

Präzisionsmetrologie mit harter Röntgenstrahlung Der Weg zur Scandium-45-Kernuhr

RALF RÖHLSBERGER | JÖRG EVERS | OLGA KOCHAROVSKAYA | YURI SHVYD'KO

Mit der hochintensiven Strahlung eines Röntgenlasers ist es kürzlich gelungen, den schärfsten atomaren Übergang im harten Röntgenbereich anzuregen, eine Kernresonanz des stabilen Isotops ⁴⁵Scandium. Diese Kernresonanz kommt auch als Taktgeber für neuartige Kernuhren in Frage. Damit eröffnen sich neue Möglichkeiten für Präzisionsmessungen mit bislang unerreichter Genauigkeit, beispielsweise zum Test fundamentaler Prinzipien der Relativitätstheorie.

Die Messung der Zeit war vermutlich eine der ersten kulturellen Aktivitäten der Menschheit, die von Beginn an durch das Streben nach immer höheren Genauigkeiten geprägt war. Dies begann mit der Beobachtung der periodischen Bewegungen der Himmelskörper, dem Bau mechanischer Pendeluhr und der Nutzung von Kristalloszillatoren in Quarzuhren, und es führt in heutiger Zeit bis hin zu Atomuhren mit Abweichungen von weniger als einer Sekunde über Zeiträume von Milliarden von Jahren. Diese Genauigkeit könnte noch übertroffen werden von Uhren, in denen Atomkerne als Taktgeber für das Messbeziehungswise Zeitsignal eingesetzt werden.

Die hochpräzise Messung der Zeit ist heute ein unverzichtbarer Bestandteil unseres Alltags. Satellitennavigationssysteme wie GPS beispielsweise ermöglichen eine genaue Navigation aller Verkehrsmittel auf unserem Globus und halten den weltweiten Reiseverkehr, den Handel und die Wirtschaft in Schwung. Die zugrunde liegende Technologie basiert auf kompakten Atomuhren, die sich auf Satelliten im Erdorbit befinden.

Eine Atomuhr funktioniert prinzipiell wie eine herkömmliche Uhr, jedoch mit dem Unterschied, dass die Zeitbasis der Uhr nicht wie etwa bei einer Pendeluhr eine schwingende Masse ist, sondern auf den Eigenschaften von Atomen beim Übergang zwischen verschiedenen Energiezuständen beruht. Ein Atom, das durch eine externe Energiequelle angeregt wird, geht in einen höheren Energiezustand über. Nach einer gewissen Zeit kehrt es in den Grundzustand oder einen niedrigeren Energiezustand zurück. Bei diesem Übergang gibt das Atom Energie in Form eines Lichtquants mit einer sehr genauen Frequenz ab, die für die Art des Atoms charakteristisch ist. Um eine genaue Uhr zu bauen, braucht man nur eine Möglichkeit, diese Frequenz zu erfassen und sie als Eingang für einen Zähler zu verwenden. Dies ist das Funktionsprinzip einer Atomuhr.

Die Stabilität der Atomuhren auf den GPS-Satelliten ist so gut, dass sie in drei Millionen Jahren nur eine Sekunde falsch gehen würden. Die Genauigkeit dieser Atomuhren ist von großer Bedeutung, denn je kleiner der Fehler bei der Zeitmessung ist, desto kleiner ist auch der Fehler bei

der Entfernungsmessung, der durch Multiplikation der Zeitsicherheit mit der Lichtgeschwindigkeit gegeben ist. Ein Fehler von nur wenigen Nanosekunden bei den Satellitenmessungen würde einen Positionsfehler von mehreren Metern ergeben.

Für die Definition der Sekunde als SI-Einheit der Zeit ist eine viel höhere Genauigkeit erforderlich. Sie basiert auf einem atomaren Übergang in der ¹³³Cäsium-Atomuhr mit einer Ungenauigkeit von nur einer Sekunde in 300 Millionen Jahren, also einer relativen Genauigkeit von 10^{-16} . Es ist geplant, diese Uhr in naher Zukunft durch eine noch genauere zu ersetzen. Das Streben nach immer höherer Präzision in der Uhrentechnologie ist ungebrochen und hat dazu geführt, dass inzwischen optische Übergänge in gefangenen Atomen wie ⁸⁷Strontium eingesetzt werden. Das ermöglicht Atomuhren mit einer relativen Genauigkeit von $2 \cdot 10^{-18}$ [2]. Eine weitere Steigerung der Präzision kann man von Uhren erwarten, die das angeregte Niveau eines Atomkerns anstelle eines Niveaus der Atomhülle nutzen. Der Atomkern ist etwa zehntausendmal kleiner als die Elektronenhülle und daher viel weniger anfällig für elektromagnetische Störungen, was ihn für Anwendungen in der Präzisionsmetrologie äußerst attraktiv macht. In diesem Artikel berichten wir über erste Schritte in diese Richtung mit dem stabilen Isotop ⁴⁵Scandium [1] (Abbildung 1).

Es war Rudolf Mößbauer, der 1958 das Gebiet der Präzisionsmetrologie revolutionierte, indem er Energieniveaus von Atomkernen mit Übergangsenergien im Bereich der harten Röntgenstrahlung (6 – 100 keV) nutzte. Seine Entdeckung war die rückstoßfreie Wechselwirkung von Röntgenphotonen mit Atomkernen, die in einem Festkörper fest gebunden sind. Dies wird seitdem als Mößbauer-Effekt bezeichnet (Physiknobelpreis 1961). Bis heute sind etwa 100 Isotope mit dieser besonderen Eigenschaft bekannt, die Mößbauer-Isotope genannt werden. „Rückstoßfrei“ bedeutet, dass die Wechselwirkung der Photonen mit diesen Kernen ohne Energieaustausch mit den Phononen stattfindet – den quantisierten Schwingungen des Kristallgitters des Festkörpers, in dem die Kerne gebunden sind. Folglich hat die spektrale Verteilung dieser Photonen im besten Fall die

This is an open access article under the terms of the Creative Commons Attribution License, which permits use, distribution and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

Form einer Lorentz-Kurve mit der natürlichen Linienbreite Γ_0 des Kernübergangs, die sich aus seiner natürlichen Lebensdauer τ_0 über $\Gamma_0 = \hbar/\tau_0$ berechnet.

Verglichen mit der Kernübergangsenergie E_0 im Bereich der harten Röntgenstrahlung kann die Linienbreite von Mößbauer-Isotopen extrem klein sein, wie auf Abbildung 2 zu sehen ist. Im Falle des am häufigsten verwendeten Mößbauer-Isotops ^{57}Fe mit $E_0 = 14,4 \text{ keV}$ beträgt die natürliche Linienbreite $4,7 \text{ neV}$, so dass die relative Bandbreite durch $\Gamma_0/E_0 = 3 \cdot 10^{-13}$ gegeben ist. Zur Zeit der Entdeckung von Mößbauer war dies eine herausragende Genauigkeit, mit der winzige relativistische Effekte auf der Erde nachgewiesen werden konnten, wie die gravitative Rotverschiebung [4] und die relativistische Zeitdilatation, die sich als Doppler-Verschiebung zweiter Ordnung manifestiert [5]. Die Mößbauer-Kerne nehmen daher einen herausragenden Platz in der Geschichte der Präzisionsmetrologie ein.

