

Изомерная линия ^{229}Th как репер высокоточного стандарта частоты

Ф. Ф. КАРПЕШИН¹, М. Б. ТРЖАСКОВСКАЯ²

¹ Всероссийский научно-исследовательский институт метрологии им. Д. И. Менделеева, С.-Петербург, Россия

² Петербургский институт ядерной физики им. Б. П. Константинова, С.-Петербург, Россия, e-mail: fkarpeshin@gmail.com

Теоретически исследована проблема использования нуклида ^{229}Th в качестве нового ядерно-оптического стандарта частоты. Рассмотрен механизм двухфотонной оптической накачки изомера с энергией 7,6 эВ через атомную оболочку в однократно ионизованных атомах. Продемонстрирована решающая сила резонансного $8s-7s$ перехода. Показано, что необходимая энергия обоих фотонов равна сумме энергий ядерного уровня и $7s$ -состояния атома. Время жизни изомера в однократно ионизованном атоме 165 с.

Ключевые слова: оптический стандарт частоты, ядерный стандарт частоты, изомер ^{229m}Th , ядерные часы, ядерное возбуждение в атомном переходе.

The problem of use of the nuclide of ^{229}Th as a candidate for the new nuclear-optical standard of frequency is theoretically investigated. Physics of the two-photon optical pumping the 7,6-eV isomer assisted by the electron shell is considered. The predetermining role of the resonant $8s-7s$ electronic transition is reinstated. Principles of the most efficient experimental scheme are pointed out. It is shown that the required energy of the both photons is equal to the energy of the nuclear level plus the energy of the $7s$ atomic level. The calculated lifetime of the isomer in the single-ionized atoms is 165 s.

Key words: optical frequency standard, nuclear frequency standard, isomer ^{229m}Th , nuclear clock, nuclear excitation by electronic transition (NEET).

В последние годы изомер ^{229m}Th вызывает большой интерес в качестве нового ядерно-оптического стандарта частоты. Это ядро со спином и чётностью в основном состоянии $5/2^+$ обладает уникально низким изомерным уровнем со спином $3/2^+$ и энергией $\hbar\omega_d$, не превышающей 10 эВ. Последние эксперименты показали $\hbar\omega_d = 7,6 \pm 0,5$ эВ (где $\hbar = h/2\pi$, h — постоянная Планка, ω — угловая частота колебаний электромагнитного поля) [1]; это значение пришло на смену энергии $3,5 \pm 1,0$ эВ. Для сравнения укажем, что характерные энергии возбужденных уровней в других ядрах составляют десятки килоэлектронвольт и больше. Ядро ^{229}Th — наиболее обсуждаемое, доступное для прямых манипуляций лазером. Радиационная ширина для перехода в основное состояние составляет порядка $3 \cdot 10^{-20}$ эВ, что отвечает времени жизни 6 ч. В нейтральных атомах в результате внутренней конверсии время жизни сокращается до 10^{-5} с [2, 3]. Однако в однократно-ионизованных атомах канал внутренней конверсии закрыт, поэтому время жизни возрастает примерно до 165 с. Следует отметить стабильность ядерных параметров относительно внешних воздействий из-за экранирующих свойств электронной оболочки.

Уникальные свойства данного нуклида можно использовать для создания ядерно-оптического стандарта частоты и ядерных часов, допускающих минимальную погрешность на уровне 10^{-19} в однократных ионах и 10^{-21} — в трёхкратных [4]. В настоящее время решение насущных вопросов фундаментальной физики и прикладных задач требует точности 10^{-18} — 10^{-19} [5]. В то же время минимальная погрешность наилучших существующих устройств фонтанного типа, в том

числе во ВНИИФТРИ, не ниже 10^{-16} . В настоящее время только на наиболее прецизионных экспериментальных устройствах в Японии, США и других странах удаётся снизить погрешность до нескольких единиц восемнадцатого знака [6]. С этой целью изомер можно возбуждать лазерным излучением удвоенной частоты. Для получения сигнала автоматической подстройки частоты (АПЧ) вторым лазером создаётся сильный электродипольный переход в электронной оболочке (обычно из основного состояния). Энергия электронного перехода из-за сверхтонкого расщепления может существенно различаться в зависимости от того, в каком состоянии находится ядро. Данный метод вполне аналогичен методу двойного электронно-ядерного резонанса.

