

Op weg naar een kernklok

Om met een grote nauwkeurigheid de tijd te kunnen meten, gebruiken atoomklokken overgangen van elektronen in atomen. Hoewel de nauwkeurigheid van deze atoomklokken voortdurend verbetert, werken wetenschappers daarnaast ook aan een nieuw type klok met een fundamenteel verschillende aanpak: de kernklok. Deze klok maakt gebruik van de quantumtoestanden in de kern van een atoom, en kan in de toekomst gebruikt worden om verscheidene fundamentele vraagstukken zoals de tijdsafhankelijkheid van de fijnstructuurconstante te onderzoeken.

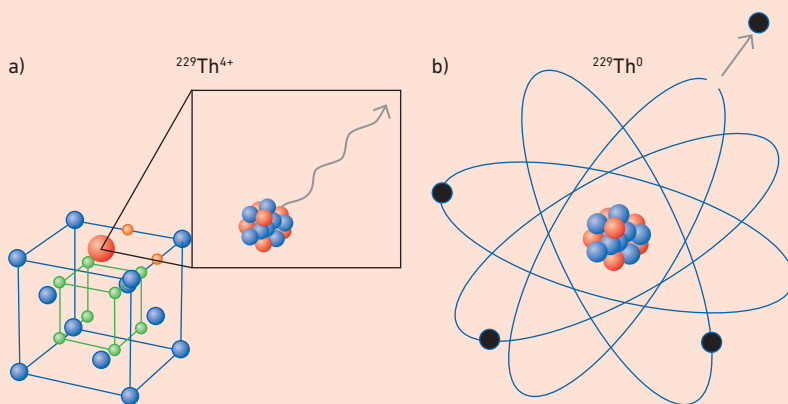
Sinds het bestaan van de mensheid speelt het meten van de tijd een cruciale rol. Zo ontwikkelden verschillende culturen onafhankelijk van elkaar kalendersystemen die gebaseerd zijn op astronomische observaties. Deze systemen werden aangevuld met primitieve klokken zoals zonnewijzers of wateruurwerken. Die hadden echter een beperkte nauwkeurigheid waarvoor op regelmatige tijdstippen synchronisatie met een tijdsreferentie nodig was. Dit gebeurde meestal door astronomische observaties. Pas in de zeventiende eeuw bereikten klokken voldoende nauwkeurigheid om bijvoorbeeld de beweging van sterren en planeten zelf te onderzoeken. Zo ontstond de metrologie van de tijd als zelfstandig onderzoeksdomein. Dankzij nieuwe methodologieën en technologische vooruitgang is het mogelijk de tijd alsmat nauwkeuriger te bepalen. Zo ontwikkelde het National Physics Laboratory in het Verenigd

Koninkrijk in de jaren vijftig van de vorige eeuw de eerste atoomklok. Vervolgens werd door de hervorming van het *Système International d'unités* (SI-stelsel) in 1967 de definitie van de seconde op basis van de aardbeweging geschrapt. Vanaf toen werd de seconde gedefinieerd aan de hand van de quantummechanische overgang tussen de twee laagste hyperfijn toestanden in het cesium-133-atoom. Die transitie komt overeen met een frequentie van 9,192631770 gigahertz en ligt daarmee in het microgolfregime. De moderne atoomklokken bereiken tegenwoordig een relatieve onzekerheid van deze primaire standaard van de tijd van 10^{-16} .

Van een atoomklok naar een kernklok

De hoogste absolute nauwkeurigheid van de klokslag op de lange termijn wordt bereikt door middel van kloktransities met een zo hoog mogelijke frequentie. Om een elektron in een quantummechanisch tweenniveausys-

teem met een laser van de grondtoestand naar een aangeslagen toestand te brengen, gebruiken de nauwkeurigste atoomklokken daarom zichtbaar of ultraviolet licht uit een laser. Deze zogenoemde optische atoomklokken gebruiken frequenties die doorgaans een factor 10^5 hoger liggen dan die van cesiumatoomklokken. Schommelingen van de elektromagnetische velden in de omgeving leiden tot kleine verschuivingen van de grond en aangeslagen toestanden. De relatieve impact op een hoge frequentie in een optische klok is echter veel kleiner dan bij een lage frequentie in een cesiumklok. Door de fluorescentie van de atomen bij succesvolle excitatie te detecteren, wordt de golflengte van het laserlicht met de kloktransitie gestabiliseerd. De hoge frequentie wordt vervolgens met behulp van een frequentiekam naar een lagere frequentie geconverteerd en gemeten. Een frequentiekam is een toestel dat het mogelijk maakt om een optische frequentie om te zetten naar



