arXiv:2304.07974v1 [physics.atom-ph] 17 Apr 2023

铯里德伯原子 $n\mathrm{F}_J$ 能级的量子亏损

Jingxu Bai, [1]、 * Yuechun Jiao, [1]、2、 † Rong Song, [1] Jiabei Fan, [1] Jianming Zhao, [1]、2、 ‡ Suotang Jia, [1,2] 和 Georg Raithel[3], §[1] *State Key Laboratory of Quantum Optics and Quantum Optics Devices*、 *Institute of Laser Spectroscopy*、 *Shanxi University*、 *Taiyuan 030006*、 *China*
[2] *Collaborative Innovation Center of Extreme Optics*、 *Shanxi University*、 *Taiyuan 030006*、 *China*
[3] *Department of Physics*、 *University of Michigan*、 *Ann Arbor*、 *Michigan 48109-1120*（日期：2023年4月18日）

我们精确测量了铯 $n\mathrm{F}_J$ 里德伯能级的量子亏损。我们在冷原子装置中，采用高精度微波光谱学研究（$n+2$）$\mathrm{D}_{5/2} \rightarrow n\mathrm{F}_{5/2,\ 7/2}$ 跃迁， $n=45$ 至50。通过双光子激光激发制备的冷铯（$n+2$）$\mathrm{D}_{5/2}$ 原子，由扫描的弱微波场进行探测；这些微波场与原子相互作用，并扫过 $n\mathrm{F}_{5/2,\ 7/2}$共振。利用态选择性电场电离和门控离子探测采集跃迁光谱。通过对测得的谱线进行洛伦兹拟合，获得跃迁频率间隔；谱线线宽介于70千赫兹和190千赫兹之间，相当于约一至三倍的傅里叶极限。我们对相关的线移不确定度和展宽效应进行了全面分析。对于$J=5/2$ 和 $J=7/2$，我们分别得到量子亏损参数 $\delta_0(\mathrm{F}_{5/2})=0.03341537(70)$和 $\delta_2(\mathrm{F}_{5/2})=-0.2014(16)$，以及 $\delta_0(\mathrm{F}_{7/2})=0.0335646(13)$和 $\delta_2(\mathrm{F}_{7/2})=-0.2052(29)$。此外，还获得了铯 $n\mathrm{F}_J$ 的精细结构参数 A_{FS} 和 B_{FS}。我们结合先前的研究对结果进行了讨论，并阐述了这些结果的重要意义。

I. 引言

碱金属原子能级和量子亏损（包括高角动量态的量子亏损）的精确值，在检验原子结构理论和量子亏损理论，以及原子钟等应用中发挥着日益重要的作用 [1–3]，量子光学 [4–6]，以及基于里德伯原子的计量学 [7, 8]。此外，我们的研究所涉及的原子能级、原子相互作用、交流频移等方面的精确信息，对于中性原子量子计算和量子模拟中量子门的设计也十分重要 [9, 10]。高精度微波光谱学非常适合精确测量里德伯跃迁频率，因为在缓慢膨胀的冷原子云中，可以实现较长的原子-场相互作用时间和较窄的跃迁线宽。结合有效的静电场控制以减小谱线位移和展宽，精确且准确的跃迁频率测量可用于提取原子常数。其中包括低角动量和高角动量里德伯态的量子亏损；这些量子亏损既受离子型里德伯原子实中的短程多电子相互作用影响，也受价电子与离子实之间的长程偶极和四极相互作用影响 [11]。对于高ℓ ($\ell \geq 3$)态的碱金属里德伯原子，量子亏损源于离子实的极化率和精细结构。对高ℓ 量子亏损的精密测量因此能够提取核心极化率和精细结构耦合常数，从而能够与先进的原子结构计算进行比较并验证其准确性 [12–16]。

对铯量子亏损和电离能的测量最早可追溯至1949 [17, 18]。铯的能级曾通过经典方法确定，例如光栅光谱学和干涉光谱学 [19]，，借助高色散切尔尼-特纳光谱仪和空心阴极放电 [20]，，以及高分辨率傅里叶光谱学 [21]。这些测量针对较低的主量子数 n，在当时已达到最先进的准确度。此外，无多普勒激光光谱学 [22–25] 也被用于研究铯的能级。Bjorkholm 和 Liao [26, 27] 提出了一种共振增强无多普勒多光子激发方法，Sansonetti 和 Lorenzen 对其进行了实验应用，用于测量铯奇宇称态的精细结构。Goy *et al.* [28] 通过高分辨率双共振光谱学，以约 1 MHz 的准确度测量了铯的 S、P、D 和 F 里德伯能级的量子亏损（$23<n<45$）。1987年，Weber *et al.* [29] 利用非共振和共振增强无多普勒双光子光谱学，对铯的绝对能级 $n\mathrm{S}_{1/2}$、 $n\mathrm{P}_{1/2}$、 $n\mathrm{D}_{5/2}$、 $n\mathrm{F}_{5/2}$和$n\mathrm{G}_{7/2}$ 里德伯态进行了广泛测量，并获得了量子亏损。在该研究中，激光波长利用高精度法布里-珀罗腔进行测量，在大多数能级上的不确定度至多为 0.0002 cm^{-1}。这些数据至今仍被广泛用作参考值。

在本研究中，我们采用双光子激发方案对铯的 $n\mathrm{D}_{5/2}$ 里德伯态进行激光激发，并对电偶极（$n+2$） $\mathrm{D}_{5/2} \rightarrow n\mathrm{F}_{5/2,\ 7/2}$ 跃迁进行高精度微波光谱学研究。我们较为详细地描述了实验流程。随后，我们获得了共振线宽介于 70 千赫兹和 190 千赫兹之间的微波光谱，并测定——

* 这些作者对本工作贡献相同
† ycjiao@sxu.edu.cn；这些作者对本工作贡献相同
‡ zhaojm@sxu.edu.cn§ graithel@umich.edu

得跃迁频率，不确定度为几千赫兹。利用里德伯-里兹公式，我们提取了铯的两个精细结构分量 $n\mathrm{F}_{5/2,\ 7/2}$ 的量子亏损参数 δ_0 和 δ_2，并由此提取出精细结构耦合常数 A_{FS} 和 B_{FS}。我们结合以往研究讨论了这些结果。