Однако трудность состоит в том, чтобы резонансно возбудить ядерный изомер. Долгое время никому не удавалось наблюдать ядро в изомерном состоянии. Только в последнее время появилось экспериментальное свидетельство его прямого наблюдения [7]. Трёхуровневая схема возбуждения изомера лазером описана в [8, 9] и применима для изомера с энергией 3,5 эВ. Схема основана на механизме так называемого электронного мостика возбуждения резонансного атомного уровня $8s$, энергия которого в нейтральном атоме близка к 3,5 эВ и лежит в области достижимости однофотонным лазерным возбуждением. Экспериментальное свидетельство данного механизма приведено в [10]. При увеличении энергии изомера до 7,6 эВ он становится доступным двухфотонному возбуждению лазером в оптической ловушке. Эксперименты были проведены в РТВ [11]. Воплощение этой идеи закладывает основы новых ядерно-лазерных технологий. Двухфотонное возбуждение позволит изме-

рять энергию изомера с помощью лазера с минимальной погрешностью.

Рассмотрим предложенный механизм подробнее. Остановимся на особенностях и физических тонкостях различных схем данного процесса, оценим ожидаемое время накачки изомера, предложим оптимальную схему эксперимента. Однако сначала определимся с терминологией, которую будем использовать для описания комбинированных электронно-ядерных процессов в лазерном поле, таких как внутренняя конверсия (ВК) ядерных гамма-лучей и обратная ВК, а также резонансная ВК и противоположный ей процесс ядерного возбуждения в атомном переходе (ЯВАП).

Комбинированные электронно-ядерные процессы. Идея состоит в том, чтобы двухфотонным поглощением сообщить электронной оболочке атома энергию, которая затем в безрадиационном переходе будет передана ядру.

Поглощение фотонов атомом в лазерном поле. Этот процесс удобно выразить через радиационную ширину обратного перехода и полную ширину уровня. Они связаны принципом детального равновесия:

$$\sigma_{1 \rightarrow 2}(\omega) = \frac{2I_2 + 1}{2I_1 + 1} \left(\frac{\pi}{\omega} \right)^2 \frac{\Gamma_{\gamma}^{(a)}(2 \rightarrow 1)}{2\pi(\omega - \omega_0)^2 + (\Gamma_t/2)^2}, \quad (1)$$

где I_1, I_2 — спины атома в основном 1 и возбуждённом 2 состояниях, соответственно; ω_0 — резонансная частота.

Для вычисления вероятности фотовозбуждения в единицу времени (индуцированного перехода) надо сечение (1) умножить на поток

$$j = W/\omega, \quad (2)$$

где W — мощность излучения.

Если W выразить в $[\text{Вт}/\text{см}^2]$, а энергию фотона — в электронвольтах, то $j = 6,243 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$. Также важная величина — эффективный падающий поток:

$$f = j(\pi/\omega)^2, \quad (3)$$

$$p(\omega) = fS(\omega), \quad (4)$$

где $S(\omega) = 1/\Delta\omega$ — спектральная плотность излучения.

Внутренняя конверсия. Пусть ядро переходит из возбуждённого состояния 2 с квантовыми числами спина I_2 и его проекции M_2 в основное состояние 1 с квантовыми числами спина I_1 и его проекции M_1 . Эта энергия передается электрону, который вылетает в сплошной спектр. Обозначим

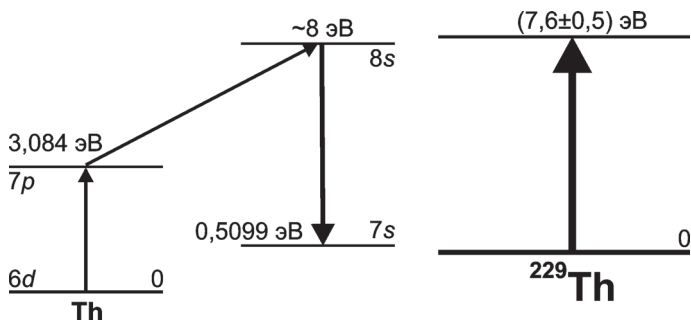


Рис. 1. Возбуждение ядра в изомерное состояние двухфотонной оптической накачкой по методу обратного «электронного мостика» (последовательная схема процесса)

ширину конверсионного распада Γ_K . Коэффициент внутренней конверсии (КВК) определяется как отношение конверсионной и радиационной ширин ядерного перехода:

$$\alpha(\tau L) = \Gamma_K(\tau L) / \Gamma_{\gamma}^{(n)}(\tau L), \quad (5)$$

где τ, L — тип и порядок мультипольности перехода.