Figuur 1. Verval van het ^{229}Th -isomeer in verschillende omgevingen (gesloten elektronenschillen worden niet getoond). a) Het $^{229}\text{Th}^{4+}$ -ion vervalt door een foton uit te zenden. Deze situatie wordt ook in een calciumfluoridekristal verwacht. b) Het ^{229}Th -atoom vervalt door elektronconversie.

een elektronisch meetbare frequentie. In een atoomklok neemt deze de plaats in van het uurwerk, dat de hogere frequentie van de slinger naar de tragere omloopfrequentie van de wijzers overzet. Optische atoomklokken bereiken vandaag een relatieve nauwkeurigheid van ongeveer 10^{-18} .

Om een nog grotere nauwkeurigheid te bereiken, stelden Ekkehard Peik en Christian Tamm al in 2003 voor om de overgang van een elektron in een atoom te vervangen door een transitie in de atoomkern [1]. Atoomkernen nemen maar een fractie in van het hele atoom (zelfs voor zwaardere elementen zoals thorium is de kern al gauw 23.000 keer kleiner dan het atoom), en zijn daardoor zeer goed afgeschermd van externe elektromagnetische velden. Atomaire elektronen daarentegen worden hier veel meer aan blootgesteld. Dat leidt tot systematische verschuivingen van de frequentie, die de maximaal bereikbare nauwkeurigheid in optische atoomklokken negatief beïnvloedt. Onder de ongeveer 3400 bekende isotopen bestaat er echter maar één die een voor een klok geschikte transitie heeft: de kern van thorium-229. De eerste aangeslagen toestand van deze uitzonderlijke isotoop ligt slechts 8,4 elektronvolt boven de grondtoestand, terwijl typische kerntransities in het kilo- tot mega-elektronvoltregime liggen, zo'n drie tot zes grootteordes

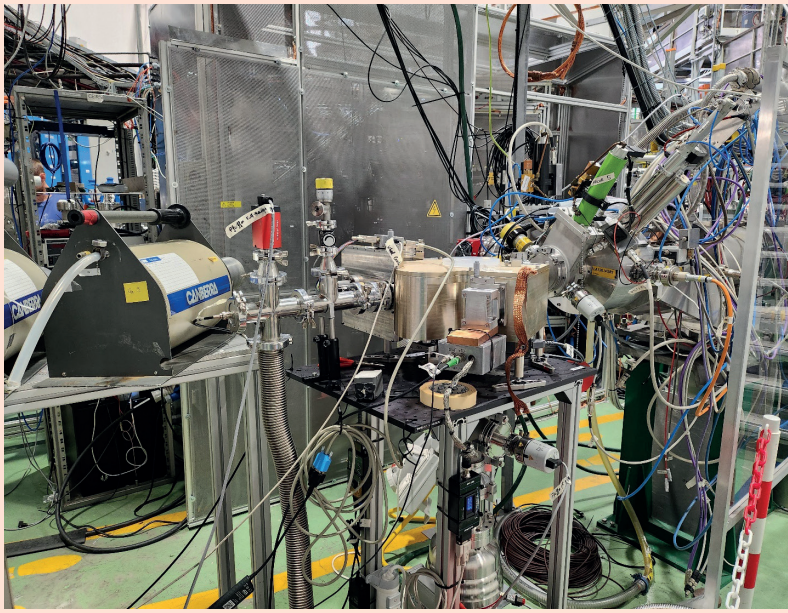
hoger. Het energieverval met de grondtoestand komt overeen met een golflengte van ongeveer 148,4 nanometer in het vacuüm-ultraviolette gedeelte van het elektromagnetische spectrum. De hedendaagse laser-technologie kan dit gebied nog niet bereiken. Tegelijkertijd verwachten we dat deze toestand een relatief lange halveringstijd heeft, een kernisomeer dus. Voor een geschikte kloktransitie is het namelijk ook belangrijk dat de spectrale breedte van de transitie heel erg klein is, en die is omgekeerd evenredig met de halveringstijd. Op basis van bovenstaande redenering en gegevens zou er een kernklok met een verwachte nauwkeurigheid van 10^{-19} ontwikkeld kunnen worden, wat ruim tien keer nauwkeuriger is dan de beste bestaande atoomklokken.