Die höchste Genauigkeit, die bisher mit Hilfe des Mößbauer-Effekts experimentell erreicht wurde, ist $\Gamma_0/E_0 = 1 \cdot 10^{-15}$ beim 93-keV-Übergang in ^{67}Zn , womit die Gravitationsrotverschiebung auf Labormaßstäben von etwa 1 m gemessen werden konnte [6]. In der Zwischenzeit konnten mit Strontium-Atomen in einem optischen Gitter Werte von $\Gamma_0/E_0 = 2 \cdot 10^{-18}$ erreicht werden [1]. Bis 2030 sollen solche optischen Gitteruhren die Cesium-Atomuhren ersetzen, um die Definition der Sekunde als SI-Zeiteinheit zu verbessern. Aber auch Atomkerne haben das Potenzial, Uhren mit noch höherer Genauigkeit zu realisieren. Der bisher prominenteste Kandidat, das 8,3-eV-Niveau des Kernisomers $^{229\text{m}}\text{Th}$ (siehe Seite 176 in diesem Heft), weist eine so schmale Resonanzlinie auf, dass die Realisierung einer Kernuhr mit einer Genauigkeit von 10^{-20} in Reichweite liegen könnte [3, 7]. Komplementär dazu erreicht das 12,4-keV-Niveau des Isotops ^{45}Sc bei den viel höheren Energien harter Röntgenstrahlung eine relative Bandbreite von 10^{-19} und bietet im Vergleich zu $^{229\text{m}}\text{Th}$ spezifische Vorteile [1]. Neben diesen beiden Isotopen gibt es nur wenige mit noch schmalen Resonanzlinien (Abbildung 1), die aktuell jedoch nicht mit vertretbarem Aufwand nutzbar sind.

Herausforderungen und Vorteile nuklearer Übergänge

Mit der Suche nach immer präziseren Übergängen geht die Herausforderung einher, geeignete Strahlungsquellen zu finden, um eine derart schmale Resonanzlinie anzuregen. Dies ist notwendig, um den Resonanzübergang an eine Lichtquelle zu koppeln, die dann mit Hilfe des Resonanzsignals des Uhrenatoms stabilisiert werden kann. Während das bei optischen Wellenlängen aufgrund der Verfügbarkeit leistungsfähiger optischer Laser vergleichsweise einfach ist, wird es umso schwieriger, je höher die Übergangsenergie wird. Dies ist insbesondere der Fall, wenn Kernniveaus für Atomuhren in Betracht gezogen werden.

Das 8,3-eV-Niveau von $^{229\text{m}}\text{Th}$ kann im Prinzip mit ultravioletten Frequenzkämmen erreicht werden, aber

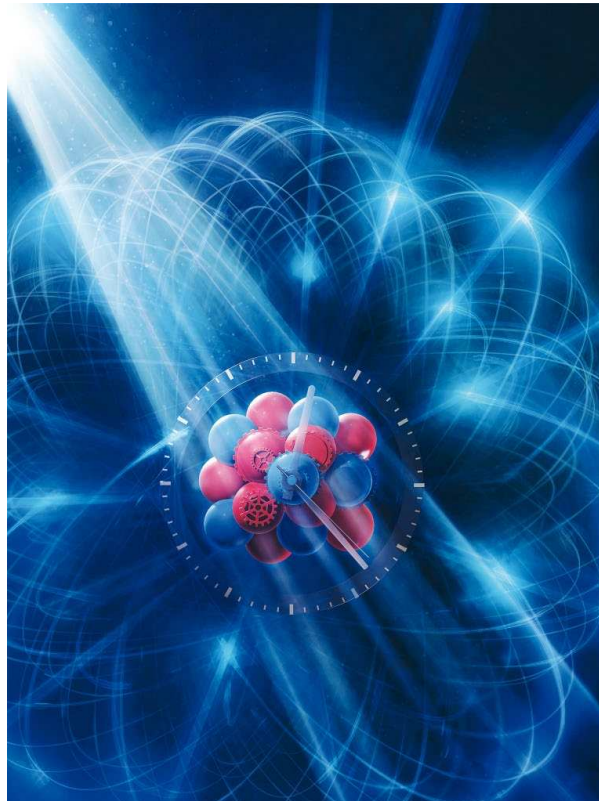
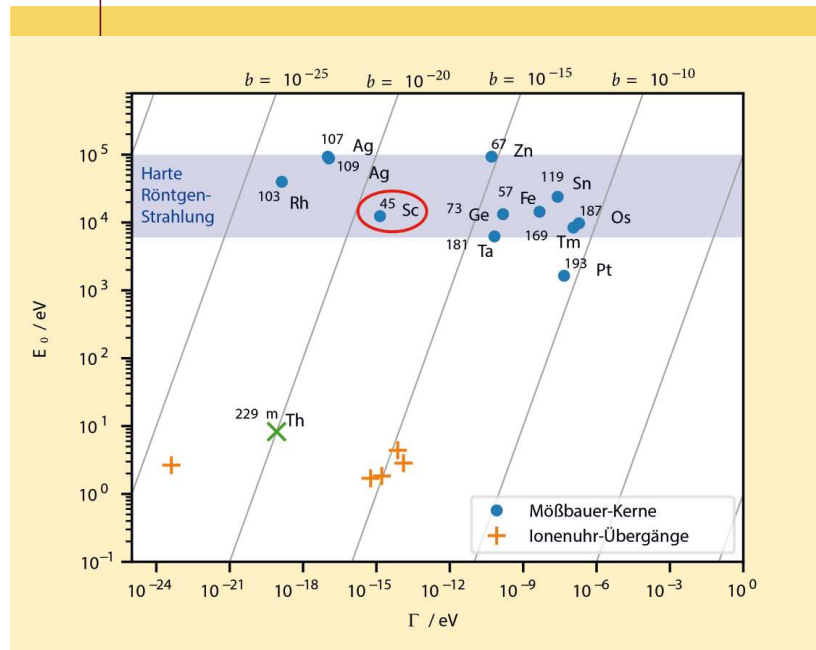


Abb. 1 Künstlerische Darstellung der Anregung des Kernisomers $^{45}\text{Scandium}$. Röntgenstrahlen aus dem European XFEL beleuchten den Kern, um dessen Resonanz bei einer Energie von zirka 12,4 keV anzuregen. Beim anschließenden Zerfall wird die Anregungsenergie auf ein Elektron der K-Schale übertragen. Das führt schließlich zur Emission von verzögerter K-Fluoreszenzstrahlung mit einer Energie von 4 keV, die als Nachweis der Anregung der Resonanz dient [1] (Grafik: European XFEL/Helmholtz-Institut Jena, T. Wüstefeld/R. Röhlberger).

die direkte Anregung dieser Resonanz bleibt eine Herausforderung. Andererseits kommen mit der Verfügbarkeit von Röntgenlasern (X-ray Free-Electron Laser, XFEL) Kernresonanzen im Röntgenbereich mit ultraschmalen Linienbreiten als Kandidaten für eine Kernuhr in Reichweite. Der vielversprechendste Fall ist das Isotop $^{45}\text{Scandium}$ mit einer Übergangsenergie von 12,4 keV, einer Lebensdauer im angeregten Zustand von 0,47 s und einer Resonanzlinienbreite von nur 1,4 feV ($1,4 \cdot 10^{-15} \text{ eV}$), was einer relativen Bandbreite von $\Gamma_0/E_0 = 10^{-19}$ entspricht, wie in Abbildung 2 zu sehen ist. Dies würde bei einer Kernuhr eine zeitliche Genauigkeit von einer Sekunde in 300 Milliarden Jahren ermöglichen.

