

^6LiD für das Polarisierte Target des COMPASS-Experiments

DISSERTATION

zur

Erlangung des Grades

"Doktor der Naturwissenschaften"

an der Fakultät für Physik und Astronomie

der Ruhr-Universität Bochum

von

Arne Meier

aus

Marl

Bochum 2001

1. Gutachter: Prof. Dr. Meyer
2. Gutachter: Prof. Dr. Koch

Tag der Disputation: 15.5.2001

^6LiD für das Polarisierte Target des COMPASS-Experiments

Einleitung	1
1. Dynamische Nukleonenpolarisation im EST-Bild	11
2. Auswahl des Targetmaterials.	16
2.1 Dilutionfaktor des ^6LiD	
2.2 Vergleich der Targetmaterialien	
3. Chemische Synthese und Kristallisation	25
3.1 Isotopenreinheit	
3.2 Verfahren der Synthese und Kristallisation	
3.3 Zerkleinerung der Kristalle	
4. Paramagnetische Zentren im ^6LiD-Kristall	30
4.1 Erzeugung mittels Elektronenbestrahlung	
4.2 Charakterisierung der paramagnetischen Zentren	
4.3 Optische Spektroskopie	
5. EST-Theorie	56
5.1 Provotorov-Gleichungen	
5.2 EST im ^6LiD	
6. Einfluß der Präparationsmethode auf die Polarisationseigenschaften	66
6.1 Frühere Untersuchungen	
6.2 Polarisation im Verdampferkryostaten bei 2.5T Magnetfeld	
6.3 Polarisation unter Bedingungen des COMPASS-Targets	
Zusammenfassung und Ausblick	81
Literaturverzeichnis	82
Anhang	84
A1 Zeichnung der Syntheseapparatur	
A2 Zeichnung des 4,2K-Bestrahlungseinsatzes	

Einleitung

Die Methoden zur Beantwortung der Frage nach dem Aufbau der Materie haben sich im Laufe der Zeit sehr gewandelt und immer weiter verfeinert. Die Physik hat gezeigt, daß keine Struktur aufgelöst werden kann, die kleiner ist als die Wellenlänge der eingesetzten Sonde. Die Schritte hin zum immer Kleineren konnten erst gemacht werden als Strahlungsquellen mit kürzeren Wellenlängen als die des sichtbaren Lichts zur Verfügung standen. Diese Entwicklung gipfelte im Bau immer größerer Beschleunigeranlagen bis der Bereich der tief inelastischen Streuung erreicht war. Die in tief inelastischer Lepton-Nukleonstreuung gemessenen spinunabhängigen Strukturfunctionen $F_1(x, Q^2)$ und $F_2(x, Q^2)$ zeigten eine deutliche Abhängigkeit von der Bjorkenschen SkalenvARIABLEN x ,

$$x = \frac{Q^2}{2 \cdot M \cdot \nu}$$

Q^2 : Quadrat des Viererimpulsübertrags

M : Nukleonenmasse

ν : Energieverlust des Leptons

waren aber annähernd unabhängig von Q^2 bei festem x . Interpretiert man die Fouriertransformierte der spinunabhängigen Strukturfunction F_2 als Ladungsverteilung, dann bedeutet die Unabhängigkeit von Q^2 ein punktförmiges Streuzentrum. Diese punktförmigen Streuzentren werden Quarks genannt und stellen die kleinsten bekannten Bausteine der Materie dar.

Die experimentellen Daten erfüllen die Callan-Gross-Beziehung [s. z.B. Pov 95], die nur für Spin-1/2-Teilchen Gültigkeit besitzt. Es handelt sich also bei Quarks um punktförmige Spin-1/2-Teilchen. Wenn die Quarks keine weitere Unterstruktur aufweisen, bringt eine weitere Steigerung der Beschleunigerenergie bzw. weitere Verkürzung der Wellenlänge keinen größeren Informationsgehalt mehr. Um weitere Informationen über den Aufbau des Nukleons zu erhalten, kann man das Meßverfahren verfeinern. Wenn sowohl die einlaufenden Leptonen als auch die Targetnukleonen spinpolarisiert werden, stehen die spinabhängigen Strukturfunctionen $g_1(x, Q^2)$ und $g_2(x, Q^2)$ als neue Informationsquellen zur Verfügung. Solche doppelt polarisierten tief inelastischen Streuexperimente sind in den vergangenen 15 Jahren verstärkt durchgeführt worden. Während es sich bei früheren Messungen um rein inklusive¹ Messungen gehandelt hat, werden aktuelle Experimente semi-inklusiv messen, das bedeutet man versucht aus den Streuprodukten die Streureaktion zu rekonstruieren und so festzulegen, an welchem Konstituenten des Nukleons gestreut worden ist. Es müssen die entstandenen Hadronen zusätzlich zum gestreuten Lepton identifiziert und ihre kinematischen Größen bestimmt werden, was sehr viel höhere Ansprüche an die eingesetzten Spektrometer stellt.

Der differentielle Wirkungsquerschnitt der doppelt polarisierten tief inelastischen Streuung kann in einen spinunabhängigen und in einen spinabhängigen Anteil separiert werden.

¹ Das inklusive Streuexperiment mißt nur das gestreute Lepton, alle anderen Teilchen bleiben unberücksichtigt.

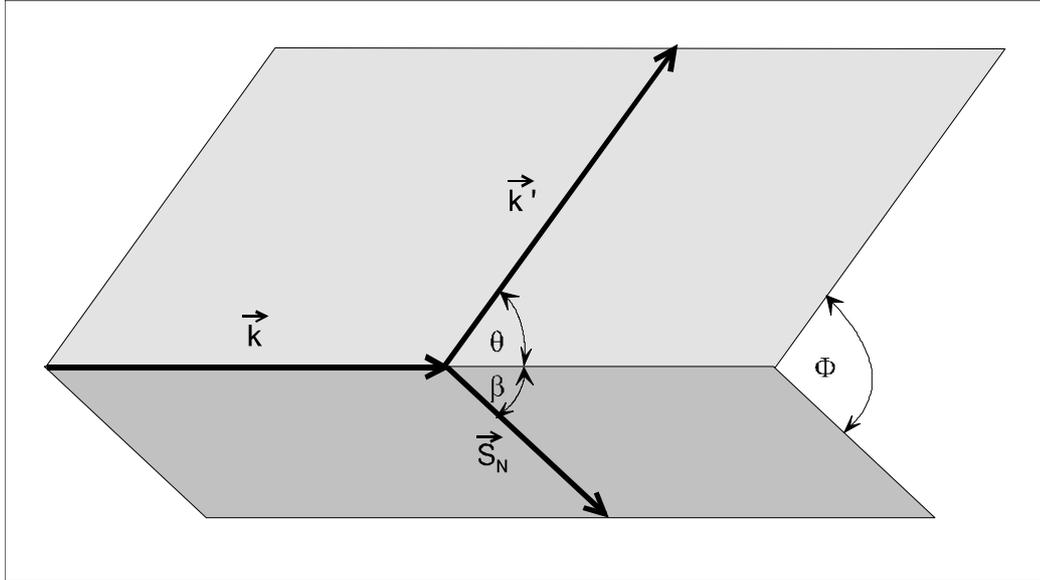


Abb. 1: Ebenen und Winkel bei der Streuung longitudinal polarisierter Leptonen am polarisierten Nukleon

Mit den Winkeln der Abbildung 1 ist der spinabhängige Teil des Wirkungsquerschnitts gegeben durch [Vos 95]:

$$\frac{d^3 \Delta \sigma(\beta)}{dx dy d\Phi} = \frac{e^4}{4 \pi^2 Q^2} \left\{ \cos \beta \cdot \left[\left(1 - \frac{y}{2} - \frac{\gamma^2 y^2}{4} \right) \cdot g_1(x, Q^2) - \frac{\gamma^2 y}{4} \cdot g_2(x, Q^2) \right] - \cos \Phi \cdot \sin \beta \cdot \frac{\sqrt{Q^2}}{\nu} \cdot \left(1 - y - \frac{\gamma^2 y^2}{4} \right)^{\frac{1}{2}} \cdot \left[\frac{y}{2} g_1(x, Q^2) + g_2(x, Q^2) \right] \right\}$$

$$y = \frac{\nu}{E}$$

$$\gamma = \frac{2Mx}{\sqrt{Q^2}}$$

$$\nu = E - E'$$

Bei longitudinaler Targetpolarisation ($\beta = 0^\circ$, $\beta = 180^\circ$) fällt der zweite Term der Differenz weg und man kann aus a die Strukturfunktion g_1 in guter Näherung gewinnen, weil g_2 durch den Vorfaktor

$\frac{M \cdot x}{2 \cdot E}$ unterdrückt wird. Bei transversaler Targetpolarisation ($\beta = 90^\circ$) tragen die Terme a

und b beide zum Wirkungsquerschnitt bei, so daß man Zugang zu g_2 erhält. g_1 enthält Informationen über die Spinausrichtung der Quarks relativ zur Spinrichtung des Nukleons. Es wird für jedes im Nukleon vorkommende Quarkflavor das Integral über die Differenz der Impulsverteilungsfunktionen mit Quarkspin parallel (+) und antiparallel (-) zum Nukleonenspin gebildet und als Δq_f bezeichnet.

$$\Delta q_f = \int_0^1 \{ q_f^+(x) - q_f^-(x) \} dx$$

Summenregeln

Das Integral über $g_1(x)$ ist die mit den quadrierten elektrischen Ladungen gewichtete Summe der spinabhängigen Momente der Quarkverteilungsfunktionen aller im Nukleon vorkommenden Quarkflavors Δq_i . Proton und Neutron setzen sich aus den Konstituentenquarks u und d zusammen. Zusätzlich dazu können im relativistischen Verbund des Nukleons auch schwerere Quark-Antiquarkpaare entstehen und wieder zerfallen. Die Wahrscheinlichkeit der Bildung eines Quark-Antiquarkpaares im sogenannten Quarksee sinkt mit steigender Masse der beteiligten Quarkflavors, so daß in guter Näherung die Existenz schwererer Quarks als s-Quarks vernachlässigt wird. Dann gilt:

$$\int_0^1 g_1^p(x) dx = \frac{1}{2} \left(\frac{4}{9} \Delta u + \frac{1}{9} \Delta d + \frac{1}{9} \Delta s \right)$$

$$\int_0^1 g_1^n(x) dx = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{9} \Delta u + \frac{4}{9} \Delta d + \frac{1}{9} \Delta s \right)$$

In der Differenz der Integrale über g_1^p und g_1^n kommt Δs nicht mehr vor. Die Bjorken-Summenregel stellt diese Differenz in einen Zusammenhang zu den Kopplungskonstanten beim β -Zerfall des freien Neutrons g_A und g_V [s. auch DESY94]:

$$\int_0^1 g_1^p(x) dx - \int_0^1 g_1^n(x) dx = \frac{1}{6} \left| \frac{g_A}{g_V} \right| \left\{ 1 - \left(\frac{\alpha_s(Q^2)}{\pi} \right) - 3.58 \left(\frac{\alpha_s(Q^2)}{\pi} \right)^2 - 20.22 \left(\frac{\alpha_s(Q^2)}{\pi} \right)^3 - \dots \right\}$$

Für den Fall asymptotischer Freiheit, d.h. daß für großes Q^2 die Kopplungskonstante der starken Wechselwirkung α_s klein wird, kann man obige Entwicklung nach wenigen Gliedern abbrechen und erhält eine experimentell überprüfbare theoretische Vorhersage. Die Bjorken-Summenregel ist im Rahmen der Fehler bislang von allen Messungen bestätigt worden. Die Tabelle 1 gibt einen Überblick. Die theoretischen Vorhersagen sind für Q^2 -Werte berechnet worden, die im gemessenen Q^2 -Bereich liegen, und unterscheiden sich deshalb.

Experiment [Target]	Meßergebnis	Theoretische Vorhersage	$\langle Q^2 \rangle$ in GeV ²
SMC [C ₄ D ₉ OD], EMC [NH ₃]	0.20+/-0.05+/-0.04	0.191+/-0.002	4.6
SMC [C ₄ D ₉ OH], SMC [C ₄ D ₉ OD], E142 [³ He]	0.163+/-0.017	0.185+/-0.004	5
E142 [³ He], EMC [NH ₃]	0.146+/-0.021	0.183+/-0.007	2
E143 [NH ₃], E142 [³ He]	0.151+/-0.014	0.171+/-0.008	3

Tab. 1: Experimente zur Überprüfung der Bjorken-Summenregel und ihre Ergebnisse im Vergleich zur theoretischen Vorhersage [siehe auch DESY 94], [SMC 98]

Ellis und Jaffe nahmen zur weiteren Vereinfachung an, daß auch das Auftreten der s-Quarks im See wegen ihrer größeren Masse gegenüber u- und d-Quarks zu vernachlässigen sei. Mit dieser Annahme sind die Integrale über g_1 des Protons und des Neutrons nur Funktionen von Δu und Δd und können einzeln in Beziehung zu bekannten Zerfallskonstanten gesetzt werden:

$$\int_0^1 g_1^p(x) dx = 0.176 \pm 0.006$$

bei $Q^2 = 10 \text{ GeV}^2$

$$\int_0^1 g_1^n(x) dx = -0.002 \pm 0.005$$

bei $Q^2 = 4.6 \text{ GeV}^2$

Die ersten Experimente zu dieser Fragestellung am SLAC wurden am Proton durchgeführt und bestätigten wegen ihres eingeschränkten kinematischen Bereichs ($0,1 < x < 0,7$) und größerer Fehler die Ellis-Jaffe-Summenregel. Erst 1987 entdeckte die EMC-Gruppe am CERN eine signifikante Abweichung. Die Tabelle 2 informiert über die Ergebnisse der verschiedenen Experimente zur Überprüfung der Ellis-Jaffe Summenregel.

$$\int_0^1 g_1^p(x) dx, \int_0^1 g_1^d(x) dx, \int_0^1 g_1^n(x) dx$$

Experiment [Target]	Meßergebnis	Theoretische Vorhersage	$\langle Q^2 \rangle$ in GeV^2
<u>Proton</u>			
EMC [NH_3], 88	0.126+/-0.10+/-0.015	0.189+/-0.005	10
SVC [$\text{C}_4\text{H}_9\text{OH}$], 93	0.136+/-0.011+/-0.011	0.176+/-0.006	10
SVC [$\text{C}_4\text{H}_9\text{OH}$], [NH_3] ¹	0.120+/-0.005+/-0.006+/-0.014	0.176+/-0.006	10
E143 [NH_3], 95	0.129+/-0.004+/-0.009	0.160+/-0.006	3
<u>Deuteron</u>			
SVC [$\text{C}_4\text{D}_9\text{OD}$], 95	0.023+/-0.020+/-0.015	0.085+/-0.005	4,6
E143 [ND_3], 95	0.044+/-0.003+/-0.004	0.068+/-0.004	3
E155 [^6LiD], 96 ²	0.0288+/-0.0025+/-0.0071		5
<u>^3He</u>			
E142 [^3He], 93	-0.022+/-0.007+/-0.009	-0.021+/-0.018	2
E154 [^3He], 95	-0.036+/-0.004+/-0.005*		5

Tab. 2: Experimente zur Überprüfung der Ellis-Jaffe-Summenregel und ihre Ergebnisse im Vergleich zur theoretischen Vorhersage [siehe auch DESY 94]

*Integral über den gemessenen x -Bereich ohne Extrapolation für $x \rightarrow 1$, $x \rightarrow 0$

Die Spinanteile aller Konstituenten des Nukleons müssen sich zum Nukleonenspin addieren:

$$S_z = \frac{1}{2} \cdot (\Delta u + \Delta d + \Delta s) + \Delta G + \langle L_z \rangle = \frac{1}{2}$$

Glukonen sind die Träger der starken Wechselwirkung und tragen Spin 1. Dem Vorhandensein spinbehafteter Glukonen im Nukleon wird in der Summe durch ΔG Rechnung getragen. Die Bahndrehimpulse der Konstituenten müssen ebenfalls

¹ Daten aus [SMC98], ² Daten aus [SLAC99]

berücksichtigt werden. Der Beitrag von u-, d- und s-Quark wird mit $\Delta\Sigma$ bezeichnet. Folgt man dem Ansatz von Ellis und Jaffe und berücksichtigt Δs nicht, kann man die Summe $\Delta\Sigma'$ theoretisch vorhersagen [Ell74]:

$$\Delta\Sigma' = \Delta u + \Delta d = 0.579 \pm 0.025$$

Das Ergebnis der Messungen am Proton und Neutron beträgt 0.39 ± 0.11 ($Q^2=10 \text{ GeV}^2$) und ist im Rahmen der Fehler mit der Vorhersage nicht vereinbar. Diese Diskrepanz ist 1987 als Spinkrise in die Teilchenphysik eingegangen. Unter Berücksichtigung des s-Quarks im Nukleon ergeben sich folgende Meßergebnisse [SMC97]:

$$\Delta\Sigma = 0.30 \pm 0.08 \quad \Delta s = -0.09 \pm 0.03$$

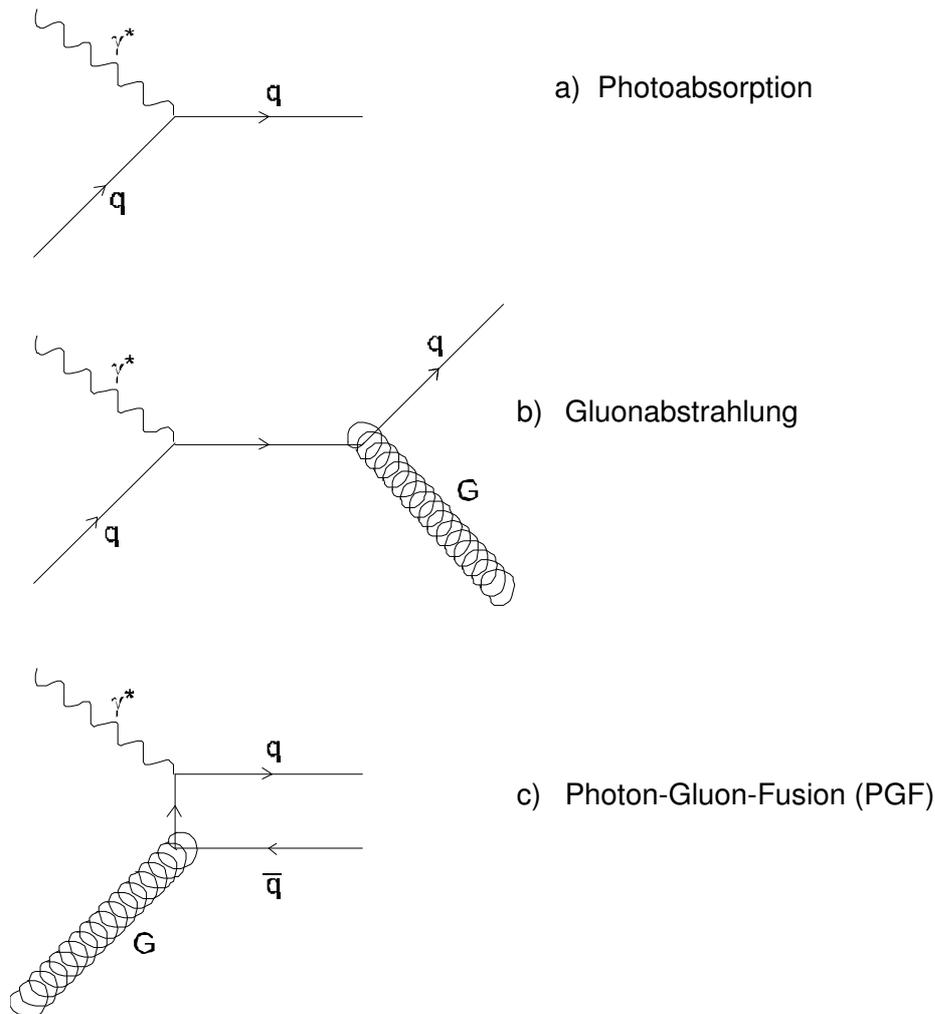
Zielsetzung des COMPASS-Experiments

COMPASS steht abgekürzt für „**C**ommon **M**uon and **P**roton **A**pparatus for **S**tructure and **S**pectroscopy“. Es handelt sich um das aufwendigste CERN-Experiment der nächsten Jahre mit ruhendem Target. Mit ihm sollen möglichst viele Fragestellungen zur Struktur der Hadronen behandelt werden. Aus dieser Vielseitigkeit resultiert ein umfangreiches Meßprogramm, in dem sowohl Hadronen in unpolarisierter wie Myonen in doppelt polarisierter tief inelastischer Streuung als Projektile eingesetzt werden. Diese Arbeit ist Bestandteil des polarisierten Meßprogramms und alle Informationen zum Experiment beschränken sich auf den polarisierten Teil.

Ziel der früheren Experimente war die Messung von $g_1(x)$ über einen möglichst weiten kinematischen Bereich, damit der Fehler in der Bestimmung des ersten Moments von g_1 bei Interpolation zu $x=0$ und zu $x=1$ klein bleibt. COMPASS benutzt genau wie das Vorgängerexperiment SMC am CERN einen 200 GeV Myonenstrahl, der einen weiten kinematischen Bereich ($0,001 < x < 0,7$) erschließt. Die Strahlintensität soll gegenüber dem SMC-Experiment verdoppelt werden. Dann wird es möglich sein den statistischen Fehler von g_1 des Protons um den Faktor 3 und den des Deuterons um den Faktor 4 zu verringern.

Bereits heute steht fest, daß der Spin des Nukleons nicht allein von den Quarks getragen wird. Hauptanliegen des Experiments ist es herauszufinden, welchen Anteil der Gluonenspin am Nukleonenspin hat. COMPASS versucht die Gluonenpolarisation ΔG so genau zu bestimmen, daß die Rolle der Gluonen in diesem Zusammenhang eindeutig geklärt werden kann.

Ausdruck für die Anwesenheit der Gluonen im Nukleon ist die Skalenbrechung. Unter Skalenbrechung versteht man eine geringe Q^2 -Abhängigkeit der Strukturfunktionen bei konstantem x . Diese Abweichung ist durch die gute Statistik der unpolarisierten tief inelastischen Experimente der letzten Jahrzehnte sehr genau bekannt und man kann Informationen über die Gluonen aus dem Vergleich der Skalenbrechung mit QCD-Berechnungen gewinnen. Prinzipiell ist die Bestimmung des ersten Moments der Gluonenpolarisation ΔG durch Anlegen von QCD-Berechnungen an die Skalenbrechung der spinabhängigen Strukturfunktion $g_1(x, Q^2)$ möglich [Bra98], jedoch ist die Messung von g_1 mit sehr viel größeren statistischen Fehlern als die Messung der spinunabhängigen Strukturfunktionen versehen. Die Statistik der Meßdaten würde auf Jahre hinaus nicht ausreichen, um aussagekräftige Ergebnisse für die Gluonenpolarisation zu liefern. Aus diesem Grund ist man zur Bestimmung von ΔG darauf angewiesen in semi-inklusive Messung nach harten Prozessen zu suchen, in denen das Gluon in niedrigster Ordnung von α_s eingeht. Folgende Prozesse sind zu beobachten [Bra98]:



Nach [Bra98] kann nur die Photon-Gluon-Fusion (PGF) zur Ermittlung von ΔG benutzt werden. Das Gluon tritt in den dargestellten Prozessen bei der PGF im Anfangszustand auf. Die anderen beiden Prozesse tragen nur zum Untergrund bei. Zur Abtrennung des Untergrundes müssen Kriterien gefunden werden, die den PGF-Prozeß identifizieren und die garantieren, daß es sich um einen harten Streuprozeß handelt.

1. „Open Charm Production“¹

Es bietet sich an in semi-inklusiver Messung nach Hadronen zu suchen, in die die erzeugten Charm- und Anticharm-Quarks fragmentieren. Die Produktion der schweren c-Quarks garantiert die Härte des Prozesses und weil es keine c-Valenzquarks im Nukleon gibt, muß an der Entstehung eines c-Quarks ein Gluon beteiligt sein.

2. „High- P_T Pairs“

Wenn ein Gluon in ein Quark-Antiquarkpaar zerfällt, laufen im Schwerpunktsystem des Gluons das Quark und das Antiquark mit entgegengesetzten Impulsen auseinander. Wenn ein Gluon zerfällt, das von einem getroffenen Quark abgestrahlt wird (Prozeß b), oder wenn es im Feld des einlaufenden virtuellen Photons (PGF) zerfällt, sind im Laborsystem die resultierenden Impulse vorwärts gerichtet und man mißt ein Paar ladungskonjugierter Hadronen mit entgegengesetzt gerichteten hohen Transversalimpulsen. Die Suche nach diesen Hadronenpaaren dient dazu den hohen Untergrund durch Photoabsorption (Prozeß a) zu unterdrücken. Ein großer

¹ Es gab bereits Überlegungen ΔG mit Hilfe der spinabhängigen J/Ψ Photoproduktion („hidden charm“) am polarisierten Target zu messen (Apollon-Experiment/DESY).

Transversalimpuls garantiert gleichzeitig die Härte des Prozesses. Die PGF trägt ungefähr doppelt so stark zur Asymmetrie bei wie die Gluonabstrahlung. Die gemessene Asymmetrie muß rechnerisch vom Beitrag der Gluonabstrahlung befreit werden, wenn nicht an einem isoskalaren Targetmaterial gestreut wird [Bra98]. Ein isoskalares Targetmaterial ist dadurch ausgezeichnet, daß es genau so viele Protonen wie Neutronen enthält. Die Asymmetrie aufgrund von Gluonabstrahlung ist proportional zur inklusive gemessenen Asymmetrie A_1 , die bei Streuung am isoskalaren Targetmaterial im interessanten kinematischen Bereich klein ist.

Mit diesen Methoden soll $\Delta G/G$ mit einem Fehler zwischen ± 0.1 und ± 0.15 bestimmt werden [COM96]. Dieser Fehler ist klein genug, um zu entscheiden, welchen Anteil der Gluonenspin am Nukleonenspin hat.

Bis heute hat nur das E155-Experiment am SLAC längere Zeit am transversal polarisierten Target gemessen und Daten zu g_2 gewonnen [SLAC99a]. In einem untergeordneten Meßprogramm sollen 20% der Meßzeit zur Messung am transversal polarisierten Target verwendet werden und es soll $g_2(x, Q^2)$ mit verbesserter statistischer Genauigkeit auch bei kleineren x -Werten gemessen werden. Aus der Messung am transversal polarisierten Target können die transversalen Spinverteilungsfunktionen Δq_T gewonnen werden [COM96].

$$\Delta q_T = q_{\uparrow}(x) - q_{\downarrow}(x)$$

\uparrow / \downarrow : Quarkpolarisation parallel / antiparallel zum transversalen Nukleonenspin

In Analogie zu $g_1(x)$ bietet es sich an eine Strukturfunktion $h_1(x)$ zu konstruieren:

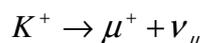
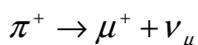
$$h_1(x) = \frac{1}{2} \cdot \sum_q e_q^2 \cdot \{ \Delta q_T(x) + \Delta \bar{q}_T(x) \}$$

$h_1(x)$ kann nicht aus Streuung an einem einzigen Quarkflavor gewonnen werden, sondern es muß der Beitrag jedes im Nukleon vorkommenden Quarkflavors zu h_1 berücksichtigt werden.

Experimenteller Aufbau

Strahl

Das Super Proton Synchrotron (SPS) beschleunigt Protonen auf eine Endenergie von 450 GeV. Alle 14,4 Sekunden werden die Protonen zwei Sekunden lang extrahiert und auf eine Berylliumplatte geschossen. Dort entsteht eine Vielfalt von Sekundärteilchen, die die Platte mit großen Vorwärtsimpulsen verlassen. Mit einem Magneten werden positiv geladene Pionen und Kaonen in einem engen Impulsbereich ausgesucht und auf eine 500 Meter lange Zerfallsstrecke gelenkt. Dort entsteht der Myonenstrahl in den Zerfallsreaktionen:



Es handelt sich um einen Zerfall in zwei Teilchen, die im Schwerpunktsystem in entgegengesetzte Richtungen emittiert werden. Das Pion und das Kaon haben Spin Null, weshalb die Spins der Leptonen stets entgegengesetzt gerichtet sein müssen. Sie besitzen beide die Helizität $-1/2$, weil die Helizität des Neutrinos festliegt. Dieser Zweikörperzerfall zur Erzeugung des Sekundärteilchenstrahls besitzt die nützliche

Eigenschaft, daß er einen natürlich polarisierten Myonenstrahl liefert. Bei einer Myonenenergie von 200 GeV werden 80% Polarisation erreicht [s. auch Mal96]. Nach der 500 Meter langen Zerfallsstrecke werden alle verbleibenden hadronischen Bestandteile des Strahls in einem ungefähr 10 Meter langen Hadronenstopper abgestreift und der gereinigte Myonenstrahl wird auf das Polarisierte Target fokussiert. Im Mittel entstehen aus einem Proton des SPS nur 10^{-5} Myonen und der maximale Strahlstrom ist auf $2 \cdot 10^8$ Myonen pro SPS Zyklus beschränkt.

Semi-inklusive Messung

Für die Messung der Gluonenpolarisation sucht man nach den Hadronen, in die die getroffenen c-Quarks fragmentieren oder nach gegensätzlich geladenen Hadronenpaaren, die mit großen entgegengerichteten Transversalimpulsen emittiert werden. Auch bei diesen „high- p_T “-Paaren sucht man vorzugsweise nach Produkten der entstandenen c-Quarks [Bra98].

Die c-Quarks fragmentieren vorzugsweise in D-Mesonen, deren Zerfallsprodukte, Kaonen und Pionen, detektiert werden. Im Mittel entstehen 1,2 D^0 und 0,3 D^{+} - oder D^{-} - Mesonen pro Charm-Anticharm-Ereignis. Der Zweikörperzerfall des D^0 in Kaon und Pion kommt mit einer Wahrscheinlichkeit von 4% vor und ist am leichtesten zu identifizieren. Daneben gibt es mehrere Drei- und Vierkörperzerfälle:

$$D^0 \rightarrow K^- \pi^+$$

$$D^0 \rightarrow K^- \pi^+ \pi^0$$

$$D^0 \rightarrow K^- \pi^+ \pi^+ \pi^-$$

$$D^+ \rightarrow K^- \pi^+ \pi^+$$

Zur Identifizierung und zur Bestimmung der kinematischen Größen der interessierenden Hadronen setzt COMPASS ein Spektrometer ein, das aus zwei analog aufgebauten Detektorketten besteht. Die beiden Spektrometer sind so abgestuft, daß sie verschiedene Impulsbereiche abdecken. Jedes Spektrometer besteht aus den Komponenten:

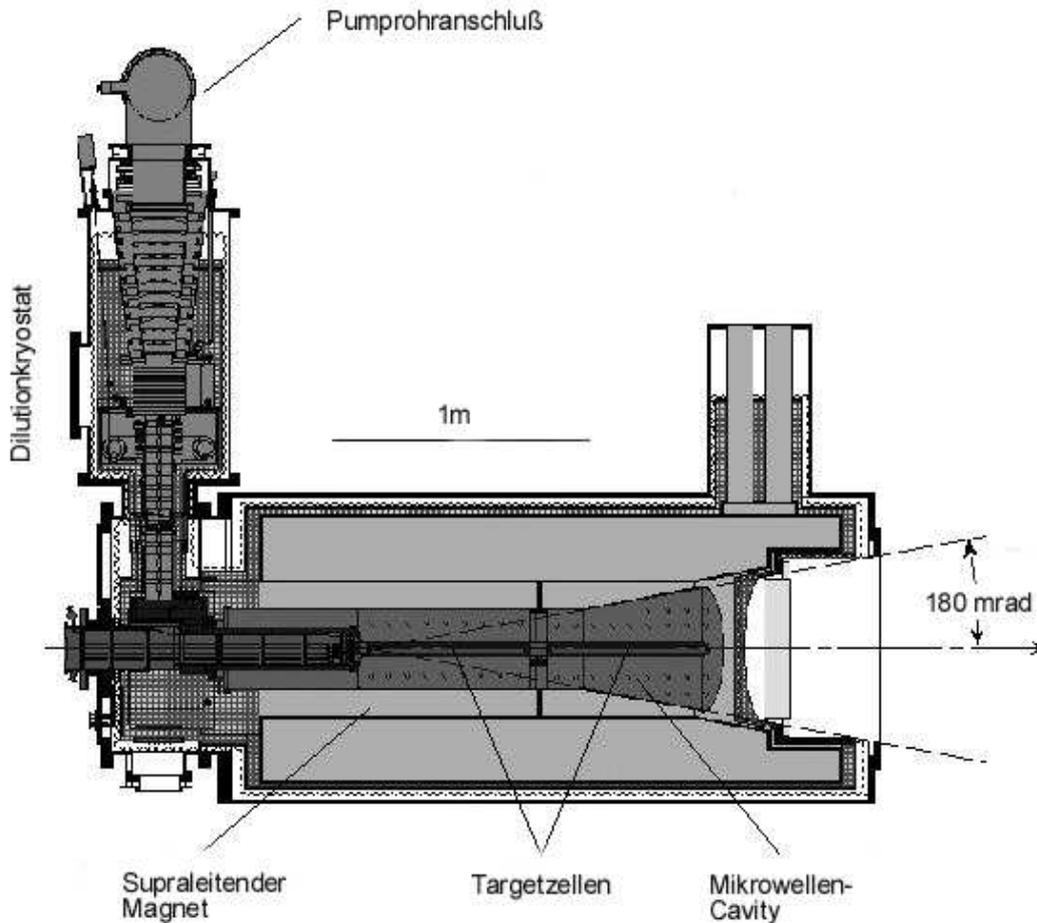
- Spektromettermagnet (SM 1/2)
- Ring abbildender Cherenkovzähler (RICH 1/2)
- Elektromagnetisches Kalorimeter (ECAL 1/2)
- Hadronisches Kalorimeter (HCAL 1/2)
- Myonenfilter (μF 1/2)

Der Spektromettermagnet sortiert die geladenen Teilchen nach ihren Impulsen. Der nachgeschaltete RICH dient der Teilchenidentifikation. RICH 1 trennt Pionen, Kaonen und Protonen im Impulsbereich bis 65GeV/c, RICH 2 im höheren Impulsbereich bis 120GeV/c. Die Bahn der gestreuten Myonen wird mit Hilfe von mehreren Detektorstationen zwischen Target und Myonenfilter verfolgt und das Myon wird identifiziert, indem es auch nach dem Myonenfilter detektiert wird, der sich am Ende der Detektorkette befindet und alle Hadronen ausfiltert. Eine genaue Beschreibung der einzelnen Detektorkomponenten findet sich in [COM96].

Polarisiertes Target

Der Myonenstrahl ist aufgrund seines Erzeugungsprozesses als Sekundärteilchenstrahl auf kleine Intensitäten beschränkt. Damit trotzdem eine hohe Luminosität erreicht wird, muß das Polarisierte Target eine entsprechend größere Flächentargetdichte aufweisen. Im Polarisierten COMPASS-Target befindet sich das Targetmaterial in zwei 600mm langen zylinderförmigen Targetzellen mit 30mm Durchmesser. Beide Targetzellen fassen zusammen 850cm^3 Targetmaterial. Mit diesen im Maßstab Polarisierter Festkörpertargets riesigen Dimensionen wird eine Luminosität von $5 \cdot 10^{32}\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ erreicht [COM96].

Das Target besteht aus einem leistungsstarken Dilutionkryostat, der sich bereits im SMC-Experiment bewährt hat, und einem neuen supraleitenden Magneten mit 2,5 T Feld. Der Neubau des Magneten war nötig geworden, weil gegenüber dem inklusiven SMC-Experiment ein vergrößerter freier Austrittswinkel für die auslaufenden Hadronen gebraucht wird. Die Abbildung zeigt die Größenverhältnisse des Polarisierten COMPASS-Targets.



Die Polarisationsrichtung der Myonen ist durch den Pionenzerfall festgelegt und man kann die Polarisationsrichtung nicht wie bei Elektronen in schnellem Wechsel ändern. Würde sich die Strahlintensität zwischen zwei Meßzyklen mit positiver und negativer Targetpolarisation leicht ändern, würde dadurch die Zählratenasymmetrie verfälscht. Im COMPASS-Experiment wird dieser Fehler dadurch vermieden, daß die beiden Targetzellen entgegengesetzt polarisiert sind. Zur Messung der Asymmetrie muß man sicher unterscheiden können, in welcher Targethälfte eine Reaktion stattgefunden hat. Darüber hinaus wird im COMPASS Target die Polarisation mit fünf auf die Länge jeder Targethälfte verteilten NMR-Spulen gemessen und die Homogenität der Polarisation in der ganzen Targetzelle überwacht.

In jedem eingesetzten Polarisierten Targetmaterial gibt es nicht nur polarisierte Nukleonen. Ihr Anteil an der Gesamtzahl der Nukleonen im Target wird als Dilutionfaktor bezeichnet. Eine Polarisation kleiner 100% und der Dilutionfaktor verringern die gemessene Zählratenasymmetrie. Es gilt:

$$\frac{N_+ - N_-}{N_+ + N_-} = P_\mu \cdot P_T \cdot f \cdot A_-$$

$N_{+/-}$: Zählrate (P_T in/entgegen der Strahlpolarisation)
 $P_{\mu/T}$: Strahl-/Targetpolarisation
 f : Dilutionfaktor
 A_- : Physikalische Asymmetrie

Zur Bestimmung der Gluonenpolarisation ist man auf kleine statistische Fehler angewiesen. Die Maximierung der Zählratenasymmetrie durch hohe Targetpolarisation und Wahl eines Targetmaterials mit großem Dilutionfaktor standen dazu im Vordergrund. Es werden Ammoniak (NH_3) und Lithiumdeuterid (${}^6\text{LiD}$) als Protonenmaterial und isoskalares Material eingesetzt. Das Ammoniak wurde bereits im SMC-Experiment verwendet und steht für die kommende Messung zur Verfügung. Das ${}^6\text{LiD}$ zeichnet sich durch einen besonders hohen Dilutionfaktor aus, der dadurch zustande kommt, daß neben dem Deuteron auch der ${}^6\text{Li}$ -Kern polarisiert ist und auch seine Polarisation für die Asymmetriemessung benutzt werden kann. Ein weiterer Vorteil des ${}^6\text{LiD}$ ist, daß es sich um ein isoskalares Targetmaterial handelt. Es enthält gleich viele Protonen wie Neutronen, so daß die Asymmetrie zu gleichen Teilen von polarisierten Protonen und Neutronen hervorgerufen wird und man effektiv die Asymmetrie am polarisierten Nukleon mißt.

Die Erforschung der Dynamischen Nukleonenpolarisation im ${}^6\text{LiD}$, die Präparation des Targetmaterials und die Optimierung seiner Polarisationseigenschaften für die Erfordernisse des COMPASS-Experiments sind Gegenstand dieser Arbeit. Nach einer Einführung der Dynamischen Nukleonenpolarisation (DNP) im Bild der „Equal Spin Temperature“-Theorie wird der Dilutionfaktor des ${}^6\text{LiD}$ berechnet. Ein Vergleich mit alternativen Targetmaterialien zeigt die besondere Eignung des ${}^6\text{LiD}$ für COMPASS. Die ${}^6\text{LiD}$ -Kristalle sind an der Ruhr-Universität Bochum in Zusammenarbeit mit dem Institut für Anorganische Chemie dargestellt worden und das Verfahren der Synthese und Kristallisation wird ausführlich vorgestellt.

Die Art und Lage der paramagnetischen Zentren im Kristall bestimmt die Wirksamkeit der DNP. Die Zentren werden infolge einer Strahlenschädigung bei genau definierter Temperatur erzeugt. Zur Zentrenzeugung dient eine Bestrahlungsapparatur, die in der vorangehenden Diplomarbeit entwickelt wurde [Mei97] und die in Grundzügen hier noch einmal vorgestellt wird. Der Forschungsschwerpunkt der Arbeit liegt in der Charakterisierung der Zentren und im Verständnis der Vorgänge während der DNP. Dazu wurden die Zentren, die mit unterschiedlichen Präparationsmethoden erzeugt worden sind, in Elektronenspinresonanz und optischer Spektroskopie untersucht. Im Anschluß wurden die Proben bei 1K und bei 200mK in einem 2,5T Magnetfeld dynamisch polarisiert und ihre Polarisationseigenschaften gemessen.

1. Dynamische Nukleonenpolarisation im EST-Bild

Die Wechselwirkung des magnetischen Moments eines Kernspins mit einem starken äußeren magnetischen Feld hat eine Aufspaltung des Energieniveaus in $2m+1$ äquidistante Energieniveaus zur Folge. Es handelt sich um den Kern-Zeemaneffekt. Die Wechselwirkung wird durch den Hamiltonoperator

$$H = -\vec{\mu} \cdot \vec{B} = -g \cdot \mu_N \cdot \vec{I} \cdot \vec{B} \quad (1.1)$$

g: g-Faktor
 μ_N : Kernmagneton
 I: Kernspin
 B: magnetische Flußdichte

beschrieben.