II. 实验装置

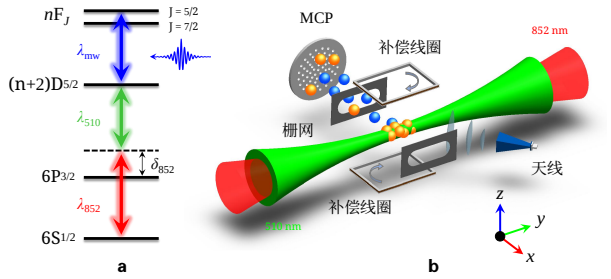


图 1. (a) 能级图和激发方案。使用波长为 $\lambda = 852$ nm 和 510 nm 的激光束进行双光子共振激发，将原子激发至 (n+2)$\mathrm{D}_{5/2}$ 态，中间态失谐为 $\delta_{852} = +330$ MHz。微波λ_{mw} 驱动 $(n+2)\mathrm{D}_{5/2} \rightarrow n\mathrm{F}_{5/2,7/2}$ 类型的里德伯跃迁。(b) 实验装置示意图（非按比例绘制）。激发激光器沿 y 方向反向传播穿过 MOT中心。微波按图示方式引入。通过态选择性电场电离和使用微通道板探测器进行的时间门控离子探测，对 $(n+2)\mathrm{D}_{5/2}$ 态原子以及经微波激发的 $n\mathrm{F}_{5/2}$ 和 $n\mathrm{F}_{7/2}$ 里德伯原子进行计数。在 x、y 和 z 轴上各放置三对栅网和补偿线圈，以补偿杂散电场和磁场（图中仅示出其中一组栅网和线圈）。金色和蓝色球分别表示激光激发的 $(n+2)$D 态原子和微波耦合的 nF 态原子。

在图1 (a)中，我们展示了实验中使用的能级图。通过所示的双光子激发方案，将原子布居到$(n+2)\mathrm{D}_{5/2}$ 态 $(n = 45-50)$。 δ_{852}= +330 MHz的中间态失谐消除了光子散射和辐射压力。激光脉冲持续时间为500 ns。制备的里德伯原子样品密度为 $\lesssim 4\times10^{6}\mathrm{cm}^{-3}$。激光制备完成后，施加持续时间为20-$\mu$s的微波脉冲，以驱动$(n+2)\mathrm{D}_{5/2} \rightarrow {}^{n}\mathrm{F}_{5/2,\ 7/2}$类型的里德伯跃迁，从而获得窄线宽微波光谱。

实验装置的部分细节如图 1 (b) 所示。铯基态原子在标准磁光阱（MOT）中经激光冷却并囚禁，温度为 $\sim$ 100 μK，峰值密度为 $\sim10^{10}\ \mathrm{cm}^{-3}$。关闭磁光阱并等待 1 ms 后，我们施加 852 nm 和 510 nm 的里德堡激发激光脉冲，其高斯光束束腰参数分别为 $w_0 = 750$ μm 和1000 μm。这两台激光器均为外腔二极管激光器，由 Toptica 制造，并锁定到高精细度法布里–珀罗腔，激光线宽因此小于 100 千赫兹。微波由模拟信号

信号发生器（Keysight N5183B，频率范围为9 kHz至40 GHz）。微波输出功率和频率扫描由Labview程序控制。关闭微波场后，沿 x轴向栅网施加电场斜坡，以对里德伯原子进行态选择性场电离 [11]。由于电离阈值不同，激光制备的$(n+2)$D态和微波耦合的 nF态里德伯原子会在不同到达时间于微通道板（MCP）探测器上产生离子信号，从而可以利用箱式积分器和数据采集卡进行态选择性记录。随后进行数据分析，得到如图2所示的光谱。

由于光束腰斑较大，双光子光学激发里德伯态的拉比频率非常小，为 $\Omega{=}\Omega_{852}\Omega_{510}/(2\delta_{852}) \approx 2\pi\times 9$ 千赫兹。因此，可避免光学跃迁中的光抽运、饱和展宽和辐射压力效应。对于 500 ns 的光脉冲持续时间，每个原子的里德伯态激发概率为 $\sim\ 2\times10^{-4}$。在磁光阱中基态原子密度为 $\lesssim 10^{10}\,\mathrm{cm}^{-3}$时，所得里德伯原子密度为 $\lesssim 4\times10^{6}\,\mathrm{cm}^{-3}$，对应样品中里德伯原子之间的距离为 ~ 25 μm。如第 IVE节所示，该密度足够低，因此里德伯原子相互作用导致的跃迁频移可以忽略不计，这对于里德伯能级的高精度微波光谱学是必要的。

III. 微波光谱学

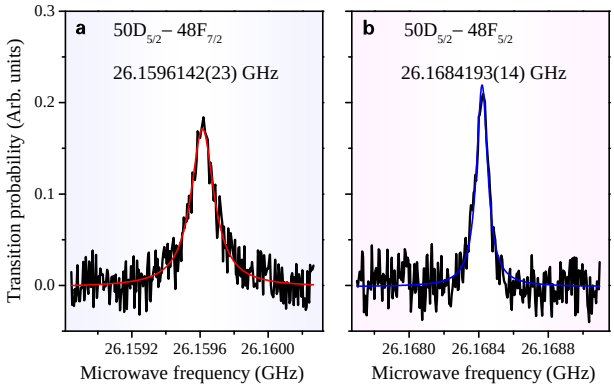


图2. 50$\mathrm{D}_{5/2}$ 至48$\mathrm{F}_{7/2}$ 跃迁（a）和48$\mathrm{F}_{5/2}$ 跃迁（b）的微波光谱测量。为提高信噪比，数据取自25次或更多次实验重复的平均值。黑线表示探测到的里德堡跃迁概率信号。彩色曲线是对光谱的洛伦兹拟合，得到的中心频率分别为26.1596142(23) GHz和26.1684193(14) GHz，括号内为统计不确定度 $\Delta\nu_{stat}$。

在实验中，我们锁定两台激发激光器的频率，以共振制备里德伯

原子处于 $(n+2)\mathrm{D}_{5/2}$ (n=45-50) 态。扫描微波频率，使其覆盖 $(n+2)\mathrm{D}_{5/2} \rightarrow {}^{n}\mathrm{F}_{5/2,7/2}$跃迁，驱动原子在这些态之间跃迁。随后通过态选择性场电离和门控离子探测，获得 $(n+2)\mathrm{D}_{5/2} \rightarrow n\mathrm{F}_{5/2,7/2}$ 跃迁的高精度微波光谱 [11]，，并进行后续数据分析。

在图 2中，我们展示了测得的 $50\mathrm{D}_{5/2}$ 到 $48\mathrm{F}_{7/2}$ (a) 和 $48\mathrm{F}_{5/2}$ (b) 跃迁的微波光谱。微波驱动脉冲的持续时间为 20 μs。洛伦兹拟合（图2中的彩色曲线）分别得到 $50\mathrm{D}_{5/2} \rightarrow 48\mathrm{F}_{7/2}$ 和 $50\mathrm{D}_{5/2} \rightarrow 48\mathrm{F}_{5/2}$的中心频率为 26.1596142(23) GHz 和 26.1684193(14) GHz，统计不确定度来自拟合，如 $\Delta\nu_{stat}$所示。由于铯 nF 里德伯能级精细结构发生反转，$48\mathrm{F}_{7/2}$ 能级的能量低于 $48\mathrm{F}_{5/2}$。洛伦兹拟合还得到 $48\mathrm{F}_{7/2}$和 $48\mathrm{F}_{5/2}$ 谱线的线宽分别约为 163 千赫兹和 78 千赫兹，比我们持续时间为 20-μs 的微波驱动脉冲对应的 50 千赫兹傅里叶极限线宽大 1.5 至 3 倍。下文将讨论谱线展宽和系统性谱线位移。

