

**Гамма лазер оптического диапазона
и ядерный стандарт частоты
на базе
изомерного перехода малой энергии
в ^{229}Th**

Е.В.Ткаля (НИИЯФ МГУ)

МИФИ, ЛаПлаз-2017, 24 января 2017

Часть 1

Свойства низколежащего изомерного уровня в ядре Th-229.

Энергия изомерного состояния.

История открытия

Метод: анализ энергий и интенсивностей γ -переходов в ^{229}Th после α -распада ^{233}U

Idaho National Engineering Laboratory

1976 $E_{is} < 100 \text{ eV}$ *L.A. Kroger and C.V. Reich. Nucl. Phys. A259, 29 (1976)*

1990 $E_{is} < 5 \text{ eV}$ *C.V. Reich and R.G. Helmer. Phys. Rev. Lett. 64, 271 (1990)*

1994 $E_{is} = 3.5 \pm 1.0 \text{ eV}$ *R.G. Helmer and C.V. Reich. Phys. Rev. C 49, 1845 (1994)*

[resolution $\sim 17 \text{ eV/channel}$]

Lawrence Livermore National Laboratory and Los Alamos National Laboratory

2007 $E_{is} = 7.8 \pm 0.5 \text{ eV}$ *B.R. Beck et al. Phys. Rev. Lett. 98, 142501 (2007)*

[energy resolution $\sim 26 \text{ eV (FWHM)}$]

+ еще около 10-15 экспериментальных работ, в которых впоследствии были выявлены грубые ошибки.

Метод: детектирование электронов конверсии

Germany: Ludwig-Maximilians-Universitat Munchen, GSI Darmstadt, Helmholtz-Institut Mainz,

Johannes Gutenberg-Universitat Mainz

2016 $6.3 < E_{is} < 18.3 \text{ eV}$ *L. von der Wense et al. Nature 533, 47 (2016)*

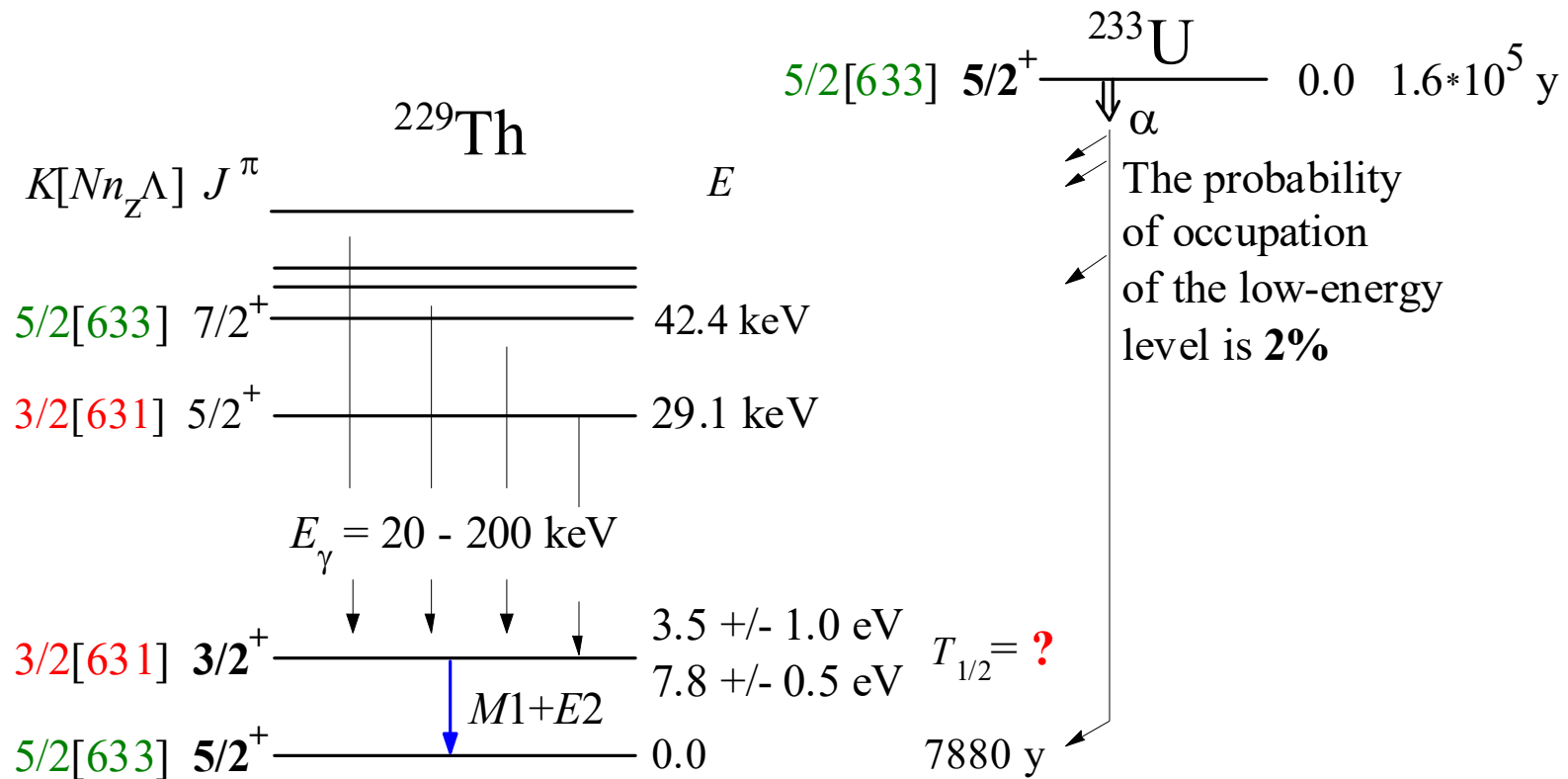
Метод: ядерные реакции (измерение спектра t в реакции $^{230}\text{Th}(d,t)^{229}\text{Th}$ при $E_d = 17 \text{ MeV}$)

Canada, McMaster University Tandem Accelerator [resolution $\sim 6\text{-}7 \text{ keV}$ in 1990]

1990 $E_{is} < 6 \text{ keV}$ *D.G. Burke et al. Phys. Rev. C 42, R499 (1990).*

2008 $E_{is} \sim 0.1 \text{ keV}$ *D.G. Burke et al. Nucl. Phys. A 809, 129 (2008).*

Энергия изомерного состояния. История открытия



$T_{1/2}$ of the isomeric level depends on the chemical environment

Энергия изомерного состояния

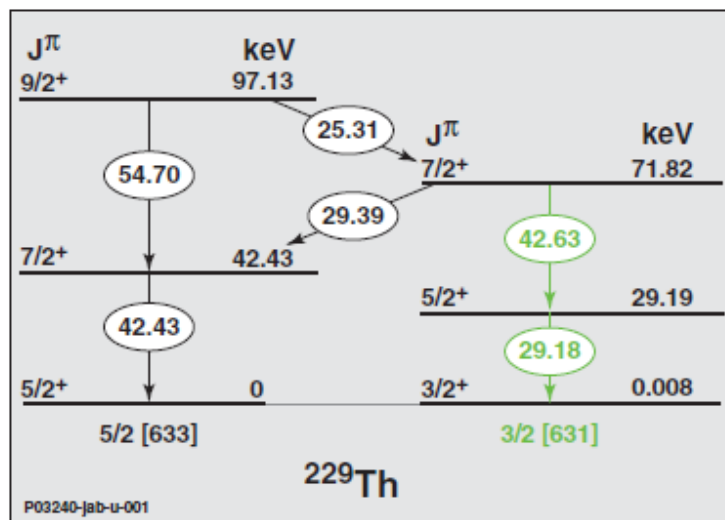
Phys.Rev.Lett. **98**, 142501 (2007)

B.R.Beck, J.A.Becker, P.Beiersdorfer et al.
*Lawrence Livermore National Laboratory,
 Los Alamos National Laboratory,
 NASA Goddard Space Flight Center*

