Письма в ЖЭТФ, том 121, вып. 5, с. 365 – 374

Оптические часы, основанные на двухфотонной спектроскопии ядерного перехода в ионе ^{229}Th в монохроматическом поле

В. И. Юдин[+∗×1)], *А. В. Тайченачев*[+∗], *О. Н. Прудников*[+∗], *М. Ю. Басалаев*[+∗×], *А. Н. Гончаров*[+∗], *С. В. Чепуров*[+], *В. Г. Пальчиков*[◦∇]

[+] *Институт лазерной физики Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия*

[∗] *Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия*

[×] *Новосибирский государственный технический университет, 630073 Новосибирск, Россия*

[◦] *Всероссийский научно-исследовательский институт физико-технических и радиотехнических измерений, 141570 Менделеево, Россия*

[∇] *Национальный исследовательский ядерный университет "МИФИ", 115409 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 16 января 2025 г.
После переработки 16 января 2025 г.
Принята к публикации 22 января 2025 г.

Для изотопа ^{229}Th мы исследуем возможность двухфотонной лазерной спектроскопии ядерного часового перехода (148.38 нм) с использованием интенсивного монохроматического лазерного излучения на удвоенной длине волны (296.76 нм). Наши оценки показывают, что с использованием механизма электронного мостика в двукратно ионизованном ионе ^{229}Th^{2+} будет достаточно интенсивности непрерывного излучения порядка 10–100 кВт/см^2, что лежит в пределах досягаемости современных лазерных систем. Такая уникальная возможность обусловлена наличием в электронном спектре иона ^{229}Th^{2+} исключительно близкого промежуточного (для двухфотонного перехода) уровня, формирующего сильный дипольный ($E1$) переход с основным состоянием на длине волны 297.86 нм, которая всего лишь на 1.1 нм отличается от длины волны пробного поля (296.76 нм). Полученные результаты могут быть использованы для практического создания ультра-прецизионных ядерных оптических ядерных часов на основе ионов тория-229 без использования вакуумного ультрафиолета.
Кроме того, мы развиваем альтернативный подход к описанию явления электронного мостика в изолированном ионе (атоме) через оператор сверхтонкого взаимодействия, что является важным для общей квантовой теории атома. В частности, такой подход показывает, что вклад в электронный мостик от ядерного квадрупольного момента может быть сопоставим со вкладом от магнитного момента ядра.

DOI: 10.31857/S0370274X25030069, EDN: CBPJMB

Как хорошо известно [1], время и частота являются наиболее точно измеряемыми физическими величинами. Современные оптические стандарты частоты (атомные оптические часы) на основе ансамблей ультрахолодных атомов в оптических решетках и одиночных ионов в радиочастотных ловушках достигли относительной нестабильности и неопределенности частоты на уровне 10^{-18} (и даже несколько лучше) [2–5]. Успешно развиваются перспективные направления, связанные с многоионными системами [6] и многозарядными ионами [7, 8].

Однако в свете последних экспериментальных достижений и теоретического анализа представляется весьма вероятным, что следующий решительный шаг по улучшению метрологических характеристик квантовых стандартов частоты будет сделан на основе перехода в ядре изотопа ^{229}Th между основным и низколежащим изомерным состоянием с энергией 8.4 эВ. Как известно (см. [9] и приведенные там ссылки), первые указания на существование низколежащего изомерного состояния в тории-229 были получены еще в 1970-х гг. Первое предложение по возбуждению изомерного состояния тория-229 оптическими фотонами с использованием механизма электронного мостика принадлежит Е. В. Ткале [10]. Пионерское предложение по созданию на базе этого перехода сверхточных оптических часов было сделано Э. Пайком и К. Таммом в [11]. Основная идея этой работы заключалась в том, что частота перехода в ядре существенно менее чувствительна к изменению внешних условий по сравнению с частотой любого

1)e-mail: viyudin@mail.ru

перехода в электронной оболочке атома. Уже тогда отмечалось, что возможно прямое возбуждение перехода излучением ультрастабильного лазера или фемтосекундной лазерной гребенкой и детектирование перехода по флуоресценции или по изменению величины сверхтонкого расщепления. Обсуждались различные варианты прецизионной спектроскопии перехода: в радиочастотных ловушках с использованием лазерного охлаждения или в прозрачных кристаллах. В работе [12] была дана реалистичная оценка относительной неопределенности частоты стандарта частоты на основе лазерно-охлажденных ионов $^{229}\mathrm{Th}^{3+}$ в ловушке на уровне 10^{-19}. Возможности достижения столь же высоких метрологических характеристик в твердотельных ядерных часах исследовались в [13].

В период 1990–2020 гг. точность определения энергии перехода между основным и изомерным состоянием в ядре $^{229}\mathrm{Th}$ в различных экспериментах [14–20] постепенно увеличивалась, пока не достигла в 2023 г. уровня 8.338(24) эВ [21], достаточного для прямого возбуждения перехода излучением мощных импульсных лазеров. Первое экспериментальное наблюдение лазерного возбуждения изомерного состояния ядра тория-229 было опубликовано в [22]. Вскоре за этим последовали измерения [23, 24, 25], в которых результаты работы [22] были подтверждены и уточнены с использованием альтернативных твердотельных матриц и пленок, содержащих торий-229, и альтернативных источников излучения на длину волны 148.4 нм. Таким образом, частота ядерного перехода в $^{229}\mathrm{Th}$ была определена уже с килогерцовой точностью, что открывает путь к практическому созданию ядерных оптических часов.

При этом одна из главных научно-технических задач, которую еще предстоит решить, заключается в разработке и создании прецизионных лазерных систем для опроса часового ядерного перехода в вакуумном ультрафиолете (ВУФ) 148.4 нм. В этом направлении развиваются, по крайней мере, два альтернативных подхода: (а) фемтосекундная частотная гребенка в ВУФ на основе мощного и прецизионного фундаментального фемтосекундного синтезатора в инфракрасном диапазоне и генерации высших гармоник в подходящей среде; (б) прецизионный одночастотный непрерывный лазер в ВУФ на основе полупроводниковых излучателей с использованием высокодобротных резонаторов, усилителей и нелинейных преобразований частоты в кристаллах. Оба подхода встречают значительные трудности, по всей видимости, технического характера. Например, фемтосекундная гребенка в ВУФ, реализованная в [24], недостаточно мощная и недостаточно прецизионная для опроса часового перехода. В то же время для одночастотного подхода пока не реализованы нелинейные кристаллы с доказанной достаточно высокой эффективностью генерации второй гармоники на последнем шаге (от 296.8 к 148.4 нм).

В настоящей работе мы предлагаем альтернативный подход, основанный на возможности двухфотонной лазерной спектроскопии ядерного часового перехода с использованием интенсивного монохроматического лазерного излучения на 296.76 нм. Наши оценки показывают, что с использованием механизма электронного мостика в двукратно ионизованном ионе $^{229}\mathrm{Th}^{2+}$ будет достаточно интенсивности непрерывного излучения порядка 10–100 кВт/см^2, что лежит в пределах досягаемости современных лазерных систем. Так, например, лазерный пучок с мощностью 1 Вт, сфокусированный в диаметр 100 мкм, дает интенсивность около 10 кВт/см^2. Следует отметить, что двухфотонное возбуждение двухчастотным и полихроматическим лазерным излучением изомерного состояния в ядре тория-229 неоднократно обсуждалось различными авторами [26–30] в контексте поиска часового перехода и точного определения его частоты. Однако использование метода двухфотонной спектроскопии в монохроматическом поле для опроса часового перехода и создания сверхточных ядерных часов предлагается, насколько нам известно, впервые.