IV. 系统效应

首先，微波发生器必须锁定到参考时钟。此外，里德伯原子因其较大的极化率而对杂散直流电场敏感（$\sim n^7$），因反常塞曼效应而对背景直流磁场敏感，也会受到微波驱动场引起的交流频移以及与其他里德伯原子的相互作用的影响。为使测量得到的绝对谱线位置精确到几千赫兹以内（这是确定 $n\mathrm{F}_J$ 能级的量子亏损以及提取精细结构参数所需的频率间隔所必需的），必须仔细考虑所有这些效应导致的系统性频移。例如，必须利用斯塔克和塞曼微波光谱学，在MOT中心补偿杂散电场和磁场。我们使用三对相互独立的电场栅网和亥姆霍兹线圈 [（图中未全部显示。1 (b)]）来补偿杂散电场和磁场，使其分别低于2毫伏/米和5毫高斯。

A. 信号发生器频率

为准确测定跃迁频率，我们使用外部原子钟（SRS FS725）作为参考，锁定微波发生器的晶体振荡器。该时钟的相对不确定度为 $\pm\ 5\times10^{-11}$，因此 [30]所关注的里德伯跃迁频率偏差小于 10 Hz。由信号发生器频率不确定性导致的系统性频移可以忽略不计。

B. 背景直流磁场

虽然我们仔细地将磁场调零，但 $\lesssim 5$ mG 的不均匀度就足以使（$n+2$）$\mathrm{D}_{5/2} \rightarrow {}^{n}\mathrm{F}_J$ 谱线展宽数十千赫兹。我们通过模拟塞曼谱证实了这一点；在相关磁场范围内，这些谱线处于（B）D$n+2$）$\mathrm{D}_{5/2}$- 和 nF 里德堡态精细结构的线性（低 n）区、${}_J\mathrm{F}n+2$）$\mathrm{D}_{5/2}$ 超精细结构的帕邢－巴克区，以及（2）D$n+2$）$\mathrm{D}_{5/2}$超精细结构的过渡区。假设原子样品未极化且场偏振为线性，塞曼展宽呈对称分布，这与图 2 中两条谱线的形状一致。模拟中还纳入了（$n+2$）$\mathrm{D}_{5/2}$能级未分辨的超精细结构，这可能使测得的线宽增加约 10 千赫兹。

具体而言，随着磁场补偿场 B_x、 B_y 和 B_z 的变化，实验数据和塞曼谱模拟均显示出对称且线性的塞曼分裂，以及关于谱线中心对称的展宽效应。通过调节补偿场 B_x、 B_y 和 B_z，我们消除了塞曼分裂，并将残余磁场引起的谱线展宽降至最低。估计剩余磁场为 $\lesssim 5$ 毫高斯。塞曼谱关于谱线中心的对称性主要源于原子－场驱动中不存在圆偏振。观测到的对称性可能还与以下事实有关：原子样品未极化，且残余的低于 5 毫高斯的磁场很可能具有四极特征，在原子样品内部没有优选方向。根据任何残余磁场引起的展宽的对称性，以及任何剩余磁场的幅值都很小（$\lesssim$ 5 毫高斯），我们认为，所报告的（$n+2$）$\mathrm{D}_{5/2} \rightarrow {}^{n}\mathrm{F}_{5/2,\ 7/2}$ 跃迁频率的系统性磁频移为$\lesssim$ 1 千赫兹。因此，我们将塞曼频移不确定度取为 1 千赫兹。在整个数据采集期间，我们每天都对直流磁场补偿进行了验证。

C. 背景直流电场

斯塔克效应通常会导致不对称的谱线展宽，更重要的是，还会造成净谱线位移。因此，必须特别注意补偿斯塔克效应。电场补偿过程详见 [31]。此处我们提供相关细节。

图 3显示了图 2中所示微波光谱峰值的频移，该频移对应于 $50\mathrm{D}_{5/2} \rightarrow 48\mathrm{F}_{5/2}$ 跃迁，并随沿 $x-$、 $y-$ 和 $z-$ 方向施加到补偿电极上的电压而变化。水平虚线标出零频移，即零电场下 $50\mathrm{D}_{5/2} \rightarrow 48\mathrm{F}_{5/2}$ 跃迁的共振频率。二次拟合（蓝色曲线）得出为实现最佳直流电场补偿而需施加到相应电极上的电压（黑色竖线；各面板中给出了电压值及拟合不确定度）

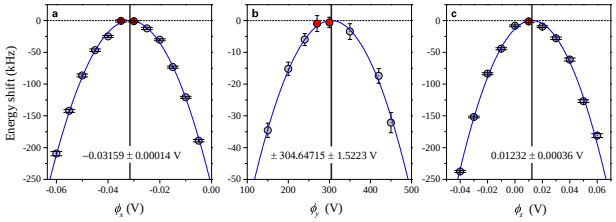


图3. $50D_{5/2} \rightarrow 48F^{5/2}$ 跃迁频移随施加于电场补偿电极上的电压变化的测量结果，分别沿 (a) ϕ、(b) x 和 (c) y 方向。在 (a) 和 (c) 中，我们将补偿电压施加到一个电极上，另一个对应电极则接地或设为地电位 z见图 1 (b)]。在 (b) 中，我们将图示电压以相反极性施加到两个 y–电极上；补偿电压的整体幅值较大，是因为电极距离原子所在位置较远，且受到有效屏蔽。数据呈现出预期的二次斯塔克频移特征，与模拟结果吻合良好。五个红色数据点用于估算本研究报告的跃迁频率的系统性直流斯塔克频移。

。系统性直流斯塔克频移造成的系统不确定度，是通过计算三个拟合函数顶点附近最近的五个数据点（红色数据点）的频移均方根离散度来估算的。这五个点平均值的均值标准误差为 0.62 千赫兹，而根据各个数据点的不确定度得到的净不确定度为 0.7 千赫兹。因此，我们将 $\Delta\nu_{EDC}$ 系统性直流斯塔克频移的保守估计值定为 $\Delta\nu_{EDC} = 1$ 千赫兹。值得注意的是，为了在整个数据采集过程中保持最佳补偿，我们已确认每日均进行了直流杂散电场补偿。利用已知的跃迁频率极化率 $\Delta\alpha \approx 600$ 千赫兹/(V/m)^2 （对磁量子数 m_j的所有取值取平均），并注意到跃迁的斯塔克频移为 $-\alpha E_{DC}^2/2$，可知 1 千赫兹的系统性直流斯塔克频移相当于原子所在位置约 2 毫伏/米的直流电场不确定度。