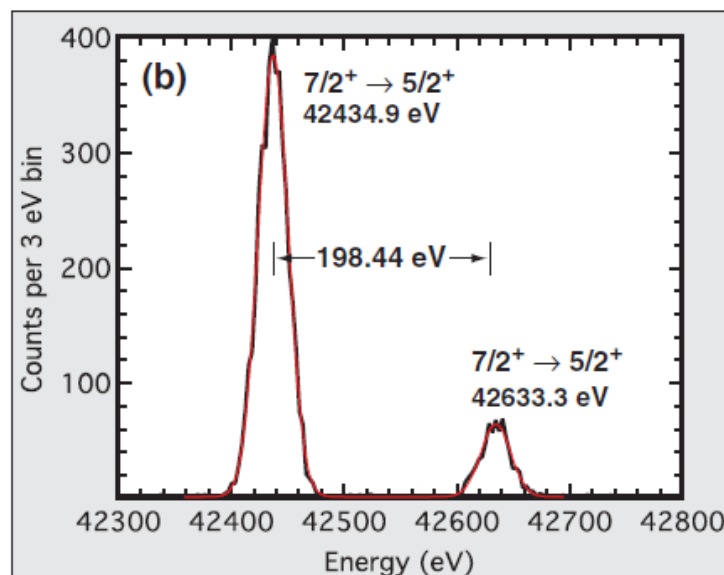
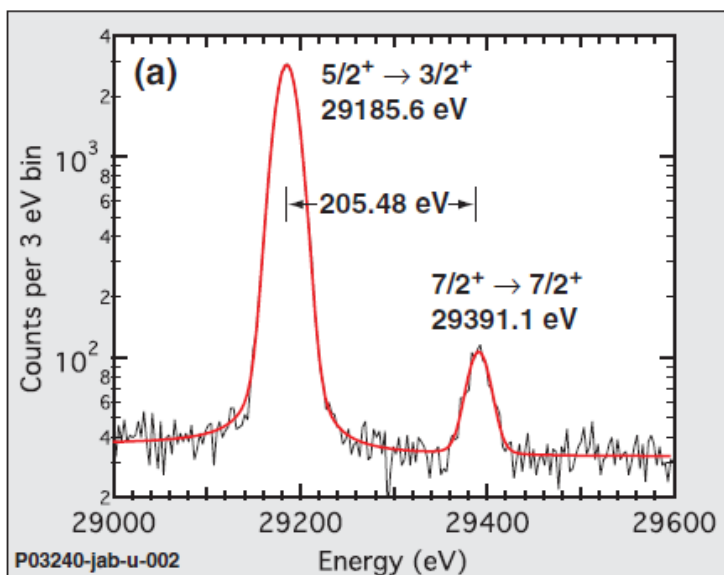
Источник: U-233 (105 μ Ci)

Детектор: NASA/electron beam ion trap x-ray
 microcalorimeter spectrometer

Разрешение: 26 eV (FWHM).

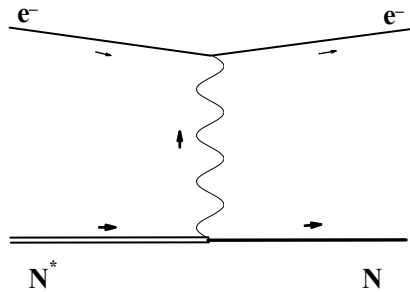


$$E_{is} = 7.6 \pm 0.5 \text{ eV}$$



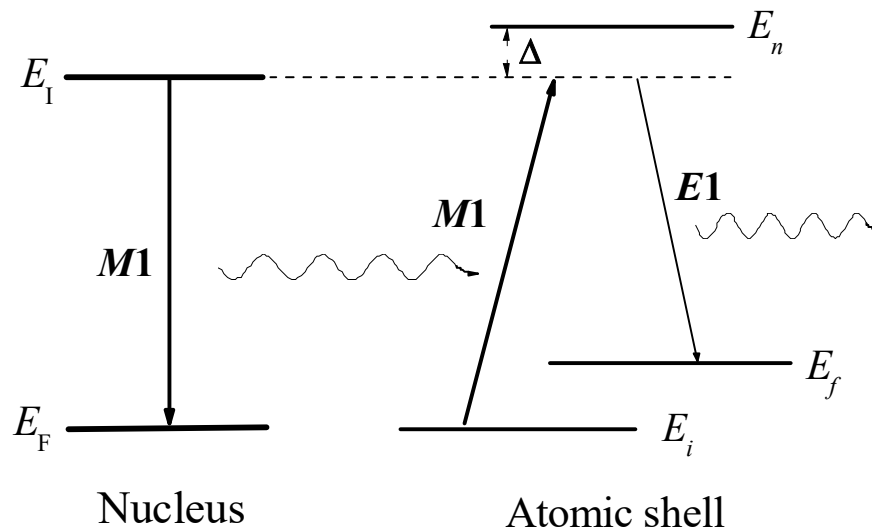
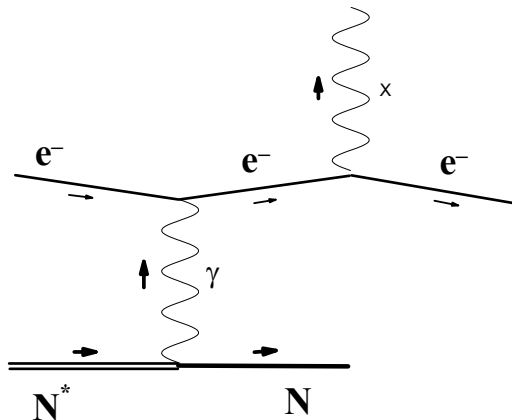
Каналы распада

Е.В.Ткаля. *Свойства оптического перехода в ядре ^{229}Th* . УФН **73** (2003) 323

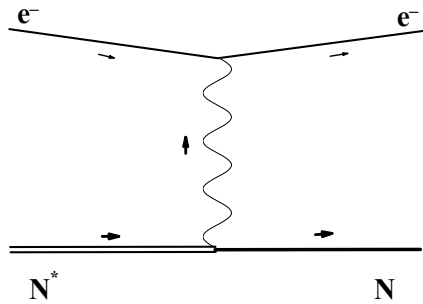


В.Ф.Стрижов, Е.В.Ткаля. *Каналы распада низколежащего изомерного состояния ядра Th-229* . ЖЭТФ **99** (1991) 697.

$$T_{1/2} \approx 10^{-6} \text{ s} \quad \alpha \approx 2 \times 10^9$$



Каналы распада



Е.В.Ткаля. *Безрадиационный распад низколежащего ядерного изомера $^{229}\text{Th}(3.5 \text{ эВ})$ в металле.* Письма в ЖЭТФ **70** (1999) 367.

Металл: конверсия на электронах проводимости
(неупругое рассеяние электронов проводимости на ядрах).
Энергетический порог у реакции $^{229\text{m}}\text{Th}(e, e')^{229}\text{Th}$ отсутствует.