Das chemische Element Scandium besteht zu 100 % aus dem Isotop $^{45}\text{Scandium}$, das als hochreine Scandium-Metallfolie oder als Scandiumoxid leicht erhältlich ist. Diese Eigenschaften verschaffen $^{45}\text{Scandium}$ einen Vorteil gegenüber allen anderen Kandidaten für eine Kernuhr. Hinzu kommt, dass die Uhren, die auf ultraschmale atomare Energieniveaus angewiesen sind, an fundamentale Grenzen stoßen.

ABB. 2 | ATOM- UND KERNRESONANZEN



Karte von Atom- und Kernresonanzen, die für Anwendungen in der extremen Metrologie sowie für Atom- und Kernuhren in Frage kommen. Auf der vertikalen Achse ist die Übergangsenergie E_0 aufgetragen, auf der horizontalen Achse die natürliche Linienbreite Γ_0 der Resonanz. Ausgewählte konstante relative Linienbreiten ($b = \Gamma_0 / E_0$) sind als diagonale Linien in diese Karte eingetragen. Die Daten stammen zum Teil aus [3] (Grafik: D. Lentrodt, Univ. Freiburg).

Denn bei extrem hoher Genauigkeit wird der Betrieb dieser Uhren durch die unvermeidliche Wechselwirkung der Atomhülle mit ihrer Umgebung beeinträchtigt. Auch in dieser Hinsicht versprechen Kernuhren einige Vorteile gegenüber herkömmlichen Atomuhren:

1. Eine höhere Genauigkeit aufgrund geringerer systematischer Frequenzverschiebungen: Die meisten der heute untersuchten fortschrittlichen optischen Uhren sind in ihrer Genauigkeit wegen systematischen Frequenzverschiebungen durch externe elektrische oder magnetische Felder begrenzt. Bei Uhren, die nicht bei kryogener Temperatur betrieben werden, entsteht durch Wärmestrahlung aus der Umgebung eine Frequenzverschiebung, die eine sorgfältige Kontrolle und Korrektur erfordert. Aufgrund der Kleinheit der magnetischen und elektrischen Momente der Atomkerne im Vergleich zu denen der Elektronenhülle sind solche Verschiebungen bei einem Kernniveau viel geringer.
2. Eine höhere Stabilität in einer Festkörperumgebung: Wegen der erforderlichen präzisen Kontrolle der Wechselwirkungen zwischen den Atomen untereinander und mit deren Umgebung verwenden die aktuell am weitesten entwickelten optischen Uhren nur eine geringe Anzahl von Atomen. Die Spannbreite reicht von einem Atom in Form eines einzelnen gefangenen Ions bis zu einigen Tausend Atomen in optischen Gitteruhren im Ultrahochvakuum (Physik in unserer Zeit 2017, 48(4), 178). In einer nuklearen Uhr könnte es möglich sein,

extrem schmalbandige und ungestörte Kernresonanzen von einem großen Ensemble von Atomen ($N > 10^{19}$) in einem Festkörper zu verwenden, was zu einem potenziell enormen Gewinn an Signal-Rausch-Verhältnis und sehr hoher Uhrenstabilität führen könnte.

3. Höhere Stabilität durch höhere Referenzfrequenz: Neben der Linienbreite und dem Signal-Rausch-Verhältnis ist die Referenzfrequenz der wichtigste Parameter, der die Stabilität einer Atomuhr bestimmt, durch Mittelung der Störungen über viele Schwingungsperioden. Sie ist auch der Parameter, bei dem die Skalierung die größte Chance für weitere Verbesserungen bietet, wenn man bedenkt, dass der typische Energiebereich der Mößbauer-Übergänge einige zehn keV beträgt, was vier Größenordnungen höher als bei den derzeitigen optischen Uhren ist. Demgegenüber steht die Herausforderung, ein geeignetes Uhrwerk für die Zählung der Perioden zu entwickeln. Ein solches steht derzeit im Röntgenbereich mit einer ähnlichen Effizienz wie im sichtbaren Spektralbereich nicht zur Verfügung. Aktuelle Entwicklungen im Bereich von hochpräziser Röntgenoptik und -technologie lassen jedoch Fortschritte in naher Zukunft erwarten.
4. Der Mößbauer-Effekt der Kerne, wenn sie in einem Festkörper gebunden sind, sorgt dafür, dass die Wechselwirkung mit den resonanten Photonen ohne Rückstoß abläuft. In Festkörpern sind, wie bereits erklärt, die Kerne auf natürliche Weise in einem Gitter mit sehr starken Bindungskräften gebunden. Damit sind die in Kristallgittern gebundenen Kerne vergleichbar mit Ionen, die in optischen Fallen mit tiefem Potential gefangen sind, mit denen heute die höchsten Genauigkeiten bei Atomuhren erreicht werden.

Experimentelle Möglichkeiten

Das wissenschaftliche Potenzial der ^{45}Sc -Resonanz und mögliche Ansätze für ihre Nutzung wurden bereits vor mehr als 30 Jahren erkannt [8]. Allerdings war für lange Zeit nach dieser ersten theoretischen Studie keine Röntgenquelle verfügbar, die einen ausreichend hohen Photonenfluss innerhalb der 1,4 feV schmalen Linie von ^{45}Sc bieten konnte. Detaillierte Schätzungen unter Berücksichtigung aktueller experimenteller Bedingungen haben ergeben, dass ein spektraler Photonenfluss von mindestens 10^{13} Photonen $\text{s}^{-1} \text{eV}^{-1}$ notwendig ist, um die Resonanz anzuregen und die Kernzerfallsprodukte mit einem ausreichenden Signal-zu-Untergrund-Verhältnis nachzuweisen. Zum Vergleich: Die besten konventionellen Röntgenröhren in einem Labor würden einen spektralen Photonenfluss von 10^8 Photonen $\text{s}^{-1} \text{eV}^{-1}$ liefern. Die intensivsten Synchrotron-Strahlungsquellen konnten bisher zwar 10^{13} Photonen $\text{s}^{-1} \text{eV}^{-1}$ an der Probenposition liefern, aber nur mit einem deutlich zu hohen Untergrundsignal. Deshalb sind frühere Versuche, die ^{45}Sc -Resonanz an diesen Quellen anzuregen, erfolglos geblieben.

