

Erzeugung höchster
 ${}^3\vec{\text{He}}$ Kernspinpolarisation durch
metastabiles optisches Pumpen

Dissertation
zur Erlangung des Grades
„Doktor der Naturwissenschaften“
am Fachbereich Physik
der Johannes Gutenberg-Universität
in Mainz

Michael Wolf
geboren in Frankfurt / Main

Mainz, im August 2004

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theorie des Metastabilen Optischen Pumpens	9
2.1	Qualitative Beschreibung	9
2.2	Kinetik des optischen Pumpens von ^3He	10
2.2.1	Metastabile Austauschstöße	12
2.2.2	Absorptionsrate des Laserlichts für ruhende Atome	15
2.3	Relaxationsprozesse	20
2.3.1	Relaxation der Orientierung der metastabilen Atome	20
2.3.2	Collisional mixing der 2^3P -Zustände	20
2.3.3	Kernspinrelaxation	21
2.4	Einfluss der thermischen Bewegung der Atome	23
2.5	Bestimmung der mittleren Absorptionsrate	25
2.6	Die Gleichungen des Polarisationsprozesses	32
2.7	Das Spintemperaturgleichgewicht	33
2.8	Zusammenfassung	37
3	Optische Grundlagen	38
3.1	Optische Elemente	38
3.1.1	Das Stokes-Kalkül	38
3.1.2	Polarisationsstrahlteilerwürfel	43
3.1.3	$\lambda/4$ -Verzögerungselemente	44
3.1.4	Polarisationsstrahlteiler mit angekittetem $\lambda/4$ -Element	46
3.1.5	Pumpzellenfenster	52
3.2	Nichtparallele Einstrahlung zur Quantisierungsachse	56
3.3	Fluoreszenzlicht	58
4	Methoden zur Messung der Kernspinpolarisation	63
4.1	Polarisationsbestimmung mittels Fluoreszenzlichtanalyse	63
4.1.1	Polarisationsnachweis mit rotierendem $\lambda/4$	64
4.1.2	Polarisationsnachweis mit einem Strahlteilerwürfel	66
4.1.3	Polarisationsnachweis mit einem Flüssigkristallelement	68
4.2	Polarisationsbestimmung durch Lichtabsorption	70
4.3	Polarisationsbestimmung mittels Magnetometrie	73
4.4	Polarisationsbestimmung durch Neutronenabsorption	75
4.5	Vergleich der Polarisationsbestimmungen	77
5	Laser	78
5.1	Der LNA-Laser	78
5.2	Halbleiterlaser	80
5.3	Prinzip eines Faserlasers	82
5.4	Der Keopsys-Faserlaser	84

5.5	Der IPG-Faserlaser	86
5.6	Entwicklung eines Faserlasers mit der Universität Jena	92
6	Untersuchungen an ^3He-Zellen	96
6.1	Analyse der Absorption	96
6.1.1	Messung der Metastabilendichte	96
6.1.2	Messung des Sättigungsverhaltens	98
6.2	Analyse der Kernspinpolarisation	103
6.2.1	Einfluss des Parameters β	106
6.2.2	Einfluss einer falschen Zirkularkomponente	108
6.2.3	Einfluss des Druckes	111
6.2.4	Einfluss der Metastabilendichte und der Relaxationszeit	113
7	Der Mainzer Polarisator	118
7.1	Die Gasreinigung	118
7.2	Das optische Pumpvolumen	120
7.3	Aufbau der Kompressionseinheit	122
7.4	Bestimmung der Leistungsdaten des Polarisators	123
8	Schlussdiskussion und Ausblick	127
8.1	Der Status quo	127
8.2	Verbesserungen am Polarisator	128
8.3	Untersuchungen des metastabilen Pumpprozesses	129
A	Metastabile Austauschstöße	131
B	Abschätzung der dipolaren Relaxation	138

Abbildungsverzeichnis

1.1	^3He -MRT an einer gesunden Lunge und einer geschädigten Raucherlunge . . .	2
1.2	Schema eines Spinaustauschstoßes	4
1.3	Füllstation für polarisiertes ^3He	6
1.4	Abhängigkeit der Polarisierung vom eingestellten ^3He -Gasfluss	7
2.1	Illustration der $2\ ^3S_1 - 2\ ^3P$ -Übergänge von ^3He und ^4He	10
2.2	Schema des metastabilen optischen Pumpens von ^3He	12
2.3	Schema der Unterniveaus der $1\ ^1S_0$ -, $2\ ^3S_1$ - und $2\ ^3P$ -Zustände von ^3He	13
2.4	Darstellung der adiabatischen $^3\Sigma_g^+$ - und $^3\Sigma_u^+$ -Wechselwirkungspotentiale . . .	14
2.5	Illustration von Geschwindigkeitsklassen	23
2.6	Geschwindigkeitsänderung durch metastabilen Austauschstoß	24
2.7	Abhängigkeit des Parameters β von der Leistungsdichte	30
2.8	Sättigungspolarisation in Abhängigkeit des Pumpparameters	36
3.1	Prinzipieller Aufbau zum Nachweis des Polarisationszustandes	41
3.2	Polarisationsstrahlteilerwürfel	43
3.3	Einfluss einer von $\pi/2$ abweichenden Verzögerung auf die Zirkularpolarisation	45
3.4	Strahlführung durch eine optische Pumpzelle	46
3.5	Aufbau zur Charakterisierung eines Strahlteilerwürfels mit $\lambda/4$	47
3.6	Polarisationseigenschaften des Strahlteilers mit angekittetem $\lambda/4$	50
3.7	Verhalten des Strahlteilerwürfels mit $\lambda/4$ bei variabler Laserleistung	50
3.8	Illustration der thermisch induzierten Spannungsdoppelbrechung	52
3.9	Messkurven zur Charakterisierung der Pumpzellenfenster	54
3.10	Skizze eines zur Quantisierungsachse dejustierten Lichtstrahls	56
3.11	Schema einer optischen Pumpzelle	59
4.1	Skizze des optischen Polarisationsnachweises mit Pressluftrotator	65
4.2	Skizze des optischen Polarisationsnachweises mit einem Strahlteilerwürfel . .	67
4.3	Signal zweier Fotodioden für unterschiedliche Lichtintensitäten	67
4.4	Langzeitstabilität der Polarisationsmessung mit einem Strahlteilerwürfel . . .	68
4.5	Schematischer Aufbau des OPN mit Flüssigkristallelement	69
4.6	Schematischer Aufbau zur Polarisationsmessung durch Lichtabsorption	71
4.7	Einfluss des elliptisch polarisierten Laserlichts und der Leistungsdichte auf die Kernpolarisationsmessung	72
4.8	Schematischer Aufbau zur Polarisationsmessung mittels Magnetometrie	74
4.9	Vergleich der Messmethoden zur Kernpolarisationsbestimmung	76
5.1	Schematischer Aufbau des LNA-Festkörperlasers	79
5.2	Schematischer Aufbau eines Halbleiterlasers	80
5.3	Energieniveauschema eines Halbleiterlasers	81
5.4	Aufbau einer Doppelkern-Faser	83
5.5	Illustration von Meridional- und Helixstrahlen	84
5.6	Absorption des Pumplichts in einer Yb-dotierten Quarzdoppelkernfaser	85

5.7	Schematischer Aufbau des Keopsys-Faserlasers	86
5.8	Schematischer Aufbau des IPG-Faserlasers	87
5.9	Spektrale Profile der beiden IPG-Laser	88
5.10	Frequenzmodulation der IPG-Laserdiode	89
5.11	Schema zur inkohärenten Überlagerung zweier Laser	90
5.12	Gleichgewichtspolarisation durch inkohärente Überlagerung zweier Laser . . .	91
5.13	Experimenteller Aufbau eines Faserverstärkers	92
5.14	Leistungskennlinie eines 915 nm-Pumpdiodenarrays	93
5.15	Leistungskennlinie und Emissionsspektrum des Faserverstärkers	94
6.1	Experimenteller Aufbau zur Messung der Absorption	97
6.2	Simuliertes Absorptionsverhalten eines Single-frequency-Lasers	100
6.3	Erneute Auswertung der Absorptionskurven von [Nac01] und [Rud01]	101
6.4	Absorptionsverhalten von Lasern mit unterschiedlichen spektralen Profilen . .	102
6.5	Experimenteller Aufbau zum Polarisieren von ^3He in einer Pumpzelle	103
6.6	Aufpolarisationskurve	104
6.7	Einfluss des Parameters β auf die Gleichgewichtspolarisation	107
6.8	Abhängigkeit der Kernspinpolarisation von der Laserleistung	109
6.9	Einfluss des zirkularen Lichtpolarisationsgrades auf die Kernspinpolarisation .	110
6.10	Einfluss des Druckes auf die Gleichgewichtspolarisation	112
6.11	Korrelation von Metastabilendichte und Relaxationszeit	115
6.12	Einfluss von Metastabilendichte und Relaxationszeit auf die Polarisation . . .	117
7.1	Schematischer Aufbau des Polarisators	119
7.2	Laserstrahlführung für zwei Laser im Bereich der optischen Pumpzellen . . .	121
7.3	Aufpolarisationskurve für Zelle #5	123
7.4	Skizze des Kompressors	124
7.5	Abhängigkeit der Polarisation vom Druck und der Zykluszeit	124
7.6	Abhängigkeit der Polarisation vom eingestellten ^3He -Gasfluss	125

Tabellenverzeichnis

2.1	Übergangsmatrixelemente der $2^3S - 2^3P$ -Hyperfeinübergänge in ^3He	17
2.2	Relative Energielagen und Intensitäten der $2^3S_1 - 2^3P$ -Übergänge	17
2.3	Alternative Darstellung der Übergangsmatrixelemente T_{ij} für C_8 und C_9 . . .	18
2.4	Abhängigkeit des Parameters β von der Leistungsdichte	31
3.1	Abhängigkeit der mittleren Weglänge	61
7.1	Gleichgewichts- und Betriebspolarisation in den Pumpzellen	122
A.1	Übergangsstärken für metastabile Spinaustauschstöße	135

Zusammenfassung

Die Bereitstellung höchster ^3He -Kernspinpolarisation ist für zahlreiche Anwendungen in der Kern- und Neutronenphysik, der Materialforschung, der Biophysik oder der medizinischen Magnetresonanztomografie essenziell.

In dieser Arbeit wird zum Erreichen hoher Kernspinpolarisationen die Methode des metastabilen optischen Pumpens benutzt. Das Verfahren beruht auf dem Übertrag des Drehimpulses absorbierter Photonen auf das hierbei angeregte Valenzelektron, welches durch Hyperfeinkopplung den Drehimpuls weiter auf den ^3He -Kern transferiert. Da der Polarisationsprozess nur bei Drücken von ca. 1 mbar effizient funktioniert, für die meisten Anwendungen aber polarisiertes ^3He bei einem Druck von ≥ 1 bar benötigt wird, muss das Gas nach der Aufpolarisation komprimiert werden.

In unserer Arbeitsgruppe steht eine Maschine („Polarisator“) zur Verfügung, die das Gas polarisiert und anschließend komprimiert. Ziel dieser Dissertation ist, einerseits die Leistungsfähigkeit des Polarisators bezüglich Maximalpolarisation und Gasfluss zu verbessern und andererseits den metastabilen Pumpprozess selbst genauer zu untersuchen.

Durch die Verwendung neuer Laser auf Basis der Fasertechnologie sowie einer systematischen Optimierung der optischen Komponenten konnten in abgeschlossenen Pumpzellen Rekord-Polarisationsgrade von $91 \pm 2\%$ erzielt werden.

Mit der Implementierung neuer Optiken und Laser am Mainzer Polarisator konnte die Leistungscharakteristik entscheidend verbessert werden. So wurde die erreichbare Polarisation bei identischer Produktionsrate um 20 Prozentpunkte gesteigert. Zurzeit sind maximale Polarisationsgrade von mehr als 75% im optischen Pumpvolumen erreichbar. Eine am Mainzer Triga-Reaktor durchgeführte Polarisationsbestimmung ergab einen Wert von $72.7 \pm 0.7\%$. Dies veranschaulicht die geringen Polarisationsverluste infolge der Gaskompression, des Transports und einer Lagerung über mehrere Stunden.

Zur Dynamik der geschwindigkeitsverändernden Stöße sowie zur Bestimmung der mittleren Photonen-Absorptionsrate wurde ein Modell entwickelt, welches auch experimentell bestätigt wurde. Damit konnte erstmalig das gemessene Absorptionsverhalten einer spektral schmalbandigen Laserdiode korrekt beschrieben werden.

Zudem stimmen die an so genannten abgeschlossenen Pumpzellen gemessenen extrem hohen Polarisationswerte mit theoretischen Vorhersagen überein, sofern der Druck im optischen Pumpvolumen geringer als 1 mbar ist und das ^3He nicht durch Fremdgase verunreinigt ist. Bei derartigen Pumpzellen ist die gemessene Abhängigkeit der Polarisation von Laserleistung, Metastabilendichte und falscher Zirkularkomponente mit der Theorie kompatibel.

Variablendeklaration

A	Hyperfeinkonstante, Pumpparameter
A_i	Bezeichnung der 2^3S_1 -Niveaus
A_N	numerische Apertur
a	Radius eines Faserkerns
a_i	Besetzungszahl der 2^3S_1 -Niveaus
B	Magnetfeldstärke
B_i	Bezeichnung der 2^3P -Niveaus
b_i	Besetzungszahl der 2^3P -Niveaus
C	3. Komponente des Stokes-Vektors
c	Lichtgeschwindigkeit
E	Energie, elektr. Feldstärke, Matrix zur Beschreibung metastab. Austauschstöße
F	Gesamtdrehimpuls, Matrix zur Beschreibung metastab. Austauschstöße
f	Oszillatorenstärke, Fluss
G_i	Bezeichnung der 1^1S_0 -Niveaus
g_i	Besetzungszahl der 1^1S_0 -Niveaus
$\hbar$	Plancksches Wirkungsquantum
I	Kernspin, Intensität, 1. Komponente des Stokes-Vektors
J	Hüllendrehimpuls, Leistungsdichte
j	spektrale Leistungsdichte
k	Boltzmann-Konstante, Verzögerungsordnung eines Polarisationselements
L	Bahndrehimpuls, Länge
M	2. Komponente des Stokes-Vektors
m	Masse
m_e	Elektronenmasse
m_{He}	Masse eines ^3He -Atoms
n	Teilchendichte, Brechungsindex
n_g	Teilchendichte der Grundzustandsatome
n_m	Teilchendichte der 2^3S_1 -Atome
n_p	Teilchendichte der 2^3P -Atome
$\mathcal{O}$	Opazität eines Spinfilters
P	Kernspinpolarisation, Lichtpolarisation, Leistung
P_{zir}	zirkulare Lichtpolarisation
$[P]$	Müller-Darstellung eines optischen Polarisators
p	Druck
$[R]$	Drehmatrix
S	Fläche, 4. Komponente des Stokes-Vektors
T	Temperatur, Transmissionskoeffizient
T_{ij}	2^3S - 2^3P -Übergangsmatrixelemente
T_e	metastab. Austauschzeit eines 1^1S_0 -Atoms mit einem 2^3S_1 -Atom
T_1, T_r	longitudinale Relaxationszeit
V	Volumen, Stokes-Vektor, Faserparameter

$[V]$	Müller-Darstellung eines Verzögerungselements
v	Geschwindigkeit
x	Spintemperaturparameter
α	Feinstrukturkonstante, Druckeichfaktor, Drehwinkel
β	Anteil der mit dem Laserlicht wechselw. metastab. Atome, Drehwinkel
Γ	homogene Linienbreite
Γ_1	longitudinale Relaxationsrate
γ_{ij}	Photonenabsorptionsrate
γ_{abs}^0	absorbierte Photonenrate bei gegebener Metastabilendichte
Δ	Verzögerung eines optischen Polarisationselements
δ	Auslöschungskoeffizient eines Polarisators
ε	Intensitätsanteil der „falschen“ Zirkularpolarisation, Effizienz des OPN
ζ	$\pi/4$ -Winkelabweichung zwischen optischer Achse des Verzögerungselements und des Polarisators
η	Wandrelaxationskoeffizient, Auslöschungskoeffizient eines Polarisators
θ	Kippwinkel eines Verzögerungselements
κ	Intensitätsanteil der „richtigen“ Zirkularpolarisation
$\langle\Lambda\rangle$	mittlere Weglänge
Λ_B	Bragg-Periode
λ	Wellenlänge, Vektor zur Beschreibung metastab. Austauschstöße
μ	magnetisches Kernmoment von ^3He
μ_K	Kernmagneton
ξ	Konstante zur Berechnung der Absorptionsrate
ρ	Reflexionskoeffizient
σ_c	collisional mixing-Wirkungsquerschnitt
σ_{me}	metastab. Austausch-Wirkungsquerschnitt
σ_{tot}	Wirkungsquerschnitt bzgl. Stöße von 1^1S_0 - und 2^3S_1 -Atomen
ς	Spintemperaturparameter
τ	Lebensdauer des 2^3P -Niveaus
$1/\tau_{ij}$	Photonenabsorptionsrate
τ_{dep}	Relaxationszeit der Orientierung der 2^3P -Niveaus
τ_e	metastab. Austauschzeit eines 2^3S_1 -Atoms mit einem 1^1S_0 -Atom
τ_{HF}	Hyperfeinkopplungszeit von ^3He
τ_r	Relaxationszeit der Orientierung der metastabilen Atome
χ	Laserspezifische Proportionalitätskonstante, relative Abweichung eines Verzögerungselements von der Norm
ω_{ij}	Übergangsfrequenz 2^3S-2^3P
$\aleph$	Pumpparameter
$\daleth$	normierte Übergangswahrscheinlichkeit 2^3S-2^3P
$\beth$	Hilfsgröße zur kompakten Formulierung von T_{ij}

Konstanten

$A = 4.4931$ GHz	Hyperfeinkonstante des 2^3S_1 -Niveaus von ^3He
$c = 2.9979 \cdot 10^8$ m/s	Lichtgeschwindigkeit
$f = 0.5391$	Oszillatorenstärke des $2S$ - $2P$ -Übergangs von He
$\hbar = 1.0546 \cdot 10^{-34}$ Js	Plancksches Wirkungsquantum
$k = 1.3807 \cdot 10^{-23}$ J/K	Boltzmann-Konstante
$m_e = 9.1094 \cdot 10^{-31}$ kg	Elektronenmasse
$m_{\text{He}} = 5.0082 \cdot 10^{-27}$ kg	Masse eines ^3He -Atoms
$\alpha = 1/137.04$	Feinstrukturkonstante
$\Gamma/2\pi \approx 20$ MHz	homogene Linienbreite von ^3He bei 1.3 mbar Druck
$\mu = 1.0746 \cdot 10^{-26}$ J/T	magnetisches Kernmoment von ^3He
$\mu_K = 5.0508 \cdot 10^{-27}$ J/T	Kernmagneton
$\xi = 9.803 \cdot 10^{20}$ m ² /Ws ³	Konstante zur Berechnung der Absorptionsrate bei 1.3 mbar Druck
$\sigma_c = 6.8 \cdot 10^{-19}$ m ²	collisional mixing-Wirkungsquerschnitt
$\sigma_{me} = 7.6 \cdot 10^{-20}$ m ²	metastab. Austausch-Wirkungsquerschnitt
$\sigma_{tot} \cong 1.2 \cdot 10^{-18}$ m ²	Wirkungsquerschnitt bzgl. Stöße von 1^1S_0 - und 2^3S_1 -Atomen
$\tau = 97.8$ ns	Lebensdauer des 2^3P -Niveaus von ^3He
$\tau_{HF} = 2.23 \cdot 10^{-10}$ s	Hyperfeinkopplungszeit des 2^3S_1 -Niveaus von ^3He
$\omega_{ij}/2\pi \approx 276.80$ THz	2^3S - 2^3P -Übergangsfrequenz von ^3He
$\mathfrak{I} = 0.5603$	Hilfsgröße zur kompakten Formulierung von T_{ij}

1 Einleitung

Anwendungen

Kernspinpolarisierte Edelgase stoßen in den letzten Jahren auf ein gesteigertes Interesse in verschiedenen Teilgebieten der Physik. Besonders geeignet sind die beiden stabilen Isotope ^3He und ^{129}Xe mit Kernspin $I = 1/2$. Durch Ausrichtung (Polarisation) ihrer Kernspins lässt sich eine makroskopische Magnetisierung erreichen, die einen Einsatz dieser Gase in der physikalischen Grundlagenforschung, der Materialwissenschaft sowie der medizinischen Magnetresonanztomografie ermöglicht. In der physikalischen Grundlagenforschung wird polarisiertes ^3He ($^3\vec{\text{He}}$) beispielsweise in kernphysikalischen Experimenten als polarisiertes Neutronentarget benutzt, um durch Streuung polarisierter Elektronen fundamentale Eigenschaften des Neutrons - wie Spinstrukturfunktion [Ant93], den magnetischen Formfaktor [Xu00] oder den elektrischen Formfaktor [Mey94, Roh99, Ber03] - zu bestimmen. Darüber hinaus ist die Untersuchung der ^3He -Kernstruktur besonders interessant, da der ^3He -Kern als das nach dem Deuteron einfachste Mehrnukleonensystem theoretisch noch beschreibbar ist. An Reaktoren und Spallationsquellen wird $^3\vec{\text{He}}$ als Neutronen-Spinfilter eingesetzt [Sur97, Hei02, Che03]. Der Neutronen-Spinfilter basiert auf der Eigenschaft, dass aufgrund unterschiedlicher Absorptionsquerschnitte Neutronen beim Durchgang durch $^3\vec{\text{He}}$ nach ihren beiden Spinzuständen selektiert werden. Derart polarisierte Neutronenstrahlen können in der Festkörperphysik zur Analyse magnetischer Strukturen eingesetzt werden [Bra03].

Eine andere Anwendung polarisierter Gase in der Grundlagenforschung ist der Bau von Edelgasmasern [Bea00]. Außerdem können polarisierte Edelgase ihre Magnetisierung mittels des so genannten Kern-Overhauser-Effekts auf die Kernspins anderer Atome oder Moleküle übertragen. Mit flüssigem polarisiertem ^{129}Xe konnten die Kernspins von ^1H und ^{13}C in Chloroform (CHCl_3) polarisiert werden. Dies ist für die Forschung an so genannten NMR-Quanten-Computern bedeutsam, weil die polarisierten Kerne von Kohlenstoff und Wasserstoff in Chloroform-Molekülen als Quantenbits dienen und eine Ausrichtung der Kernspins für die Präparation kohärenter Zustände notwendig ist [Ver01]. In der Materialwissenschaft und Biophysik sind polarisierte Edelgase ein hilfreiches Werkzeug zur Untersuchung der Struktur von Mikroporen in porösen Materialien [Pie95, Nag01] sowie zur Strukturuntersuchung von Biomolekülen wie z.B. Proteinen [Rub01].

Neben diesen Anwendungen hat der Einsatz polarisierter Edelgase als Kontrastmittel für die Magnetresonanztomografie der Lunge besonderes Augenmerk gefunden [Alb94, Ebe96, Bac96, Kau96]. Im Tiermodell und am Menschen eröffnet die Bildgebung mit polarisierten Edelgasen neue nicht-invasive Methoden zur Diagnose von Schädigungen und zur Lungenfunktionsuntersuchung, weil sich neben der Abbildung von Spindichteverteilungen auch Möglichkeiten in der funktionellen Tomografie ergeben (siehe Abbildung 1.1). So kann bei der zeitaufgelösten Bildgebung der gesamte Inspirations- und Expirationszyklus der Lunge mit einer Zeitauflösung von bis zu ~ 30 ms verfolgt werden [Sch00]. Es ist

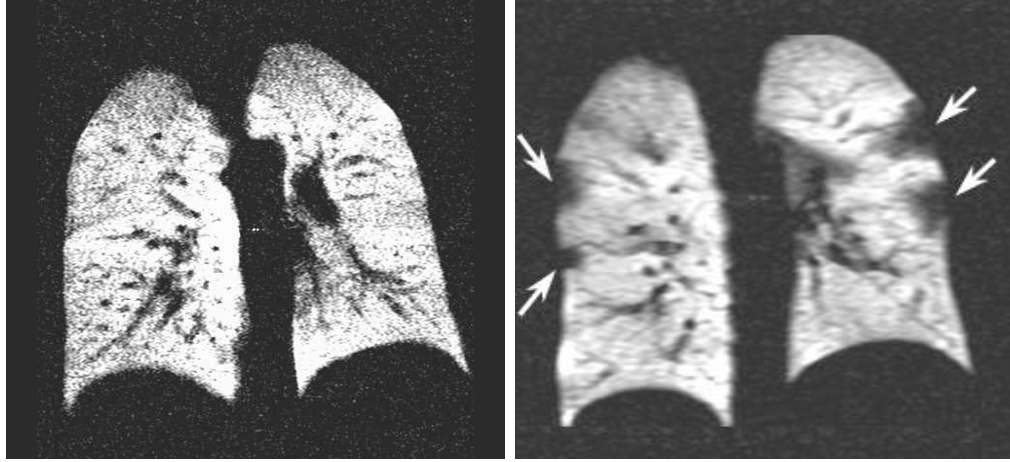
**Nichtraucher****Raucher**

Abbildung 1.1: Beispiel von ^3He -NMR-Tomografiebildern einer gesunden Lunge (links) und einer geschädigten Raucherlunge (rechts). Die Pfeile weisen auf Ventilationsdefekte hin [Sch99a].

zudem möglich, den Diffusionskoeffizienten von ^3He orts aufgelöst zu bestimmen [Sch99b], oder gar die primäre Lungenfunktion mit einer orts- und zeitaufgelösten Messung des Sauerstoffpartialdrucks zu untersuchen [Den99].

Begriff der Polarisation

Voraussetzung für sämtliche aufgezählte Anwendungen sind hohe Kernspinpolarisationen P_I . Die Polarisation P ist in allgemeiner Form durch die Formel

$$P \equiv \frac{1}{F \cdot \sum_{M_F} N(M_F)} \sum_{M_F} N(M_F) \cdot M_F \quad (1.1)$$

definiert, wo F den Drehimpuls, M_F die magnetische Quantenzahl und $N(M_F)$ die Besetzungszahl des entsprechenden Zeeman-Niveaus angibt. Demnach nennt man einen Zustand polarisiert, wenn die Summe aus magnetischer Quantenzahl multipliziert mit der Besetzungszahl der einzelnen Unterniveaus von null verschieden ist. Die in Gleichung (1.1) dargestellte Polarisation P bezieht sich auf die Besetzung der Zeeman-Sublevel bezüglich des Gesamtdrehimpulses F . Häufig wird jedoch die Kenntnis der Kernspinpolarisation P_I benötigt, die auf den Besetzungszahlen der jeweiligen magnetischen Kernspin-Quantenzahlen M_I basiert:

$$P_I \equiv \frac{1}{I \cdot \sum_{M_I} N(M_I)} \sum_{M_I} N(M_I) \cdot M_I \quad (1.2)$$

Bei gegebenem Hüllenspin J , Kernspin I sowie Gesamtdrehimpuls F lässt sich Gleichung (1.2) in einer Form darstellen, die der Kopplung von Hüllendrehimpuls und Kernspin zum Gesamtdrehimpuls Rechnung trägt:

$$P_I = \frac{F(F+1) + I(I+1) - J(J+1)}{2F^2(F+1)} \frac{\sum_{M_F} N(M_F) \cdot M_F}{\sum_{M_F} N(M_F)} \quad (1.3)$$

Damit erhält man beispielsweise für den 1^1S_0 ($F = 1/2$)-Grundzustand von ^3He aus Gleichung (1.3) die bekannte Beziehung für die Kernspinpolarisation

$$P_I = \frac{N^+ - N^-}{N^+ + N^-}, \quad (1.4)$$

wo N^+ (bzw. N^-) die Anzahl der Spins mit $M_F = +1/2$ (bzw. $M_F = -1/2$) darstellen. Da in der vorliegenden Arbeit beim Begriff Polarisation fast ausschließlich die Kernspinpolarisation gemeint ist, soll von jetzt, sofern nicht explizit anders vermerkt, $P \equiv P_I$ gelten.

Bei experimentellen Bedingungen von Temperaturen T um 300 K und Magnetfeldern B der Stärke von beispielsweise 1.5 T stellt sich eine thermische (Boltzmann-) Polarisation P_B von

$$P_B = \frac{\exp(\frac{2\mu B}{kT}) - 1}{\exp(\frac{2\mu B}{kT}) + 1} \approx \mathcal{O}(10^{-6}) \quad (1.5)$$

ein, wo μ das magnetische Kernmoment (^3He : $\mu = 1.074 \cdot 10^{-26}$ J/T) und $k = 1.381 \cdot 10^{-23}$ J/K die Boltzmann-Konstante ist. Erforderlich für die genannten Anwendungen ist jedoch eine so genannte *Hyperpolarisation* der Größenordnung 1, also viele Größenordnungen über dem thermischen Gleichgewicht. Um eine solche Hyperpolarisation zu erreichen, bietet sich *optisches Pumpen* an.

Historischer Abriss des optischen Pumpens

Unter optischem Pumpen versteht man die selektive Besetzung oder Entleerung eines atomaren oder molekularen Niveaus durch Wechselwirkung mit Photonen. Aus heutiger Sicht wurden die ersten Versuche zum optischen Pumpen bereits im Jahre 1924 von W. Hanle mit seiner wegweisenden Untersuchung über die magnetische Beeinflussung der Polarisation des Resonanzlichts durchgeführt [Han24]. Seitdem ist bekannt, dass die durch polarisiertes resonantes Licht *angeregten* atomaren Zustände ebenfalls polarisiert sind. Allerdings wurde in den folgenden beiden Jahrzehnten nicht weiter an der Beziehung zwischen polarisierten Atomen und Resonanzlicht geforscht. Erst im Jahre 1949 untersuchte A. Kastler intensiver die Eigenschaften der Wechselwirkung von Resonanzlicht mit Atomen ([Kas50], Nobelpreis 1966). Er wies darauf hin, dass die Absorption und Streuung von resonantem Licht zu einem starken Besetzungsungleichgewicht in den Grundzuständen der Atome führen könnte - vergleichbar mit der Polarisation in den angeregten Zuständen. Bereits 1952 wurde die Grundzustandspolarisation durch optisches Pumpen experimentell

von Brossel, Kastler und Winter [Bro52] sowie Hawkins und Dicke [Haw53] nachgewiesen. Mit dieser Entdeckung erfuhr das optische Pumpen große Aufmerksamkeit. Im Jahre 1956 postulierten E. M. Purcell und G. B. Field, dass bei binären Kollisionen von Wasserstoff- bzw. Alkali-Atomen der Elektronenspin auf den Kernspin übertragen werden kann [Pur56]. Beide suchten mit ihrer Theorie primär nach einem Erklärungsansatz für die Intensität der 21 cm-Linie in der Radioastronomie, sie lieferten aber einen wesentlichen Beitrag für die zum optischen Pumpen wichtigen Spinaustauschstöße. Die experimentelle Bestätigung

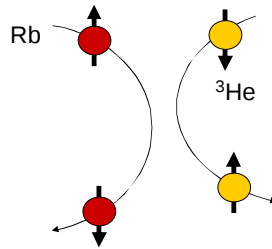
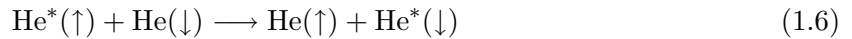


Abbildung 1.2: Schema eines Spinaustauschstoßes am Beispiel von Rb und ^3He . Bei der Kollision wird die elektronische Polarisation des Rb auf den Kernspin des ^3He übertragen, wobei der Gesamtdrehimpuls des binären Systems erhalten bleibt.

der Existenz der Spinaustauschstöße erfolgte um das Jahr 1958 an verschiedenen atomaren Systemen durch mehrere Gruppen [Deh58, Fra58a, Nov58]. Damit stand lange vor der Erfindung der Laserspektroskopie ein Instrumentarium zur Verfügung, welches eine präzise Vermessung der Hyperfeinstruktur von sehr vielen Atomen durch die selektive Besetzung von Hyperfeinniveaus mithilfe des optischen Pumpens ermöglichte. Im Jahre 1960 gelang es M. A. Bouchiat, T. R. Carver und C. M. Varnum, durch Polarisation des Elektronenspins von Rubidium, kernspinpolarisiertes ^3He zu erzeugen ([Bou60], vergleiche Abbildung 1.2). Der experimentelle Aufbau ist dabei bis heute nahezu unverändert geblieben: Bei Temperaturen um 150°C befinden sich einige bar ^3He -Gas in einem Glasbehälter, zusammen mit gesättigtem Rb-Dampf. Zum optischen Pumpen von Rubidium wird Licht der Wellenlänge 795 nm eingesetzt. Während eines binären Stoßes kommt es aufgrund der Kontaktwechselwirkung zum Übertrag des Elektronenspins eines im Grundzustand befindlichen Rb-Atoms auf den Kernspin eines ^3He -Atoms. Die Aufpolarisationsrate hängt dabei linear von der Dichte polarisierter Rb-Atome ab. Nach erfolgter Aufpolarisation wird das Rb auskondensiert und das polarisierte Gas kryogenisch extrahiert.

Etwa zur gleichen Zeit entdeckten F. D. Colegrove und P. A. Franken eine Methode zur (elektronischen) Polarisation des metastabilen $2\ ^3S_1$ -Zustandes von ^4He [Col60]. Durch eine schwache Gasentladung werden etwa 1 ppm der Grundzustandsatome bei einem Druck von rund 1 mbar in den metastabilen Zustand angeregt und durch resonantes Licht der Wellenlänge 1083 nm optisch gepumpt. Kurze Zeit nach der Entwicklung des metastabilen optischen Pumpens von ^4He wurden Experimente mit ^3He von G. K. Walters [Wal62] und F. D. Colegrove [Col63] durchgeführt. Sie entdeckten, dass durch das optische Pumpen des $2\ ^3S_1$ -Niveaus eine Ausrichtung der Kernspins im Grundzustand hervorgerufen wird. In den

darauffolgenden Jahren wurde der zugrunde liegende Mechanismus eingehend untersucht. Man erkannte schnell, dass so genannte *metastabile Austauschstöße* für den Polarisations-transfer in den Grundzustand verantwortlich sind (siehe Kapitel 2.2.1). Bei derartigen Stößen wird die Elektronenhülle eines angeregten metastabilen Atoms mit der eines Grundzustandsatoms ohne Beeinflussung der beiden Kernspins ausgetauscht [Col64, Gre64, Dup71, Dup73]. Wird das angeregte Atom mit ${}^3\text{He}^*$ bezeichnet, so lässt sich die dabei ablaufende Reaktion schematisch wie folgt darstellen:



Die Kernspinpolarisation bleibt aus verschiedenen Gründen nicht konstant (siehe Kapitel 2.3). Vielmehr zerfällt sie exponentiell mit einer Zeitkonstanten T_1 , die man als *longitudinale Relaxationszeit* bezeichnet, in den Gleichgewichtszustand (1.5). Den Kehrwert $\Gamma_1 = 1/T_1$ nennt man auch longitudinale Relaxationsrate. Im Allgemeinen liegt eine Summe einzelner Raten vor ($\Gamma_1 = \sum \Gamma_{1,i}$). Bei kernspinpolarisiertem ${}^3\text{He}$ lassen sich in speziellen Glasgefäßen in Abwesenheit der Gasentladung Speicherzeiten von weit über 100 Stunden erreichen [Hei95, Wol00, Ric02].

Die Gasentladung führt zu einer partiellen Wiederanregung bereits polarisierter Atome und trägt somit durch Abstrahlung zirkular polarisierten Fluoreszenzlichts einerseits und durch Relaxationsprozesse im angeregten Zustand andererseits zur Relaxation der Kernspinpolarisation bei. Dadurch wird je nach Helligkeit des Plasmas die T_1 -Zeit typischerweise auf ein bis zehn Minuten begrenzt. Die Polarisation des Fluoreszenzlichts lässt sich jedoch ausnutzen zur Bestimmung des Polarisationsgrades. Ende der sechziger Jahre bemerkten L. D. Schearer und F. Laloë einen Zusammenhang zwischen dem Grad der Polarisation des Fluoreszenzlichts der angeregten Zustände und der Kernspinpolarisation [Sch67, Lal68]. Wird nämlich ein Ensemble teilweise polarisierter Atome angeregt, so führt die Hyperfein-Kopplung nun umgekehrt zu einem Besetzungsungleichgewicht der m_F Sublevel des resultierenden Zustands. Das emittierte Fluoreszenzlicht ist dann teilweise zirkular polarisiert. Mittels eines so genannten *Optischen Polarisationsnachweises* (OPN) kann die Zirkularpolarisation des Fluoreszenzlichts gemessen werden. Unter Einberechnung eines druckabhängigen, die partielle Stoßrelaxation während der Lebensdauer des Zustands berücksichtigenden Eichfaktors, lässt sich dann die Kernspinpolarisation des ${}^3\text{He}$ -Ensembles berechnen. Die Druckabhängigkeit wurde von verschiedenen Gruppen untersucht und ist mit rund 2% Genauigkeit bekannt [Pin74, Big92, Lor93].

Sofern das Pumplicht die metastabilen Zustände nicht sättigt, erreicht man durch eine Erhöhung der Photonenrate eine Steigerung des nuklearen Polarisationsgrades sowie der Aufpolarisationsgeschwindigkeit. Allerdings standen bis etwa Mitte der achtziger Jahre weder für das metastabile optische Pumpen noch für das Spinaustauschpumpen leistungsstarke Lichtquellen bereit, sodass lediglich geringe Mengen spinpolarisierter Edelgase mit entsprechend geringer Polarisation erzeugt werden konnten. Durch die Entwicklung geeigneter Festkörperlaser änderte sich die Situation. Zunächst standen $\text{NaF}:\text{F}_2^{+*}$ -Farbzentrenlaser zur Verfügung, die über den Wellenlängenbereich von 1000 bis 1200 nm durchstimmbar waren und eine Ausgangsleistung von bis zu 100 mW besaßen [Eis83]. Mit

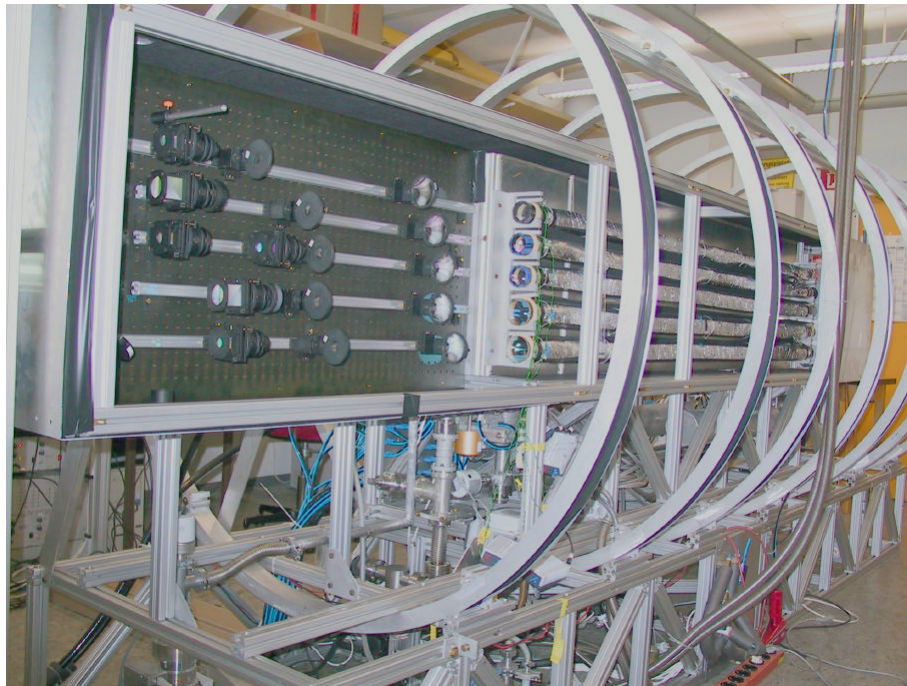


Abbildung 1.3: *Bild des Mainzer Polarisator- und Kompressorsystems.*

einem so genannten LNA-Kristall (Neodym dotiertes Lanthan-Magnesium-Hexaluminat, $\text{La}_{0.85}\text{Nd}_{0.15}\text{MgAl}_{11}\text{O}_{19}$) wurde Anfang der achtziger Jahre ein vielversprechendes Wirtskristall aus der YAG-Familie (Yttrium-Aluminium-Granat, $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$) gefunden, dessen Zentralwellenlänge mit 1082 nm sehr nahe an der gewünschten Wellenlänge liegt. Durch Pumpen des Laserkristalls mit einem Argon-Ionenlaser konnten anfangs resonante Leistungen von 300 mW erzeugt werden [Wer89]. Eine Leistungssteigerung auf etwa 5 W erbrachte der Einbau längerer Kristalle und der Einsatz von Krypton-Bogenlampen als Pumpquelle [Gen93, Roh94]. Ende der neunziger Jahre wurden Ytterbium-dotierte Faserverstärker erhältlich, die in einem Wellenlängenbereich von 1000 bis 1150 nm einsetzbar waren [Zel97]. Speziell für das optische Pumpen von He wurden kommerzielle Faserlaser entwickelt, die an das Dopplerprofil angepasst sind und eine Leistung bis zu 20 Watt liefern [Che97, Kro02, Tas03b]. Die rasante Laserentwicklung zeigt sich auch bei den Fortschritten des Spinaustausch-Pumpens mit Rubidium. Bis zum Ende der achtziger Jahre erreichte man durch den Einsatz von Farbstofflasern eine Leistung von einigen 100 mW bei der benötigten Wellenlänge 795 nm [Chu87]. Der Gebrauch von Ti:Saphir-Lasern erhöhte die Laserleistung auf 5 W [Lar91]. Mit der Entwicklung leistungsstarker Halbleiterlaser wurde die Leistung auf rund 20 bis 30 W pro Laserdiodenarray gesteigert. Durch den Betrieb in einem externen Resonator konnte die spektrale Breite dieser Laser von etwa 30 THz auf gut 100 GHz reduziert und in diesem eingegengten spektralen Bereich eine Leistung von rund 15 W pro Array erzielt werden [Cha03].

Die Methode des Spinaustausch-Pumpens hat den Vorteil, dass das Gas bereits beim

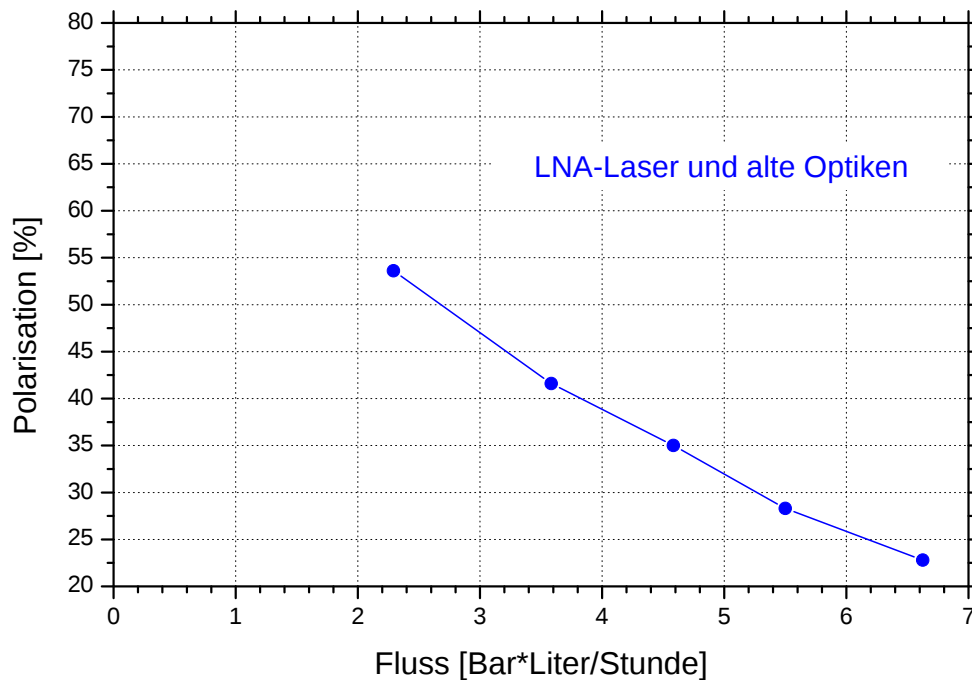


Abbildung 1.4: Erreichbare ^3He -Polarisation in Abhängigkeit vom eingestellten Gasfluss vor den Verbesserungen der Optiken und des Lasersystems.

gewünschten Enddruck aufmagnetisiert werden kann. Andererseits sind die Aufpolarisationsraten gegenüber dem metastabilen optischen Pumpen um etwa eine Größenordnung niedriger und die erreichbaren Endpolarisationen geringer. An der Universität Mainz wurde deshalb das Konzept des metastabilen optischen Pumpens realisiert. Allerdings funktioniert das metastabile optische Pumpen nicht mehr effizient bei Gasdrücken oberhalb weniger mbar, da die Dichte der $2\ ^3\text{S}_1$ -Atome zu gering und die Relaxationsprozesse zu schnell werden. Da für nahezu alle Anwendungen polarisiertes Gas bei einem Druck von ≥ 1 bar benötigt wird, erfordert die gewählte Polarisationsmethode eine Gaskompression um einen Faktor 1000 oder mehr unter Erhaltung der Kernmagnetisierung. Ein entsprechendes Kompressionssystem wurde an der Mainzer Universität entwickelt ([Bec92, Sur95, Ebe00], siehe Abbildung 1.3). Somit war man Anfang der neunziger Jahre in der Lage, Gasmengen der Größenordnung bar·liter auf 30% zu polarisieren [Eck92], was die eingangs genannten Anwendungsgebiete erst ermöglicht hat.

Notwendigkeit weiterer Verbesserungen

Zu Beginn meiner Dissertation dienten zwei LNA-Laser zum optischen Pumpen am Mainzer Polarisator. Mit diesem Lasersystem konnte ^3He mit einer Kernspinpolarisation von maximal 50% - 55% bei einer Produktionsrate von 2.5 bar·liter pro Stunde in ein Speichergefäß abgefüllt werden (siehe Abbildung 1.4).

Derartige Polarisationsgrade sind für Experimente in der Kern- bzw. Neutronenphysik unbefriedigend. Zum Beispiel ist in kernphysikalischen Streuexperimenten mit polarisierten Elektronen die zum Erreichen eines bestimmten statistischen Fehlers benötigte Messzeit umgekehrt proportional zur ^3He -Polarisation. Eine Verdopplung der Polarisation führt also bei gleicher Messdauer zu einer Reduzierung des statistischen Fehlers um den Faktor zwei! Beim Neutronen-Spinfilter besteht eine ähnliche Abhängigkeit der Messzeit von der Polarisation [Hei02]. Dies verdeutlicht, dass die Kernspinpolarisation für die gerade aufgezählten Anwendungen so groß wie möglich sein sollte.

Für die medizinischen Anwendungen gelten andere Anforderungen. Hier sollten Polarisationsgrade von etwa 60% bei gleichzeitig großen Gasmengen angestrebt werden. Die Erfahrung zeigt, dass eine höhere Polarisation zu keinen signifikanten Verbesserungen in der Bildqualität bzw. dem Signal-zu-Rausch-Verhältnis führt. Wie bereits erwähnt, sind die benötigten Gasmengen jedoch deutlich größer als in der Grundlagenforschung. Während einer Messphase am Mainzer Teilchenbeschleuniger müssen pro Tag 1 bis 3 bar·liter hochpolarisiertes Gas zur Verfügung gestellt werden. Demgegenüber werden bei klinischen Messreihen häufig bis zu 10 bar·liter pro Tag eingesetzt. Dennoch ist auch für die medizinische Applikation eine Erhöhung der maximal möglichen Polarisation am Polarisator sinnvoll, weil dadurch die Produktionsrate bei konstanter Polarisation gesteigert werden kann und somit der Arbeitsaufwand für die Bereitstellung des Gases reduziert wird.

Struktur dieser Arbeit

Zunächst wird die Theorie des metastabilen optischen Pumpens von ^3He ausführlich diskutiert. Hierzu wurde ein neues Verfahren entwickelt, das die mittlere Photonenabsorptionsrate wesentlich präziser als bisher beschreibt. Außerdem werden erstmalig so genannte geschwindigkeitsverändernde Stöße in das Modell des optischen Pumpens integriert. Kapitel 3 beschreibt die theoretischen Grundlagen zur Bestimmung der Lichtpolarisation mithilfe der Stokes-Vektoren und analysiert anschließend die experimentell ermittelten Polarisations-eigenschaften der verwendeten optischen Komponenten. In Kapitel 4 werden verschiedene Methoden zur Messung der Kernspinpolarisation dargelegt. Der Schwerpunkt liegt hierbei in der Bewertung unterschiedlicher optischer Messverfahren der Lichtpolarisation. Kapitel 5 referiert über die Eigenschaften des verwendeten Lasersystems. In einem Unterkapitel werden Ergebnisse präsentiert, die während einer Kollaboration mit der Universität Jena (Institut für Angewandte Physik) unter Leitung von A. Tünnermann erzielt wurden. Kapitel 6 beschreibt die Resultate von Polarisationsmessungen an abgeschlossenen optischen Pumpzellen bei unterschiedlichen Bedingungen. Kapitel 7 stellt das Mainzer Polarisator- und Kompressorsystem vor. Dabei werden sowohl die durchgeführten Verbesserungen als auch die aktuellen Leistungsdaten der Maschine erörtert. Kapitel 8 schließt die Arbeit mit einem Ausblick weiterer Verbesserungsmöglichkeiten zur Steigerung der Polarisation.

2 Theorie des Metastabilen Optischen Pumpens

Ziel dieses Kapitel ist es, das metastabile optische Pumpen von ^3He bei niedrigen Magnetfeldern, d.h. $B \leq 50\text{ G}$, und Drücken der Größenordnung 1 mbar detailliert zu diskutieren und Ratengleichungen für die zeitliche Entwicklung der einzelnen Hyperfein-Zustände bei der Wechselwirkung mit Laserlicht aufzustellen. Zunächst wird der optische Pumpprozess qualitativ beschrieben und anschließend die Kinetik im Einzelnen ausführlich dargestellt.

2.1 Qualitative Beschreibung

Ein ^3He -gefülltes Volumen mit etwa 1 mbar Druck befindet sich in einem schwachen homogenen Magnetfeld von etwa 10 G. Eine schwache Gasentladung regt die Atome aus dem Grundzustand in den $2\ ^3S_1$ -Zustand an. Dieser *metastabile Zustand* kann aufgrund der Drehimpulsbilanz und des Interkombinationsverbotes zwischen Triplett- und Singulettzuständen nicht über einen Strahlungsprozess zerfallen; seine Lebensdauer wird durch die Diffusionszeit der ^3He -Atome zur Wand auf etwa 1 ms begrenzt. Der eigentliche Pumpprozess findet vom metastabilen Niveau aus statt. Resonantes Laserlicht induziert Übergänge in die $2\ ^3P_{0,1,2}$ -Zustände. Zwischen diesen Energieniveaus existieren insgesamt neun Hyperfeinlinien, die gemäß einer in [Nac85] eingeführten Konvention nach aufsteigenden Energien von C_1 bis C_9 durchnummeriert werden (Abbildung 2.1). Zum optischen Pumpen sind am besten die beiden Linien C_8 und C_9 geeignet, die vom $2\ ^3S_1$ - in den $2\ ^3P_0$ -Zustand führen (Details siehe Abschnitt 2.2.2).

Das angelegte Magnetfeld führt zu einer Aufspaltung der Hyperfeinzustände in die Zeeman-Niveaus mit den Quantenzahlen m_F . Bei einer Rechtszirkularpolarisation des eingestrahnten Lichts (σ^+ -Licht) werden ausschließlich Übergänge mit $\Delta m_F = +1$ angeregt; dabei wird der Drehimpuls des absorbierten Lichtquants auf das Atom übertragen (siehe auch Abbildung 2.2). Während der Lebensdauer des $2\ ^3P_0$ -Zustands von $\tau = 97.8\text{ ns}$ [Cou01] führen Stöße zu strahlungslosen Übergängen in die anderen $2\ ^3P$ -Niveaus, die bei einem Gasdruck von $\sim 1\text{ mbar}$ in erster Näherung gleich besetzt werden [Sch67, Sch68b, Lan68]. Diesen Prozess bezeichnet man als collisional mixing. Durch die annähernde Gleichbesetzung erfolgt die Abregung dieser Zustände praktisch isotrop in sämtliche Zeeman-Niveaus der beiden $2\ ^3S_1$ -Hyperfeinzustände. Somit wird bei der Reemission kein Netto-Drehimpuls auf die Atome übertragen; zur Ausrichtung der Elektronenspins trägt nur der Anregungsprozess bei.

Durch die Hyperfeinwechselwirkung im $2\ ^3S_1$ -Zustand sind Hüllen- und Kernspin eines ^3He -Atoms miteinander gekoppelt. Die charakteristische Zeitdauer dieser Wechselwirkung ist $\tau_{HF} = 1/A = 1/(4.493\text{ GHz}) = 2.23 \cdot 10^{-10}\text{ s}$ [Ros70], was sehr viel kürzer ist als τ . Deshalb führt die An- und Abregung eines Atoms gleichzeitig zu einem vollständigen Umkoppeln der m_J - und m_I -Quantenzahlen in der m_F -Basis. Demzufolge kommt es zu einer

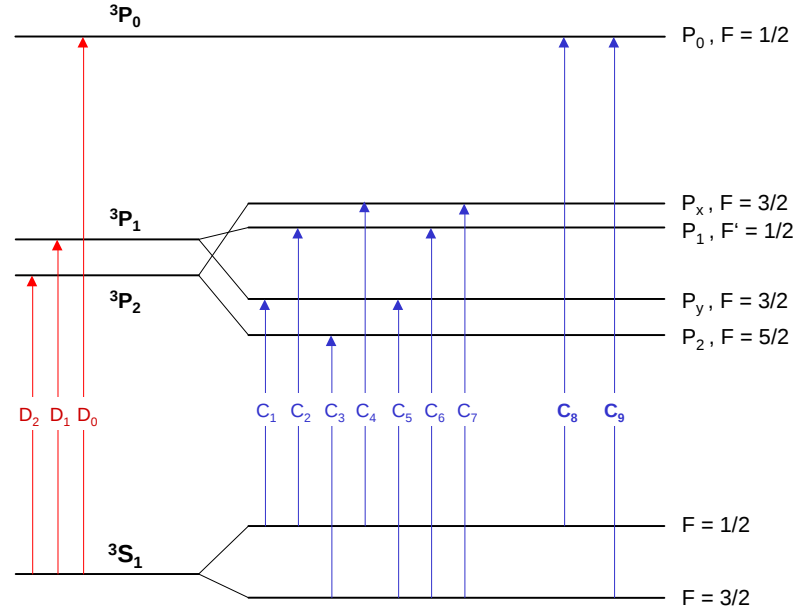
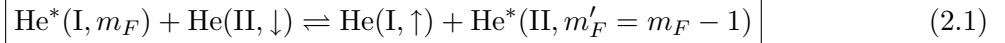


Abbildung 2.1: Illustration der $2\ ^3S_1 - 2\ ^3P$ -Übergänge von ^3He (blau) und ^4He (rot).

Ausrichtung des Kernspins entlang der vom Magnetfeld vorgegebenen Quantisierungsachse.

Das entstandene kernspinpolarisierte Atom befindet sich zunächst noch im metastabilen Zustand. Während der langen Lebensdauer des $2\ ^3S_1$ -Zustands erfährt das Atom jedoch Stöße mit unpolarisierten Grundzustandsatomen. Einige dieser Stöße resultieren in einem Austausch der Anregungsenergie zwischen den Stoßpartnern. Wird das angeregte Atom mit $^3\text{He}^*$ bezeichnet, so lässt sich die dabei ablaufende Reaktion darstellen:



wobei (I) und (II) die Kerne der Atome bezeichnen und $\uparrow, \downarrow$ die Richtung des Kernspins angibt. Die Stoßzeit beträgt dabei ca. 1 ps. Dies ist um zwei Größenordnungen kürzer als die Hyperfeinwechselwirkungszeit, sodass der Kernspin durch den Stoß nicht verändert wird. Nach dem Stoß liegt also ein angeregtes Atom mit Kernspin „down“ vor, welches seinerseits wieder am Pumpprozess teilnehmen kann, sowie ein ^3He -Atom im Grundzustand mit Kernspin „up“.

2.2 Kinetik des optischen Pumpens von ^3He

In diesem und den nachfolgenden Unterkapiteln wird die Kinetik des metastabilen optischen Pumpens mithilfe von Ratengleichungen quantitativ beschrieben. Aufgrund der Komplexität der gesamten Methode werden die Ratengleichungen der einzelnen Teilprozesse zunächst getrennt diskutiert und erst im Abschnitt 2.6 zusammengefügt.

Nach der Vorstellung der Notation zur Bezeichnung der atomaren Zustände werden in Kapitel 2.2.1 die Ratengleichungen für die metastabilen Austauschstöße hergeleitet. Diesem Abschnitt folgt die quantitative Beschreibung der Lichtwechselwirkung zwischen dem 2^3S_1 - und dem 2^3P -Niveau (induzierte Emission/Absorption, spontane Emission). Hier wird besonderes Augenmerk auf den C_8 - bzw. C_9 -Übergang gelegt. Anschließend werden die Ratengleichungen für die Relaxationsprozesse im Grundzustand, im metastabilen Zustand sowie im 2^3P -Zustand motiviert. Um den Einfluss der thermischen Bewegung der Atome zu berücksichtigen, werden die metastabilen Atome in zwei Klassen unterteilt, wovon eine Gruppe mit dem Laserlicht wechselwirkt und die andere nicht. Im Abschnitt 2.5 wird eine Methode vorgestellt, mit der bei gegebenem Laserprofil der Anteil beider Klassen an der Gesamtmetastabilendichte sowie die *mittlere* Absorptionsrate berechnet werden kann.

Der ^3He -Grundzustand 1^1S_0 ($F=1/2$) ist in zwei Zeeman-Sublevels aufgespalten, die mit G_1 ($m_F = +1/2$) und G_2 ($m_F = -1/2$) bezeichnet werden sollen. Mit g_1 bzw. g_2 werden die jeweiligen Teilchenzahldichten in den beiden Niveaus gekennzeichnet. Die gesamte Teilchenzahldichte des Grundzustands n_g kann bei bekanntem Druck p in der optischen Pumpzelle über das ideale Gasgesetz bestimmt werden. Bei einer Temperatur von 20°C gilt:

$$n_g \equiv g_1 + g_2 = \frac{p}{kT} = 2.47 \cdot 10^{22} \frac{p [\text{mbar}]}{\text{m}^3} \quad (2.2)$$

Diese Gleichung bleibt auch beim Zünden einer Gasentladung gültig, weil nur etwa jedes millionste Grundzustandsatom in den metastabilen oder einen noch höheren Zustand angeregt wird. Alternativ ist es möglich, bei gegebener Grundzustandsteilchendichte n_g und Polarisation P die Teilchendichte der Atome im Zustand G_1 bzw. G_2 mithilfe von Gleichung (1.4) zu berechnen:

$$g_{1,2} = \frac{n_g}{2} (1 \pm P) \quad (2.3)$$

Der durch die Gasentladung bevölkerte metastabile 2^3S_1 -Zustand spaltet in zwei Hyperfein-Niveaus ($F=3/2$ und $1/2$) mit insgesamt sechs Zeeman-Unterniveaus auf. In Anlehnung an die in [Nac85] eingeführte Schreibweise werden die Sub-Zustände des $F = 3/2$ -Niveaus ($m_F = 3/2, 1/2, -1/2, -3/2$) mit A_1, A_2, A_3 und A_4 bezeichnet und die beiden $F = 1/2$ -Unterniveaus ($m_F = 1/2, -1/2$) mit A_5 und A_6 (siehe Abbildung 2.3). In einem metastabilen Zustand A_i wird die Teilchenzahldichte durch die Notation a_i ausgedrückt, wobei für die gesamte metastabile Teilchendichte n_m gilt:

$$n_m \equiv \sum_{i=1}^6 a_i \quad (2.4)$$

Aufgrund der gleichen Größenordnung von Fein- und Hyperfeinkopplung besitzt der 2^3P -Zustand eine wesentlich komplexere Struktur. Die fünf Energieniveaus des Zustands bezeichnet man in Richtung kleinerer Energien mit P_0, P_x, P_1, P_y und P_2 . Es gibt insgesamt

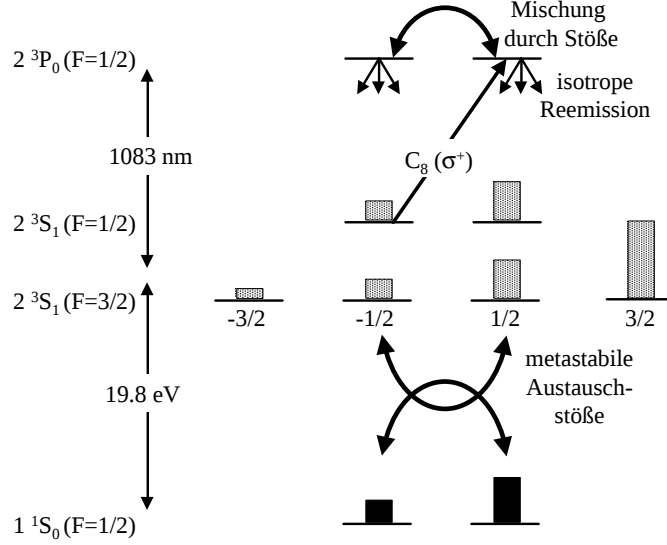


Abbildung 2.2: Schema des metastabilen optischen Pumpens von ^3He über Resonanzabsorption von Laserlicht und metastabile Austauschstöße (Erläuterungen siehe Text).

18 Zeeman-Sublevels, die mit B_j bezeichnet werden. Analog zu den Grundzustands- bzw. metastabilen Atomen wird die Teilchenzahldichte eines Zustandes B_j mit b_j gekennzeichnet. Die Summe

$$n_p \equiv \sum_{j=1}^{18} b_j \quad (2.5)$$

gibt die gesamte Teilchenzahl pro Volumen im $2\ ^3P$ -Zustand an.

2.2.1 Metastabile Austauschstöße

Während der langen Lebensdauer der metastabilen Atome von etwa 1 ms erfahren die Atome aufgrund ihres Wirkungsquerschnitts $\sigma_{tot} \cong 1.2 \cdot 10^{-18} \text{ m}^2$ bei Raumtemperatur und bei einem typischen Druck von 1 mbar im Mittel knapp 10^5 Stöße mit Grundzustandsatomen [Eva69]. Die Kollisionen ziehen aber nicht unbedingt einen Drehimpulsübertrag nach sich, da der metastabile Zustand keinen Bahndrehimpuls trägt und es sich in den meisten Fällen um elastische Stöße handelt. Nur etwa jeder fünfzehnte Stoß, entsprechend einem Wirkungsquerschnitt $\sigma_{me} = (7.6 \pm 0.4) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$ [Dup71]¹⁾, führt zum Austausch der Anregungsenergie zwischen polarisierten metastabilen Atomen und Grundzustandsatomen gemäß dem in Gleichung (2.1) beschriebenen Reaktionsschema.

1) Die in den Veröffentlichungen [Col63] und [Gre64] angegebenen Wirkungsquerschnitte differieren von [Dup71] nur wegen einer Fehlinterpretation der Messergebnisse.

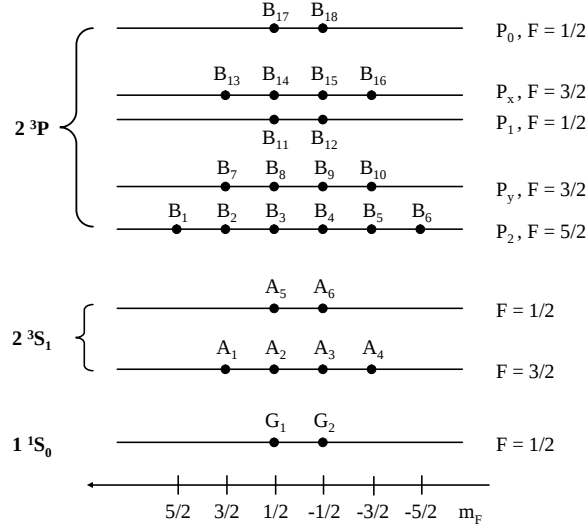


Abbildung 2.3: Schema der Zeeman-Unterniveaus der 1^1S_0 -, 2^3S_1 - und 2^3P -Zustände von ^3He . Dargestellt ist der Zusammenhang zwischen den (F, m_F) -Quantenzahlen und den Bezeichnungen G_i , A_i sowie B_j .

Der Austausch der beiden Elektronenhüllen während des Stoßes rührt von der kurzzeitigen Bildung eines $^3\Sigma_g$ - oder $^3\Sigma_u$ -Moleküls her, dessen Lebensdauer rund 10^{-12} s beträgt [Hap72]. Da die Impulsüberträge bei solchen gaskinetischen Stößen recht gering sind, lässt sich der He_2 -Molekül-Zustand alleine durch symmetrische und antisymmetrische Linearkombinationen der Wellenfunktionen des metastabilen Atoms und des Grundzustandsatoms hinreichend genau charakterisieren (*adiabatische Näherung*, siehe z.B. [Bra94]).

Im Allgemeinen entwickelt sich eine Wellenfunktion, die durch die adiabatische Näherung zweier Atome beschrieben wird, als eine linear von der Zeit abhängige Kombination der beiden stationären Zustände ($^3\Sigma_g$ und $^3\Sigma_u$). Bedeutungsvoll ist nun die Tatsache, dass die Potentiale des symmetrischen und des antisymmetrischen Zustandes sehr unterschiedlich sind (Abbildung 2.4), d.h. sie entwickeln sich mit unterschiedlichen Raten. Somit entsteht während der Kollision eine Phase,

$$\phi = \int_{\text{Stoßdauer}} \frac{E_g - E_u}{\hbar} dt, \quad (2.6)$$

die letztlich zu einer Änderung des Elektronenspins in beiden Atomen führen kann. Der Drehimpuls bleibt während eines solchen Stoßes erhalten. Ändert sich beispielsweise der Spin eines metastabilen Atoms um $\Delta m_F = -1$, so muss sich der Drehimpuls des Grundzustandsatoms um den gleichen Betrag erhöhen.

Eine explizite Berechnung der einzelnen Übergangsraten ist in Anhang A ausgeführt.

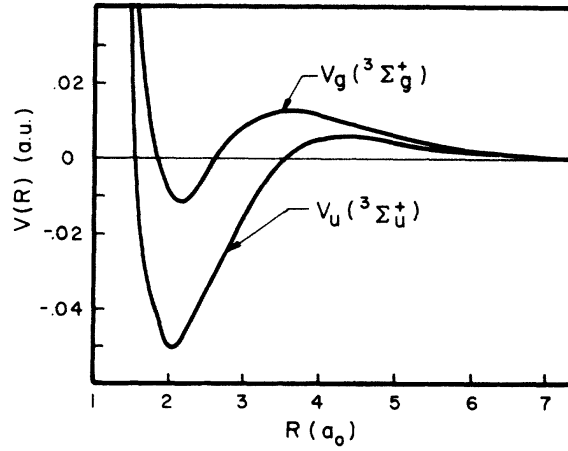


Abbildung 2.4: Darstellung der adiabatischen $^3\Sigma_g^+$ - und $^3\Sigma_u^+$ -Wechselwirkungspotentiale zwischen Grundzustands-Atomen und metastabilen Helium-Atomen [Eva69].

Deshalb werden hier nur die für die weiteren Untersuchungen benötigten Gleichungen dargestellt.

