

Quantenlogik-Spektroskopie

Piet O. Schmidt¹, Malte Niemann², Christian Ospelkaus³

Einführung

Die Untersuchung von Atomen und Molekülen mit elektromagnetischer Strahlung hat eine jahrhundertealte Tradition. Anfängen von der Bestimmung von Elementen und Stoffverbindungen über Flammenfärbung über die Entdeckung von Spektrallinien im Spektrum der Sonne bis hin zu Atomuhren basierend auf Übergängen im Mikrowellen- oder sogar im optischen Spektralbereich hat die Spektroskopie eine wesentliche Rolle bei der Entwicklung unseres Verständnisses der Natur gespielt und tut dies auch heute noch. Hochgenaue optische Uhren mit mehr als 18 Stellen Genauigkeit sind die genauesten der Menschheit zur Verfügung stehenden Messgeräte [9] und werden in einigen Jahren die aktuelle Definition der Sekunde basierend auf einem Mikrowellenübergang in Caesium-Atomen im Einheitensystem ablösen. In der Ausgabe 03/2018 der PTB-Mitteilungen wurden Anwendungen solch hochgenauer Uhren zur Messung von Höhenunterschieden in der Geodäsie diskutiert. In derselben Ausgabe wurden auch andere Frequenzreferenzen, z. B. basierend auf Kernübergängen in einem speziellen Isotop von Thorium oder elektronischen Übergängen in hochgeladenen Ionen beschrieben, die sich besonders gut eignen, um unser Verständnis fundamentaler physikalischer Modelle zu testen. So wissen wir, dass unsere beste Beschreibung der Natur im Rahmen des sogenannten Standardmodells der Teilchenphysik mit seinen drei fundamentalen Wechselwirkungen (elektromagnetische, starke und schwache Kraft) zusammen mit Einsteins Relativitätstheorie (Gravitation) unvollständig sein muss. Zum einen sind die beiden Ansätze nach unserem aktuellen Wissensstand fundamental inkompatibel miteinander und führen z. B. bei dem Versuch mikroskopische quantenmechanische Effekte im Rahmen der Relativitätstheorie zu beschreiben zu größten mathematischen Schwierigkeiten.

Zum ändern wissen wir nicht, aus was dunkle Energie und dunkle Materie bestehen, deren Existenz durch kosmologische Beobachtungen als gesichert gilt. Noch wissen wir nicht, warum es uns überhaupt gibt, da wir den Überschuss an normaler Materie im Vergleich zur Antimaterie im Universum nicht erklären können. Neben der Suche nach weiteren Teilchen und Wechselwirkungen an großen Beschleunigern, wie z. B. dem *Large Hadron Collider* (LHC) am CERN, wird auch mittels hochgenauer Spektroskopie nach weiteren Ungereimtheiten und Effekten sogenannter „Neuer Physik“ gesucht [1].

Diese und viele weitere Anwendungen der Spektroskopie wurden erst durch die vollständige Kontrolle von einzelnen Atomen ermöglicht, manchmal auch als „2. Quantenrevolution“ bezeichnet. Um diese Kontrolle auszuüben, müssen die untersuchten Atome bestimmte Eigenschaften erfüllen, wie z. B. über einen schnellen Übergang zur Laserkühlung und Detektion besitzen. Das ist jedoch bei weitem nicht bei allen interessanten Spezies der Fall und schränkt die Auswahl an untersuchbaren Systemen dramatisch ein. So möchte man optische Uhren auf Übergängen in Atomen betreiben, die besonders unempfindlich auf äußere Störungen sind. Tests fundamentaler Physik möchte man z. B. mit Atomen, Molekülen oder sogar Antimaterie durchführen, die besonders empfindlich auf Effekte Neuer Physik sind. Ein universeller und sehr erfolgreicher Ansatz, die Kontrolle auf solche Systeme zu erweitern, ist die Quantenlogik-Spektroskopie. Die Konzepte und Ideen hierfür kommen aus einem scheinbar ganz anderen Fachgebiet der Physik: der Entwicklung von Quantencomputern und Quantensimulatoren basierend auf gefangenen Ionen, die ganz eigene spannende Anwendungen im Bereich der Quantentechnologie haben und in den Beiträgen [Quantenvielteilchenphysik und Quantencomputer](#) und [Mikrostrukturierte Ionenfallen](#) in diesem Heft beschrieben werden.

¹ Prof. Dr. Piet O. Schmidt, QUEST | Institut an der PTB, Institut für Quantenoptik, Leibniz Universität Hannover, E-Mail: piet.schmidt@quantummetrology.de, <https://orcid.org/0000-0003-0773-5889>

² Dr. Malte Niemann, Institut für Quantenoptik, Leibniz Universität Hannover, E-Mail: malte.niemann@iqo.uni-hannover.de, <https://orcid.org/0000-0002-5267-8142>

³ Prof. Dr. Christian Ospelkaus, Institut für Quantenoptik, Leibniz Universität Hannover, QUEST | Institut an der PTB, E-Mail: christian.ospelkaus@iqo.uni-hannover.de, <https://orcid.org/0000-0002-4170-2936>

