arXiv:2601.09585v1 [physics.atom-ph] 14 Jan 2026

# $^{173}$Yb$^+$ 离子的高分辨率光谱学

J. Jiang, [1], * A. V. Viatkina, [1,2] Saaswath JK, [1] M. Steinel, [1] M. Filzinger, [1] E. Peik, [1] S. G. Porsev, [3] M. S. Safronova, [3] A. Surzyhkov, [1,2,4] 和 N. Huntemann[1], †

[1] *Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Bundesallee 100, 38116 Braunschweig, Germany*

[2] *Institut für Mathematische Physik, Technische Universität Braunschweig, Mendelssohnstraße 3, 38106 Braunschweig, Germany* [3] *Department of Physics and Astronomy, University of Delaware, Newark, Delaware 19716, USA* [4] *Laboratory for Emerging Nanometrology, Langer Kamp 6a/b, 38106 Braunschweig, Germany*（日期：2026年1月15日）

与 Yb 的其他稳定同位素相比，$^+$ $^{173}$Yb$^+$ 具有更丰富的超精细结构，因此能实现更有利的钟跃迁、用于探测新物理的光谱技术，以及更先进的量子计算架构。然而，迄今为止，其电子光谱仍未得到充分表征。本文报告了对单个俘获的 $^{173}$Yb$^+$ 离子进行高效激光冷却、态制备和探测的研究。此前未观测到的 $^2S_{1/2} \rightarrow {}^2D_{3/2}$ 436 nm 电四极跃迁被相干激发，并以 1.4 Hz 的不确定度测定了 $^{171}$Yb$^+$ 与 $^{173}$Yb$^+$ 在该跃迁上的同位素位移。通过微波光谱学，我们以低于 $10^{-8}$ 的相对不确定度分辨出了 $^2D_{3/2}$ 态的超精细结构（HFS）。根据超精细结构测量数据，我们推得 $^{173}$Yb 的核磁八极矩 $\Omega = -0.062(8)$ (b $\times \mu_N$)，其不确定度较以往研究降低了两个数量级以上。数据还使我们能够确定 $^2S_{1/2}$ 态和 $^2D_{3/2}$ 态的超精细异常。

不同同位素的囚禁 Yb$^+$ 离子已应用于各种基础研究和实际用途。对核自旋为零的 Yb$^+$ 离子进行同位素位移光谱学，已用于寻找新玻色子以及研究高阶原子效应和核效应 [1–3]。核自旋为 1/2 的 $^{171}$Yb$^+$ 离子则被用于构建基于 $^2S_{1/2} \rightarrow {}^2D_{3/2}$ [4, 5] 和 $^2S_{1/2} \rightarrow {}^2F_{7/2}$ [6, 7] 跃迁的高精度光学钟；这些跃迁发生在 $m_F = 0$ 塞曼能级之间，且不受一阶磁场影响。这些光学钟已用于寻找局域洛伦兹对称性破缺 [8], 、精细结构常数的时间变化 [9], 以及超轻暗物质 [10]。此外，$^{171}$Yb$^+$离子因相较于其他离子种类具有技术优势，也被选用于构建量子计算机 [11, 12]。

与其他稳定同位素的单电离镱相比，$^{173}$Yb$^+$ 因其形变原子核和 5/2 的较大核自旋，是拓展现有研究的有前景候选对象。这些研究包括：利用 $^2S_{1/2} \rightarrow {}^2D_{3/2}$ [13] 跃迁研究原子核与电子之间依赖核自旋的宇称非守恒（PNC）相互作用；基于 $^2S_{1/2} \rightarrow {}^2F_{7/2}$ 跃迁研制更精确的光学钟，正如参考文献 [14] 所预测，由于基态与激发态之间的耦合更强，探测光频移得以减小；通过测量具有较大角动量[15] 的态丰富的超精细结构（HFS），研究核形变和高阶核矩；以及构建基于量子多能级系统的量子信息架构 [16, 17]。此外，$^{173}$Yb$^+$ 与$^{171}$Yb$^+$ 离子之间的差分研究，例如宇称非守恒比值 [13, 18] 和超精细反常 [19], ，可受益于二者相似的电子结构，从而显著减少所需的以高精度预测能量差所需的理论工作量。

尽管前景广阔，但对 $^{173}$Yb$^+$ 离子的研究迄今仍受其更复杂的超精细结构所阻碍（见图1）。针对这种同位素的实验，利用缓冲气体冷却的囚禁离子的激光-微波双共振光谱测量了其 $^2S_{1/2}$ 基态超精细结构 [20], ，并展示了通过反复激发 $^2F_{7/2}$ 跃迁并随后发生自发衰变，在激光冷却的囚禁离子中实现 $^2S_{1/2} \rightarrow {}^2D_{5/2}$态制备 [21, 22]。

本文展示了利用与态探测兼容的方案，对单个受囚禁 $^{173}$Yb$^+$ 离子进行接近多普勒极限的激光冷却 $^2D_{3/2}$。我们利用该方案，对此前未观测到的 $^2S_{1/2} \rightarrow {}^2D_{3/2}$ 436 nm处的电四极（E2）跃迁进行相干光谱测量（见图1）。测得$^{171}$Yb$^+$ 与 $^{173}$Yb$^+$ 在该跃迁上的同位素位移，不确定度为1.4 Hz。利用E2跃迁和态探测进行态制备，可将离子投影到所需的量子态。在此方法基础上进一步扩展，我们开展了不确定度达到赫兹量级的微波（MW）光谱测量，以测定 $^2S_{1/2}$ 和 $^2D_{3/2}$ 态的超精细结构。前者可作为原位磁场传感器，用于表征两项测量中的二阶塞曼效应。根据测得的 $^2D_{3/2}$态超精细结构，我们推断出$^{173}$Yb 的核磁八极矩，其不确定度相较于先前研究降低了两个数量级以上。这项测量有助于解决近期关于 [15] Yb核八极矩的 $^{173}$争议，并且还揭示了Yb [23] 离子的 $^2D_{3/2}$ 态中显著的差分超精细反常$^+$。

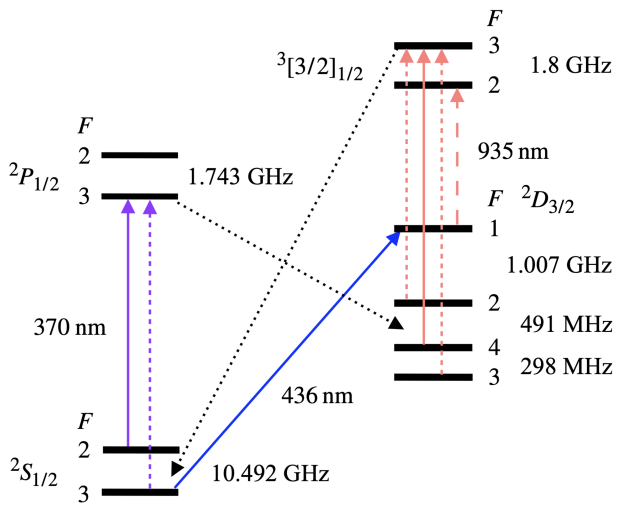


图 1. $^{173}Yb^+$ 的简化能级图（非按比例绘制）。在 370纳米处的 $^2S_{1/2} \rightarrow {}^2P_{1/2}$ 跃迁用于实现激光冷却。离子衰变至 $^2D_{3/2}$ 态会导致冷却循环中断，利用 935纳米处的再抽运跃迁可避免这种情况。点线表示自发衰变，实线表示施加的激光辐射，虚线表示使用电光调制器产生的激光辐射的其他光谱分量。长虚线所示的分量负责使 $^2D_{3/2}(F = 1)$能级的布居减少，因此在态探测期间会将其关闭。