Für die mittlere Stoßrate Γ gilt bei gaskinetischen Stößen, d.h. *gegenseitigen* Stößen:

$$\Gamma = \frac{1}{\langle \tau \rangle} = \sqrt{2} \sigma \langle v \rangle n \quad (2.7)$$

wobei σ der Wirkungsquerschnitt für einen Stoß, n die Teilchendichte und $\langle v \rangle$ die mittlere Geschwindigkeit ist. Die mittlere Geschwindigkeit ist gemäß der Formel

$$\langle v \rangle = \sqrt{\frac{8 k T}{\pi m}} \quad (2.8)$$

gegeben. Für ^3He beträgt die mittlere Geschwindigkeit bei Raumtemperatur 1434 m/s. Bezeichnet man mit $1/T_e$ die metastabile Stoßrate der Grundzustandsatome und mit $1/\tau_e$ die metastabile Stoßrate der Atome im 2^3S_1 -Niveau, so gilt:

$$\frac{1}{\tau_e} \equiv \sqrt{2} \sigma_{me} \langle v \rangle n_g \quad (2.9)$$

$$\frac{1}{T_e} \equiv \sqrt{2} \sigma_{me} \langle v \rangle n_m \quad (2.10)$$

Hieraus folgt bei einem Gasdruck von 1 mbar und einem Anteil der metastabilen Atome an den Grundzustandsatomen von 1 ppm

$$T_e \simeq 0.3 \text{ s} ; \quad \tau_e \simeq 300 \text{ ns.}$$

Mithilfe der Zeitkonstanten und der in Anhang A berechneten Übergangswahrscheinlichkeiten lässt sich die Dynamik der metastabilen Austauschstöße in Form von Ratengleichungen

kompakt formulieren²⁾:

**Ratengleichungen
für metastabilen
Austauschstoß**

$$\begin{aligned}
 \dot{a}_i &= \frac{1}{\tau_e} \sum_l [E_{il} + F_{il} P] a_l \\
 \dot{P} &= \frac{1}{T_e} [-P + \langle I \rangle_m] \quad \text{mit} \quad \langle I \rangle_m = \frac{1}{n_m} \sum_i \lambda_i a_i \\
 E &= \frac{1}{18} \begin{pmatrix} -9 & 3 & 0 & 0 & 6 & 0 \\ 3 & -13 & 4 & 0 & 4 & 2 \\ 0 & 4 & -13 & 3 & 2 & 4 \\ 0 & 0 & 3 & -9 & 0 & 6 \\ 6 & 4 & 2 & 0 & -13 & 1 \\ 0 & 2 & 4 & 6 & 1 & -13 \end{pmatrix} \\
 F &= \frac{1}{18} \begin{pmatrix} 9 & 3 & 0 & 0 & 6 & 0 \\ -3 & 3 & 4 & 0 & 0 & 2 \\ 0 & -4 & -3 & 3 & -2 & 0 \\ 0 & 0 & -3 & -9 & 0 & -6 \\ -6 & 0 & 2 & 0 & -3 & 1 \\ 0 & -2 & 0 & 6 & -1 & 3 \end{pmatrix} \\
 \lambda &= \frac{1}{3} \begin{pmatrix} 3 & 1 & -1 & -3 & -1 & 1 \end{pmatrix}
 \end{aligned} \tag{2.11}$$

Kollisionen übertragen hierbei die Kernspinpolarisation $\langle I \rangle_m$ der metastabilen Atome auf die Grundzustandsatome. Falls die Polarisation P konstant ist, sind die Gleichungen (2.11) zur Entwicklung der Besetzungszahlen der metastabilen Niveaus linear. Diese Eigenschaft ist für Zeiten $t \ll T_e$ gegeben, weil sich die Polarisation in diesem Zeitraum kaum ändert. Bei der Betrachtung der Gleichungen über längere Zeiten ist eine lineare Beziehung dagegen nicht mehr erfüllt.

2.2.2 Absorptionsrate des Laserlichts für ruhende Atome

P.-J. Nacher hat 1985 den Zusammenhang zwischen eingestrahelter Laserleistungsdichte und absorbierten Photonenrate für die 2^3S_1 - 2^3P -Hyperfeinübergänge in ^3He ausführlich studiert [Nac85]. An dieser Stelle sollen deshalb nur die wesentlichen Aspekte aufgezählt werden. Die gesamte Leistungsdichte J des Lasers, also die eingestrahelte Leistung I pro Fläche S , ergibt sich aus dem Integral der spektralen Leistungsdichte $j(\omega_L)$ über alle Frequenzen:

$$J = \frac{I}{S} = \int_0^\infty j(\omega_L) d\omega_L \quad (\omega_L : \text{Frequenz des Lasers}) \tag{2.12}$$

Für ruhende Atome beschreibt die Gleichung

$$\frac{1}{\tau_{ij}} \equiv \gamma_{ij} \cdot T_{ij} \tag{2.13}$$

²⁾ In [Nac85] ist das Element $E_{6,6}$ falsch angegeben.

die Absorptionsrate $1/\tau_{ij}$ für den Übergang des Atoms von A_i nach B_j . Hierbei ist

$$\gamma_{ij} \equiv \xi \cdot \int_0^\infty \frac{j(\omega_L) d\omega_L}{(\Gamma/2)^2 + (\omega_{ij} - \omega_L)^2} \quad (2.14)$$

mit $\xi = \frac{\pi \alpha f \Gamma}{m_e \omega_{ij}} = 9.803 \cdot 10^{20} \frac{\text{m}^2}{\text{Ws}^3}$ für $\Gamma/2\pi = 20 \text{ MHz}$.

Der Koeffizient γ_{ij} enthält Lasereigenschaften wie die spektrale Leistungsdichte $j(\omega_L)$ sowie charakteristische Größen des angeregten Übergangs ($f = 0.5391$ Oszillatorenstärke des Helium [Nac85], $\omega_{ij}/2\pi \approx 276.80 \text{ THz}$ Übergangsfrequenzen von den 2^3S - nach 2^3P -Zuständen, $\Gamma/2\pi = 20 \text{ MHz}$ homogene Linienbreite inkl. Druckverbreiterung bei 1.3 mbar [Blo85]) und Naturkonstanten ($\alpha = 1/137.04$ Feinstrukturkonstante, $m_e = 9.1094 \cdot 10^{-31} \text{ kg}$ Elektronenmasse). T_{ij} sind die in Tabelle (2.1) aufgelisteten Übergangsmatrixelemente zwischen den Zeeman-Niveaus A_i und B_j . Ihre Berechnung ist nicht trivial, weil die Hyperfeinkopplung nicht als Störung der Feinstruktur betrachtet werden kann. Vielmehr ist die Fein- und die Hyperfeinwechselwirkung von vergleichbarer Stärke, sodass der Hüllendrehimpuls J in diesem Fall nicht als Basis zur Beschreibung eines Zustandes dienen kann („ J ist keine gute Quantenzahl“).

Mit diesen Angaben kann man die durch die Lichtwechselwirkungen verursachten Besetzungsveränderungen der einzelnen Zustände in Ratengleichungen formulieren. In dem nachstehenden Gleichungssystem beschreibt der Term $T_{ij} \frac{1}{\tau}$ ($\tau = 97.8 \text{ ns}$, mittlere Lebensdauer des 2^3P -Zustands) die spontane Emissionsrate von B_j nach A_i , während $T_{ij} \gamma_{ij}$ die durch das Laserlicht induzierte Emissions- bzw. Absorptionsrate von B_j nach A_i darstellt:

$$\dot{a}_i = \sum_{j=1}^{18} T_{ij} \left[\left(\gamma_{ij} + \frac{1}{\tau} \right) b_j - \gamma_{ij} a_i \right] \quad (2.15)$$

$$\dot{b}_j = \sum_{i=1}^6 T_{ij} \left[\gamma_{ij} a_i - \left(\gamma_{ij} + \frac{1}{\tau} \right) b_j \right] \quad (2.16)$$

Zum Erreichen hoher Polarisationen eignen sich nur die beiden Hyperfeinlinien C_8 und C_9 . Ursache hierfür ist die Dopplerverbreiterung von 2.0 GHz (FWHM) bei Raumtemperatur, die ein separates Pumpen der Übergänge C_1 bis C_7 verhindert (vergleiche Tabelle 2.2). Dies wäre nicht weiter problematisch, wenn beim optischen Pumpen die Übergänge C_1 und C_3 nicht entgegengesetzt zu den Übergängen C_2 , C_4 , C_5 , C_6 und C_7 pumpen würden. Wegen der gleichzeitigen Absorption des Laserlichts durch die sieben Hyperfeinresonanzen kann deshalb keine hohe Polarisation erreicht werden³⁾. Aus diesem Grund werden im Folgenden nur die Eigenschaften der beiden Hyperfeinübergänge C_8 und C_9 genauer betrachtet. Sowohl bei der C_8 - als auch bei der C_9 -Resonanz wird in das 2^3P_0 -Niveau gepumpt. Stöße verursachen

3) Der Grad der negativen Polarisation beim Einstrahlen von σ^+ -Licht (!) auf dem C_1 - bzw. C_3 -Übergang hängt entscheidend von dem Maß des so genannten collisional mixing ab, das in Kapitel 2.3.2 diskutiert wird. Einzelheiten zu der Effizienz der Übergänge C_1 bis C_7 lese man in [Nac85] nach.

	A ₁	A ₂	A ₃	A ₄	A ₅	A ₆
B ₁	1.0000					
B ₂	0.4000	0.6000				
B ₃	0.1000	0.6000	0.3000			
B ₄		0.3000	0.6000	0.1000		
B ₅			0.6000	0.4000		
B ₆				1.0000		
B ₇	0.5838	0.3892			0.0270	
B ₈	0.3892	0.0649	0.5189		0.0180	0.0090
B ₉		0.5189	0.0649	0.3892	0.0090	0.0180
B ₁₀			0.3892	0.5838		0.0270
B ₁₁	0.2198	0.1466	0.0733		0.1868	0.3735
B ₁₂		0.0733	0.1466	0.2198	0.3735	0.1868
B ₁₃	0.0162	0.0108			0.9730	
B ₁₄	0.0108	0.0018	0.0144		0.6487	0.3243
B ₁₅		0.0144	0.0018	0.0108	0.3243	0.6487
B ₁₆			0.0108	0.0162		0.9730
B ₁₇	0.2802	0.1868	0.0934		0.1466	0.2931
B ₁₈		0.0934	0.1868	0.2802	0.2931	0.1466

Tabelle 2.1: Übergangsmatrixelemente T_{ij} für sämtliche $2^3S - 2^3P$ -Hyperfeinübergänge in ^3He [Nac85].

	E/h [GHz]	λ_{air} [nm]	Intensität
C ₁	0	1083.184	0.03566
C ₂	4.51159	1083.166	0.37482
C ₃	4.95920	1083.164	2
C ₄	5.18076	1083.163	1.29767
C ₅	6.73970	1083.157	1.29767
C ₆	11.25129	1083.140	0.29185
C ₇	11.92046	1083.137	0.03566
C ₈	32.60452	1083.056	0.29185
C ₉	39.34422	1083.030	0.37482
D ₂	38.53362	1083.033	5/3
D ₁	40.82479	1083.024	1
D ₀	70.44174	1082.908	1/3

Tabelle 2.2: Relative Energielagen und relative Intensitäten der $2^3S_1 - 2^3P$ -Hyperfeinübergänge von ^3He und ^4He [Cou02, Nis04].

	A ₁	A ₂	A ₃	A ₄	A ₅	A ₆
B _S	$3 - 1/2\mathfrak{J}$	$3 - 1/2\mathfrak{J}$	$3 - 1/2\mathfrak{J}$	$3 - 1/2\mathfrak{J}$	$2 + \mathfrak{J}$	$2 + \mathfrak{J}$
B ₁₇	$1/2\mathfrak{J}$	$1/3\mathfrak{J}$	$1/6\mathfrak{J}$		$1/3(1 - \mathfrak{J})$	$2/3(1 - \mathfrak{J})$
B ₁₈		$1/6\mathfrak{J}$	$1/3\mathfrak{J}$	$1/2\mathfrak{J}$	$2/3(1 - \mathfrak{J})$	$1/3(1 - \mathfrak{J})$

Tabelle 2.3: Alternative Darstellung der Übergangsmatrixelemente T_{ij} für die Hyperfeinübergänge C_8 und C_9 . Mit $\mathfrak{J} = 0.5603$ ergeben sich die in Tabelle (2.1) dargestellten Übergangswahrscheinlichkeiten.

anschließend eine gleichmäßige Umbesetzung in die anderen 2^3P -Zustände (siehe Kapitel 2.3.2). Diesen Sachverhalt nutzt man aus, indem die Besetzungszahlen der Zustände B_1 bis B_{16} in einer Größe b_s zusammengefasst werden:

$$b_1 = b_2 = b_3 = \dots = b_{16} \quad \Rightarrow \quad b_s \equiv \sum_{i=1}^{16} b_i \quad (2.17)$$

Ausgehend von den Gleichungen (2.15) und (2.16) werden nun die Ratengleichungen für das C_8 - und C_9 -Pumpen explizit dargestellt. Die Ratengleichungen werden übersichtlicher, wenn man die Übergangsmatrixelemente T_{ij} für den C_8 - bzw. C_9 -Übergang gemäß der in Tabelle (2.3) vorgegebenen Form benutzt. Für das Fluoreszenzlicht (spontane Emission) folgt dann:

**Ratengleichungen
für spontane
Emission bei
Pumpen auf
 C_8 bzw. C_9**

$$\begin{aligned}
 \dot{a}_1^f &= \frac{1}{\tau} \cdot \left[\frac{3 - \frac{\mathfrak{J}}{2}}{16} b_s + \frac{\mathfrak{J}}{2} b_{17} \right] \\
 \dot{a}_2^f &= \frac{1}{\tau} \cdot \left[\frac{3 - \frac{\mathfrak{J}}{2}}{16} b_s + \frac{\mathfrak{J}}{3} b_{17} + \frac{\mathfrak{J}}{6} b_{18} \right] \\
 \dot{a}_3^f &= \frac{1}{\tau} \cdot \left[\frac{3 - \frac{\mathfrak{J}}{2}}{16} b_s + \frac{\mathfrak{J}}{6} b_{17} + \frac{\mathfrak{J}}{3} b_{18} \right] \\
 \dot{a}_4^f &= \frac{1}{\tau} \cdot \left[\frac{3 - \frac{\mathfrak{J}}{2}}{16} b_s + \frac{\mathfrak{J}}{2} b_{18} \right] \\
 \dot{a}_5^f &= \frac{1}{\tau} \cdot \left[\frac{2 + \mathfrak{J}}{16} b_s + \frac{1 - \mathfrak{J}}{3} b_{17} + \frac{2(1 - \mathfrak{J})}{3} b_{18} \right] \\
 \dot{a}_6^f &= \frac{1}{\tau} \cdot \left[\frac{2 + \mathfrak{J}}{16} b_s + \frac{2(1 - \mathfrak{J})}{3} b_{17} + \frac{1 - \mathfrak{J}}{3} b_{18} \right] \\
 \dot{b}_s^f &= -\frac{1}{\tau} b_s \\
 \dot{b}_{17}^f &= -\frac{1}{\tau} b_{17} \\
 \dot{b}_{18}^f &= -\frac{1}{\tau} b_{18}
 \end{aligned} \quad (2.18)$$

Ist der Laser auf die C_8 -Linie abgestimmt und strahlt mit einem Anteil von $(1 - \varepsilon)$ rechtszirkular polarisiertes Licht ($\Delta m_F = +1$) ein - und mit einem Anteil ε linkszirkular polarisiertes Licht ($\Delta m_F = -1$) -, so ergeben sich durch die Laseranregung folgende Ratengleichungen:

**Ratengleichungen
für induzierte
Emission und
Absorption auf C_8**

$$\begin{aligned}
 0 &= \dot{a}_1^l = \dot{a}_2^l = \dot{a}_3^l = \dot{a}_4^l = \dot{b}_S^l \\
 \dot{a}_5^l &= \frac{2(1-\mathfrak{I})}{3} \cdot \varepsilon \cdot \gamma_{ij} \cdot (b_{18} - a_5) \\
 \dot{a}_6^l &= \frac{2(1-\mathfrak{I})}{3} \cdot (1-\varepsilon) \cdot \gamma_{ij} \cdot (b_{17} - a_6) \\
 \dot{b}_{17}^l &= \frac{2(1-\mathfrak{I})}{3} \cdot (1-\varepsilon) \cdot \gamma_{ij} \cdot (a_6 - b_{17}) \\
 \dot{b}_{18}^l &= \frac{2(1-\mathfrak{I})}{3} \cdot \varepsilon \cdot \gamma_{ij} \cdot (a_5 - b_{18})
 \end{aligned} \tag{2.19}$$

Falls der C_9 -Übergang gepumpt werden soll, erhält man:

**Ratengleichungen
für induzierte
Emission und
Absorption auf C_9**

$$\begin{aligned}
 0 &= \dot{a}_5^l = \dot{a}_6^l = \dot{b}_S^l \\
 \dot{a}_1^l &= \frac{\mathfrak{I}}{2} \cdot \varepsilon \cdot \gamma_{ij} \cdot (b_{17} - a_1) \\
 \dot{a}_2^l &= \frac{\mathfrak{I}}{6} \cdot \varepsilon \cdot \gamma_{ij} \cdot (b_{18} - a_2) \\
 \dot{a}_3^l &= \frac{\mathfrak{I}}{6} \cdot (1-\varepsilon) \cdot \gamma_{ij} \cdot (b_{17} - a_3) \\
 \dot{a}_4^l &= \frac{\mathfrak{I}}{2} \cdot (1-\varepsilon) \cdot \gamma_{ij} \cdot (b_{18} - a_4) \\
 \dot{b}_{17}^l &= \frac{\mathfrak{I}}{6} \cdot \gamma_{ij} \cdot [3\varepsilon a_1 + (1-\varepsilon) a_3 - (1+2\varepsilon) b_{17}] \\
 \dot{b}_{18}^l &= \frac{\mathfrak{I}}{6} \cdot \gamma_{ij} \cdot [\varepsilon a_2 + 3(1-\varepsilon) a_4 - (3-2\varepsilon) b_{18}]
 \end{aligned} \tag{2.20}$$

Zusammengefasst ergeben sich die Ratengleichungen der Lichtwechselwirkung für C_8 - bzw. C_9 -Pumpen durch Addition der Ratengleichungen, die die Fluoreszenz sowie das Laserfeld beschreiben:

**Ratengleichungen
für Lichtwechselwirkung
auf C_8 und C_9**

$$\begin{aligned}
 \dot{a}_i &= \dot{a}_i^f + \dot{a}_i^l & i &= 1, 2, \dots, 6 \\
 \dot{b}_j &= \dot{b}_j^f + \dot{b}_j^l & j &= S, 17, 18
 \end{aligned} \tag{2.21}$$

2.3 Relaxationsprozesse

In diesem Abschnitt werden die einzelnen Relaxationseffekte, die zu einer Zerstörung der g_i - (Kernspinpolarisation), a_i - und b_j -Orientierung führen, diskutiert und quantifiziert.

2.3.1 Relaxation der Orientierung der metastabilen Atome

Die metastabilen Atome unterliegen mehreren Arten von Stößen. Neben den bereits ausführlich diskutierten metastabilen Austauschstößen kommt es zu Kollisionen, die zu einem Übergang von A_i nach A_j oder zu einer Abregung in den Grundzustand führen. Vor allem Wandstöße bewirken zu einem sehr großen Teil eine Abregung. Weil aber die Gesamtzahl der metastabilen Atome konstant ist, bedeutet dies, dass sie durch neue angeregte Atome, die nicht ausgerichtet sind, ersetzt werden, was einem Relaxationsprozess entspricht. Ohne die einzelnen Mechanismen genauer zu beschreiben, wird die simple Annahme gemacht, dass die Besetzungszahlen der einzelnen metastabilen Niveaus sich mit der Rate $1/\tau_r$ ausgleichen:

$$\dot{a}_i^c = \frac{1}{\tau_r} \cdot \left[\sum_{j=1}^6 \frac{a_j}{6} - a_i \right] \quad (2.22)$$

Eine solche Beschreibung erscheint gerechtfertigt, weil bei niedrigen Drücken um 1 mbar Wandstöße den dominanten Relaxationsprozess repräsentieren. Für eine zylindrische Pumpzelle mit einem Radius von 2.5 cm liegt die mittlere Diffusionszeit der metastabilen Atome in der Größenordnung $\mathcal{O}(1 \text{ ms})$. Da dieser Wert im Vergleich zu den anderen Zeitkonstanten groß ist, kann die Relaxation der metastabilen Atome im Allgemeinen vernachlässigt werden. Allerdings kommt es bei sehr geringen Laserleistungen zu einer geringfügigen Modifikation der Ergebnisse.

2.3.2 Collisional mixing der 2^3P -Zustände

Wie die metastabilen Atome im 2^3S -Niveau, können auch die Atome in den 2^3P -Zuständen durch Stöße von einem B_j - in einen B_i -Zustand transferiert werden, was man als collisional mixing bezeichnet:

$$\dot{b}_i^c = \frac{1}{\tau_{dep}} \cdot \left[\sum_{j=1}^{18} \frac{b_j}{18} - b_i \right] \quad (2.23)$$

Der Wirkungsquerschnitt für solche Stöße wurde von L. D. Schearer sowie D. A. Landmann zu $\sigma_c = 68 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$ bestimmt [Sch67, Sch68b, Lan68]. Demnach beträgt die Zeitkonstante des collisional mixing bei einem Druck von 1 mbar $\tau_{dep} = 30 \text{ ns}$. Damit ist $1/\tau_{dep}$ wesentlich größer als die Austauschrate $1/\tau_e$ der metastabilen Atome mit den Grundzustandsatomen oder die Rate $1/\tau$, mit der das Fluoreszenzlicht emittiert wird. Sättigt das Laserlicht den angeregten Übergang nicht, ist die absorbierte Photonenrate $1/\tau_{ij}$ ebenfalls geringer als beim collisional mixing. Deshalb kann in erster Näherung eine Gleichbesetzung der 2^3P -Zustände angenommen werden. Weiterhin lässt sich das 18-dimensionale DGL-System

vereinfachen, wenn nur die beiden zum optischen Pumpen effizienten Hyperfeinübergänge C_8 und C_9 diskutiert werden, die die beiden $2\ ^3P_0$ -Niveaus B_{17} und B_{18} bevölkern. In diesem Fall resultiert die Population der restlichen P -Zustände B_1 bis B_{16} alleine aus dem collisional mixing. Da die Bildungsrate $1/\tau_{dep}$ und die Zerfallsrate $1/\tau$ des Fluoreszenzlichts für jeden dieser 16 Zustände identisch ist, kann man die Besetzungsdichten b_i zu einer einzigen Größe $b_s \equiv \sum_{i=1}^{16} b_i$ vereinigen.

Mithilfe dieser Umdeklarierung reduziert sich das 18-dimensionale Gleichungssystem in Gleichung (2.23) auf ein 3-dimensionales:

$$\begin{aligned}\dot{b}_s^c &= \frac{1}{18\tau_{dep}} \cdot (-2b_s + 16b_{17} + 16b_{18}) \\ \dot{b}_{17}^c &= \frac{1}{18\tau_{dep}} \cdot (b_s - 17b_{17} + b_{18}) \\ \dot{b}_{18}^c &= \frac{1}{18\tau_{dep}} \cdot (b_s + b_{17} - 17b_{18})\end{aligned}\tag{2.24}$$

2.3.3 Kernspinrelaxation

Relaxation durch Feldgradienten

Insbesondere bei niedrigem Druck kann dieser Relaxationsmechanismus dominant sein. Hierzu betrachte man ein Ensemble sich diffusiv bewogender ^3He -Atome. Wenn ein Atom mit einem in Richtung des Magnetfeldes orientierten Kernspin einen transversalen Feldgradienten durchfliegt, erzeugt der transversale Feldgradient im Bezugssystem des Atoms ein zeitlich veränderliches Feld. Stöße mit anderen Atomen bewirken, dass dieses Feld sowohl in seiner Frequenz als auch in seiner Amplitude fluktuiert. Enthält das Fourierspektrum des zeitlich veränderlichen Feldes die Larmorfrequenz des Kernspins, so wird ein Spinklapp induziert, was zu einer Abnahme der Polarisierung führt [Sch65, Cat88a, Cat88b, Has90]. Bei Raumtemperatur ergibt sich die durch den Feldgradienten verursachte Relaxationszeit zu

$$T_1^{grad}(293\text{ K}) = \frac{h}{17500\text{ cm}^2\text{ bar}} \left(\frac{B}{\partial B_r / \partial r} \right)^2 p.\tag{2.25}$$

Hierbei ist B die Magnetfeldstärke, $\partial B_r / \partial r$ ist der radiale Feldgradient und p stellt den Gasdruck dar. Wenn die Relaxationszeit durch Feldgradienten in einer optischen Pumpzelle mit einem Druck $\sim 1\text{ mbar}$ mindestens eine Stunde betragen soll, muss der quadratisch gemittelte relative transversale Feldgradient $(\partial B_r / \partial r) / B$ über das optische Pumpvolumen kleiner sein als $1 \cdot 10^{-4}\text{ cm}^{-1}$. Diese Homogenität wird bei den in unserer Gruppe verwendeten Magnetfeldern auch erreicht.

Oberflächenrelaxation

Die Beschreibung der Wandrelaxation von kernspinpolarisiertem ^3He war bereits in den sechziger und siebziger Jahren Gegenstand intensiver Forschung [Fit67, Fit69, Gan73] und ist im Detail ein komplizierter Prozess. Generell skaliert die Relaxationsrate Γ_W jedoch

mit dem Oberflächen/Volumen-Verhältnis des umgebenen Materials und lässt sich daher ausdrücken durch

$$\Gamma_W = \frac{1}{\eta} \frac{S}{V}. \quad (2.26)$$

Dabei ist η ein spezifischer Relaxationskoeffizient, der vom Wandmaterial abhängt ($\eta \sim 1 \dots 1000$ h/cm für verschiedene Gläser). Die Oberflächenrelaxationszeiten hängen zudem von der Präparation der Behältnismaterialien ab. In (unbeschichteten) optischen Pumpzellen aus Duran- oder Quarzglas liegt die Wandrelaxationszeit zumeist zwischen einer und zehn Stunden. Dagegen können in mit Cäsium oder Rubidium beschichteten Speichergefäßen oberflächeninduzierte Relaxationszeiten von über 1000 Stunden erzielt werden [Ric02].

Dipolare Relaxation

Bei Stößen zweier ^3He -Atome kommt es kurzzeitig zur Bildung eines ^3He - ^3He -Moleküls. Hierbei koppeln die Kernspins über die magnetische Dipolwechselwirkung miteinander, so dass ihre Ausrichtung verloren geht (siehe Anhang B). In [New93] wird für diesen Prozess bei Raumtemperatur eine Relaxationszeit von

$$T_1^{\text{Dipol}}(300 \text{ K}) = \frac{817 \text{ h bar}}{p} \quad (2.27)$$

angegeben (p: ^3He -Druck). Dieser Wert konnte in der Diplomarbeit von M. Wolf [Wol00] experimentell bestätigt werden. Da in der optischen Pumpzelle der Druck in der Größenordnung 1 mbar liegt, kann der Beitrag der dipolaren Relaxation gegenüber den anderen Relaxationsquellen vernachlässigt werden.

Relaxation durch die Gasentladung

Die Gasentladung ist in der optischen Pumpzelle der mit Abstand stärkste Relaxationsprozess der Kernspinpolarisation. Sie führt zu einer Wiederanregung bereits polarisierter Atome und trägt somit durch Abstrahlung zirkular polarisierten Fluoreszenzlichts im angeregten Zustand infolge der Hyperfeinkopplung zur Relaxation der Kernspinpolarisation bei. Zur Abnahme der Polarisation in der Gasentladung trägt jedoch noch ein weiterer Mechanismus bei. Da die Polarisation der metastabilen Atome durch Wandstöße mit einer Zeitkonstanten $\tau_r \sim \mathcal{O}(1 \text{ ms})$ relaxiert (siehe Kapitel 2.3.1), beeinflusst dies auch die Polarisation der Grundzustandsatome aufgrund der metastabilen Austauschstöße. Dieser Effekt lässt sich mit einer einfachen Bilanzgleichung quantifizieren:

$$T_r^{\text{me}} = \tau_r \cdot \frac{n_g}{n_m} \quad (2.28)$$

In dieser Gleichung drückt T_r^{me} die Relaxation der Kernspinpolarisation im Grundzustand aus, die durch den Zerfall der Polarisation der metastabilen Atome hervorgerufen wird und mittels Austauschstöße praktisch instantan ($\tau_e \ll \tau_r$) übertragen wird. Bei mittlerer Helligkeit der Gasentladung liegt der Wert in der Größenordnung einer halben Stunde.

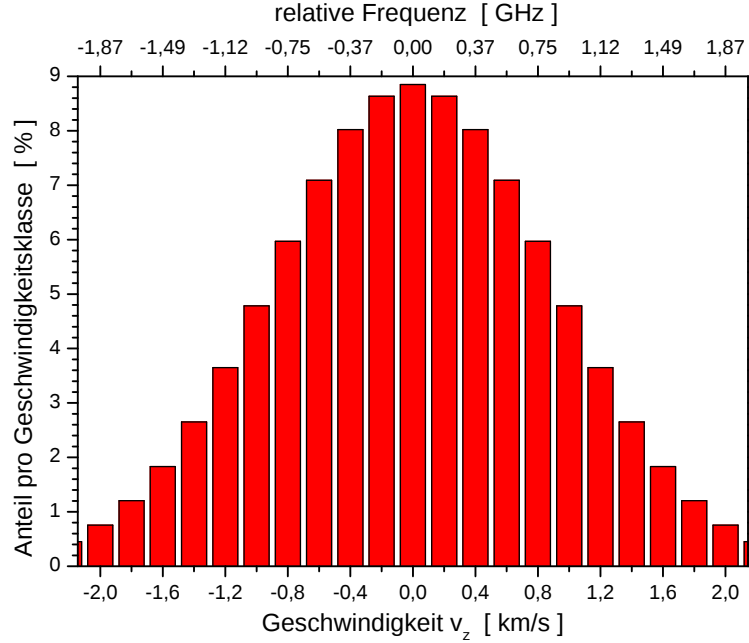


Abbildung 2.5: In dem Balkendiagramm wird die Maxwell'sche Geschwindigkeitsverteilung in so genannten Geschwindigkeitsklassen mit $\Delta v_z = 200$ m/s diskretisiert dargestellt. Dieses Geschwindigkeitsintervall entspricht einer Frequenzbreite von knapp 200 MHz. Mit einem schmalbandigen Laser können fast ausschließlich metastabile Atome einer einzigen Geschwindigkeitsklasse angeregt werden. Durch Stöße können die Atome ihre Geschwindigkeitsklassen wechseln.

Berücksichtigt man zusätzlich die Zerstörung der Polarisation durch das polarisierte Fluoreszenzlicht, so wird die Relaxationszeit je nach Helligkeit des Plasmas auf typischerweise ein bis zehn Minuten begrenzt.

Eine genaue Analyse der unterschiedlichen Relaxationsmechanismen der Grundzustands-Polarisation während des Brennens der Gasentladung ist Thema der laufenden Promotion von M. Batz [Bat04]. In der vorliegenden Arbeit werden sämtliche Relaxationsquellen durch die Gesamtrelaxationszeit T_r ausgedrückt:

$$\text{Ratengleichung für die Kernspinrelaxation} \quad \boxed{\dot{P}_r = -\frac{1}{T_r} P} \quad (2.29)$$

2.4 Einfluss der thermischen Bewegung der Atome

Die Maxwell'sche Geschwindigkeitsverteilung der ^3He -Atome führt zu einer inhomogenen Linienverbreiterung des 2^3S-2^3P -Übergangs. Insbesondere bei spektral schmalen Lasern resultiert hieraus eine geschwindigkeitsselektive Anregung der Atome, sodass zunächst nur Atome einer bestimmten Geschwindigkeitsklasse polarisiert werden (siehe Abbildung 2.5). Wird beispielsweise mit einem Single-frequency-Laser eine spezielle Geschwindigkeitsklasse

gepumpt, so führt dies in der betreffenden Klasse zu einer Veränderung der Besetzungszahlen der metastabilen Zustände, während in einer nicht mit dem Laserlicht wechselwirkenden Geschwindigkeitsklasse die Besetzungszahlen ihre ursprünglichen Werte beibehalten. Diese Korrelation wird allerdings durch Stöße teilweise wieder ausgeglichen.

Wie in Abschnitt (2.2.1) beschrieben, beträgt der totale Wirkungsquerschnitt für Stöße zwischen Grundzustands- und metastabilen Atomen etwa $\sigma_{tot} \cong 1.2 \cdot 10^{-18} \text{ m}^2$ bei Raumtemperatur. Da der Streuwinkel jedoch bei mehr als 99% der Kollisionen geringer als 10° ist [Eva69], ändern sich die (vektoriellen) Geschwindigkeiten beider Stoßpartner nur geringfügig. Deshalb führen solche Stöße nur zu einem Ausgleich der Besetzungszahlen von direkt benachbarten Geschwindigkeitsklassen.

Eine andere Situation herrscht bei den metastabilen Austauschstößen. Zwar resultieren auch hier aus den meisten Kollisionen nur kleine Streuwinkel, allerdings verlieren die aufeinander treffenden Atomkerne bei derartigen Stößen ihre Identität (vergleiche Abbildung 2.6). Bei einem metastabilen Austauschstoß geht das angeregte Atom in den Grundzustand über und übernimmt näherungsweise die (vektorielle) Geschwindigkeit des metastabilen Atoms vor der Kollision. Durch diesen Mechanismus können angeregte und Grundniveau-Atome ihre Geschwindigkeitsklassen tauschen, ohne dass diese benachbart sein müssen.

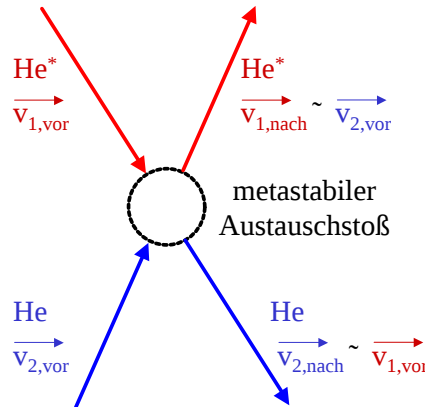


Abbildung 2.6: Illustration des resonanten Energietransfers vom angeregten Atom (He^*) auf das Grundzustandsatom. Dieser Prozess kann auch bei kleinen Streuwinkeln (d.h. $\vec{v}_{1,vor} \sim \vec{v}_{2,nach}$) zu einer großen Geschwindigkeitsänderung führen.

Eine realistische Behandlung der Stöße muss eine separate Analyse sämtlicher Geschwindigkeitsklassen enthalten und erfordert zusätzlich die genaue Kenntnis für jede Art von geschwindigkeitsverändernden Stößen. Ein solches Modell ist zu kompliziert und muss daher idealisiert betrachtet werden. Eine mögliche Realisierung ist die Einteilung der metastabilen Atome in zwei Gruppen. Die erste Gruppe mit einer totalen Teilchendichte n_m^* und den Besetzungsdichten a_i^*

$$n_m^* = \sum_{i=1}^6 a_i^* \quad (2.30)$$

wechselwirkt mit dem Laserlicht, während die zweite Gruppe mit einer totalen Teilchendichte n_m^o und den Besetzungsdichten a_i^o

$$n_m^o \equiv n_m - n_m^* = \sum_{i=1}^6 (a_i - a_i^*) = \sum_{i=1}^6 a_i^o \quad (2.31)$$

nicht vom Laserlicht beeinflusst werden soll. Der Anteil der mit dem Laserlicht wechselwirkenden metastabilen Atome soll mit

$$\beta \equiv \frac{n_m^*}{n_m} = \frac{n_m^*}{n_m^* + n_m^o} \quad (2.32)$$

bezeichnet und im nächsten Unterkapitel für ein gegebenes spektrales Laserprofil berechnet werden. Zwischen beiden Klassen n_m^* sowie n_m^o kommt es zu einem Ausgleich der Besetzungszahlen durch geschwindigkeitsverändernde Stöße, die formell durch die Ratengleichungen

**Ratengleichungen
für geschwindigkeits-
verändernde Stöße**

$$\begin{aligned} \dot{a}_i^o &= \frac{1}{\tau_c} [(1 - \beta) a_i^* - \beta a_i^o] \\ \dot{a}_i^* &= \frac{1}{\tau_c} [\beta a_i^o - (1 - \beta) a_i^*] \end{aligned} \quad (2.33)$$

beschrieben werden. Die Stoßrate $1/\tau_c$ wird bei den folgenden Berechnungen aufgrund der vorangegangenen Erläuterungen gleich der Stoßrate des metastabilen Austauschstoßes $1/\tau_e$ gesetzt. In Kapitel 6.1.2 wird gezeigt, dass sowohl die Unterteilung der metastabilen Atome in zwei Klassen als auch die Festlegung der geschwindigkeitsverändernden Stoßrate zu einer hervorragenden Übereinstimmung von Theorie und Experiment bei der Laserlichtabsorption führt und somit diese Modellannahmen *a posteriori* gerechtfertigt werden.

2.5 Bestimmung der mittleren Absorptionsrate

In diesem Abschnitt wird eine Methode vorgestellt, mit der man sowohl die mittlere Absorptionsrate $\langle \gamma_{ij} \rangle_\beta$ als auch den Parameter β selbst in Abhängigkeit der spektralen Leistungsdichte des Lasers $j(\omega_L)$ bestimmen kann. Die Motivation für diese Ausführungen ergibt sich aus dem Anspruch, die absorbierte Leistung eines Laserstrahls beim Passieren einer Pumpzelle erstmals theoretisch korrekt vorherzusagen.

Bei der Beschreibung der Wechselwirkung der ^3He -Atome mit dem Laserlicht muss die Maxwellsche Geschwindigkeitsverteilung berücksichtigt werden. Der Anteil der Atome in einer Geschwindigkeitsklasse v_k mit Breite Δv ist dann gegeben durch:

$$\frac{n_m(v_k)}{n_m^{ges}} = \sqrt{\frac{m_{He}}{2\pi \cdot k \cdot T}} \int_{v_k - \Delta v/2}^{v_k + \Delta v/2} \exp \left[-\frac{m_{He} \cdot v_z^2}{2 \cdot k \cdot T} \right] dv_z \quad (2.34)$$

Die Maxwellsche Geschwindigkeitsverteilung drückt die Wahrscheinlichkeit aus, ein oder mehrere Atome zu einem bestimmten Zeitpunkt in einer speziellen Geschwindigkeitsklasse zu

finden, wobei aber keine Aussagen über die Aufenthaltsdauer in einer Geschwindigkeitsklasse getroffen werden. Daneben unterliegen die mit v_z sich bewegenden Atome einer durch den Dopplereffekt verursachten Verschiebung der Resonanzfrequenzen:

$$\omega_{ij} \mapsto \omega_{ij} \cdot \left(1 + \frac{v_z}{c}\right) \quad (2.35)$$

Die Absorptionsrate $\gamma_{ij}(v_k)$ pro Atom in der Geschwindigkeitsklasse v_k ist mit der Gesamtleistungsdichte J über die Gleichung

$$\text{Absorptionsrate in der Geschwindigkeitsklasse } \mathbf{v}_k \quad \boxed{\gamma_{ij}(v_k) = \chi(v_k) \cdot J} \quad (2.36)$$

verknüpft, wobei der Faktor $\chi(v_k)$ analog zu Gleichung (2.14) gemäß

$$\chi(v_k) = \frac{\xi}{J} \frac{1}{\Delta v} \int_{v_k - \Delta v/2}^{v_k + \Delta v/2} dv_z \int_0^{+\infty} d\omega_L \frac{j(\omega_L)}{(\Gamma/2)^2 + [\omega_{ij}(1 + v_z/c) - \omega_L]^2} \quad (2.37)$$

bestimmt wird. Mit diesen Formeln kann man bei einem bekannten spektralen Profil des Lasers die Absorptionsrate $\gamma_{ij}(v_k)$ in jeder Geschwindigkeitsklasse berechnen. Hierbei beschreibt die Absorptionsrate $\gamma_{ij}(v_k)$, wie häufig ein Atom im Geschwindigkeitsintervall $v_k \pm \Delta v/2$ durch das Laserfeld angeregt wird.

Werden die metastabilen Atome als *ein* Ensemble betrachtet, berechnet sich die mittlere Absorptionsrate $\langle \gamma_{ij} \rangle$ aus der Faltung des Lorentz- und des Geschwindigkeitsprofils der ^3He -Atome:

$$\langle \gamma_{ij} \rangle \equiv \bar{\chi} \cdot J \equiv \xi \sqrt{\frac{m_{He}}{2\pi \cdot k \cdot T}} \int_{-\infty}^{+\infty} dv_z \int_0^{+\infty} d\omega_L \frac{j(\omega_L) \exp\left[-\frac{m_{He} \cdot v_z^2}{2 \cdot k \cdot T}\right]}{(\Gamma/2)^2 + [\omega_{ij}(1 + v_z/c) - \omega_L]^2} \quad (2.38)$$

Ist die Laserleistungsdichte in allen Geschwindigkeitsklassen gering, d.h. $\gamma_{ij}(v_k) \ll 10^7 \text{ s}^{-1}$, können geschwindigkeitsselektive Sättigungseffekte vernachlässigt werden. In diesem Fall müssen die metastabilen Atome nicht in verschiedene Geschwindigkeitsklassen eingeteilt werden, sodass die mittlere Absorptionsrate pro Atom bereits durch Gleichung (2.38) richtig beschrieben wird. Mithilfe der Kenntnis der mittleren Absorptionsrate kann man - wie später gezeigt wird - die in einer Pumpzelle absorbierte Leistung kalkulieren. Eine andere Situation herrscht hingegen bei hohen Leistungsdichten, wo die geschwindigkeitsselektiven Prozesse berücksichtigt werden müssen. Da eine Gliederung der metastabilen Atome in mehr als zwei Geschwindigkeitsklassen unter Berücksichtigung geschwindigkeitsverändernder Stöße für eine theoretische Formulierung zu komplex ist, unterteilt man die Atome nur in zwei Gruppen:

- Eine Gruppe mit dem Anteil $\beta(J)$ und der mittleren Absorptionsrate $\langle \gamma_{ij} \rangle_\beta$ wird vom Laserlicht beeinflusst.

- Die andere Gruppe mit dem Anteil $1 - \beta(J)$ wechselwirkt nicht mit dem Laserfeld.

Dabei werden $\beta(J)$ bzw. $\langle \gamma_{ij} \rangle_\beta$ iterativ in mehreren Schritten festgelegt:

Zu Beginn vernachlässigt man in nullter Näherung geschwindigkeitsverändernde Stöße. Diese Annahme ist bei hohen Laserleistungen ($\gamma_{ij} \gg 10^7 \text{ s}^{-1}$) gerechtfertigt, weil die Verweildauer der Atome innerhalb einer Geschwindigkeitsklasse wesentlich größer ist als die Zeitspanne zwischen zwei Photonenabsorptionsprozessen. Deshalb bleiben die Atome hinsichtlich der Absorptions-Zeitskala sehr lange in ihren Geschwindigkeitsklassen⁴⁾.

Im Folgenden wird im Vorgriff auf Experimente in Kapitel 6.1.2 das Absorptionsverhalten von unpolarisiertem C_8 -Laserlicht bei $P = 0$ genauer untersucht. Die entlang des Laserstrahls pro Länge absorbierte Lichtleistung hängt von der Absorptionsrate $1/\tau_{ij} = \gamma_{ij} \cdot T_{ij} = \chi \cdot J \cdot T_{ij}$ (siehe Gleichungen 2.13 und 2.36), der Besetzungszahldifferenz $a_i - b_j$ sowie der Energiedifferenz $\hbar\omega$ ab. Hierbei sind T_{ij} die in (2.1) tabellierten Übergangsmatrixelemente zwischen dem 2^3P - und dem 2^3S -Niveau. Wird beispielsweise mit Laserlicht selektiv vom Zustand A_5 nach B_{18} gepumpt, so ist die absorbierte Intensität gegeben durch

$$I_{abs} = \hbar\omega \gamma_{5,18} \cdot T_{5,18} \{a_5[\gamma_{5,18}] - b_{18}[\gamma_{5,18}]\} , \quad (2.39)$$

wobei die Besetzungszahlen selbst eine Funktion der Absorptionsrate sind. Das unpolarisierte C_8 -Licht kann durch eine Mischung gleicher Anteile an σ^+ - und σ^- -Licht beschrieben werden, woraus

$$J^{\sigma^+} = J^{\sigma^-} = J/2 \quad \Rightarrow \quad \gamma_{5,18}(v_k) = \gamma_{6,17}(v_k) = J/2 \cdot \chi(v_k)$$

folgt. Für die absorbierte Leistung über sämtliche Geschwindigkeitsklassen gilt dann unter Vernachlässigung geschwindigkeitsverändernder Stöße:

$$\begin{aligned} I_{abs}(\sum v_k) &= \hbar\omega \sum_{v_k} \gamma_{5,18}(v_k) T_{5,18} \{a_5[v_k, \gamma_{5,18}(v_k)] - b_{18}[v_k, \gamma_{5,18}(v_k)]\} \\ &\quad + \hbar\omega \sum_{v_k} \gamma_{6,17}(v_k) T_{6,17} \{a_6[v_k, \gamma_{6,17}(v_k)] - b_{17}[v_k, \gamma_{6,17}(v_k)]\} \\ &= 2 \hbar\omega \sum_{v_k} \gamma_{5,18}(v_k) T_{5,18} \{a_5[v_k, \gamma_{5,18}(v_k)] - b_{18}[v_k, \gamma_{5,18}(v_k)]\} \end{aligned} \quad (2.40)$$

In der letzten Zeile von Gleichung (2.40) wurde die Identität $T_{5,18} = T_{6,17} = 0.2931$ verwendet. Außerdem wurde ausgenutzt, dass bestimmte Zustände bei der Einstrahlung von unpolarisiertem Licht aus Symmetriegründen gleich stark besetzt sind; nämlich:

$$\begin{aligned} a_1 &= a_4 & a_2 &= a_3 \\ a_5 &= a_6 & b_{17} &= b_{18} \end{aligned} \quad (2.41)$$

4) Für geringe Laserleistungen ist diese Bedingung natürlich nicht erfüllt. Da die absorbierte Leistung bei geringen Laserintensitäten jedoch unabhängig von der Art und Weise ist, wie die geschwindigkeitsverändernden Stöße berücksichtigt werden (In diesem Regime gilt das Lambert-Beersche-Gesetz!), wirkt sich diese inkorrekte Annahme nicht aus.

Zur expliziten Bestimmung der absorbierten Laserleistung müssen als nächstes die Besetzungszahlen $a_5(v_k)$ und $b_{18}(v_k)$ bei gegebener Laserintensität für alle Geschwindigkeitsklassen berechnet werden. Dies geschieht, indem man die Ratengleichungen für metastabile Austauschstöße (2.11), für die Lichtwechselwirkung (2.15 und 2.16) und das collisional mixing (2.24) zusammenfasst und anschließend das resultierende Differentialgleichungssystem löst. Nach einigen Umformungen erhält man folgende Ausdrücke für die dynamische Entwicklung der Besetzungszahlen in Abhängigkeit der Absorptionsrate von unpolarisiertem C_8 -Licht:

$$\begin{aligned}
 \dot{a}_3 &= \frac{1}{\tau} \left[\frac{\mathfrak{I}}{2} b_{18} + \frac{3 - \mathfrak{I}/2}{16} b_s \right] + \frac{1}{\tau_e} [-9 a_3 + 3 a_4 + 6 a_5] \\
 \dot{a}_4 &= \frac{1}{\tau} \left[\frac{\mathfrak{I}}{2} b_{18} + \frac{3 - \mathfrak{I}/2}{16} b_s \right] + \frac{1}{\tau_e} [3 a_3 - 9 a_4 + 6 a_5] \\
 \dot{a}_5 &= \frac{2(1 - \mathfrak{I})}{3} \gamma_{ij} (a_5 - b_{18}) + \frac{1}{\tau} \left[(1 - \mathfrak{I}) b_{18} + \frac{2 + \mathfrak{I}}{16} b_s \right] \\
 &\quad + \frac{1}{\tau_e} [6 a_3 + 6 a_4 - 12 a_5] \\
 \dot{b}_s &= -\frac{b_s}{\tau} + \frac{32 b_{18} - 2 b_s}{18 \tau_{dep}} \\
 \dot{b}_{18} &= \frac{2(1 - \mathfrak{I})}{3} \gamma_{ij} (b_{18} - a_5) - \frac{b_{18}}{\tau} + \frac{b_s - 16 b_{18}}{18 \tau_{dep}}
 \end{aligned} \tag{2.42}$$

Diese Gleichungen beschreiben die Kinetik der Besetzungsdichten in allgemeiner Form ohne Berücksichtigung geschwindigkeitsverändernder Stöße. Zur Berechnung der gesuchten Größen $a_5(v_k)$ und $b_{18}(v_k)$ ersetzt man in Gleichung (2.42) folgende Variablen: $\gamma_{ij} = \gamma_{5,18}(v_k)$, $a_3 = a_3(v_k)$, $a_4 = a_4(v_k)$, $a_5 = a_5(v_k)$ sowie $b_{18} = b_{18}(v_k)$. Im dynamischen Gleichgewicht verschwinden die zeitlichen Ableitungen, sodass ein lineares Gleichungssystem entsteht, welches mit einem Computerprogramm wie zum Beispiel Mathematica mühelos gelöst werden kann. Nachdem die Besetzungszahlen für jede Geschwindigkeitsklasse bestimmt wurden, können die Resultate in Gleichung (2.40) eingesetzt und somit die gesamte absorbierte Leistung berechnet werden.

Die derart bestimmte absorbierte Leistung vernachlässigt - wie bereits mehrfach erwähnt - geschwindigkeitsverändernde Stöße. Eine Einbeziehung dieser Kollisionen ist jedoch nur durch eine idealisierte Aufteilung in zwei Gruppen mit sinnvollem Aufwand realisierbar. Werden die geschwindigkeitsverändernden Stöße weiterhin außer Acht gelassen, so liefern nur die mit dem Laserlicht wechselwirkenden Atome einen Beitrag zur mittleren Absorptionsrate $\langle \gamma_{ij} \rangle$. Da $\langle \gamma_{ij} \rangle$ jedoch die mittlere Absorptionsrate bezüglich aller Geschwindigkeitsklassen beschreibt, muss die Absorptionsrate in der mit dem Laserlicht wechselwirkenden Klasse entsprechend höher sein. Beschreibt β den Anteil der Geschwindigkeitsklassen, die mit dem Laserlicht wechselwirken können, so folgt mithilfe von Gleichung (2.38) der Zusammenhang zwischen der mittleren Absorptionsrate $\langle \gamma_{ij} \rangle$ (bezogen auf sämtliche Geschwindigkeitsklassen) und der mittleren Absorptionsrate $\langle \gamma_{ij} \rangle_\beta$ (bezogen auf die mit dem Laserlicht

wechselwirkenden Gruppen):

$$\begin{array}{l} \text{Absorptionsrate in der} \\ \text{mit dem Laserlicht} \\ \text{wechselwirkenden Gruppe} \end{array} \quad \boxed{\langle \gamma_{ij} \rangle_{\beta} = \frac{\langle \gamma_{ij} \rangle}{\beta(J)} = \frac{\bar{\chi} \cdot J}{\beta(J)}} \quad (2.43)$$

In dieser Beziehung drückt $\beta(J)$ aus, dass der mit dem Laserlicht wechselwirkende Anteil der metastabilen Atome von der eingestrahnten Leistungsdichte abhängt.

Mit den Formeln (2.32) und (2.43) ist es nunmehr möglich, die absorbierte Leistung $\langle I_{abs} \rangle$ über die mittlere Absorptionsrate $\langle \gamma_{i,j} \rangle_{\beta}$ zu bestimmen. In Anlehnung an Ansatz (2.40) erhält man schließlich folgenden Ausdruck:

$$\begin{aligned} \langle I_{abs} \rangle &= 2 \hbar \omega \langle \gamma_{5,18} \rangle_{\beta} T_{5,18} \{a_5^* [\langle \gamma_{5,18} \rangle_{\beta}] - b_{18}^* [\langle \gamma_{5,18} \rangle_{\beta}]\} \\ &= 2 \hbar \omega \beta \langle \gamma_{5,18} \rangle_{\beta} T_{5,18} \{a_5 [\langle \gamma_{5,18} \rangle_{\beta}] - b_{18} [\langle \gamma_{5,18} \rangle_{\beta}]\} \end{aligned} \quad (2.44)$$

Zur Bestimmung der noch unbekannten Größen a_5 und b_{18} wird in Gleichung (2.42) γ_{ij} durch $\langle \gamma_{5,18} \rangle_{\beta}$ ersetzt und die Besetzungszahlen im Gleichgewicht kalkuliert. Das Ziel der Berechnungen ist, den Parameter β solange zu variieren, bis die beiden absorbierten Leistungen $\langle I_{abs} \rangle$ und $I_{abs}(\sum v_k)$ identisch sind.

Ist β auf diese Art bestimmt worden, können die geschwindigkeitsverändernden Stöße als „Störungsterm“ bzw. „Korrekturterm“ in der Form von (2.33) in das Gleichungssystem (2.42) integriert werden. Die vollständigen Ratengleichungen werden im nächsten Unterkapitel präsentiert.

Der Parameter β wurde für vier spektrale Laserprofile berechnet:

- Single-frequency-Laser (sf-Laser)
- gaußförmiges Profil mit $\Delta\nu = 1$ GHz (FWHM)
- gaußförmiges Profil mit $\Delta\nu = 2$ GHz (FWHM)
- gaußförmiges Profil mit $\Delta\nu = 3$ GHz (FWHM)

Die Ergebnisse werden in Abbildung (2.7) dargestellt. Insbesondere für den Single-frequency-Laser zeigt der Parameter β eine deutliche Abhängigkeit von der Leistungsdichte J . So variiert β bei Leistungsdichten $\lesssim 0.1$ W/cm² zwischen 0.03 und 0.05. Steigt die Leistungsdichte dagegen auf 100 W/cm² an, beträgt $\beta \approx 0.4$. In der Vergangenheit wurde β immer als konstant betrachtet und für einen Single-frequency-Laser zumeist Werte zwischen 0.01 und 0.05 verwendet. Dieser Fehler ist einer der Hauptursachen, weshalb die theoretische Beschreibung des Absorptionsverhaltens nicht mit den experimentellen Daten übereinstimmte. Betrachtet man das Verhalten von Lasern mit einer spektralen Breite von mehr als 2.0 GHz (FWHM), verändert sich β nur unwesentlich zwischen 0.9 und 1.

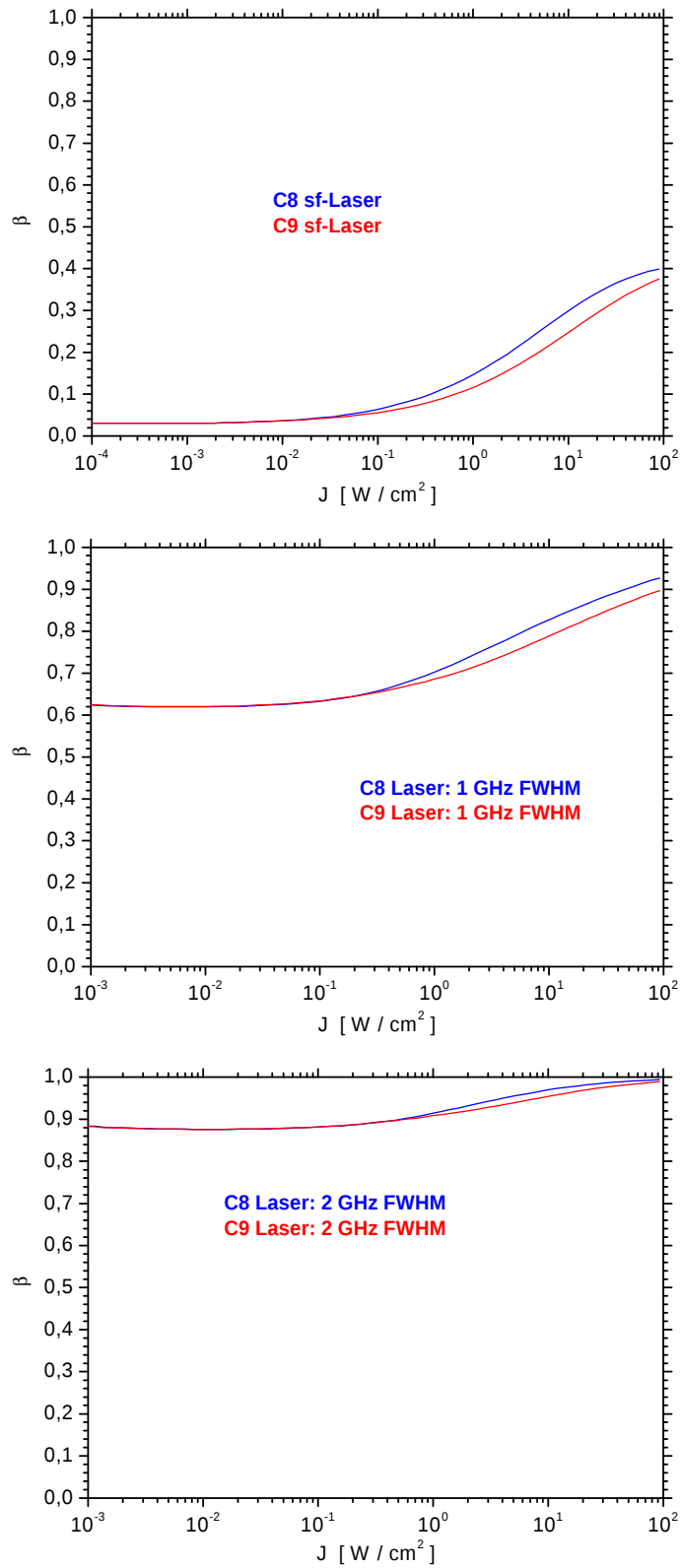


Abbildung 2.7: Illustration der Abhängigkeit des Anteils β der mit dem Laser wechselwirkenden Atome von der Leistungsdichte J für drei spektrale Laserprofile auf den Hyperfeinübergängen C_8 und C_9 bei $P = 0$.

	$1/\beta$ [C ₈]	$1/\beta$ [C ₉]	$\bar{\chi}$ $\left[\frac{\text{m}^2}{\text{Ws}}\right]$
Single-frequency	$2.7 + \frac{30.5}{1 + \left(\frac{J}{700}\right)^{0.75}}$	$2.7 + \frac{30.5}{1 + \left(\frac{J}{1050}\right)^{0.66}}$	3691
Gauß (1 GHz)	$2.7 + \frac{0.57}{1 + \left(\frac{J}{25000}\right)^{0.75}}$	$2.7 + \frac{0.57}{1 + \left(\frac{J}{50000}\right)^{0.66}}$	3307
Gauß (2 GHz)	$1 + \frac{0.14}{1 + \left(\frac{J}{20000}\right)^{1.00}}$	$1 + \frac{0.14}{1 + \left(\frac{J}{40000}\right)^{0.75}}$	2602
Gauß (3 GHz)	≈ 1	≈ 1	2035

Tabelle 2.4: Interpolierte Abhängigkeit des Parameters $1/\beta$ von der Leistungsdichte J für vier spektrale Laserprofile auf den Hyperfeinübergängen C_8 und C_9 . Die Fitfunktion beschreibt den Parameter β ausschließlich für $P = 0$.

Um den Kurvenverlauf zu parametrisieren, wurden die simulierten Daten durch eine sigmoide Funktion der Gestalt

$$\frac{1}{\beta} = a + \frac{b}{1 + \left(\frac{J}{c}\right)^d} \quad (2.45)$$

angepasst, wobei a , b , c und d die aus einem Least-Squares-Fit bestimmten Variablen sind. Die unterschiedlichen Fitfunktionen sind in Tabelle (2.4) zusammengefasst. Anhand der Diagramme wird sichtbar, dass der Anteil der mit dem Laserlicht wechselwirkenden metastabilen Atome vom gewählten Hyperfeinübergang geringfügig beeinflusst wird. Diese kleine Abweichung kann erwartet werden, weil sich - streng genommen - kein sinnvolles physikalisches Merkmal definieren lässt, ab dem ein metastabiles Atom Laserlicht absorbiert. Deshalb wurde bei der hier vorgestellten Methode auch keine diesbezügliche Unterscheidung formuliert. Stattdessen wurde gefordert, dass die absorbierte Leistung ohne geschwindigkeitsverändernde Stöße unabhängig vom Rechenweg sein soll. Hieraus folgt letztlich die Vorschrift zur Bestimmung von β , die nach Möglichkeit an die physikalische Fragestellung angelehnt sein sollte (Diese Fragestellung ist im Falle der Absorption die korrekte Berechnung der Besetzungszahldifferenz $a_5 - b_{18}$).

Ist man beispielsweise an der erreichbaren Gleichgewichtspolarisation mit einem Single-frequency-Laser interessiert, ist die Gleichheit der absorbierten Leistung nicht besonders geeignet. In diesem Zusammenhang sollte der in Gleichung (2.11) formulierte Polarisationsübertrag von den metastabilen auf die Grundzustandsatome bei beiden Methoden identisch sein:

$$\sum_{v_k} \sum_{i=1}^6 \lambda_i a_i [v_k, \gamma_{ij}(v_k)] = \sum_{i=1}^6 \lambda_i a_i [\langle \gamma_{ij} \rangle_\beta] \quad (2.46)$$

Diese Berechnung gestaltet sich jedoch wesentlich komplizierter, weil β nun eine Funktion der Leistungsdichte und der Polarisation ist. Andererseits lassen die geringfügigen Abweichungen zwischen dem C_8 - und dem C_9 -Pumpen den Schluss zu, dass die Berücksichtigung der Polarisation das Verhalten von β nicht grundsätzlich ändern wird. Eine genauere Analyse

zur Beschreibung der experimentellen Daten ist nicht notwendig, da Polarisationsmessungen in der vorliegenden Dissertation nur mit spektral breiten Lasern ($\Delta\nu \geq 2.0$ GHz) durchgeführt wurden, sodass $\beta \approx 1$ durchwegs ist.

2.6 Die Gleichungen des Polarisationsprozesses

Nachdem alle relevanten Mechanismen des metastabilen optischen Pumpens von ^3He dargelegt wurden, sollen nun die Ratengleichungen der einzelnen Prozesse zusammengefasst werden. Auf den nachfolgenden vier Gleichungssystemen basieren sämtliche Polarisationskalkulationen in dieser Arbeit.

Für die nicht mit dem Laserlicht wechselwirkenden metastabilen Atome A_i haben die Gleichungen die Form:

$$\dot{a}_i^o = \frac{1}{\tau_r} \left[\sum_{j=1}^6 \frac{a_j^o}{6} - a_i^o \right] + \frac{1}{\tau_c} [(1 - \beta) a_i^* - \beta a_i^o] + \frac{1}{\tau_e} \sum_{l=1}^6 [E_{il} + F_{il} P] a_l^o \quad (2.47)$$

Hierbei beschreibt der erste Summand die Relaxation der Orientierung der metastabilen Atome, der zweite Summand drückt die Dynamik der geschwindigkeitsverändernden Stöße aus und der dritte Term stellt schließlich die Kinetik der metastabilen Austauschstöße dar. Hingegen muss man für die durch den Laser gepumpten metastabilen Atome zusätzlich die Absorption der Photonen sowie die spontane und induzierte Emission aus den 2^3P -Zuständen berücksichtigen:

$$\begin{aligned} \dot{a}_i^* = & \frac{1}{\tau_r} \left[\sum_{j=1}^6 \frac{a_j^*}{6} - a_i^* \right] + \frac{1}{\tau_c} [\beta a_i^o - (1 - \beta) a_i^*] + \frac{1}{\tau_e} \sum_{l=1}^6 [E_{il} + F_{il} P] a_l^* \\ & + \sum_{j=1}^{18} T_{ij} \left[\left(\langle \gamma_{ij} \rangle_\beta + \frac{1}{\tau} \right) b_j - \langle \gamma_{ij} \rangle_\beta a_i^* \right] \end{aligned} \quad (2.48)$$

Die zeitliche Entwicklung der Besetzungszahlen in den 2^3P -Zuständen ergibt sich aus der Absorption und Emission der Lichtquanten und des collisional mixing:

$$\dot{b}_j = \sum_{i=1}^6 T_{ij} \left[\langle \gamma_{ij} \rangle_\beta a_i^* - \left(\langle \gamma_{ij} \rangle_\beta + \frac{1}{\tau} \right) b_j \right] + \frac{1}{\tau_{dep}} \left[\sum_{l=1}^{18} \frac{b_l}{18} - b_j \right] \quad (2.49)$$

Zuletzt ist die Zeitentwicklung der Polarisation gegeben durch die Gleichung:

$$\dot{P} = -\frac{P}{T_r} + \frac{1}{T_e} \left[-P + \frac{1}{n_m^* + n_m^o} \sum_i \lambda_i (a_i^o + a_i^*) \right] \quad (2.50)$$

2.7 Das Spintemperaturgleichgewicht

In diesem Abschnitt werden die Gleichungen des metastabilen optischen Pumpens (2.47-2.50) für den Spezialfall niedriger Leistungsdichten analysiert. Man spricht von niedrigen Leistungsdichten, wenn die mittlere Photonen-Absorptionsrate $\langle \gamma_{ij} \rangle_\beta$ wesentlich geringer ist als die Fluoreszenzrate $1/\tau = 1.02 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ und die metastabile Austauschrate $1/\tau_e \approx 10^6 - 10^7 \text{ s}^{-1}$:

$$\langle \gamma_{ij} \rangle_\beta \ll \frac{1}{\tau} \quad \wedge \quad \langle \gamma_{ij} \rangle_\beta \ll \frac{1}{\tau_e} \quad (2.51)$$

Sind beide Bedingungen erfüllt, so sind die 2^3P -Niveaus näherungsweise unbesetzt, weil durch die spontane Emission das P-Niveau viel schneller entleert wird als es durch das Laserlicht bevölkert werden kann. Somit sind die Zustandsdichten b_j beinahe null. Da weiterhin $\langle \gamma_{ij} \rangle_\beta$ gegenüber $1/\tau_e$ vernachlässigbar ist, kann man die Gleichung (2.48) auf die Form

$$\dot{a}_i = \frac{1}{\tau_e} \sum_{l=1}^6 [E_{il} + F_{il} P] a_l \quad (2.52)$$

reduzieren. Dieses Gleichungssystem strebt mit einer Zeitkonstanten τ_e in den Gleichgewichtszustand $\dot{a}_i = 0$ mit den Lösungen:

$$\boxed{\begin{aligned} a_2 &= a_5 \\ a_3 &= a_6 \\ x \equiv \frac{g_1}{g_2} &= \frac{a_1}{a_2} = \frac{a_2}{a_3} = \frac{a_3}{a_4} = \frac{1+P}{1-P} \end{aligned}} \quad (2.53)$$

Es ist also mit einem einzigen Parameter x möglich, sowohl das Verhältnis der Besetzungsdichten im Grundzustand als auch im metastabilen Zustand zu darzustellen. Wenn man x durch eine Exponentialfunktion

$$x \equiv e^\varsigma \quad (2.54)$$

ausdrückt, so kann eine exponentielle Abhängigkeit der Besetzungszahldichte n von der magnetischen Quantenzahl m_F formuliert werden:

$$n(m_F) \propto e^{\varsigma m_F} \quad (2.55)$$

Wird ς durch die Variablen der Zeeman-Aufspaltung (μ_K : Kernmagneton, g_F : Landéfaktor, k : Boltzmann-Konstante, B : Magnetfeld, T_S : „Temperatur“) ersetzt

$$\varsigma \equiv -\frac{\mu_K g_F B}{k T_S}, \quad (2.56)$$

so entspricht die Abhängigkeit der Besetzungszahldichte von der m_F -Quantenzahl einer Boltzmann-Gleichgewichts-Verteilung mit dem Temperatur-Parameter T_S . Hierbei wird T_S

in Analogie zur Boltzmann-Statistik als Spintemperatur bezeichnet⁵⁾. Trotz der Ähnlichkeiten ist zu beachten, dass die Spintemperatur keineswegs eine Art Teilchenbewegung oder Spindynamik beschreibt. Im Gegensatz zur kinetischen Temperatur ist die Spintemperatur auch keine thermodynamische Größe, weil beispielsweise durch optisches Pumpen eine Besetzungsinversion erreicht werden kann, die mit einer negativen Spintemperatur verknüpft ist.