Время жизни изомера в "стандартном" металле $< 1 \text{ с}$

$$\frac{1}{T} \approx n_e \sigma_e v_F$$

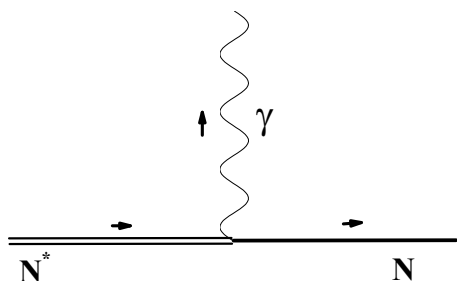
$$n_e \approx 6 \times 10^{22} \text{ см}^{-3}$$

$$v_F = \sqrt{2E_F / m_e} \approx 4.6 \times 10^8 \text{ см}^{-1}$$

$$\sigma_{M1} \approx 10^{-30} \div 10^{-31} \text{ см}^2$$

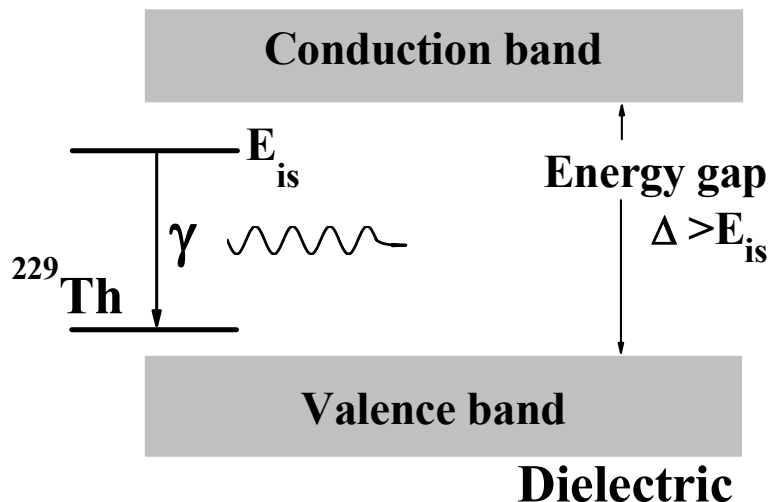
Каналы распада

"Ядерный свет"



Е.В.Ткаля. Вероятность спонтанного излучения для M1 перехода в диэлектрической среде: распад $^{229m}\text{Th}(3/2+, 3.5 \pm 1.0 \text{ эВ})$. Письма в ЖЭТФ **71** (2000) 449.

E.V.Tkalya et al. Decay of the low-energy nuclear isomer $^{229m}\text{Th}(3/2+, 3.5 \pm 1.0 \text{ eV})$ in solids (dielectrics and metals): A new scheme of experimental research. Phys.Rev.C **61** (2000) 064308.



Время жизни уровня при $E_{is} = 7.8 \text{ eV}$:
10-25 мин. в зависимости от n LiCAF

А.М.Дыхне, Е.В.Ткаля. Матричный элемент перехода аномально низкой энергии $3.5 \pm 0.5 \text{ эВ}$ в ядре ^{229}Th и время жизни изомера. Письма в ЖЭТФ **67** (1998) 233.

$B(M1)_{Wu} = 4.8 \times 10^{-2} \text{ с}$ учетом
кориолисова взаимодействия

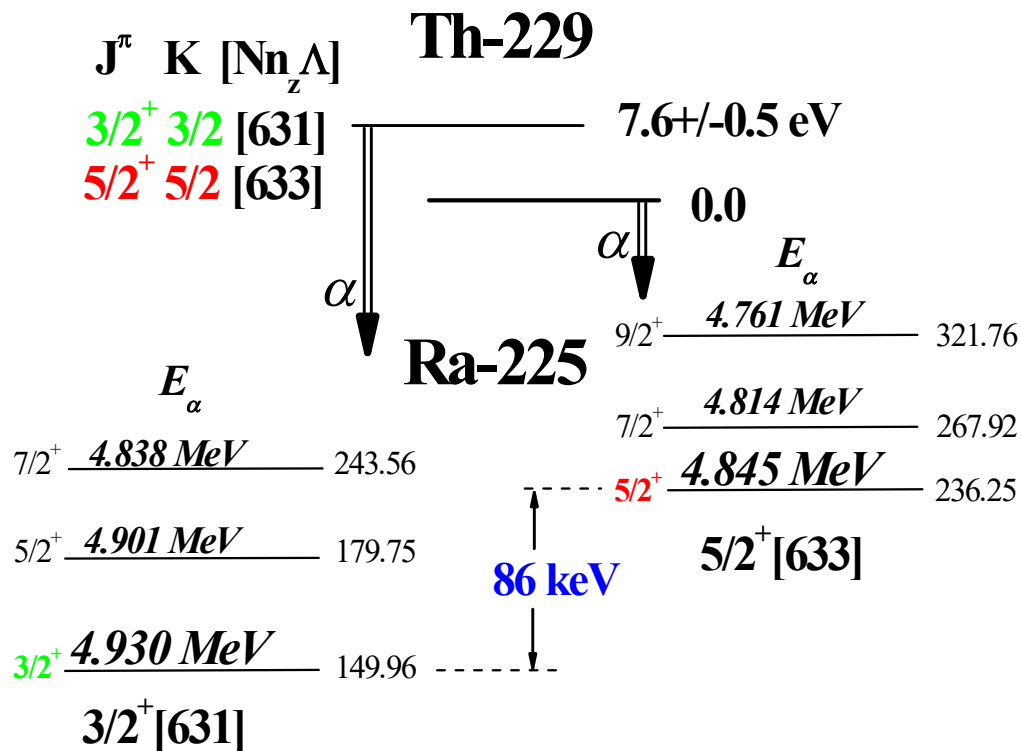
Зависимость вероятности спонтанного M1 γ распада от показателя преломления среды " n ":

$$W_{\text{medium}} = n^3 W_{\text{vacuum}}$$

Каналы распада

Е.В.Ткаля и др. *Альфа-распад первого возбужденного уровня ядра Th-229*. Письма в ЖЭТФ **64** (1996) 319 ; *Альфа-спектр распада ^{229m}Th ($3/2^+$, 3.5 эВ)*. Известия РАН, серия физическая, **61** (1997) 58.

α - Распад состояния $3/2^+(7.6 \pm 0.5 \text{ эВ})$



α -Спектр при распаде состояния $3/2^+(7.6 \text{ эВ})$ отличается от спектра основного состояния ядра Th-229. Будут заселяться преимущественно уровни ротационной полосы $3/2^+[631]$ ядра Ra-225.

Вероятность α -распада состояния $3/2^+(7.6 \text{ эВ})$ в 3-4 раза больше вероятности распада основного состояния Th-229.

Часть 2

Лазер на ядерном переходе оптического диапазона

Две основные проблемы

L.A. Rivlin.

Nuclear gamma-ray laser: the evolution of the idea.

Quantum Electronics **37** (8) 723-744 (2007)

...the key conflict inherent in any conception of the NGL is the antagonism between the necessity to accumulate a sufficient amount of excited nuclei and the requirement to narrow down the emission gamma-ray line to its natural radiative width...

“Never say never”

...Thus, however, will a nuclear gamma-ray laser or any other device emitting stimulated nuclear gamma-ray radiation be created one day (and when)?..

E.V.Tkalya, PRL 106, 162501 (2011)

“...We can overcome now the basic difficulties and develop a unique γ -ray laser working on the magnetic dipole transition in the VUV range between the first excited level $3/2^+$ (7.6 eV) and the ground state $5/2^+$ (0.0) of the ^{229}Th nucleus...”

***Давайте вспомним, что первые
ЛАЗЕРы работали в микроволновом
диапазоне и назывались МАЗЕРами***

Условия получения когерентного γ -излучения оптического диапазона на ядерном переходе с энергией 7.8 eV в системе изомеров ^{229m}Th .

Усиление γ -излучения изомерами ^{229m}Th является результатом:

- 1) возбуждения изомеров ^{229m}Th в диэлектрике с большой шириной запрещенной зоны лазерным излучением;
- 2) создания инверсной заселенности ядерных уровней в охлажденном образце вследствие взаимодействия ядер с внутренним электрическим полем кристалла;
- 3) спиновой релаксации (установления Больцмановского распределения заселенности) вследствие взаимодействия ядер с электронами проводимости в металлическом покрытии.
- 4) испускания и поглощения оптических фотонов ядрами Th-229 в кристалле без отдачи (эффект Мессбауэра в оптическом диапазоне).

Вариант простейшего ядерного лазера на ^{229}Th

Идея использовать кристалл с большой шириной запрещенной зоны родилась в 2000 г.

E.V. Tkalya.

Spontaneous Emission Probability for M1 Transition in a Dielectric Medium: $^{229m}\text{Th}(3/2^+, 3.5 \pm 1.0 \text{ eV})$ Decay.