近期，实验上已实现对激光冷却的 $^{173}Yb^+$ 离子进行光谱学测量 [21, 22]。与这些研究不同，本文提出了一种与 $^2D_{3/2}$ 态探测兼容的激光冷却方案，其灵感来自针对 $^{171}Yb^+$ [24]的相应研究。由于在激光冷却过程中会对 $^2D_{3/2}$态进行再泵浦，以抑制从 $^2P_{1/2}$ 态产生的分支跃迁，因此激发后处于$^2D_{3/2}$ 态的布居，可能无法通过施加冷却激光辐射时荧光的消失来探测（见图1）。为避免$^2D_{3/2}$ 态发生非期望的耗尽，我们考虑电偶极选择定则，并分别选择 $^2P_{1/2}(F = 3)$和 $^3[3/2]_{1/2}(F = 3)$作为冷却跃迁和再泵浦跃迁的激发态。前一种选择可防止离子在激光冷却过程中衰变至$^2D_{3/2}(F = 1)$。后一种选择则确保最初处于 $^2D_{3/2}(F = 1)$态的离子不会被泵回冷却循环。因此，在施加冷却激光辐射时，可以通过荧光的消失（暗态）探测该态的布居。

为实现高效的激光冷却，必须驱动所有会被布居的超精细能级。我们调节激光频率，使其共振激发 $^2S_{1/2}$ $F = 3$ ( ) $\rightarrow$ $^2P_{1/2}$( ) ( 纳米) 和 $^2D_{3/2}$( ) $F = 2$ 370 $F = 4$ $^3[3/2]_{1/2}$ $F = 3$ 935 $\rightarrow$ ( ) ( 纳米) 跃迁。将微波信号施加到电光调制器（电光调制器）上，以产生其余所需光谱分量。

在 935纳米光的电光调制器上施加 3.332 GHz 的微波音调，以驱动 $^2D_{3/2}(F = 1) \rightarrow {}^3[3/2]_{1/2}(F = 2)$ 跃迁。这是为了避免激光冷却期间发生罕见的非共振布居后，或在预定激发成功进行 $^2D_{3/2}(F = 1)$ 态探测后，出现长时间的暗期。因此，在用于态探测的 4 ms 荧光收集期间会关闭此音调；其探测保真度受限于 $^2D_{3/2}(F = 1)$ 态的寿命（见补充材料 [25]）。与采用 $^2D_{3/2}(F = 4)$ 作为暗态的替代方案相比，由于 $^2D_{3/2}$ 态的 $F = 1$ 与其他超精细能级之间的分裂较大，本文所述方法具有更高的本征探测保真度。

进行光谱学测量时，我们重复一个基本的探测序列，该序列以持续 6 毫秒的多普勒冷却开始。随后，关闭施加到用于产生 370 nm 激光辐射的电光调制器上的微波信号，以将离子制备到 $^2S_{1/2}(F = 3)$态。下文将讨论如何进一步将离子制备到特定的塞曼能级。使用单个矩形探测脉冲，将离子从基态跃迁至激发态。之后，如上所述，使用共振激发脉冲将任一状态映射至 $^2D_{3/2}(F = 1)$ 态，以探测是否成功激发。

在实验中，单个 $^{173}Yb^+$ 离子被囚禁在保罗端盖阱 [26]中，该离子阱在超高真空条件下运行。径向和轴向囚禁频率分别为$\omega_{x,\ y}/2\pi = 598(5)$ 千赫和 $\omega_z/2\pi = 1197(9)$ 千赫。通过同位素选择性双光子电离（399 和 370纳米） [32]，将含有金属镱的电阻加热炉中的离子装载至囚禁中心。施加一个$\vec{}$恒定磁场 $B$，其范围为 130 $\mu$T 至 260 $\mu$T，方向垂直于囚禁轴（$z$-轴），以在激光冷却过程中使相干暗态失稳 [33]，并在光谱学测量期间提供确定的塞曼频移（实验装置详情见补充材料 [25] ）。370 纳米冷却光束与399纳米电离光束重合，在阱的所有主轴方向上几乎具有相同的投影。另有两束370纳米激光束，可将各个方向上的过量微运动降至最低 [34]。935纳米再泵浦光束与436 nm E2 激光$\vec{}$束重合，位于由 $z$-轴张成的平面内，并与两个方向的夹角均约为 45° 。荧光由光电倍增管收集，用于探测。用于微波光谱的天线安装在$\vec{}$真空腔前方，沿着 $B$放置。该系统最初使用 $^{171}Yb^+$ 作为单离子光学钟运行，其频移效应已得到研究。与独立的 $^{171}Yb^+$ 钟 [6] 进行比较后发现，两者在 $< 10^{-16}$ 不确定度范围内一致；对于436 nm 跃迁，这相当于 $< 100$ 毫赫。

利用这一装置，我们通过探测$^{173}Yb^+$ 离子的 $^2S_{1/2}(F = 3) \rightarrow {}^2D_{3/2}(F =1)$ 436 nm 处的 E2 跃迁（见图 2(a) ），研究其原子结构，并采用

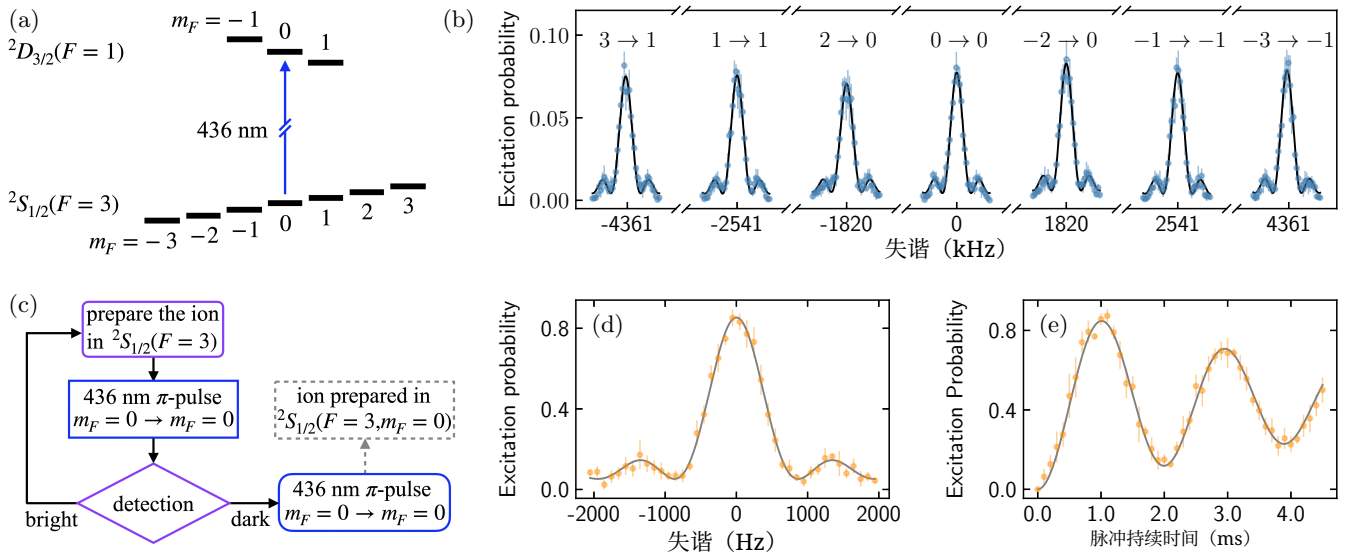


图 2. (a) 与 $^2S_{1/2}(F=3) \rightarrow {}^2D_{3/2}(F=1)$ E2跃迁相关的能级图，显示了所有塞曼能级。(b) 从 $^2S_{1/2}(F=3)$ 态的各个塞曼能级出发，在 E2跃迁上进行 $\pi$ 脉冲激发所得的光谱。(c) 利用 E2跃迁进行投影态制备（PSP）的流程图。在探测过程中未检测到荧光（暗态），表明 436 nm 跃迁激发成功。(d) 使用 $\pi$ 脉冲激发得到的光谱，以及 (e) 使用 PSP 观测到的 $m_F=0$ 塞曼能级之间 E2跃迁上的拉比振荡。偏离完全对比度的现象归因于多普勒冷却后的离子温度以及 PSP过程的非保真度。