Die herausragende Bedeutung des Spintemperaturgleichgewichts ergibt sich aus der Möglichkeit, mit einem einzigen Parameter die Verteilung der Besetzungszahlen in den einzelnen Zuständen zu beschreiben. Mithilfe von Gleichung (2.53) können die Besetzungsdichten der metastabilen Zustände bei gegebener Gesamtmetastabilendichte n_m sofort berechnet werden:

$$\begin{aligned} a_1 &= \frac{x^3}{1 + 2x + 2x^2 + x^3} n_m \\ a_2 &= a_5 = \frac{x^2}{1 + 2x + 2x^2 + x^3} n_m \\ a_3 &= a_6 = \frac{x}{1 + 2x + 2x^2 + x^3} n_m \\ a_4 &= \frac{1}{1 + 2x + 2x^2 + x^3} n_m \end{aligned} \quad (2.57)$$

Des Weiteren ermöglicht das Spintemperaturgleichgewicht eine alternative Formulierung des Polarisationsprozesses für Laserleistungsdichten unterhalb der Sättigungsleistung, die einen analytischen Ausdruck für die erreichbare Gleichgewichtspolarisation in Abhängigkeit der absorbierten Laserleistung, der Teilchendichte sowie der Relaxationszeit ergibt. Für das optische Pumpen auf dem C_9 -Übergang soll die Beschreibung im Spintemperaturgleichgewicht exemplarisch demonstriert werden. Dabei wird zur Vereinfachung in guter Näherung von einem vollständigen collisional mixing ausgegangen:

Wird ein zirkular polarisiertes Photon (σ^+) der C_9 -Linie absorbiert und reemittiert, so ergibt sich für das Atom ein mittlerer Drehimpulsgehalt von

$$\overline{\Delta L}_{ges} = \overline{\Delta L}_{re} - \overline{\Delta L}_{abs} \quad (2.58)$$

Wenn die Reemission aufgrund des collisional mixing isotrop ist, bleibt $\overline{\Delta L}_{re} = 0$. Sind die Zeeman-Niveaus gleichbesetzt, d.h. die Polarisation $P = 0$, dann berechnet sich der Drehimpulsübertrag durch das absorbierte σ^+ -Photon zu

$$\begin{aligned} \overline{\Delta L}_{abs}(P = 0) &= -\overline{\Delta L}_{ges}(P = 0) = -\sum_{m_F} m_F \hbar \gamma(m_F) \\ &= + \left[\frac{3\hbar}{2} \cdot \frac{3}{4} + \frac{\hbar}{2} \cdot \frac{1}{4} \right] = +\frac{5}{4} \hbar, \end{aligned} \quad (2.59)$$

5) Die früheste gefundene Erwähnung des Begriffs Spintemperatur findet sich in [And59].

wo $\Upsilon(m_F)$ die normierte Übergangswahrscheinlichkeit darstellt (siehe Tabelle 2.1). Dabei schließt die Summe lediglich die Zustände des 2^3S_1 -Niveaus ein, die ein σ^+ -Photon der C_9 -Resonanz absorbieren können. Dies sind die Unterniveaus $m_F = -3/2$ und $m_F = -1/2$. Bei endlicher Polarisation muss die unterschiedliche Besetzung der Zeeman-Niveaus berücksichtigt werden, die in den Gleichungen (2.57) angegeben ist. Der Drehimpulsgewinn in Abhängigkeit der Polarisation ist nun

$$\overline{\Delta L}_{ges}(x) = \frac{\hbar}{8} \frac{9+x}{1+2x+2x^2+x^3} \cdot \text{norm} \quad (2.60)$$

Aus der Bedingung $\overline{\Delta L}_{ges}(P=0) = \overline{\Delta L}_{ges}(x=1) = 5/4 \hbar$ folgt schließlich $\text{norm} = 6$. Die Gleichungen (2.59) und (2.60) gelten für die Absorption eines Photons. Wird bei $P=0$ eine mittlere Photonenabsorptionsrate γ_{abs}^0 angenommen, so folgt beim Aufpolarisationsprozess insgesamt eine Drehimpulsänderung von

$$\dot{L}_{auf} = \gamma_{abs}^0 \frac{3\hbar}{4} \frac{9+x}{1+2x+2x^2+x^3}. \quad (2.61)$$

Da durch die enge Kopplung zwischen metastabilem Zustand und Grundzustand wegen der Austauschstöße jede Drehimpulsänderung im angeregten Niveau eine Besetzungsänderung im Grundzustand bedeutet, gilt:

$$\dot{g}_1 V = \frac{1}{\hbar} \dot{L} \quad \text{V: Volumen der Pumpzelle} \quad (2.62)$$

Mithilfe der Beziehung (2.3) kann man aus der zeitlichen Änderung von g_1 auf die zeitliche Änderung der Polarisation schließen:

$$\dot{P} = \frac{2}{n_g} \dot{g}_1 \quad (2.63)$$

Daraus folgt für die Polarisationsänderung

$$\dot{P}_{auf} = \frac{2}{n_g V \hbar} \dot{L}_{auf}. \quad (2.64)$$

Dem Zugewinn an Drehimpuls durch das optische Pumpen stehen andererseits Verluste durch Relaxationsprozesse

$$\dot{P}_{rel} = -\frac{1}{T_r} P \quad (2.65)$$

gegenüber, die durch die Relaxationszeit T_r berücksichtigt werden. Insgesamt ergibt sich eine resultierende Polarisationsänderung von

$$\begin{aligned} \dot{P}_{ges} &= \dot{P}_{auf} + \dot{P}_{rel} \\ &= \frac{3\gamma_{abs}^0}{2n_g V} \frac{9+x}{1+2x+2x^2+x^3} - \frac{1}{T_r} \frac{x-1}{x+1} \quad \text{mit} \quad P = \frac{x-1}{x+1} \end{aligned}$$

(2.66)

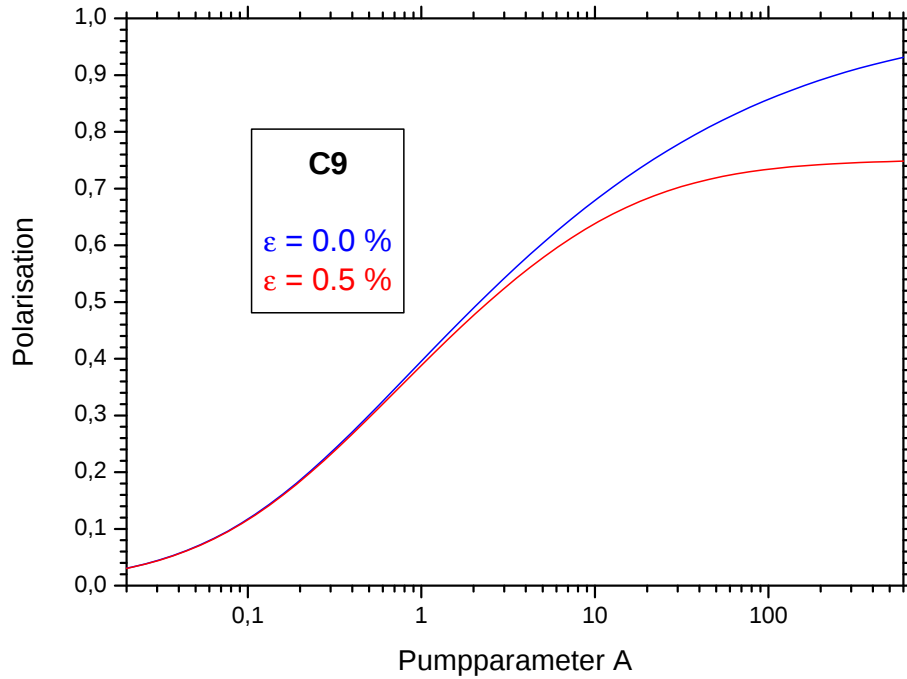


Abbildung 2.8: Erreichbare Sättigungspolarisation in Abhängigkeit des Pumpparameters A für zwei unterschiedliche Lichtpolarisationen.

Diese Bilanzgleichung hängt somit von drei experimentell direkt zugänglichen Größen ab:

- Die bei $P = 0$ absorbierte Photonenrate γ_{abs}^0 berechnet sich aus der absorbierten Pumplichtleistung I_{abs}^0 . Es gilt: $I_{abs}^0 = \gamma_{abs}^0 \cdot \hbar \omega$
- Die Anzahl der Atome $n_g \cdot V$ in der Pumpzelle ist über den Druck p und das Volumen V gegeben.
- Die Relaxationszeit T_r in der Gasentladung bestimmt man über den Polarisationszerfall nach Abschalten der Pumplichtquelle.

Die sich im dynamischen Gleichgewicht einstellende Sättigungspolarisation ($\dot{P} = 0$) ist eine Funktion dieser drei Größen in der Kombination

$$A \equiv \frac{\gamma_{abs}^0 T_r}{n_g V} = \frac{2}{3} \frac{x^3 - 1}{9 + x} \quad (2.67)$$

Die Größe A wird häufig als *Pumpparameter* bezeichnet. Neben der Relaxation wirken auch geringe Intensitätsanteile ε von σ^- -Licht

$$\varepsilon = \frac{I(\sigma^-)}{I_{ges}}, \quad (2.68)$$

6) Die beiden Photonenabsorptionsraten γ_{abs}^0 und $\langle \gamma_{ij} \rangle_\beta$ haben unterschiedliche Bedeutungen. $\langle \gamma_{ij} \rangle_\beta$ gibt an, mit welcher Rate ein bestimmtes Atom bei gegebener Laserleistungsdichte angeregt werden kann. Dagegen beschreibt γ_{abs}^0 die Anzahl der absorbierten Photonen pro Zeit. Diese Größe hängt sowohl von der Laserleistung als auch von der Metastabilendichte ab.

insbesondere bei hohen Polarisationswerten dem weiteren Polarisationsaufbau entgegen. Ihre Berücksichtigung führt auf den C_8 - und C_9 -Übergängen zu folgenden Ergebnissen (ohne Rechnung, siehe z.B. [Eck92]):

$$\begin{array}{lcl} C_8 : & A = \frac{x^3 - 1}{6x - \varepsilon(6x - 6x^2)} \\ C_9 : & A = \frac{2}{3} \frac{x^3 - 1}{9 + x - \varepsilon(9 + x + x^2 + 9x^3)} \end{array} \quad (2.69)$$

In Abbildung (2.8) ist die erreichbare C_9 -Gleichgewichtspolarisation als Funktion des Pumpparameters A für zwei Lichtpolarisationen dargestellt. Aufgrund der starken Abhängigkeit des falschen zirkularen Lichtanteils ε müssen zum Erreichen hoher Kernspinpolarisationsgrade erhebliche Anforderungen an die Polarisation des Laserlichts gestellt werden, die im nächsten Kapitel ausführlich erörtert werden.

Obgleich die in Abbildung (2.8) gezeigten Resultate nur im Rahmen des Spintemperaturgleichgewichts gelten, demonstrieren sie jedoch eindrucksvoll die Notwendigkeit, dass die Zirkularpolarisation des Lichts möglichst 100% betragen soll. In Kapitel 6.2.3 werden die Ergebnisse des Spintemperaturgleichgewichts mit dem vollständigeren Modell verglichen und die Anwendungsgrenzen erläutert.

2.8 Zusammenfassung

Das in diesem Kapitel vorgestellte Modell des metastabilen Pumpens ist das bisher umfassendste seiner Art. Es orientiert sich an den von P.-J. Nacher [Nac85] aufgestellten Ratengleichungen. Darüber hinaus wurden in dieser Arbeit erstmals geschwindigkeitsverändernde Stöße berücksichtigt und ein neues Verfahren zur Berechnung der mittleren Absorptionsrate entwickelt.

Auch wenn bestimmte Phänomene wie z.B. collisional mixing, Einteilung der metastabilen Atome in zwei Gruppen vereinfachend beschrieben sind, so liefert das Modell dennoch einen tiefen Einblick in die einzelnen Prozesse. Am wichtigsten ist jedoch die Tatsache, dass die Polarisationsabhängigkeit für unterschiedliche Metastabilendichten, Relaxationszeiten und Laserleistungsdichten trotz der vereinfachenden Annahmen gut vorausgesagt werden kann. Dieser Sachverhalt wird in Kapitel 6 ausführlich diskutiert werden.

3 Optische Grundlagen

Im vorangegangenen Kapitel wurde der Einfluss einer falschen zirkular polarisierten Lichtkomponente auf die Kernspinpolarisation dargestellt (siehe Abbildung 2.8). Das Licht soll demnach im Idealfall zu 100% zirkular polarisiert sein, um hohe Kernspinpolarisationsgrade realisieren zu können. Im Folgenden wird mit dem so genannten Stokes-Kalkül eine Methode vorgestellt, die sowohl eine anschauliche mathematische Beschreibung des Polarisationszustandes des Lichts erlaubt als auch vorgibt, wie man den Polarisationszustand experimentell bestimmen kann. Anschließend werden die Eigenschaften der einzelnen optischen Elemente diskutiert.

3.1 Optische Elemente

3.1.1 Das Stokes-Kalkül

Quasimonochromatisches Licht lässt sich durch die Feldstärkevektoren

$$\begin{aligned} E_x(t) &= \hat{E}_x \cos(\omega t + \delta_x) \\ E_y(t) &= \hat{E}_y \cos(\omega t + \delta_y) \end{aligned} \quad (3.1)$$

eindeutig beschreiben. Da man bei experimentellen Untersuchungen eines Lichtstrahls jedoch primär auf Intensitätsmessungen beschränkt ist, hat man keine direkte Messmöglichkeit der vier Parameter $\hat{E}_x$, $\hat{E}_y$, δ_x und δ_y . Einen Ausweg bieten die von G. G. Stokes bereits im Jahre 1852 eingeführten Vektoren [Jac85], deren vier Komponenten Intensitäten darstellen und den Lichtzustand ebenfalls eindeutig charakterisieren. Bezeichne $\delta^{(1)}$ die Differenz zwischen δ_x und δ_y

$$\delta \equiv \delta_x - \delta_y, \quad (3.2)$$

so lautet die Definition des Stokes-Vektors:

$$\vec{V} \equiv \begin{pmatrix} I \\ M \\ C \\ S \end{pmatrix} \equiv \begin{pmatrix} \hat{E}_x^2 + \hat{E}_y^2 \\ \hat{E}_x^2 - \hat{E}_y^2 \\ 2 \hat{E}_x \hat{E}_y \langle \cos \delta \rangle \\ 2 \hat{E}_x \hat{E}_y \langle \sin \delta \rangle \end{pmatrix} \quad (3.3)$$

Hierbei bezeichnen die spitzen Klammern die Mittelung über ein makroskopisches Zeitintervall Δt , d.h. $\Delta t \cdot \omega \gg 1$. Im Allgemeinen werden die auf I normierten Stokes-Parameter verwendet. Für unpolarisiertes Licht ist $E_x^2 = E_y^2$, $\langle \cos \delta \rangle = 0$ und $\langle \sin \delta \rangle = 0$ zu setzen, sodass für die normierten Komponenten $\bar{I} = I/I = 1$ und $\bar{M} = \bar{C} = \bar{S} = 0$ gilt.

1) Durch die Differenzbildung wird die Zahl der Parameter scheinbar auf drei reduziert. Dies ist inkorrekt, weil δ weiterhin aus zwei Parametern besteht - dem Betrag sowie dem Vorzeichen.

In vektorieller Darstellung ist also für natürliches Licht

$$\vec{V}_N = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (3.4)$$

zu schreiben. Für linear polarisiertes Licht, das in x-Richtung schwingt, ist $E_y = 0$; für linear polarisiertes Licht, welches in y-Richtung schwingt, ist $E_x = 0$. Für linear polarisiertes Licht, das unter 45° gegenüber der x-Achse schwingt, ist $E_x = E_y$ und $\delta = 0$; für linear polarisiertes Licht, das unter -45° gegenüber der x-Achse schwingt, ist $E_x = E_y$ und $\delta = \pi$. Die normierten Stokes-Vektoren lauten:

$$\vec{V}_x = \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad \vec{V}_y = \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad \vec{V}_{45^\circ} = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad \vec{V}_{-45^\circ} = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ -1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (3.5)$$

Rechtszirkular polarisiertes Licht ist durch $E_x = E_y$ und $\delta = \pi/2$, linkszirkular polarisiertes Licht durch $E_x = E_y$ und $\delta = -\pi/2$ charakterisiert. Als Vektoren ergeben sich daraus:

$$\vec{V}_R = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}, \quad \vec{V}_L = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ -1 \end{pmatrix} \quad (3.6)$$

Zur Beschreibung des Polarisationszustands kann man auch die *Poincaré-Kugel* benutzen [Shu64]. Hierbei werden die Stokes-Parameter M , C und S als kartesische Koordinaten eines Punktes auf einer Kugel mit dem Radius $P = \sqrt{M^2 + C^2 + S^2}/I$ betrachtet:

$$\begin{aligned} M &= P \cos \theta \cos \phi \\ C &= P \cos \theta \sin \phi \\ S &= P \sin \theta \end{aligned} \quad (3.7)$$

Der Radius P liegt zwischen null und eins und gibt den Polarisationsgrad des Lichts an (weitere Erklärungen folgen im Text). Den Winkel ϕ benutzt man wie eine „geografische Länge“, den Winkel θ wie eine „geografische Breite“. Rechtselliptisch polarisiertes Licht wird durch Punkte auf der oberen Halbkugel dargestellt, rechtszirkular polarisiertes Licht ist durch den „Nordpol“ der Kugel bestimmt. Linear polarisiertes Licht wird durch Punkte in der Äquatorebene beschrieben. Für die untere Halbkugel ergeben sich die entsprechenden linkselliptischen oder linkszirkularen Zustände.

Eine direkte Analyse der Stokes-Komponenten ist vergleichsweise einfach. $I(M)$ bestimmt man durch die Summe (Differenz) der Intensitäten nach Durchgang eines in z-Richtung propagierenden Lichtstrahls durch einen unter 0° bzw. 90° zur x-Achse gedrehten Polarisator. C ist durch die Differenz der Intensitäten eines unter 45° und -45° zur x-Achse gedrehten

Polarisators gegeben. Zur Messung von S muss der zu prüfende Lichtstrahl zunächst in x-Richtung einer Phasenverzögerung von $\lambda/4$ unterworfen werden. Anschließend wird die Differenz der Intensitäten durch einen unter 45° und -45° zur x-Achse gedrehten Polarisator gemessen.

Die Stokes-Vektoren erlauben die Beschreibung einer inkohärenten, d.h. phasenunkorrelierten, Überlagerung von Lichtzuständen durch einfache Summation der einzelnen Vektoren. Dies lässt sich leicht einsehen: Addiert man beispielsweise die beiden Stokes-Vektoren $\vec{V}_x$ und $\vec{V}_y$, so erhält man $2\vec{V}_N$. Nach der Definition von $\vec{V}$ stellt dies jedoch einen vollständig unpolarisierten Zustand dar. Dasselbe Ergebnis erhielte man bei inkohärenter Überlagerung der entsprechenden Lichtwellen. Eine kohärente Superposition von Lichtwellen ist im Stokes-Kalkül allerdings nicht trivial durchzuführen, weil in diesem Fall die elektrischen Feldstärken betrachtet werden müssen und nicht die Intensitäten. Hier wären so genannte Jones-Vektoren gut geeignet [Hec01].

Um aus dem Stokes-Vektor den Polarisationsgrad des Lichts zu berechnen, beschreibt man das Licht als inkohärente Überlagerung eines vollständig polarisierten Anteils $\vec{V}_p$ und eines absolut unpolarisierten Anteils $\vec{V}_N$:

$$\vec{V} = \vec{V}_N + \vec{V}_p = \begin{pmatrix} I_N + I_p \\ M \\ C \\ S \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} I_N \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} I_p \\ M \\ C \\ S \end{pmatrix} \quad (3.8)$$

Das polarisierte Licht besitzt eine feste Phasenkorrelation, sodass der Erwartungswert der Phase $\langle\delta\rangle$ identisch mit der Phase δ ist. Mithilfe der Definition des Stokes-Vektors (3.3) folgt dann:

$$\begin{aligned} M^2 + C^2 + S^2 &= \hat{E}_x^4 + \hat{E}_y^4 - 2\hat{E}_x^2\hat{E}_y^2 + 4\hat{E}_x^2\hat{E}_y^2(\cos^2\delta + \sin^2\delta) \\ &= (E_x^2 + E_y^2)^2 \\ &= I_p^2 \end{aligned} \quad (3.9)$$

Wenn man den Polarisationsgrad P des Lichts als Quotient der Intensität des polarisierten Lichtes I_p zur Gesamtintensität I definiert, erhält man:

$$P \equiv \frac{I_p}{I} = \frac{\sqrt{M^2 + C^2 + S^2}}{I} \quad (3.10)$$

Für das optische Pumpen ist die Kenntnis des Zirkularpolarisationsgrades P_{zir}

$$P_{zir} \equiv \frac{S}{I} \quad (3.11)$$

des Lichts bzw. der Intensitätsanteil der falschen Zirkularkomponente ε von Bedeutung. Zur Berechnung des falschen Zirkularanteils beschreibt man wieder den Stokes-Vektor als

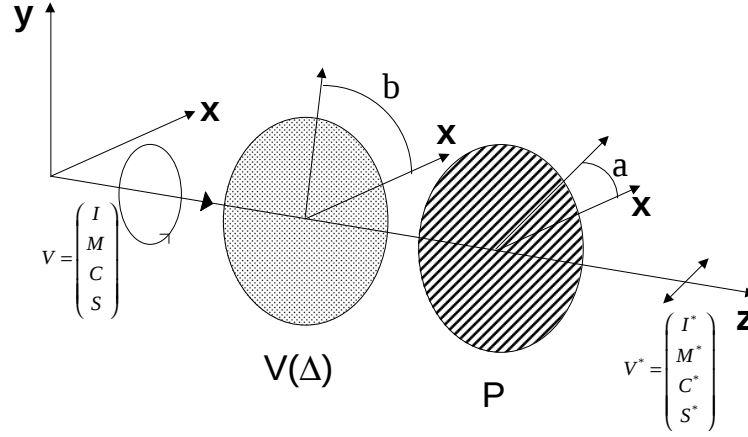


Abbildung 3.1: Prinzipieller Aufbau zum Nachweis des Polarisationszustandes.

inkohärente Überlagerung von reinem Zirkularlicht $\vec{V}_{zir}$ und nicht zirkular polarisiertem Licht $\vec{V}_{nzir}$:

$$\vec{V} = \vec{V}_{zir} + \vec{V}_{nzir} = \begin{pmatrix} I_{zir} + I_{nzir} \\ M \\ C \\ I_{zir} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} I_{zir} \\ 0 \\ 0 \\ I_{zir} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} I_{nzir} \\ M \\ C \\ 0 \end{pmatrix} \quad (3.12)$$

Da sich sowohl unpolarisiertes Licht (inkohärent) als auch linear polarisiertes Licht (kohärent) als Superposition von gleichen Anteilen links- und rechtszirkularem Licht darstellen lässt, kann im Fall der Einstrahlung entlang des Magnetfeldes²⁾ der Anteil der richtigen Zirkularkomponente κ ausgedrückt werden durch

$$\begin{aligned} \kappa &\equiv \frac{I_{\sigma}^{richtig}}{I} = \frac{I_{zir}}{I_{zir} + I_{nzir}} + \frac{1}{2} \frac{I_{nzir}}{I_{zir} + I_{nzir}} \\ &= P_{zir} + \frac{1}{2} (1 - P_{zir}) = \frac{1 + P_{zir}}{2} . \end{aligned} \quad (3.13)$$

Der Intensitätsanteil der falschen Zirkularpolarisations-Komponente berechnet sich dann zu

$$\boxed{\epsilon \equiv \frac{I_{\sigma}^{falsch}}{I} = 1 - \kappa = \frac{1 - P_{zir}}{2}} . \quad (3.14)$$

Die Manipulation des Lichts mittels optischer Elemente kann in der Sprache der Stokes-Vektoren einfach beschrieben werden, wobei jedes Element durch eine so genannte *Müller-Matrix* [Mue48] repräsentiert wird. Der Stokes-Vektor des transmittierten Strahls

²⁾ Die Aufspaltung des (kohärenten) linear polarisierten Lichts in links- und rechtszirkular polarisiertes Licht ist nur erlaubt, wenn die Quantisierungsachse der Atome parallel zur Strahlrichtung des Lichts ist (siehe Abschnitt 3.2).

errechnet sich durch Multiplikation der Müller-Matrix mit dem Vektor des einfallenden Strahls. Steht das optische Element unter einem Winkel ϕ zur x-Achse, so muss die relative Lage der Bezugssysteme durch eine Drehmatrix $R(\phi)$ berücksichtigt werden.

Nach der Definition der Stokes-Parameter genügen theoretisch sechs Intensitätsmessungen zu deren Bestimmung. Eine Untersuchung des Polarisationszustandes mit mehr als sechs Datenpunkten ist aber sinnvoll, weil die Parameter dann aus einem Least-Squares Fit bestimmt werden können, was die Messgenauigkeit deutlich erhöht. Beispielhaft soll ein polarisierter, in z-Richtung propagierender Lichtstrahl betrachtet werden (siehe Abbildung 3.1). Im Polarisationsdetektor trifft er zunächst auf ein Element, welches eine Phasenverzögerung Δ bewirkt und mit seiner schnellen Achse unter dem Winkel β zur x-Achse steht, gefolgt von einem Polarisator, dessen Durchlassrichtung den Winkel α mit der x-Achse einschließt. Für die Anordnung der optischen Elemente ergibt sich somit

$$\begin{pmatrix} I \\ M \\ C \\ S \end{pmatrix}^* = [R(-\alpha)] [P] [R(\alpha)] [R(-\beta)] [V(\Delta)] [R(\beta)] \begin{pmatrix} I \\ M \\ C \\ S \end{pmatrix}. \quad (3.15)$$

Ein Polarisator, der einen Intensitätsanteil δ des senkrecht zu seiner optischen Achse polarisierten Lichtes durchlässt, wird beschrieben durch

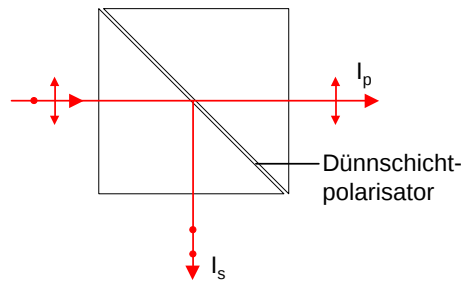
$$[P(\delta)] = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 + \delta & 1 - \delta & 0 & 0 \\ 1 - \delta & 1 + \delta & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (3.16)$$

Ein ideales Verzögerungselement mit einer Phasenverzögerung Δ ist repräsentiert durch

$$[V(\Delta)] = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \cos \Delta & \sin \Delta \\ 0 & 0 & -\sin \Delta & \cos \Delta \end{pmatrix}. \quad (3.17)$$

Beide Matrizen gelten für den Fall, dass die Polarisationsrichtung bzw. die schnelle Achse des Verzögerungselements in der Bezugsrichtung (x-Achse) des gewählten Koordinatensystems liegen. Schließen sie dagegen mit der x-Achse den Winkel γ ein (in Ausbreitungsrichtung z des Lichts im Uhrzeigersinn betrachtet), so wird dies durch eine entsprechende Drehmatrix berücksichtigt:

$$[R(\gamma)] = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \cos 2\gamma & \sin 2\gamma & 0 \\ 0 & -\sin 2\gamma & \cos 2\gamma & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (3.18)$$

Abbildung 3.2: *Polarisationsstrahlteilerwürfel*

Für den Fall der in Abbildung (3.1) skizzierten Anordnung folgt aus Gleichung (3.15) für die gemessene Intensität I^* nach den beiden Elementen:

$$\begin{aligned}
 I^* = & \frac{1+\delta}{2} I + \frac{1-\delta}{2} M [\cos(2\beta) \cos(2\alpha - 2\beta) - \sin(2\beta) \sin(2\alpha - 2\beta) \cos \Delta] \\
 & + \frac{1-\delta}{2} C [\sin(2\beta) \cos(2\alpha - 2\beta) + \cos(2\beta) \sin(2\alpha - 2\beta) \cos \Delta] \\
 & + \frac{1-\delta}{2} S [\sin(2\alpha - 2\beta) \sin \Delta]
 \end{aligned} \quad (3.19)$$

3.1.2 Polarisationsstrahlteilerwürfel

Zur Erzeugung von linear polarisiertem Laserlicht werden in unserer Gruppe Polarisationsstrahlteilerwürfel verwendet. Ein Polarisationsstrahlteilerwürfel besteht aus isotropem Glas, das entlang der Diagonalfäche aufgeschnitten und mit einem Dünnschichtpolarisator versehen wird, bevor es wieder verkittet wird. Die polarisierende Schicht besteht aus einer Vielzahl dünner dielektrischer Schichten, deren Reflexionsvermögen für eine Polarisationskomponente groß, für die andere klein ist. Für die in unserer Gruppe vorhandenen Strahlteilerwürfel hat die dielektrische Teilungsschicht laut Herstellerangaben³⁾ im Bereich von 900 - 1200 nm für die parallel zur Einfallsebene schwingende Komponente (p-Polarisation) eine Transmission von 97% - 98%. Im durchgehenden Licht ist ein Anteil von weniger als 0.04% senkrecht zur Einfallsebene polarisierter Strahlung (s-Polarisation) enthalten. Für die senkrecht zur Einfallsebene schwingende, um 90° abgelenkte Komponente beträgt das Reflexionsvermögen 99.9%. Das reflektierte Licht enthält 2% - 3% parallel zur Einfallsebene polarisierte Strahlung. In der Sprache der Müller-Matrizen wird der Strahlteilerwürfel für den durchgehenden Strahl durch die Matrix

$$[P_{STW,0^\circ}(\eta, \delta)] = \frac{\eta}{2} \begin{pmatrix} 1+\delta & 1-\delta & 0 & 0 \\ 1-\delta & 1+\delta & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (3.20)$$

3) Die Angaben wurden in unserem Labor bei mehreren Strahlteilerwürfeln für die uns interessierende Wellenlänge 1083 nm geprüft und bestätigt.

gekennzeichnet, wobei $\delta \leq 4 \cdot 10^{-4}$ und $\eta \approx 0.975$ ist. Dagegen beschreibt man den um 90° abgelenkten Strahl durch die Matrix

$$[P_{STW,90^\circ}(\eta, \delta)] = \frac{1-\delta}{2} \begin{pmatrix} 2-\eta & -\eta & 0 & 0 \\ -\eta & 2-\eta & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (3.21)$$

Bei älteren Strahlteilerwürfeln steigt δ in geringem Maße mit zunehmender Laserleistung an. Ursache hierfür ist die (kaum messbare) Laserlichtabsorption des Kitts sowie der dielektrischen Schichten. Das absorbierte Licht erwärmt das Material und verändert dadurch die Polarisationsseigenschaften. Heutzutage ist die Absorption dieser Materialien wesentlich geringer, sodass die Größe δ nahezu unabhängig von der Laserleistung ist.

Zur Minimierung von Reflexen sind die Würfelaußenflächen des Polarisationsstrahlteilers durch aufgedampfte Mehrfachschichten entspiegelt, wodurch das Reflexionsvermögen auf ca. 0.3% pro Fläche reduziert wird.

3.1.3 $\lambda/4$ -Verzögerungselemente

In diesem Abschnitt wird der Grad der Zirkularpolarisation in Abhängigkeit von Temperaturschwankungen, der Verkipfung des Verzögerungsplättchens zum Lichtstrahl sowie einer herstellungsbedingten Abweichung der Verzögerung untersucht.

Fällt linear polarisiertes Licht auf ein $\lambda/4$ -Verzögerungselement ($\Delta = \pi/2$), dessen schnelle Achse unter einem Winkel von 45° zur optischen Achse steht, so entsteht zirkular polarisiertes Licht. Für eine beliebige Verzögerung Δ folgt mit dem Stokes-Kalkül:

$$\begin{pmatrix} 1 \\ \cos \Delta \\ 0 \\ \sin \Delta \end{pmatrix}^* = [R(-45^\circ)] [V(\Delta)] [R(45^\circ)] \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (3.22)$$

Mit Gleichung (3.14) bestimmt sich der falsche Zirkularanteil zu

$$\varepsilon = \frac{1 - P_{zir}}{2} = \frac{1 - \sin \Delta}{2}. \quad (3.23)$$

In der Praxis wird die Verzögerung Δ eines *realen* $\lambda/4$ -Verzögerungselements nicht exakt $\Delta = \pi/2$ sein, sondern

$$\Delta = (-1)^k \frac{\pi}{2} \cdot (1 + \chi). \quad (3.24)$$

Hierbei ist k die Verzögerungsordnung und χ stellt die relative Abweichung der Verzögerung von $\pi/2$ dar. Bei einem Low-Order-Quarz- $\lambda/4$ -Plättchen, d.h. $k = 2$ oder 3 , ist die Abweichung durch die Formel

$$\chi = \Upsilon + (2k + 1) \cdot \{-2.0 \cdot 10^{-5} (T[K] - 293K) \pm 1.6 \cdot 10^{-5} \theta[^\circ]^2\} \quad (3.25)$$

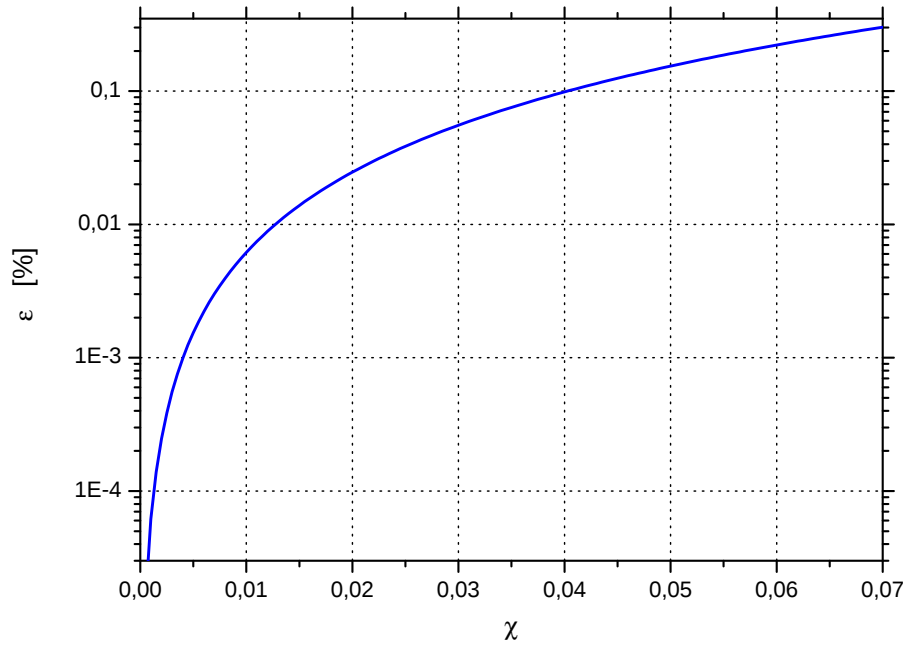


Abbildung 3.3: Einfluss einer von $\pi/2$ abweichenden Verzögerung (χ : relative Abweichung von $\pi/2$) auf den Intensitätsanteil ε der unerwünschten Zirkularpolarisation (vergleiche Formeln 3.23-3.25).

beschreibbar [Zin03]. Υ ist die relative Abweichung der benutzten Wellenlänge, T ist die Temperatur und θ stellt den Kippwinkel des $\lambda/4$ -Plättchens zum Lichtstrahl dar. Gleichung (3.25) enthält einen negativen Temperaturkoeffizienten, d.h. die Verzögerung steigt mit fallender Temperatur für $k = 2$. Bei Verkippung ändert sich die Verzögerung quadratisch mit dem Winkel. Dabei steigt die Verzögerung, wenn die Kippachse mit der optischen Kristallachse (schnelle Achse) zusammenfällt. Dreht man senkrecht zur optischen Kristallachse, so nimmt die Verzögerung um den gleichen Betrag ab. Folglich verändert sich die Verzögerung überhaupt nicht, wenn man das Verzögerungsplättchen zu gleichen Teilen senkrecht und parallel zur Kristallachse kippt.

Falls das $\lambda/4$ -Plättchen die Ordnung $k = 3$ besitzt (d.h. $\Delta = 7/4\lambda$), kehren sich die Vorzeichen (scheinbar) um. Dieses ist wie folgt zu verstehen: Die Koeffizienten für die gesamte Verzögerung behalten ihr Vorzeichen. Senkt man also z.B. die Temperatur, so steigt die Verzögerung. Damit nähert sie sich (ausgehend von $7/4\lambda$) aber dem Wert 2λ , was optisch der Verzögerung null entspricht. Die wirksame Verzögerung sinkt also, obwohl die Gesamtverzögerung steigt.

In unserer Arbeitsgruppe existieren mehrere $\lambda/4$ -Plättchen unterschiedlicher Qualität. Soweit es sich um Low-Order- $\lambda/4$ -Elemente aus Quarz handelt, sind diese für die Wellenlänge 1083 nm (bei 20°C) mit etwa 2% Genauigkeit bezüglich Υ gefertigt. Wie man Abbildung (3.3) entnehmen kann, ist der dadurch entstehende falsche Zirkularpolarisationsanteil mit

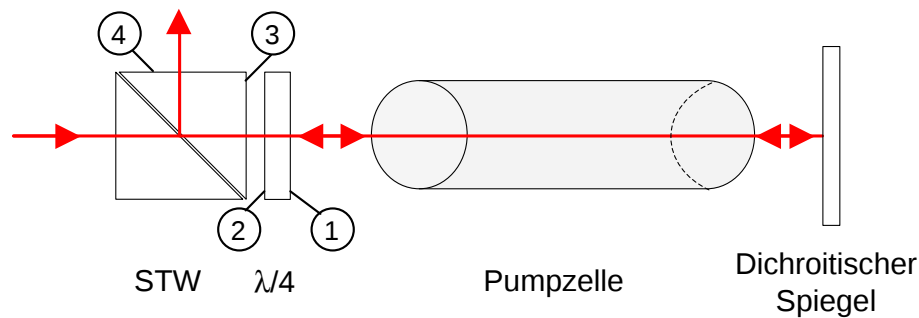


Abbildung 3.4: Strahlführung durch eine optische Pumpzelle

0.025% tolerierbar. Bei einer Temperaturänderung um 20°C oder bei einer Verkipfung des Plättchens um 5° verändert sich die Verzögerung um jeweils bis zu maximal 0.3%, was nach (3.25) einem falschen Zirkularpolarisationsanteil von $6 \cdot 10^{-6}$ entspricht. Die meisten uns zur Verfügung stehenden Verzögerungselemente sind entspiegelt und weisen eine Restreflexion von ungefähr 0.2% pro Seite auf.

Auch bei den Verzögerungselementen konnte ein Einfluss der Laserleistungsdichte auf den Zirkularpolarisationsgrad festgestellt werden. Allerdings ist dieser Effekt nur für die im Nahinfraroten relativ stark absorbierenden Verzögerungselemente aus Glimmer bedeutsam (siehe Abbildung 3.9 rechts unten). $\lambda/4$ -Elemente aus Quarz verändern ihre Eigenschaften praktisch nicht.

3.1.4 Polarisationsstrahlteiler mit angekittetem $\lambda/4$ -Element

Trotz einer Entspiegelung reflektieren die bisher vorgestellten Polarisationsstrahlteiler und Verzögerungselemente immer noch etwa 0.1% bis 0.3% des einfallenden Lichts pro Seite. Dieser Sachverhalt, der in der Vergangenheit nicht beachtet wurde, ist von Bedeutung, weil das zurückgeworfene Licht in einigen Fällen falsch zirkular polarisiert ist. Zum Verständnis betrachte man hierzu den in Abbildung (3.4) gezeigten schematischen Aufbau zum optischen Pumpen: Das Laserlicht wird mittels eines Strahlteilerwürfels und eines Verzögerungselements zirkular polarisiert. Anschließend durchleuchtet das Licht die optische Pumpzelle und trifft auf einen hochreflektierenden dichroitischen Spiegel. Danach passiert das reflektierte Licht, dessen Intensität aufgrund der großen Absorptionslänge des zu polarisierenden Gases in grober Näherung konstant bleibt, ein zweites Mal das optische Pumpvolumen. Beim erneuten Durchtritt durch das $\lambda/4$ -Element wird die zirkulare Polarisation in lineare umgewandelt, sodass das Licht schließlich vom Polarisationsstrahlteiler 90° umgelenkt wird.

Da die Oberflächen der Polarisationsselemente jedoch nicht perfekt entspiegelt sind, kommt es an vier Stellen zu Rückreflexionen in das optische Pumpvolumen. Dies ist kritisch, weil bei der Reflexion an ②, ③ und ④ (siehe Abbildung 3.4) das $\lambda/4$ -Plättchen ein drittes Mal durchlaufen wird und somit aus ursprünglich linkszirkularem (rechtszirkularem) Licht rechtszirkulares (linkszirkulares) Licht entsteht. Somit können die Restreflexionen in

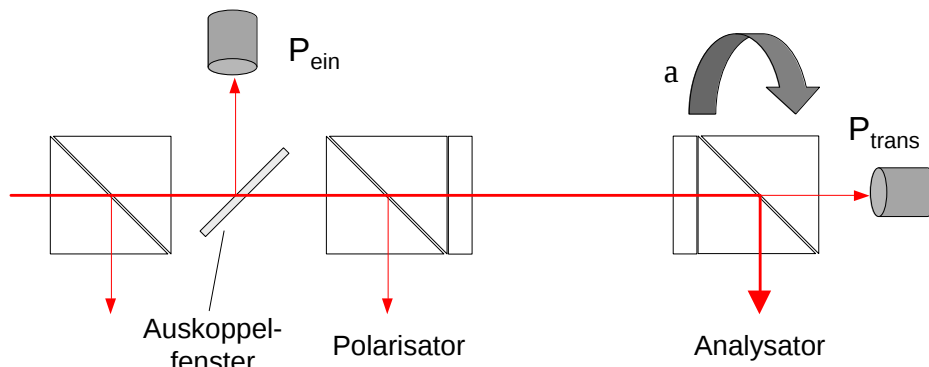


Abbildung 3.5: Schematischer Aufbau zur Charakterisierung eines Strahlteilerwürfels mit angekittetem $\lambda/4$.

ungünstigen Fällen eine falsche Zirkularkomponente von bis zu einem Prozent generieren.

Um die Reflexionen so weit wie möglich zu reduzieren, wurden daher Polarisationsstrahlteiler mit angekittetem $\lambda/4$ gekauft⁴⁾, welche die Reflexe zwischen Würfel und Verzögerungselement (②,③) durch Vermeidung eines Luftspaltes unterdrücken. Außerdem wurde durch eine spezielle Antireflexbeschichtung⁵⁾ die Reflexion pro Oberfläche auf etwa 0.02% reduziert. Durch diese beiden Maßnahmen konnte die von Reflexionen herrührende falsche Zirkularkomponente um etwa einen Faktor fünfzig reduziert werden. Darüber hinaus wurde der Brechungsindex des Glases dem des Kitts angepasst, indem die Würfel aus Schott PSK3-Glas gefertigt wurden. Somit werden störende Interferenzen an der Kittfläche reduziert.

Zur Überprüfung der Polarisations-eigenschaften eines Strahlteilerwürfels mit angekittetem Verzögerungselement wurde eine Messmethode entwickelt, die im Folgenden hergeleitet und auf ein solches Polarisations-element angewandt wird.

Im Abschnitt (3.1.1) wurde dargelegt, wie sich die Intensität I^* eines polarisierten Lichtstrahls (I, M, C, S) nach dem Durchgang durch ein Verzögerungselement und einen Polarisator verhält. Betrachtet man nun einen Strahlteilerwürfel, an dessen Frontseite ein $\lambda/4$ -Verzögerungselement unter einem Winkel von 45° relativ zur optischen Achse angekittet ist, so sind die in Abbildung (3.1) eingeführten Drehwinkel α und β voneinander abhängig:

$$\beta = \alpha - 45^\circ$$

Zusätzlich wird berücksichtigt, dass ein reales Verzögerungselement sowohl eine Abweichung

4) B. Halle Nachfl. GmbH, Berlin

5) Eine auf die entsprechende Wellenlänge angepasste Antireflexbeschichtung ist in der Regel nicht besser als 0.1% pro Seite, weil die Dicken der aufgetragenen dielektrischen Schichten in den meisten Beschichtungsapparaturen nur auf wenige Prozent genau einstellbar sind. Die Firma B. Halle Nachfl. verfügt über eine Maschine, mit der sich die Schichtdicken sehr präzise einstellen lassen.

in der Verzögerung

$$\Delta \equiv \frac{\pi}{2} (1 + \chi), \quad \chi \ll 1 \quad (3.26)$$

als auch im Winkel zwischen optischer Achse des Verzögerungselements und Polarisationsachse aufweist:

$$\beta := \alpha - \left(\frac{\pi}{4} + \zeta\right), \quad \zeta \ll 1. \quad (3.27)$$

Führt man nun eine Taylorentwicklung von Gleichung (3.19) für die Abweichungen ζ und χ bis zur zweiten Ordnung durch, so erhält man schließlich für die Intensität I^* :

$$\begin{aligned} \frac{1}{1-\delta} I^* = & + I \left[\frac{1+\delta}{2(1-\delta)} \right] \\ & + M \left[-\zeta \sin(2\alpha) - \frac{\pi}{4} \chi \cos(2\alpha) + 2\zeta^2 \cos(2\alpha) - \frac{\pi}{2} \zeta \chi \sin(2\alpha) \right] \\ & + C \left[+\zeta \cos(2\alpha) - \frac{\pi}{4} \chi \sin(2\alpha) + 2\zeta^2 \sin(2\alpha) + \frac{\pi}{2} \zeta \chi \cos(2\alpha) \right] \\ & + S \left[-\frac{1}{2} + \zeta^2 + \frac{\pi^2}{16} \chi^2 \right] \end{aligned} \quad (3.28)$$

Mittels Gleichung (3.28) lässt sich zeigen, dass die Qualitätscharakteristika des Analysators bei der Polarisationsmessung eines Lichtstrahls unbedingt berücksichtigt werden müssen. Falls Polarisationsstrahlteiler und $\lambda/4$ -Element ideal gefertigt wären ($\zeta = \chi = \delta = 0$), könnte man Gleichung (3.28) auf die einfache Beziehung

$$I^* = \frac{I - S}{2} \quad (3.29)$$

reduzieren. Mit den gemessenen Werten I und I^* ist S bekannt und somit lässt sich der Grad der zirkularen Polarisation mithilfe von Gleichung (3.11) einfach bestimmen:

$$P_{zir} = \frac{S}{I} = \frac{I - 2I^*}{I} \quad (3.30)$$

Ist das einfallende Licht perfekt zirkular polarisiert, d.h. $I = S = 1$, so folgt jedoch für einen *realen* Analysator aus Gleichung (3.28):

$$I^* = \delta + \zeta^2 + \frac{\pi^2}{16} \chi^2 \quad \text{für } \delta, \zeta, \chi \ll 1 \quad (3.31)$$

Setzt man (3.31) in Gleichung (3.30) ein:

$$P_{zir} = 1 - 2 \left(\delta + \zeta^2 + \frac{\pi^2}{16} \chi^2 \right), \quad (3.32)$$

so beschreibt diese Gleichung einen *scheinbaren* Zirkularpolarisationsgrad, weil mit einem *realen* Analysator gemessen und mit einem *idealen* Analysator gerechnet wurde. An dieser

Stelle ist es sinnvoll, eine Größe ε_{app} zu definieren, die den scheinbar falschen zirkularen Intensitätsanteil des Lichts angibt, der durch Einstrahlen von perfekt zirkular polarisiertem Licht ($S = 1$) auf den nicht perfekten Analysator gemessen wird:

$$\boxed{\varepsilon_{app} = \frac{1 - |P_{zir}|}{2} = \delta + \zeta^2 + \frac{\pi^2}{16} \chi^2} \quad (3.33)$$

Setzt man typische Herstellerangaben ein, $\zeta = 0.2^\circ \cdot \pi/180^\circ$, $\chi = 0.02$ sowie $\delta \approx 1 \cdot 10^{-4}$, erhält man $\varepsilon_{app} = 3.6 \cdot 10^{-4}$. Obwohl der im Beispiel angenommene Lichtstrahl ideal zirkular polarisiert war, wird ein scheinbarer falscher Zirkularanteil von rund $4 \cdot 10^{-4}$ gemessen, wenn man den realen Analysator als ideal annimmt.

Bislang wurde das Augenmerk auf die Analysatoreigenschaften eines Strahlteilerwürfels mit angeklebtem $\lambda/4$ -Plättchen gerichtet. Im Hinblick auf das optische Pumpen ist man jedoch an den Polarisierungseigenschaften eines solchen Elements interessiert, wenn nicht zirkular polarisiertes Laserlicht auf einen Polarisator trifft. Für unpolarisiertes Licht wird der Polarisationszustand nach Propagation durch einen realen Polarisator mit $\lambda/4$ -Verzögerungsplättchen durch

$$\begin{pmatrix} I \\ M \\ C \\ S \end{pmatrix}^* = [R(-\frac{\pi}{4} - \zeta)] [V(\frac{\pi}{2}(1 + \chi))] [R(\frac{\pi}{4} + \zeta)] [P(\delta)] I \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (3.34)$$

beschrieben. Führt man anschließend wiederum eine Taylorentwicklung der Größen δ , ζ und χ bis zur zweiten Ordnung durch, so lautet das Ergebnis:

$$\begin{pmatrix} I \\ M \\ C \\ S \end{pmatrix}^* = I \begin{pmatrix} \frac{1+\delta}{2} \\ (1-\delta)(2\zeta^2 - \frac{\pi}{4}\chi) \\ -(1-\delta)(\zeta + \frac{\pi}{2}\chi\zeta) \\ (1-\delta)(\frac{1}{2} - \frac{\pi^2}{16}\chi^2 - \zeta^2) \end{pmatrix} \quad (3.35)$$

Mit diesem Resultat lässt sich unter Ausnutzung der Näherung

$$\frac{1-\delta}{1+\delta} \cong 1 - 2\delta \quad \text{für } \delta \ll 1 \quad (3.36)$$

der falsche zirkulare Intensitätsanteil ε berechnen:

$$\boxed{\varepsilon = \frac{1 - |P_{zir}|}{2} = \frac{1 - |S^*/I^*|}{2} = \delta + \zeta^2 + \frac{\pi^2}{16} \chi^2} \quad (3.37)$$

Trifft also unpolarisiertes Licht auf einen derartigen Polarisator, dann ist der falsche zirkulare Intensitätsanteil ε durch die Gleichung (3.37) bestimmt⁶⁾.

6) Die Gleichheit der Ergebnisse (3.33) und (3.37) kann nicht unbedingt erwartet werden: Bei der Anwendung als Analysator wurde das Element mit polarisiertem Licht bestrahlt, bei der Nutzung als Polarisator war das Licht dagegen unpolarisiert.

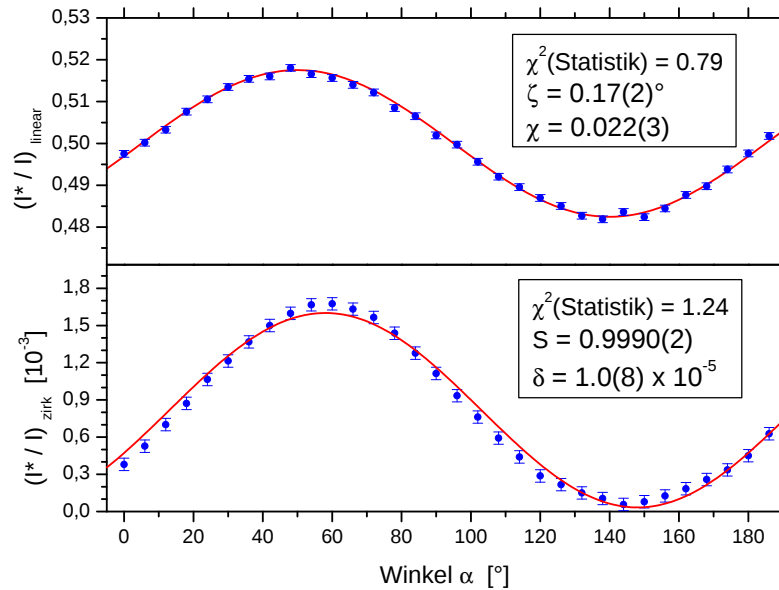


Abbildung 3.6: Messkurven zur Charakterisierung des Strahlteilers mit angekittetem $\lambda/4$. Im oberen Diagramm trifft linear polarisiertes Licht auf einen Analysator, der aus einem $\lambda/4$ -Plättchen, gefolgt von einem angekitteten Strahlteilerwürfel, besteht. Der Analysator wird dabei um den Winkel α gedreht und die transmittierte Intensität gemessen. Diese schwankt zwischen 48% und 52%. Das untere Bild zeigt die transmittierte Leistung, wenn zirkular polarisiertes Licht den Analysator passiert. Auch hier ist eine periodische Schwankung sichtbar, wobei die Werte jedoch nur zwischen 0 und 0.002 variieren.

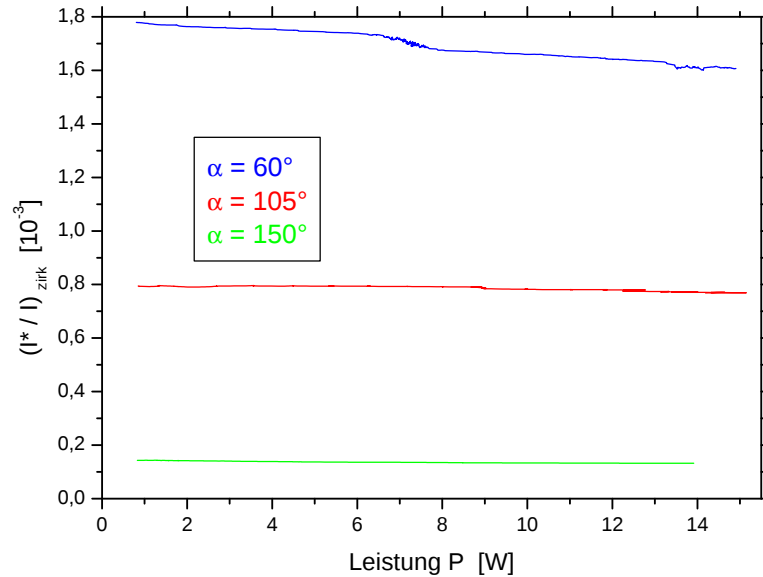


Abbildung 3.7: Dieses Diagramm ist ein Ausschnitt des unteren Grafen in Abbildung (3.6). Es zeigt am Beispiel dreier Winkel die Konstanz des Quotienten aus transmittierter zu einfallender Intensität bei variabler Laserleistung.

Die Ausführungen haben die Notwendigkeit demonstriert, dass man zur Untersuchung der Polarisation des Lichts über eine genaue Kenntnis des Analysators verfügen muss, wenn die relative Messgenauigkeit der Stokes-Parameter etwa 10^{-4} betragen soll. Um die charakteristischen Größen δ , ζ und χ des zusammengekitteten Strahlteilerwürfels und $\lambda/4$ -Plättchens zu messen, benutzt man das Element als Analysator und strahlt in zwei getrennten Experimenten einmal linear polarisiertes Licht ein und ein anderes Mal (beinahe 100%) zirkular polarisiertes Licht. Als linear polarisiertes Licht dient Laserlicht, welches eine Kette von zwei Strahlteilerwürfeln durchläuft (siehe Abbildung 3.5). Dadurch werden falsche Polarisationskomponenten sehr stark unterdrückt. Wird das derart linear polarisierte Licht durch den Stokes-Vektor $(I, I, 0, 0)$ beschrieben, so misst man hinter dem Analysator in Abhängigkeit des Winkels α :

$$\frac{I^*}{I} = \frac{1 + \delta}{2} - (1 - \delta) \left[\cos(2\alpha) \left(2\zeta^2 - \frac{\pi}{4} \chi \right) - \sin(2\alpha) \left(\zeta + \frac{\pi}{2} \zeta \chi \right) \right] \quad (3.38)$$

Die experimentellen Daten sind im oberen Teil von Abbildung (3.6) dargestellt. Man erkennt eine Modulation der relativen transmittierten Intensität I^*/I in Abhängigkeit des Winkels α von rund 48% bis 52%, wobei die eingezeichneten Fehlerbalken auf Schwankungen in der Anzeige des Wattmeters zurückzuführen sind. Mit einer Kurvenanpassung an die Daten lassen sich die Parameter ζ und χ berechnen. δ beeinflusst in dem erwarteten Wertebereich die beiden anderen Größen ζ und χ praktisch nicht und kann daher zunächst vernachlässigt werden. In der zweiten Messung wird zirkular polarisiertes Licht eingestrahlt. Weil die Erzeugung von hochgradig zirkular polarisiertem Licht wesentlich schwieriger ist als die von linear polarisiertem Licht, wird der reale elliptische Lichtzustand durch den Stokes-Vektor $I \cdot (1, 0, \sqrt{1 - S^2}, S)$ berücksichtigt. Diese Festsetzung erscheint willkürlich, da man dadurch den Azimutwinkel der Ellipse festlegt, ohne ihn zu kennen. Allerdings bewirkt eine Veränderung des Azimutwinkels nur eine Phasenverschiebung des Winkels α um Ξ . Setzt man den Stokes-Vektor $I \cdot (1, 0, \sqrt{1 - S^2}, S)$ in Gleichung (3.34) ein, dann folgt:

$$\begin{aligned} \frac{I^*}{I} = \frac{1 + \delta}{2} + \sqrt{1 - S^2}(1 - \delta) & \left[\cos(2\alpha + 2\Xi) \left(\zeta + \frac{\pi}{2} \zeta \chi \right) - \sin(2\alpha + 2\Xi) \left(\frac{\pi}{4} \chi - 2\zeta^2 \right) \right] \\ & - S(1 - \delta) \left[\frac{1}{2} - \zeta^2 - \frac{\pi^2}{16} \chi^2 \right] \end{aligned} \quad (3.39)$$

Im unteren Diagramm von Abbildung (3.6) sind die dazugehörigen Messpunkte sowie der angefittete Kurvenverlauf zu sehen. Für den Fit wurden die in der ersten Messung bestimmten Variablen ζ und χ als feste Parameter angenommen und die noch zu bestimmenden Größen S sowie δ ermittelt. Mit dem beschriebenen Verfahren ergeben sich für die drei charakteristischen Größen des Strahlteilerwürfels mit angekittetem $\lambda/4$ -Verzögerungselement: $\zeta = 0.17(2)^\circ$, $\chi = 0.022(3)$ und $\delta = 1.0(8) \cdot 10^{-5}$. Der zirkulare Polarisationsgrad der verwendeten Polarisationsoptik wurde zu $P_{zir} = 0.9990(2)$ bestimmt, was einem falschen zirkularen Intensitätsanteil von $\varepsilon = (5 \pm 1) \cdot 10^{-4}$ entspricht. Alle Werte stimmen hervorragend mit den Herstellerangaben überein, δ ist sogar eine Größenordnung besser als bei durchschnittlichen Polarisationsstrahlteilern. Wenn man das als Analysator verwendete Element als Zirkularpolarisator verwenden würde, so käme man durch Einsetzen der drei charakteristischen Größen in die Gleichung (3.37) auf einen Zirkularpolarisationsgrad von

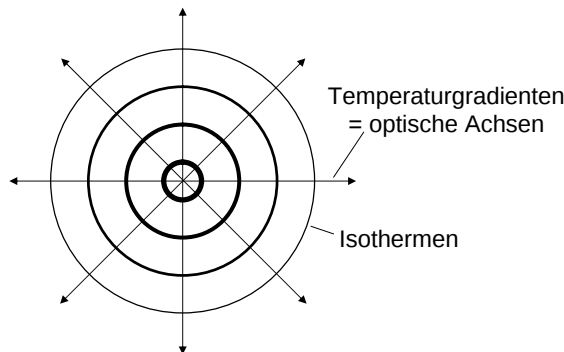


Abbildung 3.8: Prinzip der Erzeugung von unpolarisiertem Licht durch thermisch induzierte Spannungsdoppelbrechung mit einem radialsymmetrischen Laserintensitätsprofil (Erläuterungen siehe Text).

$P_{zir} = 0.9994(2)$, also $\varepsilon = (3 \pm 1) \cdot 10^{-4}$. In Kapitel 6.2.2 wird gezeigt, dass die Werte für ε für das optische Pumpen absolut tolerierbar sind.

Zuletzt wurde untersucht, ob die Polarisationsseigenschaften des Strahlteilerwürfels mit angekittetem Verzögerungselement eine Korrelation zur eingestrahlten Laserleistung zeigen. Hierzu traf zirkular polarisiertes Laserlicht unterschiedlicher Leistung auf das Element. Gemessen wurde der Quotient aus transmittierter und einfallender Leistung. In Abbildung (3.7) kann man erkennen, dass sich die Polarisationsseigenschaften auch bei hohen Leistungsdichten kaum verändern.

3.1.5 Pumpzellenfenster

Nachdem in den vorangegangenen Abschnitten die polarisationserzeugenden Elemente ausführlich diskutiert wurden, sollen nun die Fenster der optischen Pumpzellen genauer betrachtet werden.

Prinzipiell kann der Grad der Zirkularpolarisation beim senkrechten Durchgang durch ein Glasfenster nur durch die Doppelbrechung beeinflusst werden, weil sich auch in homogenen isotropen Medien durch äußere Druck- oder Zugkräfte eine orts- und richtungsabhängige Brechungsindexänderung erzeugen lässt. Übt man einen hohen Druck auf ein Fenster aus, z.B. beim Dichten mit einem Indiumring, so entsteht eine Spannungsdoppelbrechung.

Eine andere Charakteristik zeigt die thermisch induzierte Doppelbrechung infolge der Absorption von Laserlicht im Glas. Aufgrund der geringen Wärmeleitfähigkeit von Glas bleibt die durch die Absorption erzeugte Erwärmung des Glases lokalisiert, wodurch es zu einer auf ein kleines Raumgebiet begrenzten Ausdehnung kommt, die Spannungen verursacht. In diesem Fall verhält sich das Glas nicht mehr wie ein Verzögerungselement - wie bei der Spannungsdoppelbrechung - sondern wie ein (teilweiser) Depolarisator. Zum Verständnis betrachte man hierzu einen Laserstrahl mit radialsymmetrischer Intensitätsverteilung: Ein

derartiger Laserstrahl generiert um den Auftreffpunkt eine Temperaturverteilung mit einem radialsymmetrischen Temperaturgradienten (siehe Abbildung 3.8). Da die optische Achse jedoch entlang eines Spannungsgradienten - also des Temperaturgradienten - verläuft, lässt sich in der Gesamtheit keine resultierende Richtung der optischen Achse bei einem symmetrischen Intensitätsprofil angeben. Trifft zirkular polarisiertes Licht mit einer radialsymmetrischen Intensitätsverteilung (Stokes-Vektor: $I(r) \cdot (1, 0, 0, 1)$) auf ein Fenster, so wirkt dieses als Verzögerungselement mit einer von r radial-abhängigen Verzögerung $\Delta(r)$ (siehe auch Gleichung 3.17). In der Sprache der Stokes-Parameter kann man diesen Sachverhalt folgendermaßen beschreiben:

$$\int_0^{2\pi} d\alpha \int dr r [R(-\alpha)][V(\Delta(r))][R(\alpha)] I(r) \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix} = \int dr r I(r) \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ \cos(\Delta(r)) \end{pmatrix}$$

Hierbei wird über alle Winkel α integriert, weil die optische Achse nicht ausgezeichnet ist. Aus der Gleichung geht hervor, dass das zuvor zirkular polarisierte Licht nach dem Durchgang durch das Fenster einen unpolarisierten Intensitätsanteil aufweist und sich somit wesentlich von einem idealen Verzögerungselement unterscheidet:

$$\varepsilon_{\text{unpolarisiert}} = \frac{1}{I_0} \cdot \int dr r I(r) [1 - \cos(\Delta(r))] \quad (3.40)$$

Als nächstes wird die Doppelbrechung der Endfenster an drei unterschiedlichen Pumpzellen experimentell untersucht. Die Pumpzellen wurden folgendermaßen gefertigt:

- Zelle 1: Auf ein Duranrohr mit passendem Flansch wurden beidseitig antireflexbeschichtete Quarzfenster mit einer Indiumdichtung vakuumdicht angepresst.
- Zelle 2: In einem speziellen Verfahren wurden Quarzfenster von der Firma Hellma GmbH Müllheim auf ein Quarzrohr aufgeschmolzen, ohne die Güte der Fenster zu beeinträchtigen, und anschließend beidseitig antireflexbeschichtet.
- Zelle 3: Ähnlich wie bei (2) wurden unbeschichtete Fenster aus Borofloat⁷⁾ von der Firma Hellma auf ein Duranrohr aufgeschmolzen⁸⁾, anschließend jedoch nicht antireflexbeschichtet.

Es ist zu erwarten, dass die Beeinflussung der Zirkularpolarisation durch die Doppelbrechung der Pumpzellenfenster gering ist. Um die beschriebenen Effekte dennoch nachzuweisen, wird der in Abbildung (3.5) beschriebene Aufbau verwendet, wobei man nun zwischen Polarisator und Analysator zusätzlich die optische Pumpzelle positioniert. Durch Rotation des Analysators um den Winkel α erhält man dann eine Variation der transmittierten Laserintensität.

7) Borofloat ist das optische Pendant zu Duranglas. Die Ausgangsstoffe sind bis auf die höheren Reinheitsanforderungen beim Borofloatglas identisch. Der Unterschied besteht darin, dass die Glasschmelze für die optische Anwendung über ein flüssiges Zinnbad gefloatet wird, was Einschlüsse im Glas verhindert.

8) Das Auf- bzw. Verschmelzen ist nur durchführbar, wenn die thermischen Ausdehnungskoeffizienten der beiden Materialien nahezu identisch sind. Daher ist eine Kombination Quarzfenster/Duranrohr nicht möglich.