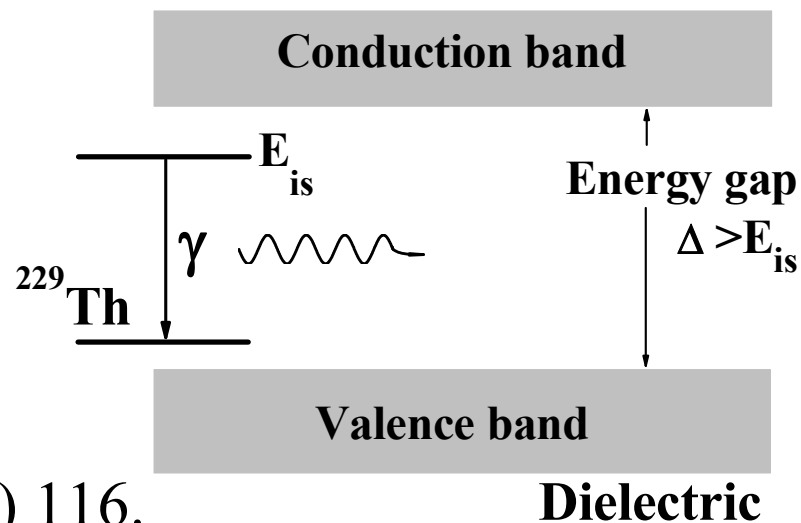
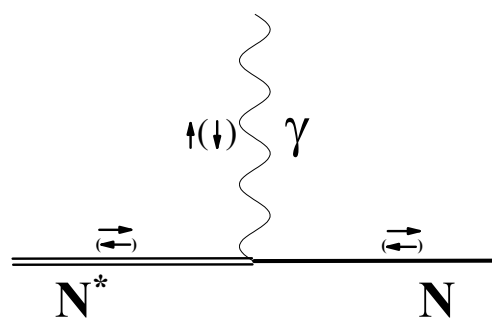
JETP Lett. 71 (2000) 311.

E.V. Tkalya, A.N. Zherikhin, and V.I. Zhudov.

Decay of the low-energy nuclear isomer $^{229m}\text{Th}(3/2^+, 3.5\pm 1.0 \text{ eV})$ in solids (dielectrics and metals): A new scheme of experimental research.

Phys.Rev.C 61 (2000) 064308.

В диэлектрике с шириной запрещенной зоны $\Delta \approx 10$ эВ резонансные фотоны с энергией $\omega = 7.8$ эВ (т.е. фотоны, для которых выполняется соотношение $\omega < \Delta$) будут взаимодействовать **без отдачи непосредственно с ядрами ^{229}Th** в основном $|5/2^+, 0.0\rangle$ и изомерном $|3/2^+, 7.8 \text{ eV}\rangle$ состояниях минуя взаимодействие с электронной оболочкой.



S. Kuck et al. *Laser Phys.* **11** (2001) 116.

LiCaAlF₆ : Симметрия: Trigonal
Ширина зоны: 110 nm (**11.1 eV**)
 Температура плавления: 825°C

Эффект Мёссбауэра в оптическом диапазоне

Энергия отдачи E_R пренебрежимо мала:

$$E_R = \omega^2 / 2M = 1.5 \times 10^{-10} \text{ eV}$$

(M – масса ядра Th-229, $\omega = 7.8 \text{ eV}$)

Дебаевский фактор $f \approx \exp(-3E_R / 2\theta_D) = 1$,

т.к. $E_R / \theta_D \ll 1$ в любом случае (θ_D – температура Дебая)

Излучение фотонов изомерами $^{229\text{m}}\text{Th}$ и поглощение резонансных фотонов ядрами ^{229}Th в кристалле будет происходить без отдачи.

Возбуждение $^{229\text{m}}\text{Th}$ (7.8 эВ) лазерным излучением (широкий пучок)

Начальные условия

$$\frac{dn_{is}}{dt} = \sigma\varphi n_{gr} - \Lambda_{is} n_{is} - g\sigma\varphi n_{is}$$

$$n_{is}(0) = 0$$

$$\frac{dn_{gr}}{dt} = -\sigma\varphi n_{gr} + \Lambda_{is} n_{is} + g\sigma\varphi n_{is}$$

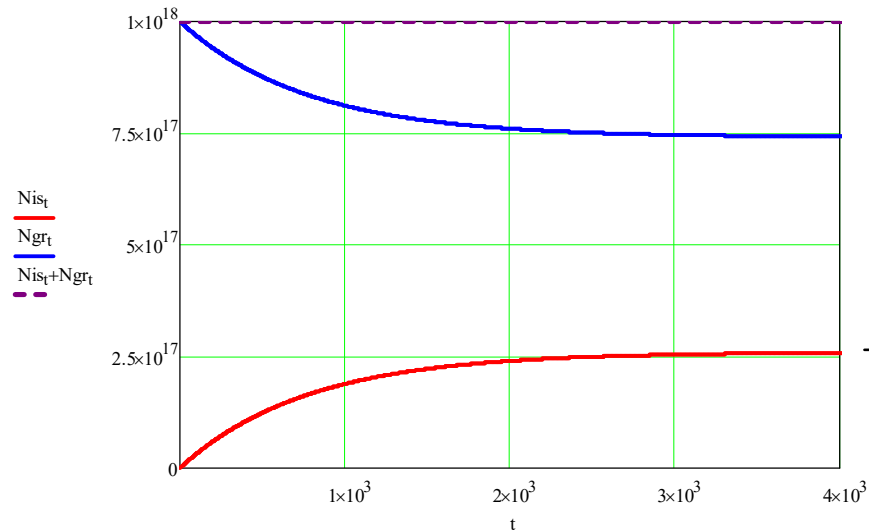
$$n_{gr}(0) = 10^{18} \text{ cm}^{-3}$$

$$\sigma = \frac{\lambda_{is}^2}{2\pi} \frac{\Gamma_{rad}}{\Delta\omega_L} \frac{1}{g} \approx 10^{-24} \text{ cm}^2$$

$$\Delta\omega_L / \omega_L = 10^{-6}$$

$$\Lambda_{is} = \Gamma_{rad} = \ln 2 / T_{1/2}^{is}$$

$$\varphi \approx 10^{20} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$$



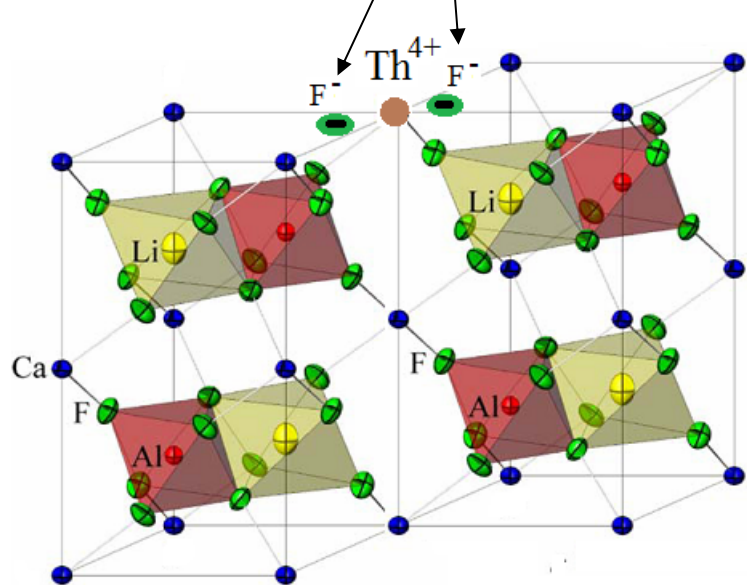
$$\frac{n_{is}}{n_{gr}} \approx \frac{1}{3}$$

$$t \approx (2 - 3) T_{1/2}^{is}$$

Для достижения большой величины градиента электрического поля на ядре ^{229}Th необходимо, чтобы:

а) атомы тория замещали в кристаллической решетке атомы с валентностью от 1 до 3;

б) **компенсирующие ионы** располагались в междоузлиях около иона Th^{4+} .



