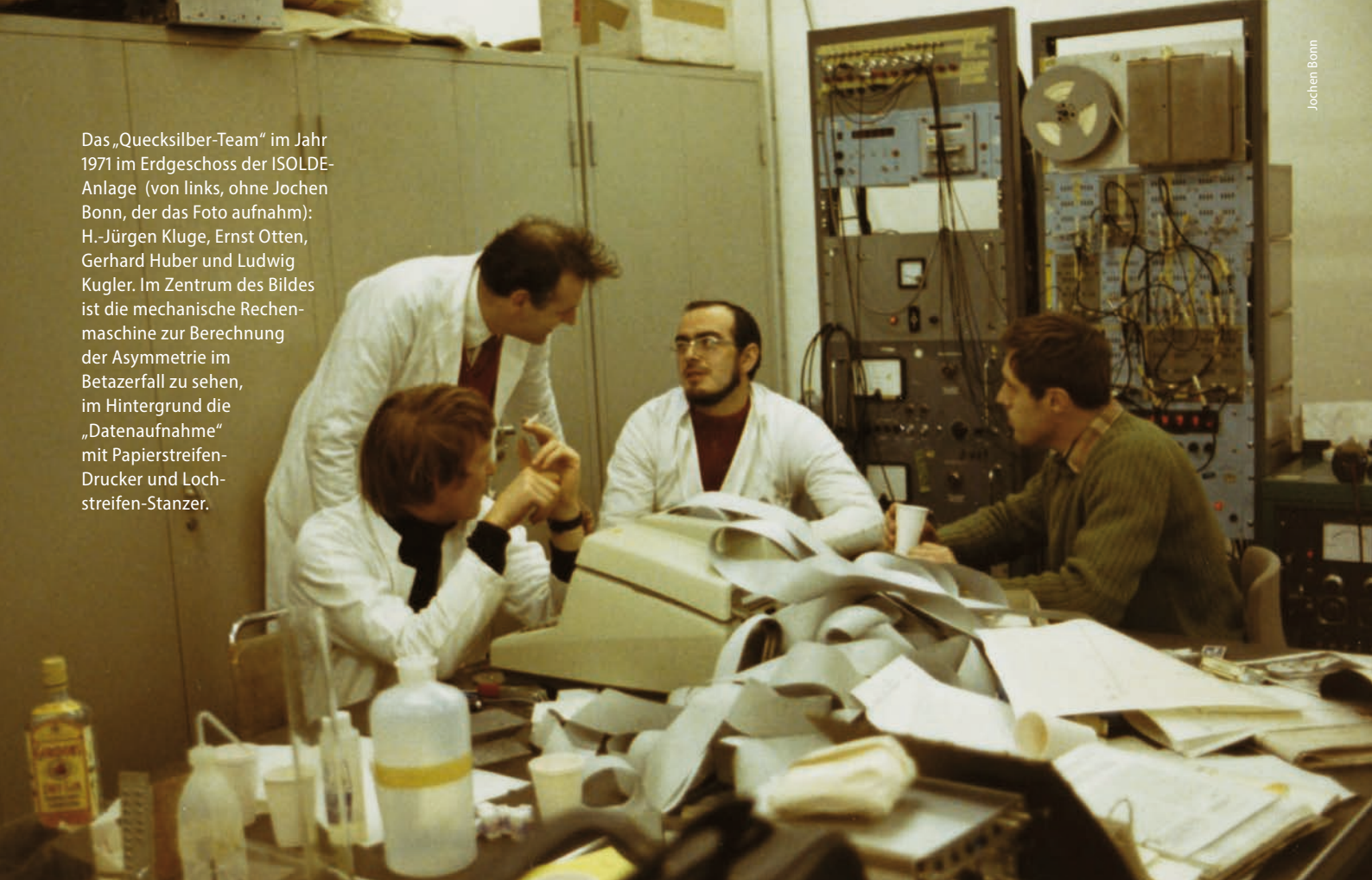


Das „Quecksilber-Team“ im Jahr 1971 im Erdgeschoss der ISOLDE-Anlage (von links, ohne Jochen Bonn, der das Foto aufnahm): H.-Jürgen Kluge, Ernst Otten, Gerhard Huber und Ludwig Kugler. Im Zentrum des Bildes ist die mechanische Rechenmaschine zur Berechnung der Asymmetrie im Betazerfall zu sehen, im Hintergrund die „Datenaufnahme“ mit Papierstreifen-Drucker und Lochstreifen-Stanzer.