Проанализируем возможность двухфотонной спектроскопии ядерного часового перехода в ионах $^{229}\mathrm{Th}$ через электронные состояния. Такая принципиальная возможность существует за счет так называемого электронного мостика, который может перемешивать энергетические состояния атома (иона) с различными ядерными состояниями. В случае изотопа $^{229}\mathrm{Th}$ такой электронный мостик смешивает энергетические уровни иона с ядерным спином в основном состоянии $5/2$ и первым возбужденном состоянии изомера со спином $3/2$. В работах [10, 31–34] электронный мостик описывался в рамках квантовой электродинамики с использованием техники диаграмм Фейнмана. Однако, как будет показано ниже, механизм формирования электронного мостика может быть также описан в рамках стандартной квантовой атомной физики с использованием оператора сверхтонкого взаимодействия, который состоит из двух вкладов

$$\hat{V}^{(\mathrm{hf})} = \hat{V}^{(\mathrm{hf})}_{\mathbf{B}} + \hat{V}^{(\mathrm{hf})}_{Q}, \tag{1}$$

где первый вклад обусловлен ядерным магнитным моментом, а второй – обусловлен квадрупольным моментом ядра.

Рассмотрим ядро как источник векторного потенциала $\hat{\mathbf{A}}_n(\mathbf{r})$, который формирует соответствующее магнитное поле $\hat{\mathbf{B}}_n(\mathbf{r}) = [\nabla \times \hat{\mathbf{A}}_n(\mathbf{r})]$, где символ $[\mathbf{a}\times\mathbf{b}]$ означает векторное произведение векторов $\mathbf{a}$ и $\mathbf{b}$, а $\nabla = \mathbf{e}_x\partial/\partial x+\mathbf{e}_y\partial/\partial y+\mathbf{e}_z\partial/\partial z$ есть стандартный оператор градиента. Тогда, согласно известным формулам квантовой атомной физики, имеем следующее общее выражение для магнитного вклада

$$\hat{V}_{\mathbf{B}}^{(\mathrm{hf})} = 2\mu_B \sum_j \left\{\hbar^{-1}\big(\hat{\mathbf{A}}_n(\mathbf{r}_j)\cdot\hat{\mathbf{p}}_j\big)+\big(\hat{\mathbf{B}}_n(\mathbf{r}_j)\cdot\hat{\mathbf{s}}_j\big)\right\}, \quad (2)$$

где $\mathbf{r}_j$, $\hat{\mathbf{p}}_j$, и $\hat{\mathbf{s}}_j$ есть соответственно радиус-вектор, оператор импульса, и безразмерный (в единицах $\hbar$) оператор спина j-го электрона, $\mu_B = \hbar|e|/(2m_e c)$ есть магнетон Бора (e и m_e есть заряд и масса электрона, c есть скорость света).

Обычно с хорошей степень точности можно рассматривать ядро как точечный магнитный диполь, характеризуемый оператором магнитного момента $\hat{\boldsymbol{\mu}}$, который формирует следующий вектор-потенциал

$$\hat{\mathbf{A}}_n(\mathbf{r}) = -[\hat{\boldsymbol{\mu}}\times\nabla]\frac{1}{|\mathbf{r}|} = \frac{[\hat{\boldsymbol{\mu}}\times\mathbf{r}]}{|\mathbf{r}|^3}. \quad (3)$$

Используя известные формулы для изменения схемы связи в тензорном произведении трех тензоров [35], генерируемое ядром магнитное поле можно представить как

$$\begin{aligned}\hat{\mathbf{B}}_n(\mathbf{r}) = [\nabla\times\hat{\mathbf{A}}_n(\mathbf{r})] = -[\nabla\times[\hat{\boldsymbol{\mu}}\times\nabla]]\frac{1}{|\mathbf{r}|} = \\ -\frac{2}{3}\hat{\boldsymbol{\mu}}\Delta\frac{1}{|\mathbf{r}|} - \frac{\sqrt{5}}{\sqrt{3}}\{\hat{\boldsymbol{\mu}}\otimes\{\nabla\otimes\nabla\}_2\}_1\frac{1}{|\mathbf{r}|} = \\ \frac{8\pi}{3}\hat{\boldsymbol{\mu}}\delta(\mathbf{r}) - \frac{\sqrt{15}\,\{\hat{\boldsymbol{\mu}}\otimes\{\mathbf{r}\otimes\mathbf{r}\}_2\}_1}{|\mathbf{r}|^5} = \\ \frac{8\pi}{3}\hat{\boldsymbol{\mu}}\delta(\mathbf{r}) + \frac{3\mathbf{r}(\mathbf{r}\cdot\hat{\boldsymbol{\mu}}) - |\mathbf{r}|^2\hat{\boldsymbol{\mu}}}{|\mathbf{r}|^5},\end{aligned} \quad (4)$$

где $\Delta = (\nabla\cdot\nabla)$ есть лапласиан, символ $\{\mathcal{A}_{\kappa_1}\otimes\mathcal{B}_{\kappa_2}\}_\kappa$ обозначает тензорное произведение ранга κ двух тензоров $\mathcal{A}_{\kappa_1}$ и $\mathcal{B}_{\kappa_2}$ рангов κ_1 и κ_2 (см. [35]), а $\delta(\mathbf{r})$ есть дельта-функция Дирака [в (4) мы использовали $\Delta(1/|\mathbf{r}|) = -4\pi\delta(\mathbf{r})$]. Подставляя теперь выражения (3)–(4) в формулу (2) и проведя несложные математические преобразования, оператор $\hat{V}_{\mathbf{B}}^{(\mathrm{hf})}$ можно представить в виде скалярного произведения

$$\hat{V}_{\mathbf{B}}^{(\mathrm{hf})} = (\hat{\boldsymbol{\mu}}\cdot\hat{\mathbf{K}}), \quad (5)$$

в котором векторный оператор $\hat{\mathbf{K}}$, зависящий только от электронных переменных, имеет вид

$$\hat{\mathbf{K}} = 2\mu_B\sum_j\left[\frac{8\pi}{3}\hat{\mathbf{s}}_j\delta(\mathbf{r}_j) + \frac{\hat{\mathbf{l}}_j + 3\mathbf{n}_j(\mathbf{n}_j\cdot\hat{\mathbf{s}}_j) - \hat{\mathbf{s}}_j}{|\mathbf{r}_j|^3}\right], \quad (6)$$

где $\mathbf{n}_j = \mathbf{r}_j/|\mathbf{r}_j|$ и $\hat{\mathbf{l}}_j = [\mathbf{r}_j\times\hat{\mathbf{p}}_j]/\hbar$ есть соответственно единичный вектор направления радиус-вектора и безразмерный (в единицах $\hbar$) оператор орбитального углового момента j-го электрона. Отметим, что первое слагаемое в (6), содержащее $\delta(\mathbf{r}_j)$, дает вклад в сверхтонкое взаимодействие, который обусловлен только наличием s-электронов на незамкнутых электронных оболочках, формирующих энергетическую структуру иона (атома), поскольку волновая функция электронов с орбитальным моментом $l \ge 1$ равна нулю в центре $|\mathbf{r}_j| = 0$. В то время как второе слагаемое в (6) содержит вклады в сверхтонкое взаимодействие от всех электронов.