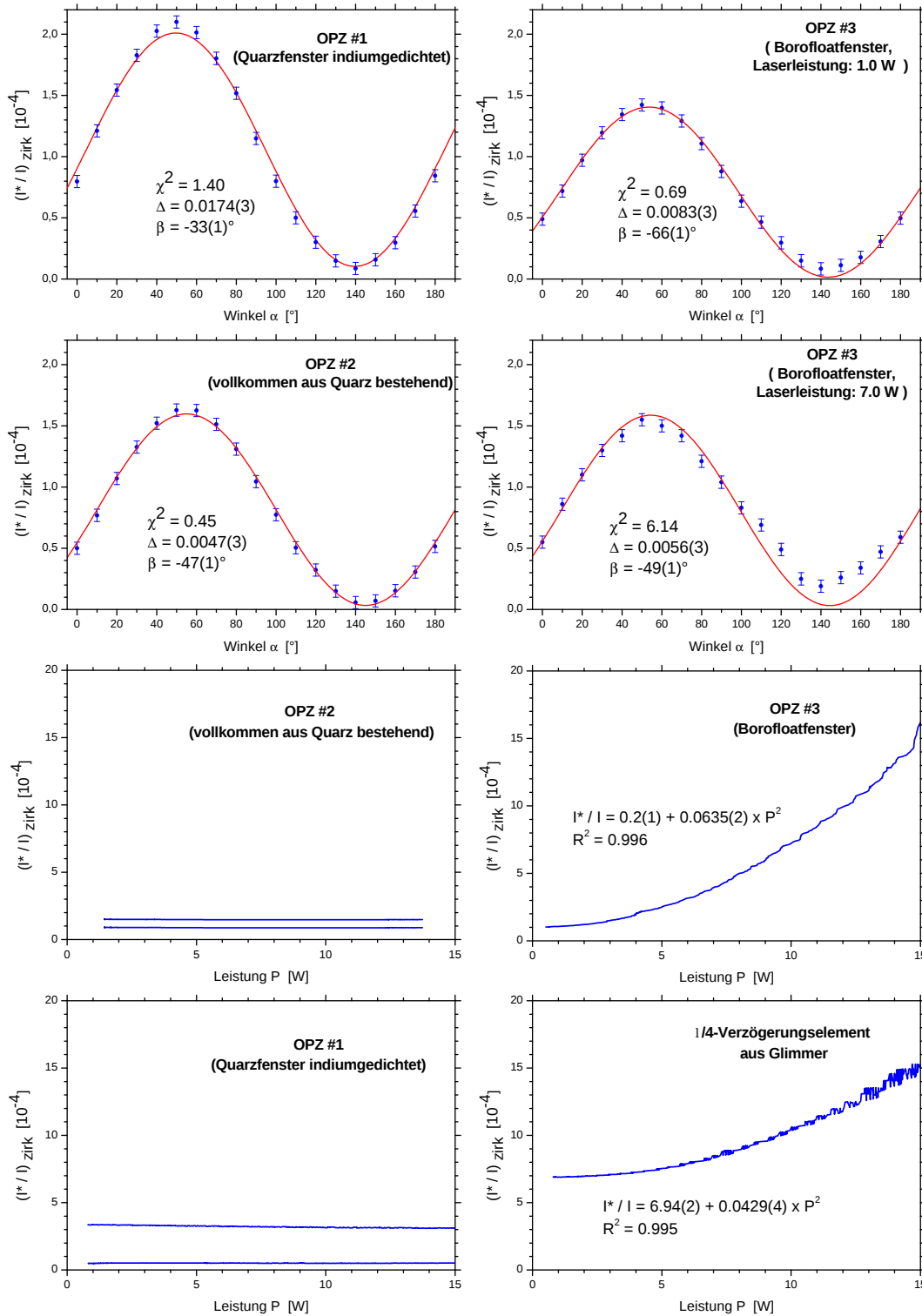


Abbildung 3.9: Obere vier Diagramme: Zirkular polarisiertes Licht passiert eine optische Pumpzelle und trifft auf einen Analysator. Aufgetragen ist die normierte transmittierte Leistung in Abhängigkeit des Analysatordrehwinkels α (siehe auch Abbildung 3.5). An die Messwerte wurden die Parameter Δ und β angefitet. Untere vier Diagramme: Diese Grafiken zeigen beispielhaft das Verhalten aus transmittierter zu einfallender Intensität bei variabler Laserleistung für jeweils ein oder zwei konstant gehaltene Drehwinkel α .

Die oberen vier Diagramme in Abbildung (3.9) stellen die normierte transmittierte Leistung der einzelnen Pumpzellen in Abhängigkeit von α dar. Da im vorangegangenen Abschnitt die Eigenschaften der verwendeten Polarisator- bzw. Analysator-Elemente genau untersucht wurden, können die gewonnenen Resultate zur Analyse der Verzögerungseigenschaften der Pumpzellenfenster benutzt werden. Im Stokes-Kalkül gilt dann für die Verzögerung der Fenster:

$$\frac{1}{I} \begin{pmatrix} I \\ M \\ C \\ S \end{pmatrix}^* = \overbrace{[R(-\alpha)][P(\delta)][R(\frac{\pi}{4} + \zeta)][V(\frac{\pi}{2}(1 + \chi))][R(\alpha - \frac{\pi}{4} - \zeta)]}^{\text{Analysator: Strahlteiler mit } \lambda/4} \cdot \overbrace{[R(-\beta)][V(\Delta_{OPZ})][R(\beta)]}^{\text{OPZ-Fenster}} \cdot \overbrace{\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ \sqrt{1 - S^2} \\ S \end{pmatrix}}^{\text{Polarisator}} \quad (3.41)$$

Die beiden unbekannten Parameter Δ_{OPZ} und β in Gleichung (3.41) wurden mithilfe einer in Pascal programmierten Fitroutine aus den Messdaten bestimmt (siehe Abbildung 3.9). Während die experimentellen Werte der drei Pumpzellen bei moderater Leistung von rund 1.0 W gut durch die Formel (3.41) beschrieben werden, zeigt sich bei der aus Borofloatfenstern bestehenden Pumpzelle bei hoher Leistung eine signifikante Diskrepanz beim Datenfit. Offensichtlich dominiert hier die thermisch induzierte Spannungsdoppelbrechung, sodass das Borofloatfenster kein ideales Verzögerungselement mehr darstellt.

Die Auswertung der Daten zeigt, dass die Spannungsdoppelbrechung für die mit Indium gedichtete Pumpzelle mit $\Delta = 0.0174(3)$ am größten ist, woraus mit Gleichung (3.23) $\varepsilon = 8 \cdot 10^{-5}$ folgt. In der unteren Hälfte von Abbildung (3.9) ist die Abhängigkeit der Lichtpolarisation von der Laserleistung für die drei Pumpzellen sowie ein Verzögerungselement aus Glimmer dargestellt. Bei der mit Indium gedichteten Pumpzelle konnte keine bedeutende Veränderung der Zirkularpolarisation in Abhängigkeit der Leistung nach dem Durchlauf durch die Zelle beobachtet werden. Die Spannungsdoppelbrechung der Zelle mit den aufgeschmolzenen Quarzfenstern ist mit $\Delta = 0.047(3)$, entsprechend $\varepsilon = 6 \cdot 10^{-6}$, deutlich geringer. Auch hier wurde keine Beeinflussung durch die Laserleistung festgestellt. Dagegen zeigt die Pumpzelle mit Borofloatfenstern ein anderes Verhalten. Bei einer Leistung von 1.0 W beträgt die Spannungsdoppelbrechung $\Delta = 0.083(3)$, d.h. $\varepsilon = 2 \cdot 10^{-5}$. Damit ist die Spannungsdoppelbrechung der aufgeschmolzenen Borofloatfenster mit der Spannungsdoppelbrechung der aufgeschmolzenen Quarzfenster in der Größenordnung vergleichbar. Erhöht man allerdings die einfallende Leistungsdichte, so bewirkt die thermisch induzierte Doppelbrechung die Erzeugung von unpolarisiertem Licht. Empirisch kann die Abhängigkeit des falschen zirkularen Intensitätsanteils von der in Watt angegebenen Laserleistung P durch eine quadratische Fit-Funktion beschrieben werden:

$$\varepsilon = (0.2 + 0.064 \cdot P^2) \cdot 10^{-4} \quad (3.42)$$

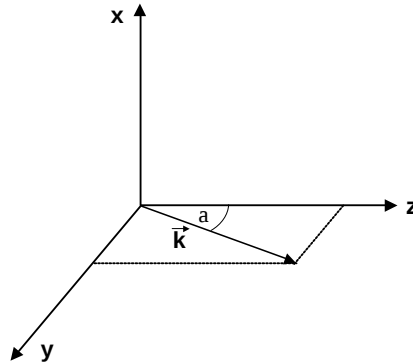


Abbildung 3.10: Skizze eines zur Quantisierungsachse z dejustierten Lichtstrahls.

Die Untersuchungen demonstrieren, dass die zirkulare Lichtpolarisation bei hohen Leistungsdichten beim Durchtritt durch ein Fenster nur dann unverändert bleiben, wenn die Fenster im Wellenlängenbereich von 1083 nm das Licht ohne Absorption transmittieren. Borofloatglas und Glimmer genügen diesen Ansprüchen nicht. Des Weiteren konnte gezeigt werden, dass die Spannungsdoppelbrechung von Indium gedichteten Zellen tolerierbar ist. Am besten eignen sich jedoch auf ein Quarzrohr aufgeschmolzene Quarzfenster.

3.2 Nichtparallele Einstrahlung zur Quantisierungsachse

Unerwünschte Zeeman-Übergänge können auch bei einer perfekten Optik entstehen, wenn der Laserstrahl nicht exakt zur Magnetfeldrichtung - also der Quantisierungsachse der Atome - justiert ist. Schließt der Laserstrahl einen Winkel α mit der Magnetfeldachse ein, so kann *aus Sicht der anzuregenden Atome* kein ideal zirkular polarisiertes Licht erzeugt werden. Dazu betrachte man ein Koordinatensystem mit der z -Achse als Quantisierungsachse. Strahlt man Licht ein, welches in z -Richtung propagiert, so gilt für die elektrischen Feldvektoren $\vec{E}$ bei σ^+ - bzw. σ^- -Licht an einem festen Raumpunkt:

$$\vec{E}(\sigma^+) = \begin{pmatrix} \cos(\omega t) \\ \sin(\omega t) \\ 0 \end{pmatrix} \quad \vec{E}(\sigma^-) = \begin{pmatrix} \cos(\omega t) \\ -\sin(\omega t) \\ 0 \end{pmatrix} \quad (3.43)$$

Schließt der Richtungsvektor $\vec{k}$ des Lichts in der y - z -Ebene einen Winkel α mit der z -Achse ein (siehe Abbildung 3.10), so muss der ursprüngliche Feldvektor auf die Quantisierungsachse projiziert werden. Für $\vec{E}(\sigma^+)$ folgt dann:

$$\begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos \alpha & -\sin \alpha \\ 0 & \sin \alpha & \cos \alpha \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos(\omega t) \\ \sin(\omega t) \\ 0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos(\omega t) \\ \cos \alpha \sin(\omega t) \\ \sin \alpha \sin(\omega t) \end{pmatrix} \quad (3.44)$$

Anschließend wird das Resultat von Gleichung (3.44) mithilfe der Additionstheoreme

$$\begin{aligned} 1 &= \sin^2 \frac{\alpha}{2} + \cos^2 \frac{\alpha}{2} \\ \cos \alpha &= \cos^2 \frac{\alpha}{2} - \sin^2 \frac{\alpha}{2} \end{aligned} \quad (3.45)$$

in drei Terme zerlegt:

$$\begin{pmatrix} \cos(\omega t) \\ \cos \alpha \sin(\omega t) \\ \sin \alpha \sin(\omega t) \end{pmatrix} = \sin \alpha \underbrace{\begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ \sin(\omega t) \end{pmatrix}}_{\pi\text{-Licht}} + \sin^2 \frac{\alpha}{2} \underbrace{\begin{pmatrix} \cos(\omega t) \\ -\sin(\omega t) \\ 0 \end{pmatrix}}_{\sigma^-\text{-Licht}} + \cos^2 \frac{\alpha}{2} \underbrace{\begin{pmatrix} \cos(\omega t) \\ \sin(\omega t) \\ 0 \end{pmatrix}}_{\sigma^+\text{-Licht}}$$

Der erste Summand stellt π -Licht dar, weil der Feldstärkevektor parallel zur Quantisierungsachse schwingt; die beiden anderen Summanden beschreiben σ^- - bzw. σ^+ -Licht. Für die Beschreibung des optischen Pumpens werden jedoch nicht die Feldstärkevektoren sondern die über eine Periode gemittelten Intensitäten I benötigt (c : Lichtgeschwindigkeit, ε_0 : Dielektrizitätskonstante, T : Schwingungsdauer der Feldstärke):

$$I = c \varepsilon_0 \frac{1}{T} \int_0^T \vec{E}^2(t) dt \quad (3.46)$$

Sie lassen sich dann schreiben als:

$$\boxed{\begin{aligned} I(\sigma^+) &= I_0 \cos^4 \frac{\alpha}{2} \\ I(\sigma^-) &= I_0 \sin^4 \frac{\alpha}{2} \\ I(\pi) &= \frac{1}{2} I_0 \sin^2 \alpha \end{aligned}} \quad (3.47)$$

Es sei darauf hingewiesen, dass D. Rohe in ihrer Diplomarbeit [Roh94] die Winkelabhängigkeit durch die Gleichung

$$\begin{aligned} I'(\sigma^+) &= I_0 \cos^2 \frac{\alpha}{2} \\ I'(\sigma^-) &= I_0 \sin^2 \frac{\alpha}{2} \end{aligned} \quad (3.48)$$

angibt. Diese Formel gilt nicht allgemein. Für den Fall des Spintemperaturgleichgewichts und des vollständigen collisional mixing kann man jedoch den Intensitätsanteil des π -Lichts $\varepsilon(\pi) = I(\pi)/I_0$ und den σ^- -Anteil $\varepsilon(\sigma^-) = I(\sigma^-)/I_0$ folgendermaßen zusammenfassen (ohne Herleitung):

$$\varepsilon = \varepsilon(\sigma^-) + \frac{1}{2} \varepsilon(\pi) \quad (3.49)$$

Einsetzen von (3.47) und (3.48) in Gleichung (3.49) führt dann zu einer wahren Aussage:

$$I'(\sigma^-) = I(\sigma^-) + \frac{1}{2} I(\pi) \quad \checkmark \quad (3.50)$$

Nimmt man an, dass der Laserstrahl um 5° von der Magnetisierungsachse abweicht, so erhält man: $\varepsilon(\sigma^-) = 3.6 \cdot 10^{-6}$ und $\varepsilon(\pi) = 0.0038$. Eine Dejustage von 5° scheint auf den ersten Blick unrealistisch hoch; allerdings erhält man eine solche Abweichung, wenn der Laserstrahl parallel zu einem Labormagnetfeld von 6 G verläuft und die senkrechte Komponente des Erdmagnetfeldes von gut 0.5 G nicht kompensiert wird. Aus diesem Grund ist eine Erhöhung des Führungsfeldes oder eine Kompensation des Erdfeldes zur Reduzierung der falschen Polarisationskomponenten ratsam.

3.3 Fluoreszenzlicht

Bei der bisherigen Betrachtung des optischen Pumpprozesses wurde eine mögliche Reabsorption des emittierten Fluoreszenzlichts außer Acht gelassen. Durchleuchtet man eine 1 m Meter lange Pumpzelle mit einer Laserleistung von rund 10 W (das bedeutet eine Leistungsdichte von $\sim 1 \text{ W/cm}^2$), so absorbiert das unpolarisierte Gas bei einer mittleren Gasentladungsstärke gut 1 W. Hingegen sinkt die absorbierte Leistung auf nur noch 10 mW bis 100 mW, wenn das ^3He zu 70% oder höher polarisiert ist. Das absorbierte Laserlicht wird als unpolarisiertes Fluoreszenzlicht wieder ausgesandt. Dadurch kann es von anderen metastabilen Atomen erneut absorbiert werden, wodurch es wegen der fehlenden Polarisation des Fluoreszenzlichts zu einer Verringerung der Kernspinpolarisation kommt. Um den Einfluss der Reabsorption zu quantifizieren, soll der Intensitätsanteil der falschen Zirkularkomponente ε durch die Beziehung

$$\varepsilon = \frac{I^{fl}}{2 I_{ein}} \quad (3.51)$$

ausgedrückt werden. Hierbei ist I^{fl} die reemittierte Leistung des Fluoreszenzlichts und I_{ein} gibt die einfallende Laserleistung an. Der in der Formel auftretende Faktor zwei trägt der fehlenden Polarisation des Fluoreszenzlichts Rechnung, ohne zwischen π - und $\sigma^{+/-}$ -Licht zu unterscheiden. Benutzt man die oben erwähnten Zahlenwerte und setzt sie in Gleichung (3.51) ein, dann wird ε in Abhängigkeit der Kernspinpolarisation zwischen 0.05% und 5% betragen (die Absorption ist von der Kernpolarisation abhängig). Bei der Interpretation von ε muss aber berücksichtigt werden, dass das Fluoreszenzlicht die Pumpzelle bereits nach einer kurzen Strecke verlassen kann und es somit nicht mit sämtlichen metastabilen Atomen in Wechselwirkung tritt. Aus diesem Grund ist die Kenntnis des Lichtverlaufs des Fluoreszenzlichts innerhalb der Pumpzelle erforderlich. Um die mittlere Strecke $\langle \Lambda \rangle$ des reemittierten Lichts zu berechnen, wurde in der Programmiersprache Turbo Pascal eine Simulation der möglichen Lichtwege geschrieben.

Dabei hängt die Ausbreitung des Lichts von der Geometrie der Pumpzelle (Länge und Durchmesser) sowie von den Reflexionseigenschaften der Zellenwände ab. Die Simulation

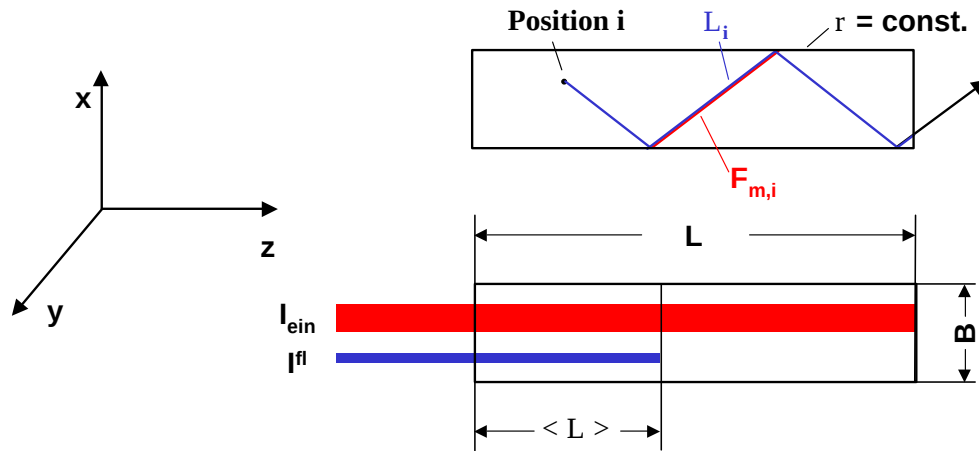


Abbildung 3.11: Schema einer optischen Pumpzelle der Breite B und der Länge L . Die Pumpzelle wird durch 30000 Volumenelemente diskretisiert. Von jedem Element i wird isotropes Licht ausgesandt, welches an den Seitenwänden reflektiert wird. Im oberen Bild ist der Übersichtlichkeit nur ein möglicher Lichtlaufweg eingezeichnet, der insgesamt die Länge Λ_i hat. Die Strecken zwischen zwei Auftreffpunkten werden mit $F_{m,i}$ bezeichnet. Das isotrop emittierte Fluoreszenzlicht I^{fl} kann als paralleler Lichtstrahl mit einer Eindringtiefe $\langle \Lambda \rangle$ interpretiert werden.

der mittleren Wegstrecke ist sehr aufwändig, weshalb einige Vereinfachungen vorgenommen werden müssen:

- Das Fluoreszenzlicht ist vollkommen unpolarisiert und bleibt es auch nach der Reflexion an den Pumpzellenwänden. Diese Annahme ist gut erfüllt, weil das collisional mixing eine massive Zerstörung der Polarisation des reemittierten Lichts bewirkt. Bei der Reflexion wird unpolarisiertes Licht teilweise linear polarisiert. Da jedoch keine Seite der Pumpzelle ausgezeichnet ist, ergeben die linearen Anteile im Mittel wieder unpolarisiertes Licht.
- Das Fluoreszenzlicht wird isotrop in alle Raumrichtungen emittiert. Diese Vorgabe ist gut erfüllt, weil das Fluoreszenzlicht annähernd unpolarisiert ist, d.h. die Besetzungsdichten der m_F -Quantenzahlen der 2^3P -Zustände sind gleichverteilt.
- Die Pumpzelle ist quaderförmig.
- Die Metastabilendichte ist innerhalb der Pumpzelle konstant. Diese Forderung stimmt nicht mit der in etwa parabelförmig zum Rand hin abnehmenden Dichte der metastabilen Atome überein. Allerdings zeigt die Simulation, dass die mittlere Weglänge in erster Näherung unabhängig von der x- bzw. y-Position ist (siehe Abbildung 3.11). Daher wird die mittlere Weglänge $\langle \Lambda \rangle$ korrekt berechnet, wohingegen die Absorptionswahrscheinlichkeit fehlerbehaftet sein wird⁹⁾.

9) Emittieren beispielsweise zwei Atome mit gleicher z-Koordinate aber unterschiedlichem Wandabstand

- Der Reflexionskoeffizient ist unabhängig vom Einfallswinkel. Diese Annahme trifft nur bei verspiegelten Flächen in guter Näherung zu. Um den Rechenaufwand zu reduzieren, werden die Kalkulationen mit einem mittleren Reflexionskoeffizienten ρ durchgeführt. Zur Bestimmung von ρ wird der reflektierte Intensitätsanteil der senkrechten Lichtkomponente R_s und der parallelen Komponente R_p mithilfe der Fresnel-Formeln in Abhängigkeit des Einfallswinkels α berechnet:

$$\begin{aligned} R_s(\alpha) &= \left[\frac{\sin(\alpha - \beta)}{\sin(\alpha + \beta)} \right]^2 \\ R_p(\alpha) &= \left[\frac{\tan(\alpha - \beta)}{\tan(\alpha + \beta)} \right]^2 \end{aligned} \quad (3.52)$$

Hierbei ist der Austrittswinkel β des gebrochenen Strahls über das Gesetz von Snellius

$$\sin \beta = \frac{\sin \alpha}{1.5} \quad (\text{Luft-Glasübergang mit } n_{\text{Glas}} = 1.5) \quad (3.53)$$

mit α verknüpft. Wenn α mit gleicher Wahrscheinlichkeit alle Winkel zwischen 0° und 90° annehmen kann, folgt für die mittleren Reflexionskoeffizienten $\langle R_s \rangle$ und $\langle R_p \rangle$:

$$\begin{aligned} \langle R_s \rangle &= \frac{2}{\pi} \int_0^{\pi/2} R_s(\alpha) d\alpha = 0.21 \\ \langle R_p \rangle &= \frac{2}{\pi} \int_0^{\pi/2} R_p(\alpha) d\alpha = 0.10 . \end{aligned} \quad (3.54)$$

Der polarisationsunabhängige mittlere Reflexionskoeffizient ρ ist für unpolarisiertes Licht das arithmetische Mittel von $\langle R_s \rangle$ und $\langle R_p \rangle$. Da das Licht jedoch sowohl an der Grenzfläche $^3\text{He} - \text{Glas}$ als auch an der Grenzfläche $\text{Glas} - \text{Luft}$ reflektiert wird, muss diese doppelte Reflexion durch Multiplikation mit einem Faktor zwei berücksichtigt werden. Für ρ gilt folglich:

$$\rho \approx 2 \cdot \frac{1}{2} (\langle R_s \rangle + \langle R_p \rangle) = 0.31 \quad (3.55)$$

Mit den erläuterten Annahmen wurde die mittlere Weglänge $\langle \Lambda \rangle$ berechnet, indem das Innere der Pumpzelle durch 30000 gleich große Volumenelemente dargestellt wurde. Jedes Element repräsentiert hierbei ein Atom, welches isotropes Licht der Intensität eins aussendet. Trifft das Licht auf eine Seitenwand, so wird die Intensität des reflektierten Lichts um den Faktor $1 - \rho$ reduziert. Dagegen passiert das Licht die Endfenster ohne Reflexionsverluste. Die mittlere Weglänge $\langle \Lambda \rangle$ für ein in eine bestimmte Richtung emittierendes Atom i erhält man dann aus der Summe der einzelnen Produkte von Intensität und Wegstrecke:

$$\Lambda_i = \sum_{m=0}^n (1 - \rho)^m \cdot F_{m,i} \quad (3.56)$$

Licht parallel zur z-Achse, so ist $\langle \Lambda \rangle$ in beiden Fällen gleich. Trotzdem ist die Absorptionswahrscheinlichkeit des vom Zentrum ($x = y = 0$) ausgesandten Lichtquants aufgrund der höheren Metastabilendichte größer.

L [mm]	B [mm]	Vol. [l]	ρ	$\langle \Lambda \rangle$ [mm]
1000	50	2.5	0.0	143
1000	50	2.5	0.3	220
1000	50	2.5	0.9	753
1000	70	4.9	0.0	181
1000	70	4.9	0.3	258
1000	70	4.9	0.9	895
2000	50	5.0	0.0	167
2000	50	5.0	0.3	255
2000	50	5.0	0.9	1028

Tabelle 3.1: Abhängigkeit der mittleren Weglänge $\langle \Lambda \rangle$ von der Länge L , der Breite B und dem Reflexionskoeffizienten ρ .

Hierbei ist n die Zahl Lichtreflexionen des Lichtquants in der Zelle und $F_{m,i}$ ist die Weglänge zwischen zwei Auftreffpunkten. Die Zahl der berücksichtigten Reflexionen wird durch zwei Kriterien festgelegt:

1. Trifft das Licht nach n Reflexionen auf ein Endfenster, wird die weitere Berechnung der Lichtlaufwege abgebrochen.
2. Ist die ursprüngliche Intensität nach n Reflexionen auf weniger als 1% abgesunken, d.h. $0.01 \geq (1 - \rho)^n$, wird die weitere Berechnung der Lichtlaufwege abgebrochen.

Die mittlere Strecke $\langle \Lambda \rangle$ des gesamten Ensembles bestimmt man durch Mittelung sämtlicher isotrop emittierender Atome:

$$\langle \Lambda \rangle = \frac{1}{Z} \sum_{i=1}^Z \Lambda_i \quad Z : \text{Anzahl der berechneten Lichtwege} \quad (3.57)$$

Für die Analyse des Fluoreszenzlichts wurden mit $\rho = 0$ (vollkommen entspiegelt), $\rho = 0.3$ (mittlere Reflexion von Glas) und $\rho = 0.9$ (beinahe verspiegelt) drei Fälle untersucht. Die Ergebnisse dieser Simulationen sind in Tabelle (3.1) zusammengefasst. Man erkennt, dass die mittlere Weglänge des Fluoreszenzlichts bei gegebenem Volumen kleiner wird, wenn der Durchmesser der optischen Pumpzelle reduziert und die Länge entsprechend vergrößert wird.

Um den Einfluss des Fluoreszenzlichts experimentell zu testen, wurde die aus Quarz bestehende optische Pumpzelle (Länge: 1000 mm, Durchmesser: 50 mm) erst mit stark reflektierenden Aluminium-Elektroden beklebt und dann mit matten geschwärzten Kupfer-Elektroden. Die Gleichgewichtspolarisation betrug für die nicht-reflektierenden Elektroden 90% (Relaxation in der Gasentladung: 594 s), wohingegen mit den Aluminium-Elektroden bei vergleichbarer Gasentladungsstärke eine Polarisation von maximal 84% (Relaxation in der Gasentladung: 579 s) erreicht werden konnte. Mithilfe der aus der Simulation gewonnenen mittleren Weglänge des Fluoreszenzlichts lässt sich das Ergebnis genauer analysieren.

Hierzu unterteilt man die Zelle gedanklich in zwei Regime: Im ersten Bereich mit der Länge $\langle \Lambda \rangle$ tritt sowohl das zirkular polarisierte Laserlicht als auch das unpolarisierte Fluoreszenzlicht auf und polarisiert das Gas auf den Wert P_{fl} . Der unerwünschte Intensitätsanteil der Lichtpolarisation ist dann durch Gleichung (3.51) gegeben. Im zweiten Bereich mit der Länge $L - \langle \Lambda \rangle$ gibt es dagegen nur zirkular polarisiertes Licht, wodurch eine Polarisation P_0 erzielt wird. Die gemessene Polarisation kann demnach als Mittelung zwischen diesen beiden Extremen interpretiert werden (siehe Abbildung 3.11):

$$P = \frac{\langle \Lambda \rangle}{L} P_{fl} + \frac{L - \langle \Lambda \rangle}{L} P_0 \quad (3.58)$$

Für die stark reflektierenden Elektroden ($\rho = 0.9$) entnimmt man der Tabelle $\Lambda = 750$ mm, hingegen $\langle \Lambda \rangle = 220$ mm für die geschwärzten Elektroden ($\rho = 0.3$). Daraus folgt mithilfe von Gleichung (3.58)

$$\left. \begin{array}{l} 0.90 = 0.22 P_{fl} + 0.78 P_0 \\ 0.84 = 0.75 P_{fl} + 0.25 P_0 \end{array} \right\} \Rightarrow P_{fl} = 0.81; \quad P_0 = 0.92 \quad (3.59)$$

der Einfluss des Fluoreszenzlichts auf die Polarisation. Falls das Fluoreszenzlicht nicht mit den metastabilen Atomen wechselwirken würde, erwartet man eine Gleichgewichtspolarisation von 92%. Ist die Wechselwirkung des Fluoreszenzlichts hingegen identisch mit der des Laserlichts, werden nur maximal 81% erreicht.

Möchte man die beiden Gleichgewichtspolarisationswerte alternativ anhand der Gleichungen (2.47-2.50) vorhersagen, benötigt man den Druck ($p = 0.65$ mbar), die relative Metastabilendichte ($n_m/n_g \approx 0.4$), die Hellrelaxationszeit ($T_1 = 580$ s), die Laserleistung ($I_{ein} \approx 10$ W) und die Laserleistungsdichte ($J \approx 1$ W/cm²) als Modellparameter. Für diese Größen erhält man auf der C_8 -Linie mit zirkular polarisiertem Licht eine Gleichgewichtspolarisation von 90%, was eine recht gute Übereinstimmung mit den veranschlagten 92% darstellt (Einzelheiten zur Polarisationsberechnung finden sich in Kapitel 6).

Die Berechnung der Polarisation unter Berücksichtigung des Fluoreszenzlichts ist komplizierter, weil das Licht auf allen neun Hyperfeinübergängen reabsorbiert werden kann. Zur Vereinfachung der Kalkulationen wird das gesamte Fluoreszenzlicht jedoch nur die C_8 - bzw. C_9 -Übergänge anregen. Aus der Intensität des Fluoreszenzlichts kann ε zu etwa 0.001 bestimmt werden, was eine Verringerung der Polarisation auf 83% zur Folge hat. Vergleicht man diesen Wert mit den erwarteten 81%, so erkennt man eine Abweichung. Dennoch wird die Größenordnung des Effekts richtig beschreibt.

Zusammenfassend lässt sich aussagen, dass durch die Nutzung matt geschwärzter Elektroden die Effekte des Fluoreszenzlichts auf die Maximalpolarisation gering sind. Die Simulationen und Modellrechnungen zeigen eine Reduzierung der Polarisation von 92% auf 90%.

4 Methoden zur Messung der Kernspinpolarisation

Eine genaue Kenntnis der Kernspinpolarisation ist aus vielerlei Gründen wünschenswert. Die Wahl der Messmethode richtet sich danach, ob die Polarisation in der optischen Pumpzelle bei niedrigem Druck (~ 1 mbar) analysiert werden soll oder ob man den Polarisationsgrad in einem Speichergefäß bei einem Druck der Größenordnung 1 bar bestimmen möchte.

Ist letzteres der Fall, kann man die makroskopische Magnetisierung, deren Feldstärke in der Größenordnung von 1 mG liegt, relativ präzise messen und somit auf die Kernspinpolarisation zurückschließen. Dieses Verfahren verliert allerdings seine Sensitivität bei deutlich niedrigeren Drücken als 1 bar. Alternativ führt die Untersuchung der Transmissionseigenschaften einer Speicherzelle in einem Neutronenstrahl zu einem sehr genauen Ergebnis der Polarisation, obgleich diese Methode sehr aufwändig ist und daher nicht routinemäßig angewandt werden kann. Auch dieses Verfahren ist bei geringen Teilchenzahldichten nicht geeignet.

Zur Bestimmung der Kernspinpolarisation in einer optischen Pumpzelle eignen sich optische Verfahren. Durch Analyse des durch die Gasentladung erzeugten polarisierten Fluoreszenzlichts kann die Kernspinpolarisation ermittelt werden. Eine andere Möglichkeit der Polarisationsmessung bietet die Untersuchung der Absorption bzw. Transmission eines resonanten Probelasers. Mithilfe dieser beiden Verfahren ist es nicht möglich, die Kernspinpolarisation bei hohen Drücken zu bestimmen.

Nachfolgend werden die angesprochenen Methoden zusammenfassend dargestellt. Insbesondere die verschiedenen Varianten der Polarisationsbestimmung mittels Fluoreszenzlichtanalyse (Optischer Polarisationsnachweis, kurz OPN) waren in den vergangenen fünf Jahren Gegenstand intensiver Forschung [Has00, Rud01, Kro02], weshalb die erreichten Resultate an dieser Stelle präsentiert werden sollen.

4.1 Polarisationsbestimmung mittels Fluoreszenzlichtanalyse

Die Messung der Kernspinpolarisation in einer optischen Pumpzelle beruht auf der Bestimmung des Grades der Zirkularpolarisation des $3^1D_2 \rightarrow 2^1P_1$ -Übergangs bei 667.815 nm [Nis96]. Dieses Fluoreszenzlicht entsteht, wenn ein durch die Gasentladung vom Grundzustand in den 3^1D_2 -Zustand angeregtes ^3He -Atom in das 2^1P_1 -Niveau zerfällt. Falls die Atome im Grundzustand polarisiert sind, werden die Zeeman-Niveaus des angeregten Zustands während der Lebensdauer von ca. 15 ns [Nis96] durch die Hyperfeinwechselwirkung

zwischen Kernspin und Elektronenhülle ungleich besetzt, sodass das emittierte Licht zirkular polarisiert ist. Der Grad der Zirkularpolarisation ist direkt proportional zur ^3He -Polarisation in der optischen Pumpzelle. Unter Einberechnung eines druckabhängigen, die partielle Stoßrelaxation während der Lebensdauer des Zustands berücksichtigenden Eichfaktors α , lässt sich dann die Kernspinpolarisation des ^3He -Ensembles bei beliebigen Drücken zwischen ca. 0.1 und 10 mbar berechnen. Der Druckeichfaktor α wurde von verschiedenen Gruppen untersucht und ist mit rund 2% Genauigkeit bekannt [Pin74, Big92, Lor93] (p : Druck in mbar):

$$\alpha = \frac{31.74 \cdot (1 + 2.219 p)}{(1 + 2.219 p) (1 + 1.843 p)^2 + \frac{169.8 \cdot (1 + 1.843 p) (1 + 1.722 p)}{1 + 0.729 p} + 7.073 \cdot (1 + 2.594 p)} \quad (4.1)$$

Für die Kernspinpolarisation P gilt dann:

$$P = \frac{1}{\alpha} \frac{I(\sigma^+) - I(\sigma^-)}{I(\sigma^+) + I(\sigma^-)}, \quad (4.2)$$

wobei $I(\sigma^+)$ bzw. $I(\sigma^-)$ die Intensität der rechts- bzw. linkszirkular polarisierten Komponente im Fluoreszenzlicht beschreibt. Bei typischen Drücken in den optischen Pumpzellen von rund 1 mbar ist α von der Größenordnung 0.1, sodass das Fluoreszenzlicht nur zu rund 10% zirkular polarisiert ist.

Zur Messung der Lichtpolarisation des 668 nm-Lichts wurden drei Geräte realisiert, deren Aufbau nun diskutiert wird.

4.1.1 Polarisationsnachweis mit rotierendem $\lambda/4$

Bei diesem seit langem bekannten System zur Bestimmung des Polarisationsgrades [Roh94] handelt es sich um ein pressluftbetriebenes Gerät. Den schematischen Aufbau zeigt Abbildung (4.1). Mittels einer rotierenden $\lambda/4$ -Folie wird der zirkular polarisierte Anteil des Fluoreszenzlichts in linear polarisiertes Licht umgewandelt, dessen Polarisations Ebene sich mit der doppelten Rotationsfrequenz dreht. Eine darauffolgende, feststehende Polarisationsfolie analysiert dieses Licht. Da nur das 668 nm-Licht analysiert werden soll, werden andere Wellenlängen durch einen schmalen Bandpassfilter (Interferenzfilter IF, Durchlassbereich: 668 ± 5 nm) herausgefiltert. Ein Farbglasfilter¹⁾ blockt das restliche Laserlicht ab, welches von dem dichroitischen Spiegel hinter der Pumpzelle noch durchgelassen wird. Eine Linse bildet das Licht auf eine 1 cm^2 große Fotodiode²⁾ ab, die mit einem nachgeschalteten rauscharmen Verstärker die sinusförmige Intensitätsmodulation registriert. Mit einem Tiefpass wird außerdem der Mittelwert des Diodensignals

$$\bar{U} = \frac{1}{2} (I_{\max} + I_{\min}) \quad (4.3)$$

1) Firma Schott Glas Mainz; Modell: KG-3

2) Hamamatsu Photonics Deutschland; Modell: S1337-1010BR Silicon

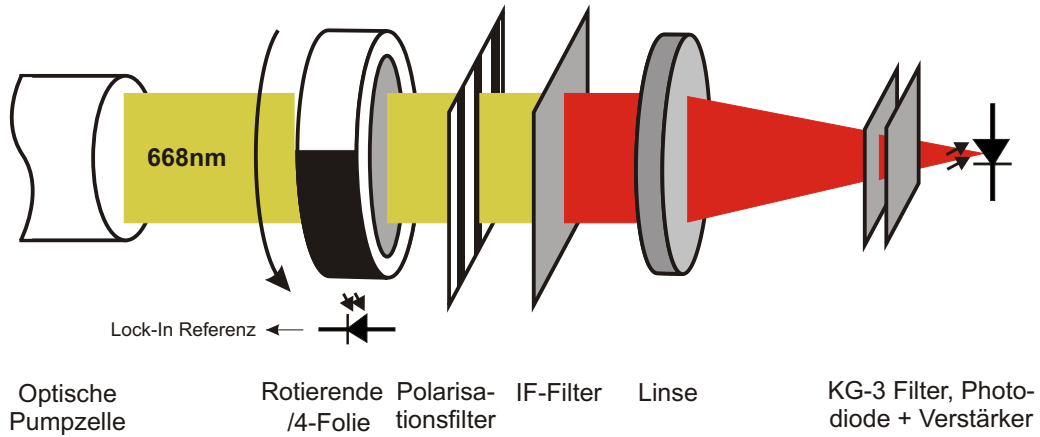


Abbildung 4.1: Zirkular polarisiertes Licht aus der optischen Pumpzelle wird mit einem rotierenden $\lambda/4$ -Element und einem Polarisationsfilter nachgewiesen. Schwarze und weiße Flächen auf dem Rotator dienen zur Gewinnung des Lock-in Referenzsignals.

bestimmt. Das modulierte Signal der Fotodiode wird mithilfe eines Lock-in-Verstärkers weiterverarbeitet, der den Effektivwert

$$U_{Lock-in} = \frac{1}{2\sqrt{2}} (I_{max} - I_{min}) \quad (4.4)$$

der Intensitätsmodulation misst. Die Referenzfrequenz für den Lock-in-Verstärker wird über eine Fotodiode gewonnen, die die Intensitätsunterschiede der am Rotator des $\lambda/4$ -Verzögerungselements angebrachten schwarzen und weißen Flächen detektiert. Die Polarisation berechnet sich aus diesen Signalen wie folgt:

$$P = \frac{1}{\alpha \varepsilon} \frac{U_{Lock-in} \sqrt{2}}{\bar{U}} \quad (4.5)$$

Der Faktor ε („Effizienz“) berücksichtigt hierbei Fehler der verwendeten optischen Elemente (Verzögerungsplättchen, Polarisationsfolie). Die Effizienz kann bestimmt werden, indem man eine bekannte Kernspinpolarisation mit der Polarisation vergleicht, die der OPN angibt. Eine Kernspinpolarisation von 100% lässt sich durch Einstrahlen von perfekt zirkular polarisiertem Licht simulieren. Hierzu stellt man zwischen die ^3He -Zelle und den optischen Polarisationsnachweis einen Polarisationsfilter mit nachfolgendem $\lambda/4$ -Verzögerungselement als so genannten *Eichstandard*, sodass insgesamt ein Zirkularpolarisationsgrad von mehr als 98% erreicht wird. Da die OPN-Effizienz geringfügig von der Stärke der Gasentladung in der optischen Pumpzelle abhängt, sollten die Polarisationsmessungen mit dem OPN bei ähnlichen Gasentladungshelligkeiten durchgeführt werden. Der Grund hierfür ist, dass Licht unter verschiedenen Winkeln durch den Eichstandard und die Polarisations Elemente des OPN geht, und diese Winkelverteilung mit der Gasentladungsstärke variiert. Die Eigenschaften der polarisierenden optischen Elemente sind jedoch nur bei senkrechtem Einfall des Lichts optimal.

Bei der Bestimmung des Druckeichfaktors in [Big92, Lor93] wurden jeweils optische Pumpzellen von 5 cm Länge benutzt. Die bei uns eingesetzten Zellen haben aber eine Länge von mindestens 80 cm. Da die beiden unabhängigen Polarisationsrichtungen des Lichts, wie durch die Fresnelschen Formeln beschrieben, verschiedene Reflexionskoeffizienten haben, geht bei der Propagation des Lichts von der Zelle in den OPN ein Teil der Zirkularpolarisation verloren. Eine Untersuchung von J. Schmiedeskamp [Sch04] legt nahe, dass die Reflexionen einen Fehler von weniger als 2% (relativ) verursachen. Darüber hinaus ist der Grad der Zirkularpolarisation des Spektrallichts auch von der Stärke des Magnetfeldes abhängig, weil dieses eine Entkopplung von Elektronen- und Kernspin bewirkt. Bei einem verwendeten Magnetfeld von 10 G muss der Druckeichfaktor α daher um 0.6% gegenüber einem infinitesimal kleinen Magnetfeld reduziert werden [Big92].

4.1.2 Polarisationsnachweis mit einem Strahlteilerwürfel

Die Polarisationsmessung mit einem Strahlteilerwürfel gestattet es, den Zirkularpolarisationsgrad des Fluoreszenzlichtes aus den optischen Pumpzellen mit einer Vorrichtung ohne rotierende Teile zu bestimmen. Abbildung (4.2) zeigt den schematischen Aufbau dieses Gerätes. Das Fluoreszenzlicht fällt zuerst auf eine feststehende $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte. Das nun zu einem gewissen Teil linear polarisierte Licht fällt auf einen Polarisationsstrahlteilerwürfel. Je nach Ausrichtung der Polarisationsachse wird das Licht vom Strahlteilerwürfel transmittiert oder um 90° umgelenkt. Die Lichtintensitäten werden anschließend durch zwei Fotodioden mit nachgeschalteten Verstärkern gemessen. Zur Intensitätssteigerung wird auf Linsen zurückgegriffen, die das Licht auf die 1 cm^2 großen Fotodioden abbilden. Eine Kombination aus einem KG-3- und einem Bandpassfilter transmittiert nur Licht der Wellenlänge 668 nm ($\pm 5 \text{ nm}$). Durch Drehung der Verzögerungsplatte kann die Achse des linear polarisierten Lichts so eingestellt werden, dass sie entweder genau senkrecht oder parallel zur Würfelkante A (vergleiche Abbildung 4.2) liegt. Für rein zirkular polarisiertes Licht verschwindet dann eine Intensität und die andere Fotodiode zeigt eine Maximalspannung.

Mit unpolarisiertem Licht aus der optischen Pumpzelle wurde die Analysierstärke der beiden Fotodioden untersucht. Damit beide Verstärker bei konstanter Gasentladungsstärke die gleiche Spannung liefern, ist es nötig, beide Signale aufeinander zu kalibrieren. Mit der Gleichung

$$U_{mess}^{OPN1} \equiv U_{kalib}^{OPN2} = a + b \cdot (U_{mess}^{OPN2})^x \quad (4.6)$$

bekommt man ein kalibriertes Signal von Fotodiode 2. Für die Versuchsanordnung wurden die Parameter durch einen Fit der Gleichung (4.6) an die Messwerte bestimmt (siehe Abbildung 4.3). Man erkennt an der roten Kurve, dass die Anpassung das Verhalten der beiden Fotodioden adäquat beschreibt. Mit dem so aufgebauten Gerät wurden Polarisations-tests durchgeführt.

4.1. POLARISATIONSBESTIMMUNG MITTELS FLUORESZENZLICHTANALYSE 67

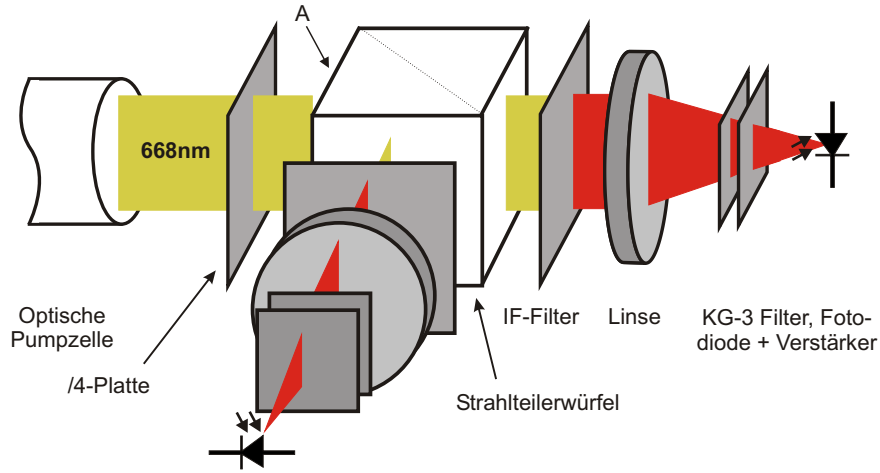


Abbildung 4.2: Schematischer Aufbau des OPN mit Strahlteilerwürfel. Linear polarisiertes Licht, welches durch das $\lambda/4$ -Plättchen aus dem einfallenden zirkular polarisierten Licht entsteht, wird durch den Strahlteilerwürfel auf zwei Fotodioden aufgeteilt.

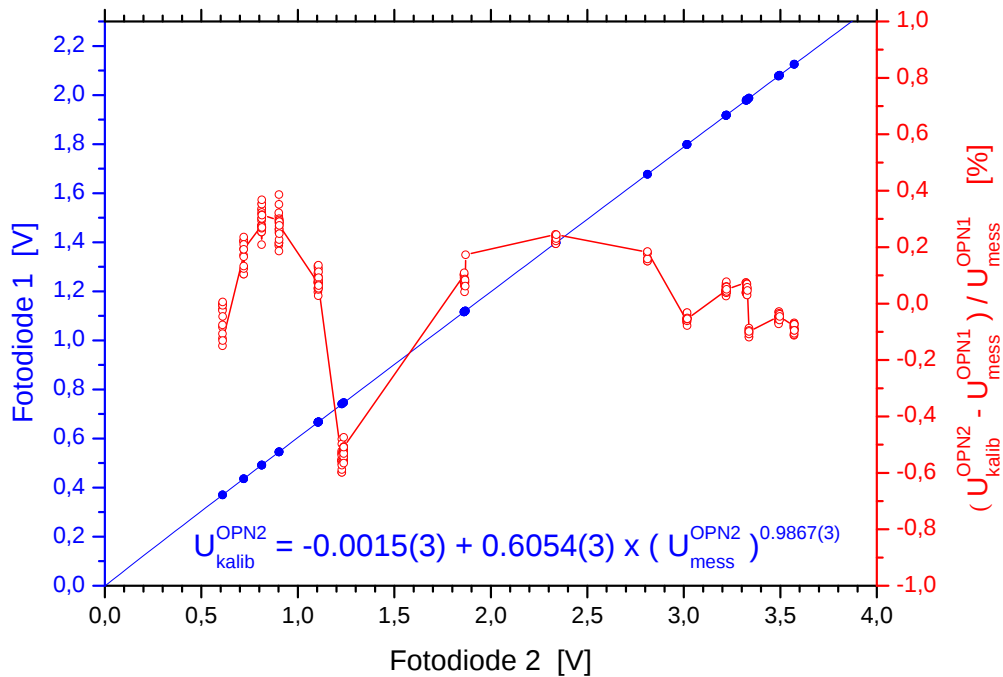


Abbildung 4.3: Signal der beiden Fotodioden für unterschiedliche Lichtintensitäten (blau). Die rote Kurve zeigt die zu erwartende Schwankung der Kernpolarisation bei Variation der Gasentladungsstärke.

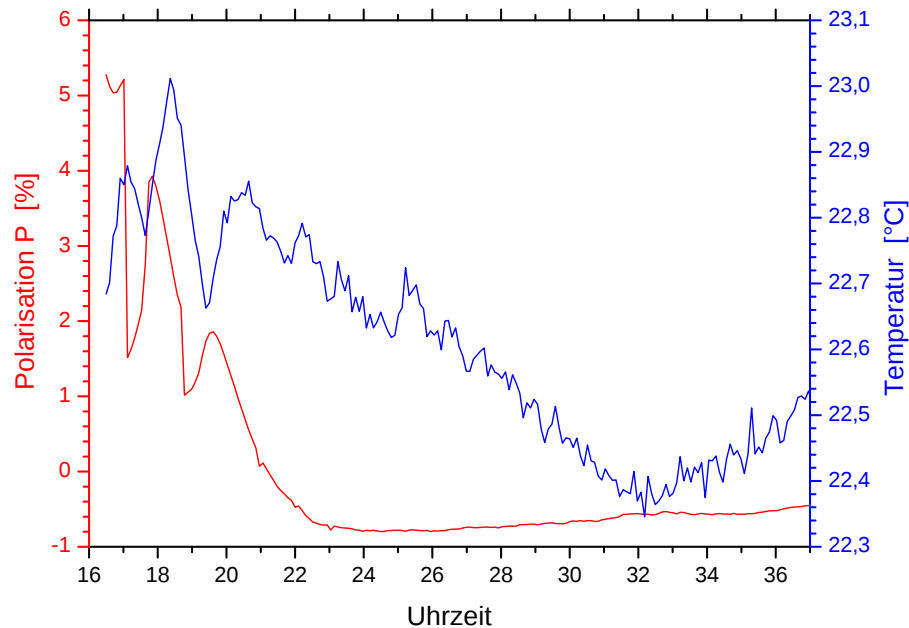


Abbildung 4.4: Die rote Kurve beschreibt die gemessene Polarisation von unpolarisiertem Gas über einen Zeitraum von gut 20 Stunden. Eine Korrelation mit der Temperatur (blaue Kurve) ist erkennbar.

J. Hasse berichtet in seiner Diplomarbeit [Has00], dass die gemessene Polarisation sensitiv auf geometrisches Verkippen der Messanordnung reagiere. Eine erneute Prüfung zeigte ein solches Verhalten nicht. Über die Ursachen kann nur spekuliert werden; vermutlich haben aber Lichtreflexe innerhalb des Gehäuses des optischen Polarisationsnachweises die früheren Messungen verfälscht. Als höchst problematisch erwies sich jedoch die sehr empfindliche Abhängigkeit der Kalibration von der Temperatur. In Abbildung (4.4) erkennt man, dass schon Temperaturänderungen von weniger als 1°C eine Neukalibration erfordern. Als Ausweg würde sich eine aktive Temperaturstabilisierung der Fotodioden anbieten, deren Implementierung im OPN allerdings mit großem Aufwand verbunden wäre. Diese Art der Polarisationsmessung stellt damit keine günstige Alternative hinsichtlich Messgenauigkeit, Kosten und Herstellungsaufwand gegenüber dem OPN mit rotierendem $\lambda/4$ -Element dar, weshalb die Untersuchungen auch nicht weitergeführt wurden.

4.1.3 Polarisationsnachweis mit einem Flüssigkristallelement

Das zentrale optische Element in diesem Aufbau ist ein elektrisch schaltbarer Shutter in Flüssigkristallausführung³⁾, der in Videokameras häufig Verwendung findet. Durch Anlegen einer Spannung zwischen zwei parallelen Glasplatten, auf deren Innenseiten eine leitende Schicht aufgetragen ist, wird ein elektrisches Feld erzeugt. Zwischen den Platten befindet sich eine polare, stark anisotrope Substanz in einer so genannten „flüssigkristallinen

3) Typ LCSI N der Firma Liquid Sun, United Kingdom

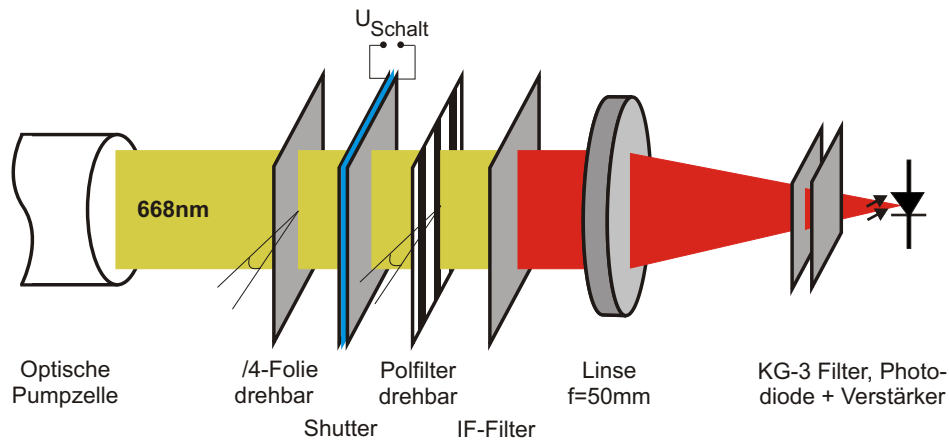


Abbildung 4.5: Schematischer Aufbau des OPN mit Flüssigkristallelement. Die $\lambda/4$ -Folie und der Polarisationsfilter können zur Justage gedreht werden.

Phase“. Wird ein äußeres elektrisches Feld angelegt, dann bilden die Kristalle aufgrund ihrer Polarität eine makroskopische Polarisation, die die Lichtpolarisation beeinflusst. Je nach Richtung des äußeren Feldes ändert sich die Ausrichtung der Kristalle und damit wegen der anisotropen Eigenschaft auch die Ausrichtung der optischen Achse. Beträgt der Winkelunterschied der optischen Achse im Idealfall zwischen beiden Feldrichtungen genau 45° und ist die Verzögerung der verwendeten Schicht gerade eine halbe Wellenlänge des Lichts, kann das Element als schaltbare $\lambda/2$ -Platte verwendet werden. Die Ansteuerung erfolgt über eine Spannung von ± 10 bis 30 V, dabei können Schaltzeiten bis hinab zu $100 \mu\text{s}$ erreicht werden.

Das zirkular polarisierte 668 nm-Licht aus den Pumpzellen wird durch eine $\lambda/4$ -Folie in linear polarisiertes Licht umgewandelt, wobei die Achsen für links- bzw. rechtszirkular polarisiertes Licht senkrecht zueinander liegen (vergleiche Abbildung 4.5). Ist die Verzögerungsfolie derart justiert, dass die Achsen des linear polarisierten Lichts unter $\pm 45^\circ$ relativ zur schnellen Achse des Shutters liegen, so sind die beiden Polarisationsebenen nach Durchgang durch das Flüssigkristallelement um je 90° gedreht worden. Wird die Polarität der an den Shutter angelegten Spannung gewechselt, so dreht sich die schnelle Achse um 45° . Sie steht jetzt parallel bzw. senkrecht zu den Polarisationsebenen, die das $\lambda/4$ -Element vorgibt. Daher erfahren die Polarisationsebenen beim Durchgang durch den Shutter keine Änderung. Eine nachgeschaltete Polarisationsfolie wird so justiert, dass ihre Polarisationsebene parallel zu einer der Polarisationsebenen des $\lambda/4$ -Elements liegt. Diese Polarisationsfolie analysiert das Licht, und je nach Schaltzustand detektiert die Fotodiode eine größere bzw. kleinere Intensität, falls der Zirkularpolarisationsgrad des einfallenden Lichts ungleich null ist.

Mit der Realisierung eines solchen OPN befassten sich in den vergangenen Jahren drei Diplomarbeiten [Has00, Rud01, Kro02]. Entgegen der erwarteten Funktionsweise verhält

sich der Flüssigkeitskristall nicht wie ein $\lambda/2$ -Verzögerungsplättchen. Durch Umpolung der angelegten Spannung verändert sich einerseits die schnelle Achse nicht um 45° und andererseits ist die Verzögerung Δ von der Polarität abhängig. Da aufgrund der Shutter-Eigenschaften eine herkömmliche Kalibration mittels eines Eichstandards zu unsinnigen Ergebnissen führte, wurde in dieser Arbeit der OPN empirisch mithilfe der Messwerte des Polarisationsnachweises mit rotierendem $\lambda/4$ kalibriert und anschließend am Polarisator zur Polarisationsmessung verwendet. Hier zeigte sich, dass das Führungsfeld des Polarisators von etwa 10 G die OPN-Eigenschaften beeinflusste. Zudem erwies sich die Kalibration als zeitlich instabil. Offensichtlich sind die schaltbaren Flüssigkristalle für die präzise Messung der Lichtpolarisation ungeeignet.

4.2 Polarisationsbestimmung durch Lichtabsorption

Die Bestimmung der Kernspinpolarisation in einer optischen Pumpzelle mittels einer Absorptionsmessung wird hier zusammengefasst dargestellt (siehe auch Abbildung 4.6); eine ausführlichere Beschreibung findet sich in [Big92, Roh94]. Ergänzend zur Ausführung von D. Rohe wird der Einfluss eines falschen zirkularen Lichtanteils und einer zu großen Leistungsdichte auf die gemessene Polarisation untersucht.

Diese Methode beruht auf der Tatsache, dass die Absorption von σ^+ - und σ^- -Licht auf der C_8 - oder C_9 -Resonanz von der Kernspinpolarisation in der Pumpzelle abhängt. Bei 100% Polarisation ist beispielsweise nur der $m_F = 3/2$ -Zustand des 2^3S_1 -Niveaus bevölkert, alle anderen Zeeman-Sublevels sind durch das optische Pumpen mit σ^+ -Licht unbesetzt. In dieser Situation kann kein weiteres σ^+ -Licht absorbiert werden. Die σ^- -Komponente erreicht dagegen ihre maximale Absorption. Setzt man zur expliziten Berechnung der Absorptionskoeffizienten A^+ und A^- für σ^+ - bzw. σ^- -Licht das Spintemperaturgleichgewicht voraus, erhält man für den C_9 -Übergang aus der Theorie in Kapitel 2.7:

$$A^+ = \frac{3 + x}{1 + 2x + 2x^2 + x^3} \quad (4.7)$$

$$A^- = \frac{x^2 + 3x^3}{1 + 2x + 2x^2 + x^3} \quad (4.8)$$

Hierbei ist x nach Gleichung (2.53) definiert als $x = \frac{1+P}{1-P}$. Das Spintemperaturgleichgewicht ist nur erfüllt, wenn die metastabile Austauschrate größer als die absorbierte Photonenrate ist. Da die absolute Polarisationsmessung auf Absorption eines Probestrahls beruht, darf durch den Probestrahl außerdem keine Sättigung der ^3He -Atome erfolgen. Beide Bedingungen sind für einen schmalbandigen Diodenlaser mit einer Leistungsdichte von weniger als $100 \mu\text{W}/\text{cm}^2$ gut erfüllt.

Die transmittierte Intensität T^+ und T^- kann für die beiden zirkularen Lichtpolarisationen durch das Beersche Absorptionsgesetz beschrieben werden als

$$T^\pm = I_0 e^{-k A^\pm} . \quad (4.9)$$

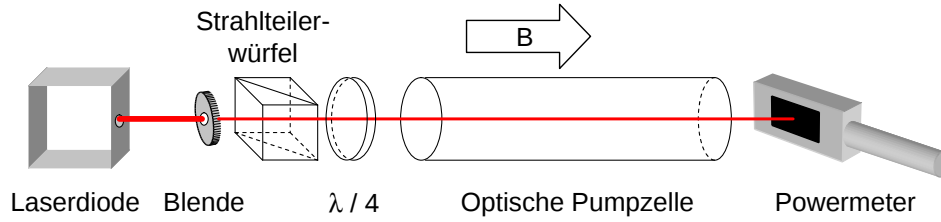


Abbildung 4.6: Schematischer Aufbau zur Polarisationsmessung durch Lichtabsorption.

Dabei bezeichnet I_0 die Intensität des Laserstrahls, wenn keine Absorption in der optischen Pumpzelle stattfindet. Der Faktor k berechnet sich aus folgender Überlegung: Bei Polarisation null wird wegen der Gleichbesetzung der Zeeman-Niveaus das resonante Laserlicht unabhängig von seiner Polarisationsrichtung absorbiert, d.h. $A^+ = A^- = 2/3$. Daraus folgt, dass die Transmissionen für σ^+ - und σ^- -Licht gleich sind:

$$T_0 \equiv T^+(P=0) = T^-(P=0) \quad (4.10)$$

Einsetzen der Formel (4.9) für $x = 1$ ergibt somit für die C_9 -Linie:

$$k = -\frac{3}{2} \ln \left[\frac{T_0}{I_0} \right] \quad (4.11)$$

Um die Polarisation in einer ^3He -Zelle festzustellen, müssen demnach drei Größen bestimmt werden: die Intensität des Laserstrahls I_0 , die Transmission bei unpolarisiertem Gas T_0 und die polarisationsabhängige Transmission mit zirkular polarisiertem Licht. Soll eine akkurate Polarisationsmessung erfolgen, müssen zahlreiche Fehlerquellen ausgeschlossen werden. Von herausragender Bedeutung ist die Verwendung eines frequenz- und leistungsstabilisierten Lasers sowie das stabile Brennen der Gasentladung (sprich: konstante Metastabilendichte). Sind diese Bedingungen nicht erfüllt, beeinträchtigt der statistische Fehler die Genauigkeit der zu bestimmenden Absorptionskoeffizienten erheblich. Die Forderung nach einem spektral schmalbandigen Laser ist zwar nicht essenziell, dadurch kann aber eine Mischung der C_8 - und C_9 -Übergänge ausgeschlossen werden, was die Interpretation der Messdaten erheblich vereinfacht.

Neben dem statistischen Fehler müssen eine Reihe systematischer Fehler berücksichtigt werden. Eine mögliche Quelle ist die Beimischung von ^4He in der ^3He -Pumpzelle. ^4He besitzt zwei Resonanzen, die nur 0.9 GHz (D_2) bzw. 1.7 GHz (D_1) von der C_9 -Linie in ^3He entfernt sind (siehe Tabelle 2.2). Daher kann aufgrund der Dopplerverbreiterung das auf den C_9 -Übergang abgestimmte Laserlicht auch von ^4He absorbiert werden. Anhand der Tabelle ist auch ersichtlich, dass die Absorptionswahrscheinlichkeit auf den D_1 - und D_2 -Übergängen zusammengerechnet fast eine Größenordnung höher ist als auf der C_9 -Linie. Folglich können schon geringe Mengen an ^4He in der optischen Pumpzelle die Ergebnisse empfindlich beeinflussen (Details siehe [Roh94]).

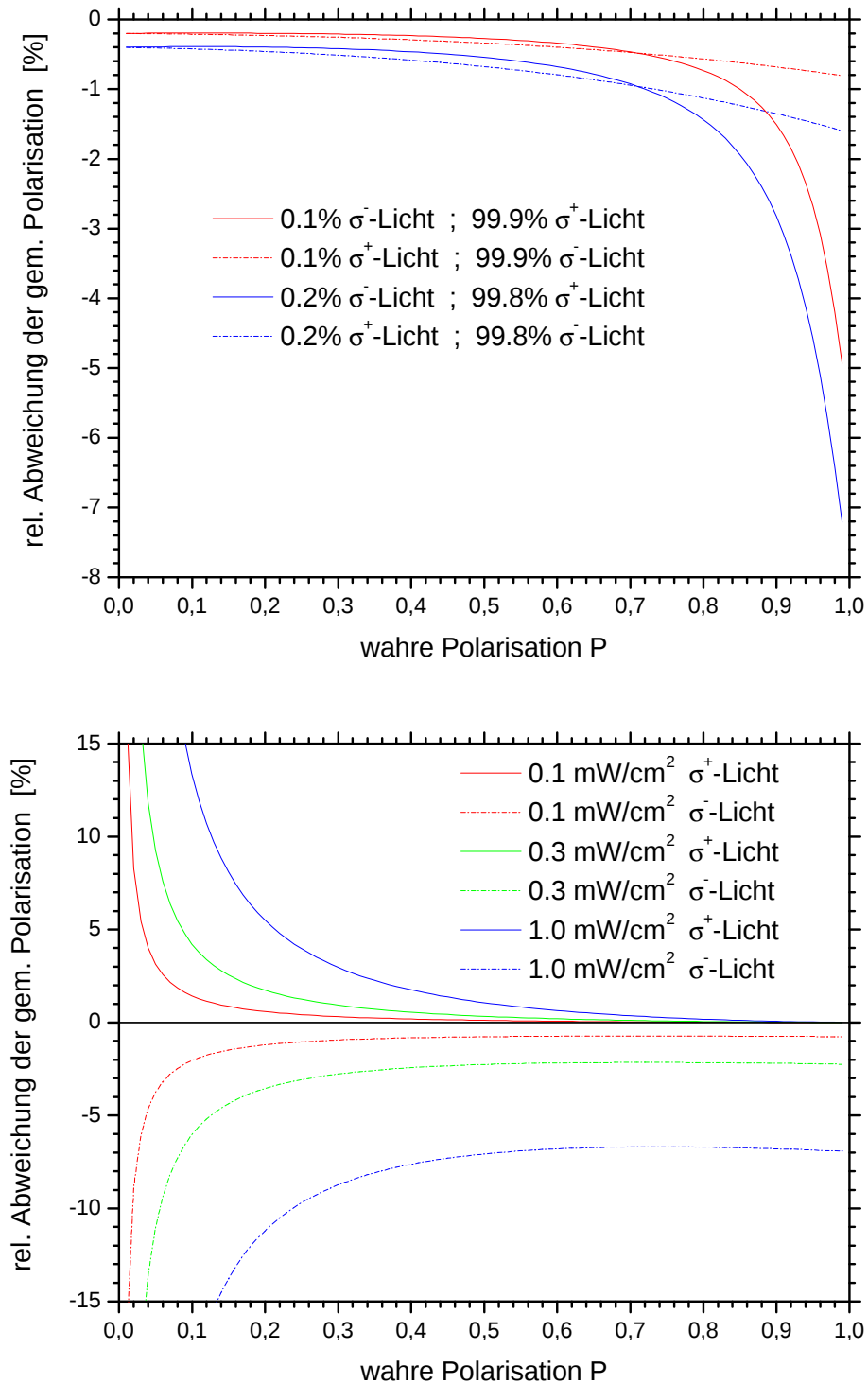


Abbildung 4.7: Das obere Diagramm beschreibt, wie groß die relative Abweichung der mithilfe der Lichtabsorption gemessenen Polarisation von der tatsächlichen Kernspinpolarisation ist, wenn ein falscher Lichtpolarisationsanteil bei der Berechnung nicht berücksichtigt wird (Die Laserleistung sei sehr gering). Im unteren Grafen ist die Abweichung der gemessenen Polarisation von der wahren Kernspinpolarisation für verschiedene Leistungsdichten dargestellt. Die Veränderung kommt zustande, weil das Spintemperaturgleichgewicht nicht mehr streng erfüllt ist (Das Laserlicht sei perfekt zirkular polarisiert).

