

GUSTAV-HERTZ-PREIS

Auf dem Weg zur Kernuhr

Die Eigenschaften des isomeren Kernzustands von ^{229}Th lassen sich immer besser bestimmen.

Benedict Seiferle

Die fortschreitende Entwicklung optischer Atomuhren ermöglicht immer genauere Uhren. Eine Alternative stellt eine Kernuhr dar, basierend auf dem Isotop ^{229}Th und dessen metastabilem, erstem angeregten Kernzustand $^{229\text{m}}\text{Th}$.

In den letzten Jahren ist es gelungen, viele neue Erkenntnisse über den energetisch niedrigstliegenden aller bisher bekannten Kernzustände zu gewinnen [1]. Mittlerweile arbeiten zahlreiche Gruppen weltweit an der weiteren Erforschung des Isomers $^{229\text{m}}\text{Th}$ mit dem Ziel, eine optische Uhr basierend auf einem nuklearen Übergang zu realisie-

ren. Das „m“ steht hier für metastabil und bezeichnet einen langlebigen Kernzustand mit einer Lebensdauer größer als Nanosekunden. Während die Energiedifferenzen zwischen angeregten Zuständen in Atomkernen typischerweise im Bereich von mehreren keV bis einigen MeV liegen, nehmen das Isotop ^{229}Th und sein erster angeregter nuklearer Zustand eine Sonderstellung ein: Die Anregungsenergie des Kernisomers beträgt nach aktuellem Kenntnisstand lediglich $(8,19 \pm 0,12) \text{ eV}$ – gemittelt aus [2, 3] – und liegt damit in einem Energiebereich wie atomare Hüllenübergänge. Das ermöglicht es, den Kernzustand mit einem Laser anzuregen.

Den nuklearen Übergang als Basis für eine optische Uhr zu nutzen, geht auf einen fast 20 Jahre alten Vorschlag zurück [4]. Durch diesen rückte das Kernisomer, dessen Existenz bereits seit Mitte der 1970er-Jahre bekannt war, stärker in den Fokus der Forschung. In optischen Uhren treibt ein Laser den Übergang zwischen zwei Zuständen. Dazu muss die Frequenz des Laserlichts, also seine Energie, mit der Übergangsenergie in Resonanz sein. Mithilfe eines Frequenzkamms lässt sich die Frequenz des Laserlichts exakt bestimmen, was eine genaue Zeitmessung erlaubt. Im Gegensatz zu optischen Atomuhren, die einen Übergang in der Elektronenhülle des Atoms nutzen, greift eine Kernuhr auf angeregte Zustände im Atomkern zurück.

Als hochempfindlicher Sensor eignet sich eine Kernuhr für verschiedene Anwendungen. Da andere Wechselwirkungen als in der Atomhülle den Übergang im Atomkern und seine Eigenschaften bestimmen, reagiert dieser Sensor nicht wie herkömmliche optische Atomuhren auf äußere Einflüsse. Das lässt sich bei der Suche nach Physik jenseits des Standardmodells nutzen. Beispielsweise sollte eine Kernuhr um Größenordnungen sensitiver auf zeitliche Änderungen der Feinstrukturkonstante reagieren [5] oder kann bei der Suche nach Komponenten der Dunklen Materie helfen [6].

Innere Konversion untersuchen

Um für die Uhr den Kern mit einem Laser anzuregen, muss die Anregungsenergie des Kernzustands hinreichend genau bekannt sein. In den letzten fünf Jahren hat sich die Datenerhebung für $^{229\text{m}}\text{Th}$ deutlich verbessert: Die Energie ist genauer bestimmt, und auch die Messung der Lebensdauer – ein weiterer wichtiger Parameter – ist vorangekommen. Letztere ist im Fall des Isomers sehr aufwändig. Typischerweise stehen angeregten Kernzuständen mehrere Zerfallskanäle zur Verfügung. Der prominenteste ist der Gammazerfall, bei dem ein Photon die freiwerdende Energie wegstößt. Nicht minder wichtig ist der Zerfall über innere Konversion. Dabei nimmt ein Hüllenelektron die Zerfallsenergie

auf und kann dadurch ins Vakuum emittieren: Die Atomhülle bleibt danach ionisiert zurück; das freie Elektron behält die Differenz zwischen Bindungsenergie und Zerfallsenergie als kinetische Energie.

