumpten Alkalimetall-Atomen untereinander wird aufgrund der großen Spinaustausch-Ratenkonstante  $k_{Alk-Alk} \approx 10^{-14} \frac{\text{cm}^3}{\text{s}}$  sehr häufig die Spinausrichtung der Elektronen ausgetauscht. Nach dem Stoß aber tritt der Elektronen-Spin wieder in Wechselwirkung mit dem Kernspin. Nach genügend vielen Stößen, wobei die benötigte Anzahl magnetfeldabhängig ist [Wal93b, Wal93a], wird somit auch der Kernspin polarisiert und es stellt sich das so genannte Spintemperatur-Gleichgewicht ein [And60, Pur56], bei der die Besetzung eines Zustandes mit der Quantenzahl  $m_F$  proportional zu einem BOLTZMANN-Faktor  $e^{\beta m_F}$  ist ( $\beta$  wird als Spintemperatur-Konstante bezeichnet). Unter den Bedingung, wie sie an Spinaustausch-Apparaturen zur Erzeugung hyperpolarisierter Edelgase herrschen, liegt die Rate der Elektronen-Austausch-Stöße in der Größenordnung von  $10^4 - 10^6 \text{ s}^{-1}$ . Sie ist somit weit größer, als die Spinzerstörungsrate  $\Gamma_{Alk}$  und liegt in der Größenordnung der Pumprate  $\gamma^\pm$ , wodurch die Alkalimetall-Atome sehr gut durch eine Spintemperatur-Verteilung beschrieben werden können [Wal97].

#### 3.1.2. Spinaustausch-Stöße

Der wichtigste Prozess beim optischen Spinaustausch-Pumpen ist, wie der Name besagt, der Transfer von Elektronenspin-Polarisation von den Alkalimetall-Atomen auf den Kernspin der Edelgas-Atome. Wie in Abb. 3.2 angedeutet, kann dies entweder durch rein binäre Stöße (Stoßdauer  $\approx 10^{-12} \text{ s}$ ), oder innerhalb schwach gebundener VAN DER WAALS Moleküle geschehen. Für das System Rb- $^3\text{He}$  dominieren die binären Stöße. Für die schwereren, leicht polarisierbaren Edelgasatome, insbesondere für Xenon, ist die Bildung von schwach gebundenen VAN DER WAALS Molekülen der dominierende Effekt. Für das spinabhängige Zusatzpotential  $V_1(\vec{R})$  (stark abhängig vom Relativabstand  $\vec{R}$ ) der beiden Stoß-Partner, ergeben sich beim Spinaustausch-Prozess im Wesentlichen zwei Terme

$$V_1(\vec{R}) = \gamma(\vec{R}) \vec{N} \cdot \vec{S} + A_b(\vec{R}) \vec{I}_{Edl} \cdot \vec{S}. \quad (3.2)$$

Der erste Term, die Spin-Rotations-Wechselwirkung rührt von den magnetischen Feldern her, die die Elektronen des Alkalimetall-Atomrumpfes, oder des Edelgasatoms bei der Rotation um die Drehimpuls-Achse  $\vec{N}$  am Ort des Elektronenspins  $\vec{S}$  erzeugen. Für die binären Rb- $^3\text{He}$ -Stöße dominiert das magnetische Feld aus dem Alkalimetall-Atom ( $\gamma_a(\vec{R})$ ), wohingegen für das schwerere Xe-Atom das von diesem erzeugte Magnetfeld bei der Bildung eines VAN DER WAALS Moleküls den Hauptanteil ausmacht ( $\gamma_e(\vec{R})$ ). Daraus erklärt sich die Tatsache, dass diese Spin-Rotations-Wechselwirkung, die die Elektronen-Polarisation in die translatorische Bewegung überführt, für Rb- $^{129}\text{Xe}$ -Stöße sehr viel größer ist, als für Rb- $^3\text{He}$ -Stöße ( $\sigma_{Rb-He} \approx 10^{-23} \text{ cm}^2$ ,  $\sigma_{Rb-Xe} \approx 10^{-19} \text{ cm}^2$  [Wal97]).

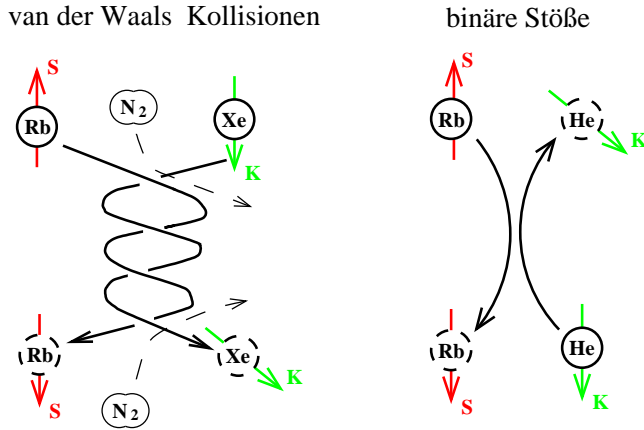


Abbildung 3.2.:

Schema der Spinaustausch-Stöße durch Bildung von VAN DER WAALS-Moleküle oder durch binäre Stöße. Die teilweise Auslenkung des Kernspins ist nicht quantenmechanisch als Kohärenz der beiden Spinzustände zu verstehen, sondern soll andeuten, dass nur etwa jeder zehnte Spinaustausch-Stoß zu einem Drehimpulsübertrag von  $1\hbar$  auf das Edelgas-Kernspin-System führt.

