

Двухфотонный электронно-ядерный резонанс как мост к ядерно-оптическим часам

© Ф. Ф. Карпешин, Л. Ф. Витушкин

ВНИИМ имени Д. И. Менделеева, г. Санкт-Петербург, Россия

Реферат

Рекордные образцы атомных часов демонстрируют относительную погрешность в пределах нескольких единиц 10^{-18} , в то время как для решения сложных фундаментальных и прикладных задач необходимо снижение погрешности еще на порядок величины. Дальнейшее снижение погрешности позволило бы решить давно назревший вопрос о возможном дрейфе фундаментальных констант, а также разгадать загадку темной материи и энергии. Вот почему большое внимание в текущих научных исследованиях уделяется проблеме создания ядерно-оптических часов и стандарта частоты следующего поколения. Совместными усилиями физиков PTB, LMU München, JILA, UCLA и др. 2024-й год ознаменовался успешным возбуждением лазером ядра ^{229}Th . На создание требуемого стандарта подтверждена кандидатура номер один этого нуклида, энергия возбужденного состояния которого $3/2^+[631]$ всего на 8.355740(3) эВ выше основного состояния $5/2^+[633]$.

В то же время используемые технологии обладают крайне низкой эффективностью. Так, только $1/10^{13}$ часть потребляемой мощности используется по назначению — на возбуждение изомера, а остальная часть теряется в резонаторе, усилителях, неиспользуемых гармониках, модах частотной гребенки и др. Обсуждается возможность дальнейшего уточнения энергии изомера в целях уменьшения погрешности в методе резонансной оптической накачки с учетом использования резонансных свойств электронной оболочки. Принципиально возможное усиление может достигнуть колоссальной величины в 13 порядков, но при использовании настоящих методик оно не реализуется.

В данной работе внимание сосредоточено на учете ширины резонанса. Он либо помогает увеличить шаг сканирования и таким образом сократить время сканирования, либо просто увеличивает сечение. В предложенном двухфотонном методе используется радикальное уширение изомерной линии за счет смешивания с электронным переходом. Метод не осложнен уменьшением сечения, сопровождающим уширение резонанса, которое происходит вследствие внутренней конверсии или преднамеренного экстремального уширения спектральной линии лазера накачки. Рассматриваемая схема оказывается на два порядка эффективнее прямой накачки. Метод применим как к ионизованным, так и к нейтральным атомам тория. Реализация метода предполагает возбуждение как ядра, так и электронной оболочки в конечном состоянии.

Ключевые слова: ядерно-оптический стандарт частоты, изомер тория-229, оптическая накачка.

Контакты для связи: Karpeshin Fedor Fedorovich (fkarpeshin@gmail.com).

Для цитирования: Карпешин Ф. Ф., Витушкин Л. Ф. Двухфотонный электронно-ядерный резонанс как мост к ядерно-оптическим часам // Труды ИПА РАН. 2025. Вып. 74. С. 37–41.

<https://doi.org/10.32876/AplAstron.74.37-41>

Two-Photon Electron-Nuclear Resonance as a Bridge to Nuclear-Optical Clocks

F. F. Karpeshin, L. F. Vitushkin

D. I. Mendeleyev Institute for Metrology, Saint Petersburg, Russia

Abstract

The best samples of atomic clocks demonstrate a relative error of several 10^{-18} units. However, solving complex fundamental and applied problems requires reducing this error by an additional order of magnitude. Achieving further error reduction could help address the long-standing issue of potential drift in fundamental constants, as well as shed light on the mysteries of dark matter and dark energy. Consequently, significant attention in current scientific research is focused on developing nuclear-optical clocks and, accordingly, next-generation frequency standards. In 2024, a major milestone was reached with the successful excitation of the 8.355740(3) eV nuclear isomer ^{229}mTh using laser techniques, thanks to collaborative efforts by physicists from PTB, LMU Munich, JILA, UCLA, and others. The candidacy of this nuclide for creating the desired standard has been confirmed. The energy of its excited state $3/2^+[631]$, is only 8.355740(3) eV higher than the ground state, $5/2^+[633]$.

However, the currently used technologies are extremely low in resource efficiency. Only about $1/10^{13}$ of the consumed power contributes to exciting the isomer; the rest is lost in the resonator, amplifiers, unused harmonics, and modes of the frequency comb, among other sources. There is ongoing discussion about further refining the isomer's energy to reduce

the error via resonant optical pumping, utilizing the resonant properties of the electron shell. In principle, this could yield a gain of up to 13 orders of magnitude — far greater than what current methods achieve.

