Abschlussbericht zum Teilvorhaben:

Mobile Langzeitspeicherung kohärenter Kernspinzustände von Xenon - MobiL-KeXe

Förderkennzeichen: 16KISQ041

Projektlaufzeit: 01.11.2021 bis 30.04.2025

Im Verbundprojekt:
Quantentoken auf Basis von Rubidium und Xenon – Q-ToRX

Gefördert durch das Bundesministerium für Forschung, Technologie und Raumfahrt im Bereich Vernetzung und Sicherheit digitaler Systeme

Zuweisungsempfänger:

Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB), Braunschweig und Berlin

Teilprojektleitung:

Dr. Wolfgang Kilian

1. Kurzbericht

1.1. Aufgabenstellung

Die direkte Speicherung von photonischen Quantenzuständen für mehrere Minuten bis Tage ist eine bislang ungelöste, aber zentrale Herausforderung der Quanteninformation. Um Quantenkommunikationsmethoden unter anderem für die sichere Authentifizierung von Systembenutzern mittels sogenannter Quantentoken nutzbar zu machen, benötigt es unter anderem einen geeigneten Quantenspeicher. Ziel des Verbundvorhabens Q-ToRX war es, die Speicherzeit von photonisch gekoppelten Quantenspeichern bei Raumtemperatur aus dem Bereich unter einer Sekunde bis in den Stundenbereich zu verlängern.

In dem hier vorgestellten Teilvorhaben MobiL-KeXe wurde die Basis in Bezug auf die kohärente Speicherung im Edelgas gelegt. Hierfür mussten die bisher nur in einem massiven magnetisch geschirmten Raum erzielten langen Kohärenzzeiten von Edelgaskernspins auf einen mobilen Aufbau transferiert werden. Umfangreiche Arbeiten sowohl bezüglich der Optimierung einer kommerziell erhältlichen Schirmung als auch die Adaptierung des optischen Spinaustauschpumpens und der Spinmanipulation an dem mobilen Aufbau waren Aufgabe in diesem Teilvorhaben.

1.2. Wissenschaftlicher und technischer Stand zu Projektbeginn

Grundlegend für die im Projekt bearbeiteten Schritte ist die Hyperpolarisierung von Edelgas Kernspin-Ensembles mittels des optischen Spinaustauschpumpens (engl. spin-exchange optical pumping: SEOP) [1] mit jüngsten Übersichtsartikeln für ^{3}He [2] und ^{129}Xe [3]. An der PTB wurden in der Vergangenheit mehre Apparaturen zur Erzeugung von hyperpolarisiertem ^{129}Xe [4, 5] und ^{3}He [6,7] etabliert.

Auch das Erreichen von stundenlangen Kohärenzzeiten in Edelgas Spin-Ensembles ist seit den Anfängen der optischen Magnetometrie Ende der 1960er bekannt [8]. Die Beobachtung der freien Spinpräzession über sehr lange Zeiten wird an der PTB seit mehr als zwei Jahrzehnten sowohl an ^{129}Xe [9] als auch ^{3}He oder simultan an beiden Atomen für unterschiedliche Präzisionsmessungen durchgeführt [10,7], so dass letztlich auch für ^{129}Xe Relaxationszeiten von über 10.000 Sekunden realisiert wurden [11].

1.3. Ablauf des Vorhabens und Zusammenarbeit mit anderen Forschungseinrichtungen

Nach dem gemeinsamen Kick-Off Meeting der drei Verbundpartner (DLR, LUH und PTB) im Gesamtprojekt Q-ToRX, wurden in monatlichen (teils online-) Meetings ein stetiger Austausch zum aktuellen Stand bei den Teilvorhaben gewährleistet. Noch wichtiger aber, war hier der intensive Austausch zum Verständnis der physikalischen Grundlagen aller für das Gesamtprojekt wichtigen Teilaspekte. Darüber hinaus wurde das Projekt an den Veranstaltungen die im Rahmen der „Grand Challenge der Quantenkommunikation“ stattfanden, sowie an weiteren Fachkonferenzen mit vertreten.

Für die experimentellen Arbeiten wurden zweierlei Hauptthemen bearbeitet. Die Messungen in der magnetisch geschirmten Kabine BMSR 2.1 hatten zum Ziel aufzuzeigen, dass nicht nur sehr lange Spinkohärenzzeiten von mehreren Stunden im Edelgas Ensemble erzielbar sind, sondern auch über diese Zeit hinweg kohärente Spinmanipulation möglich ist.

Für den Demonstrator eines potenziell mobilen Magnetschirms im Labormaßstab wurden nach Vorversuchen und Simulationen ein Konzept um einen kommerziell erhältlichen Schirm entwickelt und realisiert. Auch wurde aufgrund von Vorerfahrungen des im Rahmen des Projektes an der PTB angestellten Mitarbeiters, anders als ursprünglich angedacht, für die Detektion der Spinpräzession nicht auf einen externen kommerziellen Magnetfeldsensor, sondern auf eine in-situ Messung direkt innerhalb der ^{3}He Gaszelle mittels Laser gesetzt. Dieser Gesamtaufbau wurde im Laufe des Projektes vom Verbundpartner an der LUH übernommen und parallel weiterentwickelt.

1.4. Wesentliche Ergebnisse

In einem ersten Arbeitsschritt wurden die, in Vorexperimenten gezeigte, aktive kohärente Spinmanipulation (z.B. treiben einer einzelnen Rabi-Oszillation) vom 100 s Bereich in den Stundenbereich ausgedehnt. Diese Arbeiten wurden im magnetisch geschirmten Raum der PTB (BMSR 2.1) unter Verwendung von SQUID-Messtechnik zur Detektion und einer aktiven Feldstabilisierung durchgeführt. Im Rahmen dieser Messungen wurde ein neues Verfahren zur hochgenauen Bestimmung der Magnetfeldstärke, insbesondere für ultraniedrige Felder, entwickelt und als Patent angemeldet.

Für den zweiten Arbeitsschritt waren maßgeblich drei Arbeitsziele zu bewerkstelligen: a) in-situ Erzeugung von hoch spinpolarisiertem ^{129}Xe oder ^{3}He Edelgas in einer mobilen Abschirmeinheit, b) Implementation des optischen Auslesens der Edelgasspinpräzession über die im Gas befindlichen Alkalimetallatome und c) durch Optimierung u.a. der Zelltemperatur Kohärenzzeiten im Stundenbereich zu gewährleisten. Letztlich konnten mit dem etablierten Aufbau sehr lange Spinkohärenzzeiten (> eine Stunde) von hoch polarisierten Edelgasatomen, sowie kohärente Spinmanipulation in einem magnetischen Schirm im Labormaßstab gezeigt werden.