Bislang wurde das zur Absorptionsmessung eingesetzte Laserlicht als ideal zirkular polarisiert (σ^+ oder σ^-) angenommen. Justagefehler des Probestrahls und nicht-ideale Polarisationsoptiken verursachen allerdings falsche Anteile in der Lichtpolarisation, die in die Analyse mit einbezogen werden müssen. Ist der falsche Polarisationsanteil ε sowohl bei σ^+ -Licht als auch bei σ^- -Licht identisch, so wird Gleichung (4.9) ergänzt:

$$T^+ = I_0 \left[(1 - \varepsilon) e^{-k A^+} + \varepsilon e^{-k A^-} \right] \quad (4.12)$$

$$T^- = I_0 \left[(1 - \varepsilon) e^{-k A^-} + \varepsilon e^{-k A^+} \right] \quad (4.13)$$

Im oberen Diagramm von Abbildung (4.7) ist der Effekt einer falschen Lichtpolarisation zu erkennen. Gerade bei hohen Kernspinpolarisationen verfälscht schon ein geringer falscher zirkularer Lichtanteil die zu messende Kernspinpolarisation signifikant. Dies ist kritisch, weil ε nur mit großem Aufwand bestimmt werden kann.

Bei den bisherigen Ausführungen sollte das Spintemperaturgleichgewicht streng gelten und die Leistungsdichte des Probelasers hinreichend gering sein. Legt man hingegen das durch die Gleichungen (2.47 - 2.50) gegebene umfassendere Modell des optischen Pumpens zugrunde, so ergeben sich auch bei niedrigen Laserleistungen geringe Abweichungen, die im unteren Grafen von Abbildung (4.7) dargestellt sind. Als Ergebnis dieser Kalkulation kann festgehalten werden, dass die Leistungsdichte - wie oben schon erwähnt - geringer als $100 \mu\text{W}/\text{cm}^2$ sein sollte.

Diese Art der Polarisationsbestimmung erfordert einen deutlich höheren Aufwand als die Messung der Polarisation mittels der Fluoreszenzlichtanalyse. Da beide Verfahren jedoch auf unterschiedlichen physikalischen Prinzipien basieren, erlauben sie eine gegenseitige Kontrolle der ermittelten Kernspinpolarisation. Daher wurde überprüft, ob die mit einem OPN am Polarisator gemessene Kernspinpolarisation identisch mit dem durch die Lichtabsorptionsmethode erhaltenen Ergebnis ist. Tatsächlich kann man Abbildung (4.9) entnehmen, dass die Resultate beider Methoden gut übereinstimmen und die angenommene Fehlertoleranz von 2% bei Verwendung eines optischen Polarisationsnachweises bestätigt wird.

4.3 Polarisationsbestimmung mittels Magnetometrie

Die Polarisationsbestimmung mittels Magnetometrie basiert auf der Messung des durch die polarisierte Probe verursachten statischen magnetischen Feldes. Bei einer polarisierten Zelle mit einem Druck von einem bar und mehr erreicht das Magnetfeld eine Stärke von etwa einem mG. Dieses Feld kann mit so genannten Förstersonden mit einer Sensitivität von $10 \mu\text{G}$ gemessen werden, was einer relativen Genauigkeit von etwa 1% entspricht. Erschwert wird die Bestimmung des durch die Probe erzeugten B-Feldes durch die Überlagerung des Führungsfeldes von $\approx 10 \text{ G}$. Prinzipiell ist eine Bestimmung des Magnetfelds mit und ohne Probe möglich, um aus der Differenz auf das B-Feld der Zelle zu schließen. Da

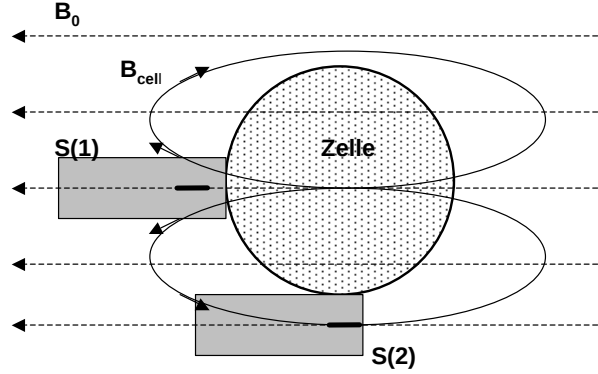


Abbildung 4.8: Schematischer Aufbau zur Polarisationsmessung mittels Magnetometrie (Details siehe Text).

die kurzzeitige relative Stabilität des Führungsfeldes allerdings schlechter als 10^{-5} ist, kann man bei der Verwendung einer einzigen Sonde das Zellenmagnetfeld nur mit einer absoluten Genauigkeit von ca. $100 \mu\text{G}$ vermessen. Notwendig ist also eine Methode, bei der die Schwankungen des Führungsfeldes eliminiert werden können. Im Folgenden wird eine mögliche Realisierung skizziert, die Gegenstand der laufenden Dissertation von M. Batz ist [Bat04].

Polarisiertes Gas innerhalb einer kugelförmigen Zelle erzeugt ein Magnetfeld, das sich außerhalb des Gefäßes wie ein punktförmiger Dipol verhält. Zur Untersuchung des von der Probe erzeugten B-Feldes wird mit zwei Magnetfeldsonden nahe der Zelle gemessen, wobei man eine Sonde $S(1)$ am Pol eines solchen Dipols positioniert und die zweite Sonde $S(2)$ am Äquator platziert (siehe Abbildung 4.8). Das von der Sonde $S(1)$ gemessene Feld ist dann die Summe des Führungsfeldes $B_0(1)$ und des von der Probe erzeugten Magnetfeldes B_{cell} . Weil das Dipolfeld am Äquator exakt halb so groß ist wie am Pol und dem Führungsfeld entgegengesetzt ist, folgt für die Sonde $S(2)$ dagegen $B_0(2) - 1/2 B_{\text{cell}}$.

In der praktischen Durchführung werden zunächst die Magnetfelder ohne polarisiertes Gas mit den Sonden $S(1)$ und $S(2)$ gemessen und die Messergebnisse subtrahiert:

$$\Delta B_{oG} = [B_0(1) - B_0(2)] \quad (4.14)$$

Dadurch kann ein möglicher Offset zwischen beiden Magnetfeldsonden beseitigt werden. Anschließend wiederholt man die Messung mit polarisiertem Gas und bildet erneut die Differenz:

$$\Delta B_{mG} = [B_{mG}(1) - B_{mG}(2)] = \frac{3}{2} B_{\text{cell}} + [B_0(1) - B_0(2)] \quad (4.15)$$

Eine nochmalige Differenzbildung ergibt dann schließlich das durch die Zelle erzeugte Magnetfeld:

$$\Delta B = \Delta B_{mG} - \Delta B_{oG} = \frac{3}{2} B_{\text{cell}} \quad (4.16)$$

Falls beide Sonden den gleichen Abstand r vom Mittelpunkt der kugelförmigen Zelle haben, berechnet sich die Kernspinpolarisation P des Gases gemäß der Formel:

$$P = \frac{2\pi}{\mu_0 \mu} \frac{B_{\text{cell}} k T}{p V} \cdot r^3, \quad (4.17)$$

wobei μ_0 die Permeabilitätskonstante, μ das magnetische Kernmoment (^3He : $\mu = 1.074 \cdot 10^{-26}$ J/T), $k = 1.381 \cdot 10^{-23}$ J/K die Boltzmann-Konstante, T die Temperatur, p der Druck und V das Volumen der Probe ist. Nach derzeitigem Stand wird mit dieser Methode die Polarisation mit einer relativen Genauigkeit von etwa 3% bestimmt. Zur Exaktheit tragen hier neben der Magnetfeldsonden-Sensitivität vor allem Unsicherheiten bei der Messung des Abstands r und des Drucks p bei.

Es ist geplant, mithilfe der Magnetometrie den Polarisationsgrad des abgefüllten ^3He routinemäßig zu messen. Zwar steht mit dem optischen Polarisationsnachweis bereits eine Polarisationsanalyse zur Verfügung, dieser kann jedoch nur Aussagen zur Polarisation in den Pumpzellen liefern. Etwaige Verluste bei der Kompression oder beim Transfer in ein Speichergefäß können nicht erfasst werden. Deshalb ist es sinnvoll, die Polarisation des komprimierten Gases unmittelbar vor der Speicherzelle zu bestimmen. Da die Ergebnisse der Magnetometriemessung durch systematische Fehler verfälscht sein können, bietet sich eine Überprüfung der ermittelten Polarisation durch Neutronenabsorption an. Diese aufwändige Methode wird nachfolgend skizziert.

4.4 Polarisationsbestimmung durch Neutronenabsorption

An einem Neutronenstrahl kann die Kernspinpolarisation von ^3He bei Drücken der Größenordnung 1 bar mit einer relativen Präzision von besser als einem Prozent gemessen werden. Die Messung basiert auf der Eigenschaft, dass niederenergetische Neutronen in ^3He sehr unterschiedliche Absorptionsquerschnitte für ihre beiden Spinzustände besitzen und folglich beim Durchgang durch ^3He spin-selektiert werden.

Tritt ein unpolarisierter Neutronenstrahl der Zählrate I_0 durch eine ^3He -Zelle mit der Kernspinpolarisation P , dann ist die transmittierte Zählrate T_n bestimmt durch

$$T_n = I_0 e^{-\mathcal{O}} \cosh(\mathcal{O} P), \quad (4.18)$$

wobei $\mathcal{O}$ („Opazität“) den ^3He -Gasdruck p , die Länge der Zelle L , die DeBroglie-Wellenlänge der Neutronen λ und den Absorptionswirkungsquerschnitt vereinigt [Sur97]:

$$\mathcal{O} = 0.0733 \cdot p[\text{bar}] \cdot L[\text{cm}] \cdot \lambda[\text{\AA}] \quad (4.19)$$

Da die Neutronenintensität am Forschungsreaktor in Mainz sehr stabil ist, lassen sich die drei unbekannten Größen I_0 , $\mathcal{O}$ und P in drei nacheinander stattfindenden Messungen bestimmen. Zunächst wird die Neutronenzählrate ohne Zelle gemessen, um I_0 festzulegen. Anschließend wird die polarisierte Zelle in den Neutronenstrahl gebracht und die Zählrate

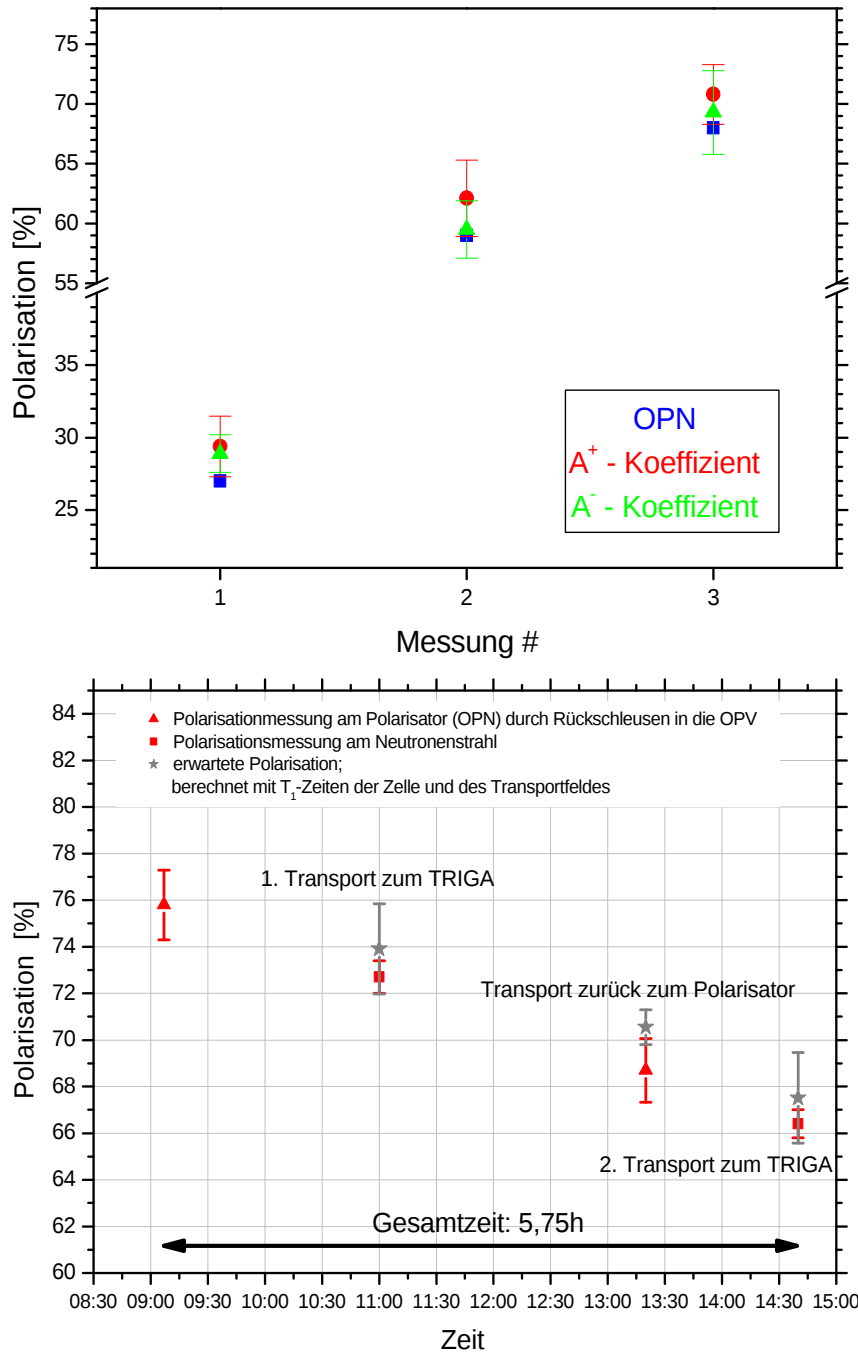


Abbildung 4.9: Oben: Vergleichende Untersuchung der Kernspinpolarisation mithilfe der Fluoreszenzlichtanalyse (OPN) und der Absorption von σ^+ -Laserlicht (A^+) bzw. σ^- -Laserlicht (A^-). Unten: Vergleichende Untersuchung der Kernspinpolarisation mithilfe der Fluoreszenzlichtanalyse und der Absorption von Neutronen. Die Kernspinpolarisation des Gases wird mit einem OPN gemessen. Anschließend wird das Gas zum TRIGA-Reaktor transportiert und dort die Polarisation mittels Neutronenabsorption bestimmt. Die Polarisationsverluste werden durch quantitativ bekannte Relaxationsquellen (Speichergefäß, Transportfeld) verursacht, die bei der Untersuchung einkalkuliert werden (Details siehe [Sch04]).

$T_n(P)$ ermittelt. Zuletzt depolarisiert man die ^3He -Zelle und misst die transmittierte Intensität $T_n(0)$. Sind $T_n(0)$ und I_0 bekannt, kann die Opazität berechnet werden und mithilfe der zweiten Messung erhält man die gesuchte Kernspinpolarisation P (Details siehe [Sur95]).

4.5 Vergleich der Polarisationsbestimmungen

Die Kombination der vorgestellten Verfahren zur Polarisationsbestimmung erlaubt Rückschlüsse auf die Präzision der einzelnen Methoden. Im oberen Grafen von Abbildung (4.9) sind für drei unterschiedliche Kernspinpolarisationen Werte aufgetragen, die man durch die Fluoreszenzlichtanalyse bzw. die Lichtabsorption erhält. Beide Methoden sind im Rahmen der Fehler konsistent. Das untere Diagramm veranschaulicht die Polarisationsmessung mittels OPN und Neutronenabsorption. Auch hier sind die Resultate unter Berücksichtigung der Messgenauigkeiten identisch. Zusammengefasst untermauern diese Polarisationsbestimmungen mit unabhängigen Messmethoden, dass die Polarisation durch optische Untersuchungen mit einer Genauigkeit von etwa 2% gemessen werden kann.

5 Laser

Für das optische Pumpen ist die Verfügbarkeit geeigneter intensiver Lichtquellen essenziell. Seit der ersten Realisierung eines Rubinlasers durch T. H. Maiman im Jahre 1960 [Mai60] hat sich der Laser wie kaum eine andere Entwicklung in der Wissenschaft verbreitet. Dennoch dauerte es bis in die achtziger Jahre, bis für das Spinaustauschpumpen und das metastabile Pumpen von ^3He geeignete Laser erhältlich wurden.

In diesem Kapitel werden verschiedene Lasersysteme vorgestellt, mit denen während der Dissertation gearbeitet wurde. Ein Ziel der Promotion bestand in der Entwicklung eines leistungsfähigen Faserlasers, dessen spektrales Profil an das Doppler-verbreiterte Absorptionsspektrum von ^3He angepasst ist und dessen Ausgangsleistung mindestens 10 W betragen sollte. Aus diesem Grund wurde mit dem Institut für Angewandte Physik der Universität Jena unter der Leitung von A. Tünnermann eine Kooperation eingegangen. Die gemeinsam erzielten Forschungsergebnisse werden in Kapitel 5.6 diskutiert.

Bedingt durch den Zusammenbruch der „New Economy“ im Jahre 2000 mussten viele Hersteller von Lasern für die Telekommunikation starke Umsatzeinbrüche verzeichnen. Als Folge wurden Laserentwicklungen für wissenschaftliche Anwendungen wieder intensiver betrieben. So ist es zu erklären, dass nach jahrelangen Bemühungen im Spätherbst des Jahres 2001 endlich ein maßgeschneiderter Laser der Firma IPG-Laser zu einem vergleichsweise günstigen Preis erhältlich war. Da für eine Eigenentwicklung eines Faserlasers neben der Faser und der Pumpdioden zusätzlich eine kostenintensive Infrastruktur hätte aufgebaut werden müssen (z.B. Einrichtung eines Labors mit Laminar-Flow, Anschaffung eines Mikroskops, einer Poliermaschine für die Faserenden, eines Mikropositionierers usw.), wurde die Entwicklung trotz erfolgsversprechender Ergebnisse nicht weiterbetrieben. Schließlich ist es aus Sicht eines wissenschaftlichen Instituts nicht sinnvoll, ein Produkt zu entwickeln, welches bereits zu einem angemessenen Preis-Leistungsverhältnis kommerziell angeboten wird. Deshalb wurde der Schwerpunkt der Arbeit auf die verschiedenen Aspekte zum Erreichen höchster Kernspinpolarisation verlagert.

5.1 Der LNA-Laser

Die Funktionsweise des LNA-Lasers wird hier zusammengefasst diskutiert; eine ausführlichere Beschreibung findet sich in [Sur91, Mie92, Gen93, Roh94].

Kernstück des LNA-Lasers ist ein 79 mm langer zylindrischer *LNA-Kristall* mit einem Durchmesser von 4 mm. Chemisch betrachtet handelt es sich um ein mit 15% Neodym dotiertes Lanthan-Magnesium-Hexaluminat ($\text{La}_{0.85}\text{Nd}_{0.15}\text{MgAl}_{11}\text{O}_{19}$), das in seinen Eigenschaften dem Nd:YAG-Kristall ähnelt. Gegenüber dem Nd:YAG-Kristall sind die Fluoreszenzlinien des LNA verbreitert und zu höheren Wellenlängen hin verschoben. Die Emissionsbanden des Kristalls liegen bei 900, 1054 und 1082 nm.

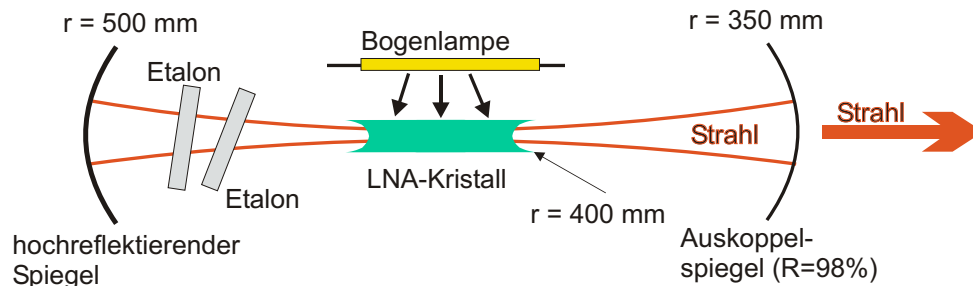


Abbildung 5.1: Schematischer Aufbau des LNA-Festkörperlaser.

Der schematische Aufbau des Lasers ist in Abbildung (5.1) zu sehen. Für die zum Laserbetrieb notwendige Besetzungsinversion sorgt eine Krypton-Bogenlampe, die im Bereich von 800 nm stark emittiert. Kristall und Lampe sind von einem goldbeschichteten elliptischen Reflektor umgeben und in seinen beiden Brennpunkten platziert. Eine Wasserkühlung führt die hauptsächlich von der Krypton-Lampe herrührende Wärme ab. Durch das transversale Pumpen nimmt die angebotene Lichtleistung im Stab radial nach innen ab, sodass die äußeren Regionen des Kristalls stärker invertiert werden als die inneren. Deshalb ist die Intensität der transversalen Moden im Vergleich zu longitudinal gepumpten Lasern größer.

Um das Emissionsprofil des Lasers möglichst gut an das Absorptionsprofil der ^3He Atome mit der zentralen Wellenlänge 1083 nm anzupassen, werden zwei unbeschichtete Quarzetalons der Dicken 0.3 mm und 1.0 mm in den Strahlengang gebracht. Quarzetalons arbeiten wie Fabry-Perot-Interferometer, die durch Vielfachinterferenz bestimmte Wellenlängen selektieren. Durch Variation der Temperatur (Brechungsindexänderung) und des Kippwinkels kann sowohl die Wellenlänge als auch die spektrale Breite eingestellt werden, wobei die Einstellungen äußerst sensitiv auf Temperaturschwankungen reagieren¹⁾. Bei einem hinsichtlich seiner Frequenz und spektralen Breite optimierten LNA-Lasersystem liegt die Ausgangsleistung typischerweise bei rund 5 W.

Eine Erhöhung der Ausgangsleistung der LNA-Laser wird durch das so genannte *thermal lensing* begrenzt: Die von der Bogenlampe dem Kristall zugeführte Leistung bewirkt eine Erwärmung des mit Wasser gekühlten Kristalls. Durch die geringe Wärmeleitfähigkeit des Kristalls entsteht ein Temperaturgradient und folglich ein ortsabhängiger Brechungsindex, der von innen nach außen abnimmt. Somit wirkt der Kristall wie eine konvexe Linse, deren Brennweite vor allem durch das Pumplicht der Kryptonlampe bestimmt wird. Ab einer bestimmten Pumpleistung liegt der durch das thermal lensing verursachte Fokus innerhalb des Lasermediums. Dies führt zu Instabilitäten der Wellenlänge sowie der Leistung des Lasers. Außerdem wird die Lebensdauer des Kristalls aufgrund mechanischer Spannungen drastisch reduziert. Zur (teilweisen) Kompensation des thermal lensing werden die beiden

1) Die Temperaturanpassung soll dazu dienen, hohe Kippwinkel zu vermeiden, da man andernfalls „walk-off“ Verluste im Resonator hat.

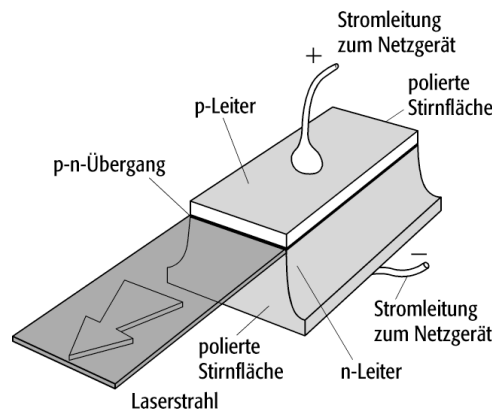


Abbildung 5.2: Schematischer Aufbau eines Halbleiterlasers.

Stirnflächen des Kristalls konkav geschliffen, wobei der erforderliche Krümmungsradius von der Resonatorgeometrie und der Bogenlampenleistung abhängt (zuletzt verwendete Krümmungsradien siehe Abbildung 5.1).

5.2 Halbleiterlaser

Halbleiter-Laser, oft auch als Laserdioden bezeichnet, verwenden als aktives Medium eine p-n-Halbleiterdiode, die in Durchlassrichtung von einem Strom durchflossen wird. Dabei wird Laserlicht erzeugt (siehe Abbildung 5.2). Um den Prozess besser zu verstehen, werden die Eigenschaften eines Halbleiters nachfolgend genauer betrachtet:

Die Elektronenstruktur in einem Festkörper lässt sich durch das Bändermodell beschreiben. In einem Halbleiter ist für $T = 0$ K das Valenzband voll besetzt, während das durch eine Energielücke E_{Gap} vom Valenzband getrennte Leitungsband unbesetzt ist. Die Fermienergie E_F ist definiert als die Grenze zwischen besetzten und unbesetzten Zuständen bei $T = 0$ K und liegt bei einem Halbleiter zwischen Valenz- und Leitungsband. Aufgrund der Größe der Bandlücke ist das Leitungsband bei Zimmertemperatur nur schwach besetzt. Durch Dotieren, d.h. durch Einbringen von Fremdatomen der dritten bzw. der fünften Hauptgruppe in das Halbleitermaterial, kann die Lage des Fermi-niveaus gezielt beeinflusst werden. Durch n-Dotierung entstehen Donatorniveaus unterhalb des Leitungsbandes. Aus diesen Niveaus können Elektronen leicht durch thermische Anregung ins Leitungsband gelangen. Durch p-Dotierung entstehen Akzeptorniveaus oberhalb des Valenzbandes, die über thermische Anregung leicht durch Elektronen des Valenzbandes besetzt werden können. So entstehen positiv geladene Löcher im Valenzband. Bei sehr starker Dotierung kann sich das Fermi-niveau bis ins Leitungsband (n-dotierte Region) bzw. ins Valenzband (p-dotierte Region) verschieben (siehe Abbildung 5.3a).

Wird nun eine äußere Spannung in Durchlassrichtung angelegt, wird die Potentialschwelle

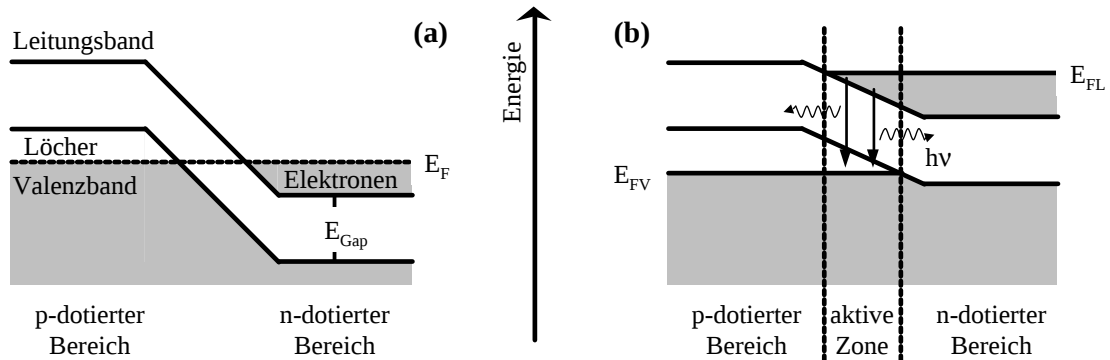


Abbildung 5.3: *Energieniveauschema eines Halbleiterlasers: (a) p-n-Übergang im thermischen Gleichgewicht (E_F : Fermi-niveau); (b) p-n-Übergang bei angelegter Spannung in Durchlassrichtung (E_{FL} , E_{FV} : Quasiferminiveaus von Leitungs- und Valenzband).*

verringert, die die injizierten Ladungsträger an der Grenzschicht überwinden müssen. Dadurch können sie über die Grenzschicht diffundieren. Dort haben Elektronen und Löcher die Möglichkeit, unter Emission von Photonen der Energie $E_{FL} - E_{FV} < h\nu < E_{\text{Gap}}$ zu rekombinieren (siehe Abbildung 5.3b). Es entsteht also eine aktive Zone, in der die für ein lichtverstärkendes Medium benötigte Besetzungsinversion vorliegt. Wegen der großen Elektronendichte ist die Verstärkung pro Weglänge sehr groß, und es genügen Längen unter 1 mm, um die Laserschwelle zu überschreiten. Der Pumpmechanismus funktioniert also nicht über optisches Pumpen, sondern über die Injektion von Ladungsträgern. Deshalb werden Diodenlaser auch Injektionslaser genannt.

Als Resonatorspiegel dienen oft die beiden unbeschichteten planparallelen Stirnflächen des Halbleiterkristalls, die durch Polieren oder durch Spalten entlang der Kristallebenen erzeugt werden (siehe Abbildung 5.2). Aufgrund des hohen Brechungsindex von Halbleitermaterialien ($n \approx 3.5$ für GaAs) wirkt der Kristall-Luft-Übergang als Spiegel mit einem Reflexionsvermögen von etwa 30%. Wegen der großen Verstärkung genügt dieser Wert, um trotz der hohen Reflexionsverluste von 0.7 pro halben Umlauf die Schwelle zur Laseroszillation zu erreichen [Kne95]. In der Regel wird die Frontseite der Diode sogar teilweise entspiegelt ($R \sim 1\%$), d.h. Dioden lasen im Wesentlichen superradiant.

Das Emissionsprofil einer Laserdiode ist üblicherweise ca. 0.5 nm breit. Zur spektralen Einengung wird in der Regel eine frequenzselektive Struktur im Halbleiter selbst verwendet. Dazu benutzt man den Bragg-Effekt der Wechselwirkung elektromagnetischer Strahlung mit räumlich periodischen Strukturen. Die räumlich periodischen Strukturen bewirken, dass die longitudinalen Grundmoden, welche die Bragg-Bedingung exakt oder annähernd erfüllen, erheblich geringere Verluste erleiden als die anderen. Dadurch erhält man eine wirksame Selektion der Moden. Da die optische Rückkopplung in diesem Fall auf die gesamte Länge des optisch aktiven Mediums verteilt ist, wird sie als *Distributed Bragg Reflector* (DBR) bezeichnet.

In unserer Arbeitsgruppe stehen zwei 1083 nm-single-frequency-Laserdioden²⁾ mit einer Ausgangsleistung von jeweils gut 30 mW zur Verfügung, die zur Bestimmung der Kernspinpolarisation mittels Absorptionsmessung und der Metastabilendichte eingesetzt werden.

5.3 Prinzip eines Faserlasers

In diesem Abschnitt wird das Prinzip eines Faserlasers einführend erklärt, um anschließend die in Mainz verwendeten Faserlaser genauer zu charakterisieren. Eine detailliertere Funktionsbeschreibung findet man beispielsweise in den Übersichtsartikeln [Zel97] und [Rei97].

Faser-Lichtwellenleiter

Faser-Lichtwellenleiter bestehen aus einem inneren Faserkern (Core) mit einem Durchmesser von 1 bis 1000 μm und einem äußeren Fasermantel (Cladding) mit einer Dicke von gut 100 μm . Zum Schutz vor mechanischer Zerstörung wird der Fasermantel mit einer oder mehreren Kunststoffschichten überzogen (siehe Abbildung 5.4). Um eine gute Lichtwellenleitung zu gewährleisten, bestehen Kern und Mantel aus einem optisch hochtransparenten Material mit einer Dämpfung der Größenordnung 10 dB pro km. Die Fähigkeit der Faser, Licht in ihrem Kern zu führen, beruht auf der Totalreflexion an der Kern-Mantel-Grenzfläche. Diese tritt auf, wenn der Winkel γ kleiner ist als der Grenzwinkel γ_g für die Totalreflexion. Wenn n_1 der Brechungsindex des Kerns und n_2 der Brechungsindex des Mantels sei, dann werden diejenigen Strahlen in der Faser geführt, welche die Bedingung

$$\gamma < \gamma_g = \arccos\left(\frac{n_2}{n_1}\right) \quad \text{wobei} \quad n_1 > n_2 \quad (5.1)$$

erfüllen³⁾. Bezeichnet n_0 die Brechzahl des Mediums vor der Faserstirnfläche, so liefert das Brechungsgesetz an der Einkoppelstelle:

$$\alpha_g = \arcsin\left(\frac{\sqrt{n_1^2 - n_2^2}}{n_0}\right) \quad (5.2)$$

Dies bedeutet, dass alle Lichtstrahlen, die unter einem Winkel $\alpha \leq \alpha_g$ relativ zum Lot auf die Faserendfläche treffen, von der Faser geführt werden, wobei man α_g als Akzeptanzwinkel bezeichnet. Häufig wird jedoch die Angabe der numerischen Apertur A_N an Stelle des Akzeptanzwinkels bevorzugt:

$$A_N = n_0 \cdot \sin \alpha_g \quad (5.3)$$

Eine weitere wichtige Größe zur Charakterisierung von Lichtwellenleitern ist der dimensionslose Faserparameter V :

$$V \equiv \frac{2\pi a}{\lambda} \cdot A_N, \quad (5.4)$$

²⁾ Hersteller: JDS Uniphase, Eching; Modell: SDL-6702-H1.

³⁾ Die Betrachtungen gelten nur für so genannte Stufenindexwellenleiter, bei denen der Brechungsindex innerhalb des Kerns konstant bleibt.

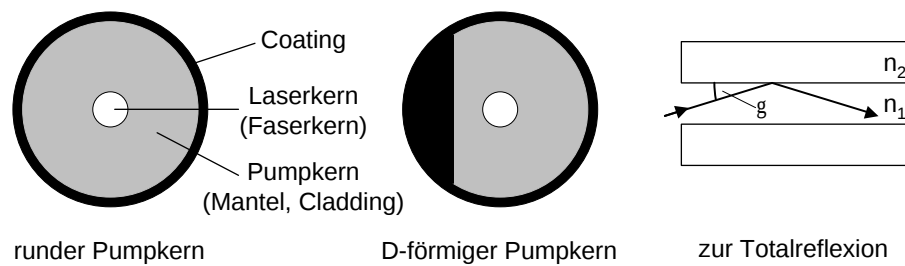


Abbildung 5.4: Aufbau einer Doppelkern-Faser mit rundem bzw. D-förmigem Pumpkern. Rechts: Zur Totalreflexion von Wellen, die aus dem optisch dichteren Medium n_1 unter dem Winkel $\gamma < \gamma_g$ auf die Grenzfläche treffen.

der das transversale Modenprofil einer Faser mit Kernradius a für Licht der Wellenlänge λ beschreibt. Für $V < 2.405$ kann nur die transversale Grundmode in der Faser geführt werden [Blu98]. Man bezeichnet den Lichtwellenleiter dann als *Singlemode-Faser*.

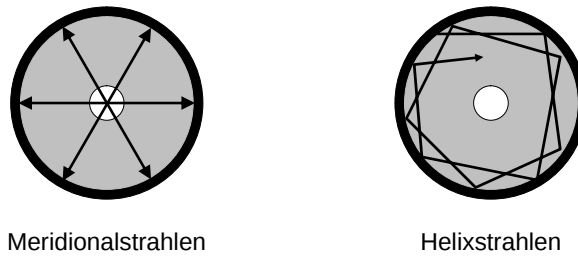
Laseraktive Lichtwellenleiter

Die Lichtemission eines Faserlasers beruht wie bei anderen Festkörperlasern auf der Verwendung laseraktiver Ionen, mit der das Wirtsmaterial dotiert ist. Allerdings wird beim Faserlaser sowohl das Pump- als auch das Laserlicht ausschließlich innerhalb der Faser geführt. Die Möglichkeit, hohe Lichtintensitäten in der Faser über weite Strecken (10 m - 100 m) zu führen, erlaubt sowohl die Ausnutzung schwacher Absorption des Pumplichts als auch schwacher Laserübergänge.

Man unterscheidet prinzipiell zwischen zwei Lasertypen auf der Basis dotierter Glasfasern. Ein *Faserlaser* ist ein selbstständiger Oszillator, bei dem zur Einengung des Emissionsspektrums Gitter benutzt werden. Von einem *Faserverstärker* spricht man genau dann, wenn die Besetzungsinversion von einem externen Laser, dem so genannten *Master-* oder *Seedlaser*, abgerufen wird. Dabei übernimmt der Verstärker das spektrale Profil des Masters. Da sich ein Laser bei einer niedrigen Ausgangsleistung von typischerweise 100 mW einfacher in seiner Wellenlänge und Linienbreite an gegebene Anforderungen anpassen lässt, verwendet man häufig einen mehrstufigen Aufbau aus einem Master und einem oder mehreren nachgeschalteten Verstärkern.

Zum Bau von Faserlasern oder Faserverstärkern werden so genannte Doppelkernfasern eingesetzt. Der Aufbau einer Doppelkernfaser gleicht dem eines Lichtwellenleiters. Im Fasermantel, den man jetzt als *Pumpkern* bezeichnet, wird der Pumpstrahl geführt. Das Coating muss deshalb die Faser nicht nur vor mechanischer Schädigung schützen, sondern muss zusätzlich einen kleineren Brechungsindex als der Pumpkern haben, damit die Lichtführung im Pumpkern ermöglicht wird. Der Faserkern dient als aktives Medium; er verstärkt und führt den Laserstrahl. Er wird als *Laserkern* bezeichnet.

Der Laserkern kann mit unterschiedlichen Elementen dotiert sein. Als laseraktive Materia-

Abbildung 5.5: *Illustration von Meridional- und Helixstrahlen.*

lien werden Lanthanide, wie z.B. Neodym, Ytterbium, Thulium oder Erbium verwendet, die in der Regel als dreiwertige Kationen in das Wirtsmaterial (z.B. Quarz-, Phosphat- oder Fluoridgläser) eingebaut werden [Rei97]. Um eine Besetzungsinversion im Laserkern zu erreichen, wird Pumplicht geeigneter Wellenlänge durch eine oder beide Faserendflächen in den Pumpkern eingekoppelt. Dabei kann jedoch nur das Licht so genannter Meridionalstrahlen in den Laserkern eintreten (siehe Abbildung 5.5). Helixstrahlen können einen bestimmten Abstand zum Kern nicht unterschreiten und werden deshalb nicht im aktiven Laserkern absorbiert. Der Anteil der ungenutzten Pumpleistung wird bei runder Pumpkerngeometrie weder von der Dotierung noch von der Faserlänge bestimmt, sondern einzig von den beiden Kerndurchmessern. Bei typischen Laser- bzw. Pumpkerndurchmessern von $5\ \mu\text{m}$ und $125\ \mu\text{m}$ werden daher nur ca. 10% des Pumplichts vom Laserkern absorbiert [Zel97]. Zur Steigerung der Pumplichtabsorption werden D-förmige oder rechteckige Pumpkerne gefertigt, die zu einer chaotischen Ausbreitung des Pumplichts führen (siehe Abbildung 5.4). Damit kann nach nur wenigen Metern praktisch das gesamte Pumplicht absorbiert werden. Zusätzlich bietet sich eine Aufwicklung der Faser in „Nierenform“ an [Zel97].

Zur Lichtverstärkung bei 1083 nm eignen sich Yb-dotierte Fasern. Ytterbium emittiert relativ breitbandig im nahen Infrarot. Werden die Yb^{3+} -Kationen in eine Quarzglasmatrix eingebaut, liegt das Emissionsmaximum um 1080 nm. Außerdem absorbiert in Quarzglas eingebautes Ytterbium über einen großen spektralen Bereich das Pumplicht, sodass kommerziell erhältliche Pumpdioden (beispielsweise bei 915 nm, 940 nm, 976 nm) verwendet werden können. Am besten eignen sich Pumpdioden der Wellenlänge 976 nm (siehe Abbildung 5.6).

5.4 Der Keopsys-Faserlaser

Bei diesem System der Firma Keopsys AG Lannion (Frankreich)⁴⁾ handelt es sich um einen als Seed-Laser betriebenen Faserlaser mit nachgeschaltetem Faserverstärker. Die Ausgangsleistung beträgt maximal 2 W und die spektrale Breite wurde mit einem Fabry-Perot-Spektrometer⁵⁾ (Freier Spektralbereich: 8 GHz, Finesse: > 300) zu 3.4 GHz (FWHM) bestimmt.

4) Modell: OI-FL-1083-2W.

5) Optilas GmbH, Puchheim; Modell: Burleigh SA(Plus)-800-11

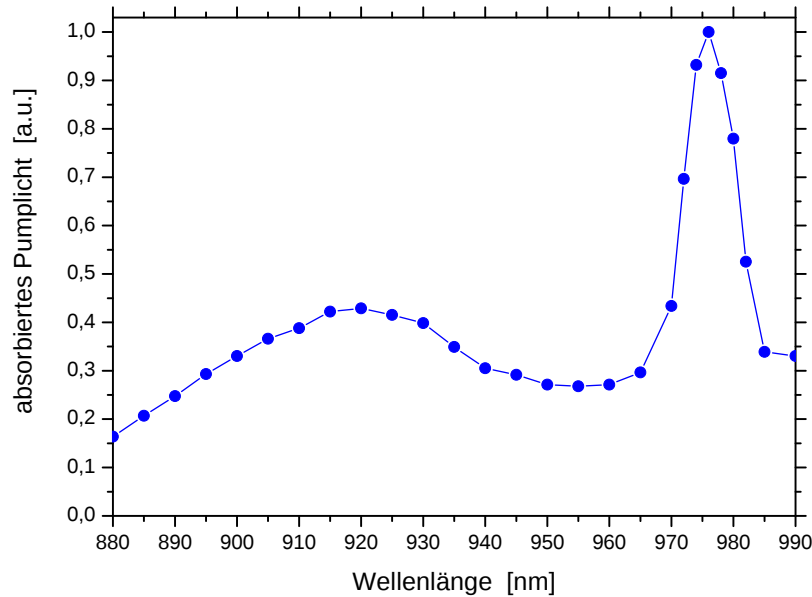


Abbildung 5.6: *Relative Absorption des Pumplichts in einer Ytterbium-dotierten Quarzdoppelkernfaser in Abhängigkeit der benutzten Pumpwellenlänge [Tün01].*

In Abbildung (5.7) ist der schematische Aufbau des Keopys-Lasers illustriert. Der Mastersoszillator besteht aus einer 3 m langen, mit etwa 1% Yb-dotierten Doppelkern Singlemode-Faser [Vol01]. Den Laserkern mit einem Durchmesser von $4.2 \mu\text{m}$ umgibt ein $175 \times 120 \mu\text{m}^2$ großer rechteckiger Pumpkern mit einer numerischen Apertur $A_N = 0.35$, in dem das Licht der Pumpdioden geführt wird.

Zur Einengung des Emissionsspektrums der Faser werden Faser-Bragg-Gitter benutzt. Die Bragg-Gitter werden hergestellt, indem man mittels UV-Strahlung interferometrisch periodische Brechzahländerungen in Ge-dotierte Bereiche von Quarzfasern einbrennt [Blu98]. Sei Λ_B der periodische Abstand der Brechzahlmodulationen und n_{eff} die effektive Brechzahl für die Mode, in der sich die Lichtwelle durch die Faser bewegt, dann wird nur diejenige Wellenlänge λ_B selektiert, welche die Bedingung

$$\lambda_B = 2 n_{eff} \Lambda_B \quad (5.5)$$

erfüllt. Bei einer Änderung der Faserlänge durch Zugkräfte oder einer Erhöhung der Fasertemperatur kann man die Bragg-Periode Λ_B gezielt manipulieren und somit das Emissionsspektrum der Faser variieren.

Ein Spiegel und das Bragg-Gitter begrenzen den Resonator des Mastersoszillators. An dem Bragg-Gitter ist ein Piezokristall montiert. Um die Temperatur konstant zu halten, sind die Komponenten auf einem Peltierelement befestigt. Durch Anlegen einer Spannung an den Piezokristall wird ein Druck auf das Bragg-Gitter ausgeübt und somit die Laserfrequenz um etwa 1.6 GHz pro Volt variiert.

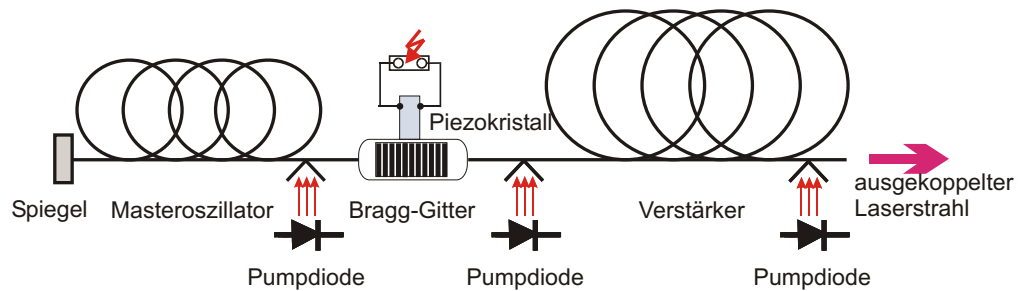


Abbildung 5.7: Schematischer Aufbau des Keopsys-Faserlasers: Der Masteroszillator besteht aus einem Faserlaser, der anschließend in einer einzigen Stufe verstärkt wird. Der Laser kann durch eine piezoelektrische Veränderung des Faser-Bragg-Gitters über einen Bereich von gut 150 GHz bei der Wellenlänge 1083 nm verstellt werden. Das Pumplicht für die Verstärkerfaser liefern zwei Laserdioden.

Direkt an das Bragg-Gitter schließt sich der einstufige Verstärker an. Auch hierfür wird eine Doppelkernfaser verwendet. Die Länge der Verstärkerfaser beträgt etwa 10 m. An den jeweiligen Enden der Verstärkerfaser werden zwei Pumpdioden in den Pumpkern eingekoppelt. Der Strom der Pumpdioden - und damit auch die Ausgangsleistung der Verstärkerfaser - kann von 0 bis 3 A variiert werden.

Mit einer maximalen Leistung von 2 W eignet sich der Faserlaser nicht für Anwendungen, bei denen größere Gasmengen in kurzer Zeit auf hohe Werte polarisiert werden sollen. Für geringere Anforderungen an die Polarisation, wie beispielsweise beim Bau eines Magnetometers [Kir04], ist die Laserleistung dagegen ausreichend. Es bleibt anzumerken, dass der Faserlaser keine hohe Frequenzstabilität aufweist und dass bei einer Veränderung der Ausgangsleistung die Frequenz erneut justiert werden muss. Diese Probleme treten bei dem im nächsten Abschnitt beschriebenen IPG-Faserlaser nicht auf.

5.5 Der IPG-Faserlaser

Unsere Arbeitsgruppe verfügt über zwei baugleiche Faserlaser der Firma IPG Laser GmbH Burbach⁶⁾, die eine maximale Ausgangsleistung von 15 W besitzen. Im Folgenden werden die beiden Laser in Anlehnung an die laborinterne Benennung mit „Laser 1“ bzw. „Laser 2“ bezeichnet.

Als Seedquelle dient bei diesem Lasersystem eine Laserdiode mit einer Ausgangsleistung von etwa 50 mW, die über einen Wellenlängenbereich von 1082.5 nm bis 1083.5 nm durchstimmbar ist. Hierbei kann die Wellenlänge durch eine Variation der Temperatur mittels eines an der Laserdiode befestigten Peltierelements in 0.01°C-Schritten geändert werden. Für die Frequenzverschiebung $\Delta\nu$ bei einer Änderung der Temperatur ΔT wurde für die

6) Modell: YLD-15-1083.

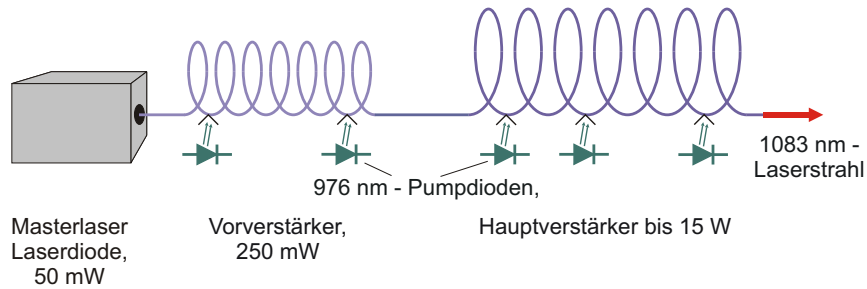


Abbildung 5.8: Schematischer Aufbau des IPG-Faserlasers: Der Seed-Laser besteht aus einer Laserdiode mit einer Ausgangsleistung von 50 mW, die in zwei Verstärkerstufen auf eine Maximalleistung von 15 W gesteigert werden kann. Beide Verstärker bestehen aus einer Yb-dotierten Singlemode-Doppelkernfaser, die transversal von mehreren Pumpdioden bei 976 nm gepumpt wird.

beiden Laser die Korrelation

$$\text{Laser 1 : } \frac{\Delta\nu}{\Delta T} = (23.2 \pm 1.5) \text{ MHz/mK} \quad (5.6)$$

$$\text{Laser 2 : } \frac{\Delta\nu}{\Delta T} = (29.3 \pm 2.0) \text{ MHz/mK} \quad (5.7)$$

ermittelt. Um das Spektrum der Laserdiode an das ^3He -Dopplerprofil zu adaptieren, muss der Strom der Laserdiode mit mehreren Frequenzen der Größenordnung 100 MHz bis 1 GHz moduliert werden (siehe Abbildung 5.10). Diese Modulation ruft eine Variation der Ladungsträgerdichte hervor, infolge dessen eine Veränderung des Brechungsindex generiert wird. Dies ermöglicht die Erzeugung von Seitenbändern, die in sehr grober Näherung an das Dopplerprofil angepasst sind.

Das von der Laserdiode emittierte Licht wird in eine Yb-dotierte Singlemode-Doppelkernfaser geleitet und mithilfe von transversal eingekoppelten 976 nm-Pumpdioden auf 200 mW verstärkt. In einer zweiten Verstärkerstufe wird das Laserlicht in eine zweite 2 m lange Yb-dotierte Singlemode-Faser geführt. Mit einigen (genaue Zahl ist ein Firmengeheimnis) regelbaren transversal eingekoppelten 976 nm-Pumpdioden können dann beliebige Leistungen zwischen 200 mW und 15 W eingestellt werden, ohne dass das Spektrum der Laserdiode in den beiden Verstärkerstufen modifiziert wird.

In Abbildung (5.9) sind in den oberen beiden Diagrammen die spektralen Profile der zwei Laser gezeigt. Man erkennt eine deutliche Abweichung von einem gaußförmigen Profil mit einer FWHM-Breite von 2.0 GHz. Interessanterweise hat sich das Profil vor allem bei „Laser 1“ seit der ersten Messung im Jahre 2002 [Kro02] entscheidend verändert, ohne dass Auswirkungen auf die maximal erreichbare Polarisation registriert wurden. Die untere Grafik von Abbildung (5.9) beschreibt das Fabry-Perot-Spektrum von „Laser 1“, nachdem der auf den C_8 -Übergang justierte Laser eine 1 m lange optische Pumpzelle durchlaufen hat. Zu sehen sind unterschiedliche Intensitätsverläufe, die aus zwei Messungen mit und

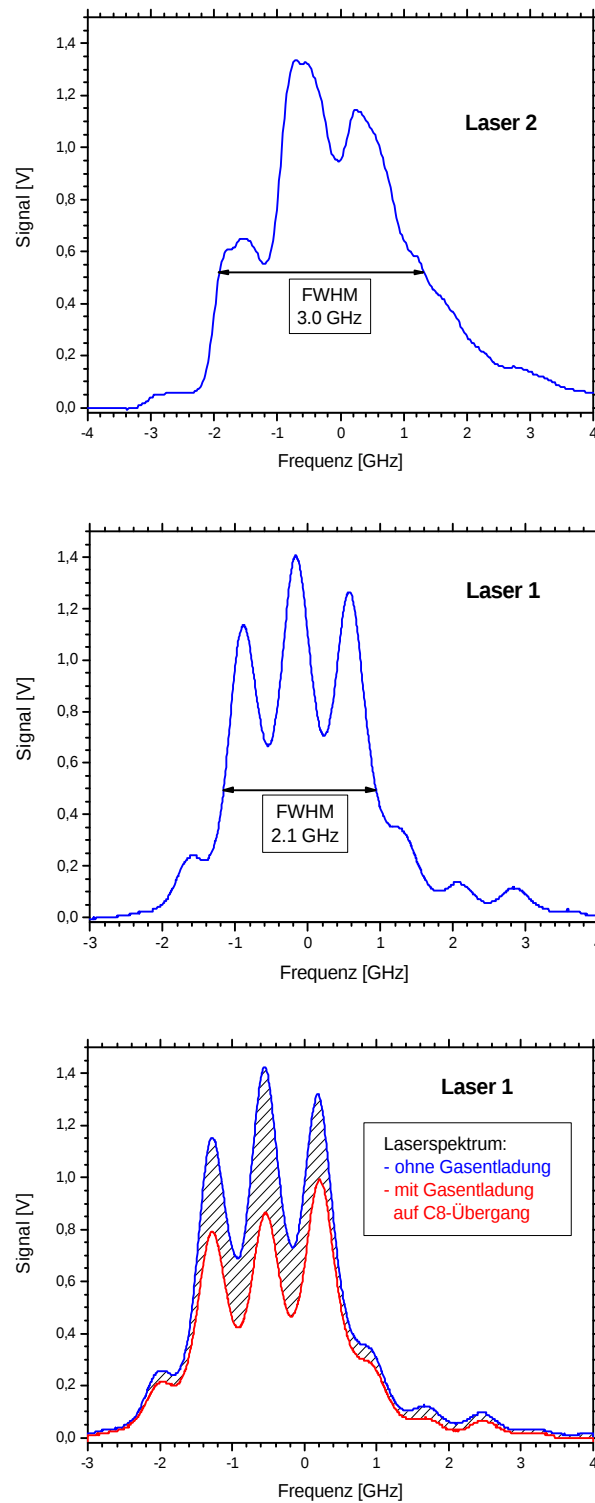


Abbildung 5.9: Spektrale Profile der beiden IPG-Laser. Die oberen beiden Grafen zeigen die Frequenzspektren der Laser 1 und 2, die mit einem Fabry-Perot-Interferometer analysiert wurden. Das untere Diagramm demonstriert den Einfluss der in der Pumpzelle absorbierten Leistung auf das Fabry-Perot-Spektrum.

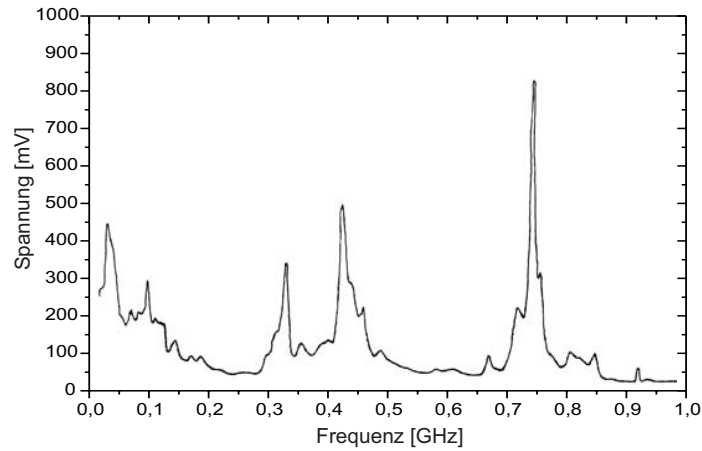


Abbildung 5.10: Frequenzspektrum, mit dem der Strom der Laserdiode moduliert wird, um die spektrale Breite des Lasers an das ^3He Absorptionsprofil anzupassen [IPG01].

ohne Gasentladung ermittelt wurden. Der schraffierte Bereich gibt die in der optischen Pumpzelle absorbierte Leistung an. In diesem Fall beträgt der Anteil der schraffierten Fläche zur Fläche unterhalb der blauen Kurve 30.6%. Eine alternative (integrale) Messung der transmittierten Leistung mit einem Wattmeter führte in guter Übereinstimmung zu einem absorbierten Anteil von 32.3%. Somit konnte gezeigt werden, dass man auch mit einem Fabry-Perot-Interferometer die absorbierte Leistung bestimmen kann und gleichzeitig Informationen über das spektrale Profil erhält.

Das Fabry-Perot-Spektrum der beiden Laser zeigt ein dichtes Spektrum. Allerdings gilt diese Aussage nur für Zeitspannen von einigen Millisekunden, da die Scanzeit eines typischen Fabry-Perot-Analysators in der Größenordnung 10 ms liegt. Jedoch sind zeitaufgelöste Modenspektren der Laser von großer Bedeutung, weil für das effiziente optische Pumpen ein dichtes Frequenzspektrum auf den Zeitskalen atomarer Prozesse (geschwindigkeitsändernde Stöße, Absorption / Emission von Photonen) vorliegen sollte. Demnach sollte ein auf das metastabile Pumpen optimiertes Laserprofil auf einer Zeitskala von 100 ns keine Lücken aufweisen, die wesentlich größer sind als die homogene Linienbreite von 20 MHz [Blo85] (ausführlichere Erläuterungen findet man in [Rud01]).

In der Diplomarbeit von D. Rudersdorf wurden zeitaufgelöste Spektren anhand der durch die einzelnen Moden verursachten Beatfrequenzen mit einer geeigneten Fotodiode gewonnen [Rud01]. Dieses Verfahren erlaubte bei der nachfolgenden Analyse jedoch keine eindeutigen Rückschlüsse auf die Anzahl der Moden innerhalb der betrachteten Zeit von 100 ns.

Daher wurde in dieser Arbeit eine Methode gewählt, die eine Untersuchung der Modenstruktur über die erreichbare Gleichgewichtspolarisation in einer optischen Pumpzelle zulässt. Weist das Frequenzspektrum eines Lasers auf atomarer Zeitskala Lücken auf, so ist die Maximalpolarisation bei hohen Leistungsdichten (Sättigung) im Vergleich zu

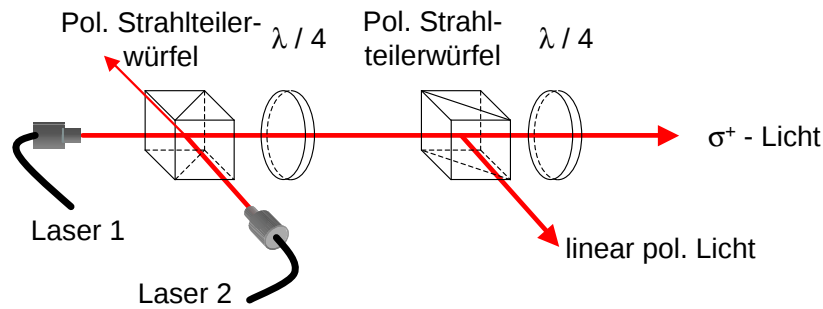


Abbildung 5.11: Schema zur inkohärenten Überlagerung zweier Laser (Details siehe Text).

einem idealen Laser mit gleicher Leistung geringer. Im Experiment wurden deshalb die Gleichgewichtspolarisationen bei identischen Bedingungen der Laser „1“ und „2“ bestimmt. Anschließend wurde das Licht beider Laser inkohärent überlagert und erneut die maximale Polarisation gemessen. Besäßen beide Laser ein dichtes Spektrum, so wäre mit einem einzigen Laser wie mit der Überlagerung beider Laser bei gleicher Leistung dieselbe Gleichgewichtspolarisation zu erwarten. Falls die Laser jedoch kein dichtes Spektrum haben, führt die Überlagerung zu einer höheren Gleichgewichtspolarisation, weil das resultierende Gesamtspektrum in diesem Fall weniger Lücken zeigt.

Der Versuchsaufbau ist in Abbildung (5.11) skizziert. Durch eine sorgfältige Justage werden die beiden Laser mittels eines polarisierenden Strahlteilerwürfels überlagert, wobei die inkohärente Superposition der beiden senkrecht zueinander polarisierten Laserstrahlen in der Summe unpolarisiertes Licht ergibt. Danach trifft das Licht auf ein $\lambda/4$ -Plättchen, welches derart justiert ist, dass zu gleich großen Teilen σ^+ - bzw. σ^- -Licht entsteht. Beim Auftreffen auf einen zweiten polarisierenden Strahlteilerwürfel wird sowohl von „Laser 1“ die Hälfte als auch von „Laser 2“ die Hälfte der Laserintensität transmittiert und die jeweils andere Hälfte um 90° abgelenkt. Das linear polarisierte transmittierte Licht wird anschließend von einem weiteren $\lambda/4$ -Plättchen zirkular polarisiert und in eine optische Pumpzelle eingekoppelt.

Bei einer in die Pumpzelle eingestrahnten Leistung von 4 W wurden für „Laser 1“, „Laser 2“ und die Superposition der beiden Laser „1“ und „2“ auf dem C_8 -Übergang Gleichgewichtspolarisationen zwischen 89.6% und 90.2% gemessen (siehe Abbildung 5.12). Für die C_9 -Linie wurden für die drei Kombinationen Polarisationsgrade zwischen 80.9% und 81.9% erreicht. Die geringfügigen Unterschiede in der Gleichgewichtspolarisation rühren hauptsächlich von kleinen Schwankungen der eingestrahnten Laserleistung her; die inkohärente Überlagerung führt also nicht zu höheren Polarisationswerten. Folglich muss das spektrale Profil der zwei Laser hinreichend dicht sein.

Im Rahmen dieser Untersuchung wurde weiterhin Laserlicht mit einer Leistung von je 2 W auf der C_8 - und C_9 -Resonanz in die Pumpzelle eingekoppelt. Wie erwartet, liegt die Gleichgewichtspolarisation mit 86.7% zwischen den Gleichgewichtspolarisationen, die man mit reinem C_8 - bzw. C_9 -Licht erhält (siehe Abbildung 5.12 unten).

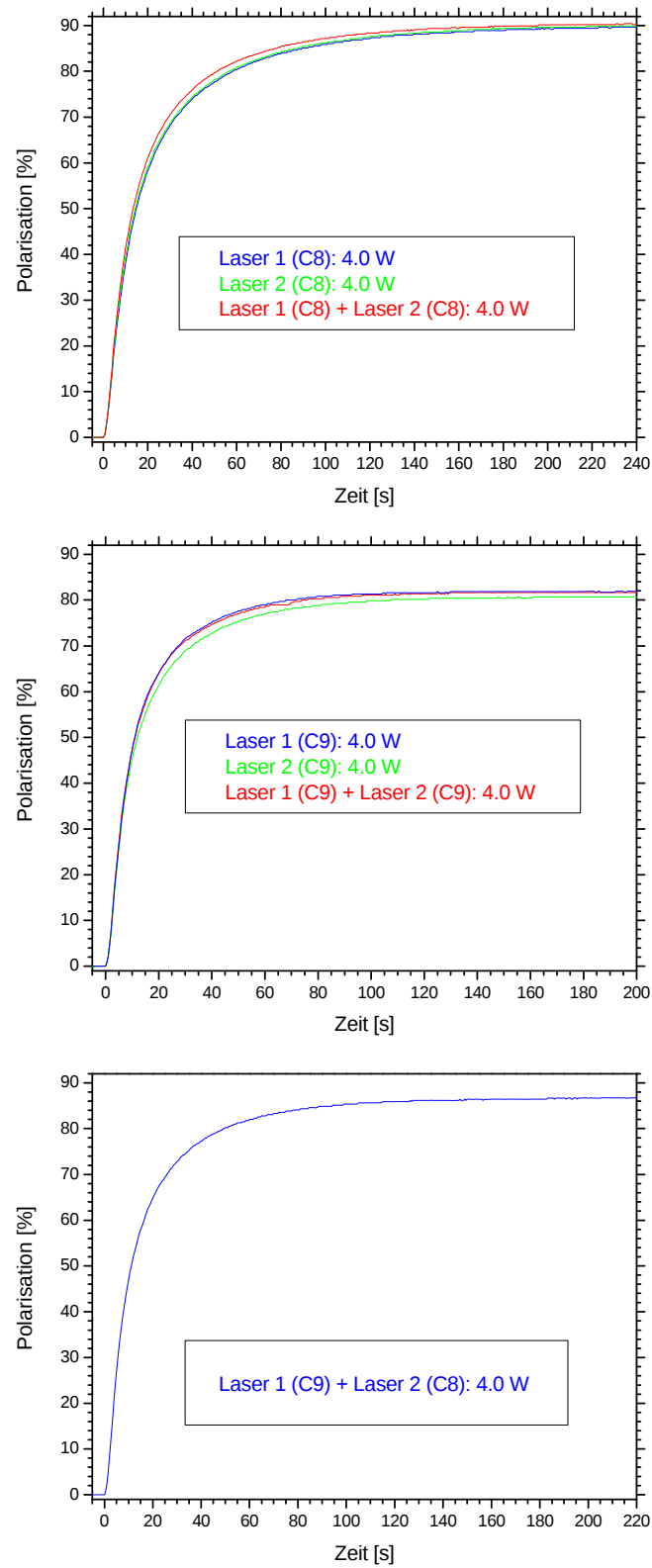


Abbildung 5.12: Vergleich der Gleichgewichtspolarisation bei Verwendung von „Laser 1“, „Laser 2“ sowie einer inkohärenten Superposition beider Laser (Erläuterungen siehe Text).

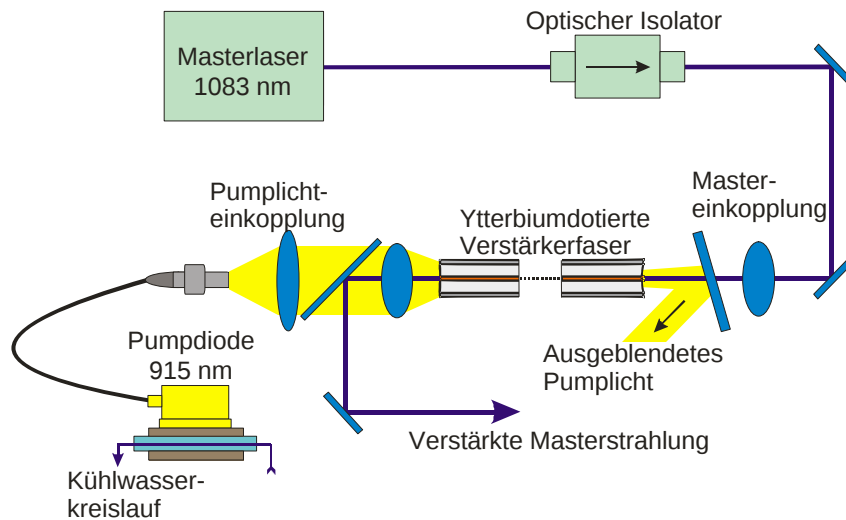


Abbildung 5.13: *Experimenteller Aufbau des Faserverstärkers zur Untersuchung der Verstärkereigenschaften.*

Zusammenfassend bleibt festzuhalten, dass die beiden IPG-Laser hervorragend für das metastabile Pumpen geeignet sind. In Kapitel 6 wird ausgeführt, dass weitere Verbesserungen (höhere Leistungen, besser angepasstes spektrales Profil) die Kernspinpolarisation kaum erhöhen können. Ohne Übertreibung kann man daher sagen, dass das seit über vierzig Jahren bestehende Problem geeigneter Lichtquellen für das metastabile Pumpen von ^3He gelöst ist!

5.6 Entwicklung eines Faserlasers mit der Universität Jena

Im Rahmen einer Kooperation mit dem Institut für Angewandte Physik der Universität Jena fanden im Spätsommer und Herbst des Jahres 2001 zwei jeweils einwöchige Messprogramme zur Entwicklung eines eigenen Hochleistungs-Faserverstärkers statt, die in diesem Kapitel kurz vorgestellt werden sollen.

Abbildung (5.13) zeigt den Faserverstärker, in dem das Licht des als Masterlaser dienenden Keopsys-Lasers verstärkt wird. Der Faserverstärker besteht aus einer 55 m langen mit 2000 ppm Yb-dotierten Doppelkernfaser⁷⁾. Bei dieser Faser hat der Laserkern einen Durchmesser von $11\ \mu\text{m}$ bei einer numerischen Apertur von 0.11. Der Durchmesser des D-förmigen Pumpkerns liegt bei $400\ \mu\text{m}$, während die numerische Apertur einen Wert von 0.38 hat. Beide Enden der Faser sind schräg geschliffen und poliert.

Das Licht des Seed-Lasers wird durch einen optischen Isolator⁸⁾ geleitet. Dieser nutzt

7) Hersteller: Institut für Physikalische Hochtechnologie, Jena.

8) Modell FR 1060/5, Isolation $> 30\ \text{dB}$. Firma Linos Photonics, Göttingen.