This paper emphasizes accounting for the resonance width. Proper consideration can either enable increasing the scanning step size — thus reducing the total scanning time — or simply enhance the cross section. The proposed two-photon method leverages a significant broadening of the isomer line caused by mixing with an electron transition. This approach does not suffer from the typical reduction in cross section associated with broadening — such as that caused by internal conversion or intentional broadening of the pump laser's spectral line. The scheme under consideration is two orders of magnitude more efficient than direct pumping and is applicable to both ionized and neutral thorium atoms. Its implementation involves exciting both the nucleus and the electron shell in the final state.

Keywords: nuclear optical frequency standard, thorium-229 isomer, optical pumping.

Contacts: Fedor F. Karpeshin (fkarpeshin@gmail.com).

For citation: Karpeshin F. F., Vitushkin L. F. Two-photon electron-nuclear resonance as a bridge to nuclear-optical clocks // Transactions of IAA RAS. 2025. Vol. 74. P. 37–41.

<https://doi.org/10.32876/AplAstron.74.37-41>

Введение

2024 год войдет в историю физики как год ядерных часов: он ознаменовался целым рядом успешных экспериментов по возбуждению лазером ядерного изомера $^{229\text{m}}\text{Th}$ (Tiedau et al., 2024; Zhang et al., 2024). В настоящее время большое внимание уделяется проблеме создания ядерно-оптических часов и стандарта частоты следующего поколения. Существующие образцы атомных часов демонстрируют рекордную погрешность в пределах нескольких единиц 10^{-18} , тогда как для решения насущных фундаментальных и прикладных задач требуется понизить погрешность еще на порядок.

Преимущества применения ядерных часов описаны во множестве обзоров и оригинальных работ. *Актуальнейшей задачей современной физики является поиск темной материи и энергии.* Также их использование необходимо для поиска дрейфа фундаментальных констант, поскольку вклад от ядерной составляющей по сравнению с кулоновской в частоту перехода в ядерных часах усилен в тысячи раз по сравнению с оптическими. Поэтому некоторые проекты изначально основаны на совместном применении атомных и ядерных часов.

Кандидат номер один на создание ядерно-оптических часов — уникальный нуклид ^{229}Th , возбужденное состояние которого $3/2^+$ лежит на высоте всего $\omega_n = 8.355740(3)$ эВ над основным состоянием $5/2^+$. Его собственное время жизни, основанное на данных эксперимента, было впервые указано в 2019 г. (Витущкин и др., 2019) и составляет приблизительно полчаса. Это значение хорошо согласуется с современными данными по торию в кристаллическом окружении.

К сожалению, в указанных экспериментах был использован не самый эффективный путь прямого возбуждения ядра фотонами резонансной энергии. Метод с использованием резонанса с атомной оболочкой является на порядки величины более эффективным. Рассмотрим этот метод детальнее, основываясь на работах (Зон, Карпешин, 1990; Karpeshin et al., 1992).

Физические предпосылки

На рис. 1 представлена схема перехода атомного электрона из состояния m в состояние n в результате резонансного поглощения двух фотонов с энергиями $\hbar\omega_1$ и $\hbar\omega_2$. Резонанс возникает при условии, что

$$\hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 = E_{mn}. \quad (1)$$

Процесс может быть виртуальным, если нарушается условие (1). В таком случае он характеризуется дефектом резонанса Δ :

$$\Delta = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 - E_{mn}. \quad (2)$$

Чем больше Δ , тем слабее резонанс.

Применение метода к трехкратным ионам атомов тория

Современная тенденция состоит в использовании тройных ионов $^{229}\text{Th}^{+++}$. В них подавлен эффект электронных мостиков, который в нейтральных атомах привел бы к 100-кратному уширению опорной линии перехода $7s-8s$ (Karpeshin, Trzhaskovskaya, 2018). Резонанс с электронным