Zum Abschluss der Projektlaufzeit sollte gezeigt werden, dass die im Labor erzeugten Spinkohärenzen im Edelgaskern auch während des Transports des magnetischen Schirms bestehen bleiben. Dieser Nachweis konnte vom Verbundpartner an dem in der LUH duplizierten Aufbaus erbracht werden.

Referenzen:

[1] M.A. Bouchiat, T.R. Carver and C.M Varum, “Nuclear Polarization in 3He Gas Induced by Optical Pumping and Dipolar Exchange”, Phys. Rev. Lett., **5**, 373 (1960)
[2] T. R. Gentile, P. J. Nacher, B. Saam, and T. G. Walker, “Optically polarized 3He”, Rev. Mod. Phys. **89**, 45004 (2017)
[3] M. Kelley and R. T. Branca, “Theoretical models of spin-exchange optical pumping: Revisited and reconciled”, *J. Appl. Phys.* **129**, 154901 (2021)
[4] W. Kilian, “Erzeugung von hyperpolarisiertem 129Xe-Gas und Nachweis mittels in vivo NMR-Bildgebung, NMR-Spektroskopie sowie SQUID-Messtechnik", Dissertation Freie Universität Berlin (2001)
[5] E. S. Korchak, W. Kilian and L. Mitschang, “Configuration and Performance of a Mobile 129Xe Polarizer”, Appl. Magn. Reson., **44**, 65 (2013)
[6] W. Kilian, G. Narberhaus, F. Seifert and H. Rinneberg, “MR imaging of hyperpolarized ^{129}Xe and ^{3}He: sequential in vivo lung-imaging of the same subject and simultaneous imaging of phantoms”, *Proc. Intl. Soc. Mag. Reson. Med. 12,* p. 1671 (2004)
[7] N. Sachdeva, et al., “New measurement of the permanent electric dipole moment of ^{129}Xe using ^{3}He comagnetometry and SQUID detection”, *Phys. Rev. Lett.*, **123**, 143003 (2019)
[8] C. Cohen-Tannoudji, J. DuPont-Roc, S. Haroche, and F. Laloe, “Detection of the static magnetic field produced by the oriented nuclei of optically pumped ^{3}He gas”, Phys. Rev. Lett. **22**, 758 (1969)
[9] W. Kilian, et al. “Free precession and transverse relaxation of hyperpolarized ^{129}Xe gas detected by SQUIDs in ultra-low magnetic fields”, Eur. Phys. J. D, **42**, 197 (2007)
[10] C. Gemmel et al., “Ultra-sensitive magnetometry based on free precession of nuclear spins,” Eur. Phys. J. D **57**, 303 (2010)
[11] T. Liu et al., “A built-in coil system attached to the inside walls of a magnetically shielded room for generating an ultra-high magnetic eld homogeneity”, Rev. Sci. Instr. **92**, 24709 (2021)

2. Ausführlicher Ergebnisbericht

2.1. Vergleich der Arbeiten zur Vorhabensbeschreibung

Die im Teilvorhaben angedachten Arbeiten wurden in den Arbeitspaketen AP 3 und AP 4 vom Projektplan des Gesamtverbundes beschrieben, weshalb auch hier diese Nummerierung beibehalten wurde und nur die Arbeitsabschnitte beschrieben werden, bei denen eine PTB-Beteiligung laut Projektantrag angegeben war. Die Arbeiten aus dem AP 3 wurden alleinverantwortlich seitens der PTB durchgeführt, wohingegen die im AP 4 beschriebenen Arbeiten als gemeinschaftliche Zusammenführung aller Ergebnisse aus den Teilvorhaben angedacht war.

2.1.1. AP 3: Kohärente Kontrolle von Edelgasspins

Ziel: Aufbau eines potenziell transportablen Systems im Labormaßstab zur kohärenten Speicherung von Spinzuständen in ^{129}Xe Gas.

Aufgrund der von Corona verursachten massiven Lieferengpässen bei der Beschaffung der für die in AP 3.1 benötigten Materialien wurde die Zeitliche Abfolge der Bearbeitung der Einzelschritte an die Verfügbarkeit angepasst, so wurde insbesondere das AP 3.2 vor dem AP 3.1 abgeschlossen. In diesem Rahmen soll aber nicht weiter auf die Zeitliche Abfolge eingegangen werden.

AP 3.1: Realisierung langer Kohärenzzeiten in der Laborschirmung

Ziel der Aufgabe: Überführung der bisher gezeigten langen Spinkohärenzzeiten im großen magnetisch geschirmten Raum (BMSR-2.1) auf ein potenziell portables System.

Hierfür wurde zu Beginn des Projektes, vorwiegend im Austausch zwischen den Projektpartnern der LUH und der PTB, über die Auswahl, der im Rahmen des Projektes anzuschaffenden drei magnetischen Schirme diskutiert. Letztlich kamen zwei Hersteller in die Engere Auswahl, wofür seitens der PTB FEM-Simulation angepasst an die Geometrien dieser Schirme durchgeführt wurden. Beispielhaft sind hier in Abb. 1 Ergebnisse eines kommerziell erhältlichen Feldschirms für den Laboraufbau gezeigt. Hauptaugenmerk wurde auf die Feldhomogenität im Symmetriepunk innerhalb eines Volumens von 5 x 5 x 5 cm^3 gelegt. Es zeigte sich, dass die als

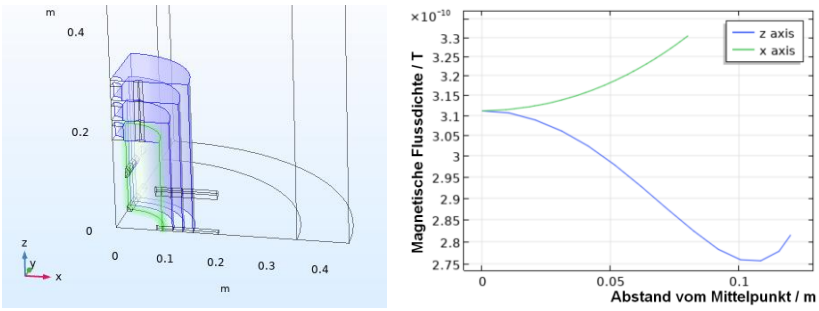

Abbildung 1: Ergebnisse der FEM-Simulation der Magnetfeldverteilung innerhalb eines kommerziellen magnetischen Schirms. Links 1/8tel des Modells des zylindersymmetrischen Aufbaus, sowie rechts das Ergebnis der Feldsimulation entlang der Längsachse (z) und einer radialen Achse bei 50 µT Außenfeld.

optische Zugänge implementierten Löcher im Magnetschirm keinen negativen Einfluss auf die Effektivität der Schirmung haben. Die Gradienten im zentralen Volumen von etwa 2 pT/cm, verursacht durch das äußere Magnetfeld, sind demnach gegenüber der Feldgradienten von 0,2 nT/cm, die durch die interne Magnetfeldspule (bei 1 µT Haltefeld) im magnetischen Schirm erzeugt werden, vernachlässigbar. Demnach konnte auf diesen standardschirm zurückgegriffen werden.