Отметим, что КВК обусловлена мультипольностью перехода, но слабо зависит от ядерной структуры, тогда как каждая из ширин в отдельности может изменяться на многие порядки в зависимости от ядерной модели. Этим объясняется тот факт, что КВК является важнейшей характеристикой ядерного перехода. С помощью измерений КВК определяют спины и чётности ядерных уровней.

Резонансная конверсия. В том случае, если энергия ядерного перехода недостаточна для перевода электрона в сплошной спектр, он сможет перейти в ближайшее свободное дискретное состояние в атоме, как на промежуточный уровень, с которого перейдет в более низкое состояние атома, например, излучив фотон. Важно отметить, что промежуточный уровень не находится на массовой поверхности, поскольку энергия ядерного перехода не совпадает с атомной. Эта разность энергий ядерного и атомного переходов определяет дефект (расстройку) резонанса [11]:

$$\Delta = \omega_{\gamma} - \omega_a. \quad (6)$$

Физический смысл важной величины резонанса Δ состоит в том, что согласно принципу неопределённости квантовой механики в промежуточном состоянии электрон может находиться в течение времени $\tau = \hbar/\Delta$, $\hbar = c = 1$, c — скорость света.

Другой особенностью резонансной конверсии является то, что если формально вычислить КВК $\alpha(\tau L)$ по тем же формулам, что и в случае обычной конверсии, то можно получить величину α_{δ} с размерностью энергии вследствие различной нормировки волновой функции конверсионного электрона в сплошном и дискретном спектрах. Размерная величина не может играть роль КВК, но её можно умножить на резонансный фактор Брэйта—Вигнера в соответствии с физикой задачи. Тогда на основании определения (5) можно записать выражение для ширины резонансной конверсии:

$$\Gamma_{p,k}(\tau L) = R \Gamma_{\gamma}^{(n)}(\tau L), \quad (7)$$

где

$$R = \alpha_{\delta} \Gamma / \left[2\pi(\Delta^2 + (\Gamma/2)^2) \right] \quad (8)$$

является КВК в дискретном случае. Ширина Γ в (8) — полная ширина промежуточного уровня, включая атомную (доминирующую) и ядерную, если ядро остаётся в возбуждённом состоянии. Конверсионный электрон всегда может из промежуточного состояния вернуться в исходное по упругому каналу, переиспустив фотон с той же энергией. В этом случае процесс в целом можно назвать внутренним резонансным рассеянием ядерного фотона. Однако чаще используется другое выражение «электронный мостик».

Обратная резонансная конверсия. Возбуждение ядра в атомном (т. е. электронном) переходе возможно в обратном резонансно-конверсионном переходе. Ранее этот процесс безрадиационного возбуждения ядра в мюонном атоме урана был предложен Уиллером в 1949 г. По аналогии с NEET, процесс обратной резонансной конверсии иногда называют TEEN. Вероятности NEET и TEEN связаны принципом детального равновесия.