Bei einer Ungleichbesetzung der Energieniveaus spricht man von einer Kernspinpolarisation. Für ein Spin-1/2-System gilt:

$$P_{1/2} = \frac{N_{1/2} - N_{-1/2}}{N_{1/2} + N_{-1/2}} \quad (1.2)$$

N_m : Besetzungszahl des Niveaus
 magnetischer Quantenzahl m

mit

Bei einem Spin-1-System wird neben dieser Vektorpolarisation auch die Tensorpolarisation P_T eingeführt. Die Tensorpolarisation gibt anschaulich die Abweichung des Mittelwerts der Besetzungszahlen N_1 und N_{-1} von der Besetzungszahl N_0 wider.

$$P_1 = \frac{N_1 - N_{-1}}{N_1 + N_0 + N_{-1}}$$

$$P_T = \frac{(N_1 - N_0) - (N_0 - N_{-1})}{N_1 + N_0 + N_{-1}} = \frac{N_1 + N_{-1} - 2 \cdot N_0}{N_1 + N_0 + N_{-1}} \quad (1.3)$$

Wirken außer dem äußeren Magnetfeld keine weiteren Störungen auf das Spinsystem und steht das Spinsystem über Relaxationsprozesse mit dem Gitter in Kontakt, nimmt das Spinsystem nach einer Angleichzeit eine Boltzmannverteilung ein:

$$N(E + \Delta E) = N(E) \cdot e^{-\frac{\Delta E}{kT_L}} \quad (1.4)$$

Einsetzen in Gleichung (1.2) und (1.3) zeigt die funktionale Abhängigkeit der Polarisation von der Gittertemperatur T_L und dem äußeren Magnetfeld:

$$\begin{aligned}
P_{1/2} &= \tanh \frac{g \cdot \mu_N \cdot B}{2 \cdot k \cdot T_L} \\
P_1 &= \frac{4 \cdot \tanh \frac{g \cdot \mu_N \cdot B}{2 \cdot k \cdot T_L}}{3 + \tanh^2 \frac{g \cdot \mu_N \cdot B}{2 \cdot k \cdot T_L}} \\
P_T &= \frac{4 \cdot \tanh^2 \frac{g \cdot \mu_N \cdot B}{2 \cdot k \cdot T_L}}{3 + \tanh^2 \frac{g \cdot \mu_N \cdot B}{2 \cdot k \cdot T_L}}
\end{aligned}
\tag{1.5}$$

In Dilutionkryostaten, die nach dem Prinzip der Entmischung eines ^3He - ^4He -Bades arbeiten, lassen sich Temperaturen bis zu 20mK erreichen. Beim derzeitigen Stand der Technik sind supraleitende Magnete mit einer magnetischen Flußdichte von 20 Tesla herstellbar. In einem solchen Magnetfeld berechnet sich die Polarisation eines Protonenspinsystems zu 77% und eines Deuteronenspinsystems zu 21% im thermischen Gleichgewicht mit einer Gittertemperatur $T_L=20\text{mK}$. Diese sogenannten Brute-Force-Methode stellt theoretisch eine Möglichkeit zum Bau polarisierter Targets dar, ist aber wegen der extrem langen Aufbauzeiten nur schwer realisierbar. Neben der langen Aufbauzeit bestehen technische Probleme bei der Lagerung und beim Transport der polarisierten Probe.

Höhere Polarisierungsergebnisse lassen sich einfacher mit Hilfe der Dynamischen Nukleonpolarisation (DNP) erzielen. Ein Elektronenspinsystem ist aufgrund der kleineren Masse des Elektrons gegenüber dem Nukleon bei tiefen Temperaturen und hohen Magnetfeldern bereits annähernd vollständig polarisiert. Im Gleichgewicht mit Temperaturen unter einem Kelvin und Magnetfeldern größer als 2,5 Tesla errechnen sich mindestens 93% Elektronenpolarisation, wenn in die Gleichungen (1.5) $g=2$ und das Bohrsche Magneton eingesetzt wird. Durch Einstrahlung von HF-Feldern geeigneter Frequenz läßt sich diese hohe Elektronenpolarisation teilweise auf das Nukleonenspinsystem übertragen. Das nötige Elektronenspinsystem wird von paramagnetischen Stellen im Kristallgitter oder von chemischen Radikalen gestellt. Diese werden entweder bei Targetmaterialien, die bei Raumtemperatur flüssig sind, durch Zumischen von chemischen Radikalen und anschließendem Einfrieren in flüssigem Stickstoff erzeugt oder als Folge von Strahlenschädigungen in einer Bestrahlung bei geeigneter Temperatur eingebracht.

Für das Verständnis der DNP ist es wichtig die Energieniveaus und Besetzungszahlen des Elektronenspinsystems zu behandeln. Im starken äußeren Magnetfeld spaltet das entartete Energieniveau eines einzelnen separierten paramagnetischen Zentrums in zwei scharfe Energieniveaus auf. Betrachtet man mehrere Zentren, tritt eine Dipolwechselwirkung zwischen den starken magnetischen Momenten der Elektronen auf, die mit der dritten Potenz des Abstands der Zentren abfällt. Betrachtet man ein ganzes Ensemble von Elektronenspins, die über Dipolwechselwirkung miteinander in Kontakt stehen, dann entsteht aus den scharfen Energien durch Überlagerung der leicht verschobenen Niveaus der Zentren eine schmale Bandstruktur, wie sie Abbildung 1.1 anschaulich macht.

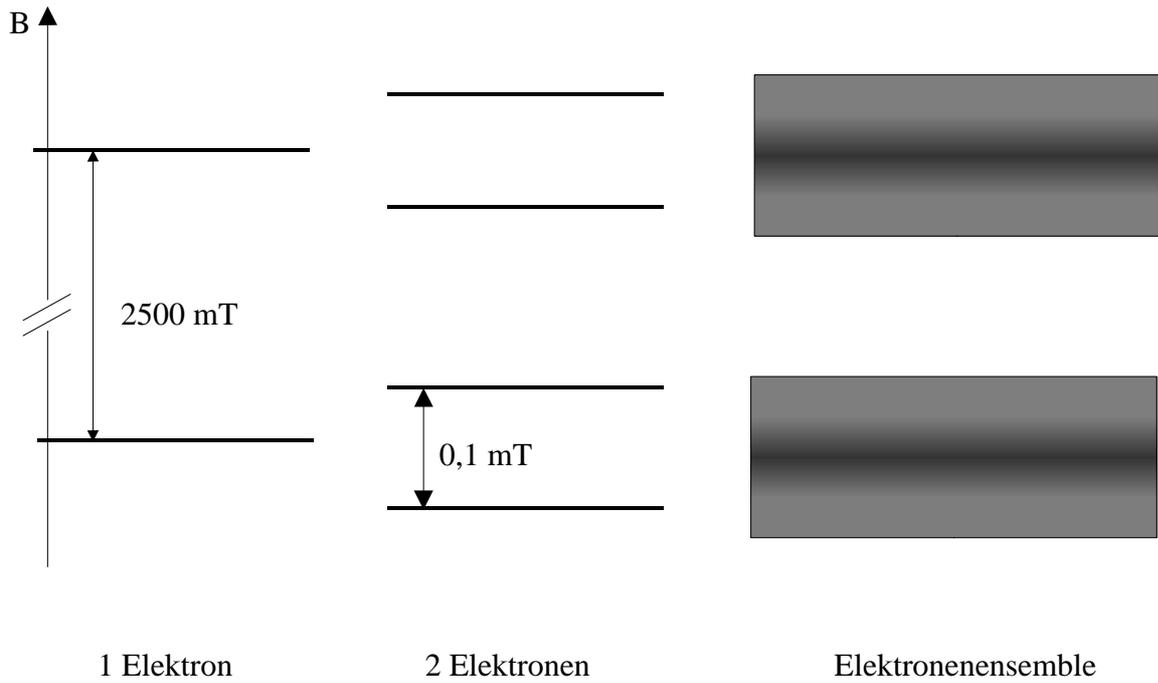


Abb. 1.1: Energieniveaus eines Elektronensystems im starken äußeren Magnetfeld

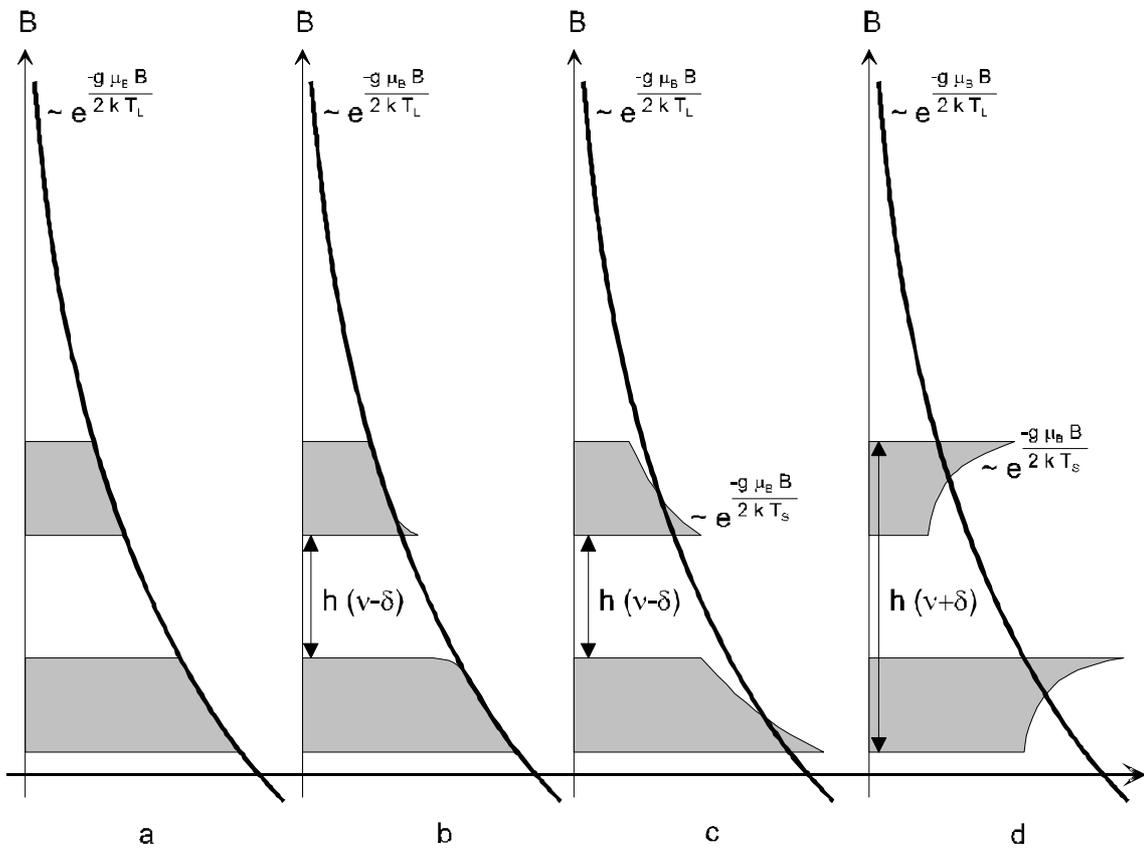


Abb. 1.2: Verteilung der Elektronen bei der Auftragung der Aufspaltungsenergie in Einheiten des Magnetfeldes gegen die Besetzungszahl

Die Untersuchung der entstehenden Zentrenkonzentration in Abhängigkeit von der Bestrahlungsdosis (siehe 4.1) zeigt, daß nach der Elektronenbestrahlung mit einer Dosis von 10^{17}cm^{-2} eine Zentrenkonzentration von $1,2 \cdot 10^{19} \text{g}^{-1}$ vorliegt. Bei einer völlig gleichmäßigen Verteilung der Zentren liegen 4nm, entsprechend zehn Gitterkonstanten, zwischen den Fehlstellen. Eine Abschätzung der Dipolwechselwirkungsstärke unter Berücksichtigung der realistischeren statistischen Verteilung der Zentren nach [Por53] ergibt eine Halbwertsbreite der Bandstruktur in Einheiten des Magnetfelds $\Delta B_D = 0,1 \text{mT}$. Die Wechselwirkungsenergie ist dabei in Einheiten des Magnetfeldes umgerechnet worden:

$$\Delta B_D = 5.3 \cdot \mu_B \cdot g \cdot N$$

$$\Delta E = g \cdot \mu_B \cdot \Delta B$$

N: Zentren pro cm^3

μ_B : Bohrsches Magneton

Der energetische Abstand zwischen den beiden Bändern entspricht dem außen angelegten Feld, das in allen Polarisationsversuchen dieser Arbeit 2,5 T betrug.

$$\Delta B_{ZE} = 2500 \text{mT}$$

An dieser Stelle fällt auf, wie schmal die Bandstruktur im Vergleich zur Zeemanaufspaltung ist, und wie stark die Illustration in Abbildung 1.1 die Bandstruktur vergrößert. Der Vergleich der theoretisch berechneten HFS-verbreiterten Spektren mit ESR-Messungen (siehe 4.2) trifft so gut, daß die Dipolwechselwirkung nur einen kleinen verbreiternden Einfluß auf die ESR-Linie haben kann, der sich glättend auf das gemessene Spektrum auswirkt. Die HFS ist im Falle des ${}^6\text{LiD}$ ungefähr vierfach stärker als die Dipolwechselwirkung, wenn man den a-Parameter der ersten Schale mit ΔB_D vergleicht. Der a-Parameter mißt die Stärke des Kontaktwechselwirkung der HFS (s. 4.2).

$$a({}^6\text{LiD}) = \Delta B_{\text{HFS}} = 0.4 \text{mT}$$

Man kann sich die Wirkungsweise der Dynamischen Nukleonenpolarisation im EST Bild am besten durch Auftragen der Energieniveaus des Elektronenspinsystems gegen die Besetzungszahlen vergegenwärtigen. In Abbildung 1.2 sind sowohl die Besetzungszahlen für den Fall des thermischen Gleichgewichts (a) mit dem äußeren Magnetfeld und der Gittertemperatur T_L als auch die Verhältnisse bei positiver (c) und negativer dynamischer Polarisation (d) gezeigt. Im thermischen Gleichgewicht folgen die Besetzungszahlen nach einer gewissen Angleichzeit der Boltzmannverteilung. Die Besetzungszahlen der beiden Bänder und auch innerhalb eines jeden Bandes schmiegen sich an die Exponentialfunktion

$$\sim e^{-\frac{g \cdot \mu_B \cdot B}{2 \cdot k_B \cdot T_L}}$$

an.

Die EST-Theorie ordnet der Elektronenzeeman-, der Elektronendipol- und der Nukleonenzeemanwechselwirkung Energiereservoirs zu, die durch die Temperaturen T_{ZE} , T_S und T_{ZN} gekennzeichnet sind. Die Elektronen stehen über direkte Relaxationsprozesse mit dem Gitter in Kontakt. Die Nukleonen stehen in sehr viel schwächerem Kontakt zum Gitter, denn sie können nur über gekoppelte Elektronen-Nukleonenübergänge relaxieren [Bor71]. Im thermischen Gleichgewicht passen sich alle Temperaturen der Gittertemperatur an:

$$T_{ZE} = T_S = T_{ZN} = T_L.$$

Zur Erzeugung dynamischer Nukleonpolarisation wird Hochfrequenzstrahlung in sättigender Intensität eingestrahlt, die eine von der Elektronenlarmorfrequenz ν_0 gering abweichende Frequenz hat.

$$\nu = \nu_0 \pm \delta, \delta > 0$$

Die intensive Einstrahlung ermöglicht Übergänge zwischen definierten Randbereichen der beiden Bänder im Energiespektrum der Elektronen. Die Besetzungszahlen dieser Randbereiche gleichen sich einander an und es kommt zu einer partiellen Sättigung der Bänder. Wenn es die dipolare Wechselwirkung nicht gäbe und die Elektronenspins wären ohne Kontakt untereinander, könnten nur die Elektronenspins zu Übergängen angeregt werden, deren Energiedifferenz exakt zur HF-Frequenz paßt und die Situation b in Abbildung 1.2 würde eintreten. Dies entspricht im EST-Bild der Aussage, daß sich im Dipolreservoir keine einheitliche Spintemperatur ausbreiten kann. Erst mittels des dipolaren Kontakts unter den Elektronen können Spinpakete in die entvölkerten Bereiche des Bandes nachrücken bzw. können überbevölkerte Bereiche geleert werden und eine gemeinsame Spintemperatur T_s kann sich ausbreiten. Wenn der Kontakt zwischen den Elektronen auch schwach ist, so übernimmt er für die DNP doch diese essentielle Aufgabe. Die Temperatur T_s strebt bei sättigender Einstrahlung der HF-Quanten gegen Null. Die HF-Einstrahlung der Frequenz $\nu_0 - \delta$ erzeugt positive Temperaturen, die im rechtsseitigen Limes gegen Null streben, und positiver Polarisation entsprechen. Man spricht vom "Kühlen" des Dipolspinreservoirs. Bei Wahl der Frequenz $\nu_0 + \delta$ erzeugt man negative Temperaturen, die im linksseitigen Limes gegen Null streben, negative Polarisation erzeugen und man spricht vom "Heizen" des Reservoirs. Thermodynamisch sind negative Temperaturen ausgeschlossen und an diesem Punkt wird klar, daß trotz vieler Analogien der Spintemperaturbegriff vom thermodynamischen Temperaturbegriff unterschieden werden muß.

Die Hyperfeinstrukturwechselwirkung koppelt die Nukleonen an die Elektronen und schafft die Möglichkeit, daß ein Nukleonenspin mit einer kleinen Wahrscheinlichkeit zusammen mit einem Elektronenspin umklappt. Über diese gekoppelten Elektronen-Nukleonenübergänge stehen Elektronen und Nukleonen miteinander in Kontakt und diese Prozesse sind es, die die Temperatur des Nukleonenzeemanreservoirs T_{ZN} an die Dipolspintemperatur der Elektronen T_s angleichen und für einen Polarisationsübertrag vom Elektronensystem auf das Nukleonensystem sorgen. Die HFS gehört zu den inhomogenen Verbreiterungsmechanismen der elektronischen Resonanz. Das bedeutet, daß einer bestimmten Gruppe von Elektronenspins gemäß (4.2.1) ein gewisser Abstand vom Mittenmagnetfeld fest zugeordnet sind. In der Vorstellung, die der Abbildung 1.2 zugrunde liegt, wird das schmale homogen verbreiterte Band zusätzlich in feste Bereiche eingeteilt, aus denen die Elektronenspins nicht einfach in andere Bandbereiche wechseln können. Diese Zusatzstruktur steht der beschriebenen Ausbildung einer gemeinsamen dipolaren Spintemperatur im Wege. Dipolare und HFS-Wechselwirkung sind beide für die DNP unverzichtbar, jedoch behindert eine starke HFS die Kühlung des dipolaren Reservoirs. Das Verhältnis der verschiedenen Wechselwirkungsstärken hat Einfluß auf die erreichbare Unterkühlung der Spintemperatur

$$\left| \lim T_{ZN} \right| \rightarrow 0$$

und bestimmt die erreichbare Maximalpolarisation des Nukleonenspinsystems.

2. Auswahl des Targetmaterials

Für die Zählrate einer doppelt polarisierten Streuung an Protonen gilt [Mal96]:

$$\begin{aligned}
 N &= a \cdot \left\{ (\Phi^{\rightarrow} \cdot n_p^{\Rightarrow} + \Phi^{\leftarrow} \cdot n_p^{\Leftarrow}) \cdot \sigma^{\rightarrow\Rightarrow} + (\Phi^{\rightarrow} \cdot n_p^{\Leftarrow} + \Phi^{\leftarrow} \cdot n_p^{\Rightarrow}) \cdot \sigma^{\rightarrow\Leftarrow} + \Phi \cdot \sum_A n_A \cdot \sigma_A \right\} \\
 &= a \cdot \Phi \cdot \hat{n} \cdot \bar{\sigma} \cdot (1 - P_\mu \cdot P_T \cdot f \cdot A_-) \\
 \Phi &= \Phi^{\rightarrow} + \Phi^{\leftarrow} \\
 \bar{\sigma} &= \frac{n_p \cdot \bar{\sigma} + \sum_A n_A \cdot \sigma_A}{n_p + \sum_A n_A} \\
 \hat{n} &= n_p + \sum_A n_A
 \end{aligned} \tag{2.1}$$

- a: Akzeptanz
 Φ : Teilchenfluß
 n_p : Zahl polarisierter Protonen
 n_A : Zahl unpolarisierter Nukleonen
 A_- : Asymmetrie bei longitudinaler Polarisation
 σ : differentieller Wirkungsquerschnitt
 f: Dilutionfaktor
 P_T : Targetpolarisation
 P_B : Strahlpolarisation

Der Dilutionfaktor f gibt das Verhältnis der Streuprozesse an polarisierten Protonen und der Gesamtzahl der Streuprozesse an.

$$\begin{aligned}
 f &= \frac{n_p \cdot \bar{\sigma}}{n_p \cdot \bar{\sigma} + \sum_A n_A \cdot \sigma_A} \\
 \bar{\sigma} &= \frac{1}{2} \cdot (\sigma^{\rightarrow\Leftarrow} + \sigma^{\rightarrow\Rightarrow})
 \end{aligned} \tag{2.2}$$

Target- und Strahlpolarisation bedeuten die Überbesetzung des Teilchenzustands mit bestimmter Spinausrichtung (s. Gl. 1.2, 1.3). Wenn bei der polarisierten Streuung eine physikalische Asymmetrie auftritt, unterscheiden sich die Zählraten bei positiver und negativer Targetpolarisation. Die Differenz wird als Zählratendifferenz A_Z bezeichnet.

$$\begin{aligned}
 N_{+/-} &= a \cdot \Phi \cdot \hat{n} \cdot \bar{\sigma} \cdot (1 \mp P_\mu \cdot P_T \cdot f \cdot A_-) \\
 A_Z &= \frac{N_+ - N_-}{N_+ + N_-} = P_\mu \cdot P_T \cdot f \cdot A_-
 \end{aligned} \tag{2.3}$$

Der rein statistische Fehler der Zählratenasymmetrie ΔA_z ist umgekehrt proportional zur Quadratwurzel der Gesamtzählrate N bzw. der Meßzeit t . Für die Meßzeit t , nach der sich der statistische Fehler der Zählratenasymmetrie auf den Wert ΔA_z verringert hat, gilt unter Vernachlässigung der Fehler der Polarisationsbestimmung und des Dilutionfaktors:

$$t \sim N \sim \frac{1}{\Delta A_z^2} = \frac{1}{f^2} \cdot \frac{1}{P_\mu^2} \cdot \frac{1}{P_T^2} \cdot \frac{1}{\Delta A_z^2} \quad (2.4)$$

Hier erkennt man, daß der Dilutionfaktor eines Targetmaterials und die Polarisation, die in einem Experiment erreicht wird, sich quadratisch auf die benötigte Meßzeit auswirken. Die Optimierung dieser beiden Parameter unter Berücksichtigung der Randbedingungen eines bestimmten Experiments ist daher Hauptaufgabe der Targetmaterialforschung.

2.1 Dilutionfaktor des ${}^6\text{LiD}$

Die Targetpolarisation wird mittels der Kernspinresonanz (NMR) gemessen. Meßgröße ist dabei die Magnetisierung M_z , d.h. das resultierende magnetische Moment der magnetischen Momente der spinausgerichteten Kerne.

$$\vec{M}_z = \sum_i \vec{\mu}_{iz} \quad (2.5)$$

Die NMR mißt die Kernspinpolarisation und nicht die Nukleonenpolarisation, die für die Auswertung eines Streuexperiments am polarisierten Nukleon wichtig ist. Die einzige Ausnahme bilden die Protonenmaterialien, bei denen die gemessene Kernspinpolarisation gleichzeitig die gesuchte Protonenpolarisation ist. Wird die Kernspinpolarisation für die Auswertung des Experiments verwendet, so muß im Dilutionfaktor noch die Wahrscheinlichkeit berücksichtigt werden, mit der die Nukleonenspins in Richtung des Kernspins ausgerichtet sind. Diese Anzahl läßt sich unter Ausnutzung von Symmetriebetrachtungen oder durch Annahme der Gültigkeit eines bestimmten Kernmodells berechnen.

Sowohl der ${}^6\text{Lithiumkern}$ als auch das Deuteron enthalten die gleiche Anzahl von Protonen und Neutronen, man sagt, es handelt sich um ein isoskalares Targetmaterial. Diese Eigenschaft garantiert, daß stets mit gleicher Wahrscheinlichkeit an einem polarisierten Proton wie an einem polarisierten Neutron gestreut wird, das heißt die unterschiedlichen Eigenschaften des Protons und Neutrons mitteln sich heraus, und das Experiment streut effektiv am polarisierten Nukleon. Diese Symmetrieeigenschaft läßt sich zur Berechnung der Nukleonenpolarisation nutzen [Ron97].

a) Berechnung mittels Isospinsymmetrie

Der Kernspin setzt sich additiv aus den Drehimpulsen der nicht gekoppelten Protonen und Neutronen zusammen:

$$\langle I \rangle = \left\langle \sum_i \{ l_z^{pi} + l_z^{ni} + s_z^{pi} + s_z^{ni} \} \right\rangle = \langle L_z^p \rangle + \langle L_z^n \rangle + \langle S_z^p \rangle + \langle S_z^n \rangle \quad (2.6)$$

Die Bahndrehimpulse der Neutronen tragen nicht zum magnetischen Moment des Kerns bei, weil sie keine elektrische Ladung tragen:

$$\mu = \left\langle \sum_i \left\{ g_i^{p_i} \cdot l_z^i + g_s^{p_i} \cdot s_z^i + g_s^{n_i} \cdot s_z^i \right\} \right\rangle = g_s^p \cdot \langle S_z^p \rangle + g_s^n \cdot \langle S_z^n \rangle + g_l^p \cdot \langle L_z^p \rangle \quad (2.7)$$

#p = #n:

$$\langle L_z^p \rangle = \langle L_z^n \rangle = \langle L \rangle, \quad \langle S_z^p \rangle = \langle S_z^n \rangle = \langle S \rangle \quad (2.8)$$

Mit (2.6), (2.7) und (2.8):

$$\begin{aligned} \mu - \frac{I}{2} &= (g_s^p + g_s^n - 1) \langle S \rangle \\ \langle S \rangle &= \frac{\langle \sigma_z \rangle}{2} \end{aligned} \quad (2.9)$$

Mit den bekannten magnetischen Momenten des Deuterons und des ⁶Lithium können $\langle \sigma_z \rangle$ und $\langle L \rangle$ berechnet werden:

	μ μ_N	I $h/2\pi$	$\langle \sigma_z \rangle$	$\langle L \rangle$
Deuteron	0.857	1	0.94	0.03
⁶ Lithium	0.822	1	0.85	0.08

Tab. 2.1: Anteil der Nukleonen an der Kernspinpolarisation mit Hilfe der Isospinsymmetrie

Es tragen nur die Spinanteile, nicht aber die Bahndrehimpulsanteile der Nukleonen am Kernspin zur Asymmetrie bei. Im Dilutionfaktor ist also zu berücksichtigen, daß 94% der Nukleonenspins im Deuteron und 85% der Nukleonenspins im ⁶Lithium in Polarisationsrichtung ausgerichtet sind.

b) Berechnung mit Hilfe der Kernmodelle

Die Kernzustände werden in der Notation

$$|m_l, m_s, M = m_l + m_s\rangle$$

gekennzeichnet und zur Veranschaulichung mit Pfeilen symbolisiert. Anschaulich gibt die zweite Spalte im Pfeilbild die Ausrichtung der Nukleonenspins und die dritte Spalte die Ausrichtung des Kernspins an. Aus Symmetriegründen genügt es einen der beiden Zustände mit $M=1$ oder $M=-1$ zu betrachten, um die Wahrscheinlichkeit zu berechnen, mit der ein Nukleonenspin parallel zum Kernspin ausgerichtet ist. Das Deuteron trägt den Kernspin $I=1$. Es besitzt gerade Parität, so daß nur gerade Werte für den resultierenden Bahndrehimpuls $I=0, 2, 4 \dots$ zugelassen sind.

$l = 0$, s-Zustand:

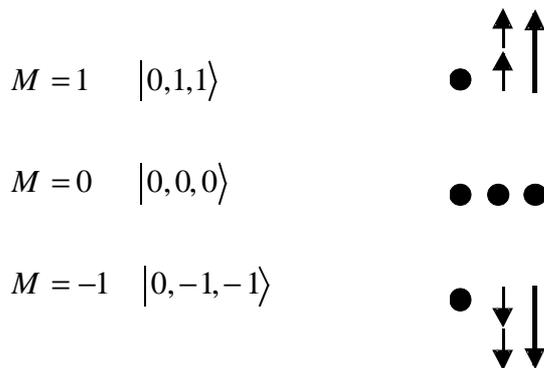


Abb. 2.1: s-Zustand des Deuterons in anschaulicher Darstellung

Die Pfeile in Spalte 2 und 3 weisen im Zustand $M=1$ in die gleiche Richtung und die Nukleonenspins sind stets parallel zum Kernspin ausgerichtet. Die Nukleonenspinpolarisation stimmt im s-Zustand mit der Deuteronenpolarisation überein.

$l = 2$, d-Zustand

Das Triplett des d-Zustands stellt sich unter Verwendung der Clebsch-Gordan-Koeffizienten wie folgt dar:

$$\begin{aligned}
 M = 1 & \quad \sqrt{\frac{3}{5}} \cdot |2, -1, 1\rangle - \sqrt{\frac{3}{10}} \cdot |1, 0, 1\rangle + \sqrt{\frac{1}{10}} \cdot |0, 1, 1\rangle \\
 M = 0 & \quad \sqrt{\frac{3}{10}} \cdot |1, -1, 0\rangle - \sqrt{\frac{2}{5}} \cdot |0, 0, 0\rangle + \sqrt{\frac{3}{10}} \cdot |-1, 1, 0\rangle \\
 M = -1 & \quad \sqrt{\frac{3}{5}} \cdot |-2, 1, -1\rangle - \sqrt{\frac{3}{10}} \cdot |-1, 0, -1\rangle + \sqrt{\frac{1}{10}} \cdot |0, -1, -1\rangle
 \end{aligned}$$

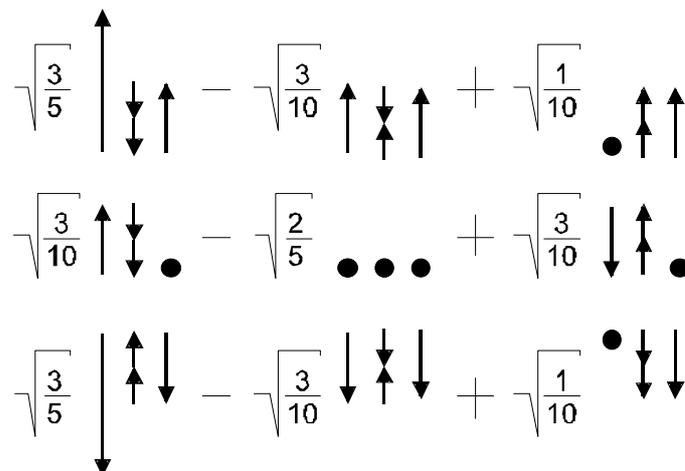


Abb. 2.2: d-Zustand des Deuterons in anschaulicher Darstellung

Die quadrierten Clebsch-Gordan-Koeffizienten geben die Wahrscheinlichkeiten der Unterzustände an, die zu den Zuständen mit $M=1, 0$ oder -1 addiert werden. Die Ausrichtung der Nukleonenspins zum Deuteronenspin ist in jedem Unterzustand mit $M=1$ anders. Im ersten Unterzustand sind Proton- und Neutronenspin entgegen dem Deuteronenspin ausgerichtet, im zweiten Unterzustand zeigt einer der beiden Nukleonenspins in Deuteronenspinrichtung und im dritten Unterzustand zeigen beide Nukleonenspins in Deuteronenspinrichtung. Es weisen im Mittel also

$$\frac{1}{10} + \frac{1}{2} \cdot \frac{3}{10} = 25\% \quad (2.10)$$

des Nukleonenspins in Richtung des Deuteronenspins.

Der s-Zustand kommt mit einer Wahrscheinlichkeit von $95,1\% \pm 1,0\%$ vor. Der Fehler errechnet sich aus den Abweichungen vom Mittelwert der Vorhersagen theoretischer Kernmodelle [Ron97]. Zwar ist die Wahrscheinlichkeit an einem Deuteron im s- bzw. d-Zustand zu streuen auch von kinematischen Größen abhängig, doch ist diese Abweichung im kinematischen Bereich $0.015 < x < 0.75$ kleiner als $1,5\%$ relativ [Ron97].

Die Nukleonenspinpolarisation im Deuteron berechnet sich nach den obigen Ergebnissen unter Einbeziehung der Wahrscheinlichkeiten des s- und d-Zustands zu:

$$\begin{aligned} n \uparrow (\downarrow) &= 95.1\% N \uparrow (\downarrow) + 4.9\% \cdot 75\% N \downarrow (\uparrow) + 4.9\% \cdot 25\% N \uparrow (\downarrow) \\ &= (92.7\% \pm 1.5\%) N \uparrow (\downarrow) \end{aligned} \quad (2.11)$$

$N \uparrow (\downarrow)$: Zahl der Kerne mit Spinausrichtung in (entgegen) Polarisationsrichtung

$n \uparrow (\downarrow)$: Zahl der Nukleonen mit Spinausrichtung in (entgegen) Polarisationsrichtung

Die Nukleonenspinpolarisation nach dem Kernmodell beträgt $(92.7 \pm 1.5)\%$ der Deuteronenspinpolarisation. Im Rahmen des Fehlers deckt sich das Ergebnis mit dem Ergebnis der vorangestellten Berechnung unter Ausnutzung der Isospinsymmetrie.

⁶Lithium

Ein gebräuchliches Kernmodell des ⁶Lithium setzt den Kern aus einem α -Teilchen, einem Proton und einem Neutron zusammen. Das α -Teilchen trägt nicht zum Kernspin bei, seine Nukleonen sind nicht polarisierbar. Das Kernmodell muß nun die Frage klären, wie groß der Anteil der Spins des Protons und des Neutrons am Kernspin des ⁶Li ist.

Schellingerhout, Kok, Coon und Adam berechneten in einem 1993 veröffentlichten Artikel die Nukleonenspinpolarisation im ⁶Lithium [Sch93]. Sie verwenden verschiedene Modelle für die Wechselwirkungen in einem Dreikörpersystem. Das Dreikörpersystem läßt Zustände von Proton und Neutron sowohl mit geradem als auch mit ungeradem Drehimpuls zu, so daß zusätzlich zum Fall des Deuterons noch ein p-Zustand auftritt. Die Berechnung des s- und d-Zustands erfolgt ganz analog zum Deuteron, so daß im folgenden nur der p-Zustand noch einmal behandelt werden soll.

$l = 1$, p-Zustand:

$$\begin{array}{ll}
 M = 1 & \frac{1}{\sqrt{2}} \cdot |1, 0, 1\rangle - \frac{1}{\sqrt{2}} \cdot |0, 1, 1\rangle & \sqrt{\frac{1}{2}} \begin{array}{c} \uparrow \downarrow \uparrow \\ \uparrow \downarrow \uparrow \end{array} - \sqrt{\frac{1}{2}} \begin{array}{c} \bullet \uparrow \uparrow \\ \bullet \uparrow \uparrow \end{array} \\
 M = 0 & \frac{1}{\sqrt{2}} \cdot |1, -1, 0\rangle - \frac{1}{\sqrt{2}} \cdot |-1, 1, 0\rangle & \sqrt{\frac{1}{2}} \begin{array}{c} \uparrow \downarrow \bullet \\ \uparrow \downarrow \bullet \end{array} - \sqrt{\frac{1}{2}} \begin{array}{c} \downarrow \uparrow \bullet \\ \downarrow \uparrow \bullet \end{array} \\
 M = -1 & \frac{1}{\sqrt{2}} \cdot |0, -1, -1\rangle - \frac{1}{\sqrt{2}} \cdot |-1, 0, -1\rangle & \sqrt{\frac{1}{2}} \begin{array}{c} \bullet \downarrow \downarrow \\ \bullet \downarrow \downarrow \end{array} - \sqrt{\frac{1}{2}} \begin{array}{c} \downarrow \downarrow \downarrow \\ \downarrow \downarrow \downarrow \end{array}
 \end{array}$$

Abb. 2.3: d-Zustand des ${}^6\text{Li}$ -Kerns in anschaulicher Darstellung

Betrachtet man wie zuvor beim d-Zustand des Deuterons die Quantenzahlen m_s und M des Zustands mit $M=+1$ (2. und 3. Spalte der Unterzustände), so sieht man direkt, daß 25% aller Nukleonen entgegen dem Kernspin, 75% in Richtung des Kernspins orientiert sind.

$$\begin{aligned}
 n \uparrow (\downarrow) &= P_S \cdot N \uparrow (\downarrow) + 75\% \cdot P_P \cdot N \uparrow (\downarrow) + 25\% \cdot P_P \cdot N \downarrow (\uparrow) + 25\% \cdot P_D \cdot N \uparrow (\downarrow) + 75\% \cdot P_D \cdot N \downarrow (\uparrow) \\
 &= P_S \cdot N \uparrow (\downarrow) + 50\% \cdot P_P \cdot N \uparrow (\downarrow) - 50\% \cdot P_D \cdot N \uparrow (\downarrow) = X \cdot N \uparrow (\downarrow)
 \end{aligned}$$

P_i : Wahrscheinlichkeit des i -Zustands (2.12)

Zusätzlich zur Kopplung des Bahndrehimpulses $l = 1$ mit $S = 1$ (Spintriplett) erzeugt auch die Kopplung mit $S = 0$ (Spinsinglett) den Kernspin $l = 1$. Dieser Zustand ist hier nicht dargestellt. Er muß nicht berücksichtigt werden, weil er unpolarisiert ist und somit nicht zur Asymmetrie beiträgt. Die Kopplung mit dem Spinsinglettzustand soll im Folgenden mit P' zur Unterscheidung vom obigen P-Zustand bezeichnet werden.

Die Tabelle 2.2 ist [Sch93] entnommen und gibt die Zustandswahrscheinlichkeiten P_i für neun verschiedene Modelle an. Daraus errechnet sich der Anteil der Nukleonenpolarisation an der Kernspinpolarisation X nach Gleichung (2.12). Die Autoren bezeichnen die Modelle a, a* und b als Referenzmodelle und geben ihnen damit mehr Gewicht als den Aussagen der anderen Modelle, weil sie die Observablen des ${}^6\text{Lithium}$ wie z.B. die Abhängigkeit des Ladungsformfaktors vom Impulsübertrag Q oder das magnetische Moment des ${}^6\text{Lithium}$ am zutreffendsten beschreiben.

Modell	P_S in %	+/-	P_P in %	+/-	$P_{P'}$ in %	+/-	P_D in %	+/-	X in %	$\mu_{\text{calc}}/\mu_{\text{exp}}$
a	89.290	0.002	0.232	0.002	2.808	0.004	7.667	0.002	85.573	1.0036
a*	89.590	0.001	0.647	0.001	2.166	0.004	7.596	0.002	86.116	1.0061
b	89.478	0.002	0.223	0.004	2.647	0.003	7.650	0.003	85.765	1.0045
c	90.626	0.001	0.216	0.001	2.861	0.001	6.519	0.001	87.475	1.0114
d	90.163	0.001	0.206	0.001	2.341	0.001	7.291	0.001	86.621	1.0084
e*	88.712	0.002	0.441	0.001	3.218	0.001	7.630	0.003	85.118	1.0015
f*	92.119	0.005	0.105	0.001	0.536	0.001	7.239	0.003	88.552	1.0174
g*	90.881	0.001	0.237	0.001	2.463	0.003	6.418	0.001	87.791	1.0139
h*	96.573	0.001	0.197	0.001	2.995	0.001	0.236	0.001	96.554	1.0543

Tab. 2.2: Zustandswahrscheinlichkeiten und Nukleonenpolarisation des ${}^6\text{Lithium}$ nach [Sch93]

Tatsächlich stimmen die Vorhersagen der drei Modelle gut überein. Der Mittelwert beträgt $X_1=85,8\%$ mit einer größten Abweichung $\Delta X=0,3\%$. Die berechneten Nukleonpolarisationen aller Modelle streuen nur wenig, wenn das Modell h^* außer Acht gelassen wird. Die maximale Abweichung vom Mittelwert $X_2=86,6\%$ beträgt unter Berücksichtigung aller Modelle außer h^* nur $\Delta X=1,9\%$. Allein die Vorhersage des Modells h^* weicht mit $\Delta X=10\%$ stark vom Mittelwert X_2 ab. Die sehr hoch eingeschätzte Nukleonenspinpolarisation des Modells h^* ist die Folge einer viel geringeren p- und d-Zustandswahrscheinlichkeit. Die Berechnung h^* benutzt als einzige das Malfliet-Tjon I-III Potential (MT) zur Beschreibung der Proton-Neutron-Wechselwirkung [Sch93]:

$$V_{MT} = V_1 \frac{e^{-\mu_1 r}}{r} + V_2 \frac{e^{-\mu_2 r}}{r} \quad (2.13)$$

Das MT-Potential ist das einzige radialsymmetrische Potential, das verwendet worden ist. Diese vereinfachte Beschreibung der Nukleon-Nukleon-Wechselwirkung verringert die Wahrscheinlichkeit des d-Zustands.