Een unieke kans voor fundamenteel onderzoek

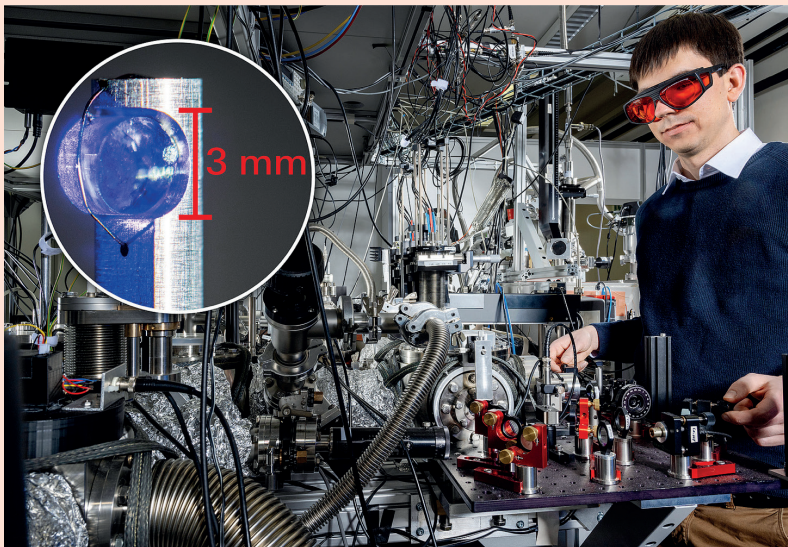
Het grootste potentieel zit echter in de verschillende aard van de transitie en de mogelijkheden voor nieuw fundamenteel onderzoek, dat met atoomklokken alleen niet mogelijk is [2]. Onze kennis over de evolutie van het universum is immers gebaseerd op een aantal fundamentele en experimenteel grondig geteste modellen zoals het standaardmodel van de deeltjesfysica. Toch zijn er nog steeds een aantal tekortkomingen. Zo bestaat het heelal voor een significant deel uit zoge-

noemde donkere materie en donkere energie. Het standaardmodel kan dit gedeelte niet beschrijven. Een van de mogelijke verklaringen is dat fundamentele constanten niet constant zijn in de tijd. De fijnstructuurconstante bijvoorbeeld beschrijft de sterkte van de koppeling tussen geladen deeltjes en fotonen en bepaalt mee of materie zoals wij het rond ons zien überhaupt kan ontstaan. Deze natuurconstante is heel nauwkeurig bestudeerd, en we kunnen al een relatieve verandering van meer dan 10^{-18} per jaar uitsluiten. In een atoomklok bepaalt enkel de elektromagnetische kracht (via uitwisseling van fotonen) de transitiefrequentie, terwijl in een ^{229}Th -kernklok ook de kernkracht een even grote rol zou spelen. Een verandering van de fijnstructuurconstante zou dus de transitiefrequenties met de tijd van een kern- en een atoomklok verschillend verschuiven. Men verwacht dat de vergelijking tussen deze twee soorten klokken tienduizend tot honderduizend keer gevoeliger is dan huidige technieken om een tijdelijke verandering van deze fundamentele constante te meten in vergelijking met atoomklokken.