Формулы расчёта. Рассмотрим процесс двухфотонной резонансной накачки ядерного изомера в поле двух лазеров с частотой излучения ω_1, ω_2 . В общем виде такой процесс описан, например, в [12]. Применительно к рассматриваемому случаю, пусть на первом шаге атом поглощает резонансный фотон ω_1 и переходит из основного состояния 1 в возбужденное состояние 2. Основная конфигурация однократно ионизованного атома тория $7s(6d)^2$. Для краткости обозначим соответствующие уровни 1, 2 как $6d, 7p$ (рис. 1). Далее, поглощая второй фотон ω_2 , атом переходит в состояние 3, т. е. $8s$. Отдав часть полученной энергии $\hbar(\omega_1 + \omega_2)$ ядру, атом перейдёт в конечное состояние 4, в качестве которого рассмотрим один из $7s$ -уровней. Из закона сохранения энергии следует, что $\hbar(\omega_1 + \omega_2) = \hbar\omega_a + \varepsilon_4$, ε_i — энергия i -го уровня атома. Поэтому второй фотон — резонансный с ядром, а не с атомным уровнем. В свою очередь, состояние $j_3 m_3$ образуется не на массовой поверхности. Сход с массовой поверхности определяется параметром $\Delta = \hbar(\omega_1 + \omega_2) - \varepsilon_3$, где ε_3 — собственная энергия состояния $j_3 m_3$. Последнее представляет виртуальное состояние, в качестве пропагатора которого следует использовать функцию Грина. В спектральное разложение входит полный набор состояний атома с данным моментом. Ожидается, что основной вклад будет представлен ближайшими уровнями. Интерес представляет пара состояний $8s \rightarrow 7s$, хорошо резонирующая с ядерным изомером [9, 13]. Для осуществления полноценного резонанса, атом должен возвращаться не в исходное состояние, а в $7s$. Из теории внутренней конверсии следует, что в любом другом переходе вероятность возбуждения ядра на два-три порядка меньше. Поэтому оптимальной является более общая схема, когда состояние $j_4 m_4$ не совпадает с исходным основным состоянием атома 1.

В [2, 3] показано, что, несмотря на большую плотность атомных уровней вследствие их фрагментации, через которые правилами отбора открыт переход, только небольшое число отдельных линий дают основной вклад в вероятность девозбуждения (а значит, и обратного процесса оптической накачки) изомера. Действительно, эксперимент подтвердил это предположение. В [11, 14] был обнаружен сильный переход из основного состояния Th^+ : $(6d^2 7s)J = 3/2$ в состояние $(7s 7p 6d)J = 5/2$ на частоте $24874 \text{ см}^{-1} = 3,084 \text{ эВ}$. Спин и чётность этого уровня подходят для подкачки следующим квантом необходимой энергии порядка 4–5 эВ. Подходящий уровень $8s$ как раз есть на высоте около 7–8 эВ. Затем электрон может передать ядру энергию в переходе из $8s$ - в возбуждённое $7s$ -состояние $(7s^2 6d)J = 5/2$ с энергией $4113 \text{ см}^{-1} = 0,5099 \text{ эВ}$. Процесс представлен на рис. 2 фейнмановским графиком в представлении Фарри. Вероятность процесса можно представить в виде произведения вероятностей 3 последовательных элементарных событий: поглощения фотонов ω_1, ω_2 и последующей передачи части поглощённой

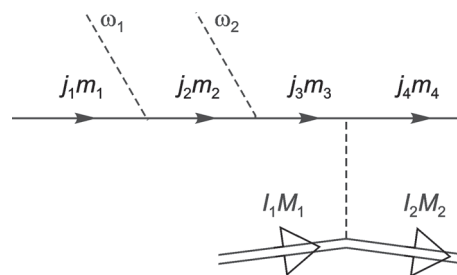


Рис. 2. Фейнмановская диаграмма двухфотонной оптической накачки изомера в представлении Фарри

энергии ядру ЯВАП. В свою очередь, скорость поглощения фотонов пропорциональна интенсивности излучения соответствующего лазера W_i и сечения фотопоглощения, которое выражается через радиационную ширину обратного перехода (1). Искомое выражение для скорости процесса можно записать в следующем виде:

$$M = sp(\omega_1)p(\omega_2) \frac{\Gamma_\gamma^{(a)}(2 \rightarrow 1; \omega_1)}{\Gamma_t^{(2)}} \frac{\Gamma_\gamma^{(a)}(3 \rightarrow 2; \omega_2)}{\Delta^2 + (\Gamma_t^{(3)}/2)^2} \frac{\alpha_\delta \Gamma_\gamma^{(n)}(2 \rightarrow 1)}{2\pi}, \quad (9)$$

где $s = \frac{(2I_2 + 1)(2j_2 + 1)}{9(2I_1 + 1)(2j_1 + 1)(2j_3 + 1)}$ — кинематически-статистический фактор; $p(\omega_1), p(\omega_2)$ — характеристики излучения каждого из лазеров; следующие два дробных фактора обусловлены сечениями фотопоглощения первого и второго фотонов; резонансный Брэйт—Вигнеровский фактор определяется значением Δ ; последний фактор соответствует ЯВАП. Согласно (4), (5) его значение пропорционально ядерной ширине