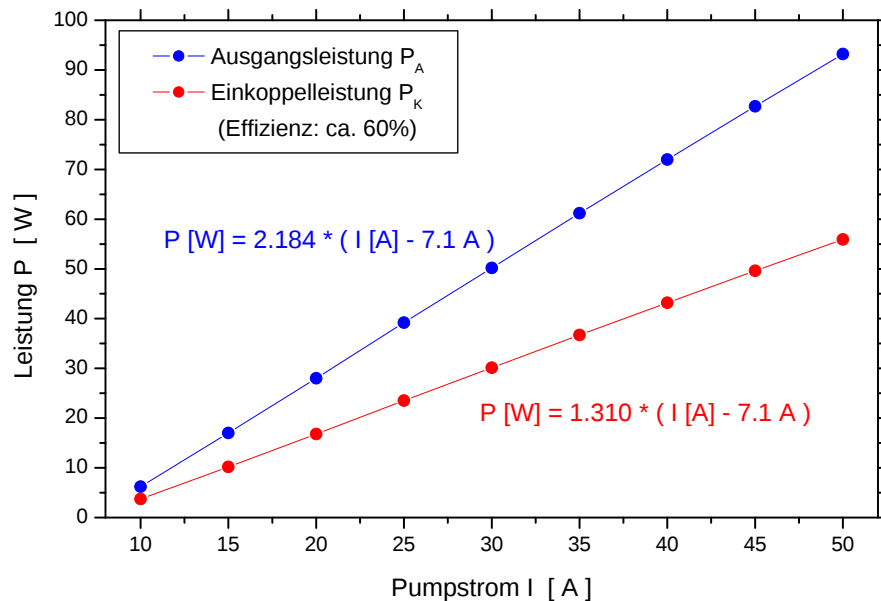


Abbildung 5.14: Leistungskennlinie eines 915 nm-Pumpdiodenarrays.

die nicht-reziproke Natur des Faraday-Effekts aus: Zwischen zwei um 45° gegeneinander verkippten Linearpolarisatoren befindet sich ein Terbium-Gallium-Granat-Kristall im Feld eines starken Permanentmagneten (Faraday-Rotator). Der Kristall und das Magnetfeld sind so aufeinander abgestimmt, dass sie die Polarisationssebene des einfallenden Lichts einer bestimmten Wellenlänge um 45° drehen. In Vorwärtsrichtung kann polarisiertes Licht den optischen Isolator ungehindert durchlaufen, unpolarisiertes Licht wird am ersten Polarisator um 50% abgeschwächt. Durchläuft jedoch Licht beliebiger Polarisation den Isolator rückwärts, so wird es spätestens am zweiten Polarisator ausgelöscht. Dadurch wird der Masterlaser vor der Laserstrahlung des Verstärkers geschützt.

Das Licht des Masterlasers wird über zwei Spiegel und eine angepasste Einkoppeloptik in den aktiven Kern der Verstärkerfaser fokussiert. Am anderen Ende der Faser wird der Strahl wieder über einen dichroitischen Spiegel, der für das Pumplicht transparent ist, seitlich herausreflektiert und anschließend die Leistung des hochverstärkten Signals mit einem Wattmeter und das spektrale Profil mit einem Gitterspektrometer⁹⁾ untersucht. Als Pumplichtquelle dient ein Laserdiodenarray¹⁰⁾, welches Licht der Wellenlänge 915 nm emittiert und bei einem maximalen Strom von 50 A eine Leistung von 90 W erreicht. Von dieser Leistung können etwa 60% in eine Faser eingekoppelt werden (siehe Abbildung 5.14). Über ein Linsensystem wird der Pumpstrahl in den Pumpkern geführt und am anderen Ende der Faser mittels eines dichroitischen Spiegels ausgeblendet, der jedoch für das Seedlaserlicht transparent ist.

9) ANDO Deutschland, München; Modell: AQ 6315A, maximale Auflösung: 0.05 nm.

10) Spectra-Physics GmbH, Darmstadt; Modell: BFA1100-915-90.

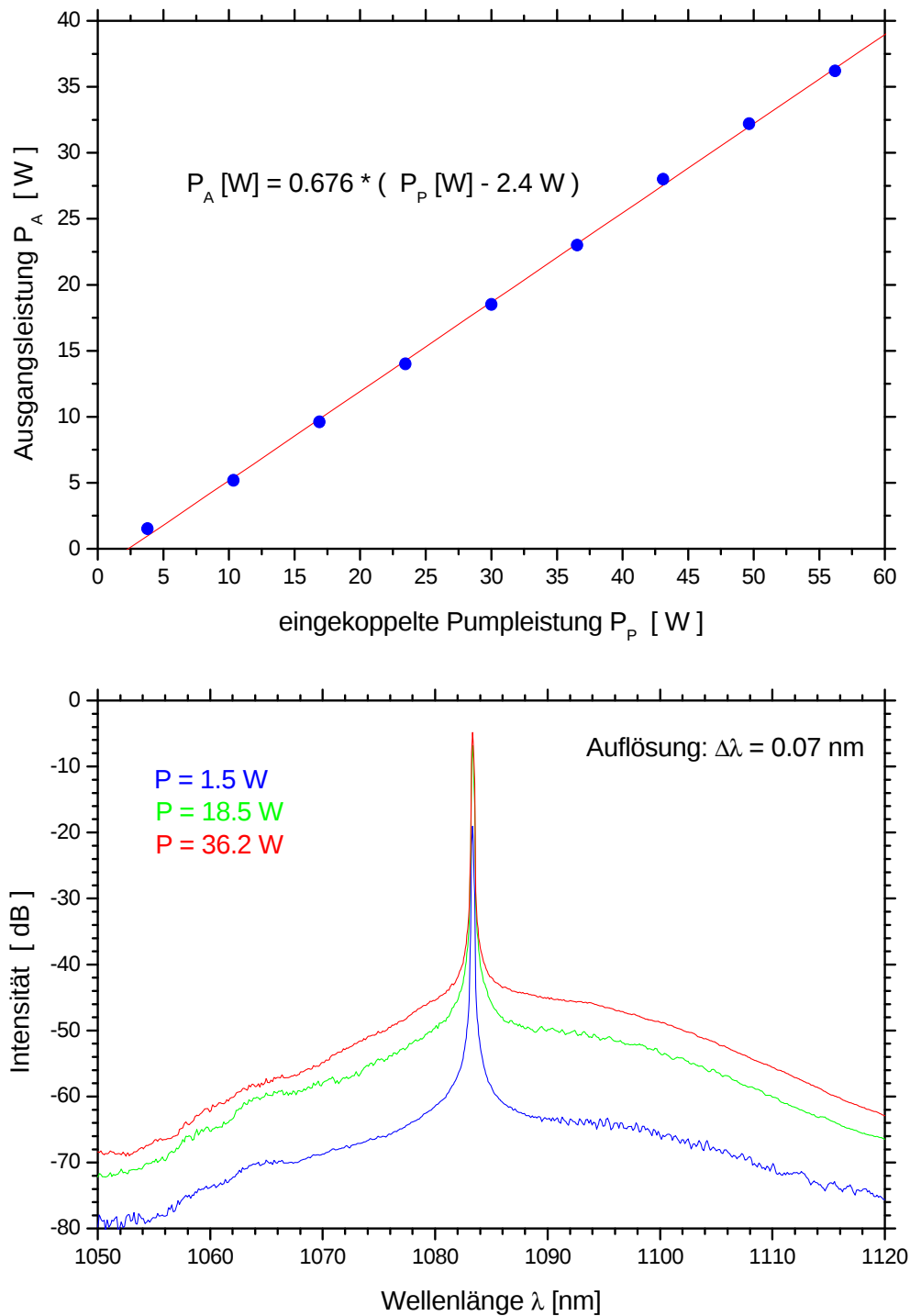


Abbildung 5.15: oben: Leistungskennlinie des Faserverstärkers in Abhängigkeit der eingekoppelten Pumpleistung. Unten: Emissionsspektrum des Faserverstärkers bei drei unterschiedlichen Leistungen.

Hinter dem optischen Isolator betrug die Masterleistung 800 mW, wovon gut 500 mW in den Faserkern eingekoppelt wurden. Die Ausgangsleistung des Faserverstärkers zeigte in Abhängigkeit des angelegten Pumpstroms die zu erwartende lineare Kennlinie (siehe Abbildung 5.15 oben). Sie ist ein Indiz dafür, dass in der Faser keine nichtlinearen oder thermischen Effekte auftreten und die emittierte Lichtleistung somit nur durch die verfügbare Pumpleistung begrenzt ist [Zel97]. Das Fehlen nichtlinearer Effekte wird durch die aufgenommenen Emissionsspektren bei unterschiedlichen Ausgangsleistungen untermauert. Im unteren Diagramm von Abbildung (5.15) erkennt man eine Unterdrückung der verstärkten spontanen Emission (ASE: Amplified Spontaneous Emission) um ca. 40 dB im gesamten Leistungsbereich. Dies bedeutet, dass ca. 99.9% der emittierten Leistung innerhalb des vom Seedlasers vorgegebenen spektralen Profils liegen.

Eine weitere Erhöhung der Verstärkerleistung sollte durch den Einsatz stärkerer Pumpdioden möglich sein. Diese standen für das Experiment jedoch nicht zur Verfügung. Dennoch stellen die gemessenen 36 W eine Rekordmarke für zum metastabilen Pumpen geeignete Laser dar.

6 Untersuchungen an ^3He -Zellen

Eine hohe Polarisierung bei zugleich hoher Produktionsrate kann nur durch das Zusammenspiel mehrerer Faktoren erreicht werden, die in diesem Kapitel ausführlich erörtert werden.

Im ersten Abschnitt liegt der Schwerpunkt auf der Beschreibung des Absorptionsverhaltens anhand zweier unabhängiger Experimente. Mit diesen Experimenten kann verifiziert werden, dass die Berücksichtigung geschwindigkeitsverändernder Stöße und das neu entwickelte Verfahren zur Berechnung der mittleren Absorptionsrate zu einer korrekten Beschreibung der Daten führt. Im zweiten Teil des Kapitels wird die Abhängigkeit von Laserprofil, Gasdruck, falscher Zirkularkomponente sowie Metastabilendichte und Relaxationszeit auf die Gleichgewichtspolarisation untersucht und mit theoretischen Vorhersagen verglichen.

6.1 Analyse der Absorption

In diesem Abschnitt wird dargelegt, wie man die Metastabilendichte mittels der in einer Pumpzelle absorbierten Leistung bestimmen kann und welche Charakteristik die Absorption sowohl bei niedrigen als auch bei hohen Leistungsdichten zeigt.

6.1.1 Messung der Metastabilendichte

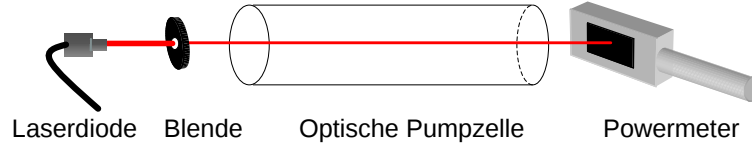
Fremdgase, die sich zusätzlich zum ^3He in einer optischen Pumpzelle befinden, reduzieren die Metastabilendichte durch so genannte *Quench-Stöße* und verringern somit die Kernspinpolarisation [Has00]. Aus diesem Grund ist die Untersuchung der Anzahl metastabiler Atome pro Volumen von Bedeutung.

Die Messung der Metastabilendichte erfolgt ähnlich der Polarisationsmessung in Kapitel 4.2 durch die Bestimmung der absorbierten Laserintensität I_{abs} beim Durchgang eines schwachen, die ^3He -Atome nicht sättigenden Laserstrahls durch eine optische Pumpzelle (siehe Abbildung 6.1). Im Unterschied zur Polarisationsbestimmung werden bei diesem Verfahren keine Bedingungen an die Polarisation des Laserlichts gestellt. Allerdings muss der Laser sehr präzise auf das Zentrum des verwendeten Hyperfeinübergangs (C_8 oder C_9) justiert werden.

Durchläuft ein Lichtstrahl der Leistung I eine Gasschicht der Dicke dL , so wird die Intensität dI gemäß dem Lambert-Beerschen Gesetz absorbiert:

$$dI = -k I dL \quad \Leftrightarrow \quad \frac{I_{abs}}{I} = 1 - e^{-k \cdot L} \quad (6.1)$$

Hierbei ist k eine noch zu bestimmende Konstante, die mit der Metastabilendichte n_m verknüpft sein wird. Bereits in Kapitel 2.5 wurde eine Gleichung (siehe Formel 2.44) für die

Abbildung 6.1: *Experimenteller Aufbau zur Messung der Absorption.*

absorbierte Leistung von resonantem Licht auf dem C_8 -Übergang aufgestellt:

$$\bar{I}_{abs} = \hbar \omega J \bar{\chi} T_{5,18} \left\{ a_5 \left[\frac{J \bar{\chi}}{\beta(J)} \right] - b_{18} \left[\frac{J \bar{\chi}}{\beta(J)} \right] \right\} \cdot V, \quad (6.2)$$

wo J die Leistungsdichte, β der Anteil der mit dem Laserlicht wechselwirkenden metastabilen Atome, $\langle \gamma_{ij} \rangle_\beta = \bar{\chi} J / \beta(J)$ die mittlere Photonenabsorptionsrate (siehe Gleichung 2.43), $\omega/2\pi \approx 276.80$ THz die Frequenz des 2^3S-2^3P -Übergangs und $\hbar = 1.0546 \cdot 10^{-34}$ Js das Plancksche Wirkungsquantum ist. Für geringe Leistungsdichten vereinfacht sich der Ausdruck folgendermaßen:

$$I_{abs} = \hbar \omega J \bar{\chi} T_{5,18} a_5 \cdot V \quad (6.3)$$

Ersetzt man in dieser Gleichung die Leistungsdichte J , das Volumen V und das Übergangsmatrixelement $T_{5,18}$ gemäß

$$\begin{aligned} J &= \frac{I}{S} & (S: \text{Fläche}) \\ V &= S \cdot L \\ T_{5,18} &= \frac{2}{3} (1 - \mathfrak{J}) = 0.2931, & (\mathfrak{J} = 0.5603; \text{ siehe Tabelle 2.1}) \end{aligned} \quad (6.4)$$

so folgt für die absorbierte Leistung

$$I_{abs} = \frac{2}{3} (1 - \mathfrak{J}) \hbar \omega I \bar{\chi} a_5 L. \quad (6.5)$$

Im unpolarisierten Gas sind die sechs einzelnen Zeeman-Sublevel der metastabilen Zustände gleich besetzt, weshalb für die Metastabilendichte $n_m = 6 a_5$ gelten muss. Aus dem Vergleich mit Gleichung (6.1) ergibt sich dann:

$$k = \frac{1}{9} (1 - \mathfrak{J}) n_m \bar{\chi} \hbar \omega \quad (6.6)$$

Benutzt man einen auf den C_8 -Übergang justierten Single-frequency-Laser ($\bar{\chi} = 3691 \text{ m}^2/\text{Ws}$), so beschreibt die Gleichung

$$\boxed{-\frac{dI}{dL} = I n_m \cdot 3.31 \cdot 10^{-17} \text{ m}^2} \quad (6.7)$$

in differentieller Form die absorbierte Laserleistung bei gegebener Metastabilendichte n_m . Soll stattdessen die Zahl der metastabilen Atome auf der C_9 -Resonanz gemessen werden, verwendet man die Formel (ohne Herleitung)

$$\boxed{-\frac{dI}{dL} = I n_m \cdot 4.21 \cdot 10^{-17} \text{ m}^2} . \quad (6.8)$$

Die räumliche Verteilung der Metastabilendichte in einer zylindrischen optischen Pumpzelle mit Länge L und Radius R kann bei einem Druck der Größenordnung 1 mbar durch eine Parabel

$$n_m(r) = n_{m,0} \cdot \left[1 - \left(\frac{r}{R} \right)^2 \right] \quad \text{für } r < R \quad (6.9)$$

gut angenähert werden [Has00, Kro02]. Hierbei ist $n_{m,0}$ die Dichte der metastabilen Atome entlang der Zylinderachse; r gibt den Abstand von dieser Achse an. Für einige Zwecke wird die über das gesamte Pumpvolumen gemittelte Metastabilendichte $\bar{n}_m$ benötigt. Dazu berechnet man zunächst die Gesamtzahl N der metastabilen Atome mittels Integration über das Volumen der Pumpzelle $V = \pi R^2 L$:

$$N = 2 \pi L n_{m,0} \cdot \int_0^R \left[1 - \left(\frac{r}{R} \right)^2 \right] r \, dr = \frac{n_{m,0}}{2} \pi R^2 L \quad (6.10)$$

Eine anschließende Division durch V ergibt dann

$$\bar{n}_m = \frac{N}{V} = \frac{1}{2} n_{m,0} . \quad (6.11)$$

Folglich ist die mittlere Metastabilendichte exakt halb so groß wie die Metastabilendichte entlang der Pumpzellenachse. Bei typischen Bedingungen befinden sich in einem Kubikmeter etwa $\mathcal{O}(10^{16})$ metastabile Atome.

6.1.2 Messung des Sättigungsverhaltens

In diesem Unterabschnitt werden von D. Rudersdorf [Rud01] und P.-J. Nacher [Nac01] bereits in den Jahren 2000/2001 durchgeführte Experimente erneut analysiert. Gegenstand der damaligen Versuche war die Messung der Laserlichtabsorption in einer Pumpzelle mit einem Single-frequency-Laser bei unterschiedlichen Leistungsdichten.

Bei der theoretischen Modellierung der Daten traten sowohl bei P.-J. Nacher als auch bei D. Rudersdorf unerwartete Diskrepanzen auf, die mithilfe der im zweiten Kapitel diskutierten Modellerweiterungen erklärt werden können. Die theoretische Anpassung an die Daten durch Nacher vernachlässigte die geschwindigkeitsverändernden Stöße. Außerdem berücksichtigte er nicht, dass der mit dem Laserlicht wechselwirkende Anteil

der metastabilen Atome eine Funktion der Leistungsdichte und damit variabel ist. In der Arbeit von Rudersdorf wurde zwar der Einfluss geschwindigkeitsändernder Stöße beachtet, allerdings beschrieb er den metastabilen Pumpprozess in unzulässiger Vereinfachung durch ein Zweiniveau-System.

Beide Messungen wurden mit einem Single-frequency-Laser auf der C_9 -Linie mit linear polarisiertem Licht bei der Kernspinpolarisation $P = 0$ durchgeführt. Zur Berechnung des Absorptionsverhaltens verwendet man die Ratengleichungen des metastabilen optischen Pumpens (2.47-2.49), die beim ausschließlichen C_9 -Pumpen mithilfe der Formeln (2.18; 2.20 und 2.24) vereinfacht werden können. In Kapitel 2.5 wurde detailliert der Zusammenhang zwischen mittlerer Absorptionsrate $\langle \gamma_{ij} \rangle_\beta$ und Leistungsdichte J erklärt (siehe Gleichung 2.43 und Tabelle 2.4). Es gilt:

$$\begin{aligned} \langle \gamma_{ij} \rangle_\beta &= \frac{\bar{\chi} J}{\beta(J)} & \text{mit } \bar{\chi} &= 3691 \frac{\text{m}^2}{\text{W s}} \\ \frac{1}{\beta} &= 2.7 + \frac{30.5}{1 + \left(\frac{J}{1050}\right)^{0.66}} & [J] &= \frac{\text{W}}{\text{m}^2} \end{aligned} \quad (6.12)$$

Die zwei verwendeten Pumpzellen waren 5 cm (Nacher) bzw. 10 cm (Rudersdorf) lang und hatten jeweils einen Druck von 1.3 mbar. Aus dem ^3He -Gasdruck folgt für die metastabile Austauschzeit $\tau_e = 190$ ns, für die collisional mixing-Zeit $\tau_{dep} = 20$ ns sowie für die Zeitkonstante der geschwindigkeitsverändernden Stöße $\tau_c = \tau_e = 190$ ns. Da durch das Einstrahlen von linear polarisiertem Licht die Kernspinpolarisation konstant null bleibt, wird bereits knapp eine Mikrosekunde nach Einschalten des Lasers ein Besetzungsgleichgewicht erreicht. Insofern verschwinden die zeitlichen Ableitungen in den Ratengleichungen, und man erhält ein lineares Gleichungssystem, dessen Lösungen (Besetzungsdichten der einzelnen Zustände) mit dem Computerprogramm „Mathematica“ berechnet werden können.

Sind die jeweiligen Niveaudichten bekannt, kann die absorbierte Leistung für den C_9 -Übergang gemäß der Gleichung

$$dJ = \hbar \omega \cdot J \cdot \frac{1}{12} (3 a_1 + a_2 + a_3 + 3 a_4 - 4 b_{17} - 4 b_{18}) \cdot dL \quad (6.13)$$

kalkuliert werden. Um eine anschaulichere Darstellung zu erhalten, betrachtet man häufig jedoch die relative Absorption - also den Quotienten aus absorbierte zu eingestrahelter Leistung:

$$\frac{I_{abs}}{I_{ein}} \equiv \frac{dJ}{J} = \hbar \omega \cdot \frac{1}{12} (3 a_1 + a_2 + a_3 + 3 a_4 - 4 b_{17} - 4 b_{18}) \cdot dL \quad (6.14)$$

In Abbildung (6.2) ist das simulierte Absorptionsverhalten auf der C_9 -Resonanz für vier unterschiedliche Annahmen dargestellt. Die grüne Kurve beschreibt den erwarteten Verlauf unter Vernachlässigung der geschwindigkeitsverändernden Stöße und mit einem über den gesamten Leistungsbereich konstanten Parameter $\beta = 0.03$. Sie ist identisch mit der von P.-J. Nacher im Jahre 2001 durchgeführten Anpassung. Wird β nun gemäß Gleichung

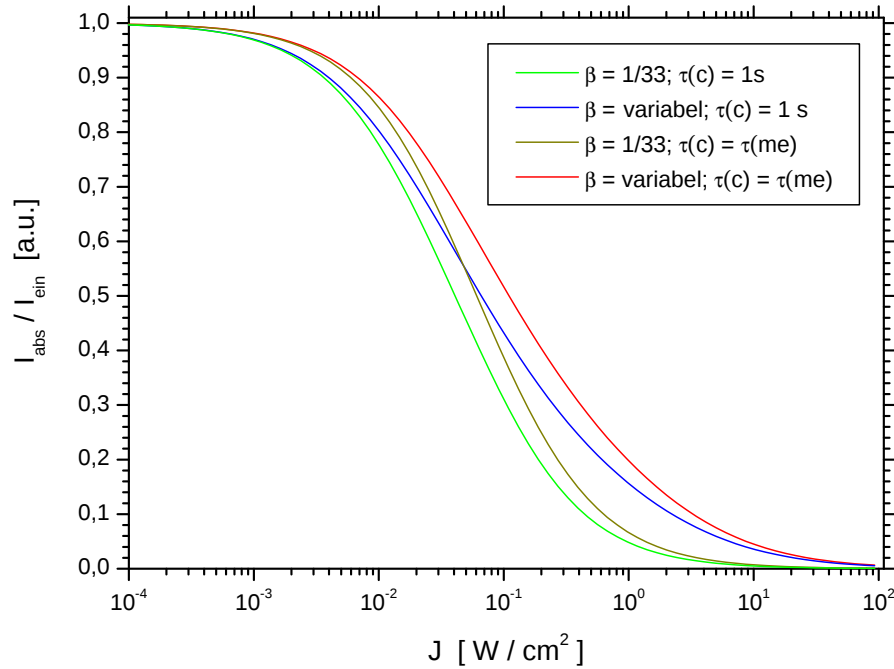


Abbildung 6.2: *Simuliertes Absorptionsverhalten eines Single-frequency-Lasers für resonantes, linear polarisiertes C₉-Licht ($p = 1.3$ mbar, $P = 0$). Weitere Erläuterungen im Text.*

(6.12) variiert und geschwindigkeitsändernde Stöße weiterhin außer Acht gelassen, so erkennt man anhand des blauen Kurvenverlaufs vor allem bei höheren Leistungsdichten eine starke Abweichung vom grünen Plot. Demgegenüber veranschaulicht die olivfarbene Kurve die relative Absorption unter Berücksichtigung geschwindigkeitsverändernder Stöße bei konstantem β . Man sieht, dass Abweichungen zum grünen Kurvenverlauf hauptsächlich bei niedrigen Leistungsdichten auftreten. Beide Effekte zusammen werden schließlich durch den roten Grafen illustriert.

Der experimentelle Aufbau zur Messung des Absorptionsverhaltens ist in Abbildung (6.1) dargestellt. Er war in beiden Versuchen identisch. Die Absorption wird aus der Differenz der transmittierten Laserleistung mit und ohne Gasentladung ermittelt. Um eine möglichst homogene spatiale Leistungsdichte des Laserstrahls zu erhalten, wurde ein großer Teil des Lichts mit einer Blende von 2 mm Durchmesser ausgeblendet. Dadurch wurde ein paralleler Lichtstrahl mit einer transversal fast konstanten Leistungsdichte erzeugt (siehe auch [Nac01, Rud01]). Anschließend durchleuchtete der Strahl das optische Pumpvolumen, wobei seine Intensität hinter der Zelle mit einem Wattmeter gemessen wurde. Im Experiment benutzte D. Rudersdorf eine Laserdiode mit einer regelbaren Ausgangsleistung von 0 mW bis 30 mW, während für die Versuchsdurchführung von J.-P. Nacher eine Laserdiode mit zusätzlichem Faserverstärker zur Verfügung stand. Hiermit konnte die Leistung zwischen 0 mW und 500 mW variiert werden. In Abbildung (6.3) sind die Messwerte und die

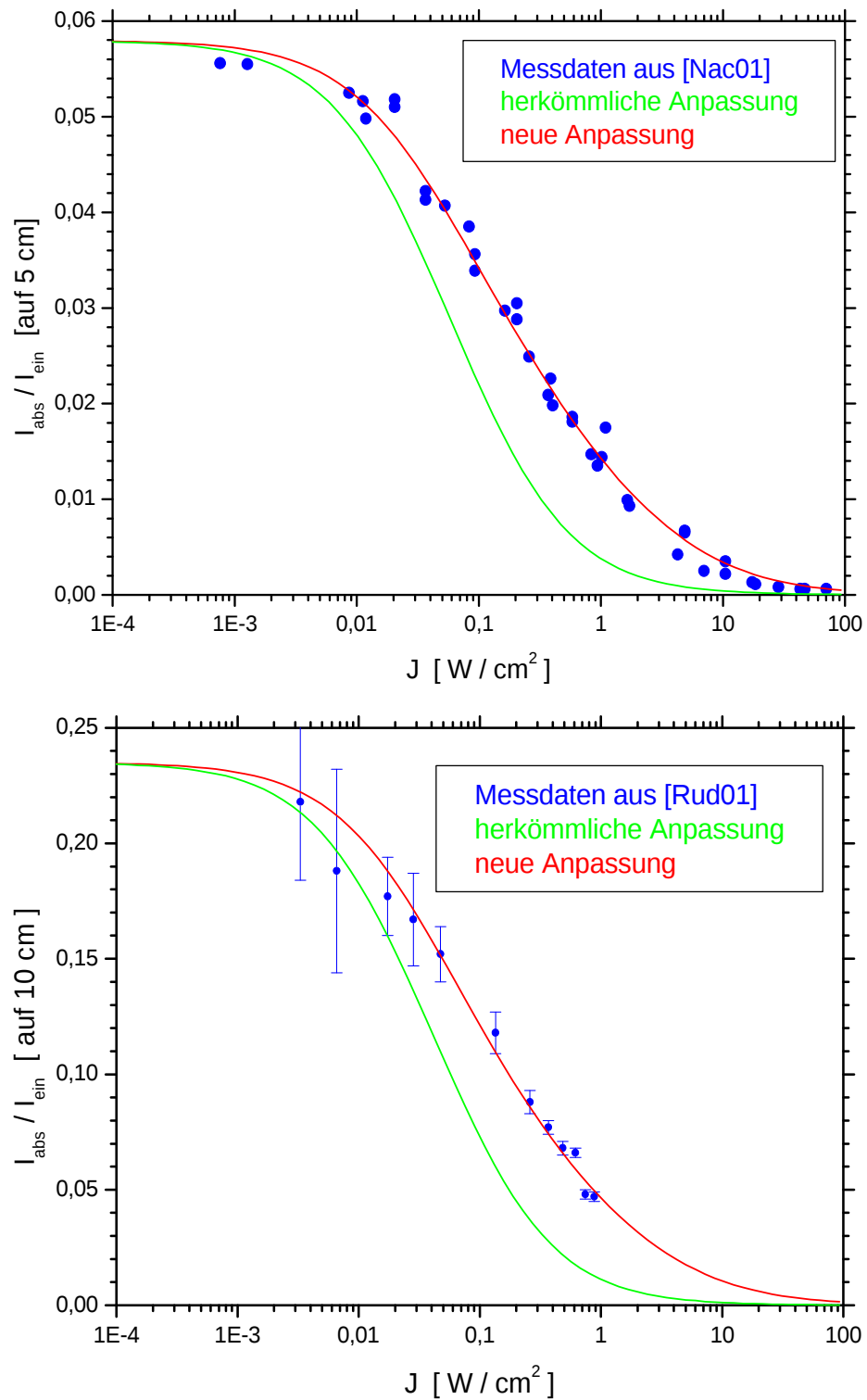


Abbildung 6.3: Erneute Auswertung der Absorptionskurven von [Nac01] (oben) und [Rud01] (unten). Die Messungen wurden mit einem Single-frequency-Laser auf der C_9 -Resonanz durchgeführt (Erläuterungen siehe Text).

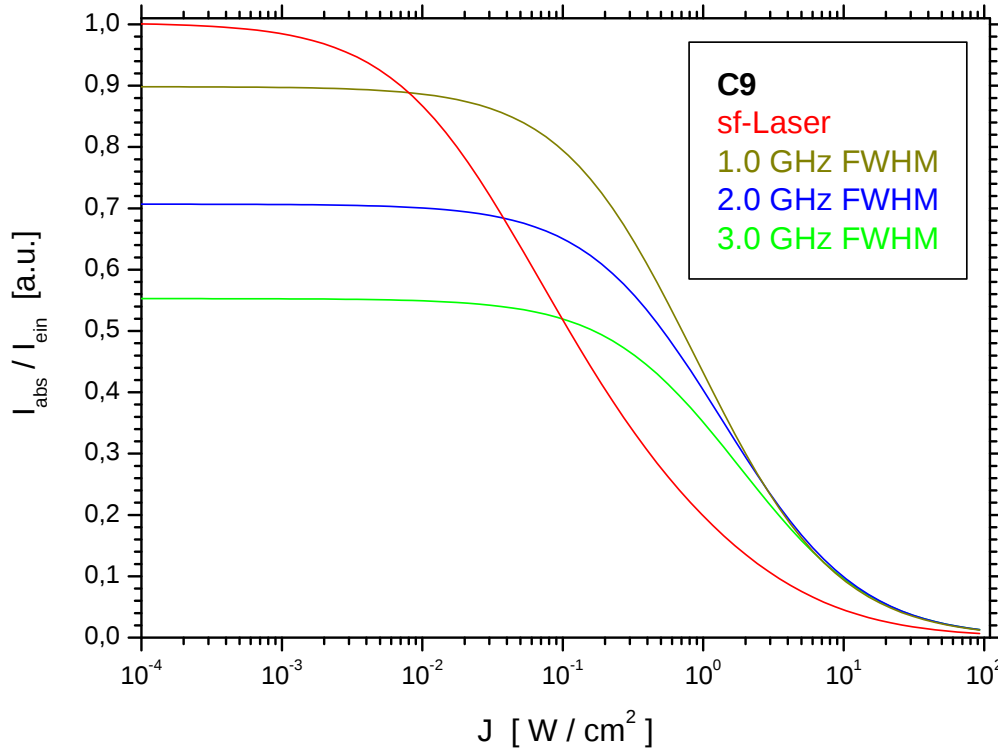


Abbildung 6.4: Absorptionsverhalten von Lasern mit unterschiedlichen spektralen Profilen (rot: Single-frequency-Laser; ansonsten gaußförmiges Profil mit einer FWHM-Breite von 1,0, 2,0 und 3,0 GHz).

Anpassungen an die Daten von beiden Versuchen gezeigt¹⁾. Deutlich zu erkennen ist, dass die ursprüngliche Beschreibung des Absorptionsverhaltens (grüne Kurve) nicht mit den experimentellen Daten in Einklang gebracht werden kann. Dagegen beschreibt der rote Graf, der β gemäß Gleichung (6.12) als variabel annimmt und geschwindigkeitsverändernde Stöße berücksichtigt, in beiden Fällen die Messwerte sehr gut²⁾.

Da die Berechnung der Absorption für einen Single-frequency-Laser zu sehr guten Ergebnissen führte, wurde die Sättigungsabsorption außerdem für Laser mit einem gaußförmigen spektralen Profil mit FWHM-Breiten 1,0 GHz, 2,0 GHz und 3,0 GHz simuliert (siehe Abbildung 6.4). Aus den Kalkulationen folgt, dass ein 1,0 GHz breites Spektrum - vor allem bei Leistungsdichten von weniger als 1 W/cm^2 - die metastabilen Atome wesentlich effizienter anregen kann als ein Laser mit 2,0 GHz spektraler Breite. Jedoch besteht für $J \gtrsim 1 \text{ W/cm}^2$ kaum ein Unterschied in der Effizienz, wenn die spektrale Breite zwischen 1,0 GHz und

1) Es existieren keine Fehlerangaben für die Daten von [Nac01].

2) Die theoretische Beschreibung der Daten von [Rud01] berücksichtigt, dass die relative Absorption von etwa einem Viertel der eingestrahnten Leistung nicht mehr linear approximiert werden kann. Deshalb wurde zur Berechnung der Anpassung die 10 cm lange Zelle in zehn gleich lange Abschnitte unterteilt und sukzessiv die absorbierte Leistung berechnet.

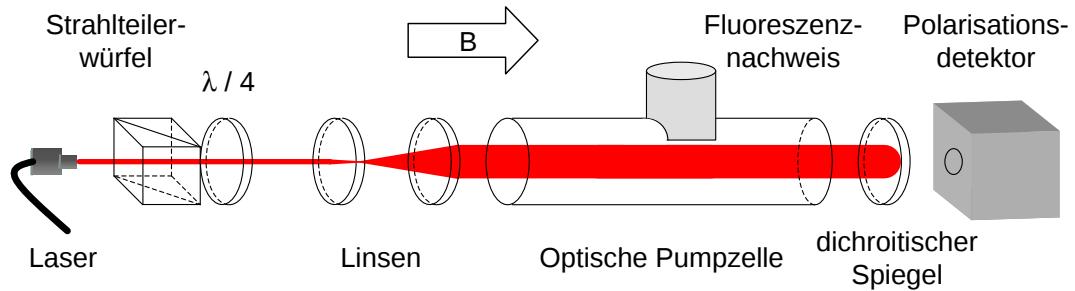


Abbildung 6.5: Schematischer Versuchsaufbau zum Polarisieren einer optischen Pumpzelle (Details siehe Text).

3.0 GHz variiert. Diese Aussage widerspricht der verbreiteten Meinung, dass ein zum optischen Pumpen optimierter Laser eine spektrale Breite von 2.0 GHz besitzen sollte (vergleiche z.B. [Tas03b]). Allerdings stützt sich die oft favorisierte spektrale Breite von 2 GHz ebenfalls nur auf Rechnungen und nicht auf Experimente. Da die früheren Abschätzungen jedoch das Sättigungsverhalten eines Single-frequency-Lasers falsch beschreiben, scheint man über Jahre hinweg einem Fehlschluss erlegen zu sein. Wie die in Abbildung (6.4) gezeigten Simulationsrechnungen beweisen, spielt es heutzutage kaum eine Rolle mehr, ob die spektrale Breite eines Laser 1 GHz oder gar 3 GHz beträgt. Die Ausgangsleistung kommerziell verfügbarer Laser ist mittlerweile mehr als ausreichend, sodass eine geringere Effizienz durch eine höhere Leistungsdichte vollständig ausgeglichen werden kann.

6.2 Analyse der Kernspinpolarisation

In diesem Abschnitt wird untersucht, welche Polarisationswerte unter optimierten Bedingungen experimentell erreichbar sind, und von welchen Faktoren eine weitere Steigerung des Polarisationsgrades abhängt.

Der schematische Versuchsaufbau ist in Abbildung (6.5) gezeigt. Im Gegensatz zu früheren Messungen konnte mit neuen Polarisationsoptiken auch bei großen Laserleistungsdichten zirkular polarisiertes Licht hoher Güte in die Pumpzelle eingekoppelt werden. Für das Experiment wurde eine 1 m lange Pumpzelle mit einem Durchmesser von 50 mm (2.0 l Volumen) benutzt, welche ^3He -Gas bei einem Druck von 0.65 mbar enthält. Die Zelle ist vollkommen aus Quarz gefertigt und die Ein- bzw. Austrittsfenster sind jeweils beidseitig antireflexbeschichtet, womit störende Reflexe vermieden werden. Zudem wird die Spannungsdoppelbrechung unterdrückt (siehe Abschnitt 3.1.5), sodass keine unerwünschten Zirkularkomponenten generiert werden. Um den Einfluss der vertikalen Erdmagnetfeldkomponente abzuschwächen, wurde das von Spulen erzeugte Magnetfeld B von 6 G auf 14 G erhöht. Damit konnte der Winkel zwischen den Spulenchsen und dem resultierenden Magnetfeld von 5° auf 2° reduziert werden. Die optische Pumpzelle wurde sehr präzise im Zentrum des Magnetfeldes entlang der Spulenchse positioniert, sodass aus der Fehlausrichtung von Quantisierungsachse und Lichtausbreitung ein Intensitätsanteil des π -Lichts

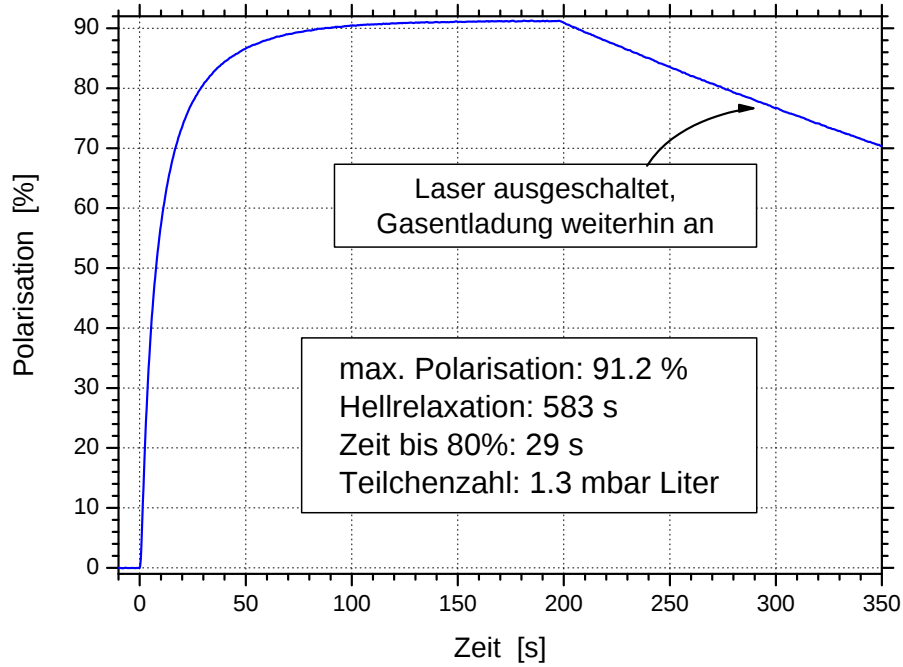


Abbildung 6.6: Gemessene Aufpolarisationskurve bei einer Laserleistung von 10 W ($p = 0.65$ mbar, $T_r = 583$ s, $\bar{n}_m/n_g = 0.3$ ppm, $\varepsilon \approx 0.1\%$).

von $\varepsilon(\pi) = 6 \cdot 10^{-4}$ sowie ein Intensitätsanteil des σ^- -Lichts von $\varepsilon(\sigma^-) = 1 \cdot 10^{-7}$ resultiert. Außerdem wird die Relaxationszeit der Kernspinpolarisation im Plasma nur unwesentlich durch die Feldinhomogenität beeinträchtigt, weil in der Mitte des Magnetfeldes die relativen Feldgradienten mit $\mathcal{O}(10^{-4})$ pro cm am geringsten sind. Ferner wurde sichergestellt, dass alle in der Nähe der Pumpzelle vorhandenen Gegenstände die Feldhomogenität nicht stören.

Um Reflexionen des aufgeweiteten Laserstrahls an den Innenwänden des optischen Pumpvolumens zu vermeiden, wurde der Strahldurchmesser mit einer Blende auf 40 mm begrenzt. Mit einer Intensitätsmessung des emittierten Fluoreszenzlichts („Fluoreszenznachweis“) wurde die Wellenlänge des Lasers auf die zu untersuchende Resonanz abgestimmt. Die Erzeugung der metastabilen Atome in einer Gasentladung geschah mithilfe zweier geschwärzter, nichtreflektierender Kupferelektroden (90 cm lang, 6 cm breit), die an gegenüberliegenden Seiten der Außenwand der Pumpzelle befestigt wurden. An die Elektroden wurde eine Hochfrequenzspannung von etwa 2 MHz mit einer Amplitude der Größenordnung 100 V angelegt³⁾.

Dieser experimentelle Aufbau erreichte bei einer Laserleistung von 10 W in einer schwachen Gasentladung den mit 91.2% höchsten jemals gemessenen Polarisationswert (siehe Abbildung 6.6), wobei der Fehler der Polarisationsbestimmung etwa 2% (relativ) beträgt.

3) Die Frequenz wurde von 0.7 MHz bis 5.9 MHz variiert. Bei gleicher Plasmahelligkeit konnte keine Abhängigkeit des Polarisationsgrades von der Frequenz erkannt werden.

Neben der außerordentlich hohen Gleichgewichtspolarisation ist bemerkenswert, dass das Gas schon nach 29 s zu 80% polarisiert war. Nachdem sich eine Gleichgewichtspolarisation eingestellt hatte, wurde der Laserstrahl geblockt und aus der Abnahme der Kernspinpolarisation eine Relaxationszeit von 583 s ermittelt. Anschließend wurde das Gas entmagnetisiert und die Metastabilendichte mithilfe einer Laserdiode entlang der Pumpzellenachse zu $(9 \pm 1) \cdot 10^{15} \text{ m}^{-3}$ bestimmt. Aus diesem Wert folgt in Kenntnis des Gasdrucks die mittlere relative Metastabilendichte $\bar{n}_m/n_g = 0.3 \text{ ppm}$. Der Intensitätsanteil der falschen Zirkularkomponente setzt sich zusammen aus der nicht-parallelen Einstrahlung entlang des Magnetfeldes und der Qualität der Optiken; er wurde mit $\varepsilon \approx 0.1\%$ abgeschätzt.

Im Folgenden soll untersucht werden, ob der gemessene Polarisationsgrad in Einklang mit der Theorie steht. Zusätzlich wird die Abhängigkeit der Polarisation von verschiedenen Parametern wie β , ε , p , $\bar{n}_m/n_g$ und T_r analysiert.

Die Berechnung der Polarisation ist mit größeren Fehlern behaftet als die Beschreibung des Absorptionverhaltens, weil man in der Regel sowohl über das räumliche Intensitätsprofil des Lasers als auch über die Verteilung der Metastabilendichte im Pumpvolumen mitteln muss. Hohe Polarisationsgrade lassen sich nur mit einem aufgeweiteten Laserstrahl realisieren, der das gesamte optische Pumpvolumen ausleuchtet. Hierbei gehorcht das räumliche Intensitätsprofil einer Gaußverteilung mit einer maximalen Leistungsdichte entlang der Pumpzellenachse. Zur Berechnung der Polarisation wird das Intensitätsprofil durch eine mittlere homogene Leistungsdichte beschrieben, was selbstverständlich nur als eine Annäherung an die tatsächlichen Bedingungen gesehen werden kann. Eine weitere Unsicherheit entsteht durch die parabelförmig angenommene Verteilung der Metastabilendichte im Plasma. Da die metastabile Austauschzeit der Grundzustandsatome T_e gemäß der Gleichung (2.10)

$$\frac{1}{T_e} = \sqrt{2} \sigma_{me} \langle v \rangle n_m$$

mit der Metastabilendichte n_m verknüpft ist, variiert T_e mit dem Abstand von der Zylinderachse der optischen Pumpzelle und somit die Transferrate der Kernspinpolarisation von den metastabilen Atomen auf die Grundzustandsatome. Durch die Einführung der mittleren Metastabilendichte wird versucht, den Effekt angemessen zu berücksichtigen.

Soll die Gleichgewichtspolarisation für einen bestimmten Parametersatz kalkuliert werden, müssen sämtliche zeitliche Ableitungen in den gekoppelten Differentialgleichungssystemen (2.47-2.50) verschwinden. Da die Polarisation P - im Gegensatz zur Absorptionsbestimmung - selbst als Variable in den Gleichungen auftritt, entsteht ein kaum lösbares, nichtlineares Gleichungssystem. Allerdings lassen sich alle Größen bestimmen, wenn das Gleichungssystem linearisiert wird. Dies ist mit einem kleinen Trick möglich: Dazu betrachtet man die Polarisation P nicht als freie Variable, sondern ordnet ihr zu Beginn der Rechnung einen Wert zwischen 0 und 1 zu. Setzt man diesen Startwert in die Gleichungen (2.47-2.49) ein, so werden diese linear und die Unbekannten können problemlos mit einem Computer berechnet werden. Die Lösungen beschreiben dann die Besetzungsdichte in den einzelnen Niveaus im Gleichgewicht unter der Annahme, dass die vorgegebene Polarisation ebenfalls identisch mit

der Gleichgewichtspolarisation ist. Eine Überprüfung dieser Aussage geschieht, indem man die Ergebnisse in Gleichung (2.50) einsetzt. Verschwindet in der letztgenannten Formel die zeitliche Ableitung, stimmt die vorgegebene Polarisation mit der Gleichgewichtspolarisation überein. Ist dagegen die Ableitung in Gleichung (2.50) ungleich null, muss P ein neuer Wert zugewiesen werden. Die gesamte Prozedur muss solange wiederholt werden, bis eine geeignete Zahl für die Polarisation gefunden wird. Programmiert man nach diesem Schema einen einfachen Algorithmus in Mathematica, liegt die Berechnungsdauer von P und den anderen Besetzungsdichten in der Größenordnung eine Sekunde.

Als nächstes soll die Gleichgewichtspolarisation mithilfe der vorhin dargestellten Parameter ermittelt werden. Aus der mittleren Metastabilendichte $\bar{n}_m/n_g = 0.3$ ppm und dem Druck $p = 0.65$ mbar folgt für die metastabile Austauschzeit $T_e = 1.36$ s bzw. $\tau_e = 410$ ns. Für das collisional mixing resultiert eine Zeitkonstante von $\tau_{dep} = 46$ ns.

Zur Berechnung müssen zuletzt noch die charakteristischen Lasereigenschaften angegeben werden. Die Untersuchungen im fünften Kapitel legen für die beiden IPG-Laser ein dichtes Spektrum nahe, sodass $\beta = 1$ gewählt wird. Beide Laser haben mit 2.1 GHz bzw. 3.0 GHz unterschiedliche spektrale Profile, die durch eine mittlere spektrale Breite von 2.5 GHz beschrieben werden können ($\chi = 2300 \text{ m}^2/\text{Ws}$)⁴. Der aufgeweitete Laserstrahl mit einer Leistung von 10 W bestrahlt das optische Pumpvolumen und wird am dichroitischen Spiegel reflektiert, wodurch das Gas ein zweites Mal durchleuchtet wird. Somit beträgt die Leistungsdichte innerhalb der Zelle etwa 20 W auf einer Fläche von ca. 13 cm² (Durchmesser: 40 mm). Berücksichtigt man, dass der Laserstrahl im Zentrum wesentlich intensiver ist als an den Rändern, liegt die Leistungsdichte in der Mitte bei $\gtrsim 2 \text{ W/cm}^2$.

Werden sämtliche Größen in die Gleichungen eingesetzt, erhält man eine Gleichgewichtspolarisation von 90.1% auf der C_8 -Resonanz. Hierbei ist anzumerken, dass eine Veränderung der Leistungsdichte von 1.5 auf 3 W/cm² die berechnete Polarisation um maximal 0.1% verändert. Dies rechtfertigt die oberflächliche Bestimmung der eingestrahnten Leistungsdichte und von χ .

Der Einfluss des Fluoreszenzlichts ist hier noch nicht berücksichtigt. In Kapitel 3.3 wurde abgeschätzt, dass das Fluoreszenzlicht bei einem Polarisationsgrad der Größenordnung 90% eine Reduzierung der Polarisation um etwa zwei Prozent verursacht, wenn nichtreflektierende Elektroden benutzt werden. Demnach hätte man anstatt der gemessenen 91% lediglich eine Polarisation von 88% erwartet. Trotz einer Abweichung von 3% zwischen Theorie und Experiment (wenn man die Fehler der Polarisationsmessung nicht einbezieht) ist die Übereinstimmung beachtlich und zeigt, dass die Theorie nicht nur das Absorptionsverhalten korrekt beschreiben kann, sondern auch brauchbare Vorhersagen zur erzielbaren Kernspinpolarisation gibt.

In den anknüpfenden Unterabschnitten wird analysiert, wie groß die Effekte der einzelnen

4) Der hier entstehende Fehler ist unbedeutend, weil die spatiale Leistungsdichte nicht konstant ist.

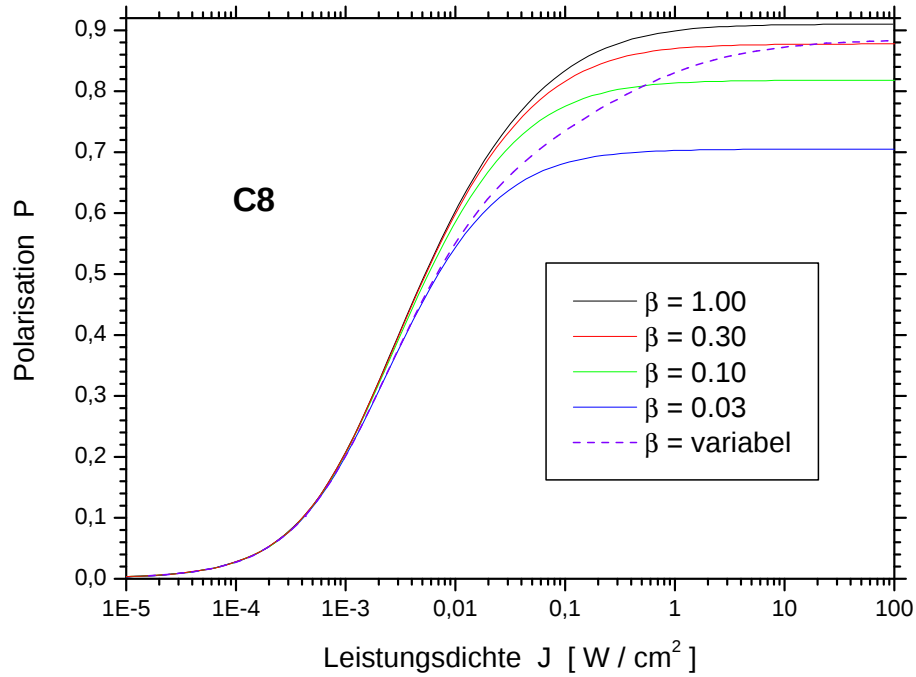


Abbildung 6.7: Einfluss des Parameters β auf die Gleichgewichtspolarisation (Annahmen: $p = 0.7$ mbar, $T_r = 500$ s, $\bar{n}_m/n_g = 0.4$ ppm, $\varepsilon = 0$, $\chi = 2300$ m²/Ws).

Parameter auf die Polarisation sind.

6.2.1 Einfluss des Parameters β

Im fünften Kapitel wurden verschiedene Anforderungen an einen zum metastabilen optischen Pumpen von ³He geeigneten Laser erörtert. Neben einer hohen Ausgangsleistung ist vor allem ein angepasstes spektrales Profil bedeutend. Das Modenspektrum sollte nach Möglichkeit auf der Zeitskala der atomaren Prozesse in der Größenordnung 100 ns keine größeren Lücken aufweisen. In der Theorie des optischen Pumpens wird die Modenstruktur durch den Parameter β berücksichtigt (vergleiche Kapitel 2.4 und 2.5). Er gibt an, wie groß der Anteil der metastabilen Atome ist, die mit dem Laserlicht wechselwirken können.

Je größer β ist, desto höher ist die Absorptionswahrscheinlichkeit des Laserlichts durch die Atome im 2^3S_1 -Zustand und desto höhere Polarisationsgrade sind realisierbar. In Abbildung (6.7) wurde die maximale Polarisation in Abhängigkeit der Leistungsdichte für unterschiedliche Werte von β berechnet. Hierbei muss man beachten, dass die Größe β eigentlich variabel ist und mit zunehmender Leistungsdichte ansteigt. Im zweiten Kapitel wurde auf (rechentechnische) Probleme bei der Bestimmung von β bei veränderlicher Polarisation und Leistungsdichte hingewiesen. Um wenigstens eine Abschätzung für die Größenordnung des zu erwartenden Effekts zu erhalten, sind vier Grafen mit konstantem Parameter β im Diagramm eingezeichnet. Die gestrichelte Kurve beschreibt ein von der

Leistungsdichte abhängiges β unter Vernachlässigung irgendwelcher Einflüsse durch die Polarisierung.

Obgleich die Simulation die tatsächliche Situation nur annähernd widerspiegelt, wird deutlich, dass zum Erreichen höchster Polarisationsgrade der Parameter β möglichst eins sein sollte. Bei einer Pumpzelle mit einem Durchmesser von 50 mm lassen sich mit heutigen Lasern Leistungsdichten von höchstens 3 W/cm^2 im aufgeweiteten Strahl realisieren. Ist β in diesem Bereich von eins verschieden, verursacht dies einen Polarisationsverlust von bis zu zehn Prozentpunkten.

Eine Steigerung der Leistungsdichte über die erwähnten 3 W/cm^2 hinaus ist zur Reduzierung des Polarisationsverlusts wenig sinnvoll. Bei diesen Intensitäten genügen nämlich bereits kleine Anteile unerwünschter Zirkularkomponenten, um die Kernspinpolarisation bei einer Leistungserhöhung zu reduzieren.

6.2.2 Einfluss einer falschen Zirkularkomponente

Der große Einfluss von nicht ideal zirkular polarisiertem Licht auf die Kernspinpolarisation wurde durch Messungen mit einem kollimierten, intensiven Laserstrahl in einer begleitenden Diplomarbeit [Kro02] untersucht. Man stellte überraschend fest, dass eine Erhöhung der Intensität ab einer bestimmten Leistung zu einer kontinuierlichen Verringerung der Kernspinpolarisation führt (siehe Abbildung 6.8).

Der Rückgang in der Polarisation resultiert aus der Sättigung des gepumpten Hyperfeinübergangs infolge der hohen Leistungsdichte. Wird beispielsweise die C_8 -Resonanz sättigend mit σ^+ -Licht angeregt, entleert sich der Zustand A_5 nahezu vollständig und eine weitere Zunahme der Laserleistung bewirkt keine Änderung der Absorptionsrate in diesem Niveau (vergleiche auch Abbildung 2.2 und 2.3). Sind im Laserlicht zusätzlich σ^- -Anteile enthalten, so werden diese aufgrund der hohen Besetzungsdichte im Zustand A_6 sehr gut absorbiert. Eine Erhöhung der Leistung führt auf diese Weise fast ausschließlich zu einer vermehrten Absorption des σ^- -Lichts, wodurch die Kernspinpolarisation schließlich sinkt. Dieser Effekt ist beim optischen Pumpen auf der C_9 -Linie ausgeprägter, weil das σ^- -Licht gerade das am stärksten besetzte Niveau anregt.

In einigen Anwendungen werden große Mengen an ^3He -Gas mit zugleich hoher Polarisation benötigt. Hohe Laserleistungen sind für die erforderliche Produktionsrate unentbehrlich, damit die Aufpolarisation in möglichst geringer Zeit geschieht. Zudem müssen alle optischen Elemente auf ihre Polarisierungseigenschaften untersucht werden und gegebenenfalls durch hochwertigere Optiken ersetzt werden, um die unerwünschte Lichtpolarisation soweit wie möglich zu minimieren (siehe auch drittes Kapitel).

Die starke Abhängigkeit der Polarisation von der falschen Lichtpolarisation ε eignet sich gut für eine weitere experimentelle Überprüfung der theoretischen Vorhersagen. Im oberen Diagramm von Abbildung (6.9) ist der kalkulierte Polarisationsverlauf sowohl für die C_8 -

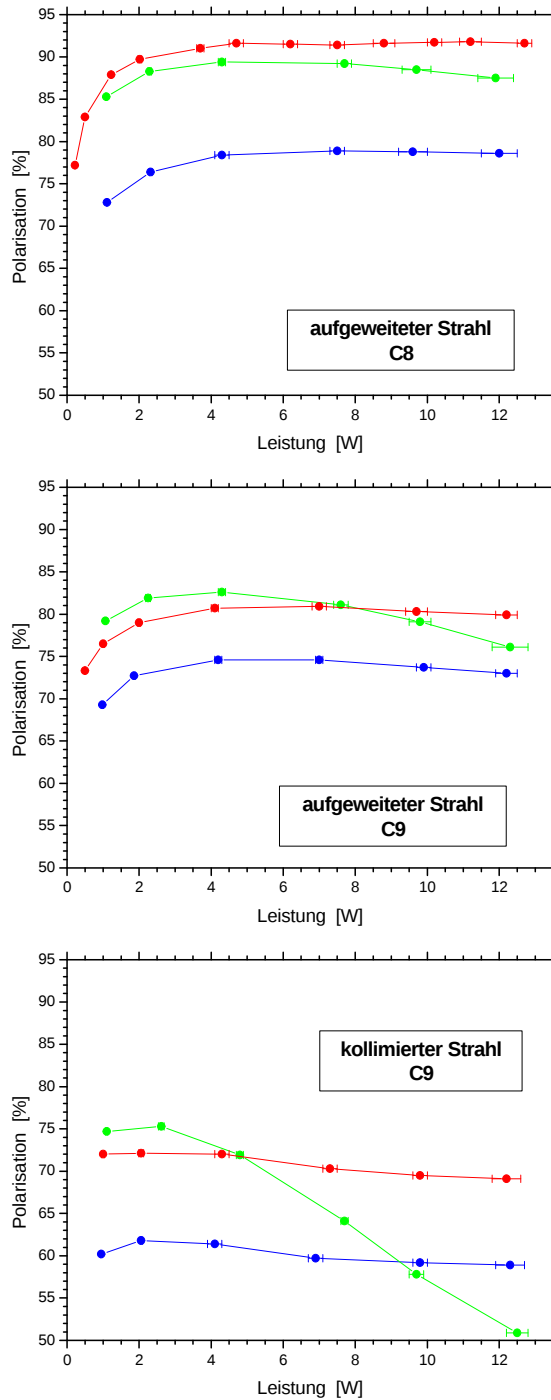


Abbildung 6.8: In den Diagrammen ist die Abhängigkeit der Gleichgewichtspolarisation von der eingestrahlten Laserleistung für drei Pumpzellen dargestellt (rot: beidseitig antireflexbeschichtete Quarzfenster, $p = 0.65$ mbar; grün: unbeschichtete Fenster aus Borofloat, $p = 0.65$ mbar; blau: beidseitig antireflexbeschichtete Quarzfenster, $p = 0.75$ mbar; im Gegensatz zu den beiden anderen Zellen sind bei dieser Zelle im Gasentladungsspektrum geringe Verunreinigungen erkennbar). Aufgrund der schlechteren Gasreinheit ist die Gleichgewichtspolarisation bei den blauen Datenpunkten niedriger. Bei den grünen Messwerten rührt die Abnahme der Polarisation bei hoher Leistungsdichte von der thermisch induzierten Doppelbrechung in den Borofloatfenstern her. Man sieht an der mit steigender Leistung abnehmenden Polarisation im mittleren und unteren Bild, dass der C_9 -Übergang wesentlich empfindlicher auf falsche Zirkularkomponenten reagiert als die C_8 -Resonanz.

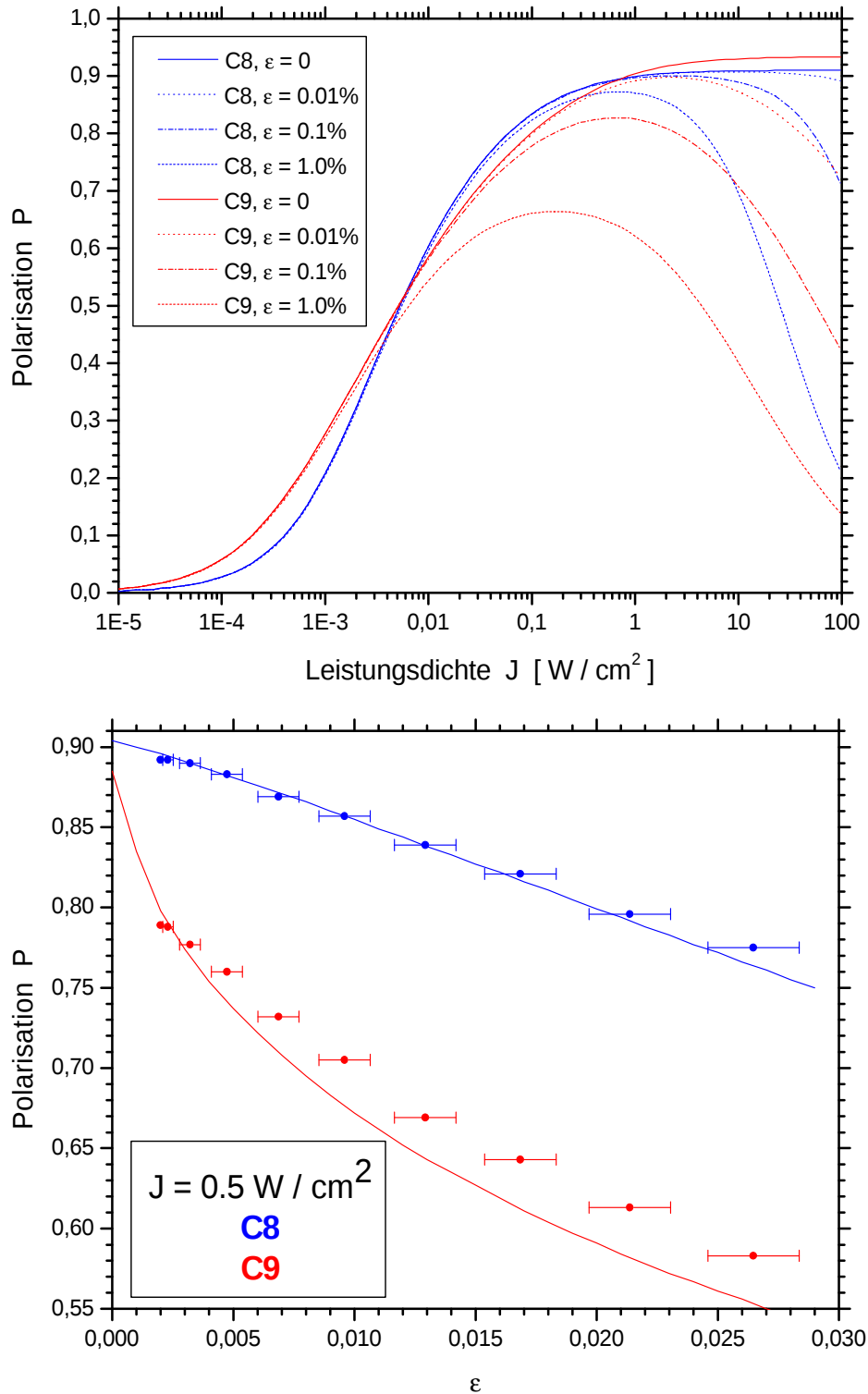


Abbildung 6.9: Einfluss des zirkularen Lichtpolarisationsgrades auf die Kernspinpolarisation. Im oberen Diagramm ist die Polarisation gegen die Leistungsdichte für verschiedene ϵ aufgetragen (Annahmen: $p = 0.7 \text{ mbar}$, $T_r = 500 \text{ s}$, $\bar{n}_m/n_g = 0.4 \text{ ppm}$, $\beta = 1$, $\chi = 2300 \text{ m}^2/\text{Ws}$). Unten ist die gemessene und berechnete Abhängigkeit der Polarisation von ϵ bei konstanter Leistungsdichte dargestellt.

als auch für die C_9 -Linie bei vier verschiedenen Werten von ε dargestellt. Man erkennt, dass ideal zirkular polarisiertes Licht bei Leistungsdichten von $\sim 0.01 - 1 \text{ W/cm}^2$ zu höheren Gleichgewichtspolarisationen auf dem C_8 -Übergang führt, bei höheren Leistungsdichten jedoch die C_9 -Linie eine um etwa 2% höhere Endpolarisation liefert. Das Verhalten ändert sich insbesondere bei hohen Leistungsdichten drastisch, wenn ε nur geringfügig von null verschieden ist (z.B. $\varepsilon = 0.01\%$). Dann ergeben sich bereits ab einer Leistungsdichte von 10 mW/cm^2 bei C_8 höhere Polarisationsgrade als auf dem C_9 -Übergang. Im Falle geringer Leistungsdichten ($J \leq 0.01 \text{ W/cm}^2$) erzielt man dagegen auf der C_9 -Linie auch für vergleichsweise hohe Werte von $\varepsilon \approx 1\%$ höhere Polarisationen.

Aus den simulierten Kurven kann man eine sinnvolle Grenze für ein noch tolerierbares ε ableiten. Wie bereits erwähnt, beträgt die Leistungsdichte im aufgeweiteten Strahl maximal 3 W/cm^2 . Bei dieser Leistungsdichte wird für $\varepsilon = 0$ die theoretisch mögliche Höchstpolarisation bis auf 0.2% erreicht. Falls die falsche Zirkularkomponente aber einen Anteil von 0.1% der gesamten Lichtintensität ausmacht und zum optischen Pumpen der C_8 -Übergang benutzt wird, reduziert sich die Polarisation von 91% auf 90%. Ein Wert für ε von 0.1% oder besser sollte daher beim optischen Pumpen angestrebt werden.

Im unteren Grafen von Abbildung (6.9) ist die gemessene und theoretisch erwartete Abhängigkeit der Gleichgewichtspolarisation von der falschen Lichtpolarisation aufgetragen. Bei konstanter Leistung wurde linear polarisiertes Licht mittels eines justierten $\lambda/4$ -Plättchens in zirkulares Licht umgewandelt. Durch Verdrehen des Verzögerungselements um den Winkel ϑ konnte ε gezielt eingestellt werden und anschließend die Kernspinpolarisation ermittelt werden. Die Korrelation zwischen beiden Größen lässt sich hierbei mit folgender Gleichung beschreiben (ohne Herleitung):

$$\varepsilon = \sin^2 \vartheta \quad (6.15)$$

Aus dem Vergleich von Experiment und Theorie erkennt man beim C_8 -Übergang einen äquivalenten Kurvenverlauf. Indes weichen beim Pumpen auf der C_9 -Linie die Messwerte von der berechneten Polarisation geringfügig ab. Wahrscheinlich ist dies auf die arithmetische Mittelung der Laserleistungsdichte über das spatiale Intensitätsprofil zurückzuführen. Da die durch eine falsche zirkulare Komponente verursachte Polarisationsänderung in nichtlinearer Form von der Leistungsdichte abhängt, sind Differenzen zwischen Experiment und Modellierung möglich. Dennoch wird auch hier der grundsätzliche Verlauf angemessen reproduziert. So verringert sich die gemessene Polarisation bei C_9 von 79% auf 58%, während ein Rückgang von 79% auf 55.5% theoretisch vorausgesagt wird.