Innere Konversion tritt wegen des Energieerhaltungssatzes nur dann auf, wenn die Zerfallsenergie größer ist als die Bindungsenergie des emittierten Elektrons. Es handelt sich dabei um einen eigenständigen Zerfallskanal – auch wenn die Energiebilanz ähnlich ausfällt wie bei einem Gammazerfall mit anschließender Ionisation. Dies zeigt sich unter anderem in den teilweise sehr unterschiedlichen Zerfallswahrscheinlichkeiten der beiden Kanäle. Das hat zur Folge, dass sich die Lebensdauer angeregter Kernzustände sprunghaft ändern kann, wenn ein zusätzlicher Zerfallskanal erlaubt ist.

Im Fall von $^{229\text{m}}\text{Th}$ soll die Lebensdauer ohne innere Konversion etwa 10^3 bis 10^4 Sekunden betragen; innere Konversion verringert sie um neun Größenordnungen und verschiebt sie auf einen Wert von wenigen Mikrosekunden. Für $^{229\text{m}}\text{Th}$ lässt sich innere Konversion leicht unterdrücken, da der nukleare Zerfall lediglich etwa 8 eV Energie zur Verfügung stellt. Ein einfach ionisiertes Atom $^{229\text{m}}\text{Th}^{1+}$ besitzt bereits ein Ionisationspotential von etwa 12 eV, was die innere Konversion verhindert. Diese Eigenschaft kann helfen, den spärlich auftretenden Zerfall mit dem nötigen Signal-zu-Untergrund-Verhältnis zu messen: Die Neutralisation von $^{229\text{m}}\text{Th}^{1+}$ -Ionen schaltet schlagartig die innere Konversion ein.

Thorium aus Alphazerfall

Auf diesem schaltbaren Auftreten der inneren Konversion basieren die Experimente unserer Gruppe an der LMU München. Zum Zeitpunkt der ersten Messungen war es noch nicht gelungen, das Isomer durch gezielte Anregung zu erzeugen [7]. Deshalb diente der Alphazerfall von ^{233}U dazu, den isomeren Zustand von ^{229}Th auf natürliche Weise zu bevölkern, allerdings nur mit einem Verzweungsverhältnis von zwei Prozent. Beim Alphazerfall er-

