arXiv:2304.06189v2 [physics.atom-ph] 1 Jul 2023

相干量子拍：受非均匀展宽掩盖的能量差光谱学

H. D. Ramachandran、J. E. Ford 和 A. C. Vutha*Department of Physics*、
University of Toronto、 *Toronto ON M5S 1A7*、 *Canada*

由于非均匀展宽，固态系统的精密光谱学颇具挑战。我们介绍了一种称为相干量子拍的技术，该技术能够在处理整个系综的同时，测量非均匀展宽分布中的微小频移。我们展示了该技术可用于提高信号强度和光谱分辨率，从而为固体中的精密测量带来优势。

I. 引言

考虑精密光谱学中的以下问题：实验人员希望测量一对近简并能级之间的微小能量差 ω_e $|e_1\rangle$和 $|e_2\rangle$。由于 $e_1 \to e_2$之间的跃迁恰好因 ω_e过小而难以直接驱动，因此通过驱动 $|e_1\rangle$、 $|e_2\rangle$与第三个状态 $|g\rangle$之间的跃迁来测量 ω_e。在这种方案中， $g \to e_i$ 跃迁的展宽限制了 ω_e 测量的精度。

这个问题对于使用固态样本搜寻超越标准模型物理的实验尤为重要 [1–3]。在这些实验中，假定的能量差 ω_e 源于新粒子或相互作用导致的某种对称性破缺，预计其数值非常小。固态系统适用于精密测量，因为在低温下，大量粒子被束缚在其运动的量子基态中。此外，这类实验还有显著的实际优势，因为对掺杂了外来.....的固态样本开展实验，

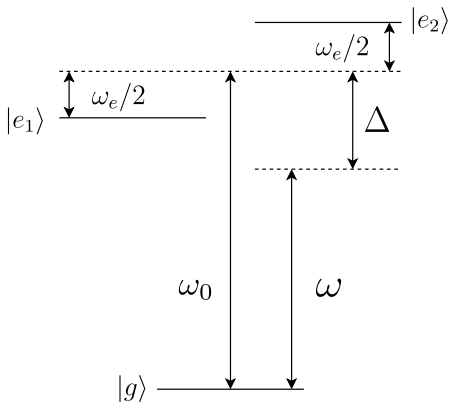

图 1. 由三个能级构成的系统，其中感兴趣的能量差（ω_e）通过对 $g \to e_1$和 $g \to e_2$ 跃迁进行光谱学测量。光的频率为 ω，而 $g \to e_1$， e_2 共振频率的平均值为 ω_0。驱动频率相对于共振频率的失谐量为 Δ。

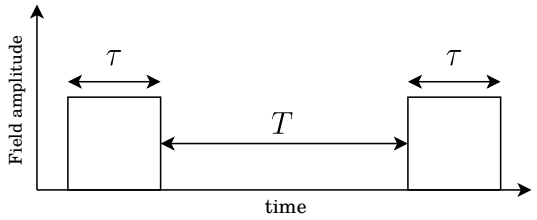

图 2. 相干量子拍测量序列由两个 π脉冲组成，脉冲宽度为 τ，两者之间间隔一个自由演化时间 T。y 轴表示电磁场的振幅（根据具体跃迁，分别为 $\mathcal{E}$场或 $\mathcal{B}$场）。

光学原子或同位素的实现可能比激光冷却和光学囚禁等传统方法更简单。然而，固态系统向来深受非均匀展宽困扰，这是由局部晶场、杂质或缺陷的分布造成的。因此，若能通过一种测量技术分辨出隐藏在非均匀展宽谱线中的微小能量位移，便可发挥固态系统在精密测量方面的潜力。这种技术也可用于窄跃迁的光学光谱学（例如 [4]），以及固态系统中的量子信息处理与存储 [5–7]。

规避非均匀展宽的一种著名方法是量子拍频光谱学 [8–10], ，它在许多领域已有长期应用历史（例如参见 [11–15] ）。这种方法的核心是利用光脉冲在状态 $|e_1\rangle$， $|e_2\rangle$ 之间建立相干性，从而使 $e_1 \to g$ 和 $e_2 \to g$衰变路径发生干涉，导致自发辐射荧光出现调制。调制（“拍频”）出现在差频 ω_e处。然而，量子拍频光谱学依赖自发辐射，因此无法用于长寿命电子态、超精细态或自旋子能级的精密测量。

在本文中，我们描述了一种相干量子拍频（CQB）光谱学方法，该方法能够测量被非均匀展宽掩盖的微小能量差，而无需依赖自发辐射。从本质上说，当近简并态通过场与其他态耦合时，CQB 利用了这些态之间产生的干涉。至关重要的是，我们表明这种干涉

对场的失谐不敏感，因此基本不受非均匀展宽的影响。因- 此，整个非均匀展宽系综都能参与测量，从而提高精- 度。我们还展示了CQB可扩展至四-能级系统（两对近简并态），从而能够测量两组能量差，且仅需极少的态制备。CQB的这些特性使得在迄今尚未探- 索的原子、分子和固态系统中开展精密测量成为可能。

II. 技术细节

本节将以一个简单的三能级系统为例，说明 CQB 技术的基本步骤。我们还将在第 II A、II C、II D 节讨论 CQB 在更真实物理系统中的应用，以及向四能级系统的扩展。

