

## Thorium-229-Kernuhren für ultragenauere Zeitmessung und Quantensensorik

# Mehr als ein hochgenauer Zeitmesser

PETER G. THIROLF | SANDRO KRAEMER | JOHANNES WEITENBERG

*Ein einziger exotischer Kernzustand in  $^{229}\text{Th}$  eignet sich, um daraus eine höchstgenaue Kernuhr als Konkurrenz zu den etablierten Atomuhren aufzubauen. Daraus ergeben sich faszinierende neue Perspektiven für vielfältige Anwendungen, nicht nur als Zeitmesser. Eine Kernuhr wäre auch ein interessanter Sensor für neue Physik, was eine etwaige zeitliche Veränderung von Naturkonstanten oder die Suche nach ultraleichter Dunkler Materie einschließt.*

Zeit und Zeitmessung begleiten den Alltag der Menschen, seit den ersten Sonnenuhren der Sumerer vor über 5000 Jahren über die mechanischen Wunderwerke des 18. und 19. Jahrhunderts bis zu den heute besten Zeitmessern auf der Basis von energetischen Übergängen in der atomaren Elektronenhülle. Seit 1967 ist die SI-Einheit der Sekunde über einen Mikrowellen-Übergang in der Elektronenhülle des Atoms Cäsium-133 definiert. Cäsium ist dafür besonders geeignet, da es nur ein natürlich vorkommendes Isotop besitzt und weil die Erzeugung eines Atomstrahls dank seiner niedrigen Verdampfungstemperatur einfach zu realisieren ist. Etwa 105-mal höhere Frequenzen werden in optischen Atomuhren verwendet, die sich noch in der Laborentwicklung befinden. Dabei erreichen die besten optischen Atomuhren schier unfassbare Genauigkeiten mit Gangabweichungen von einer Sekunde in etwa dreißig Milliarden Jahren, mehr als das doppelte Alter unseres Universums. Und doch strebt die Forschung nach noch genaueren Uhren.

Alle Uhren arbeiten nach einem einfachen Prinzip: Man benötigt ein schwingungsfähiges System (Oszillator), das stabil auf seiner Resonanzfrequenz angetrieben wird, und ein „Uhrwerk“, um die Schwingungen dieses Systems zu zählen. Im Fall einer optischen Atomuhr verwendet man als Oszillator einen Übergang zwischen zwei Zuständen in der Elektronenhülle ausgewählter Atome, der mit einem auf die Oszillatorfrequenz stabilisierten Laser angeregt wird. Als Uhrwerk fungiert ein Frequenzkamm (siehe „Funktionsweise eines Frequenzkamms“ auf S. 4), mit

dem die hohen optischen Frequenzen in einen elektronisch messbaren Bereich unteretzt werden.

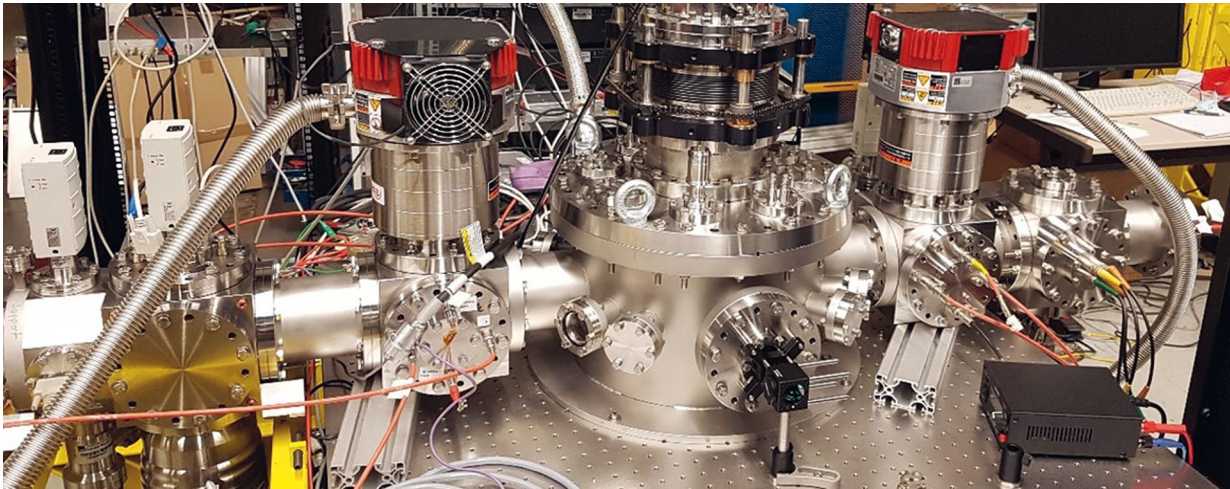
Um in einen Bereich noch höherer Genauigkeit vorzustoßen, wurde bereits 2003 die Verwendung eines Übergangs in einem Atomkern anstelle eines Übergangs in der atomaren Elektronenhülle als Grundlage der Zeitmessung vorgeschlagen [1]. Aufgrund des Größenunterschieds von Atomen und Kernen um etwa fünf Größenordnungen ergibt sich eine drastisch reduzierte Kopplung des Kerns an elektromagnetische äußere Störfelder. Damit verspricht eine sogenannte Kernuhr eine geringere Anfälligkeit gegenüber äußeren Störungen und damit einen genaueren und stabileren Betrieb verglichen mit Atomuhren.

Natürlich stellt sich sofort die Frage, für welche Zwecke solche extrem genauen Kernuhren interessant wären. Im Laufe der Zeit wurden eine Vielzahl von Anwendungen vorgeschlagen, von der fundamentalen Physik bis zu praktischen Anwendungen. Entweder ließen sich mit ihnen die durch die derzeit besten Atomuhren gesetzten Grenzen weiter verschieben, oder man würde exklusiv die Eigenschaften des verwendeten Kernübergangs ausnutzen. Dabei wäre eine Kernuhr mehr als ein hochgenauer Zeitmesser, da hier neben der elektromagnetischen Kraft auch die starke Kernkraft Einfluss auf die Frequenz des Uhrenübergangs hätte. Damit wäre eine Kernuhr für Effekte empfindlich, die von Atomuhren nicht registriert werden können. Dies würde eine Kernuhr zu einem neuartigen Quantensensor machen, zum Beispiel für die Suche nach neuer Physik jenseits des Standardmodells der Teilchenphysik [2–4]. Schauen wir uns genauer an, welche physikalischen Fragestellungen mit Kernuhren angegangen werden können.