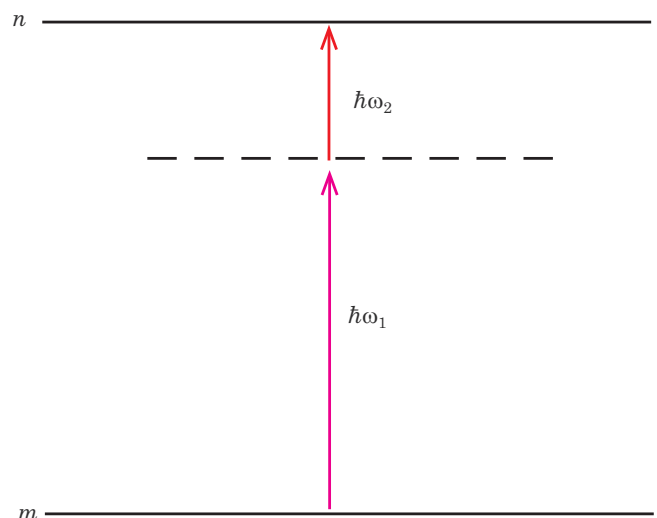


Рис. 1. Резонансное двухфотонное поглощение света атомами. Сумма энергий двух фотонов $\hbar\omega_1$ и $\hbar\omega_2$ в точности равна энергии атомного перехода E_{mn}

переходом $7s-8s$ остается ключевым звеном для возбуждения ядра. Однако для его реализации требуется энергия начиная с 11.2 эВ, поскольку основное состояние атома в данном случае $5f5/2$. Соответственно, рассмотрим трехфотонную последовательность, показанную на рис. 2. Таким образом, лучи 1 и 2 подготавливают атом в состоянии $7p$. Перед этим включается лазер 3, донося необходимую энергию.

В зависимости от энергии фотона, в случае перехода из состояния 1 с полным угловым моментом Π_1 в возбужденное состояние 2 с полным угловым моментом Π_2 резонансное сечение фотопоглощения можно записать в следующем виде ([Karpeshin, Vityushkin, 2025](#)):

$$\sigma = \frac{2I_2+1}{2I_1+1} \left(\frac{\pi}{\omega}\right)^2 \frac{\Gamma_Y}{\Gamma_t}. \quad (3)$$

Здесь Γ_Y — парциальная радиационная ширина в канале, который используется для накачки, а Γ_t — полная ширина распада изомера. В случае голого ядра обе ширины совпадают друг с другом. Таким образом, резонансная накачка достигает своего максимального геометрического предела $\sim (\pi/\omega)^2$. При использовании электронных мостов никакие ухищрения не помогут превзойти этот предел.

В случае рис. 2 при наличии пучка 3 у уровня $7p$ появляется спутник с энергией $\varepsilon_{7p} + \omega$. Его амплитуда может приближаться к единице в достаточно сильных полях. В результате волновую функцию состояния $8p$ в двухуровневом приближении можно записать следующим образом:

$$\Psi_{7p}(r, t) = (|7p\rangle + \beta|8s\rangle)e^{-i\omega t}e^{-i\varepsilon_{7p}t}. \quad (4)$$

Амплитуда спутника β в уравнении (4) определяется напряженностью поля \mathbf{E} и дефектом резонанса $\Delta = \varepsilon_{8s} - \varepsilon_{7p} - \omega$:

$$\beta = \langle 8s | H_L | 7p \rangle / \Delta, \quad (5)$$

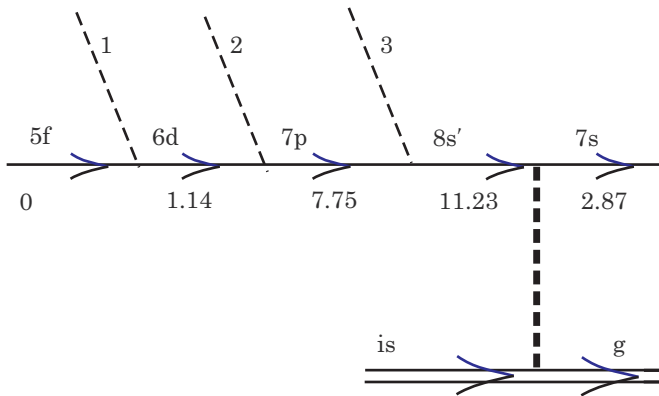


Рис. 2. График Фейнмана возбуждения изомера ${}^m\text{Th}$ с помощью лазера посредством поглощения трех фотонов. Фотоны пронумерованы для удобства. Цифры под электронной линией указывают энергии соответствующих электронных уровней