D. 交流频移

接下来，我们评估交流斯塔克效应导致的系统性频移。通过改变合成器输出功率，调节原子所在位置的微波强度。在图4 （a）和（b）中，我们展示了测得的频率间隔随微波输出功率的变化。对于图$_{5/2} \rightarrow 484\,^{7/2}$ （a）中的 50D4 （a）所示的跃迁，当微波功率低于 0。5 P_0时，以$P_0 = -50$ dBm（信号发生器上的参考电平）为参照，我们发现该跃迁没有可观测到的交流频移。在这一微波功率范围内，谱线位置的统计波动

范围小于 ≈ 2 千赫兹。在这里，我们可以在此功率范围内进行多次测量并对结果取平均，以提高统计精度。图中跃迁频率对应的数据点4 (a) 已列入表I。

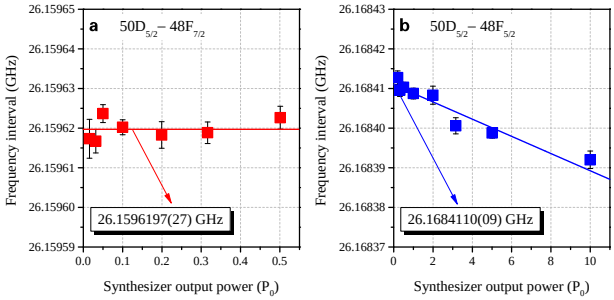


图4. $50D_{5/2} \rightarrow 48F^{7/2}$ （a）和 $50D_{5/2} \rightarrow 48F^{5/2}$ （b）跃迁的频率随合成器输出功率的变化，功率单位为 $P_0 = -50$ dBm。谱线中心及其不确定度由微波光谱的洛伦兹拟合得到。该测量量化了两个跃迁的交流频移。

对于图4 (b)中的$50D_{5/2} \rightarrow 48F^{5/2}$ 跃迁，我们观察到，驱动该跃迁所需的微波功率约为驱动$50D_{5/2} \rightarrow 48F^{7/2}$ 跃迁所需功率的20倍。这一观察结果与我们计算得到的微波拉比频率一致：对 m_j取平均后，$50D_{5/2} \rightarrow 48F^{5/2}$ 跃迁的拉比频率约为$50D_{5/2} \rightarrow 48F^{7/2}$ 跃迁的五分之一。因此，我们预计，为获得高度相近的谱线（如实验中所观察到的），$50D_{5/2} \rightarrow 48F^{5/2}$ 跃迁所需的功率约为$50D_{5/2} \rightarrow 48F^{7/2}$ 跃迁的25倍。此外，$50D_{5/2} \rightarrow 48F^{5/2}$跃迁存在显著的交流频移，这是因为驱动该跃迁所需的微波功率较高，同时扰动跃迁$50D_{5/2} \rightarrow 48F^{7/2}$ 的矩阵元较大。比较观测到和计算得到的交流频移，可以利用图4 (b)估算微波电场和拉比频率。估算结果表明，在功率为 $1P_0$ 时，原子所在位置的微波电场为 ~ 15 毫伏/米，拉比频率约为50千赫兹。这一估算与以下事实十分吻合：使用我们的 20 μ米长微波脉冲时，需要约 $1P_0$ 的微波功率才能使$50D_{5/2} \rightarrow 48F^{5/2}$跃迁达到饱和。用于探测强 ~ 25 倍的$50D_{5/2} \rightarrow 48F^{7/2}$ 跃迁的最低微波电场约为 ~ 1 毫伏/米 [见图4 (a)] 。经过这些一致性检验后，我们对图4 (b)中的数据进行线性拟合，并将纵截距作为$50D_{5/2} \rightarrow 48F^{5/2}$ 跃迁零微波场跃迁频率的最佳估计值。在图4 (b)以及表 I 中的类似数据中，我们报告了零微波场跃迁频率和线性拟合所得纵截距的不确定度。因此，交流频移的影响已计入统计拟合不确定度，无需另行处理。

E. 里德堡原子相互作用导致的频移

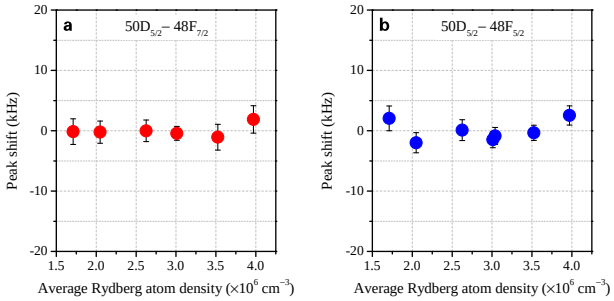


图5. $50D_{5/2} \rightarrow 48F_{7/2}$ (a)和$50D_{5/2} \rightarrow 48F_{5/2}$ (b)跃迁的谱线频移随估算的里德堡原子密度的变化。谱线中心及其不确定度由微波光谱的洛伦兹拟合得出。测量结果表明，里德堡原子相互作用对所报告的跃迁频率没有可测量的影响。

最后，我们考察原子相互作用的影响。里德堡能级可能因普遍存在的各种偶极相互作用和更高阶范德瓦耳斯相互作用而发生频移 [32], ，对于二阶偶极相互作用，n^{11}/R^6 其标度关系为（R 为核间距）。然而，在本实验中，主要的相互作用来自处于（$n+2$）$D_{5/2}$ 态和 n F_J 态的原子之间的共振电偶极耦合；在光学激发和微波激发过程中，这些态会被布居。因此，主导的里德堡原子相互作用标度关系为 n^4/R^3。为了探究这些相互作用可能导致的跃迁频率频移，我们改变510纳米里德堡激发激光的功率，以改变样品中的里德堡原子密度。由于光学双光子激发远未达到饱和，这种方法能够有效地改变里德堡原子密度。随后，我们考察谱线频移是否随里德堡原子密度而变化。

图5 (a)和(b)分别显示了$50D_{5/2} \rightarrow 48F_{7/2}$和$50D_{5/2} \rightarrow 48F_{5/2}$ 跃迁的实测谱线频移随里德堡原子密度的变化。可以看出，对于估算的里德堡原子密度 $\lesssim 4 \times 10^6\ \mathrm{cm}^{-3}$，密度诱导谱线频移小于数据点的统计波动，在图5中约为几千赫兹。考虑到平均原子密度略低于估算的峰值密度，估计图5所示最高密度下里德堡原子之间的核间距为 $\gtrsim 25\mu\mathrm{m}$。