6.2.3 Einfluss des Druckes

In Kapitel 2.7 wurde erläutert, dass die Polarisation im Spintemperaturgleichgewicht von einer einzigen Größe abhängt, dem so genannten Pumpparameter:

$$A = \frac{\gamma_{abs}^0 T_r}{n_g V} \quad \begin{array}{ll} V & : \text{Volumen,} \\ n_g & : \text{Teilchendichte,} \end{array} \quad \begin{array}{ll} \gamma_{abs}^0 & : \text{absorb. Photonenrate,} \\ T_r & : \text{Relaxationszeit} \end{array} \quad (6.16)$$

Da die absorbierte Photonenrate γ_{abs}^0 im Spintemperaturgleichgewicht proportional zur Metastabilendichte n_m und zur eingestrahlten Laserleistungsdichte ist, folgt bei konstantem Volumen und konstanter Leistungsdichte aus Gleichung (6.16) somit:

$$A \propto \frac{n_m}{n_g} T_r \quad \Rightarrow \quad \aleph \equiv \frac{n_m}{n_g} T_r \quad (6.17)$$

Demnach ist die Gleichgewichtspolarisation in diesem Modell unabhängig vom Druck, solange die Größe $\aleph$ gleich bleibt. Berechnet man dagegen die Polarisation mithilfe der Raten Gleichungen (2.47-2.50), so zeigt sich eine Abhängigkeit der Kernspinpolarisation vom Druck in der optischen Pumpzelle. Die Abweichung erklärt sich aus einer Näherung in der Herleitung der Formeln für das Spintemperaturgleichgewicht: Hier wurde angenommen, dass die absorbierte und reemittierte Photonenrate klein gegenüber der metastabilen Austauschrate ist und vernachlässigt werden kann. Mathematisch ist diese Aussage jedoch äquivalent mit einer endlichen Pumprate bei einer unendlich großen metastabilen Austauschrate. Da aus einer unendlich hohen Austauschrate nach Gleichung (2.9)

$$\frac{1}{\tau_e} = \sqrt{2} \sigma_{me} \langle v \rangle n_g$$

ein unendlich hoher Druck wegen $n_g \propto p$ folgt, beschreibt das Spintemperaturgleichgewicht den Polarisationsprozess nur dann korrekt, wenn sowohl niedrige Leistungsdichten⁵⁾ als auch hohe Drücke vorherrschen.

Im unteren Teil von Abbildung (6.10) wird verdeutlicht, inwieweit das Modell des Spintemperaturgleichgewichts mit der umfassenderen Darstellung bei 0.7 mbar Druck übereinstimmt. Vor allem bei hohen Leistungsdichten ergeben sich erkennbare Abweichungen aufgrund der Sättigung. Darüberhinaus sieht man bei geringen Leistungsdichten den Effekt des unvollständigen collisional mixing. In diesem Druckregime ist das Spintemperaturgleichgewicht inklusive collisional mixing noch nicht vollkommen erfüllt. Deshalb sollten zur akkuraten Beschreibung die Ratengleichungen (2.47-2.50) herangezogen werden, wie im oberen Diagramm von Abbildung (6.10) geschehen. Hier ist die Polarisation in Abhängigkeit der eingestrahlten Laserleistung bei zwei Drücken mit gleichem $\aleph$ aufgetragen. Man erkennt, dass ein größerer Druck höhere Polarisationsgrade liefern sollte.

Dieses vorhergesagte Verhalten des umfassenden Modells kann experimentell nicht bestätigt werden. Sämtliche Beobachtungen zeigen, dass höchste Polarisationsgrade nur bei einem Druck von etwa 0.5 – 1.0 mbar realisiert werden können. Eine Druckerhöhung führt zu deutlich geringeren - anstatt zu höheren - Maximalpolarisationen. Eine Möglichkeit ist, dass bei höheren Drücken die Metastabilendichte geringer oder die Relaxationszeit der Kernspinpolarisation in der Gasentladung kürzer ist. Deshalb wird im nächsten Abschnitt der Einfluss der Metastabilendichte und der Relaxationszeit auf die Polarisation untersucht.

5) Das Spintemperaturgleichgewicht gilt nur für niedrige Leistungsdichten, weil die induzierte Emission nicht berücksichtigt wird.

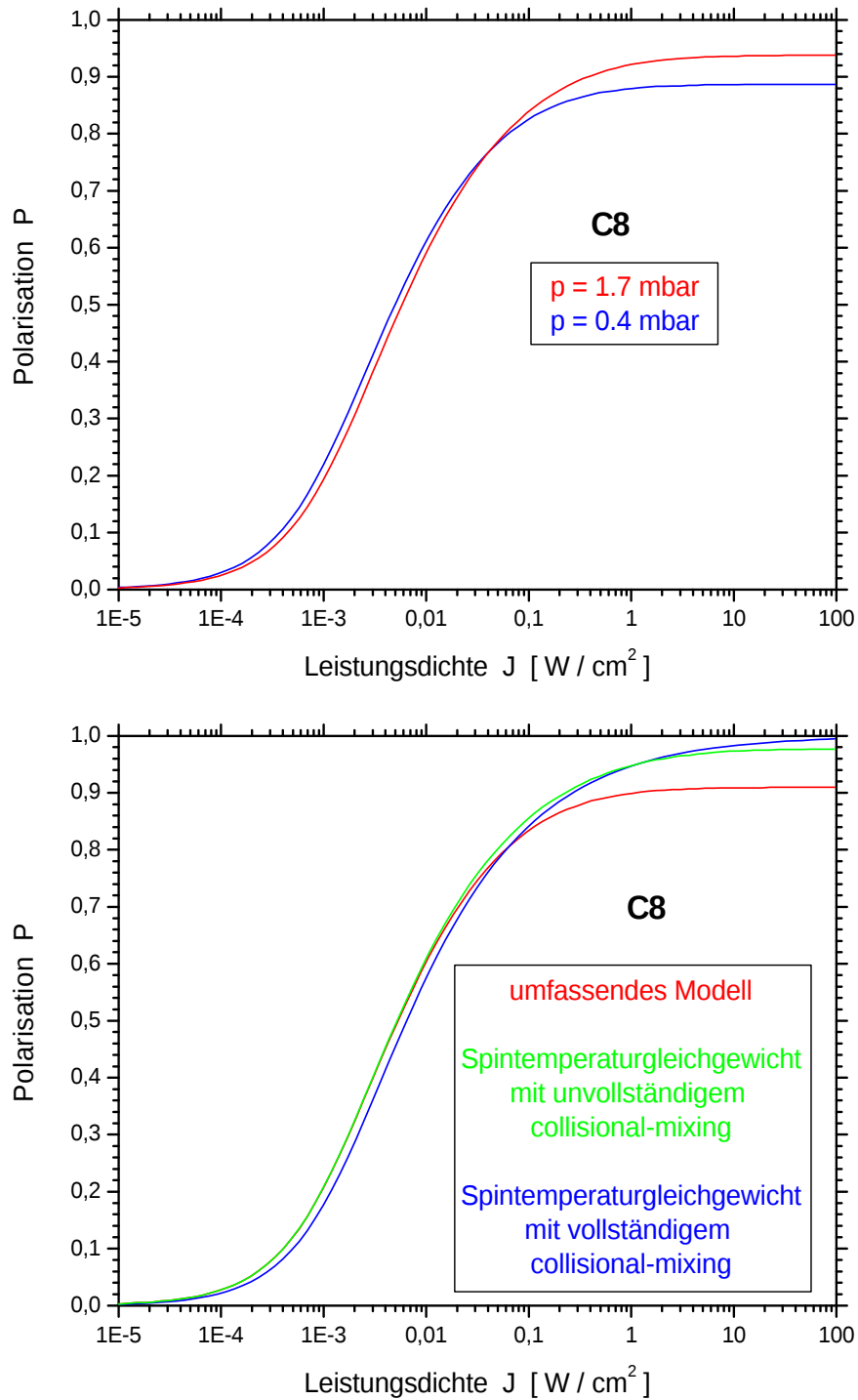


Abbildung 6.10: Einfluss des Druckes auf die Gleichgewichtspolarisation. Im oberen Grafen sind die berechneten Kurven für zwei Drücke dargestellt (Annahmen: $T_r = 500 \text{ s}$, $\bar{n}_m/n_g = 0.4 \text{ ppm}$, $\varepsilon = 0$, $\beta = 1$, $\chi = 2300 \text{ m}^2/\text{Ws}$). Unten erkennt man drei Modelle zur Beschreibung der Polarisation. Dargestellt ist die Polarisation unter Annahme des Spintemperaturgleichgewichts ($1/\tau_e \rightarrow \infty$) mit vollständigem collisional mixing ($1/\tau_{dep} \rightarrow \infty$) und mit unvollständigem collisional mixing ($\tau_{dep} = 42 \text{ ns}$). Dem gegenübergestellt ist das „umfassende“ Modell, das auf der Lösung der Ratengleichungen basiert ($p = 0.7 \text{ mbar}$, $T_r = 500 \text{ s}$, $n_m/n_g = 0.4 \text{ ppm}$, $\varepsilon = 0$, $\beta = 1$, $\chi = 2300 \text{ m}^2/\text{Ws}$).

6.2.4 Einfluss der Metastabilendichte und der Relaxationszeit

Die Berechnung der Polarisation mit der umfassenden Darstellung führt zu identischen Polarisationsgraden, wenn bei konstantem Druck das Produkt aus Metastabilendichte n_m und Relaxationszeit T_r unverändert bleibt. Um dies einzusehen, führt man vorab die so genannte relative metastabile Besetzungszahldichte a'_i ein:

$$a'_i \equiv \frac{a_i}{n_m} \quad \Rightarrow \quad 1 = \sum_{i=1}^6 a'_i \quad (6.18)$$

Wechselwirkt das Laserlicht mit sämtlichen metastabilen Atomen, d.h. $a_i^o = 0 \Rightarrow a_i = a_i^*$, so folgt aus Formel (2.50):

$$0 = -\frac{P}{T_r} + \frac{1}{T_e} \left[-P + \sum_{i=1}^6 \lambda_i a'_i \right] \quad (6.19)$$

Setzt man die beiden bereits mehrfach erwähnten Relationen

$$\begin{aligned} \frac{1}{\tau_e} &= \sqrt{2} \sigma_{me} \langle v \rangle n_g \\ \frac{1}{T_e} &= \sqrt{2} \sigma_{me} \langle v \rangle n_m \end{aligned}$$

in Gleichung (6.19) ein und formt sie um, so ergibt sich schließlich:

$$0 = \frac{-P (1 + \sqrt{2} \sigma_{me} \langle v \rangle T_r n_m) + \sum \lambda_i a'_i}{\sqrt{2} \sigma_{me} \langle v \rangle T_r n_m} \quad (6.20)$$

Falls der Druck und die Leistungsdichte in der letztgenannten Gleichung nicht variiert werden, bleiben die einzelnen relativen Besetzungsdichten a'_i ebenfalls konstant, weil die in den Ratengleichungen (2.47-2.49) vorkommenden Zeitkonstanten (τ_e , τ_c , τ_r und τ_{dep}) ausschließlich von der Dichte der Grundzustandsatome abhängen. Demzufolge wird sich die Polarisation P nicht ändern, wenn das Produkt $T_1 \cdot n_m$ konstant ist:

$$\boxed{P = \text{const.}, \quad \text{falls } n_m \cdot T_r = \text{const.} \quad \text{und} \quad p, J = \text{const.}} \quad (6.21)$$

Um die postulierte Abhängigkeit zu überprüfen, wurde die Metastabilendichte und Relaxationszeit bei drei Pumpzellen variiert und jeweils die Gleichgewichtspolarisation gemessen. Die verwendeten optischen Pumpzellen hatten folgende Eigenschaften:

1. Die Pumpzelle enthält ^3He bei einem Druck von 0.65 mbar. Im Gasentladungsspektrum sind keine Linien fremder Gase zu erkennen. (rote Datenpunkte, siehe Abbildungen 6.11 und 6.12)
2. Die Pumpzelle enthält ^3He bei einem Druck von 1.04 mbar. Das Gas ist spektral rein. (grüne Datenpunkte)

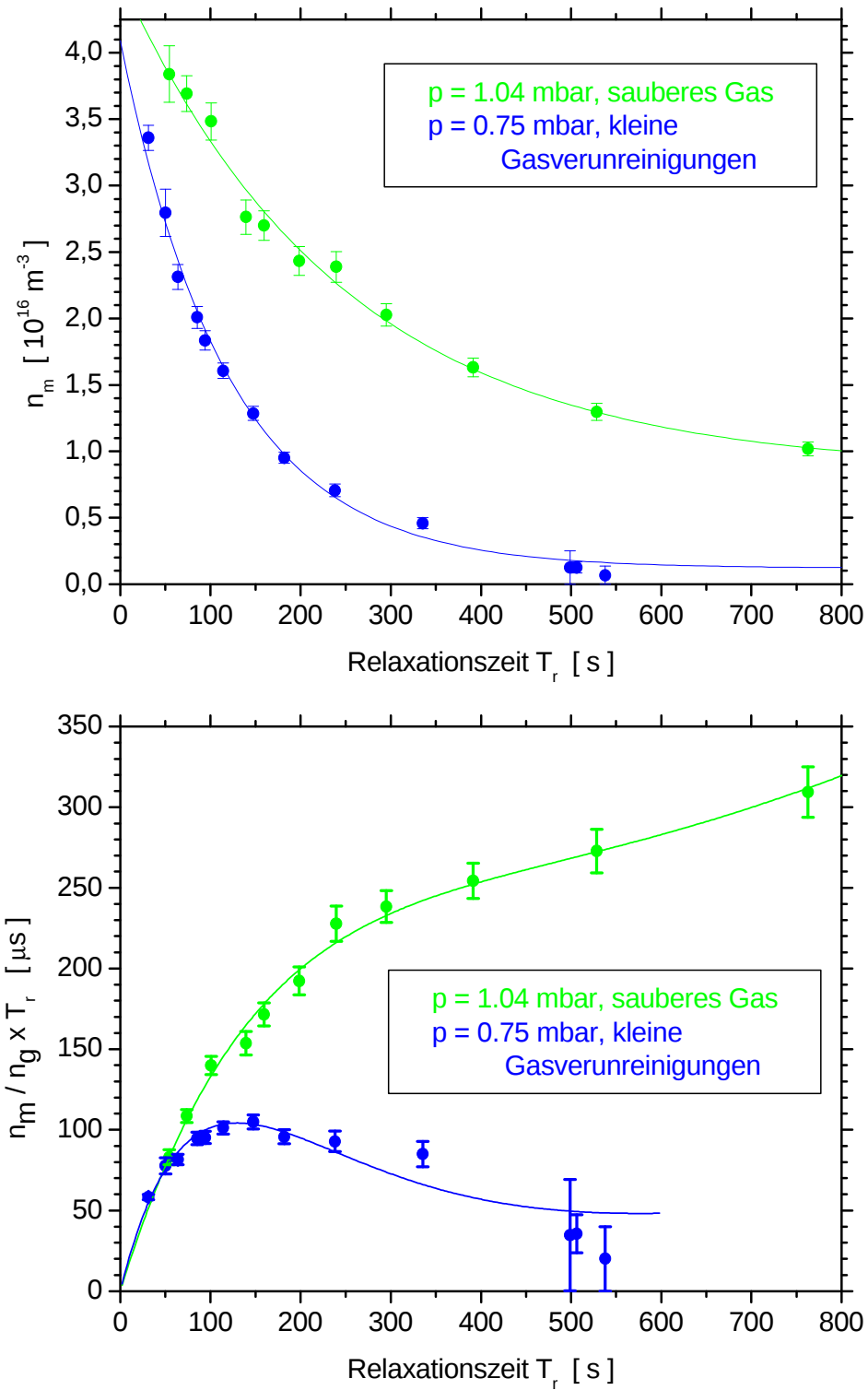


Abbildung 6.11: Korrelation von Metastabilendichte und Relaxationszeit.

3. Die Pumpzelle enthält ^3He bei einem Druck von 0.75 mbar. Im Gasentladungsspektrum sind geringe Verunreinigungen sichtbar. (blaue Datenpunkte)

Die Messungen wurden in mehreren Schritten durchgeführt: Bei einer gewählten Gasentladungshelligkeit wurde das ^3He bei einer stets gleichbleibenden Laserleistung aufpolarisiert und die Maximalpolarisation ermittelt. Anschließend wurde der Laserstrahl geblockt und die Relaxationszeit T_r im Plasma bestimmt. Dieser Untersuchung folgte in dem mittlerweile entmagnetisierten Gas die Messung der Metastabilendichte entlang der Pumpzellenachse. Danach wurde die Helligkeit des Plasmas verändert und gesamte Prozedur wiederholt.

Im oberen Diagramm von Abbildung (6.11) ist die Metastabilendichte als Funktion der Relaxationszeit dargestellt. Hierbei ist eine kurze Relaxationszeit mit einer starken Gasentladung gleichzusetzen. Man erkennt in dem untersuchten Regime eine exponentielle Abhängigkeit von Metastabilendichte und Relaxationszeit. Allerdings ist die Metastabilendichte im spektral sauberen Gas bei vergleichbarer Relaxationszeit deutlich größer, da Fremdatome wie Stickstoff und Sauerstoff metastabile ^3He -Atome sehr effizient quenchen und somit die Metastabilendichte reduzieren. Der untere Teil von Abbildung (6.11) zeigt das Produkt $n_m/n_g \cdot T_r$ über die Relaxationszeit, wobei man deutliche Unterschiede im Kurvenverlauf sehen kann. Anscheinend gibt es bei der verunreinigten Zelle einen Bereich mit relativ starker Gasentladung, wo $n_m \cdot T_r$ maximal wird. Dagegen wächst in einer sauberen Zelle das Produkt aus Relaxationszeit und Metastabilendichte mit abnehmender Gasentladungsstärke. Eine physikalische Interpretation für diesen Befund gibt es zurzeit noch nicht. Es wird daher die Aufgabe zukünftiger Experimente sein, das Verhalten eingehender zu untersuchen und zu deuten.

Für das Erreichen hoher Polarisationswerte muss das Produkt aus Metastabilendichte und Relaxationszeit groß sein. Im oberen Grafen von Abbildung (6.12) wird der erwartete Effekt von zwei unterschiedlichen Produkten $n_m \cdot T_r$ auf die Gleichgewichtspolarisation illustriert. Beide Kurven veranschaulichen, dass eine Leistungserhöhung über 1 W/cm^2 hinaus zu keiner Polarisationssteigerung führt und deshalb einzig die Optimierung des Produkts von Relaxationszeit und Metastabilendichte eine Erhöhung der Polarisation ermöglicht. In diesem Zusammenhang wird die spektrale Gasreinheit eine zentrale Rolle spielen. Die experimentellen Daten im unteren Teil der Abbildung (6.12) verdeutlichen, dass eine Erhöhung von $n_m \cdot T_r$ tatsächlich zu größeren Polarisationsgraden bei konstantem Druck führt. Allerdings stimmen die postulierten Polarisationswerte sowohl in der verunreinigten Pumpzelle als auch in der Pumpzelle mit 1.04 mbar Druck nicht mit den gemessenen Werten überein. Gegenwärtig ist es nicht möglich, fundierte Erklärungen für dieses Phänomen zu geben. Es wird vermutet, dass die im Modell bisher unberücksichtigten so genannten Dreikörperstöße einen entscheidenden Beitrag zur Klärung der Diskrepanz leisten können. Um die Ursachen zu finden, sind dennoch weitergehende Messungen unumgänglich. Diesbezügliche Vorschläge und Deutungen werden im letzten Kapitel erörtert. Trotz dieser unbefriedigenden Erkenntnisse haben die Messungen ein fundamentales Problem in der theoretischen Beschreibung bei höheren Drücken aufgezeigt, welches in der Vergangenheit unbekannt war.

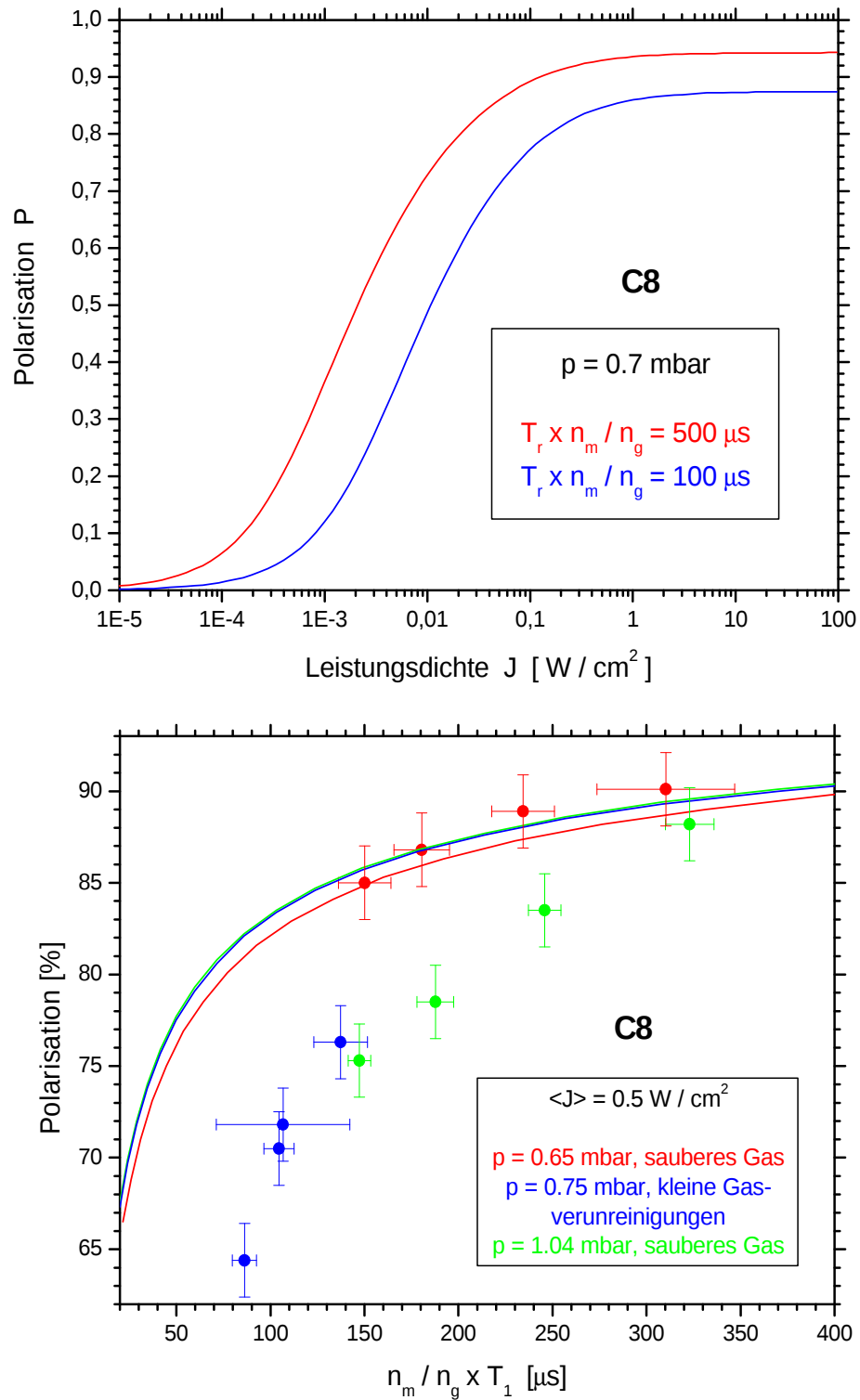


Abbildung 6.12: *Oben:* Erwartete Abhängigkeit der Polarisation von der Leistungsdichte für zwei unterschiedliche Produkte aus Metastabilendichte und Relaxationszeit. *Unten:* Gemessene Abhängigkeit der Polarisation von $n_m/n_g \cdot T_r$ bei drei Pumpzellen. Die Linien zeigen den vorhergesagten Verlauf an.

7 Der Mainzer Polarisator

Für die Bereitstellung großer Mengen an hochpolarisiertem ^3He benötigt man eine leistungsfähige Maschine („Polarisator“), die das ^3He polarisiert und anschließend auf den gewünschten Enddruck komprimiert. Nachfolgend wird mit dem Mainzer Polarisator eine Anlage vorgestellt, die hohe Polarisationsgrade mit großen Produktionsraten verbinden kann.

Der Polarisator gliedert sich in verschiedene Bereiche:

- In einem Gasreservoir wird das zu polarisierende ^3He -Gas aufbewahrt und bei Bedarf entnommen.
- Das Gas wird in einer Reinigungseinheit von Fremdgasatomen gesäubert, bevor es in das optische Pumpvolumen gelangt.
- Mit zwei Lasern strahlt man das Pumplicht mithilfe von Optiken in die Pumpzellen ein, wodurch der Kernspin der ^3He -Atome entlang eines äußeren Magnetfeldes ausgerichtet wird.
- Danach wird das Gas in einer Kompressionseinheit mechanisch verdichtet und einem Zwischenspeicher (auch „Buffer“ genannt) zugeführt. Das im Zwischenspeicher gesammelte Gas wird nochmals komprimiert und in ein geeignetes Transportgefäß zur weiteren Verwendung abgefüllt.

Sämtliche aufgezählten Einheiten befinden sich in einem homogenen Magnetfeld von knapp 10 G (siehe Abbildung 7.1). Da die Relaxation der Polarisation vom relativen radialen Magnetfeldgradienten abhängt (siehe Kapitel 2.3.3), wurde beim Bau des Magnetfeldes auf eine hohe Homogenität geachtet. Der relative radiale Magnetfeldgradient des in der Diplomarbeit von J. Schmiedeskamp entwickelten Magnetfeldes ist im Bereich des Zwischenspeichers etwa $2 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$ [Sch98]. Somit beträgt die druckabhängige Relaxationszeit bei $p = 200 \text{ mbar}$ ($p = 1 \text{ mbar}$) rund 200 h ($\approx 1 \text{ h}$).

In den folgenden Unterkapiteln wird zuerst die Gasreinigung skizziert. Anschließend wird das optische Pumpvolumen mit der Strahlführung der Laser beschrieben. Nach einer kurzen Darstellung des Kompressors werden im letzten Unterkapitel die Leistungsdaten des Polarisators diskutiert.

7.1 Die Gasreinigung

Im vorherigen Kapitel wurde die empfindliche Abhängigkeit der Kernspinpolarisation von der Gasreinheit demonstriert. Demnach wird für das Erreichen höchster Polarisationsgrade eine hohe Gasreinheit benötigt. ^3He -Gas wird daher nicht direkt aus dem Reservoir (^3He -Anreicherung: $> 99.8\%$, gesamter Anteil ^3He und ^4He : $\geq 99.99\%$) in das optische

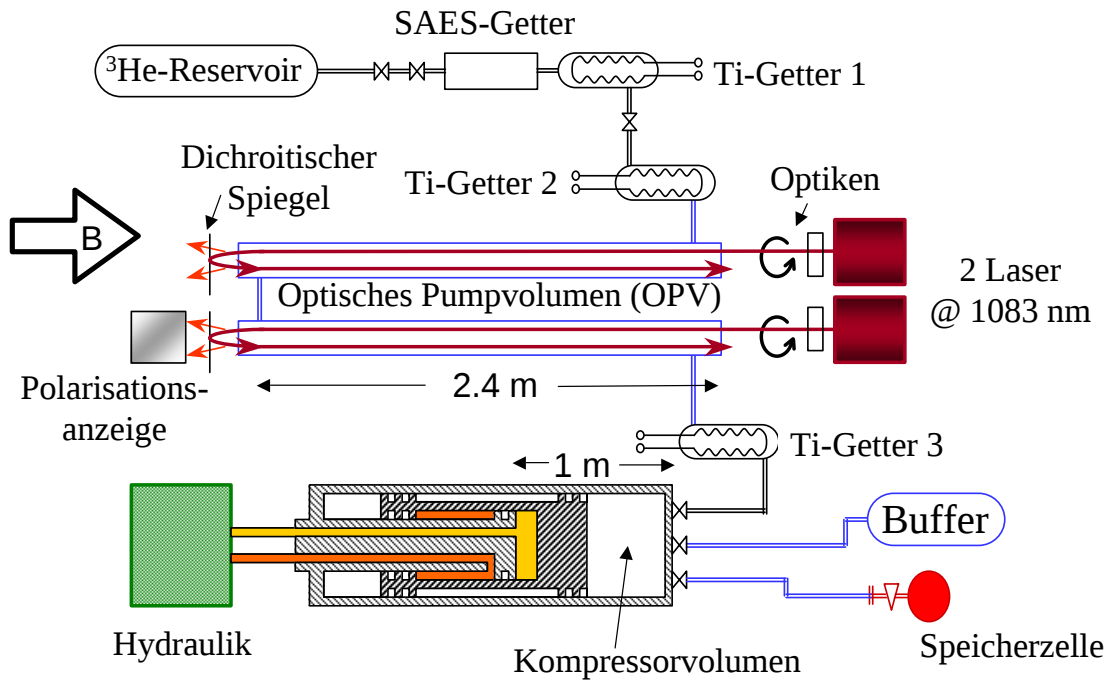


Abbildung 7.1: Schematischer Aufbau des Polarisators. Aus Gründen der Übersichtlichkeit sind von den fünf optischen Pumpzellen nur zwei eingezeichnet.

Pumpvolumen geleitet, sondern es strömt durch ein Dosierventil zunächst in eine zweistufige Reinigungseinheit, in der die Fremdgase entfernt werden. Das elektrisch verstellbare Dosierventil ermöglicht das Einstellen eines Gasflusses f , sodass sich nach der Zeitspanne τ eine bestimmte Gasmenge

$$f \cdot \tau = p \cdot V \quad (7.1)$$

in der Reinigungseinheit mit ca. 1000 ml Volumen befindet. Zur effizienteren Reinigung wird das Gas eine bestimmte Zeit in diesem Volumen belassen, bevor es durch Öffnen eines zweiten Ventils in die optischen Pumpzellen gelangt.

Der Einfluss der Gasreinheit wurde in der Vergangenheit unterschätzt, weshalb in der Reinigungskammer zu einem bereits installierten selbst gebauten Titan-Getter nun zusätzlich ein kommerzieller so genannter SAES-Getter¹⁾ eingebaut wurde. Obgleich die ausschließliche Nutzung des Titan-Getters bereits gute Ergebnisse lieferte [Ebe00], führte der zusätzliche Einbau des SAES-Getters zu einer höheren Gasreinheit. Laut Herstellerangaben liegt der Anteil der Fremdgase (H_2O , O_2 , CO_2 , N_2) nach der Reinigung immer unterhalb von 0.01 ppm, wenn die ursprünglichen Verunreinigungen jeweils geringer als 5 ppm waren.

Auch wenn das in die Pumpzelle strömende ^3He -Gas frei von Fremdatomen ist, kann es durch Diffusion von Verunreinigungen aus dem Kompressorvolumen verschmutzt werden.

1) Pure Gas Products, Köln; Modell: PS2-GC50-R-2

Mittels eines Titan-Getters (Ti-Getter 3, siehe Abbildung 7.1) wird versucht, diesen Effekt zu minimieren, allerdings ist die Reinigungswirkung zeitlich begrenzt. Um eine dauerhafte Getterwirkung zu gewährleisten, müsste Titan mehrmals pro Stunde sublimiert werden. Da die Verdampfung von Titan durch elektrische Ströme - und damit einhergehende Magnetfelder - geschieht, wird die Polarisierung während der Sublimation teilweise zerstört. Deshalb steht man vor dem Problem, entweder von der Aktivierung des Getters im laufenden Betrieb des Polarisators abzusehen und eine eingeschränkte Reinigungswirkung hinzunehmen oder einen zeitlich begrenzten Polarisationsverlust durch die Aktivierung des Getters in Kauf zu nehmen. Bisher ist noch keine zufriedenstellende Lösung gefunden worden. Einen Ausweg könnte die Verwendung eines Kaltkopfs liefern, in dem Fremdgase ausgefroren werden. Inwiefern sich die Nutzung jedoch auf die Polarisierung auswirkt ist bislang ungeklärt.

7.2 Das optische Pumpvolumen

Zur Erzeugung von hyperpolarisiertem ^3He sind hohe Leistungsdichten ($\sim 1 \text{ W/cm}^2$), lange Verweilzeiten im optischen Pumpvolumen sowie ein nichtdivergenter, aufgeweiteter, zirkular polarisierter, resonanter Laserstrahl erforderlich. Diesen Vorgaben wurde bei der Dimensionierung des optischen Pumpvolumens Rechnung getragen.

Das optische Pumpvolumen besteht aus fünf je 240 cm langen Pumpzellen mit einem Gesamtvolumen von ca. 34 l (vergleiche Abbildung 7.2). Die Hälfte dieses Gasvolumens wird bei jedem Pumpzyklus vom Kompressor abgesaugt. Da die entnommene Gasmenge eine möglichst hohe Polarisierung aufweisen soll, wurden die fünf Pumpzellen in zwei Gruppen mit jeweils ca. 17 l Volumen angeordnet. Hierbei bilden die Pumpzellen #3, #4 und #5 (Innendurchmesser je 5.4 cm) die eine sowie die Pumpzellen #1 und #2 (Innendurchmesser je 6.8 cm) die andere Einheit. In den Zellen #3, #4 und #5 wird das Gas auf möglichst hohe Werte polarisiert. Um den Polarisationsverlust durch Diffusion in die Pumpzellen mit niedrigerer Polarisierung zu minimieren, wurden beide Anordnungen durch ein längeres Glasrohr mit einem im Vergleich zu den sonstigen Pumpzellenverbindungen kleineren Diffusionsleitwert verbunden.

Mit jedem Pumpzyklus wird das komplette Volumen der Zellen #3, #4 und #5 abgesaugt. Zum gleichen Zeitpunkt, zu dem sich das Ventil zum Kompressor öffnet, wird auch das Ventil zum Reinigungsvolumen aufgesperrt. Durch den Druckunterschied fließt das Gas aus #3, #4 und #5 in den Kompressor. Dabei strömt Gas aus den Zellen #1, #2 durch das lange Glasrohr in die drei anderen Zellen nach und das ^3He in den Röhren #1, #2 wird durch Gas aus dem Reinigungsvolumen ersetzt. Somit befindet sich in den zwei Zellen #1 und #2 Gas mit einem niedrigeren Polarisationsgrad und in den drei anderen Zellen höherpolarisiertes Gas. Insgesamt wird das ^3He zwei Pumpzyklen lang dem Laserlicht ausgesetzt.

Abbildung (7.2) zeigt den Strahlengang mit den beiden im fünften Kapitel diskutierten IPG-Lasern. Die Laserstrahlen werden über Umlenkspiegel in das optische Pumpvolumen

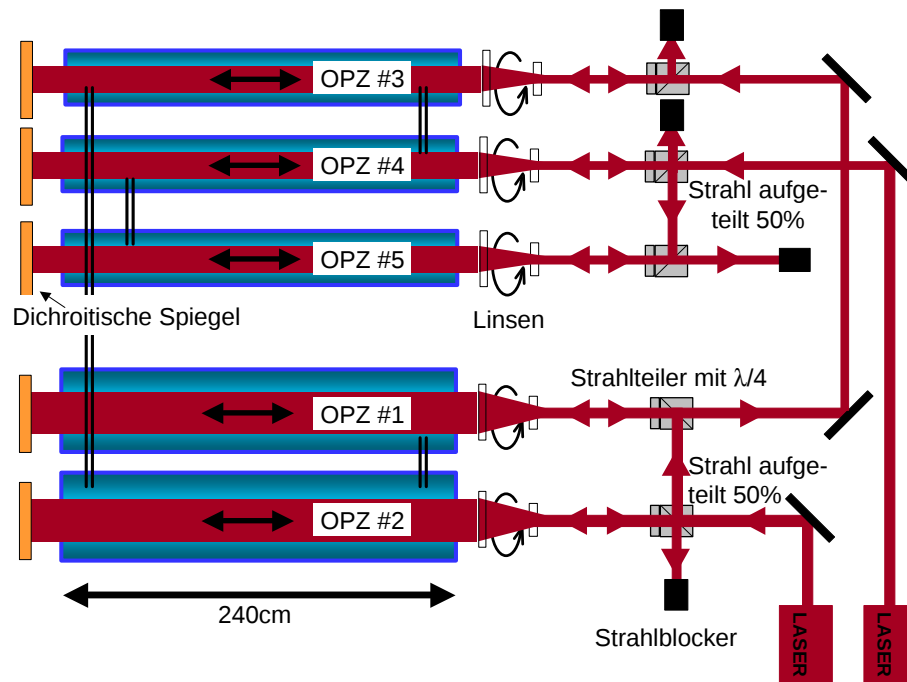


Abbildung 7.2: Strahlführung im Bereich der optischen Pumpzellen.

eingekoppelt. Das Licht eines Lasers wird vor der Pumpzelle #2 mit einem Strahlteilerwürfel in zwei gleich intensive Strahlen aufgesplittet. Dabei durchleuchtet ein Teilstrahl Zelle #2, während der andere Strahl nacheinander die Zellen #1 und #3 durchläuft. Vor der Pumpzelle #4 wird das Licht des zweiten Lasers gleichmäßig aufgeteilt, wobei ein Strahl in Zelle #4 und der andere in Zelle #5 eingekoppelt wird.

Die Strahlteilerwürfel dienen nicht nur zum Aufspalten des Lichts, sondern polarisieren dieses auch linear. Anschließend wird es durch eine angeklebte $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte zirkular polarisiert und in einem Teleskop (Linsen mit den Brennweiten $f_1 = 330$ mm, $f_2 = 60$ mm bei OPZ #1 und #2 sowie $f_2 = 75$ mm bei OPZ #3, #4 und #5) auf die jeweilige Zellengröße angepasst. Nach Reflexion an einem dichroitischen Spiegel läuft das Licht erneut durch die Zelle und trifft auf das $\lambda/4$ -Element. Dadurch wird die Polarisationsrichtung um 90° gedreht und der Strahl im Strahlteilerwürfel seitlich abgelenkt.

Tabelle (7.1) zeigt beispielhaft für die einzelnen Pumpzellen die Gleichgewichtspolarisation sowie die erzielbaren Polarisationsgrade für eine Zykluszeit von 20 s bzw. 30 s. Für die Messung wurde in allen Zellen gleichzeitig mit jeweils etwa 6 W optisch gepumpt. In Abbildung (7.3) ist eine Polarisationskurve dargestellt, die hinter der fünften optischen Pumpzelle aufgenommen wurde. Die Gleichgewichtspolarisation beträgt in diesem Fall 83%²⁾. Nach 33 s sind 70% erreicht. Damit ist gezeigt, dass eine hohe Polarisation auch in

2) Der zeitliche Abstand zwischen den Messungen in Abbildung (7.3) und Tabelle (7.1) beträgt mehrere Monate. Daher sind die Gleichgewichtspolarisationen für Zelle #5 nicht identisch.

Zelle	Gleichgewicht	20 s Zyklus	30 s Zyklus
1	72%	63%	66%
2	74%	64%	65%
3	79%	73%	76%
4	79%	74%	76%
5	81%	77%	79%

Tabelle 7.1: Gemessene Polarisationsgrade in den Pumpzellen im Gleichgewicht und im laufenden Betrieb bei einer Zykluszeit von 20 s bzw. 30 s. ($p = 0.6$ mbar, einfallende Laserleistung etwa 6 W pro Zelle).

einem großen Pumpvolumen in kurzer Zeit aufgebaut werden kann.

7.3 Aufbau der Kompressionseinheit

Bei Gasdrücken oberhalb weniger mbar funktioniert das metastabile optische Pumpen nicht mehr effizient. Da für die unterschiedlichen Anwendungen polarisiertes Gas bei einem Druck von ≥ 1 bar benötigt wird, muss das Gas um einen Faktor 1000 oder mehr unter Erhaltung der Kernmagnetisierung komprimiert werden. Dies geschieht mit einem einstufigen Kolbenkompressor. Um die Polarisationsverluste während der Kompression zu minimieren, werden nur unmagnetische Materialien benutzt. Außerdem muss der Teil des Kompressionsvolumens, der durch den Kolben beim Vorfahren nicht verdrängt werden kann, so klein wie möglich sein. Das in diesem Totvolumen befindliche Gas relaxiert aufgrund des ungünstigen Oberflächen/Volumen-Verhältnisses schnell und vermischt sich beim nächsten Pumpzyklus mit dem neu angesaugten, hochpolarisierten Gas (Totvolumen $< 0.1\%$). Für detailliertere Angaben sei auf die Dissertation von M. Ebert verwiesen [Ebe00].

Die Baulänge des Kompressors wird durch den im Kolben integrierten Antrieb minimiert. Abbildung (7.4) zeigt eine Skizze des Kompressors. Um Target- bzw. Speicherzellen mit bis zu 10 bar zu befüllen, muss der Kolben bei einem Durchmesser von 14 cm eine maximale Kraft von 15.4 kN aufbringen. Um diese Kraft bei der kompakten Bauweise erzeugen zu können, wird eine Ölhydraulikanalge eingesetzt. Dieses Aggregat erlaubt einen Öldruck von bis zu 260 bar bei einem Fluss von 48 l pro Minute. Das Öl wird vom Aggregat durch die Öffnung A in das Volumen V_1 gepresst, wobei sich der Kolben auf den Zylinderkopf zubewegt. Gleichzeitig fließt Öl aus dem Volumen V_2 zurück in das Aggregat. Beim Komprimieren in die Speicherzelle wird ein typischer Öldruck für das Vorfahren des Kolbens von etwa 80 bar eingestellt. Dabei bewegt sich der Kolben mit einer Geschwindigkeit von ca. 0.3 m/s. Beim Zurückfahren des Kolbens wird das Öl vom Hydraulikaggregat durch die Öffnung B in das Volumen V_2 gepumpt und das Öl aus V_1 fließt zurück in das Aggregat. Hierbei muss nur die Reibungskraft der Dichtringe überwunden werden.

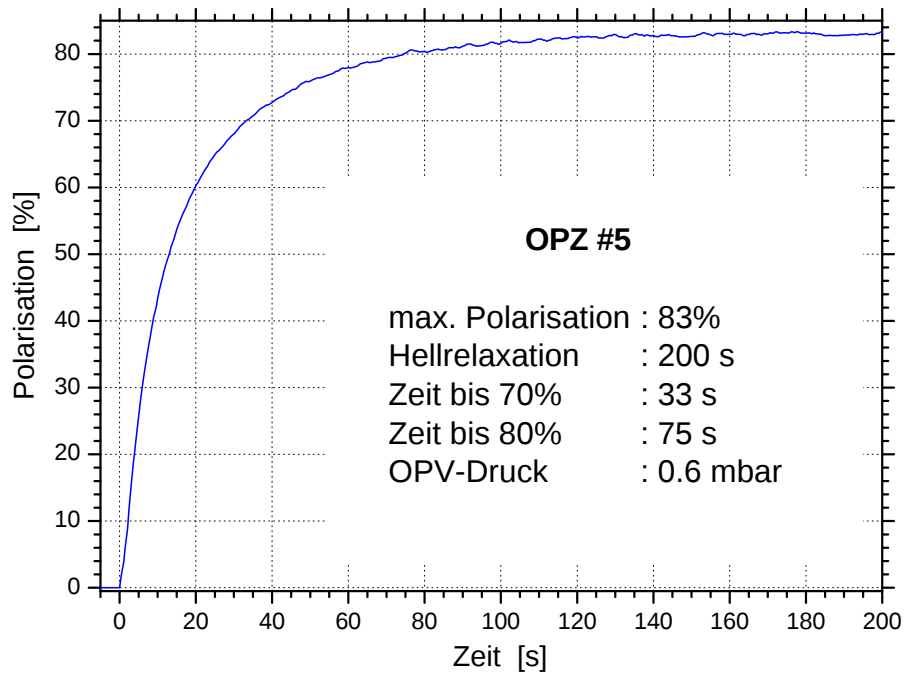


Abbildung 7.3: Zeitlicher Verlauf der Polarisation in der optischen Pumpzelle #5. Es wurden sämtliche Zellen auf der C_8 -Resonanz gepumpt (einfallende Laserleistung etwa 6 W pro Zelle).

Die Dichtung des Kolbens gegen den ^3He -Gasraum erfolgt mit zwei so genannten Quadringen. Sie dichten zum einen den Kompressionsraum gegen ein Zwischenvolumen und zum anderen das Zwischenvolumen gegen den Rückraum des Kolbens ab, wobei sowohl der Rückraum als auch das Zwischenvolumen ständig evakuiert werden. Messungen zeigen, dass die Kompression ohne signifikanten Polarisationsverlust ($< 2\%$) geschieht [Sch04].

7.4 Bestimmung der Leistungsdaten des Polarisators

Wie zu Beginn des Kapitels bereits erwähnt, werden häufig größere Mengen hochpolarisiertes Gas benötigt. Die Anforderungen an den Polarisator sind daher neben einem geringen Polarisationsverlust bei der mechanischen Kompression auch ein möglichst hoher Gasfluss.

Der Fluss f ist in Gleichung (7.1) definiert durch die Gasmenge, die pro Zeiteinheit den Kompressor durchströmt. Mit einem Druck von $p_{OPV} = 1$ mbar, einer Zykluszeit von $\tau_{zyklus} = 30$ s und einem Kompressorvolumen von $V_K = 15$ l ergibt sich beispielsweise ein Fluss von 1.8 bar·l/h. Da der Kompressor mit jedem Kolbenhub etwa den Inhalt der Zellen #5, #4 und #3 ansaugt, wird im Folgenden als Polarisationswert das arithmetische Mittel der Polarisation aus diesen Pumpzellen benutzt.

Die Gesamtleistungsfähigkeit der Apparatur ergibt sich aus der maximal erreichbaren Pola-

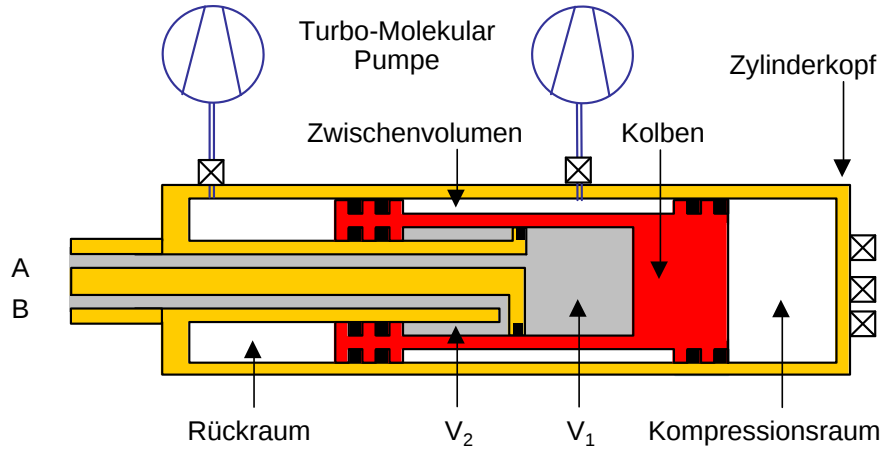


Abbildung 7.4: Schematische Abbildung des Kompressors. Die Außenbaulänge beträgt etwa 2 m, der Kolbenhub etwa 1 m.

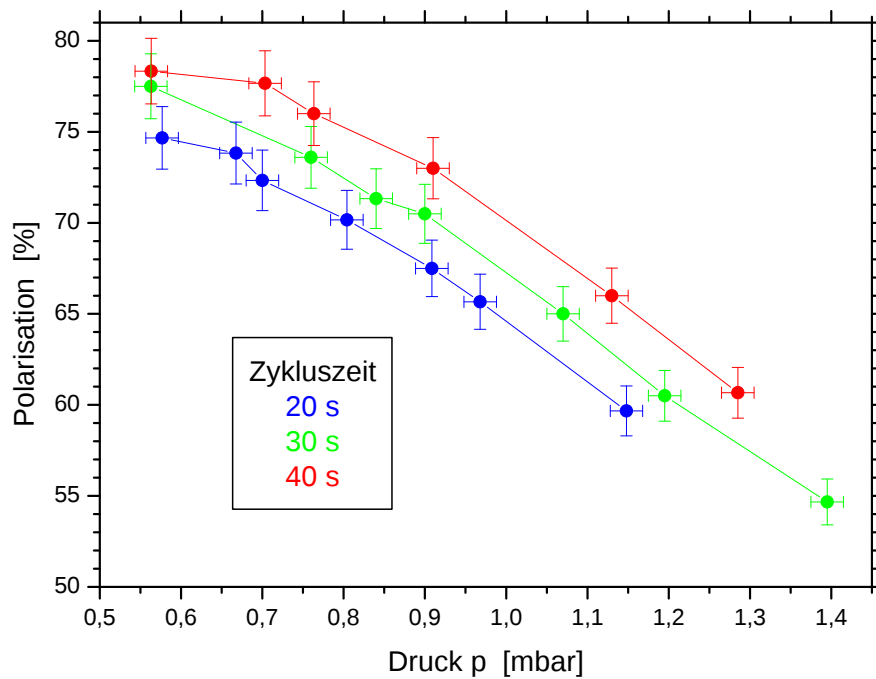


Abbildung 7.5: Über die Pumpzellen #3, #4 und #5 gemittelte Polarisation in Abhängigkeit des Drucks und der Zykluszeit.

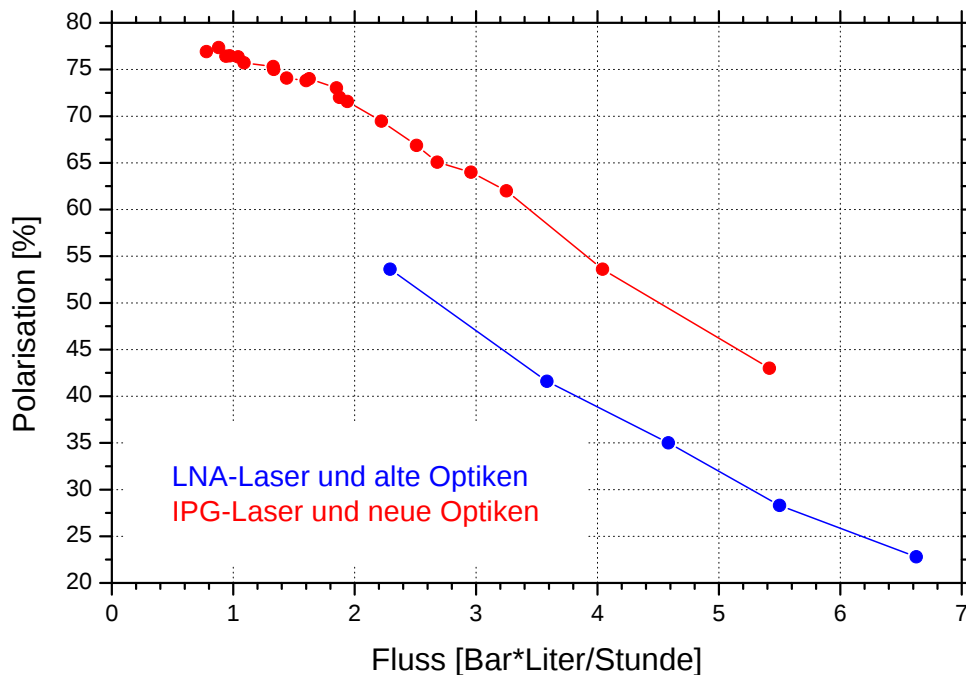


Abbildung 7.6: Erreichbare ^3He -Polarisation in Abhängigkeit vom eingestellten Gasfluss. Dargestellt sind die optimalen Werte aus Druck und Zykluszeit vor und nach Verbesserungen der Optiken und des Lasersystems.

risation bei einem durch den Druck und die Zykluszeit vorgegebenen Gasfluss. Messungen der Polarisation in Abhängigkeit des Drucks und der Zykluszeit sind in Abbildung (7.5) illustriert. Wie erwartet erreicht man bei einer langen Aufpolarisationszeit - also einer großen Zykluszeit - bei vergleichbarem Druck die höchste Kernspinpolarisation. Die Fehlerangaben der Polarisation sind systematischer Natur. Sie resultieren aus der Ungenauigkeit des Druckeichfaktors. In der Abszisse ergibt sich der Fehler des Drucks dadurch, dass jeder einzelne Messpunkt eine Mittelung von mehreren Zyklen ist, und der Druck während dieser Zeit schwankt. Abbildung (7.5) zeigt bei Drücken im optischen Pumpvolumen von ≥ 0.6 mbar ein weitgehend lineares Verhalten. Unterhalb dieses Wertes ist ein Knick zu erkennen. Offensichtlich ist in diesem Regime keine Steigerung der Polarisation mehr möglich.

In Abbildung (7.6) ist schließlich die erreichbare ^3He -Polarisation in Abhängigkeit vom eingestellten Gasfluss für die optimalen Werte aus Druck und Zykluszeit dargestellt. Die in dieser Dissertation durchgeführten Verbesserungen am Optiksystem führten zu einer deutlichen Leistungssteigerung des Polarisators. Konnte zu Beginn des Jahres 2001 eine maximale Polarisation von knapp 55% erreicht werden, so sind heute Kernspinpolarisationen von bis zu 75% im Betrieb möglich. Auch bei größeren Produktionsraten liegen die Polarisationsgrade um 20 Prozentpunkte über den früheren Werten.

Zur Überprüfung der Daten wurde ^3He -Gas höchster Kernspinpolarisation in ein Speichergefäß gefüllt und zum Mainzer Forschungsreaktor transportiert, um den Polarisationsgrad zusätzlich mithilfe der Neutronenabsorption zu bestimmen. In den Pumpzellen #3, #4 und #5 betrug die mit optischen Verfahren gemessene mittlere Kernspinpolarisation $76 \pm 2\%$, während die Untersuchung am Neutronenreaktor einen Wert von $72.7 \pm 0.7\%$ ergab. Berücksichtigt man Polarisationsverluste durch Kompression (ca. 1% relativ) und die einige Stunden andauernde Lagerung des Gases, dann stimmt die in den optischen Pumpzellen gemessene Polarisation sehr gut mit der Polarisation am Neutronenstrahl überein. Dies demonstriert die erfolgreiche Realisierung des Konzepts einer zentralen Produktionseinheit von ^3He mit anschließender Lieferung an die unterschiedlichen Anwender.

8 Schlusdiskussion und Ausblick

8.1 Der Status quo

Die Kombination von leistungsstarken, an das metastabile optische Pumpen angepassten Lasern sowie die systematische Optimierung der optischen Komponenten setzte mit einer gemessenen Kernspinpolarisation von $91 \pm 2\%$ neue Maßstäbe.

Seit 2001 sind derartige Faserlaser zu einem vergleichbar günstigen Preis kommerziell erhältlich. Deshalb wurde eine bereits begonnene Eigenentwicklung eines Lasersystems in Kooperation mit der Universität Jena nicht zu Ende geführt, obgleich erste Experimente vielversprechend verliefen: In einem Laboraufbau konnten 36 W resonante Ausgangsleistung erzeugt werden. Untersuchungen in dieser Arbeit demonstrieren, dass mit den beiden 15 W-Lasern der Firma IPG einerseits eine (mehr als) ausreichende Laserleistung zur Verfügung steht und andererseits das spektrale Profil gut an die Bedingungen des metastabilen optischen Pumpens angepasst ist. Somit kann das seit Beginn der sechziger Jahre bestehende Problem geeigneter Lichtquellen als gelöst gelten.

Das in Kapitel 2 beschriebene Modell zur Dynamik der geschwindigkeitsverändernden Stöße sowie die neu entwickelte Methode zur Bestimmung der mittleren Photonen-Absorptionsrate erweiterte das bis dato existierende Modell des optischen Pumpens und führte zu einer experimentellen Übereinstimmung auch bei hohen Laserleistungsdichten. Damit konnte erstmalig das gemessene Absorptionsverhalten eines schmalbandigen Lasers korrekt beschrieben werden.

Zudem stimmen die an abgeschlossenen Pumpzellen gemessenen extrem hohen Polarisationswerte mit theoretischen Vorhersagen überein, sofern der Druck im optischen Pumpvolumen geringer als 1 mbar ist und das ^3He nicht durch Fremdgase verunreinigt ist. Bei derartigen Pumpzellen ist die gemessene Abhängigkeit der Polarisation von Laserleistung, Metastabilendichte und falscher Zirkularkomponente mit der Theorie kompatibel.

Mit der Implementierung neuer Optiken und des neuen Lasersystems am Mainzer Polarisator konnte die Leistungscharakteristik entscheidend verbessert werden. So wurde die erreichbare Polarisation bei identischer Produktionsrate um 20 Prozentpunkte gesteigert. Zurzeit sind maximale Polarisationsgrade von mehr als 75% (gemittelt über die Pumpzellen #3, #4 und #5) im optischen Pumpvolumen erreichbar. Eine am Mainzer Triga-Reaktor mittels Neutronenabsorption durchgeführte Polarisationsbestimmung ergab einen Wert von $72.7 \pm 0.7\%$. Dies verdeutlicht die geringen Verluste infolge der Gaskompression, des Transports und einer Lagerung über mehrere Stunden. Die Erzeugung von 10 bar·liter zu 50% kernspinpolarisiertem ^3He -Gas dauerte zu Beginn dieser Dissertation noch fast vier Stunden. Inzwischen kann diese Gasmenge mit gleichem Polarisationsgrad bereits nach zwei Stunden bereitgestellt werden. Somit wurde die Produktionsrate des Polarisators verdoppelt.

Mit den vorgestellten Verbesserungen dürfte die Nutzung eines Spinfilters für nieder-energetische Neutronen an Bedeutung gewinnen. Die hohen Polarisationsgrade steigern außerdem die Effizienz von ^3He -Targets in der kernphysikalischen Anwendung, da die zum Erreichen eines bestimmten statistischen Fehlers benötigte Messzeit umgekehrt proportional zur Polarisation ist. Schließlich können für medizinische Zwecke große Gas-mengen mit hoher Polarisation hergestellt werden, was insbesondere für die funktionelle ^3He -Magnetresonanztomografie von Vorteil ist.

Trotz dieser Verbesserungen existiert ein weiteres Optimierungspotenzial. So liegt die Maximalpolarisation im optischen Pumpvolumen des Polarisators unter den Werten, die an abgeschlossenen Pumpzellen gemessen wurden. Im nächsten Unterkapitel werden Möglichkeiten erörtert, wie sich die Polarisation über den jetzigen Stand hinaus steigern lässt.

Die Untersuchung des Polarisationsverhaltens bei Zellendrücken oberhalb von 1 mbar sowie bei (schwach) verunreinigten ^3He -Pumpzellen offenbarte eine signifikante Diskrepanz zwischen Experiment und Theorie, die sich mit dem im zweiten Kapitel diskutierten Modell des optischen Pumpens nicht erklären lässt. Um die möglichen Ursachen analysieren zu können, werden im übernächsten Unterabschnitt einige Vorschläge unterbreitet.

8.2 Verbesserungen am Polarisator

Die in dieser Arbeit durchgeführten Analysen haben gezeigt, dass keine Optimierungs-notwendigkeiten mehr hinsichtlich des Lasersystems und der verwendeten Optiken bestehen.

Allerdings ist die Relaxationszeit der Kernspinpolarisation in den optischen Pumpzellen am Polarisator geringer als in den abgeschlossenen Testzellen, weil die Magnetfeldhomogenität beim Polarisator schlechter ist. Zur Erhöhung der Feldhomogenität könnte man versuchen, magnetische Komponenten, wie beispielsweise Drucksensoren, in größerer Entfernung zum Pumpvolumen zu platzieren. Die Neukonstruktion eines homogenen Führungsfeldes wäre sehr aufwändig und ist in der Praxis kaum realisierbar. Erfolgversprechend ist dagegen der Austausch eines nicht richtig schließenden Ventils zwischen dem Reinigungs- und dem Pumpvolumen. Weil die Polarisation innerhalb des Reinigungsvolumens schnell zerstört wird, können in der optischen Pumpzelle #1 nur deutlich geringere Gleichgewichtspolarisationen gemessen werden als in den diffusiv entkoppelten Zellen #3, #4 und #5. Eine Behebung dieses Problems hätte einen Anstieg der Maximalpolarisation in den ersten beiden Zellen zur Folge und würde sich positiv auf die Polarisation der restlichen Zellen auswirken.

Neben einer längeren Relaxationszeit wird eine weitere Verbesserung der Gasreinheit zu einer Erhöhung der Polarisationswerte führen, weil dann die Metastabilendichte bei gleicher

Relaxationszeit größer ist. Inwiefern man die Gasreinheit noch steigern kann, ist zur Zeit jedoch noch ungeklärt. Die Hauptursache für die Gasverschmutzung dürfte in der Rückdiffusion aus dem Kompressorraum begründet liegen. Zwar ist an der betreffenden Stelle bereits ein Titan-Sublimations-Getter eingebaut; dessen Reinigungspotential ist allerdings beschränkt. Alternativ könnte man mit einem Kaltkopf Fremdgase einfrieren, wobei die Auswirkungen auf die Polarisierung bisher ungeklärt sind.

8.3 Untersuchungen des metastabilen Pumpprozesses

Um die Abweichungen zwischen Theorie und Experiment bei höheren Drücken und Verunreinigungen erklären zu können, müssen einige Aspekte des optischen Pumpprozesses genauer studiert werden.

Bei der theoretischen Beschreibung wird die Summe der Besetzungsdichten aus dem 2^3S - und dem 2^3P -Zustand als konstant angesehen. Die bisherigen Analysen deuten jedoch darauf hin, dass diese Annahme nicht erfüllt ist. Vermutlich verändert sich das Produkt aus Metastabilendichte und Relaxationszeit während des Einstrahlens von resonantem Laserlicht. Daher erscheint es angebracht, die Besetzungsdichten der 2^3S - und der 2^3P -Niveaus in Abhängigkeit der eingestrahnten Laserleistung explizit zu messen. Beide Zustandsdichten könnten jeweils aus der absorbierten Leistung eines geeigneten Probelasers ermittelt werden (2^3P - 3^3S : 706.5 nm; 2^3S - 2^3P : 1083 nm). Außerdem ließen sich mit einer derartigen Untersuchung die aus den sechziger Jahren stammenden Werte für die Wirkungsquerschnitte des collisional mixing überprüfen, indem die absorbierte Leistung von sämtlichen 2^3P - 3^3S -Hyperfeinübergängen bestimmt wird.

Falls die Gesamtzahl der Atome im 2^3S - und 2^3P -Zustand tatsächlich von der Laserleistung abhängen sollte, könnte dies aus so genannten Dreikörperstößen resultieren. Hierbei stößt ein angeregtes ^3He -Atom im 2^3S - bzw. 2^3P -Zustand mit zwei ^3He -Grundzustandsatomen, wobei die Bildungsrate quadratisch vom Druck abhängt. In dieser Reaktion entsteht ein stabiles, angeregtes Heliummolekül (Excimer), das für den optischen Pumpprozess nicht mehr zur Verfügung steht. Die Korrelation von Besetzungsdichte und Laserleistung entsteht, weil der Wirkungsquerschnitt zur Excimer-Bildung der 2^3P -Atome etwa hundertmal größer ist als der Wirkungsquerschnitt der metastabilen Atome und die Population im 2^3P -Niveau fast ausschließlich durch die Laserintensität bestimmt wird. Inwieweit diese Erklärungsansätze tatsächlich gültig sind, müssen zukünftige Experimente zeigen.

In der laufenden Dissertation von M. Batz wird ein anderer interessanter Aspekt des metastabilen optischen Pumpens untersucht: Welchen Einfluss hat ein relativ starkes Magnetfeld von einigen 100 G auf den Pumpprozess und die erzielbare Kernspinpolarisation? Die Motivation liegt im unerwünschten Polarisationsverlust, der sich aus der Wiederanregung bereits kernpolarisierter Atome ergibt. Das Fluoreszenzlicht, das infolge der Hyperfeinkopplung zirkular polarisiert ist, trägt wesentlich zur Relaxation in der Gasentladung bei. Steigert man jedoch das Magnetfeld auf einige 100 G, entkoppeln die Kern- und Hüllendrehimpulse der

angeregten Zustände ($A_{HFS} \sim \mathcal{O}(100 \text{ MHz})$). Damit ist das Fluoreszenzlicht nahezu unpolarisiert und hat keinen Effekt auf die Kernspinpolarisation. Da die Hyperfeinkopplung im 2^3S -Zustand rund eine Größenordnung stärker ist als in allen anderen Niveaus, sollte bei solchen Magnetfeldern weiterhin eine ausreichende Pumpeffizienz zur Erzeugung von kernspinpolarisiertem ^3He vorhanden sein. Letztlich wird ein Wert für die Magnetfeldstärke gesucht, bei welcher der Pumpeffizienz-Verlust von der Erhöhung der Relaxationszeit übertroffen wird.

Die Ausführungen in dieser Arbeit demonstrieren, dass auch nach über vierzig Jahren Forschung das Thema des optischen Pumpens von ^3He keineswegs abgeschlossen ist. Hierbei dienten die durchgeführten Untersuchungen und die daraus entwickelten Verbesserungen nicht nur der Jagd nach neuen „Polarisationsrekorden“. Vielmehr können erst durch die erfolgreiche Herstellung großer Mengen an hochpolarisiertem ^3He zahlreiche Anwendungen in der Kern- und Neutronenphysik, der Materialforschung, der Biophysik oder der medizinischen Magnetresonanztomografie realisiert werden.