设参与测量的原子系综初始处于状态 $|g\rangle$，并考虑与频率为 ω的光相互作用的原子，如图 1 的能级图所示。我们将 $g \to e_1$、e_2 共振频率的平均值记为 ω_0，并定义失谐 $\Delta = \omega - \omega_0$。假设 $g \to e_i$（$i = 1$、2）跃迁的拉比频率相同，并将其定义为 $\Omega = \frac{1}{\sqrt{2}} \langle e_1| H_{\rm int} |g\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \langle e_2| H_{\rm int} |g\rangle$，其中 $H_{\rm int}$ 为原子-场相互作用哈密顿量。

如图 2 所示，CQB序列由两个宽度为 $\tau = \pi/\Omega$、频率为 $\omega = \omega_0$的脉冲组成，两脉冲之间相隔可变的时间间隔 T。第一个脉冲发挥的作用与传统量子拍频光谱学中的相同，即产生对光谱学所关注的两个态的相干叠加，$|\psi(0)\rangle = \alpha |e_1\rangle + \beta |e_2\rangle$。在自由演化时间 T 内，该叠加演化为$|\psi(T)\rangle = \alpha |e_1\rangle e^{+i\omega_e T/2} + \beta |e_2\rangle e^{-i\omega_e T/2}$。由于此情形下没有自发辐射，第二个$\pi$脉冲便将部分 e_1，e_2 叠加投影回 $|g\rangle$，从而闭合量子态干涉仪。因此，经过一段自由演化时间后，系统返回到 $|g\rangle$ T，该时间是 $2\pi/\omega_e$的整数倍。最后，测量 $|g\rangle$ 中的布居随 T 的变化，即可得到能量差 ω_e。基态布居P_g可通过例如使原子发生光学跃迁并测量吸收或荧光来测量。这种干涉图样是CQB的基本构成单元。

与上述基本方案类似的量子态干涉仪序列，之前已用于气相分子束测量（例如，[16]）。然而，当 ω_0 发生非均匀展宽时，是否仍可使用此类方案并不显而易见。

为了理解存在非均匀展宽时的 CQB序列，我们首先用以下哈密顿量描述$|g\rangle, |e_1\rangle, |e_2\rangle$ 基底中的三能级系统:

$$H = \begin{pmatrix} 0 & \frac{\Omega}{\sqrt{2}} \cos(\omega t) & \frac{\Omega}{\sqrt{2}} \cos(\omega t) \\ \frac{\Omega}{\sqrt{2}} \cos(\omega t) & \omega_0 - \frac{\omega_e}{2} & 0 \\ \frac{\Omega}{\sqrt{2}} \cos(\omega t) & 0 & \omega_0 + \frac{\omega_e}{2} \end{pmatrix}. \quad (1)$$

按照通常的旋转波近似，哈密顿量变为

$$\begin{aligned} H &= H_0 + H_{\rm int} \\ &= \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & \Delta - \frac{\omega_e}{2} & 0 \\ 0 & 0 & \Delta + \frac{\omega_e}{2} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 & \frac{\Omega}{2\sqrt{2}} & \frac{\Omega}{2\sqrt{2}} \\ \frac{\Omega}{2\sqrt{2}} & 0 & 0 \\ \frac{\Omega}{2\sqrt{2}} & 0 & 0 \end{pmatrix}. \end{aligned}$$

我们将传播子定义为 $D_0(t, t_0) = e^{-iH_0(t-t_0)}$ 和 $D(t, t_0) = e^{-iH(t-t_0)}$。初态 $|\Psi_i\rangle$ 经过 CQB序列演化后，变为

$$|\Psi_f\rangle = D(T + 2\tau, T + \tau) D_0(T + \tau, \tau) D(\tau, 0) |\Psi_i\rangle. \quad (2)$$

如果系统初始处于状态 $|\Psi_i\rangle = |g\rangle$，则序列结束时的布居 $P_g = |\langle g|\Psi_f\rangle|^2$ 可通过解析计算得出。

$$\begin{aligned} P_g(\tau, T, \Delta) = \frac{1}{16} \Bigg\{ & 8\sin^4\left(\frac{\Omega\tau}{2}\right)\cos(\omega_e T) + 4\cos(\Omega\tau) + 3\cos(2\Omega\tau) - 8\sin^2(\Omega\tau)\cos(\Delta T)\cos\left(\frac{\omega_e T}{2}\right) + 9 \Bigg\} \\ & + 2\left(\frac{\Delta}{\Omega}\right)\sin(\tau\Omega)\sin^2\left(\frac{\Omega\tau}{2}\right)\sin(\Delta T)\cos\left(\frac{\omega_e T}{2}\right) \\ & + 2\left(\frac{\omega_e}{\Omega}\right)\sin\left(\frac{\Omega\tau}{2}\right)\Bigg[2\cos^2\left(\frac{\Omega\tau}{2}\right)\sin\left(\frac{\omega_e T}{2}\right)\left(\cos\left(\Delta T - \frac{\Delta\tau}{2}\right) - \cos\left(\frac{\Omega\tau}{2}\right)\cos(\Delta T)\right) \\ & + \sin^2\left(\frac{\Omega\tau}{2}\right)\left(\cos\left(\frac{\Omega\tau}{2}\right) - \cos\left(\frac{\Delta\tau}{2}\right)\right)\sin(\omega_e T)\Bigg] + \mathcal{O}\left(\frac{\Delta}{\Omega}\right)^2 + \mathcal{O}\left(\frac{\omega_e}{2\Omega}\right)^2. \end{aligned} \quad (3)$$