为对密度频移进行理论估算，我们选取一个有代表性的案例，采用[5/2] 中提出的方法，计算了 $50D_J$ 态和 48F[33, 34]态里德伯原子不同组合的双原子分子势。结果发现，两个 $50D_{5/2}$态原子之间的主导相互作用是偶极范德瓦耳斯型相互作用，其标度关系为 C_6/R^6，色散系数为 $C_6 \sim 3.5\ \mathrm{GHz}\,\mu\mathrm{m}^6$。两个 $48F_J$态原子之间的主导相互作用同样是偶极范德瓦耳斯型相互作用，其色散系数为 $C_6 \sim -20\ \mathrm{GHz}\,\mu\mathrm{m}^6$。在核间距为 $30\ \mu\mathrm{m}$ 时，由此产生的能级位移仅为几十 Hz，可以忽略不计。$50D_{5/2}$ 态和 $48F_J$态混合组成的原子对通过共振偶极相互作用发生强得多的相互作用，其标度关系为 C_3/R^3。我们得到，$50D_{5/2}+48F_{7/2}$ 原子对的数值为 $|C_3| \sim 2.6\ \mathrm{GHz}\,\mu\mathrm{m}^3$，而 $50D_{5/2}+48F_{5/2}$ 原子对的数值为 $|C_3| \sim 0.16\ \mathrm{GHz}\,\mu\mathrm{m}^3$（对允许的核间轴角动量投影所对应的所有分子势取平均）。$50D_{5/2}+48F_{7/2}$ 的 $|C_3|$ 系数约为 $(n^{*2}ea_0)^2/(4\pi\epsilon_0)$，这是共振偶极耦合的近似最大值（$n^*$ 为有效量子数）。$50D_{5/2}+48F_{7/2}$ 与 $50D_{5/2}+48F_{5/2}$ 的 C_3 系数之比很大，这是由角矩阵元造成的，也与本研究所考察的 $50D_{5/2} \rightarrow 48F_J$ 微波跃迁的拉比频率平方存在同样的差异有关。对于间距为 $30\ \mu\mathrm{m}$ 的原子对，$50D_{5/2}+48F_{7/2}$ 的谱线位移约为 100 kHz，$50D_{5/2}+48F_{5/2}$ 的则约为 6 kHz。$50D_{5/2}+48F_{7/2}$ 的 96 个偶极相互作用势（以及 $50D_{5/2}+48F_{5/2}$ 的 72 个）关于渐近能量近似对称（即吸引势与排斥势的数量相同，且正、负 C_3 系数的绝对值趋于相等），并且分布相当均匀。对于间距为 $30\ \mu$ m 的原子对，$50D_{5/2}+48F_{7/2}$ 的平均谱线位移仅为 26 Hz，$50D_{5/2}+48F_{5/2}$ 的则为 150 Hz。因此，里德伯原子相互作用导致的谱线位移可以忽略不计；相互作用的主要影响是使 $50D_{5/2} \rightarrow 48F_{7/2}$ 微波跃迁发生谱线展宽，而不会造成显著频移。模拟结果与图5中的实验观测一致：两个跃迁均未测得密度依赖的谱线位移。因此，本研究忽略了里德伯原子相互作用造成的系统性频移。

总结上述关于系统性频移的讨论，以下假定直流电场和磁场频移各自具有 1 千赫兹的系统不确定度。将这些不确定度与统计不确定度按平方和开方合成。所有其他系统效应要么小得多，要么已包含在测量的统计不确定度中。图 7/22 中 48F谱线的额外展宽，以及其他相近 n值的类似数据，归因于里德堡原子相互作用引起的对称频移；这种作用对 $nF_{7/2}$谱线的影响约为对 $nF_{5/2}$谱线的二十倍。在我们的测量精度范围内，偶极里德堡原子相互作用对谱线中心没有可测量的影响。值得注意的是，图 2所示 $48F_{7/2}$和 $48F_{5/2}$谱线的对称展宽差异，以及其他相近 n值中观察到的类似差异，不能归因于 MOT 中心残余磁场的差分效应。

V. 结果与讨论

A. 跃迁频率

表 I. $(n+2)\mathrm{D}_{5/2} \rightarrow n\mathrm{F}_J$ 跃迁的测得的跃迁频率及统计不确定度汇总。

n	$\mathrm{F}_{5/2}$	$\mathrm{F}_{7/2}$
45	31.793 121 7(13)	31.782 448 6(30)
46	29.753 223 1(13)	29.743 238 6(39)
47	27.884 148 5(11)	27.874 789 8(18)
48	26.168 411 0(09)	26.159 619 7(27)
49	24.590 605 6(37)	24.582 325 2(16)
50	23.137 146 3(13)	23.129 352 9(33)

我们对 $(n+2)\mathrm{D}^{5/2} \rightarrow {}^{n}\mathrm{F}_{5/2,7/2}$ 跃迁进行了n = 45-50 的一系列微波光谱测量。提取出的跃迁频率间隔及其统计不确定度 $\Delta\nu_{stat}$ 列于表 I中。可以看出，统计不确定度介于 1 千赫兹和 4 千赫兹之间。正如第 IV节所述，交流频移不确定度已计入统计不确定度，忽略了里德伯密度频移，直流电场和塞曼系统不确定度各为 1 千赫兹。因此，下文使用的总不确定度 $\Delta\nu$为由下式给出

$$\Delta\nu = \sqrt{\Delta\nu_{stat}^2 + 2(\mathrm{kHz}^2)} \quad , \tag{1}$$

取自 $\Delta\nu_{stat}$ 表 I。

B. n与 nF_J能级的量子亏损

从初始里德伯态（n， ℓ， J）到末态（n'， ℓ'， J'）的跃迁频率遵循

$$\nu_{n,\ell,J}^{n',\ell',J'} = R_{\mathrm{Cs}}c\Big[\frac{1}{(n-\delta_{n,\ell,J})^2} - \frac{1}{(n'-\delta_{n',\ell',J'})^2}\Big] \quad , \tag{2}$$

其中，初态和末态的量子亏损分别为$\delta_{n,\ \ell,\ J}$和$\delta_{n',\ \ell',\ J'}$。其中， $c = 2.99792458 \times 10^{10}$ m/s为光速，$R_{\mathrm{Cs}} = 109736.86273038(21)\ \mathrm{cm}^{-1}$ 为铯的里德伯常数，其不确定度主要由CO- DATA不确定度 R_∞决定，而铯离子和电子的质量不确定度不起显著作用。

nF_J 态的量子亏损可写为

$$\delta_F(n) = n - \Big((n+2)_D^{*-2} - \frac{\nu}{cR_{Cs}}\Big)^{-1/2} = n - s^{-1/2} \tag{3}$$

，其中 $n+$ R 是取自(n + 2)D5/2 态的有效量子数，见 [29]，和 $s = (n+2)_D^{*-2} - \frac{\nu}{cR_{Cs}}$。根据表I中的$\nu$测得的频率间隔，我们依据公式（3）得出 nF_J 的量子亏损。测得的量子亏损的不确定度为

$$\Delta\delta_F(n) = \Big|\frac{1}{2}s^{-3/2}\Big|\sqrt{\Big(\frac{\nu}{cR_{Cs}}\Big)^2\Big[\Big(\frac{\Delta\nu}{\nu}\Big)^2 + \Big(\frac{\Delta R_{Cs}}{R_{Cs}}\Big)^2\Big] + \Big[2(n+2)_D^{*-3}\Delta(n+2)_D^*\Big]^2} \quad . \tag{4}$$