Покажем теперь, что оператор $\hat{V}_{\mathbf{B}}^{(\mathrm{hf})}$, представленный в виде (5), позволяет также описывать связь между состояниями иона (атома) с различными значениями спина ядра I, т.е. электронный мостик. Для этого рассмотрим энергетическую структуру иона (атома), каждое состояние которого описывается волновой функцией $|F, m_F, (n,J), I\rangle$, где F есть полный угловой момент ($|J-I|\le F\le J+I$), а m_F есть проекция углового момента на ось квантования ($-F\le m_F\le F$), J есть электронный угловой момент, а I есть спин ядра, который в общем случае может принимать различные значения (как, например, в изотопе ^{229}Th). Кроме того, мы ввели в рассмотрение характеристику n, которая определяет электронную структуру рассматриваемого уровня с заданным угловым моментом J. В этом базисе магнитный вклад (5) в оператор сверхтонкого взаимодействия определяется матричными элементами, которые, в соответствии с известными формулами квантовой теории углового момента (см. [35]), имеют вид

$$\begin{aligned}\langle F', m_{F'}, (n',J'), I'|\hat{V}_{\mathbf{B}}^{(\mathrm{hf})}|F, m_F, (n,J), I\rangle = \\ \delta_{F'F}\delta_{m_{F'}m_F}(-1)^{F+I+J'}\left\{\begin{matrix} I' & I & 1 \\ J & J' & F\end{matrix}\right\}\mu_{I',I}K_{n'J',nJ},\end{aligned} \quad (7)$$

где $\mu_{I',I} \equiv \langle I'||\hat{\boldsymbol{\mu}}||I\rangle$ есть приведенный матричный элемент магнитного момента ядра между ядерными состояниями $|I'\rangle$ и $|I\rangle$ со спином I' и I, а $K_{n'J',nJ} \equiv$ $\equiv \langle n', J'||\hat{\mathbf{K}}||n, J\rangle$ есть приведенный матричный элемент оператора (6) между электронными состояниями $|n', J'\rangle$ и $|n, J\rangle$. При этом электронные и ядерные состояния должны попарно иметь одинаковую четность, а их угловые моменты могут отличаться не более, чем на единицу: $|J-J'|\le 1$, $|I-I'|\le 1$.

В случае диагональных матричных элементов в (7) величина

$$\Delta^{(\mu)}_{FnJI} = (-1)^{F+I+J} \left\{ \begin{array}{ccc} I & I & 1 \\ J & J & F \end{array} \right\} \mu_{I,I} K_{nJ,nJ}\,, \quad (8)$$

описывает вклад в сверхтонкий сдвиг соответствующего сверхтонкого уровня за счет магнитного взаимодействия. При этом, обычно магнитный момент ядра с фиксированным значением спина I определяют как

$$\hat{\boldsymbol{\mu}} = g_I \mu_{\rm N} \hat{\mathbf{I}}\,, \quad (9)$$

где $\hat{\mathbf{I}}$ есть оператор спина ядра, $\mu_{\rm N} = \hbar|e|/(2m_p c)$ есть ядерный магнетон (m_p есть масса протона), а g_I есть ядерный g-фактор, величина которого измеряется экспериментально. Тогда получаем для диагональных приведенных матричных элементов

$$\mu_{I,I} = g_I \mu_{\rm N} \sqrt{I(I+1)(2I+1)}\,, \quad (10)$$

следуя стандартному определению (см. [35]).

В случае же различных ядерных состояний $I \neq I'$ матричные элементы в (7) описывают перепутывание состояний с различными ядерными спинами, что и составляет суть так называемого электронного мостика. В частности, если известна величина магнитного вклада в сверхтонкий сдвиг $\Delta^{(\mu)}_{FnJI}$ [см. (8)], то матричный элемент связи в (7) между состояниями с одной и той же электронной конфигурацией $|F, m_F, (n,J), I\rangle$ и $|F, m_F, (n,J), I'\rangle$, отличающимися только спином ядра ($I' \neq I$), можно выразить с как

$$(-1)^{F+I+J} \left\{ \begin{array}{ccc} I' & I & 1 \\ J & J & F \end{array} \right\} \mu_{I',I} K_{nJ,nJ} = \quad (11)$$
$$\Delta^{(\mu)}_{FnJI} \frac{\left\{ \begin{array}{ccc} I' & I & 1 \\ J & J & F \end{array} \right\}}{\left\{ \begin{array}{ccc} I & I & 1 \\ J & J & F \end{array} \right\}} \frac{\mu_{I',I}}{\mu_{I,I}}\,.$$

Все выше сказанное может быть также отнесено и к матричным элементам от квадрупольного вклада $\hat{V}^{\rm (hf)}_{\rm Q}$ в оператор сверхтонкого взаимодействия, для которых, в соответствии с известными формулами (см. [35]), верно следующее выражение

$$\langle F', m_{F'}, (n', J'), I' | \hat{V}^{\rm (hf)}_{\rm Q} | F, m_F, (n,J), I\rangle = \quad (12)$$
$$\delta_{F'F}\delta_{m_{F'}m_F} (-1)^{F+I+J'} \left\{ \begin{array}{ccc} I' & I & 2 \\ J & J' & F \end{array} \right\} Q^{\rm (n)}_{I',I} Q^{\rm (e)}_{n'J',nJ},$$

где $Q^{\rm (n)}_{I',I} \equiv \langle I' || \hat{\rm Q}^{\rm (n)} || I\rangle$ есть приведенный матричный элемент квадрупольного момента ядра $\hat{\rm Q}^{\rm (n)}$ между ядерными состояниями $|I'\rangle$ и $|I\rangle$ со спином I' и I, а $Q^{\rm (e)}_{n'J',nJ} \equiv \langle n', J' || \hat{\rm Q}^{\rm (e)} || n, J\rangle$ есть приведенный матричный элемент квадрупольного электронного оператора $\hat{\rm Q}^{\rm (e)}$ между состояниями $|n', J'\rangle$ и $|n, J\rangle$. При этом, электронные состояния и ядерные состояния должны попарно иметь одинаковую четность, а их угловые моменты могут отличаться не более чем на два: $|J - J'| \leq 2$, $|I - I'| \leq 2$.

