

## Актуальные задачи текущего этапа по проекту создания ядерно-оптического стандарта частоты

© Л. Ф. Витушкин<sup>1</sup>, Ф. Ф. Карпешин<sup>1</sup>, М. Б. Тржасковская<sup>2</sup>

<sup>1</sup>ФГУП «ВНИИМ им. Д. И. Менделеева», г. Санкт-Петербург, Россия

<sup>2</sup>ФГУП «ПИАФ» НИЦ «Курчатовский институт»,  
г. Санкт-Петербург, Россия

Нет ничего практичнее хорошей теории. Путь проб и ошибок к созданию ядерно-оптических часов проанализирован с единой точки зрения теории внутренней конверсии. На примере ядра  $^{229}\text{Th}$ , который является наиболее вероятным кандидатом на роль будущего стандарта частоты, показано, что взаимодействие ядра с внешним полем лазера нельзя рассматривать в отрыве от свойств электронной оболочки. Как не может наблюдаться девозбуждение ядер изомера в обход внутренней конверсии, так же неоптимально и прямое возбуждение ядра лазером с целью контроля его частоты.

В статье производится разбор наиболее распространенных ошибок, возникающих при попытках воздействия на ядро без учета свойств электронной оболочки. Более того, зависимость ядра от электронной оболочки приводит к вариации ширины изомерной линии в будущих ториевых часах в зависимости от внешних условий: давления и температуры.

**Ключевые слова:** стандарт частоты, ядерно-оптический резонанс, ториевый изомер, ядерные часы.

<https://doi.org/10.32876/ApplAstron.49.9-16>

### Введение

В ряде лабораторий мира проводится исследование свойств изомерного уровня  $^{229}\text{Th}$ . Интерес вызван тем, что в этом ядре обнаружен наиболее низкий изомерный уровень при энергии  $7.8 \pm 0.5$  эВ [1]. Он девозбуждается M1-переходом в основное состояние с собственным временем жизни около двух часов, что соответствует радиационной ширине уровня  $\sim 10^{-20}$  эВ. Этот нуклид является наиболее вероятным кандидатом на создание ядерно-оптических часов следующего поколения. Существует специальный европейский проект NUCLOCK ([www.nuclock.eu](http://www.nuclock.eu)), направленный на решение данной задачи. Тем не менее следует обратить внимание на то, что в постановке экспериментов не просматривается системный подход, который должным образом учитывает результаты последних теоретических исследований, что безусловно замедляет прогресс в данной области.

$^{229}\text{Th}$  имеет самую низкую энергию возбуждения среди известных ядер. При такой энергии уровень «запутан» со многими атомными уровнями. Это значит, что простого радиационного перехода мы практически никогда не увидим. Вместо этого будет совокупность процессов: внутренней конверсии (ВК) в нейтральных атомах и электронных мостиков в ионах [2]. Эти два открытия и ознаменовали исследования последних лет.

1) Мюнхенской группой сделано открытие конверсионного распада из изомерного состояния [3], предсказанного еще в работе [4]. Период жизни изомера точно совпал с расчетным — 10 мкс.

2) Группой в **Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB) в Брауншвейге**, под руководством Пайка, были измерены магнитный дипольный и электрический квадрупольный моменты ядра  $^{229}\text{Th}$  в изомерном состоянии [5, 6]. Ранее были известны значения в основном состоянии: магнитный момент  $\mu = 0.360(7)\mu_N$ , где  $\mu_N$  — ядерный магнетон, и внутренний квадрупольный момент  $Q_0 = 8.8(1)$  еб. Моменты в изомерном состоянии оказались равными:  $\mu_m = -0.37(6)\mu_N$  и  $Q_0^m = 8.7(3)$  еб.

Разберем эти два момента подробнее.