Darüber hinaus wurde ein Konzept erstellt, mit dem der potenziell mobile Aufbau realisiert werden konnte. Hier wurde aufgrund von Vorerfahrungen des neu im Projekt angestellten Mitarbeiters, entgegen anfänglichen Überlegungen, nicht auf die Detektion der Kernspin-präzession mittels eines vorhandenen kommerziellen OPM-Sensors gesetzt, sondern auf die optische Detektion an den Alkalimetallatomen direkt in der Gaszelle (hierzu mehr in AP A3.1b).

Für diesen Gesamtaufbau mussten die, in der Projektskizze beantragten Inventargüter entsprechend der Geräteliste angeschafft werden:

2. Nichtmagnetischer Ofen aus Bornitrid
3. Breadboard mit Dämpfungssystem
4. Datenerfassungssystem

In einer zweiten Ausbaustufe wurden später dafür noch folgende Gegenstände angeschafft:

5. Lock-in-Verstärker mit Digitizer Option
6. Lasernetzteil + Laser
7. Rauscharme Multikanal-Stromquelle
8. Rauscharme Stromquelle

Über diese Geräte hinaus konnte aus den PTB-Beständen ein Hochleistungspumplaser @ 795 nm mit bis zu 60 Watt Lichtleistung, ein weiterer Pump-Laser mit niedrigerer Leistung, ähnlich zu dem aus der Geräteliste #6 und zwei Heizsystem (Heißluft oder Resistiv mit HF-Strom) für den Aufbau

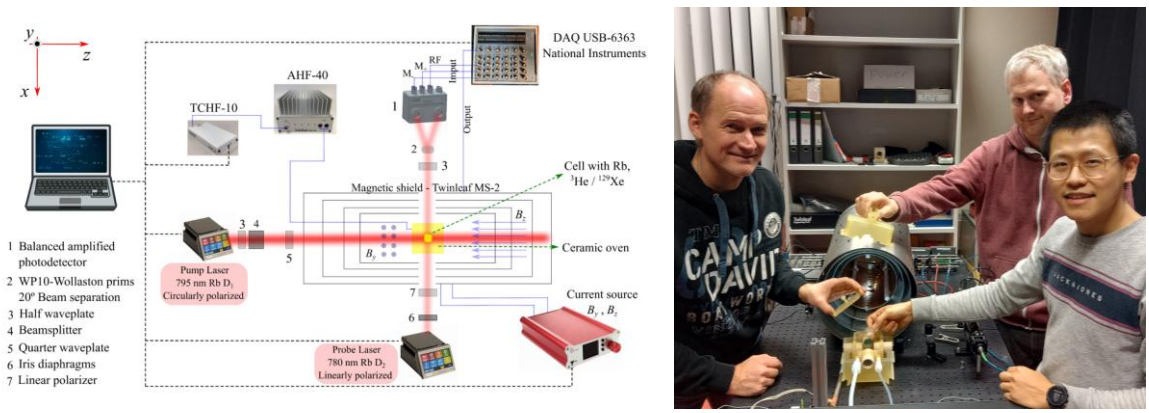

Abbildung 2: Schema des etablierten „pump-probe“ Aufbaus mit gekreuzten Laserstrahlen zur Detektion der Edelgas-Kernspinpräzession und den dazu wichtigsten Komponenten (links); nicht gezeigt ist der Hochleistungspumplaser. Rechts: Foto des geöffneten Aufbaus mit magnetischem Schirm (mehrlagiger Zylinder), doppelwandigem Ofen und einer Gaszelle vom Verbundpartner der LUH. Beteiligte PTB-Mitarbeiter (v.l.n.r.) W. Kilian, J. Voigt und T. Liu (2023 verstorben).

verwendet werden. In Abb. 2 ist das Schema des Messaufbaus, sowie ein Foto vom Laboraufbau gezeigt, an dem alle weiteren Messungen (bis auf A3.2a) durchgeführt wurden.

Arbeitsschritt A3.1a: Exploration des Transfers von Gaszellen mit polarisiertem ^{129}Xe in die Laborschirmung oder der alternativen in-situ Polarisierung im Schirm

Aufgrund des angedachten Konzeptes des Messaufbaus, war es klar, dass lediglich die in-situ Polarisierung für den Tischaufbau in Frage kam. Aus diesem Grunde wurde der Aufbau mit integriertem Ofen und dem Hochleistungspumplaser realisiert.

Arbeitsschritt A3.1b: Detektion der ^{129}Xe Spinpräzession mittels kompakter OPMs

Wie beschrieben, wurde von dem Konzept der Detektion der Präzession der Edelgaskernspins mittels externer OPM-Sensoren Abstand genommen und stattdessen die Detektion über die Polarisationsdrehung eines linear polarisierten Probe-Lasers an den in der Gas Zelle befindlichen Alkalimetallatome realisiert. Hierfür wurden zunächst umfangreiche Kalibrierungsmessungen der Sensitivität dieser Messmethode durchgeführt, wie u.a. in Abb. 3 gezeigt. Hieraus lässt sich, bei einer Messung der Kernspinpräzession, der gemessene Polarisationsdrehwinkel in die von den Alkalimetallatomen gesehene Kernspinmagnetisierung der Edelgasatome umrechnen und somit, bei bekannter Edelgasteilchendichte, auf die Kernspinpolarisation schließen.

Beispielhaft ist in Abb. 4 eine Messung an einer Gaszelle vom Projektpartner der LUH mit etwa 85 mbar an ~80% angereichertem ^{129}Xe gezeigt. Aus der Fermi-Kontakt-Wechselwirkung vermittelten Wechselwirkung zwischen Rubidium und ^{129}Xe lässt sich aus der gemessenen Startamplitude von 382 nT eine anfängliche ^{129}Xe Polarisation von etwa 13% abschätzen. Obgleich diese Messungen nicht auf eine Maximierung der Polarisation ausgelegt waren, konnte damit die Erreichung des **Meilensteins M-II aus AP1 auch an der PTB** annähernd **nachgewiesen werden**.