铯的里德伯常数的相对不确定度 $\Delta R_{Cs}/R_{Cs} = 1.9 \times 10^{-12}$对$\Delta\delta_F$ 的贡献最小（影响可忽略），其次是我们测量的频率不确定度 $\Delta\nu/\nu$，来自表I 和公式1。表 V 中 $\Delta(n+2)_D^*$ 的量子亏损$n+2)\mathrm{D}^{5/2}$ 态的 [29] 不确定度，是我们的 $\delta_F(n)$结果不确定度的主要来源，列于表II。

我们发现，测得的量子亏损会随着主量子数的增加而显著增大， n对于 $\mathrm{F}^{5/2}$ 和 $\mathrm{F}^{7/2}$均是如此。目前精度下，不确定度都相同，因为不确定度 $\Delta(n+2)_D^*$ 是 $n+2)\mathrm{D}^{5/2}$ 态的 [29]„ 由 $A = \delta_0$- 和 $B = \delta_2$-值导出；这些值由其中表 V 所列出的 $\mathrm{D}^{5/2}$ 提供，是所有测量中不确定度的主要来源。

C. δ_0 和 δ_2 的 nF_J量子亏损参数

量子亏损可写为 [35]

$$\delta(n) = \delta_0 + \frac{\delta_2}{(n-\delta_0)^2} + \frac{\delta_4}{(n-\delta_0)^4} + \dots \tag{5}$$

其中， δ_0 和 δ_i (i=2、4、.....）是最低阶和高阶量子亏损参数。一般而言，当 n >20时，我们只考虑式（5）右侧的前两项。

在图 6 中，我们绘出了表 II 中测得的δ_F $n\mathrm{F}_J$ 态的量子亏损随 n^{*-2}的变化。随后，根据式（5）对数据进行拟合，分别得到 $nF_{5/2}$的$\delta_0(\mathrm{F}^{5/2}) = 0.03341537(70)$ 和 $\delta_2(\mathrm{F}^{5/2}) = -0.2014(16)$，以及 $nF_{7/2}$的 $\delta_0(\mathrm{F}^{7/2}) = 0.0335646(13)$ 和 $\delta_2(\mathrm{F}^{7/2}) = -0.2052(29)$。量子亏损参数 δ_0 和 δ_2 列于表 III。为了比较

表 II. 量子亏损汇总，$\delta_F(n)$，以及根据方程（3）和（4）得出的不确定度，适用于 $J = 5/2$ 和 $J = 7/2$。

n	$\delta(\mathrm{F}^{5/2})$	$\delta(\mathrm{F}^{7/2})$
45	0.03331591(65)	0.03346340(65)
46	0.03331988(65)	0.03346726(65)
47	0.03332401(65)	0.03347137(65)
48	0.03332788(65)	0.03347533(65)
49	0.03333144(65)	0.03347920(65)
50	0.03333469(65)	0.03348245(65)

以往的研究，我们还列出了在$_J$ 中获得的 [28, 29]的量子亏损。在 [29], 中，通过对 $n\mathrm{D}^{5/2}$、 $n\mathrm{F}^{5/2}$等进行非共振及共振增强多普勒无关双光子光谱学测量，获得了量子亏损。在该研究中，通过高精度法布里-珀罗干涉仪测量激光波长，直接确定能级能量；该干涉仪的测量不确定度为 0.0002 cm^{-1} （6 MHz）。而在 [28]中，通过高分辨率双共振光谱学获得了量子亏损，其中 n 在毫米波段的范围为 23 至 45，准确度约为 1 MHz。

在我们的工作中，我们通过微波光谱学测量了$n\mathrm{F}_J$ 态的量子亏损，谱线宽度约为 100 千赫兹，并由此提取出准确的里德伯能级频率间隔，其不确定度为 ~ 2 千赫兹。由于我们使用了 $n\mathrm{D}^{5/2}$ 量子亏损——

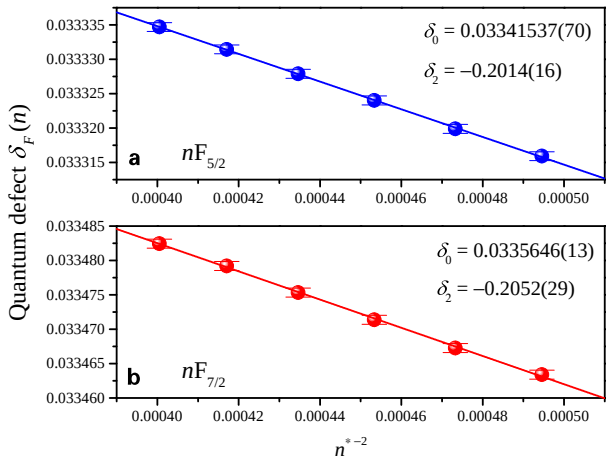


图 6. 测得的量子亏损 $\delta_F(n)$ 与 $n\mathrm{F}_J$ 能级随 n^{*-2} 的变化，适用于 $n\mathrm{F}^{5/2}$ (a) 和 $n\mathrm{F}^{7/2}$ (b)。圆圈和误差棒表示表 II中的数据。蓝色（$n\mathrm{F}^{5/2}$）和红色（$n\mathrm{F}^{7/2}$）实线表示根据式（5）得到的拟合结果，给出量子亏损参数 $\delta_0(\mathrm{F}^{5/2}) = 0.03341537\ 70$ $\delta_2(\mathrm{F}^{5/2}) = -0.2014\ 16$ $\delta_0(\mathrm{F}^{7/2}) = 0.0335646\ 13$ $\delta_2(\mathrm{F}^{7/2}) = -0.2052\ 29$ $J = 5/2$ ( ) ( ), 以及 (F) ( ) 和 (F) ( ), 分别对应 和 7/2。

——量子亏损 [29] 作为分析输入，且其不确定度是我们测量中不确定度的主要来源，因此毫不意外，对于 $n\mathrm{F}^{5/2}$，我们的结果（见表 III ）与 [29]的结果在不确定度范围内一致；此外，两者的不确定度相当。我们工作的一个主要成果是为 δ_0 和 δ_2 F 态提供了一组新的量子亏损参数 $n\mathrm{F}^{7/2}$，而参考文献 [29] 没有这方面的数据。我们的量子亏损比 [28] 中的结果精确 40 倍和 20 倍，分别对应 $n\mathrm{F}^{5/2}$ 和 $n\mathrm{F}^{7/2}$。这些数值仍与 [28]中给出的不确定度范围内一致。