对于 π 个脉冲，当 $\tau = \pi/\Omega$ 时，上述结果可简化为

$$P_g\left(\tau = \frac{\pi}{\Omega}, T, \Delta\right) = \frac{1}{2}\left\{1 + \cos\left(\omega_e T\right) - 4\left(\frac{\omega_e}{\Omega}\right)\cos\left(\frac{\pi\Delta}{2\Omega}\right)\sin\left(\omega_e T\right)\right\}, \tag{4}$$

与方程（4）相同的近似阶数。正如预期，基态布居随脉冲长度 T 的变化在所需的频率差 ω_e处显示出调制。接下来，我们考察共振频率 ω_0的非均匀展宽所起的作用，或等价地，考察失谐 Δ。

A. 非均匀展宽的三能级系统

我们首先直观地概述 CQB 如何在存在非均匀展宽的情况下发挥作用。请注意，非均匀展宽会影响第一束脉冲制备的相干叠加 $|\psi(0)\rangle = \alpha|e_1\rangle + \beta|e_2\rangle$，因为振幅 α 和 β 取决于广义拉比频率 $\Omega' = \sqrt{\Omega^2 + \Delta^2}$。但是，$\alpha$和 β 的取值不会改变自由演化时间 T内累积的相位。对 ω_e 的测量仅取决于累积的相位，因此不会显著受到非均匀宽度 Γ_{inh}内 ω_0 取值统计分布的影响。

为了定量考察这一效应，我们假设 Δ 的取值服从正态分布（均值为 Δ_0，半高全宽为 Γ_{inh}），并对式（4）中的 P_g 按照这一分布求平均。系综平均基态布居为

$$\left\langle P_g\left(\tau = \frac{\pi}{\Omega}, T, \Delta\right)\right\rangle = \frac{1}{2}\left\{1 + \cos\left(\omega_e T\right) - 4\left(\frac{\omega_e}{\Omega}\right)\cos\left(\frac{\pi\Delta_0}{2\Omega}\right)\exp\left[-\frac{\Gamma_{\text{inh}}^2}{16\ln 2}\left(\frac{\pi}{2\Omega}\right)^2\right]\sin\left(\omega_e T\right)\right\}. \tag{5}$$

我们发现，$\langle P_g\rangle$ 中的条纹基本不受 Δ_0 和 Γ_{inh} 的影响。非均匀分布的参数会影响式（5）中 $\sin(\omega_e T)$ 项的振幅，从而导致整体条纹偏移，但不会改变振荡相对于 T 的周期性。因此，通过测量 $\langle P_g\rangle$ 随 T 的变化，可以提取出 ω_e。重要的是，尽管非均匀展宽 $\Gamma_{\text{inh}} \gg \omega_e$ 大得多，仍然可以清晰地测量能量差 ω_e。

CQB 的这一特性可以通过不作近似的数值模拟加以验证。图 3 展示了对一个三能级原子系综施加 CQB 序列所得的结果，其中 ω_0 值取自宽度为 Γ_{inh} 的正态分布。模拟结果与我们的解析模型高度吻合，表明即使存在非均匀展宽，系综平均的基态布居中仍会持续出现相干量子拍。

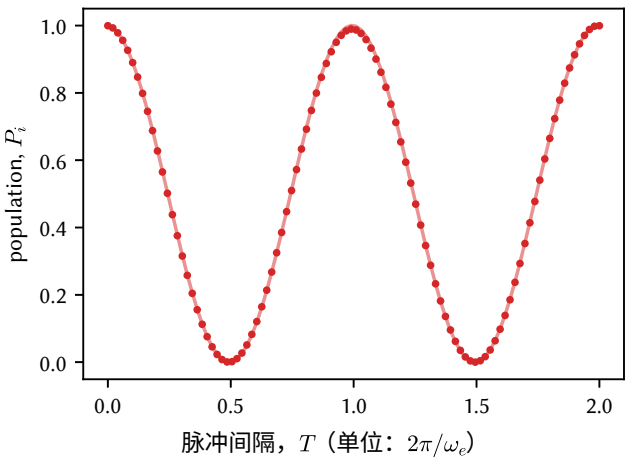

图 3. 存在 $g \to e_i$ 跃迁的非均匀展宽时，对不同自由演化时间施加共振 CQB 序列后，基态布居（点）。仿真参数为 $\omega_0 = 1$、$\Omega = 10^{-2}$ 和 $\omega_e = 10^{-4}$。布居轨迹对 Δ 进行了平均；其取自均值为零、宽度为 $\Gamma_{\text{inh}} = 1 \times 10^{-3}$ 的正态分布，共有 $N = 100$ 个样本。穿过各点的实线为方程（5）所示的解析表达式。