### Grundlegende und angewandte Fragestellungen

Unser physikalisches Verständnis der Naturphänomene basiert auf Theorien, die sich auf Quantenfelder, Symmetrien und Naturkonstanten stützen. Letztere sind Parameter, die sich nicht durch die Theorie selbst erklären lassen, wie etwa die Kopplungskonstante der elektromagnetischen Wechselwirkung, die Feinstrukturkonstante  $\alpha$ . Etliche Theorien sehen die Möglichkeit zeitlich und räumlich ver-

*This is an open access article under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License, which permits use, distribution and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited and is not used for commercial purposes.*



**Experimenteller Aufbau zur Erzeugung der  $^{229m}\text{Th}$ -Ionen samt Transportstrecke (links) in eine kryogene Ionenfalle (Mitte) und Extraktionsstrecke (rechts) zur Diagnose.**

änderlicher Naturkonstanten vor. So beträgt für  $\alpha$  die derzeit beste gemessene obere Grenze für eine relative zeitliche Veränderung  $(1,0 \pm 1,1) \cdot 10^{-18}$  pro Jahr. Demgegenüber verspricht die Verwendung des Thoriumisomers – auf die Definition der Kernisomerie kommen wir noch zurück – in einer Kernuhr eine um vier bis fünf Größenordnungen erhöhte Empfindlichkeit [2]. Realisiert werden könnte das in Messungen von zeitabhängigen Verhältnissen der Uhrenfrequenzen von Atom- und Kernuhren.

Kernuhren können überdies einen Beitrag zur Klärung einer der spannendsten Fragen der modernen Physik leisten: der Natur der Dunklen Materie (DM). Das ist jener Anteil der im Universum nicht sichtbaren, aber durch ihre Gravitationswirkung nachweisbaren Masse, für die es bislang nur Modelle zur Existenz weiterer Elementarteilchen gibt. Die Masse dieser DM-Teilchen ist auf einer Skala von zirka fünfzig Größenordnungen unbekannt. Hypothetische Dunkle-Materie-Teilchen mit einer Masse von weniger als 1 eV werden als „ultraleicht“ bezeichnet. Mit Kernuhren ließe sich nach Kandidaten für derart ultraleichte DM fahnden, denn ihre Signaturen könnten in Variationen von Naturkonstanten zu finden sein. Solche Variationen wären zu erwarten, wenn ultraleichte Dunkle Materie, die theoretisch als ein oszillierendes Feld beschrieben werden kann, an die Teilchen des Standardmodells koppelt. Diese Kopplung führt dann zur Oszillation von Naturkonstanten, was wiederum mittels Netzwerken von synchronisierten, ultrapräzisen Uhren nachgewiesen werden könnte [3].

Aber auch für praktische Anwendungen spielen hochgenaue Uhren eine wichtige Rolle, so zum Beispiel bei der Entwicklung immer genauerer satellitengestützter Navigationssysteme wie GPS oder Galileo. Die derzeitige Positionsgenauigkeit derartiger Systeme im Meterbereich kann langfristig auf Zentimeter oder gar Millimeter verbessert werden, mit weitreichenden Konsequenzen im Mobilitäts- oder Industriesektor. Zudem reagieren Atom- wie Kernuhren empfindlich auf das an ihrem Aufstellungsort herr-

schende Gravitationspotential und stellen daher einen 3D-Gravitationsensor dar. Bereits heutige optische Atomuhren mit relativen Ganggenauigkeiten von  $10^{-18}$  reagieren auf Höhenunterschiede von 1 cm mit einer messbar veränderten Uhrenfrequenz. Könnte man mittels einer Kernuhr diese Grenze weiter in den Millimeterbereich oder darunter drücken, ließen sich bereits frühzeitig Hinweise auf lokale Veränderungen des Gravitationspotentials zum Beispiel in der Umgebung von aktiven Vulkanen oder durch tektonische Plattenbewegungen gewinnen.

### Realisierung von Kernuhren

In einer Kernuhr des Typs auf Basis eines Thorium-229-Isomers, an dem auch unser Team an der Ludwig-Maximilians-Universität in München arbeitet, wird ein Laser mit schmaler Linienbreite den Uhrenübergang resonant anregen, während die Schwingungsfrequenz des Laserlichts mit einem Frequenzkamm gezählt wird. Nach einer bestimmten Zahl an Schwingungen, die durch die Frequenz des Kernübergangs bestimmt wird, ist eine Sekunde vergangen. Dies entspricht dem Funktionsprinzip von optischen Atomuhren, wobei nun deren Übergang in der Elektronenhülle durch einen Kernübergang ersetzt wird. Seit einiger Zeit wird auch untersucht, ob sich eine Kernuhr auf Basis des Scandium-45-Isotops realisieren ließe. Diese würde einen resonanten Röntgenübergang nutzen, der sich im Prinzip als hochenergetischer Uhrenübergang eignet. Das erfordert jedoch den Einsatz eines Röntgenlasers, also eines großen Beschleunigers wie dem European XFEL in Hamburg, was naturgemäß die Anwendungsmöglichkeiten begrenzt [5].

