arXiv:2303.05613v1 [physics.atom-ph] 9 Mar 2023

光学原子钟中毫赫兹级协同兰姆位移的观测

RossB. Hutson,* WilliamR.Milner, Lingfeng Yan, and Jun Ye†*JILA*、美国国家标准与技术研究院和科罗拉多大学，*440 UCB*，博尔德，科罗拉多州 *80309*，美国；以及科罗拉多大学物理系，*390 UCB*，博尔德，科罗拉多州 *80309*，美国

Christian Sanner科罗拉多州立大学物理系，柯林斯堡，科罗拉多州 *80523*，美国

(日期：2023年3月13日)

我们报告了在多激发极限下对原子立方阵列中共振电偶极-偶极相互作用的直接观测。研究表明，这些相互作用由单原子与共享电磁真空的耦合介导；对锶-87中毫赫兹宽的光学钟跃迁进行光谱探测时，它们会产生依赖空间位置的协同兰姆位移。我们还表明，对于最先进的光学原子钟，系综平均位移可被抑制到低于已评估系统不确定度的水平。此外，我们证明，与非共振构型相比，在接近布拉格角处激发原子偶极矩，可使这些效应增强近一个数量级。鉴于频率测量具有非凡的精度，且建模响应具有很高的准确度，我们的研究表明，此类原子钟是研究由传播光子介导的长程相互作用自旋量子多体物理的新型平台。

引言—量子多体物理的研究自然源于量子传感领域。对于任何量子传感器，可提取的有关某个感兴趣计量学量的信息量，根本上受可用量子比特数量的限制 [1, 2]。因此，普遍而言，人们有动力构建能够操控并表征尺寸不断增大的量子系统的器件 [3–5]。由于系统内部或系统与环境之间的相互作用通常会随系统尺寸增大而增强，因此面临的主要挑战有两个：如何控制相互作用以减小系统误差，和/或如何利用相互作用产生有用的纠缠?

在原子钟领域，通过将原子俘获在三维光学晶格中，并确保每个晶格位点至多有一个原子 [6–9]，人们在探测更多原子的同时避免接触相互作用导致的系统误差方面取得了显著进展。尽管如此，表现为共振偶极-偶极相互作用的长程相互作用仍然难以通过实验探测 [10–12]。在本文中，我们介绍一种实验装置，可对这类相互作用进行精确测量和控制，并展示我们对其如何影响当前及未来各代光学原子钟的认识；或者反过来说，原子钟如何能够帮助我们深入理解光与物质的相互作用本质。除了为研究有效的光子-光子相互作用提供一个新平台 [13, 14], 外，这种经过工程化设计的窄带量子发射体阵列，还为基于受控集体原子-光子动力学的新型光子器件开辟了道路。

共振偶极-偶极相互作用。——由位于位置 a、以角频率 ω 振荡的点偶极子 $\mathbf{d_a} \propto e^{-\mathrm{i}\omega t}$ 产生的经典电场，在位置 b 处的表达式为 $\mathbf{E_a(b)} = k^3 e^{\mathrm{i}kr}\{[\mathbf{d_a} - \hat{}\mathbf{r}(\hat{}\mathbf{r}\cdot\mathbf{d_a})]/(kr) + [3\hat{}\mathbf{r}(\hat{}\mathbf{r}\cdot\mathbf{d_a}) - \mathbf{d_a}][1/(kr)^3 - \mathrm{i}/(kr)^2]\}/4\pi\epsilon_0$，其中 $\mathbf{r} = \mathbf{r_{ba}} = \mathbf{b} - \mathbf{a}$，$r = |\mathbf{r}|$，$\hat{}\mathbf{r} = \mathbf{r}/r$，$\epsilon_0$ 为真空介电常数，且 $k = \omega/c$，其中 c 为光速 [15]。

随后，位于$\mathbf{b}$ 处的第二个自由振荡偶极子 $\mathbf{d_b}$ 将根据相互作用项 $H_{\mathbf{ba}} = -\mathbf{d_b}\cdot\mathbf{E_a^*(b)}$ 动态演化；该项的实部和虚部分别导致初始激发的频移和阻尼。这些相互作用构成了经典线性光学的基础 [15–17]。

由不可区分的（类）自旋-$\frac{1}{2}$ 系统组成的系综，其内部基态和激发态分别标记为 $|g\rangle$ 和 $|e\rangle$，类似地，可以使用量子光学形式体系加以描述。在该体系中，约化密度矩阵$\hat{}\rho$ 随时间按照主方程 $\partial_t\hat{}\rho = \mathcal{L}_{\mathrm{free}}[\hat{}\rho] = \mathcal{L}_1[\hat{}\rho] + \mathcal{L}_2[\hat{}\rho]$ 演化，而描述集体电磁相互作用的李乌维尔超算符可写成林德布拉德形式 [18]

$$\mathcal{L}_2[\hat{\rho}] = -\mathrm{i}\sum_{\mathbf{a},\mathbf{b}} V_{\mathbf{ba}}\left(\hat{S}_{\mathbf{b}}^{\dagger}\hat{S}_{\mathbf{a}}\hat{\rho} - \hat{S}_{\mathbf{a}}\hat{\rho}\hat{S}_{\mathbf{b}}^{\dagger}\right) + \mathrm{H.c.} \qquad (1)$$

而一般的单自旋动力学由 $\mathcal{L}_1[\hat{}\rho]$支配。这里，$\hat{}S_{\mathbf{a}}^{\dagger} = \zeta_{\mathbf{a}}^{*}|e\rangle_{\mathbf{a}}\langle g|_{\mathbf{a}}$ 是位于$\mathbf{a}$处自旋的升算符，其中 $\zeta_{\mathbf{a}}$ 是满足 $|\zeta_{\mathbf{a}}|^2 = 1$的任意相位因子。经典相互作用项在旋波近似下给出有效哈密顿量 $H_{\mathbf{ba}} \leftrightarrow \hbar V_{\mathbf{ba}}\,\hat{}S^{\dagger}{}_{\mathbf{b}}\,\hat{}S_{\mathbf{a}}$；将偶极矩$\mathbf{d_a} \leftrightarrow \langle g|\,\hat{}\mathbf{d}\,|e\rangle\,\zeta_{\mathbf{a}}\,\hat{}S_{\mathbf{a}}^{\dagger} + \mathrm{H.c.}$量子化，并减去均匀自相互作用能（兰姆位移）$\mathrm{Re}(H_{\mathbf{aa}}) \leftrightarrow 0$后，其中 $\hbar$ 为约化普朗克常数。 $\mathcal{L}_2$ 的特征能量尺度由自发衰减率 $\Gamma = 2\,\mathrm{Im}(V_{\mathbf{aa}})$决定。

式1 早已被证实包含协同衰减的物理机制 [19]和协同兰姆位移 [20, 21], ，随后这些效应在各种各样的物理系统中得到观测 [22–39]。近期，人们开始研究有序原子阵列中的集体电磁相互作用，并由此提出了许多新颖的理论预测 [10, 13, 14, 40–43], 随后，最近的实验表明，方格晶格上的原子单层可以充当高效反射镜 [44]。一

一种新兴的范式认为，量子力学偶极子晶格的基本激发是具有可调控色散关系的硬核玻色子 [13, 14, 45]。我们强调，后一特性没有明确的经典对应，只在多激发极限下才相关 $\sum_{\mathbf{a}}\langle \hat{S}_{\mathbf{a}}^{\dagger}\hat{S}_{\mathbf{a}}\rangle > 1$，这使其有别于协同衰减和协同兰姆位移；后两者在经典极限下仍保持其特征行为。

直到最近，才有人在多重激发极限下观测到协同兰姆位移 [46]，尽管研究表明，由于未知的退相干机制在较长探测时间内显著影响动力学，观测到的位移会在原子跃迁完全饱和之前消失 $\Gamma t \gg 1$。三维光学晶格钟是研究协同电磁相互作用的天然平台，因为表征 $\mathcal{L}_{\text{free}}$ 的所有参数都经过系统表征，而且除 $\mathcal{L}_2$ 中的相互作用外，多粒子相互作用不会显著影响其演化。尽管存在由光学晶格光子拉曼散射引起的技术性退相位率 $\gamma \gg \Gamma$ [47]，，我们仍依靠原子钟卓越的精度，将拉姆齐条纹分辨率提高到超过 10^3 的一部分，以便在极限 $\Gamma t \ll 1$ 下，利用定义明确的激发分数 $\langle \hat{S}_{\mathbf{a}}^{\dagger}\hat{S}_{\mathbf{a}}\rangle \in [\cos^2(3\pi/8), \cos^2(\pi/8)]$ 测量协同兰姆位移。