这一窄跃迁来制备特定的塞曼态。E2探测激光与单个 $^{171}\mathrm{Yb}^+$ 离子光钟的频率偏移锁定，并继承其 $10^{-15}$短期分数频率不稳定度 [4, 6]。通过用于产生偏移频率的直接数字合成器，可以调节激光频率。利用对 $^{171}\mathrm{Yb}^+$ 离子进行精密光谱学测量所确定的诱导光频移，优化探测激光束与囚禁离子之间的重叠。探测激光 $\vec{}$ 辐射的偏振 $E_c$ 和波矢 $k$，以及所施加的磁场 $\vec{}$ 均位于同一平面内，磁场定义了量子化轴。与 $\vec{}$ $\vec{}$ $\vec{}$ $\vec{}$ $k$ 以及 $B$之间的夹角，以及 $E_c$ 与 $B$之间的夹角，约为 45°。这种配置允许在E2跃迁上实现$\Delta m_F=0$ 和 $\Delta m_F=2$ 激发，并抑制 $\Delta m_F=1$分量。

图 2(b) 显示了从离子最初制备所在的$\mu$秒长 $\pi$ 脉冲激发各个塞曼能级$^2S_{1/2}$（$F=3$）基态的E2跃迁。鉴于最大激发概率约为10%，我们推断 $^2S_{1/2}$（$F=3$）态的各个塞曼能级具有几乎相等的初始布居。然而，对于高对比度光谱学而言，制备特定的单个塞曼能级更具优势。该方法采用了文献 [35]中首次展示的技术。我们反复施加436纳米辐射脉冲，并探测 $^2D_{3/2}$（$F=1$）态的布居，直至其被布居。随后，一个 $\pi$ 脉冲将离子转移到 $^2S_{1/2}$（$F=3$，$m_F=0$）态（流程图见图2(c)）。利用这种投影态制备（PSP），图2(d) 显示了利用1毫秒 $\pi$ 脉冲在 $^2S_{1/2}$（$F=3$，$m_F=0$）$\rightarrow {}^2D_{3/2}$（$F=1$，$m_F=0$）跃迁上获得的傅里叶受限谱。通过改变激发脉冲的持续时间，我们还观察到了该跃迁上的拉比振荡（见图2(e)）。PSP方法将对比度提高了一个数量级以上，达到80%以上。剩余的对比度偏差可由多普勒冷却后的离子温度解释，这也会导致PSP过程的非保真度。通过与预测行为进行比较（见补充材料 [25]），我们推断平均运动态为 $\bar{n}=18.5$（33），对应的离子温度为 $T=0.69$（11）毫开尔文，接近多普勒极限。需要指出的是，PSP期间反复进行的询问周期会延长制备时间。

我们采用 PSP方法进行态制备，并测定共振附近各频率对应的激发概率。将预期线型拟合至记录的数据后，我们得到中心频率。采用这种方法，我们分别测量了跃迁上

$^{171}+{}^{173}+{}^2S_{1/2} \rightarrow {}^2D_{3/2}$ $F=0 \rightarrow F=2$ $F=3 \rightarrow F=1$

Yb 与 Yb 之间的同位素位移。虽然我们测量的是 $m_F=0$ 能级之间的跃迁，但施加的磁场相对较强，因此会产生数千赫兹的二阶塞曼频移。通过比较在不同磁场强度下获得的数据，我们确定未受扰同位素位移为 6 186 981 108.3(14) Hz，其不确定度受统计限制。磁场强度由$^2S_{1/2}$ 超精细能级组的光谱学测得，具体如下文所述。

表 I. 测得的超精细分裂 $W_{FF'}$ 以及通过计入一阶（1st）和一阶与二阶（1st + 2nd）能量修正得到的超精细结构常数。最后一列所列超精细结构常数的不确定度主要由二阶能量修正的理论不确定度决定。

| 态 | 超精细分裂（Hz） | 超精细结构常数，一阶（Hz） | 超精细结构常数，一阶 + 2二阶（Hz） |
|---|---|---|---|
| $^2S_{1/2}$ | $W_{23} = 10\,491\,720\,234.7(4)$ | $A = -3\,497\,240\,078.23(13)$ | $A = -3\,497\,241\,700(600)$ |
| $^2D_{3/2}$ | $W_{12} = 1\,007\,406\,257.7(14)$ | $A = -118\,257\,076.10(26)$ | $A = -118\,258\,070(120)$ |
| | $W_{23} = 788\,396\,819.9(14)$ | $B = 963\,614\,049.4(12)$ | $B = 963\,609\,800(570)$ |
| | $W_{43} = 297\,862\,646.5(14)$ | $C = -45.10(5)$ | $C = 113(13)$ |

除了相干光学光谱学外，我们还使用以氢脉泽为参考的辐射进行微波光谱，以研究 $^2S_{1/2}$ 和 $^2D_{3/2}$ 态的超精细结构。对于前者，将离子制备在 $^2S_{1/2}(F = 3,\ m_F = 0)$ 态后，我们使用持续 10 毫秒的脉冲，驱动其在不同磁场下跃迁至 $F = 2$ 态的另一个超精细能级（$^2S_{1/2}$）。通过相应的激发光谱，我们确定了 $m_F = 0 \to m_F = 0$ 和 $m_F = 0 \to m_F = -1$ 跃迁的共振频率。将测得的频率代入布赖特-拉比公式 [36]，即可得出 $^2S_{1/2}$ 的未受扰超精细结构，以及离子所在位置的磁场强度。磁场测定的主要不确定度来源是磁性 g 因子 $g_J = 2.001(3)$ [37, 38], 的不确定度；而根据校准后的磁场强度推得的频率，其不确定度则主要受统计限制。上述磁场强度测定方法也用于上文报告的同位素位移测量，以及下文对 $^2D_{3/2}$ 态的超精细结构测量。

测量 $^2D_{3/2}$ 的超精细结构时，我们首先使用 PSP（不施加最后一个脉冲）将离子制备在（$F = 1,\ m_F = 0$）能级。若从其他初始超精细能级开始测量，则通过后续施加一个或多个微波 $\pi$ 脉冲进行制备。我们利用 $F = 1$ 能级与 $F = 2$ 能级之间的拉比振荡，研究 $^2D_{3/2}$ 态微波光谱学中的有限相干性。退相干的主要来源是 $^2D_{3/2}$ 态的辐射寿命，我们测得其为 56.3(35) ms（见补充材料 [25]）。这一结果与分别针对 $^{171}$Yb$^+$（$F = 2$）[39] 和 $^{174}$Yb$^+$ [40]测得的 61.8(70) ms 和 54.83(18) ms 相符。超精细分裂

$^2D_{3/2}$ 由采用 10 ms 微波脉冲测得的光谱推导得出，测量对象为 $m_F = 0$ 组分之间的跃迁，并外推至零磁场。

超精细结构测量的结果以超精细分裂和超精细结构常数的形式列于表 I 中 [41]。在微扰理论中将超精细相互作用按一阶处理时，测得的分裂 $W_{FF'}$ 可表示为超精细结构常数的线性组合，因而可通过解析方法确定。然而，在微扰理论中同时考虑一阶和二阶能量修正，则需采用更全面的理论处理方法，将解析推导与数值计算相结合（详见参考文献和补充材料）。

这种更高阶的方法对于达到高分辨率光谱学所要求的精度至关重要。如表 I 所示，纳入二阶能量修正后，对超精细结构常数 A 和 B 的修正量约比实验不确定度大 4 个数量级。