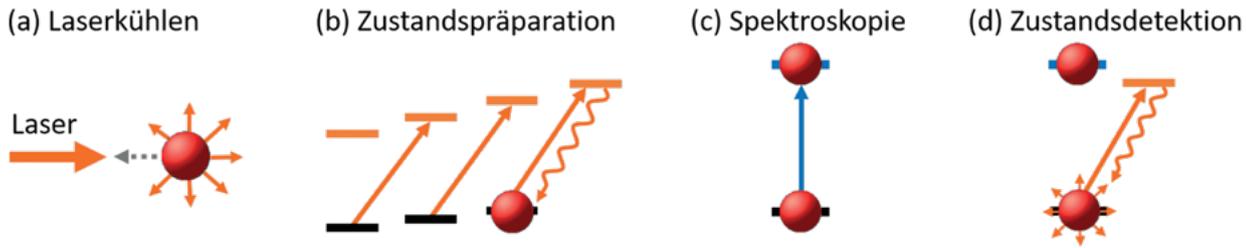


Abbildung 2.1:
Ablauf einer
Laserspektroskopie-
Sequenz

Für dieses Gebiet wurden effiziente Kühl- und Nachweismethoden für gefangene Ionen – auch unterschiedlicher Spezies – entwickelt, sowie Techniken zur Kontrolle der Bewegung und der inneren (Spin-)Freiheitsgrade auf Quantenebene. Diese bilden die Grundlage der Quantenlogik-Spektroskopie mit gefangenen Ionen. In den folgenden Abschnitten werden grundlegende Techniken der optischen Spektroskopie mit Laseranregung beschrieben, in das Prinzip der Quantenlogik-Spektroskopie eingeführt, sowie konkrete Beispiele anhand der Al^+ -Uhr, der Spektroskopie von Molekül-Ionen und (Anti-)Protonen diskutiert. Weiterhin werden Varianten der Technik in Form der Photonenrückstoß-Spektroskopie und der Detektion von kleinsten Kräften beschrieben. Wenn im Folgenden von „Atomen“ oder „Ionen“ die Rede ist, sind damit implizit auch andere geladene Quantenobjekte, wie Molekül-Ionen oder (Anti-)Protonen gemeint.

Techniken der Laserspektroskopie

Spektroskopie höchster Auflösung wird typischerweise an gefangenen Atomen durchgeführt. Das hat zwei große Vorteile im Vergleich zur Spektroskopie an freien Atomen (z. B. in einem Strahl oder einer Fontäne): Die Atome können für sehr lange Zeiten (bis zu mehreren Sekunden) abgefragt werden und erfahren in geeigneten Fällen keinen frequenzverschiebenden Rückstoß aufgrund der Absorption und Emission von Photonen. Lange Abfragezeiten ermöglichen nach dem *Fourier-Limit* die Auflösung schmaler Linien, was die statistische Unsicherheit der Frequenzmessung verbessert und damit zu kürzeren Mittelungszeiten zum Erreichen einer bestimmten Frequenzauflösung führt. Die Absorption und Emission von Photonen führt in freien Atomen zu einem Rückstoß, der mit einer Frequenzverschiebung von typischerweise einigen 10 kHz einhergeht und nicht in allen Fällen genau berechnet werden kann. In Fällen, in denen die Oszillationsfrequenz der Atome größer ist als diese Rückstoßenergie, ist der Effekt stark unterdrückt, analog zum bekannten Mößbauer-Effekt. In diesem sogenannten Lamb-Dicke-Regime kann über die Frequenz des anregenden Lasers gesteuert werden, ob das Atom nur elektronisch angeregt oder zusätzlich seine

Bewegung geändert wird. Dies wird bei der Quantenlogik-Spektroskopie, wie im nächsten Abschnitt beschrieben, ausgenutzt.

Ionenfallen bestehen aus einer Anordnung von Elektroden, an die Gleich- und Wechselspannungen angelegt werden, um die geladenen Teilchen im freien Raum einzufangen (siehe auch Beitrag [Mikrostrukturierte Ionenfallen](#) in diesem Heft). Störende Stöße mit Hintergrundgasen werden vermieden, indem die Falle in eine Ultra-Hochvakuumapparatur eingebaut wird. Häufig werden die Teilchen über Photoionisation eines Neutralatomstrahls mittels eines Lasers im Fallenvolumen eingefangen. Danach besitzen sie eine Temperatur, die typischerweise einige hundert Kelvin über Raumtemperatur liegt.

Danach beginnt die Spektroskopie-Sequenz wie in [Abbildung 2.1](#) dargestellt. Zuerst wird das Atom mittels Laserkühlung auf weniger als ein Tausendstel Kelvin abgekühlt. Hierbei absorbiert das sich bewegende Atom Photonen aus einem Laser, deren Energie geringer ist als dem atomaren Übergang entspricht. Die fehlende Energie kommt über die Doppler-Verschiebung aus der Bewegungsenergie der Atome und reduziert diese ([Abbildung 2.1 \(a\)](#)). In einem weiteren Kühlschritt kann die kinetische Energie der Atome bis nahe an das quantenmechanisch mögliche Minimum reduziert werden. Danach muss der elektronische Ausgangszustand für die Spektroskopie präpariert werden, da Atome typischerweise mehrere interne Niveaus haben, die in externen Feldern leicht unterschiedliche Übergangsfrequenzen haben können. Meist wird auch hierfür ein Laserstrahl mit speziell gewählter Polarisation eingesetzt, der Übergänge in Richtung des Zielzustands treibt, gefolgt von spontaner Emission, die eine erneute Anregung weiter in Richtung des Zielzustands ermöglicht ([Abbildung 2.1 \(b\)](#)).

Für diese beiden Schritte wird ein Übergang benötigt, der es erlaubt Photonen mit einer Rate von mehreren Megahertz zu streuen, was einer Lebensdauer im angeregten Zustand von nur wenigen Nanosekunden entspricht, um das Kühlen und die Zustandspräparation möglichst schnell und effizient durchzuführen.

Nun ist das Atom bereit für den eigentlichen Spektroskopie-Schritt, bei dem mit einem Laserpuls versucht wird, das Atom in den angeregten Spektroskopie-Zustand zu bringen (s. [Abbildung 2.1](#)

(c). Hierbei ist der angeregte Zustand in der Präzisionsspektroskopie üblicherweise metastabil mit Zerfallszeiten von je nach Atom einigen Millisekunden bis hin zu Jahren. Hierbei ermöglichen lange Lebensdauern eine verbesserte Frequenzauflösung der atomaren Resonanz. Ob die Anregung gelungen ist, kann wiederum durch Bestrahlen des Atoms mit dem Kühllaser herausgefunden werden. Da sich der Uhren- und der Kühlübergang im diskutierten Beispiel den Grundzustand teilen, leuchtet das Ion auf, wenn es sich nach dem Anregungsversuch mit dem Spektroskopie-Laser noch im Grundzustand befindet, oder es leuchtet nicht, wenn es von diesem angeregt wurde (s. [Abbildung 2.1 \(d\)](#)). Diese Sequenz wird nun ständig wiederholt und eine Anregungswahrscheinlichkeit als Funktion der Laserfrequenz ermittelt. Diese kann dann z. B. dazu genutzt werden, die Frequenz des Laserlichts auf die Mitte der Resonanz des Übergangs zu stabilisieren, wie es in optischen Uhren der Fall ist [9].