B. 脉冲缺陷

现在，我们来考察 CQB 技术对脉冲宽度误差和脉冲高度误差的灵敏度。为了分析这些

为考察这些影响，我们对公式 (3) 作一阶级数展开

围绕两者 $\tau = \frac{\pi}{\Omega}$ 以及 $\Delta = 0$:

$$P_g\left(\tau \sim \frac{\pi}{\Omega}, T, \Delta \sim 0\right) = \frac{1}{2}\left(\cos\left(\omega_e T\right) + 1\right) + \left(\frac{\omega_e}{\Omega}\right)\left(-\Omega\tau + \pi - 2\right)\sin\left(\omega_e T\right) + \mathcal{O}\left(\tau - \frac{\pi}{\Omega}\right)^2 + \mathcal{O}\left(\Delta\right)^2. \tag{6}$$

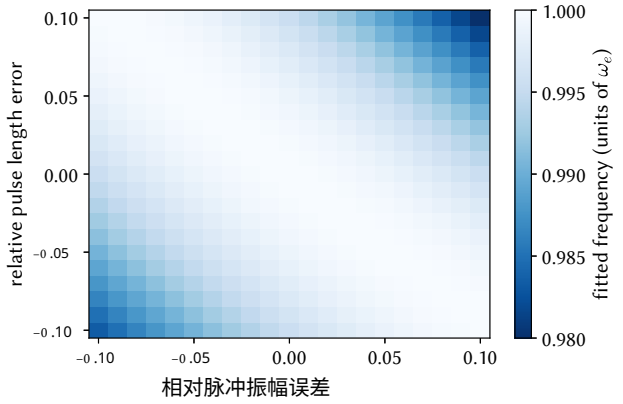

图 4. 共振相干量子拍序列后基态布居的调制频率，其中脉冲长度和振幅相对于理想的 π 脉冲发生变化。仿真参数为 $\omega_0 = 1$、$\omega_e = 10^{-4}$、$\Omega = 10^{-2}$ 和 $\Delta = 0$。

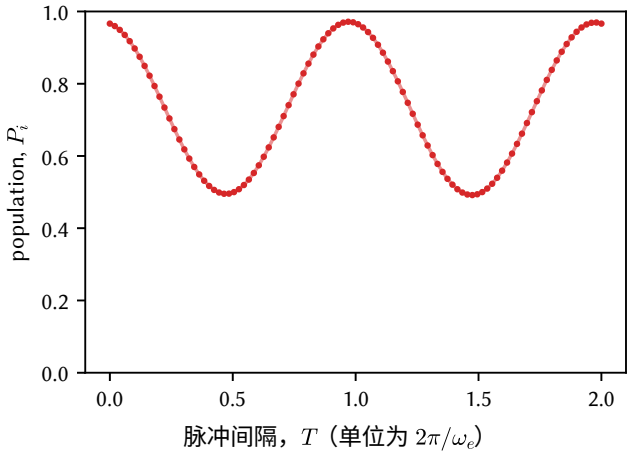

图 5. 存在 $g \to e_i$ 跃迁的非均匀展宽时，经过快速绝热通过 CQB 序列后，基态布居随不同自由演化时间的变化。仿真参数为 $\omega_0 = 1$、$\Omega = 10^{-3}$、$\omega_e = 10^{-4}$、$R = 20$ 和 $S = 80$ （参数详见正文）。布居轨迹是对失谐为 Δ 的 $N = 100$ 个样本取均值所得，这些样本来自均值为零、宽度为 $\Gamma_{\text{inh}} = 3 \times 10^{-3}$ 的正态分布。穿过数据点的实线仅用于引导视线。

如预期，公式 (6) 中的两项都显示出随 T 变化的 ω_e 调制。第二项取决于 $\left(\tau - \frac{\pi}{\Omega}\right)$，但（a）该项受到小量 ω_e/Ω 的抑制；（b）该项只会导致条纹发生偏移，而不会影响其相对于 T 的周期性。因此，对 ω_e 的测量在一阶上不受脉冲定时误差的影响。我们还注意到，该测量对 Δ 不存在一阶依赖关系。

我们使用数值模拟来理解脉冲缺陷的高阶效应，并评估相干量子拍的鲁棒性。我们考察脉冲长度相对于 π/Ω 存在 $\pm 10\%$ 误差，以及拉比频率 Ω 相对于 π/τ 存在 $\pm 10\%$ 误差时，对相干量子拍的大小和周期性的影响。我们将数值计算得到的基态布居拟合为两个频率、振幅和相位可变的正弦函数之和。图 4 显示，调制频率只会受到脉冲特性二阶效应的影响。

因此，CQB 是一种实用的精密光谱学技术，可用于测量被非均匀展宽掩盖的微小频移。我们预计，先使用标准光谱学技术（例如 Ramsey 干涉测量）估算 ω_0，然后调整 $\Delta \approx 0$ and $\Omega\tau \approx \pi$，再通过 CQB 测量以高精度获得能级劈裂 ω_e。

C. CQB 与快速绝热通过

在上述讨论中，为了便于分析，我们假设失谐 Δ（因此展宽Γ_{inh}也）相较于拉比频率 Ω 较小。这里我们将探讨放宽这一假设所带来的影响。此情形对应于“弱”激发，此时功率展宽远小于非均匀展宽。