В случае диагональных матричных элементов в (12) величина

$$\Delta^{\rm (Q)}_{FnJI} = (-1)^{F+I+J} \left\{ \begin{array}{ccc} I & I & 2 \\ J & J & F \end{array} \right\} Q^{\rm (n)}_{I,I} Q^{\rm (e)}_{nJ,nJ}\,, \quad (13)$$

описывает вклад в сверхтонкий сдвиг соответствующего сверхтонкого уровня за счет квадрупольного взаимодействия. В случае же различных ядерных состояний $I \neq I'$ матричные элементы в (12) описывают перепутывание состояний с различными ядерными спинами, т.е. также дают вклад в электронный мостик совместно с магнитным вкладом. В частности, если известна величина квадрупольного вклада в сверхтонкий сдвиг $\Delta^{\rm (Q)}_{FnJI}$ [см. (13)], то матричный элемент связи в (12) между состояниями с одной и той же электронной конфигурацией $|F, m_F, (n,J), I\rangle$ и $|F, m_F, (n,J), I'\rangle$, отличающимися только спином ядра ($I' \neq I$), можно выразить как

$$(-1)^{F+I+J} \left\{ \begin{array}{ccc} I' & I & 2 \\ J & J & F \end{array} \right\} Q^{\rm (n)}_{I',I} Q^{\rm (e)}_{nJ,nJ} = \quad (14)$$
$$\Delta^{\rm (Q)}_{FnJI} \frac{\left\{ \begin{array}{ccc} I' & I & 2 \\ J & J & F \end{array} \right\}}{\left\{ \begin{array}{ccc} I & I & 2 \\ J & J & F \end{array} \right\}} \frac{Q^{\rm (n)}_{I',I}}{Q^{\rm (n)}_{I,I}}\,.$$

Отметим также, поскольку для квадрупольного вклада электронные угловые моменты состояний J и J' в общем выражении (12) могут отличаться на два, то это заметно расширяет каналы формирования электронного мостика, по отношению к магнитному вкладу $\hat{V}^{\rm (hf)}_{\mathbf{B}}$, для которого угловые моменты состояний J и J' в (7) могут отличаться не более, чем на единицу.

Рассмотрим теперь конкретный случай изотопа ^{229}Th, когда мы имеем для основного состояния ядра спин $5/2$ и для первого возбужденного состояния ядра спин $3/2$ (изомер ^{229m}Th). Из экспериментальных данных [36] имеем величины ядерных g-факторов $g_{5/2} = 0.36$ и $g_{3/2} = -0.37$, что в соответствии с формулой (10) приводит к следующим значениям для диагональных приведенных матричных элементов

$$\mu_{5/2,5/2} = 2.61\mu_N, \quad \mu_{3/2,3/2} = -1.43\mu_N. \tag{15}$$

Что касается недиагонального приведенного матричного элемента $\mu_{3/2,5/2}$, отвечающего за перепутывание атомных состояний с различными ядерными спинами (т.е. электронный мостик), то его величина легко определяется временем жизни T состояния ядерного изомера ^{229m}Th со спином 3/2, которое составляет около 2000 с (см. [37]). Для этого используем известную формулу для скорости спонтанного распада верхнего уровня со спином I' к нижнему уровню со спином I в магнито-дипольном приближении:

$$\frac{1}{T} = \frac{32\pi^3|\mu_{I',I}|^2}{3\hbar\lambda^3(2I'+1)}. \tag{16}$$

Полагая в этой формуле $T = 2000$ с, $I' = 3/2$, $I = 5/2$ и $\lambda = 148.38$ нм, получаем величину

$$\mu_{3/2,5/2} = 0.9\mu_{\mathrm{N}}. \tag{17}$$

Отметим, что в отличие от матричного элемента $\mu_{3/2,5/2}$, недиагональный приведенный матричный элемент для квадрупольного момента ядра $Q^{(\mathrm{n})}_{3/2,5/2}$ прямым образом измерить крайне затруднительно. Однако, из общих физических соображений, его величина должна быть сопоставимой с величиной диагональных элементов $Q^{(\mathrm{n})}_{5/2,5/2}$ (~ 3.15 eb) и $Q^{(\mathrm{n})}_{3/2,3/2}$ (~ 1.74 eb), экспериментально определяемых из измерений сверхтонкого расщепления уровней (см. [36]). Поэтому вклад в электронный мостик от квадрупольного момента ядра может быть сопоставим со вкладом от магнитного момента ядра.

Как хорошо известно, наличие электронного мостика может приводить с существенному ускорению радиационного распада изомерного состояния ^{229m}Th (см. [34]), что связано с частичным снятием запрета на дипольные $E1$-переходы между атомными состояниями с различными ядерными спинами. Однако это также открывает новые возможности для создания оптических часов на основе ядерного перехода 148.38 нм в изотопе ^{229}Th с использованием двухфотонной спектроскопии, когда часовой лазер имеет удвоенную длину волны 296.76 нм.

Рассмотрим возможные каналы для такой спектроскопии на примере схемы, представленной на рис. 1. Здесь состояния $|1\rangle$, $|\alpha\rangle$ и $|\beta\rangle$ есть некоторые выбранные энергетические состояния иона с основным ядерным состоянием ($I = 5/2$ в случае изотопа ^{229}Th), в то время как верхние состояния $|1(m)\rangle$ и

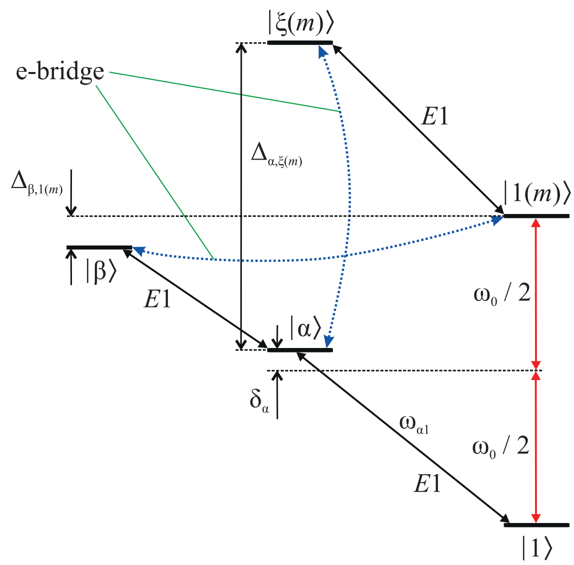

Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема, иллюстрирующая один из возможных каналов для двухфотонной спектроскопии часового ядерного перехода $|1\rangle \leftrightarrow |1(m)\rangle$. Синими штриховыми стрелками обозначены связи, обусловленные электронным мостиком (e-bridge)

$|\xi(m)\rangle$ есть состояния с возбужденным ядерным состоянием ($I = 3/2$ для ^{229m}Th). При этом предполагается, что переход $|1\rangle \leftrightarrow |1(m)\rangle$ является часовым переходом с частотой ω_0 ($\omega_0 = 2\pi \times 2020.41$ ТГц для ^{229}Th). Также предполагается, что переходы $|1\rangle \leftrightarrow |\alpha\rangle$, $|\alpha\rangle \leftrightarrow |\beta\rangle$ и $|1(m)\rangle \leftrightarrow |\xi(m)\rangle$ являются оптическими дипольными $E1$-переходами. Таким образом, состояния $|1\rangle$, $|1(m)\rangle$ и $|\beta\rangle$ имеют одну четность, а четность состояний $|\alpha\rangle$ и $|\xi(m)\rangle$ является противоположной.