Aus der Sequenz wird ersichtlich, dass neben dem Spektroskopie- auch ein schneller Übergang zum Kühlen und für die Zustandspräparation vorhanden sein muss. Für Atome, Moleküle, oder sogar (Anti-)Protonen, die keinen solchen Übergang besitzen, hilft die Quantenlogik-Spektroskopie weiter.

Prinzip Quantenlogik-Spektroskopie

Bei der Quantenlogik-Spektroskopie wird zusätzlich zum Spektroskopie-Ion ein sogenanntes Logik- oder Kühl-Ion in der Falle gefangen. Letzteres verfügt über einen schnellen Kühlübergang und kann mit Laser- oder Mikrowellenstrahlung kontrolliert werden. Die beiden Ionen sitzen gemeinsam in einer Falle und sind aufgrund der starken elektrostatischen Abstoßung wenige Mikrometer voneinander getrennt. Diese starke Wechselwirkung zwischen den beiden Ionen führt dazu, dass sie sich nicht mehr unabhängig voneinander bewegen können. Man spricht von der Ausbildung von Normalmoden, wie sie z. B. auch bei zwei mit einer Feder gekoppelten Pendel auftritt. Wird das eine Ion in Bewegung versetzt, bewegt sich das andere

automatisch mit. Umgekehrt gilt natürlich dasselbe: Die Laserkühlung auf dem Logik-Ion kühlt die Normalmoden, sodass auch das Spektroskopie-Ion im selben Maße kinetische Energie verliert.

Quantenmechanisch ist die Bewegung der Ionen in jeder Normalmode quantisiert, sodass die Energie nur in Sprüngen geändert werden kann, die der Oszillationsfrequenz multipliziert mit dem Planck'schen Wirkungsquantum entsprechen. Durch Laserstrahlung können nun Übergänge nicht nur zwischen elektronischen Zuständen (sogenannte Träger-Übergänge), sondern auch gleichzeitig Zuständen der Bewegung (sogenannte Seitenband-Übergänge) angeregt werden [20]. Dies funktioniert nicht nur mit Laserstrahlung, sondern auch mit Mikrowellenstrahlung. Allerdings benötigt man hier aufgrund der Wellenlängen im Bereich von Dezimetern (im Vergleich zu den hundert von Nanometern für Laserstrahlung) eine starke lokale Änderung des Feldes um ausreichend Kraft für eine Bewegungsänderung ausüben zu können [11]. Durch Anregung von Seitenbändern, die die Energie der Mode um jeweils ein Quant verringern, kann so der Bewegungsgrundzustand erreicht werden. Die Präparation eines Spektroskopie- zusammen mit einem Kühl-Ion im Bewegungsgrundzustand stellt den Ausgangspunkt der Quantenlogik-Spektroskopie dar ([Abbildung 2.2 \(a\)](#)). Mit einem Puls des Spektroskopie-Lasers wird das Spektroskopie-Ion in einen Überlagerungszustand aus dem Grund- und angeregten elektronischen Zustand gebracht ([Abbildung 2.2 \(b\)](#)). Bei Spektroskopie an einem „normalen“ Atom würde man durch Einstrahlen eines Lasers auf einem schnellen Übergang nachschauen, ob die Anregung erfolgreich war, oder nicht. Bei der Quantenlogik-Spektroskopie wird die elektronische Überlagerung durch einen Seitenband-Puls auf eine Bewegungsüberlagerung umgeschrieben: War die ursprüngliche Anregung in den elektronischen Zustand erfolgreich, befindet sich das Zwei-Ionen-System nach dem Seitenbandpuls in einem angeregten Bewegungszustand; war dies nicht der Fall, bleibt das System im Bewegungsgrundzustand ([Abbildung 2.2 \(c\)](#)). Ein ähnlicher Puls kann nun auf das Logik-Ion angewandt werden, um die Bewegungs-

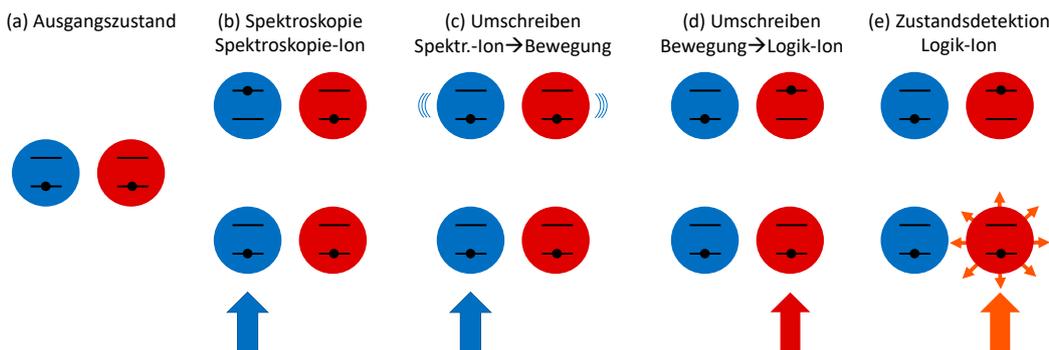


Abbildung 2.2: Quantenlogik-Spektroskopie Sequenz

überlagerung wieder zurück in eine elektronische Überlagerung des Logik-Ions zu transferieren (Abbildung 2.2 (d)). Anschließend wird der Zustand des Logik-Ions detektiert, der nun ein getreues Abbild des Zustands des Spektroskopie-Ions nach dem Einstrahlen des Spektroskopie-Laser ist (Abbildung 2.2 (e)).

Dieses Schema wurde von Nobelpreisträger Dave Wineland am NIST (*National Institute of Standards and Technology* – Schwesterorganisation der PTB in den USA) entwickelt [19] und zum ersten Mal in der Aluminium-Quantenlogik Uhr demonstriert [12], [15]. In der Zwischenzeit sind Varianten der Technik entwickelt worden und auf andere Systeme übertragen worden. Im Folgenden gehen wir speziell auf die Systeme ein, die an der PTB untersucht werden.