Структура LiCaF_6 – из работы
S. Kuze et al.
J. Solid State Chem. **177** (2004) 3505.

Положения дополнительных ионов
фтора найдены в работе
R.A. Jackson et al.
J. Phys.: Condens. Matter **21** (2009) 325403.

Квадрупольное расщепление в LiCaAlF_6

The Electric Field Gradient (EFG)

“Wien2k”: EFG на ионах Ca^{2+} в LiCAF равен

$$\varphi_{zz} = -1.2 \times 10^{17} \text{ V/cm}^2$$

В кристалле $^{229}\text{Th}:\text{LiCaAlF}_6$ основной вклад в EFG на ионах Th^{4+} дают ионы F^- , которые компенсируют «лишний» заряд $2+$.

Ионы F^- располагаются в непосредственной близости от Th^{4+} . Оценка EFG на Th^{4+} для **точечного** иона такова:

$$\varphi_{zz} \approx -2 \times 10^{18} \text{ V/cm}^2 .$$

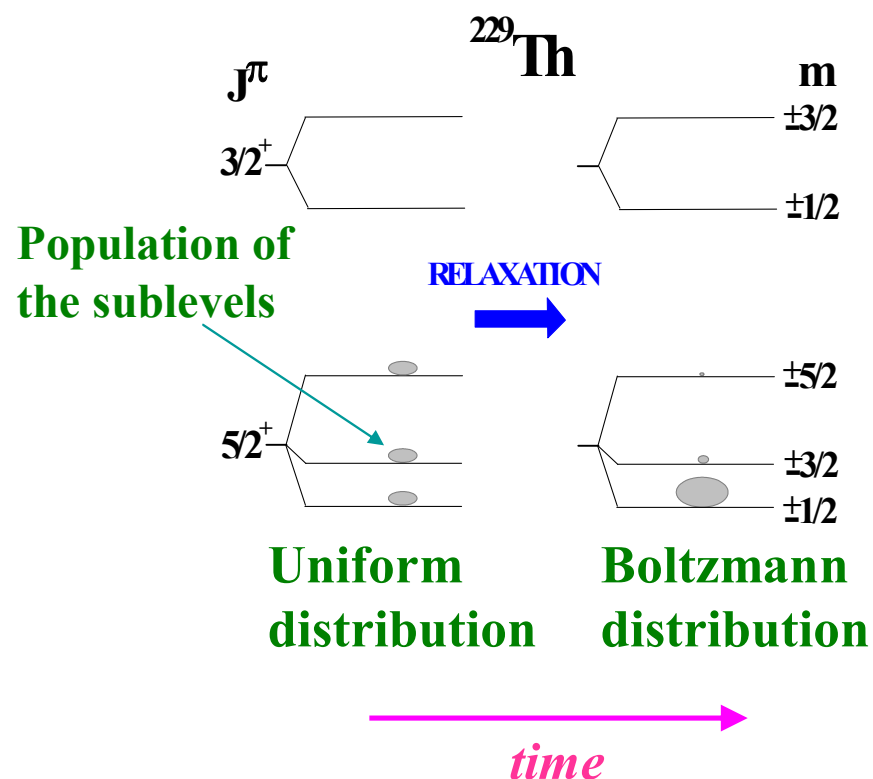
The Sternheimer antishielding factor $\gamma_\infty \approx -177.5$

F.D.Feiock and W.R.Johnson, Phys. Rev. 187, 39 (1969)

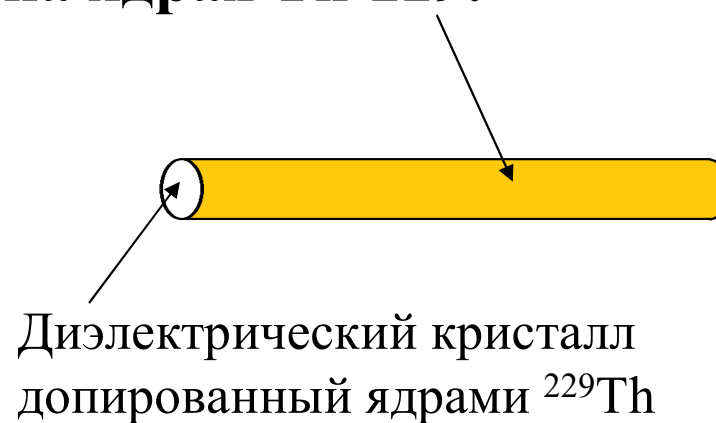
$$\mathbf{EFG} = (1 - \gamma_\infty) \varphi_{zz} \approx -3 \times 10^{20} \text{ V/cm}^2$$



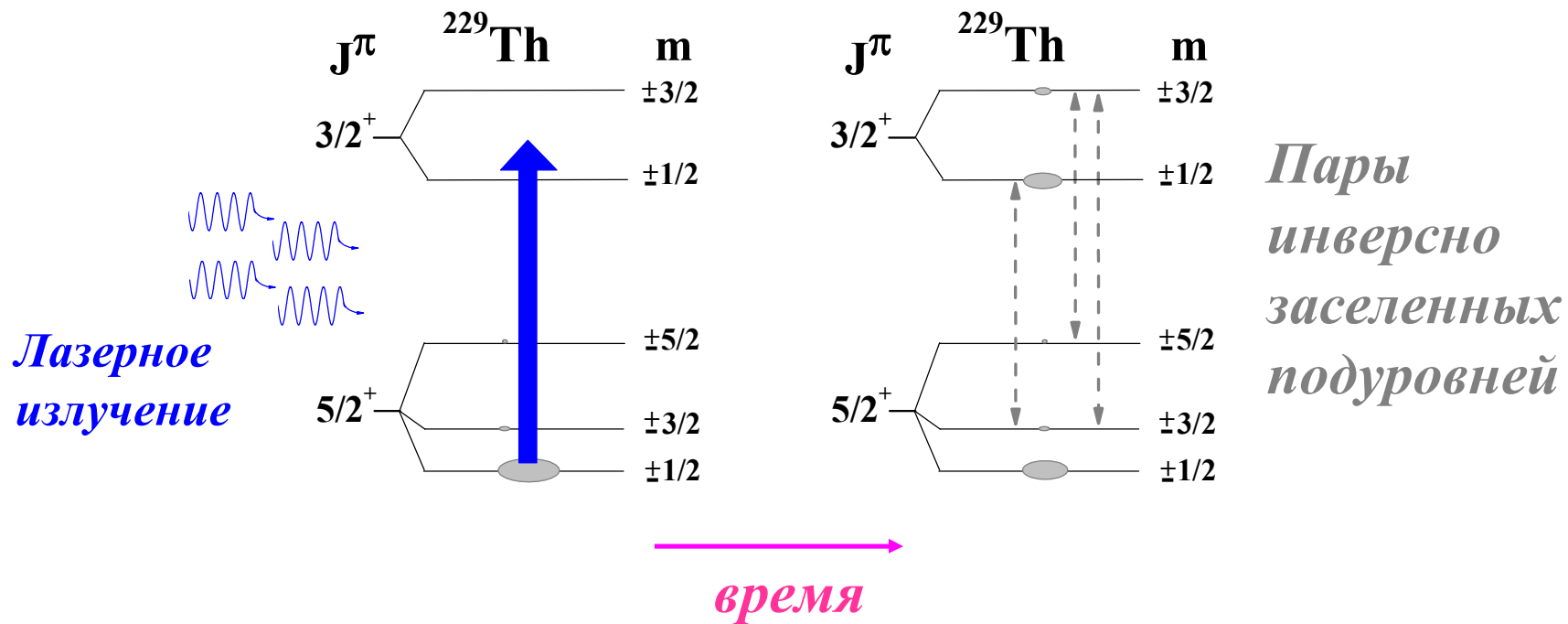
Получение бoльцмановского распределения в заселении подуровней основного состояния ядра ^{229}Th посредством выдержки кристалла $^{229}\text{Th}:\text{LiCaAlF}_6$ при низкой температуре.