Под воздействием перемешивания состояний (см. синие штриховые линии на рис. 1) за счет электронного мостика, в нашем случае обусловленного оператором сверхтонкого взаимодействия $\hat{V}^{(\mathrm{hf})}$, происходит следующее преобразование интересующих нас состояний иона (атома) $|1(m)\rangle$ и $|\alpha\rangle$:

$$\begin{gathered} |1(m)\rangle \Rightarrow |1(m)'\rangle = |1(m)\rangle + u_\beta|\beta\rangle, \\ |\alpha\rangle \Rightarrow |\alpha'\rangle = |\alpha\rangle + w_\xi|\xi(m)\rangle, \end{gathered} \tag{18}$$

где малые параметры замешивания $|u_\beta, w_\xi| \ll 1$ в соответствии с теорией возмущения определяются следующим образом:

$$u_\beta = -\frac{\langle\beta|\hat{V}^{(\mathrm{hf})}|1(m)\rangle}{\hbar\Delta_{\beta,1(m)}}, \quad w_\xi = \frac{\langle\xi(m)|\hat{V}^{(\mathrm{hf})}|\alpha\rangle}{\hbar\Delta_{\alpha,\xi(m)}}, \tag{19}$$

где $\hbar\Delta_{\beta,1(m)}$ есть разность энергий между состоянием $|\beta\rangle$ и $|1(m)\rangle$, а $\hbar\Delta_{\alpha,\xi(m)}$ есть разность энергий между состоянием $|\alpha\rangle$ и $|\xi(m)\rangle$ (см. рис. 1).

Рассмотрим взаимодействие иона с монохроматическим лазерным полем

$$E(t) = \mathcal{E}_0 e^{-i\omega t} + \text{c.c.}\,, \tag{20}$$

где $\mathcal{E}_0$ есть амплитуда поля, а его частота ω сканируется вблизи половины частоты часового перехода $|1\rangle \leftrightarrow |1(m)\rangle$, т.е. $\omega \approx \omega_0/2$. Взаимодействие света с ионом будем рассматривать как электро-дипольное $-(\hat{d}E)$, где $\hat{d}$ есть оператор дипольного момента.

С учетом смешивания состояний в (18), рассмотрим теперь двухфотонное возбуждение часового перехода $|1\rangle \leftrightarrow |1(m)'\rangle$ на удвоенной частоте лазерного поля $2\omega \approx \omega_0$, осуществляемое через промежуточный уровень $|\alpha'\rangle$. Двухфотонная частота Раби этого возбуждения определяется стандартным образом:

$$\frac{\langle 1(m)'|\hat{d}\mathcal{E}_0|\alpha'\rangle\langle\alpha'|\hat{d}\mathcal{E}_0|1\rangle}{\hbar^2\delta_\alpha} = \frac{\mathcal{E}_0^2 d_{\alpha 1}}{\hbar^2\delta_\alpha}(d_{\beta\alpha}u_\beta^* + d_{\xi 1}^{(m)*}w_\xi) = \\ = \Omega^{(1)}_{\alpha,\beta} + \Omega^{(2)}_{\alpha,\xi(m)}, \tag{21}$$

где $\delta_\alpha = (\omega_0/2 - \omega_{\alpha 1})$ (см. на рис. 1), а $d_{\alpha 1} = \langle\alpha|\hat{d}|1\rangle$, $d_{\beta\alpha} = \langle\beta|\hat{d}|\alpha\rangle$ и $d_{\xi 1}^{(m)} = \langle\xi(m)|\hat{d}|1(m)\rangle$ есть матричные элементы оператора дипольного момента для переходов $|1\rangle \leftrightarrow |\alpha\rangle$, $|\alpha\rangle \leftrightarrow |\beta\rangle$ и $|1(m)\rangle \leftrightarrow |\xi(m)\rangle$, соответственно. В выражении (21) мы учли только линейные вклады по малым параметрам u_β, w_ξ и разбили на два вклада:

$$\Omega^{(1)}_{\alpha,\beta} = \frac{\mathcal{E}_0^2 d_{\alpha 1}}{\hbar^2\delta_\alpha} d_{\beta\alpha}u_\beta^*, \quad \Omega^{(2)}_{\alpha,\xi(m)} = \frac{\mathcal{E}_0^2 d_{\alpha 1}}{\hbar^2\delta_\alpha} d_{\xi 1}^{(m)*} w_\xi. \tag{22}$$

Поскольку существует несколько вариантов выбора уровней $|\beta\rangle$ и $|\xi(m)\rangle$, то полная двухфотонная частота Раби, осуществляемая через промежуточный уровень $|\alpha\rangle$, определяется как суперпозиция по всем возможным вариантам:

$$\Omega^{(\text{2- ph})}_\alpha = \sum_\beta \Omega^{(1)}_{\alpha,\beta} + \sum_\xi \Omega^{(2)}_{\alpha,\xi(m)}. \tag{23}$$

Тогда полная двухфотонная частота Раби для часового перехода $|1\rangle \leftrightarrow |1(m)\rangle$ есть сумма по всем возможным промежуточным уровням $|\alpha\rangle$

$$\Omega^{(\text{2-ph})}_{\text{clock}} = \sum_\alpha \Omega^{(\text{2-ph})}_\alpha, \tag{24}$$

где также учитываются двухфотонные переходы через промежуточные состояния $|\alpha(m)\rangle$ с возбужденным состоянием ядра.

Проанализируем теперь возможность двухфотонной спектроскопии ядерного часового перехода для иона $^{229}Th^{2+}$. Для этого иона электронная структура основного состояния определяется как $(5f6d)\,^3H_4$

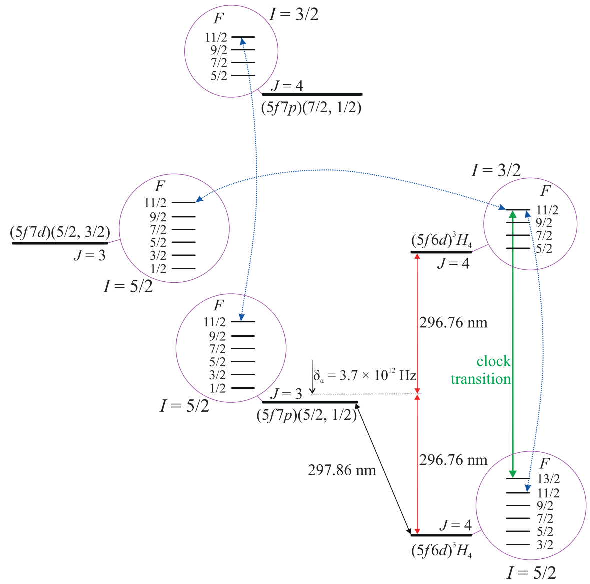

Рис. 2. (Цветной онлайн) Схема уровней, иллюстрирующая наиболее сильный канал для двухфотонной спектроскопии часового ядерного перехода в ионе $^{229}Th^{2+}$. Для удобства, расположение сверхтонких энергетических уровней (см. в круглых вставках) упорядочено в соответствии с величиной полного углового момента F. Синими штриховыми стрелками отмечена связь электронным мостиком для состояний, обуславливающих двухфотонную спектроскопию выделенного часового перехода (см. сплошную зеленую стрелку)