ROBERT-WICHARD-POHL-PREIS

Fünfzig Jahre Optische Spektroskopie an Beschleunigern

Wie sich der Werkzeugkasten des Experimentalphysikers in einer so kurzen Zeitspanne geändert hat.*)

H.-Jürgen Kluge

Im April 1970 ging ich als frisch gebackener Postdoc zum CERN, um an einem Experiment zu arbeiten, das der Experimentalphysiker Ernst Otten von der Universität Mainz konzipiert, initiiert und auf den Weg gebracht hatte. Dass dieses Erfolg haben würde, war damals nicht vorhersehbar. Aber nach harter Arbeit und etlichen Frustrationen funktionierte es und eröffnete das neue Forschungsgebiet der atomphysikalischen Untersuchung von Kerngrundzustandseigenschaften kurzlebiger Radionuklide, die sich mittels Beschleuniger herstellen lassen.

*) Dieser Artikel ist meinem Lehrer und Freund Ernst Otten gewidmet, der am 8. Juli 2019 verstorben ist.

Seit den Anfängen der modernen Physik spielte die Atomphysik eine wichtige Rolle für unser heutiges Wissen über den Atomkern. Anfangs lieferten insbesondere die Massenspektrometrie, die Atomstrahl-Magnetresonanz und die optische Spektroskopie Informationen über die statischen Eigenschaften stabiler Kerne, also über deren Masse, Größe, Form, Momente und Drehimpuls. Während die Masse durch die Ablenkung von Ionenstrahlen in elektrischen und magnetischen Feldern gemessen wurde, ließen sich der Kernspin und das magnetische Moment durch die Ablenkung von Atomstrahlen in Magnetfeldgradienten wie beim Stern-Gerlach-Effekt oder auch mithilfe der Hochfrequenz-Spektroskopie aus der Hyperfeinstruktur der atomaren Niveaus bestimmen. In-

formationen über die Größe und Form der Kerne lieferte die optische Spektroskopie. Sie erlaubte es, die Isotopenverschiebung und die Hyperfeinstruktur der Spektrallinien zu untersuchen. Diese Daten sind modellunabhängig und stellen somit Fixpunkte auf der Nuklidkarte dar, um Kernmodelle zu entwickeln oder die starke Wechselwirkung zu testen.

Nur allmählich gelang es, diese Techniken auf radioaktive Kerne anzuwenden, um deren Grundzustandseigenschaften zu bestimmen: Sehr früh war es möglich, die Massen eines radioaktiven Tochterisotops mithilfe der Beziehung $E = mc^2$ relativ zum Mutterkern zu messen, indem die Energiebilanz ihrer Zerfälle untersucht wurde. Dafür gilt es, beim Betazerfall das kontinuierliche Energiespektrum der β -Teilchen in Koinzidenz mit der entstehenden γ -Kaskade aufzunehmen, den Endpunkt des β -Spektrums zu bestimmen oder beim α -Zerfall die Energien der α -Teilchen bzw. bei Kernreaktionen den Energieübertrag zu messen.

Der Kernspin und das magnetische Moment eines radioaktiven Kerns ließen sich erstmals 1942 mittels Atomstrahl-Magnetresonanz (ABMR, auch Rabi-Methode genannt) bestimmen. 1964 waren in Princeton am 18-MeV-Protonenzyklotron erstmals „online“-Experimente mit einer Rabi-Apparatur möglich. Dabei wird das zu untersuchende Radioisotop durch den Teilchenstrahl des Beschleunigers direkt in der Messapparatur erzeugt oder aber extern produziert und dann sofort in diese als Ionenstrahl geleitet. Auf diese Weise lässt sich das erzeugte Isotop ohne Zeitverlust untersuchen. 1974 installierte die schwedische Gruppe um Lindgren und Ekström eine ABMR-Apparatur an der ISOLDE-Anlage am CERN (Abb. 1) und bestimmte so Spin und magnetische Momente für viele kurzlebige Isotope [1].