Diese Situation änderte sich grundlegend, als der Röntgenlaser European XFEL (EuXFEL) in Schenefeld bei Ham-

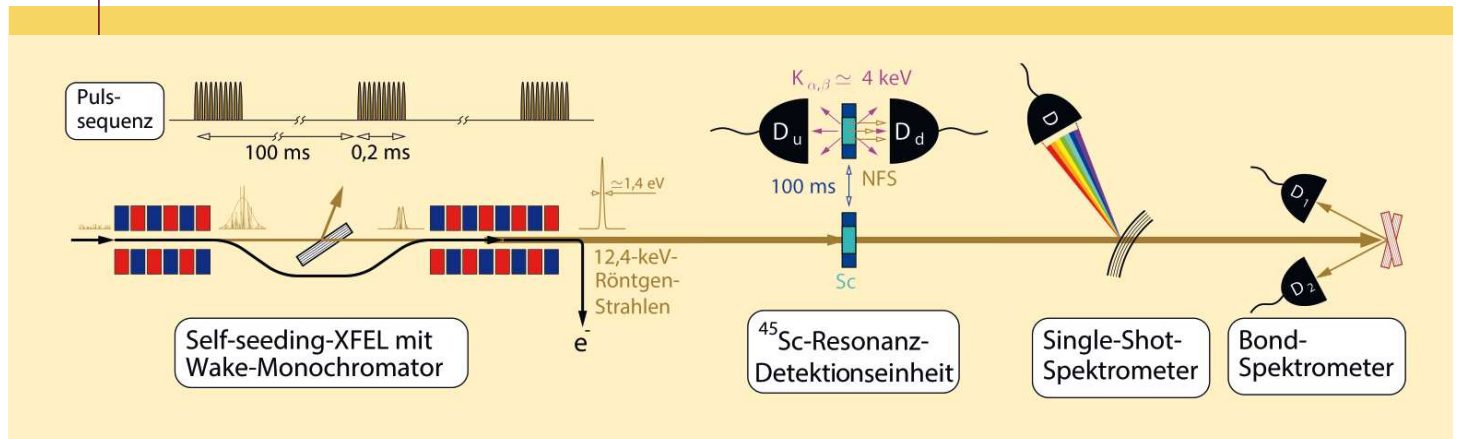
burg den Betrieb aufnahm [9] und im sogenannten Self-Seeding-Modus (Abbildung 3) im Energiebereich harter Röntgenstrahlung zu arbeiten begann [10]. Für das Experiment lieferte der EuXFEL Pulsfolgen von 12,4-keV-Röntgenstrahlung mit dem höchsten spektralen Fluss ($2 \cdot 10^{14}$ Photonen $\text{s}^{-1} \text{eV}^{-1}$) aller beschleunigerbasierten Röntgenquellen weltweit. Darüber hinaus verfügt der EuXFEL über eine zeitliche Pulssequenz, die aus 0,2 ms langen, aufeinander folgenden Pulszügen mit einer Wiederholrate von 10 Hz besteht. Die sich daraus ergebende zeitliche Lücke von 100 ms zwischen den Pulszügen ist ein entscheidender Vorteil des Europäischen Röntgenlasers, weil damit über den inneren Konversionszerfall eine nahezu untergrundfreie Detektion des langlebigen ^{45}Sc -Kerns möglich wurde, wie in Abbildung 3 dargestellt ist.

Ein hoher spektraler Photonenfluss aus einer Quelle wie einem Röntgenlaser mit einer passenden Pulsfolge ist eine notwendige, aber keine hinreichende Bedingung für eine erfolgreiche Anregung und Detektion der ^{45}Sc -Resonanz. Das Problem ist, dass die Energiebandbreite der eintreffenden Röntgenstrahlung in der Größenordnung von 1 eV liegt. Das bedeutet, dass ein einzelnes Photon innerhalb der 1,4-eV-Bandbreite der Kernresonanz von einem Hintergrund von $2 \cdot 10^{14}$ Photonen begleitet wird, die nicht in der Lage sind, die Resonanz anzuregen. Die Herausforderung besteht darin, in Gegenwart dieser enormen Zahl von nicht resonanten Photonen die Wechselwirkung der wenigen resonanten Photonen mit der ^{45}Sc -Probe mit einer ausreichend hohen statistischen Signifikanz zu beobachten, um die exakte Frequenz des Kernübergangs bestimmen zu können. Hierzu waren eine Reihe von tech-

nischen Problemen zu überwinden, was mit dem in Abbildung 3 skizzierten Versuchsaufbau gelungen ist:

1. Die eintreffende Röntgenlaserstrahlung führt zu einer erheblichen Wärmebelastung der Probe: Jeder Pulszug (Einzelpulsenergie rund 0,3 mJ) könnte das Scandium-Metall-Target alle 100 ms um 450 K aufheizen. Um dieses Problem zu entschärfen, wurde der Strahlquerschnitt vor der Probe so aufgeweitet, dass die Leistungsdichte der Strahlung unterhalb der Zerstörschwelle lag.
2. Realisierung von rauscharmen Detektionsbedingungen für die 4-keV-Fluoreszenzphotonen: Um ein ausreichend hohes Signal-zu-Untergrund-Verhältnis zu gewährleisten, musste die Rate der Untergrundsignale in Gegenwart des enormen einfallenden Flusses unter einem Ereignis pro 5000 s gehalten werden. Dies wurde unter anderem dadurch erreicht, dass die Scandium-Probe nach Bestrahlung durch einen Pulszug des Röntgenlasers innerhalb von 20 ms mechanisch über eine Strecke von 12 mm aus dem Strahl gefahren und dann für 80 ms zwischen den beiden Detektoren positioniert wurde, um die verzögert emittierten Fluoreszenz-Photonen vom ^{45}Sc nachzuweisen und so dessen Resonanzfrequenz zu identifizieren. Als Detektoren wurden extrem rauscharme Silizium-Driftdetektoren gewählt, die vom direkten Strahl abgeschirmt waren. Diese Detektoren boten eine ausgezeichnete Energieauflösung, sodass die 4-keV-Photonen klar von allen anderen Hintergrundphotonen unterschieden werden konnten, welche die Detektoren möglicherweise zur gleichen Zeit erreichten.

ABB. 3 | SKIZZE DES EXPERIMENTS



Experimenteller Aufbau zum Nachweis der 12,4-keV-Kernresonanz von ^{45}Sc an der MID-Station des European XFEL [1]. Links: Der Röntgenstrahl zur Anregung der Scandium-Kerne wird durch ein sogenanntes Self-Seeding-Verfahren in der Undulatorsektion des European XFEL erzeugt [10]. Dabei wird nach Durchlaufen einer Teilstrecke des Undulators das Spektrum der bis dahin erzeugten Röntgenstrahlung mit Hilfe eines Diamantkristalls so modifiziert, dass im Anschluss nur noch ein kleiner Bereich von Wellenlängen weiter verstärkt wird. Mitte: Eine 25 µm dünne ^{45}Sc -Folie (hellblau) ist auf einer mechanischen Shutter-Vorrichtung montiert, welche die Folie periodisch zwischen zwei Positionen hin und her bewegt: zwischen der Position, in der die Scandium-Folie von den Röntgenlaserstrahlen beleuchtet wird, und der Position zwischen den zwei Detektoren zum Nachweis der verzögerten 4-keV- $K_{\alpha,\beta}$ -Fluoreszenz des ^{45}Sc (NFS: Nuclear-resonant Forward Scattering). Rechts: Zwei Spektrometer dienen der Bestimmung der genauen Photonenenergie. Das Single-Shot-Spektrometer liefert bei jedem Scan der einfallenden Röntgenstrahlung das Energiespektrum der Photonenpulse und damit deren relative Energie. Mit dem Bond-Spektrometer wird dann eine hochpräzise Messung der absoluten Photonenenergie durchgeführt (aus [1], Abdruck mit Genehmigung von Springer Nature).