Bei unserem Ansatz mit einem optischen Laser schränkt die Notwendigkeit einer direkten Laseranregung die Anwendbarkeit von Kernübergängen stark ein. Ihre Übergangsenergie muss niedrig genug sein, um mit verfügbaren Lasern erreichbar zu sein, zugleich soll die Linienbreite des Kernübergangs so schmal wie möglich sein. Da die Linienbreite durch die Halbwertszeit des angeregten Kern-

zustands bestimmt wird, muss diese lang genug sein, um einen hochstabilen Uhrenbetrieb zu ermöglichen. Das heißt, dass es sich um einen sogenannten isomeren Zustand handeln muss. Isomere Kernzustände unterscheiden sich von anderen angeregten Kernzuständen, die sich prompt in den Grundzustand abregen, durch eine Lebensdauer von einigen Nanosekunden bis hin zu etlichen Jahren.

Bislang bietet sich nur ein einziger Kernzustand für die Realisierung einer solchen Kernuhr an: Der isomere, erste angeregte Zustand des Aktinidenisotops  $^{229}\text{Th}$  besitzt mit zirka 8,3 eV eine für Atomkerne völlig untypisch niedrige Anregungsenergie, die in der Nähe atomarer Uhrenübergänge liegt. Sie entspricht einer im Vakuum-Ultraviolett-Bereich, VUV, liegenden Wellenlänge von etwa 150 nm. Tatsächlich ist dies die bei Weitem niedrigste Anregungsenergie aller rund 3300 bekannten Isotope mit ihren etwa 186 000 angeregten Zuständen. Darüber hinaus besitzt dieses

Kernisomer  $^{229\text{m}}\text{Th}$  eine Halbwertszeit von einigen  $10^3$  s, was einer extrem schmalen relativen Linienbreite von etwa  $10^{-20}$  entspricht. Abbildung 1 veranschaulicht die Sonderstellung des Thoriumisomers in einer Auftragung der Halbwertszeiten aller bekannten Kernisomere gegen ihre Anregungsenergien.  $^{229\text{m}}\text{Th}$  liegt weit entfernt von allen anderen Isomeren in der Nachbarschaft typischer atomarer Übergänge, wie sie in optischen Atomuhren verwendet werden.

Bereits 1976 wurde die Existenz dieses Zustands indirekt aus Untersuchungen zur Kernstruktur von  $^{229}\text{Th}$  abgeleitet [6]. In der Folge suchten Kernphysiker Hinweise auf die Existenz dieses exotischen Kernzustands, aber erst 2016 gelang unserer Gruppe an der LMU München der direkte Nachweis [6, 7]. Dies geschah nicht über den Nachweis von im Zerfall von  $^{229\text{m}}\text{Th}$  emittierten VUV-Photonen, sondern im strahlungslosen Zerfallskanal der sogenannten Inneren Konversion (Internal Conversion, IC). Dabei über-

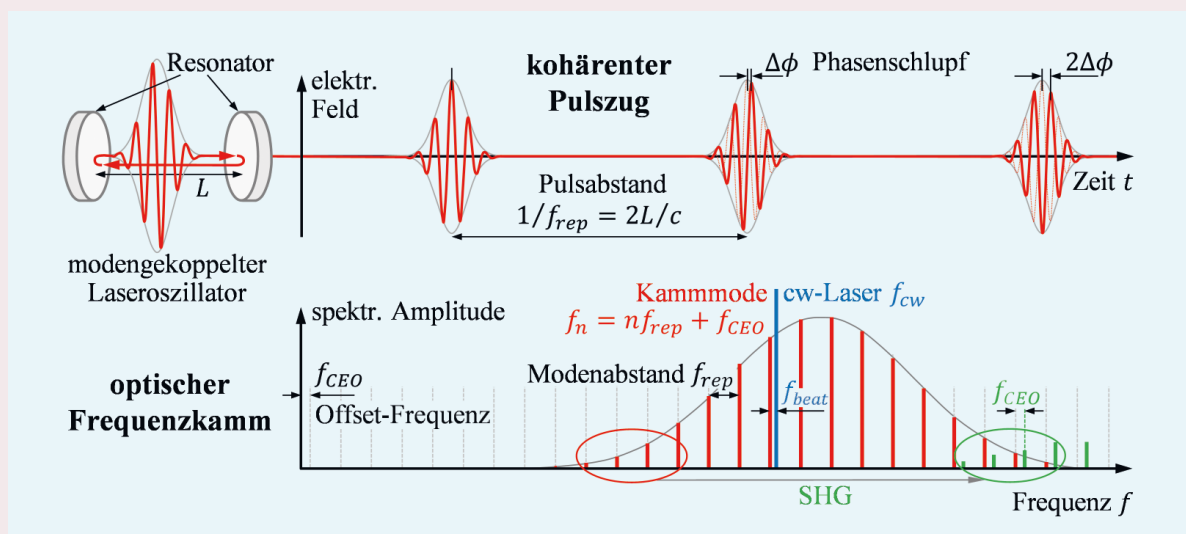
## FUNKTIONSWEISE EINES FREQUENZKAMMS

Ein optischer Frequenzkamm ist eine Laserquelle, deren Spektrum aus äquidistanten Kammmoden besteht. Dies ergibt sich für eine Folge von Laserpulsen mit einer festen Phasenbeziehung (Pulszug), die durch einen Pulsabstand und einen Phasenschlupf gekennzeichnet sind. Der Modenabstand ist durch den inversen Pulsabstand, die Repetitionsrate  $f_{\text{rep}}$ , gegeben. Ein weiterer Kammparameter ist die Offset-Frequenz  $f_{\text{CEO}}$ , die durch den Phasenschlupf bestimmt ist.

Ein kohärenter Pulszug wird zum Beispiel von einem Laseroszillator erzeugt, in dem ein Laserpuls zirkuliert (Abbildung links oben). Bei jedem Umlauf im Resonator wird eine Kopie dieses Pulses ausgekoppelt. Die Pulse im Pulszug sind also untereinander kohärent. Normalerweise schwanken und driften die Kammparameter so stark, dass die Kammstruktur verschwindet. Sie müssen daher gemessen und auf eine Referenz stabilisiert werden. Die Repetitionsrate wird mit einer Photodiode gemessen.