Al⁺-Quantenlogikuhr

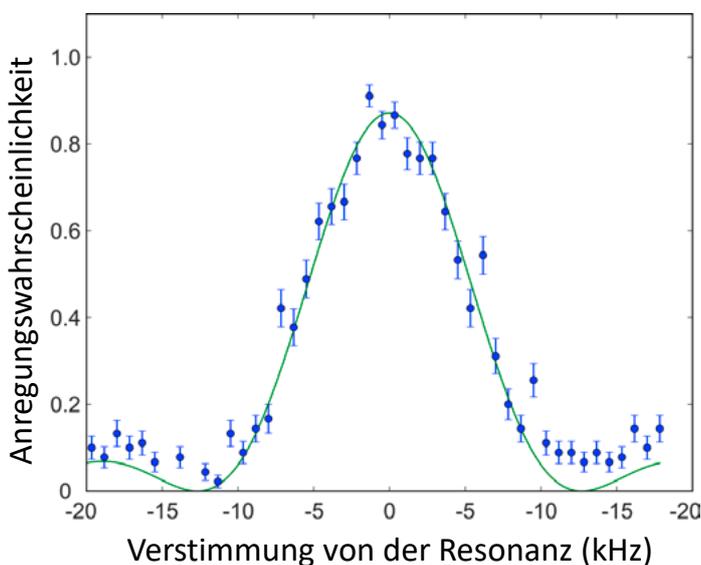
Bereits seit den 1990er-Jahren wurde das Aluminium-Ion von Nobelpreisträger Hans Dehmelt aufgrund seiner günstigen atomaren Eigenschaften vorgeschlagen. Allerdings liegt der Kühlübergang bei einer Wellenlänge von 167 nm und ist damit für kommerzielle Lasersysteme nicht erreichbar. Erst die Entwicklung der Quantenlogik-Spektroskopie ermöglichte die erste Al⁺-Uhr, die am NIST in Boulder (Colorado, USA) entwickelt wurde. Inzwischen wissen wir, dass wichtige systematische Frequenzverschiebungen aufgrund der Wechselwirkung von Al⁺ mit seiner Umgebung zu den kleinsten aller untersuchten Spezies gehören [5]. Darunter fallen Effekte wie z. B. Frequenzverschiebungen aufgrund der thermischen Strahlung, der Wechselwirkung mit elektrischen Feldgradienten und Magnetfeldern. Hinzu kommt ein Uhrenübergang mit einer Linienbreite von 8 mHz, der ideal auf zukünftige Laser-

technologie mit ähnlichen erreichbaren Linienbreiten (siehe PTB-Mitteilungen 03/2018) abgestimmt ist. Nach Einsteins Relativitätstheorie gehen bewegte Uhren langsamer. Da diese sogenannte Zeitdilatationsverschiebung invers mit der Masse des Atoms skaliert, ist Aluminium – mit einer Massezahl von 27 das leichteste untersuchte Uhrenatom – besonders empfindlich auf diese Verschiebung. Daher wurde am QUEST-Institut der PTB ein neuartiges, besonders effizientes Kühlverfahren für das Calcium-Kühlion entwickelt, das in der PTB im Aufbau befindlichen Al⁺-Quantenlogik-Uhr zum Einsatz kommt [14]. In Abbildung 2.3 ist die Anregungswahrscheinlichkeit des Al⁺-Ions in 100 Experimenten pro Datenpunkt als Funktion der Laserfrequenz dargestellt, ausgelesen mittels Quantenlogik-Spektroskopie über das Ca⁺-Kühl-Ion. Aktuell wird an der PTB-Uhr der Uhrenbetrieb vorbereitet und alle bekannten systematischen Frequenzverschiebungen werden untersucht und minimiert. Durch Extrapolation vorläufiger Messungen mit einem einzelnen Ca⁺-Ion liegt die zu erwartende Unsicherheit im Bereich von 10⁻¹⁸, die durch technische Verbesserungen weiter reduziert werden kann.

Neben der PTB gibt es weltweit Aktivitäten zum Aufbau von Al⁺-Uhren. Am weitesten fortgeschritten ist die Al⁺-Uhr am NIST in Boulder, die Magnesium als Logik-Ion einsetzt und aktuell mit einer abgeschätzten systematischen Unsicherheit von $9,4 \times 10^{-19}$ den Weltrekord als genaueste Uhr der Welt innehat [5]. Aufgrund dieser hohen Genauigkeit ist die Al⁺-Quantenlogik-Uhr eine von vielen Kandidaten für eine zukünftige Neudefinition der SI-Sekunde. Weitere Anwendungen der Al⁺-Uhr liegen in der relativistischen Geodäsie, bei der Höhenunterschiede über große Entfernungen über optische Uhren bestimmt werden (siehe PTB-Mitteilungen 03/2018). Im Bereich der Tests fundamentaler Physik, wie z. B. einer möglichen Variation der Feinstrukturkonstanten oder der Nachweis von dunkler Materie über Änderungen der Frequenz des Uhrenübergangs in Vergleichen mit anderen Uhren, spielt Al⁺ die Rolle eines hochgenauen Ankers, da sich der Uhrenübergang in Al⁺ aufgrund dieser Effekte praktisch nicht ändert.

Ganz anders verhalten sich hochgeladene Ionen, die zu den empfindlichsten atomaren Systemen auf eine Änderung der Feinstrukturkonstanten bzw. dunkler Materie gelten (siehe PTB-Mitteilungen 03/2018). Daher wurde kürzlich am QUEST-Institut der PTB in einer Kollaboration mit der Gruppe von José Crespo vom MPIK in Heidelberg Quantenlogik-Spektroskopie von hochgeladenem Ar¹³⁺ als prototypisches System demonstriert [10]. Dies illustriert die Universalität der QLS-Methode, ganz verschiedene Systeme für die Präzisions-Spektroskopie zugänglich zu machen.