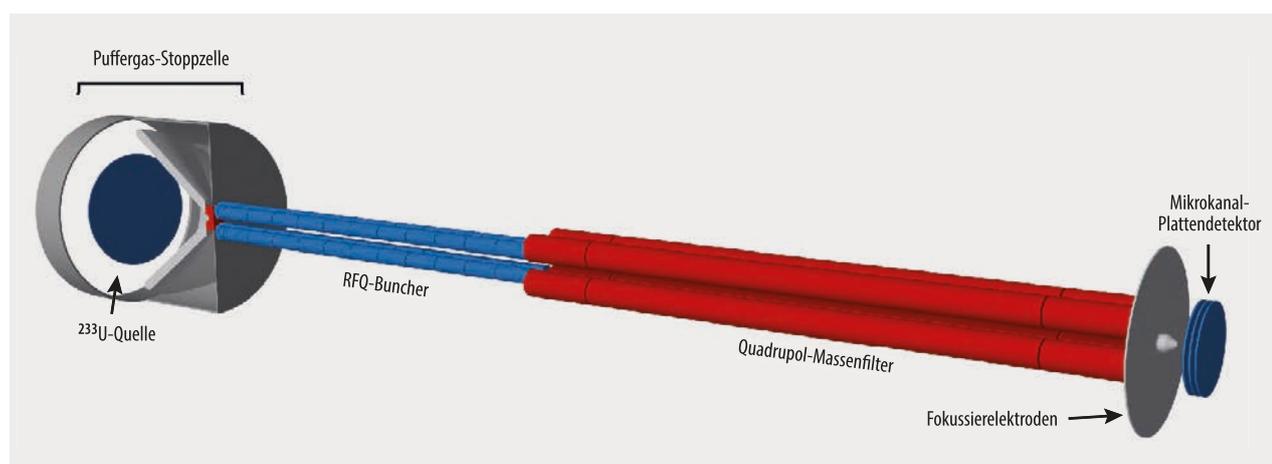


Abb. 1 Um einen isotopenreinen ^{229}Th -Ionenstrahl zu erzeugen, befindet sich eine ^{233}U -Quelle in einer Puffergas-Stoppzelle. Das Puffergas bremst die hochenergetischen $^{229\text{(m)}}\text{Th}$ -Ionen aus dem Alphazerfall von ^{233}U ab; elektrische Gleichstrom- und Wechselfelder formen aus den Ionen einen Teilchenstrahl. Ein Radiofrequenz-Quadrupol oder RFQ-Buncher zerlegt den Strahl in Ionenpakete, die ein Quadrupol-Massenfilter bereinigt. Fokussierelektroden leiten die Pakete auf einen Mikrokanal-Plattendetektor, der diese zeitaufgelöst nachweist.

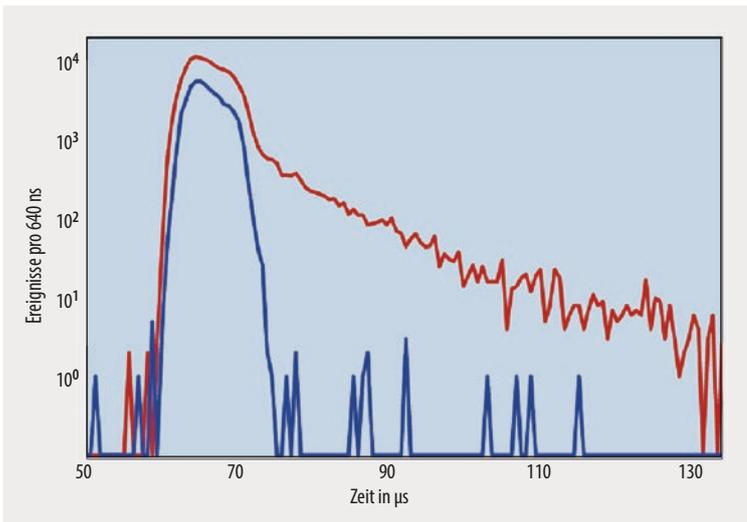


Abb. 2 Dreifach geladene ^{230}Th -Ionen (blau) brauchen nach dem Startsignal zwischen 60 und 70 μs , um den Detektor zu erreichen. Der Zerfall des Isomers von ^{229}Th zeigt sich in der langsam abfallenden rechten Flanke des Peaks (rot); aus deren Verlauf lässt sich die Lebensdauer bestimmen.

fahren die $^{229(m)}\text{Th}$ -Ionen einen Rückstoß und besitzen eine kinetische Energie von ungefähr 84 keV. Um sie abzubremesen, kam eine Puffergas-Stoppzelle zum Einsatz (**Abb. 1**), die ursprünglich dazu diente, hochenergetische Ionen aus Kernreaktionen in Helium zu stoppen, zu kühlen und im Anschluss spektroskopisch zu untersuchen [8].