Der zweite Term in Gl. 3.2 beschreibt die isotrope Hyperfeinwechselwirkung (FERMI-Kontakt-Wechselwirkung)  $A_b(\vec{R})$  zwischen dem Elektronen-Spin  $\vec{S}$  und dem Kernspin  $\vec{I}_{Edl}$ . Sie entspricht einem vom Elektronenspin  $\vec{S}$  am Ort des Xe-Kerns erzeugten Magnetfeldes proportional zur Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Alkalimetall-Valenzelektrons. Dieser Prozess bewirkt den eigentlichen Polarisationsübertrag von der Rubidium-Elektronenhülle auf den Edelgas-Atomkern und unterscheidet sich in den Raten wiederum erheblich für die Stöße mit den verschiedenen Edelgas-Atomen ( $\sigma_{SE_{Rb-He}} \approx 10^{-24} \text{ cm}^2$ ,  $\sigma_{SE_{Rb-Xe}} \approx 10^{-20} \text{ cm}^2$ , wobei diese Werte bisher nur theoretisch berechnet wurden [Wal97, Wal98].

Aus diesen stark unterschiedlichen Spinzerstörungs- und Spinaustausch-Raten ergeben sich prinzipielle Unterschiede in der Realisierung von Apparaturen zur Hyperpolarisierung von  $^3\text{He}$  oder  $^{129}\text{Xe}$ . So liegen bei  $^3\text{He}$  die Kernspin-Polarisations-Aufbauzeiten im Bereich von Stunden [Chu87]. Da aber auch die Rb-Spin-Zerstörungsrate für Rb- $^3\text{He}$ -Stöße relativ gering ist, kann hier bei hohen  $^3\text{He}$ -Drücken ( $> 5 \text{ bar}$ ) auf einmal das Gesamtvolumen ( $\approx 11$  bei Normaldruck) polarisiert werden. Für  $^{129}\text{Xe}$  hingegen liegen die Kernspin-Polarisations-Aufbauzeiten aufgrund des größeren Spinaustausch-Wirkungsquerschnittes im Minuten-Bereich (Messungen siehe S. 54). Aufgrund der sehr großen Rb-Spin-Zerstörungsrate für Rb-Xe-Stöße darf beim optischen Spinaustausch-Pumpen der Xe-Partialdruck nur wenige 100 mbar betragen, damit eine genügend hohe Rb-Polarisation aufrechterhalten werden kann. Deshalb wird in solchen Apparaturen  $^4\text{He}$  zur Linienverbreiterung als Puffergas eingesetzt und entweder im häufig wiederholten, zyklischen Betrieb [Ros99], oder wie in dieser Arbeit letztlich realisiert, im Durchfluss-Betrieb gearbeitet.

Für optisches Spinaustauschpumpen durch Rb-Xe-Stöße in einer mit Stickstoff und Xe-Gas gefüllten Pumpzelle ergibt sich die Spinaustausch-Rate  $\gamma_{SE_{Xe-Rb}}$  zu [Cat92]

$$\gamma_{SE_{Xe-Rb}} = \left( \frac{\gamma_M \xi}{[Xe]} \frac{1}{1 + 0,275 p(N_2)/p(Xe)} + \langle \sigma_{SEV} \rangle \right) [Rb], \quad (3.3)$$

wobei  $[Rb]$  und  $[Xe]$  jeweils die Teilchendichten bezeichnen und  $\gamma_M \xi \approx 5 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$  experimentell bestimmt wurde. Der erste Term in der Klammer berücksichtigt den Spintransfer durch die Bildung von VAN DER WAALS Moleküle, der zweite Term den Anteil der binären Stöße. Bei Xe-Partialdrücken  $p(Xe) > 0,5 \text{ bar}$  wird der Spintransfer durch VAN DER WAALS Moleküle vernachlässigbar.

Für optisches Spinaustauschpumpen in Apparaturen, die mit Puffergas-Drücken von mehreren Atmosphären arbeiten, braucht die Bildung von VAN DER WAALS Molekülen nicht mehr berücksichtigt werden [Wal97] und der Ausdruck für die Spinaustausch-Rate  $\gamma_{SE_{Xe-Alk}}$  für  $^{129}\text{Xe}$ -Alkalimetall-Stöße

entspricht der Beziehung für  $^3\text{He}$ -Alkalimetall-Stöße

$$\gamma_{SEHe-Alk} = \langle \sigma_{SE\nu} \rangle [Alk]. \quad (3.4)$$

### 3.1.3. Wand-Depolarisation

Der wichtigste, bisher nicht besprochene Relaxationsmechanismus sowohl für die Alkalimetall- als auch für die Edelgas-Polarisation ist der Einfluss von Wandstößen. So wurde bereits in den sechziger Jahren ausgiebig die Depolarisation von optisch gepumpten Rb durch Wandstöße behandelt [Bou66]. Seit den achtziger Jahren wurden die Depolarisationen von adsorbierten  $^{131}\text{Xe}$  durch Quadrupol-Wechselwirkung [Wu87] und aktueller von adsorbierten  $^{129}\text{Xe}$  durch dipolare Kopplung [Dri95] untersucht.

Generell gilt für ein Atom, das auf eine Wand trifft, dass es nicht instantan reflektiert wird, sondern zuerst auf der Wand haften bleibt und sich von einem Ort zum anderen als Resultat der thermischen Bewegung fortbewegt, d.h. auf der Oberfläche diffundiert. Gelangt es an einen Ort geringer Adsorptionsenergie, so kann es wieder von der Wand desorbieren. Nach der Theorie der physikalischen Adsorption [Boe63] ergibt sich die mittlere Haftzeit zu

$$\tau_s = \tau_0 e^{E_a/kT} \quad (3.5)$$

wobei  $E_a$  ( $\approx 0,1$  eV) die Bindungsenergie des Atoms auf der Oberfläche ist und  $T$  die absolute Temperatur der Wand. Die Konstante  $\tau_0$  ( $\approx 10^{-12}$  s) ist eine Zeit in der Größenordnung der Schwingungsperiode des Atoms auf der Oberfläche, welches der Haftdauer bei unendlich hoher Temperatur entspricht. Während der Adsorption kann das magnetische Moment eines Elektronen- oder Kern-Spins mit den lokalen Magnetfeldern der Oberfläche wechselwirken, die aufgrund der Relativbewegung als zeitlich veränderlich erscheinen. Besitzt das FOURIER-Spektrum dieser magnetischen Wechselfelder Komponenten, die der Übergangsfrequenz des Elektronen- oder Kern-Spins entsprechen, so kann ein ZEEMAN-Übergang induziert werden.