一个显而易见的结果是，具有 $\Omega \ll \Gamma_{\text{inh}}$ 的场脉冲只能探测非均匀展宽系综中的一小部分，这将导致信号的显著损失。但值得注意的是，即使在$\Omega \ll \Gamma_{\text{inh}}$ 极限下，也可以进行 CQB测量，而不会因信号损失而受到任何影响。其关键思想是，不使用 π-脉冲将布居从 $|g\rangle$ 转移到 $|e_1\rangle$，$|e_2\rangle$的相干叠加态，而是使用较低功率的快速绝热通过（RAP）扫描来完成相同的任务。随后，经过修改的CQB序列以一个 RAP场脉冲 $F(t)$开始，其频率扫描覆盖一个

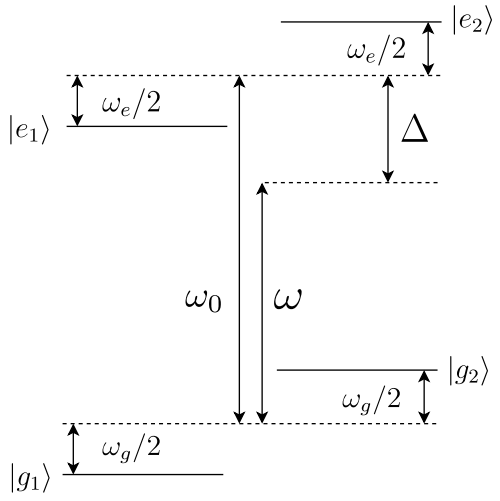

图6. 一个由四个能级组成的系统，其中感兴趣的能量差（ω_g, ω_e）通过对$g_i \to e_j$跃迁（$i,j=1,2$）进行光谱学测量。光的频率为 ω，共振频率的平均值为 ω_0。

范围 $\Gamma_{\rm inh} \equiv R\Omega > \Gamma_{\rm inh}$ 以 ω_0 为中心，在时间间隔 $\tau_{\rm RAP} = S\tau = S\pi/\Omega$内。固定啁啾速率 $\alpha = \Gamma_{\rm inh}/\tau_{\rm RAP}$，我们可以选择 R 和 S 以满足RAP标准： $|\alpha|/\Omega^2 < 1$ 和 $|\alpha|\tau_{\rm RAP}^2 \gg 1$ [17]。在这个绝热版本的CQB序列中，第一个 RAP 脉冲之后是自由演化时间 T，以及一个共-¯轭的时间反演 RAP脉冲 $F(t)$，该脉冲将布居返回到 $|g\rangle$。图 5 所示的数值结果证实，在序列结束时，系综-平均基态布居会产生定义明确的振荡，从而可以像之前一样精确测量 ω_e 。因此，CQB技术提供了一种方法，可以在一系列参数范围内测量被显著更大的非均匀展宽掩盖的小能量差。

D. 具有非相干混合的四能级系统

前面对 CQB 技术的讨论基于图 1 所示的三能级 V 型系统。但在许多与实验相关的情形中，尤其是在固态系统的精密测量领域（例如参见 [2, 3, 18]），可能存在更多能级。

因此，我们考察类似技术能否应用于四能级系统。考虑图6中的四态系统，其中两个基态 $\{|g_1\rangle, |g_2\rangle\}$ 之间相隔 ω_g，两个激发态 $\{|e_1\rangle, |e_2\rangle\}$ 之间相隔 ω_e。我们假设ω_g, $\omega_e \ll \omega_0$。在固态系统中，这种能级结构可能出现在具有自旋 $F \geq 3/2$ 的系统中，例如存在四极相互作用或晶体场 [19]的情形。在基本对称性破缺的搜寻背景下，$\{|g_1\rangle, |g_2\rangle\}$ 和 $\{|e_1\rangle, |e_2\rangle\}$ 可以是半整数自旋系统中的克рамers双重态，其中较小的能量差 ω_g, ω_e 由时间反演对称性破缺 [3]产生。

为了对这类固态系统中的典型情况进行建模，我们假设基态 $|g_1\rangle$ 和 $|g_2\rangle$ 最初处于占据状态，并在温度 $T_{\rm spin} \gg \omega_g/k_B$下达到热平衡，因此密度矩阵最初处于混合态 $\rho(0) = 1/2\,|g_1\rangle\langle g_1| + 1/2\,|g_2\rangle\langle g_2|$。为了理解CQB序列对这类混合态的影响，我们对四能级系统的密度矩阵 ρ 通过 CQB脉冲序列进行数值演化，其中四能级哈密顿量

$$H = \begin{pmatrix} -\frac{\omega_g}{2} & 0 & \frac{\Omega}{2}\cos(\omega t) & \frac{\Omega}{2}\cos(\omega t) \\ 0 & +\frac{\omega_g}{2} & \frac{\Omega}{2}\cos(\omega t) & \frac{\Omega}{2}\cos(\omega t) \\ \frac{\Omega}{2}\cos(\omega t) & \frac{\Omega}{2}\cos(\omega t) & \omega_0 - \frac{\omega_e}{2} & 0 \\ \frac{\Omega}{2}\cos(\omega t) & \frac{\Omega}{2}\cos(\omega t) & 0 & \omega_0 + \frac{\omega_e}{2} \end{pmatrix}. \tag{7}$$

这里我们假设脉冲以相等的矩阵元将每个基态耦合到两个激发态，因此 $\Omega = \frac{1}{2}\langle e_i| H_{\rm int} |g_j\rangle$ $(i,j=1,2)$。如果 $\{|g_1\rangle, |g_2\rangle\}$ 和 $\{|e_1\rangle, |e_2\rangle\}$ 是克拉默斯对，且因时间反演对称性破缺而具有较小的能量差，这就是一个合理的假设。