## **Роль внутренней конверсии во взаимодействии ядер с электромагнитным полем**

Потенциал ионизации атома в нейтральных атомах — 6.1 эВ, поэтому основным каналом его распада является ВК. Показательно, что в 1997 г. в США исследователи Ирвин и Ким сообщили [7], что якобы наблюдали фотоны от распада изомера. Тогда считалось, что его энергия равна 3.5 эВ и, следовательно, распад по каналу ВК запрещен. Нам пришлось написать опровержение [8]. Мы объяснили, что и в отсутствие ВК распад все равно происходит путем подпороговой конверсии, известной как резонансная конверсия (РК), через электронные мостики [9]. Ирвин же и Ким ориентировались на расчет Ткали и др. [10], которые рассматривали немислимые с точки зрения теории ВК переходы между  $d$ -состояниями. В такой модели действительно можно получить фактор для электронных мостиков  $\sim 1$ . В результате данная работа показала пример модели эксперимента, неудачно спланированного по причине недостаточной теоретической проработки, помноженной на плохо отрецензированную публикацию, поскольку наши работы с Тржасковской [9] на момент эксперимента были уже опубликованы. На основе полученных результатов мы показали, что в действительности наблюдение фотонов от прямого распада изомера в условиях эксперимента [7] было невозможно. С этой целью был выполнен расчет по самосогласованному методу Дирака-Фока с учетом смешивания электронных конфигураций. Он показал, что в случае принятой тогда энергии изомера 3.5 эВ распад через электронные мостики в 1600 раз более вероятен (термин взят из работы Крутова 50-х годов). Это не оставляет никаких шансов на прямой радиационный распад ядра. Впоследствии другие экспериментаторы сошлись в том, что эффект вызван присутствием фона от сторонних альфа-частиц [11,12].

## **История открытия прямого распада изомера**

В 2016 г. появилась сенсационная работа в *Nature* [3]. Впервые после десятилетий безуспешных поисков в Мюнхенском университете имени Людвига и Максимилиана (нем. Ludwig-Maximilians-Universität München, LMU) наблюдался прямой конверсионный распад изомера. Для измерений были использованы изомерные ядра отдачи, полученные при альфа-распаде  $^{233}\text{U}$ . Был измерен

полупериод распада в нейтральных атомах, который оказался равным 7 мкс. Возникает вопрос: какую информацию о свойствах изомера несет этот результат. Возможные ответы были проанализированы в работе [12]. Рассмотрим более детально этот интересный вопрос.

Время жизни с учетом ВК определяется как

$$\Gamma_c(M1) = (1 + \alpha(M1)) \Gamma_\gamma^{(n)}(M1) \quad (1)$$

где  $\alpha(M1) = 1.1 \times 10^9$  [4] — коэффициент внутренней конверсии (КВК). Единицей в (1) можно пренебречь. В зависимости от энергии изомера  $\omega_n$ , КВК и радиационная ядерная ширина ведут себя по-разному:

$$\begin{aligned} \Gamma_\gamma^{(n)}(M1) &\sim \omega_n^3, \\ \alpha(M1) &\sim \omega_n^{-3}. \end{aligned}$$

Поэтому от энергии изомера время жизни не зависит. Путем сравнения с экспериментом можно определить единственную характеристику: фактор запрета по Вайскопфу  $H$ . Поскольку в работе [12] вычисления проводились с типичным значением для ядер в данной области  $H = 300$ , можно данное значение считать установленным в эксперименте [3].

Данный эксперимент оставил и другие вопросы, помимо энергии изомера. Однако он сыграл важную роль в психологическом плане, укрепив уверенность в реальности существования изомера, и стал отправной точкой для следующего важного эксперимента [6], осуществленного объединенными усилиями исследовательских групп РТВ и LMU. В этом эксперименте были определены указанные выше значения моментов ядра в изомерном состоянии. Измерения были основаны на зависимости сверхтонкой структуры от ядерных моментов. В эксперименте [6] изучалась сверхтонкая структура двух электронных уровней:  $63$  и  $20711 \text{ см}^{-1}$  в двукратных ионах  $\text{Th}^{++}$ . Сравнительные измерения проводились на обычных атомах  $^{229}\text{Th}$ . С учетом известных значений ядерных моментов в основном состоянии были определены моменты в изомерном состоянии.

К настоящему времени исследователями LMU проведено дальнейшее усовершенствование аппаратуры. Это позволило разделить каналы конверсионных электронов от ионов остатка и измерить спектр конверсионных электронов. В результате было получено и значение энергии изомера, которое приведено ниже. Оно оказалось в пределах ошибок измерения [1].