Механизм релаксации –
неупругое рассеяние
электронов проводимости
металлического покрытия
 на ядрах Th-229.

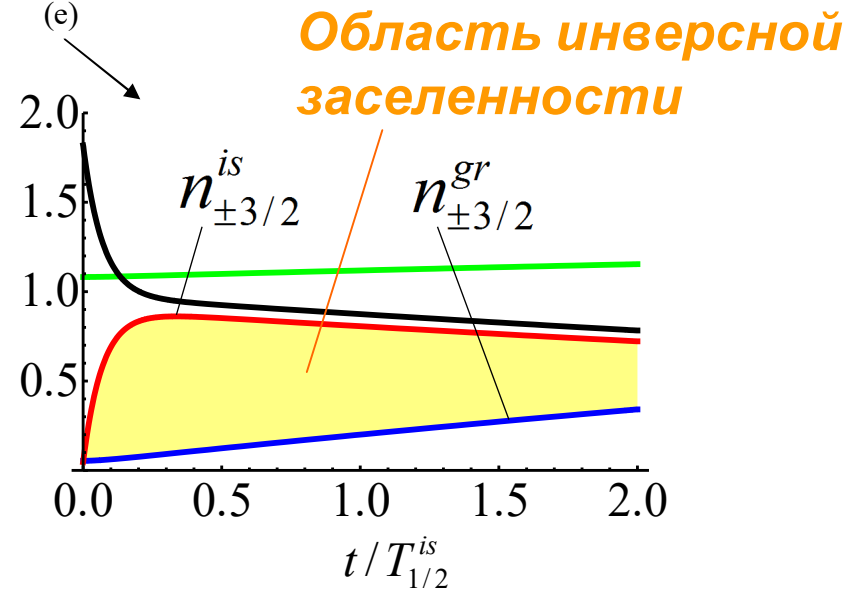
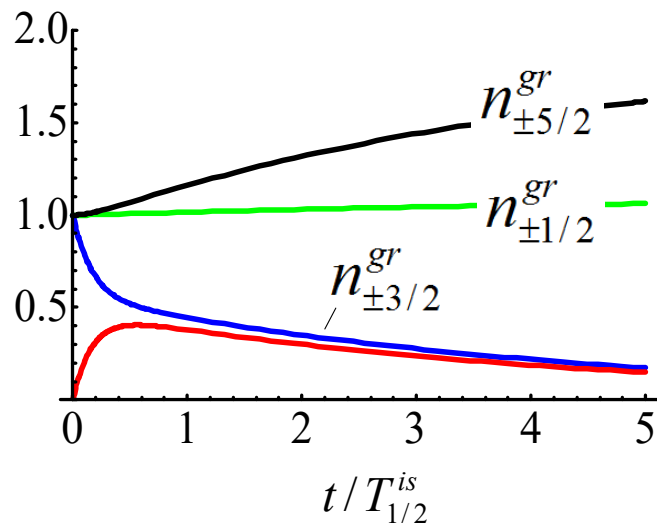
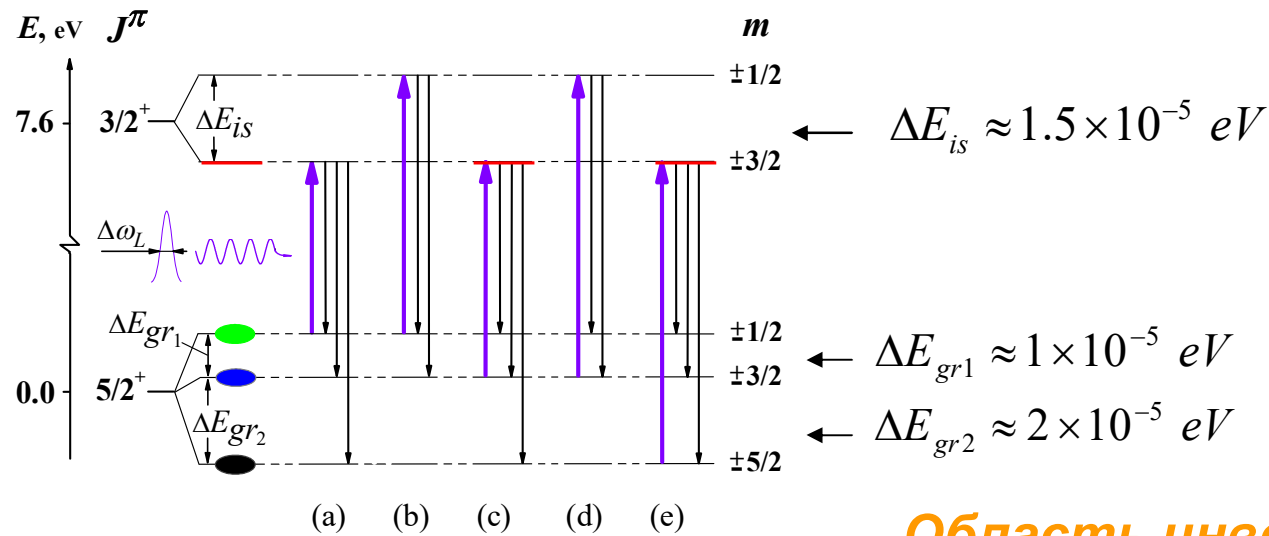


Возбуждение значительного числа ядер на изомерный уровень **лазерным излучением** и создание **инверсной заселенности** в системе ядер ^{229}Th .

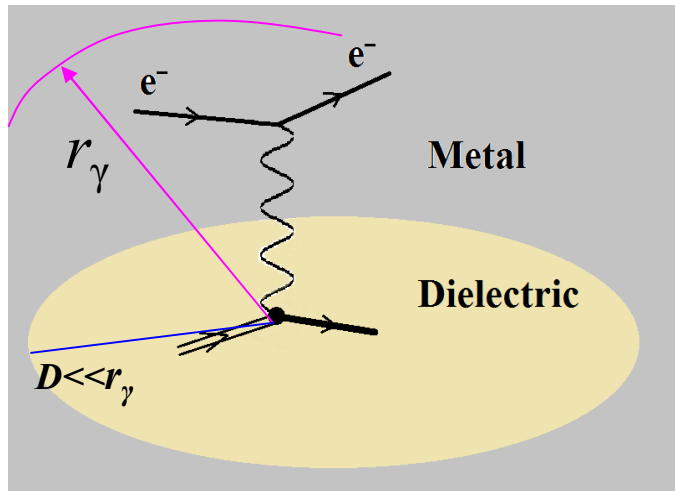


Creation of inverse population in the Th-229 ground-state doublet by means of a narrowband laser

E.V.Tkalya, L.P.Yatsenko. Laser Phys. Lett. **10**, 05808 (2013)



Кинематика процесса рассеяния



Энергия квадрупольного расщепления

$$\Delta E = 10^{-5} \text{ eV}$$

Энергия электронов проводимости

$$E_e = E_F \approx 5.5 \text{ eV}$$

Импульсы электронов

$$p_i = \sqrt{2m_e E_F} \quad , \quad p_f = \sqrt{2m_e (E_F + \Delta E)}$$

Свойства виртуального фотона

$$\omega_\gamma = \Delta E \quad , \quad q_\gamma^{\min} = p_f - p_i = \Delta E \sqrt{m_e / 2E_F} \quad , \quad \lambda_\gamma = 1 / q_\gamma^{\min} \approx 0.01 \text{ cm}$$

Фотон существует в течение $\Delta t \approx \hbar / m_\gamma^*$, где $m_\gamma^* = \sqrt{q_\gamma^2 - \omega_\gamma^2} \approx q_\gamma^{\min}$

Область распространения фотона

$$r_\gamma = c \Delta t \approx 1 / m_\gamma^* \approx 10^{-2} \text{ cm} \quad !$$

Процесс релаксации ядерных спинов

Время “спин-решеточной” релаксации T_1 $\frac{1}{T_1} \approx n_e \frac{\Delta E}{E_F} \sigma_e v_F$

Плотность электронов проводимости (Au, Cu, Ag) $n_e \approx (6 \div 8) \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$

$$\sigma_e (M1, \mu = 0.45\mu_N, \Delta E = 10^{-5} \text{ eV}) \approx 10^{-31} \text{ cm}^{-2}$$

E.Tkalya, PRC 86 (2012) 054605.