Modelle, deren Bezeichnungsbuchstabe mit einem Stern gekennzeichnet sind, unterscheiden sich dadurch, daß die Coulombkraft zusätzlich zur starken Wechselwirkung berücksichtigt worden ist. Dabei ist allerdings vermieden worden, daß die Isospinsymmetrie durch die Coulombkraft verletzt wird. Eine Ausnahme bildet Modell b, das exemplarisch die Coulombkraft so einbringt, daß die Isospinsymmetrie verletzt ist.

Läßt man die Ergebnisse des Modells h unberücksichtigt, bezieht also nur Berechnungen ein, die eine Tensorkraft benutzen, so ergibt sich für den Anteil der Nukleonpolarisation X :

$$X = (86.6 \pm 1.2) \%$$

Dieses Ergebnis liegt sehr nah bei der Vorhersage der einfachen Berechnung unter Verwendung der Isospinsymmetrie ($X=85\%$).

Der Dilutionfaktor in Gleichung (2.2) ist abhängig von der Wirkungsquerschnitten des Experiments. Neben dieser strengen Definition kann der Dilutionfaktor auch vereinfacht als Verhältnis der polarisierten zu unpolarisierten Nukleonen eines Targetmaterials definiert werden. Er stellt dann eine reine Materialkenngröße dar und ist besser zum Vergleich der verschiedenen Targetmaterialien geeignet.

Der Dilutionfaktor des ${}^6\text{LiD}$ berechnet sich dann unter Einbeziehung der Isotopenreinheit (siehe auch 3.1) des Deuteriums (99.7%) und des ${}^6\text{Lithiummetalls}$ (95,35%) zu:

$$\begin{aligned} f_{6\text{LiD}} &= \frac{0.997 \cdot (0.927 \pm 0.015) \cdot 2 + (0.9535 \pm 0.001) \cdot (0.866 \pm 0.012) \cdot 2}{8} \\ &= (23.1 \pm 0.3) \% + (20.6 \pm 0.3) \% = (43.7 \pm 0.5) \% \end{aligned} \quad (2.14)$$

2.2 Vergleich der Targetmaterialien

Targetmaterialien müssen in Bezug auf

- Strahlenresistenz
- Aufbau- und Relaxationszeit
- Dilutionfaktor

auf die Erfordernisse eines bestimmten Experiments abgestimmt sein.

COMPASS benutzt einen Myonenstrahl, der aufgrund seines Erzeugungsprozesses auf geringe Intensitäten beschränkt ist. Strahlenresistenz ist in diesem Experiment daher kein entscheidendes Kriterium für die Auswahl des Targetmaterials.

Die Kernspinpolarisation wird bei longitudinaler Polarisationsrichtung durch eine permanente DNP aufrecht erhalten. Für die Messungen am transversal polarisierten Target wird die Polarisationsrichtung durch Veränderung des äußeren magnetischen Felds in die Richtung senkrecht zur Strahlrichtung gedreht. Dazu muß die Mikrowelleneinstrahlung unterbrochen werden und lange Relaxationszeiten sind in diesem untergeordneten Meßprogramm wünschenswert. Als Relaxationszeit wird die Zeit bezeichnet, nach der die Polarisation ohne Einstrahlung von Mikrowellen auf 37% (entsprechend $1/e$) des Anfangswertes abgesunken ist.

Ein wesentliches Ziel des COMPASS-Experiments ist die Bestimmung des Anteils der Gluonenpolarisation ΔG am Nukleonenspin. Dazu werden in semi-inklusive Messung Photon-Gluon-Fusionsprozesse (PGF) gesucht. Damit PGF-Ereignisse für das Experiment sichtbar werden, ist bei der Auswahl des Targetmaterials ein größtmöglicher Dilutionfaktor verbunden mit einer maximalen Zählratenasymmetrie vorrangiges Ziel.

Die Tabelle 2.3 zeigt die erwarteten Maximalpolarisationen im COMPASS-Target und die zugehörigen Dilutionfaktoren der Nuklide mit Kernspin der verschiedenen aktuellen Targetmaterialien:

	H-Butanol	D-Butanol	NH ₃	ND ₃	⁶ LiD	
Polarisation						
p	90%	-	90%	-	-	-
d	-	50%	-	30%	40%	50%
¹⁴ N	-	-	-14%	-15%	-	-
⁶ Li	-	-	-	-	38%	48%
Dilutionfaktoren						
p	0.135	-	0.176	-	-	-
d	-	0.220	-	0.278	0.231	-
¹⁴ N	-	-	0.039	0.033	-	-
⁶ Li	-	-	-	-	0.206	-
$P_i \cdot f_i \sim A_z$	0.122	0.110	0.153	0.078	0.171	0.214
$(P_i^2 \cdot f_i^2)^{-1} \sim t$	68	82	43	163	34	22

Tab. 2.3: Erwartete Maximalpolarisation im COMPASS-Target und Dilutionfaktoren aktueller Targetmaterialien im Vergleich

Zusätzlich zum Produkt aus Targetpolarisation und Dilutionfaktor, das nach Gleichung (2.3) proportional zur erwarteten Zählratenasymmetrie ist, gibt Tabelle 2.2 auch das quadrierte Produkt an. Diese Größe ist nach Gleichung (2.4) ein Maß für den erwarteten statistischen Fehler und damit auch ein Maß für die benötigte Meßzeit t , nach der die Fehler die gewünschte Aussage des Experiments zulassen.

Vergleicht man die benötigte Meßzeit bei Einsatz der verschiedenen Materialien, so wird sofort deutlich, daß deuterisiertes Ammoniak wegen seiner unzureichenden Maximalpolarisation weit abgeschlagen ist. Deuterisiertes Butanol weist einen höheren Dilutionfaktor auf als H-Butanol und ist mit 50% Polarisation im SMC-Experiment eingesetzt worden. Die Protonenmaterialien H-Butanol und H-Ammoniak bestechen durch ihre extrem hohe Polarisation. Die Zählratenasymmetrien der Streuung an H- und D-Butanol sind fast gleich groß, wenn man annimmt, daß 50% Polarisation im D-Butanol wieder erreicht werden. Jedoch verlängert sich die Meßzeit bei Wahl von Butanol um ungefähr 50% gegenüber der Wahl von H-Ammoniak oder ${}^6\text{LiD}$ (bei Annahme von 40% Polarisation im ${}^6\text{LiD}$).

Der Vergleich macht deutlich, daß Ammoniak als Protonen- und ${}^6\text{LiD}$ als isoskalares Targetmaterial Verwendung finden werden. Die höhere Asymmetrie erzeugt dabei das ${}^6\text{LiD}$. Es ist zur Beantwortung der Frage nach der Gluonenpolarisation das geeignete Targetmaterial. Die Berechnung der Meßzeit für 40% als auch für 50% Polarisation zeigt, daß ${}^6\text{LiD}$ bei Polarisierungen größer als 40% einen nennenswerten Vorteil gegenüber dem Ammoniak besitzt. Bei 50% Polarisation benötigt man bei der Wahl von ${}^6\text{LiD}$ für die gleiche statistische Präzision nur die halbe Meßzeit gegenüber der Streuung am H-Ammoniak.

3. Chemische Synthese und Kristallisation

3.1 Isotopenreinheit

Natürliches Lithium setzt sich aus 7% ^6Li und aus 93% ^7Li zusammen. Zwar unterscheiden sich die Isotope nur in einer Nukleonenmasse, doch ist der relative Massenunterschied wegen der kleinen Massenzahl groß. Dieser Umstand erleichtert die Isotopentrennung. Die Isotopenreinheit des ^6Li und des Deuteriums im ^6LiD hat ihre Bedeutung in der Anwendung des polarisierten Targets in Bezug auf

- erreichbare Maximalpolarisation
- Korrekturen der gemessenen Asymmetrie
- Dilutionfaktor.

Erreichbare Maximalpolarisation

Die Hyperfeinstrukturwechselwirkung des magnetischen Moments des ^7Li Kerns mit dem magnetischen Moment eines paramagnetischen Zentrums, das zur dynamischen Nukleonenpolarisation (DNP) benutzt wird, verbreitert dessen elektronische Resonanz (inhomogene Verbreiterung). Weil das magnetische Moment des ^7Li Kerns um einen Faktor 3,8 größer ist als das des Deuterons, beeinflusst auch eine kleine ^7Li Beimengung die elektronische Resonanzbreite merklich.

Isotop	Natürliches Vorkommen % (Atom)	Kernspin \hbar	g-Faktor	Magnetisches Moment μ_k
^1H	99.985	1/2	5.585691	2.792846
^2H	0.015	1	0.857438	0.857438
^3He	0.00014	1/2	-4.255248	-2.127624
^6Li	7.0	1	0.822051	0.822051
^7Li	93.0	3/2	2.170961	3.256442
^{14}N	99.63	1	0.403761	0.403761
^{15}N	0.366	1/2	-0.566378	-0.283189
^{17}O	0.038	5/2	-0.757516	-1.893790
^{19}F	100	1/2	5.257732	2.628866

$\mu = g \cdot \mu_k \cdot I$

Tab. 3.1: Wichtige Daten zum Magnetismus der leichten Kerne

In Kapitel 5 wird die „Equal Spin Temperature Theory“ (EST) vorgestellt und die Abhängigkeit der Dynamischen Nukleonenpolarisation von der elektronischen Resonanzbreite untersucht. Es wird gezeigt, daß ein erheblicher Anteil ^7Li die Maximalpolarisation verringert.

Korrektur der Zählratenasymmetrie

Die ^7Li Kerne und die Protonen besitzen ein starkes magnetisches Moment und sind entsprechend der EST-Vorhersage höher polarisiert als die ^6Li Kerne und die Deuteronen. Neben den Polarisierungseinbußen ist mit dem Vorhandensein von ^7Li und den Protonen auch eine Veränderung der Zählratenasymmetrie A_z verbunden: es wird eine größere Zählratenasymmetrie gemessen als am reinen ^6LiD . Diese Veränderungen müssen in der Auswertung der Streudaten berücksichtigt werden, soweit sie nicht schon durch die Verbesserung der Isotopenreinheit vermieden werden konnten. Für die Korrektur müssen die Isotopenverunreinigungen genau bekannt sein.

Dilutionfaktor

Die Streuung am ^7Li und an Protonen im ^6LiD ist unerwünscht und die Asymmetrie, die dadurch hervorgerufen wird, muß verworfen werden. Der Gehalt an ^7Li und Protonen verringert deshalb ein wenig den Dilutionfaktor.

Zur Minimierung der Isotopenverunreinigung ist das ^6Li deuterid in Zusammenarbeit mit dem Institut für anorganische Chemie der Ruhr-Universität Bochum aus ^6Li metall und Deuteriumgas dargestellt worden. Für die Synthese kamen Elemente mit folgender Isotopenreinheit zur Verwendung:

Deuterium

Das Deuteriumgas ist von der Firma Messer-Griesheim mit einer Reinheit von 99,7 Atomprozent spezifiziert.

^6Li

Das ^6Li metall lag in ca. 20g Stücken vor. Die Isotopenreinheit wurde an der Ruhr-Universität Bochum an sieben Stichproben massenspektrometrisch gemessen. Tabelle 3.2 zeigt die Meßergebnisse. Danach beträgt die Verunreinigung mit ^7Li 4.65+/-0.09 Atomprozent.

^7Li in %
4.74
4.69
4.54
4.56
4.64
4.58
4.77
<hr/>
4.65 +/- 0.09

Tab. 3.2: Ergebnisse der Massenspektroskopie an sieben ^6Li proben

Die Tabelle 3.3 zeigt die laut EST erwarteten Polarisierungen der enthaltenen Kerne bei Annahme von 50% Deuteronenpolarisation und die zugehörigen Dilutionfaktoren. Daraus errechnen sich die Beiträge der enthaltenen Kerne zu der Zählratenasymmetrie. Die Zählratenasymmetrie in der Streuung am reinen ^6LiD wird um 0.2% (relativ zu $A_z(^6\text{Li})+A_z(\text{Deuteron})$) durch Streuung am polarisierten Proton des Restwasserstoffs und um 1.6% durch Streuung am ^7Li vergrößert. Ohne eine Korrektur würde also die gemessene Asymmetrie um 1,8% überschätzt.

	P	f	$A_z = P \cdot f$
Proton	99.1%	0.0004	0.0004
Deuteron	50.0%	0.231	0.1154
$^6\text{Lithium}$	48.3%	0.206	0.0997
$^7\text{Lithium}$	87.8%	0.0037	0.0032

Tab. 3.3: Erwartete Polarisation P, Dilutionfaktor f und Einfluß auf die Zählratenasymmetrie der vorkommenden Isotope bei einer Deuteronenpolarisation von 50%

b) Verfahren der chemischen Synthese und Kristallisation

Die Synthese von Lithiummetall und Deuterium zu Lithiumdeuterid erfolgt in einer exothermen Reaktion bei 1100K unter einem Wasserstoffdruck $p=1.5\text{bar}$ [Wib71]. Bei dieser Temperatur ist auch das entstehende Lithiumdeuterid ($T_m=958\text{K}$) bereits flüssig. Das leichte Lithiummetall ($\rho=530\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$) schwimmt in flüssiger Phase auf dem Lithiumdeuterid ($\rho=860\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$). An der Phasengrenze flüssig-gasförmig befindet sich also bis zur vollständigen Umsetzung immer Lithiummetall.

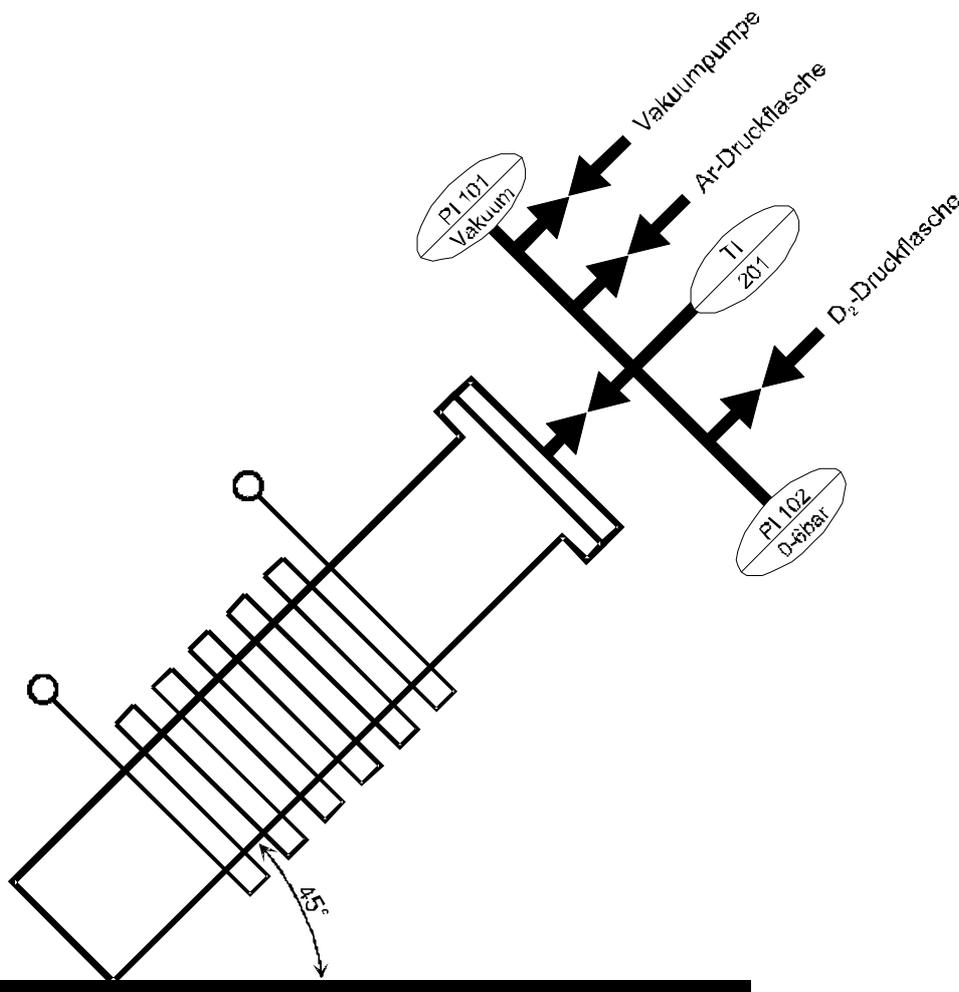
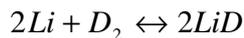


Abb. 3.1: Schemazeichnung der Syntheseapparatur

Der apparative Aufbau besteht aus einem Edelstahlrohr, in das ein Reaktionsschiffchen aus Edelstahl eingeschlossen wird. Der Flansch ist mit einem O-Ring gedichtet und wassergekühlt. Eine technische Zeichnung findet sich im Anhang unter A1, Abbildung 3.1 zeigt die zugehörige Schemazeichnung.

Das Rohr wird evakuiert und mehrfach mit Argon gespült, damit Knallgasbildung ausgeschlossen werden kann. Das Lithiummetall wird dann unter ständigem Pumpen bis nahe an den Schmelzpunkt ($T_m=453K$) erwärmt. Dabei können flüchtige Fremdstoffe abgetrennt werden, die sich an der Metalloberfläche befinden. Die Vakuumpumpe wird abgetrennt, Deuteriumgas unter einem Druck von $p=500mbar$ eingelassen und die Ofentemperatur zügig auf $850K$ erhöht. Bei $700K$ beginnt der Druck über der Lithiumschmelze zu fallen und die Reaktion



setzt ein. Nach ungefähr einer Stunde fällt der Druck nur noch langsam, die Temperatur wird auf $950K$ erhöht und der Druck wird auf $600mbar$ gesteigert. Nach weiteren zwei Stunden bei $950K$ fällt der Druck nur noch unmerklich und die Ofentemperatur wird auf den Endwert $1100K$ erhöht. Der Druck fällt bis das entstandene 6LiD schmilzt. In diesem Moment beobachtet man eine Druckerhöhung auf $1bar$ bis $1.2bar$, weil im Zwischengitter eingeschlossenes Deuterium beim Schmelzprozeß wieder freigesetzt wird. Sobald sich ein Gleichgewicht mit der Ofentemperatur eingestellt hat, wird der Druck auf $1.5bar$ gesteigert. In diesem Stadium ist die Reaktion schon beinahe vollständig abgelaufen und die Lithiumdeuteridschmelze nimmt nur noch wenig Deuteriumgas auf.

Das Lithiumdeuterid sollte in möglichst großen einkristallinen Bereichen vorliegen, die mit wenig Staubverlusten zu kleinen Kristallen gespalten werden können. Die Lithiumdeuteridschmelze wurde sehr langsam zur Erstarrung gebracht, damit ein Kristall mit möglichst großen spannungsarmen einkristallinen Bereichen entsteht. Die Temperatur wurde von $1100K$ in 35 Stunden auf $900K$ und danach in 10 Stunden auf Raumtemperatur gesenkt. Während der Kristallisation muß ständig der Druck $1.5bar$ über der Schmelze anliegen, damit möglichst wenig Lithiumkolloide im Kristall zurückbleiben. Lithiumkolloide sind feinst verteilte Mengen metallischen Lithiums.

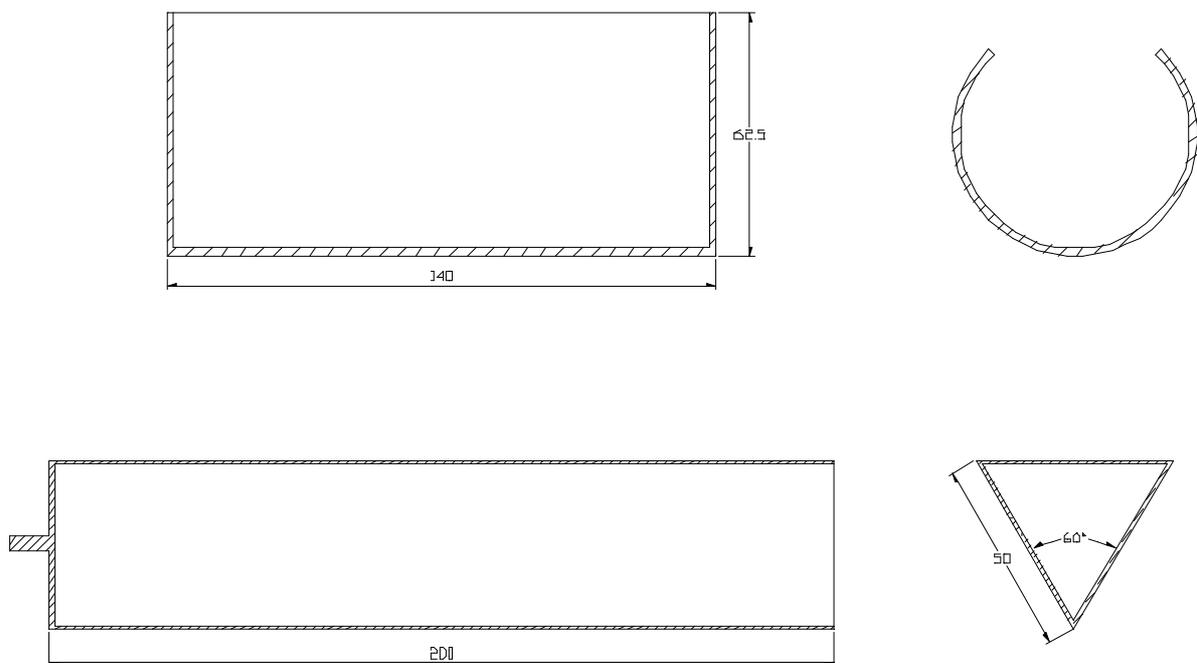


Abb. 3.2: Reaktionsschiffchen rund (Überlaufprobleme) und in Dreiecksform

In der Testphase des Syntheseprozesses machte das Überlaufen des Lithiumdeuterids über den Rand des Reaktionsschiffchens Probleme. Wahrscheinlich treiben Effekte der Oberflächenspannung das Lithiumdeuterid aus dem Reaktionsschiffchen heraus. Nach vielen Fehlschlägen dieser Art mit liegenden, halboffenen Rohren als Reaktionsschiffchen kamen unter 45°-Winkel schräg gehaltene nur einseitig offene Reaktionsschiffchen mit dreieckförmiger Querschnittsfläche zur Anwendung. Diese Schiffchen lagen nur noch mit zwei Linien an der Wandung des umgebenden Rohres an. Sie konnten daher nicht mehr großflächig von Lithiumdeuterid benetzt werden und das Befreien des Schiffchens nach der Synthese verlief unproblematisch. Abbildung 3.2 zeigt eine technische Zeichnung der beiden unterschiedlichen Formen der Reaktionsschiffchen.

3.2 Zerkleinerung der Kristalle

Die Reaktionsschiffchen mußten aufgetrennt werden und waren kein zweites Mal zu verwenden. Große Teile des erstarrten Lithiumdeuterids lagen in einkristalliner Form vor und wurden als Kristalle mit 1 bis 3cm Kantenlänge aus dem Schiffchen gebrochen. Meist schlossen diese großen einkristallinen Bereiche kleine polykristalline Nester ein, die sich auch bei Verlangsamung der Kristallisation nicht vermeiden ließen. Die Kristalle wurden von Hand in Stücke mit 1 bis 4mm Kantenlänge gespalten. Bei Spaltung der einzelnen Kristalle durch Schläge mit einem kleinen Meißel fiel wesentlich weniger Staub an als bei einer maschinellen Zerkleinerung. Tabelle 3.4 gibt einen Überblick über die umgesetzten Mengen ⁶Lithiummetall und die Verluste durch Reste an Schiffchenwandungen und anfallenden Staub im Zerkleinerungsprozeß.

Datum	⁶ Lithium [g]	⁶ LiD, rechnerisch [g]	Targetmaterial [g]	Staubverlust [g]	Gesamtverlust [%] (Masse)
11.05.99	42.6	56.8	45.3	3.9	
14.05.99	37.5	50.0	42.1	4.7	
18.05.99	48.2	64.3	55.8	5.4	
20.05.99	47.6	63.5	54.8	5.8	
26.05.99	52.5	70.0	54.3	6.3	
31.05.99	54.6	72.8	63.0	5.2	
21.06.99	44.9	59.9	52.3	5.0	
23.06.99	49.1	65.5	57.6	4.7	
28.06.99	52.0	69.3	50.0	5.2	
	429.0	572.0	475.1	46.2	17%

Tab. 3.4: Mengen und Verluste der Lithiumdeuteridherstellung und Zerkleinerung

Insgesamt sind aus 429g ⁶Lithiummetall 475g ⁶Lithiumdeuterid Targetmaterial hergestellt worden. Die Verluste errechnen sich somit zu 17% und setzen sich aus Staubverlusten beim Zerkleinern und Verlusten zusammen, die beim Befreien der Kristalle aus dem Schiffchen entstanden¹. Bei einer Dichte von $\rho=820\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ und einem Füllfaktor $\kappa=0.5$ der Schüttung der Lithiumdeuteridkristalle im Target schätzt sich das Volumen des Targetmaterials auf 1160cm^3 . Das auszufüllende Targetvolumen beträgt 850cm^3 , so daß ca. 300cm^3 Reserve für eine eventuell dichtere Packung und zur Herstellung von Testproben zur Verfügung stehen.

¹ Verluste beim Befreien aus den Reaktionsschiffchen entsprechen der Massendifferenz zwischen rechnerischer Masse und Targetmaterial + Staubverlust der Tabelle.

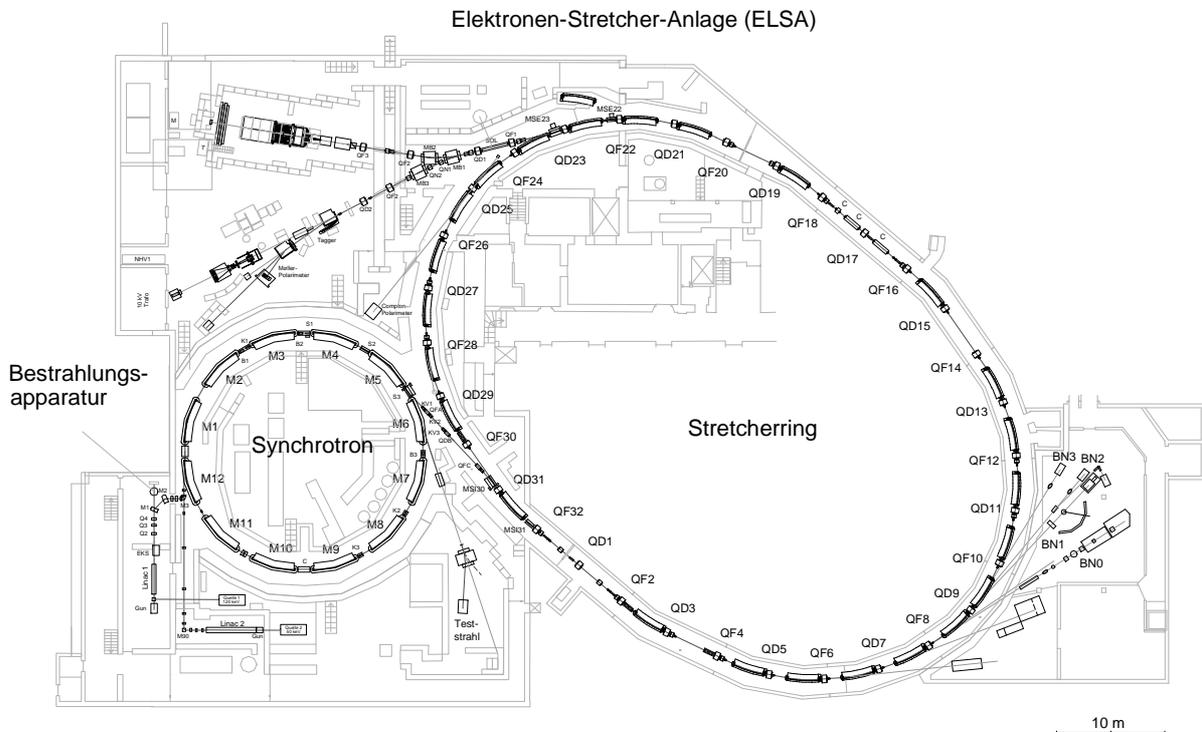
4. Paramagnetische Zentren im ⁶LiD-Kristall

4.1 Strahlendotierung des Lithiumdeuterids

Passieren hochenergetische Elektronen den Gitterverband, kommt es zu atomarer Anregung und Ionisation. In der Folge können Atome ihre Gitterplätze verlassen. Die entstehende Fehlordnung wird stöchiometrisch genannt, wenn das geschädigte Gitter insgesamt elektrisch neutral bleibt. Unter den stöchiometrischen Fehlordnungen unterscheidet man Schottky¹-, Frenkel²- und die antistrukturale³ Fehlordnung. Ein typischer Antifrenkeldefekt ist das sogenannte Farbzentrum. Eine Leerstelle besetzt einen Anionengitterplatz und hat ein Elektron stabil eingefangen. Dieses Elektron ruft einen Paramagnetismus hervor. Eine Vielzahl anderer Fehlordnungstypen, die neben dem Farbzentrum bei einer Elektronenbestrahlung entstehen, sind hauptsächlich in optischer Absorptionsspektroskopie nachweisbar.

Ungeschädigte Lithiumdeuteridkristalle zeigen keine Elektronenspinresonanz. Bei Unvollständigkeit der Reaktion ist nur eine sehr schmale Resonanz als Folge von feinst verteiltem metallischen Lithium meßbar. Weil die Elektronenspins in vergleichsweise hoher Dichte vorliegen müssen, damit ihr Paramagnetismus für eine effektive DNP eingesetzt werden kann, werden sie infolge einer massiven Strahlenschädigung in den Kristall eingebracht. Zur gezielten Schädigung werden die Kristalle bei einer konstanten Temperatur

Lage der Bestrahlungsapparatur in der Bonner Beschleunigeranlage ELSA:



¹Schottkydefekt: Leerstelle im Kationenteilgitter + Leerstelle im Anionenteilgitter

²Frenkeldefekt: Leerstelle im Kationenteilgitter + Kation im Zwischengitter

³Antistrukturale Fehlordnung: Anion im Kationenteilgitter + Kation im Anionenteilgitter

dem intensiven 20 MeV Elektronenstrahl des Bonner Linearbeschleunigers so lange ausgesetzt bis die gewünschte Dosis erreicht ist. Der Beschleuniger (LINAC1) dient dem Einschub in die Bonner Ringbeschleuniger. Für die Bestrahlungen wird der Einlenkmagnet ausgeschaltet und der Elektronenstrahl trifft unabgelenkt auf eine Bestrahlungsapparatur, welche die Kristalle während der Bestrahlung auf einer wählbaren konstanten Temperatur hält.

Der Strahl des LINAC weist eine 50 Hz Pulsstruktur auf. Die Pulse sind im Mittel $1,5\mu\text{s}$ lang und erzeugen während dieser Zeit einen Strom zwischen 300 und 400mA. Aus diesen Werten errechnet sich ein gemittelter Strahlstrom von bis zu $30\mu\text{A}$. Der Strahlfleck wird für die Materialbestrahlung auf eine elliptische Form eingestellt. Die große Halbachse hat etwas mehr als 20mm Länge, die kleine Halbachse ca. 5mm Länge. Die Probe weist eine Querschnittsfläche $A=24\text{cm}^2$ auf. Diese ist in der Dosisberechnung zu berücksichtigen. Der Materialhalter wird zur gleichmäßigen Bestrahlung aller Kristalle um die Zylinderachse im Strahl gedreht. Abbildung 4.1.1 zeigt die Lage des Probenkorbes im Gasstrom. Die vertikale Symmetrieachse ist gleichzeitig Drehachse während der Bestrahlung.

Die sogenannte Standarddosis in der Bestrahlung des ${}^6\text{LiD}$ für den Einsatz als polarisiertes Targetmaterial beträgt $d=10^{17}\text{cm}^{-2}$. Bei maximaler Strahlintensität ist sie nach einer dreieinhalbstündigen Bestrahlung erreicht. Die folgenden Dosisangaben werden als Prozentangaben bezüglich der Standarddosis gemacht.

Bestrahlungsapparatur

Die Entwicklung des Bestrahlungskryostaten war Gegenstand der Diplomarbeit, die dieser Arbeit vorausging [Mei97]. Der Kryostat stellt eine Weiterentwicklung der Apparatur BALDUINE dar [Goe95], die zur Bestrahlung der großen Mengen Targetmaterial für das COMPASS-Target nötig geworden ist. Der Kryostat besteht aus einem Rohrkreislauf, der in einem Isoliervakuum aufgehängt ist. Heliumgas wird unter einem Druck von 2,6bar (abs.) mit hoher Umwälzgeschwindigkeit durch den Kreislauf gefördert. Ein dreistufiges Radialgebläse drückt das Heliumgas durch die Schüttung des Probenmaterials und führt dabei die vom Elektronenstrahl deponierte Wärme ab. Hinter dem Gebläse fällt das Gas durch die Rippen eines Ringschlitzwärmetauschers und gibt seine überschüssige Wärme ab. Zwischen Wärmetauscher und Probe befindet sich eine elektrische Heizung im Kreislauf.

Die Temperatur der Probe während der Bestrahlung ist von entscheidender Bedeutung für die dynamische Polarisierbarkeit des späteren Targetmaterials. Deshalb wurde besonderer Wert darauf gelegt, daß das Gas gezwungen wird die Lithiumdeuteridschüttung gleichmäßig zu durchströmen. Die präzise Temperaturregelung des Heliumgases wird durch zwei voneinander unabhängige PID-Regelungskreise gewährleistet. Die erste PID-Regelung wirkt auf ein Stellventil und dosiert die Einspritzmenge flüssigen Stickstoffs, die nötig ist, um die Gastemperatur am Wärmetauscheraustritt auf drei Kelvin unter die gewünschte Bestrahlungstemperatur zu senken. Aus Stabilitätsgründen hat dieser Regelkreis Reaktionszeiten von mehreren Minuten und kann deshalb nicht auf plötzliche Schwankungen der Wärmelast wie z.B. plötzliche Intensitätsschwankungen des Strahlstroms schnell genug reagieren. Diese Aufgabe übernimmt der sehr schnelle zweite Regelkreis. Er regelt den Mittelwert der Temperaturen vor und nach der Probe durch Phasenanschnittsteuerung der elektrischen Heizung, die das Gas vor Erreichen der Probe durchströmt. Durch die genau dosierte Einspritzung der momentan benötigten Stickstoffmenge in den Wärmetauscher ist es gelungen, den Stickstoffverbrauch auf handhabbare Mengen von 40 l pro Betriebsstunde zu begrenzen. Der Großteil dieser Stickstoffmenge wird dabei zum Abführen der Heizleistungen gebraucht, die nötig sind, das Gebläse auf Betriebstemperatur zu halten. Die Abbildung 4.1.2 zeigt das Regelungsschema des Kryostaten.

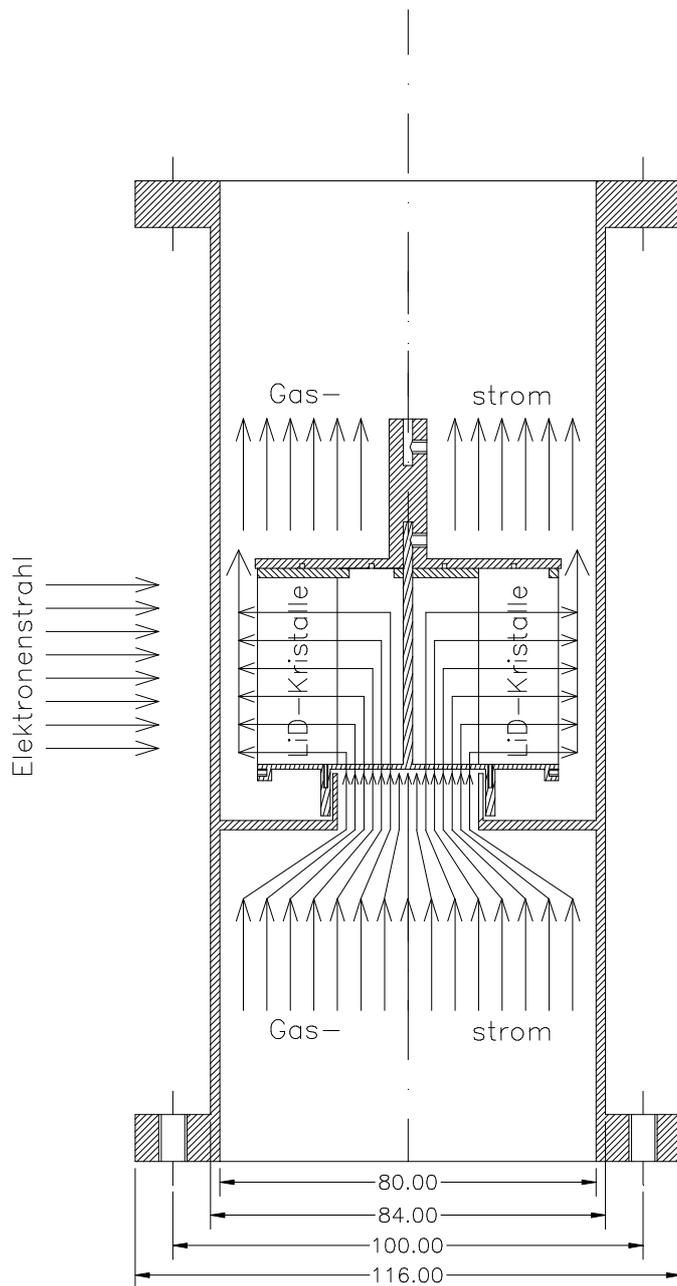


Abb. 4.1.1: Lage des Probenkorbs im Gasstrom

Die 20MeV-Elektronen verlieren den Großteil ihrer Energie durch Ionisationsprozesse. Der Energieverlust durch Ionisation wird durch den halbempirischen Ansatz von Bethe und Bloch beschrieben.

$$\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi}{m_e c^2} \cdot \frac{nz^2}{\beta^2} \cdot \left(\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0}\right)^2 \cdot \left(\ln\left[\frac{2m_e c^2 \beta^2}{I \cdot (1-\beta^2)}\right] - \beta^2\right) \quad (3.1.1)$$

$$I \approx 16eV \cdot Z^{0.9}$$

- n: Elektronendichte
- z: Ladung des Projektils
- Z: Kernladungszahl
- I: mittleres Anregungspotential

Abb. 4.1.2: Prinzipbild mit Meß- und Regelungsschema des Bestrahlungskryostaten

Die Strahlleistung des LINAC berechnet sich:

$$P = E_e \cdot \bar{I} = 20 \text{ MeV} \cdot 187 \cdot 10^{12} \frac{1}{s} = 600 \text{ W}$$

Mit den Abmessungen des Probenhalters verliert ein Elektron im Mittel $\Delta E = 3,75 \text{ MeV}$ [Mei97]. Die Wärmelast durch Ionisation des Targetmaterials beträgt also:

$$P_w = \frac{\Delta E}{E_e} \cdot P = 110 \text{ W}$$

Damit sich die Temperatur des Targetvolumens in der Bestrahlung nicht mehr als ein Kelvin von der geregelten Bestrahlungstemperatur abweicht, muß der Gasstrom eine spezifische Kühlleistung von mindestens 100 W/K aufbringen. Das entspricht genau der maximalen Kühlleistung des Bestrahlungskryostaten bei einem Betriebsabsolutdruck von 2.6 bar (abs.). Abbildung 4.1.3 zeigt die gemessene Kühlleistung des Kryostaten. Eine weitere Steigerung der Kühlleistung ist über eine weitere Druckerhöhung des Kühlgases erreichbar. Zwar steigt die Kühlleistung linear mit dem Druck, doch sind die dünnen Titanfenster der Bestrahlungskammer schon bei einem Druck von 2.6 bar gegen das Isoliervakuum an ihrer Belastungsgrenze.