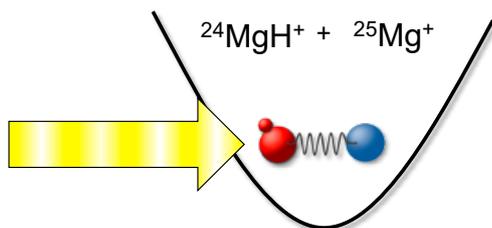
Abbildung 2.3: Frequenzabhängige Anregungswahrscheinlichkeit des Al⁺-Uhren-Ions, ausgelesen mithilfe der Quantenlogik-Spektroskopie über das mitgeführte Ca⁺-Kühl-Ion



Photonen-Rückstoß-Spektroskopie

Neben dem ursprünglichen QLS-Schema wurden Varianten davon für unterschiedliche Anwendungen entwickelt. So gibt es eine Vielzahl von Ionen, die wenig untersuchte breite Übergänge besitzen, und beispielsweise für die Astronomie oder zur Untersuchung fundamentaler Fragen in der Physik interessant sind. Bei breiten Übergängen mit Lebensdauern im angeregten Zustand von einigen Nanosekunden versagt das ursprüngliche QLS-Schema, da das Umschreiben der elektronischen in eine Bewegungsanregung Laserpulse mit typischerweise einigen 10 μs Dauer benötigt. Dafür wurde die sogenannte Photonenrückstoß-Spektroskopie (PRS) entwickelt. Hier wird das Spektroskopie-Ion im Rhythmus seiner Bewegung in der Falle mit Laserpulsen angeregt. Bei jeder Photonen-Absorption gibt es eine geringe Wahrscheinlichkeit, dass das Atom einen Rückstoß erfährt, der die Amplitude der Bewegung vergrößert. Das ist analog zum rhythmischen Anschubsen eines Kindes auf einer Schaukel zu sehen, nur dass im Falle der PRS die Kraft, mit der geschubst wird, mit der Verstimmung des Lasers von der Resonanz abnimmt. Am QUEST-Institut der PTB wurde in einer Kollaboration mit der Gruppe von Klemens Hammerer an der Leibniz Universität Hannover dieses Verfahren entwickelt und systematische Frequenzverschiebungseffekte analysiert [17], [18]. In einer weiteren Kollaboration wurde diese Methode für die Spektroskopie von drei verschiedenen Übergängen an Ca^+ -Isotopen eingesetzt [7]. Diese Messungen mit einer Rekordauflösung im Bereich von 100 kHz bei beobachteten Linienbreiten von 30 MHz wurden genutzt, um obere Grenzen für eine hypothetische „fünfte Kraft“ zu bestimmen, die eine Wechselwirkung zwischen Neutronen und Elektronen vermittelt [4]. So eine Kraft würde zu einer zusätzlichen Verschiebung der Übergangsfrequenzen zwischen den Isotopen führen, die in den Daten jedoch nicht beobachtet wurde. Messungen an schmalen und elektronisch möglichst unterschiedlichen Übergängen könnten jedoch zu kompetitiven Einschränkungen für die Existenz einer solchen Kraft beitragen.

(a) Prinzip

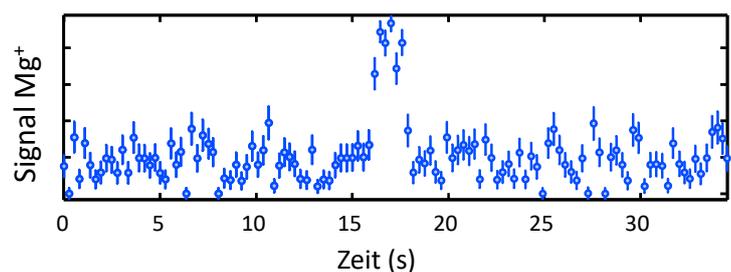


Quantenlogik mit Molekülen

Eine weitere Spezies mit besonders interessanten Eigenschaften für Tests fundamentaler Physik sind Molekül-Ionen [13]. So sind Rotations-Vibrations-Übergänge in Molekülen direkt empfindlich auf eine Änderung des Verhältnisses von Elektronen- zu-Protonen-Masse, eine weitere fundamentale Konstante, die sich womöglich 30 Mal stärker ändern könnte als die Feinstrukturkonstante. Weiterhin können mehratomige Moleküle chirale Eigenschaften haben. Das bedeutet, dass Ihr Spiegelbild nicht identisch zum Ausgangsmolekül ist. Dieselben Mechanismen (sogenannte paritätsverletzende Wechselwirkungen), die zum beobachteten Überschuss an Materie im Vergleich zu Antimaterie im Universum geführt haben, würden zu einem Energieunterschied der Niveaustruktur in Molekülen unterschiedlicher Chiralität führen. Um diese winzigen vorhergesagten Effekte zu beobachten, muss die Spektroskopie von Molekülen, aktuell bei einer relativen Unsicherheit von ca. 10^{-11} , auf das Niveau von optischen Uhren gebracht werden. Aufgrund ihrer komplexen internen Struktur lassen sich Moleküle jedoch praktisch nicht laserkühlen. Auch hier kommt die Quantenlogik-Spektroskopie zu Hilfe! In einem ersten Schritt konnte am QUEST-Institut der PTB zum ersten Mal eine nichtdestruktive Detektion eines internen Zustands mittels Quantenlogik-Spektroskopie demonstriert werden [23]. Ausgangspunkt ist auch hier ein Ionenkristall bestehend aus dem Molekül-Ion (in unserem Fall MgH^+) und einem Logik-Ion (Mg^+) im Bewegungsgrundzustand. Im nächsten Schritt wird ein Lichtfeld angelegt, das nur dann eine Kraft auf das Molekül-Ion ausübt, wenn sich dieses in einem ganz bestimmten Rotationszustand befindet (siehe Abbildung 2.4). Nach Anlegen der Kraft, die bei der Fallenfrequenz oszilliert, um Resonanzeffekte auszunutzen, wird über das Logik-Ion bestimmt, ob sich der Bewegungszustand geändert hat. Ist dies der Fall, befindet sich das Molekül-Ion im ausgewählten Zustand. In Abbildung 2.4 ist das Prinzip der Messung und ein beispielhaftes Signal dargestellt.

Abbildung 2.4: Quantenlogik mit Molekülen. Links: Das Molekül-Ion spürt durch ein angelegtes Laserfeld eine oszillierende Kraft sobald es sich in einem ausgewählten Rotationszustand befindet. Die Änderung des Bewegungszustands wird als Signal über das Mg^+ -Logik-Ion ausgelesen. Rechts: Signalverlauf bei dem sich das MgH^+ -Molekül zwischen 16 s und 18 s im ausgewählten Rotationszustand befindet.

(b) Signal



Ungefähr in der Mitte des gezeigten Datensatzes springt das Molekül in den ausgesuchten Rotationszustand, was zu einem positiven Anregungssignal auf dem Mg^+ -Ion führt, und kurz danach wieder heraus. Jeder Datenpunkt entspricht einer 30-fachen Wiederholung der Messung des internen Molekülzustands, der durch die Messung nicht gestört wird.