Nur für langlebige Radioisotope mit einer Halbwertszeit von mindestens ein paar Stunden war es aufgrund der aufwändigen Produktion, Abtrennung und Messung

möglich, mit optischen Methoden die Aufspaltung und Verschiebung von Spektrallinien zu untersuchen. Tomlinson und Stroke gelang es 1964, die Hyperfeinstruktur und Isotopieverschiebung einiger neutronenarmer Quecksilber-Isotope mithilfe eines Gitterspektrographen zu bestimmen [2]. Bis 1971 war das Isotop ^{192}Hg mit einer Halbwertszeit von 4,9 Stunden das kurzlebigste Isotop, für das die Isotopieverschiebung bestimmbar war, und die Hg-Isotope im Massenbereich $204 \geq A \geq 192$ bildeten zu dieser Zeit die längste Isotopenkette, für die man Hyperfeinstruktur und Isotopenverschiebung kannte. Auch heute noch ist Quecksilber Rekordhalter in dieser Hinsicht: Wir kennen die Kerneigenschaften von Grund- und isomeren Zuständen dank der optischen Spektroskopie für 31 verschiedene Massenzahlen! Und das exotischste so untersuchte Quecksilberisotop-Isotop, nämlich ^{177}Hg , hat eine Halbwertszeit von nur 127 ms. Dazu später mehr.

Zunächst zurück zu den Anfängen der optischen Spektroskopie an Beschleunigern. Vor 50 Jahren erlebte die Kern- und Atomphysik enorme wissenschaftliche und technische Durch- und Umbrüche:

- Die Kombination leistungsstarker Beschleuniger mit Massenseparatoren ermöglichte es, kurzlebige Isotope mit definierter Protonen- bzw. Neutronenzahl und mit hoher Ausbeute herzustellen und zu untersuchen.
- Zum ersten Mal war es möglich, durchstimmbares Laserlicht mit wählbarer Frequenz und gewünschter Bandbreite zu erzeugen. Dies führte zu neuen, extrem leistungsfähigen spektroskopischen Methoden.
- Zu Beginn der 1970er-Jahre ersetzten Transistoren fast vollständig die Elektronenröhren. Damit waren neue kompakte und komplexe elektronische Geräte möglich.
- Die Produktion von mechanischen Tischrechnern endete. Mikroprozessoren und 16-Bit-Minicomputer kamen auf den Markt und revolutionierten die Steuerung und Datenaufnahme von Experimenten.
- Eine Art modulares System wurde für die Nuklear-