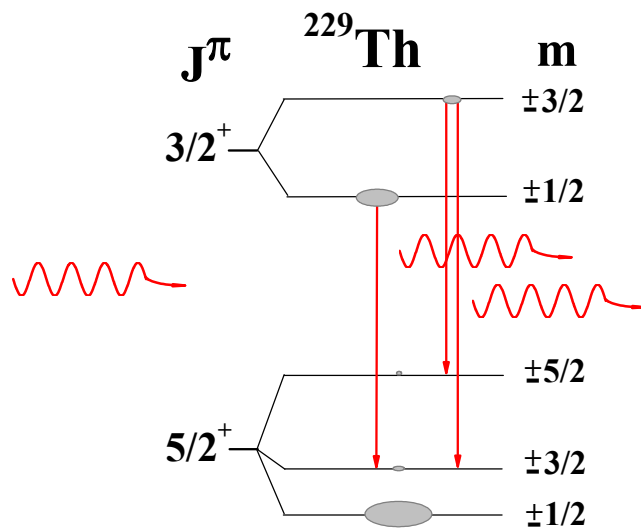
$$v_F = \sqrt{2E_F / m_e} \approx 4.6 \times 10^8 \text{ cm}^{-1}$$

$$T_1 \leq 100 \text{ d}$$

E.Klein, *Relaxation Phenomena*. In: *Low-Temperature Nuclear Orientation*. Eds. N.J.Stone and H. Postma, (North-Holland, Amsterdam, 1986) p.579.

...In insulators without electronic moments... (i.e. in pure crystals)... at millikelvin temperatures... T_1 would exceed the age of the Universe...

Усиление гамма-излучения 7.8 эВ за счет стимулированного излучения ансамбля изомерных ядер $^{229\text{m}}\text{Th}$.



**Коэффициент
усиления $\chi \approx 3 \text{ cm}^{-1}$**

$$\chi = \frac{\lambda_{is}^2}{2\pi} \frac{\Gamma_{rad}}{\Delta\omega_{tot}} \frac{1}{1 + \alpha} \left(n_{is} - \frac{n_{gr}}{g} \right) - \kappa$$

$$n_{gr}(t=0) = 10^{18} \quad n_{is} \approx 2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$$

$$\lambda_{is} = 2\pi / E_{is} = 163 \pm 11 \text{ nm}$$

$$\Gamma_{rad} = \ln 2 / T_{1/2}^{is} \approx 3 \times 10^{-19} \text{ eV}$$

$$T_{1/2}^{is} \approx 25 \text{ min} \quad \alpha = 0$$

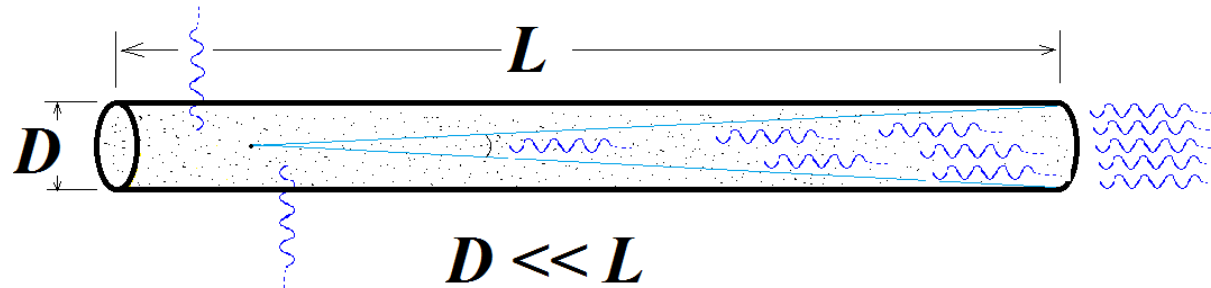
W. Rellergert et al., PRL **104** (2010) 200802

$$\Delta\omega_{tot} \leq 7 \times 10^{-13} \text{ eV}$$

$$\kappa \approx 1 \quad (\kappa \rightarrow 0.01) \text{ cm}^{-1}$$

(the linear attenuation coefficient)

Простейший лазер, который будет сам генерировать импульсы.



$$\chi = 3 \text{ cm}^{-1}, D = 0.1 \text{ mm}, L = 5 \text{ cm}, \text{ the gain } \exp(\chi L) \approx 10^6$$

$$^{229}\text{Th} : m = 1 \text{ } \mu\text{g} \quad n_{\text{gr}}(0) = 10^{18} \div 10^{19} \text{ cm}^{-3} \quad n_{\text{is}} = 2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$$

Излучение будет иметь вид последовательности импульсов с частотой повторения

$$f_{\text{rep}} = Q_{\text{is}} (D/L)^2 \approx 10^4 \div 10^5 \text{ s}^{-1}, \text{ where } Q_{\text{is}} = \frac{\ln 2}{T_{1/2}^{\text{is}}} N_{\text{is}} \approx 2 \times 10^{10} \text{ s}^{-1}$$

Продолжительность излучения γ -лазера

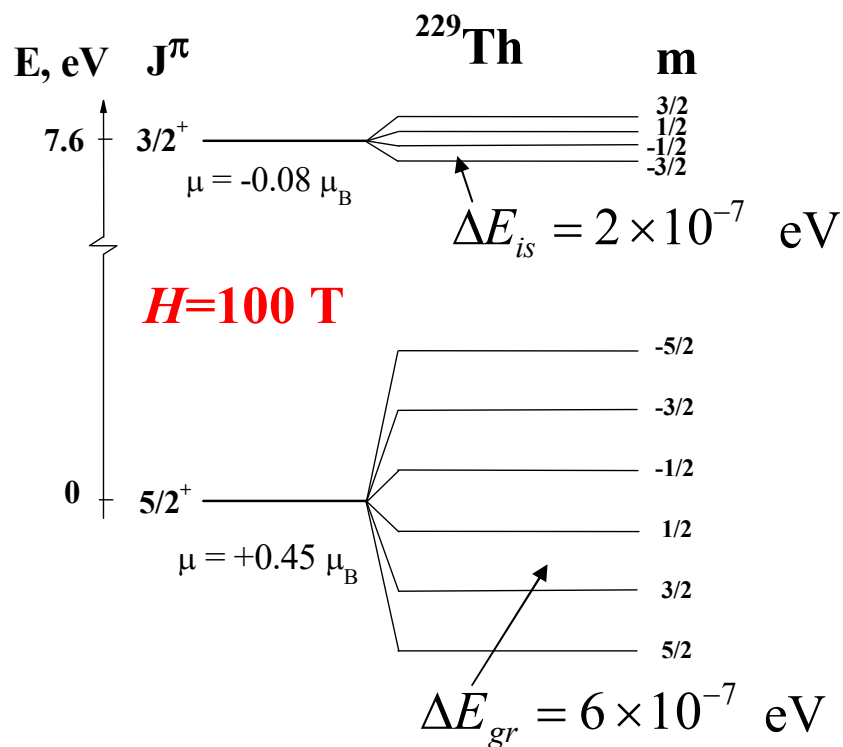
$$\tau \approx T_{1/2}^{\text{is}} (L/D)^2 \exp(-\chi L) \approx 100 \text{ s}$$

Средняя мощность γ -лазера $P \approx 10^{-6} \div 10^{-7} \text{ W}$.

Какую выбрать схему?