Für die Offset-Frequenz wird das Spektrum über nichtlineare Effekte verbreitert. Dann wird der langwellige Teil des Spektrums frequenzverdoppelt und mit dem kurzwelligen Teil überlagert. Das Schwebungssignal enthält die Offset-Frequenz. Ein so stabilisierter Frequenzkamm erlaubt es, optische Frequenzen im Bereich hunderter THz ( $10^{14}$  Hz) zu messen, indem sie auf Kammparameter im – elektronisch verarbeitbaren – Bereich einiger zehn MHz ( $10^7$  Hz) unteretzt werden. Die Frequenz eines Einfrequenz-Lasers ist bestimmt durch die Schwebungsfrequenz mit der nächsten Kammmode.

Der optische Frequenzkamm hat seit seiner Erfindung im Jahr 2000 und der Verleihung einer Hälfte des Physik-Nobelpreises an Theodor Hänsch und John Hall 2005 vielfältige Anwendungen in Wissenschaft und Technik gefunden [8, 14]. Für Atomuhren erlaubt er beispielsweise den präzisen Vergleich von Uhren mit unterschiedlichen Frequenzen.



**Funktionsprinzip eines Frequenzkamms. SHG: Second Harmonic Generation, cw-Laser: Continuous Wave-Laser, beides wird hier in der Erklärung des Grundprinzips nicht benötigt.**

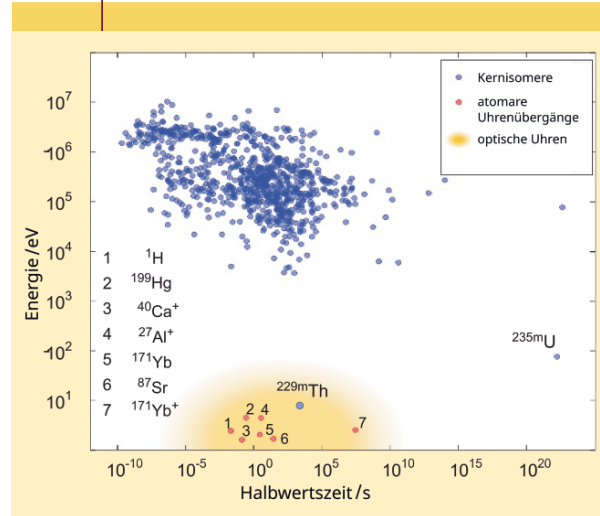
trägt ein angeregter  $^{229}\text{Th}$ -Kern seine Anregungsenergie auf ein Hüllenelektron, das anschließend als „Konversionselektron“ das Atom verlässt.

Im Laufe der Zeit wurden verschiedene Ansätze vorgeschlagen, um mittels  $^{229m}\text{Th}$  eine Kernuhr zu realisieren: einerseits auf der Basis von Ionen in einer Ionenfalle und andererseits unter Verwendung von mit  $^{229}\text{Th}$  dotierten Kristallen.

Der erste Ansatz verspricht eine ausgezeichnete Unterdrückung von systematischen Einflüssen auf die Uhrenfrequenz. Er führt auf eine erwartete relative Ganggenauigkeit von zirka  $10^{-19}$ , was etwa eine Größenordnung genauer ist als die derzeit besten optischen Atomuhren. Der zweite Ansatz nutzt Kristalle wie  $\text{CaF}_2$ , die für VUV-Strahlung transparent sind und in denen Kalziumionen auf ihren Gitterpositionen durch  $^{229}\text{Th}$ -Ionen ersetzt werden. Dieser Ansatz hat den Vorteil, dass eine sehr große Zahl an Thoriumkernen von bis zu  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$  im Kristall gleichzeitig vom Laserstrahl angesprochen werden kann. Das führt zu einem wesentlich höheren Signal-zu-Untergrund-Verhältnis und zu einer größeren Stabilität einer derartigen Kernuhr. Bei beiden Kernuhren findet nach der laserinduzierten Kernanregung in den isomeren Zustand ein Strahlungszerfall statt. Zudem gibt es noch den Vorschlag, Thoriumatome als dünne Schicht auf einer metallischen Substratoberfläche zu deponieren, sodass die bei der Abregung des Kerns emittierten Konversionselektronen nachgewiesen werden können.

Diese drei Kernuhr-Konzepte sind in Abbildung 2 dargestellt. Solange die Anregungsenergie des Thoriumisomers noch nicht mit ausreichender Genauigkeit für eine resonante Laseranregung bekannt ist, bleibt nur die Bevölkerung von  $^{229m}\text{Th}$  durch radioaktive Zerfälle übrig. Dazu zählt der  $\alpha$ -Zerfall von  $^{233}\text{U}$ , das mit einer Wahrscheinlichkeit von 2 % in das Thoriumisomer zerfällt. Bis heute stellt dies den vorwiegend verwendeten Weg zur Anregung von  $^{229m}\text{Th}$  dar.