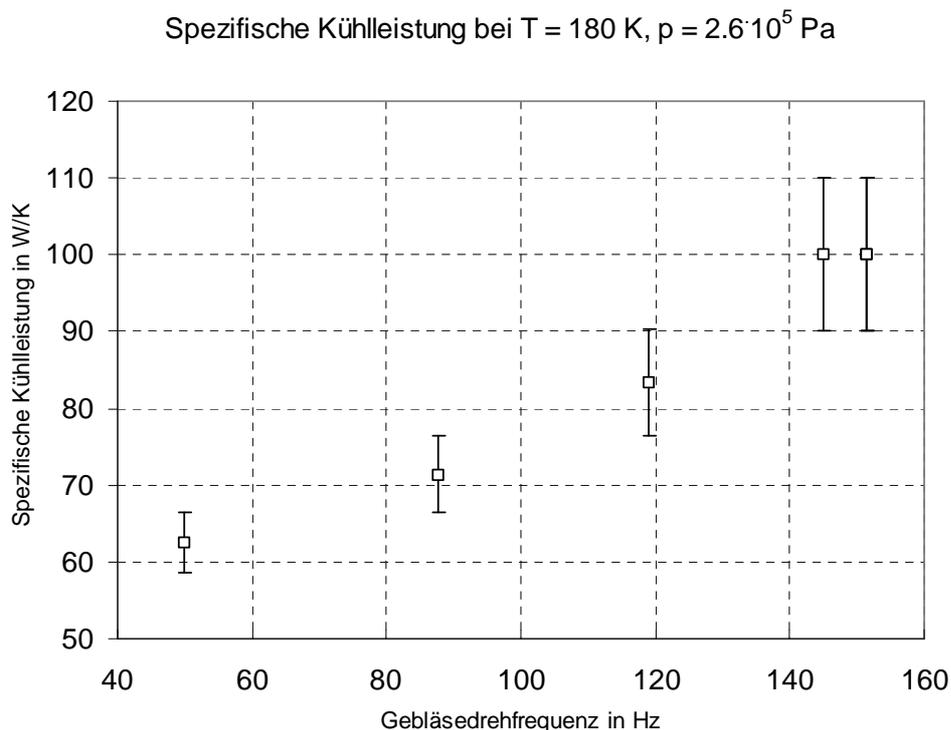


Abb. 4.1.3: Spezifische Kühlleistung des Bestrahlungskryostaten in Abhängigkeit der Gebläsedrehzahl

Zur Optimierung der Bestrahlungsparameter Temperatur und Dosis für die Polarisationsseigenschaften sind in den vergangenen drei Jahren eine Vielzahl von Proben in kleinen Testmengen bestrahlt und im Bochumer Polarisationslabor auf ihre Polarisationsseigenschaften hin untersucht worden. Dabei wurden alle vier Kombinationen der Isotope $^6,7\text{Li}$ und $^1,2\text{H}$ bereits bestrahlt. Allerdings beschränkten sich die

Polarisationsuntersuchungen auf das ${}^6\text{LiD}$ bis auf eine Ausnahme, bei der eine stark mit ${}^7\text{Lithium}$ angereicherte ${}^6\text{LiD}$ Probe polarisiert wurde, um den Einfluß der ${}^7\text{Lithium}$ beimengung auf das dynamische Polarisationsverhalten zu verstehen. Die Tabelle 4.1.1 zeigt alle bestrahlten ${}^6\text{LiD}$ Proben.

Dosis	Temperatur in K						
	140	160	170	180	190	200	210
10% 10^{17} cm^{-2}					X		X
20% 10^{17} cm^{-2}					X		
100% 10^{17} cm^{-2}	X	X	X	X	X	X	
200% 10^{17} cm^{-2}	X				X		
300% 10^{17} cm^{-2}	X				X		
400% 10^{17} cm^{-2}					X		

Tab. 4.1.1: Übersicht über alle bestrahlten ${}^6\text{LiD}$ Testproben

Die Dosis errechnete sich aus dem gemessenen Strahlstrom und der Bestrahlungszeit. Zur zusätzlichen Kontrolle wurde hinter dem Austrittsfenster der Apparatur ein einseitig offener Aluminiumwürfel elektrisch isoliert angebracht. Die aufgebrachte elektrische Ladung während der Bestrahlung wurde mit einem Stromintegrator ermittelt. Trotzdem bleiben in der Dosisbestimmung Unsicherheiten, die auf unterschiedliche Strahllagen und unterschiedliche Ausleuchtung des Probenbehälters beruhen.

Die paramagnetische Resonanz der Farbzentren wurde benutzt, um den Aufbau der Zentrenichte nach verschiedenen Bestrahlungsdosen bei einer Kaltbestrahlung (140K) und einer Warmbestrahlung (190K) zu untersuchen. Abbildung 4.1.4 zeigt die gemessenen Zentrenichten. Die Kurven sind so gewählt worden, daß sie die Datenpunkte bestmöglich treffen und sollen das Auge leiten.

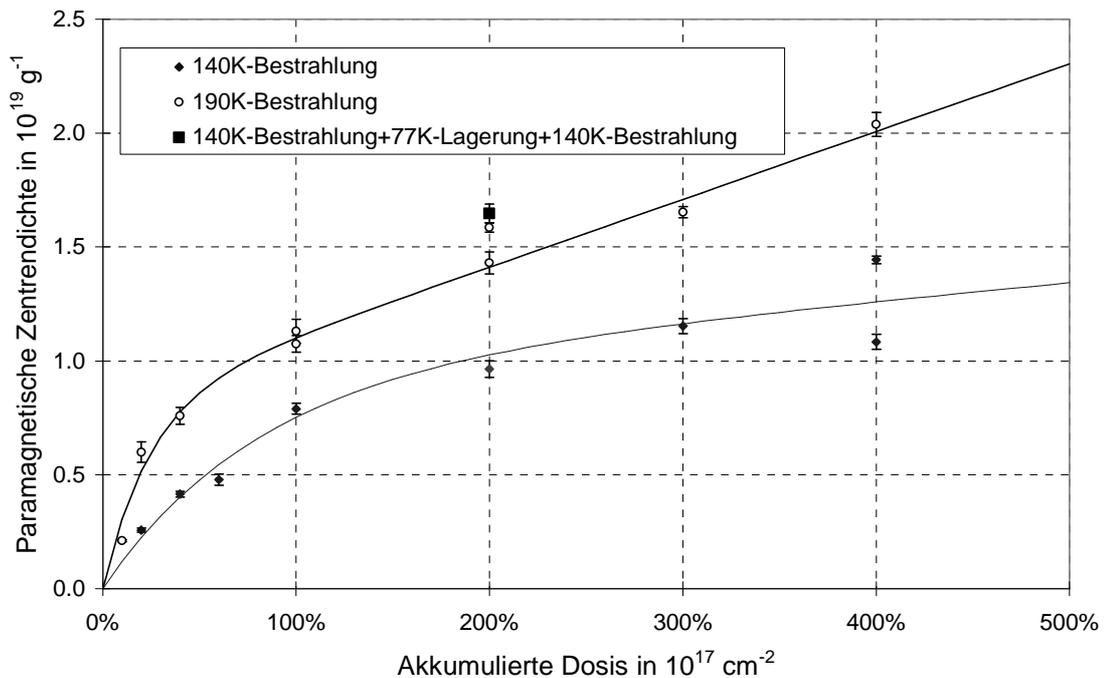


Abb. 4.1.4: Zunahme der Farbzentrendichte mit der Bestrahlungsdosis

Während der Kaltbestrahlung mit 400% Dosis hat wahrscheinlich eine Sortierung der ${}^6\text{LiD}$ -Kristalle nach ihrer Größe stattgefunden. Die Strahlinhomogenität über die Targetfläche erklärt den gemessenen unterschiedlichen Spininhalt großer und kleiner Kristalle. Im Diagramm sind beide zugehörigen Datenpunkte eingetragen. Eine Probe wurde in zwei Bestrahlungen bei 140K mit 100% Dosis bestrahlt und enthielt zum Zeitpunkt der Messung 60% mehr Zentren als eine Probe, die in einer einzigen Bestrahlung 200% Dosis ausgesetzt worden ist. Sie ist im Diagramm zusätzlich bei 200% Dosis eingetragen. Zwischen den Bestrahlungen wurde die Probe mehrere Wochen unter flüssigem Stickstoff gelagert. Zwischen der zweiten Bestrahlung und der ESR-Messung lag die Probe ein ganzes Jahr lang unter flüssigem Stickstoff. Es ist unklar, ob während der zweiten Bestrahlung mehr Zentren entstanden sind oder ob während der langen Lagerung eine Zentrenumwandlung stattgefunden hat.

Damit die ESR-Spektren der kaltbestrahlten Proben ungesättigt aufgenommen werden konnten, sind die Kristalle vor der Messung bei 77K 5 Minuten lang auf Raumtemperatur erwärmt worden. Messungen haben ergeben, daß dabei 10% bis 15% der Zentren zerfallen. Es muß beachtet werden, daß die Datenpunkte der kaltbestrahlten Proben deshalb leicht unterschätzt sind.

Das Aufbauverhalten beider Aufbaukurven läßt sich in zwei Stadien einteilen. Im ersten Stadium wächst die Zentrendichte sehr schnell mit der Bestrahlungsdosis, im zweiten Stadium geht der rasche Anstieg in einen langsameren, linearen Anstieg über. Dieses Aufbauverhalten wurde schon früher im Lithiumhydrid mit Hilfe von optischen Absorptionsmessungen [Pre61] an Kristallen gemessen, die bei einer Temperatur von 80K mit Röntgenstrahlung bestrahlt wurden. [Dur69] erklärt den schnellen Anstieg des ersten Stadiums in den Alkalihalogeniden mit dem Vorhandensein von Fremdatomen. Bei extrem reinen Kristallen tritt das erste Stadium nicht mehr so deutlich auf. Fremdatome sind häufig mehrwertige Ionen, die in das Gitter eingebaut werden und eine Überschußladung im Ionenkristall bilden. Werden Anionen zur Bildung eines F-Zentrums von ihrem Gitterplatz in das Zwischengitter geschleudert, ist ihre Rekombinationswahrscheinlichkeit mit der zurückgelassenen Leerstelle geringer, wenn sie elektrostatisch an ein positiv geladenes Fremdion gebunden werden. Sobald die Überschußladungen der Fremdionen durch Anlagerung von Zwischengitteranionen abgesättigt sind, geht das Wachstum der F-Zentrendichte langsamer voran. Fremdatome sind also ein Beispiel für saturierbare Fallen. Die ESR-Messung ergab, daß bei der Warmbestrahlung (190K) deutlich mehr F-Zentren erzeugt werden konnten als bei der Tieftemperaturbestrahlung bei 140K. Im LiF wird eine geringere Erzeugungseffizienz mit steigender Temperatur bei Temperaturen höher als Raumtemperatur beobachtet [Dur69]. Im Tieftemperaturbereich entstehen allerdings auch im LiF weniger F-Zentren bei der Temperatur von flüssigem Stickstoff als im Bereich um 190K. Die Autoren entwickeln ein Wachstumsgesetz, das ein Wachstum der F-Zentren proportional zur Quadratwurzel der Bestrahlungszeit bzw. der Bestrahlungsdosis voraussagt, wenn man vereinfacht eine über die Bestrahlungszeit konstante Anzahl von Fallen annimmt, die Zwischengitteratome einfangen können.

$$Y = \sqrt{\frac{K \cdot I \cdot K_2 \cdot N \cdot t}{K_1}} \quad (3.1.2)$$

I: Bestrahlungsintensität

KI: Paare von Leerstellen und Anionenzwischengitteratomen pro Volumen und Zeit

NK_2 : Wahrscheinlichkeit, daß ein Anion fest eingefangen wird

$Y \cdot K_1$: Wahrscheinlichkeit, daß das Anion mit der Leerstelle rekombiniert

Dieses Aufbauverhalten wird verändert, wenn man neben nicht saturierbaren auch saturierbare Fallen einführt, das heißt Fallen, deren Zahl mit der Bestrahlungszeit sinkt, weil sie nach dem Anioneneinfang wie beschrieben abgesättigt sind. Außer chemischen Verunreinigungen können wahrscheinlich auch Versetzungen oder Korngrenzen und

andere Oberflächen als Senken für Zwischengitteratome fungieren. Dann ergibt sich das Gleichungssystem [Far69]:

$$\frac{dX}{dt} = K \cdot I - K_1 \cdot X \cdot Y - K_2 \cdot X \cdot N - K_3 \cdot X \cdot M \quad (a)$$

$$\frac{dY}{dt} = K \cdot I - K_1 \cdot X \cdot Y \quad (b) \quad (3.1.3)$$

$$\frac{dM}{dt} = -K_3 \cdot X \cdot M \quad (c)$$

- a) besagt, daß die gesamten erzeugten Zwischengitteratome (X) durch Rekombination mit F-Zentren (Y), durch Einfangen an nicht saturierbaren (N) und an saturierbaren Fallen (M) verringert werden.
- b) besagt, daß die primär erzeugten F-Zentren durch Rekombination mit den Zwischengitteratomen vernichtet werden.
- c) berücksichtigt, daß die Zahl der saturierbaren Fallen mit fortschreitender Bestrahlungszeit durch Einfangen von Zwischengitteratomen zurückgeht.

Die numerische Auswertung der Gleichungen liefert Wachstumskurven, die den gemessenen Wachstumskurven des ${}^6\text{LiD}$ sehr ähneln. Unter Berücksichtigung der Temperaturabhängigkeit der Erzeugung der primären Leerstellen-Zwischengitterpaare erhalten die Autoren auch das unterschiedliche Wachstumsverhalten für verschiedene Bestrahlungstemperaturen, das für 140K und 190K gemessen worden ist [Far69].

4.2 Charakterisierung der DNP-aktiven Fehlstellen

Es soll der Nachweis erbracht werden, daß der DNP-aktive Paramagnetismus hauptsächlich vom Farbzentrum, das heißt von paramagnetischen Fehlstellen auf Anionengitterplätzen getragen wird. Die Hyperfeinstrukturwechselwirkung (HFS) des magnetischen Moments des Elektronenspins mit den magnetischen Momenten der umliegenden Kerne ergibt ein charakteristisches Linienmuster im ESR-Absorptionsspektrum der Lithiumhydride¹. Der Vergleich zwischen gemessenem ESR-Absorptionssignal und theoretisch berechnetem HFS-verbreitertem Spektrum identifiziert die Lokalisierung des Paramagnetismus im kubisch flächenzentrierten Gitter des Lithiumdeuterids².

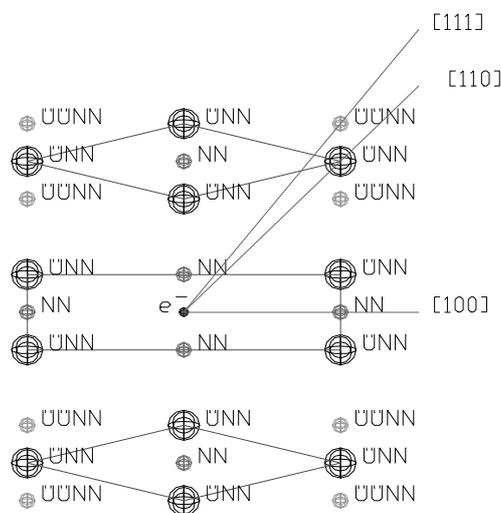


Abb. 4.2.1: F-Zentrum mit nächsten, übernächsten und überübernächsten Nachbarn im kfz-Gitter

Messung des Absorptionssignals

Neben der inhomogenen Verbreiterung durch Hyperfeinstruktur sind kleine Anteile homogener Linienverbreiterung im strahlengeschädigten Lithiumhydrid wirksam. Den Hauptanteil der homogenen Verbreiterung stellt die Dipolwechselwirkung der magnetischen Momente der Elektronen untereinander dar. Zwar fällt die Dipolwechselwirkung mit der dritten Potenz des Abstands ab, doch das magnetische Moment des Elektrons ist mehr als 2000 Mal größer als das des Deuterons, so daß die Dipolwechselwirkung der Farbzentren untereinander auch über mehrere Gitterabstände hinweg einen kleinen Anteil an der Linienverbreiterung ausmacht. Die homogene Linienverbreiterung ist aber gegen die inhomogene Verbreiterung soweit untergesetzt, daß sie in den Lithiumhydriden der vorliegenden Zentrenrichtungen nur die HFS auswäscht und sie undeutlicher erscheinen läßt.

Es wurden die Mikrowellenleistung bzw. die B_1 -Feldstärke im Resonator soweit verringert, daß Sättigungseffekte keine Rolle mehr spielten. Die meisten Spektren zeigten auch bei Abschwächung größer 70dB noch ein ausreichendes Signal-zu-Rauschverhältnis. Dazu war

¹ Es werden folgende Verbindungen der Isotope untersucht: ^7LiD , ^7LiH , ^6LiD , ^6LiH

² Gitterkonstanten: $a(^7\text{LiH})=0,4082\text{nm}$, $a(^6\text{LiD})=0,4066\text{nm}$

es nötig, das Signal durch Kühlung der Probe auf Flüssigstickstofftemperatur zu verstärken. Moderne ESR-Spektrometer benutzen zur Verbesserung des Signal-zu-Rauschverhältnisses ein Meßverfahren, bei dem das äußere Magnetfeld mit einem modulierten (meistens 100 kHz) zusätzlichen Magnetfeld überlagert und damit die Resonanz ständig durchfahren wird. Die Modulationsbreite, das heißt die Amplitude dieses magnetischen Wechselfeldes, bestimmt dann die kleinste noch auflösbare Struktur. Zu der Aufnahme der Spektren wurden Modulationsamplituden kleiner als 0,1mT gewählt. Der kleinste erwartete HFS-Linienabstand beträgt 0,3mT, so daß keine Informationen über das HFS-Linienmuster verloren gehen konnten.

Berechnung der hyperfeinstrukturverbreiterten Signale

Zum theoretischen Erstellen der HFS-verbreiterten Signale ist zum Einen die Stärke der Wechselwirkung (Abstand vom Linienzentrum) des magnetischen Moments des Elektronenspins mit den magnetischen Momenten der umliegenden Kerne in der Zusammensetzung ihrer Spinausrichtungen und zum Anderen die zugehörige Linienintensität (Resonanzstärke) zu berechnen.

Die Wechselwirkungsstärke bestimmt den energetischen Abstand bzw. den Magnetfeldabstand des Spinübergangs vom Linienzentrum. Sie berechnet sich nach [HB62] zu:

$$\Delta E = H_{HFS} = \{a^{(1)} + b^{(1)} \cdot (3 \cdot \cos^2 \vartheta - 1)\} \cdot M_i^{(1)} + \{a^{(2)} + b^{(2)} \cdot (3 \cdot \cos^2 \vartheta - 1)\} \cdot M_i^{(2)} + \dots \quad (4.2.1)$$

- ϑ : Winkel zwischen äußerem Magnetfeld und Verbindungslinie Farbzentrum-Nachbarkern
- M_i : Summe magnetischer Quantenzahlen äquivalenter¹ Kerne
- $a^{(j)}$: Kontaktwechselwirkungskoeffizient der Schale j
- $b^{(j)}$: Dipolwechselwirkungskoeffizient der Schale j

Jeder Summand der Formel 4.2.1 setzt sich aus einem Kontaktwechselwirkungsterm und einem Dipolwechselwirkungsterm zusammen. Die Gewichtung beider Wechselwirkungsstärken findet in den zwei HFS-Parametern a und b ihren Ausdruck. Die Kontaktwechselwirkung wird durch eine kleine Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Farbzentrumelektrons am Ort des Umgebungskerns hervorgerufen. Sie ist von der Form:

$$a^{(i)} \sim g_I \cdot |\Psi(0)|^2 \quad (4.2.2)$$

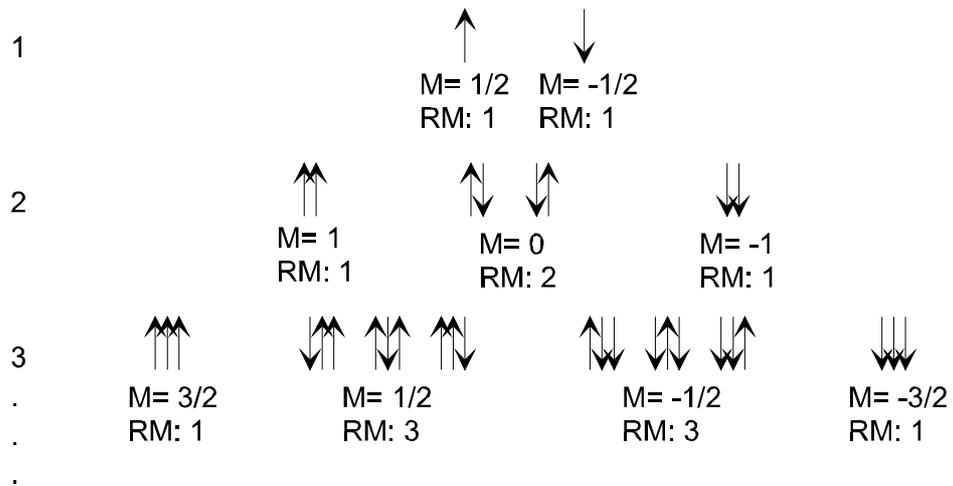
Die Dipolwechselwirkung zeigt im Unterschied zur Kontaktwechselwirkung eine Abhängigkeit vom Winkel zwischen der Richtung des äußeren Magnetfelds und der Verbindungslinie Farbzentrum-Nachbarkern. Für den Koeffizienten der Dipolwechselwirkung gilt:

$$b^{(i)} \sim \frac{g_I}{r_i^3} \quad (4.2.3)$$

¹ Kerne innerhalb einer Schale, deren $\cos^2\theta$ -Werte übereinstimmen

Zahl äquivalenter Kerne

Kombinationsmöglichkeiten



M: Magnetische Gesamtquantenzahl
RM: Realisierungsmöglichkeiten

Abb. 4.2.3: Kombinatorik äquivalenter Protonen

6 nächste Nachbarn (NN)

	Ortsvektor	Cos θ bei Magnetfeld in Richtung:		
		[1 1 1]	[1 1 0]	[1 0 0]
1.	(1, 0, 0)	$3^{-1/2}$	$2^{-1/2}$	1
2.	(0, 1, 0)	$3^{-1/2}$	$2^{-1/2}$	0
3.	(0, 0, 1)	$3^{-1/2}$	0	0
4.	(-1, 0, 0)	$-3^{-1/2}$	$-2^{-1/2}$	-1
5.	(0, -1, 0)	$-3^{-1/2}$	$-2^{-1/2}$	0
6.	(0, 0, -1)	$-3^{-1/2}$	0	0

12 übernächste Nachbarn (ÜNN)

	Ortsvektor	Cos θ bei Magnetfeld in Richtung:		
		[1 1 1]	[1 1 0]	[1 0 0]
1.	(1, 1, 0)	$(2/3)^{1/2}$	1	$2^{-1/2}$
2.	(-1, 1, 0)	0	0	$-2^{-1/2}$
3.	(1, -1, 0)	0	0	$2^{-1/2}$
4.	(-1, -1, 0)	$-(2/3)^{1/2}$	-1	$-2^{-1/2}$
5.	(1, 0, 1)	$(2/3)^{1/2}$	1/2	$2^{-1/2}$
6.	(1, 0, -1)	0	1/2	$2^{-1/2}$
7.	(-1, 0, 1)	0	-1/2	$-2^{-1/2}$
8.	(-1, 0, -1)	$-(2/3)^{1/2}$	-1/2	$-2^{-1/2}$
9.	(0, 1, 1)	$(2/3)^{1/2}$	1/2	0
10.	(0, -1, 1)	0	-1/2	0
11.	(0, 1, -1)	0	1/2	0
12.	(0, -1, -1)	$-(2/3)^{1/2}$	-1/2	0

8 überübernächste Nachbarn (ÜÜNN)

	Ortsvektor	Cos θ bei Magnetfeld in Richtung: [1 1 1]
1.	(1, 1, 1)	1
2.	(1, 1, -1)	1/3
3.	(1, -1, 1)	1/3
4.	(-1, 1, 1)	1/3
5.	(1, -1, -1)	-1/3
6.	(-1, 1, -1)	-1/3
7.	(-1, -1, 1)	-1/3
8.	(-1, -1, -1)	-1

Tab. 4.2.1: Zuordnung der Kerne der ersten drei Schalen zu äquivalenten Nukleonengruppen, (Ortsvektoren in Einheiten der halben Gitterkonstanten)

Zur Festlegung der äquivalenten Kerngruppen wird für jeden Nachbarnkern der $\cos^2\theta$ -Wert des Winkels zwischen Magnetfeldrichtung und Verbindungslinie Farbzentrum - Nachbarnkern gebildet. Die Tabelle 4.2.1 zeigt die Abstandsvektoren vom Farbzentrum am Ort (0,0,0) zu den Nachbarnkernen und den $\cos\theta$ -Wert bei Magnetfeldrichtungen in [111]-, [110]- und [100]-Richtung.

Man sieht, daß sich die Kerne einer Schale in bis zu drei Gruppen äquivalenter Kerne anordnen. Es wird jede mögliche Kombination der magnetischen Quantenzahlen M der beteiligten Gruppen aller berücksichtigten Schalen gebildet. Zu jeder ihrer Quantenzahlen M gehört eine Zahl Realisierungsmöglichkeiten, wie in Abbildung 4.2.3 gezeigt. Den Kombinationen wird das Produkt ihrer Realisierungsmöglichkeiten als statistisches Gewicht bzw. als Signalstärke zugeordnet. Diese Signalstärke findet sich in theoretischen Spektrum an dem nach Gleichung (4.2.1) berechneten Magnetfeldabstand vom Linienzentrum. Auf diese Weise erhält man eine Punktwolke im Signalstärke-Magnetfeld-Diagramm. Um von dieser Rohversion eines Spektrums auf ein Spektrum zu kommen, das mit den gemessenen Spektren vergleichbar ist, muß nun noch in geeigneter Weise über die Signalstärken gemittelt werden. In den folgenden berechneten Spektren sind die Signalstärken, die in einem Intervall $\Delta B=0.2\text{mT}$ lagen, zu einer Signalstärke addiert worden, die dann dem Intervallmittelpunkt zugeordnet wurden. Zur zusätzlichen Glättung des Spektrums sind die einzelnen Signalstärken vor der Addition mit einer Gauß'schen Verteilungskurve (Maximum am Intervallmittelpunkt) gewichtet worden. Somit wird das Modulationsmeßverfahren der ESR-Apparatur nachgeahmt.

Kaplan und Bray veröffentlichen 1963 eine HFS-auflösende ESR-Untersuchung an Lithiumfluorid, in der sie auch dieses Berechnungsverfahren vorstellen [Kap63]. Ihnen lag eine ENDOR-Untersuchung vor, in der die HFS-Konstanten an Lithiumfluorid mit natürlichem Isotopenvorkommen gemessen worden sind.

Schale	Kern	g_l	a mT	b mT
1	⁷ Lithium	2.171	1.394	0.114
1	⁶ Lithium	0.822	0.528	0.043
2	¹⁹ Fluor	5.258	3.780	0.534

Tab. 4.2.2: HFS-Konstanten des Lithiumfluorids nach [Kap 63]

Sowohl die Gitterstruktur als auch der Gitterabstand stimmen im Lithiumfluorid mit denen des Lithiumhydrids überein. Daher können die b-Konstanten (Dipolterm) skaliert mit den g-Faktoren der jeweiligen Isotope direkt für die Lithiumhydride übernommen werden. Die a-Konstanten (Kontaktterm) sind proportional zur Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Elektrons am Kernort. Diese quantenmechanische Größe ist von der Art und Stärke der chemischen Bindung abhängig und kann nicht direkt aus der Tabelle 4.2.2 vom Lithiumfluorid auf die Lithiumhydride übertragen werden. Abbildung 4.2.4 zeigt das gemessene Spektrum des ^7LiD im Vergleich zum berechneten Spektrum, das nur die HFS-Wechselwirkung des Farbzentrs mit der ersten Schale, das heißt mit den sechs $^7\text{Lithiumkernen}$ (NN) berücksichtigt. Dabei wurde einmal der a-Parameter des Lithiumfluorids angenommen, in einer zweiten Berechnung wurde der a-Parameter dem Peak-Abstand des gemessenen HFS-Linienmusters im ^7LiD entnommen.

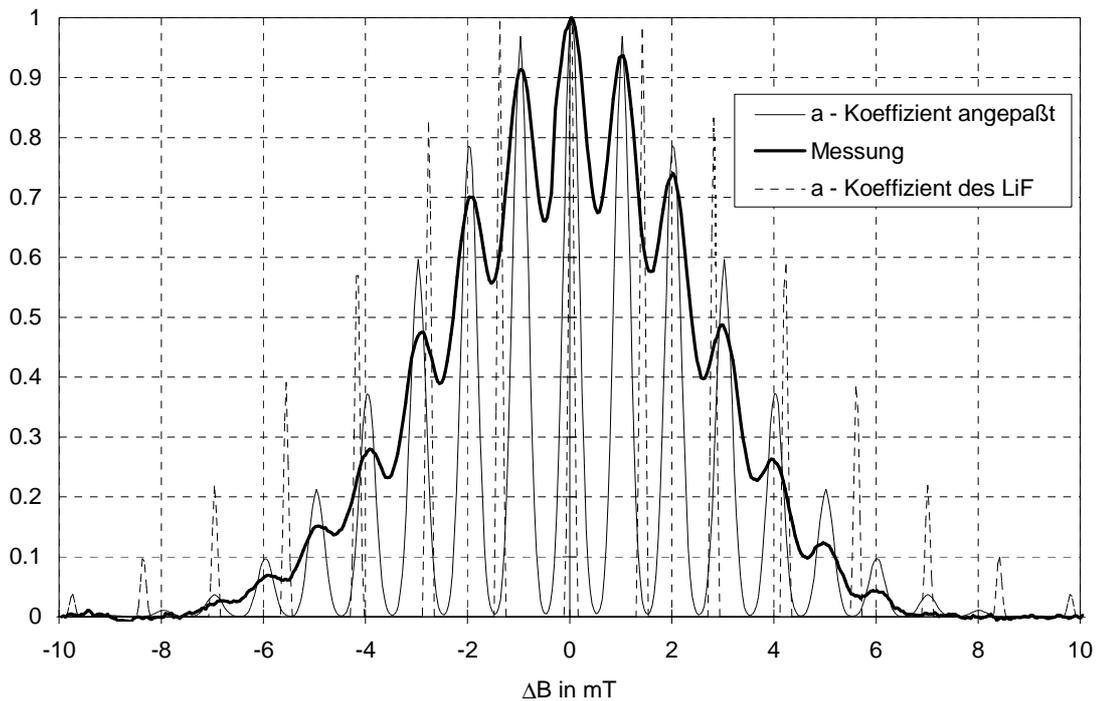


Abb. 4.2.4: Berechnete HFS-Spektren des reinen ^7LiD unter alleiniger Berücksichtigung der ersten Schale im Vergleich zum gemessenen ESR-Spektrum, B-Feld in [111]

Die erste Schale um das Farbzentrum besteht aus sechs $^7\text{Lithiumkernen}$ mit großem g-Faktor, die nur eine halbe Gitterkonstante entfernt sind. Deren HFS-Wechselwirkung mit dem F-Zentrum übersteigt die HFS-Wechselwirkung mit der weiter entfernten Deuteronenschale (kleiner g-Faktor) so sehr, daß die Maxima des Linienmusters allein durch die a-Parameter der ersten Schale gegeben sind. Die Dipolwechselwirkung und höhere Schalen tragen nur zu einer Verbreiterung der Peaks des HFS-Linienmusters bei.

Schale	Kern	g_i	a mT	b mT
1	$^7\text{Lithium}$	2.171	0.996	0.114
1	$^6\text{Lithium}$	0.822	0.377	0.043
2	Proton	5.586	?	0.104
2	Deuteron	0.857	?	0.016

Tab. 4.2.3: HFS-Konstanten der Lithiumwasserstoffe

Deshalb kann durch Messung des Peak-Peak-Abstands im ${}^7\text{LiD}$ der a -Parameter der ersten Schale sehr genau bestimmt werden. Damit können alle bekannten Konstanten zu Tabelle 4.2.3 zusammengefaßt werden. Die a -Koeffizienten der zweiten Schale können mit Hilfe des ${}^6\text{LiD}$ -Spektrums angepaßt werden. In Abbildung 4.2.5 kann die Auswirkung einer Variation des a -Koeffizienten der zweiten Schale auf das berechnete Spektrum am Beispiel des ${}^6\text{LiD}$ mit Magnetfeld in $[111]$ -Richtung verfolgt werden. Man sieht, daß die Spektren sehr empfindlich auf kleine Änderungen des a -Koeffizienten der zweiten Schale sind und daß eine genaue Festlegung möglich ist. Die Spektren sind aus Gründen der Übersichtlichkeit um jeweils zwei Millitesla aus der Mitte des Spektrums gerückt worden. Die beiden zentralen Spektren unterscheiden sich in der Zusammensetzung der nächsten Nachbarkerne: während das schlanke Spektrum, das noch ein wenig zu stark das HFS-Linienmuster zeigt, mit sechs ${}^6\text{Lithium}$ kernen in der ersten Schale rechnet, berücksichtigt das breite zentrale Spektrum fünf ${}^6\text{Lithium}$ - und einen ${}^7\text{Lithium}$ kern in der ersten Schale. Addiert man beide Spektren gewichtet mit der Wahrscheinlichkeit der Konfiguration entsprechend der Isotopenreinheit des tatsächlichen Lithiums (wie später noch genauer erläutert), erhält man das in Abbildung 4.2.6 gezeigte Spektrum.

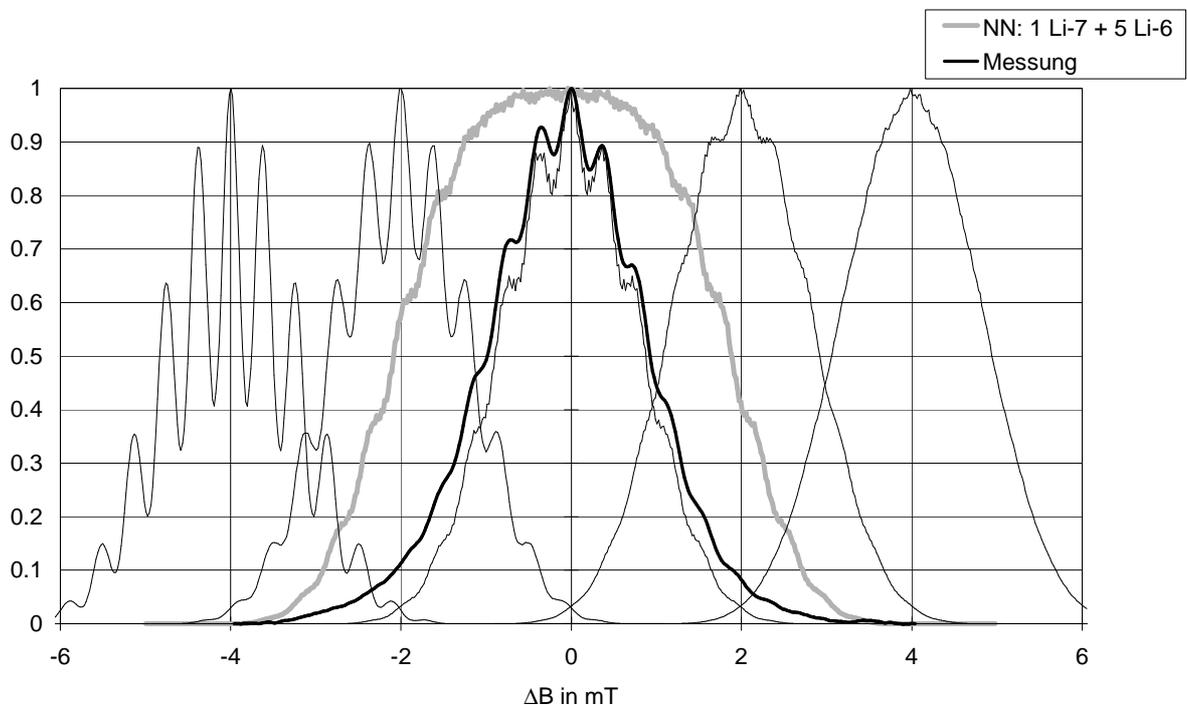


Abb. 4.2.5: Variation des Deuterium a -Koeffizienten im ${}^6\text{LiD}$. Von links: $a=0.03\text{mT}$, $a=0.04\text{mT}$, $a=0.048\text{mT}$, $a=0.055\text{mT}$, $a=0.065\text{mT}$

Es zeigt, daß die Wahl $a=0.048\text{mT}$ das gemessene Spektrum am besten trifft. Das theoretische Spektrum ist ein wenig breiter als das gemessene Spektrum. Diese Beobachtung ist auch an den folgenden Spektren der übrigen Isotopkombinationen und bei anderen Magnetfeldrichtungen zu machen. Das gemessene Spektrum ist nicht exakt achsensymmetrisch, sondern weist einen kleinen dispersiven Anteil auf.

Der Peak-Abstand im gemessenen Spektrum des ${}^6\text{LiD}$ stimmt sehr gut mit dem a -Koeffizienten des ${}^6\text{Lithium}$ kerns überein, der aus der Skalierung am a -Parameter des ${}^7\text{Lithium}$ kerns mit Hilfe der g -Faktoren (s. Tab. 4.2.3) entstanden ist. Dies bestätigt die Richtigkeit der Überlegung, daß in den Deuteriumverbindungen die Wechselwirkung mit der ersten Schale so sehr überwiegt, daß der Peak-Peak-Abstand allein vom a -Koeffizienten der ersten Schale bestimmt wird.

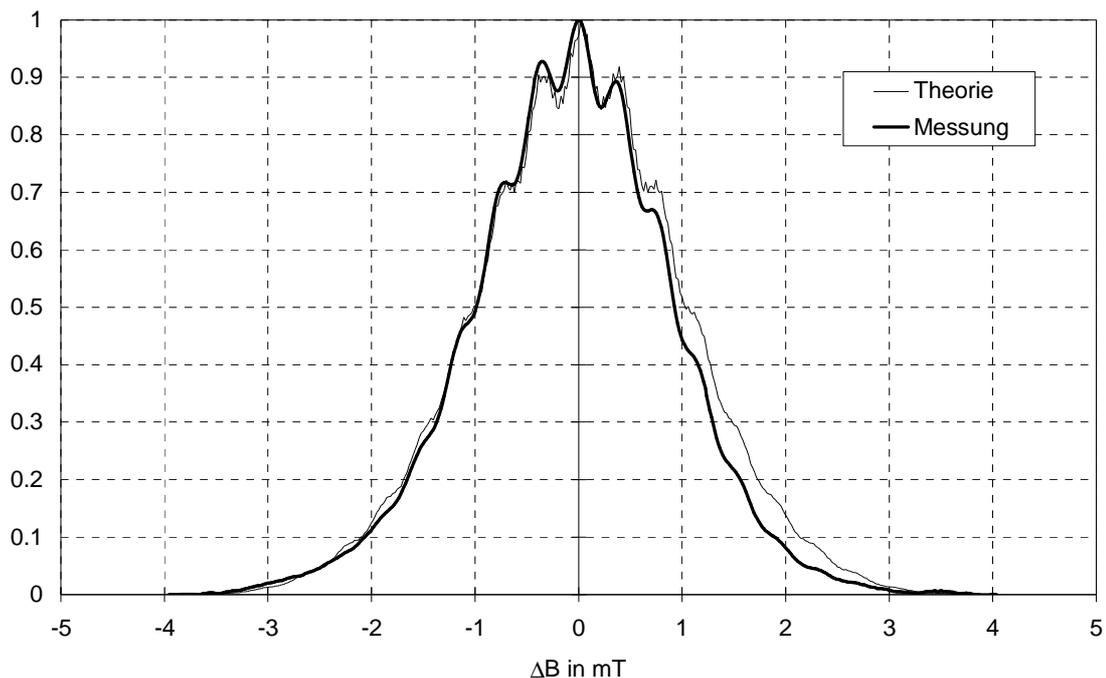


Abb. 4.2.6: Vergleich zwischen gemessenem und berechnetem Spektrum des ${}^6\text{LiD}$ mit Magnetfeldrichtung in $[111]$

Damit sind die Parameter der ersten und zweiten Schale festgelegt und die Spektren aller vier Isotopkombinationen berechnet werden. In Abbildung 4.2.7 ist aber ersichtlich, daß die Hyperfeinstruktur im Spektrum des ${}^7\text{LiD}$, das mit obigen Koeffizienten berechnet wurde, stark überschätzt wird. Ein Blick auf die Ortsvektoren der Nachbarkerne in Tabelle 4.2.1 zeigt, daß die Lithiumkerne der ersten Schale eine halbe Gitterkonstante, die Deuteronen der zweiten Schale $2^{1/2}$ halbe Gitterkonstanten und die Lithiumkerne der bisher unberücksichtigten dritten Schale nur $3^{1/2}$ halbe Gitterkonstanten entfernt sind. Ist diese Schale mit ${}^6\text{Lithium}$ kernen besetzt, spielt deren Wechselwirkung mit dem F-Zentrum wegen des dreifach kleineren g-Faktors eine kaum wahrnehmbare Rolle, weshalb die Einbeziehung der ersten beiden Schalen zur Beschreibung des ${}^6\text{LiD}$ -Spektrums ausreicht (s. Abb. 4.2.6). Im ${}^7\text{Lithiumdeuterid}$ verschmiert aber höchstwahrscheinlich die Wechselwirkung mit der dritten Schale das HFS-Liniemuster soweit, daß es mit dem obigen Parametersatz nur dann beschreibbar bleibt, wenn man das ${}^7\text{LiD}$ -Spektrum für eine Anpassung des α -Parameters der dritten Schale nutzt. Abbildung 4.2.8 zeigt das ${}^7\text{LiD}$ -Spektrum unter Berücksichtigung der dritten Schale im Vergleich zum gemessenen Spektrum. Die Variation des α -Koeffizienten der dritten Schale um 10% relativ hat eine deutliche Wirkung auf das HFS-Muster. Bei Wahl $\alpha(\text{ÜÜNN})=0.08$ mT kommen das berechnete und das gemessene Spektrum zur Deckung. Als einziger Unterschied fällt wieder die Gesamtbreite des berechneten Spektrums etwas zu breit aus. Unter Benutzung der HFS-Koeffizienten des am besten angepaßten Spektrums der Abbildung 4.2.8 sind Vergleiche zwischen berechneten und gemessenen Spektren des ${}^7\text{LiD}$ mit Magnetfeldrichtung in $[110]$ und in $[100]$ zur Bestätigung der Richtigkeit der gemachten Annahmen angestellt worden. Das Spektrum des ${}^7\text{LiD}$ zeigt das stärkste HFS-Liniemuster aller Isotopkombinationen, weil die starke Wechselwirkung mit den ${}^7\text{Lithium}$ kernen nur wenig durch die Deuteronen der zweiten Schale ausgewaschen wird. Die Kombinatorik bei Magnetfeldrichtung in $[111]$ weist den kleinsten Umfang auf und diese Spektren zeigen die HFS-Struktur an deutlichsten. Nur ${}^7\text{LiD}$ zeigt auch bei anderen Magnetfeldrichtungen als $[111]$ noch eine aufgelöste HFS-Struktur. Diese kann aber nur bei Richtigkeit des Berechnungsverfahrens, der Koeffizienten und der Berücksichtigung ausreichend vieler Nachbarnukleonen zutreffend beschrieben werden.