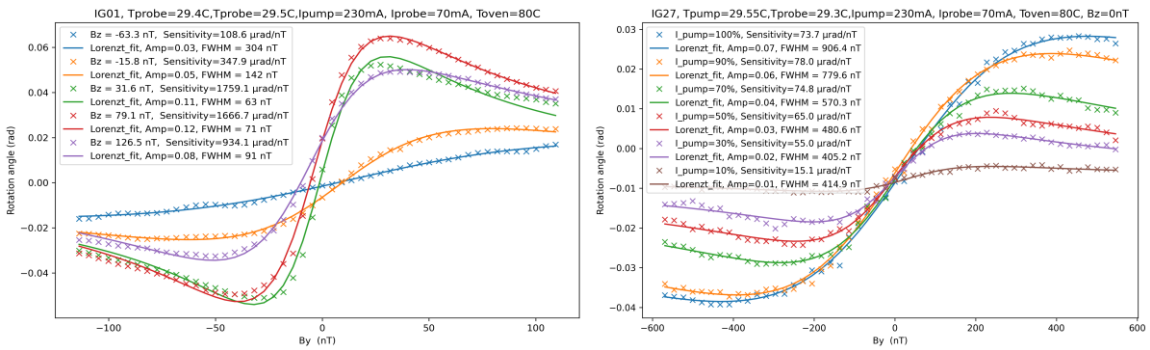

Abbildung 3: Sensitivitätsmessungen der Drehung der Achse des linear polarisierten Probenstrahls beim Durchgang durch Gaszellen (IG01 & IG27) vom Projektpartner der LUH mittels Variation eines zum Haltefeldes B_z (|| z-Achse) senkrechten Magnetfeldes B_y, in Abhängigkeit der Feldstärke B_z (links) oder der Laserleistung des Pumpstrahls (rechts).

Arbeitsschritt A3.1c: Realisierung langer Spinkohärenzzeiten im Laborschirm

Nach dem tragischen Unfalltot des anfänglich auf dem Projekt eingestellten Mitarbeiters, war es dem neuen Mitarbeiter nach einer sehr intensiven Einarbeitungszeit möglich, an die Arbeiten des Vorgängers anzuknüpfen.

Generell wurden für den Nachweis der langen Spinkohärenzzeiten in den weiteren Arbeiten eine kommerzielle Gaszelle mit Rubidium-Kalium-^{3}He Gasmischung verwendet, da aus früheren Arbeiten und den jüngst gezeigten Ergebnissen in Klinger et al. [1] ersichtlich war, dass mit ^{3}He lange Spinkohärenzzeiten leichter zu erzielen sind. In vielen Optimierungsschritten wurde versucht mittels Applikation von externen Gradientenfeldern eine Steigerung der Kohärenzzeiten zu erzielen. Letztlich hatte sich gezeigt, dass der verwendete Thermosensor zur Stabilisierung der Ofentemperatur starke Feldgradienten erzeugt. Dadurch wurden die Spinrelaxationszeiten stark verkürzt, wenn dieser zu nahe an der Gaszelle platziert war. Als zweiter wichtiger Faktor zur Erzielung langer Kohärenzzeiten wurde die Zelltemperatur identifiziert. Für das Polarisieren der ^{3}He Kernspins mittels SEOP war bekannt, dass bei Verwendung der sogenannten „hybrid“-Zellen, welche beide Alkalimetalle Rubidium und Kalium enthalten, eine Maximierung der Spinpolarisation bei hohe Zelltemperatur im Bereich von 190 °C erreicht wird. Es zeigte sich aber, dass für die Maximierung langer Kohärenzzeiten nach dem Abschalten des Hochleistungs-pumplasers diese hohen Zelltemperaturen nachteilig sind und zu deutlich tieferen Temperaturen um die 120 °C gegangen werden musste. Noch niedrigere Zelltemperaturen hätten eventuell zu noch längere Kohärenzzeiten geführt, jedoch die Modulationsänderung des Detektionssignals vom Probe-Laser aufgrund zu niedriger Alkalimetall-Teilchendichten bei der Messung der ^{3}He-Spinpräzession deutlich unterhalb des Rauschniveaus gebracht. Darüber hinaus ist zu erwähnen, dass alle hier gezeigten Messungen mittels kontinuierlicher „pump-probe“-Messung durchgeführt wurden. Würde die Kohärenzzeit nur durch zwei kurze Messungen jeweils am Anfang und nach sehr langer Wartezeit abgeschätzt werden, wie in Klinger et al. [1] gezeigt, wo bis zu 10 Stunden Kohärenzzeiten gemessen wurden, so sollten sich die Kohärenzzeiten auch in dem hier verwendeten Aufbau nochmals verlängern lassen, da dann die Kernspins ohne Wechselwirkung „in the dark“ präzedieren und nicht durch die die kontinuierliche Messung beeinflusst werden.

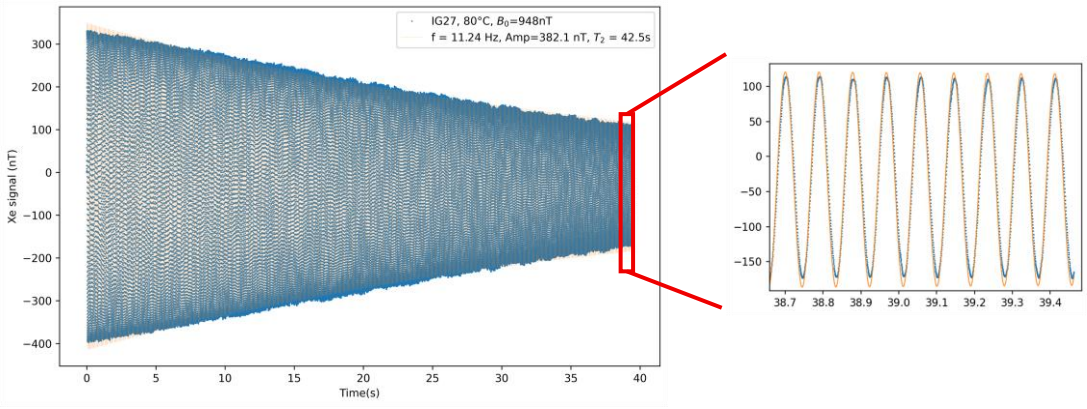

Abbildung 4: Optische Detektion der Kernspinpräzession von ^{129}Xe nach einer 90° Anregung an einer der Gaszellen vom Projektpartner der LUH. Blau sind die aus der Messung erhaltenen Werte und orange eine Anpassungskurve an eine Sinusfunktion mit exponentiellem Abfall mit den Ergebnissen der Kurvenanpassung in der Legende.