ABB. 1 | KERNISOMERE

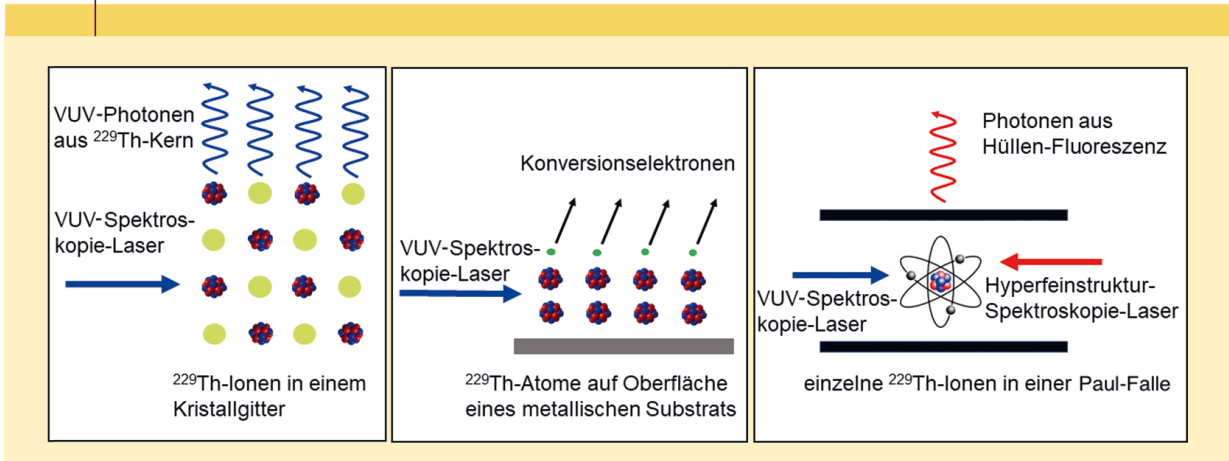


**Anregungsenergien und Halbwertszeiten von Kernisomeren. Isomere Kernzustände (blaue Kreise) besitzen typische Anregungsenergien von wenigen 10 keV bis zu mehreren MeV. Nur zwei niederenergetische Kernisomere sind bekannt:  $^{229m}\text{Th}$  (~8,3 eV) und  $^{235m}\text{U}$  (76,7 eV). Allerdings besitzt  $^{235m}\text{U}$  eine sehr lange strahlende Halbwertszeit von zirka  $10^{22}$  s. Daher eignet sich einzig  $^{229m}\text{Th}$  für eine direkte Laseranregung und damit die Realisierung einer Kernuhr. Rote Kreise: einige Uhrenübergänge, die bereits für optische Atomuhren verwendet werden (mit freundlicher Genehmigung von Springer Nature [6]).**

**Bekannte Eigenschaften des Thoriumisomers**

Aktuell arbeitet weltweit eine Vielzahl von Gruppen daran, die Eigenschaften des Thoriumisomers mit der für den Bau einer Kernuhr nötigen Genauigkeit zu bestimmen. Die Tür dazu wurde wie schon erwähnt 2016 aufgestoßen, als uns in München der erste direkte Nachweis des Zerfalls von  $^{229m}\text{Th}$  zu  $^{229}\text{Th}$  über die im IC-Zerfall emittierten Konversionselektronen gelang [7]. Für die Population des Isomers

ABB. 2 | KONZEPTE VON KERNUHREN



**Unterschiedliche Ansätze zur Realisierung einer optischen Kernuhr. Links: Kristallgitter-Kernuhr, Mitte: Kernuhr auf der Basis des Inneren Konversionszerfalls, rechts: Einzel- oder Mehrionen-Kernuhr auf Basis einer Ionenfalle.**

verwendeten wir den  $\alpha$ -Zerfall von  $^{233}\text{U}$ . Diese radioaktive Quelle bauten wir in eine sogenannte Puffergas-Stoppzelle ein, deren Füllung mit einer Heliumgas-Atmosphäre die im Zerfall durch den Rückstoß herausgeschleuderten Tochterkerne abremst. Danach leiten elektrische Gleichspannungs- und Wechselfelder diese Kerne zu einer Düse, wo sie aus der Stoppzelle heraus- und in einen nachfolgenden Radiofrequenz-Ionenleiter hineingespült werden. Hier werden die Ionen weiter in einen Massenfilter geführt, der die  $^{229\text{m}}\text{Th}$  begleitenden Zerfallsprodukte abtrennt.

Der Aufbau fungiert also als „Isomerengenerator“ und ist schematisch in Abbildung 3 dargestellt. Auf diese Weise trennen wir räumlich die Bevölkerung des Isomers von seinem Zerfall und der Detektion, um promptem Untergrund aus dem  $\alpha$ -Zerfall auszuweichen. Die Detektion des Zerfalls erfolgt dann durch Deposition der  $^{229\text{m}}\text{Th}$ -Ionen (98 % im Grundzustand  $^{229}\text{Th}$  und 2 % im angeregten isomeren Zustand  $^{229\text{m}}\text{Th}$ ) auf der Oberfläche eines Detektors, wo die Ionen durch Aufnahme von Elektronen neutralisiert werden. Hier entscheidet sich das Schicksal des Zerfallspfad: Da die Anregungsenergie des Isomers größer ist als die zur Ionisation neutraler Thoriumatome benötigte Energie, ist für den angeregten  $^{229\text{m}}\text{Th}$ -Kern der Zerfallsweg über Innere Konversion energetisch erlaubt. Dies ist aufgrund der unterschiedlichen Ionisationsenergien relativ zur Isomer-Anregungsenergie nur für neutrale Atome möglich, nicht aber für geladene Ionen. Dieser IC-Zerfall dominiert dann um neun Größenordnungen gegenüber dem strahlenden Zerfall.

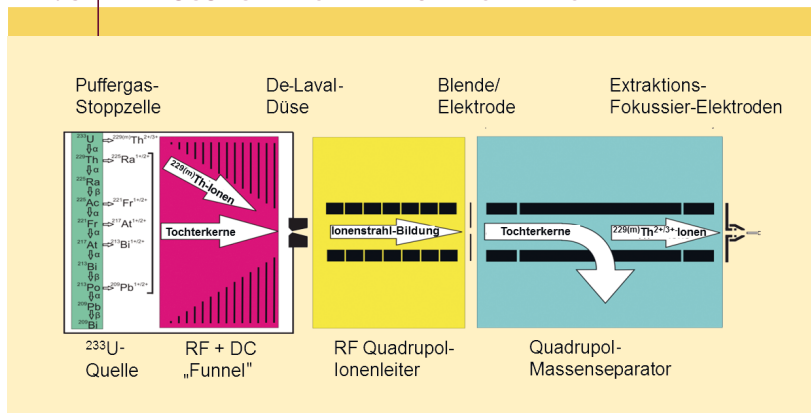
Mit dem gleichen Aufbau konnten wir weitere Eigenschaften des Isomers erstmals charakterisieren. Die Bestimmung der Halbwertszeit des neutralen  $^{229\text{m}}\text{Th}$ -Atoms bestätigte mit  $7 \pm 1 \mu\text{s}$  die von der Theorie vorhergesagte Verkürzung der mit  $10^3$  bis  $10^4$  s theoretisch vorhergesagten

Halbwertszeit elektrisch geladener  $^{229\text{m}}\text{Th}$ -Ionen um zirka neun Größenordnungen. Die Kenntnis der Ionen-Halbwertszeit ist wichtig für den späteren Betrieb einer Kernuhr. Das erfordert aber längere Speicherzeiten der Ionen, was nur in einer kryogenen, bei etwa 4 K betriebenen Ionenfalle erreichbar ist. Einen derartigen Aufbau nimmt unsere Gruppe an der LMU München gerade in Betrieb. Aber wie würde man erkennen, dass eine Anregung in das Thoriumisomer gelungen ist?