$^2S_{1/2}$ 态分裂比此前唯一一次测量所得结果小 4.9(4) Hz；该测量使用缓冲气体冷却的囚禁离子 [20]进行。测量 $^{171}$Yb$^+$中 12.6 GHz $^2S_{1/2}$态分裂时，激光冷却的 [42, 43]与缓冲气体冷却的 [44]囚禁离子之间也观察到类似的偏差，差值为 5.8(14) Hz。由于这些偏差与分裂值的量级相近，我们推测，这可能是早期使用缓冲气体冷却离子进行测量时所采用的频率标准有误所致 [20, 44]。

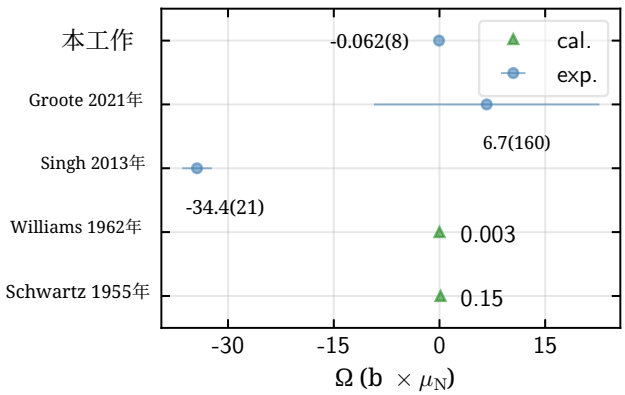


图 3. $^{173}$Yb 的核磁八极矩 Ω。数据点旁的数字表示相应的数值。基于单粒子模型（Schwartz）[15, 41]以及考虑核形变（Williams）[45] 的计算结果（cal.）以三角形表示；Singh [46] 和 Groote [47] 通过对中性 $^{173}$Yb 原子中 $^3P_2$ 态进行超精细结构光谱测量获得的实验结果（exp.），以及本工作获得的结果，均以圆形表示。

核磁八极矩 Ω 的大小

在 $^{173}$Yb 一直是科学界争论的主题，[15, 46]近年来尤甚（见图 3）。利用根据测得的超精细结构推导出的超精细常数$C = 113(13)$ Hz，以及本研究计算得出的 $C/\Omega = -1820(73)\,\mathrm{Hz}/(\mathrm{b}\times\mu_N)$，其中 b 表示靶恩，而 $\mu_N$ 表示核磁子，可得 $\Omega = -0.062(8)(\mathrm{b}\times\mu_N)$。我们注意到，Ω 对二阶能量修正[41]非常敏感。若忽略这些修正，并采用 $C = -45.10(5)$ Hz，则得到 $\Omega = 0.0248(10)\,(\mathrm{b}\times\mu_N)$，其数值甚至与更精细、准确的处理所得结果符号相反。

低激发能级、超精细结构常数和二阶能量修正的计算采用线性化耦合簇单双激发方法 [48]进行，同时也使用了 AMBiT 软件包 [49]。计算细节、理论与实验结果的比较，以及对理论不确定度的讨论，见补充材料 [25]。

如图3所示，我们测量得到的 Ω 值与 de Groote等人[47]，的结果一致，但与 Singh 等人给出的数值 [46]有显著差异。与这两项基于 $^3P_2$ 态超精细结构光谱的 $^{173}$Yb 测量相比，我们将 Ω 的不确定度降低了两个数量级以上。我们的结果表明，$^{173}$Yb 具有核理论预期范围内的核八极矩 [15, 41, 45]。

我们的超精细结构测量数据也可用于研究 [19, 23] $^{171}$Yb 与 $^{173}$Yb 之间的差分超精细反常（DHA）$^{171}\Delta^{173}$，其记作，并定义为

$$A^{171}/A^{173} = g_I^{171}/g_I^{173}(1 + {}^{171}\Delta^{173}),$$

其中，$g_I$ 是核 g 因子，$A$ 是超精细常数。将我们的结果与 [42] ($^2S_{1/2}$)和 [4]($^2D_{3/2}$)中测得的 $^{171}$Yb$^+$的超精细结构（HFS）结合，得到

$$^{171}\Delta^{173}(^2S_{1/2}) = -0.65(8)\%,$$
$$^{171}\Delta^{173}(^2D_{3/2}) = -0.41(8)\%.$$

在此计算中，我们采用了 g 因子 $g_I^{171} = 0.9898(8)$ 和 $g_I^{173} = -0.272008(12)$，它们是根据核磁共振（NMR）光谱学测得的核磁偶极矩推导得出的 [50]。DHA 值的不确定度主要由 $g_I^{171}$的不确定度决定。与八极矩 Ω 不同，$^2S_{1/2}$ 态和 $^2D_{3/2}$态的超精细反常对二阶能量修正的敏感度较低。在此精度下，纳入这些修正不会影响提取出的反常值。

DHA 用于衡量超精细结构相对于点状原子核情形的偏离程度，这一点在核磁共振实验中也有所体现。由于 $S$ 态电子波函数与原子核的重叠最大，因此预计 $S$ 态的 DHA 最大。我们的结果符合这一预期，$|^{171}\Delta^{173}\ ^2S_{1/2}| > |^{171}\Delta^{173}\ ^2D_{3/2}|$，但也表明 $^2D_{3/2}$ 态的 DHA 相当显著。我们测得的 $^2S_{1/2}$ 态 DHA 与近期的理论预测 -0.618% [19]，非常吻合，但与此前唯一的实验结果 -0.425(5)% [20] 不同。

总之，我们开发了一种适用于 $^2D_{3/2}$ 态探测的激光冷却方案，可用于囚禁 $^{173}$Yb$^+$离子。利用单个囚禁离子，并将其激光冷却至接近多普勒极限，我们首次实现了此前未观测到的 E2 跃迁$^2S_{1/2}(F = 3) \rightarrow {}^2D_{3/2}(F = 1)$的相干激发，并测量了该跃迁上 $^{171}$Yb$^+$ 与 $^{173}$Yb$^+$之间的同位素位移。我们还利用这一 E2 跃迁，实现了特定塞曼态的态制备。我们测量了所观测 E2 跃迁的基态和激发态的超精细结构，以提取 $^{173}$Yb的核磁八极矩和超精细反常。我们观测到的 E2 跃迁是研究核自旋相关宇称不守恒 [13, 51], 的一个理想候选跃迁，而这类研究可对电弱理论 [52, 53]进行一些最严格的低能检验。

在 $^{173}$Yb$^+$ 中研究的 $^2S_{1/2}(F = 3) \rightarrow {}^2D_{3/2}(F = 1)$ 跃迁，似乎是基于 $^{171}$Yb$^+$ 同位素 [4, 5]的高性能光学钟所用 $^2S_{1/2}(F = 0,\ m_F = 0) \rightarrow {}^2D_{3/2}(F = 2,\ m_F = 0)$ 跃迁的一种合适替代方案。因此，本工作也为构建基于 $^{173}$Yb$^+$ 的光学钟奠定了基础。

我们衷心感谢 Wesley C. Campbell 和 Thomas Dellaert 提供讨论，感谢 Burghard Lipphardt 和 Andreas Hoppmann 提供实验支持，感谢 William J. Eckner 仔细阅读稿件，并感谢 Si 腔团队提供稳定的光学激光参考。本工作得到了马克斯·普朗克—理研—PTB 时间、常数与基本对称性中心、德国研究联合会（DFG）通过 SFB 1227 DQ-mat 项目（项目编号 274200144）下的 B02 子项目，以及德国卓越战略——EXC-2123 量子前沿（390837967）的资助；此外，项目 23IEM03 HIOC 也提供了资助。项目 23IEM03 HIOC 获得了欧洲计量学合作伙伴关系的资助，该资助由欧盟地平线欧洲研究与创新计划及参与国共同出资。理论研究部分得到了美国海军研究办公室资助项目 N000142512105、欧盟地平线 2020 研究与创新计划下欧洲研究理事会（ERC）资助项目（协议编号 856415），以及德国研究联合会（DFG）项目 544815538 的部分支持。