In diesen Messreihen konnten transversale Relaxationszeiten von bis zu sechs Stunden erzielt werden (Abb. 5), wobei reproduzierbar Zeiten im Bereich von 2500 s bis 3500 s erreicht wurden. Leider konnte nicht abschließend die experimentelle Ursache gefunden werden, weshalb nur für wenige Messungen sehr lange T_2^* Zeiten weit oberhalb von einer Stunde erzielt wurden.

Insgesamt wurde der **Meilenstein M-V vollumfänglich erreicht**.

AP 3.2: Aktives kohärentes Treiben der ^{129}Xe Spins

Ziel der Aufgabe: Aktive kohärente Spinmanipulation im Stundenbereich im Laborschirm

Für die Messungen im magnetisch geschirmten Raum BMSR-2.1 mussten die Messzellen ex-sito am bestehenden ^{129}Xe Polarisator mit hyperpolarisiertem ^{129}Xe Gas befüllt und mittels einer Transportspule in den BMSR-2.1 gebracht werden. Für die Optimierung des Polarisationsgrades beim Betrieb des ^{129}Xe Polarisators wurde ein Niederfeld-NMR-System angeschafft (Pos. 1 der Geräteliste). Hochreines Rubidium wurde beschafft und unter Verwendung der vorhandenen Handschuhbox in die optische Pumpzelle des ^{129}Xe Polarisator verfüllt. Die aus Projektmitteln bezogene Gasflasche mit angereichertem ^{129}Xe Gas wurde ebenfalls an den ^{129}Xe Polarisator angeschlossen, wodurch die hoch sensitiven Messungen im BMSR-2.1 möglich wurden.

Arbeitsschritt A3.2a: Ausdehnung der aktiven Spinmanipulation im BMSR-2.1

Für diese Messungen wurden zwei Verfahren genutzt, um ohne aktive Rückkopplung vom ^{129}Xe Spinsystem eine kohärente Manipulation über den Stundenbereich hinaus zu erzielen. Für beide Verfahren war es essenziell, dass das Magnetfeld des durch Spulen erzeugten Haltefeldes im BMSR-2.1 aktiv, aber unabhängig von der ^{129}Xe Messung, stabilisiert wurde. Zuerst konnte gezeigt werden, dass mit Hilfe dieser Feldstabilisierung, das in der Antragsstellung gezeigte

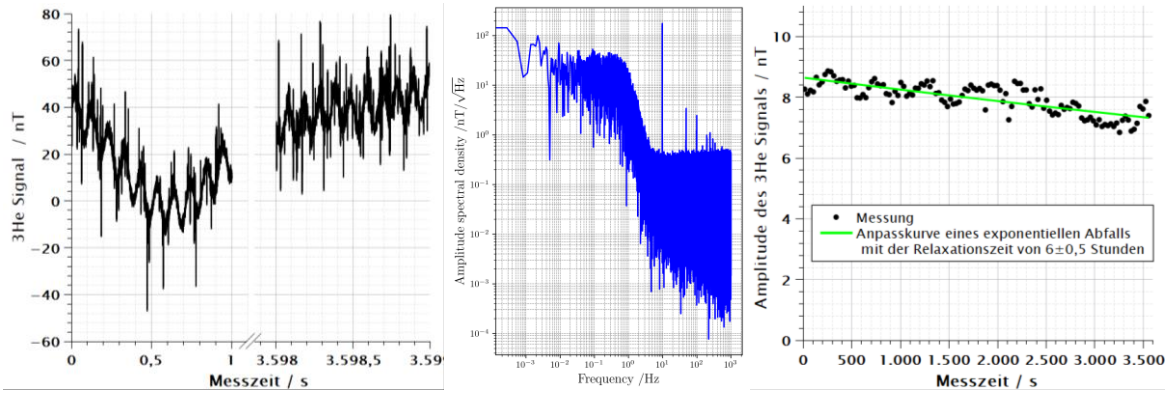

Abbildung 5: Optische Messung an Kalium einer freien Spinpräzession von ^{3}He über 3600 s. Links: Zeitsignal der ersten und letzten Sekunde einer einstündigen Messung. Mitte: Amplitudendichtespektrum der gesamten einstündigen Messung. Als stärkstes Signal bei etwa 10 Hz ist der schmale Peak der Spinpräzession zu sehen. Rechts: Zeitverlauf des Amplitudenzerfalls mit der exponentiell abfallenden Anpassungskurve mit $T_2^* = 6 \pm 0{,}5$ h.

kontinuierliche, kohärente Treiben einer Einzigen Rabi-Oszillation vom Minutenbereich in den Stundenbereich verlängert werden konnte (Abb. 6 links).

Im Rahmen dieser Messungen wurde erkannt, dass das kontinuierliche Treiben der Kernmagnetisierung um jeweils eine Rabi-Periode eine alternative Messmethode zur sehr genauen Bestimmung des Hintergrundfeldes eröffnet, insbesondere unter Verwendung von hyperpolarisierten Medien bei sehr niedrigen Magnetfeldern. Hierzu wurde erfolgreich ein Patent eingereicht. Im Rahmen des Projektes wurden hierzu auch umfassende theoretische Berechnungen durchgeführt und in einem Manuskript zusammengefasst. Aufgrund des tragischen Unfalltodes des Projektmitarbeiters sind diese Arbeiten dann aber zum Stillstand gekommen, weshalb es bisher nicht möglich war, dieses Manuskript zur Veröffentlichung zu bringen.

In einem anderen Verfahren wurde durch zyklisch wiederholte Spinanregung gezeigt, dass bei dem sehr stabilen Haltefeld im BMSR-2.1 es möglich ist, über mehr als zwei Stunden hinweg das ^{129}Xe Spinsystem wiederholt phasenstarr anzuregen (Abb. 6 rechts). Hier konnte die Gesamtmagnetisierung jeweils nach der Zeit von 360 s, in der die Spins frei präzedierten, mit exakt der Phase weiter getrieben werden, mit der der vorangegangen Puls geendet hatte.

Beide Verfahren sind ein Nachweis dafür, dass im Edelgas-Spinensemble über den Stundenbereich hinweg kohärente Zustände existieren und bei ausreichend stabilem Haltefeld auch über diesen Zeitbereich hinweg kohärent adressiert werden können.