Zu diesem Zweck wurde bereits 2003 eine Methode vorgeschlagen [1], die den unterschiedlichen Kernspin von Grund- und angeregtem Zustand von  $^{229}\text{Th}$  und die daraus folgende unterschiedliche Kopplung des Kerns mit dem Magnetfeld ausnutzt, das die Elektronen an seinem Ort erzeugen. Um diese Methode nutzen zu können, muss allerdings die aus dieser Kopplung entstehende Elektronenstruktur des Thoriumisomers bekannt sein. Die Bestimmung dieser Struktur gelang uns 2018 zusammen mit Kollegen der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB) mittels hochauflösender Laserspektroskopie. Damit kann nun ein Nachweis der Kernanregung erfolgen, sobald ein dafür geeigneter Laser vorhanden ist.

Um diesem Ziel näher zu kommen, mussten wir jedoch erst die zu Beginn unserer Experimente nur recht ungenau bekannte Anregungsenergie des Thoriumisomers mit deutlich verbesserter Genauigkeit messen. Auch dafür konnten wir unseren Isomerengenerator verwenden. Wir ergänzten ihn um ein eigens dafür entwickeltes Elektronenspektrometer, mit dem wir die Anregungsenergie über die Messung der kinetischen Energie der im IC-Zerfall emittierten Konversionselektronen zu  $(8,28 \pm 0,17)$  eV bestimmten. Auch aus praktischer Sicht war dies ein bedeutsamer Fortschritt. Angesichts der nun zu etwa 150 nm bestimmten Wellenlänge des Kernuhr-Übergangs ist klar, dass derzeit kein kontinuierlich strahlender Laser in diesem Wellenlängenbereich existiert. Folglich ist der nächste Schritt die Entwicklung eines  $^{229\text{m}}\text{Th}$ -Kernuhrenlasers auf der Basis anderer Laserkonzepte.

ABB. 3 | ERZEUGUNG EINES  $^{229\text{m}}\text{Th}$ -IONENSTRAHLS



**Schematische Übersicht des experimentellen Aufbaus zur Erzeugung eines Strahls von Thorium-229-Isomeren mit einer  $^{233}\text{U}$ -Quelle in einer Puffergas-Stoppzelle. Die Ionen des  $^{229\text{m}}\text{Th}$  gelangen zusammen mit Tochterkernen durch eine Überschalldüse in einen Radiofrequenz-Quadrupol-Ionenleiter und Quadrupol-Massenseparator, der die Tochterkerne abtrennt. Nicht eingezeichnet: Der Nachweis geschieht schließlich durch einen Mikro-Kanalplatten-Detektor (Microchannel Plate Detector, MCP) mit Phosphorschirm und eine CCD-Kamera.**

### Entwicklung des schmalbandigen VUV-Lasers

Ein solches Lasersystem wird aktuell am Fraunhofer-Institut für Lasertechnik (ILT) in Aachen aufgebaut. Statt eines kontinuierlich strahlenden Lasers setzen wir dabei auf einen Frequenzkamm, das heißt, einen gepulsten Laser, dessen Spektrum aus vielen Linien besteht (siehe „Funktionsweise eines Frequenzkamms“ [9]). Das hat zum einen den Vorteil, dass alle Linien gleichzeitig zur Suche der genauen Wellenlänge des Übergangs beitragen können. Zum anderen bieten die Pulse den Vorteil einer großen Intensität, mit stark nichtlinearen Effekten.

Schmalbandige Laser stehen nur im Infraroten (IR) oder sichtbaren Bereich zur Verfügung und können zu kürzeren Wellenlängen konvertiert werden. Mit geeigneten nichtlinearen Kristallen funktioniert das auch für kontinuierlich strahlende Laser. Für Wellenlängen unterhalb 205 nm stehen solche Kristalle aber nicht zur Verfügung. Daher nut-

zen wir einen nichtlinearen Konversionsprozess in einem Gas, der als Erzeugung hoher Harmonischer (High-harmonic Generation, HHG) bezeichnet wird [10, 11] und eine große Intensität erfordert, die gepulste Laser bieten. Die 150 nm im VUV erreichen wir dabei als 7. Harmonische eines IR-Frequenzkammlasers bei 1050 nm. Um trotz der kleinen Konversionseffizienz eine ausreichende Leistung im VUV zu erzielen, wird der Frequenzkamm auf eine große Leistung von 200 W verstärkt und dann in einem Resonator überhört, in dem bis zu 10 kW zirkulieren und den HHG-Prozess treiben (Abbildung 4). Neben der Überhöhung der Leistung hilft der Resonator auch, die Linien im Laserspektrum schmal zu halten.