实验装置——如参考文献 [48, 49] 中所述，并如图 1(a)所示，在周期时间为10 s的逐次实验中，将由 $N_{\text{tot}} \approx 9\times10^3$ 锶-87原子构成的单组分费米简并气体装载到立方光晶格的基带，并制备到 $|e\rangle = |5s5p\,{}^3P_0, F = 9/2, m_F = -9/2\rangle$ 电子态。通过反射回射的高斯激光束干涉形成光晶格，其晶格常数为 $a_{\text{lat}} \approx$407 nm，光束半径为 60 μm，峰值深度为 $k_B \times 12$ μK；沿$\hat{\mathbf{x}}$-、$\hat{\mathbf{y}}$-和$\hat{\mathbf{z}}$-轴的深度均如此，其中 k_B 为玻尔兹曼常数。在这些深度下，相邻位点之间的隧穿速率约为10 mHz。以位置$\mathbf{a} = a_{\text{lat}}(x\hat{\mathbf{x}} + y\hat{\mathbf{y}} + z\hat{\mathbf{z}})$为晶格位点编号，其中 $\{x, y, z\}$为整数；原位断层成像 [49] 可重建各个位点的原子填充率 $n_{\mathbf{a}}$，揭示出费米-狄拉克分布，其拟合峰值密度为 $n_{\mathbf{0}} \approx 0.82$，均方根半径为$(w_{\hat{\mathbf{x}}}, w_{\hat{\mathbf{y}}}, w_{\hat{\mathbf{z}}}) \approx (3.9\,\mu$m $3.8\,\mu$m $2.1\,\mu$m)，平均单原子熵为 $1.9k_B$ [50]。

随后，在 $\nu = \omega/2\pi \approx$ 429THz 处对 $5s^2\,{}^1S_0 \leftrightarrow 5s5p\,{}^3P_0$ “钟”跃迁进行钟谱学，所用激光的相位锁定至低温硅光学腔 [9, 51]。探测光沿波矢 $\mathbf{k}_0 = k(\hat{\mathbf{x}}\sin\psi + \hat{\mathbf{y}}\cos\psi)$传播，其中 ψ为可变入射角，因此选择局域坐标系 $\zeta_{\mathbf{a}} = e^{-\mathrm{i}(\omega t - \mathbf{k}_0\cdot\mathbf{a})}$。利用拉比频率为 $2\pi\times 50$ Hz、脉冲面积可变的共振脉冲 θ 和相移 ϕ，对原子态 $\hat{\rho} \to \mathcal{R}(\theta,\phi)\hat{\rho} = e^{\mathcal{L}_\phi\theta}\hat{\rho}$进行全局旋转，其中 $\mathcal{L}_\phi\hat{\rho} = (-\mathrm{i}/2)\sum_{\mathbf{a}}(\hat{S}_{\mathbf{a}}^{\dagger}e^{-\mathrm{i}\phi} + \hat{S}_{\mathbf{a}}e^{\mathrm{i}\phi})\hat{\rho} + \text{H.c.}$。均匀的 290 μT 磁场

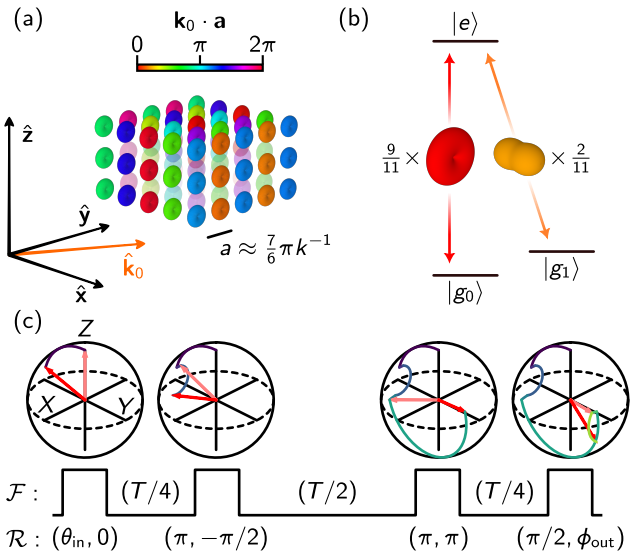


图 1. 实验装置。(a) 立方晶格上的原子偶极矩，按其位置$\mathbf{a}$编址，并以具有空间依赖相位$\mathbf{k}_0\cdot\mathbf{a}$的方式激发。接近布拉格条件$\mathbf{k}_0\cdot a\hat{\mathbf{y}} = \pi$，会沿$\hat{\mathbf{y}}$轴形成长程相位有序。(b) 本研究中使用的两种经光谱分辨的跃迁对应的远场单原子辐射图样 $\mathcal{V}_q(\hat{\mathbf{r}}_{\mathbf{ba}})$，定义见正文。(c) 共振激光脉冲 $\mathcal{R}(\theta,\phi)$使原子态绕$(X_{\mathbf{a}}\cos\phi + Y_{\mathbf{a}}\sin\phi)$轴旋转角度 θ。选择不同的脉冲和自由演化周期 $\mathcal{F}(t)$，使输出态投影 $\langle\hat{Z}_{\mathbf{a}}\mathcal{U}\rangle_0$ 仅与 $\mathcal{L}_{\text{free}}$中随$\cos\theta_{\text{in}}$呈反对称变化的项成正比，即由共振偶极—偶极相互作用导致的项。

沿 $\hat{\mathbf{x}}$ 轴施加，在两个可用基态之间产生 540 Hz 的差分塞曼分裂，即 $|g_q\rangle = |5s^2\,{}^1S_0, F = 9/2, m_F = -9/2 + q\rangle$，对应 $q \in \{0, 1\}$，因此它们各自与激发态的共振在光谱上可分辨。如图 1(b) 所示，每个子空间都具有独特的远场（$kr_{\mathbf{ba}} \gg 1$）辐射图样$\mathcal{V}_q(\hat{\mathbf{r}}_{\mathbf{ba}}) = (kr_{\mathbf{ba}})|V_{\mathbf{ba}}| = 3\Gamma_{\text{nat.}}B_q(1 - |\hat{\mathbf{r}}_{\mathbf{ba}}\cdot\hat{\mathbf{e}}_q|^2)/4$，这是由于原子偶极矩 $\langle g_q|\hat{\mathbf{d}}|e\rangle = \sqrt{3\pi\epsilon_0 B_q\Gamma_{\text{nat.}}/k^3}\hat{\mathbf{e}}_q$的~~大小和方向不同~~所致，其中 $B_0 = 9/11$ $(B_1 = 2/11)$ 和 $\hat{\mathbf{e}}_0 = \hat{\mathbf{x}}$ $(\hat{\mathbf{e}}_1 = [\hat{\mathbf{y}} - \mathrm{i}\hat{\mathbf{z}}]/\sqrt{2})$ 分别为跃迁 $q = 0$ $(q = 1)$ 的分支比和偶极取向 [12]，，而$\Gamma_{\text{nat.}} = 2\pi\times 1.35(3)$ mHz 为激发态的自然衰减率 [52]。

将由 $\mathcal{L}_{\text{free}}$ 产生的自由演化记为 $\mathcal{F}(t) = e^{\mathcal{L}_{\text{free}}t}$，则光谱序列可表示为

$$\begin{aligned}\mathcal{U} = &\mathcal{R}(\pi/2, \phi_{\text{out}})\mathcal{F}(T/4)\mathcal{R}(\pi,\pi)\mathcal{F}(T/2)\\ &\times\mathcal{R}(\pi,-\pi/2)\mathcal{F}(T/4)\mathcal{R}(\theta_{\text{in}},0)\end{aligned} \tag{2}$$

其中 θ_{in} 为可变的初始脉冲面积，$T = 2$ s 为自由演化总时长，ϕ_{out} 为可变的最终脉冲相位。图1(c) 描绘了原子态在整个 $\mathcal{U}$期间的时间演化，并以布洛赫球上的矢量分量 $X_{\mathbf{a}} = S_{\mathbf{a}}^{\dagger} + S_{\mathbf{a}}$、$Y_{\mathbf{a}} = -S_{\mathbf{a}}^{\dagger} - S_{\mathbf{a}}$表示，