数据可用性——支持本文研究结果的数据已公开提供 [54]。

* jian.jiang@ptb.de † nils.huntemann@ptb.de

[1] I. Counts、J. Hur、D. P. L. Aude Craik、H. Jeon、C. Le- ung、J. C. Berengut、A. Geddes、A. Kawasaki、W. Jhe 和 V. Vuleti´c，《镱离子同位素位移非线性的证据：光谱学搜索新玻色子》，《物理评论快报》125，123002（2020）。[2] J. Hur、D. P. L. Aude Craik、I. Counts、E. Knyazev、L. Caldwell、C. Leung、S. Pandey、J. C. Berengut、A. Geddes、W. Nazarewicz、P.-G. Reinhard、A. Kawasaki、H. Jeon、W. Jhe 和 V. Vuleti´c，《光谱学搜索新玻色子中双源King图非线性的证据》，《物理评论快报》128，163201（2022）。[3] M. Door、C.-H. Yeh、M. Heinz、F. Kirk、C. Lyu、T. Miyagi、J. C. Berengut、J. Biero´n、K. Blaum、L. S. Dreissen、S. Eliseev、P. Filianin、M. Filzinger、E. Fuchs、H. A. F¨urst、G. Gaigalas、Z. Harman、J. Herkenhoff、N. Huntemann、C. H. Keitel、K. Kromer、D. Lange、A. Rischka、C. Schweiger、A. Schwenk、N. Shimizu 和 T. E. Mehlst¨aubler，《利用镱同位素位移探测新玻色子和核结构》，《物理评论快报》134，063002（2025）。[4] C. Tamm、N. Huntemann、B. Lipphardt、V. Gerginov、N. Nemitz、M. Kazda、S. Weyers 和 E. Peik，《使用光学与微波振荡器交联的基于铯的光学频率测量》，《物理评论A》89，023820（2014）。[5] J. Stuhler、M. Abdel Hafiz、B. Arar、A. Bawamia、K. Bergner、M. Biethahn、S. Brakhane、A. Didier、J. Fort´agh、M. Halder、R. Holzwarth、N. Huntemann、M. Johanning、R. J¨ordens、W. Kaenders、F. Karlewski、F. Kienle、M. Krutzik、M. Lessing、T. Mehlst¨aubler、D. Meschede、E. Peik、A. Peters、P. Schmidt、H. Siebene- ich、C. Tamm、E. Vogt、A. Wicht、C. Wunderlich 和 J. Yu，《Opticlock：便携且易于操作的光学单离子原子钟》，《测量：传感器》18，100264（2021）。[6] N. Huntemann、C. Sanner、B. Lipphardt、C. Tamm 和 E. Peik，《具有 $3\times10^{-18}$ 系统不确定度的单离子原子钟》，《物理评论快报》116，063001（2016）。[7] A. Tofful、C. F. A. Baynham、E. A. Curtis、A. O. Parsons、B. I. Robertson、M. Schioppo、J. Tunesi、H. S. Margolis、R. J. Hendricks、J. Whale、R. C. Thompson 和 R. M. Godun，《具有 $^{171}$镱$^{+}$ 光学钟，具备 $2.2\times10^{-18}$ 系统不确定度和绝对频率测量》，《计量学》61，045001（2024）。[8] C. Sanner、N. Huntemann、R. Lange、C. Tamm、E. Peik、M. S. Safronova 和 S. G. Porsev，《用于洛伦兹对称性检验的光学钟比较》，《自然》567，204（2019）。[9] R. Lange、N. Huntemann、J. M. Rahm、C. Sanner、H. Shao、B. Lipphardt、C. Tamm、S. Weyers 和 E. Peik，《通过原子钟比较改进局部位置不变性违反的限制》，《物理评论快报》126，011102（2021）。[10] M. Filzinger、S. D¨orscher、R. Lange、J. Klose、M. Steinel、E. Benkler、E. Peik、C. Lisdat 和 N. Huntemann，《通过光学原子钟比较改进超轻玻色暗物质与光子耦合的限制》，《物理评论快报》130，253001（2023）。[11] G. N. Nop、D. Paudyal 和 J. D. H. Smith，《镱离子阱量子计算：现状》，AVS量子科学 3，044101（2021年）。[12] K. Wright、K. M. Beck、S. Debnath、J. M. Amini、Y. Nam、N. Grzesiak、J.-S. Chen、N. C. Pisenti、M. Chmielewski、C. Collins、K. M. Hudek、J. Mizrahi、J. D. Wong-Campos、S. Allen、J. Apisdorf、P. Solomon、M. Williams、A. M. Ducore、A. Blinov、S. M. Kreike- meier、V. Chaplin、M. Keesan、C. Monroe 和 J. Kim，《对一台 11 量子比特量子计算机进行基准测试》，《自然·通讯》10，5464（2019年）。[13] V. A. Dzuba 和 V. V. Flambaum，《Ba $s$–$d$ 跃迁中的核自旋相关宇称非守恒计算》，$Ba^{+}$、$Yb^{+}$和 $Ra^{+}$ 离子，《物理评论A》83，052513（2011年）。[14] V. A. Dzuba 和 V. V. Flambaum，《超精细结构诱导的电偶极贡献对电八极和磁四极原子钟跃迁的影响》，《物理评论A》93，052517（2016年）。[15] D. Xiao、J. Li、W. C. Campbell、T. Dellaert、P. McMillin、A. Ransford、C. Roman 和 A. Derevianko，《Yb $^{173}$Yb$^{+}$的超精细结构：旨在破解 $^{173}$Yb 核八极矩之谜》，《物理评论A》102，022810（2020年）。[16] D. T. C. Allcock、W. C. Campbell、J. Chiaverini、I. L. Chuang、E. R. Hudson、I. D. Moore、A. Ransford、C. Roman、J. M. Sage 和 D. J. Wineland，《用于亚稳态囚禁离子量子计算的 OMG 蓝图》，《应用物理快报》119，214002（2021年）。[17] S. P. Jain、E. R. Hudson、W. C. Campbell 和 V. V. Albert，《面向原子和分子量子信息平台的吸收-发射编码》，《物理评论快报》133，260601（2024年）。[18] B. K. Sahoo 和 B. P. Das，《镱离子中的宇称非守恒》，《物理评论A》84，010502（2011年）。[19] B. M. Roberts 和 J. S. M. Ginges，《重原子中的超精细反常及其在精密原子新物理搜寻中的作用》，《物理评论A》104，022823（2021年）。[20] A. M¨unch、M. Berkler、C. Gerz、D. Wilsdorf 和 G. Werth，《二价镱基态超精细分裂的精确测量》，《物理评论A》35，4147（1987年）。[21] C. Roman，*Expanding the* $^{171}$Yb$^{+}$ *toolbox: the* $^{2}F_{7/2}$ *state as resource for quantum information science*，博士论文，加州大学洛杉矶分校（2021年）。[22] T. Dellaert，*Metastable States*、*Magic Polarization*、*andHyperfine Spectroscopy in* $^{171}$Yb$^{+}$ *and* $^{173}$Yb$^{+}$，博士论文，加州大学洛杉矶分校（2025年）。[23] A. Bohr 和 V. F. Weisskopf，《核结构对重元素超精细结构的影响》，《物理评论》77，94（1950年）。[24] C. Tamm、D. Engelke 和 V. B¨uhner，《囚禁 Yb 离子中电四极跃迁 $^{2}S_{1/2}$ $F=0$ $F=2$ $^{171}$ $^{+}$ $-^{2}D_{3/2}$ **61**, 053405 2000 的光谱学》，《物理评论A》（）。[25] 更多详情请参见 [补充材料]，其中包括参考文献 [15, 26-31]。[26] M. Abdel-Hafiz、P. Ablewski、A. Al-Masoudi、H. ´Alvarez Mart´ınez、P. Balling、G. Barwood、E. Benkler、M. Bober、M. Borkowski、W. Bowden、R. Ciury-lo、H. Cybulski、A. Didier、M. Dole˘zal、S. D¨orscher、R. M. Godun、R. Hamid、I. R. Hill、R. Hobson、N. Huntemann、Y. L. Coq、R. L. Targat、T. Legero、T. Lindvall、C. Lisdat、J. Lodewyck、H. S. Margolis、T. E. Mehlst¨aubler,