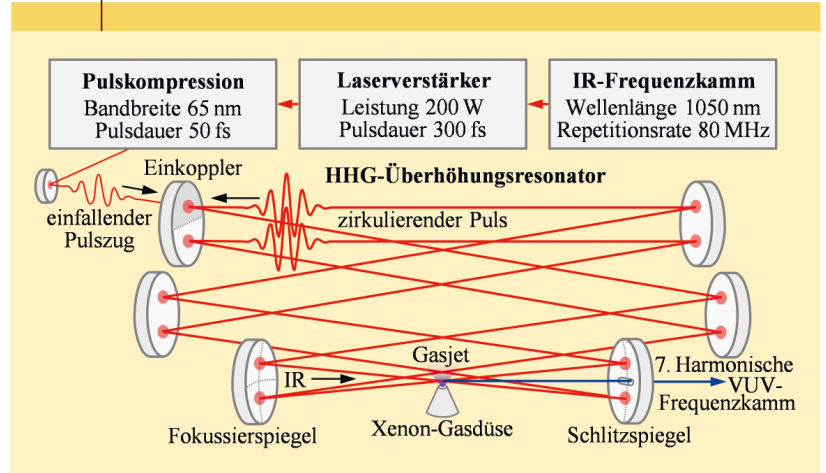
Die Harmonischen werden in einem Gasstrahl im Fokus des Resonators erzeugt und propagieren in die gleiche Richtung wie die treibende IR-Strahlung. Um sie aus dem Resonator auszukoppeln, ohne dabei Verluste für die IR-Strahlung aufzuprägen, wählen wir eine nichtkollineare Anordnung. Dabei zirkulieren zwei IR-Strahlen im Resonator, die sich im Fokus schneiden und auf dem folgenden Resonatorspiegel einem Schlitz ausweichen, durch den die Harmonischen hindurchlaufen (Abbildung 4 unten rechts). Zwischen Verstärker und Überhöhungsresonator durchlaufen die Pulse außerdem eine Pulskompression. Dabei wird das Spektrum durch einen nichtlinearen Prozess verbreitert und die Pulsdauer auf 50 fs verkürzt. Die kürzeren Pulse erlauben eine größere Konversionseffizienz, und das breitere Spektrum deckt den Suchbereich für den Kernübergang besser ab. Wir erwarten eine Leistung im VUV von mehr als 10 mW. Bei geeigneter Fokussierung auf die Th-Ionen reicht sie aus, den Kernübergang anzuregen.

### Gamma-Zerfall des Thoriumisomers

Um die Energie von <sup>229m</sup>Th noch genauer zu bestimmen bietet es sich an, die Wellenlänge eines Photons, das im Zerfall des Thoriumisomers anstelle eines Elektrons emittiert werden kann, spektroskopisch zu bestimmen. Während der Konversionszerfall bereits erfolgreich eingesetzt wird, konnte der Strahlungszerfall über Jahrzehnte nicht beobachtet werden. Zwei Gründe spielen dabei eine Rolle: Zum einen lassen sich Konversionselektronen effizienter nachweisen als Photonen, zum anderen ergibt ein neutralisierter Ionenstrahl mit zehn bis fünfzig Thoriumisomeren pro Sekunde ein ausreichendes Signal-zu-Untergrund-Verhältnis im Detektor. Für die spektroskopische Untersuchung der Photonen wird aber eine erheblich höhere Zerfallsrate benötigt. Dies kann ausschließlich durch Implantation der Kerne in einen für Photonen von 8,3 eV transparenten Kristall mit großer Bandlücke erreicht werden, wo der Konversionszerfall unterdrückt ist. Dafür eignen sich zum Beispiel CaF<sub>2</sub>- oder MgF<sub>2</sub>-Kristalle.

Als Teil eines internationalen Forschungsteams wählten wir dabei einen alternativen Weg zur Bevölkering des Thoriumisomers [12]. Dazu wurde am ISOLDE-Labor am Europäischen Kernforschungszentrum CERN in Genf das Radio-

ABB. 4 | VUV-FREQUENZKAMM-SYSTEM



**Schematischer Aufbau des VUV-Frequenzkamm-Systems mit der Erzeugung hoher Harmonischer (HHG) in einem Überhöhungsresonator. Die zirkulierende Leistung im Resonator ist gegenüber der einfallenden Leistung überhört, weil der zirkulierende Puls mit den einfallenden Pulsen am Einkoppler konstruktiv interferiert, wenn die Resonatorlänge geeignet stabilisiert wird. Die Harmonischen werden im Fokus in einem Gas-Jet erzeugt und durch einen Schlitz im Spiegel ausgekoppelt.**

isotop Aktinium-229 erzeugt, mit Hilfe eines stark beschleunigten Protonenstrahls, der auf ein Urankarbidtarget traf. Der  $\alpha$ -Zerfall der mit etwa einer Stunde kurzlebigen Aktiniumkerne erzeugt 7- bis 47-mal häufiger einen <sup>229</sup>Th-Kern im isomeren Zustand als bei der Verwendung von Uran-233. Die radioaktiven Ionenstrahlen wurden in CaF<sub>2</sub>- und MgF<sub>2</sub>-Kristalle implantiert, um mehrere Millionen Aktinium-Zerfälle pro Sekunde zu erreichen, von denen ein großer Teil den isomeren Kernzustand bevölkert. Die im Strahlungszerfall ausgesandten Photonen wurden mit einem Gitterspektrometer nach ihrer Wellenlänge getrennt und mit einem VUV-tauglichen Photonenvervielfacher-Detektor nachgewiesen. Aus den Wellenlängen der emittierten Photonen konnten wir die Energie des isomeren Kernzustandes um einen Faktor 7 genauer als zuvor bestimmen. Dieser neue Wert von  $\lambda = 148,71(24)$  nm grenzt den Suchbereich für zukünftige Laseranregungsexperimente weiter ein.

Damit war der erste Nachweis des Gammazerfalls des Thoriumisomers gelungen. Diese Beobachtung ist überdies wichtig für den Bau einer Festkörper-Kernuhr. Sie zeigt, dass mit geeigneten Kristallen der Konversionszerfall ausreichend unterdrückt werden kann. Im Gegensatz zu Einzel-Ionenfallen-Uhren bietet dies die Möglichkeit, mit einem VUV-Laser gleichzeitig viele Milliarden Kerne anzusprechen und durch die gewonnene Stabilität der Uhr ein präzises Ergebnis nach kurzer Zeit zu erhalten. Eine solches Instrument hat großes Potenzial für die praktische Anwendung optischer Uhren in verschiedenen Gebieten.