обратного радиационного перехода $\Gamma_\gamma^{(n)}(2 \rightarrow 1)$ и α_δ . Здесь

$\Gamma_\gamma^{(a)}, \Gamma_t^{(a)}$ — радиационная и полная атомные ширины. Из закона сохранения энергии следует, что в данном случае параметр дефекта резонанса (3) $\Delta = \hbar\omega_a - \varepsilon_3 + \varepsilon_4$. Его можно записать в виде $\Delta = \hbar(\omega_a - \omega_a)$, где $\hbar\omega_a$ — энергия резонирующего атомного $8s \rightarrow 7s$ перехода [13].

Результаты расчёта скорости оптической накачки. Расчёт скорости оптической накачки ядерного изомера (см. (6)) радиационных ширин $7p \rightarrow 6d, 7p \rightarrow 7s$ выполнен по методу Дирака—Фока с использованием пакета программ RAINE [15]. Здесь использованы следующие значения: $\alpha_\delta = 5,34 \cdot 10^9 \text{ эВ}$;

$$\Gamma_t^{(7p)} \geq \Gamma_\gamma^{(7p)} \approx 10^{-7} \text{ эВ}; \quad \Gamma_\gamma^{(a)}(7p \rightarrow 7s; \omega_1 - \varepsilon_4) = 3,2 \cdot 10^{-8} \text{ эВ};$$

$$\Gamma_\gamma^{(a)}(7p_{1/2} \rightarrow 6d_{3/2}; \omega_1) = 6,89 \cdot 10^{-8} \text{ эВ. Далее } \Gamma_\gamma^{(a)}(8s \rightarrow 7p; \omega_2) = 1,96 \cdot 10^{-8} \text{ эВ, } \omega_1 = 3,08 \text{ эВ, } \omega_2 \approx 5 \text{ эВ.}$$

Из (4), (9) следует, что вероятность двухфотонного возбуждения ядра существенно зависит от спектральной ширины лазерных лучей. При фиксированной мощности импульсов, желательно уменьшить ширину до величин порядка обратной ширины атомной линии.

Для реалистической оценки используем параметры типичных лазеров, которые можно применять для решения

поставленной задачи: мощность в импульсе 0,3 мДж, частота повторений 30 Гц, со спектральной шириной $8 \cdot 10^4$ эВ⁻¹. Подставив данные значения в (2)–(4), (9), получим оценку $M = 0,06$ с⁻¹.

Время жизни изомера в отсутствие электромагнитного поля является важной характеристикой. Электронные мос-тики оказывают радикальное воздействие, сокращая время жизни на порядки величины. Значение R было вычислено в [2, 3] для энергии изомера 3,5 эВ в нейтральном атоме и составляет порядка 600, если исключить влияние случайно-го резонанса. В нашем случае R -фактор и время жизни изомера можно оценить непосредственно по (7), (8). В качестве Γ можно подставить ширину $8s\text{--}7p$ перехода. Используя приведенные выше значения, найдём R -фактор: $R \approx 100$. Заметим, что в (5) входит произведение α_0 и атомной ширины $8s\text{--}7p$ перехода. Энергия последнего увеличивается приблизительно вдвое по сравнению с нейтральными атомами, произведение же не должно сильно измениться. Полученное уменьшение R -фактора в 6 раз можно объяснить ожидаемой более сильной расстройкой резонанса в однократных ионах. Теперь с учётом одночастичной оценки для времени жизни ядра в случае 7,6 эВ $M1$ -перехода $T_{1/2} = 55$ с и фактора запрета по Вайскопфу ~ 300 [13], с помощью (7) получим оценку искомого времени жизни ядра в однократно-ионизованном атоме $\tau_n \approx 165$ с.