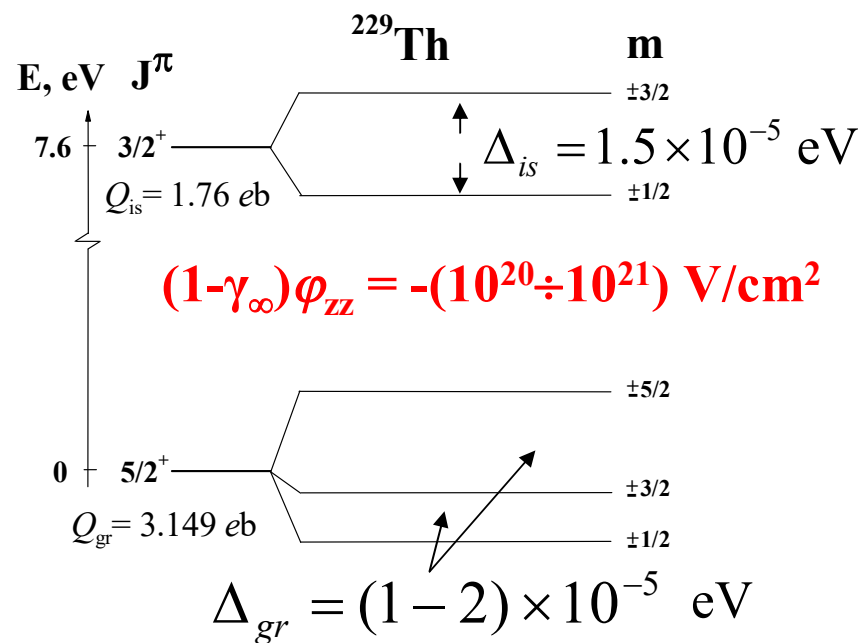
Квадрупольное или зеемановское расщепление?

The $^{229}\text{Th}:\text{LiCaAlF}_6$ crystal:



$$\Delta E_{gr(is)} = \frac{\mu_{gr(is)} H}{J_{gr(is)}}$$

Необходима экстремально низкая температура $T = 0.01$ К ($kT = 8.6 \times 10^{-7}$ eV)



$$E_m = eQ_{gr(is)}(1 - \gamma_\infty)\varphi_{zz} \frac{3m^2 - J_{gr(is)}(J_{gr(is)} + 1)}{4J_{gr(is)}(2J_{gr(is)} - 1)}$$

Эксперимент возможен при температуре $T = 0.1$ К

Перспективные кристаллы

W.G. Rellergert et al. *Phys.Rev.Lett.* **104**, 200802 (2010)

Na_2ThF_6 – (?) Энергия электрического квадрупольного взаимодействия, вероятно, мала в кристалле Na_2ThF_6 , т.к. нет дополнительных (компенсирующих) отрицательных ионов в окрестности иона Th^{4+} .

LiCaAlF_6 (LiCAF) $\text{Ca}^{2+} \rightarrow \text{Th}^{4+} + 2\text{F}^-$

LiSrAlF_6 (LiSAF) $\text{Sr}^{2+} \rightarrow \text{Th}^{4+} + 2\text{F}^-$

LiYF_4 (YLF) $\text{Y}^{3+} \rightarrow \text{Th}^{4+} + \text{F}^-$

CaF_2 $\text{Ca}^{2+} \rightarrow \text{Th}^{4+} + 2\text{F}^-$

A. Ritucci et al. *LLNL Preprint UCRL-JRNL-219656* (2006)

LiF – 13.6-14.5 eV, BaF_2 – 9.1 eV, SiO_2 – 8.9 eV

Часть 3

Ядерные часы

Nuclear laser spectroscopy of the 3.5 eV transition in Th-229

E. PEIK(*) and CHR. TAMM

*Physikalisch-Technische Bundesanstalt - Bundesallee 100
38116 Braunschweig, Germany*

PRL **102**, 233004 (2009)

PHYSICAL REVIEW LETTERS

week ending
12 JUNE 2009

Multiply Charged Thorium Crystals for Nuclear Laser Spectroscopy

C. J. Campbell,¹ A. V. Steele,¹ L. R. Churchill,¹ M. V. DePalatis,¹ D. E. Naylor,¹
D. N. Matsukevich,^{1,2} A. Kuzmich,^{1,*} and M. S. Chapman¹

¹*School of Physics, Georgia Institute of Technology, Atlanta, Georgia 30332-0430, USA*

²*Department of Physics and Joint Quantum Institute, University of Maryland, College Park, Maryland 20742, USA*

(Received 19 February 2009; published 12 June 2009)

We have produced laser-cooled crystals of $^{232}\text{Th}^{3+}$ in a linear rf Paul trap. This is the first time that a multiply charged ion has been laser cooled. Our work opens an avenue for excitation of the nuclear transition in a trapped, cold $^{229}\text{Th}^{3+}$ ion. Laser excitation of nuclear states would establish a new bridge between atomic and nuclear physics, with the promise of new levels of metrological precision.

Single-Ion Nuclear Clock for Metrology at the 19th Decimal Place

C. J. Campbell,^{1,*} A. G. Radnaev,¹ A. Kuzmich,¹ V. A. Dzuba,² V. V. Flambaum,² and A. Derevianko³

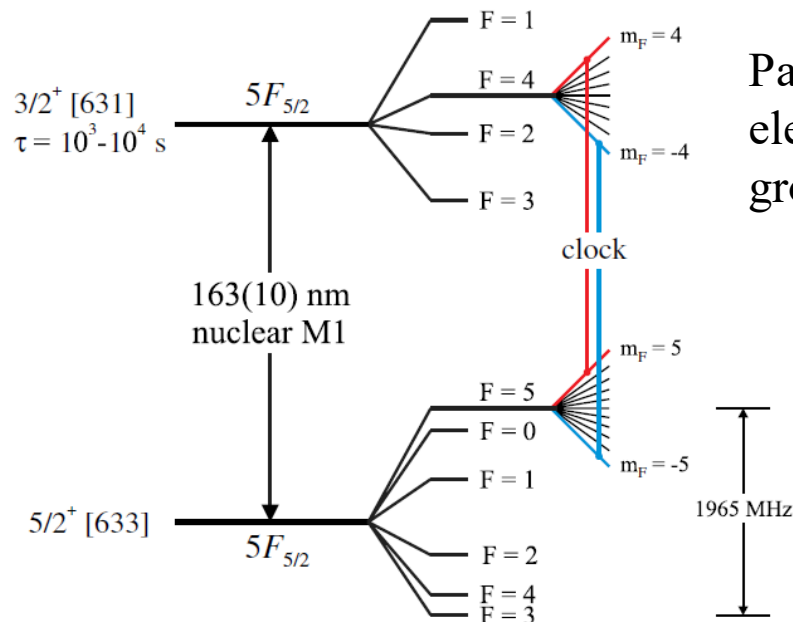
¹*School of Physics, Georgia Institute of Technology, Atlanta, Georgia 30332-0430, USA*

²*School of Physics, University of New South Wales, Sydney 2052, Australia*

³*Department of Physics, University of Nevada, Reno, Nevada 89557, USA*

(Received 7 October 2011; published 22 March 2012)

The 7.6(5) eV nuclear magnetic-dipole transition in a single $^{229}\text{Th}^{3+}$ ion may provide the foundation for an optical clock of superb accuracy. A virtual clock transition composed of stretched states within the $5F_{5/2}$ electronic ground level of both nuclear ground and isomeric manifolds is proposed. It is shown to offer unprecedented systematic shift suppression, allowing for clock performance with a total fractional inaccuracy approaching 1×10^{-19} .



Partial energy-level diagram of the $5F_{5/2}$ electronic ground levels within the nuclear ground and isomer manifold of $^{229}\text{Th}^{3+}$

Обратный электронный мостик

В атоме Th

E.V. Tkalya, JETP Lett. **55**, 211 (1992),
Sov. J. Nucl. Phys **55**, 1611 (1992),
Phys. Scr. **53**, 296 (1996)

В ионе Th⁺

S. G. Porsev et al. Phys. Rev. Lett. **105**, 182501 (2010)