E. Peik、L. Pelzer、M. Pizzocaro、B. Rauf、A. Rolland、N. Scharnhorst、M. Schioppo、P. O. Schmidt、R. Schwarz、C.a˘grı S.enel、N. Spethmann、U. Sterr、C. Tamm、J. W. Thomsen、A. Vianello 和 M. Zawada，《制定光学钟指南：$10^{-18}$ 分数频率不确定度（2019年）》，arXiv:1906.11495 [physics.atom-ph]。[27] D. Leibfried、R. Blatt、C. Monroe 和 D. Wineland，《单个囚禁离子的量子动力学》，《现代物理评论》75，281（2003年）。[28] M. G. Kozlov、S. G. Porsev 和 V. V. Flambaum，《核反磁矩在铋 M1 跃迁中的表现》，J. Phys. B 29，689（1996年）。[29] M. G. Kozlov、S. G. Porsev、M. S. Safronova 和 I. I. Tupitsyn，《CI-MBPT：一种结合组态相互作用与多体微扰理论方法的相对论原子计算程序包》，Comp. Phys. Comm. 195，199（2015年）。[30] Yu. Ralchenko、A. Kramida、J. Reader 和 NIST ASD团队（2011年）。NIST原子光谱数据库（版本 4.1）。网址：http://physics.nist.gov/asd。美国国家标准与技术研究院，马里兰州盖瑟斯堡。[31] M. Roberts、P. Taylor、S. V. Gateva-Kostova、R. B. M. Clarke、W. R. C. Rowley 和 P. Gill，《单个 $^{171}$yb$^{+}$ 离子中 $^{2}S_{1/2}-^{2}D_{5/2}$ 钟跃迁的测量》，《物理评论A》60，2867（1999年）。[32] M. Johanning、A. Braun、D. Eiteneuer、C. Paape、C. Balzer、W. Neuhauser 和 C. Wunderlich，《用于离子阱装载的 YbI 共振增强同位素选择性光电离》，Appllied Physics B 103，327（2011年）。[33] D. J. Berkeland 和 M. G. Boshier，《塞曼简并原子系统中暗态的去稳定化与光学光谱学》，《物理评论A》65，033413（2002年）。[34]J. Keller、H. L. Partner、T. Burgermeister 和 T. E. Mehlst¨aubler，《囚禁离子光学钟微运动的精确测定》，Journal of Applied Physics 118，104501（2015年）。[35] C.-w. Chou、C. Kurz、D. B. Hume、P. N. Plessow、D. R. Leibrandt 和 D. Leibfried，《单个分子离子纯量子态的制备与相干操控》，《自然》545，203（2017年）。[36] G. Breit 和 I. I. Rabi，《核自旋的测量》，《物理评论》38，2082（1931年）。[37] B. Fawcett 和 M. Wilson，《Yb II 中计算得到的振子强度、朗德 g 因子和寿命》，Atomic Data and Nuclear Data Tables 47，241（1991年）。´G. H. Gossel、V. A. Dzuba 和 V. V. Flambaum，《原子中强禁戒[38] 跃迁的计算及用于宇称不守恒测量原子中的 $m1$-因子反常》，《物理评论A》88，034501（2013年）。 $g$M. Schacht、J. R. Danielson、S. Rahaman、J. R. Torgerson、J. Zhang 和 M. M. Schauer，《 $^{171}$Yb$^{+}$ $5D_{3/2}$ 超精细态探测与 $F = 2$ 寿命》，Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics 48，065003 2015( )。[40] H. Shao、H. Yue、Z. Ma、Y. Huang、H. Guan 和 K. Gao，《单个 $^{174}$Yb$^{+}$ 离子 $5d^2d_{3/2}$ 态寿命的精密测定》，《物理评论研究》5，023193（2023年）。[41] C. Schwartz，《超精细结构理论》，《物理评论》97，380（1955年）。[42] J. Z. Han、N. C. Xin、J. W. Zhang、Y. M. Yu、J. G. Li、L. Qian 和 L. J. Wang，《基态的测定——受俘获的 $^{171}$Yb$^{+}$ 离子的基态超精细分裂，《应用物理快报》125, 084002 (2024)。[43] P. Phoonthong、M. Mizuno、K. Kido 和 N. Shiga，激光冷却 $^{171}$Yb$^{+}$绝对微波频率的测定，《应用物理B》117, 673 (2014)。[44] R. Blatt、H. Schnatz 和 G. Werth，$^{171}$Yb$^{+}$ 基态超精细间隔的精确测定，Zeitschrift f¨ur Physik A Atoms and Nuclei 312, 143 (1983)。[45] S. A. Williams，轴对称形变原子核的磁八极矩，《物理评论》125, 340 (1962)。[46] A. K. Singh、D. Angom 和 V. Natarajan，通过精确测量$^3P_2$ 态的超精细结构，观测 $^{173}$Yb的核磁八极矩，《物理评论A》87, 012512 (2013)。[47] R. P. de Groote、S. Kujanp¨a¨a、A. Koszor´us、J. G. Li 和 I. D. Moore，利用共线激光光谱学测量 $^{173}$Yb的磁八极矩，《物理评论A》103, 032826 (2021)。[48] S. A. Blundell、W. R. Johnson 和 J. Sapirstein，铯中能量和矩阵元的相对论全阶计算，《物理评论A》43, 3407 (1991)。[49] E. Kahl 和 J. Berengut，AMBiT：用于高精度相对论原子结构计算的程序，Computer Physics Communications 238, 232 (2019)。[50] N. Stone 和 V. A. 国际原子能机构、国际核数据委员会，《核磁偶极矩和电四极矩表》(2014)。[51] N. Fortson，利用单个受俘获的原子离子测量宇称不守恒的可能性，《物理评论快报》70, 2383 (1993)。[52] B. Roberts、V. Dzuba 和 V. Flambaum，原子系统中的宇称和时间反演破坏，《核与粒子科学年度评论》65, 63 (2015)。[53] M. S. Safronova、D. Budker、D. DeMille、D. F. J. Kimball、A. Derevianko 和 C. W. Clark，利用原子和分子寻找新物理，《现代物理评论》90, 025008 (2018)。[54] J. Jiang 和 N. Huntemann，《173Yb+ 离子高分辨率光谱学》的实验数据，Zenodo 10.5281/zenodo.18017487 (2025)。

# 补充材料

### 实验装置示意图

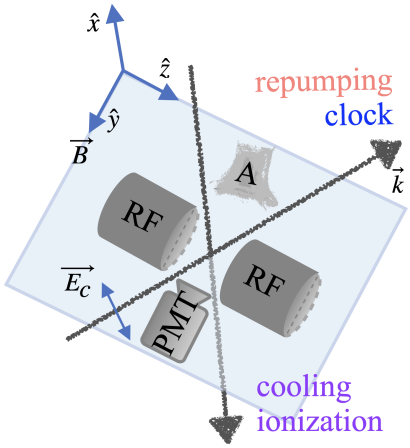


图 1. 实验装置示意图。激光束聚焦于保罗阱（RF）的中心。所施加的磁场 $\vec{B}$ 始终垂直于囚禁轴。使用光电倍增管进行荧光探测。采用天线（A）驱动微波跃迁。E2钟激光器光束的偏振 $\vec{E}_c$ 和 $\vec{}$ 及波矢 $k$ 位于包含 $\vec{B}$ 的平面内。 $\vec{k}$ 与 $\vec{B}$ 之间的角度，以及 $\vec{E}_c$ 与 $\vec{B}$ 之间的角度，约为 45°。