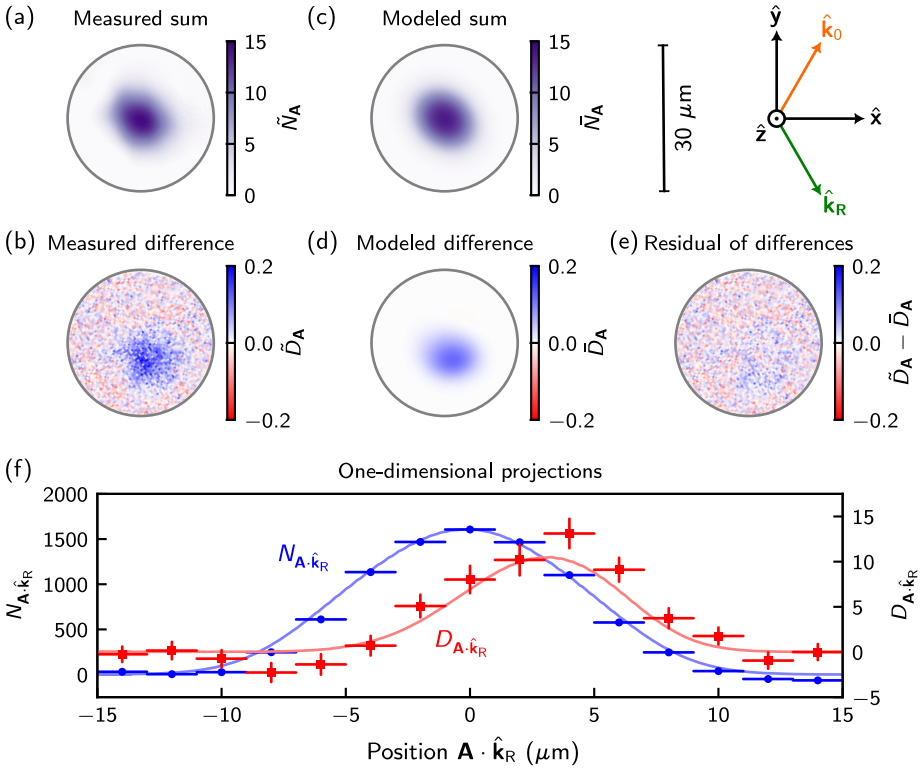


图 2. 在 $\psi = \psi_{\rm res} = 29.5(5)^\circ$、$\cos\theta_{\rm in} = \pm 1/\sqrt{2}$ 和 $q = 0$ 条件下成像协同兰姆位移。和信号 $N_{\mathbf{A}}$ (a) 与差分信号 $D_{\mathbf{A}}$ (b) 的测量空间分布 $\tilde{\ }$ $\tilde{\ }$ 存在差异，表明存在长程各向异性相互作用，其随 $\cos\theta_{\rm in}$ 呈反对称变化。由于辐射场沿 $\hat{\rm k}_{\rm R} = {\rm k}_0 - 2({\rm k}_0 \cdot \hat{\rm y})\hat{\rm y}$ 方向发生相长干涉，$\tilde{D}_{\mathbf{A}}$ 的最大值在空间上偏离 $\tilde{N}_{\mathbf{A}}$ 的最大值。目视检查可见，建模信号 $\bar{N}_{\mathbf{A}}$ (c) 和 $\bar{D}_{\mathbf{A}}$ (d) 与测量信号定性吻合。相减后的残差 $\tilde{D}_{\mathbf{A}} - \bar{D}_{\mathbf{A}}$ 如 (e) 所示。建模信号通过将 $\tilde{N}_{\mathbf{A}}$ 拟合至费米-狄拉克分布获得，且不包含其他自由参数。(f) 将图像 $I_{\mathbf{A}}$（见面板 (a-d)）投影至 $\rm k_R$，即可得到上述信号的一维投影 $I_{\mathbf{A}\cdot\hat{\rm k}_{\rm R}}$，即 $I_{\mathbf{A}\cdot\hat{\rm k}_{\rm R}} = \sum_{\mathbf{A}'\parallel(\mathbf{A}\cdot\hat{\rm k}{\rm R})\hat{\rm k}{\rm R}} I_{\mathbf{A}'}$。数据点表示测量信号，其中 $\tilde{N}_{\mathbf{A}}$ 用蓝色圆圈表示，$\tilde{D}_{\mathbf{A}}$ 用红色方块表示。垂直误差棒表示 1σ 标准误差，水平误差棒表示投影到 $\hat{\rm k}_{\rm R}$ 上的 $2\,\mu$m 分箱宽度。红色（蓝色）实线表示建模信号 $\bar{N}_{\mathbf{A}\cdot\hat{\rm k}_{\rm R}}$（$\bar{D}_{\mathbf{A}\cdot\hat{\rm k}_{\rm R}}$）。

以及 $\hat{Z}_{\mathbf{a}} = \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}}\hat{S}_{\mathbf{a}} - \hat{S}_{\mathbf{a}}\hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}}$。从初始条件 $\langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}}\hat{S}_{\mathbf{a}}\rangle_0 = n_{\mathbf{a}}$ 和 $\langle \hat{S}_{\mathbf{a}}\hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}}\rangle_0 = 0$出发，第一个脉冲$\mathcal{R}(\theta_{\rm in}, 0)$使原子态的布居数差 $\langle \hat{Z}_{\mathbf{a}}\rangle \to n_{\mathbf{a}}\cos\theta_{\rm in}$发生旋转。对于较短的时间 $\Gamma t \ll 1$，可以将 $\mathcal{L}_2$ 对后续自由演化的弹性贡献直观地理解为一种伊辛型相互作用：它以速率 $2\sum_{\mathbf{b}} {\rm Re}(V_{\mathbf{ba}})\langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{b}}\hat{S}_{\mathbf{a}}\rangle$使每个原子绕$Z_{\mathbf{a}}$轴旋转。

两个“自旋回波”脉冲 $\mathcal{R}(\pi,\phi)$ 保持由 $\mathcal{L}_2$ 产生的相干动力学，同时抑制

$$\mathcal{L}_1[\rho] = \hat{\ } {\rm i}\sum_{\mathbf{a}}(\Delta\omega_a - {\rm i}\gamma/2)(\hat{\ }\hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}}\hat{S}_{\mathbf{a}}\hat{\rho} - \hat{S}_{\mathbf{a}}\hat{\rho}\hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}}) + {\rm H.c.}$$

中包含的各种单粒子退相干机制，其中 $\Delta\omega_{\mathbf{a}}$ 是原子 a 相对于探测激光的相对失谐，而 $\gamma/2 \approx (9.3\ {\rm s})^{-1}$ 是由光晶格光子 [47] 的拉曼散射导致的均匀退相干率。$\Delta\omega_{\mathbf{a}}$ 的主要贡献来自探测激光的频率漂移：在每日测量跃迁共振频率之间，频率漂移约为 1 Hz。随局部晶格强度变化的差分交流斯塔克位移也会对 $\Delta\omega_{\mathbf{a}}$ 有所贡献，但通过优化每束囚禁光束 [7] 的光学频率，可将其限制在低于 10 mHz 的水平。在极限 $\gamma \to 0$ 下，这些失谐不会直接影响最终态，因为自旋回波脉冲与在 $\mathcal{L}_1$ 下的时间演化反对易；而对于 $\Gamma t \ll 1$，自旋回波脉冲与在 $\mathcal{L}_2$ 下的演化近似对易。有限的 γ 会导致单原子相干性 $\langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}}\rangle \propto e^{-\gamma t/2}$ 和激发态布居 $\langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}}\hat{S}_{\mathbf{a}}\rangle \propto e^{-\gamma t}$ 均衰减。随着自旋回波脉冲数量增加，时间平均纵向衰减渐近趋于 $\langle \hat{Z}_{\mathbf{a}}\rangle \propto e^{-\gamma t/2}$。

最后一个 $\mathcal{R}(\pi/2, \phi_{\rm out})$ 脉冲将相干态的相互作用诱导相移映射为电子布居数之差。随后，具有 $1.3\,\mu$m 分辨率的衍射极限成像系统通过吸收成像记录基态 $\tilde{N}^g_{\mathbf{A}}$ 和激发态 $\tilde{N}^e_{\mathbf{A}}$ 的柱积分布居数，成像至一台 CMOS 相机；其中，$\mathbf{A} = a_{\rm px}(x\hat{\ }\mathbf{x}_{\rm px} + y\hat{\ }\mathbf{y}_{\rm px})$ 表示传感器像素，其网格轴 $\hat{\ }\mathbf{x}_{\rm px}$ 和 $\hat{\ }\mathbf{y}_{\rm px}$ 相对于晶格轴绕 $\hat{\ }\mathbf{z}$ 轴旋转了 30°，而 $a_{\rm px} \approx 410$ nm 为有效像素尺寸 [8]。

记录了约 2×10^4 次实验拍摄

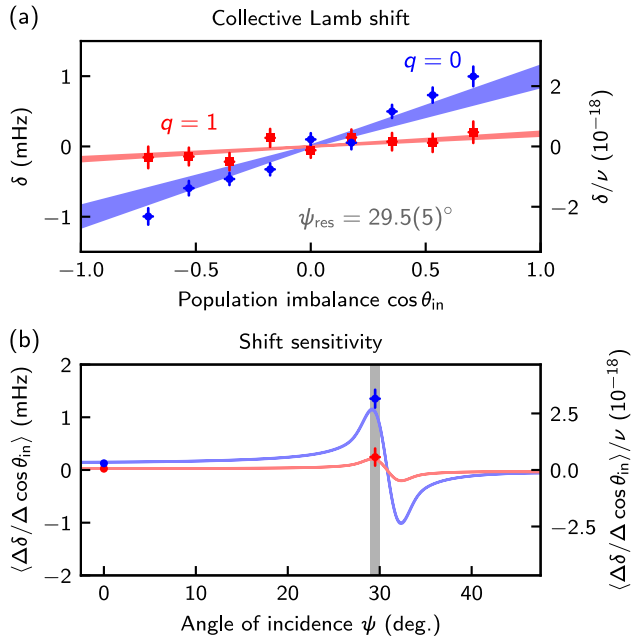


图 3. 控制协同兰姆位移。(a) 对于 $\psi = \psi_{\rm res}$，系综平均频移 δ 随初始自旋投影 $\cos\theta_{\rm in}$ 的变化规律，同时展示 $q = 0$（蓝色）和 $q = 1$（红色）。数据点 $\tilde{}$ 表示测得的频移 δ；竖直误差棒表示 1σ 个标准误差，水平误差棒表示脉冲面积 θ 中观测到的 2% 波动。阴影区域表示模型预测的频移 $\bar{\delta}$，其中传播了 $\psi_{\rm res}$ 的实验不确定性。(b) 入射角对初始自旋投影变化所致频移灵敏度的影响。竖直灰色条表示 (a) 中使用的入射角。