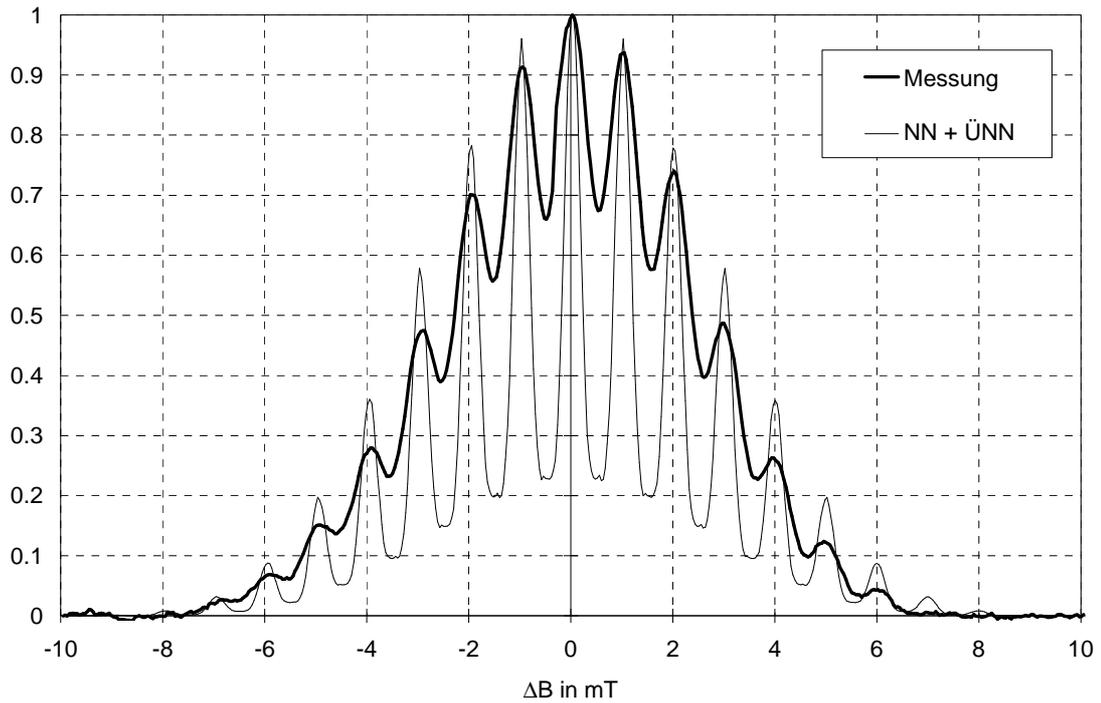


Abb. 4.2.7: Theoretisches Spektrum unter Berücksichtigung der ersten und zweiten Schale im Vergleich zum gemessenen Spektrum des ${}^7\text{LiD}$ mit Magnetfeld in [111]

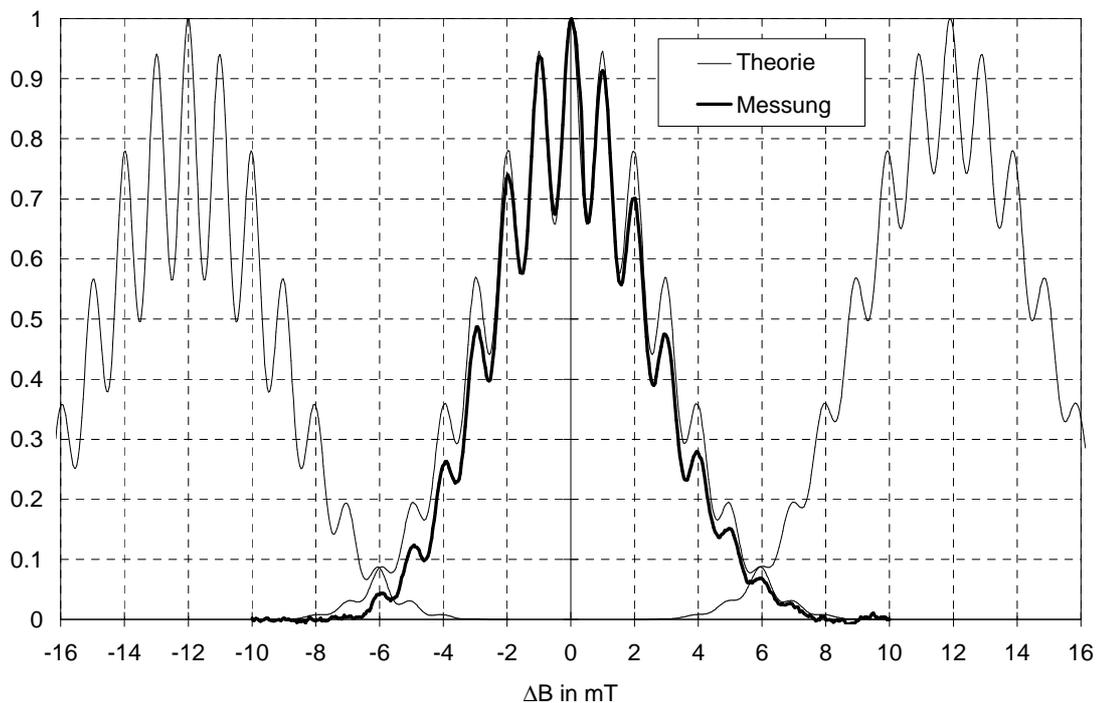


Abb. 4.2.8: Variation des a - Koeffizienten der dritten Schale im ${}^7\text{LiD}$. Von links: $a=0.07\text{mT}$, $a=0.08\text{mT}$, $a=0.09\text{mT}$

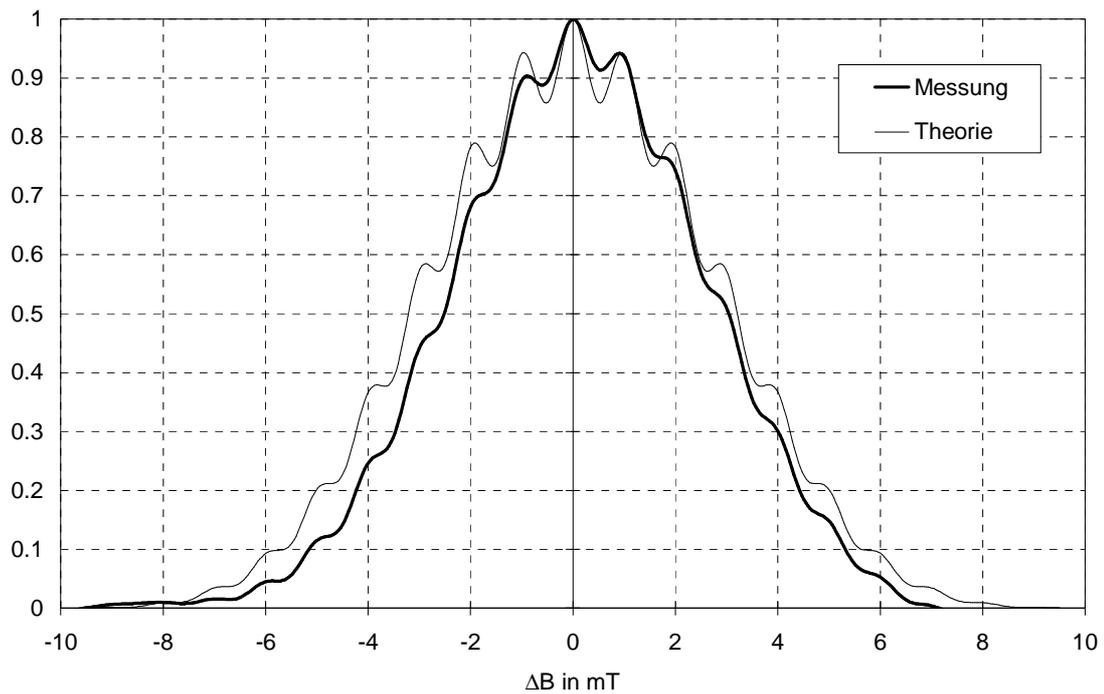


Abb. 4.2.9: Theoretisches Spektrum unter Berücksichtigung der ersten, zweiten und dritten Schale im Vergleich zum gemessenen Spektrum des ${}^7\text{LiD}$ mit Magnetfeld in [110]

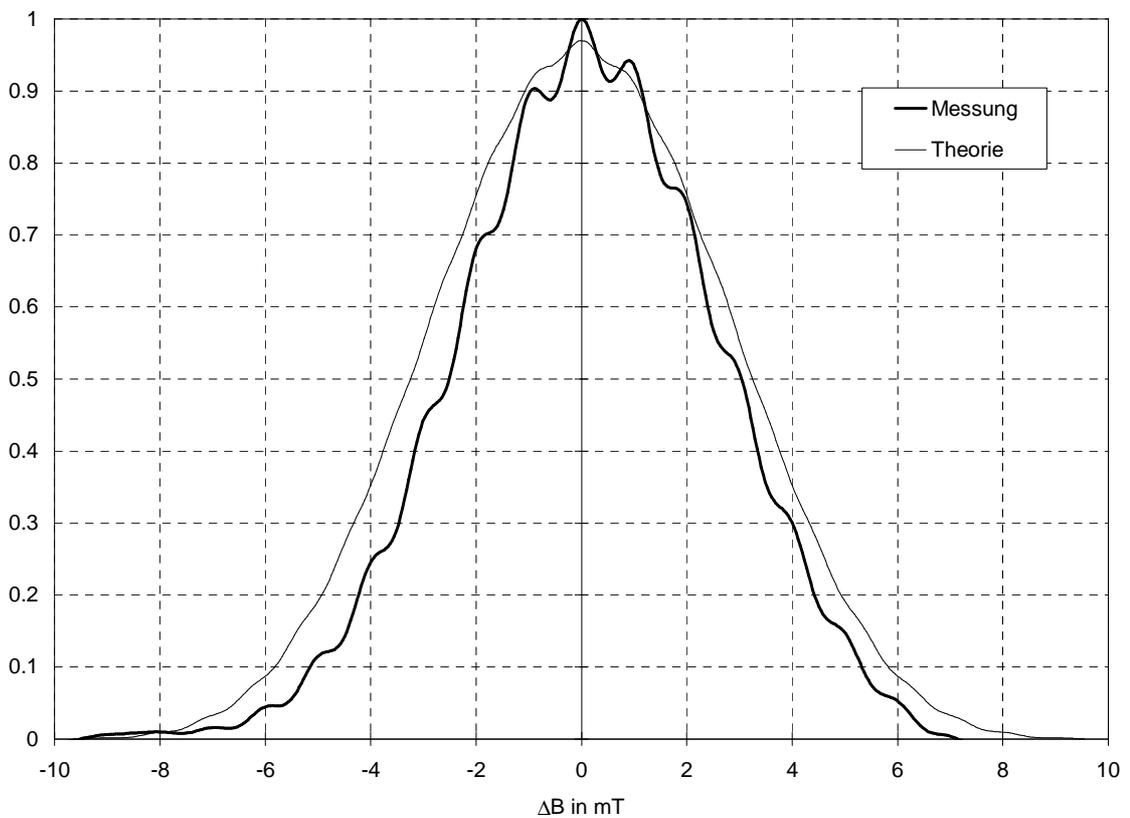


Abb. 4.2.10: Theoretisches Spektrum unter Berücksichtigung der ersten, zweiten und dritten Schale im Vergleich zum gemessenen Spektrum des ${}^7\text{LiD}$ mit Magnetfeld in [100]

Wenn das magnetische Feld in [110] weist, wird das gemessene Spektrum annähernd zutreffend beschrieben. In Abbildung 4.2.9 überschätzt das berechnete Spektrum ein wenig die HFS-Struktur, in Abbildung 4.2.10 zeigt das berechnete Spektrum deutlich zu wenig aufgelöste HFS. Zum Einen können die Abweichungen auf Ungenauigkeiten der Kristallorientierung zurückzuführen sein. Die Kristallorientierung wurde durch Drehen des Probenröhrchens am ESR-Spektrometer zwischen [110] und [100] verändert. Bei einer kleinen Fehleinstellung "sieht" das in [110] aufgenommene Spektrum ein wenig von der [100]-Richtung, die HFS des gemessenen Spektrums fällt ein wenig zu klein aus und umgekehrt. Andererseits sind die erwarteten Fehler der Winkeleinstellung zu klein, um die Abweichungen der Spektren alleine erklären zu können. Hinzu kommen auch Ungenauigkeiten in der Bestimmung der HFS-Konstanten durch Anpassung an die verschiedenen gemessenen Spektren und die völlig unberücksichtigt gebliebene homogene Verbreiterung.

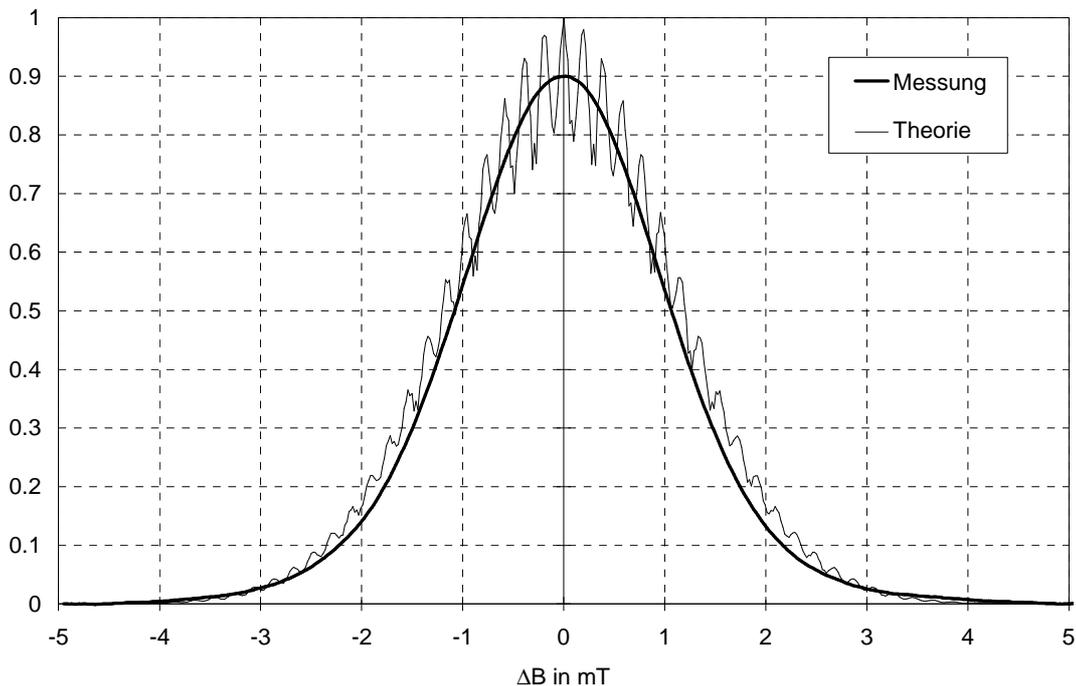


Abb. 4.2.11: Theoretisches Spektrum unter Berücksichtigung der ersten und zweiten Schale im Vergleich zum gemessenen Spektrum des ${}^6\text{LiH}$, Magnetfeld in [111]

Abbildung 4.2.11 zeigt das Spektrum des ${}^6\text{LiH}$. Die Wechselwirkung mit den Protonen in der zweiten Schale ist wegen des sechseinhalbmal größeren g-Faktors der Protonen so stark, daß es das Linienmuster der Wechselwirkung mit der ersten Schale zum Teil überdeckt. Das Ergebnis ist ein sehr dichtes Linienmuster mit geringer Breite der Einzelpeaks, das im ESR-Spektrum nicht aufgelöst wird. Die Gesamtbreite wird wie in den vorhergehenden Spektren zutreffend beschrieben. Theoretisches und gemessenes Spektrum stimmen im Falle des ${}^7\text{LiH}$ genau überein (Abbildung 4.2.12). Auch die Gesamtbreite wird genau getroffen und wird nicht wie im Falle der anderen Spektren ein wenig zu groß beschrieben. Alle anderen berechneten Spektren sind unerwartet etwas breiter als die gemessenen Spektren. Bisher unbeachtete Verbreiterungsmechanismen verbreitern die gemessene Resonanzlinie im ungesättigten Fall, scheiden also als Erklärung dieses Phänomens aus. Die einzige denkbare Erklärung wäre eine Linienverjüngung infolge einer teilweisen Linienättigung. Eine weitere Verringerung des B_1 -Feldes zur Überprüfung dieser Hypothese ist experimentell leider nicht möglich.

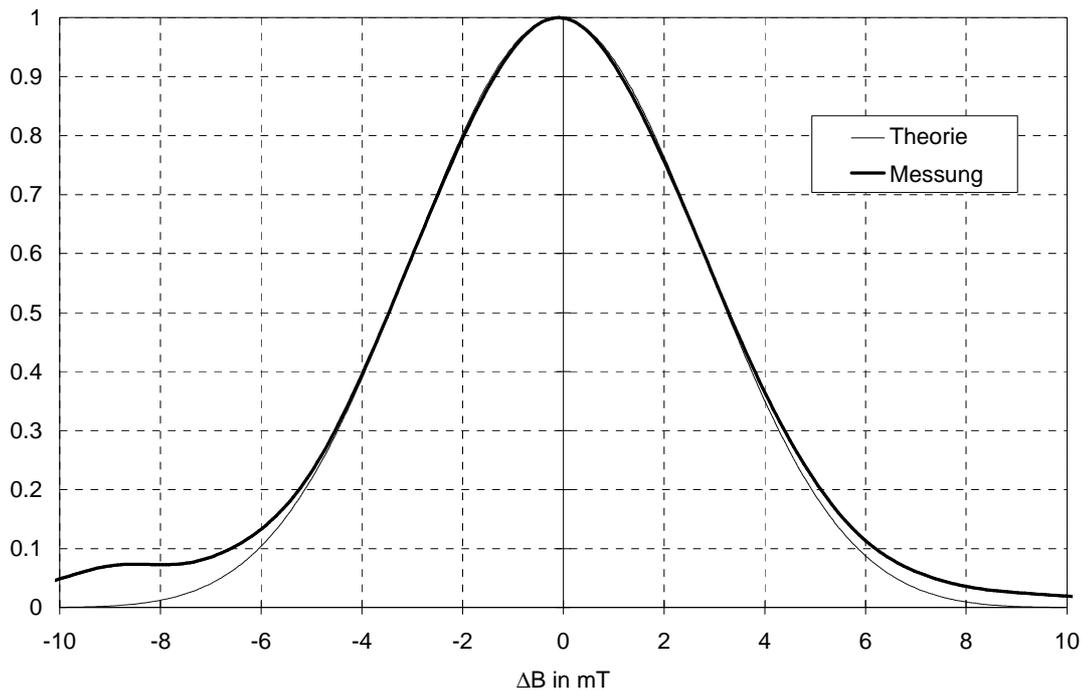


Abb. 4.2.12: Theoretisches Spektrum unter Berücksichtigung der ersten, zweiten und dritten Schale im Vergleich zum gemessenen Spektrum des ${}^7\text{LiH}$, Magnetfeld in [111]

In allen vorgestellten Spektren außer in Abbildung 4.2.5 ist die Isotopenzusammensetzung berücksichtigt worden. Mit Hilfe der Massenspektroskopie sind 4.65% ${}^7\text{Lithium}$ im ${}^6\text{Lithium}$ nachgewiesen worden. Die ${}^7\text{Lithium}$ isotope lagen in natürlicher Reinheit vor (7% ${}^6\text{Lithium}$). Die Korrektur soll nur in der am stärksten wechselwirkenden ersten Schale durchgeführt werden. Die Wahrscheinlichkeit, daß in den ${}^7\text{Lithium}$ verbindungen m ${}^6\text{Lithium}$ kerne und $(6 - m)$ ${}^7\text{Lithium}$ kerne in der ersten Schale enthalten sind, ist gegeben durch [Kap 63]:

$$W(m) = \binom{6}{m} \cdot 0.93^{(6-m)} \cdot 0.07^m \quad (3.3.4)$$

(Analoge Rechnung für ${}^6\text{Lithium}$ isotope).

Tabelle 3.2.4 zeigt die Wahrscheinlichkeiten, mit denen man m Fremdisotope in der ersten Schale antrifft.

Isotop	für m	Wahrscheinlichkeit		
		$m = 1$	$m = 2$	$m = 3$
${}^6\text{Lithium}$	${}^7\text{Lithium}$ -	0.759	0.214	0.025
${}^7\text{Lithium}$	${}^6\text{Lithium}$ - kerne	0.647	0.292	0.055

Tab. 4.2.4: Wahrscheinlichkeit, daß sich 1, 2 oder 3 Fremdisotope in der ersten Schale befinden

Man erkennt, daß die Wahrscheinlichkeit mehrere Kerne des Fremdisotops in der ersten Schale zu treffen sehr schnell mit der Zahl der Fremdkerne fällt. In guter Näherung genügt es, wenn man die Verunreinigung der ersten Schale mit einem Fremdkern berücksichtigt. Die Spektren sind sowohl unter Berücksichtigung von 6 gleichen Kernen in der ersten Schale als auch mit 5 gleichen und einem fremden Kern in der ersten Schale berechnet worden. Dann ist das endgültige Spektrum durch gewichtete Addition mit den Wahrscheinlichkeiten aus Tabelle 4.2.4 entstanden.

Abschließend ist festzustellen, daß es trotz einiger kleiner Abweichungen eine starke Übereinstimmung zwischen berechneten und gemessenen Spektren gibt, wenn man in den ^7Li Isotopen die Nachbarkerne der dritten Schale mit einbezieht. Es steht unzweifelhaft fest, daß der hauptsächlich verbreiternde Anteil an der ESR-Absorptionslinie die inhomogene Verbreiterung durch Hyperfeinstrukturwechselwirkung ist. Unter Verwendung des ^6LiD -Spektrums fällt der Nachweis schwer, daß der Paramagnetismus der Fehlordnung hauptsächlich von Elektronen getragen wird, die von Leerstellen auf Deuteriumgitterplätzen stabil eingefangen sind. Der g-Faktor des Deuterons ist nur 5% größer als der g-Faktor des ^6Li -Kerns. Wäre der Paramagnetismus hauptsächlich auf Lithiumgitterplätzen statt auf Deuteriumgitterplätzen lokalisiert, würde nur der Peak-Peakabstand im Spektrum des ^6LiD um 5% größer. Das Spektrum des ^7LiD würde hingegen völlig verändert erscheinen.

Die Spektren des ^6LiD und des ^7LiD haben gezeigt, daß die Anzahl und Lage der HFS-Peaks stets von den Kernen der ersten Schale bestimmt wird. Der Einfluß der höheren Schalen verbreitert die Peaks, wäscht sie aus und läßt die undeutlicher erscheinen. Falls die Kerne der zweiten Schale ein gleich starkes oder stärkeres magnetisches Moment tragen als die Kerne der ersten Schale, sind die Peaks so stark ausgewaschen und verbreitert, daß das gemessene Spektrum gar keine HFS-Struktur mehr aufweist, wie die Spektren des ^6LiH und ^7LiH zeigen. Wenn also die Elektronen Leerstellen auf Lithiumgitterplätzen besetzen würden, wären im Falle des ^7LiD die Kerne der ersten Schale schwach wechselwirkende Deuteronen und die Kerne der zweiten Schale stark wechselwirkende ^7Li -Kerne. Dann dürfte das ^7LiD -Spektrum kein ausgeprägtes HFS-Linienmuster zeigen.

Der Paramagnetismus der strahlengeschädigten Lithiumhydride ist hauptsächlich auf Deuteriumgitterplätzen lokalisiert. Dieses Bild stimmt mit dem klassischen Bild von einem Farbzentrum überein.

4.3 Optische Spektroskopie

Die Strahlenschädigung erzeugt viele verschiedene Arten von Defekten im Kristall. Die Abbildung 4.3.1 zeigt die Modellvorstellungen der Punktdefekte, die für die folgenden Überlegungen von Bedeutung sind.

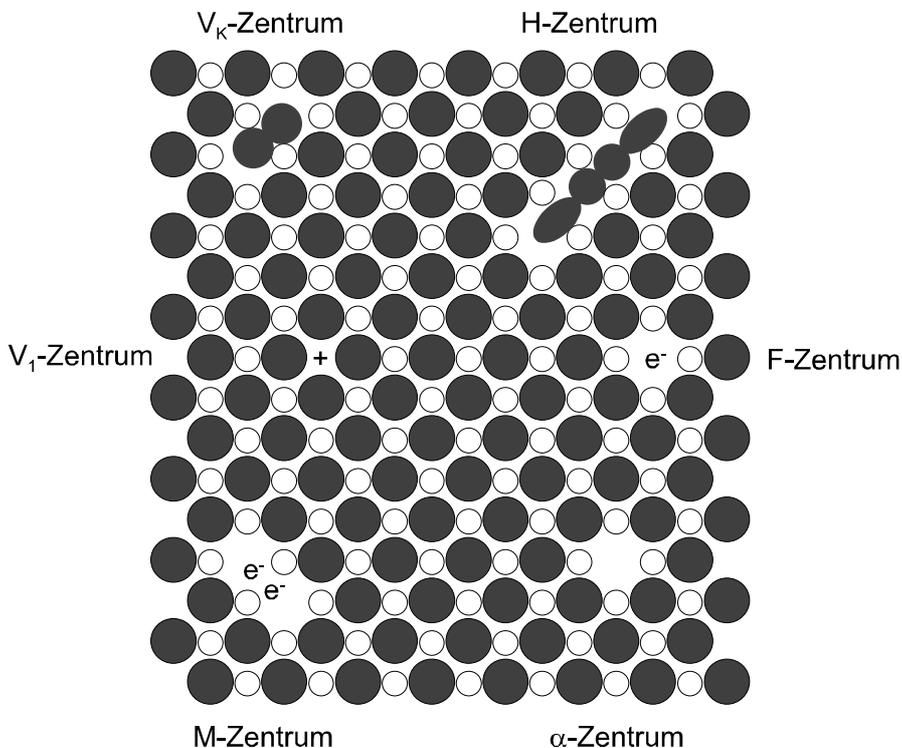


Abb. 4.3.1: F-, V_k-, V_i-, H-, α- und M-Zentrum im Ionenkristall

Außer bei dem Farbzentrum (F-Zentrum) ist aber nur bei V_k- und bei H-Zentren im KCl ein Paramagnetismus beobachtet worden [Kel69]. Farbzentren treten in Folge einer Strahlenschädigung meist mit der größten Dichte aller Punktdefekte auf und ihr Paramagnetismus könnte den Paramagnetismus anderer Punktdefekte in manchen Fällen so stark überdecken, daß er in der ungesättigten ESR-Absorptionsspektroskopie unentdeckt bliebe. Die optische Spektroskopie kann zur Untersuchung aller Punktfehlstellen eingesetzt werden und wird vor allem in den Alkalihalogeniden seit einigen Jahrzehnten eingesetzt.

Bei den Alkalihalogeniden handelt es sich um ausgesprochene Ionenkristalle. An ihnen ist die Physik der Punktdefekte intensiv untersucht worden. Das Lithiumhydrid weist ebenfalls ionischen Charakter auf, wobei auch kovalente Bindungsanteile feststellbar sind [Her39]. Die wesentlichen Ergebnisse der Punktdefektuntersuchungen können auch auf das Lithiumhydrid angewendet werden.

Die häufigste Gitterschädigung während der Elektronenbestrahlung ist die Bildung eines Antifrenkelpaares bestehend aus H- und F-Zentrum nach einer atomaren Anregung. Durch die Anregung kann sich ein Elektron von einem Anion befreien und es bildet sich ein neutrales Atom. Dieses ist nicht mehr ionisch gebunden und kann den Gitterverband verlassen. Es bildet mit einem Anion des Gitters ein einfach negativ geladenes Anionenmolekül (X₂⁻) an der Anionengitterstelle, das in [110]-Richtung ausgerichtet ist [Sch62]. Es nimmt eine Crowdionlage ein und das entstehende H-Zentrum schließt die angrenzenden beiden Anionen auf ihren Gitterplätzen ein, so daß es vier Anionenkerne verteilt auf drei Anionengitterplätze enthält und somit effektiv ein

Zwischengitteratom beherbergt. Die zurückbleibende Leerstelle ist einfach positiv geladen und fängt ein Elektron stabil ein: ein F-Zentrum entsteht. H- und F-Zentrum sind in dem Sinne gegensätzlich, daß eine Verschmelzung beider Zentren das ungestörte Gitter wieder herstellt.

Dieser Vorgang ist ebenfalls nach Doppelionisation vorstellbar. Der getroffene Atomrumpf trägt dann sogar positive Ladung und wird zwischen den positiv geladenen Kationen instabil. Er wird in das Zwischengitter geschleudert und die entstehende Fehlordnung besteht wieder aus F- und H-Zentren. Diese Fehlordnung ist auch tatsächlich im KCl und KBr spektroskopisch feststellbar, wenn die Bestrahlung und Spektroskopie bei tiefen Temperaturen (4K) stattfindet [Sri65]. Diese Spektroskopie zeigt eine weitere Resonanz, die dem V_K -Zentrum zugeordnet wird. Es handelt sich dabei auch um das Anionenmolekül (X_2^-), das sich aber über zwei Anionengitterplätze erstreckt. Bei höheren Temperaturen sind manche Defekte mobil und neben F- und H-Zentren entstehen während einer Bestrahlung bei höheren Temperaturen oder nach einer nachträglichen Erwärmung weitere Defekte und es kommt zu Zentrenumwandlungen. In Natriumfluorid wurde zum Beispiel die Umwandlung von F-Zentren in M-Zentren beobachtet, nachdem der Kristall nach einer 200K-Röntgenbestrahlung auf 320K erwärmt wurde [Kon67].

Die Untersuchung der Zentrenumwandlungen im ${}^6\text{LiD}$ bei Erwärmung an Raumtemperatur nach einer Bestrahlung bei 140K mit Hilfe von optischer Spektroskopie war vor dem Hintergrund interessant, daß mit der Erwärmung ein Polarisationszuwachs von 3% auf 18% bei 1K Temperatur und 2,5 Tesla Magnetfeld einhergeht. Damit erreichte diese Probe unter diesen Bedingungen neben einer bei 190K bestrahlten Probe die besten Polarisationsergebnisse (s. 6.1).

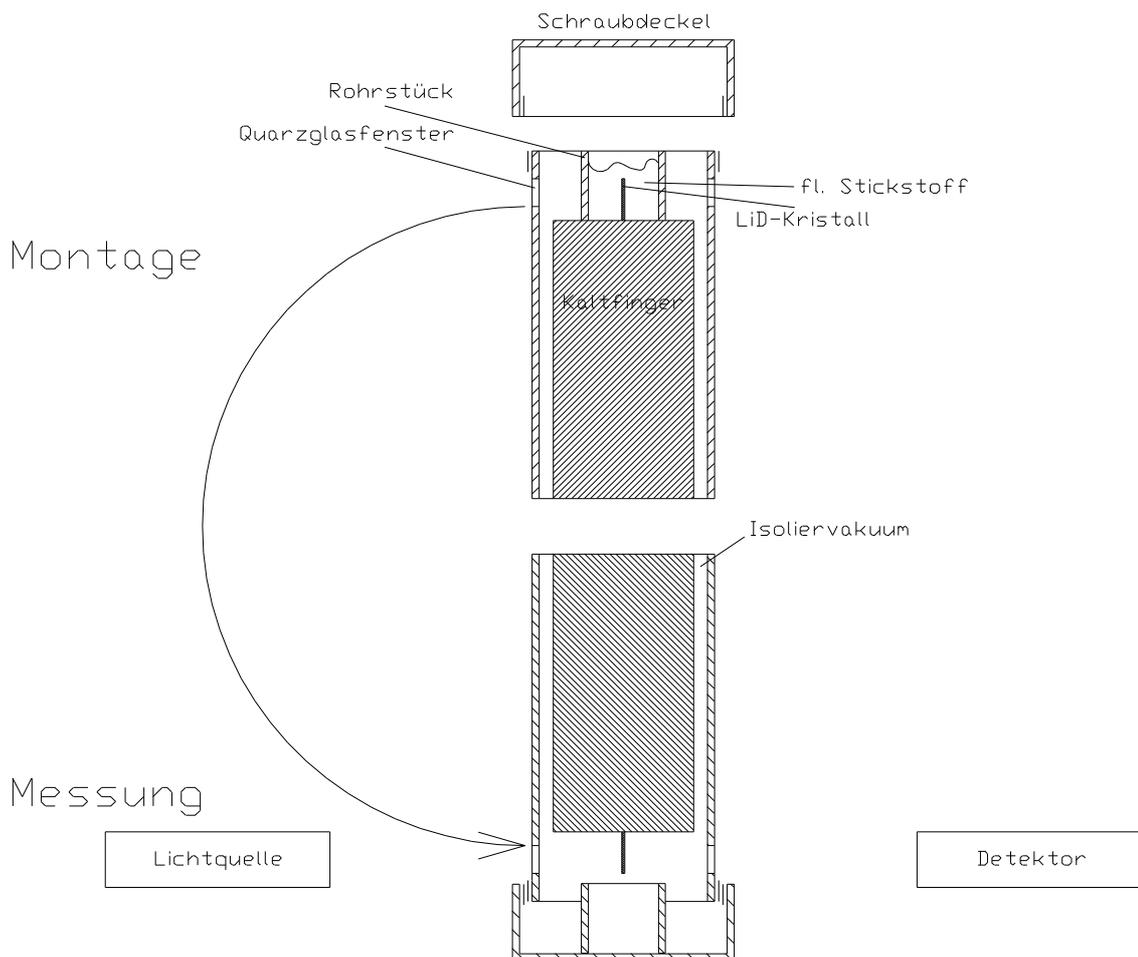


Abb. 4.3.2: Prinzipschaubild zur Probenmontage im optischen Spektrometer

Bestrahlte ${}^6\text{LiD}$ -Kristalle mit einer Kantenlänge größer als ein Millimeter sind augenscheinlich völlig undurchsichtig und wirken schwarz. Um zu verhindern, daß die Transmission in der optischen Messung zu klein ist, um von den Detektoren des Spektrometers ausgewertet zu werden, wurden ${}^6\text{LiD}$ -Plättchen von geringerer Stärke als 0,5mm verwendet, die bei 140K und bei 190K mit 10% und 100% Dosis bestrahlt wurden. Gegen Licht betrachtet erscheinen diese dünnen Plättchen nach der Bestrahlung dunkelrot. Alle Proben waren transparent genug, um vermessen zu werden.

Zuerst sollte die originale Zentrenzusammensetzung ohne Erwärmung auf Raumtemperatur aufgenommen werden. Dazu mußte die Probe unter flüssigem Stickstoff gelagert und kalt auf den vorgekühlten Kaltfinger der optischen Apparatur verladen werden, ohne daß das dünne Plättchen beim Kontakt mit der Umgebungsluft einen Eisbeschlag bildet. Ein Rohrabchnitt wurde so auf die Grundplatte des Probenhalters gestellt, daß die Probe komplett von der Rohrwandung umgeben war und sich unter flüssigem Stickstoff befand. Unter ständigem Nachgießen von flüssigem Stickstoff konnte der Probenhalter auf den Kaltfinger montiert werden. Das Plättchen befand sich während der Montage unter flüssigem Stickstoff und jeder Luftkontakt wurde vermieden. Danach wurde der Deckel für das Isoliervakuum montiert, der verdampfende Stickstoff aus dem Röhrchen verdrängte die Luft und verhinderte die Gefahr durch Eisbeschlag. Die Apparatur wurde um 180° in den Strahlengang der optischen Apparatur gedreht, das Rohr fiel in den Isoliervakuumdeckel und gab den Lichtweg frei. Die Abbildung 4.3.2 zeigt den schematischen Aufbau.

Nach 10%-Bestrahlungsdosis bei 140K sind zwei deutlich voneinander getrennte Absorptionslinien erkennbar. Bei der zehnfach höheren Dosis sind die Linien so stark verbreitert, daß sie als eine einzige gemeinsame Bande erscheinen. Die Abbildungen 4.3.3 und 4.3.4 zeigen die aufgenommenen Spektren vor und nach der Aufwärmung.

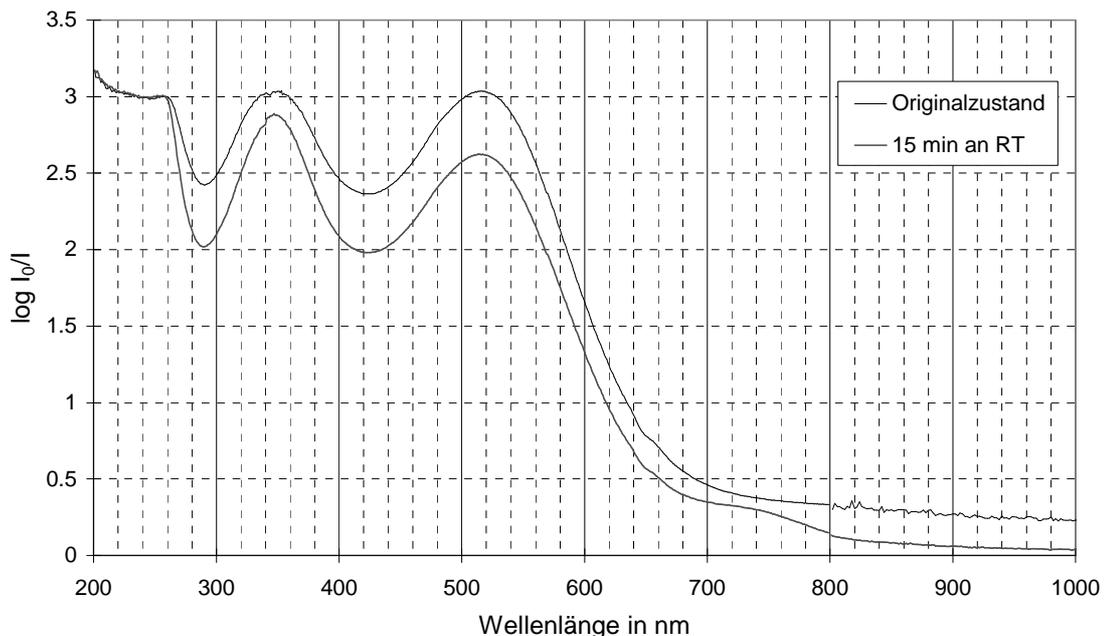


Abb. 4.3.3: Optische Spektren der bei 140 K bestrahlten ${}^6\text{LiD}$ Plättchen (10% Dosis)

Die Linienmitten der bei 140K mit 10% Dosis bestrahlten Probe liegen bei 348nm und bei 515nm. Nach [Pret 60] konnten die Linien den V_1 -Zentren (348nm) und F-Zentren (515nm) zugeordnet werden. Nach 15 Minuten Erwärmung an Raumtemperatur entsteht bei 732 nm ein weiteres Zentrum. Nach [Pret 60] handelt es sich dabei um M-Zentren. Dieser Effekt zeigt sich noch stärker, wenn die mit voller Dosis kalt bestrahlte Probe 15 Minuten und 30 Minuten auf Raumtemperatur erwärmt wird.