Nach [Bou66] ergibt sich hieraus für den Elektronen-Spin  $\vec{S}$  eines Alkalimetall-Atoms (unter Vernachlässigung der Hyperfeinwechselwirkung) die Depolarisationsrate zu

$$\begin{aligned} \Gamma_W &= C j(\omega_L) \\ \text{mit } C &= \frac{2}{3} \frac{\tau_s}{\tau_s + \tau_v} b^2 \gamma_e^2 \tau_k \\ \text{und } j(\omega_L) &= \frac{1}{1 + \omega_L^2 \tau_k^2}. \end{aligned} \quad (3.6)$$

$\Gamma_W$  ergibt sich somit als Produkt einer Amplitude  $C$  und einem Faktor  $j(\omega_L)$  proportional zur spektralen Dichte der Korrelationsfunktion mit der Elektronen-LARMOR-Frequenz  $\omega_L$  und der Korrelationszeit  $\tau_k \approx \tau_s$ . Die Amplitude  $C$  ergibt sich aus der Stärke der lokalen Oberflächen-Magnetfelder  $b$ , dem Quotienten  $\frac{\tau_s}{\tau_s + \tau_v}$ , der die relative Verweildauer eines Atoms auf der Oberfläche wiedergibt ( $\tau_v = \frac{4V}{\bar{v}S}$  ist die Zeit des Atoms mit der mittleren Geschwindigkeit  $\bar{v}$  zwischen zwei Wandstößen in einem Behälter des Volumens  $V$  und der Oberfläche  $S$ ) und dem gyromagnetischen Verhältnis des Elektrons  $\gamma_e = \frac{ge\mu_B}{\hbar}$ . Der Faktor  $\frac{2}{3}$  berücksichtigt, dass nur Komponenten der lokalen Magnetfelder, die senkrecht zum äußeren Magnetfeld stehen, ZEEMAN-Übergänge induzieren können. Unter Berücksichtigung des Alkalimetall-Kernspins tritt wieder der Effekt der Polarisations-Speicherung durch den Kernspin auf, welches zu

einer zweiten Zeitkonstante in der Elektronen-Depolarisation führt [Bou66]. Bei unbehandelten Oberflächen, wie Kupfer oder DURAN-Glas, ist die Depolarisationswahrscheinlichkeit pro Wandstoß gleich eins, da die lokalen Magnetfelder stark variieren und die Haftdauer sehr groß ist. Demnach sind die Wände der Pumpzelle Polarisationsseen. Dies kann durch geeignete Wandbeschichtungen deutlich verringert werden, wobei diese Beschichtungen teilweise nicht temperaturresistent [Bou66] sind, oder durch Niederschlag des Alkalimetall-Dampfes zerstört werden können [Swe88]. Da zudem die mittlere Diffusionslänge  $\langle l \rangle = \sqrt{6D\tau_{abs}}$  der Rubidiumatome in der Zeit  $\tau_{abs}$  zwischen zwei Absorptionsprozessen im Bereich weniger Zehntel mm liegt<sup>1</sup>, ergibt sich auch bei Verwendung unbeschichteter Pumpzellen nur ein sehr kleiner Volumenbereich innerhalb der Pumpzelle, in dem aufgrund der Wandstöße die Rb-Polarisation auch bei hoher Photonendichte von 100 % merklich verschieden ist.

### 3.1.4. Ein einfaches Ratenmodell

Mit den im Vorangegangenen motivierten Raten wird nun ein einfaches Raten-Modell aufgestellt, mit dessen Hilfe die Dynamik der relevanten Prozesse in einer Spinaustausch-Apparatur verstanden werden kann. Die in der Literatur zugänglichen Werte aller Raten sind in Tab. A.6 aufgeführt. Vor allem in den älteren Arbeiten werden meist Wirkungsquerschnitte  $\sigma_{a-b}$  angegeben. Heute ist es üblich die Ratenkonstante  $k_{a-b}$  anzugeben, da bei den meisten Relaxationsmechanismen für die Gesamtrate  $\Gamma_{a-b} = k_{a-b} [B]$  gilt, wobei  $[B]$  die Teilchendichte des Stoßpartners ist (in Einheiten von  $\text{cm}^{-3}$ ). Die beiden Größen lassen sich mit Hilfe von

$$k_{a-b} = \langle \sigma_{a-b} v \rangle = \sigma_{a-b} \bar{v}_r = \sigma_{a-b} \sqrt{\frac{8kT}{\pi M}} \quad \text{mit} \quad M = \frac{m_a m_b}{m_a + m_b}$$

ineinander umrechnen, wobei  $\langle \sigma_{a-b} v \rangle$  einen Mittelwert über die Relativgeschwindigkeit darstellt und das zweite Gleichheitszeichen unter der Annahme einer MAXWELL-BOLTZMANN-Geschwindigkeitsverteilung der Gasatome gilt.

### Alkalimetall-Ratengleichung

Aus den in Abb. 3.1 gezeigten Pump- und Relaxations-Raten ( $\gamma^+$ ,  $\Gamma_{Alk}$ ) und der Vernachlässigung von Besetzungen des angeregten Zustand, ergibt sich für den Fall der Stoßabregung aus dem angeregten Zustand die Zeitentwicklung der Besetzungszahl  $N_2^a$  des  $S_{1/2}(m_J = +1/2)$ -Zustandes zu

$$\frac{dN_2^a}{dt} = \left( \gamma^+(\vec{r}) + \frac{\Gamma_{Alk}}{2} \right) N_1^a - \frac{\Gamma_{Alk}}{2} N_2^a. \quad (3.7)$$