表 III. 本工作及若干先前研究中 $n\mathrm{F}_J$ 能级的量子亏损参数 δ_0 和 δ_2 [28, 29]。

	δ_0	δ_2		
$n\mathrm{F}_{5/2}$	0.03341537(70)	−0.2014(16)	本工作	$(45 \le n \le 50)$
	0.033392(30)	−0.191(30)	[28]	$(23 < n < 45)$
	0.03341424(96)	−0.198674	[29]	$(6 < n < 65)$
$n\mathrm{F}_{7/2}$	0.0335646(13)	−0.2052(29)	本工作	$(45 \le n \le 50)$
	0.033537(25)	−0.191(20)	[28]	$(23 < n < 45)$

D. 精细结构间隔 nF_J

狭窄的光谱线型使我们能够清楚地区分主量子数范围为 $n = 45$ 至 50（受微波源频率覆盖范围限制）内，$n\mathrm{F}$ 里德伯态中 J=5/2 和 7/2 的精细结构。根据表 I 中 $(n+2)\mathrm{D}^{5/2} \rightarrow {}^{n}\mathrm{F}_J$ 跃迁的频率间隔 ν，我们得到了 $n\mathrm{F}_J$ 能级的精细结构分裂。图 7 展示了 $n\mathrm{F}^{5/2}$ 与 $n\mathrm{F}^{7/2}$ 之间的精细结构分裂随有效量子数 n^* 的变化。请注意，对于铯，$n\mathrm{F}$ 的精细结构是反转的，即 $J = 5/2$ 的能量高于 $J = 7/2$。精细结构归因于里德伯电子的自旋—轨道相互作用，通常用精细结构耦合常数 A_{FS} 和 B_{FS} [11] 来描述。精细结构分裂因此表示为 $A_{FS} \times n^{*-3} + B_{FS} \times n^{*-5}$。用该表达式拟合图 7 中的数据，我们得到 $A_{FS} = -978.5 \pm 6.1$ GHz 和 $B_{FS} = 1.8{\times}10^4 \pm 1.3 \times 10^4$ GHz。这些数值与先前结果 [36] 一致，且在我们的不确定度范围内（我们未能在 [36] 中找到不确定度）。

VI. 结论

我们采用微波光谱学和冷原子方法，测得跃迁频率间隔

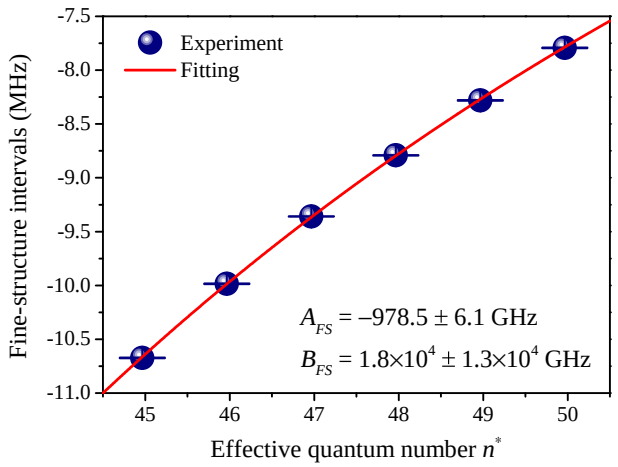


图 7. 测得的nF$_{5/2}$ 与 nF$_{7/2}$ 之间的精细结构频率间隔随有效量子数 n^*变化的关系。红色实线表示对表达式 $A_{FS} \times n^{*-3} + B_{FS} \times n^{*-5}$ 的拟合，分别得到精细结构参数 $A_{FS} =$ −978.5 ± 6.1 GHz 和 $B_{FS} = 1.8 \times 10^4 \pm 1.3 \times 10^4$ GHz。

铯的（n+2）D$_{5/2}$ → ^{n}F$_{5/2,\ 7/2}$ 跃迁，并提取了 nF$_{5/2,\ 7/2}$ 能级的量子亏损。我们对系统不确定度进行了仔细分析。对于 nF$_{5/2}$，我们的结果及不确定度与 [29]的数据吻合良好。对于 nF$_{7/2}$，我们的结果比 [28] 此前的数据精确约20倍。测得的精细结构间隔还使我们能够确定铯 A_{FS}和 B_{FS}F能级的精细结构参数；我们的结果与 n此前的数据在不确定度范围内一致。 [36]

我们对里德伯原子的内禀性质（如量子亏损）进行精确研究，这不仅对依赖此类数据的实验工作意义重大，也有助于复杂原子结构的理论研究；在这类研究中，人们常常需要实验数据来检验理论方法和结果。我们的研究不确定度受到所用输入数据不确定度的严重限制，这些输入数据用于确定初始态 nD$_{5/2}$ 的量子亏损。基于我们在本研究中已达到的频率不确定度 $\gtrsim 10$，我们预计，采用其他跃迁方案开展研究（这些方案不依赖于先前测得的量子亏损），将使我们能够把 nF$_J$ 量子亏损的不确定度降低至原来的 $\gtrsim 10$。这类方法还可能使我们能够研究更高阶的 ℓ 量子亏损，并更精确地研究里德伯原子的超精细结构。这或许还可拓展到铯 nD 里德伯态极小的超精细结构；据我们所知，此前尚未对此进行研究。

七、致谢

本工作得到国家自然科学基金委员会（项目编号：61835007、12120101004、62175136、12241408）、山西省科学技术合作交流项目（项目编号：202104041101015）、中华人民共和国教育部高校长江学者和创新团队发展计划（IRT 17R70）以及山西省“1331工程”的支持。GR 感谢密歇根大学提供的支持。

VIII. 利益披露

作者声明，与本文相关的利益冲突。

IX. 数据可用性声明

本文所呈现结果的基础数据目前尚未公开，但可应合理请求向作者获取。

X. 作者贡献

J. Z 和 R. G 设计了这项研究。J. B 和 Y. J 收集并分析了数据，撰写了原始稿件。R. S、J. F 和 S. J 参与了稿件修订。所有作者均审阅并评论了稿件的后续版本。

J. B. 和 Y. J. 对本工作作出了同等贡献。

[1] B. Bloom、T. Nicholson、J. Williams、S. Campbell、M. Bishof、X. Zhang、W. Zhang、S. Bromley 和 J. Ye，具有准确度和稳定度的光晶格钟， 10^{-18} 水平，《自然》**506**，71（2014）。[2] K. W. Martin、G. Phelps、N. D. Lemke、M. S. Bigelow、B. Stuhl、M. Wojcik、M. Holt、I. Coddington、M. W. Bishop 和 J. H. Burke，基于铷双光子跃迁的紧凑型光学原子钟，《物理评论应用》**9**，014019（2018）。[3] W. R. Milner、J. M. Robinson、C. J. Kennedy、T. Both- well、D. Kedar、D. G. Matei、T. Legero、U. Sterr，F. Riehle, H. Leopardi, T. M. Fortier, J. A. Sherman, J. Levine, J. Yao, J. Ye, and E. Oelker，基于稳定光学载波的时间尺度演示，《物理评论快报》**123**，173201（2019）。[4] B. Zhao, M. M¨uller, K. Hammerer, and P. Zoller，基于确定性里德堡门的高效量子中继器，《物理评论 A》**81**，052329（2010）。[5] T. Wilk, A. Ga¨etan, C. Evellin, J. Wolters, Y. Miroshnychenko, P. Grangier, and A. Browaeys，利用里德堡阻塞实现两个独立中性原子的纠缠，《物理评论快报》**104**，010502（2010）。