历时两周，同时独立调制四个参数 $\sin\phi_{\rm out} \in \{-1, +1\}$、$\cos\theta_{\rm in} \in \{-4, -3, \ldots, 4\}/4\sqrt{2}$，$q \in \{0, 1\}$和 $\psi \in \{0°, \psi_{\rm res}=29.5(5)°\}$。图 2(a-b) 展示了和信号 $\tilde{N}_{\mathbf{A}} = (\tilde{N}^e_{\mathbf{A}} + \tilde{N}^g{}_{\mathbf{A}})$ 与差信号 $\tilde{D}_{\mathbf{A}} = (\tilde{N}^e{}_{\mathbf{A}} - \tilde{N}^g{}_{\mathbf{A}})/C$，其中 $C = \sin(\theta_{\rm in})\sin(\phi_{\rm out})e^{-\gamma T/2} \approx -\partial_{\phi_{\rm out}}\tilde{D}_{\mathbf{A}}/\tilde{N}_{\mathbf{A}}$ 为干涉灵敏度，取自相互作用强度最大的那部分数据的平均值：$\psi = \psi_{\rm res}$、$\cos\theta_{\rm in} = \pm 1/\sqrt{2}$和 $q = 0$。

分析——我们将这些及其他实验得出的量（用带波浪号的符号 $\tilde{}$ 表示）与其模型等效量（用带横线的符号 $\bar{}$ 表示）进行比较。后者通过代入 $\tilde{N}^g{}_{\mathbf{A}} \to \bar{N}^g{}_{\mathbf{A}} = \sum_{\mathbf{a}\parallel\mathbf{A}}(n_{\mathbf{a}} - \langle Z_{\mathbf{a}}\mathcal{U}\rangle_0)/2$和 $\tilde{N}^e_{\mathbf{A}} \to \bar{N}^e{}_{\mathbf{A}} = \sum_{\mathbf{a}\parallel\mathbf{A}}(n_{\mathbf{a}} + \langle Z_{\mathbf{a}}\mathcal{U}\rangle_0)/2$得到，其中 $\mathbf{a} \parallel \mathbf{A}$ 表示图像投影到像素 $\mathbf{A}$ 上的所有原子所构成的集合，而相对于最终态的 $Z_{\mathbf{a}}$ 期望值计算为

$$\begin{aligned}\langle\hat{Z}_{\mathbf{a}}\mathcal{U}\rangle_0 &= n_{\mathbf{a}}C\left[J_{\mathbf{a}}\cos\Phi + (1-K_{\mathbf{a}})\sin\Phi\right]\\ J_{\mathbf{a}} &= \cos(\theta_{\rm in})T\sum_{\mathbf{b}\neq\mathbf{a}} n_{\mathbf{b}}\,\mathrm{Re}\,(V_{\mathbf{ba}}) + \mathcal{O}(\Gamma\gamma T^2)\\ K_{\mathbf{a}} &= \frac{\Gamma T}{2} + \mathcal{O}(\Gamma\gamma T^2)\end{aligned} \tag{3}$$

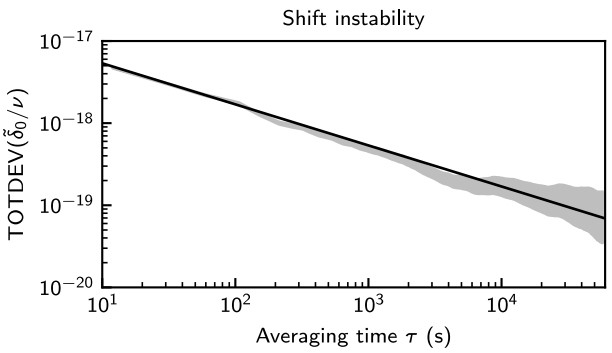


图 4. 钟频移评估的不稳定性。阴影灰色区域表示钟频移 $\tilde{\delta}_0/\nu$ 的总偏差 [53] 的 1σ 置信区间随平均时间 τ 的变化。黑线表示在假设存在白噪声底的情况下，对 $\tau < 100$ 秒时的数据进行的拟合。

其中，$J_{\mathbf{a}}$ ($K_{\mathbf{a}}$)是原子$\mathbf{a}$ 由于与所有其他原子发生共振偶极-偶极相互作用而产生的最低阶相移（退相干），其关于量 γT 的完整时间依赖关系见参考文献 [50]。参数 $\Phi = \Delta\phi(T) - 2\Delta\phi(3T/4) + 2\Delta\phi(T/4) - \Delta\phi(0)$源自传播由噪声引起的偏差；这些偏差来自在四个旋转脉冲处分别评估的、随时间变化的探测激光相位 $\phi \to \phi + \Delta\phi(t)$。在与$T$相当的时间尺度上，探测激光呈现白频率噪声；在时间间隔 Δt 内，相位的均方根差约为$\sqrt{\langle\Delta\phi^2(\Delta t)\rangle/\Delta t} \approx 90$ 毫弧度。s^{-1} [51]，从而在对 $\bar{D}_{\mathbf{A}}$ [50]的单次测量中引入量级为 $\Delta D_{\mathbf{A}} \approx \sqrt{3\langle\Delta\phi^2(T)\rangle/8\tilde{N}_{\mathbf{A}}}$ 的零均值随机信号。

由于空间分布存在差异$J_{\mathbf{a}}$，我们能够通过对所呈现的数据施加修正 $\tilde{D}_{\mathbf{A}} \to \tilde{D}_{\mathbf{A}} - \mathcal{P}_N^{\rm opt}\tilde{N}_{\mathbf{A}}$，消除探测激光相位波动导致的布居数差异。系数 $\mathcal{P}_N^{\rm opt}$ 是通过最小二乘拟合获得的，该拟合对参数 $\mathcal{P}_N$ 和 $\mathcal{P}_D$进行优化，以最小化量$\sum_{\mathbf{A}}(\mathcal{P}_N\bar{N}_{\mathbf{A}} + \mathcal{P}_D\bar{D}_{\mathbf{A}} - \tilde{D}_{\mathbf{A}})^2/\mathrm{Var}(\tilde{D}_{\mathbf{A}})$。

图2(c-f)展示了模型所预测量 $N_{\mathbf{A}}$ 和 $D_{\mathbf{A}}$的空间分布及绝对标度$\bar{}$ $\bar{}$；这些量对Φ取平均后，与测量结果吻合良好。$\tilde{}$图3(a)中绘出了系综平均协同兰姆位移 $\delta = \tilde{}\sum_{\mathbf{A}} D_{\mathbf{A}}/2\pi T\sum_{\mathbf{A}} N_{\mathbf{A}}$ 随 $\cos\theta_{\rm in}$ 的变化，其中 $\psi = \psi_{\rm res}$。将各组 $(\cos\theta_{\rm in}, q, \psi)$ 对应的位移与模型进行比较的分析 χ^2 给出$\chi^2/(20\text{ 个自由度}) \approx 1.1$。

虽然 $V_{\mathbf{ba}}$ 会随着分离距离增大而渐近衰减，其规律为 $1/kr_{\mathbf{ba}}$，但其中的相位因子 $e^{-\mathrm{i}(kr_{\mathbf{ba}} + \mathbf{k}_0\cdot\mathbf{r}_{\mathbf{ba}})}$在非公度的 $ka_{\rm lat} \approx 7\pi/6$ 和 $\psi = 0°$下平均为零，因此有效相互作用仅发生在最近邻之间，并随局域填充率缩放，即 $J_{\mathbf{a}} \propto n_{\mathbf{a}}$。然而，亚波长晶格间距 $ka_{\rm lat} < 2\pi$ 保证了布拉格共振仅存在于 $\psi = \arccos(\pi/ka_{\rm lat}) \approx 30.8°$ 处，该处满足$\mathbf{k}_0\cdot a\hat{}\mathbf{y} = \pi$，使辐射场沿$\mathbf{k}_{\rm R} = \mathbf{k}_0 - 2(\mathbf{k}_0\cdot\hat{}\mathbf{y})\hat{}\mathbf{y}$方向相长叠加。

数值结果表明，系综平均相互作用强度达到最大值，并随系统尺寸按以下规律缩放$N^{1/3}_{\rm tot}$；当角失谐相对于精确布拉格共振的偏移由衍射极限 $\pi/2k(w_{\hat{\mathbf{x}}}^2+w_{\hat{\mathbf{y}}}^2)^{1/2}\approx 1.9^\circ$ [10, 50, 54]决定时，初始倾转角变化对频移的灵敏度$\langle\Delta\delta/\Delta\cos\theta_{\rm in}\rangle$，对所有观测到的 $\theta_{\rm in}$取平均后，绘于以 ψ 为横轴的图中。3(b)

外推至时钟运行于$\cos\theta_{\rm in}=0$ 且 $q=0$，以及 $\psi=\psi_{\rm res}$后，我们评估由共振˜ ˜偶极-偶极相互作用导致的系统频移为 $\delta_0/\nu=\sum_{\theta_{\rm in}}\delta/\sum_{\theta_{\rm in}}\nu=-1.5(7)\times10^{-19}$（以分数频率单位表示）。这表明，即使在本研究考察的最敏感几何构型下，系统效应也可忽略不计，相较于已报道的光学原子钟最低总系统不确定度 [55–57]。图4 展示了该˜评估的频率不稳定度。对数据进行拟合后，得到 $1.7\times10^{-17}/\sqrt{\rm Hz}$ 短期白噪声底。