图 7 展示了当 $\Delta = 0$ 时，CQB 序列对四能级原子的影响。尽管初始状态为混合态 $\rho(0)$，但序列结束时基态布居中的条纹呈现出分别以 ω_e 和 ω_g 为频率的拍频，因此可以测量这两个能量差。这揭示了一个更普遍且出人意料的特点：CQB 方法适用于四能级系统，无需将基态制备为相干叠加态。这一特点大大简化了测量过程，使实验操作更简单，并提高了测量的占空比。我们还验证了，在包含 $g_i \to e_j$ 跃迁的非均匀展宽时，且处于 $\Omega > \Gamma_{\rm inh} > \max\{\omega_e, \omega_g\}$ 的范围内，CQB 仍然有效。图 8 中针对共振频率分布的计算表明，尽管存在展宽，$\langle P_g \rangle$ 中仍能得到清晰的条纹，而且整个系综 都对小能量差 ω_g, ω_e 的测量有所贡献。

III. 讨论

A. 灵敏度

CQB 技术通过改变 T，同时保持 τ 和 Δ固定，绘制出 ω_e和/或 ω_g 条纹，然后对基态布居的周期性调制拟合正弦曲线。这个过程在定性上似乎与传统光谱技术（例如拉姆齐干涉法）截然不同，

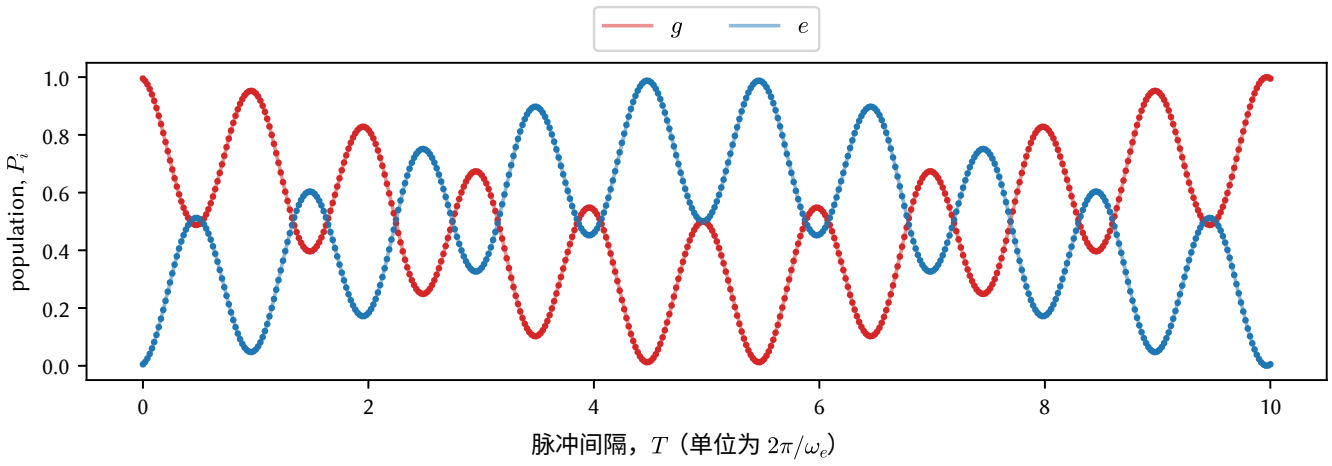

图 7. 四能级系统经过共振 CQB序列后，在不同自由演化时间下的布居。 g （e）分别表示两个基态（激发态）的布居总和。仿真参数为 $\omega_0 = 1$、$\Omega = 10^{-2}$、 $\omega_e = 10^{-3}$、 $\omega_g = 10^{-4}$ $\Delta = 0$ 和 。

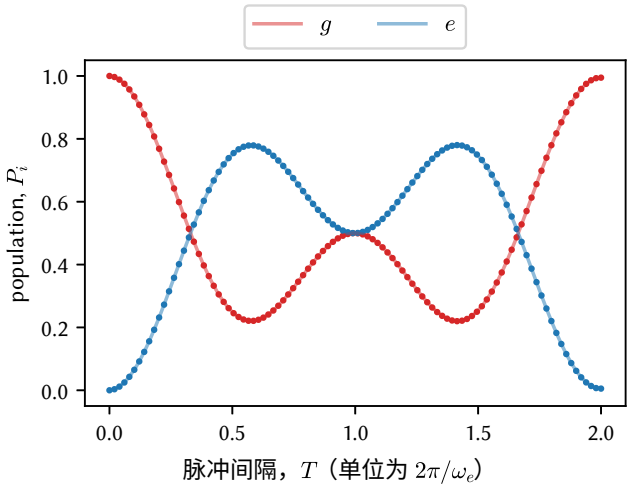

图 8. 四能级系统经过共振 CQB序列后，在不同自由演化时间下的布居；此时 $g_i \to e_j$ 跃迁存在非均匀展宽。仿真参数为 $\omega_0 = 1$、$\Omega = 10^{-2}$、 $\omega_e = 10^{-4}$ $\omega_g = 5 \times 10^{-5}$ $N = 100$ 和 。从均值为零、宽度为 $\Gamma_{\text{inh}} = 2.5 \times 10^{-3}$ 的正态分布中抽取了一组失谐 Δ 样本。