Arbeitsschritt A3.2b: Überführung der aktiven Spinmanipulation auf den Laborschirm

Nach der Realisierung des Laboraufbaus (Abschnitt 3.1a) und der optischen Detektion der Edelgas-Kernspinpräzession (Abschnitt 3.1b) konnte bereits frühzeitig die kohärente

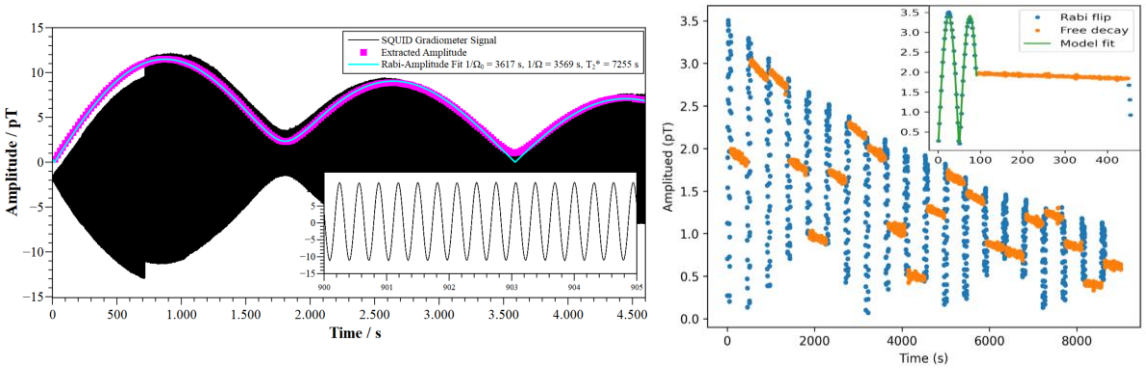

Abbildung 6: Messungen der ^{129}Xe Spinpräzession mittels SQUIDs im BMSR-2.1. Links: Bei einem Hintergrundfeld von B_0 = 271,226 nT wurde über die Dauer von 4600 s stetig ein sehr schwaches B_1-Anregungsfeld mit 47.2 pT eingestrahlt, so dass die ^{129}Xe Kernmagnetisierung über diese Zeit effektiv um ca. 460° gedreht wurde. Schwarz ist das gemessene SQUID Signal gezeigt, in rosa die daraus abgeleitete Amplitude und in hellblau eine Anpassungskurve an ein theoretisches Modell. Rechts: Amplitude der ^{129}Xe Spinpräzession bei einer wiederholten Anregung der Kernspins um jeweils 323° innerhalb von 90 s und jeweils dazwischen der freien Spinpräzession während einer Zeit von 360 s.

Spinmanipulation über die zum damaligen Stand erzielte Kohärenzzeit im Minutenbereich realisiert werden. Beispielhaft ist hier in Abb. 7 eine Messung mit dem kohärenten Treiben eines Rabi-Zyklus über 20 s hinweg gezeigt. Insgesamt wurden Messungen mit bis zu 60 s Rabi-Zykluszeiten realisiert.

Mit diesen Messungen aus dem AP 3.2 wurde der Meilenstein VII vollumfänglich erreicht.

2.1.2. AP 4: Demonstrator und kohärente Speicherung im Edelgas

Ziel: Entwicklung eines Demonstrators zum Nachweis von Machbarkeit und Potential der Raumtemperatur Quantenspeicher und proof-of-concept der Methode des kohärenten Spinaustausch zwischen Rubidium und Edelgas.

AP 4.1: Mobiler Demonstrator

Ziel der Aufgabe: Demonstration von Erzeugung und Transport von Superpositionszuständen in einer miniaturisierten Gaszelle in einem portablen Aufbau.

Arbeitsschritt A4.1.a: Entwicklung eines mobilen Aufbaus aus miniaturisierter Gaszelle und magnetischer Abschirmung.

Die im AP3.1 entwickelte Apparatur war bereits so konzeptioniert, dass ein Transport des magnetischen Schirms unter Verwendung einer Batterie für die Generierung des Haltefeldes möglich sein sollte, so dass nach der optischen Polarisation mittels SEOP und der Spinanregung die Gaszelle im magnetischen Schirm transportiert werden könnte.

In Vorexperimenten, bei denen der magnetische Schirm ohne eine Gas Zelle auf einem mobilen Aufbau zur Vermessung sowohl der externen wie auch internen Magnetfelder montiert wurde (Abb. 8). Dieser Aufbau wurde in einem Kastenwagen innerhalb von Berlin entlang einer Strecke

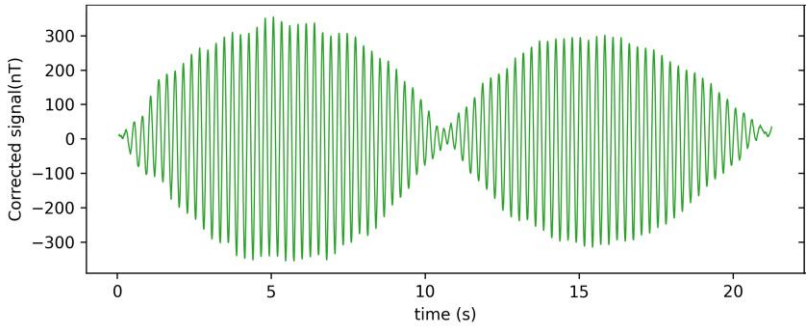

Abbildung 7: Optische Detektion des kohärenten Treibens der ^{129}Xe Kernspin-Magnetisierung im mobilen magnetischen Schirm bei einem Hintergrundfeld von B_0 = 316 nT über die Dauer von 20 s.

von 5 km innerhalb von 15 Minuten transportiert. Der Offset zwischen der Fluxgatemessung und der OMG-Werte lässt sich aus der fehlenden Offsetkalibrierung des Fluxgates bei dieser Messung erklären. Die starken Ausreißer der gemessenen Feldstärke in der Fluxgatemessung des Innenfeldes konnten nicht mit Störungen des Außenfeldes korreliert werden. Auch zeigte der OMG-Sensor ein deutlich geringeres Rauschen, als die Fluxgatemessungen (sehr gut zu Beginn der Messung zu sehen). Insgesamt zeigen diese Messungen, dass das innere Magnetfeld nur um wenige nT bei einem Gesamtfeld von etwa 3,3 µT driftete und kaum starke Sprünge gesehen wurden, obgleich der Schirm in einem KFZ transportiert wurde. Somit konnte gezeigt werden, dass das innere Haltefeld stabil genug für die Realisierung der geplanten Spinpräzessionsexperimente in einem bewegten Schirm ist.

Arbeitsschritt A4.1.b Durchführung von Transportexperimenten

Nach dem tragischen Unfalltod des im Teilvorhaben an der PTB angestellten Projektmitarbeiters wurde dieser mobile Aufbau beim Projektpartner an der LUH im Wesentlichen dupliziert und die Arbeiten zur Durchführung der Transportexperimente dort finalisiert. So konnte beim Projektpartner an der LUH der Nachweis der kohärenten Spinpräzession in einer bewegten Gaszelle nachgewiesen, also der **Meilenstein VII, vollumfänglich realisiert** werden.