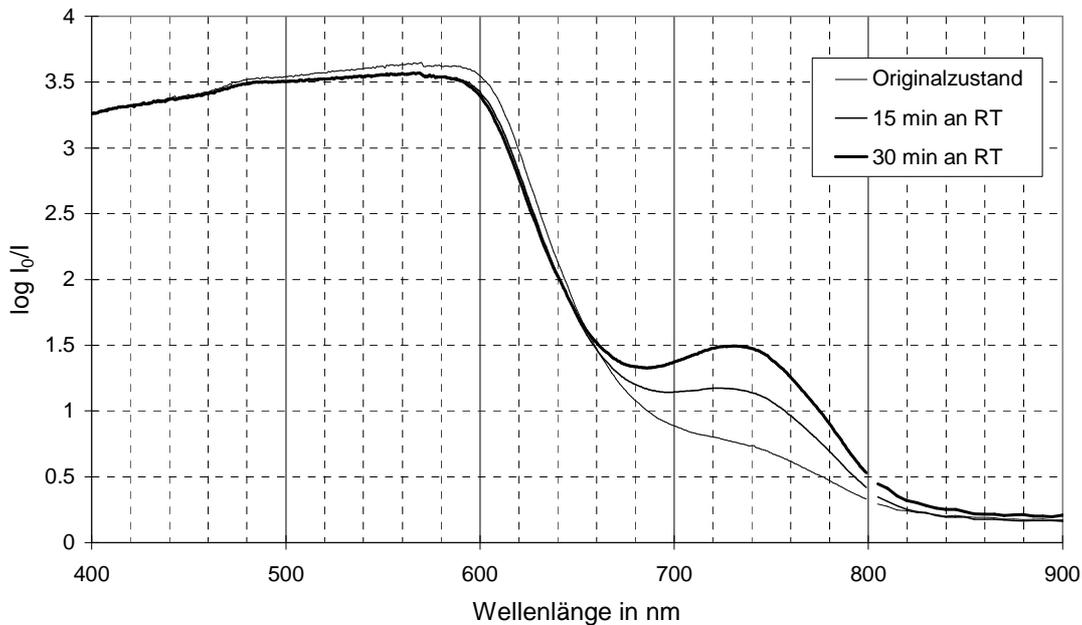


Abb. 4.3.4: Optische Spektren der bei 140K bestrahlten ${}^6\text{LiD}$ Plättchen (100% Dosis)

Deutlich kann man das Wachsen der M-Zentren verfolgen. Die warmbestrahlte Probe (190K) weist auch ohne eine nachträgliche Erwärmung die M-Zentrenlinie auf, die sich in dieser Probe auch durch Nachwärmen nicht verstärken läßt (s. Abb. 4.3.5). Das Ergebnis bestätigt, daß bei einer Bestrahlung bei tieferer Temperatur (140K) zunächst F-Zentren erzeugt werden, die durch Erwärmung in die komplexeren M-Zentren umgewandelt werden. Die gemessenen Spektren zeigen neben dem M-Zentrum keine weitere wachsende Absorptionslinie. Allerdings ist die Dichte der Zentren zwischen 200nm und 600nm nach 100% Dosis so hoch, daß kleinere Dichten eventuell neu entstehender Zentren wahrscheinlich nicht erfaßt werden.

Es ist auffällig, daß gute dynamische Polarisierbarkeit mit einem Auftreten der 732nm-Linie in diesen beiden Beispielen verbunden ist, jedoch ist noch nicht nachgewiesen, daß das Auftreten der 732nm-Linie für eine gute dynamische Polarisation zwingend notwendig ist.

Falls die 732nm-Linie tatsächlich mit M-Zentren in Verbindung gebracht werden kann, wäre ein Einfluß auf die Polarisierungseigenschaften nur dann vorstellbar, wenn M-Zentren einen Paramagnetismus tragen, der nicht nachgewiesen ist. Die Ergebnisse der HFS-Untersuchungen in letzten Abschnitt zeigen keinen anderen Paramagnetismus als den der F-Zentren. Entweder trägt das Zentrum keinen Paramagnetismus oder er wird durch die hohe F-Zentrendichte überdeckt.

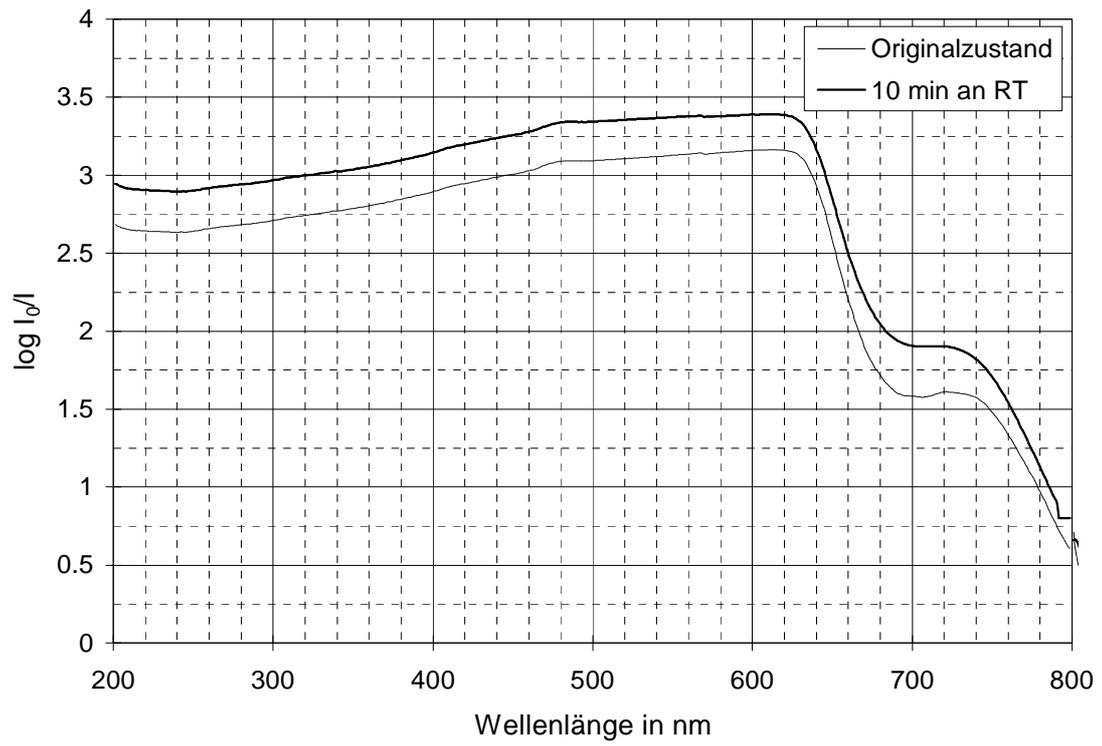


Abb. 4.3.5: Optische Spektren der bei 190 K bestrahlten ${}^6\text{LiD}$ Plättchen (100% Dosis)

5. EST-Theorie

Bei der Kernspinpolarisation makroskopischer Mengen eines Festkörpers sind die Besetzungszahlen der Energieniveaus stets so groß, daß statistische Berechnungsmethoden zur Beschreibung herangezogen werden müssen. Der statistische Zugang zur Erklärung von Polarisationsprozessen führt zum Begriff der „Spintemperatur“.

Im Folgenden sollen die Provotorov-Gleichungen zur Beschreibung der DNP herangezogen werden, um experimentell überprüfbare Vorhersagen für den Enhancementfaktor zu entwickeln. Unter dem Enhancementfaktor versteht man das Verhältnis aus unterkühlter Spintemperatur des Elektronenspinsystems und der Gittertemperatur. Nach den vorangestellten Überlegungen (Kapitel 1) ist der Enhancementfaktor also ein Maß dafür, wie stark die DNP relativ zum TE-Gleichgewicht die Nukleonen polarisiert. Die folgende Darstellung greift auf [Gol70] zurück.

5.1 Provotorov-Gleichungen

Die Dichtematrix weist die Eigenschaften

$$\begin{aligned} \langle A \rangle &= \text{tr}(\rho \cdot A) \\ \text{tr} \rho &= 1 \end{aligned} \quad (5.1)$$

auf. Es soll ein Spinsystem betrachtet werden, das durch einen noch nicht näher gekennzeichneten Hamiltonoperator beschrieben wird. Das System strebt dem Zustand maximaler Entropie S entgegen.

$$S = -k \cdot \text{tr}(\rho \cdot \ln \rho) \quad (5.2)$$

k: Boltzmannkonstante

Die Entropie S ist unter Beachtung der Nebenbedingungen

1. konstanter Energie $\text{tr}(\rho H) = c$
2. $\text{tr} \rho = 1$

zu maximieren. Zum Anschluß der beiden Nebenbedingungen ist die Einführung zweier Lagrangeparameter λ und μ nötig [Gol70].

$$\frac{\partial S}{\partial \rho} - \lambda - \mu \cdot H_i = 0 \quad (5.3)$$

Mit $\rho_i = \langle i | \rho | i \rangle$ und $H_i = \langle i | H | i \rangle$ lautet die Bedingung für das Maximum der Entropie S [Gol70]:

$$\begin{aligned} -k \cdot \ln \rho_i - k - \lambda - \mu \cdot H_i &= 0 \\ \Rightarrow \rho_i &= e^{-\frac{\lambda}{k}} \cdot e^{-\frac{\mu \cdot H_i}{k}} = A \cdot e^{-\frac{\hbar \cdot H_i}{k \cdot T}} \approx A \cdot \left(1 - \frac{\hbar \cdot H_i}{k \cdot T} \right) = A \cdot (1 - \alpha \cdot H_i) , \end{aligned} \quad (5.4)$$

$$\mu = \frac{\hbar}{T}, \quad A = e^{-1 - \frac{\lambda}{k}}$$

α : inverse Temperatur

A: Normierungskonstante

falls der Lagrangeparameter μ in der dargestellten Weise mit einer Größe T identifiziert wird, die analog zur thermodynamischen Temperatur die Temperatur des Wechselwirkungsreservoirs

darstellt, das zum Hamiltonoperator H gehört. Der Bedingung $\text{tr } \rho = 1$ wird durch die Wahl von A Rechnung getragen. So erhält man die Dichtematrix

$$\rho = \frac{e^{-\frac{\hbar H}{kT}}}{\text{tr } e^{-\frac{\hbar H}{kT}}} \quad (5.5)$$

Im Fall der DNP beschreibt der Hamiltonoperator ein Elektronensystem im starken äußeren Magnetfeld unter HF-Einstrahlung mit einer Dipolwechselwirkung der magnetischen Momente der Elektronen untereinander. Das Spinsystem sei isoliert vom Gitter, das heißt, es gibt zunächst keine Spin-Gitter-Relaxation, welche die Betrachtungen nur zusätzlich verkomplizieren würde.

Der Hamiltonoperator dieses Systems lautet im rotierenden Bezugssystem [Gol70]:

$$H = (\omega_0 - \omega) \cdot I_Z + H'_D + \omega_1 \cdot I_X = \Delta \cdot I_Z + H'_D + \omega_1 \cdot I_X = H_0 + \omega_1 \cdot I_X \quad (5.6)$$

$$\hbar \cdot \omega_1 = g \cdot \mu_B \cdot B_1$$

ω_0 : Larmorfrequenz
 ω : HF-Frequenz
 I_i : Komponente i des Kernspins
 H'_D : Dipoloperator
 B_1 : HF-Feldstärke

Dichtematrix nach (5.4):

$$\rho_1 = 1 - \alpha \cdot \Delta \cdot I_Z - \beta \cdot H'_D = 1 - (\alpha - \beta) \cdot \Delta \cdot I_Z - \beta \cdot H_0$$

$$\rho_2 = -\gamma \cdot \omega_1 \cdot I_X \quad (5.7)$$

$$\rho = \rho_1 + \rho_2$$

α : inverse Temperatur des Zeemanreservoirs
 β : inverse Spintemperatur (Dipolreservoir)
 γ : inverse Temperatur der Wechselwirkung mit den HF-Quanten

ρ_2 stammt von der Wechselwirkung mit der eingestrahlten Hochfrequenz. Dieser Anteil der Dichtematrix ist klein und wird vernachlässigt. Dann besteht der Hamiltonoperator nur noch aus dem Zeeman- und dem Dipolanteil. Entsprechend erhält man die beiden inversen Temperaturen α (Zeemanwechselwirkung) und β (Dipolwechselwirkung). β wird als inverse Spintemperatur bezeichnet.

$$\omega_1 \cdot I_X \ll H_0 \Rightarrow H \approx H_0$$

$$\rho \approx \rho_1 \quad (5.8)$$

Die Provotorovgleichung beschreibt die zeitliche Entwicklung der inversen Temperaturen unter Hochfrequenzbestrahlung. Sie ist [Gol70] entnommen:

$$\frac{d\alpha}{dt} = -\pi \cdot \omega_1^2 \cdot g(\Delta) \cdot (\alpha - \beta) \quad (5.9)$$

$$\omega_1^2 \sim P_{HF}$$

$g(\Delta)$: Linienformfunktion
 P_{HF} : HF-Leistung

$g(\Delta)$ beschreibt die Form des Absorptionssignals bei nicht sättigender Mikrowelleneinstrahlung. Unter Annahme der Näherung nach Gleichungen (5.8) ist der Erwartungswert von H zeitunabhängig und es gilt:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \text{tr}(H \cdot \rho) &\approx \frac{d}{dt} \text{tr}(H_0 \cdot \rho_1) \stackrel{(5.6), (5.7)}{=} \frac{d}{dt} \text{tr}((\Delta \cdot I_Z + H'_D) \cdot (1 - \alpha \cdot \Delta \cdot I_Z - \beta \cdot H'_D)) \\ &= \frac{d}{dt} (-\alpha \cdot \Delta^2 \cdot \text{tr}(I_Z^2) - \beta \cdot \text{tr}(H_D'^2)) \quad , \quad D^2 := \frac{\text{tr}(H_D'^2)}{\text{tr}(I_Z^2)} \\ &= -\Delta^2 \cdot \frac{d\alpha}{dt} \cdot \text{tr}(I_Z^2) - \frac{d\beta}{dt} \cdot D^2 \cdot \text{tr}(I_Z^2) = 0 \\ &\Rightarrow \frac{d\beta}{dt} = -\frac{\Delta^2}{D^2} \cdot \frac{d\alpha}{dt} \end{aligned}$$

Die Provotorov-Gleichungen lauten:

$$\begin{aligned} \frac{d\alpha}{dt} &= -W \cdot (\alpha - \beta) \\ \frac{d\beta}{dt} &= W \cdot \frac{\Delta^2}{D^2} (\alpha - \beta), \quad (5.10) \\ W &= \pi \cdot \omega_1^2 \cdot g(\Delta) \end{aligned}$$

W : Übergangswahrscheinlichkeit
infolge der HF-Einstrahlung

Sowohl die Spin-Gitter- als auch die dipolare Relaxation stellen zwei verschiedene Relaxationsmechanismen für das Spinsystem dar, die auf sehr einfache Art in die Theorie eingeführt werden. Dadurch ändern sich die Provotorovgleichungen wie folgt:

$$\begin{aligned} \frac{d\alpha}{dt} &= -W \cdot (\alpha - \beta) - \frac{1}{T_{1Z}} \cdot (\alpha - \alpha_L) \\ \frac{d\beta}{dt} &= W \cdot \frac{\Delta^2}{D^2} \cdot (\alpha - \beta) - \frac{1}{T_{1D}} \cdot (\beta - \beta_L) \quad (5.11) \\ \alpha_L &:= \frac{\omega_0}{\Delta} \cdot \beta_L \Rightarrow \alpha_L \gg \beta_L \end{aligned}$$

T_{1Z} : longitudinale Spin-Gitter Relaxationszeit
 T_{1D} : longitudinale dipolare Relaxationszeit
 β_L : inverse Gittertemperatur

Der Gleichgewichtswert in partieller Sättigung ist dann erreicht, wenn sich die inversen Spintemperaturen zeitlich nicht mehr ändern:

$$\frac{d\alpha}{dt} = \frac{d\beta}{dt} = 0 \Rightarrow_{(5.11)}$$

$$\frac{\alpha}{\alpha_L} = \frac{1 + W \cdot T_{1D} \cdot \frac{\Delta^2}{D^2}}{1 + W \cdot \left(T_{1Z} + \frac{\Delta^2}{D^2} \cdot T_{1D} \right)} \wedge \frac{\beta}{\alpha_L} = \frac{W \cdot T_{1D} \cdot \frac{\Delta^2}{D^2}}{1 + W \cdot \left(T_{1Z} + \frac{\Delta^2}{D^2} \cdot T_{1D} \right)}, \quad (5.12)$$

$$\frac{\alpha - \beta}{\alpha_L} = \frac{1}{1 + W \cdot \frac{\Delta^2}{D^2} \cdot T_{1D}}$$

Bei geringer Intensität (a) der HF-Einstrahlung gilt:

$$W \cdot T_{1Z} \ll 1, W \cdot T_{1D} \ll 1 \Rightarrow$$

$$\alpha \approx \alpha_L, \beta \approx 0$$

Bei hoher Intensität (b) der HF-Einstrahlung gilt:

$$W \cdot T_{1Z} \gg 1, W \cdot T_{1D} \gg 1 \Rightarrow$$

$$\alpha = \beta = \beta_L \cdot \frac{\omega_0}{\Delta} \cdot \frac{T_{1D} \cdot \frac{\Delta^2}{D^2}}{T_{1Z} + T_{1D} \cdot \frac{\Delta^2}{D^2}} = \beta_L \cdot \frac{\omega_0 \cdot \Delta}{\delta \cdot D^2 + \Delta^2}, \quad \delta := \frac{T_{1Z}}{T_{1D}} \quad (5.13)$$

Für die DNP wird sättigende Mikrowellenleistung gewählt. Dies bedeutet, daß die Bedingung (b) Gültigkeit besitzt. Die inverse Spintemperatur ist eine Funktion des Frequenzabstands von der elektronischen Larmorfrequenz $\Delta = \omega_0 - \omega$. Mit (5.13) läßt sich der „Enhancementfaktor“ in Teilsättigung wie folgt definieren:

$$\frac{\beta(\Delta)}{\beta_L} = \frac{\omega_0 \cdot \Delta}{\delta \cdot D^2 + \Delta^2} \quad (5.14)$$

Er beschreibt das Verhältnis der Gittertemperatur zu der mittels DNP unterkühlten Spintemperatur und ist somit ein Maß dafür, wie effektiv die DNP das Spinsystem relativ zum Gleichgewichtsfall mit der Gittertemperatur kühlt.

a) EST im ${}^6\text{LiD}$

Es ist bereits nachgewiesen worden, daß die Nukleonenzeemanreservoirs der beiden Kernspezies des ${}^7\text{LiD}$ miteinander im thermischen Kontakt stehen und sich ausgehend von einer Ungleichgewichtssituation ihre Spintemperaturen angleichen [Goe95]. Die vorgestellte Theorie ist ursprünglich für die Beschreibung von homogen verbreiterten Kernspinsystemen erarbeitet worden und kann direkt zu obigem Nachweis benutzt werden. Bei der Übertragung

auf ein Elektronenspinsystem erhöht sich die Stärke der betrachteten magnetischen Momente um mehr als zwei Größenordnungen bei gleichzeitiger Verringerung der Spindichte um ungefähr vier Größenordnungen. In der Folge tritt neben der homogenen Linienverbreiterung auch noch die Elektronen-Nukleonenwechselwirkung (HFS) als inhomogene Verbreiterung auf, die in der Theorie unberücksichtigt bleibt.

Im Folgenden soll die Abhängigkeit des Enhancementfaktors von der Gittertemperatur, von der Isotopenzusammensetzung des Lithiumhydrids und von Parametern der Präparation wie Bestrahlungstemperatur und -dosis untersucht werden. Alle Aussagen über den Enhancementfaktor des Elektronensystems sind indirekt über die Messung der Kernspinpolarisation bzw. Messung von T_{ZN} gewonnen worden. Dabei wird stets die vollständige Angleichung der Spintemperatur des dipolaren Elektronenreservoirs T_S ($\beta=1/T_S$) an die Nukleonenzeemantemperatur T_{ZN} vorausgesetzt. Direkte Beobachtungen des Elektronenspinreservoirs sind durch Messung der Linienformfunktion des ESR-Absorptionssignals unter verschieden starker Sättigung ebenfalls möglich [Goe02].

Die sogenannte Enhancementkurve erhält man durch Auftragen der erzielten Enhancementfaktoren gegen die zugehörige eingestrahlte Mikrowellenfrequenz bei konstanter Mikrowellenleistung. Dazu wird die Polarisation in Abhängigkeit von der eingestrahlten Mikrowellenfrequenz gemessen und nach Gleichung (1.5) die inverse Spintemperatur bzw. die Enhancementfaktoren errechnet. Eine Frequenzkurve gibt die Polarisation in Abhängigkeit der eingestrahlten Mikrowellenleistung an. Abbildung 5.1.1 zeigt zwei Frequenzkurven des ${}^6\text{LiD}$, die bei den Temperaturen $T_1=1\text{K}$ und $T_2=77\text{K}$ gemessen worden sind. Das Lithiumdeuterid ist vorher in einer Elektronenbestrahlung bei 200K und mit einer Dosis 10^{17}cm^{-2} DNP-einsetzbar gemacht worden.

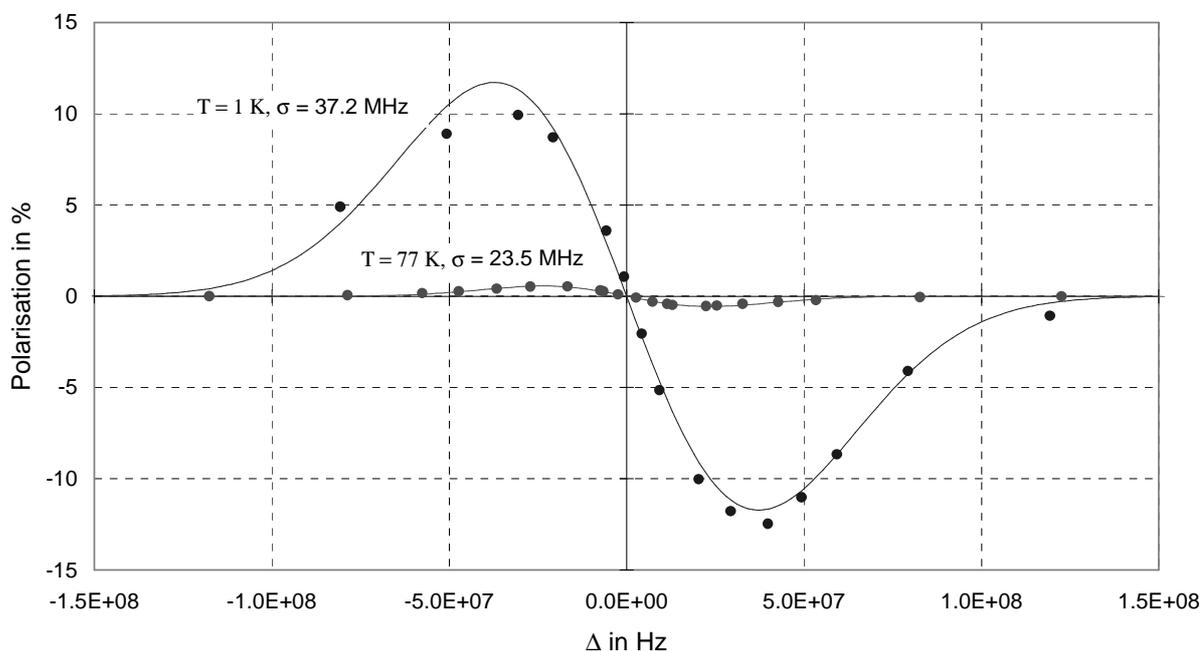


Abb. 5.1.1: Dynamische Polarisation des ${}^6\text{LiD}$ bei 1K und 77K in Abhängigkeit von der eingestrahlten Mikrowellenfrequenz. Fehler der Meßpunkte kleiner 10% (rel.)

Mit fallender Gittertemperatur steigt die maximale Polarisation. Bei 77K beträgt die Polarisation im Maximum 0,6% und steigt mit fallender Temperatur auf 12% bei 1K. Gleichzeitig wächst die Gauß-Breite von 23,5MHz auf 37,2MHz. Die Fehler der Meßpunkte stammen aus der NMR-Messung und betragen 5% bis 10% (rel.). Der Fehler der NMR kann auf 3% (rel.) gesenkt werden [Rei94], wenn durch lange Messung die Statistik des TE-Signals verbessert wird, doch

wurde in den vorgestellten Messungen zu Gunsten der Vielzahl der Messungen auf eine weitere Steigerung der Präzision verzichtet. Die Unsymmetrie der Meßpunkte übersteigt die angenommenen Fehler der NMR-Messung und ist physikalischen Ursprungs.

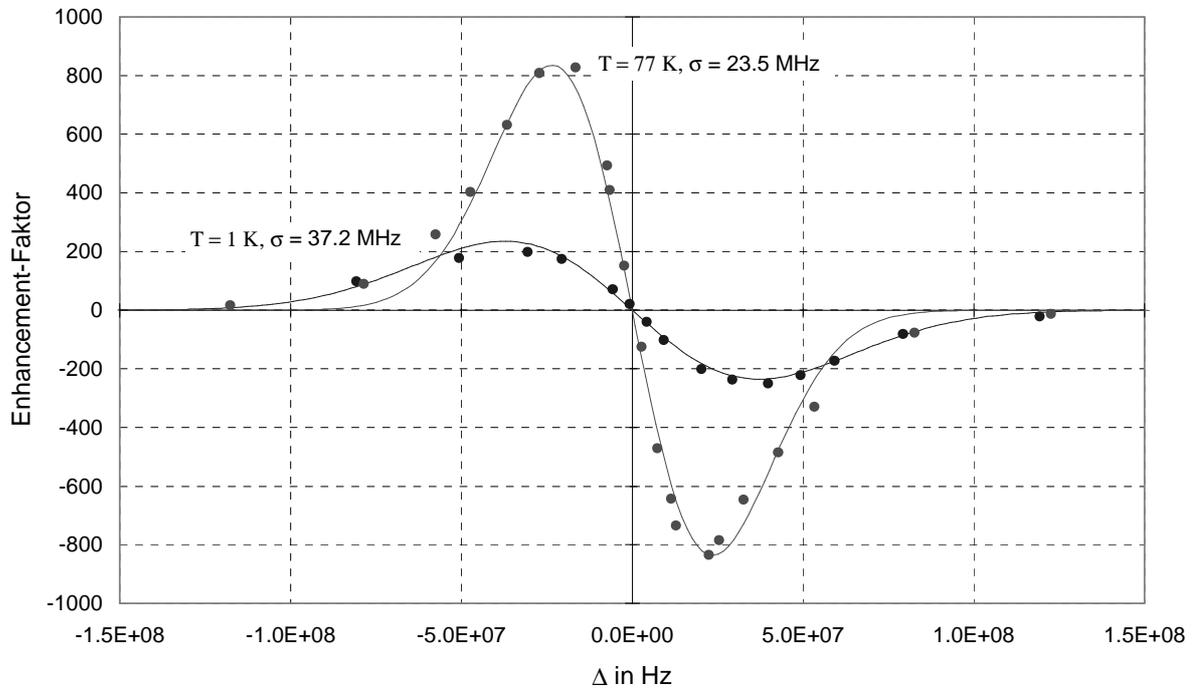


Abb. 5.1.2: Enhancementkurven des ${}^6\text{LiD}$ bei 1K und 77K. Fehler analog zu Abbildung 5.1.1

Abbildung 5.1.2 zeigt die Enhancementkurven, die zu den Polarisationskurven der Abbildung 5.1.1 gehören. Die angepaßten Funktionen sind Ableitungen einer Gaußkurve und beschreiben die Meßwerte wesentlich besser als eine Funktion vom Typ (5.14), was wahrscheinlich mit dem unberücksichtigten inhomogenen Anteil der Linienverbreiterung zu erklären ist. Obwohl bei 1K zwanzigfach höhere Polarisationswerte erzielt werden, weist die Probe bei 77K einen um den Faktor vier größeren Enhancementfaktor auf. Das Nukleonenwärmereservoir kann also bezogen auf die Gittertemperatur bei 77K viel effektiver unterkühlt werden als bei tiefen Temperaturen. Die Annahme eines temperaturunabhängigen Enhancementfaktors, der die erreichbaren dynamischen Polarisationen bei verschiedenen Temperaturen vorhersagt, ist grob falsch.

Die Maxima der Linienformfunktion des Enhancementfaktors sind Maxima der positiven und negativen dynamischen Polarisation. Unter sättigender Mikrowelleneinstrahlung finden sie sich theoretisch in folgendem Abstand vom Linienzentrum:

$$\Delta_{Max} = \pm D \cdot \sqrt{\delta}$$

$$\frac{\beta(+\Delta_{Max})}{\beta_L} = \frac{\omega_0}{2 \cdot \Delta_{Max}} \quad (5.15)$$

$\beta(\Delta)$ ist eine ungerade Funktion, so daß hier aus Symmetrieüberlegungen nur ein Extremum betrachtet wird. D ist ein Maß für die Energie der dipolaren Verbreiterung. Bei tiefen Temperaturen laufen die Extrema der Frequenzkurve auseinander. Wenn man die homogene Verbreiterung als unabhängig von der Gittertemperatur ansieht, bedeutet eine Verbreiterung der

Frequenzkurve nach Gleichung (5.15) einen Anstieg von δ , der dadurch erklärbar ist, daß die longitudinale Relaxationszeit T_{1Z} schneller als die dipolare Relaxationszeit T_{1D} mit fallender Gittertemperatur zunimmt.

Der Spintemperaturangleich zwischen dem dipolaren Elektronenspinreservoir und dem Nukleonenzeemanreservoir bzw. der Polarisationsübertrag vom Elektronenspin- auf das Nukleonenspinsystem findet über die HFS-Wechselwirkung statt. Um den bereits beschriebenen negativen Einfluß starker Hyperfeinverbreiterung auf die Effektivität des dynamischen Temperaturangleichs während der DNP zu studieren, sind ${}^6\text{LiD}$ Proben bei 77K spektroskopiert und polarisiert worden, die unterschiedliche Anteile des ${}^7\text{Lithium}$ isotops aufwiesen. Der ${}^7\text{Lithium}$ kern trägt ein vierfach stärkeres magnetisches Moment als der ${}^6\text{Lithium}$ kern und die resultierende stärkere HFS verbreitert die elektronische Resonanz. Abbildung 5.1.3 zeigt die ESR Spektren einer möglichst reinen ${}^6\text{LiD}$ Probe und einer Probe, die einen hohen ${}^7\text{Lithium}$ anteil aufweist. Die Breite der Kurve wächst durch die ${}^7\text{Lithium}$ beimischung um mehr als einen Faktor drei.

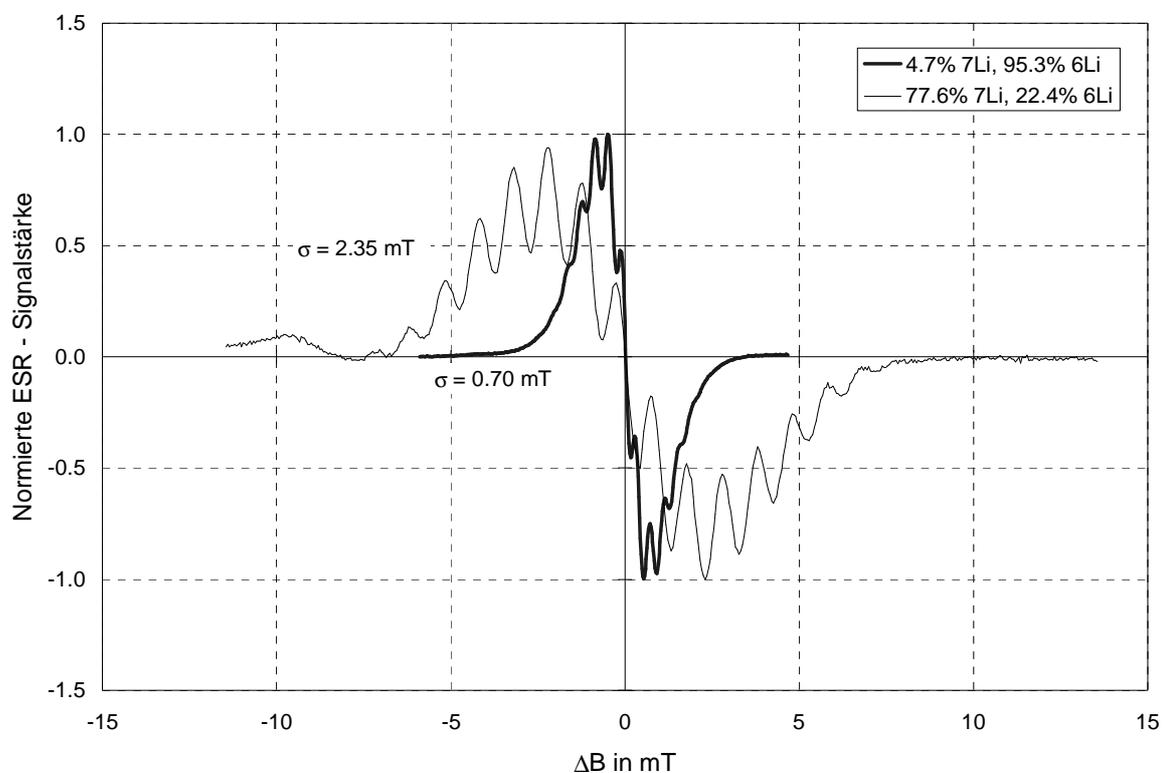


Abb. 5.1.3: ESR–Absorptionslinien zweier Proben mit stark unterschiedlichem ${}^7\text{Lithium}$ gehalt

Die beiden Proben sind gleichzeitig bei 170K mit einer Dosis $d=10^{17}\text{cm}^{-2}$ bestrahlt worden. Geht man in guter Näherung davon aus, daß die Entstehung der elektronischen Fehlstellen isotopenunabhängig ist, sollte in beiden Proben die gleiche elektronische Fehlordnung vorherrschen. In einer dynamischen Polarisation unter gleichen Temperatur- und Magnetfeldbedingungen sollten die paramagnetischen Fehlstellen eine annähernd gleiche homogene Verbreiterung proportional zu D aber eine stark unterschiedliche inhomogene (HFS) Verbreiterung aufweisen.

Abbildung 5.1.4 zeigt die Frequenzkurven beider Proben in der integrierten NMR-Signalstärke. Diese ist proportional zur vorherrschenden Polarisation. Die Kurven können nur bei gleicher Füllung des Probenhalters miteinander verglichen werden, weil die Kalibration der Polarisation am Signal im thermischen Gleichgewicht fehlt. Die Schüttung der kleinen Lithiumdeuteridkristalle im Probenhalter unterscheidet sich nur wenig, so daß man unter Annahme eines größeren Fehlers (<20% relativ) die Polarisation der beiden Proben miteinander vergleichen kann und der erhebliche Polarisationsvorsprung der reinen ${}^6\text{LiD}$ Probe trotz des

größeren Fehlers deutlich wird. Bei einer Tieftemperaturpolarisation bei einem Kelvin und 2,5 T Magnetfeld ist eine Kalibration am TE-Signal durchgeführt worden. Die Endpolarisationen betragen $3.2 \pm 0.3\%$ für die ${}^7\text{Li}$ -haltige und $6.6 \pm 0.5\%$ für die isotonenreine ${}^6\text{LiD}$ -Probe.

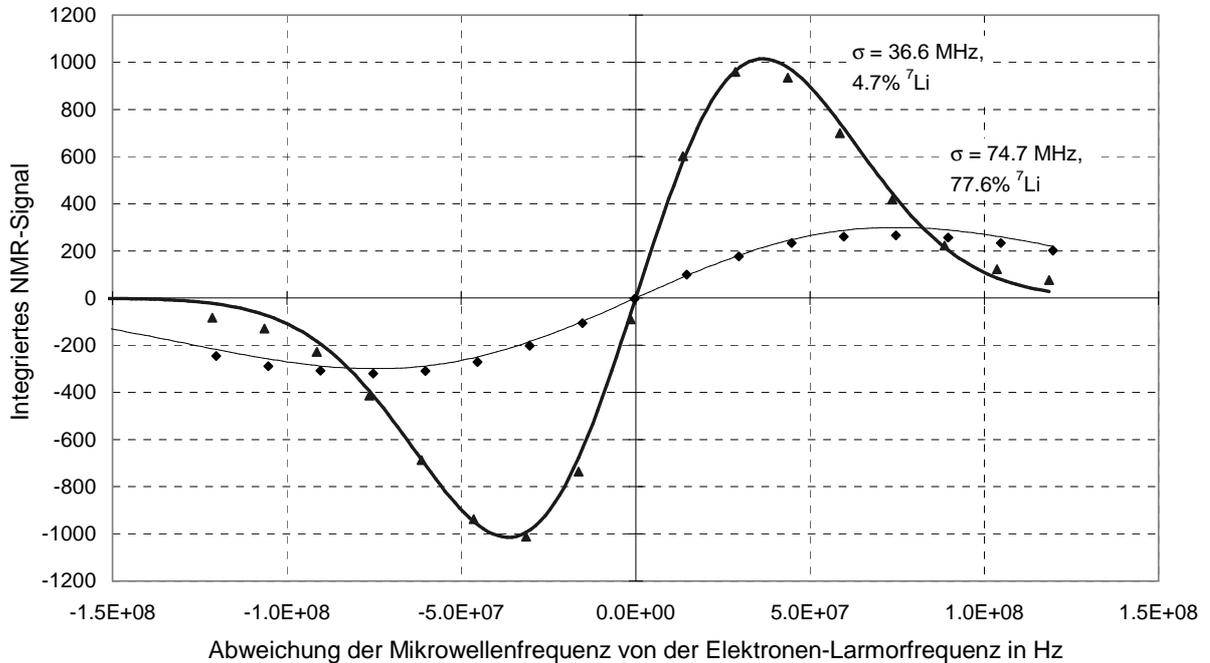


Abb. 5.1.4: Frequenzkurven ($B=2.5\text{T}, T=77\text{K}$) der Proben mit unterschiedlichem ${}^7\text{Lithium}$ gehalt

Ohne daß man quantitative Aussagen mit Hilfe der Theorie machen kann, bleibt festzuhalten:

- ein dreifach stärker inhomogen verbreitetes ESR-Signal verdoppelt die Breite der Frequenzkurve bei 77 K, obwohl die homogene Breite unverändert bleiben sollte.
- Im Polarisationsversuch bei einem Kelvin erreicht die Probe hohen ${}^7\text{Lithium}$ gehalts nur noch den halben Polarisationswert der reinen Probe. Die Effektivität der DNP nimmt also mit stärkerer inhomogener Verbreiterung ab. Es konnte beobachtet werden, daß die inhomogene Verbreiterung die Ausbildung einer homogenen tiefen Spintemperatur des Elektronendipolreservoirs behindert.

Neben den Einflußparametern Temperatur und Dosis in der Probenbestrahlung hat also auch die ${}^6\text{Lithium}$ isotopenreinheit Einfluß auf die Polarisation im späteren Experiment. Auf diesen Aspekt wurde bei der Probenpräparation so viel Wert gelegt, daß das Lithiumdeuterid in einer chemischen Reaktion aus ${}^6\text{Lithium}$ metall und Deuteriumgas hoher Isotopenreinheit dargestellt wurde (s. Chemische Synthese und Kristallisation).

