

■ Von der Atomuhr zur Kernuhr

Kürzlich sind die ersten direkten Messungen von Eigenschaften des Isomers von ^{229m}Th gelungen.

Dr. Simon Stellmer,
TU Wien, Stadion-
allee 2, 1020 Wien,
Österreich

Das Bestreben, den Lauf der Zeit immer genauer zu messen, scheint tief in der Menschheit verwurzelt zu sein. Hierfür eignen sich Instrumente, welche die Schwingungen eines zuverlässigen Oszillators zählen. Anfangs war das die Bewegung der Himmelskörper, später kamen Pendel-, Feder- und Quarzuhren dazu. Mikrowellenuhren führten die Zeitmessung auf einen universellen Standard zurück, nämlich die Hyperfeinaufspaltung atomarer Energieniveaus. Heute ist die Sekunde über die Anzahl von Schwingungen eines Mikrowellenfeldes festgelegt, das einen Hyperfeinübergang in Cäsium-Atomen treiben kann. Diese Atomuhren erreichen eine Genauigkeit von etwa 10^{-16} und kommen z. B. auf GPS-Satelliten zum Einsatz.

Optische Atomuhren basieren auf der Frequenz eines schmalbandigen Übergangs zwischen elektronischen Zuständen eines Valenzelektrons. Hierfür kommen einzelne Ionen oder Ensembles von neutralen Atomen infrage. Diese werden mit Lasern in den quantenmechanischen Grundzustand gebracht und spektroskopiert – mit einer Genauigkeit von rund 10^{-18} .

Die genaue Frequenz jeder Uhr hängt leicht von äußeren Einflüssen ab, bei optischen Uhren vor allem von magnetischen und elektrischen Feldern, Schwarzkörperstrahlung der Umgebung und von den einstrahlenden Lichtfeldern. Diese Fehler begrenzen die Genauigkeit der Uhr. Um die äußeren Störungen zu minimieren, ist ein möglichst kleiner Oszillator mit einer hohen Taktfrequenz nötig. Hierfür eignen sich Übergänge zwischen zwei Konfigurationen eines Atomkerns.

Ein passender Kernzustand sollte eine Energie von einigen eV und eine Lebensdauer von Sekunden bis Minuten besitzen. Unter den fast 200 000 katalogisierten Kernzuständen der 3000 bekannten Isotope erfüllt nur der metastabile Zustand in ^{229m}Th diese Anforderungen (Abb. 1). Ein angeregter Kernzu-

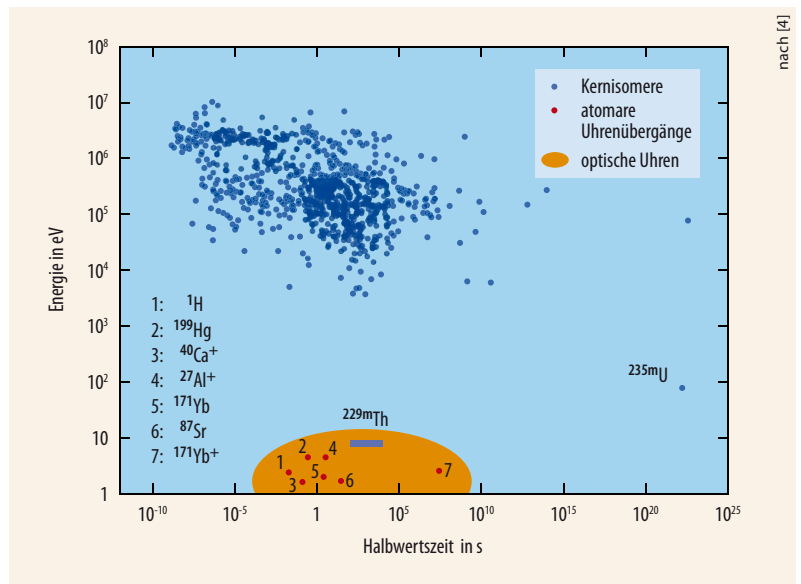


Abb. 1 Rund tausend der 200 000 bekannten angeregten Kernzustände besitzen eine Halbwertszeit von mehr als 10^{-9} Sekunden. Es ist ein glücklicher Zu-

stand mit einer Lebensdauer von mehr als einer Nanosekunde wird als Isomer bezeichnet. Das ^{229m}Th -Isomer lässt sich über einen magnetischen Dipol-Übergang aus dem ^{229}Th -Grundzustand anregen. Vor 15 Jahren haben Ekkehard Peik und Christian Tamm eine Thorium-Kernuhr vorgeschlagen, welche die Genauigkeit optischer Atomuhren um Größenordnungen übertreffen könnte [1]. Dieser Kernübergang eignet sich außerdem zur Messung der zeitlichen Variation von Fundamentalkonstanten.

Das Isotop ^{229}Th hat eine Halbwertszeit von 7932 Jahren und entsteht durch Alphaerfall von $^{233}\text{Uran}$. Dieses Isotop wurde während des Kalten Krieges in großen Mengen künstlich erzeugt und zerfällt nun mit einer Halbwertszeit von 160 000 Jahren. Dadurch stehen weltweit einige Milligramm ^{229}Th für die Forschung zur Verfügung.