[6] L. Isenhower, E. Urban, X. L. Zhang, A. T. Gill, T. Henage, T. A. Johnson, T. G. Walker, and M. Saffman，演示中性原子受控非量子门，《物理评论快报》104，010503（2010）。[7] J. D. Carter, O. Cherry, and J. D. D. Martin，利用冷里德伯原子探测原子芯片表面微结构附近的电场，《物理评论 A》86，053401（2012）。[8] J. Sedlacek, A. Schwettmann, H. K¨ubler, R. L¨ow, T. Pfau, and J. P. Shaffer，利用蒸气室中里德伯原子的明亮原子共振进行微波电测量，《自然·物理》8，819（2012）。[9] P. Scholl, M. Schuler, H. J. Williams, A. A. Eberharter, D. Barredo, K.-N. Schymik, V. Lienhard, L.-P. Henry, T. C. Lang, T. Lahaye, A. M. L¨auchli, and A. Browaeys，利用数百个里德伯原子模拟二维反铁磁体，《自然》595，233（2021）。[10] X. Wu, X. Liang, Y. Tian, F. Yang, C. Chen, Y.-C. Liu, M. K. Tey, and L. You，里德伯原子量子计算与量子模拟简明综述*，《中国物理 B》30，020305（2021）。[11] T. F. Gallagher，*Rydberg Atoms*，《剑桥原子、分子与化学物理专著》（剑桥大学出版社，1994）。[12] M. S. Safronova, S. G. Porsev, C. Sanner, and J. Ye，中性镱的两个钟跃迁对精细结构常数变化具有最高灵敏度，《物理评论快报》120，173001（2018）。[13] C. Cheung, M. S. Safronova, S. G. Porsev, M. G. Kozlov, I. I. Tupitsyn, and A. I. Bondarev，准确预测复杂电子结构高电荷离子中的钟跃迁，《物理评论快报》124，163001（2020）。[14] M. Kaur, R. Nakra, B. Arora, C.-B. Li, and B. K. Sahoo，准确确定三价锡同位素的能级、超精细结构常数、寿命和偶极极化率，《物理学杂志 B：原子、分子与光学物理》53，065002（2020）。[15] K. Beloy and A. Derevianko，碱金属原子 p 态超精细结构的二阶效应，《物理评论 A》78，032519（2008）。[16] K. Beloy, U. I. Safronova, and A. Derevianko，高精度计算 ^{133}铯原子频率基准中的黑体辐射频移，《物理评论快报》97，040801（2006）。[17] H. R. Kratz，钾、铷和铯的主线系吸收，《物理评论》75，1844（1949）。[18] J. R. McNally, J. P. Molnar, W. J. Hitchcock, and N. F. Oliver，铯主线系的高能级，《美国光学学会杂志》39，57（1949）。[19] H. Kleiman，中性铯的干涉测量，《美国光学学会杂志》52，441（1962）。[20] K. B. S. Eriksson and I. Wen˚aker，铯 I 的新波长测量，《物理学文稿》1，21（1970）。[21] C. J. Sansonetti, K. L. Andrew, and J. Verges，铯类氢 nf 项和 ng 项中的极化、穿透和交换效应，《美国光学学会杂志》71，423（1981年）。[22] C. J. Lorenzen、K. H. Weber 和 K. Niemax，《铯 n^2s_{12} 和n^2d_{32}态的能量》，Optics Communications 33，271（1980）。[23] C. J. Lorenzen 和 K. Niemax，《铯 nd_J 项系列中量子亏损的非单调变化》，《物理学杂志A》311，249–250（1983）。[24] C. J. Lorenzen 和 K. Niemax，《中性铯中 ns、 np 和 nd 能级的精确量子亏损》，《物理学杂志A》315，127–133（1984）。[25] M. S. O'Sullivan 和 B. P. Stoicheff，《铯的无多普勒双光子吸收光谱》，《加拿大物理学杂志》61，940（1983），https://doi.org/10.1139/p83-116。[26] J. E. Bjorkholm 和 P. F. Liao，《具有共振或近共振中间态的原子蒸气中双光子吸收的线型和强度》，《物理评论 A》14，751（1976）。[27] P. F. Liao 和 J. E. Bjorkholm，《利用具有共振中间态的双光子光谱学测量原子钠中 $4f$ 态的精细结构分裂》，《物理评论快报》36，1543（1976）。[28] P. Goy、J. M. Raimond、G. Vitrant 和 S. Haroche，《铯里德伯态中的毫米波光谱学：量子亏损、精细结构和超精细结构测量》，《物理评论 A》26，2733（1982）。[29] K. H. Weber 和 C. J. Sansonetti，《中性铯的ns、 np、 nd、 nf和 ng 能级的精确能量》，《物理评论 A》35，4650（1987年）。[30] K. Moore、A. Duspayev、R. Cardman 和 G. Raithel，《利用双光子微波光谱学测量铷 g 系列的量子亏损》，《物理评论 A》102，062817（2020）。[31] J. Bai、S. Bai、X. Han、Y. Jiao、J. Zhao 和 S. Jia，《超冷原子系综中铯 ns 里德伯态极化率的精确测量》，New Journal of Physics 22，093032（2020）。[32] A. Reinhard、T. C. Liebisch、B. Knuffman 和 G. Raithel，《二体相互作用导致的铷里德伯态能级位移》，《物理评论 A》75，032712（2007）。[33] X. Han、S. Bai、Y. Jiao、L. Hao、Y. Xue、J. Zhao、S. Jia 和 G. Raithel，《由长程多极相互作用形成的铯 $62D_J$ 里德伯原子大分子》，《物理评论 A》97，031403（2018）。[34] X. Han、S. Bai、Y. Jiao、G. Raithel、J. Zhao 和 S. Jia，《铯（nd_j）^{2} 里德伯–里德伯大分子的绝热势》，《物理学杂志B》52，135102（2019）。[35] W. Li、I. Mourachko、M. W. Noel 和 T. F. Gallagher，《磁光阱中冷铷里德伯原子的毫米波光谱学： ns、np 和 nd 系列的量子亏损》，《物理评论 A》67，052502（2003）。[36] K. Fredriksson、H. Lundberg 和 S. Svanberg，《铯 $5^2d - n^2f$ 系列的精细结构和超精细结构研究》，《物理评论 A》21，241（1980）。