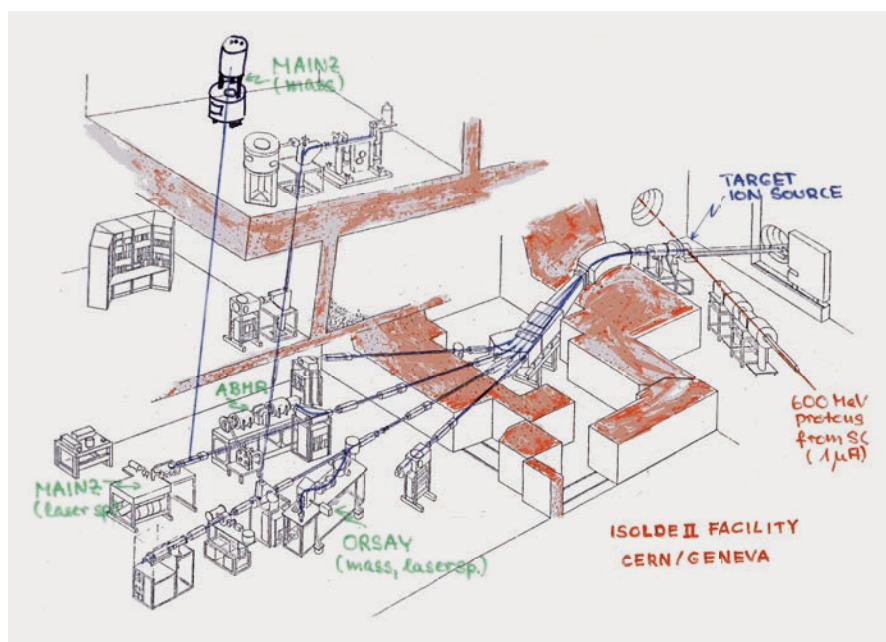


Abb. 1 Die Abbildung zeigt auf einer handkolorierten Overhead-Folie von etwa 1980 die ISOLDE-Anlage, wie sie um diese Zeit aussah. Rechts befindet sich im 2. Untergeschoss des damaligen ISOLDE-Gebäudes die Protonenstrahlführung des 600-MeV-Synchrozyklotrons zum Target-/Ionenquellensystem mit „Beam dump“ und Speicherplatz für Targets sowie mit dem in der Abschirmwand eingebauten Separatormagneten. In der Experimentierhalle (links) sieht man die damals installierten Experimentieraufbauten: die Atomstrahl-Magnetresonanz-Apparatur (ABMR) aus Schweden; die Apparaturen für das optische Pumpen mit β -Asymmetrie-Nachweis (β -RADOP), später an dieser Stelle die Laserfluoreszenzspektroskopie und seit Anfang der 1980er-Jahre die kollineare Laserspektroskopie aus Mainz; die Orsay-Experimente für die Laserspektroskopie und die Massenspektrometrie von Alkali-Isotopen. Zudem ist die Position des Massenspektrometers ISOLTRAP aus Mainz skizziert, das 1986 im Erdgeschoss von ISOLDE installiert wurde.

elektronik entwickelt, der „Nuclear Instrumentation Module Standard“ (NIM-Standard).

- Erstmals gelang es, geladene Teilchen in einer Penning-Falle zu speichern und ihre Bewegung zu beobachten. Später wurden mit diesen Systemen sehr leistungsfähige Massenspektrometer für Radionuklide verwirklicht.

Massenseparation mit ISOLDE

Vor 50 Jahren ging mit dem Online-Isotopentrenner ISOLDE am CERN eine völlig neue Anlage in Betrieb, um die nuklearen Eigenschaften instabiler Kerne zu untersuchen [3]. Hoch erhitztes (flüssiges) Metall in einem Targetbehälter wurde mit dem 600-MeV-Protonenstrahl des CERN-Synchrozyklotrons beschossen. Die erzeugten flüchtigen Isotope diffundierten in die Ionenquelle des Massenseparators. Dort wurden die Ionen ionisiert, auf 60 keV beschleunigt und standen nach Separation durch einen Dipolmagneten als massengetrennte Ionenstrahlen für Experimente zur Verfügung. Diese hatten damals beispielsweise für Quecksilber eine Intensität von bis zu 10^8 Ionen pro Sekunde und Isotop.

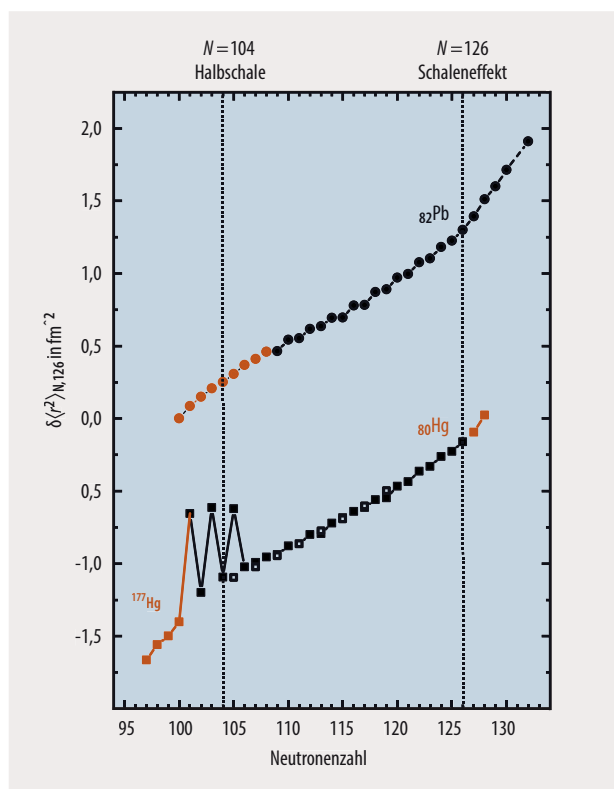


Abb. 2 Änderung der mittleren quadratischen Ladungsradien von Blei- und Quecksilberisotopen als Funktion der Neutronenzahl. Die beiden Datensätze sind zur besseren Übersicht gegeneinander verschoben. Volle Symbole kennzeichnen die Grundzustände, offene die Isomere. Die schwarz markierten Radien wurden mit konventioneller Spektroskopie, mit optischem Pumpen und β -Asymmetrie-Nachweis, mit Laserfluoreszenzspektroskopie, Resonanz-Ionisations-Massenspektroskopie oder kollinearer Spektroskopie gemessen und die rot markierten Werte mit resonanter Ionisationslaserspektroskopie in der ISOLDE-Ionenquelle und mittels Nachweis durch das ISOLTRAP-Multi-Reflexions-Flugzeitspektrometer [9].