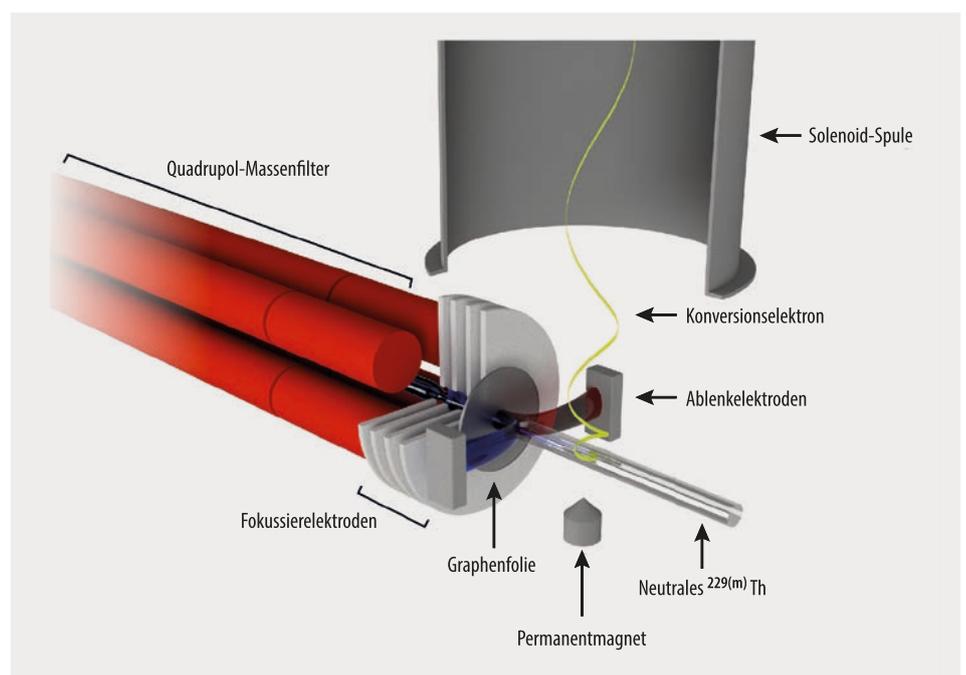
Die ^{233}U -Alphaquelle befindet sich in der Puffergas-Stoppzelle; die Tochterkerne $^{229(m)}\text{Th}$ können wegen des Rückstoßes das Quellenmaterial als Ion verlassen. Bei Kollisionen mit dem Puffergas verlieren die Ionen kinetische Energie und kühlen auf Raumtemperatur ab. Nun lassen sie sich mit elektrischen Feldern zu einem Ionenstrahl formen. Dadurch wird $^{229(m)}\text{Th}$ räumlich von der ^{233}U -Quelle getrennt, deren Radioaktivität die Messung stören würde.

Außerdem erlaubt es ein Quadrupol-Massenfilter, andere Zerfallstöchter aus dem Ionenstrahl herauszufiltern, sodass ein isotopenreiner $^{229(m)}\text{Th}$ -Ionenstrahl mit verschiedenen Ladungszuständen vorliegt. Mit diesem Aufbau gelang es erstmals, den Zerfall des Isomers direkt nachzuweisen [9] und weitere fundamentale Eigenschaften in Zusammenarbeit mit einer Gruppe der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt zu messen [10]. Dazu gehören die Kernmomente des Isomers, die es ermöglichen, die Sensitivität einer Kernuhr auf externe Einflüsse genauer vorherzusagen.

Neutralisation als Startsignal

Um das Signal-zu-Untergrund-Verhältnis zu verbessern und die Lebensdauer des Isomers beim Zerfall über innere Konversion zu untersuchen, war es nötig, zunächst zeitlich gut definierte Ionenpakete, sogenannte Bunches, in einem segmentierten Radiofrequenz-Quadrupol zu erzeugen. Diese Ionenpulse treffen dann auf einen Mikrokanal-Plattendetektor. Beim Kontakt mit der Detektoroberfläche neutralisieren die Ionen, sodass der Zerfall durch innere Konversion möglich wird. Da der Zeitpunkt der Neutralisation mit dem Auftreffen auf den Detektor genau bekannt ist, lässt sich die zeitliche Dynamik des anschließenden Zerfalls untersuchen (**Abb. 2**). Aus dem Vergleich des Signals nach dem Auftreffen dreifach geladener $^{229(m)}\text{Th}$ - und ^{230}Th -Ionen – ein Isotop ohne niederenergetischen isomeren Zustand – lassen sich die Zerfallskurve extrahieren und die Lebensdauer mithilfe einer Ausgleichskurve auf einen Wert von etwa 10 μs bestimmen [11]. Nachfolgende Experimente dienten dazu, den Einfluss der Detektoroberfläche zu untersuchen. Bei der Neutralisation auf Targets aus Platin, Kupfer und anderen Materialien variierte die Lebensdauer um einen Faktor 2 [12]. Da eine quantitative Analyse der Oberflächen im bisherigen Aufbau nicht möglich war, wird dieser aktuell entsprechend erweitert.