Mit  $\frac{dP_{Alk}}{dt} = \frac{2}{N^a} \frac{dN_2^a}{dt}$  und  $P_{Alk} = \frac{N_2^a - N_1^a}{N_2^a + N_1^a} = \frac{N_2^a - N_1^a}{N^a}$  ergibt sich die Zeitabhängigkeit der Alkalimetall-Polarisation zu

$$\frac{dP_{Alk}}{dt} = \gamma^+(\vec{r}) - \left( \gamma^+(\vec{r}) + \Gamma_{Alk} \right) P_{Alk} \quad (3.8)$$

<sup>1</sup>Für die Abschätzung wurde die Absorption von  $7 \times 10^{19} \frac{\text{Photonen}}{\text{s}}$  (siehe Kap. 4.1) in einer  $70 \text{ cm}^3$  Pumpzelle mit einer Rb-Teilchenzahl von  $10^{14} \text{ cm}^{-3}$  angenommen und der Diffusionskoeffizient von Rb in He grob zu  $0,4 \frac{\text{cm}^2}{\text{s}}$  gesetzt [Fra76].

und als Lösung hierfür

$$P_{Alk}(\vec{r}, t) = \frac{\gamma^+(\vec{r})}{\gamma^+(\vec{r}) + \Gamma_{Alk}} \left( 1 - e^{-[\gamma^+(\vec{r}) + \Gamma_{Alk}]t} \right). \quad (3.9)$$

Berücksichtigt man zusätzlich, dass bei den Bedingungen, wie sie bei Apparaturen zur Erzeugung kernspinpolarisierter Edelgase vorherrschen, Spintemperatur-Gleichgewicht besteht, so ergibt sich für die Zeitkonstanten von Gl. 3.9 ein zusätzlicher Faktor  $S^{-1}$  (mit  $5,44 < S < 10,8$ ) der die Aufbauzeit verlangsamt, nicht aber die Gleichgewichts-Polarisation verändert [Wag94].

Die wichtigsten Anteile der Spinzerstörungsrate  $\Gamma_{Alk}$  sind für eine Pumpapparatur, wie sie im Rahmen dieser Arbeit aufgebaut wurde, die Relaxationen aufgrund von Alkalimetall-Alkalimetall-Stößen  $k_{Alk-Alk}$ , Stickstoff-Alkalimetall-Stößen  $k_{N_2-Alk}$ , Alkalimetall-Edelgas-Stößen  $k_{Alk-Edl}$  und natürlich die Spinaustausch-Stößen  $k_{SE}$ , woraus sich ergibt

$$\Gamma_{Alk} = k_{Alk-Alk} [Alk] + k_{N_2-Alk} [N_2] + k_{Alk-Edl} [Edl] + k_{SE} [Edl]. \quad (3.10)$$

Noch zu erwähnen ist, dass  $k_{Rb-Rb} = \kappa_a + \frac{\kappa_b}{1+(B_0/B_D)^2}$  nach neuesten Untersuchungen  $B_0$ -Feld abhängig ist [Kad98], mit  $B_D \approx 100$  mT. Da es mit der realisierten Apparatur nicht möglich war,  $B_0$ -Felder weit über 10 mT einzustellen, ist hier nur die „Niedrigfeldrate“  $\kappa_a + \kappa_b$  relevant.

### Edelgas-Ratengleichung

Aus den in Abb. 3.3 gezeigten Spintransfer- und Relaxationsraten ( $\gamma_{SE}, \Gamma_{Edl}$ ) ergibt sich für die Zeitentwicklung der Besetzungszahl  $N_+^e$  des Kernspin-Zustandes mit  $m_I = +\frac{1}{2}$  des Edelgases

$$\frac{dN_+^e}{dt} = \left( \frac{\Gamma_{Edl}}{2} + \gamma_{SE} \frac{\overline{N_2^a}}{N^a} \right) N_-^e - \left( \frac{\Gamma_{Edl}}{2} + \gamma_{SE} \frac{\overline{N_1^a}}{N^a} \right) N_+^e. \quad (3.11)$$

Ebenso ergibt sich mit  $\frac{dP_{Edl}}{dt} = \frac{2}{N^e} \frac{dN_+^e}{dt}$  und  $P_{Edl} = \frac{N_+^e - N_-^e}{N_+^e + N_-^e} = \frac{N_+^e - N_-^e}{N^e}$  für die zeitliche Entwicklung der Edelgas-Polarisation

$$\frac{dP_{Edl}}{dt} = \gamma_{SE} \overline{P_{Alk}} - (\gamma_{SE} + \Gamma_{Edl}) P_{Edl}, \quad (3.12)$$

wofür sich die Lösung

$$P_{Edl}(t) = \frac{\gamma_{SE}}{\gamma_{SE} + \Gamma_{Edl}} \overline{P_{Alk}} \left( 1 - e^{-[\gamma_{SE} + \Gamma_{Edl}]t} \right) \quad (3.13)$$

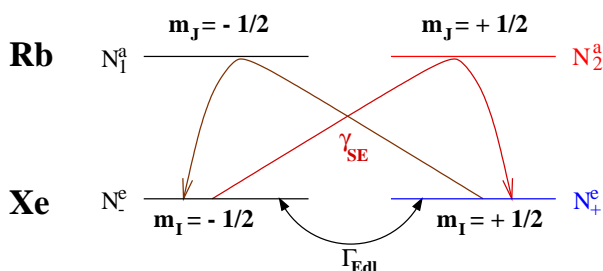


Abbildung 3.3.: Veranschaulichung der bei Spinaustausch-Stößen auftretenden Raten.



ergibt. Hierbei wurde eine mittlere Alkalimetall-Polarisation  $\overline{P_{Alk}}$  angesetzt, da durch Diffusion der Edelgas-Atome unterschiedliche Alkalimetall-Polarisationen in verschiedenen Bereichen ausgemittelt werden. Auch hier folgt wieder, als Bedingung für eine hohe Edelgas-Polarisation, dass die Spinaustausch-Rate wesentlich größer als die Spinzerstörungsrate sein muss ( $\gamma_{SE} \gg \Gamma_{Xe}$ ). Zudem ist die Edelgas-Polarisation direkt proportional zur mittleren Alkalimetall-Polarisation.