在拉姆齐干涉法中，通常改变的是场失谐。然而，这两种技术在精度的基本极限方面相当。对于 CQB，可达到的精度为 [20]

$$\delta\omega_{\text{CQB}}/2\pi = \frac{1}{\pi\mathcal{S}}\sqrt{\frac{6}{T_{\text{int}}T}}, \tag{8}$$

其中， T_{int} 是总积分时间， $\mathcal{S}$ 是一次测量的信噪比。这里我们假设每个脉冲进行一次测量。

分离时间 T （即 $T \gg \tau$）。相比之下，拉姆齐光谱学技术能够实现精确的

$$\delta\omega_{\text{Ramsey}}/2\pi = \frac{1}{2\mathcal{S}}\sqrt{\frac{1}{T_{\text{int}}T'}}, \tag{9}$$

其中 T' 是拉姆齐序列中振荡脉冲之间的间隔。

从式（8）和式（9）可以看出，CQB 技术在灵敏度方面有两个重要优势。首先，请注意， $\delta\omega$ 在两种情况下都能提高 $\propto 1/\mathcal{S}$。若要利用拉姆齐干涉测量被非均匀展宽掩盖的能量差，就必须以某种方式缩窄线宽，使 $g \to e_i$ 跃迁能够通过态读出跃迁（其非均匀宽度为 Γ'_{inh}）加以区分。在固态系统中，光谱烧孔 [21] 等技术可以获得窄于非均匀宽度的谱线，但总是以牺牲信噪比为代价，因为系综中只有一部分$\sim \frac{2\omega_e}{\Gamma'_{\text{inh}}}$ 原子会被选中。与此同时，系综中的所有原子都会对 CQB 信号作出贡献，从而在精密测量中显著提高信噪比 $\mathcal{S}$ 。

其次，为了最小化 $\delta\omega$，必须尽可能延长自由演化时间（CQB 中为T，拉姆齐光谱学中为 T' ）。自由演化时间可在不损失信号的情况下延长，直至达到系综相位相干时间。在拉姆齐光谱学中，系综相干时间 $T_2 \sim 1/\Gamma_{\text{inh}}$ 受 $g_i \to e_j$ 跃迁频率展宽 ω_0的限制。相比之下，CQB 方法对 Γ_{inh}不敏感。演化时间 T 仅受态叠加 g_i 或 e_j的相干时间 T_c 限制，而不受 $g_i - e_j$ 叠加的限制。因此，光谱分辨率随$\delta\omega \sim 1/\sqrt{T_c}$ 而非$\sqrt{\Gamma_{\text{inh}}}$提高。综合这两项优势，可实现

相较于拉姆齐方法，显著提升 $\mathcal{X} = \pi\sqrt{\frac{\Gamma_{\rm inh}\Gamma'_{\rm inh}T_c}{12\omega_e}}$ 倍。

B. 一个具体示例：Eu^{3+}:Y_2SiO_5

上一节讨论的 CQB 技术具有诸多优势，因此特别适用于精密固态光谱学，因为（a） $\Gamma_{\rm inh}$ 和 $\Gamma'_{\rm inh}$可以很大，而（b） T_c 可以远长于系综相干时间 $T_2 \sim 1/\Gamma_{\rm inh}$。作为一个具体示例，我们考虑 Eu^{3+}:Y_2SiO_5。该系统在量子信息存储领域已得到充分研究[5, 19, 22, 23], ，并被提议作为搜寻新的 T 破坏物理现象的平台 [3]。搜寻 T 破坏现象依赖于测量名义上简并的一对态（“克拉默斯双重态”）之间微小的能量差。

Eu^{3+}:Y_2SiO_5 中的相关态具有图6所示四能级系统的结构。$g_i \to e_j$ 超精细跃迁呈非均匀展宽（$\Gamma_{\rm inh}^{\rm hfs} \sim 70$kHz [5]），这给测量 e_j 态之间的亚毫赫兹间隔带来了挑战。然而，通过烧孔光谱 [24]测得，超精细态具有显著较长的相干时间（$T_c^{\rm hfs} \sim 15$ ms）。因此，将 CQB 方法应用于该系统，可以精确测量克拉默斯双重态之间的微小能量差。

与 Ramsey 方法的 $T' = T_2 \sim 1/\Gamma_{\rm inh}^{\rm hfs} \approx 2\,\mu$s 相比，CQB 的自由演化时间为 $T = T_c^{\rm hfs} \approx 15\,$ms，精度因此提高了 $\sim 55\times$ 。我们进一步估计，通过放宽状态读出时对谱孔烧蚀的要求 [23] ，系综中可用于 CQB 测量的原子数量还能增加 $10^4\times$，从而使整体 $\delta\omega$ 提高超过 3 个数量级。

IV. 总结

我们描述了一种相干量子拍频光谱学方法，即使存在显著的非均匀展宽掩盖能量差，也能测量微小的能量差。现有的固态系统光谱技术要么必须应对非均匀展宽导致的相干时间有限，要么通过只选取系综中的一小部分来测量而降低信噪比；本文所述的 CQB 方法则充分利用光谱学关注态之间的相干性，并使用系综中的所有原子。我们已证明，该方法适用于多能级系统的光谱学，并且可以利用绝热通过来寻址整个系综。我们预期，这种方法将有助于提高固态系统测量的精度。