Abb. 3 Die Detailansicht des Versuchsaufbaus zeigt eine Graphenfolie, auf die der Ionenstrahl fokussiert wird. Beim Durchfliegen der Folie werden die meisten ^{229}Th -Ionen neutralisiert, die anschließend im freien Flug über innere Konversion in den Grundzustand zerfallen. Ablenkelektroden saugen verbleibende geladene oder sekundäre Teilchen ab. Ein Permanentmagnet und eine Solenoid-Spule erzeugen ein Magnetfeld, das es erlaubt, die Konversionselektronen aus dem isomeren Zerfall mit hoher Effizienz zu sammeln und deren kinetische Energie im Gegenfeld innerhalb der Solenoid-Spule zu bestimmen.



Während für das Auftreten von innerer Konversion die Bindungsenergie der verfügbaren Elektronen eine Rolle spielt, hängt die Zerfallswahrscheinlichkeit selbst von anderen Einflüssen ab. Die innere Konversion läuft besonders effizient ab, wenn der lokale Überlapp zwischen den Wellenfunktionen des Kerns und der Elektronen groß ist. Für höhere Kernanregungsenergien trifft dies hauptsächlich auf die *s*-Elektronen der inneren Schalen zu. Aufgrund der geringen Energie von $^{229\text{m}}\text{Th}$ ist nur die Emission von Valenzelektronen möglich. Daher sollten die chemischen Eigenschaften der unmittelbaren Umgebung die Lebensdauer besonders stark beeinflussen.

Bis heute ist die Anregungsenergie von $^{229\text{m}}\text{Th}$ noch nicht genau genug bekannt, um den Kern direkt mit einem Laser anzuregen. Die letzte indirekte Bestimmung aus Gammapektren liegt zwölf Jahre zurück und lieferte einen Wert von $(7,6 \pm 0,5)$ eV [13]. Konsequenterweise war das Ziel der letzten Jahre, die Energie mittels Spektroskopie der Konversionselektronen direkt und genauer zu messen. Dazu war es nötig, den oben beschriebenen Aufbau um eine Anordnung zur Neutralisation der $^{229\text{(m)}}\text{Th}$ -Ionen und ein Elektronenspektrometer zu erweitern (**Abb. 3**). Anstatt die Ionen direkt auf dem Detektor zu sammeln, fliegen sie zunächst durch eine dünne Graphenfolie. Für langsame Ionen, deren Geschwindigkeiten vergleichbar mit denjenigen der im Festkörper gebundenen Elektronen sind, tritt in der Folie ein Ladungsaustausch auf, der bis hin zur vollständigen Neutralisation der Ionen führen kann. Das eliminiert die erwähnten Einflüsse der Detektoroberfläche – und der Konversionszerfall kann im freien Atom stattfinden.

Die generierten $^{229\text{m}}\text{Th}$ -Atome bewegen sich anschließend im freien Flug und zerfallen auf ihrem Weg durch die Sammelregion eines Elektronenspektrometers. Dieses basiert auf einer speziellen Anordnung magnetischer Felder, die eine sogenannte magnetische Flasche bilden. Ein Permanentmagnet und eine Solenoid-Spule erzeugen die Felder, die das effiziente und adiabatische Sammeln von Elektronen erlauben. Die Energie der Elektronen folgt aus der Spannung eines angelegten Gegenfeldes.