### $^2D_{3/2}$ 态的辐射寿命

我们对 $^2D_{3/2}\ F=1\ m_F=0 \rightarrow$(,) $^2D_{3/2}\ F=2\ m_F=0$ (,)跃迁进行了拉比振荡。结果绘于图2，显示 $^2D_{3/2}(F=1,\ m_F=0)$态的布居随施加的脉冲持续时间的变化。观测到的退相干归因于 $^2D_{3/2}$ 态的有限寿命。为描述这类退相干，我们在拉比振荡函数中引入一个指数因子，即定义

$$P(t)=\cos\left(\frac{\Omega(t+t_0)}{2}\right)^2\exp\left(-\frac{t+t_0}{\tau}\right), \qquad (1)$$

其中， $P$和 $\tau$分别为$^2D_{3/2}$（$F=1$，$m_F=0$）态的布居和寿命，Ω 为所驱动跃迁的拉比频率， $t_0$ 是离子在开始观测前可能发生自发衰变的时间段，例如用于避免光频移的机械快门关闭时。将式 1 拟合至测得的 $^2D_{3/2}$（$F=1$，$m_F=0$）态布居，得到寿命为 $\tau=56.3(35)$ ms。

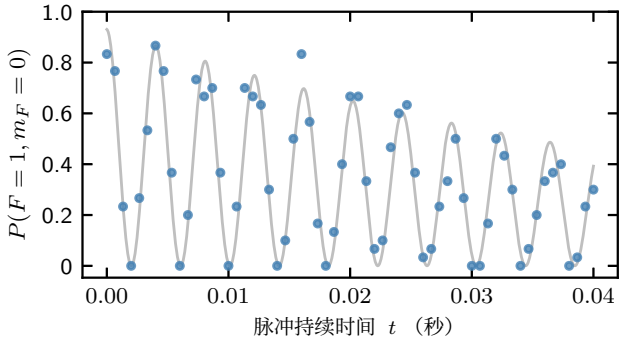


图 2. 跃迁 $^2D_{3/2}(F=1,\ m_F=0) \rightarrow ^2D_{3/2}(F=2,\ m_F=0)$上的拉比振荡。将带有指数衰减的拉比振荡函数（曲线）拟合至数据（数据点）。

### 多重运动态布居引起退相干时的拉比振荡

对于囚禁离子，在窄跃迁上进行拉比振荡，例如本研究中的 $^2S_{1/2}\ F=3\ m_F=0 \rightarrow$ $^2D_{3/2}\ F=1\ m_F=0$ (，) (，) 跃迁，当分辨线宽小于囚禁频率且离子未冷却至运动基态时，会出现退相干。此类退相干情况下的拉比振荡可由热拉比振荡函数[1]描述

$$p(t)=\frac{1-\cos(\Omega t)+\eta^2\bar{n}\Omega t\sin(\Omega t)}{2(1+(\eta^2\bar{n}\Omega t)^2)}, \qquad (2)$$

其中， $p$、 $t$、Ω、 $\eta$和 $\bar{n}$ 分别为激发概率、所施加激发脉冲的持续时间、受驱动跃迁的拉比频率、兰姆-迪克参数以及囚禁离子的平均运动态。描述所施加电压产生的势能中的四极分量占比的兰姆-迪克参数 $\eta$，对于本研究所用的端盖离子阱定义为 [2]

$$\eta=\frac{2\pi}{\lambda}\sqrt{\frac{\hbar}{2m\omega_z(1-\frac{1}{2}\sin^2\phi)}}, \qquad (3)$$

其中， $\lambda$、 $\hbar$、 $m$、 $\omega_z$和 $\phi$ 分别为激发辐射的波长、约化普朗克常数、囚禁离子的质量、离子阱轴向的囚禁频率，以及激发辐射与离子阱轴向之间的夹角。在我们的情况下， $\eta=0.084(7)$，其中不确定度主要源于 $\phi$的不确定度。

将热拉比函数拟合到拉比振荡实验的数据上，即正文图

2(e)中的实线曲线，可得到离子的平均运动态$\bar{n} = 18.5$(3。3)。

### 计算方法

我们将 $Yb^+$ 视为单价离子，其包含原子实 $[1s^2, 2s^2, ..., 4f^{14}]$ 以及位于其外的一个价电子。在狄拉克–哈特里–福克（DHF）方法框架下，采用 $V^{N-1}$ 近似构造基组。初始 DHF 自洽过程纳入了布赖特相互作用，并针对原子实电子进行。随后，在冻结原子实势中构造了 $6s$、 $6p$和 $5d$ 轨道。其余虚轨道则采用参考文献 [3, 4] 中描述的递归过程，在包含 500 个点的非线性网格上生成。径向网格的最外点位于 60 a.u.。基组包含轨道量子数最高达 $l = 5$ 的分波，以及主量子数 $n$ 最高达 28 的轨道。

计算中还考虑了量子电动力学（QED）修正。我们采用线性化耦合簇单、双激发（LCCSD）方法进行计算，在由单粒子态组成的基组中求解耦合簇方程。

### 能级与超精细结构常数

采用线性化耦合簇单、双激发方法计算得到的 $ns\ ^2S_{1/2}$ 和 $5d\ ^2D_{3/2,\ 5/2}$ 态的能量和超精细结构（HFS）常数数值结果列于表 I。计算超精细结构常数 $A$ 和 $B$ 时，我们使用了核磁偶极矩 $\mu = -0.68$（以核磁子 $\mu_N$为单位表示）以及电四极矩$Q = 2.80$b。

### $6s\ ^2S_{1/2}$ 和$5d\ ^2D_{3/2}$ 态的超精细结构

本工作测量了 $6s\ ^2S_{1/2}$和 $5d\ ^2D_{3/2}$态的超精细分裂。超精细相互作用导致的一级能量修正可表示为超精细结构常数 [7]的线性组合。利用实验结果，并将一级和二阶能量修正 [7]纳入考虑，我们可以求得超精细结构常数 $A$、$B$和 $C$。

### $A$ 态的超精细结构常数

$^{173}$Yb 的核自旋为 $I = 5/2$。考虑一阶和二阶能量修正后，我们得到

表 I. 上半部分列出了 [5] 态的理论和实验激发能量，并将超精细结构常数 $A$、 $B$和 $C$/Ω与实验值进行了比较。

| | | 理论 | 实验 |
|---|---|---|---|
| 能量 ($cm^{-1}$) | $5d\ ^2D_{3/2}$ | 22837 | 22961 |
| | $5d\ ^2D_{5/2}$ | 24262 | 24333 |
| | $7s\ ^2S_{1/2}$ | 54760 | 54304 |
| | $8s\ ^2S_{1/2}$ | 73568 | 73040 |
| | $9s\ ^2S_{1/2}$ | 83009 | |
| $A$ (兆赫) | $6s\ ^2S_{1/2}$ | -3646 | -3497[a] |
| | $5d\ ^2D_{3/2}$ | -123 | -118[a] |
| | $5d\ ^2D_{5/2}$ | 17.1 | 17.5[b] |
| $B$ (兆赫) | $5d\ ^2D_{3/2}$ | 990 | 964[a] |
| | $5d\ ^2D_{5/2}$ | 1243 | |
| $C$/Ω (兆赫/(b $\times \mu_N$)) | $5d\ ^2D_{3/2}$ | -0.001820 | |

[a]本工作。数字均四舍五入至整数。精确数值见正文，[b]参考文献 [6]。根据为 $^{171}Yb^+$ 测得的 $A$ 重新计算。

$6s\ ^2S_{1/2}$态的能级位移 $W_F(F = 2,3)$,

$$W_2 = -\frac{7}{4}A + \frac{7}{180}\eta$$
$$W_3 = \frac{5}{4}A + \frac{5}{252}\eta, \quad (4)$$

其中， $\eta$ 由下式给出

$$\eta \approx \frac{42}{5}\mu^2 \sum_{n\geq 7} \frac{\langle 6s\ ^2S_{1/2}||T_1||ns\ ^2S_{1/2}\rangle^2}{E(6s) - E(ns)}, \quad (5)$$