Abbildung 5.1.5 zeigt alle bei 77K gemessenen maximalen Enhancementfaktoren der unterschiedlich bestrahlten Proben im Vergleich zu der Theoriefunktion (Gleichung 5.15) als Funktion der Gauß'schen Linienbreiten der Frequenzkurven. Zu jedem Meßwert ist die Bestrahlungstemperatur angegeben. Betrachtet man nur die Proben, die mit 100% Dosis bestrahlt wurden, fällt auf, daß die Frequenzkurvenbreite mit fallender Bestrahlungstemperatur immer mehr zunimmt.

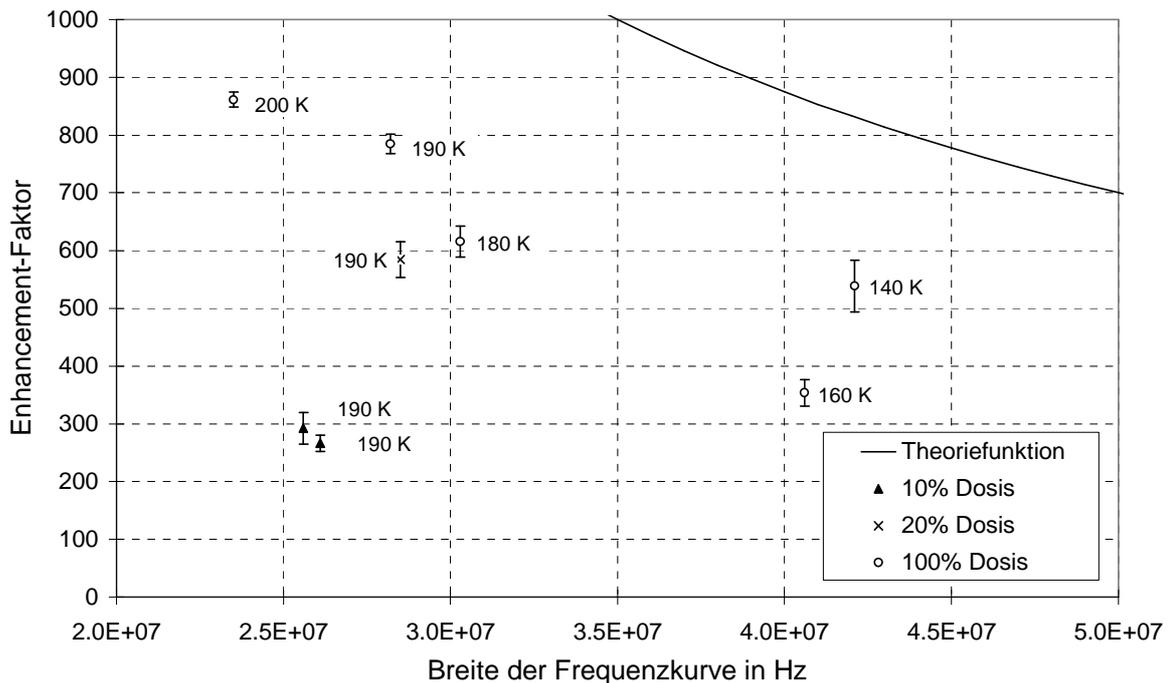


Abb. 5.1.5: Maximale Enhancementfaktoren der bei 77K gemessenen Proben, 100% Dosis entspricht $d = 10^{17} \text{ cm}^{-2}$

Trotz der großen Streuung erkennt man eine abnehmende Wirksamkeit der dynamischen Nukleonenpolarisation bei gleichzeitiger Zunahme der Frequenzkurvenbreite in qualitativer Übereinstimmung mit der theoretischen Vorhersage. Leider sind die Fehler der Meßdaten und die Streuung der Datenpunkte wesentlich zu groß, um eine Hyperbelform erkennen zu können. Die Enhancementfaktoren der beiden Proben, die mit nur 10% der Dosis aller anderen Proben bestrahlt worden sind, liegen ungefähr um einen Faktor drei unter dem erwarteten Wert für die Standarddosisproben (Standarddosis 100%). Diese Sonderstellung der Proben weist auf eine elektronische Struktur hin, die sich im DNP-Verhalten sehr deutlich von der elektronischen Struktur der länger bestrahlten Proben unterscheidet. Entweder unterscheiden sich die Gitterfehlstellen, die zu Anfang einer Bestrahlung entstehen, von der Art oder Lage der Gitterfehlstellen, die im Verlauf der weiteren Bestrahlung erzeugt werden, oder die geringere Dichte der paramagnetischen Fehlstellen ist für den Effekt verantwortlich. Zur Untersuchung des DNP-Verhaltens im Übergang von gering bestrahlten zu stark bestrahlten Proben sind Polarisierungsexperimente mit einer 20% Dosis-Probe durchgeführt worden. In der Darstellung des zugehörigen Enhancementfaktors ist erkennbar, daß der Übergang zu den stark bestrahlten Proben bereits nach 20% Dosis erfolgt. Die Untersuchung des Wachstumsgesetzes hat ergeben, daß in einer Bestrahlung bei 190K nach 20% Dosis bereits 70% der Zentrendichte entstanden ist, die nach 100% Dosis vorliegt (vergl. Abb. 4.1.4). Der schnelle Anstieg der Zentrendichte zu Beginn der Bestrahlung ist ein Erklärungsansatz für den frühen Übergang zum Polarisationsverhalten der Standarddosisproben.

Geringe Enhancementfaktoren der 10%-Dosisproben bedeuten einen uneffektiven Einsatz der DNP bei 77K. Erstaunlicherweise zeigen aber gerade diese Proben bei tiefer Temperatur (1K) eine überaus gute dynamische Polarisation. Abbildung 5.1.6 trägt das Verhältnis der Enhancementfaktoren bei 1K und 77K auf. Nur die 10%-Dosisproben zeigen einen größeren Enhancementfaktor bei 1K als bei 77K. Alle anderen Proben lassen sich bei 77K effektiver dynamisch polarisieren als bei 1K. Das DNP-Verhalten bei tiefen Temperaturen (1K und 0.2K) wird später diskutiert.

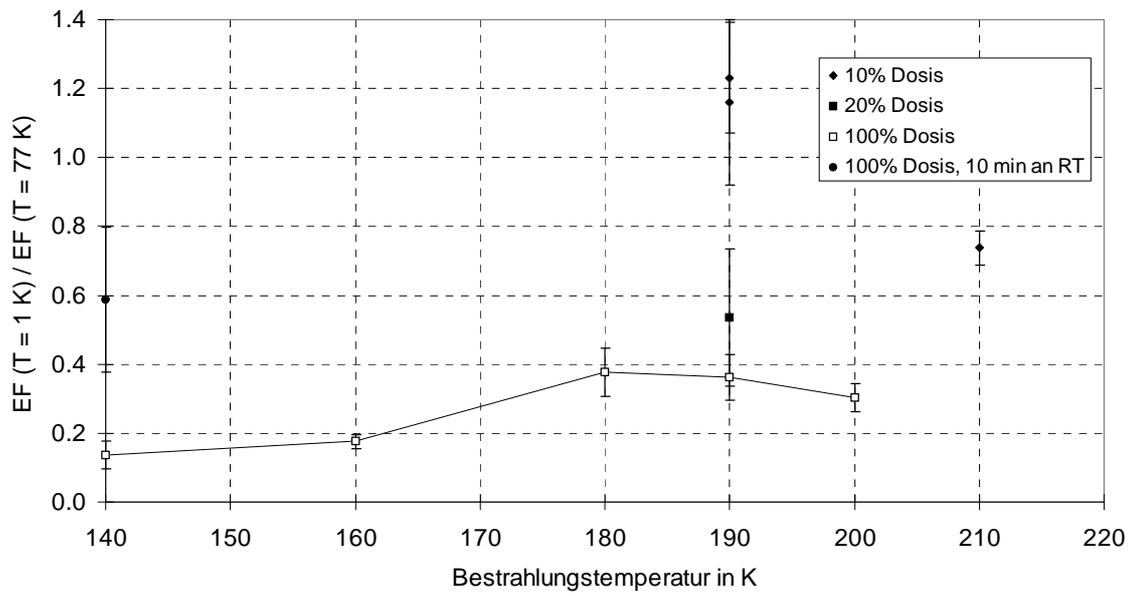


Abb. 5.1.6: Verhältnis der Enhancementfaktoren (EF) der DNP bei 1K und 77K

6. Einfluß der Präparationsmethode auf die Polarisationsseigenschaften

6.1 Frühere Untersuchungen

Bereits 1980 wurde auf die hervorragende Eignung des ${}^6\text{LiD}$ als Targetmaterial für polarisierte Streuexperimente hingewiesen [Abr80]. ${}^6\text{LiD}$ enthält genau so viele Protonen wie Neutronen. Es wird als isoskalares Material bezeichnet und die Streuung am polarisierten Material ist im Mittel eine Streuung am polarisierten Nukleon. Neben dem Hinweis auf den hohen Dilutionfaktor des neuen Materials enthält die Veröffentlichung Polarisationsergebnisse, die in einem Dilutionkryostaten bei drei verschiedenen Magnetfeldstärken erzielt wurden:

Material	T mK	B T	P(${}^6\text{Li}$) %
${}^6\text{LiD}$	200	2.5	40
			-
${}^6\text{LiD}$	200	4.8	64
			-
${}^6\text{LiD}$	200	6.5	71
			-

Tab. 6.1.1: Polarisationswerte im Dilutionkryostaten bei verschiedenen Magnetfeldern nach [Abr80]

Eine Gruppe aus Saclay stellte 1988 Präparation und Polarisationsergebnisse des ${}^6\text{LiD}$ vor [Dur88]. Zusätzlich zu den Polarisationsergebnissen des ${}^6\text{LiD}$ und ${}^7\text{LiH}$ werden auch die Bestrahlungsparameter angegeben. Tabelle 6.1.2 faßt die Ergebnisse der Polarisationsmessungen im Dilutionkryostaten und die Präparationsmethoden zusammen:

Material	T _{irr} K	Dosis 10 ¹⁷ cm ⁻²	P(${}^{6/7}\text{Li}$) %	P(H/D) %	B T	t _{build-up} h
${}^7\text{LiH}$	190	100%	30	-	2,5	3,5
${}^7\text{LiH}$	180	100%	50	70	5,0	24
${}^7\text{LiH}$	180	200%	47	56	2,5	6
${}^7\text{LiH}$	190	200%	-42	-52	2,5	10
${}^7\text{LiH}$	180	300%	44	58	2,5	11
${}^6\text{LiD}$	190	300%	-30	-32	2,5	10
${}^6\text{LiD}$	180	300%	-37	-43	2,5	8
${}^6\text{LiD}$	180	300%	-38	-45	2,5	10
${}^6\text{LiD}$	180	300%	32	37	2,5	12

Tab. 6.1.2: Polarisationsergebnisse bei 200mK Temperatur und angegebenen Magnetfeldern nach [Dur88]

An der Universität Bonn wurde 1990 ein neuer Bestrahlungskryostat zur Präparation der Lithiumhydride gebaut [Goe91]. Folgende Polarisierungsergebnisse sind an Proben gemessen worden, die bei unterschiedlichen Temperaturen und mit verschiedenen Dosen in dieser Apparatur bestrahlt worden sind [Goe95]:

Material	T _{irr} K	Dosis 10 ¹⁷ cm ⁻²	P(H/D) %	ΔP %	T K	B T	t _{build-up} min
⁷ LiH	160	100%	3,0 / 11,0**	0.5	1	2.5	
⁷ LiH	180	100%	11 / 14,5***	1.0	1	2.5	52
⁷ LiH	180	200%	8.5	1.0	1	2.5	
⁷ LiH	180	400%	7.0	1.0	1	2.5	
⁷ LiH	190	100%	10,0 / 10,0**	0.5	1	2.5	
⁷ LiH	200	100%	9.5	0.5	1	2.5	
⁶ LiD*	180	100%	12.0	0.5	1	2.5	46
⁶ LiD*	180	400%	6.0	1.0	1	2.5	
⁶ LiD*	180	100%	30.0***		0.2	2.5	70
⁶ LiD*	180	400%	30.5		0.2	2.5	
⁶ LiD*	180	400%	53.0		0.2	5	260

* ⁶LiD enthält nach [Goe 95] 15%-20% (atom) ⁷Lithium

** 5 min Erwärmung an Raumtemperatur nach der Bestrahlung

*** nachträgliche Bestrahlung bei T=1K mit einer Dosis ca. 10¹⁵ cm⁻²

Tab. 6.1.3: Polarisierungsergebnisse der Lithiumhydride [Goe95], nach ESR-Untersuchungen entsprechen 100% der Tabelle 150% Dosis in dieser Arbeit

Das Experiment E155 am Stanford Linear Accelerator Center (SLAC) streute polarisierte Elektronen mit einer Energie bis zu 48 GeV am polarisierten ⁶LiD [Bül99]. Dabei wurden hohe Strahlströme I=80-100nA gewählt. Die im Target deponierte Wärme konnte nur mit einem ⁴Helium-Verdampferkryostaten abgeführt werden. Die tiefste Temperatur war somit auf ein Kelvin limitiert. Um trotz der hohen Temperatur gute Polarisationswerte zu erzielen, kamen hohe Magnetfelder (B=5T) zur Anwendung. Im E155-Experiment konnte besonders gut die Strahlenbeständigkeit des ⁶LiD untersucht werden.

Material	T _{irr} K	Dosis D _{irr} 10 ¹⁷ cm ⁻²	E155 Dosis 10 ¹⁷ cm ⁻²	P(D) %
⁶ LiD	183	370%	0	28 -24
⁶ LiD	183	200%	0%	-23
⁶ LiD	183	200%	5%	-31

Tab. 6.1.4: Polarisationswerte des E155 Experiments bei einer Temperatur T=1K und 5T Magnetfeld nach [Bül99]

Die Tieftemperaturnachbestrahlung während des Experiments hat bei kleinen Dosen¹ positive Auswirkungen auf die Polarisierungseigenschaften der Lithiumhydride: die Aufbauzeiten verkürzen sich und die Maximalpolarisation wächst. Die Polarisation steigerte sich um 30% relativ nach einer Dosis $4 \cdot 10^{15} \text{cm}^{-2}$. Ab $6 \cdot 10^{15} \text{cm}^{-2}$ tritt der gegenteilige Effekt ein: der Polarisationsaufbau dauert länger und die Maximalpolarisation nimmt ab.

^7LiH wurde bei 180K mit der Standarddosis (10^{17}cm^{-2}) am Bonner Linearbeschleuniger bestrahlt und anschließend von einem 1GeV-Elektronenstrahl durchsetzt, während es bei 1.3K dynamisch polarisiert wurde [Goe95]. Dabei verkürzte sich nach einer Dosis 10^{15}cm^{-2} die Aufbauzeit von 50 Minuten auf ca. 15 Minuten und die Maximalpolarisation stieg von 11% auf 14.5%.

6.2 Polarisierung im Verdampferkryostaten bei 2,5 T Magnetfeld

Die in Rahmen dieser Arbeit am Bonner Linearbeschleuniger bestrahlten ^6LiD -Proben sind in der Bochumer Polarisationsapparatur „SOPHIE“ untersucht worden. Die Apparatur setzt sich aus einem ^4He -Verdampferkryostaten, einem normalleitenden 2,5 Tesla C-Magneten und einer 70GHz-Mikrowellenquelle mit einem Hub $\Delta\nu = \pm 250 \text{MHz}$ zusammen. Die Kühlleistung des Kryostaten reicht aus, um die Temperatur der Probenumgebung unter der Wärmelast durch Wärmeleitung, Wärmestrahlung und durch die eingestrahlte Mikrowellenleistung ($< 200 \text{mW}$) während der DNP unter einem Kelvin zu halten [Har97].

Die Messung der Kernspinpolarisation erfolgt mit Hilfe der kernmagnetischen Resonanz (NMR). Dabei werden Übergänge zwischen den Kernezeemanniveaus induziert. Das aufgenommene NMR-Absorptionssignal ist proportional zur Ungleichbesetzung der Energieniveaus, zwischen denen die Übergänge erfolgen. Die Zahl der induzierten Übergänge muß sehr klein gegen die Besetzungszahldifferenz sein, damit die Differenz und gleichzeitig auch die Polarisation nicht vom Meßverfahren verändert werden, das heißt die Leistung der eingestrahlten NMR-Hochfrequenz muß so klein gewählt werden, daß es zu keiner Sättigung kommt. Die Fläche unter dem NMR-Absorptionssignal ist proportional zur Polarisation. Ein absolutes Maß für die dynamische Polarisation erhält man aber erst nach Kalibration des dynamischen Signals am Polarisierungssignal, das im thermischen Gleichgewicht mit der Gittertemperatur und dem Magnetfeld aufgenommen wird (TE-Signal). Die TE-Polarisation läßt sich nach Gleichung (1.5) errechnen.

Die Aufbauzeit des TE-Signals (longitudinale Relaxationszeit der Kernspins) ist im Lithiumdeuterid so lang, daß zur Verkürzung der Meßzeit bei vielen Proben während der TE-Kalibration eine höhere Temperatur als ein Kelvin gewählt wurde. Dazu hielt ein PID-geregeltes Stellventil zwischen Kryostat und Vakuumpumpstand einen konstanten frei einstellbaren Druck über der Säule des flüssigen Heliums. Während der TE-Kalibrationen der meisten Messungen herrschte 0,8bar Absolutdruck über der Flüssigkeit entsprechend vier Kelvin. Bei dieser Temperatur und 2,5T Magnetfeld errechnet sich 0,013% Deuteronenpolarisation. Die zugehörige Besetzungszahldifferenz ist so gering und die Leistung der NMR muß so klein gewählt werden, daß die Signale mit erheblichem Rauschen belegt sind. Langes Messen verbessert die Statistik und verringert den statistischen Fehler des TE-Signals. Die Fehlerangaben aller vorgestellten Messungen beruhen allein auf dem statistischen Fehler, denn er ist der größte eingehende Fehler. Durch sehr lange Kalibrationszeit und gute Statistik kann er soweit verringert werden, daß auch andere eingehende Fehler berücksichtigt werden müssen [Rei94]. Für die Materialforschung können größere Fehler in Kauf genommen werden als in einem Streuexperiment. Deshalb wurde zu Gunsten einer größeren Probenauswahl ein etwas größerer Fehler der Polarisationsmessungen in Kauf genommen.

¹ im Vergleich zur Vorbestrahlungsdosis

Die NMR-Signalform der Protonen (Spin-1/2) wird am zutreffendsten von einer Gaußkurve mit kleinen Anteilen einer Lorentzkurve beschrieben. Bei Spin-1-Kernen wie Deuteronen oder den ${}^6\text{Li}$ -Kernen tritt ein Quadrupolmoment auf. Bei Vorhandensein eines elektrischen Feldgradienten am Kernort werden die Kernzeemanniveaus entsprechend

$$E(m) = -\hbar\omega_0 m + \hbar\omega_q \cdot (3\cos^2\Phi - 1) \cdot (3m^2 - I(I+1)) \quad (6.1)$$

verschoben. ω_0 bezeichnet die Kernlarmorfrequenz, I bezeichnet den Kernspin, ω_q gibt ein Maß für die Stärke der Quadrupolwechselwirkung und Φ ist der Winkel zwischen dem elektrischen Feldgradiententensor und der Magnetfeldrichtung. Zwischen den Grenzen 0° und 90° kommen bei einem glasartig erstarrten Festkörper alle Winkel Φ vor und das NMR-Signal verändert sich grundlegend. Die Abbildung 6.2.1 zeigt schematisch die verschobenen Energieniveaus eines Spin-1-Systems mit (b) und ohne (a) Quadrupolwechselwirkung für $\Phi=0^\circ$ und für $\Phi=90^\circ$.

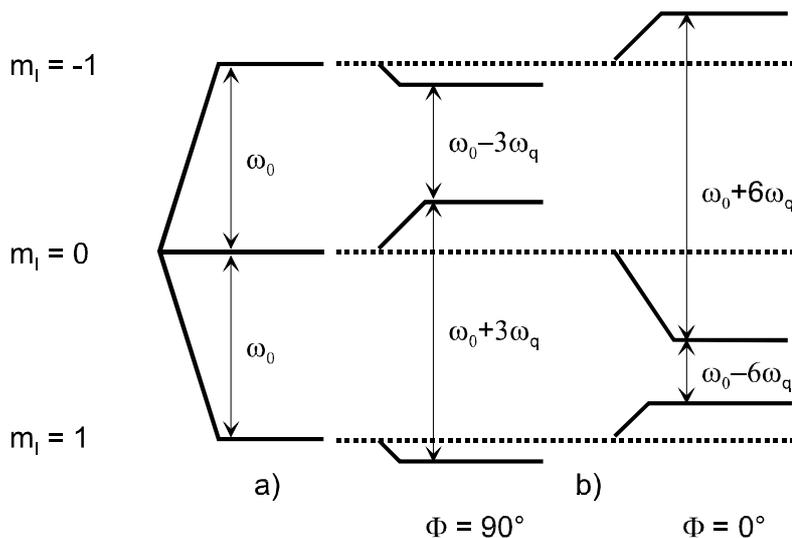


Abb. 6.2.1: Energieniveaus eines Spin-1-Systems mit (b) und ohne (a) Quadrupolwechselwirkung

Das NMR-Signal setzt sich aus Übergängen zwischen den magnetischen Quantenzahlen 0 und -1 einerseits und 0 und 1 andererseits zusammen. Das verbreiterte Signal, das vom Übergang zwischen 0 und -1 herrührt, hat die untere Frequenzgrenze $\omega_0 - 3\omega_q$ und reicht bis zur Frequenz $\omega_0 + 6\omega_q$. Entsprechend ergeben sich für das Signal, das vom Übergang zwischen 0 und 1 herrührt, die Frequenzgrenzen $\omega_0 - 6\omega_q$ und $\omega_0 + 3\omega_q$. Das gemessene NMR-Signal ist die Addition der beiden Signale der einzelnen Übergänge. Die Abbildung 6.2.2 zeigt ein gemessenes Signal des $\text{C}_4\text{D}_9\text{OH}$ zusammen mit einer angepaßten Funktion, die sich aus den eingezeichneten Einzelsignalen der beiden Übergänge durch Addition ergibt.

Die NMR-Signale der ${}^6\text{Li}$ -Kerne und der Deuteronen im ${}^6\text{LiD}$ weisen keine Quadrupolverbreiterung auf, obwohl es sich um Spin-1-Kerne handelt. Im ${}^6\text{LiD}$ fehlt aufgrund der hohen Symmetrie des kubisch flächenzentrierten Gitters ein elektrischer Feldgradient am Kernort. Abbildung 6.2.3 zeigt exemplarisch ein NMR-Signal der ${}^6\text{Li}$ -Kerne während der Dynamischen Polarisation bei einem Kelvin im Feld des normalleitenden C-Magneten. Das Signal weist nur 3,3kHz Halbwertsbreite auf zählt zu den schmalsten aufgenommenen Signalen.

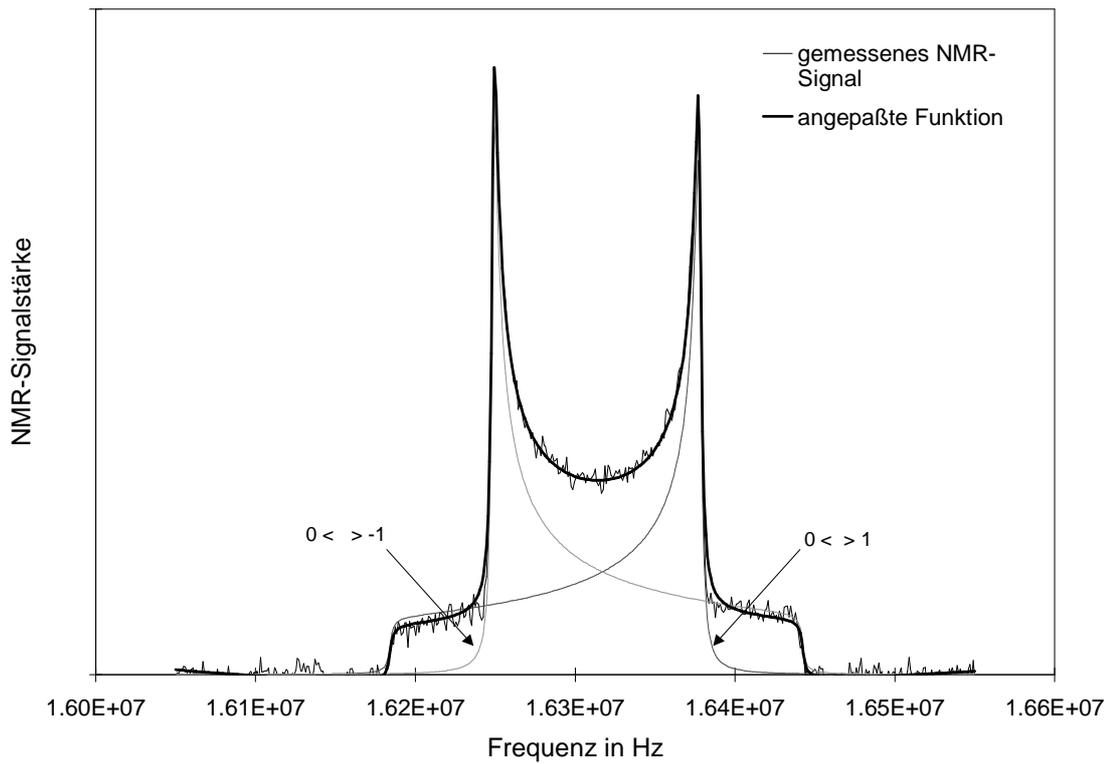


Abb. 6.2.2: Gemessenes dynamisches NMR-Signal des C_4D_9OH und rechnerisch angepaßte Kurven

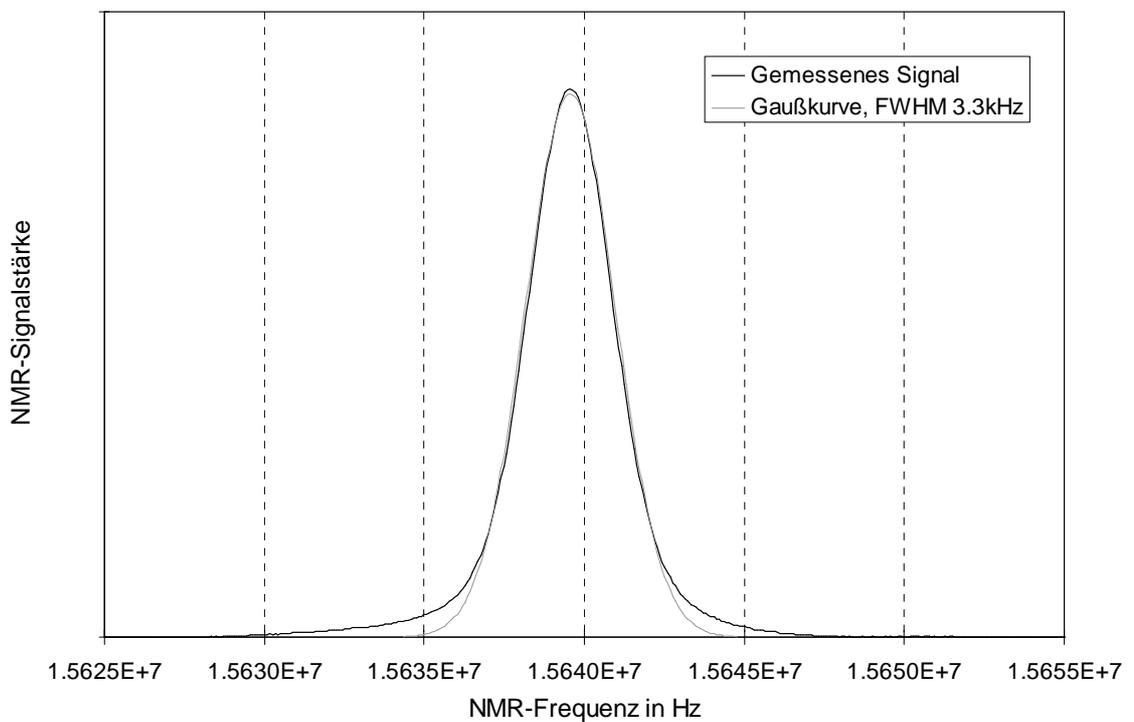


Abb. 6.2.3: Dynamisches NMR-Signal der 6Li -Kerne im C-Magneten und angepaßte Gaußfunktion

Material	T _{irr} K	P(⁶ Li) %	ΔP %	P(D) %	ΔP %	t _{build-up} min
⁶ LiD	140	-3.7 -	0.3	-3.9 -	0.3	200
⁶ LiD*	140	-2.0 -	0.1	-2.1 -	0.1	220
⁶ LiD	160	-3.1 -	0.1	-3.2 -	0.1	160
⁶ LiD	170	-6.3 -	0.4	-6.5 -	0.4	100
⁶ LiD	180	-11.2 11.7	0.2 0.2	-11.7 12.3	0.2 0.2	45
⁶ LiD	190	-14.1 13.2	0.4 0.3	-14.7 13.8	0.4 0.3	35
⁶ LiD	200	-13.0 9.9	0.2 0.2	-13.5 10.4	0.2 0.2	20

* 48h lang bei 800 K unter $2 \cdot 10^5$ Pa Deuteriumgasatmosphäre

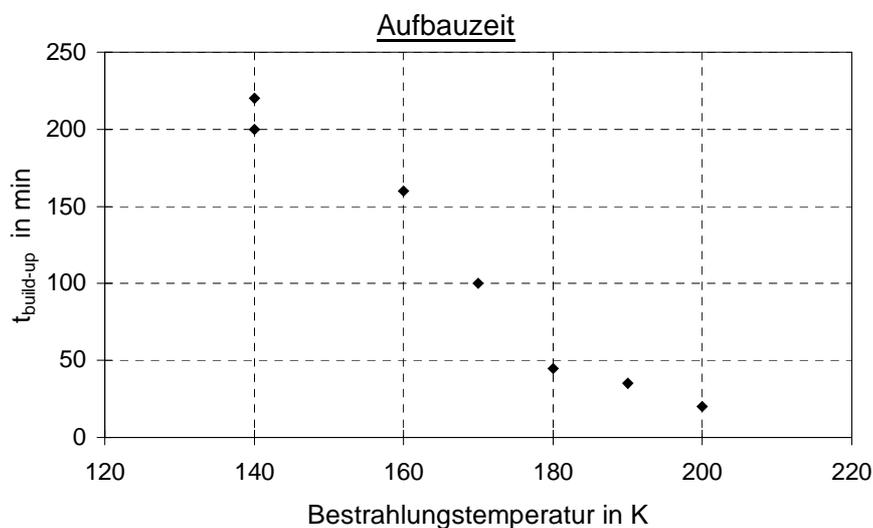
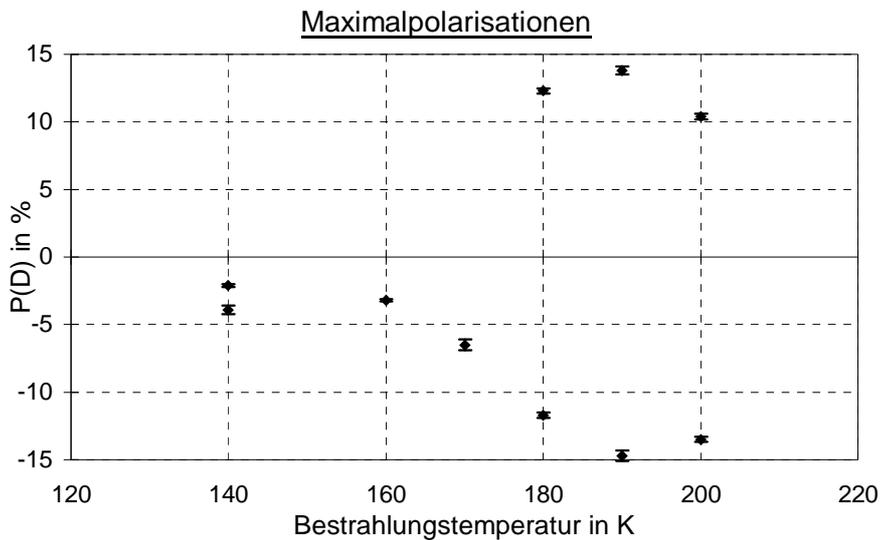


Abb. 6.2.4: Polarisationsergebnisse bei Variation der Bestrahlungstemperatur

Variation der Bestrahlungstemperatur

Um den Einfluß der Bestrahlungstemperatur auf die Maximalpolarisation und die Aufbauzeit sichtbar zu machen, sollen die Meßergebnisse an Proben miteinander verglichen werden, die mit der Standarddosis 100% bestrahlt worden sind. Die Abbildung 6.2.4 gibt einen Überblick.

Die Maximalpolarisationen bei Bestrahlungstemperaturen tiefer als 160K sind mit 3% bis 4% sehr gering. Mit steigender Bestrahlungstemperatur erhöhen sich die Polarisationen bis sie bei ungefähr 190K ihr Maximum erreichen. Frühere Untersuchungen ergaben als optimale Bestrahlungstemperatur 180K. Vielleicht erklärt sich die etwas höhere Optimaltemperatur aufgrund der hohen Kühlleistung des neuen Bestrahlungskryostaten in Verbindung mit der besseren Durchströmung der Probe. Die gemessene Gastemperatur stimmt im neuen Kryostaten vielleicht besser mit der Temperatur eines Lithiumdeuteridkristalls unter Bestrahlung überein als in bislang benutzten Bestrahlungskryostaten. Bereits bei 200K Bestrahlungstemperatur sinkt die Maximalpolarisation merklich. Weitere Polarisationstests von Proben, die bei noch höheren Temperaturen bestrahlt worden sind, erschienen nicht aussichtsreich.

Die Aufbauzeiten verkürzen sich mit steigender Bestrahlungstemperatur. Die Spanne der Aufbauzeiten reicht von über 200 Minuten bei 140K bis zu 20 Minuten bei 200K. Ein Grund für die Verkürzung ist sicherlich die größere Dichte der paramagnetischen Zentren, die bei einer Bestrahlung bei höherer Temperatur und gleicher Dosis erzeugt wird. Bei 190K liegen nach 100% Dosis eine um ca. 40% bis 50% höhere Zentrendichte vor als nach der Bestrahlung bei 140K (vergl. 4.1). Der Polarisationsübertrag von den Elektronenspins der Zentren auf die Nukleonen erfolgt über Spindiffusion: die Dipolwechselwirkung der Kernspins untereinander überträgt die Polarisation von Kernspins, die nahe am paramagnetischen Zentrum liegen, auf weiter entfernte Nukleonen und sorgt für eine homogen verteilte Polarisation im Kristall. Bei höherer Zentrendichte sind die Nukleonen näher an den Zentren gelegen und der Polarisationsübertrag erfolgt schneller. Es ist schwer vorstellbar, daß der Einfluß der geringfügig höheren Zentrendichte allein die Aufbauzeit um einen Faktor zehn verkürzt. Die Ursache liegt vermutlich vielmehr in einer veränderten elektronischen Struktur, die bei einer veränderten Bestrahlungstemperatur entsteht.

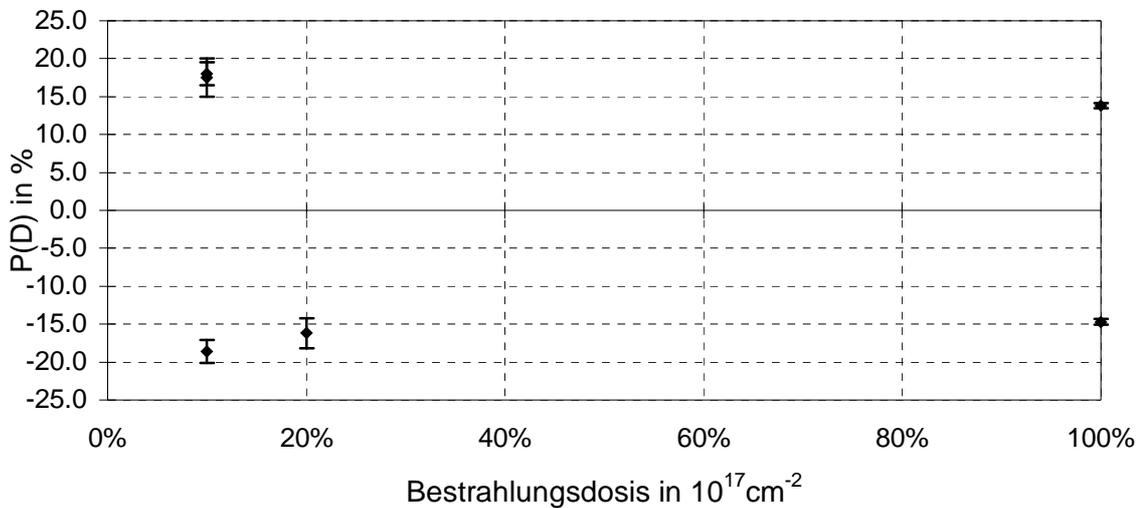
Variation der Bestrahlungsdosis

Die Untersuchungen der optischen Spektroskopie und die Überlegungen zur Zentrenzeugung gaben Hinweise darauf, daß die Art von Punktdefekten und ihre Anordnung im Gitter sowohl von der Bestrahlungstemperatur als auch von der Bestrahlungsdosis abhängen.

Zum Studium der Abhängigkeit der Polarisationseigenschaften von der Dosis wurden Proben mit 10%, 20% und 100% Dosis bei 190K bestrahlt und bei einem Kelvin polarisiert. Abbildung 6.2.5 zeigt die Ergebnisse. Die am schwächsten bestrahlte Probe zeigt eine besonders hohe Polarisation. Mit einer sehr langen Aufbauzeit (ca. 250 Minuten) erreicht die Probe ungefähr 18% Deuteronenpolarisation. Obwohl das zugehörige Polarisationssignal im thermischen Gleichgewicht (TE-Signal) bei vier Kelvin aufgenommen wurde, betrug seine Aufbauzeit über 300 Minuten, so daß sich auch nach mehreren Stunden Messung aus der Streuung der NMR-Signale noch ein erheblicher statistischer Fehler errechnete, der den großen Fehler in der dynamischen Polarisationsmessung bedingt. Zur Bestätigung der Polarisationsergebnisse wurde eine zweite Probe identisch präpariert und die Polarisationsmessung wiederholt. Der Fehler konnte etwas verkleinert werden und die Wiederholungsmessung bestätigt das Ergebnis. Wie aus der Tabelle ersichtlich ist, haftet auch der Wiederholungsmessung noch ein großer Fehler an.

Material	T _{irr} K	Dosis 10 ¹⁷ cm ⁻²	P(⁶ Li) %	ΔP %	P(D) %	ΔP %	t _{build-up} min
⁶ LiD	190	10%	-17.8	1.5	-18.6	1.5	220
			17.2	1.5	18.0	1.5	
⁶ LiD	190	10%	16.8	2.5	17.5	2.5	290
			-	-	-	-	
⁶ LiD	190	20%	-15.5	2.0	-16.2	2.0	160
			-	-	-	-	
⁶ LiD	190	100%	-14.1	0.4	-14.7	0.4	35
			13.2	0.3	13.8	0.3	

Maximalpolarisation der Deuteronen



Aufbauzeit

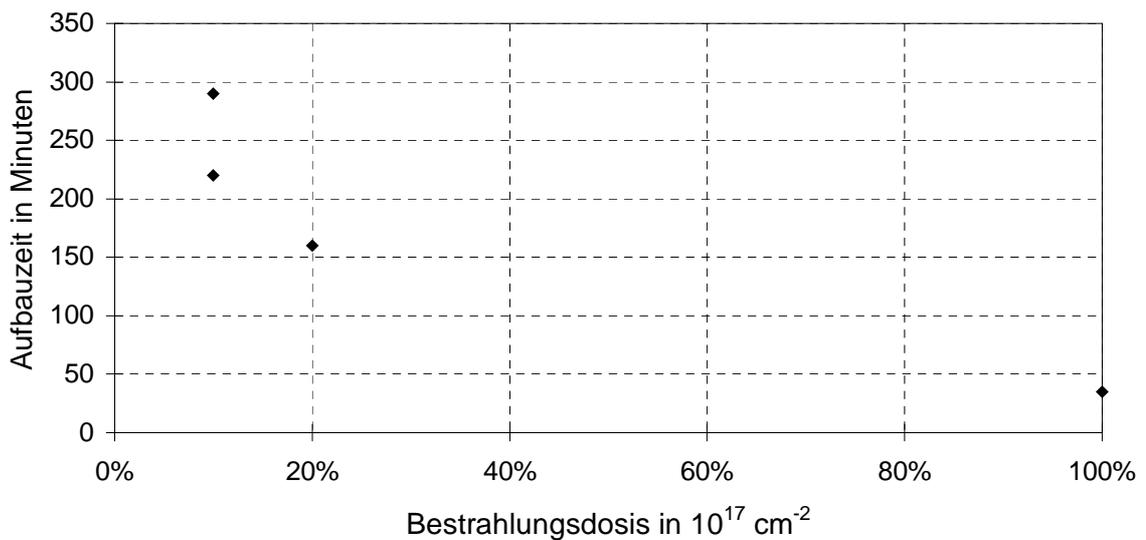


Abb. 6.2.5: Polarisierungsergebnisse bei Variation der Vorbestrahlungsdosis

Mit steigender Dosis fällt die Polarisation auf 15,5% (20% Dosis) und 14,5% (100% Dosis) ab. Die Stärke der dipolaren Verbreiterung der elektronischen Resonanz wächst mit der Zentrenichte. Die homogene Breite nimmt bei konstanten inhomogener Breite (Hauptverbreiterungsmechanismus) zu. Die skizzierte EST-Theorie berücksichtigt nur eine homogene Verbreiterung. Danach sinkt der Enhancementfaktor unter sättigender Mikrowelleneinstrahlung mit zunehmender homogener Linienbreite. Dies könnte ein Erklärungsansatz für die sehr gute Wirksamkeit der DNP bei Proben sein, die mit sehr kleinen Dosen bestrahlt worden sind.