## **Зависимость времени жизни ядра от внешних условий как возможное решение «ториевой загадки»**

Следующий яркий момент, на который хотелось бы обратить внимание, состоит в том, что ядра, распадающиеся через РК, оказываются очень уязвимы к воздействиям внешних условий. В самом деле, в случае обычной ВК конверсионный электрон, получив от ядра «пинок», покидает пределы атома и все, а в случае РК конверсионный электрон остается в атоме на возбужденном уровне, где он может быть подвергнут воздействию со стороны среды. Разберем этот вопрос подробнее.

В эксперименте [3] наряду с нейтральными атомами тория, были получены ограничения на времена жизни изомера в одно- и двукратно ионизованных атомах:  $T^+ < 0.01 \text{ с}$ ,  $T^{++} > 2 \text{ мин}$  соответственно. Наиболее интересен случай

однократных ионов. Наш расчет [13] дает для них значение времени жизни  $\sim 1$  с при факторе резонансной конверсии  $R \approx 5900$ . Вопрос: чем можно объяснить расхождение величины на два порядка? В зарубежной литературе это явление уже названо «ториевой загадкой» или аномалией.

Этот факт имеет простое — как и все, в чем есть реальная физика — объяснение. Дело в том, что  $0.01$  с — это время, которое  $^{235}\text{U}$  ионы  $^{229\text{m}}\text{Th}^+$ , только что появившиеся от альфа-распада, проводят в воронке в атмосфере буферного газа при давлении  $40$  мбар. Можно оценить, что при этом давлении линии уширяются  $\sim 10$  раз. Еще в  $10$  раз возможно ускорение распада изомера за счет случайного резонанса ядерного и электронного переходов. Вероятность того, что это объяснение подходит, составляет  $40\%$ . В принципе, предположение об уширении линии в атмосфере буферного газа не обязательно для согласования теории с экспериментом. Однако в отсутствие такого предположения вероятность согласия уменьшается до  $32\%$  — что, впрочем, тоже немало. Будущие исследования должны пролить свет на этот интереснейший вопрос.

## Сравнение с другими расчетами

Для сравнения можно извлечь оценку времени жизни  $T^*$  из работы Порсева и др. [14], в которой показательно выстраивается целая цепь последовательных ошибок. Авторы вычисляли вероятность возбуждения изомера лазером методом двухфотонного поглощения через электронную оболочку в однократных ионах тория. При этом суммарная энергия двух поглощенных электронами фотонов передается ядру, атом же возвращается в основное состояние. Валентная конфигурация электронов в основном состоянии предполагалась  $7s(6d)^2$ . Первый резонансный фотон переводит валентный  $6d$ -электрон на  $7p$ -уровень с энергией  $3.084$  эВ. В этом и состоит первая фатальная ошибка, которая срывается на заключительном этапе. Затем этот же электрон поглощает второй фотон и передает ядру уже суммарную энергию двух фотонов в процессе второго рода, а сам возвращается в основное состояние  $6d$ . Нетрудно видеть, что таким образом исключается самый эффективный для накачки ядра резонансный переход электрона  $8s - 7s$  [15]. Это занижает эффективность всей схемы до трех порядков: вспомним указанную выше работу Кима и др., в которой было высказано предположение, что фактор электронного мостика —  $1$ , тогда как он был  $1500$ . Далее, авторы предполагали, что атом уже находится в состоянии  $7p$ , и вычисляли амплитуду возбуждения изомера после поглощения второго фотона. Ошибочны были и последующие предположения, что из этого расчета можно извлечь время жизни изомера в однократных ионах. Конечно, квантовая электродинамика инвариантна относительно обращения времени. Однако в данном случае речь идет о конкретном механизме и его роли во взаимодействии с другими процессами возбуждения изомера. В инверсном графике все та же ошибка: мостик инициируется последним электронным переходом, которым инициировалось возбуждение изомера, то есть из состояния  $6d$  в возбужденное  $8s$ ,  $7d$  и т. п., а гораздо более важный механизм конверсионного  $7s - 8s$  перехода отсутствует. Это уже приводит к недооценке его вероятности до трех порядков величины. Таким оказывается финал первой фатальной ошибки, отмеченной выше.