In den letzten 40 Jahren ist das ^{229m}Th -Isomer vorwiegend durch hochaufgelöste Gammaskopie des Alphaerfalls von ^{233}U untersucht worden [2]. Die Auflösung reichte bisher nicht aus, um Grundzustand und isomeren Zustand zu trennen. Der geschickte

fall, dass es unter diesen Isomeren (blaue Kreise) einen Zustand gibt, der sich für eine optische Uhr eignet (gelb unterlegte Region): das Isomer ^{229m}Th .

Vergleich mehrerer Gammaübergänge ermöglichte es jedoch, die Energie des Isomers indirekt zu bestimmen. Die letzte Energiemessung vor zehn Jahren ergab einen Wert von 7,8(5) eV, was einer Wellenlänge von 160 nm entspricht [3]. Die Halbwertszeit des Isomers ist gänzlich unbekannt, theoretische Abschätzungen reichen von wenigen Minuten bis zu Stunden.

Der erste direkte Nachweis der Existenz des Isomers gelang erst 2015 in der Gruppe um Peter G. Thirolf an der LMU München [4]. Im Gegensatz zu vielen vorherigen Experimenten suchte diese Gruppe nicht nach dem Gammaerfall des Isomers, sondern nach Elektronen aus innerer Konversion (Internal Conversion, IC). Dabei übernimmt ein Hüllenelektron die gesamte Anregungsenergie des Kerns und verlässt mit der überschüssigen Energie das Atom, welches dadurch ionisiert wird.

Ein solcher Prozess kann nur stattfinden, wenn elektronische Zustände mit geringerer Energie als der des angeregten Kernzustandes besetzt sind. Dies ist im neutralen ^{229m}Th -Isomer der Fall. Die Abregung über den IC-Kanal erfolgt

etwa neun Größenordnungen schneller als über den Gammazerfall, sodass sich die Halbwertszeit drastisch reduziert: von Minuten oder Stunden für das „nackte“ Isomer ohne Elektronenhülle auf einige Mikrosekunden. Mit neutralem ^{229}Th lässt sich also keine Kernuhr bauen! Aber schon für das einfach positiv geladene $^{229\text{m}}\text{Th}^+$ -Isomer und in allen höheren Ladungszuständen ist der IC-Zerfallskanal unterdrückt, und die Halbwertszeit des Isomers ist lang genug für eine optische Uhr.

Die Münchner Forscher nutzen den Alphazerfall von ^{233}U als Quelle von $^{229\text{m}}\text{Th}$, wobei nur in zwei Prozent der Tochterkerne das Isomer $^{229\text{m}}\text{Th}$ bevölkert ist. Diese Kerne erhalten beim Alphazerfall einen Rückstoß von etwa 80 keV, wodurch sie die Uranschicht verlassen können. In einer mit Helium gefüllten Puffergaszelle werden sie abgebremst und gefangen; nach Ladungsaustausch mit Helium sind sie ein- bis dreifach positiv geladen.

Über elektrische Felder werden die Ionen aus der Puffergaszelle geführt, in einem Radiofrequenz-Quadrupol zu einem Strahl geformt und in einem Quadrupol-Massenspektrometer nach Masse und Ladungszustand selektiert (Abb. 2a). So gelingt es, die spätere Detektion räumlich und zeitlich von der Radioaktivität der Genese zu separieren, die Aktivität der Tochterkerne von der Detektionsregion zu trennen, die Energie des Rückstoßes abzuführen und einen isotopenreinen Strahl zu erzeugen. Alle diese Punkte sind für den Erfolg des Experimentes notwendig.

Zur Detektion werden die Ionen auf einer Vielkanalplatte abgesetzt, wobei ihre kinetische Energie von einigen eV zu gering ist, um ein Signal zu erzeugen (Abb. 2b). Trifft ein $^{229\text{m}}\text{Th}$ -Ion auf den Detektor, wird es auf der metallischen Oberfläche durch Ladungsübertragung neutralisiert. Dies öffnet den IC-Zerfallskanal: Das Isomer überträgt seine Energie auf ein Valenzelektron, welches das Atom verlässt und eine Elektronenkaskade in Gang setzt, die auf der Anode ein deutliches Signal erzeugt. Bei einem Scan über

alle Massenzahlen wurde ein solches Signal nur für ^{229}Th - und ^{235}U -Ionen gefunden. Durch sorgfältige Referenzmessungen war es möglich auszuschließen, dass elektronische Anregungen, chemische Reaktionen oder kurzlebige Tochterkerne das Signal hervorrufen.