A Metastabile Austauschstöße

In diesem Abschnitt werden die relativen Übergangswahrscheinlichkeiten durch metastabile Austauschstöße anhand eines Beispiels berechnet. Um die Wellenfunktion des $\text{He}^*\text{-He}$ -Systems zu bestimmen, werden die ungestörten Wellenfunktionen für den Grundzustand sowie den metastabilen Zustand benutzt. Außerdem soll in guter Näherung die Hyperfein-Kopplung vernachlässigt werden, sodass die Wellenfunktionen als Produkt einer Radialfunktion $|\zeta\rangle$, einer Kernspinfunktion $|I, m_I\rangle$ und einer Hüllenspinfunktion $|J, m_J\rangle$ separiert werden kann:

$$\Psi(\zeta, I, J, F, m_F) = |\zeta\rangle |I, m_I\rangle |J, m_J\rangle \quad (\text{A.1})$$

Die beiden stoßenden Atome sollen mit D und E bezeichnet werden. Dabei wird zur Zustandsbeschreibung eines gekennzeichneten Atoms die folgende Notation verwendet: Die radiale Wellenfunktion wird mit einem großen lateinischen Buchstaben (D, E), die Kernspinfunktion mit einem kleinen lateinischen Buchstaben (d, e) sowie die Hüllenspinfunktion mit einem kleinen griechischen Buchstaben (δ , ε) indiziert. Somit erhält man beispielsweise für Atom D:

$$\Psi_D(\zeta, I, J, F, m_F) = |\zeta_D\rangle |d, I, m_I\rangle |\delta, J, m_J\rangle$$

Befindet sich das Atom D im Grundzustand $|G_1\rangle$ bzw. $|G_2\rangle$, so wird dies folgendermaßen beschrieben:

$$\begin{aligned} |D(G_1)\rangle &\equiv \Psi_D(\zeta, 1/2, 0, 1/2, +1/2) = |\zeta_D\rangle |d, 1/2, +1/2\rangle |\delta, 0, 0\rangle \\ |D(G_2)\rangle &\equiv \Psi_D(\zeta, 1/2, 0, 1/2, -1/2) = |\zeta_D\rangle |d, 1/2, -1/2\rangle |\delta, 0, 0\rangle \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

Ist zum Beispiel der Zustand $|G_1\rangle$ vom Atom E besetzt, wird dies durch die äquivalente Schreibweise $|E(G_1)\rangle$ ausgedrückt. Ein mit E gekennzeichnetes metastabiles Atom kann

sechs Zustände einnehmen:

$$\begin{aligned}
 |E(A_1)\rangle &\equiv \Psi_E(\zeta, 1/2, 1, 3/2, +3/2) = |\zeta_E\rangle |e, 1/2, +1/2\rangle |\varepsilon, 1, +1\rangle \\
 |E(A_2)\rangle &\equiv \Psi_E(\zeta, 1/2, 1, 3/2, +1/2) \\
 &= |\zeta_E\rangle \left[\sqrt{\frac{1}{3}} |e, 1/2, -1/2\rangle |\varepsilon, 1, +1\rangle + \sqrt{\frac{2}{3}} |e, 1/2, +1/2\rangle |\varepsilon, 1, 0\rangle \right] \\
 |E(A_3)\rangle &\equiv \Psi_E(\zeta, 1/2, 1, 3/2, -1/2) \\
 &= |\zeta_E\rangle \left[\sqrt{\frac{2}{3}} |e, 1/2, -1/2\rangle |\varepsilon, 1, 0\rangle + \sqrt{\frac{1}{3}} |e, 1/2, +1/2\rangle |\varepsilon, 1, -1\rangle \right] \\
 |E(A_4)\rangle &\equiv \Psi_E(\zeta, 1/2, 1, 3/2, -3/2) = |\zeta_E\rangle |e, 1/2, -1/2\rangle |\varepsilon, 1, -1\rangle \\
 |E(A_5)\rangle &\equiv \Psi_E(\zeta, 1/2, 1, 1/2, +1/2) \\
 &= |\zeta_E\rangle \left[\sqrt{\frac{2}{3}} |e, 1/2, -1/2\rangle |\varepsilon, 1, +1\rangle - \sqrt{\frac{1}{3}} |e, 1/2, +1/2\rangle |\varepsilon, 1, 0\rangle \right] \\
 |E(A_6)\rangle &\equiv \Psi_E(\zeta, 1/2, 1, 1/2, -1/2) \\
 &= |\zeta_E\rangle \left[\sqrt{\frac{1}{3}} |e, 1/2, -1/2\rangle |\varepsilon, 1, 0\rangle - \sqrt{\frac{2}{3}} |e, 1/2, +1/2\rangle |\varepsilon, 1, -1\rangle \right]
 \end{aligned} \tag{A.3}$$

Falls es zu einem metastabilen Austauschstoß kommt, bildet sich ein Molekül, welches durch eine symmetrische und antisymmetrische Linearkombination der atomaren Zustände beschrieben wird. Unmittelbar zu Beginn des Stoßes $t = t_0$ hat sich zwischen dem symmetrischen und antisymmetrischen Zustand noch keine Phase gebildet. Kollidieren zum Beispiel ein Atom im Zustand $|G_1\rangle$ und eines im Zustand $|A_2\rangle$, so gilt mit Ergänzung einer Null:

$$\begin{aligned}
 \Psi_i &= |D(G_1), t_0\rangle |E(A_2), t_0\rangle \\
 &= \frac{1}{2} \sqrt{\frac{1}{3}} |\zeta_D\rangle |\zeta_E\rangle |d, 1/2, +1/2\rangle |e, 1/2, -1/2\rangle \\
 &\quad \cdot [(|\delta, 0, 0\rangle |\varepsilon, 1, +1\rangle + |\varepsilon, 0, 0\rangle |\delta, 1, +1\rangle) \\
 &\quad + (|\delta, 0, 0\rangle |\varepsilon, 1, +1\rangle - |\varepsilon, 0, 0\rangle |\delta, 1, +1\rangle)] \\
 &+ \frac{1}{2} \sqrt{\frac{2}{3}} |\zeta_D\rangle |\zeta_E\rangle |d, 1/2, +1/2\rangle |e, 1/2, +1/2\rangle \\
 &\quad \cdot [(|\delta, 0, 0\rangle |\varepsilon, 1, 0\rangle + |\varepsilon, 0, 0\rangle |\delta, 1, 0\rangle) \\
 &\quad + (|\delta, 0, 0\rangle |\varepsilon, 1, 0\rangle - |\varepsilon, 0, 0\rangle |\delta, 1, 0\rangle)]
 \end{aligned} \tag{A.4}$$

Während des Stoßes entsteht aufgrund der unterschiedlichen Potentiale eine Phase zwischen dem symmetrischen und antisymmetrischen Zustand:

$$\begin{aligned}
\Psi_f &= |D(G_1), t\rangle |E(A_2), t\rangle \\
&= \frac{1}{2} \sqrt{\frac{1}{3}} |\zeta_D\rangle |\zeta_E\rangle |d, 1/2, +1/2\rangle |e, 1/2, -1/2\rangle \\
&\quad \cdot [(|\delta, 0, 0\rangle |\varepsilon, 1, +1\rangle + |\varepsilon, 0, 0\rangle |\delta, 1, +1\rangle) \\
&\quad + e^{i\phi} (|\delta, 0, 0\rangle |\varepsilon, 1, +1\rangle - |\varepsilon, 0, 0\rangle |\delta, 1, +1\rangle)] \\
&\quad + \frac{1}{2} \sqrt{\frac{2}{3}} |\zeta_D\rangle |\zeta_E\rangle |d, 1/2, +1/2\rangle |e, 1/2, +1/2\rangle \\
&\quad \cdot [(|\delta, 0, 0\rangle |\varepsilon, 1, 0\rangle + |\varepsilon, 0, 0\rangle |\delta, 1, 0\rangle) \\
&\quad + e^{i\phi} (|\delta, 0, 0\rangle |\varepsilon, 1, 0\rangle - |\varepsilon, 0, 0\rangle |\delta, 1, 0\rangle)]
\end{aligned} \tag{A.5}$$

Wenn die obige Gleichung (A.5) umgeformt und eine Null der Form

$$0 = |\zeta_E\rangle |\zeta_D\rangle |\delta, 1, 1\rangle |d, 1/2, -1/2\rangle |\varepsilon, 0, 0\rangle |e, 1/2, +1/2\rangle \left(\frac{1 - e^{i\phi}}{3\sqrt{3}} - \frac{1 - e^{i\phi}}{3\sqrt{3}} \right) \tag{A.6}$$

addiert wird, ergibt sich nach längerer Rechnung schließlich:

$$\begin{aligned}
\Psi_f &= \frac{1 + e^{i\phi}}{2} |D(G_1)\rangle |E(A_2)\rangle + \frac{1 - e^{i\phi}}{\sqrt{12}} |E(G_2)\rangle |D(A_1)\rangle \\
&\quad + \frac{1 - e^{i\phi}}{3} |E(G_1)\rangle |D(A_2)\rangle - \frac{1 - e^{i\phi}}{\sqrt{18}} |E(G_1)\rangle |D(A_5)\rangle
\end{aligned} \tag{A.7}$$

An dieser Stelle erkennt man die Konsequenzen aus der Ununterscheidbarkeit der Atome. So enthält die Wellenfunktion Eigenfunktionen, in der sich die Atome D und E sowohl im Grund- als auch im metastabilen Zustand befinden können. Da die Phase am Ende des Stoßes auf ein Vielfaches von 2π angewachsen ist und die Lebensdauer eines Moleküls statistisch schwankt, kann man von einer Gleichverteilung der Phase von 0 bis 2π ausgehen. Dann ergeben sich die Übergangswahrscheinlichkeiten der beiden Atome vor dem Stoß in die Zustände nach der Kollision durch Mittelung über die Phase zu:

$$\begin{aligned}
|\langle \Psi_f | D(G_1) E(A_2) \rangle|^2 &= \frac{|1 + e^{i\phi}|^2}{4} = \frac{2 + 2 \cos \phi}{4} \xrightarrow{\text{average}} 9/18 \\
|\langle \Psi_f | E(G_1) D(A_2) \rangle|^2 &= \frac{|1 - e^{i\phi}|^2}{9} = \frac{2 - 2 \cos \phi}{9} \xrightarrow{\text{average}} 4/18 \\
|\langle \Psi_f | E(G_2) D(A_1) \rangle|^2 &= \frac{|1 - e^{i\phi}|^2}{12} = \frac{2 - 2 \cos \phi}{12} \xrightarrow{\text{average}} 3/18 \\
|\langle \Psi_f | E(G_1) D(A_5) \rangle|^2 &= \frac{|1 - e^{i\phi}|^2}{18} = \frac{2 - 2 \cos \phi}{18} \xrightarrow{\text{average}} 2/18
\end{aligned} \tag{A.8}$$

Diese Resultate werden zur Berechnung der Übergangsraten benötigt. Für die mittlere Stoßrate Γ gilt bei gaskinetischen Stößen, d.h. *gegenseitigen* Stößen:

$$\Gamma(n) = \frac{1}{\langle \tau(n) \rangle} = \sqrt{2} \sigma \langle v \rangle n \tag{A.9}$$

wobei σ der Wirkungsquerschnitt für einen Stoß, n die Teilchendichte und $\langle v \rangle$ die mittlere Geschwindigkeit ist. Für die Übergangsrate $R[(A_i, G_j) \rightarrow (A_k, G_l)]$ ergibt sich dann:

$$R[(A_i, G_j) \rightarrow (A_k, G_l)] = \Gamma(g_j) \cdot a_i \cdot W[(A_i, G_j) \rightarrow (A_k, G_l)] \quad (\text{A.10})$$

wo $W[(A_i, G_j) \rightarrow (A_k, G_l)]$ die Stärke der einzelnen Übergänge darstellt. Bei der Bestimmung von W muss man berücksichtigen, dass sich zu Beginn eines Stoßes sowohl das Atom D im Zustand A_2 (E im Zustand G_1) befinden kann als auch das Atom E im Zustand A_2 (D im Zustand G_1). Diese scheinbar doppelte Zählweise ist erforderlich, weil im Experiment die Atome *nicht* unterscheidbar sind.

$$\begin{aligned} W[(A_2, G_1) \rightarrow (A_2, G_1)] &= |\langle D(G_1) E(A_2) | D(G_1) E(A_2) \rangle|^2 \\ &\quad + |\langle E(G_1) D(A_2) | D(G_1) E(A_2) \rangle|^2 \\ &\quad + |\langle D(G_1) E(A_2) | E(G_1) D(A_2) \rangle|^2 \\ &\quad + |\langle E(G_1) D(A_2) | E(G_1) D(A_2) \rangle|^2 \\ &= \frac{9}{18} + \frac{4}{18} + \frac{4}{18} + \frac{9}{18} = \frac{26}{18} \\ W[(A_2, G_1) \rightarrow (A_1, G_2)] &= 2 \cdot \frac{3}{18} \\ W[(A_2, G_1) \rightarrow (A_5, G_1)] &= 2 \cdot \frac{2}{18} \end{aligned} \quad (\text{A.11})$$

In Tabelle (A.1) sind sämtliche Übergangsstärken zusammengefasst. Die zeitliche Entwicklung der metastabilen Besetzungsdichte im Zustand a_k ist dann die Differenz aus der Bildungsrate $\dot{a}_k^{build}$ und der Verlustrate $\dot{a}_k^{relax}$:

$$\begin{aligned} \dot{a}_k &= \dot{a}_k^{build} - \dot{a}_k^{relax} \\ &= \sum_{i,j,j \neq k} \Gamma(g_i) a_j W[(G_i, A_j) \rightarrow A_k] - \sum_{i,j,j \neq k} \Gamma(g_i) a_k W[(G_i, A_k) \rightarrow A_j] \end{aligned} \quad (\text{A.12})$$

Diese Gleichung soll beispielhaft für die Veränderung der Besetzungszahldichte des Zustandes A_3 näher ausgeführt werden:

$$\begin{aligned} \dot{a}_3 &= \sum_{j=1,j \neq 3}^6 a_j \cdot \{ \Gamma(g_1) W[(G_1, A_j) \rightarrow A_3] + \Gamma(g_2) W[(G_2, A_j) \rightarrow A_3] \} \\ &\quad - \sum_{j=1,j \neq 3}^6 a_3 \cdot \{ \Gamma(g_1) W[(G_1, A_3) \rightarrow A_j] + \Gamma(g_2) W[(G_2, A_3) \rightarrow A_j] \} \\ &= \left\{ \Gamma(g_1) \left[\frac{3}{9} a_4 + \frac{2}{9} a_6 \right] + \Gamma(g_2) \left[\frac{4}{9} a_2 + \frac{2}{9} a_5 + \frac{2}{9} a_6 \right] \right\} \\ &\quad - \left\{ \Gamma(g_1) \left[\frac{8}{9} a_3 \right] + \Gamma(g_2) \left[\frac{5}{9} a_3 \right] \right\} \end{aligned} \quad (\text{A.13})$$

	(G_1, A_1)	(G_1, A_2)	(G_1, A_3)	(G_1, A_4)	(G_1, A_5)	(G_1, A_6)
(G_1, A_1)	18/9					
(G_1, A_2)		13/9			2/9	
(G_1, A_3)			10/9			2/9
(G_1, A_4)				9/9		
(G_1, A_5)		2/9			10/9	
(G_1, A_6)			2/9			13/9
(G_2, A_1)		3/9			6/9	
(G_2, A_2)			4/9			2/9
(G_2, A_3)				3/9		
(G_2, A_4)						
(G_2, A_5)			2/9			1/9
(G_2, A_6)				6/9		

	(G_2, A_1)	(G_2, A_2)	(G_2, A_3)	(G_2, A_4)	(G_2, A_5)	(G_2, A_6)
(G_1, A_1)						
(G_1, A_2)	3/9					
(G_1, A_3)		4/9			2/9	
(G_1, A_4)			3/9			6/9
(G_1, A_5)	6/9					
(G_1, A_6)		2/9			1/9	
(G_2, A_1)	9/9					
(G_2, A_2)		10/9			2/9	
(G_2, A_3)			13/9			2/9
(G_2, A_4)				18/9		
(G_2, A_5)		2/9			13/9	
(G_2, A_6)			2/9			10/9

Tabelle A.1: Übergangsstärken $W[(A_i, G_j) \rightarrow (A_k, G_l)]$ für metastabile Spinaustauschstöße. Die Zustände der Teilchen vor dem Stoß sind in der jeweils obersten Zeile dargestellt. In der linken Spalte findet man die Zustände der Teilchen nach dem Stoß.

Dieser Ausdruck lässt sich weiter umformen. Einsetzen von $g_{1,2} = \frac{n_g}{2} (1 \pm P)$ (Gleichung 2.3) in Formel (A.9) ergibt:

$$\Gamma(g_i) = \Gamma(n_g) \cdot \frac{1 \pm P}{2} \quad (\text{A.14})$$

Somit erhält man schließlich:

$$\begin{aligned} \frac{\dot{a}_3}{\Gamma(n_g)} = & \left(\frac{4}{18} - \frac{4}{18} P \right) a_2 + \left(-\frac{13}{18} - \frac{3}{18} P \right) a_3 + \left(\frac{3}{18} + \frac{3}{18} P \right) a_4 \\ & + \left(\frac{2}{18} - \frac{2}{18} P \right) a_5 + \frac{4}{18} a_6 \end{aligned} \quad (\text{A.15})$$

Das gleiche Verfahren wird auch zur Bestimmung der Ratengleichungen des Grundzustandes und somit der Kernspinpolarisation angewandt, wobei man die Gleichung (2.3) ausnutzt:

$$\dot{g}_1 = \frac{n_g}{2} \dot{P} = \sum_{i=1}^6 \Gamma(a_i) \{g_2 W[(G_2, A_i) \rightarrow G_1] - g_1 W[(G_1, A_i) \rightarrow G_2]\} \quad (\text{A.16})$$

Mit der Beziehung

$$\Gamma(a_i) = \Gamma(n_m) \cdot \frac{a_i}{n_m} \quad (\text{A.17})$$

folgt für die zeitliche Entwicklung der Polarisation P :

$$\begin{aligned} \dot{P} &= \frac{\Gamma(n_m)}{n_m} \sum_{i=1}^6 a_i \{(1 - P) W[(G_2, A_i) \rightarrow G_1] - (1 + P) W[(G_1, A_i) \rightarrow G_2]\} \\ &= \frac{\Gamma(n_m)}{n_m} \left\{ \frac{1}{3} (3a_1 + a_2 - a_3 - 3a_4 - a_5 + a_6) - P \sum_{i=1}^6 a_i \right\} \\ &= \Gamma(n_m) \left\{ \frac{1}{3 n_m} (3a_1 + a_2 - a_3 - 3a_4 - a_5 + a_6) - P \right\} \end{aligned} \quad (\text{A.18})$$

Bezeichne

$$\frac{1}{\tau_e} \equiv \Gamma(n_g) = \sqrt{2} \sigma_{me} \langle v \rangle n_g, \quad (\text{A.19})$$

$$\frac{1}{T_e} \equiv \Gamma(n_m) = \sqrt{2} \sigma_{me} \langle v \rangle n_m, \quad (\text{A.20})$$

so erhält man schließlich die Ratengleichungen der metastabilen Austauschstöße:

$$\begin{aligned}
 \dot{a}_i &= \frac{1}{\tau_e} \sum_l [E_{il} + F_{il} P] a_l \\
 \dot{P} &= \frac{1}{T_e} [-P + \langle I \rangle_m] \quad \text{mit} \quad \langle I \rangle_m = \frac{1}{n_m} \sum_i \lambda_i a_i \\
 E &= \frac{1}{18} \begin{pmatrix} -9 & 3 & 0 & 0 & 6 & 0 \\ 3 & -13 & 4 & 0 & 4 & 2 \\ 0 & 4 & -13 & 3 & 2 & 4 \\ 0 & 0 & 3 & -9 & 0 & 6 \\ 6 & 4 & 2 & 0 & -13 & 1 \\ 0 & 2 & 4 & 6 & 1 & -13 \end{pmatrix} \\
 F &= \frac{1}{18} \begin{pmatrix} 9 & 3 & 0 & 0 & 6 & 0 \\ -3 & 3 & 4 & 0 & 0 & 2 \\ 0 & -4 & -3 & 3 & -2 & 0 \\ 0 & 0 & -3 & -9 & 0 & -6 \\ -6 & 0 & 2 & 0 & -3 & 1 \\ 0 & -2 & 0 & 6 & -1 & 3 \end{pmatrix} \\
 \lambda &= \frac{1}{3} \begin{pmatrix} 3 & 1 & -1 & -3 & -1 & 1 \end{pmatrix}
 \end{aligned} \tag{A.21}$$

B Abschätzung der dipolaren Relaxation

Mit einem sehr einfachen Ansatz lässt sich die Größenordnung der dipolaren Relaxationszeit motivieren. Die dipolare Wechselwirkung V^{Dipol} wird durch die Kopplung magnetischer Momente verursacht:

$$V^{Dipol} \propto \text{const.} \cdot \frac{\mu_1 \cdot \mu_2}{r^3} \quad (\text{B.1})$$

In dieser Gleichung beschreiben μ_i die magnetischen Momente und r den Abstand der beteiligten Stoßpartner. Nach Fermis Goldener Regel ist die Übergangswahrscheinlichkeit W für eine Veränderung des Spins pro Stoß gegeben durch:

$$W(\uparrow; \downarrow) \approx \frac{4\pi^2}{\hbar^2} \cdot \rho \cdot |\langle \uparrow | V^{Dipol} | \downarrow \rangle|^2 \quad (\rho : \text{Zustandsdichte}) \quad (\text{B.2})$$

Dann ist die Übergangsrate Γ_1^{Dipol} bestimmt durch die Übergangswahrscheinlichkeit dividiert durch die mittlere Zeit τ_c zwischen zwei Stößen:

$$\Gamma_1^{Dipol} = \frac{W(\uparrow; \downarrow)}{\tau_c} \quad \Rightarrow \quad T_1^{Dipol} = \frac{1}{\Gamma_1^{Dipol}} \propto \frac{\tau_c}{\mu_1^2 \cdot \mu_2^2} \quad (\text{B.3})$$

Anhand Gleichung (B.3) ist der große Unterschied der Relaxationszeiten von kernspinpolarisierten Atomen wie ^3He und hüllenpolarisierten Atomen wie den Alkalimetallen ersichtlich. Bei Stößen zweier ^3He -Atome koppeln die Kernmomente der Stärke $\sim \mu_K$ miteinander, während bei Kollisionen zweier Alkali-Atome die magnetischen Momente der Hülle koppeln ($\sim \mu_B$). Da das Kernmagneton μ_K etwa 2000-mal kleiner ist als das Bohrsche Magneton μ_B , ist die dipolare Relaxationszeit von Alkali-Atomen um etwa den Faktor $(\mu_B/\mu_K)^4 \approx 10^{13}$ geringer als die von ausschließlich kernspinpolarisierten Atomen.

Literaturverzeichnis

- [Abb03] M. Abboud, A. Sinatra, G. Tastevin, P.-J. Nacher; High nuclear polarization of helium-3 at low and high pressure by metastability exchange optical pumping at 1.5 Tesla; arXiv:physics/0307154 v1 (31. Juli 2003).
- [Alb94] M. S. Albert, G. D. Cates, B. Driehuys, W. Happer, B. Saam, C. S. Springer Jr, A. Wishnia; Biological magnetic resonance imaging using laser-polarized ^{129}Xe ; *Nature* **137** (1994) 199 – 201.
- [And59] L. W. Anderson, F. M. Pipkin, J. C. Baird Jr.; $^{14}\text{N} - ^{15}\text{N}$ hyperfine anomaly; *Phys. Rev.* **116:1** (1959) 87 – 98.
- [Ant93] P. L. Anthony, R. G. Arnold, H. R. Band et. al.; Determination of the neutron spin-structure function; *Phys. Rev. Lett.* **71:7** (1993) 959 – 962.
- [App98] S. Appelt, A. Ben-Amar Baranga, C. J. Erickson, M. V. Romalis, A. R. Young, W. Happer; Theory of spin-exchange optical pumping of ^3He and ^{129}Xe ; *Phys. Rev. A* **58:2** (1998) 1412 – 1439.
- [Aue01] M. Auerbach, D. Wandt, C. Fallnich, H. Welling, S. Unger; High-power tunable narrow line width ytterbium-doped double-clad fiber lasers; *Opt. Comm.* **195** (2001) 437 – 441.
- [Aue02] M. Auerbach, P. Adel, D. Wandt, C. Fallnich, S. Unger, S. Jetschke, H.-R. Müller; 10 W widely tunable narrow linewidth double-clad fiber ring laser; *Opt. Expr.* **10** (2002) 139 – 144.
- [Bac96] P. Bachert, L. R. Schad, M. Bock, M. V. Knopp, M. Ebert, T. Großmann, W. Heil, D. Hofmann, R. Surkau, E. W. Otten; Nuclear magnetic resonance imaging of airways in humans with use of hyperpolarized ^3He ; *Magn. Res. Med.* **36** (1996) 192 – 196.
- [Bak68] S. D. Baker, E. B. Carter, D. O. Findley, L. L. Hatfield, G. C. Phillips, N. D. Stockwell, G. K. Walters; Polarized ^3He -ion beam; *Phys. Rev. Lett.* **20** (1968) 738 – 740.
- [Bar98a] A. Ben-Amar Baranga, S. Appelt, M. V. Romalis, C. J. Erickson, A. R. Young, G. D. Cates, W. Happer; Polarization of ^3He by spin-exchange with optically pumped Rb and K vapors; *Phys. Rev. Lett.* **80** (1998) 2801 – 2804.
- [Bar98b] A. Ben-Amar Baranga, S. Appelt, C. J. Erickson, A. R. Young, W. Happer; Alkali-metal-atom polarization imaging in high-pressure optical-pumping cells; *Phys. Rev. A* **58** (1998) 2282 – 2294.
- [Bat04] M. Batz; laufende Dissertation an der Universität Mainz (2004).
- [Bea00] D. Bear, R. E. Stoner, R. L. Walsworth, V. A. Kostelecký, C. D. Lane; Limit on Lorentz and CPT violation of the neutron using a two-species noble-gas maser; *Phys. Rev. Lett.* **85** (2000) 5038 – 5041.
- [Bec92] J. Becker; Fertigstellung und Test eines Hochdruckkompressors für polarisiertes ^3He .; Diplomarbeit an der Universität Mainz (1992).

- [Ber03] J. Bermuth, P. Merle, C. Carasco et al.; The neutron charge form factor and target analysing powers from $^3\text{He}(\vec{e}, e'n)$ scattering; *Phys. Lett. B* **564** (2003) 199 – 204.
- [Bid03] C. P. Bidinosti, J. Choukeife, P.-J. Nacher, G. Tastevin; In vivo NMR of hyperpolarized ^3He in the human lung at very low magnetic fields; *J. Mag. Res.* **162** (2003) 122 – 132.
- [Big92] N. P. Bigelow, P. J. Nacher, M. Leduc; Accurate optical measurement of nuclear polarization in optically pumped ^3He gas; *J. Physique II* **2** (1992) 2159 – 2179.
- [Blo85] D. Bloch, G. Trénec, M. Leduc; Isotope shift of the $2^3S_1 - 2^3P$ transition in helium; *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **18** (1985) 1093 – 1100.
- [Blu98] W. Bludau; *Lichtwellenleiter in Sensorik und Nachrichtentechnik*; 1. Aufl. (1998); Springer-Verlag; Berlin.
- [Bor02] S. Bordaïs; Etude des amplificateurs et lasers $1\ \mu\text{m}$ de forte puissance à base de fibre double gaine dopée Ytterbium; Thèse de doctorat de l'université de Rennes I; France (2002).
- [Bou60] M. A. Bouchiat, T. R. Carver, C. M. Varnum; Nuclear polarization in ^3He gas induced by optical pumping and dipolar exchange; *Phys. Rev. Lett.* **5** (1960) 373 – 375.
- [Bou70] C. C. Bouchiat, M. A. Bouchiat; Alkali-rare-gas van der Waals molecules and ground-state relaxation processes in optical pumping; *Phys. Rev. A* **2:4** (1970) 1274 – 1285.
- [Bra94] B. H. Bransden, C. J. Joachain; *Physics of atoms and molecules*; Longman Scientific and Technical; Edition 1994.
- [Bra03] M. Braden, P. Steffens, Y. Sidis, J. Kulda, P. Bourges, S. Hayden, N. Kikugawa, Y. Maeno; Anisotropy of the incommensurate fluctuations in Sr_2RuO_4 : a study with polarized neutrons; arXiv:cond-mat/0307662 v1 (27. Juli 2003).
- [Bro52] J. Brossel, A. Kastler, J. Winter; Création optique d'une inégalité de population entre le sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental des atomes; *J. Phys. Radium* **13** (1952) 668.
- [Can94] D. Candela, M. E. Hayden, J. P. Nacher; Steady-state production of high nuclear polarization in ^3He - ^4He mixtures; *Phys. Rev. Lett.* **73** (1994) 2587 – 2590.
- [Car03] C. Carasco, J. Bermuth, P. Merle, C. Carasco et al.; Final state interaction effects in $^3\text{He}(\vec{e}, e'p)$; *Phys. Lett. B* **559** (2003) 41 – 48.
- [Cat88a] G. D. Cates, S. R. Schaefer, W. Happer; Relaxation of spins due to field inhomogeneities in gaseous samples at low magnetic fields and low pressures; *Phys. Rev. A* **37** (1988) 2877 – 2885.
- [Cat88b] G. D. Cates, D. J. White, T.-R. Chien, S. R. Schaefer, W. Happer; Spin relaxation in gases due to inhomogenous static and oscillating magnetic fields; *Phys. Rev. A* **38** (1988) 5092 – 5106.
- [Cat90] G. D. Cates, D. R. Benton, M. Gatzke, W. Happer, K. C. Hasson, N.R. Newbury; Laser production of large nuclear polarizations in frozen Xenon; *Phys. Rev. Lett.* **65** (1990) 2591 – 2594.

- [Cha00] B. Chann, I. Nelson, T. G. Walker; Frequency-narrowed external cavity diode laser array bar; *Optics Lett.* **25** (2000) 1352 – 1354.
- [Cha02] B. Chann, E. Babcock, L. W. Anderson, T. G. Walker; Measurements of ^3He spin-exchange rates; *Phys. Rev. A* **66** (2002) 032703-1 – 032703-9.
- [Cha03] B. Chann, E. Babcock, L. W. Anderson, T. G. Walker, W. C. Chen, T. B. Smith, A. K. Thompson, T. R. Gentile; Production of highly polarized ^3He using spectrally narrowed diode laser array bars; *J. Appl. Phys.* **94** (2003) 6908 – 6914.
- [Che97] S.V. Chernikov, J.R. Taylor, N.S. Platonov, V.P. Gapontsev, P.J. Nacher, G. Tastevin, M. Leduc, M.J. Barlow; 1083 nm ytterbium doped fibre amplifier for optical pumping of Helium; *Electronics Lett.* **33** (1997) 787 – 789.
- [Che99] X. J. Chen, H. E. Möller, M. S. Chawla, G. P. Cofer, B. Driehuys, L. W. Hedlund, G. A. Johnson; Spatially resolved measurements of hyperpolarized gas properties of the lung in vivo. Part I: Diffusion coefficient; *Magn. Res. Med.* **42** (1999) 721 – 728.
- [Che03] W. C. Chen, C. Bailey, J. A. Borchers, R. F. C. Farrow, T. R. Gentile, D. Hussey, C. F. Majkrzak, K. V. O'Donovan, N. Remmes, W. M. Snow, A. K. Thompson; Polarized ^3He analysers for neutron reflectometry; *Physica B* **335** (2003) 196 – 200.
- [Chu87] T. E. Chupp, M. E. Wagshul, K. P. Coulter, A. B. McDonald, W. Happer; Polarized, high-density, gaseous ^3He targets; *Phys. Rev. C* **36:6** (1987) 2244 – 2251.
- [Chu94] T. E. Chupp, R. J. Hoare, R. L. Walsworth, B. Wu; Spin-exchange pumped ^3He and ^{129}Xe Zeeman masers; *Phys. Rev. Lett.* **72** (1994) 2363 – 2366.
- [Coh69] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, S. Haroche, F. Laloë; Detection of the static magnetic field produced by the oriented nuclei of optically pumped ^3He gas; *Phys. Rev. Lett.* **22** (1969) 758 – 760.
- [Coh71] J. S. Cohen, S. A. Evans, N. F. Lane; Quantum-mechanical calculation of cross sections for inelastic atom-atom collisions. II. Model calculation under various coupling conditions; *Phys. Rev. A* **4:6** (1971) 2248 – 2253.
- [Coh98] C. Cohen-Tannoudji; Manipulating atoms with photons; *Rev. Mod. Phys.* **70** (1998) 707 – 719.
- [Col60] F. D. Colegrove, P. A. Franken; Optical pumping of helium in the $^3\text{S}_1$ metastable state; *Phys. Rev.* **119** (1960) 680 – 690.
- [Col63] F. D. Colegrove, L. D. Schearer, G. K. Walters; Polarization of He^3 gas by optical pumping; *Phys. Rev.* **132** (1963) 2561 – 2572.
- [Col64] F. D. Colegrove, L. D. Schearer, G. K. Walters; Temperature dependance of helium metastability exchange cross section; *Phys. Rev.* **135** (1964) A353 – A357.
- [Cou00] E. Courtade, F. Marion, P. J. Nacher, G. Tastevin, T. Dohnalik, K. Kiersnowski; Spectroscopy of the helium $2^3S - 2^3P$ transition above 0.01 Tesla – application to optical pumping studies; *Hyperfine Interactions* **127** (2000) 443 – 449.
- [Cou01] E. Coutarde; Pompée optique de l'hélium dans des conditions non-standard; Thèse de doctorat de l'université Paris XI (École Normale Supérieure); France (2001).

- [Cou02] E. Courtade, F. Marion, P.-J. Nacher, G. Tastevin, K. Kiersnowski, T. Dohnalik; Magnetic field effects on the 1083 nm atomic line of helium; *Eur. Phys. J. D* **21** (2002) 25 – 55.
- [Deh58] H. G. Dehmelt; Spin resonance of free electron polarized by exchange collisions; *Phys. Rev.* **109** (1958) 381 – 385.
- [Deh64] H. G. Dehmelt; Comments on optically pumped nuclear magnetometer; *Rev. Sci. Instr.* **35** (1964) 768.
- [Den99] A. J. Deninger, B. Eberle, M. Ebert, T. Großmann, W. Heil, H.-U. Kauczor, L. Lauer, K. Markstaller, E. Otten, J. Schmiedeskamp, W. Schreiber, R. Surkau, M. Thelen, N. Weiler; Quantification of regional intrapulmonary oxygen partial pressure evolution during apnea by ^3He MRI; *J. Magn. Reson.* **141** (1999) 207 – 216.
- [Den00] A. J. Deninger, B. Eberle, M. Ebert, T. Großmann, G. Hanisch, W. Heil, H.-U. Kauczor, K. Markstaller, E. Otten, W. Schreiber, R. Surkau, N. Weiler; ^3He -MRI-based measurements of intrapulmonary p_{O_2} and its time course during apnea in healthy volunteers: first results, reproducibility, and technical limitations; *NMR Biomed.* **13** (2000) 194 – 201.
- [Den02] A. J. Deninger, S. Månsson, J. S. Petersson, G. Pettersson, P. Magnusson, J. Svensson, B. Fridlund, G. Hansson, I. Erjefeldt, P. Wollmer, K. Golman; Quantitative measurement of regional lung ventilation using ^3He MRI; *Magn. Res. Med.* **48** (2002) 223 – 232.
- [Dri95] B. Driehuys, G. D. Cates, W. Happer; Surface relaxation mechanisms of laser-polarized ^{129}Xe ; *Phys. Rev. Lett.* **74** (1995) 4943 – 4946.
- [Dup71] J. Dupont-Roc, M. Leduc, F. Laloë; New value for the metastability exchange cross section in helium; *Phys. Rev. Lett.* **27** (1971) 467 – 470.
- [Dup73] J. Dupont-Roc, M. Leduc, F. Laloë; Contribution a l'étude du pompage optique par échange de métastabilité dans ^3He ; *J. Physique* **27** (1973) 961 – 976.
- [Dur02] E. Durand, G. Guillot, L. Darrasse, G. Tastevin, P. J. Nacher, A. Vignaud, D. Vattolo, J. Bittoun; CPMG measurements and ultrafast imaging in human lungs with hyperpolarized helium-3 at low field (0.1 T); *Magn. Res. Med.* **47** (2002) 75 – 81.
- [Ebe96] M. Ebert, T. Großmann, W. Heil, E. W. Otten, R. Surkau, M. Leduc, P. Bachert, M. V. Knopp, L. R. Schad, M. Thelen; Nuclear magnetic resonance imaging with hyperpolarized ^3He ; *The Lancet* **347** (1996) 1297 – 1299.
- [Ebe00] M. Ebert; Entwicklung eines leistungsstarken Polarisators und Kompressors für $^3\vec{\text{He}}$ für medizinische MR Tomografie; Dissertation an der Universität Mainz (2000)
- [Ebe01] B. Eberle, K. Markstaller, W. G. Schreiber, H.-U. Kauczor; Hyperpolarised gases in magnetic resonance: a new tool for functional imaging of the lung; *Swiss Med. Wkly.* **131** (2001) 503 – 509.
- [Eck92] G. Eckert, W. Heil, M. Meyerhoff, E. W. Otten, R. Surkau, M. Werner, M. Leduc, P. J. Nacher, L. D. Schearer; A dense polarized ^3He target based on compression of optically pumped gas; *Nucl. Instrum. Methods A* **320** (1992) 53 – 65.

- [Eis83] H. Eisele, H. J. Paus, J. Wagner; Fading properties of a NaF:F_2^{+*} color center laser; J. Appl. Phys. **54** (1983) 4821 – 4825.
- [Eva69] S. A. Evans, N. F. Lane; Total and excitation-transfer cross sections for collisions between $2\ ^3S$ metastable and ground-state helium atoms; Phys. Rev. **188** (1969) 268 – 279.
- [Eva71] S. A. Evans, J. S. Cohen, N. F. Lane; Quantum-mechanical calculation of cross sections for inelastic atom-atom collisions. I. Inelastic $2\ ^3S - 2\ ^3P$ collisions between metastable and ground-state helium atoms; Phys. Rev. A **4:6** (1971) 2235 – 2248.
- [Eva73] S. A. Evans, N. F. Lane; Quantum-mechanical calculation of inelastic cross sections for $1\ ^1S - 2\ ^3S$ excitation collisions of ground-state He atoms with He^+ ions; Phys. Rev. A **8:3** (1973) 1385 – 1396.
- [Fit67] W. A. Fitzsimmons, G. K. Walters; Very long nuclear spin relaxation times in gaseous ^3He by suppression of ^3He -surface interactions; Phys. Rev. Lett. **19** (1967) 943 – 946.
- [Fit68] W. A. Fitzsimmons, N. F. Lane, G. K. Walters; Diffusion of He ($2\ ^3S_1$) in helium gas; $2\ ^3S_1 - 1\ ^1S_0$ Interaction potentials at long range; Phys. Rev. **174** (1968) 193 – 200.
- [Fit69] W. A. Fitzsimmons, L. L. Tankersley, G. K. Walters; Nature of surface-induced nuclear-spin relaxation of gaseous ^3He ; Phys. Rev. **179:1** (1969) 156 – 165.
- [Fit99] R. J. Fitzgerald, M. Gatzke, D. C. Fox, G. D. Cates, W. Happer; ^{129}Xe spin relaxation in frozen xenon; Phys. Rev. B **59** (1999) 8795 – 8811.
- [Fra57] W. Franzen, A. G. Emslie; Atomic orientation by optical pumping; Phys. Rev. **108:6** (1957) 1453 – 1458.
- [Fra58a] P. A. Franken, R. Sands, J. Hobart; Polarization of free potassium atoms by exchange collisions with sodium atoms and free electrons; Phys. Rev. Lett. **1** (1958) 52 – 54.
- [Fra58b] P. A. Franken, F. D. Colegrove; Alignment of metastable helium atoms by unpolarized resonance radiation; Phys. Rev. Lett. **1** (1958) 316 – 318.
- [Fri81] W. Frieze, E. A. Hinds, V. W. Hughes; Experiments on the $2\ ^3P$ state of helium. IV. Measurements of the $2\ ^3P_0 - 2\ ^3P_2$ fine-structure interval; Phys. Rev. A **24** (1981) 279 – 287.
- [Fro98] G. Frossati; Polarization of ^3He , D_2 (and possibly ^{129}Xe) using cryogenic techniques; Nucl. Instrum. Methods A **402** (1998) 470 – 483.
- [Gam65] R. L. Gamblin, T. R. Carver; Polarization and Relaxation Processes in ^3He Gas; Phys. Rev. **138:4A** (1965) 946 – 960.
- [Gan73] J.G. Ganière; Relaxation nucléaire de He^3 gazeux par des surfaces; Helv. Phys. Acta **46** (1973) 147 – 159.
- [Gat93] M. Gatzke, G. D. Cates, B. Driehuys, D. Fox, B. Saam, W. Happer; Extraordinarily slow nuclear spin relaxation in frozen laser-polarized ^{129}Xe ; Phys. Rev. Lett. **70** (1993) 690 – 693.

- [Gen93] T. R. Gentile, R. D. McKeown; Spin-polarizing ^3He nuclei with an arc-lamp-pumped neodymium-doped lanthanum magnesium hexaluminate laser; *Phys. Rev. A* **47** (1993) 456 – 467.
- [Gre64] R. C. Greenhow; Optical pumping in ^3He ; *Phys. Rev.* **136:3A** (1964) 660 – 662.
- [Gui01] G. Guillot, P. J. Nacher, G. Tastevin; NMR diffusion of hyperpolarised ^3He in aerogel: a systematic pressure study; *Magn. Res. Imag.* **19** (2001) 391 – 394.
- [Han24] W. Hanle; Über magnetische Beeinflussung der Polarisation der Resonanzfluoreszenz; *Z. Physik* **30** (1924) 93 – 105.
- [Hap72] W. Happer; Optical pumping; *Rev. Mod. Phys.* **44:2** (1972) 169 – 250.
- [Has90] K. C. Hasson, G. D. Cates, K. Lerman, P. Bogorad, W. Happer; Spin relaxation due to magnetic-field inhomogeneities: Quartic dependence and diffusion-constant measurements; *Phys. Rev. A* **41:7** (1990) 3672 – 3688. (Errata der Gleichungen (45) und (64): *Phys. Rev. A* **42** (1990) 5766)
- [Has00] J. Hasse; Charakterisierung und Optimierung eines ^3He Kompressors; Diplomarbeit an der Universität Mainz (2000)
- [Haw53] W. B. Hawkins, R. H. Dicke; The polarization of sodium atoms; *Phys. Rev.* **91** (1953) 1008 – 1009.
- [Hec01] E. Hecht; *Optik*; 3. Auflage; Oldenbourg-Verlag; München (2001).
- [Hei90] W. Heil, M. Werner, M. Meyerhoff, L. D. Schearer; Frequency stabilization of LNA laser to the helium absorption lines; *Rev Sci. Instrum.* **61** (1990) 2549 – 2551.
- [Hei95] W. Heil, H. Humblot, E. W. Otten, M. Schäfer, R. Surkau, M. Leduc; Very long nuclear relaxation times of spin polarized helium 3 in metal coated cells; *Phys. Lett. A* **201** (1995) 337 – 343.
- [Hei99a] W. Heil, H. Humblot, D. Hofmann, I. Krasnoschekova, E. Lelièvre-Berna, A. Petoukhov, G. Petrov, A. Serebov, F. Tasset, F. Valsky; Neutron optics P-violation effects near p-wave resonance; *Physica B* **267-268** (1999) 289 – 293.
- [Hei99b] W. Heil, J. Dreyer, D. Hofmann, H. Humblot, E. Lelievre-Berna, F. Tasset; ^3He neutron spin filter; *Physica B* **267-268** (1999) 328 – 335.
- [Hei02] W. Heil, K. H. Andersen, R. Cywinski, H. Humblot, C. Ritter, T. W. Roberts, J. R. Stewart; Large solid-angle polarisation at thermal neutron wavelength using a ^3He spin filter; *Nucl. Instrum. Methods A* **485** (2002) 551 – 570.
- [Hic74] A. P. Hickman, N. F. Lane; Long-range $He_2(^3\Sigma_{g,u}^+)$ potentials and metastability exchange in $\text{He}^*\text{-He}$ collisions; *Phys. Rev. A* **10:1** (1974) 444 – 447.
- [Hin85] E. A. Hinds, J. D. Prestage; Phenomenological theory of the 2^3P state of ^3He ; *Phys. Rev. A* **32** (1985) 2615 – 2621.
- [IPG01] Manual YLD-15-1083-Lasers; IPG Laser GmbH Burbach (2001).
E. A. Hinds, J. D. Prestage; Phenomenological theory of the 2^3P state of ^3He ; *Phys. Rev. A* **32** (1985) 2615 – 2621.

- [Jac85] J. D. Jackson; Klassische Elektrodynamik; 2. Auflage; De Gruyter-Verlag; Berlin (1985).
- [Jac01] R. E. Jacob, S. W. Morgan, B. Saam, J. C. Leawoods; Wall relaxation of ^3He in spin-exchange cells; Phys. Rev. Lett. **87** (2001) 143004-1 – 143004-4.
- [Jac02] R. E. Jacob, S. W. Morgan, B. Saam; ^3He spin exchange cells for magnetic resonance imaging; J. Appl. Phys. **92** (2002) 1588 – 1597.
- [Jac03] R. E. Jacob, B. Driehuys, B. Saam; Fundamental mechanisms of ^3He relaxation on glass; Chem. Phys. Lett. **370** (2003) 261 – 267
- [Joh72] A. W. Johnson, J. B. Gerardo; Recombination and ionization in a molecular-ion-dominated helium afterglow; Phys. Rev. A **5** (1972) 1410 – 1418.
- [Joh73] A. W. Johnson, J. B. Gerardo; Ionizing collisions of two metastable helium atoms (2^3S); Phys. Rev. A **7** (1973) 925 – 928.
- [Jon00] G. L. Jones, T. R. Gentile, A. K. Thompson, Z. Chowdhuri, M. S. Dewey, W. M. Snow, F. E. Wietfeldt; Test of ^3He -based neutron polarizers at NIST; Nucl. Instr. Methods A **440** (2000) 772 – 776.
- [Kas50] A. Kastler; Quelques suggestions concernant la production optique et la détection optique d’une inégalité de population des niveaux de quantification spatiale des atomes. Applications à l’expérience de stern et gerlach et à la résonance magnétique; J. Phys. Radium **11** (1950) 255 – 265.
- [Kir04] V. Kirste; Entwicklung und Test eines ^3He Magnetometers; laufende Diplomarbeit an der Universität Mainz (2004)
- [Kau96] H.-U. Kauczor, D. Hofmann, K.-F. Kreitner, H. Nilgens, R. Surkau, W. Heil, A. Pottast, M. Knopp, E. W. Otten, M. Thelen; Normal and abnormal pulmonary ventilation: Visualization at hyperpolarized He-3 MR imaging; Radiology **201** (1996) 564 – 568.
- [Kne95] F. K. Kneubühl, M. W. Sigrist; Laser; 4. Aufl.; Teubner-Verlag; Stuttgart (1995).
- [Kpo81] A. Kponou, V. W. Hughes, C. E. Johnson, S. A. Lewis, F. M. J. Pichanick; Experiments on the 2^3P state of helium. III. Measurements of the 2^3P_0 – 2^3P_1 fine-structure interval; Phys. Rev. A **24** (1981) 264 – 278.
- [Kro02] N. Krowas; Untersuchungen zur Steigerung des Polarisationsgrades von optisch gepumptem ^3He -Gas; Diplomarbeit an der Universität Mainz (2002)
- [Lal68] F. Laloë; Étude d’une nouvelle méthode permettant d’orienter et d’aligner les divers niveaux excités de ^3He ; Compt. Rend. **267** (1968) 208 – 211.
- [Lan67] D. A. Landmann; Lifetime of the 2^3P State in Helium; Bull. Am. Phys. Soc. **12** (1967) 94
- [Lan68] D. A. Landmann; Lifetimes and alignment depolarization cross sections of the $(3p^5 4p)$ 3D_3 and $^1D'_2$ levels in argon and the $(1s 2p)$ 3P term in helium; Phys. Rev. **173** (1968) 33 – 39.
- [Lar91] B. Larson, O. Häusser, P. P. J. Delheij, D. M. Whittall, D. Thiessen; Optical pumping of Rb in the presence of high-pressure ^3He buffer gas; Phys. Rev. A **44** (1991) 3108 – 3118.

- [Leh64] J.-C. Lehmann; Étude de l'influence de la structure hyperfine du niveau excité sur l'obtention d'une orientation nucléaire par pompage optique; *J. Physique* **25** (1964) 809 – 824.
- [Led00] M. Leduc, P. J. Nacher, G. Tastevin, E. Courtade; Kinetics of helium-3 optical laser pumping; *Hyperfine Interactions* **127** (2000) 443 — 449.
- [Lor93] W. Lorenzon, T. R. Gentile, H. Gao, R.D. McKeown; NMR calibration of optical measurement of nuclear polarization in ^3He ; *Phys. Rev. A* **47:1** (1993) 468 – 479.
- [Mai60] T. H. Maiman; Stimulated optical radiation in ruby; *Nature* **187** (1960) 493 – 494.
- [McC69] M. V. McCusker, L. L. Hatfield, G. K. Walters; Intense polarized electron beams from optically pumped helium discharges; *Phys. Rev. Lett.* **22** (1969) 817 – 820.
- [McC72] M. V. McCusker, L. L. Hatfield, G. K. Walters; Cumulative ionization in optically pumped helium discharges: A source of polarized electrons; *Phys. Rev. A* **5** (1972) 177 – 189.
- [Mey94] M. Meyerhoff, D. Eyl, A. Frey et al.; First measurement of the electric formfactor of the neutron in the exclusive quasielastic scattering of polarized electrons from polarized ^3He ; *Phys. Lett. B* **327** (1994) 201 – 207.
- [Mie92] C. Mies; Weiterentwicklung eines LNA- Lasers und Optimierung des optischen Pumpens von ^3He ; Diplomarbeit an der Universität Mainz (1992)
- [Mil71] P. A. Miller, J. T. Verdeyen, B. E. Cherrington; Behavior of $\text{He}(2^3S)$ metastable atoms in weakly ionized helium plasmas; *Phys. Rev. A* **4** (1971) 692 – 700.
- [Mue48] H. Mueller; The foundations of optics; *J. Opt. Soc. Amer.* **38** (1948) 661.
- [Mue01] R. M. Mueller; The Yb fiber laser for metastable ^3He optical pumping at Jülich; *Physica B* **297** (2001) 277 – 281.
- [Nac85] P. J. Nacher, M. Leduc; Optical pumping in ^3He with a laser; *J. Physique* **46** (1985) 2057 – 2073.
- [Nac00] P. J. Nacher, G. Tastevin; Spin polarised ^3He gas for NMR imaging; *Physica B* **284-288** (2000) 2053 – 2054.
- [Nac01] P. J. Nacher, Forschungsbericht: Production et détection d'hélium-3 hyperpolarisé pour l'imagerie des poumons par RMN (2001).
- [Nag01] B. Nagasaka, H. Omi, T. Eguchi, H. Nakayama, N. Nakamura; High-pressure ^{129}Xe NMR study of supercritical xenon interacting with polymers; *Chem. Phys. Lett.* **340** (2001) 473 – 478.
- [New93] N. R. Newbury, A. S. Barton, G. D. Cates, W. Happer, H. Middleton; Gaseous ^3He - ^3He magnetic dipolar spin relaxation; *Phys. Rev. A* **48:6** (1993) 4411 – 4420.
- [Nis96] J. R. Fuhr and W. L. Wiese; NIST Atomic Transition Probability Tables, CRC Handbook of Chemistry and Physics, 77th Edition, D. R. Lide, Ed., CRC Press, Inc., Boca Raton, FL (1996).

- [Nis04] NIST Atomic Spectra Database; <http://physics.nist.gov/PhysRefData/contents.html>
- [Nov58] R. Novick, H. E. Peters; Orientation of rubidium atoms by spin exchange with optically pumped sodium atoms; *Phys. Rev. Lett.* **1** (1958) 54 – 55.
- [Nov70] L. N. Novikov, V. G. Pokazan'ev, G. V. Skrotskii; Coherent phenomena in systems interacting with resonant radiation; *Soviet Phys. Usp.* **13** (1970) 384 – 399.
- [Ort03] B. Ortac, A. Hideur, T. Chartier, M. Brunel, G. Martel, M. Salhi, F. Sanchez; Influence of cavity losses on stimulated Brillouin scattering in a self-pulsing slide-pumped ytterbium-doped double-clad fiber laser; *Opt. Comm.* **215** (2003) 389 – 395.
- [Par66] R. B. Partridge, G. W. Series; The transfer of coherence by collisions of ^3He atoms; *Proc. Phys. Soc.* **88** (1966) 983 – 993.
- [Pav70] M. Pavlovic, F. Laloë; Étude d'une nouvelle méthode permettant d'orienter, par pompage optique, des niveaux atomiques excités. Application à la mesure de la structure hyperfine de niveaux ^1D de ^3He ; *J. Physique* **31** (1970) 173 – 194.
- [Phi62] G. C. Phillips, R. R. Perry, P. M. Windham, G. K. Walters, L. D. Schearer, F. D. Colegrove; Demonstration of a polarized ^3He target for nuclear reactions; *Phys. Rev. Lett.* **9** (1962) 502 – 504.
- [Pie95] T. Pietrass, A. Bifone, A. Pines; Adsorption properties of porous silicon characterized by optically enhanced ^{129}Xe NMR spectroscopy; *Surf. Sci.* **334** (1995) 730 – 734.
- [Pin74] M. Pinard, J. van der Linde; Disorientation of ^3He ^1D states in ^3He - ^3He collisions; *Can. J. Phys.* **52** (1974) 1615 – 1621.
- [Pin79] M. Pinard, C. G. Aminoff, F. Laloë; Velocity-selective optical pumping and Doppler-free spectroscopy; *Phys. Rev. A* **19** (1979) 2366 – 2370.
- [Pre83] J. D. Prestage, E. A. Hinds; Precise measurements of hyperfine structure in the 2^3P state of ^3He ; *Phys. Rev. Lett.* **50** (1983) 828 – 832.
- [Pre85] J. D. Prestage, C. E. Johnson, E. A. Hinds, F. M. J. Pichanick; Precise study of hyperfine structure in the 2^3P state of ^3He ; *Phys. Rev. A* **32** (1985) 2712 – 2724.
- [Pur56] E. M. Purcell, G. B. Field; Influence of collisions upon population of hyperfine states in hydrogen; *Astrophys. J.* **124** (1956) 542 – 549.
- [Rad03] F. Radu, A. Vorobiev, J. Major, H. Humblot, K. Westerholt, H. Zabel; Spin-resolved off-specular neutron scattering from magnetic domain walls using the polarized ^3He gas spin filter; *Physica B* **335** (2003) 63 – 67.
- [Rei97] V. Reichel, S. Unger, P. Rosemann, J. Kirchhof, H.- R. Müller, H. Bartelt; Seltenerd-dotierte Doppelkern-Lichtleitfasern auf Quarzglasbasis; *Laser und Optoelektronik* **29** (1997) 60 – 66.
- [Ric02] D. R. Rich, T. R. Gentile, T. B. Smith, A. K. Thompson; Spin exchange optical pumping at pressures near 1 bar for neutron spin filters; *Appl. Phys. Lett.* **80** (2002) 2210 – 2212.
- [Roh94] D. Rohe; Optimierung des optischen Pumpprozesses von ^3He und Kontrolle der Kernpolarisation; Diplomarbeit an der Universität Mainz (1994).

- [Roh99] D. Rohe, P. Bartsch, D. Baumann *et al.*; Measurement of the neutron electric form factor G_{en} at 0.67 (GeV/c)^2 via $^3\text{He}(e, e'n)$; Phys. Rev. Lett. **83:21** (1999) 4257 – 4260.
- [Rom97] M. V. Romalis, E. Miron, G. D. Cates; Pressure broadening of Rb D_1 and D_2 lines by ^3He , ^4He , N_2 , and Xe: Line cores and near wings; Phys. Rev. A **56:6** (1997) 4569 – 4578.
- [Rom98] M. V. Romalis, G. D. Cates; Accurate ^3He polarimetry using the Rb Zeeman frequency shift due to the Rb- ^3He spin-exchange collisions; Phys. Rev. A **58:4** (1998) 3004 – 3011.
- [Ros70] S. D. Rosner, F. M. Pipkin; Hyperfine Structure of the 2^3S_1 state of ^3He ; Phys. Rev. A **1** (1970) 571 – 586.
- [Ros72] S. D. Rosner, F. M. Pipkin; Temperature dependance of the helium metastability-exchange cross section in the range 15 – 115 K; Phys. Rev. A **5** (1972) 1909 – 1918.
- [Ros01] M. A. Rosenberry, T. E. Chupp; Atomic electric dipole moment measurement using spin exchange pumped masers of ^{129}Xe and ^3He ; Phys. Rev. Lett. **86** (2001) 22 – 25.
- [Rub01] S. M. Rubin, M. M. Spence, A. Pines, D. E. Wemmer; Characterization of the effects of nonspecific xenon-protein interactions on ^{129}Xe chemical shifts in aqueous solution: Further development of xenon as a biomolecular probe; J. Magn. Res. **152** (2001) 79 – 86.
- [Rud01] D. Rudersdorf; Untersuchungen zur Steigerung der Effizienz des optischen Pumpens von ^3He ; Diplomarbeit an der Universität Mainz (2001)
- [Saa95] B. Saam, W. Happer, H. Middleton; Nuclear relaxation of ^3He in the presence of O_2 ; Phys. Rev. A **52** (1995) 862 – 865.
- [Saa96] B. Saam, N. Drukker, W. Happer; Edge enhancement observed with hyperpolarized ^3He ; Chem. Phys. Lett. **263** (1996) 481 – 487.
- [Saa00] B. T. Saam, D. A. Yablonskiy, V. D. Kodibagkar, J. C. Leawoods, D. S. Gierada, J. D. Cooper, S. S. Lefrak, M. S. Conradi; MR imaging of diffusion of ^3He gas in healthy and diseased lungs; Magn. Res. Med. **44** (2000) 174 – 179.
- [Sal01] M. Salerno, T. A. Altes, J. P. Mugler III, M. Nakatsu, H. Hatabu, E. E. de Lange; Hyperpolarized noble gas MR imaging of the lung: Potential clinical applications; Eur. J. Rad. **40** (2001) 33 – 44.
- [Sch62] L. D. Schearer; Energy shifts of the magnetic sublevels of $^3\text{S}_1$ helium caused by optical pumping; Phys. Rev. **127:2** (1962) 512 – 517.
- [Sch63] L. D. Schearer, F. D. Colegrove, G. K. Walters; Large ^3He nuclear polarization; Phys. Rev. Lett. **10** (1963) 108 – 110.
- [Sch65] L. D. Schearer, G. K. Walters; Nuclear spin- lattice relaxation in the presence of magnetic-field gradients; Phys. Rev. **139:5A** (1965) 1398 – 1402.
- [Sch66] L. D. Schearer; Spin relaxation studies in helium-3 gas by optical pumping; Ph.D. thesis at Rice University, Houston; USA (1966).

- [Sch67] L. D. Schearer; Collision-induced mixing in the 2^3P levels of helium; Phys. Rev. **160** (1967) 76 – 80.
- [Sch68a] L. D. Schearer; Depolarization of light scattered by aligned 2^3S and 2^3P helium atoms at resonance; Phys. Rev. **166** (1968) 30 – 33.
- [Sch68b] L. D. Schearer; Spin exchange between optically oriented metastable helium atoms and thermal electrons in a flowing afterglow; Phys. Rev. **171** (1968) 81 – 84.
- [Sch68c] L. D. Schearer, F. D. Sinclair; Gyromagnetic ratio of helium 2^3S_1 atoms by optical pumping: Level shifts; Phys. Rev. **175** (1968) 36 – 39.
- [Sch69a] L. D. Schearer; Optical pumping of neon 3P_2 metastable atoms; Phys. Rev. **180:1** (1969) 83 – 90.
- [Sch69b] L. D. Schearer; Depolarization cross section for the metastable noble gases by optical pumping; Phys. Rev. **188:1** (1969) 505 – 506.
- [Sch69c] L. D. Schearer; Ion polarization via Penning collisions with optically pumped metastable helium; Phys. Rev. Lett. **22** (1969) 629 – 631.
- [Sch70a] L. D. Schearer, W. C. Holton; Magnetic resonance of some optically oriented excited ions of Zn and Cd; Phys. Rev. **24** (1970) 1214 – 1217.
- [Sch70b] L. D. Schearer, L. A. Riseberg; Spin conservation in ionizing collisions between He(2^3S_1) metastable atoms; Phys. Lett. **33A** (1970) 325 – 326.
- [Sch71] L. D. Schearer, L. A. Riseberg; Coherence transfer in a Penning ionizing collision; Physics Rev. Lett. **26** (1971) 599 – 601.
- [Sch98] J. Schmiedeskamp; Weiterentwicklung des Polarisations- und Kompressionskonzeptes für ^3He ; Diplomarbeit an der Universität Mainz (1998)
- [Sch99a] W. Schreiber, R. Surkau; Kernspintomographie der Lunge mit hochpolarisiertem Helium-3; Physikal. Blätter **55:3** (1999) 45 – 47.
- [Sch99b] W. G. Schreiber, K. Markstaller, H.-U. Kauczor, B. Eberle, R. Surkau, G. Hanisch, A. Deninger, T. Großmann, N. Weiler, E. Otten, M. Thelen; Ultrafast imaging of 3D-distribution of Helium-3 diffusion coefficient in the lung; Proc. Intl. Soc. Magn. Res. Med. **7** (1999) 2096.
- [Sch00] W. Schreiber, N. Weiler, H.-U. Kauczor, K. Markstaller, T. Großmann, A. Deninger, G. Hanisch, E. W. Otten, M. Thelen; Ultraschnelle MRT der Lungenventilation mittels hochpolarisiertem Helium-3; Fortschr. Röntgenstr. **172** (2000) 129 – 133.
- [Sch04] J. Schmiedeskamp; Weiterentwicklung einer Produktionsanlage für hochpolarisiertes ^3He und erste Anwendungen des Kreislaufes im Rahmen des europäischen Forschungsprojektes PHIL; laufende Dissertation an der Universität Mainz (2004).
- [Sev69] B. N. Sevast'yanov, R. A. Zhitnikov; Effect of optical orientation of ^4He atoms in the 2^3S_1 state on the electron density and radiation of helium atoms in a plasma; Soviet Phys. JETP **29** (1969) 809 – 814.

- [Shu64] W. A. Shurcliff, S. S. Ballard; Polarized Light; D. Van Nostrand Company; Princeton (1964).
- [Skr67] G. V. Skrotzky, V. G. Pokazan'ev, L. I. Yakub; Some questions of the radio-optical resonance in ^3He ; Nuovo Cimento **52 B** (1967) 469 – 475.
- [Sto91] S. D. Stoller, W. Happer, F. J. Dyson; Transverse spin relaxation in inhomogeneous magnetic fields; Phys. Rev. A **44** (1991) 7459 – 7477.
- [Sto96a] E. Stoltz, M. Meyerhoff, N. Bigelow, M. Leduc, P.-J. Nacher, G. Tastevin; High nuclear polarization in ^3He - ^4He gas mixtures by optical pumping with a laser diode; Appl. Phys. B **63** (1996) 629 – 633.
- [Sto96b] E. Stoltz, B. Villard, M. Meyerhoff, P.-J. Nacher; Polarization analysis of the light emitted by an optically pumped ^3He gas; Appl. Phys. B **63** (1996) 635 – 640.
- [Sto00] C. H. Storry, M. C. George, E. A. Hessels; Precision microwave measurement of the $2^3P_1 - 2^3P_2$ interval in atomic helium; Phys. Rev. Lett. **84** (2000) 3274 – 3277.
- [Sur91] R. Surkau; Weiterentwicklung eines LNA- Festkörperlasers zum optischen Pumpen von ^3He ; Diplomarbeit an der Universität Mainz (1991)
- [Sur95] R. Surkau; Entwicklung und Test eines ^3He -Neutronen-Spinfilters; Dissertation an der Universität Mainz (1995)
- [Sur97] R. Surkau, J. Becker, M. Ebert, T. Großmann, W. Heil, D. Hofmann, H. Humblot, M. Leduc, E. W. Otten, D. Rohe, K. Siemensmeyer, M. Steiner, F. Tasset, N. Trautmann; Realization of a broad band neutron spin filter with compressed, polarized ^3He gas; Nucl. Instrum. Methods A **384** (1997) 444 – 450.
- [Tas00] G. Tastevin, P.-J. Nacher, G. Guillot; NMR of hyperpolarised ^3He gas in aerogel; Physica B **284-288** (2000) 291 – 292.
- [Tas03a] G. Tastevin, P.-J. Nacher, J. Choukeife; Restricted diffusion of polarised ^3He gas in aerogels; Physica B **329-333** (2003) 303 – 304.
- [Tas03b] G. Tastevin, S. Grot, E. Courtade, S. Bordaïs, P.-J. Nacher; A broadband ytterbium-doped tunable fiber laser for ^3He optical pumping at 1083 nm; eingereicht bei Physica B.
- [Tim71a] R.S. Timsit, J.M. Daniels; The polarizations produced, and the rates of polarization, in the optical pumping of 2^3S_1 ^3He ; Can. J. Phys. **49** (1971) 545 – 559.
- [Tim71b] R.S. Timsit, J.M. Daniels, A. D. May; Nuclear relaxation of ^3He gas on various solid surfaces; Can. J. Phys. **49** (1971) 560 – 574.
- [Tün01] Freundlicherweise zur Verfügung gestellt: A. Tünnermann *et al.*, Institut für Angewandte Physik, Universität Jena (2001).
- [Ver01] A. S. Verhulst, O. Liivak, M. H. Sherwood, H.-M. Vieth, I. L. Chuang; Non-thermal nuclear magnetic resonance quantum computing using hyperpolarized xenon; Appl. Phys. Lett. **79** (2001) 2480 – 2482.
- [Vol01] Private Mitteilung von P. Voluer; Keopsys AG; Lannion; Frankreich (2001).

- [Wal62] G. K. Walters, F. D. Colegrove, L. D. Scheerer; Nuclear polarization of ^3He gas by metastability exchange with optically pumped metastable ^3He atoms ; Phys. Rev. Lett. **8** (1962) 439 – 442.
- [Wal97] T. G. Walker, W. Happer; Spin-exchange optical pumping of noble-gas nuclei; Rev. Mod. Phys. **69** (1997) 629 – 642.
- [Wal98] D. K. Walter, W. Happer, T. G. Walker; Estimates of the relative magnitudes of the isotropic and anisotropic magnetic-dipole hyperfine interactions in alkali-metal noble-gas systems; Phys. Rev. A **58** (1998) 3642 – 3653.
- [Wil97] E. Wilms, M. Ebert, W. Heil, R. Surkau; Polarimetry on dense samples of spin-polarized ^3He by magnetostatic detection; Nucl. Instr. Meth. A **401** (1997) 491 – 498.
- [Wer89] M. Werner; Aufbau und Stabilisierung eines LNA-Festkörperlasers; Diplomarbeit an der Universität Mainz (1989)
- [Wil02] J. M. Wild, J. Schmiedeskamp, M. N. J. Paley, F. Filbir, S. FICHELE, L. Kasuboski, F. Knitz, N. Woodhouse, A. Swift, W. Heil, G. H. Mills, M. Wolf, P. D. Griffiths, E. Otten, E. J. R. van Beek; MR imaging of the lungs with hyperpolarized helium-3 gas transported by air; Phys. Med. Biol. **47** (2002) 185 – 190.
- [Wit56] J. P. Wittke, R. H. Dicke; Redetermination of the hyperfine splitting in the ground state of atomic hydrogen; Phys. Rev. **103** (1956) 620 – 631.
- [Wol00] M. Wolf; Systematische Untersuchungen zur oberflächeninduzierten Relaxation von kernspinpolarisiertem ^3He ; Diplomarbeit an der Universität Mainz (2000)
- [Xu00] W. Xu, D. Dutta, F. Xiong et al.; Transverse Asymmetry $A_{T'}$ from the quasielastic $^3\text{He}(\vec{e}, e')$ process and the neutron magnetic form factor; Phys. Rev. Lett. **85** (2000) 2900 – 2904.
- [Yab02] D. A. Yablonskiy, A. L. Sukstanskii, J. C. Leawoods, D. S. Gierada, G. L. Bretthorst, S. S. Lefrak, J. D. Cooper, M. S. Conradi; Quantitative in vivo assessment of lung microstructure at the alveolar level with hyperpolarized ^3He diffusion MRI; Medical Sciences **99** (2002) 3111 – 3116.
- [You97] A. R. Young, S. Appelt, A. Ben-Amar Baranga, C. Erickson, W. Happer; Three-dimensional imaging of spin polarization of alkali-metal vapor in optical pumping cells; Appl. Phys. Lett. **70** (1997) 3081 – 3083.
- [Zel97] H. Zellmer, A. Tünnermann, H. Welling; Faserlaser – kompakte Strahlquellen im nahinfraroten Spektralbereich; Laser und Optoelektronik **29** (1997) 53 – 59.
- [Zim00a] O. Zimmer, P. Hautle, W. Heil, D. Hofmann, H. Humblot, I. Krasnoschekova, M. Lasakov, T. M. Müller, V. Nesvizhevsky, J. Reich, A. Serebrov, Yu. Sobolev, A. Vassilev; Spin filters and supermirrors: a comparison study of two methods of high-precision neutron polarisation analysis; Nucl. Instrum. Methods A **440** (2000) 764 – 771.
- [Zim00b] O. Zimmer, J. Byrne, M. G. D. van der Grinten, W. Heil, F. Glück; aspect - a new spectrometer for the measurement of the angular correlation coefficient a in neutron beta decay; Nucl. Instrum. Methods A **440** (2000) 548 – 556.
- [Zin03] Private Mitteilung von Dr. Götz Zinner; B. Halle Nachfl. GmbH; Berlin (2003).