Die Zerstörungsrate der Kernspin-Polarisation

$$\Gamma_{Edl} = f(\Delta B(\vec{r}), D, V_{Wand}) \quad (3.14)$$

hängt im starken Maße von den genauen experimentellen Bedingungen ab. Die relevanten Relaxationsmechanismen sind die Diffusion in Magnetfeldgradienten (siehe Kap. 6.2.1), die Diffusion von Xenon in Bereiche niedriger Alkalimetall-Polarisation und die Depolarisation durch Wandstöße. Aus den in [Cat92] angegebenen Werten kann für  $^{129}\text{Xe}$  die Beziehung

$$\Gamma_{Xe} \approx 3 \times 10^{-3} \sqrt{\frac{p(Xe)}{1013 \text{ mbar}}} \text{ s}^{-1}$$

abgeleitet werden, wobei bei diesen Messungen neben 70 mbar Stickstoff kein weiteres Puffergas verwendet wurde. Bei Verwendung von  $^4\text{He}$  als zusätzliches Puffergas sollte dieser Wert eher kleiner werden, da die verringerte Diffusion die Depolarisationsmechanismen in ihren Wirkungen schwächt.

### 3.1.5. Bestimmung der Alkalimetall-Teilchendichte

Zur Bestimmung der Lichtabsorption innerhalb der Pumpzelle ist neben den bisher besprochenen Raten und Partialdrücken die Teilchendichte der Alkalimetall-Atome sehr wichtig. Für Rubidium und Kalium werden meist die von Killian bereits 1926 gemessenen Dampfdruck-Formeln

$$\begin{aligned} \log_{10} p_{Rb} &= 10,55 - \frac{4132}{T} \\ \log_{10} p_K &= 11,83 - \frac{4964}{T} \end{aligned} \quad (3.15)$$

verwendet, wobei die absolute Temperatur  $T$  in K und der Druck in  $\frac{\text{dyn}}{\text{cm}^2}$  gemessen wurden<sup>2</sup> [Kil26, Zen85]. In [Nes63] und [LB60] sind neuere Dampfdruck-Formeln angegeben, bei deren Verwendung sich bei gleichen Temperaturen die Teilchendichten mitunter deutlich unterscheiden.

Das Hauptproblem der Teilchendichte-Bestimmung ist aber, dass sich bei geringfügiger Oxidation des Alkalimetalles dessen Phasendiagramm erheblich verändert. So kann Rubidium bei einer gewissen Suboxidierung noch bis zu etwa  $-7^\circ\text{C}$  flüssig bleiben [Sim77] (siehe Abb. 3.4), wodurch sich dann auch die Dampfdruck-Kurve erheblich verändert. Derartige Effekte wurden in den verwendeten Pumpzellen beobachtet. So veränderte das Rubidium nach längerem Einsatz einer Rb-Befüllung seine Farbe von silbrig glänzend zu goldglänzend und blieb auch bei Raumtemperatur noch flüssig.

Um dennoch die benötigte Rb-Teilchendichte einstellen zu können, bedarf es entweder eines Teilchendichte-Monitors (vgl. Kap. 4.2), oder, wie im Rahmen dieser Arbeit verwirklicht, es kann durch eine *on-line* NMR-Messung die  $^{129}\text{Xe}$ -Polarisation als Funktion der Temperatur optimiert werden (Kap. 4.3).

<sup>2</sup>1 dyn =  $10^{-5}$  Newton  $\implies$  1  $\frac{\text{dyn}}{\text{cm}^2}$  =  $10^{-3}$  mbar

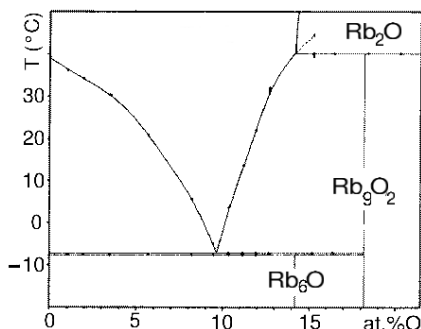


Abbildung 3.4.:  
Phasendiagramm Rb/Rb<sub>2</sub>O nach [Sim77]. Demnach verringert sich der Schmelzpunkt von Rubidium bis auf -7 °C bei einer gewissen Suboxidierung.

### 3.1.6. Ausfrieren von hyperpolarisiertem <sup>129</sup>Xe Gas zur Akkumulation

Die seit Anfang der 90er Jahre an der Universität PRINCETON durchgeführten Forschungen über die <sup>129</sup>Xe Spin-Relaxation in gefrorenem Xenon und die daraus gewonnene Erkenntnis, dass die  $T_1$ -Relaxationszeit im Xe-Eis mehr als zwei Stunden betragen kann, ermöglichte die erste Lungenbildgebung mittels hyperpolarisiertem <sup>129</sup>Xe-Gas an einer toten Maus. Damals wurde das Gas in Princeton mittels optischen Spinaustausch-Pumpens polarisiert und im gefrorenen Zustand nach New York transportiert, um dort an einem Kernspintomographen die MR-Bildgebung durchzuführen [Alb94].

Bereits in der ersten Veröffentlichung [Cat90] über die  $T_1$ -Relaxation von <sup>129</sup>Xe in Xe-Eis wurde eine starke Abhängigkeit von der Magnetfeldstärke  $B_{eis}$  am Ort des gefrorenen Xenons und dessen Temperatur  $T_{eis}$  gezeigt. Daraus ergab sich, dass bei Magnetfeldstärken  $B_{eis} \geq 100$  mT und Temperaturen von flüssigem Stickstoff ( $T_{eis} \approx 77$  K) die  $T_1$ -Relaxationszeit etwa 2,7 h beträgt. Diese lange Relaxationszeit ermöglicht es, <sup>129</sup>Xe-Gas in der Pumpzelle optisch zu polarisieren und nach dem Erreichen der Sättigungspolarisation in einer weiteren Glaszelle auszufrieren und zu akkumulieren. Bei noch niedrigeren Temperaturen können die  $T_1$ -Zeiten erheblich gesteigert werden, so wurden bei Temperaturen von flüssigem He ( $T_{eis} = 4,2$  K)  $T_1$ -Zeiten von bis zu  $\approx 50$  h erzielt [Gat93].