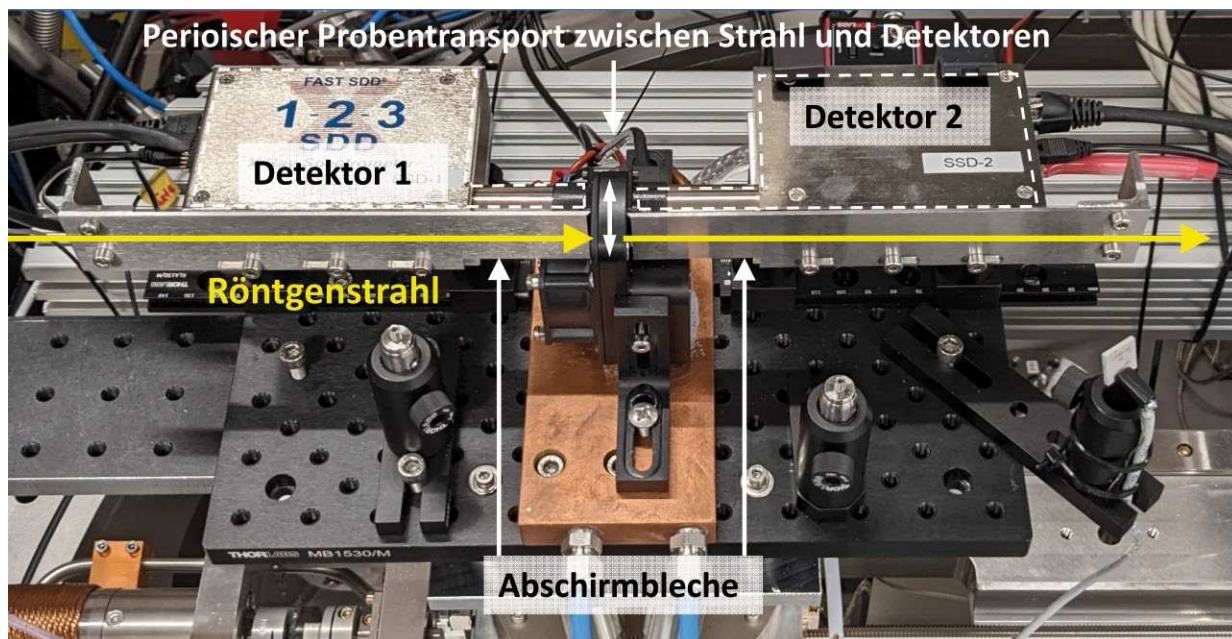


Abb. 4 Nahansicht der ^{45}Sc -Resonanz-Detektionseinheit (siehe Abbildung 3) an der MID-Experimentierstation des European XFEL. Der Shutter-Mechanismus, der die Scandium-Metallfolie periodisch zwischen dem Strahl und der Detektorposition bewegt, ist auf einem wassergekühlten Kupferblock montiert, um die Erwärmung der Mechanik durch die einfallende Röntgenlaserstrahlung zu mindern. Die beiden Detektoren im oberen Teil des Bildes werden durch Edelstahl-Bleche gegenüber dem Röntgenstrahl abgeschirmt.

- Die Energie der einfallenden Photonen musste in einem Intervall von ± 50 eV um den bisher sehr ungenauen Literaturwert von 12,4 keV für die ^{45}Sc -Kernresonanz gescannt werden, um diese zu finden. Das stellte eine Herausforderung für die Erzeugung eines stabilen Strahls mit hoher Pulsenergie dar, da die Justierung des Seeding-Kristalls, dessen Einstellung die Energie der Photonen bestimmt, ein integraler Bestandteil des Erzeugungsprozesses der Röntgenstrahlung ist. Um die Photonenenergie während der Scans zu überprüfen, wurde die *relative Energie* der einfallenden Photonen mit dem einem Kristallspektrometer gemessen, das die Energieverteilung der Photonen auf einem eindimensionalen Detektor abbildet („Single-Shot-Spektrometer“ in Abbildung 3).
- Zur genauen Messung der Resonanzenergie wurde ein hochauflösendes Röntgenspektrometer zur Anwendung der Bond-Methode [11] verwendet. Bei dieser Technik wird ein speziell geschliffener, nahezu perfekter Silizium-Kristall eingesetzt, um den Winkelabstand $\Delta\theta$ zweier Bragg-Reflexe mit größter Genauigkeit zu messen („Bond-Spektrometer“ in Abbildung 3). Mit $\Delta\theta$ und der bekannten Gitterkonstante von Silizium konnte dann die *absolute Energie* der Röntgenstrahlung mit einer Genauigkeit von besser als 0,2 eV bestimmt werden.

Scandium-Resonanz gefunden!

Das Grundprinzip des Experiments ist in Abbildung 1 in einer künstlerischen Darstellung festgehalten. Konkret

wurde das Experiment am MID-Instrument (Materials Imaging and Diffraction) des European XFEL mit dem in Abbildung 4 gezeigten Versuchsaufbau durchgeführt. Abbildung 5 zeigt die Detektorereignisse der Photonen, dargestellt als farbige Punkte auf einem zweidimensionalen Diagramm als Funktion der einfallenden Photonenenergie E (horizontale Achse) und der Pulshöhe des in einen Energiewert umgewandelten Detektorsignals (vertikale Achse). Die Darstellung umfasst einen Scanbereich von ± 40 eV um die Energie E_0 , bei der die Resonanz schließlich gefunden wurde.

Als sich bei den ersten Scans eine Häufung von Detektorsignalen an dieser Position die Resonanz bereits andeutete, wurde der Scanbereich auf ± 5 eV eingengt. Die beiden Teilbilder in Abbildung 5 rechts zeigen vergrößerte Bereiche um E_0 und Detektorenergien von 4 keV (rechts unten) und 12,4 keV (rechts oben). Das untere Teilbild zeigt deutlich die Häufung von Ereignissen bei den Energien der K_{α} - und K_{β} -Fluoreszenz des Scandiums, was den inneren Konversionszerfall – also die Aussendung eines Hüllenelektrons – der ^{45}Sc -Kerne nach Röntgenlaseranregung eindeutig belegt. Das obere Teilbild zeigt den Bereich um 12,4 keV, in dem man die Photonen erwarten würde, die kohärent in Vorwärtsrichtung emittiert wurden. Da die experimentellen Bedingungen nicht für den Nachweis dieser Photonen optimiert waren, gibt es in diesem Bereich kein statistisch signifikantes Signal.