Bis zur vollständigen Quantenlogik-Spektroskopie eines optischen Übergangs ist es jedoch noch ein weiter Weg. Die Wechselwirkung mit der Schwarzkörperstrahlung der Umgebung führt zu einer Änderung des Rotationszustands in MgH^+ . Für die Spektroskopie muss dieser jedoch zu Beginn jedes Experiments präpariert werden. Dies kann ebenfalls über ein Quantenlogik-Schema erreicht werden, in dem, mithilfe eines ausreichend breitbandigen optischen Frequenzkamms, Übergänge zwischen die spektral viele 100 GHz weit auseinanderliegenden Rotationszustände getrieben werden [6]. Alternativ können auch homonukleare Moleküle wie z. B. O_2^+ verwendet werden, deren Zustand sich – einmal präpariert – durch die Schwarzkörperstrahlung nicht mehr ändert. Letzterer Weg wird am QUEST-Institut in einem neuen Aufbau zur Quantenlogik-Spektroskopie von O_2^+ verfolgt [21]. Andere Gruppen haben dieses Schema oder Varianten davon bereits erfolgreich an anderen Molekülen wie CaH^+ und N_2^+ demonstriert.

Fock-Zustandsmetrologie und Kraftmessungen

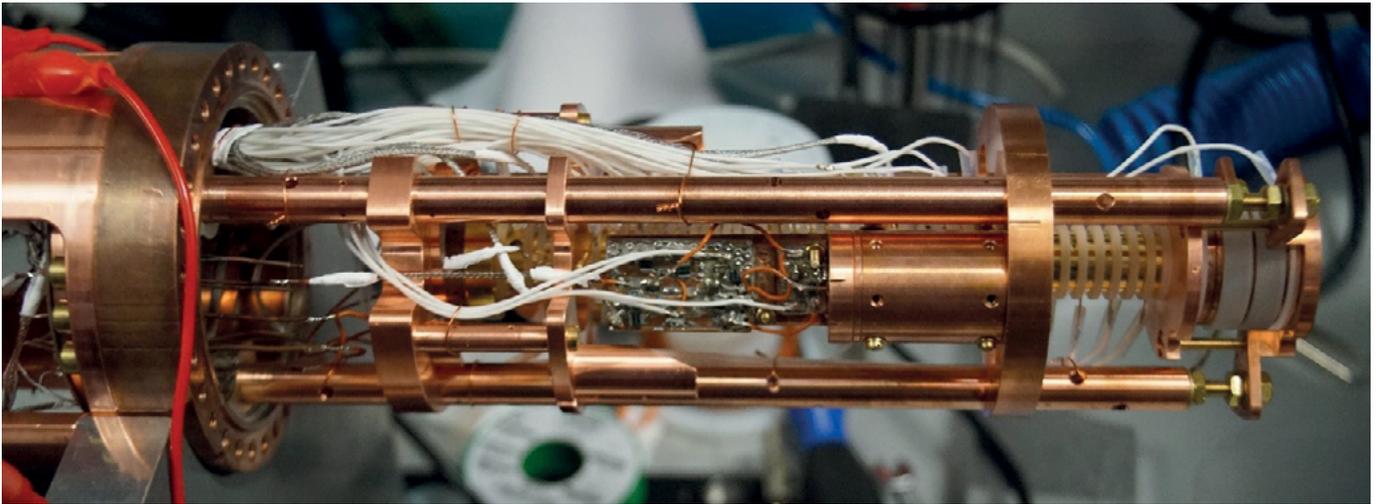
Sowohl die Photonen-Rückstoß-Spektroskopie als auch die Quantenlogik mit Molekülen kann man auf den Einfluss kleinster Kräfte auf den Bewegungszustand der Ionen zurückführen. Insbesondere die Zustandsdetektion der Moleküle ist limitiert durch störende elektronische Anregungen des Moleküls während des Anlegens der oszillierenden Kraft. Daher wäre es wünschenswert, möglichst kleine Kräfte messen zu können. Hierfür bieten sich nichtklassische Zustände der Bewegung an. In der Vergangenheit wurden in anderen Gruppen solche Zustände z. B. bereits für eine Variante der Photonen-Rückstoß-Spektroskopie eingesetzt [8]. Am QUEST-Institut der PTB wurden zum ersten Mal Energie-Eigenzustände (sogenannte Fock-Zustände) des harmonischen Oszillators zur Verbesserung von Messungen jenseits des klassisch möglichen eingesetzt [22]. Anschaulich ergibt sich eine Verbesserung aufgrund von destruktiver Interferenz zwischen dem ursprünglichem und dem verschobenen Ionen-Wellenpaket, was das Signal verschwinden lässt, obwohl sich die beiden Wellenpakete noch überlappen. Mit diesem Schema wurden sowohl Auslenkungen bzw. Kräfte, als auch die Bewegungsfrequenz der Ionen in der Falle mit

einer statistischen Unsicherheit jenseits der mit „klassischen“ Messschemata möglichen gemessen. Dies stellt eine der wenigen Beispiele dar, bei der echte Quanteneffekte die Messung einer physikalisch relevanten Größe verbessert haben.

Quantenlogik-Spektroskopie von (Anti-)Protonen

Nach dem Standardmodell der Teilchenphysik sollten Protonen und ihr Antimaterie-Äquivalent, Antiprotonen, das gleiche magnetische Moment besitzen, beschrieben durch den g -Faktor. Das Verhältnis der g -Faktoren von Proton und Antiproton ist besonders empfindlich für Verletzungen der sogenannten CPT-Symmetrie, die eng mit der Lorentz-Symmetrie verknüpft ist. Damit ist ein Vergleich dieser Teilchen ein sehr empfindlicher Test auf Physik jenseits des Standardmodells. Die sehr erfolgreichen Einzelteilchen-Messungen, die in den letzten Jahren am CERN [1] und in Mainz [2] durchgeführt wurden, sind extrem empfindlich auf die Temperatur der Teilchen von einigen Kelvin. Im Gegensatz zu molekularen Ionen ist die interne Struktur von (Anti-)Protonen zu simpel, um direkte Laserkühlung verwenden zu können. Nach einem Vorschlag von Heinzen und Wineland [20], [24] könnten Techniken der QLS verwendet werden, um die Teilchen bis zum Bewegungsgrundzustand zu kühlen, indem sie an lasergekühlte Beryllium-Ionen gekoppelt werden. Da Antiprotonen negativ geladen sind, können sie nicht ohne Weiteres in der gleichen Falle gefangen werden wie positiv geladene Ionen. Daher werden die Ionen in diesem Fall in getrennten, aber nah beieinanderliegenden Fallen gespeichert. Die Kopplung wird über die Coulombkraft zwischen den Teilchen vermittelt. Die Teilchen sind dabei nur gekoppelt, wenn die Bewegungsfrequenzen der beiden Teilchen in Resonanz sind. Durch leichtes Verstimmen der Fallenfrequenzen lässt sich die Kopplung hier also sogar ein- und ausschalten.