Вторая принципиальная ошибка состоит в том, что мостик завершается обычным радиационным девозбуждением атома в то же самое, указанное выше,  $7p$ -состояние с энергией 3.084 эВ вместо полного набора  $p$ -уровней с энергией от нуля до энергии ядерного изомера. Все это приводит к тому, что при энергии изомера 7.8 эВ согласие с экспериментом в 20 раз хуже нашего расчетного.

Корректная схема возбуждения изомера методом двухфотонной накачки рассмотрена в одной из наших работ [15]. Она отличается тем, что электрон отдает ядру не всю энергию двух фотонов, а только ее часть. Таким образом, атом остается в возбужденном состоянии с конфигурацией  $(7s)^26d$ , вместо основного состояния  $7s(6d)^2$ . Это дает возможность реализации резонансных свойств электронного перехода  $8s - 7s$  при возбуждении изомера. При использовании имеющихся коммерческих лазеров она позволяет достигнуть скорости накачки  $f \approx 1 \text{ с}^{-1}$ . Это значит, что время, за которое атомы, помещенные в поле лазера, перейдут в изомерное состояние, равно  $T_r = 1 / f \approx 1 \text{ с}$ .

### Статус современной базы данных об изомерном состоянии $^{229\text{m}}\text{Th}$

Энергия уровня:  $7.6 \pm 1 \text{ эВ}$  [1];  $7.8 \pm 0.5 \text{ эВ}$  [16];  $7.1 (+0.1) (-0.2) \text{ эВ}$  [17];  $8.28 \pm 0.17 \text{ эВ}$  [18].

Полупериод распада в нейтральном атоме: 10 мкс. Фактор запрета по Вайскопфу  $H = 300$  [3].

Полупериод распада в голом ядре:  $1880 \pm 170 \text{ с}$ . Соответственно, фактор запрета по Вайскопфу  $H = 60$  [17].

Магнитный момент в изомерном состоянии:  $\mu_m = -0.37(6)\mu_N$  [6].

Квадрупольный момент в изомерном состоянии:  $Q_0^m = 8.7(3) \text{ еб}$  [6].

### Заключение

Можно без преувеличения сказать, что нет ничего практичнее хорошей теории. К сожалению, в РТВ используется схема, предложенная в работе [3], основанная на двухфотонной оптической накачке изомера по схеме ЯВАП — ядерное возбуждение в атомном переходе, (в англ. аббр. — NEET: Nuclear Excitation by Electronic Transition). Суть в том, что энергия электронного перехода, возбужденного лазером, передается ядру — безызлучательно. Но этот механизм может быть успешным только при резонансе, чего в действительности не бывает. Реально можно передать часть электронной энергии, а избыток должен быть излучен. Это и приводит к необходимости включения в механизм дополнительной радиационной вершины уже после того, как возбуждение ядерного изомера состоялось. Тем самым, ожидаемая вероятность эффекта уменьшается на 4–6 порядков величины. Такая ситуация должна быть осознана и устранена согласно давно известной более эффективной схеме возбуждения по механизму обратной резонансной внутренней конверсии [15, 19]. По этому механизму центральную роль играет резонансный  $7s$ - $8s$  электронный переход. Оболочке передается ровно столько энергии, сколько необходимо для возбуждения ядерного изомерного уровня, в связи с чем отпадает необходимость дополнительной радиационной вершины.