Als Ursachen für die <sup>129</sup>Xe-Kernspinrelaxation im Xe-Eis wurden unterschiedliche Mechanismen gefunden. So wird angenommen, dass in dem Bereich niedriger Magnetfeldstärken  $B_{eis} \leq 50$  mT, in der die  $T_1$ -Relaxationszeiten sehr kurz sind, der Polarisationstransfer auf <sup>131</sup>Xe den wesentlichsten Relaxationsmechanismus darstellt (Kreuzrelaxation). Bei diesen niedrigen Magnetfeldern kann durch die Kopplung des elektrischen Quadrupol-Momentes des  $I = \frac{3}{2}$  Kerns von <sup>131</sup>Xe an die elektrischen Feldgradienten in der Umgebung von Kristallgrenzen die Energieaufspaltung der <sup>131</sup>Xe-Unterniveaus in die Größenordnung der ZEEMAN-Aufspaltung von <sup>129</sup>Xe gelangen, welches eine schnelle Kreuzrelaxation erlaubt. Aufgrund der kurzen  $T_1$ -Zeit der <sup>131</sup>Xe-Polarisation ist demnach dieser Transfer der Spinausrichtung ein effektiver Relaxationsmechanismus für hyperpolarisiertes <sup>129</sup>Xe-Eis.

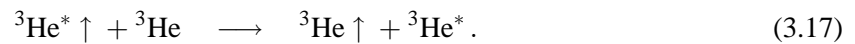
Durch neuere Rechnungen [Fit99] wurde bestätigt, dass für Magnetfeldstärken  $50 \text{ mT} \leq B_{eis} \leq 5 \text{ T}$  und für Temperaturen  $20 \text{ K} \leq T_{eis} \leq 120 \text{ K}$  die beobachteten  $T_1$ -Zeiten gut mit Hilfe der Spin-Flip RAMAN-Streuung von Phononen erklärt werden kann. In diesem Bereich dominiert die durch Phononen induzierte Spin-Rotations-Wechselwirkung

$$v = c_K \vec{I} \cdot \vec{N} \quad (3.16)$$

zwischen dem Kernspin  $\vec{I}$  und dem Drehimpuls  $\vec{N}$ , entsprechend einer Rotation eines <sup>129</sup>Xe-Atoms um seinen nächsten Nachbarn und  $c_K$  die entsprechende Spin-Rotations-Wechselwirkungskonstante ist.

### 3.2. Hyperpolarisierung durch optisches Pumpen des metastabilen Zustandes

Für  ${}^3\text{He}$  wurde bereits in den 60er Jahren eine weitere Methode entwickelt den Kernspin hoch zu polarisieren [Col63]. Hierzu wird in einer Gasentladung der Kernspin eines metastabilen Zustandes von  ${}^3\text{Helium}$  ( ${}^3\text{He}^*$ ) durch selektive Anregung von Hyperfeinübergängen im Magnetfeld mit Hilfe von Laserlicht hoch polarisiert ( ${}^3\text{He}^* \uparrow$ ). Bei so genannten metastabilen Austauschstößen (*engl.*: metastability exchange collisions) wird die Kernspin-Polarisation aus dem angeregten Zustand  ${}^3\text{He}^* \uparrow$  durch Stoß mit einem nicht angeregtem Atom in den Grundzustand übergeführt



Der Wirkungsquerschnitt für derartige Spinaustausch-Prozesse ist sehr groß, da es sich um einen resonanten Energietransfer handelt. Bei  ${}^3\text{He}$  bleibt die Ausrichtung des Kernspins nahezu vollständig erhalten.

#### Charakterisierung der angeregten Zustände von He und Xe

Für Helium ergeben sich bekanntermaßen die zwei getrennten Termschemata des Singulett- (Parahelium) und Triplett-Zustandes (Orthohelium), deren Elektronenkonfiguration mit

$$n^{2S+1}L_J \quad (3.18)$$

gekennzeichnet werden, wobei  $n$  die Hauptquantenzahl des angeregten Elektrons bezeichnet,  $S$  den Gesamtspin der beiden Elektronen ( $S = 0, 1$ ),  $L$  den Drehimpuls des angeregten Elektrons und  $J$  den Gesamtdrehimpuls. Der Grundzustand wird demnach mit  $1^1S_0$  gekennzeichnet. Aus den bekannten Auswahlregeln für optische Übergänge ergibt sich, dass sowohl der erste angeregte Zustand des Singulett-Systems  $2^1S_0$  (Übergang von  $J' = 0$  nach  $J = 0$  verboten), als auch der des Triplett-Zustandes  $2^3S_1$  (Übergang zwischen Singulett- und Triplett-Zustand verboten) metastabil sind.