结论——我们在三维光学晶格原子钟中测量了协同兰姆位移，并成功对其进行了建模。通过控制探测光的空间取向和激发态偶极矩，可以大幅改变这些效应的大小——从与最先进原子钟相关的量级，降至低一个数量级以上的水平。光晶格光子拉曼散射造成的技术退相干，使我们无法研究超出 $\Gamma t\ll1$ 的动力学。值得探讨的是，未来能否通过探测内禀偶极矩更强或跃迁波长更长的跃迁，或对本研究所用的激发态进行光学缀饰，使集体相互作用显著强于技术退相位率 [58]。在这种条件下，集体光-物质相互作用的动力学预计将产生自旋压缩 [59]以及其他奇异的量子物质态 [14]。

致谢——感谢 D. Kedar 提供技术协助，感谢 D. E. Chang、H. Ritsch 和 M. D. Lukin 进行有益的讨论。我们还感谢 S. L. Campbell、N. Darkwah Oppong、A. M. Rey 和 D. Wellnitz 仔细审阅稿件并提出富有见地的意见。**经费支持：**本研究获得 NSF QLCI OMA-2016244、美国能源部量子系统加速器中心、V. Bush Fellowship、美国国家标准与技术研究院和 NSF Phys-1734006 的资助。**作者贡献：**所有作者均参与了实验的开展、结果的解读和稿件的撰写。**利益冲突：**作者声明不存在利益冲突。**数据和材料可用性：**正文及补充材料中的数据可在合理请求后向通讯作者获取。

* ross.hutson@colorado.edu

† jun.ye@colorado.edu

[1] S. L. Braunstein 和 C. M. Caves，物理评论快报**72**，3439（1994）。

[2] V. Giovannetti, S. Lloyd, and L. Maccone, 物理评论快报 96, 010401 2006( ). [3] C. M. Caves, 物理评论快报 45, 75 (1980). [4] W. M. Itano, J. C. Bergquist, J. J. Bollinger, J. M. Gilligan, D. J. Heinzen, F. L. Moore, M. G. Raizen, and D. J. Wineland, 物理评论A 47, 3554 (1993). [5] M. O. Scully and J. P. Dowling, 物理评论A 48, 3186 (1993). [6] T. Akatsuka, M. Takamoto, and H. Katori, 物理评论A 81, 023402 2010( ). [7] S. L. Campbell, R. B. Hutson, G. E. Marti, A. Goban, N. Dark- wah Oppong, R. L. McNally, L. Sonderhouse, J. M. Robinson, W. Zhang, B. J. Bloom, and J. Ye, 《科学》358, 90 (2017). [8] G. E. Marti, R. B. Hutson, A. Goban, S. L. Campbell, N. Poli, and J. Ye, 物理评论快报 120, 103201 (2018). [9] E. Oelker, R. B. Hutson, C. J. Kennedy, L. Sonderhouse, T. Bothwell, A. Goban, D. Kedar, C. Sanner, J. M. Robinson, G. E. Marti, D. G. Matei, T. Legero, M. Giunta, R. Holzwarth, F. Riehle, U. Sterr, and J. Ye, 《自然·光子学》13, 714 (2019). [10] D. E. Chang, J. Ye, and M. D. Lukin, 物理评论A 69, 023810 (2004). [11] S. Kr¨amer, L. Ostermann, and H. Ritsch, 《欧洲物理快报》114, 14003 (2016). [12] A. Cidrim, A. Pi˜neiro Orioli, C. Sanner, R. B. Hutson, J. Ye, R. Bachelard, and A. M. Rey, 物理评论快报 127, 013401 (2021). [13] A. Asenjo-Garcia, M. Moreno-Cardoner, A. Albrecht, H. J. Kimble, and D. E. Chang, 物理评论X 7, 031024 (2017). [14] L. Henriet, J. S. Douglas, D. E. Chang, and A. Albrecht, 物理评论A 99, 023802 (2019). [15] J. D. Jackson, 经典电动力学；第3版（威利，纽约，NY，1998）。[16] P. de Vries, D. V. van Coevorden, and A. Lagendijk, Rev. Mod. Phys. 70, 447 (1998). [17] F. Andreoli, M. J. Gullans, A. A. High, A. Browaeys, and D. E. Chang, 物理评论X 11, 011026 (2021). [18] R. H. Lehmberg, 物理评论A 2, 883 (1970). [19] R. H. Dicke, Phys. Rev. 93, 99 (1954). [20] Fain, 《苏联物理学报》9, 562 (1959). [21] R. Friedberg, S. Hartmann, and J. Manassah, 《物理学报告》7, 101 (1973). [22] N. Skribanowitz, I. P. Herman, J. C. MacGillivray, and M. S. Feld, 物理评论快报 30, 309 (1973). [23] M. Gross, C. Fabre, P. Pillet, and S. Haroche, 物理评论快报 36, 1035 (1976). [24] M. Gross, P. Goy, C. Fabre, S. Haroche, and J. M. Raimond, 物理评论快报 43, 343 (1979). [25] D. Pavolini, A. Crubellier, P. Pillet, L. Cabaret, and S. Liber- man, 物理评论快报 54, 1917 (1985). [26] P. V. Zinov'ev, S. V. Lopina, Y. V. Naboikin, M. B. Silaeva, V. V. Samartsev, and Y. E. Sheibut, 《苏联物理学报》58, 1129 (1983). [27] O. P. Varnavskii, A. N. Kirkin, A. M. Leontovich, R. F. Malikov, A. M. Mozharovskii, and E. D. Trifonov, 《苏联物理学报》59, 716 (1984). [28] R. G. DeVoe and R. G. Brewer, 物理评论快报 76, 2049 (1996). [29] M. D. Barnes, P. S. Krstic, P. Kumar, A. Mehta, and J. C. Wells, Phys. Rev. B 71, 241303 (2005). [30] M. Scheibner, T. Schmidt, L. Worschech, A. Forchel, G. Bacher, T. Passow, and D. Hommel, 《自然·物理》3, 106 (2007). [31] A. Goban, C.-L. Hung, J. D. Hood, S.-P. Yu, J. A. Muniz, O. Painter, and H. J. Kimble, 物理评论快报 115, 063601 (2015). [32] B. H. McGuyer, M. McDonald, G. Z. Iwata, M. G. Tarallo, W. Skomorowski, R. Moszynski, and T. Zelevinsky, 自然

Physics 11, 32 (2015). [33] M. Houde, A. Mathews, and F. Rajabi, 皇家天文学会月报 475, 514 (2017). [34] W. R. Garrett, R. C. Hart, J. E. Wray, I. Datskou, and M. G. Payne, 物理评论快报 64, 1717 (1990). [35] R. R¨ohlsberger, K. Schlage, B. Sahoo, S. Couet, and R. R¨uffer, 《科学》328, 1248 (2010). [36] J. Keaveney, A. Sargsyan, U. Krohn, I. G. Hughes, D. Sarkisyan, and C. S. Adams, 物理评论快报 108, 173601 (2012). [37] A. F. van Loo, A. Fedorov, K. Lalumi`ère, B. C. Sanders, A. Blais, and A. Wallraff, 《科学》342, 1494 (2013). [38] Z. Meir, O. Schwartz, E. Shahmoon, D. Oron, and R. Ozeri, 物理评论快报 113, 193002 (2014). [39] G. Ferioli, A. Glicenstein, L. Henriet, I. Ferrier-Barbut, and A. Browaeys, 物理评论X 11, 021031 (2021). [40] H. Zoubi and H. Ritsch, 物理评论A 83, 063831 (2011). [41] S. D. Jenkins and J. Ruostekoski, 物理评论A 86, 031602 (2012). [42] D. E. Chang, L. Jiang, A. V. Gorshkov, and H. J. Kimble, 新物理学杂志 14, 063003 (2012). [43] R. J. Bettles, S. A. Gardiner, and C. S. Adams, 物理评论A 92, 063822 2015( ). [44] J. Rui, D. Wei, A. Rubio-Abadal, S. Hollerith, J. Zeiher, D. M. Stamper-Kurn, C. Gross, and I. Bloch, 自然 583, 369 (2020). [45] Y.-X. Zhang and K. Mølmer, 物理评论快报 122, 203605 (2019). [46] A. Glicenstein, G. Ferioli, N. ˇSibali´c, L. Brossard, I. Ferrier- Barbut, and A. Browaeys, 物理评论快报 124, 253602 (2020). [47] R. B. Hutson, A. Goban, G. E. Marti, L. Sonderhouse, C. San- ner, and J. Ye, 物理评论快报 123, 123401 (2019). [48] L. Sonderhouse, C. Sanner, R. B. Hutson, A. Goban, T. Bilitewski, L. Yan, W. R. Milner, A. M. Rey, and J. Ye, Nature Physics 16, 1216 (2020). [49] W. R. Milner, L. Yan, R. B. Hutson, C. Sanner, and J. Ye, 三维光学晶格钟中能带绝缘体的高保真成像（2023年）。[50] 参见补充材料。[51] D. G. Matei, T. Legero, S. H¨afner, C. Grebing, R. Weyrich, W. Zhang, L. Sonderhouse, J. M. Robinson, J. Ye, F. Riehle, and U. Sterr, 物理评论快报 118, 263202 (2017). [52] J. A. Muniz, D. J. Young, J. R. K. Cline, and J. K. Thompson, 物理评论研究 3, 023152 (2021). [53] D. Howe, IEEE超声、铁电与频率控制汇刊 47, 1102 (2000). [54] J. T. Manassah, 物理学快报A 374, 1985 (2010). [55] W. F. McGrew, X. Zhang, R. J. Fasano, S. A. Sch¨affer, K. Beloy, D. Nicolodi, R. C. Brown, N. Hinkley, G. Milani, M. Schioppo, T. H. Yoon, and A. D. Ludlow, 自然 564, 87 (2018). [56] 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, 物理评论快报 123, 033201 (2019). [57] T. Bothwell, D. Kedar, E. Oelker, J. M. Robinson, S. L. Brom- ley, W. L. Tew, J. Ye, and C. J. Kennedy, 计量学 56, 065004 (2019). [58] R. Santra, E. Arimondo, T. Ido, C. H. Greene, and J. Ye, 物理评论快报 94, 173002 (2005). [59] C. Qu and A. M. Rey, 物理评论A 100, 041602 (2019).