Een verandering op dit niveau van nauwkeurigheid impliceert een effect dat het standaardmodel van de deeltjesfysica niet kan verklaren. Zo zouden modellen die de aanwezigheid van een bepaald licht type donkere materie



Figuur 2. De vacuüm-ultraviolet-spectrometer in het ISOLDE-laboratorium van CERN. Met deze proefopstelling werd het fotonverval van het thoriumisomeer voor de eerste keer gemeten waardoor kristallen voor hun gebruik in een toekomstige vastestofkernklok gekarakteriseerd kunnen worden. In het midden staat de spectrometer die gebruikt wordt om de golflengte van de fotonen te meten. De ionenbundels komen van rechts. Links staat een germaniumdetector voor de detectie van gammastraling. Foto: KU Leuven.



Afbeelding 3. Proefopstelling aan de Physikalisch Technische Bundesanstalt waar de eerste laserexcitatie van ^{229m}Th aangetoond kon worden. Vacuüm-ultraviolette fotonen worden door lucht geabsorbeerd, de proefopstelling bevindt zich daarom onder vacuüm. De 148,3 nm fotonen worden door een niet-lineair proces uit ultraviolette en zichtbare fotonen geproduceerd. De kleine afbeelding toont het in het laserlicht fluorescerende calciumfluoridekristal met ^{229}Th . Foto: PTB.

voorspellen, bevestigd of ontkracht kunnen worden. Ook al is de weg naar een werkende kernklok nog lang, we durven vandaag al te stellen dat de combinatie van een kernklok met een atoomklok een uiterst interessante en gevoelige quantumsensor voor fundamenteel onderzoek vormt.

Een lange zoektocht

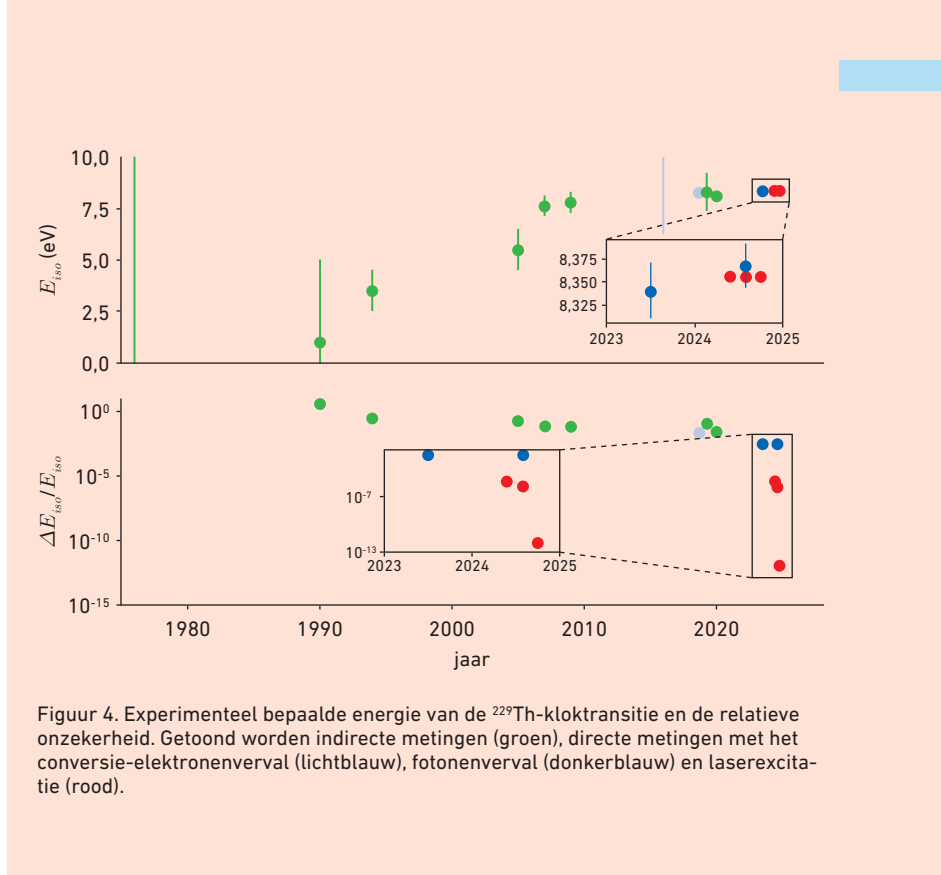
Het thorium-229-isomeer is al sinds de jaren zeventig van de vorige eeuw in de literatuur terug te vinden en verschillende metingen leverden indirect bewijs op voor het bestaan ervan. Alle pogingen om de fotonen van het verval van het isomeer rechtstreeks te meten, mislukten echter of bleken later op basis van een foute detectie te zijn gebeurd. Zonder zekerheid over het daadwerkelijke bestaan van deze kloktransitie, bleef het concept van een kernklok niet meer dan een mooi idee.