Durch das indirekte Kühlen kann die Präzision der Messungen bereits deutlich erhöht werden. Darüber hinaus kann in einem weiteren Schritt der zeitintensivste Schritt der Messung, die Bestimmung des Spinzustandes des (Anti-)Protons, durch eine QLS-Sequenz ersetzt werden. Dadurch kann die Länge des gesamten Messvorgangs weiter verkürzt werden. Das verringert die Sensitivität der Messung auf zeitlich veränderliche Störungen und erlaubt eine deutlich größere Zahl an Messungen in der gleichen Zeit. Die nötigen Grundoperationen wurden von Forschungsgruppen am NIST in Boulder, an der Universität Innsbruck und in Siegen einzeln in Experimenten mit atomaren Ionen demonstriert. Die Arbeitsgruppe von Christian Ospelkaus an der PTB und der Leibniz Universität Hannover hat eine Apparatur aufgebaut



[3], in der diese Operationen kombiniert werden sollen. Ein Großteil der Apparatur wurde vom wissenschaftlichen Gerätebau der PTB hergestellt. In einem ersten Schritt wurde das Laden und Kühlen von Berylliumionen demonstriert. Im nächsten Schritt wird die Apparatur erweitert, um Protonen laden zu können und die Kopplung zwischen Teilchen in benachbarten Fallen zu demonstrieren.

Ausblick

Durch den Einsatz von Quantenlogik-Spektroskopie konnten in den letzten Jahren Spektroskopie an einer Reihe von neuen Spezies durchgeführt werden. In nicht allzu ferner Zukunft werden Moleküle und (Anti-)Protonen hinzukommen und vielleicht sogar Thorium-Ionen, die einen Uhrenübergang im Kern zur Verfügung stellen (siehe [PTB-Mitteilungen 03/2018](#)). Dies illustriert die Universalität des Ansatzes und das Potenzial zur Spektroskopie von vielen weiteren Systemen und Spezies. Erwähnenswert ist hierbei, dass der Hauptteil der experimentellen Infrastruktur typischerweise in der Kontrolle des Logik-Ions steckt, sodass eine neue Spezies typischerweise lediglich einen anderen Spektroskopie-Laser erforderlich macht. Einzelne Aspekte der QLS-Methode, wie z. B. das Coulomb-Kühlen einer anderen Spezies, werden inzwischen auch für anderen Einzelionen-Uhren wie Yb^+ und In^+ verfolgt. Die Methode selbst wird ständig variiert und weiterentwickelt. Beispielsweise gibt es Vorschläge das Umschreiben der Zustände über Zwei-Ionen-Gatter zu implementieren, die es nicht mehr erforderlich machen die Ionen bis in den Bewegungsgrundzustand zu kühlen. Weiterhin werden Ansätze unter anderem am QUEST-Institut in Kollaboration mit der Gruppe von Klemens Hammerer an der Leibniz Universität Hannover verfolgt mehrere (eventuell sogar verschränkte) Spektroskopie-Ionen in einer Falle einzufangen und mit einem minimalen Satz an Logik-Ionen auszulesen um die Mittelungszeit möglichst um die Zahl der Ionen zu verkürzen [16].

Die Quantenlogik-Spektroskopie hat die Frequenzmetrologie nachhaltig vorangebracht und wird es zukünftig ermöglichen Spezies aufgrund ihrer interessanten Eigenschaften wie zum Beispiel ihrer Empfindlichkeit gegenüber neuer Physik jenseits des Standardmodells der Teilchenphysik und der Relativitätstheorie zu untersuchen, um fundamentale Fragen der Physik zu beantworten und Uhren höchster Genauigkeit zu entwickeln.

Literatur

- [1] C. Smorra, S. Sellner, M. J. Borchert, J. A. Harrington, T. Higuchi, H. Nagahama, T. Tanaka, A. Mooser, G. Schneider, M. Bohman, K. Blaum, Y. Matusuda, C. Ospelkaus, W. Quint, J. Walz, Y. Yamazaki, S. Ulmer, *A Parts-per-Billion Measurement of the Antiproton Magnetic Moment*, *Nature* **550**, 7676 (2017)
- [2] G. Schneider, A. Mooser, M. Bohman, N. Schön, J. Harrington, T. Higuchi, H. Nagahama, S. Sellner, C. Smorra, K. Blaum, Y. Matsuda, W. Quint, J. Walz, S. Ulmer, *Double-Trap Measurement of the Proton Magnetic Moment at 0.3 Parts per Billion Precision*, *Science* **358**, 1081 (2017)
- [3] M. Niemann, T. Meiners, J. Mielke, M. J. Borchert, J. M. Cornejo, S. Ulmer, und C. Ospelkaus, *Cryogenic $^9\text{Be}^+$ Penning Trap for Precision Measurements with (Anti-)Protons*, *Measurement Science and Technology* **31**, 035003 (2019)
- [4] J. C. Berengut, D. Budker, C. Delaunay, V. V. Flambaum, C. Frugiuele, E. Fuchs, C. Grojean, R. Harnik, R. Ozeri, G. Perez, and Y. Soreq, *Probing New Long-Range Interactions by Isotope Shift Spectroscopy*, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 091801 (2018)
- [5] S. M. Brewer, J.-S. Chen, A. M. Hankin, E. R. Clements, C. W. Chou, D. J. Wineland, D. B. Hume, and D. R. Leibbrandt, *$^{27}\text{Al}^+$ Quantum-Logic Clock with a Systematic Uncertainty below 10^{-18}* , *Phys. Rev. Lett.* **123**, 033201 (2019)

Abbildung 2.5: Innenleben einer kryogenen Penningfalle. Die Kupferstäbe dienen dem Zusammenhalt des Aufbaus. Die in horizontaler Richtung angeordneten vergoldeten Ringe stellen die Elektroden der Falle dar, welche durch Saphir-Abstandshalter (weiß) voneinander getrennt sind. Innerhalb dieses Stapels von ringförmigen Elektroden werden bereits lasergekühlte $^9\text{Be}^+$ „Logik“-Ionen gespeichert. In einem weiteren Schritt soll das Laden einzelner Protonen mithilfe einer integrierten Protonenquelle (rechts im Bild, große ringförmige Struktur) gezeigt werden.