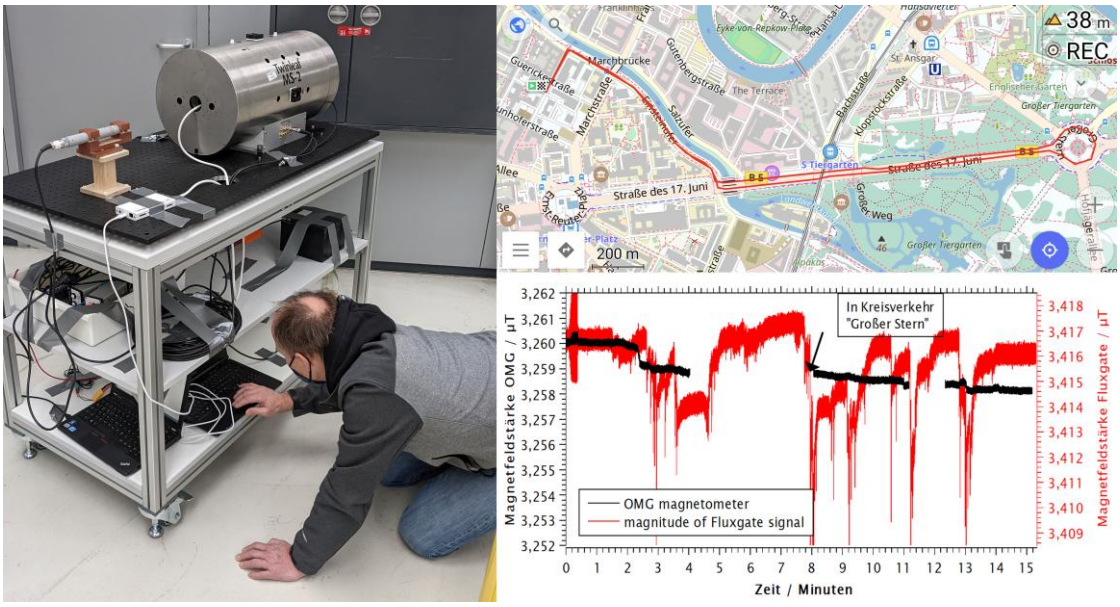

Abbildung 8: Erster Testaufbau (Bild links) zur Erkundung der Störungen des internen Magnetfeldes (Bild rechts unten) in einem mobilen magnetischen Schirm mit aktivierter interner Magnetfeldspule während des Transportes in einem Kastenwagen auf einer Strecke von 5 km Länge (Bild rechts oben). Sowohl das Außen- wie auch das Innenfeld wurde mit einem 3-Achsen Fluxgate Sensors gemessen. Das Innenfeld wurde zusätzlich mit einem kommerziellen optisch gepumpten Gradiometer (OMG) vermessen.

AP 4.2: Spinaustausch zwischen Rubidium und Edelgas

Ziel der Aufgabe: Demonstration des kontrollierten und kohärenten Spinaustausch zwischen Rubidium und Edelgas.

Arbeitsschritt A4.2.b Nachweis des kohärenten Transfers

Arbeiten hierzu wurden sowohl beim Projektpartner an der LUH, als auch in diesem Teilvorhaben an der PTB durchgeführt. Ein eindeutiger Nachweis zur Erlangung der starken Kopplung zwischen Alkalimetallatomen und Edelgas-Kernspins konnte an dem mobilen Tischaufbau bisher nicht erzielt werden.

AP 4.3: Transfer eines optischen Signals ins Edelgas

Ziel der Aufgabe: Speicherung eines optischen Signals in Rb und der anschließend kontrollierte kohärente Spinaustausch mit dem Edelgas.

Arbeitsschritt A4.3.a: Zusammenführung der experimentellen Aufbauten zum optischen Speicher und Spinaustausch.

Der finale Nachweis des Grundprinzips eines Quantentoken auf Basis von Alkalimetall-Edelgas-Zellen war von Anbeginn an ein sehr ambitioniertes Ziel innerhalb eines Dreijahresprojektes und eher im Zeitraum einer Anschlussförderung angedacht gewesen.

2.2. Wichtigste Positionen des zahlenmäßigen Nachweises

Die beantragten Mittel wurden für die Stelle der involvierten Mitarbeiter (T. Liu und A. Medina-Herrera), für Investitionsgüter und Verbrauchsmaterial (wie in den APs beschrieben) und für erforderliche Dienstreisen entsprechend der Bewilligung eingesetzt.

2.3. Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Projektarbeiten

Der rasante Fortschritt von Quantencomputern rückt das Thema des Quantenschlüssel-austausches (engl. Quantum Key Distribution, QKD) immer weiter in den Fokus. Um derartige Schlüssel, ähnlich einer Scheckkarte transportabel zu realisieren bedarf es sogenannter Quantentoken. Diese sollen in Zukunft eine physikalische Fälschungssicherheit u.a. für die Authentifizierung ermöglichen, so dass selbst Quantencomputer nicht unbemerkt diesen Token kopieren/entschlüsseln können. Die Grand Challange der Quantenkommunikation, in deren Rahmen das Verbundprojekt Q-ToRX durchgeführt wird, hatte dieses Bedürfnis in den Fokus genommen, um dem Thema sowohl in der Öffentlichkeit als auch in der Forschung Gewicht zu verleihen.

Der spezifische und im Rahmen der Challange einzigartige Ansatz des Verbundprojektes Q-ToRX, einen Quantentoken, ohne kryogene Techniken und mit einer photonischen Schnittstelle zu

bewerkstelligen, hat gegenüber den anderen Projekten Vorteile, die ein transportabler Quantentoken innehaben muss und stellt somit die grundlegende Rechtfertigung für diese Arbeiten dar.

Die, im Rahmen dieses Teilvorhabens geleisteten Arbeiten, haben dazu beigetragen, eine fundierte Basis für weiterführende Arbeiten in Richtung eines Alkali-Edelgas-Quantentoken zu legen. So konnte gezeigt werden, dass sich prinzipiell die Kohärenz der Kernspins im Edelgasensemble nicht nur über mehrere Stunden hinweg messen, sondern auch kohärent beeinflussen lässt, welches eine fundamentale Eigenschaft für einen Quantentoken darstellt. Die Überführung einer derartigen Spinmanipulation in einen potentiell mobilen Aufbau konnte ebenfalls gezeigt werden, so dass nach einer weiteren Optimierung der Kohärenzzeiten und der Implementierung der starken Kopplung, der Realisierung eines Alkali-Edelgas-Quantentoken nichts mehr im Wege stehen dürfte.