Можно указать и другие примеры недооценки теории, в частности, предсказанное уширение в сотни раз линии изомера при переходе между состояниями сверхтонкой структуры в водородоподобном ионе, с электронным моментом  $J = s = 1/2$  [20]. Между тем, именно такая электронная конфигурация:  $^1S_{1/2}$  рассматривается как наиболее подходящая для лазерного возбуждения ядра в предлагаемой в РТВ схеме ядерных часов [5, 21]. Не учитывает этой причины уширения ядерной линии и механизм выстроенных состояний [22]. Данный эффект сродни рассмотренному выше объяснению «ториевой загадки» как следствия уширения изомерной линии под воздействием внешних условий. В данном случае аналогичное уширение возможно вследствие резонансно-конверсионного взаимодействия с электронной оболочкой. Подчеркнем, что и резонансная конверсия была открыта в работе [23] благодаря сотрудничеству университета Бордо с авторами данного доклада, уточнившими подход к интерпретации явления сохранения времени жизни ядра при выключении канала внутренней конверсии в 45-кратных ионах  $^{125m}\text{Te}$ . В целом, можно заключить следующее:

— мы на пороге решающих открытий, которые должны привести к созданию ядерно-оптических часов;

— развитие ядерно-лазерных технологий приведет к определению энергии изомера; только путем последовательного применения методов внутренней конверсии возможно решить эту задачу — все другие методы приводят к неприемлемо большой ошибке  $\sim 0.1$  эВ;

— время жизни изомера, полученное в мюнхенской группе, дает фактор запрета для перехода в ядерно-оптических часах  $H = 300$ ; впервые получено свидетельство зависимости ширины линии этого перехода от внешних условий.

Теоретический анализ позволяет оптимизировать электронно-ядерную конфигурацию  $^{229}\text{Th}$ , наиболее подходящую для конструирования ядерно-оптических часов. Для решения поставленной задачи необходима координация усилий сообщества исследователей.

## Л и т е р а т у р а

1. Beck B. R. et al. Energy splitting of the ground-state doublet in the nucleus  $^{229}\text{Th}$  // Phys. Rev. Lett. — 2007. — Vol. 98. — P. 142501.

2. Карпешин Ф. Ф., Тржасковская М. Б. Ядерно-оптические стандарты частоты: новое поколение // Труды ИПА РАН. — СПб: ИПА РАН, 2016. — Вып. 36. — С. 15.

3. Wense L., Seiferle B., Laatiaoui M. et al. Direct detection of the  $^{229}\text{Th}$  nuclear clock transition // Nature. — 2016. — Vol. 47. — P. 533.

4. Karpeshin F. F., Trzhaskovskaya M. B. Impact of the electron environment on the lifetime of the  $^{229}\text{Th}^m$  low-lying isomer // Phys. Rev. C. — 2007. — Vol. 76. — P. 054313.

5. Pike E. Optical Nuclear Clock with Th-229 // Invited talk at 676. WE-Heraeus-Seminar on “Novel optical clocks in atoms and nuclei”, July 9–12, Germany, 2018. — Physikzentrum Bad Honnef: 2018.

6. Thielking J., Okhapkin M. V., Głowacki P., Meier D. M., Wense L., Seiferle B., Düllmann C. E., Thirof P. G., Peik E. Laser spectroscopic characterization of the nuclear-clock isomer  $^{229m}\text{Th}$  // Nature. — 2018. — Vol. 556. — P. 321.

7. Irwin G. M., Kim K. H. Observation of electromagnetic radiation from deexcitation of the  $^{229}\text{Th}$  isomer // Phys. Rev. Lett. — 1997. — Vol. 79. — P. 990.