где H_L — гамильтониан взаимодействия лазерного поля с электроном:

$$H_L = -eEz. \quad (6)$$

Спутникный уровень наиболее близок в данном случае к $8s$. Поэтому обозначим его $8s'$. Таким образом, уровни $7p$ и $8s'$ образуют единую пару в поле лазера 3. Сканированием частоты ω спутника $8s'$ можно совместить с изомерным уровнем, отсчитанным от состояния $7s$. Этот электронно-ядерный резонанс порождает осцилляции Раби в виде перекачки энергии от электрона $8s'$ к ядру и обратно. Выражение для вероятности перехода в единицу времени ([Карпешин, 2006](#)):

$$\Gamma_{\text{ind}} = |\beta|^2 \frac{\alpha_d(M1)\Gamma_Y^{(n)}\Gamma/2\pi}{(\varepsilon_{7s} + \omega_n + \omega - \varepsilon_{8s})^2 + (\Gamma/2)^2}. \quad (7)$$

Вне резонанса $\Gamma_{\text{ind}} \sim \Gamma/\Delta^2$, тогда как в резонансе $\Gamma_{\text{ind}} \sim 1/\Gamma$. Таким образом, теория предсказывает достижимость колоссального фактора резонансного усиления порядка $(\Delta/\Gamma)^2$ путем сканирования ω при настройке уровня спутника на энергию изомерного перехода ω_n .

Из формулы (3) следует, что для расчета сечения фотовозбуждения изомера из $7p$ -состояния атома достаточно рассчитать радиационную и полную ширины его распада. В поле луча 3 изомер обретает мощный канал девозбуждения: $7s-8s'-7p$ ([Karpeshin et al., 1999](#)). В отсутствие полей лазеров накачки этот канал переходит в обычный электронный мостик $7s-8s'-7p$, фактор резонансной конверсии которого не превышает единицы в случае Th IV. Рассчитаем эти ширины в следующем разделе.

Результаты расчета

Полная ширина в формуле (3) определяется обратным временем жизни ядра в изомерном состоянии в присутствии поля лазера 3. Оценим время жизни относительно индуцированного распада. Удобнее вычислять R -фактор ускорения распада по сравнению с собственным временем жизни. В зависимости от частоты лазера ω , он дается формулой ([Зон, Карпешин, 1990](#))

$$R = |\beta|^2 \alpha_d(\omega_n) \frac{\Gamma_a/2\pi}{(\Delta' - \Delta - \omega)^2 + (\Gamma_a/2)^2}. \quad (8)$$

Здесь Δ' — разность энергий состояний $8s-7p$, Δ — дефект резонанса, β — амплитуда состояния $8s$, смешанного с уровнем $7p$ в лазерном поле. Ее можно выразить через радиационную ширину $\Gamma_Y^{(a)}(\omega; 8s-7p)$ электронного перехода $8s-7p$ при энергии ω (вне массовой оболочки). После усреднения по магнитным квантовым числам получается следующее выражение для $|\beta|^2$:

$$|\beta|^2 = \frac{E^2}{4\Delta^2\omega^3} \Gamma_Y^{(a)}(\omega; 8s-7p). \quad (9)$$

Входящие в выражения (8), (9) величины коэффициентов дискретной конверсии и атомных ширин вычислены в работе (Karpeshin et al., 1999) в рамках самосогласованного метода Дирака – Фока посредством комплекса компьютерных программ RAINE (Band, Trzhaskovskaya, 1993). Приведенные к настоящим экспериментальным энергиям переходов, они составляют $\alpha_d(\omega_n; 8s-7s) = 2.07 \times 10^{10}$ эВ, $\Gamma_\gamma^{(a)}(\omega; 8s-7p) = 5.9 \times 10^{-8}$ эВ. Подставляя указанные значения, приходим к оценкам $|\beta|^2 = 1.48 \times 10^{-14}$, $R = 1.15 \times 10^{-11}$ при мощности луча лазера 1 мВт, сфокусированного на площади 0.002 см².

Сделаем качественную оценку потенциально возможного ускорения распада изомера, считая уровень 8s в точном резонансе с изомером. Гамильтониан системы представим в виде:

$$H = H_0 + V, \quad (10)$$

где H_0 — сумма электронного и ядерного гамильтонианов, V — оператор остаточных взаимодействий, ответственный за внутреннюю конверсию В двухуровневом приближении базис образуют два вырожденных состояния. Обозначим их: $|1\rangle$, в котором ядро находится в основном состоянии, а электрон — в 8s, и $|2\rangle$, в котором ядро перешло в состояние изомера, а электрон — в состояние 7s. Из формулы (8) тогда получим в этом случае вырождения:

$$R = \alpha_d \frac{2}{\pi \Gamma_a} = 3.18 \times 10^{17}, \quad (11)$$

где Γ_a — полная ширина уровня 8s'. Аналогично можно оценить скорость обратного безрадиационного перехода:

$$\Gamma_{r.l.} = \frac{2j_3 + 1}{2I_m + 1} \alpha_d \Gamma_\gamma^{(n)} \frac{2}{\pi \Gamma_a} = 4.64 \times 10^{17} \Gamma_\gamma^{(n)}. \quad (12)$$

Полагая, что время жизни изомера 2000 с, приходим к заключению, что обмен энергией между электроном и ядром происходит за фемтосекундные времена. Поэтому вырожденную систему можно рассматривать как находящуюся в состоянии статистического равновесия.