Unter dem Aspekt der Spindiffusion bringen die schwach bestrahlten Proben lange Relaxationszeiten mit sich. Die Probe mit der geringsten Zentrenkonzentration weist vier Stunden Aufbauzeit auf. Die Aufbauzeit verkürzt sich mit zunehmender Bestrahlungsdosis und erreicht bei 100% Dosis 40 Minuten. Die Zentrenichte verviunffacht sich bei Steigerung der Dosis von 10% auf 100% Dosis bei 190K Bestrahlungstemperatur und der große Unterschied der Zentrenichten erklärt die Verkürzung der Aufbauzeit.

Zusätzliche Erwärmung an Raumtemperatur

In früheren Untersuchungen wurde bereits festgestellt [Goe95], daß eine kurzzeitige Erwärmung einer bei 160K bestrahlten Probe eine erhebliche Steigerung der Maximalpolarisation erbrachte (siehe Tabelle 6.1.3). Zur Klärung der Frage, ob eine Zentrenumwandlung durch Erwärmung zur Steigerung der Polarisation benutzt werden kann, wurden Proben mit verschiedenen Vorbestrahlungstemperaturen $T < 190\text{K}$ nachträglich zehn Minuten lang an Raumtemperatur erwärmt und ihre Polarisationseigenschaften gemessen. Abbildung 6.2.6 zeigt die Ergebnisse, zusätzlich zu den Polarisationswerten der nachgewärmten Proben sind im Diagramm „Maximalpolarisationen“ auch die Ergebnisse der Proben im Originalzustand eingezeichnet (Linie).

Bei niedrigeren Vorbestrahlungstemperaturen als 180K führt eine nachträgliche Erwärmung an Raumtemperatur zu einer deutlichen Steigerung der Maximalpolarisation. Dieser Effekt wird mit fallender Vorbestrahlungstemperatur immer deutlicher. Während die mit 180K vorbestrahlte Probe die Polarisation von ca. 12% auf 16% steigert, zeigt die mit 160K vorbestrahlte Probe eine Steigerung der ursprünglich 3% auf 14,5% Polarisation. Den größten Polarisationszuwachs zeigt die bei 140K vorbestrahlte Probe, deren Polarisation von 3% bis 4% auf 18% zunimmt. Dabei verkürzen sich die Polarisationsaufbauzeiten der kalt bestrahlten Proben von 200 Minuten bzw. 160 Minuten auf eine Stunde. Bei einer Bestrahlungstemperatur zwischen 180K und 190K kehrt sich der Effekt um und statt einer Polarisationssteigerung verringert sich die Polarisation bei Erwärmung an Raumtemperatur. Dieser Umkehrpunkt fällt mit der Optimaltemperatur der Bestrahlung ohne nachträgliche Erwärmung zusammen. Es scheint, als ob sich die „Optimalstruktur“ bei einer „Warmbestrahlung“ (180K-190K) wegen der höheren Defektbeweglichkeit schon während der Bestrahlung ausbildet, während sich bei einer „Kaltbestrahlung“ (140K–160K) ein Stadium ausbildet, daß sich erst während einer nachträglichen Erwärmung zu einer ähnlichen Struktur umwandelt. Die Ergebnisse der optischen Absorptionsspektroskopie weisen nach, daß beide Proben nur dann eine gemeinsame Absorptionslinie bei 732nm haben, wenn die kaltbestrahlte Probe mehrere Minuten lang auf Raumtemperatur erwärmt wird (s. 4.3). Es konnte noch nicht einwandfrei geklärt werden, ob das Auftreten dieser Linie ein notwendiges Kriterium für eine gute dynamische Polarisierbarkeit darstellt.

Material	T _{irr} K	t an RT min	P(⁶ Li) %	Δ %	P(D) %	Δ %	t _{build-up} min
⁶ LiD*	140	10	-17.0	1.5	-17.7	1.5	45
			-		-		
⁶ LiD	140	10	-17.9	1.5	-18.7	1.5	60
			-		-		
⁶ LiD	160	10	-13.7	0.5	-14.2	0.5	65
			14.0	0.5	14.6	0.5	
⁶ LiD	180	10	-15.8	0.5	-16.5	0.5	60
			14.9	0.5	15.6	0.5	
⁶ LiD	190	10	-9.8	0.3	-10.2	0.3	20
			9.9	0.3	10.3	0.3	

* Vor der Bestrahlung 48h lang bei 800 K unter $2 \cdot 10^5$ Pa Deuteriumgas gehalten

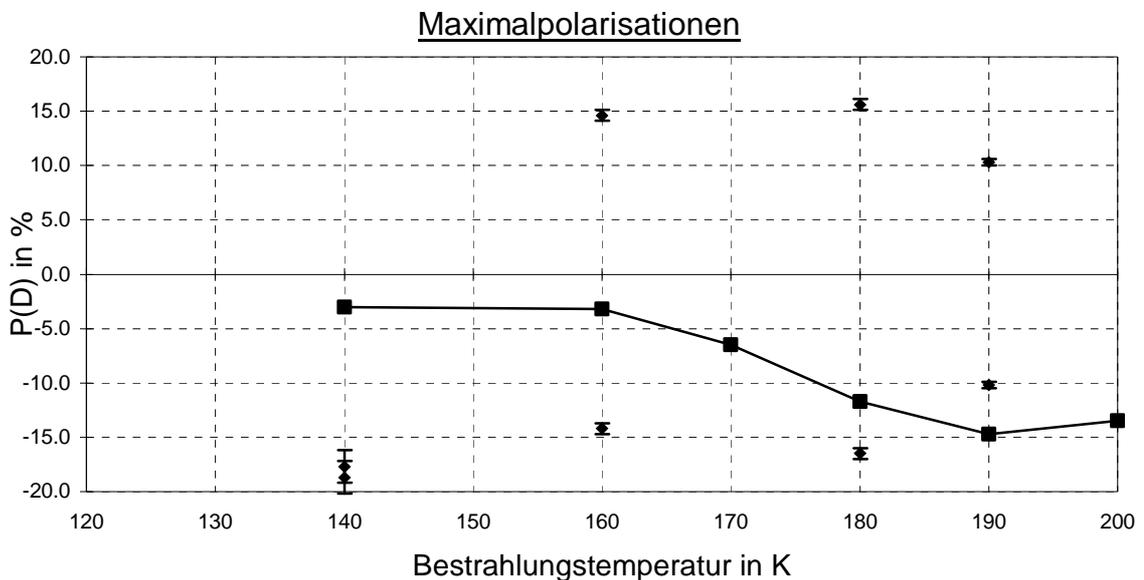


Abb. 6.2.6: *Polarisationsergebnisse vor und nach Erwärmung an Raumtemperatur*

In einem Kristall liegen Leerstellen im thermischen Gleichgewicht mit der Gittertemperatur vor. Die Energie zur Leerstellenerzeugung wird ohne eine Bestrahlung thermisch bereitgestellt. Diese Leerstellen sind Träger der Diffusion und die Temperaturabhängigkeit des Diffusionskoeffizienten ist auf die Temperaturabhängigkeit der Leerstellenkonzentration zurückzuführen. Wird der Kristall ionisierender Strahlung ausgesetzt, werden Leerstellen infolge der Gitterschädigung in großem Maß auf ganz andere Weise erzeugt. Die Leerstellenkonzentration im thermischen Gleichgewicht mit der Temperatur ist bei 180K gegen die Leerstellenkonzentration durch Gitterschädigung zu vernachlässigen. Die Wachstumskurve (Abbildung 4.1.4) ergibt eine F-Zentrendichte und damit auch eine Mindestleerstellendichte von etwa 10^{19} cm^{-3} nach der Standarddosis. Wenn man ganz grob abschätzt, daß 0,1% aller Gitterplätze nahe der Schmelztemperatur durch Leerstellen ersetzt sind, kann man der Fehlordnungsdichte infolge der Bestrahlung eine hypothetische Gittertemperatur in Höhe der Schmelztemperatur der Lithiumwasserstoffe zuordnen. Die hohe Leerstellenkonzentration im thermischen Ungleichgewicht mit der Gittertemperatur ist der Grund dafür, daß diffusionsbedingte Umwandlungsprozesse im strahlengeschädigten Lithiumdeuterid bereits bei ungewöhnlich tiefen Temperaturen eine große Bedeutung haben.

Zusätzliche Kurzbestrahlung bei 90K und 4K

Es wurde der Versuch unternommen die bereits angesprochene Steigerung der Polarisierung nach einer Tieftemperaturnachbestrahlung bei gleichzeitiger Verkürzung der Aufbauzeit für Experimente nutzbar zu machen. Es sollte die Tieftemperaturnachbestrahlung als Teil der Materialpräparation bereits vor dem Einsatz im Experiment benutzt werden. Es wurde versucht, das bei 190K mit 10% Dosis vorbestrahlte Material bei tiefer Temperatur und kleiner Dosis nachzubestrahlen, um damit den sehr langsamen Polarisationsaufbau zu beschleunigen und eventuell die bereits vielversprechende Maximalpolarisation noch weiter zu steigern. Dazu wurde ein dünnwandiges Rohr in den Rohrkreislauf der neuen Bestrahlungsapparatur eingeführt und mit einem Isoliervakuum thermisch gut isoliert. In das Rohr wurde flüssiges Argon gefüllt und die vorbestrahlte Probe eingesetzt. Flüssiges Argon bietet die tiefste mögliche Bestrahlungstemperatur (90K) in diesem einfachen Aufbau, flüssiger Stickstoff sollte wegen einer möglichen Explosionsgefahr nicht verwendet werden. Die Aufbauzeit hat sich nach der Nachbestrahlung nicht verringert, sondern sogar so stark verlängert, daß es nicht mehr möglich war ein Polarisationsignal im thermischen Gleichgewicht aufzunehmen. Auf eine Polarisationsmessung mußte deshalb verzichtet werden. Es steht fest, daß sich die Defekte, die bei 90K entstehen, ganz erheblich von denen unterscheiden, die in einer Bestrahlung bei einem Kelvin entstehen.

Um den Vergleich mit der bei 1,3K nachbestrahlten Probe aus [Goe95] zu haben, wurde eine Probe bei 90K nachbestrahlt, die bei 180K (100% Dosis) vorbestrahlt war. Die Präparation der beiden Proben unterscheidet sich nur in der Nachbestrahlungstemperatur und der Vergleich mit den früheren Untersuchungen kann Unterschiede und Parallelen der Polarisierungseigenschaften nach der Nachbestrahlung bei 1,3K und 90K aufzeigen. Die Polarisierung bricht im Falle einer 90K Nachbestrahlung von 12% auf 8% zusammen und anstatt einer Verkürzung der Aufbauzeit muß man eine Verlängerung der Aufbauzeit um 50% feststellen.

Für eine Polarisierungssteigerung und Verkürzung der Aufbauzeit muß die Temperatur während der Nachbestrahlung weit unter 90K gesenkt werden. Dazu wurde ein aufwendigerer Tieftemperatureinsatz gebaut, der eine Bestrahlung unter flüssigem Helium zuläßt. Im Anhang A2 ist eine Zeichnung des Einsatzes angefügt.

Neben der bei 190K schwach bestrahlten Probe zeigte auch eine kaltbestrahlte (140K) Probe nach Erwärmung auf Raumtemperatur eine hohe Polarisierung. Diese Probe wurde für eine Tieftemperaturnachbestrahlung ausgewählt und es gelang nach 1% Dosis bei 4,2 K die Deuteronenpolarisation von ursprünglich 18% auf 22% zu steigern. Die Aufbauzeit verkürzte sich nur wenig, sie sank von 60 auf 50 Minuten.

Der positive Effekt der Tieftemperaturnachbestrahlung ist bisher nur in Experimenten bei Temperaturen kleiner 1K mit Strahlströmen gemessen worden, die nur einen kleinen Bruchteil des LINAC-Strahlstroms ausmachen. Hier konnte gezeigt werden, daß dieser Effekt auch durch eine kurze Bestrahlung bei 4,2K erzielt werden kann. Die Tieftemperaturnachbestrahlung kann eine sinnvolle Ergänzung der Targetmaterialpräparation für Experimente sein, die keine so hohen Strahlströme benutzen, daß es unweigerlich während der Messung zu einer Tieftemperaturstrahlenschädigung kommt, die den Polarisierungseigenschaften zuträglich ist.

Abschließend ist zu den Ergebnissen der Polarisierungsexperimente bei $B=2.5T$ und einem Kelvin festzustellen:

- Die in früheren Untersuchungen festgestellte Existenz einer optimalen Bestrahlungstemperatur von 180K konnte mit den Überlegungen zu der gesteigerten Kühlleistung der neuen Bestrahlungsapparatur bestätigt werden.

- Eine Verringerung der Bestrahlungsdosis ausgehend von 10^{17}cm^{-2} hat nur dann eine Steigerung der Polarisation zur Folge, wenn die Dosis auf 10% beschränkt wird. Dann erreicht die Probe sehr hohe Polarisationen, die allerdings mit einer extrem langen Aufbauzeit von vier Stunden verbunden sind.
- Die Hoffnung die Aufbauzeiten der mit 10% Dosis vorbestrahlten Proben durch eine Tieftemperaturnachbestrahlung bei 90K zu verkürzen und die Polarisation dabei zu steigern wurde nicht erfüllt. Offensichtlich unterscheidet sich die Fehlordnung einer Bestrahlung bei 90K stark von der einer Tieftemperaturbestrahlung unter Experimentbedingungen ($T < 1\text{K}$). Die Bestrahlung bei 4,2 K zeigt den gewünschten Erfolg.
- Eine nachträgliche Erwärmung an Raumtemperatur zeigt deutliche Steigerungen der Polarisationen kalt bestrahlter Proben. Es werden Polarisationen von 18% nach einer kurzen Aufbauzeit (1h) erreicht. Eine Nachbestrahlung unter flüssigem Helium erhöhte die Deuteronenpolarisation auf 22%. Dies ist der höchste Polarisationswert des ${}^6\text{LiD}$, der bei 2,5 T im Verdampferkryostaten jemals erreicht worden ist.

6.3 Polarisierungseigenschaften unter Bedingungen des COMPASS-Targets

Das Polarisierte Target des COMPASS-Experiments nutzt einen leistungsstarken Dilutionkryostaten, der unter Mikrowellenbestrahlung Temperaturen zwischen 150mK und 200mK erreicht. Dabei befindet sich das Targetmaterial im Feld einer langen Magnetspule mit 2,5T magnetischem Fluß. Das ${}^6\text{LiD}$ kann nur dann optimal polarisiert werden, wenn die eingestrahlte Mikrowellenfrequenz die optimale Polarisationsfrequenz trifft, das heißt wenn sie die Extrema der Frequenzkurve trifft (siehe Abbildung 5.1.1). Bei einer Magnetfeldinhomogenität sind verschiedene Bereiche des Targetvolumens leicht unterschiedlichen Magnetfeldern ausgesetzt. Die Elektronenlarmorfrequenzen dieser Bereiche unterscheiden sich und damit unterscheiden sich auch die optimalen Polarisationsfrequenzen. Bei Einstrahlung einer fest definierten Mikrowellenfrequenz kann dann nicht mehr das gesamte Targetvolumen optimal polarisiert werden und die mittlere Polarisation sinkt. Der Effekt ist beim Einsatz von ${}^6\text{LiD}$ besonders kritisch, weil dieses Material sehr kleine Frequenzkurvenbreiten¹ zwischen 25MHz und 40MHz aufweist. Alle anderen benutzten Targetmaterialien zeigen wesentlich größere Breiten, z.B. 120MHz beim chemisch dotierten D-Butanol [Har01]. Die Inhomogenität des COMPASS-Targetmagneten ist vom Hersteller mit $\Delta B/B=10^{-4}$ angegeben. Rechnet man die maximale Abweichung ΔB bei 2,5T Feld in Mikrowellenfrequenzen um, ergibt sich, daß die optimalen Polarisationsfrequenzen bis zu 7MHz verschoben sind. Somit stellt die geforderte Inhomogenität den Grenzwert dar, der bei Verwendung des ${}^6\text{LiD}$ noch toleriert werden kann, bei größeren Inhomogenitäten sind Polarisierungseinbußen zu erwarten.

Im Bochumer Polarisationslabor können kleinere Mengen ${}^6\text{LiD}$ (1cm^3) unter COMPASS-Experimentbedingungen polarisiert werden. Bei den tiefen Temperaturen des benutzten Dilutionkryostaten [Har01] verlängern sich die Polarisationsaufbauzeiten im Vergleich zu den Aufbauzeiten bei einem Kelvin erheblich. Es wurden Proben gemessen, die bei einem Kelvin hohe Polarisationen nach kurzen Aufbauzeiten aufwiesen. Dabei sollten die Bestrahlungsdosen so niedrig gewählt werden, wie es mit den verlängerten Aufbauzeiten noch verträglich war, um die homogene Breite der elektronischen Resonanz klein zu halten. Es sollte geprüft werden, ob Proben, die nur mit einer Standarddosis bestrahlt worden sind, nach längerer Aufbauzeit bessere Polarisationswerte zeigen als schnellere Proben, die länger bestrahlt worden sind. Es wurden sowohl Proben polarisiert, die bei 190 K bestrahlt

¹ Frequenzabstand der Stelle des Extremums zum Nulldurchgang der Polarisation.

wurden, als auch Proben, die bei 140K bestrahlt und vor der Messung 10 Minuten lang auf Raumtemperatur erwärmt worden sind. Die Tabelle 6.3.1 zeigt die Ergebnisse.

T K	d 10^{17}cm^{-2}	RT min	t_{bu} h	IPI %	Δ %
185	100		12	29	1.5
190	200		12	53	1.2
190	300		3	37	0.3
190	300		3.5	43	0.5
190	400		3	31	0.2
140	100	10	10.5	26	1.8
140	200	10	8	42.5	0.5
140	300	10	6	38	0.6

Tab. 6.3.1: Polarisierungsergebnisse des ^6LiD im Dilutionkryostaten bei 2,5T Magnetfeld

Die Messungen belegen, daß die optimale Bestrahlungsdosis nicht wie angenommen so klein wie möglich gewählt werden sollte. Beide Präparationsmethoden zeigen ein Maximum der Polarisierung bei der zweifachen Standarddosis. Höhere Bestrahlungsdosen verkürzen wie erwartet die Aufbauzeit, verringern aber die erreichte Polarisierung.

Bei einem Kelvin wiesen die „kaltbestrahlten“ Proben nach einer zusätzlichen Erwärmung an Raumtemperatur deutlich höhere Polarisationswerte auf als die „warmbestrahlten“ Proben. Der Abbildung 6.3.1 ist zu entnehmen, daß bei tieferen Temperaturen dagegen der Polarisationsvorsprung eindeutig bei den „warmbestrahlten“ Proben liegt. Die höchste gemessene Polarisierung betrug 53% unter Experimentbedingungen.

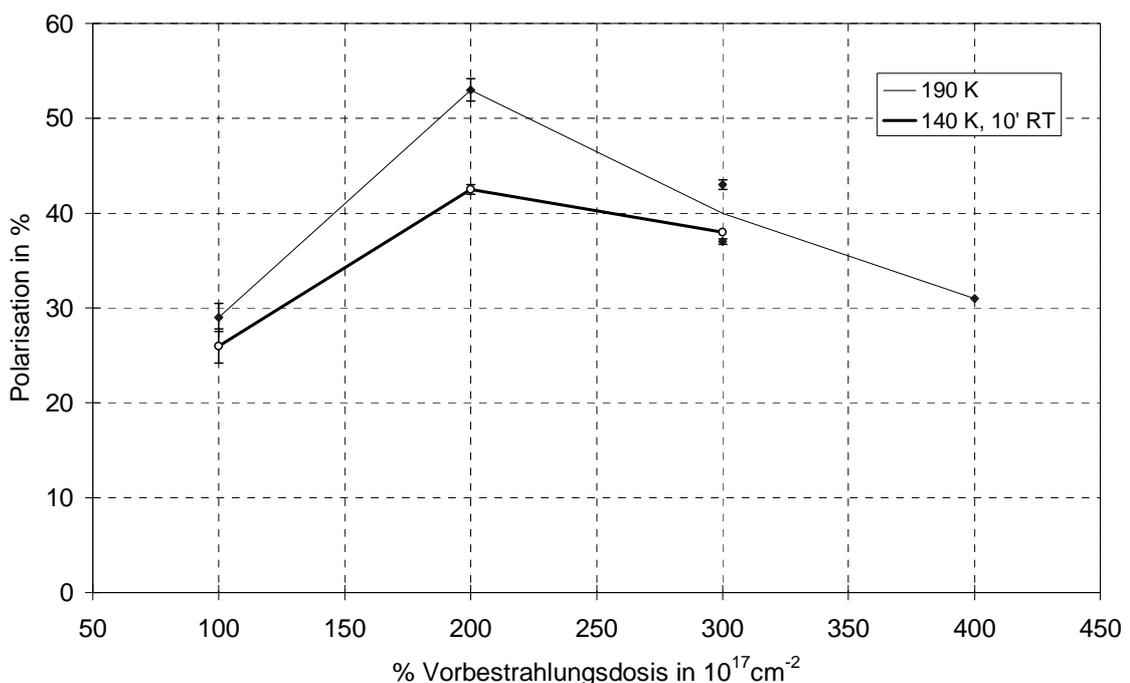


Abb. 6.3.1: Darstellung der Polarisierungsergebnisse im Dilutionkryostaten

Die Abbildung 6.3.2 zeigt die zugehörige Polarisationsaufbaukurve. Die Aufbaukurve hat in erster Näherung einen exponentiellen Verlauf. Man erkennt deutlich einen schnelleren Polarisationsaufbau während der ersten 10 Stunden der Messung, der einer Endpolarisation unter 30% zustrebt. Der Grund für den langsameren Polarisationsanstieg nach den 10 Stunden lag in einer deutlichen Reduzierung der Mikrowellenleistung, die eine tiefere Polarisations Temperatur mit sich brachte. Bei der tieferen Temperatur erfolgte der Polarisationsaufbau langsamer, erreichte aber eine erheblich höhere Endpolarisation.

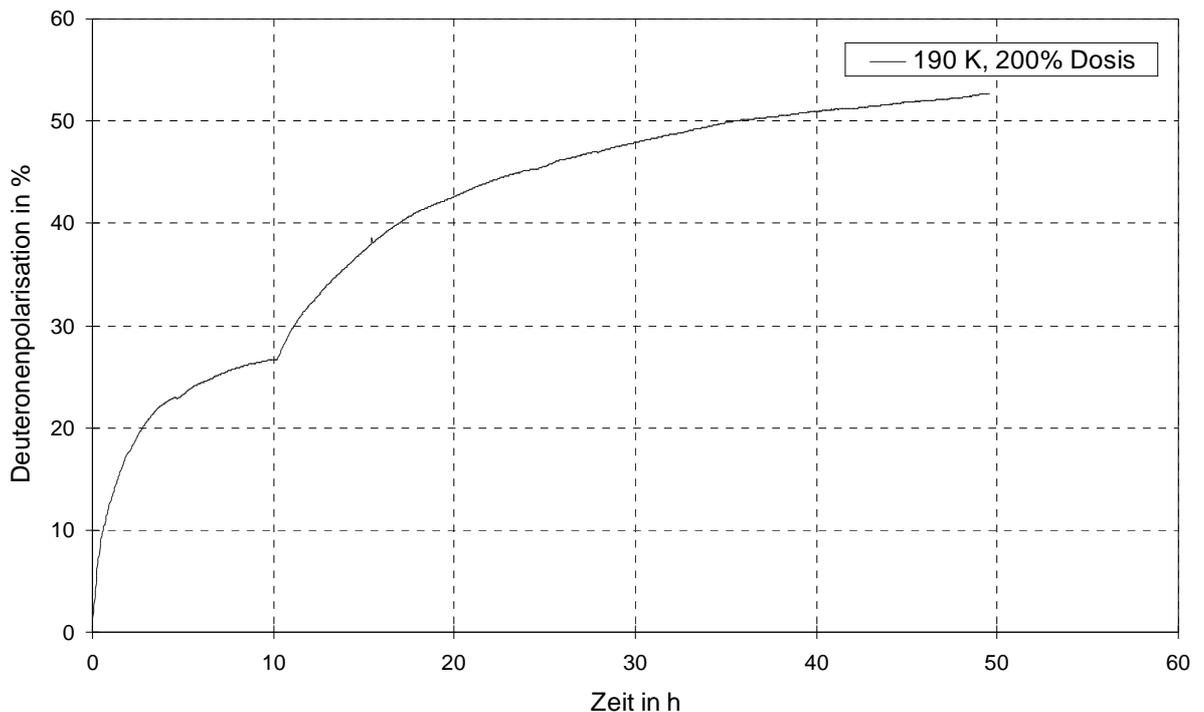


Abb. 6.3.2: Polarisationsaufbaukurve der Messung mit höchster Endpolarisation

Zur Bestätigung der ersten Messung wurde eine weitere Probe bei 190K mit 200% Dosis bestrahlt und die Polarisierung im Dilutionkryostaten gemessen. Die Messung ergab eine wesentlich geringere Endpolarisation $P=39\% \pm 0.7\%$. Eine erneute identische Probenpräparation mit anschließender Messung erbrachte nur $35\% \pm 1,1\%$ Polarisation. Der einzige Unterschied zwischen der Präparation der ersten Probe (53% Polarisation) und den beiden später präparierten Proben liegt in einer veränderten Fokuseinstellung des Elektronenstrahls. Während der Fokus der ersten Bestrahlung auf die Mitte des Eintrittsfensters der Bestrahlungsapparatur gelegt wurde (40cm vor dem Ort der Probe), wurde in den beiden Folgebestrahlungen auf einen Schirm am Ort der Probe fokussiert. Es liegt die Vermutung nahe, daß bei Fokussierung auf das Eintrittsfenster Teile des Strahls Bleikollimatoren streifen und eine größere Zahl Sekundärteilchen erzeugen, die eine DNP-günstigere Strahlenschädigung verursachen. Eine erneute Bestrahlung mit Fokus auf dem Eintrittsfenster und anschließender Messung ergab $43\% \pm 0,7\%$ Polarisation. Das zugehörige Polarisationsignal war deutlich schmaler als das Signal der Probe, mit der 53% Polarisation erreicht wurden. Beide Signale sind im gleichen Magnetfeld aufgenommen worden, so daß die unterschiedliche Signalbreite eine Materialeigenschaft zu sein scheint. Abbildung 6.3.3 zeigt beide Polarisations signale im Vergleich.

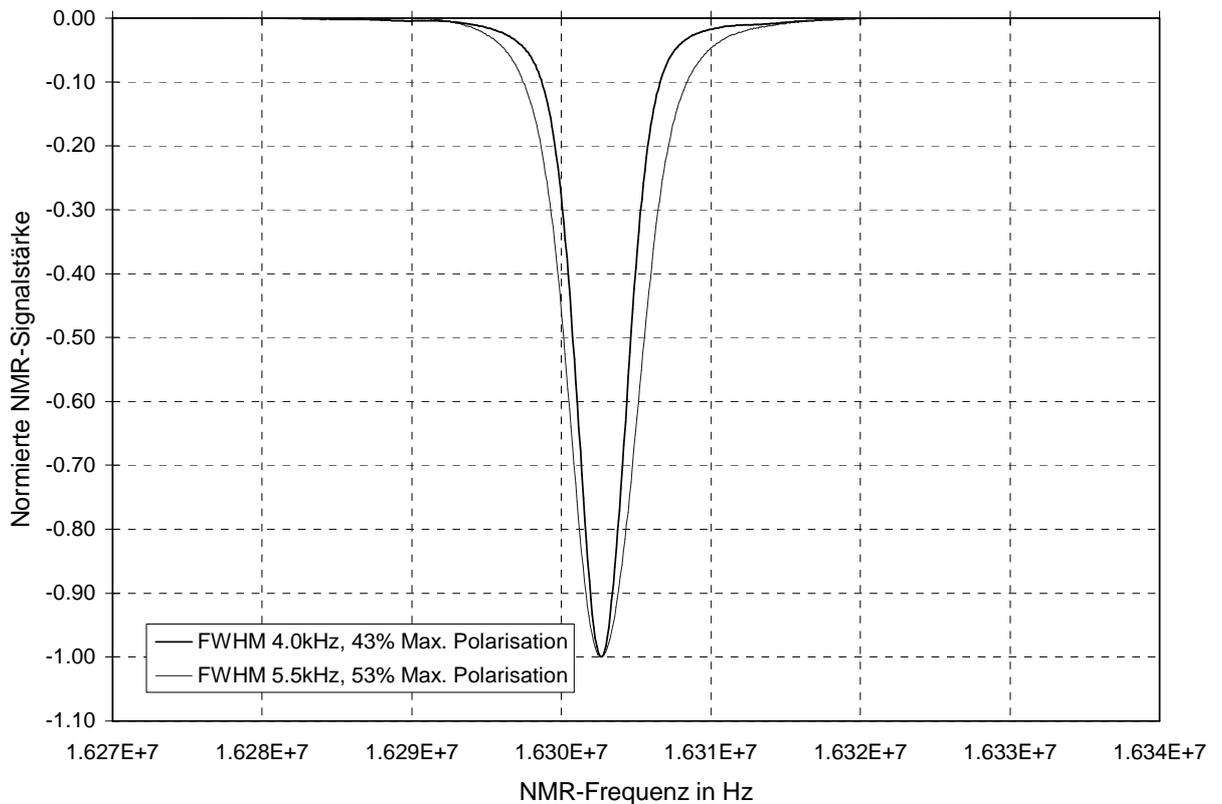


Abb. 6.3.3: Deuteronensignale des ${}^6\text{LiD}$ (190K, 200% Dosis) im Dilutionkryostaten

Am Paul Scherrer Institut wurde schon früher eine ${}^6\text{LiD}$ -Probe über 50% polarisiert [Man90]. Die Polarisationsignale wiesen eine große Halbwertsbreite (5,5kHz FWHM) auf, die allerdings durch eine größere Magnetfeldinhomogenität ($\Delta B/B=3 \cdot 10^{-4}$) erklärt wurde.

Ob die hohe Polarisation mit der größeren Signalbreite in Zusammenhang steht, konnte nicht eindeutig geklärt werden und muß in weiteren Meßreihen untersucht werden. Durch gezielte Produktion von Sekundärteilchen während der Bestrahlung muß im weiteren Verlauf der Forschung deren Wirkung auf die Polarisationsseigenschaften bei tiefen Temperaturen weiter untersucht werden.

Zusammenfassung und Ausblick

Das ${}^6\text{LiD}$ konnte mit hoher Isotopenreinheit hergestellt werden. Damit steht ein Material zur Verfügung, das die Voraussetzung für eine hohe dynamische Polarisation bietet. Die Präparation und Optimierung des ${}^6\text{LiD}$ für COMPASS ist untrennbar mit der Erforschung der Punktdefekte im Kristall und ihrem DNP-Verhalten verbunden. Der Hauptanteil der DNP-aktiven Punktdefekte konnte durch den Vergleich der ungesättigten ESR-Absorptionslinie mit theoretisch berechneten HFS-Spektren als Farbzentrum auf Deuteriumgitterplätzen identifiziert werden. Die optische Spektroskopie hat in zwei Fällen hochpolarisierender Proben eine Absorptionslinie bei 732nm gezeigt, die in der Literatur den M-Zentren zugeordnet wird. Eine kaum polarisierende Probe zeigte keine 732nm-Linie und es liegt die Vermutung nahe, daß eine hohe dynamische Polarisation mit M-Zentren in Verbindung gebracht werden kann. Dies könnte ein lohnender Ansatz für weitergehende Untersuchungen mit optischer Spektroskopie in der Zukunft sein und könnte eine Schlüsselrolle im Verständnis der DNP im Lithiumdeuterid spielen.

Die Polarisationsexperimente im 2,5T Magnetfeld sind bei 77K, bei 1K und bei 0,2K durchgeführt worden. Die Messungen bei 77K dienten ausschließlich der Überprüfung von Aussagen der „Equal-Spin-Temperature“-Theorie, die qualitativ bestätigt werden konnten.

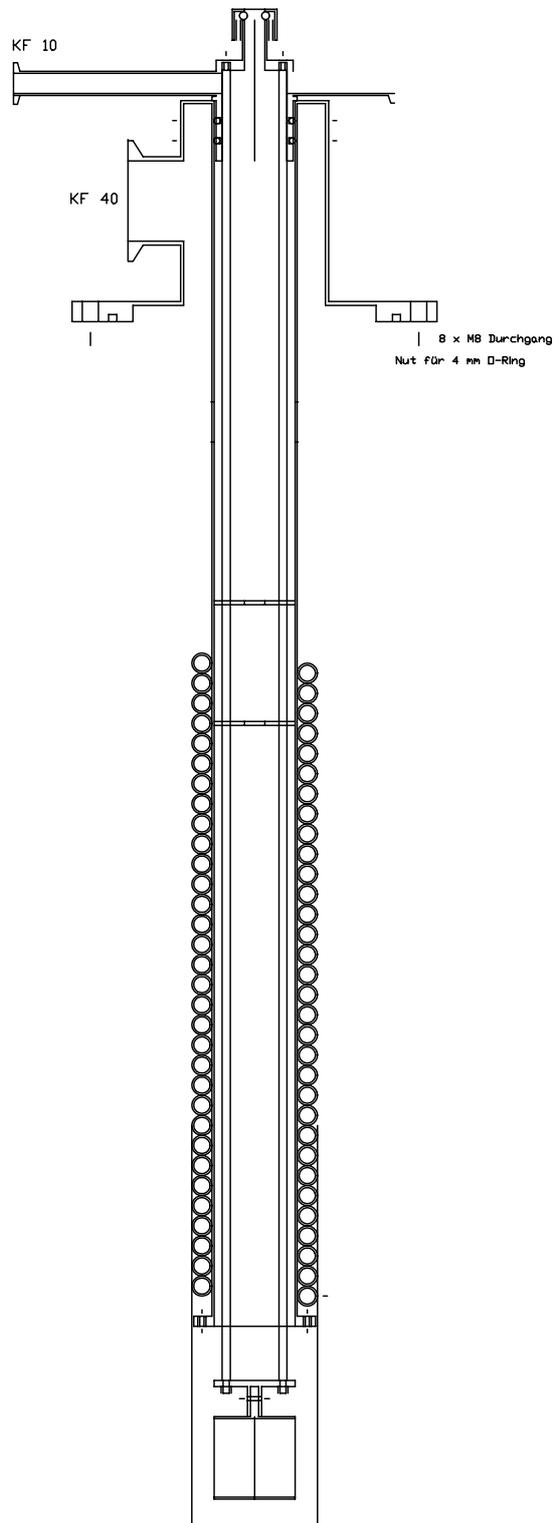
Für die Polarisationsmessung einer Probe benötigt man bei 1K weit weniger Meßzeit als bei tieferen Temperaturen. Deshalb wurde bei 1K eine große Probenauswahl untersucht und eine Vorauswahl für die Messungen im Dilutionkryostaten getroffen. Bei 1K ist mit 18% Deuteronenpolarisation eine hohe Polarisation erreicht worden, die durch eine Tieftemperaturnachbestrahlung auf 22% gesteigert werden konnte. Die Planung neuer Experimente favorisiert doppelt polarisierte tief inelastische Experimente mit gesteigerter Luminosität. Dazu werden hohe Strahlströme benötigt, die ein polarisiertes Festkörpertarget einsetzen, das bei 1K und 5T Magnetfeld arbeitet. Leider konnte aus apparativen Gründen keine Polarisationsmessung bei 1K und 5T durchgeführt werden, doch zeigt die Erfahrung mit Polarisationssteigerungen bei Felderhöhung auf 5T, daß die Polarisation von 22% auf mindestens 30% steigt. Zusammen mit seiner hohen Strahlenresistenz bietet somit das ${}^6\text{LiD}$ die Möglichkeit den Vorsprung der zukünftigen Beschleuniger gegenüber heutigen Experimenten effektiv zu nutzen. Als Beispiel für ein solches Experiment der Zukunft seien hier die Überlegungen zu einem polarisierten Target am geplanten TESLA-Beschleuniger genannt [TESLA00].

Unter den Polarisationsbedingungen des polarisierten COMPASS-Targets konnten Polarisationen weit über 40%, in einer Messung sogar über 50%, erzielt werden. Damit ist die bessere statistische Genauigkeit bei vorgegebener Meßzeit, die mit ${}^6\text{LiD}$ gegenüber anderen Targetmaterialien zu erwarten ist, für das Experiment nutzbar gemacht worden.

Anhang A1: Zeichnung der Syntheseapparatur

A1

Maßstab 1:2



Danksagung

Ich möchte allen herzlich danken, die mit ihrer Unterstützung das Gelingen der Arbeit möglich gemacht haben.

Herrn Prof. Dr. W. Meyer danke ich für die interessante Themenstellung und seine tatkräftige Unterstützung und Förderung, die er mir im Verlauf der Arbeit hat zuteil werden lassen.

Besonderer Dank gilt Herrn Dipl.-Phys. Dr. S. Goertz für den großen Einsatz, mit dem er die Arbeit begleitet und mitgestaltet hat. Sein Erfahrungsschatz auf dem Gebiet der Targetmaterialforschung der Lithiumhydride hat die Arbeit sehr bereichert.

Ich danke Herrn Dipl.-Phys. Dr. G. Reicherz für die maßgebliche Mitwirkung an den Polarisationsmessungen. Seine Kenntnisse und seine Erfahrung mit der NMR haben die genaue Polarisationsmessung der großen Probenauswahl möglich gemacht.

Die Polarisationsmessungen im Dilutionkryostaten machten eine 24h-Betreuung der Messung über Tage notwendig und ich möchte den Mitgliedern der Bochumer PT-Arbeitsgruppe für ihre Mitarbeit herzlich danken. Neben den bereits angesprochenen Personen haben Frau cand.-phys. A. Nürnberg und die Herren Dipl.-Phys. J. Harmsen, J. Heckmann und E. Radtke an den Messungen mitgewirkt.

Ich möchte mich bei der Bonner Beschleunigerarbeitsgruppe um Herrn Prof. Dr. D. Husmann und den technischen Mitarbeitern für das Ermöglichen der Probenbestrahlung bedanken.

Das ^6LiD ist zusammen mit Herrn Prof. Dr. H. Sabrowsky und Herrn Dipl.-Chem. Dr. Jong Sik Choi am Institut für Anorganische Chemie der Ruhr-Universität Bochum dargestellt worden. Ich danke für die sehr gute Zusammenarbeit.

Herr Dr. D. Buhl am Institut für Geologie und Sedimentologie an der Ruhr-Universität Bochum hat mit der Bestimmung des ^7Li Lithiumanteils im ^6Li Lithiummetall einen wichtigen Beitrag zur Erforschung der Dynamischen Polarisation in den Lithiumhydriden geleistet. Dafür gilt ihm mein Dank.

Herr Priv. Doz. Dr. H. J. Weber und Herr Dipl.-Phys. H. P. Kreipe haben mir die Optische Spektroskopie meiner Proben am Institut für Experimentelle Physik II der Universität Dortmund ermöglicht und die Messungen zusammen mit Herrn Dipl.-Phys. T. Klempt mit großem Interesse begleitet. Vielen Dank.

Ich danke den Mitarbeitern der Feinmechanischen Werkstatt des Instituts für Experimentalphysik I der Ruhr-Universität Bochum für den Bau der Apparaturen, die zur Bestrahlung und zur Messung der Proben gebraucht wurden. Ihre tatkräftige Mitarbeit hat viele Präparations- und Meßideen Wirklichkeit werden lassen.