с электронным угловым моментом $J = 4$, которая сформирована по типу LS-связи двух валентных электронов на внешних оболочках. Следуя идеологии работы [12], целесообразно в качестве часового ядерного перехода выбрать переход $13/2 \leftrightarrow 11/2$ между сверхтонкими уровнями с максимальными полными угловыми моментами (см. переход, отмеченный зеленой сплошной стрелкой на рис. 2). В этом случае, анализируя известную структур электронных уровней [38] для $^{229}Th^{2+}$, мы обнаружили следующие каналы (см. на рис. 2), которые будут давать доминирующие вклады в величину двухфотонной частоты Раби (24). Эти каналы основаны на промежуточном уровне (аналог состояния $|\alpha\rangle$ на рис. 1) с электронной конфигурацией $(5f7p)\,(5/2, 1/2)$ с электронным угловым моментом $J{=}3$, сформированным по типу jj-связи для двух валентных электронов. Исключительность этих каналов для двухфотонной спектроскопии часового ядерного перехода обусловлена двумя причинами. Во-первых, исключительная близость длины волны (297.86 нм) перехода $[(5f6d)\,^3H_4] \to [(5f7p)\,(5/2, 1/2)\,J{=}3]$ к длине волны пробного лазера (296.76 нм), что обуславливает малость отстройки $\delta_\alpha = 3.7 \times 10^{12}$ Гц и, соответственно, резкое увеличение частоты Раби (21). Кроме того, как следует из данных [38], данный дипольный переход $[(5f6d)\,^3H_4] \to [(5f7p)(5/2,1/2)\,J=3]$ является одним из наиболее сильных оптических переходов в ионе $^{229}\mathrm{Th}^{2+}$, что обуславливает большую величину приведенного матричного элемента дипольного момента (см. $d_{\alpha 1}$ в формуле (21)).

При этом, в качестве аналога состояния $|\beta\rangle$ (см. рис. 1) уже автоматически присутствует нижний сверхтонкий уровень $[I=5/2,(5f6d)\,^3H_4,F=11/2]$, связанный электронным мостиком (см. синюю штриховую линию на рис. 2) с верхним часовым изомерным состоянием $[I=3/2,(5f6d)\,^3H_4,F=11/2]$, что необходимо для формирования вклада $\Omega^{(1)}_{\alpha,\beta}$ в двухфотонную частоту Раби часового перехода (см. формулы (21) и (22)). Кроме того, в качестве еще одного дополнительного уровня, аналогичного состоянию $|\beta\rangle$ на рис. 1, мы представили состояние $[I=5/2,(5f7d)(5/2,3/2)\,J=3]$ с электронной конфигурацией $(5f7d)\,(5/2,3/2)$ с электронным угловым моментом $J{=}3$. Этот уровень отличается относительной близостью к верхнему часовому изомерному состоянию $[I=3/2,(5f6d)\,^3H_4]$, что, в свою очередь, может привести к заметному увеличению величины u_β в формуле (21) для данного вклада. Более того, таких, относительно близких к верхнему часовому уровню $[I=3/2,(5f6d)\,^3H_4]$, состояний со спином ядра $I=5/2$ имеется достаточно много. Это, в силу накопительного эффекта, также может привести к увеличению полной двухфотонной частоты Раби (24). Однако, при этом нужно иметь ввиду также и возможность деструктивной интерференции от некоторых вкладов, для которых знак соответствующей двухфотонной частоты Раби $\Omega^{(1)}_{\alpha,\beta}$ является противоположным знаку полной двухфотонной частоты $\Omega^{(2\text{-ph})}_{\text{clock}}$.

В качестве аналога промежуточного изомерного состояния $|\xi(m)\rangle$ (см. рис. 1) со спином ядра $I{=}3/2$, мы представили на рис. 2 состояние с электронной конфигурацией $(5f7p)\,(7/2,1/2)$ с электронным угловым моментом $J=4$, где имеется необходимый сверхтонкий уровень с полным угловым моментом $F=11/2$, связанный электронным мостиком (см. синюю штриховую стрелку на рис. 2) с состоянием $[I=5/2,(5f7p)(7/2,1/2)J=3,F=11/2]$, что необходимо для формирования вклада $\Omega^{(2)}_{\alpha,\xi(m)}$ в двухфотонную частоту Раби часового перехода (см. формулы (21) и (22)). Подобных состояний, аналогичных промежуточному изомерному состоянию $|\xi(m)\rangle$ на рис. 1, для иона $^{229}\mathrm{Th}^{2+}$ существует достаточно много.

Исходя из выше приведенного подхода к описанию электронного мостика через оператор сверхтонкого взаимодействия (1), можно оценить величину матричных элементов связи между ионными (атомными) состояниями с различными значениями ядерного спина I на уровне величины сверхтонкого расщепления уровней. Для иона $^{229}\mathrm{Th}^{2+}$ это соответствует гигагерцовому порядку величины (в единицах частоты). В результате, проанализировав структуру энергетических уровней (представленную в [38]) с использованием формул (19) и (21)–(24), мы оцениваем, что интенсивность на уровне ~ 10–$100\,\text{кВт/см}^2$ для лазерного излучения с длиной волны 296.76 нм может оказаться достаточной для достижения величины двухфотонной частоты Раби $\Omega^{(2\text{-ph})}_{\text{clock}} \sim 10\,\text{Гц}$ на часовом ядерном переходе с длиной волны 148.38 нм в ионе $^{229}\mathrm{Th}^{2+}$. Отметим, что 1 Вт мощности светового пучка, сфокусированного до диаметра 100 мкм, дает интенсивность порядка $10\,\text{кВт/см}^2$. При этом лазеры на такой длине волны (~ 300 нм) и с мощностью $\gtrsim 1$ Вт являются вполне доступными.

Отметим также, что наличие исключительно сильного (описанного выше) резонансного канала для двухфотонной спектроскопии ядерного перехода в ионе $^{229}\mathrm{Th}^{2+}$, ведет, с другой стороны, к усилению остаточного полевого сдвига частоты часового перехода, который, по нашим оценкам, может более чем на два порядка превышать величину двухфотонной частоты Раби $\Omega^{(2\text{-ph})}_{\text{clock}}$. Например, при $\Omega^{(2\text{- ph})}_{\text{clock}} \sim 10\,\text{Гц}$ полевой сдвиг может достигать уровня (и даже более) 1 кГц. Однако, эта проблема имеет радикальное решение при использовании гипер-рамсеевской спектроскопии [39, 40] и ее различных модификаций [41, 42], а также метода автобалансной рамсеевской спектроскопии [43, 44]. При этом лазерное излучение $\mathbf{E}(t) = \mathrm{Re}\{\mathbf{E}_0 e^{-i\omega t}\}$ должно иметь линейную поляризацию, вектор которой $\mathbf{E}_0$ направлен под углом 45° к вектору статического магнитного поля $\mathbf{B}_{\text{stat}}$, необходимого для расщепления зеемановских подуровней часового перехода между сверхтонкими уровнями $|F=13/2\rangle \leftrightarrow |F'=11/2\rangle$ (см. на рис. 2). В этом случае, используемые реперные переходы между крайними земановскими подуровнями $|F=13/2, m=\pm 13/2\rangle \leftrightarrow |F'=11/2, m'=\pm 11/2\rangle$ имеют одинаковый световой сдвиг (вследствие линейной поляризации $\mathbf{E}_0$), а соответствующая двухфотонная частота Раби $\Omega^{(2\text{-ph})}_{\text{clock}} \propto \sin 2\theta$ становится максимальной (здесь θ есть угол между векторами $\mathbf{E}_0$ и $\mathbf{B}_{\text{stat}}$).