Während der Dauer der Messungen trafen insgesamt 10^{20} Röntgenphotonen auf die Scandium-Targetfolie. Die resonante Anregung der ^{45}Sc -Kernresonanz führte

zum Nachweis von 93 verzögerten K-Fluoreszenzphotonen von 4 keV, die wir in einem Zeitbereich von 20 bis 80 ms nach dem Anregungspuls mit einem sehr hohen Signal-zu-Untergrund-Verhältnis detektieren konnten.

Neben dem Nachweis der Anregung der ^{45}Sc -Resonanz bestand das Hauptziel des Experiments darin, die Energie des Übergangs genau zu messen, die bisher nur mit einer Genauigkeit von ± 50 eV bekannt war [12]. Abbildung 6 zeigt das von den beiden Detektoren aufgezeichnete Histogramm der verzögerten 4-keV-Fluoreszenzphotonen als Funktion der einfallenden Röntgenenergie. Die Breite der Kurve in Abbildung 6 spiegelt die Energiebandbreite des Röntgenstrahls wider, die sich aus dem Self-Seeding-Prozess bei der Erzeugung der Röntgenlaserstrahlung ergibt.

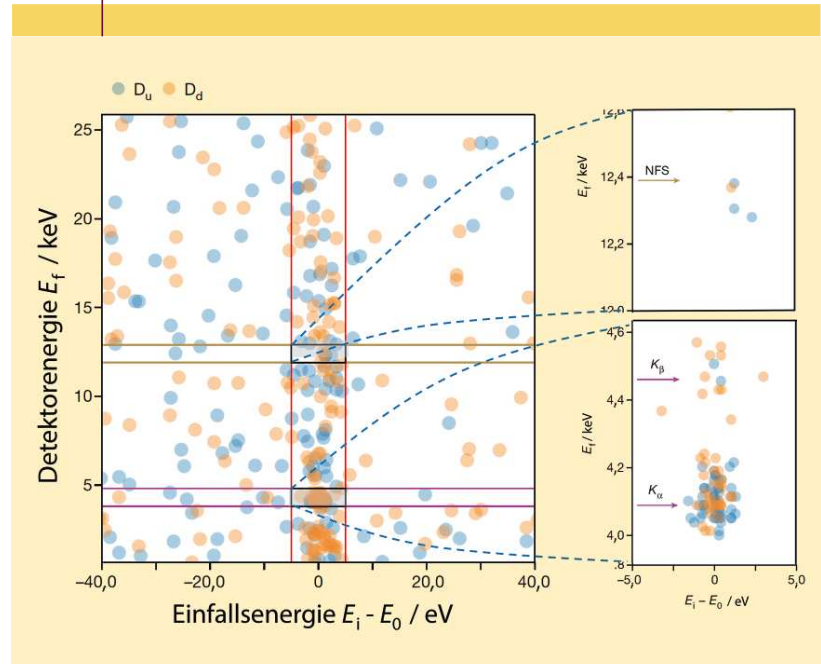
Durch den Einsatz der Bond-Methode konnte der Wert der ^{45}Sc -Resonanzenergie mit einer 300-fach höheren Genauigkeit als bisher bekannt bestimmt werden, nämlich auf einen Wert von 12389,59 eV mit einem statistischen Fehler von $\pm 0,15$ eV und einem systematischen Fehler von $+0,12$ eV. Die genaue Kenntnis dieser Energie ist von größter Bedeutung für weitere Schritte in Richtung Anwendungen in der extremen Metrologie und für die Realisierung einer auf ^{45}Sc basierenden Kernuhr. Darüber hinaus lieferte das Experiment auch neue Schätzungen für den Wirkungsquerschnitt und andere Parameter dieses Übergangs, was das Verständnis dieses bemerkenswerten Kernübergangs weiter vertieft [1].

Die nächsten Schritte

Der Nachweis der resonanten Röntgenanregung des 12,4 keV-Niveaus von ^{45}Sc und die Präzisionsbestimmung seiner Resonanzenergie waren der erste, sehr wichtige Schritt für künftige Anwendungen wie die Realisierung einer Kernuhr oder die Überprüfung von fundamentalen Naturgesetzen mit höchster Präzision. Der nächste Schritt in diese Richtung wird die Beobachtung der kohärenten Vorwärtstreuung an diesem Atomkern sein [8]. Dabei emittieren die Kerne ihre 12,4-keV-Anregungsenergie wie eine regelmäßige Anordnung von Antennen in die gleiche Richtung wie die Strahlung, mit der sie angeregt wurden. Im Gegensatz zur Messung der Fluoreszenzphotonen ist die kohärente Strahlung nicht durch die anregende Röntgenstrahlung verbreitert.

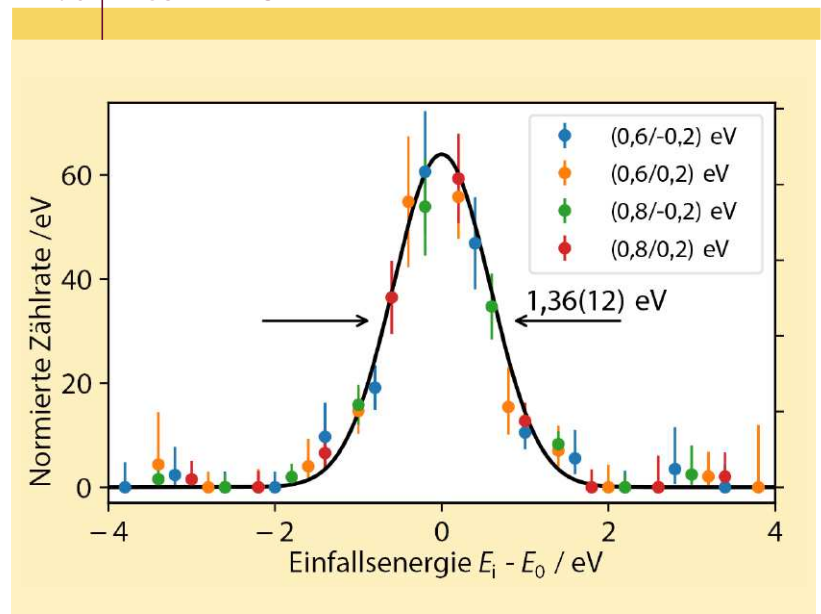
Für dieses Experiment muss die Scandium-Probe auf Temperaturen unter 30 K abgekühlt werden, um Linienverbreiterungen durch den Doppler-Effekt zweiter Ordnung zu minimieren. Es wird eine Herausforderung sein, das bisher angewandte Messprinzip auch unter diesen Bedingungen zu realisieren. Gelingt der Nachweis der Vorwärtstreuung, würde dies zunächst wichtige Erkenntnisse über die Wechselwirkung der Scandium-Kerne mit ihrer Umgebung im Festkörper geben. Diese Messungen werden dann auch Hinweise liefern, wie eine Scandium-Probe mit einer Resonanzlinienbreite präpariert werden kann, die der natürlichen Linienbreite von 1,4 feV so nahe wie möglich