补充材料

原子密度分布

原子云的质心受到高斯激光束的束缚，其强度分布为 $I_{\hat{\mathbf{n}}\mathbf{a}} = I_{\hat{\mathbf{n}}_0} e^{-2|\mathbf{a}_{\hat{\mathbf{n}}}|^2/W_{\hat{\mathbf{n}}}^2}$，其中单位矢量 $\mathbf{n} \in \{\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}\}$ 依次表示三个晶格轴，$\mathbf{a}_{\hat{\mathbf{n}}} = \mathbf{a} - (\hat{\mathbf{n}} \cdot \mathbf{a})\hat{\mathbf{n}}$ 表示相对于 $\hat{\mathbf{n}}$ 轴的横向位置，$W_{\hat{\mathbf{n}}}$ 表示第 $\hat{\mathbf{n}}$ 束光束的 e^{-2} 半径，而 $I_0^{\mathbf{n}}$ 表示第 $\hat{\mathbf{n}}$ 束光束的峰值强度。对所有光束求和并乘以交流极化率 α，即可得到势能

$$U_{\mathbf{a}} = -\alpha \sum_{\hat{\mathbf{n}}} I_{\mathbf{a}}^{\hat{\mathbf{n}}} \approx -\alpha \sum_{\hat{\mathbf{n}}} I_0^{\hat{\mathbf{n}}} \left(1 - 2\frac{|\mathbf{a}_{\hat{\mathbf{n}}}|^2}{W_{\hat{\mathbf{n}}}^2}\right) \tag{4}$$

其中我们近似取 $|\mathbf{a}_{\hat{\mathbf{n}}}| \ll W_{\hat{\mathbf{n}}}$。

因此，我们定义无量纲势 $u_{\mathbf{a}} = \mathbf{a} \cdot \mathbf{u} \cdot \mathbf{a}$，其中

$$\mathbf{u} = \frac{1}{2a_{\mathrm{lat}}^2}\left(\sigma_{\hat{\mathbf{x}}}^{-2}\, \hat{\mathbf{x}}\hat{\mathbf{x}} + \sigma_{\hat{\mathbf{y}}}^{-2}\, \hat{\mathbf{y}}\hat{\mathbf{y}} + \sigma_{\hat{\mathbf{z}}}^{-2}\, \hat{\mathbf{z}}\hat{\mathbf{z}}\right) \tag{5}$$

用于拟合密度分布 $n_{\mathbf{a}}$。无量纲拟合参数 $\sigma_{\hat{\mathbf{n}}}$ 表征沿 $\hat{\mathbf{n}}$ 轴的束缚势强度。对于采用局域密度近似的巨正则系综，我们定义无量纲局域化学势 $\mu_{\mathbf{a}} = \mu_{\mathbf{0}} - u_{\mathbf{a}}$，其中峰值化学势 $\mu_{\mathbf{0}}$ 是另一个拟合参数。限制在晶格基带中的全同费米子的相应配分函数为 $Z_{\mathbf{a}} = 1 + e^{\mu_{\mathbf{a}}}$。局域密度$n_{\mathbf{a}}$ 为

$$n_{\mathbf{a}} = Z_{\mathbf{a}}^{-1} e^{\mu_{\mathbf{a}}} = \frac{e^{\mu_{\mathbf{a}}}}{1 + e^{\mu_{\mathbf{a}}}}\,. \tag{6}$$

沿成像轴 $\hat{\mathbf{m}}$ 求和可得柱密度拟合函数

$$N_{\mathbf{a}_{\hat{\mathbf{m}}}} = \sum_{\mathbf{a}' \| \mathbf{a}_{\hat{\mathbf{m}}}} n_{\mathbf{a}'}\,. \tag{7}$$

用四个自由参数（$\mu_{\mathbf{0}}, \sigma_{\hat{\mathbf{x}}}, \sigma_{\hat{\mathbf{y}}}, \sigma_{\hat{\mathbf{z}}}$）将吸收成像拟合到 $N_{\mathbf{a}_{\hat{\mathbf{m}}}}$，会发现 $\mu_{\mathbf{0}}$ 和 $w_{\hat{\mathbf{n}}}$ 之间存在较大的协方差（当 $\mu_{\mathbf{0}} \ll 1$时）。沿正交轴成像可以消除这种歧义。沿 $\hat{\mathbf{m}} = \hat{\mathbf{z}}$ 拍摄的图像揭示了 $\sigma_{\hat{\mathbf{x}}} \approx \sigma_{\hat{\mathbf{y}}}$，因此可通过拟合沿 $\hat{\mathbf{m}} = \cos(\pi/6)\hat{\mathbf{x}} + \sin(\pi/6)\hat{\mathbf{y}}$ 拍摄的吸收成像来约束长宽比 $\beta = \overline{\sqrt{\sigma_{\hat{\mathbf{x}}}}\sigma_{\hat{\mathbf{y}}}}/\sigma_{\hat{\mathbf{z}}} \approx 1.79$。在此约束下，对 $N_{\mathbf{a}_{\hat{\mathbf{z}}}}$ 的拟合得到 $\mu_0 \approx 1.44$、$\sigma_{\hat{\mathbf{x}}} \approx 8.8$ 和 $\sigma_{\hat{\mathbf{y}}} \approx 7.2$。

有了确定的 $n_{\mathbf{a}}$ d　　之后，便可数值提取各种热力学量。峰值密度　　is

$$n_{\mathbf{0}} = \frac{e^{\mu_0}}{1 + e^{\mu_0}} \approx 0.81\,. \tag{8}$$

原子总数为

$$N = \sum_{\mathbf{a}} n_{\mathbf{a}} \approx 9 \times 10^3\,, \tag{9}$$

与原位和飞行时间吸收测量所得的计数总和一致。沿$\hat{\mathbf{n}}$轴的均方根宽度为

$$w_{\hat{\mathbf{n}}}^2 = \sum_{\mathbf{a}} (\mathbf{a} \cdot \hat{\mathbf{n}})^2\, n_{\mathbf{a}} \to (w_{\hat{\mathbf{x}}}, w_{\hat{\mathbf{y}}}, w_{\hat{\mathbf{z}}}) = (3.9\ \mu\mathrm{m}, 3.8\ \mu\mathrm{m}, 2.1\ \mu\mathrm{m})\,. \tag{10}$$

第$\mathbf{a}$个晶格位点处的每粒子熵为

$$s_{\mathbf{a}} = k_{\mathrm{B}} \left[n_{\mathbf{a}} \log n_{\mathbf{a}} + (1 - n_{\mathbf{a}}) \log(1 - n_{\mathbf{a}})\right] / n_{\mathbf{a}}. \tag{11}$$

对于中心晶格点，$s_0 \approx 0.6 k_{\mathrm{B}}$。对所有晶格位点求和，平均粒子熵　　is

$$S = \sum_{\mathbf{a}} n_{\mathbf{a}} s_{\mathbf{a}} / N \approx 1.9 k_{\mathrm{B}}\,. \tag{12}$$

（无量纲）平均势能为

$$\epsilon = \sum_{\mathbf{a}} n_{\mathbf{a}} u_{\mathbf{a}} \approx 1.4 \,. \tag{13}$$

（无量纲）费米能 ϵ_F 由以下关系隐式定义

$$N = \sum_{u_{\mathbf{a}} \leq \epsilon_F} 1 \to \epsilon_F \approx 2.0 \,, \tag{14}$$