[1]A. Vutha、M. Horbatsch 和 E. Hessels，《稀有气体基质中极性分子的取向依赖超精细结构：一种测量电子电偶极矩的方案》，Phys. Rev. A **98**, 032513 (2018). [2] J. Singh，《利用光学晶体中俘获的 Pa-229 离子搜寻时间反演对称性破缺的新概念》，Hyperfine Interactions **240** (2019). [3] H. D. Ramachandran 和 A. C. Vutha，《利用晶体中八极形变原子核搜寻核 T 破坏》（2023），arXiv:2304.10331 [physics.atom-ph]. [4] M. J. Thorpe、D. R. Leibrandt 和 T. Rosenband，《基于 Eu3+:Y2SiO5 光谱空穴燃烧的光频率基准频移》，New J. Phys. **15**, 033006 (2013). [5] N. Timoney、B. Lauritzen、I. Usmani、M. Afzelius 和 N. Gisin，《具有自旋波存储的原子频率梳存储器》，$^{153}Eu^{3+}$:Y_2SiO_5, J. Phys. B **45**, 124001 (2012). [6] M. Zhong、M. P. Hedges、R. L. Ahlefeldt、J. G. Bartholomew、S. E. Beavan、S. M. Wittig、J. J. Longdell 和 M. J. Sellars，《固体中可进行光学寻址、相干时间达六小时的核自旋》，《自然》**517**, 177 (2015). [7] T. Zhong 和 P. Goldner，《用于量子纳米光子学的新兴稀土掺杂材料平台》，Nanophotonics **8**, 2003 (2019). [8] E. Aleksandrov，Opt. i Spektroskopiya **14**, 436 (1963).

[9] J. Dodd、R. Kaul 和 D. Warrington，《脉冲光激发的共振荧光调制》，Proc. Phys. Soc. **84**，176（1964）。[10] T. Hadeishi 和 W. A. Nierenberg，《脉冲电子碰撞相干激发非简并激发态所导致的量子拍频的直接观测》，Phys. Rev. Lett. **14**，891（1965）。[11] S. Haroche、J. Paisner 和 A. Schawlow，《脉冲染料激光激发下铯蒸气中观测到的超精细量子拍频》，Phys. Rev. Lett. **30**，948（1973）。[12] E. B. Aleksandrov、N. I. Kaliteevskii 和 M. Chaika，《基于态间干涉的超高分辨率光谱学》，Sov. Phys. Uspekhi **22**，760（1979）。[13] R. Vreeker、M. Casaldoni 和 M. Glasbeek，《偶极耦合光激发三重态自旋产生的振荡相干瞬态》，Chem. Phys. Lett. **115**，69（1985）。[14] E. Hack 和 J. Huber，《分子的量子拍频光谱学》，Int. Rev. Phys. Chem. **10**，287（1991）。[15] D. Kawall、F. Bay、S. Bickman、Y. Jiang 和 D. DeMille，《PbO 亚稳态 a (1)[$^3\Sigma+$]态的精密塞曼-斯塔克光谱学》，Phys. Rev. Lett. **92**，133007（2004）。[16] C. Ho、J. Devlin、I. Rabey、P. Yzombard、J. Lim、S. Wright、N. Fitch、E. Hinds、M. Tarbutt 和 B. Sauer，《测量电子电偶极矩的新技术》，New J. Phys. **22**，053031（2020）。

[17]V. S. Malinovsky 和 J. L. Krause, 《强啁啾激光脉冲通过绝热快速实现布居转移的一般理论》, Euro. Phys. J. D **14**, 147（2001）。[18] S. J. Li、H. D. Ramachandran、R. Anderson 和 A. C. Vutha, 《氖冰中的氟化钡分子：电子自旋的俘获、光谱学与光学控制》（2023）, arXiv:2207.07279 [physics.atom-ph]。[19] J. J. Longdell、A. L. Alexander 和 M. J. Sellars, 《掺钕正硅酸钇和六水合氯化钕中的超精细相互作用表征》, Phys. Rev. B **74**, 195101（2006）。[20] M. H. Montgomery 和 D. O'Donoghue, 《时间序列数据最小二乘拟合误差的推导》, Delta Scuti Star Newsletter **13**, 28（1999）。

[21] A. Abragam和B.Bleaney*Electron paramagnetic resonance of transition ions* 2012 （牛津大学出版社，）。[22] R. Macfarlane、Y. Sun、R. Cone、C. Thiel和R. Equall, 《掺钕正硅酸钇（Y_2**107**, 310 $_5$2004SiO ）中的无序模导致的光学退相干》, J. Luminescence（）。[23] M. Zhong、M. P. Hedges、R. L. Ahlefeldt、J. G. Bartholomew、S. E. Beavan、S. M. Wittig、J. J. Longdell和M. J. Sellars, 《具有六小时相干时间的固体中可由光学寻址的核自旋》, 《自然》**517**, 177（2015）。[24] A. L. Alexander、J. J. Longdell和M. J. Sellars, 《Eu^{3+}:Y_2SiO_5, 基态超精细相干时间的测量》, J. Opt. Soc. Am. B **24**, 2479（2007）。