Таким образом, возможность создания прецизионных оптических часов с использованием двухфотонной спектроскопии ядерного перехода в ионе $^{229}\mathrm{Th}^{2+}$ выглядит достаточно перспективной. Однако для этого требуется также, чтобы время жизни верхнего изомерного часового состояния $[I = 3/2, (5f6d)\,^3H_4]$ было не менее 10 с, чтобы обеспечить необходимую длительность опроса часового перехода. Исходя из анализа энергетической структуры электронных уровней в ионе $^{229}\mathrm{Th}^{2+}$ и оценивая (в соответствии с выше приведенной теорией) величину каналов для электронного мостика, приводящего к усилению спонтанного распада состояния $[I = 3/2,(5f6d)\,^3H_4]$, мы полагаем, что требуемое время жизни (т.е. не менее 10 с) вполне вероятно. Однако окончательный вывод можно сделать только после прямых экспериментальных измерений. Следует отметить, что в случае, когда распад верхнего изомерного состояния в основном определяется электронным мостиком, то время жизни уровней в сверхтонком мультиплете может существенно зависеть от величины полного углового момента F. В этом контексте нас интересует, прежде всего, время жизни именно часового верхнего сверхтонкого состояния с $F = 11/2$. Добавим, что для иона $^{229}\mathrm{Th}^{2+}$ в качестве часовых уровней можно рассмотреть и другие более высокие, но долгоживущие, электронные уровни, например: $(5f6d)\,^3H_{5,6}$ с $J = 5, 6$ (вместо нижнего электронного состояния $(5f6d)\,^3H_4$), а также исследовать возможность двухфотонной спектроскопии ядерного перехода в этом случае.

Что касается иона $^{229}\mathrm{Th}^{+}$, то здесь имеется большая плотность электронных энергетических состояний и поэтому также вполне вероятна возможность двухфотонной спектроскопии ядерного перехода при интенсивности на уровне $\sim$10–100 кВт/см^2 для лазерного излучения с длиной волны 296.76 нм. Однако, в силу большой плотности состояний, время жизни верхнего часового изомерного состояния может быть заметно меньше 10 с из-за усиления и многочисленности различных каналов распада, обусловленных электронным мостиком. Хотя окончательный вывод можно сделать только после прямых экспериментальных измерений. Что касается иона $^{229}\mathrm{Th}^{3+}$, то здесь, наоборот, уже известно очень долгое время жизни верхнего часового изомерного состояния (около 2000 с [37]). Однако, исходя из анализа электронных уровней, представленных в [45], мы не обнаружили выделенного резонансного канала для двухфотонной спектроскопии (подобного представленному на рис. 2 каналу для иона $^{229}\mathrm{Th}^{2+}$). Поэтому для иона $^{229}\mathrm{Th}^{3+}$ мы оцениваем требуемую интенсивность намного выше 100 кВт/см^2 для лазерного излучения с длиной волны 296.76 нм, что может быть существенной технической проблемой.

В заключении, для изотопа ^{229}Th мы исследуем возможность двухфотонной лазерной спектроскопии ядерного часового перехода (148.38 нм) с использованием интенсивного монохроматического лазерного излучения на удвоенной длине волны (296.76 нм). Наши оценки показывают, что с использованием механизма электронного мостика в двукратно ионизованном ионе $^{229}\mathrm{Th}^{2+}$ будет достаточно интенсивности непрерывного излучения порядка 10–100 кВт/см^2, что лежит в пределах досягаемости существующих современных лазерных систем. Так, например, лазерный пучок с мощностью 1 Вт, сфокусированный в диаметр 100 мкм, дает интенсивность около 10 кВт/см^2. В случае экспериментального подтверждения наших предсказаний, полученные результаты могут быть положены в основу практического создания ультра-прецизионных ядерных оптических ядерных часов на основе ионов тория-229, захваченных в ионную ловушку, без использования вакуумного ультрафиолета. Это также может стимулировать поиск твердотельных кристаллов с окном прозрачности в области 296.76 нм, в которых допированные ионы тория находились бы в зарядовом состоянии $^{229}\mathrm{Th}^{2+}$. В этом случае можно будет создавать твердотельные часы на основе двухфотонной лазерной спектроскопии ядерного часового перехода. Разумеется, в таких твердотельных устройствах интенсивность лазерного излучения уже не должна быть такой высокой (10–100 кВт/см^2), поскольку необходимый уровень спектроскопического сигнала будет обеспечиваться большим числом ионов тория в кристаллическом образце.

Кроме того, мы развиваем альтернативный подход к описанию явления электронного мостика в изолированном ионе (атоме) через оператор сверхтонкого взаимодействия, что является важным для общей квантовой теории атома. В частности, такой подход показывает, что вклад в электронный мостик от ядерного квадрупольного момента в общем случае может быть сопоставим со вкладом от магнитного момента ядра. Данный подход может быть также распространен на случай ионов, допированных в твердом теле.

Мы благодарим М. Д. Радченко за полезные дискуссии.

Финансирование работы. Данная работа была поддержана Российским научным фондом (грант 22-72-10096). В. И. Юдин был также поддержан Министерством науки и высшего образования Российской Федерации (грант FSUS-2025-0011).