ABB. 5 | MESSDATEN



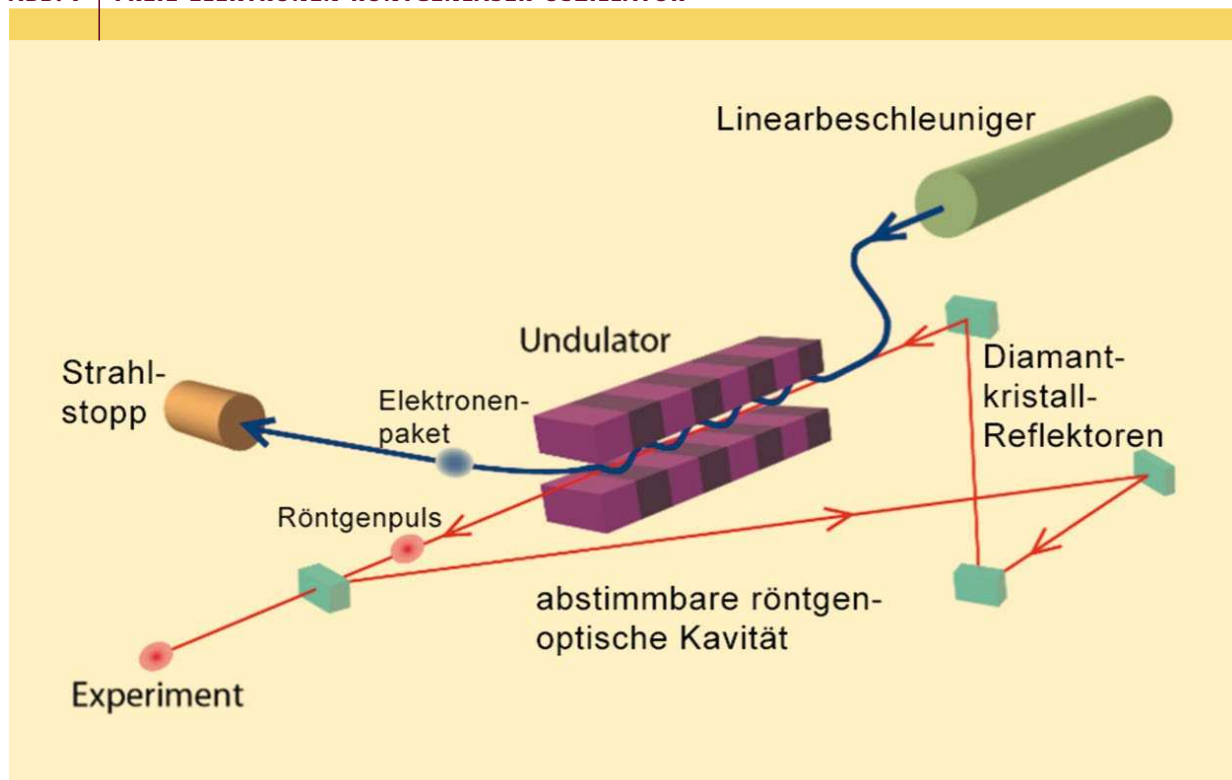
Darstellung der registrierten Photonen von Detektor 1 (blaue Punkte) und Detektor 2 (orangefarbene Punkte) in Abhängigkeit von der Energie der einfallenden Photonen (horizontale Achse) und der kalibrierten Detektorenergie (vertikale Achse). Die Ausschnitte rechts zeigen vergrößerte Bereiche um 4 keV sowie um 12 keV. Bei 4,1 keV und 4,5 keV sind deutliche Häufungen von K_{α} - und K_{β} -Fluoreszenzphotonen des Scandiums zu erkennen, ein eindeutiger Nachweis der resonanten Anregung des 12,4-keV-Kernniveaus. Wie in diesem Experiment zu erwarten war, sind um 12,4 keV keine am Kern resonant elastisch gestreuten Photonen zu erkennen (aus [1], Abdruck mit Genehmigung von Springer Nature).

ABB. 6 | RESONANZKURVE



Resonanzkurve, aufgenommen mit verzögerten 4-keV-Fluoreszenzphotonen der K-Schale von ^{45}Sc , die beim Zerfall von dessen 12,4-keV-Kernniveau nach Anregung durch Röntgenpulse des European XFEL emittiert wurden. Die Mitte der Kurve markiert die Resonanzenergie, die zu 12389,59 eV bestimmt wurde. Die Genauigkeit dieser Messung ist 300-mal besser als zuvor bekannte Werte (aus [1], Abdruck mit Genehmigung von Springer Nature).

ABB. 7 | FREIE-ELEKTRONEN-RÖNTGENLASER-OSZILLATOR



Schema eines Freie-Elektronen-Röntgenlaser-Oszillators (XFEL) [15]. Das periodische Recycling der Photonenpulse über aufeinanderfolgende Reflexionen an Diamantkristallen führt zu einer enormen Steigerung der abgestrahlten Röntgenintensität im Vergleich zu dem aktuell etablierten Verfahren bei Röntgenlasern. Der spektrale Fluss bei der 12,4-keV-Resonanz könnte so um mehrere Größenordnungen gesteigert werden, was von großer Bedeutung für künftige Anwendungen des ^{45}Sc als Kernuhr und Quantensensor ist (Grafik: K.-J. Kim).

kommt. Wenn dies erreicht ist, sind Experimente zum Test der Universalität der Gravitationsrotverschiebung auf Sub-mm-Längenskalen möglich – ein Bereich, der bisher nicht zugänglich war.

Außerdem könnte mit der ^{45}Sc -Resonanz eine weitere grundlegende Frage untersucht werden. Nach der Relativitätstheorie ist die Vakuumlichtgeschwindigkeit die äußerste Geschwindigkeitsgrenze im Universum. Es stellt sich die Frage, ob es eine ähnliche Grenze auch für die Beschleunigung gibt [13]. Nach bisherigen experimentellen Daten müsste eine solche Grenzbeschleunigung, wenn sie existiert, größer als das 10^{21} -Fache der Erdbeschleunigung von 1 g sein [14]. Mit einer extrem schnell rotierenden Scandium-Probe, in der die Scandium-Kerne einer sehr hohen Kreisbeschleunigung ausgesetzt sind, könnte man eine Empfindlichkeit erreichen, mit der man diese Grenze auf 10^{25} g oder weiter verschieben könnte.

Jeder Hinweis auf eine Maximalbeschleunigung im Universum würde eine zentrale Annahme der Relativitätstheorie in Frage stellen, nämlich die sogenannte *Ubrenhypothese*. Demnach ist die Lorentz-Transformation unabhängig von der Beschleunigung der jeweiligen Bezugssysteme, was eine wichtige Voraussetzung für die koordinatenunabhängige Formulierung der Allgemeinen Relativitätstheorie ist.