Pas in 2016 werd direct experimenteel bewijs geleverd voor het bestaan van het isomeer. De onderzoekers gebruikten hiervoor een zeldzaam, kunstmatig geproduceerde uraniumisotoop om thorium-229 in zijn isomere toestand te produceren. Bij het alfaverval van uranium-233 komt 2 procent in de aangeslagen toestand terecht en 98 procent in de grondtoestand. Die 2 procent vervalt op zijn beurt naar de grondtoestand met een bepaalde levensduur. Dit kan op twee manieren gebeuren (zie figuur 1). De kern ondergaat óf een stralingsverval door het uitzenden van een foton, ofwel zijn er elektronen dicht genoeg bij de kern beschikbaar om de 'overtollige' energie op te kunnen nemen. In de plaats van een foton, komt er dan een zogenoemd conversie-elektron vrij. In de meeste chemische omgevingen is de kans dat dat laatste gebeurt tijdens het verval van het isomeer 10^9 keer groter dan de kans op een fotonverval. De onderzoekers detecteerden deze conversie-elektronen en konden zo de energie van het isomeer met een onzekerheid van 170 meV meten. Ze vonden ook dat de levensduur van het isomeer bij conversieverval $10 \mu\text{s}$ bedraagt. Dit was al een belangrijke stap, maar voor een toekomstige kernklok met de

hoogste nauwkeurigheid is alleen het stralingsverval geschikt.

CERN schiet te hulp

De uitdaging is dus om het vaak dominante conversieverval te onderdrukken en het ^{229}Th -isomeer te dwingen een foton uit te zenden. Dat betekent het zoeken naar een chemisch milieu waarin geen elektronen voor verval beschikbaar zijn en waarin de fotonen van de kern tot de detector kunnen geraken. Tegelijkertijd zijn er door de 10^9 maal langere levensduur van het stralingsverval een groot aantal kernen in de isomere toestand nodig om een voldoende signaal-tot-achtergrondverhouding in de detector te bereiken. Dat is enkel mogelijk indien we een grote dichtheid aan ^{229}Th -kernen in een kristal plaatsen. In een kristal zijn elektronen namelijk gerangschikt in energiebanden die van elkaar gescheiden zijn door ‘verboden zones’ (of bandkloven). Als die verboden zone groot genoeg is, kan het conversieverval niet plaatsvinden. Magnesiumfluoride en calciumfluoride zijn voorbeelden van materialen die hiervoor gebruikt kunnen worden. Een nieuwe aanpak laat ons ook toe om meer van het ^{229}Th -isomeer te produceren. In plaats van het eerder vermelde alfaverval van ^{233}U te gebruiken, kunnen we het isomeer produceren via het bètaverval van actinium-229. ^{229}Ac is een radio-isotoop met een relatief korte levensduur van ongeveer een uur, en het vervalt in minstens 14 en maximaal 94 procent van de gevallen naar de isomere toestand. Het exacte percentage is tot op heden nog niet bekend. Dit kunstmatige isotoop moet met behulp van een deeltjesversneller of een reactor geproduceerd worden. Dit is bijvoorbeeld mogelijk in het ISOLDE-laboratorium van de Europese organisatie voor kernonderzoek (CERN) in Genève. Door protonen met een energie van 1,4 giga-elektronvolt af te schieten op een doel van urani-kernen ontstaan heel wat nieuwe kernen, waaronder ook ^{229}Ac . Die kunnen vervolgens geïoniseerd worden en geselecteerd worden op massa. Zo krijg je een ionenbundel die via een reeks dipool- en quadrupoolmagneten