Заключение. Рассмотренные изомерные ядра ^{229}Th с энергией менее 10 эВ в силу большого времени жизни и естественной защищённости от воздействия внешних полей идеально подходят для применения в качестве стандарта частоты, позволяют создать ядерные часы с погрешностью на уровне 10^{-19} – 10^{-21} . Использование резонанса частоты ядерного перехода с удвоенной частотой излучения второй гармоники опорного лазера в качестве репера шкалы частот будет означать наступление эры новых технологий. Данная работа является шагом на пути к разработке способа получения вещества изотопа тория, ядра которого находятся в изомерном состоянии.

Получена формула и вычислено время, необходимое для оптической накачки изомерного уровня методом двухфотонного поглощения. Вычислено время жизни ядра в изомерном состоянии в однократно-ионизованном атоме ^{229}Th : $\tau_n \approx 165$ секунд. В отношении интерпретации эксперимента показано, что атом после возбуждения изомера наиболее вероятно останется в возбуждённом состоянии. Поэтому энергию полученного таким путем изомера надо будет считать равной не $\hbar(\omega_1 + \omega_2)$, а за вычетом энергии $7s$ -уровня.

Литература

1. Beck B. R., Becker J. A., Beiersdorfer P., Brown G. V., Moody K. J., Wilhelmy J. B., Porter F. S., Kilbourne C. A., Kelley R. L. Energy Splitting of the Ground-State Doublet in the Nucleus ^{229}Th // Phys. Rev. Lett. 2007. V. 98. P. 142501-1–142501-4.
2. Карпешин Ф. Ф., Тржасковская М. Б. Резонансная конверсия как основной канал распада 3.5-эВ изомера в ^{229m}Th // Ядерная физика. 2006. Т. 69. С. 596–604.
3. 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. V. 76. P. 054313-1–54313-10.
4. Campbell C. J., Radnaev A. G., Kuzmich A., Dzuba V. A., Flambaum V. V., Derevianko A. Single-Ion Nuclear Clock for Metrology at the 19th Decimal Place // Phys. Rev. Lett. 2012. V. 108. P. 120802-1–120802-5.
5. Huntemann N., Sanner C., Lipphardt B., Tamm Chr., Peik E. Single-Ion Atomic Clock with 3×10^{-18} Systematic Uncertainty // Phys. Rev. Lett. 2016. V. 116. P. 063001-1–063001-5.
6. Wense L., Seiferle B., Laatiaoui M., Neumayr J. B., Maier H. J., Wirth H. F., Mokry C., Runke J., Eberhardt K., Düllmann C. E., Trautmann N. G., Thierolf P. G. Direct detection of the thorium-229 isomer: Milestone towards a nuclear clock // Nature. 2016. V. 533. P. 47–63.
7. Karpeshin F. F., Band I. M., Trzhaskovskaya M. B., Listengarten M. A. Optical pumping ^{229m}Th through NEET as a new effective way of producing nuclear isomers // Phys. Lett. B. 1996. V. 372. P. 1–7.
8. Карпешин Ф. Ф. Деление ядра в мюонных атомах и резонансная конверсия. СПб.: Наука, 2006.
9. Inamura T. T., Haba H. Search for a «3.5-eV isomer» in ^{229}Th in a hollow-cathode electric discharge // Phys. Rev. C. 2009. V. 79. P. 034313-1–034313-10.
10. Herrera-Sancho O. A., Nemitz N., Okhapkin M. V. and Peik E. Energy levels of Th⁺ between 7.3 and 8.3 eV // Phys. Rev. A. 2013. V. 88. P. 012512-1–012512-7.
11. Витушкин Л. Ф., Михайлов А. И. Двухфотонная ионизация атома фотонами из разных пучков // Оптика и спектроскопия. 1981. Т. 50. С. 11–18.
12. Зон Б. А., Карпешин Ф. Ф. Ускорение распада ядра ^{235m}U за счёт резонансной внутренней конверсии, стимулированной лазерным излучением // ЖЭТФ. 1990. Т. 97. С. 401–408.
13. NIST Atomic Spectra Database [Официальный сайт] <http://www.nist.gov/pml/data/asd.cfm> (дата обращения 11.01.2016 г.)
14. Band I. M., Trzhaskovskaya M. B., Nestor C. W., Jr., Tikkanen P. O., Raman S. Dirac-Fock internal conversion coefficients // At. Data Nucl. Data Tables. 2002. V. 81. P. 1–334.

Дата принятия 11.03.2016 г.