Реальную же систему можно рассматривать как вырожденную в отношении изомерного и — в поле резонансного излучения лазера 3 — электронного 8s'-уровней. Скорости переходов между этими состояниями и соответственно время установления статистического равновесия зависят от интенсивности излучения лазера 3.

Теперь вычислим скорость радиационного распада изомера в изолированном трехкратно ионизованном атоме путем спонтанного излучения 7s–8s'–7p. Исходя из того, что собственное время жизни изомера 2000 с, получим:

$$\Gamma_{r.c.}^{(n)} = \frac{\alpha_d \Gamma_\gamma^{(n)}}{2\pi \Delta^2} \Gamma_{\gamma}^{8s'} = 16.6 \Gamma_\gamma^{(n)} = 5.47 \times 10^{-18} \text{ эВ}. \quad (13)$$

То есть фактор ускорения путем распада через электронный мостик составляет $R_{sp} = 16.6$. Теперь можно вычислить сечение поглощения фотона 3, которое связано с шириной спонтанного распада (13) соотношением

$$\sigma = \frac{2I_m + 1}{2I_g + 1} \left(\frac{\pi}{\omega} \right)^2 \Gamma_{r.c.}^{(n)} \frac{2}{\pi \Gamma}. \quad (14)$$

С учетом резонансного характера поглощения, в выражении (14) Γ — полная ширина состояния $|2\rangle$. Она состоит из ширины обратного распада изомера (13), естественной ширины линии изомера и ширины атомного 7s-состояния.

Пусть поток фотонов $j = 8.75 \times 10^{17} \text{ см}^{-2}\text{s}^{-1}$. Такой поток соответствует мощности лазерного луча 1 мВт, сфокусированного на площадку площадью 0.002 см², аналогично работе (Tiedau et al., 2024). Оценим сечение (14) сверху, положив $\Gamma_{r.c.}^{(n)} \approx \Gamma$. Получим $\sigma < 0.329 \text{ эВ}^{-2} = 1.28 \times 10^{-10} \text{ см}^2$. А скорость образования изомеров $w = j\sigma = 1.12 \times 10^8 \text{ с}^{-1}$, то есть время перехода атома в изомерное состояние составляет $0.893 \times 10^{-8} \text{ с} = 8.93 \text{ нс}$.

Приведенные оценки надо уменьшить на 4–6 порядков, если учесть, что основной канал распада состояния $|2\rangle$ путем E2-перехода в 6d-состояние, ширину которого можно оценить в 10^{-14} эВ , то есть приблизительно на 5 порядков шире изомерной. Поэтому примем для дальнейших оценок, что время перехода ядра в изомерное состояние 0.01 с. При этом время жизни состояния $|2\rangle$ составит 0.002 с, что соответствует доминирующему каналу атомного распада путем E2-перехода. Поэтому в состоянии статистического равновесия будет поддерживаться $\sim 1/6$ часть атомов в изомерном состоянии. Если полное число атомов нуклида, как в работе (Tiedau et al., 2024), положить равным $N = 1.6 \times 10^{15}$, то число изомерных атомов составит $N = 0.3 \times 10^{15}$, а скорость распада будет поддерживаться на уровне $N = 1.5 \times 10^{15}$ распадов в секунду.

В работе (Tiedau et al., 2024) средняя мощность лазерного луча составляла 0.1 пВт/Гц. В кристаллической мишени время жизни изомера составило 630 с, что соответствует ширине линии $2.5 \times 10^{-4} \text{ Гц}$. Поэтому полезная мощность лазера составила $2.5 \times 10^{-5} \text{ пВт}$. В нашем же случае ширина линии определяется атомным E2-переходом. Она составит $\sim 10^{-14} \text{ эВ} = 2 \text{ Гц}$. Это соответствует полезной мощности лазера 0.2 пВт. Поэтому предыдущие оценки надо уменьшить еще в 5×10^8 раз. В результате ожидаемое число распадов все еще составит 3×10^8 распадов в секунду против 1000 распадов в секунду, наблюдаемых в работе (Tiedau et al., 2024).