Zudem gelang eine erste Abschätzung der Halbwertszeit des Isomers, indem $^{229\text{m}}\text{Th}^{2+}$ -Ionen vor der Detektion im Radiofrequenz-Quadrupol gespeichert wurden. Stöße mit dem Hintergrundgas limitieren die Speicherzeit auf etwa eine Minute – dieser Wert ist eine untere Grenze für die Halbwertszeit im geladenen Zustand. Aus der inneren Konversion im neutralen Zustand leitet sich die erste Ionisationsschwelle von 6,3 eV als untere Grenze für die Isomerenergie ab. Analog folgt aus der Abwesenheit von innerer Konversion bei Ionen, die im Ladungszustand $2+$ gespeichert sind, dass die Energie unterhalb der dritten Ionisationsschwelle bei 18,3 eV liegen muss.

Messung der Halbwertszeit

In einer Weiterentwicklung ihres Experimentes ist es den Münchner Forschern nun gelungen, die Halbwertszeit des Isomers unter innerer Konversion zu messen [5]. Hierzu sammelten sie die Ionen im Radiofrequenz-Quadrupol und schickten sie in Paketen von hundert $^{229\text{m}}\text{Th}$ -Ionen auf den Detektor. Den zeitlichen Verlauf der Signale summierten sie über einige 10 000 Ionenpakete auf. Durch den

ionischen Einschlag entsteht ein charakteristisches, steil abfallendes Signal, dessen Amplitude von der Beschleunigungsspannung abhängt. Bei $^{229\text{m}}\text{Th}^{2+}$ und $^{229\text{m}}\text{Th}^{3+}$ folgt ein exponentieller Abfall, der auf die innere Konversion des Isomers nach der Neutralisierung auf dem Detektor zurückgeht. Die Halbwertszeit beträgt $7(1) \mu\text{s}$ und passt zur theoretischen Erwartung.

Der nächste Schritt auf dem Weg zur Kernuhr ist eine genauere Messung der Isomerenergie, um ein Suchintervall für die Laserspektroskopie vorgeben zu können. Hierzu gilt es, die Energie der IC-Elektronen präzise zu messen. Weltweit werden derzeit noch weitere Ansätze zur Messung der Isomerenergie verfolgt, etwa die Auflösung des Grundzustand-Dubletts im Gammaskpektrum mittels eines Mikrokalorimeters.

Fasziniert von der Vision, Atomkerne mit kohärentem Laserlicht zu spektroskopieren, haben sich vor drei Jahren acht europäische Forschergruppen zum nuClock-Konsortium zusammengeschlossen.¹⁾ Der Weg zur Kernuhr ist noch weit, aber die ersten Schritte sind getan!

Simon Stellmer

- [1] E. Peik und Chr. Tamm, *Europhys. Lett.* **61**, 181 (2003)
- [2] L. A. Kroger und C. W. Reich, *Nucl. Phys.* **A259**, 29 (1976)
- [3] B. R. Beck et al., *Phys. Rev. Lett.* **98**, 142501 (2007)
- [4] L. von der Wense et al., *Nature* **533**, 47 (2016)
- [5] B. Seiferle et al., *Phys. Rev. Lett.* **118**, 042501 (2017)

¹⁾ Dieses Projekt wird von der EU gefördert, www.nuclock.eu

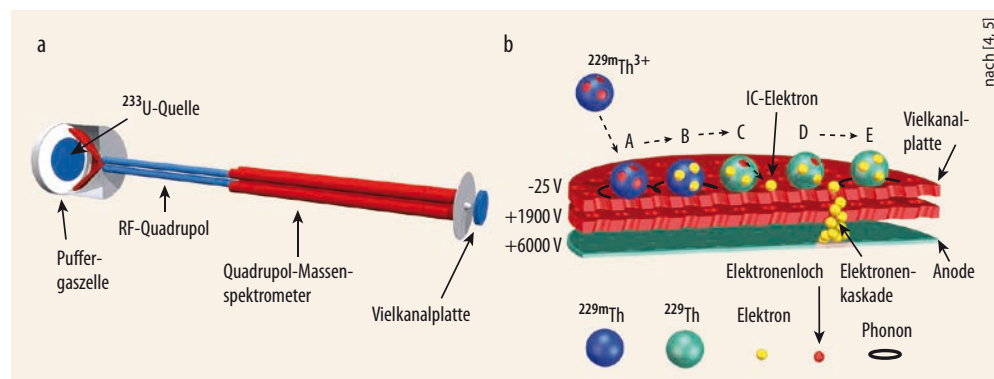


Abb. 2 Aus der Aktivität einer ^{233}U -Quelle wird ein Ionenstrahl geformt, der unter anderem die isomeren Zustände $^{229\text{m}}\text{Th}^{2+}$ und $^{229\text{m}}\text{Th}^{3+}$ enthält (a). Auf einer Vielkanalplatte wird die innere Konversion des Isomers detektiert (b): Die Energie des ionischen Einschlags wird in Form von Phononen absorbiert

(A). Auf den Ladungstransfer zur Neutralisierung des Ions (B) folgt die innere Konversion des Isomers mit Abgabe eines Elektrons (C), das eine Elektronenkaskade in Gang setzt (D), die auf der Anode detektiert wird. Durch Ladungsaustausch wird das Ion wieder neutralisiert (E).