Figuur 4. Experimenteel bepaalde energie van de ^{229}Th -kloktransitie en de relatieve onzekerheid. Getoond worden indirecte metingen (groen), directe metingen met het conversie-elektronenverval (lichtblauw), fotonenverval (donkerblauw) en laserexcitatie (rood).

naar de proefopstelling wordt geleid. In een eerste fase wilde een team van onderzoekers van de KU Leuven aantonen dat de kernen van thorium-229, na implantatie in calciumfluoride, wel degelijk in een chemisch milieu terecht komen dat het conversieverval onderdrukt. Hiervoor gebruikte men de techniek van elektronenkanalisatie. Dat is een techniek waarbij het bètaverval van radioactieve kernen in een kristalrooster gemeten wordt. Aangezien de roosterstructuur van het kristal ervoor zorgt dat die bèta-elektronen langs de assen van dat rooster ‘gekanaliseerd’ worden, kan men zo de positie van de radioactieve kernen in het kristal bepalen. In de tweede fase werd een proefopstelling voor vacuüm-ultraviolet-spectroscopie van kernen in kristallen ontwikkeld (zie figuur 2). De ionenbundels met de bètavalketen die ^{229}Ac bevat, worden in een kristal geïmplanteerd. Vervolgens wordt dat kristal voor de spectrometer geplaatst, waarna het verval van ^{229}Ac het thoriumisomeer produceert. Bij het daaropvolgende verval van het ^{229}Th -isomeer wordt er een foton van rond de 8 elektronvolt uitgezonden, dat met de spectrometer gedetecteerd kan wor-

den. Met deze nieuwe techniek werd het stralingsverval van het isomeer voor de eerste keer gemeten en werd de energie van de transitie nauwkeuriger bepaald [3,4].

Plots komt er schot in de zaak

Omdat de werkzame doorsnede voor excitatie met een foton van het isomeer heel klein is en de levensduur lang, is een vacuüm-ultraviolette laser met een heel hoge intensiteit en smalle lijnbreedte nodig. Dit is een enorme uitdaging, die wetenschappers aan de Physikalisch Technische Bundesanstalt, het Duitse metrologisch instituut, zijn aangegaan. Toen de overgangenergie eenmaal nauwkeuriger bekend was, konden zij hun lasersysteem afmaken (figuur 3). Onderzoekers van de Technische Universiteit Wenen zorgden voor de nodige ^{229}Th -gedopeerde kristallen. Nauwelijks een jaar later publiceerden zij hun resultaten die een volgende mijlpaal waren op de weg naar een kernklok. Voor het eerst toonden ze de excitatie van het isomeer van ^{229}Th met een laser aan en verbeterden ze de energiewaarde met bijna drie grootteordes [5]. En net op dit resultaat waren hun



Sandro Kraemer doceerde aan de KU Leuven over het stralingsverval van thorium-229. Nadien was hij postdoc aan de LMU München. Momenteel werkt hij aan het Instituut voor Kern- en Stralingsfysica van de KU Leuven rond de kernklok en de toepassingen van radioactieve ionenbundels. sandro.kraemer@kuleuven.be



Yens Elskens is een doctoraatsstudent aan het Instituut voor Kern- en Stralingsfysica (IKS) aan de KU Leuven. Hij onderzoekt er het fotonverval van het ^{229}Th -isomeer met behulp van vacuüm-ultraviolet-spectroscopie. yens.elskens@kuleuven.be

Amerikaanse collega's verbonden aan het National Institute of Standards and Technology aan het wachten. Met de nauwkeurigere kennis van de transitie-eigenschappen en de benodigde kristallen konden zij immers met hun vacuüm-ultraviolette frequentiekameler de nauwkeurigheid van de energie met zes grootteordes (zie figuur 4) verbeteren en deze tegelijkertijd aan de frequentie van een optische strontium-atoomklok koppelen [6,7]. Deze proefopstelling, die al redelijk dicht bij een kernklok komt, maakt het mogelijk om het effect van het kristal op de kloktransitie beter te bestuderen.