Die Neutralisation erschwert die Interpretation der gemessenen Spektren, denn die Atome befinden sich nicht zwingend im elektronischen Grundzustand, sondern möglicherweise in angeregten Zuständen, sodass viele verschiedene Übergangslinien auftreten können. Die Theorie-Gruppen des Max-Planck-Instituts für Kernphysik in Heidelberg und von der TU Wien unterstützten bei der Interpretation der Daten und ermöglichten die Energiebestimmung. Dazu galt es, die für unterschiedliche Zustandskonfigurationen theoretisch vorhergesagten Spektren übereinanderzulegen und mit der Messung zu vergleichen. Daraus ergab sich eine Anregungsenergie von $(8,28 \pm 0,17)$ eV, was einer Wellenlänge von $(149,7 \pm 3,1)$ nm entspricht [2].

Die Unsicherheit beruht maßgeblich darauf, dass die Verteilung der atomaren Zustände, die $^{229\text{(m)}}\text{Th}$ nach der Neutralisation besetzt, nicht besser bekannt ist. Im Vergleich zu der indirekten Bestimmung ist die Unsicherheit des Energiewerts um einen Faktor 3 reduziert. Mittlerweile gibt es weitere Messungen, aus denen sich die Energie des Isomers mit vergleichbarer Genauigkeit bestimmen ließ [3].

Die Ergebnisse stimmen innerhalb der Messfehler überein; der Mittelwert beträgt $(8,19 \pm 0,12)$ eV.

Was zu tun bleibt

Eine wichtige Eigenschaft des Isomers $^{229\text{m}}\text{Th}$ ist bisher noch nicht experimentell bestimmt: die Lebensdauer des Isomers ohne innere Konversion. Aktuell laufen Arbeiten zur Lebensdauer des Isomers im dreifach positiv geladenen Zustand. Hierfür kühlen Sr^+ -Ionen sympathetisch die $^{229\text{(m)}}\text{Th}^{3+}$ -Ionen, die über mehrere tausend Sekunden in einer kryogenen Paul-Falle verbleiben. Mittels Hyperfeinstrukturspektroskopie lässt sich der Isomer-Anteil zeitaufgelöst beobachten und daraus die Lebensdauer ermitteln.

Als nächsten wesentlichen Schritt auf dem Weg zur Kernuhr gilt es, den isomeren Zustand mit einem Laser aus dem Grundzustand anzuregen. Dieser Schritt erlaubt es, die Energie des Isomers um mehrere Größenordnungen genauer zu messen – eine Grundvoraussetzung für den Betrieb der Kernuhr. Bis zu deren Realisierung verbleibt noch einiges an ^{229}Th zu erforschen.

Literatur

- [1] P. G. Thirolf, L. von der Wense und B. Seiferle, Ein Isomer als Uhrwerk, *Physik Journal*, Juni 2020, S. 42
- [2] B. Seiferle et al., *Nature* **573**, 243 (2019)
- [3] T. Sikorsky et al., *Phys. Rev. Lett.* **125**, 142503 (2020)
- [4] E. Peik und C. Tamm, *Europhys. Lett.* **61**, 181 (2003)
- [5] V. V. Flambaum, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 092502 (2006)
- [6] E. Peik et al., *Quantum Sci. Technol.*, akzeptiert (2021)
- [7] T. Masuda et al., *Nature* **573**, 238 (2019)
- [8] J. B. Neumayr et al., *Rev. of Sci. Instr.* **77**, 065109 (2006)
- [9] L. van der Wense et al., *Nature* **533**, 47 (2016)
- [10] J. Thielking et al., *Nature* **556**, 321 (2018)
- [11] B. Seiferle et al., *Phys. Rev. Lett.* **118**, 042501 (2017)
- [12] B. Seiferle, Characterization of the ^{229}Th nuclear clock transition, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München (2019)
- [13] B. R. Beck et al., *Phys. Rev. Lett.* **98**, 142501 (2007)

Der Autor



Benedict Seiferle studierte Physik an der LMU München, wo er 2019 auch promovierte. Seine bisherige Forschungsarbeit konzentrierte sich auf die Untersuchung des Kernisomers von ^{229}Th . Dafür erhielt er 2020 den Dissertationspreis der Münchner Universitätsgesellschaft.

Dr. Benedict Seiferle, Fakultät für Physik, LMU München, Am Coulombwall 1, 85748 Garching