2.4. Voraussichtlicher Nutzen, Verwertbarkeit der Ergebnisse und weitere Planungen

Die Zusammenarbeit zwischen den Verbundpartnern hat sich vielfach gegenseitig befruchtet und so auch über das Projekt hinaus zu Mehrwert geführt. So hat z.B. der Transfer des „pump-probe“ Messverfahrens zum Verbundpartner an die LUH dort geholfen Weiterentwicklungen im Bereich der optisch gepumpten Magnetometer zu forcieren.

An der PTB ist geplant, die im Projekt gewonnen Erkenntnisse zur optischen Detektion der Kernspinpräzession über den Elektronenspin anderer Atome, in einem Projekt zur hochgenauen Magnetfeldbestimmung mittels hyperpolarisiertem ^{3}He anzuwenden. Hierzu wird die Hyperpolarisation nicht über den Umweg von Alkalimetallatome, sondern direkt über metastabile ^{3}He Atome erzielt, bei denen ein Elektron mittels Gasentladung angeregt wurde (engl. Metastability Exchange Optical Pumping: MEOP). In diesem Zustand lässt sich das in diesem Projekt etablierte „pump-probe“ Verfahren adaptieren, wie jüngst in [3] gezeigt wurde.

2.5. Während der Durchführung bekannt gewordene Fortschritte auf dem Gebiet bei anderen Stellen

Im Jahr 2023 [1] und 2024 [2] wurden zwei Veröffentlichungen mit Beteiligung der Gruppe um D. Budker veröffentlicht, in denen u.a. Spinrelaxationszeiten für ^{3}He von 10 Stunden in einem Tischaufbau gezeigt wurden. Ebenfalls wurden in diesen Arbeiten Methoden zur Erzielung der starken Kopplung (dort auch „Selbstkompensation“ genannt) zwischen Alkali-Elektronenspins und Edelgas-Kernspins aufgezeigt. Für die Übertragung dieser Erkenntnisse auf den bei der PTB vorhandenen Aufbau hat nach dem tragischen Unfalltod des Mitarbeiters an der PTB die Ressourcen gefehlt.

Die in [3] beschriebenen Arbeiten erlaben es, die aus diesem Projekt gewonnenen Erkenntnisse in einem anderen Projekt an der PTB weiter anzuwenden.

Referenzen:

[1] E. Klinger, et al.; Optimization of Nuclear Polarization in an Alkali-Noble Gas Comagnetometer; *Phys. Rev. Applied*, **19**, 044092 (2023)

[2] M. Padniuk, et al., Universal determination of comagnetometer response to spin couplings, *Phys. Rev. Research*, **6**, 013339 (2024)

[3] Y. Wang, et al., A polarized ^{3}He system based on metastability-exchange optical pumping, *Sci. China - Phys. Mech. Astron.*, **67**, 273011(2024)

2.6. Erfolgte und geplante Veröffentlichungen der Ergebnisse

Geplante Fachartikel

- Nadezhda Kukharchyk, et al, “Underlying physics and practical implementation of quantum tokens”
- Tianhao Liu†, Jens Voigt and Wolfgang Kilian; „Absolute magnetometry using driven Rabi nutation of hyperpolarized nuclear spins”

Patente:

W. Kilian, J. Voigt, S. Knappe-Grüneberg, A. Schnabel, F. Seifert ;„Verfahren zum Bestimmen der magnetischen Flussdichte und Magnetometer“; Patent, No. DE 10 2023 101 156 B3.

Konferenzbeiträge:

- T. Liu, J. Voigt, A. Schnabel, S. Knappe-Grüneberg, W. Kilian; „En route to hour long spin manipulation established via constantly driven Rabi nutation measurements“; Int. Conf. Quantum Sensors and Tests of New Physics, Hannover, Poster (2022).
- T. Liu, N.V. Ewald, J. Voigt, L. Esguerra, D. Uhland, I. Gerhardt, J. Wolters, and W. Kilian; „Realisation of a Rb-Xe comagnetometer for noble-gas spin quantum memories“, Hyp23 – International Hyperpolarization Conference, Leipzig, Presentation (2023).
- D. Uhland , L. Esguerra , N.V. Ewald , T. Liu , W.Kilian , J. Voigt, J. Wolters, and I. Gerhardt; „Quantum memories based on hot atomic vapors“; University of Glasgow, Talk (2023)
- D. Uhland , L. Esguerra , N.V. Ewald , T. Liu , W.Kilian , J. Voigt, J. Wolters, and I. Gerhardt; „Towards long coherent times in alkali-nobel gas mixtures for quantum memories“; University College London, Talk (2023)
- N.V. Ewald, T. Liu, A. Erl, L. Esguerra, W. Kilian, J. Voigt, D. Uhland, I. Gerhardt, and J. Wolters; „Towards Quantum Memories in Noble-Gas Nuclear Spins with Alkali Metal Vapour as Optical Interface“; DPG Spring Meeting Freiburg, Poster (2024).
- D. Uhland , L. Esguerra , N.V. Ewald , T. Liu , W.Kilian , J. Voigt, J. Wolters, and I. Gerhardt; „Rb-Xe Magnetometer - Quantum Memory Based on Rare Gases“; DPG Spring meeting Freiburg, Talk (2024)
- A. Medina Herrera, D. Uhland, A. Erl, N.V. Ewald, I. Gerhardt, J. Wolters, W. Kilian and J. Voigt; „Noble gas hyperpolarization for quantum memories with SEOP“; Hot Vapor Workshop, Stuttgart, Poster (2024).

- A. Erl, N.V. Ewald, A. Medina Herrera, D. Uhland, P. Gölz, T.Liu, L. Esguerra, W. Kilian, J. Voigt, I. Gerhardt, and J. Wolters; „Towards a spin-exchange collision-based optical quantum memory in noble-gas spins“; Hot Vapor Workshop, Stuttgart, Poster (2024)
- D. Uhland, N.V. Ewald, A. Medina Herrera, A. Erl, J. Voigt, W. Kilian, J. Wolters, and I. Gerhardt; „Coupling between alkali & rare gases for vapor-based quantum memories“; Hot Vapor Workshop, Stuttgart, Poster (2024)
- A. Erl, N.V. Ewald, P. Gölz, A. Medina Herrera, D. Uhland, W. Kilian, J. Voigt, I. Gerhardt and J. Wolters; „Towards a spin-exchange collision-based optical quantum memory in noble-gas spins“; DPG Spring meeting, Bonn, Poster (2025)
- D. Uhland, N.V. Ewald, A. Erl, A. Medina Herrera, W. Kilian, J. Voigt, J. Wolters, and I. Gerhardt; „Coupling of alkali vapors and rare gases for quantum memories“; DPG Spring meeting, Bonn, Talk (2025)