由此得到简并参数

$$\epsilon/\epsilon_F \approx 0.7 \,. \tag{15}$$

逐位点干涉仪信号

脉冲 $\mathcal{R}(\theta,\ \phi)$ 按照以下关系演化单粒子期望值

$$\begin{aligned}
\partial_\theta \langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \rangle = \partial_\theta \langle \hat{S}_{\mathbf{a}} \rangle^* &= \mathrm{Tr}\left(\hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \mathcal{L}_{\mathrm{rot}}[\hat{\rho}] \right) = -\frac{\mathrm{i}}{2} e^{\mathrm{i}\phi} \left(\langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{a}} \rangle - \langle \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \rangle \right) \\
\partial_\theta \langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{a}} \rangle = -\partial_\theta \langle \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \rangle &= \mathrm{Tr}\left(\hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{a}} \mathcal{L}_{\mathrm{rot}}[\hat{\rho}] \right) = -\frac{\mathrm{i}}{2} \left(e^{-\mathrm{i}\phi} \langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \rangle - e^{\mathrm{i}\phi} \langle \hat{S}_{\mathbf{a}} \rangle \right) \,.
\end{aligned} \tag{16}$$

Thes这些耦合微分方程可求解，从而得到 $\mathcal{R}$的单粒子矩阵元 ，

$$\begin{aligned}
\langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \mathcal{R}(\theta,\phi) \rangle &= \cos^2(\theta/2) \langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \rangle + e^{2\mathrm{i}\phi} \sin^2(\theta/2) \langle \hat{S}_{\mathbf{a}} \rangle - \frac{\mathrm{i}}{2} e^{\mathrm{i}\phi} \sin(\theta) \left(\langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{a}} \rangle - \langle \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \rangle \right) \\
\langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{a}} \mathcal{R}(\theta,\phi) \rangle &= \cos^2(\theta/2) \langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{a}} \rangle + \sin^2(\theta/2) \langle \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \rangle - \frac{\mathrm{i}}{2} \sin(\theta) \left(e^{-\mathrm{i}\phi} \langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \rangle - e^{\mathrm{i}\phi} \langle \hat{S}_{\mathbf{a}} \rangle \right) \\
\langle \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \mathcal{R}(\theta,\phi) \rangle &= \cos^2(\theta/2) \langle \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \rangle + \sin^2(\theta/2) \langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{a}} \rangle + \frac{\mathrm{i}}{2} \sin(\theta) \left(e^{-\mathrm{i}\phi} \langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \rangle - e^{\mathrm{i}\phi} \langle \hat{S}_{\mathbf{a}} \rangle \right) \,.
\end{aligned} \tag{17}$$

由于 $\mathcal{L}_{\mathrm{rot}}$ 是单粒子算符之和， $\mathcal{R}$ 的多粒子矩阵元可直接由上述矩阵元得到，例如 $\partial \langle \hat{O}_{\mathbf{a}} \hat{O}_{\mathbf{b}} \mathcal{R}(\theta,\ \phi) \rangle / \partial \langle \hat{P}_{\mathbf{a}} \hat{P}_{\mathbf{b}} \rangle = \partial^2 \langle \hat{O}_{\mathbf{a}} \mathcal{R}(\theta,\ \phi) \rangle \langle \hat{O}_{\mathbf{b}} \mathcal{R}(\theta,\ \phi) \rangle / \partial \langle \hat{P}_{\mathbf{a}} \rangle \partial \langle \hat{P}_{\mathbf{b}} \rangle$。特别地，我们将用到

$$\begin{aligned}
\langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \mathcal{R}(\theta,0) \rangle_0 &= -\frac{\mathrm{i}}{2} \sin(\theta) n_{\mathbf{a}} \\
\langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}^\dagger_{\mathbf{b}} \mathcal{R}(\theta,0) \rangle_0 &= -\frac{\mathrm{i}}{2} \sin(\theta) \cos^2(\theta/2) n_{\mathbf{a}} n_{\mathbf{b}} \quad \text{for } \mathbf{a} \neq \mathbf{b} \\
\langle \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \hat{S}^\dagger_{\mathbf{b}} \mathcal{R}(\theta,0) \rangle_0 &= -\frac{\mathrm{i}}{2} \sin(\theta) \sin^2(\theta/2) n_{\mathbf{a}} n_{\mathbf{b}} \quad \text{for } \mathbf{a} \neq \mathbf{b} \\
\langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \mathcal{R}(\pi,\phi) \rangle &= e^{2\mathrm{i}\phi} \langle \hat{S}_{\mathbf{a}} \rangle \\
\langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}^\dagger_{\mathbf{b}} \mathcal{R}(\pi,\phi) \rangle &= e^{2\mathrm{i}\phi} \langle \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{b}} \rangle \text{ for } \quad \mathbf{a} \neq \mathbf{b} \\
\langle \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \hat{S}^\dagger_{\mathbf{b}} \mathcal{R}(\pi,\phi) \rangle &= e^{2\mathrm{i}\phi} \langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{b}} \rangle \text{ for } \quad \mathbf{a} \neq \mathbf{b} \\
\langle \hat{Z}_{\mathbf{a}} \mathcal{R}(\pi/2,\phi) \rangle &= -\mathrm{i} \left[e^{-\mathrm{i}\phi} \langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \rangle - e^{\mathrm{i}\phi} \langle \hat{S}_{\mathbf{a}} \rangle \right] \,.
\end{aligned} \tag{18}$$

相干性 $\langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \rangle$ 的自由演化为

$$\partial_t \langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \rangle = \mathrm{Tr}\Big(\hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \mathcal{L}_{\mathrm{free}}[\hat{\rho}] \Big) = \mathrm{i} \sum_i \sum_{\mathbf{b}} h^{(i)}_{\mathbf{ba}} \left(\langle \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}^\dagger_{\mathbf{b}} \rangle - \langle \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}^\dagger_{\mathbf{a}} \hat{S}^\dagger_{\mathbf{b}} \rangle \right) \tag{19}$$

其中

$$\begin{aligned}
h^{(1)}_{\mathbf{ba}} &= (\Delta\omega_{\mathbf{a}} - \mathrm{i}\gamma/2) \delta_{\mathbf{a},\mathbf{b}} \\
h^{(2)}_{\mathbf{ba}} &= V_{\mathbf{ba}} \\
&= -\frac{3\Gamma_{\mathrm{nat.}} B_q}{4} \left\{ \left[1 - |\hat{\mathbf{r}}_{\mathbf{ba}} \cdot \hat{\mathbf{e}}_q|^2 \right] \frac{1}{k r_{\mathbf{ba}}} + \left[3|\hat{\mathbf{r}}_{\mathbf{ba}} \cdot \hat{\mathbf{e}}_q|^2 - 1 \right] \left[\frac{1}{(k r_{\mathbf{ba}})^3} + \frac{\mathrm{i}}{(k r_{\mathbf{ba}})^2} \right] \right\} e^{-\mathrm{i}(k r_{\mathbf{ba}} + \mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}_{\mathbf{ba}})} \,.
\end{aligned} \tag{20}$$

在求解 $\langle \hat{S}_{\mathbf{a}}^{\dagger} \rangle$ 关于 $\Gamma_0 t$ 的一阶近似时，我们可以得到多原子期望值 $\langle \hat{S}_{\mathbf{a}}^{\dagger} \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}^{\dagger}{}_{\mathbf{b}} \rangle$ 和 $\langle \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{a}}^{\dagger} \hat{S}^{\dagger}{}_{\mathbf{b}} \rangle$ 随时间变化的闭式表达式，其中 $\mathbf{a} \neq \mathbf{b}$

$$\begin{aligned}
\partial_t \langle \hat{S}_{\mathbf{a}}^{\dagger} \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{b}}^{\dagger} \rangle &\approx \mathrm{Tr}\Big(\hat{S}_{\mathbf{a}}^{\dagger} \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{b}}^{\dagger} \mathcal{L}_1[\hat{\rho}] \Big) = \left(\mathrm{i}\Delta\omega_{\mathbf{b}} - \frac{3}{2}\gamma \right) \langle \hat{S}_{\mathbf{a}}^{\dagger} \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{b}}^{\dagger} \rangle \\
\partial_t \langle \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{a}}^{\dagger} \hat{S}_{\mathbf{b}}^{\dagger} \rangle &\approx \mathrm{Tr}\Big(\hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{a}}^{\dagger} \hat{S}_{\mathbf{b}}^{\dagger} \mathcal{L}_1[\hat{\rho}] \Big) = \left(\mathrm{i}\Delta\omega_{\mathbf{b}} - \frac{1}{2}\gamma \right) \langle \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{a}}^{\dagger} \hat{S}_{\mathbf{b}}^{\dagger} \rangle + \gamma \langle \hat{S}_{\mathbf{a}}^{\dagger} \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{b}}^{\dagger} \rangle \, .
\end{aligned} \tag{21}$$