Заключение

В работе исследованы проблемы, связанные с возможностью оптической накачки изомера, с использованием резонансного усиления, возникаю-

щего за счет использования резонансных свойств электронной оболочки. Стоит разъяснить, почему мы не написали «через электронный мостик». Определяющим в методе является именно резонанс, а электронный мостик — средство его реализации. Например, в работе ([Kondratyev, Karpeshin, 2024](#)) рассмотрено ускорение двойного безнейтринного $2e$ -захвата во внешнем поле. В этом случае электронные мостики отсутствуют вовсе, в то время как колоссальное ускорение тем не менее возникает при использовании резонанса.

Приведенные результаты убедительно показывают потенциальные преимущества оптической накачки ядра через резонанс с электронной оболочкой. Выигрыш выражается числом, составляющим несколько порядков величины. Предрезонансный $7p$ -уровень заселяется путем последовательного резонансного поглощения фотонов 1 и 2. Луч 3 создает систему двух реальных электронных уровней $7p$ и $8s'$, причем вторая компонента является резонансной по отношению к ядерному дублету основного и изомерного состояний. Поэтому энергия уровня $8s'$ передается ядру, возбуждая изомер. Данная схема может быть шагом на пути перехода к использованию более длинноволновых лазеров, в которых, возможно, будет легче осуществить генерацию в непрерывном режиме. В тексте показан масштаб подобного скачка. В то же время этот скачок представляется необходимым звеном в создании ядерно-лазерных технологий будущего.

Благодарность

Авторы признательны проф. П. Тирольфу и проф. Л. фон дер Вензе за плодотворные обсуждения.

Литература

- Витушкин Л. Ф., Карпешин Ф. Ф., Тржасковская М. Б.* Актуальные задачи текущего этапа по проекту создания ядерно-оптического стандарта частоты // Труды ИПА РАН. 2019. Вып. 49. С. 9.
- Зон Б. А., Карпешин Ф. Ф.* Ускорение распада ядра ^{235}U за счет резонансной внутренней конверсии, стимулированной лазерным излучением // ЖЭТФ. 1990. Т. 97. С. 401.
- Карпешин Ф. Ф.* Мгновенное деление в мюонных атомах и резонансная конверсия. Санкт-Петербург: Наука, 2006.
- Band I. M., Trzhaskovskaya M. B.* Internal conversion coefficients for low-energy nuclear transitions // At. Data Nucl. Data Tables. 1993. Vol. 55. P. 43.
- Karpeshin F. F., Band I. M., Listengarten M. A., Trzhaskovskaya M. B., Zon B. A.* Study of $^{229\text{m}}\text{Th}$ through laser-induced resonance internal conversion // Phys. Lett. B. 1992. Vol. 282B. P. 267.
- Karpeshin F. F., Band I. M., Trzhaskovskaya M. B.* 3.5-eV isomer of $^{229\text{m}}\text{Th}$: how it can be produced // Nucl. Phys. A. 1999. Vol. 654. P. 579.
- Karpeshin F. F., Trzhaskovskaya M. B.* Impact of the ionization of the atomic shell on the lifetime of the $^{229\text{m}}\text{Th}$ isomer // Nucl. Phys. A. 2018. Vol. 969. P. 173.
- Karpeshin F. F.* Laser-assisted two-photon electron-nucleus resonance as applied to producing the $^{229\text{m}}\text{Th}$ isomer // Phys. Rev. C. 2024. Vol. 110, no. 5. P. 054307.
- Karpeshin F. F., Vitushkin L. F.* Tuned electron-nucleus resonance as a tool of producing the $^{229\text{m}}\text{Th}$ isomer // Intern. J. Appl. Sci. & Development. 2025. Vol. 4. P. 31–36. Doi: 10.37394/232029.2025.4.4.
- Kondratyev V. N., Karpeshin F. F.* External radiation assistance of neutrinoless double electron capture // Atoms. 2024. Vol. 12. P. 27. URL: <https://doi.org/10.3390/atoms12050027>.
- Tiedau J., Okhapkin M. V., Zhang K., et al.* Laser excitation of the Th-229 nucleus // Phys. Rev. Lett. 2024. Vol. 132. P. 182501.
- Zhang C., Ooi T., Higgins J. S., et al.* Frequency ratio of the $^{229\text{m}}\text{Th}$ nuclear isomeric transition and the ^{87}Sr atomic clock // Nature. 2024. Vol. 633. P. 65.