Für solche fundamentalen Experimente wäre es sehr vorteilhaft, wenn die nächste Generation beschleunigergetriebener Röntgenlaserquellen bereits zur Verfügung stünde. Derzeit wird ein vielversprechender Weg beschritten, der darauf abzielt, ein spezielles Verstärkungsschema zu realisieren, das viel effizienter sein kann als das aktuell angewandte Self-Seeding-Verfahren. Es beruht auf der Einkopplung des Röntgenstrahls vom Ausgang des Undulators in eine Sequenz von Kristallreflexionen, über welche die erzeugte Röntgenstrahlung wieder in den Undulator eingekoppelt wird, um von den dort durchlaufenden Elektronen weiter verstärkt zu werden. Dies ist das Prinzip des sogenannten X-ray Free Electron Laser Oscillators (XFEL), das in Abbildung 7 dargestellt ist. Es könnte zu einer Verstärkung des spektralen Photonenflusses um mehrere Größenordnungen führen [15], wovon alle Anwendungen von Kernresonanzen wie die des ^{45}Sc -Atomkerns stark profitieren würden. Erste Schritte in diese Richtung sind bereits erfolgreich unternommen worden, so dass ein XFEL in naher Zukunft Realität werden könnte.

Die Realisierung einer Kernuhr auf der Basis von ^{45}Sc erfordert jedoch eine Reihe weiterer Schritte. Der wichtigste davon ist die Kopplung der Kernresonanz an ein Uhrwerk, an dem die Zeit abgelesen werden kann. Dazu wäre die Realisierung eines Frequenzkamms erforderlich,

der auf die Energie der Kernresonanz stabilisiert ist, was im harten Röntgenbereich eine große Herausforderung ist [16]. Eine Scandium-Kernuhr wird sicherlich nicht in absehbarer Zeit auf Satelliten in der Erdumlaufbahn zu finden sein. Deutlich früher hingegen könnte die ^{45}Sc -Kernresonanz als neues erdgebundenes, ultrapräzises Frequenznormal zur Überprüfung fundamentaler Naturgesetze zum Einsatz kommen.

Zusammenfassung

Die resonante Anregung der ^{45}Sc -Kernresonanz und die präzise Messung ihrer Energie eröffnen neue Möglichkeiten für Anwendungen in der Ultrapräzisions-Röntgenspektroskopie bis hin zur Entwicklung einer Kernuhr. Damit kann zum Beispiel die Gravitationsrotverschiebung erstmals auf sehr kurzen Längenskalen überprüft werden. Darüber hinaus demonstriert dieses Experiment das große Potenzial von Self-Seeding-Röntgenlasern mit hoher Pulsrate als vielversprechende Plattform für die Spektroskopie von extrem schmalbandigen Kernresonanzen. Die nächsten Schritte in Richtung einer Kernuhr auf der Basis von ^{45}Sc erfordern eine weitere Erhöhung des spektralen Photonenflusses unter Verwendung verbesserter Röntgenlaserquellen bei 12,4 keV und die Entwicklung von Frequenzkämmen, die bis zu dieser Energie reichen.

Stichwörter

Kernuhr, optische Atomuhr, Scandium-45, Röntgenlaser, Self-Seeding, Gravitationsrotverschiebung, Relativitätstheorie.

Danksagung

Der erfolgreiche Nachweis der ^{45}Sc -Resonanz und die Präzisionsmessung der Resonanzenergie war nur möglich dank des großen Einsatzes aller an am Scandium-45-Projekt beteiligten Kolleginnen und Kollegen. Ihnen allen möchten wir unseren Dank aussprechen. Open-Access-Veröffentlichung ermöglicht und organisiert durch Projekt DEAL.

Literatur

- [1] Y. Shvyd'ko et al., Nature **2023**, 622, 471.
- [2] T. L. Nicholsen et al., Nature Commun. **2015**, 6, 6896.
- [3] L. von der Wense et al., Nature **2016**, 533, 47.
- [4] R. V. Pound, G. A. Rebka, Phys. Rev. Lett. **1960**, 4, 337.
- [5] W. Küding, Phys. Rev. **1962**, 129, 2371.
- [6] W. Potzel et al., Hyperfine Interact. **1992**, 72, 197.
- [7] K. Beeks et al., Nature Rev. Phys. **2021**, 3, 238.
- [8] Y. V. Shvyd'ko, G. V. Smirnov, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B **1990**, 51, 452.
- [9] W. Decking, H. Weise, I. Flegel, Physik in unserer Zeit **2018**, 49, 38.
- [10] S. Liu et al., Nature Photon. **2023**, 17, 984.
- [11] W. L. Bond, Acta Crystallogr. **1960**, 13, 814.
- [12] T. W. Burrows, Nucl. Data Sheets **2008**, 109, 171.
- [13] J. Friedman, Ann. Phys. (Berlin) **2011**, 523, 408.
- [14] W. Potzel, Hyperfine Interact. **2016**, 237, 38.
- [15] K.-J. Kim, Y. Shvyd'ko, S. Reiche, Phys. Rev. Lett. **2008**, 100, 244802.
- [16] B. W. Adams, K. J. Kim, Phys. Rev. STAB **2015**, 18, 030711.

Die Autoren



Ralf Röhlberger, geb. 1962, promovierte an der Universität Hamburg und ist heute Professor am Helmholtz-Institut Jena. Seine Hauptarbeitsgebiete umfassen die Untersuchung von nanostrukturierten Festkörpern mit modernen Röntgenmessmethoden sowie die Quantenoptik mit Röntgenstrahlung.



Jörg Evers, geb. 1976, promovierte an der Universität Freiburg und ist heute Gruppenleiter am Max-Planck-Institut für Kernphysik und außerplanmäßiger Professor an der Universität Heidelberg. Seine Hauptarbeitsgebiete sind die korrelierte Dynamik von kollektiven Quantensystemen und die Röntgenquantenoptik.



Olga Kocharovskaya, geb. 1956, promovierte am Moskauer Institut für Angewandte Physik der Russischen Akademie der Wissenschaften und ist heute Professorin an der Texas A&M University. Ihre Forschungsschwerpunkte liegen in den Bereichen Quantenoptik, kohärente und nichtlineare Optik sowie der Kernquantenoptik.



Yuri Shvyd'ko, geb. 1955, promovierte 1984 am Kurtschatow-Institut, Moskau, UdSSR. Seit 2004 ist er leitender Wissenschaftler am Argonne National Laboratory, Chicago, USA. Er hat das Scandium-45-Projekt initiiert und geleitet. Seine wissenschaftlichen Interessen liegen auf dem fachübergreifenden Gebiet der Erzeugung und Nutzung von Röntgenstrahlung.

Anschrift

Prof. Dr. Ralf Röhlberger, GSI Helmholtzzentrum für Schwerionenforschung, Planckstr. 1, 64291 Darmstadt. r.roehlsberger@gsi.de

Prof. Dr. Jörg Evers, Max-Planck-Institut für Kernphysik, Saupfercheckweg 1, 69117 Heidelberg. joerg.evers@mpi-hd.mpg.de

Prof. Dr. Olga Kocharovskaya, Fakultät für Physik und Astronomie, Texas A&M University, College Station, TX 77843-4242, USA. kochar@physics.tamu.edu

Dr. Yuri Shvyd'ko, X-Ray Science Division, Argonne National Laboratory, 9700 South Cass Avenue, Argonne, IL 60439, USA. shvydko@anl.gov