8. *Karpeshin F. F., Band I. M., Trzhaskovskaya M. B., Pastor A.* On the question of electron bridge for the 3.5-eV isomer of  $^{229}\text{Th}$  // *Phys. Rev. Lett.* — 1999. — Vol. 83. — P. 1072.
9. *Karpeshin F. F. et al.* Optical pumping  $^{229m}\text{Th}$  through NEET as a new effective way of producing nuclear isomers // *Phys. Lett. B.* — 1996. — Vol. 372. — P. 1–7.
10. *Стрижов В. Ф., Ткаля Е. В.* Канал распада низколежащего изомерного состояния ядра  $^{229}\text{Th}$  // *ЖЭТФ.* — Т. 99. — С. 697.
11. *Shaw R. W. et al.* Spontaneous Ultraviolet Emission from  $^{233}\text{Uranium}$  /  $^{229}\text{Thorium}$  Samples // *Phys. Rev. Lett.* — 1999. — Vol. 82. — P. 1109.
12. *Utter S. B. et al.* Reexamination of the Optical Gamma Ray Decay in  $^{229}\text{Th}$  // *Phys. Rev. Lett.* — 1999. — Vol. 82. — P. 505.
13. *Karpeshin F. F., Trzhaskovskaya M. B.* Impact of the ionization of the atomic shell on the lifetime of the  $^{229m}\text{Th}$  isomer // *Nucl. Phys. A.* — 2018. — Vol. 969. — P. 175–183.
14. *Porsev S. G. et al.* Excitation of the Isomeric  $^{229m}\text{Th}$  Nuclear State via an Electronic Bridge Process in  $^{229}\text{Th}^+$  // *Phys. Rev. Lett.* — 2010. — Vol. 105. — P. 182501.
15. *Karpeshin F. F., Trzhaskovskaya M. B.* Bound internal conversion versus nuclear excitation by electron transition: Revision of the theory of optical pumping of the  $^{229m}\text{Th}$  isomer // *Phys. Rev. C.* — 2017. — Vol. 95. — P. 034310.
16. *Beck B. R., Wu C. et al.* Improved value for the energy splitting of the ground-state doublet in the nucleus  $^{229m}\text{Th}$ . — Berkeley: 2009. — LLNL-PROC-415170.
17. *Borisyuk P. V. et al.* Experimental studies of thorium ion implantation from pulse laser plasma into thin silicon oxide layers // *Laser Phys. Lett.* — 2019. — Vol. 18. — P. 056101.
18. *Seiferle B., Wense L., Bilous P. V. et al.* Energy of the  $^{229}\text{Th}$  nuclear clock transition // *Nature* (в печати).
19. *Karpeshin F. F., Band I. M., Trzhaskovskaya M. B.* 3.5-eV isomer of  $^{229m}\text{Th}$ : how it can be produced // *Nucl. Phys. A.* — 1999. — Vol. 654. — P. 579.
20. *Karpeshin F. F., Wycech S., Band I. M., Trzhaskovskaya M. B., Pfuetzner M., Zylicz.* Rates of transitions between the hyperfine-splitting components of the ground-state and the 3.5 eV isomer in  $^{229m}\text{Th}^{89+}$  // *Phys. Rev. C.* — 1998. — Vol. 57. — P. 3085.
21. *Peik E., Tamm Chr.* Nuclear laser spectroscopy of the 3.5 eV transition in Th-229 // *Europhys. Lett.* — 2003. — Vol. 61. — P. 181–186.
22. *Campbell C. J. et al.* Single-Ion nuclear clock for metrology at the 19th decimal place // *Phys. Rev. Lett.* — 2012. — Vol. 108. — P. 120802.
23. *Karpeshin F. F., Harston M. R., Attallah F., Chemin J. F., Scheurer J. N., Band I. M., Trzhaskovskaya M. B.* Subthreshold internal conversion to bound states in highly-ionized  $^{125}\text{Te}$  ions // *Phys. Rev.* — 1996. — Vol. 53. — P. 1640.

## **Principal Questions of the Current Project of Creation of the Nuclear Optical Frequency Standard**

**L. F. Vitushkin, F. F. Karpeshin, M. B. Trzhaskovskaya**

There is nothing more practical than a good theory. The Trial-and-Error path to the creation of a nuclear optical clock is analysed in this article from the internal conversion theory point of view only. The example of the  $^{229}\text{Th}$  nuclide (which is considered to be the most probable candidate for the role of the Nuclear Optical Frequency Standard in future) shows that the interaction of the nucleus with the external field of the laser cannot be considered without paying attention at the properties of the electron shell. Thus, de-excitation of the isomeric state of the  $^{229}\text{Th}$  nucleus cannot be observed if the internal conversion is not taken into account.

Similarly, the direct laser excitation of the nucleus is an ambiguous way of controlling its frequency. Our article analyses the most common errors in the attempts to manipulate the nucleus without taking into account the properties of the electron shell. Moreover, the dependence of the nuclear properties on the electron shell may cause variations of the isomeric line width in the thorium clock depending on external conditions such as pressure and temperature.

**Keywords:** frequency standard, nuclear optical resonance, thorium isomer, nuclear clock.