ISOLDE wurde am Synchrozyklotron mehrfach erweitert und verändert (**Abb. 1**). Als das Synchrozyklotron 1990 nach 33 Jahren außer Betrieb ging, zog ISOLDE zum Booster des Protonsynchrotrons um, wo jetzt 1,4-GeV-Protonen zur Verfügung stehen und Radioisotope für vielfältige Anwendungen produziert werden.

Kurzlebige Isotope optisch spektroskopieren

1968 hatte Ernst Otten die Idee, die Isotopenverschiebung kurzlebiger Isotope zu messen, nämlich die von Quecksilber. Diese Isotope besitzen eine Halbwertszeit von deutlich unter einer Stunde und lassen sich daher nur sofort – online – nach ihrer Produktion untersuchen. Abstimmbare Laser gab es aber noch nicht. Zudem lag die Ausbeute an Atomen der infrage kommenden Isotope um viele Größenordnungen unter der Menge, die für die konventionelle optische Spektroskopie erforderlich gewesen wäre. Also wandte Ernst Otten den folgenden Trick an: Mit einer Spektrallampe, die ein isotopisch reines gerades Quecksilber-Isotop enthielt und zwischen den Polen eines Elektromagneten platziert war, konnte er die Zeeman-Aufspaltung der zirkular polarisierten σ -Komponenten variieren, indem er die magnetische Feldstärke des Magneten änderte. So war eine frequenzvariable Lichtquelle realisiert!

Trifft die Frequenz des Lichts einen Übergang im untersuchten Isotop, wird dieser Kern durch optisches Pumpen polarisiert. Zerfällt der polarisierte Kern, ist eine Asymmetrie der unter 0° bzw. 180° emittierten β -Teilchen mit β -Teleskopen zu beobachten, die auf die 1956 entdeckte Paritätsverletzung der schwachen Wechselwirkung zurückgeht. Fügt man eine $\lambda/2$ -Quarzplatte in den Strahlengang des anregenden Lichts ein, so dreht sich die Polarisation um, und die Asymmetrie ändert ihr Vorzeichen. Wie groß die Asymmetrie ist, hängt von den Kerneigenschaften von Mutter- und Tochterisotop ab und ist für so komplexe Kerne wie Hg oder Au nicht vorhersagbar.

Für jede Magnetfeldeinstellung und die beiden zirkularen Polarisationen wurden die Zählraten der beiden β -Teleskope für einige Zeit akkumuliert und in Zählern gespeichert, die damals binäre, durch kleine Glühlampen sichtbar gemachte Anzeigen hatten. Die Zahlen wurden auf einen Papierstreifen gedruckt und die Asymmetrie mithilfe eines mechanischen Tischrechners (damaliger Preis etwa 20 000 DM) berechnet. Da dieser Rechner elektrische Funken erzeugte und damit andere kernphysikalische Experimente in der Experimentierhalle störte, musste die Berechnung in einem der ISOLDE-Labore stattfinden. Der erhaltene Wert wurde mit Bleistift auf Millimeterpapier für das jeweilige Magnetfeld markiert.

Nach langem Ringen, überhaupt einen Asymmetrie-Effekt im Betazerfall zu beobachten, gelang es schließlich, die Hyperfeinstruktur und Isotopieverschiebung von ^{187}Hg ($T_{1/2} = 2,4$ Minuten) mit einer winzigen β -Asymmetrie von einigen wenigen Promille zu messen. Doch der wirkliche Durchbruch geschah am 1. April 1971: Wir untersuchten ^{185}Hg ($T_{1/2} = 50$ s) und fanden ein seltsames Muster in der Hyperfeinstruktur und eine enorme Asymmetrie von bis zu acht Prozent. Da Ernst Otten zu dieser Zeit auf einer