### Quo Vadis Kernuhr?

Als letzte der grundlegenden Kern-Eigenschaften steht eine Bestimmung der Halbwertszeit von <sup>229m</sup>Th-Ionen im Vaku-

um aus, deren Kenntnis für eine Ionenfallen-Kernuhr ebenfalls wichtig ist. Im Einklang mit den Ergebnissen des CERN-Experiments und theoretischen Erwartungen benötigen wir lange Speicherzeiten von einigen  $10^3$  s in einer bei tiefen Temperaturen betriebenen Ionenfalle. Eine solche nehmen wir derzeit in München in Betrieb (Abbildung auf Seite 3). Die Lebensdauer des Thoriumisomers wird hier mittels Laserspektroskopie über die Messung des Spektrums der Elektronenübergänge bestimmt.

Der gleiche Aufbau wird später zusammen mit dem VUV-Frequenzkammlaser auch als Plattform zur Präzisions-suche nach dem  $^{229m}\text{Th}$ -Kernübergang und weiter zur Laseranregung der Th-Ionen und damit zum Betrieb einer Ionenfallen-Kernuhr dienen. Parallel dazu treiben verschiedene internationale Gruppen auch die Bemühungen um eine Festkörper-Kernuhr voran [13]. Dank der innerhalb weniger Jahre erzielten experimentellen Erkenntnisse können wir also zuversichtlich sein, dass in naher Zukunft sowohl ein hochgenauer nuklearer Frequenzstandard wie auch ein neuartiger Quantensensor für vielfältige Anwendungen zur Verfügung stehen wird.

### Zusammenfassung

Das Thoriumisomer  $^{229m}\text{Th}$  besitzt den mit zirka 8,3 eV niederenergetischsten angeregten Zustand aller bekannten Atomkerne, der zudem langlebig ist. Damit bietet  $^{229}\text{Th}$  die Möglichkeit, den Kernübergang zwischen Grundzustand und angeregtem Isomer zum Bau einer sogenannten Kernuhr einzusetzen. Sie wäre eine Ergänzung zu den bislang genauesten optischen Atomuhren mit dem Potenzial, diese an Genauigkeit zu übertreffen. Damit kann die Kernuhr als neuartiger Quantensensor für fundamentale physikalische Fragen dienen. Dazu zählen eine mögliche Zeitabhängigkeit von Naturkonstanten sowie die Suche nach ultraleichter Dunkler Materie. In den letzten Jahren gelangen hierzu bedeutende experimentelle Durchbrüche bei der Identifikation und Charakterisierung des Kernuhrübergangs. Gelingt mit einer Laserspektroskopischen Anregung des Thoriumisomers noch ein weiterer Meilenstein, dann steht der ersten Kernuhr nichts mehr im Weg.

### Stichwörter

Kernuhr, optische Atomuhr, Thoriumisomer, VUV-Laser, Naturkonstanten, ultraleichte Dunkle Materie.

### Danksagung

Unterstützt durch das „ThoriumNuclearClock“-Synergy-Projekt des European Research Council (GA 856415).

Open Access Veröffentlichung ermöglicht und organisiert durch Projekt DEAL.

### Literatur

- [1] E. Peik, C. Tamm, Eur. Phys. Lett. **2003**, 61, 181.
- [2] P.G. Thirolf, B. Seiferle, L. v.d. Wense, Annalen d. Physik **2019**, 531, 1800381.
- [3] E. Peik et al., Quantum Sci. Technol. **2021**, 6, 034002.
- [4] P. Schmidt, Physik in unserer Zeit **2021**, 52(4), 183.
- [5] Y. Shvyd'ko et al., Nature **2023**, 622, 471.
- [6] L.A. Kroger, C.W. Reich, Nucl. Phys. A **1976**, 259, 29.
- [7] L. von der Wense et al., Nature **2016**, 533, 47.
- [8] P.G. Thirolf, B. Seiferle, L. von der Wense, J. Phys. B **2019**, 52, 203001.
- [9] S.A. Diddams et al., Science **2020**, 369, eaay3676.
- [10] M. Zürich, C. Kern, C. Spielmann, Physik in unserer Zeit **2013**, 44(3), 134.
- [11] M. Schultze, F. Krausz, Physik in unserer Zeit **2016**, 47(3), 142.
- [12] S. Kraemer et al., Nature **2023**, 617, 706.
- [13] K. Beeks et al., Nature Reviews **2021**, 3, 238.
- [14] T. Hänsch (Interview), Physik in unserer Zeit **2006**, 37(1), 10 und 37(2), 63.

### Die Autoren



Peter Thirolf promovierte an der Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg und ist heute Professor an der Ludwig-Maximilians-Universität in München. Seine Hauptarbeitsgebiete umfassen Kernphysik, von Hochleistungslasern getriebene Teilchenbeschleunigung sowie Detektorentwicklung für medizinphysikalische Anwendungen.



Sandro Kraemer promovierte an der Katholieke Universiteit Leuven in Belgien und arbeitet als wissenschaftlicher Mitarbeiter an der Ludwig-Maximilians-Universität in München. Sein Arbeitsgebiet umfasst die Spektroskopie von exotischen radioaktiven Kernen.



Johannes Weitenberg promovierte an der RWTH Aachen University und ist heute wissenschaftlicher Mitarbeiter am Fraunhofer-Institut für Lasertechnik in Aachen sowie dem Max-Planck-Institut für Quantenoptik in Garching. Sein Arbeitsgebiet ist die Laserentwicklung.

#### Anschrift

Prof. Dr. Peter G. Thirolf, Dr. Sandro Kraemer, LMU München, Am Coulombwall 1, 85748 Garching. Peter.Thirolf@lmu.de, Sandro.Kraemer@lmu.de

Dr. Johannes Weitenberg, Max-Planck-Institut für Quantenoptik MPQ, Hans-Kopfermann-Str. 1, 85748 Garching, und Fraunhofer-Institut für Lasertechnik ILT, Steinbachstraße 15, 52074 Aachen. Johannes.Weitenberg@ilt.fraunhofer.de