Naar een vastestof-kernklok

Met ^{229}Th in deze kristalomgeving wordt er ook een nieuw type klok mogelijk, namelijk de vastestof-kernklok. De orbitale structuur van een atoom begint namelijk te veranderen als twee atomen of ionen in elkaars buurt komen. Optische atoomklokken moeten atomen of ionen in een deeltjesval daarom op relatief grote afstanden houden. Daardoor is hun totale aantal tussen één en een paar tientallen gelimiteerd.

Als een atoom in een kristal wordt ingebouwd, verandert de orbitale structuur significant (de buitenste elektronen beginnen elektronische banden te vormen). Bij een atoomkern blijft het effect op de energieniveaus daarentegen redelijk beperkt. Dit verschil maakt het mogelijk om een groot aantal kernen tegelijkertijd in het brandpunt van de excitatielaser te plaatsen waardoor de stabiliteit van een kernklok met meerdere grootteordes verhoogt. Dit type klok zal uiteindelijk door de blijvende kleine interactie tussen de kern en haar omgeving niet de precisie van een op een ionenval gebaseerde optische klok bereiken. Toch zal dit in tegenstelling tot de lange uitmiddelingstijden van een klassieke atoom- of kernklok een precies signaal binnen enkele seconden kunnen opleveren.

Dit type klok is in de toekomst nuttig voor een aantal toepassingen. De algemene relativiteitstheorie stelt dat er een tijdsdilatatie door de zwaartekracht is. Voor klokken betekent dit dus dat de gemeten frequentie van de hoogte en massaverdeling in de buurt afhangt. Zo heeft het relativistisch effect van de geoïde vorm en de massaverdeling van de aarde vandaag

al met de meest precieze klokken een invloed op de gemeten frequentie. Met een hogere precisie en een hogere stabiliteit dan de beste atoomklokken zouden kernklokken gebruikt kunnen worden om veranderingen onder de grond te meten en zo helpen om de toestand van bijvoorbeeld een magmakamer in een vulkaan te monitoren. Maar ook op industriële schaal is het potentieel groot. Zo hangen niet alleen gps-navigatiesystemen, maar ook moderne telecommunicatienetwerken zoals 5G vandaag al af van zo'n frequentiestandaard. De vastestofaanpak maakt een uitrol naar de industrie mogelijk, die in de toekomst stabielere, compactere en energiezuinigere klokken zou kunnen opleveren en zo aan de verdere digitalisering bijdragen.

De verdere route richting kernklok

Het concept van de kernklok heeft niet alleen een groot potentieel voor fundamenteel onderzoek, maar ook voor praktische toepassingen. Zo zou het op termijn een belangrijke bijdrage kunnen leveren om grote, openstaande vragen in de natuurkunde te beantwoorden. Terwijl optische atoomklokken na een ontwikkelingstijd van ongeveer 25 jaar verbazingwekkende nauwkeurigheidsniveaus bereikten, staat de ontwikkeling van een kernklok nog steeds in de kinderschoenen. De laatste jaren schoot echter ook de ontwikkeling van de kernklok in een hogere versnelling. Maar zelfs als de eerste kernklok binnen enkele jaren ergens in een laboratorium tikt, blijft er nog veel werk om bijvoorbeeld de eigenschappen van de kern in haar omgeving en de resulterende nauwkeurigheid te bestuderen. Mogelijk kunnen kernklokken dan ook worden opgenomen in de herziening van de definitie van tijd binnen het SI-stelsel, die voor de jaren 2030 is voorzien.

REFERENTIES

- 1 E. Peik en C. Tamm, *Eur. Phys. Lett.* **61**, 181 (2003).
- 2 P.G. Thirolf, B. Seiferle en L. von der Wense, *Annalen d. Physik* **531**, 1800381 (2019).
- 3 S. Kraemer et al., *Nature* **617**, 706 (2023).
- 4 Persbericht van CERN: <https://home.cern/news/news/physics/isolde-takes-solid-tick-forward-towards-nuclear-clock>.
- 5 Tiedau et al., *Phys.Rev.Let.* **132**, 18, 182501 (2023).
- 6 Zhang et al., *Nature* **633**, 63-70 (2024).
- 7 www.science.org/content/article/breakthrough-promises-new-era-ultraprecise-nuclear-clocks.