于是我们得到

$$\begin{aligned}
\langle \hat{S}_{\mathbf{a}}^{\dagger} \mathcal{F}(t) \rangle &= e^{-\gamma t/2} \left\{ e^{\mathrm{i}\Delta\omega_{\mathbf{a}} t} \left(1 - \frac{\Gamma_0 t}{2} \right) \langle \hat{S}_{\mathbf{a}}^{\dagger} \rangle + \mathrm{i}t \sum_{\mathbf{b} \neq \mathbf{a}} h_{\mathbf{ba}}^{(2)} e^{\mathrm{i}\Delta\omega_{\mathbf{b}} t} \left[\left(2e^{-\gamma t} - 1 \right) \langle \hat{S}_{\mathbf{a}}^{\dagger} \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{b}}^{\dagger} \rangle - \langle \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{a}}^{\dagger} \hat{S}_{\mathbf{b}}^{\dagger} \rangle \right] \right\} \\
\langle \hat{S}_{\mathbf{a}}^{\dagger} \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{b}}^{\dagger} \mathcal{F}(t) \rangle &= e^{-3\gamma t/2 + \mathrm{i}\Delta\omega_{\mathbf{b}} t} \langle \hat{S}_{\mathbf{a}}^{\dagger} \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{b}}^{\dagger} \rangle \\
\langle \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{a}}^{\dagger} \hat{S}_{\mathbf{b}}^{\dagger} \mathcal{F}(t) \rangle &= e^{-\gamma t/2 + \mathrm{i}\Delta\omega_{\mathbf{b}} t} \left[\left(1 - e^{-\gamma t} \right) \langle \hat{S}_{\mathbf{a}}^{\dagger} \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{b}}^{\dagger} \rangle + \langle \hat{S}_{\mathbf{a}} \hat{S}_{\mathbf{a}}^{\dagger} \hat{S}_{\mathbf{b}}^{\dagger} \rangle \right) \, .
\end{aligned} \tag{22}$$

矩阵乘法，舍去项 $\mathcal{O}(\Gamma_0^2 T^2)$ 后，得到

$$\langle \hat{Z}_{\mathbf{a}} \mathcal{U} \rangle_0 = n_{\mathbf{a}} \sin(\theta_{\mathrm{in}}) e^{-\gamma T/2} \left[\sin(\phi_{\mathrm{out}} + \Phi) J_{\mathbf{a}} + \cos(\phi_{\mathrm{out}} + \Phi) \left(1 - K_{\mathbf{a}} \right) \right] \tag{23}$$

with

$$\begin{aligned}
J_{\mathbf{a}} &= \sum_{\mathbf{b} \neq \mathbf{a}} n_{\mathbf{b}} \, \mathrm{Re} \left(V_{\mathbf{ba}} F_{\mathbf{ba}}^{+} \right) \\
&= \cos(\theta_{\mathrm{in}}) T \sum_{\mathbf{b} \neq \mathbf{a}} n_{\mathbf{b}} \, \mathrm{Re}(V_{\mathbf{ba}}) + \mathcal{O}(\Gamma_0 \gamma T^2, \Gamma_0 \Delta\omega T^2) \\
K_{\mathbf{a}} &= \frac{\Gamma_0 T}{2} + \sum_{\mathbf{b} \neq \mathbf{a}} n_{\mathbf{b}} \, \mathrm{Im} \left(V_{\mathbf{ba}} F_{\mathbf{ba}}^{-} \right) \\
&= \frac{\Gamma_0 T}{2} + \mathcal{O}(\Gamma_0 \gamma T^2, \Gamma_0 \Delta\omega T^2) \\
F_{\mathbf{ba}}^{\pm} &= \frac{T}{4} \Bigg(e^{-\gamma T} \cos\theta_{\mathrm{in}} - \left(1 - e^{-\gamma T/4} \right)^3 \left(1 + e^{-\gamma T/4} \right) \\
&\qquad + \left\{ e^{-\gamma T/4} \left(1 + \cos\theta \right) - 1 \pm 2 \left[e^{-3\gamma T/4} \left(1 + \cos\theta \right) - 2e^{-\gamma T/2} + 1 \right] \right\} e^{\mathrm{i}(\Delta\omega_{\mathbf{b}} - \Delta\omega_{\mathbf{a}})T/4} \Bigg) \\
&= \frac{T}{4} \Big\{ e^{-\gamma T} \left(1 + \cos\theta \right) - 2e^{-3\gamma T/4} + e^{-\gamma T/4} \left(3 + \cos\theta \right) - 2 \\
&\qquad \pm 2 \left[e^{-3\gamma T/4} \left(1 + \cos\theta \right) - 2e^{-\gamma T/2} + 1 \right] + \mathcal{O}(\Delta\omega T) \Big\} \\
\Phi &= \Delta\phi(T) - 2\Delta\phi(3T/4) + 2\Delta\phi(T/4) - \Delta\phi(0)
\end{aligned} \tag{24}$$

其中 $\Delta\phi(t)$ 是时间 t处的瞬时激光相位噪声。

对 Φ 中逐次实验波动（服从正态分布）取平均后，对于 $\cos\phi_{\mathrm{out}} = 0$，$\sum_{\mathbf{a} \| \mathbf{A}} \langle Z_{\mathbf{a}} \mathcal{U} \rangle_0 / C$ 的平均值 $D_{\mathbf{A}}$ 和标准偏差 $\Delta D_{\mathbf{A}}$ 为

$$\begin{aligned}
\bar{D}_{\mathbf{A}} &= e^{-\langle \Phi^2 \rangle/2} \sum_{\mathbf{a} \| \mathbf{A}} n_{\mathbf{a}} J_{\mathbf{a}} \\
&= \sum_{\mathbf{a} \| \mathbf{A}} n_{\mathbf{a}} J_{\mathbf{a}} + \mathcal{O}(\langle \Phi^2 \rangle) \\
\Delta\bar{D}_{\mathbf{A}} &= e^{-\langle \Phi^2 \rangle/2} \sum_{\mathbf{a} \| \mathbf{A}} n_{\mathbf{a}} \sqrt{ \left[\cosh(\langle \Phi^2 \rangle) - 1 \right] J_{\mathbf{a}}^2 + \sinh(\langle \Phi^2 \rangle) (1 - K_{\mathbf{a}})^2 } \\
&= \sqrt{\langle \Phi^2 \rangle} \sum_{\mathbf{a} \| \mathbf{A}} n_{\mathbf{a}} (1 - K_{\mathbf{a}}) + \mathcal{O}(\langle \Phi^2 \rangle) \, .
\end{aligned} \tag{25}$$

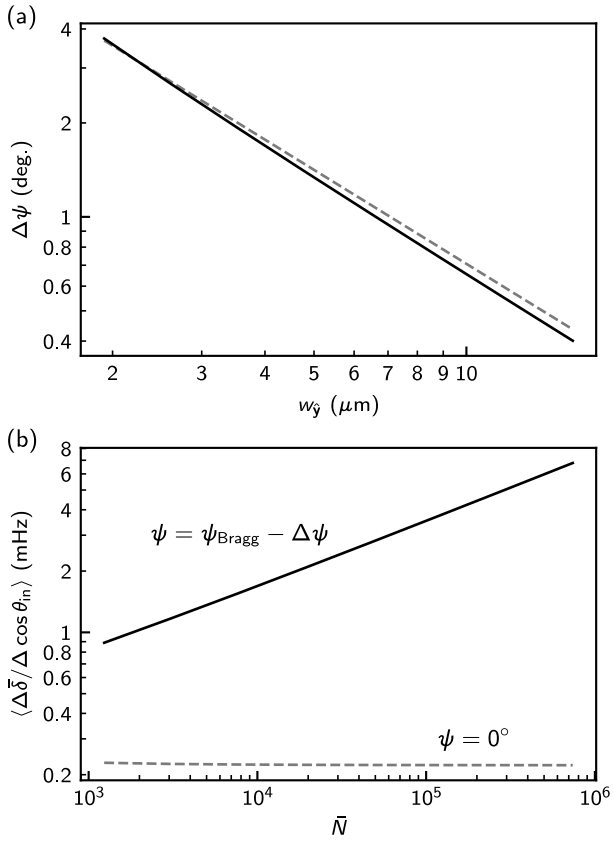


图 5. 集体兰姆位移的有限尺寸效应。(a) 在 $\psi_{\rm Bragg} \approx 30.8^\circ$ 处，集体兰姆位移系综平均值达到最大时，相对于布拉格共振的角失谐 $\Delta\psi = \psi_{\rm Bragg} - \psi$。固定 $\mu_{\mathbf{0}} = 1.44$ 时，对云团宽度 $w_{\hat{\mathbf{n}}}$ 进行全局缩放后，通过数值优化得到的值以黑色实线表示。衍射极限 $\Delta\psi \approx \pi/2k(w_{\hat{\mathbf{x}}} + w_{\hat{\mathbf{y}}})^{-1/2}$ 以灰色虚线表示。(b) 对于 $\psi = \psi_{\rm Bragg} - \Delta\psi$ （黑色实线）和 $\psi = 0^\circ$ （灰色虚线），集体兰姆位移系综平均值灵敏度 $\langle\Delta\bar{\delta}/\Delta\cos\ \theta_{\rm in}\rangle$ 随计数总和 $\bar{N}$ 的变化。

正文中给出的所有建模量均采用式 25 中完整的时间依赖关系，其中 $\sqrt{\langle\Phi^2\rangle} = \sqrt{3\langle\Delta\phi^2(T)\rangle/8} \approx \overline{110}\,\overline{\rm mrad}$。，且 $\Delta\omega_{\mathbf{a}} = \Delta\omega_{\mathbf{b}} = 0$。噪声引起的平均差分信号抑制 $\bar{D}_{\mathbf{a}}$， $1 - e^{-\langle\Phi\rangle^2/2} \approx 6 \times 10^{-3}$相对于所展示数据的测量精度可以忽略不计。

集体兰姆位移的有限尺寸效应

共振入射角和集体兰姆位移系综平均值随系统尺寸的变化规律如图 5所示。