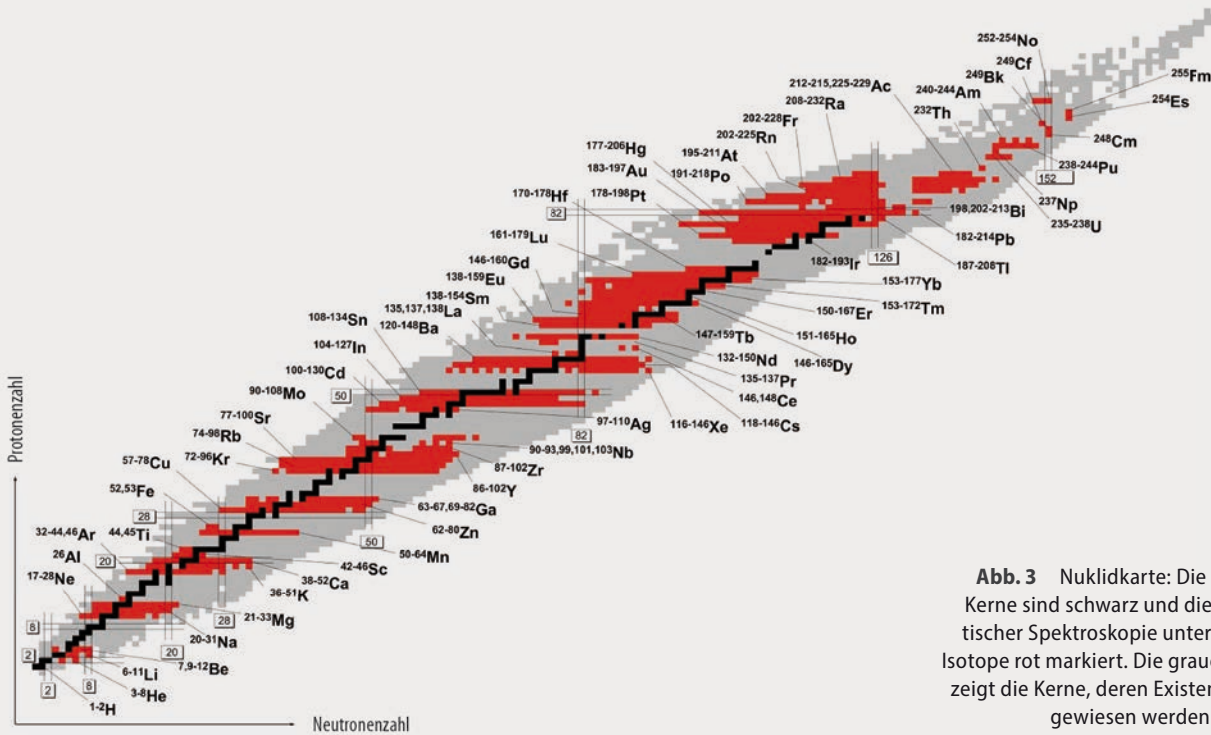


Abb. 3 Nuklidkarte: Die stabilen Kerne sind schwarz und die mit optischer Spektroskopie untersuchten Isotope rot markiert. Die graue Fläche zeigt die Kerne, deren Existenz nachgewiesen werden konnte.

Konferenz in Japan war, informierten wir ihn mit einem Telex, aber er stuft die Nachricht als Aprilscherz ein.

Die Ursache des anfangs nicht zu erklärenden Signals war, dass der Kernladungsradius von ^{185}Hg ähnlich groß ist wie der von ^{196}Hg – also einem Kern, der elf Neutronen mehr besitzt [4]. Das erklärte auch die merkwürdige Hyperfeinstruktur: Wir benutzten eine Spektrallampe, die mit dem ^{198}Hg -Isotop gefüllt war. Deshalb regten wir die Hyperfeinstrukturkomponenten von ^{185}Hg sowohl mit der σ^- - als auch mit der σ^+ -Komponente von ^{198}Hg an.

Da Quecksilber nur zwei Protonen zu einer geschlossenen Schale bei $Z = 82$ fehlen, gab es viele Spekulationen über den Grund für diesen unerwarteten Sprung in der Kerngröße (z. B. über das Auftreten von Blaskernen). Die richtige Interpretation musste jedoch auf Fortschritte bei den Kernmodellen und den spektroskopischen Techniken warten. Da die β -RADOP-Methode empfindlich auf eine Asymmetrie des Betazerfalls ist, die eine Kernpolarisation und damit einen von Null verschiedenen Kernspin erfordert, ließen sich die geradzahigen Hg-Isotope damit nicht untersuchen.