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

---

1. F. Riehle, *Frequency Standards: Basics and Applications*, Wiley-VCH, Weinheim (2005).
2. N. Hinkley, J. A. Sherman, N. B. Phillips, M. Schioppo, N. D. Lemke, K. Beloy, M. Pizzocaro, C. W. Oates, and A. D. Ludlow, Science **341**, 1215 (2013).
3. N. Huntemann, C. Sanner, B. Lipphardt, C. Tamm, and E. Peik, Phys. Rev. Lett. **116**, 063001 (2016).
4. S. M. Brewer, J.-S. Chen, A. M. Hankin, E. R. Clements, C. W. Chou, D. J. Wineland, D. B. Hume, and D. R. Leibrandt, Phys. Rev. Lett. **123**, 033201 (2019).
5. A. Aeppli, K. Kim, W. Warfield, M. S. Safronova, and J. Ye, Phys. Rev. Lett. **133**, 023401 (2024).
6. H. N. Hausser, J. Keller, T. Nordmann et al. (Collaboration), Phys. Rev. Lett. **134**, 023201 (2025).
7. M. Kozlov, M. Safronova, J. R. Crespo López-Urrutia, and P. Schmidt, Rev. Mod. Phys. **90**, 045005 (2018).
8. C. Lyu, C. H. Keitel, and Z. Harman, Commun. Phys. **8**, 3 (2025).
9. Е. В. Ткаля, УФН **173**, 323 (2003).
10. E. V. Tkalya, JETP Lett. **55**, 211 (1992).
11. E. Peik and Chr. Tamm, Europhys. Lett. **61**, 181 (2003).
12. C. J. Campbell, A. G. Radnaev, A. Kuzmich, V. A. Dzuba, V. V. Flambaum, and A. Derevianko, Phys. Rev. Lett. **108**, 120802 (2012).
13. G. A. Kazakov, A. N. Litvinov, V. I. Romanenko, L. P. Yatsenko, A. V. Romanenko, M. Schreitl, G. Winkler, and T. Schumm, New J. Phys. **14**, 083019 (2012).
14. R. G. Helmer and C. W. Reich, Phys. Rev. C **49**, 1845 (1994).
15. Z. O. Guimaraes-Filho, Phys. Rev. C **71**, 044303 (2005).
16. B. R. Beck, J. A. Becker, P. Beiersdorfer, G. V. Brown, K. J. Moody, J. B. Wilhelmy, F. S. Porter, C. A. Kilbourne, and R. L. Kelley, Phys. Rev. Lett. **98**, 142501 (2007).
17. B. R. Beck, J. A. Becker, P. Beiersdorfer, G. V. Brown, K. J. Moody, C. Y. Wu, J. B. Wilhelmy, F. S. Porter, C. A. Kilbourne, and R. L. Kelley, Lawrence Livermore National Laboratory Report No. LLNL-PROC-415170 (2009); https://ebit.llnl.gov/publications.
18. B. Seiferle, L. von der Wense, P. V. Bilous, I. Amersdorffer, C. Lemell, F. Libisch, S. Stellmer, T. Schumm, C. E. Düllmann, A. Pálffy, and P. G. Thirolf, Nature **573**, 243 (2019).
19. A. Yamaguchi, H. Muramatsu, T. Hayashi, N. Yuasa, K. Nakamura, M. Takimoto, H. Haba, K. Konashi, M. Watanabe, H. Kikunaga, K. Maehata, N. Y. Yamasaki, and K. Mitsuda, Phys. Rev. Lett. **123**, 222501 (2019).
20. T. Sikorsky, J. Geist, D. Hengstler, S. Kempf, L. Gastaldo, C. Enss, C. Mokry, J. Runke, C. E. Düllmann, P. Wobrauschek, K. Beeks, V. Rosecker, J. H. Sterba, G. Kazakov, T. Schumm, and A. Fleischmann, Phys. Rev. Lett. **125**, 142503 (2020).
21. S. Kraemer, J. Moens, M. Athanasakis-Kaklamanakis et al. (Collaboration), Nature **617**, 706 (2023).
22. J. Tiedau, M. V. Okhapkin, K. Zhang et al. (Collaboration), Phys. Rev. Lett. **132**, 182501 (2024).
23. R. Elwell, Chr. Schneider, J. Jeet, J. E. S. Terhune, H. W. T. Morgan, A. N. Alexandrova, H. B. Tran Tan, A. Derevianko, and E. R. Hudson, Phys. Rev. Lett. **133**, 013201 (2024).
24. C. Zhang, T. Ooi, J. S. Higgins, J. F. Doyle, L. von der Wense, K. Beeks, A. Leitner, G. A. Kazakov, P. Li, P. G. Thirolf, T. Schumm, and J. Ye, Nature **633**, 63 (2024).
25. C. Zhang, L. von der Wense, J. F. Doyle, J. S. Higgins, T. Ooi, H. U. Friebel, J. Ye, R. Elwell, J. E. S. Terhune, H. W. T. Morgan, A. N. Alexandrova, H. B. Tran Tan, A. Derevianko, and E. R. Hudson, Nature **636**, 603 (2024).
26. S. G. Porsev, V. V. Flambaum, E. Peik, and C. Tamm, Phys. Rev. Lett. **105**, 182501 (2010).
27. R. A. Müller, A. V. Volotka, and A. Surzhykov, Phys. Rev. A **99**, 042517 (2019).
28. P. V. Borisyuk, N. N. Kolachevsky, A. V. Taichenachev, E. V. Tkalya, I. Yu. Tolstikhina, and V. I. Yudin, Phys. Rev. C **100**, 044306 (2019).
29. N.-Q. Cai, G.-Q. Zhang, C.-B. Fu, and Y.-G. Ma, Nucl. Sci. Tech. **32**, 59 (2021).
30. F. F. Karpeshin, Physics of Atomic Nuclei **87**, 586 (2024).
31. V. A. Krutov and V. N. Fomenko, Ann. der Phys. **21**, 291 (1968).
32. D. Hinneburg, M. Nagel, and G. Brunner, Z. Phys. A **291**, 113 (1979).
33. D. Hinneburg, Z. Phys. A **300**, 129 (1981).
34. V. F. Strizhov and E. V. Tkalya, Sov. Phys. JETP **72**, 387 (1991).
35. Д. А. Варшалович, В. К. Херсонский, Е. В. Орленко, А. Н. Москалев, *Квантовая теория углового момента и ее приложения*, Физматлит, М. (2017).
36. K. Beeks, T. Sikorsky, T. Schumm, J. Thielking, M. V. Okhapkin, and E. Peik, Nature Rev. Phys. **3**, 238 (2021).
37. A. Yamaguchi, Y. Shigekawa, H. Haba, H. Kikunaga, K. Shirasaki, M. Wada, and H. Katori, Nature **629**, 62 (2024).
38. Atomic Spectra Database, NIST Standard Reference Database, DOI: https://dx.doi.org/10.18434/T4W30F.
39. V. I. Yudin, A. V. Taichenachev, C. W. Oates, Z. W. Barber, N. D. Lemke, A. D. Ludlow, U. Sterr,

Ch. Lisdat, and F. Riehle, Phys. Rev. A **82**, 011804(R) (2010).

40. N. Huntemann, B. Lipphardt, M. Okhapkin, Chr. Tamm, E. Peik, A.V. Taichenachev, and V.I. Yudin, Phys. Rev. Lett. **109**, 213002 (2012).
41. R. Hobson, W. Bowden, S.A. King, P.E.G. Baird, I.R. Hill, and P. Gill, Phys. Rev. A **93**, 010501(R) (2016).
42. T. Zanon-Willette, R. Lefevre, R. Metzdorff, N. Sillitoe, S. Almonacil, M. Minissale, E. de Clercq, A.V. Taichenachev, V.I. Yudin, and E. Arimondo, Rep. Prog. Phys. **81**, 094401 (2018).
43. Ch. Sanner, N. Huntemann, R. Lange, Ch. Tamm, and E. Peik, Phys. Rev. Lett. **120**, 053602 (2018).
44. V.I. Yudin, A.V. Taichenachev, M.Yu. Basalaev, T. Zanon-Willette, J.W. Pollock, M. Shuker, E.A. Donley, and J. Kitching, Phys. Rev. Appl. **9**, 054034 (2018).
45. M.S. Safronova and U.I. Safronova, Phys. Rev. A **87**, 062509 (2013).