Für die restlichen Edelgase mit einer abgeschlossenen  $p$ -Schale ( $= p^6$ -Konfiguration) im Grundzustand muss nach Anregung eines Elektrons zusätzlich die Konfiguration der Rumpf-Elektronen angegeben werden ( $S, L, j$ ). Die sich ergebende Notierung lautet [Sob79]

$${}^{2S+1}L_j nl [K]_J, \quad (3.19)$$

wobei  $\vec{L}$  der Drehimpuls,  $\vec{S}$  der Spin und  $\vec{j} = \vec{L} + \vec{S}$  der Gesamtdrehimpuls der Rumpfelektronen ist.  $n$  und  $l$  geben die Haupt- und Drehimpuls-Quantenzahlen des angeregten Elektrons an.  $\vec{K} = \vec{j} + \vec{l}$  ist der resultierende Drehimpuls von der Kopplung des Rumpf-Elektronen-Drehimpulses und Bahndrehimpuls des angeregten Elektrons, welcher letztlich noch mit dem Spin des angeregten Elektrons zum Gesamtdrehimpuls  $\vec{J} = \vec{K} \pm \frac{1}{2}$  wechselwirkt. Der Grundzustand wird wieder mit  $n^1S_0$  bezeichnet, da auch hier die Edelgaskonfiguration keinen Hüll-Drehimpuls besitzt (vgl. Abb. 3.5). Für optische Übergänge gilt ebenso wie für Alkalimetall-Atome nach Gl. 2.4  $\Delta J = 0, \pm 1$  ohne  $J' = 0 \rightarrow J = 0$ . Demnach ergeben sich auch für diese Edelgase im ersten angeregten  $s$ -Zustand zwei metastabile Niveaus mit  $J = 0$  und

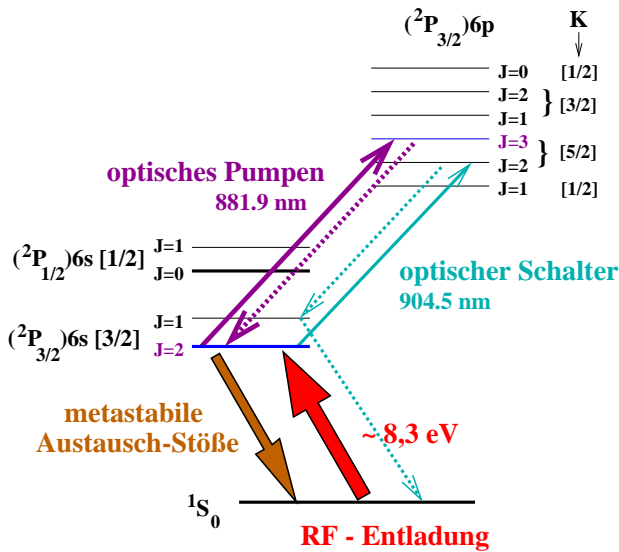


Abbildung 3.5.:

Termschema der ersten angeregten Zustände von Xenon. Mittels einer Hochfrequenz-Entladung kann ein Elektron des Xenon-Atoms aus dem  $1S_0$ -Grundzustand in angeregte Zustände angehoben werden. Notation siehe Gl. 3.19.

$J = 2$ .

Für  $^3\text{He}$  und  $^{129}\text{Xe}$  mit einem Kernspin  $I = \frac{1}{2}$  muss beachtet werden, dass sich jeder Zustand in zwei Unterniveaus mit  $\vec{F} = \vec{J} \pm \frac{1}{2}$  aufspaltet und im schwachen Feld zusätzlich für optische Übergänge die Auswahlregeln  $\Delta F = 0, \pm 1$  und  $\Delta m_F = 0, \pm 1$  gelten.

### Erzeugung des metastabilen Zustandes

Die Erzeugung der Gasentladung für das Bevölkern des metastabilen Zustandes wird in Veröffentlichungen meist nur nebensächlich behandelt. Meist werden elektrodenlose Induktionsschleifen um die Zelle gelegt und mit Hochfrequenz die Entladung gezündet. Sehr wichtig ist die Reinheit der Zellen, in denen die Entladung gezündet wird, da durch Stöße mit Fremdatomen die Relaxation des metastabilen Zustandes erheblich vergrößert wird. Da Entladungen Verunreinigungen aus den Zellwänden lösen, müssen solche Entladungszellen vor dem Betrieb des optischen Pumpens mehrmals gezündet und das Gas abgepumpt werden, um die Oberflächen zu reinigen [Col63]. Ein weiteres Problem stellt der maximal verwendbare Gasdruck von typischer Weise  $p_{tot} < 10 \text{ mbar}$ . Der Grund, warum bei höheren Drücken die maximal erzielbare Kernspin-Polarisation absinkt, wird momentan in der Formation von Molekülen aus einem metastabilen und einem Grundniveau-Atom vermutet [Cou01]. Das Verhältnis der Besetzungsdichten des metastabilen  $2^3S_1$ -Zustandes zum Grundzustand von  $^3\text{He}$  wird in der Größenordnung  $10^{-6}$  angegeben [Nac85].

### Kernspin-Polarisierung des metastabilen Zustandes

Bei  $^3\text{He}$  wird der metastabile Triplett-Zustand  $2^3S_1$  in einen der  $2^3P_{0,1,2}$  Zustände mittels Laserlicht der Wellenlänge 1083 nm angeregt. Aus den Hyperfein-Niveau-Aufspaltungen ergeben sich hierfür neun mögliche Übergänge, die mit  $C_1$  bis  $C_9$  durchnummeriert werden, wobei  $C_1$  die kleinste und  $C_9$  die größte Frequenz besitzt. Wird nun selektiv einer dieser Übergänge in einem schwachen äußeren Magnetfeld mit zirkular polarisiertem Licht angeregt (meist wird die  $C_8$ -( $2^3S_1, F = 1/2 \rightarrow 2^3P_0$ ) oder  $C_9$ -Linie ( $2^3S_1, F = 3/2 \rightarrow 2^3P_0$ ) gepumpt), so ergibt sich aus der Kopplung des Lichtfeldes an die unterschiedlichen magnetischen Unterzustände eine komplizierte Mischung aus Entvölkerungs- und

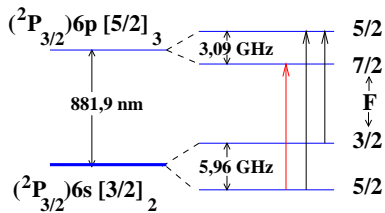


Abbildung 3.6.:

Hyperfine-Niveaus der beiden angeregten Zustände  $6s [3/2]_2$  und  $6p [5/2]_3$  von  $^{129}\text{Xe}$  und die in einem schwachen äußeren Magnetfeld optisch erlaubten Übergänge.