Damals, vor 50 Jahren, wurde jedoch ein gänzlich neues Werkzeug erfunden, das die Atomspektroskopie revolutionierte: der abstimmbare Laser. Theodor W. Hänsch veröffentlichte 1972, dass frequenzveränderliches, schmalbandiges Laserlicht mithilfe von Farbstoffmolekülen zu erzeugen ist [5]. Daher wurde die β -RADOP-Apparatur an ISOLDE modifiziert, indem statt der Spektrallampe ein Laser vom Typ „Hänsch“ und statt des β -Teleskops ein Photomultiplier verwendet wurde, mit dem sich das Fluoreszenzlicht detektieren ließ. Zusätzlich wurden die Experimentsteuerung und Datenaufnahme umgestellt:

Ein 16-Bit-Minicomputer (Data General, NOVA), der rund 200 000 DM kostete, wurde angeschafft – mit einem Speicher von 32 768 Bits (nicht Bytes!) auf vier Servierbrettgroßen Kernspeicherplatten. 28 K dieses Speichers standen für den Assemblercode der Steuerung des Experiments, für die Datenakkumulation, Speicherung, Auswertung und Anzeige zur Verfügung.

Das Ergebnis der damit möglichen Spektroskopie an den geraden Hg-Isotopen und den $i_{13/2}$ -Isomeren war völlig überraschend und das erste Beispiel für die Koexistenz von sehr verschiedenen Kernformen [6]: Ein extrem großer gerade-ungerade-Effekt tritt bei der Isotopieverschiebung auf (Abb. 2), wie er an keiner anderen Stelle der Nuklidkarte zu beobachten ist. Bei den neutronenarmen Hg-Isotopen in der Mitte der Neutronenschale weisen die ungeraden Isotope in ihrem Grundzustand eine starke (prolate) Deformation auf, während die $i_{13/2}$ -Isomere mit der gleichen Massenzahl und die dazwischen liegenden geradzahigen Isotope nur schwach oblat deformiert sind. Der Verlauf der Ladungsradien der geraden Isotope und der Isomere folgt dem der (heute bekannten) Blei-Isotopenkette. In dieser stabilisiert die magische Protonenzahl die nahezu sphärische Kernform.

Im Laufe der Jahre nahm die Untersuchung von nuklearen Grundzustandseigenschaften mithilfe von Lasern rasch zu, und viele neue Methoden wie die kollineare Spektroskopie oder die Resonanz-Ionisations-Massen-Spektroskopie kamen hinzu [7].

Die Resonanz-Ionisationsspektroskopie hatte noch eine weitere wichtige und sehr praktische Anwendung, nämlich als Laser-Ionenquelle für die effiziente und selektive online-Produktion von Ionenstrahlen. Da Resonanz-Ionisation ele-

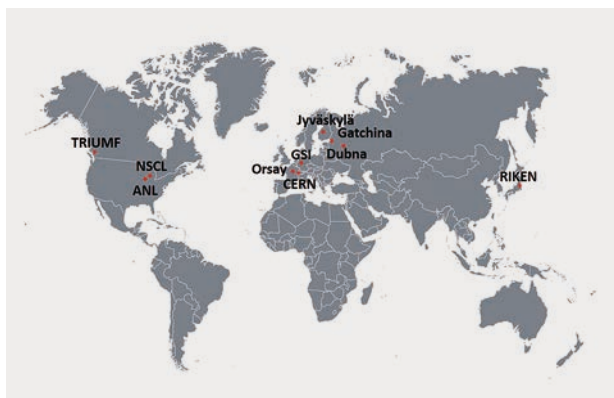


Abb. 4 An diesen Beschleunigeranlagen werden zurzeit die Kerngrundzustandseigenschaften instabiler Kerne mit online-Laserspektroskopie untersucht.

mentsselektiv ist, resultiert nach der Massentrennung durch den Separatormagneten ein isotoopenreiner Ionenstrahl. So setzte sich die Resonanz-Ionisations-Laser-Ionenquelle [8] bei ISOLDE als am häufigsten benutzte Ionenquelle durch.

Kürzlich gelang es bei ISOLDE, die Kernradien und magnetischen Momente in der Quecksilberisotopenkette bis hinunter zu ^{177}Hg ($T_{1/2} = 127$ ms) zu bestimmen (rote Symbole in **Abb. 2**) [9]. Die neuen Messungen wurden dadurch möglich, dass die in der Laser-Ionenquelle mit einer Rate von wenigen Ionen pro Minute ionisierten Radionuklide extrem empfindlich und untergrundfrei mit dem Multi-Reflexions-Flugzeit-Massenspektrometer des ISOLTRAP-Experiments nachzuweisen waren. Diese Messungen zeigen, dass die plötzliche, drastische Formänderung und die Koexistenz prolater und oblater Kernformen in Quecksilber auf den engen Bereich von $180 \leq A \leq 186$ begrenzt ist. Dies lässt sich durch Berechnungen im Monte-Carlo-Schalenmodell als kritisches Wechselspiel zwischen Monopol- und Quadrupol-Wechselwirkungen erklären, bei dem die Paarungsenergie die leicht oblate Deformation für die geradzahigen Isotope stabilisiert.