- [6] C. Chou, C. Kurz, D. B. Hume, P. N. Plessow, D. R. Leibbrandt, and D. Leibfried, *Preparation and Coherent Manipulation of Pure Quantum States of a Single Molecular Ion*, *Nature* **545**, 203 (2017)
- [7] F. Gebert, Y. Wan, F. Wolf, C. N. Angstmann, J. C. Berengut, and P. O. Schmidt, *Precision Isotope Shift Measurements in Calcium Ions Using Quantum Logic Detection Schemes*, *Phys. Rev. Lett.* **115**, 053003 (2015)
- [8] C. Hempel, B. P. Lanyon, P. Jurcevic, R. Gerritsma, R. Blatt, and C. F. Roos, *Entanglement-Enhanced Detection of Single-Photon Scattering Events*, *Nat Photon* **7**, 630 (2013)
- [9] A. D. Ludlow, M. M. Boyd, J. Ye, E. Peik, and P. O. Schmidt, *Optical Atomic Clocks*, *Rev. Mod. Phys.* **87**, 637 (2015)
- [10] P. Micke, T. Leopold, S. A. King, E. Benkler, L. J. Spieß, L. Schmöger, M. Schwarz, J. R. C. López-Urrutia, and P. O. Schmidt, *Coherent Laser Spectroscopy of Highly Charged Ions Using Quantum Logic*, *Nature* **578**, 60 (2020)
- [11] C. Ospelkaus, U. Warring, Y. Colombe, K. R. Brown, J. M. Amini, D. Leibfried, and D. J. Wineland, *Microwave Quantum Logic Gates for Trapped Ions*, *Nature* **476**, 181 (2011)
- [12] T. Rosenband, D. B. Hume, P. O. Schmidt, C. W. Chou, A. Brusch, L. Lorini, W. H. Oskay, R. E. Drullinger, T. M. Fortier, J. E. Stalnaker, S. A. Diddams, W. C. Swann, N. R. Newbury, W. M. Itano, D. J. Wineland, and J. C. Bergquist, *Frequency Ratio of Al^+ and Hg^+ Single-Ion Optical Clocks; Metrology at the 17th Decimal Place*, *Science* **319**, 1808 (2008)
- [13] M. S. Safronova, D. Budker, D. DeMille, D. F. J. Kimball, A. Derevianko, and C. W. Clark, *Search for New Physics with Atoms and Molecules*, *Rev. Mod. Phys.* **90**, 025008 (2018)
- [14] N. Scharnhorst, J. Cerrillo, J. Kramer, I. D. Leroux, J. B. Wübbena, A. Retzker, and P. O. Schmidt, *Experimental and Theoretical Investigation of a Multimode Cooling Scheme Using Multiple Electromagnetically-Induced-Transparency Resonances*, *Phys. Rev. A* **98**, 023424 (2018)
- [15] P. O. Schmidt, T. Rosenband, C. Langer, W. M. Itano, J. C. Bergquist, and D. J. Wineland, *Spectroscopy Using Quantum Logic*, *Science* **309**, 749 (2005)
- [16] M. Schulte, N. Lörch, I. D. Leroux, P. O. Schmidt, and K. Hammerer, *Quantum Algorithmic Readout in Multi-Ion Clocks*, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 013002 (2016)
- [17] M. Schulte, N. Lörch, P. O. Schmidt, and K. Hammerer, *Photon-Recoil Spectroscopy: Systematic Shifts and Nonclassical Enhancements*, *Phys. Rev. A* **98**, 063808 (2018)
- [18] Y. Wan, F. Gebert, J. B. Wübbena, N. Scharnhorst, S. Amairi, I. D. Leroux, B. Hemmerling, N. Lörch, K. Hammerer, and P. O. Schmidt, *Precision Spectroscopy by Photon-Recoil Signal Amplification*, *Nat. Commun.* **5**, 4096 (2014)
- [19] D. J. Wineland, J. C. Bergquist, J. J. Bollinger, R. E. Drullinger, and W. M. Itano, in *Proceedings of the 6th Symposium on Frequency Standards and Metrology* (University of St Andrews, Fife, Scotland, 2002), pp. 361–368
- [20] D. J. Wineland, C. Monroe, W. M. Itano, D. Leibfried, B. E. King, and D. M. Meekhof, *Experimental Issues in Coherent Quantum-State Manipulation of Trapped Atomic Ions*, *J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol.* **103**, 259 (1998)
- [21] F. Wolf, J. C. Heip, M. J. Zawierucha, C. Shi, S. Ospelkaus, and P. O. Schmidt, *Prospect for Precision Quantum Logic Spectroscopy of Vibrational Overtone Transitions in Molecular Oxygen Ions*, ArXiv:2002.05584 [Physics, Physics:Quant-Ph] (2020)
- [22] F. Wolf, C. Shi, J. C. Heip, M. Gessner, L. Pezzè, A. Smerzi, M. Schulte, K. Hammerer, and P. O. Schmidt, *Motional Fock States for Quantum-Enhanced Amplitude and Phase Measurements with Trapped Ions*, *Nature Communications* **10**, 2929 (2019)
- [23] F. Wolf, Y. Wan, J. C. Heip, F. Gebert, C. Shi, and P. O. Schmidt, *Non-Destructive State Detection for Quantum Logic Spectroscopy of Molecular Ions*, *Nature* **530**, 457 (2016)
- [24] D. J. Heinzen and D. J. Wineland, *Quantum-Limited Cooling and Detection of Radio-Frequency Oscillations by Laser-Cooled Ions*, *Phys. Rev. A* **42**, 2977 (1990)