Bevölkerungs-Pumpen, wie es in [Nac85] ausgeführt ist. Daraus resultiert eine Ungleichbesetzung der magnetischen Unterniveaus des  $2^3S_1$ -Zustandes, die der Spintemperatur-Verteilung gehorcht (siehe S. 26).

Für  $^{129}\text{Xe}$  ist das Termschema in Abb. 3.5 gezeigt. Bereits 1977 wurde mittels Entladungslampen der metastabile  $6s [3/2]_2$ -Zustand optisch gepumpt [LS77] und Wirkungsquerschnitte für metastabile Austausch-Stöße ermittelt. Kernspin-Polarisation des Grundzustandes konnte jedoch weder damals noch bei [Nac96], wo mittels eines Ti:Sa-Lasers selektiv Hyperfein-Übergänge gepumpt wurden, nachgewiesen werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurde überlegt einen „geschlossenen“ Übergang anzuregen, so dass das Atom lediglich wieder in den Ausgangszustand zurück relaxieren kann. Hierfür ergibt sich aus dem Termschema mit der Auswahlregel  $\Delta J = 0, \pm 1$  der Übergang von  $6s [3/2]_2$  nach  $6p [5/2]_3$  als die einzige Möglichkeit. Um jedoch noch gezielt die magnetischen Unterniveaus anregen zu können, müssen zudem die Übergänge der Hyperfein-Niveaus betrachtet werden. Aus Abb. 3.6 ist ersichtlich, dass aufgrund der Auswahlregel  $\Delta F = \pm 1$  hier nur der Übergang von  $F = 5/2$  nach  $F' = 7/2$  einen „geschlossenen“ Übergang darstellt. Demnach ergibt sich für ein Atom in einem schwachen äußeren Magnetfeld für  $\sigma^+$ -Licht ein Pumpschema der magnetischen Unterniveaus wie in Abb. 3.7 gezeigt. Hier wurde die Zeeman-Aufspaltung vernachlässigt, da die daraus resultierenden Wellenlängen-Änderungen für die einzelnen Übergänge innerhalb der Doppler-Verbreiterung von etwa 0,4 GHz bei  $\approx 100^\circ\text{C}$  (vgl. Gl. 2.10) liegt. Je nach Relaxation zwischen den einzelnen Unterniveaus im  $6s$ -Zustand, kann demnach wieder eine Verteilung im Spintemperatur-Gleichgewicht mit bevorzugter Bevölkerung des  $m_F = 5/2$  Zustandes erzielt werden.

### Überführung der Kernspin-Polarisation in den Grundzustand

Eine durch optisches Pumpen erzeugte Nichtgleichverteilung der Besetzung von Unterniveaus des metastabilen Zustandes kann durch Austauschstöße des metastabilen Zustandes mit einem Grundzustands-Atom in eine Kernspin-Polarisation des Grundzustandes überführt werden wie in Gl. 3.17 angedeutet.

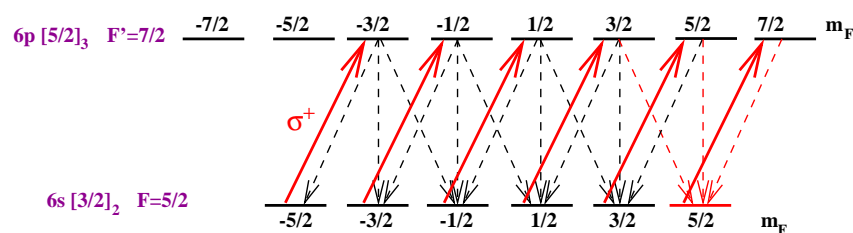


Abbildung 3.7.:

Pumpschema des „geschlossenen“ Überganges von  $6s [3/2]_2$   $F = 5/2$  nach  $6p [5/2]_3$   $F' = 7/2$  in  $^{129}\text{Xe}$ . Bei der Anregung mit  $\sigma^+$ -Licht werden die magnetischen Unterniveaus mit positiven  $m_F$  höher besetzt als diejenigen mit negativem  $m_F$ .

Dafür ist es jedoch notwendig, dass die Kernspin-Polarisation während des Stoßes, in dem die Elektronen ihren Zustand austauschen, nicht beeinflusst wird. Bei dem leichten Helium ist die Spin-Bahn-Kopplung sehr gering, weshalb in Stößen translatorische Drehimpulse nur schwach an den Kernspin an koppeln können. Beim metastabilen Xe mit der hohen Ordnungszahl  $Z = 54$  im  $^2P_{3/2}6s[3/2]_2$ -Zustand dagegen ist das angeregte Elektron im  $s$ -Zustand ( $l = 0$ ), wohingegen die Rumpf-Elektronen einen  $P$ -Zustand bilden ( $L = 1$ ). Aufgrund der starken Polarisierbarkeit und der großen Aufenthaltswahrscheinlichkeit am Kernort dieser Rumpf-Elektronen, können Drehmomente, verursacht während eines Stoßes, stark an den Kernspin koppeln. Dies wird als Ursache angesehen, warum bei dem schweren Edelgas Xe bisher kein Übertrag von Kernspin-Polarisation aus dem metastabilen Zustand in den Grundzustand durch Austauschstöße beobachtet wurde.

Sollte es jedoch möglich sein den polarisierten metastabilen Zustand ohne Stöße in den Grundzustand derart zu überführen, dass die Nichtgleichverteilung der magnetischen Unterebenen erhalten bleibt, so müsste eine Kernspin-Polarisation im Grundzustand erzielbar sein. Hierfür könnte die Anregung eines nicht „geschlossenen“ Überganges aus dem metastabilen Grundzustand dienen, wie in Abb. 3.5 als „optischer Schalter“ gekennzeichnet. Auch wenn dadurch viele Übergangskanäle in den Grundzustand geöffnet werden, sollte dennoch aufgrund der unterschiedlichen Übergangswahrscheinlichkeiten eine Ungleichbesetzung des Grundzustandes erzielbar sein.