Fortschritte aus 50 Jahren

Damit ist der Bogen von 1970 bis heute – zumindest vorläufig – gespannt. Vor 50 Jahren gab es kaum Daten über die Kerngrößen von Radionukliden außer für einige wenige Kerne, die sehr nahe am Tal der Stabilität liegen, und für einige langlebige Quecksilber-Isotope. Auch über die anderen nuklearen Grundzustandseigenschaften wie elektromagnetische Momente war recht wenig bekannt. Das hat sich im Laufe von fünf Jahrzehnten drastisch geändert. **Abb. 3** zeigt den heutigen Stand [10] und diejenigen Isotope, die sich bisher mithilfe der optischen Spektroskopie untersuchen ließen: angefangen vom Wasserstoff mit $Z=1$, dessen Ladungsradius wir heute sehr genau durch laserspektroskopische Messungen am myonischen Wasserstoff kennen, bis hin zu Nobelium mit $Z=102$, dem schwersten Element, bei dem Ladungsradien mithilfe der Laserspektroskopie zu untersuchen waren.

Weltweit sind derzeit zehn Beschleuniger in Betrieb, an denen laserspektroskopisch die Kerngrundzustands-

eigenschaften instabiler Kerne untersucht werden (**Abb. 4**). Anders als früher arbeiten heute zum Teil große internationale Kollaborationen an diesen Projekten. Weitere Beschleuniger sind in der Planung, im Bau, oder es werden bestehende Anlagen verbessert bzw. massiv erweitert. Bis zur Bestimmung der Kerngrundzustandseigenschaften aller bekannten Kerne ist aber ein sehr langer Weg zurückzulegen. Ob das in den kommenden 50 Jahren gelingt?

Literatur

Die Beiträge zu den Konferenzen „Electromagnetic Isotope Separators and Techniques Related to their Applications EMIS“ werden in der Zeitschrift Nucl. Instr. Meth. veröffentlicht und geben einen Überblick über die Erzeugung von Radioisotopen und deren Untersuchung.

- [1] C. Ekström, Adv. Quant. Chem. **30**, 361 (1998)
- [2] W. J. Tomlinson und H. H. Stroke, Nucl. Phys. **60**, 614 (1964)
- [3] H. L. Ravn et al., Nucl. Instr. Methods **139**, 281 (1976)
- [4] J. Bonn et al., Phys. Lett. **38 B**, 308 (1972)
- [5] T. W. Hänsch, Appl. Opt. **11**, 895 (1972)
- [6] T. Kühl et al., Phys. Rev. Lett. **39**, 180 (1977)
- [7] E. W. Otten, Plenum Publ. Corp. **8**, 517 (1989)
- [8] V. Fedoseev et al., J. Phys. G: Nucl. Part. Phys. **44**, 084006 (2017)
- [9] B. A. Marsh et al., Nature Phys. **14**, 1163 (2018)
- [10] AG Nörtershäuser, TU Darmstadt, bit.ly/2ZtWfYy und Nuklidkarte unter bit.ly/3eqcsTW

Der Autor



H.-Jürgen Kluge studierte in Bonn und Heidelberg. Nach der Promotion bei Ernst W. Otten ging er 1970 zum CERN und 1972 an die Universität Mainz, wo er sich 1975 habilitierte. Nach mehreren Forschungsaufenthalten am CERN und Ernennung zum Professor an der Universität

Mainz folgte er 1994 einem Ruf auf eine Professur für Experimentalphysik an die Universität Heidelberg und als Leitender Wissenschaftler an die Gesellschaft für Schwerionenforschung (GSI) in Darmstadt. Seit 2007 ist er im Ruhestand und erfreut sich unter anderem an fünf Enkelkindern.

Prof. Dr. H.-Jürgen Kluge, GSI Helmholtzzentrum für Schwerionenforschung GmbH, Planckstr. 1, 64291 Darmstadt