其中， $T_1$ 是作用于电子空间中的磁偶极超精细算符， $E(ns)$是 $ns\ ^2S_{1/2}$态的能量，而 $n$ 是主量子数。

那么，差值 $W_{23} \equiv W_2 - W_3$为:

$$W_{23} = -3A + \frac{2}{105}\eta. \quad (6)$$

为求得超精细结构常数 $A$，我们需要计算 $\eta$并确定其不确定度。如表 I 所示， $7s$ 态和 $8s$ 态的理论能量与实验数据的符合精度优于 1%。理论值与实验值之间，$A(6s)$的差异为 $\sim 4\%$，相应地，对角约化矩阵元（ME） $\langle 6s\ ^2S_{1/2}||T_1||6s\ ^2S_{1/2}\rangle$的不确定度也为 $\sim 4\%$。我们假定非对角矩阵元$\langle 6s\ ^2S_{1/2}||T_1||ns\ ^2S_{1/2}\rangle$ 的计算精度相近。

由于具有 $n \geq 7$ 的中间态 $ns$ 对结果有本质性贡献，因此很难准确计算 $\eta$ 。

为确定它们的作用，我们进行了三项计算：（i）在方程（5）中仅纳入中间态 $7s$，（ii）纳入两个中间态 $7s$ 和 $8s$，以及（iii）纳入三个中间态 $7s$、$8s$ 和 $9s$。

使用以下约化矩阵元的数值，

$$\begin{aligned}
&\langle 6s\,^2S_{1/2}||T_1||7s\,^2S_{1/2}\rangle \approx 8577,\\
&\langle 6s\,^2S_{1/2}||T_1||8s\,^2S_{1/2}\rangle \approx 5602,\\
&\langle 6s\,^2S_{1/2}||T_1||9s\,^2S_{1/2}\rangle \approx 4533,
\end{aligned} \tag{7}$$

以（兆赫 $\times\,\mu_N$）表示，我们得到 $\eta$（以兆赫为单位）

$$\begin{aligned}
&\eta \approx -0.175,\ \text{only } 7s \text{ is included},\\
&\eta \approx -0.231,\ 7-8s \text{ are included},\\
&\eta \approx -0.263,\ 7-9s \text{ are included}.
\end{aligned} \tag{8}$$

因此，纳入 $8s$ 和 $9s$ 中间态使 $\eta$ 变化了 0.09 兆赫。将此值视为 $\eta$的不确定度，我们得到

$$\eta = -0.26(9)\ \text{MHz}.$$

将 $\eta$ 和实验测得的$W_{23} = 10\,491.7202347(4)$ 兆赫代入方程（6），我们得到 $6s\,^2S_{1/2}$ 态的超精细结构常数 $A$ 的值，

$$A = -3497.2417(6)\ \text{MHz}. \tag{9}$$

### $5d\,^2D_{3/2}$ 态的超精细结构常数

我们从能级位移方程 $W_F$（$F$=1–4）出发，该方程针对 $5d\,^2D_{3/2}$态，并包含了一阶和二阶能量修正。在计算二阶能量修正时，我们考虑磁偶极和电四极超精细相互作用，而忽略磁八极相互作用。然后，

$$\begin{aligned}
W_1 &\approx -\frac{21}{4}\,A + \frac{7}{10}\,B - \frac{42}{5}\,C + a_1\eta_{\mu\mu} + b_1\eta_{\mu Q} + c_1\eta_{QQ},\\
W_2 &\approx -\frac{13}{4}\,A - \frac{1}{10}\,B + \frac{54}{5}\,C + a_2\eta_{\mu\mu} + b_2\eta_{\mu Q} + c_2\eta_{QQ},\\
W_3 &\approx -\frac{1}{4}\,A - \frac{11}{20}\,B - \frac{27}{5}\,C + a_3\eta_{\mu\mu} + b_3\eta_{\mu Q} + c_3\eta_{QQ},\\
W_4 &\approx \frac{15}{4}\,A + \frac{1}{4}\,B + C + a_4\eta_{\mu\mu} + b_4\eta_{\mu Q} + c_4\eta_{QQ}.
\end{aligned} \tag{10}$$

这里，$A$、$B$和 $C$ 分别是$5d\,^2D_{3/2}$态的磁偶极、电四极和磁八极超精细结构常数。系数 $a_F$、$b_F$和 $c_F$是角因子，由以下公式给出：[7]

$$\begin{aligned}
a_F &= \begin{Bmatrix} I & J & F\\ J' & I & 1\end{Bmatrix}^2,\\
b_F &= \begin{Bmatrix} I & J & F\\ J' & I & 1\end{Bmatrix}\begin{Bmatrix} I & J & F\\ J' & I & 2\end{Bmatrix},\\
c_F &= \begin{Bmatrix} I & J & F\\ J' & I & 2\end{Bmatrix}^2.
\end{aligned} \tag{11}$$

在对中间态求和时，我们仅考虑 $5d\,^2D_{5/2}$ 态。那么，量$\eta_{\mu\mu}$、$\eta_{\mu Q}$和 $\eta_{QQ}$ 可写为

$$\begin{aligned}
\eta_{\mu\mu} &= \frac{42}{5}\,\mu^2\frac{\langle 5d\,^2D_{3/2}||T_1||5d\,^2D_{5/2}\rangle^2}{E(^2D_{3/2}) - E(^2D_{5/2})},\\
\eta_{\mu Q} &= \frac{42\sqrt{2}}{5}\,\mu\,Q\\
&\quad\times\frac{\langle 5d\,^2D_{3/2}||T_1||5d\,^2D_{5/2}\rangle\langle 5d\,^2D_{3/2}||T_2||5d\,^2D_{5/2}\rangle}{E(^2D_{3/2}) - E(^2D_{3/5})},\\
\eta_{QQ} &= \frac{21}{5}\,Q^2\frac{\langle 5d\,^2D_{3/2}||T_2||5d\,^2D_{5/2}\rangle^2}{E(^2D_{3/2}) - E(^2D_{5/2})},
\end{aligned} \tag{12}$$

其中，$T_1$ 和 $T_2$ 是作用于电子空间中的磁偶极和电四极超精细算符。在线性化耦合簇单、双激发方法框架下求得的矩阵元为

$$\begin{aligned}
&\langle 5d\,^2D_{3/2}||T_1||5d\,^2D_{5/2}\rangle \approx -1733\ \text{MHz}\times\mu_N,\\
&\langle 5d\,^2D_{3/2}||T_2||5d\,^2D_{5/2}\rangle \approx -453\ \text{MHz/b}.
\end{aligned} \tag{13}$$

表 I 中列出的超精细结构常数 $A(5d\,^2D_{3/2})$ 和 $B(5d\,^2D_{3/2})$ 的理论值与实验值相差不到 4%。假设非对角矩阵元 $\langle 5d\,^2D_{3/2}||T_{1,\ 2}||5d\,^2D_{5/2}\rangle$ 的计算精度相近，

则我们将 4% 的不确定度赋予这些矩阵元。$\eta_{\mu\mu}$、 $\eta_{\mu Q}$ 和 $\eta_{QQ}$ 的不确定度分别为 $\sim 8\%$。

利用式（10）给出的 $W_F$，我们可以写出关于 $W_{12}$、$W_{23}$ 和 $W_{43}$（其中 $W_{ik} \equiv W_i - W_k$）的方程。这些量是在实验中测得的。解这组三个线性方程，我们得到超精细结构常数 $A$、 $B$ 和 $C$，并确定它们的不确定度，

$$\begin{aligned} A &= -118.25807(12)\ \text{MHz}, \\ B &= 963.60980(57)\ \text{MHz}, \\ C &= 113(13)\ \text{Hz}. \end{aligned} \tag{14}$$

**八极矩 Ω**

已知超精细结构常数 $C$，并使用表 I 中给出的理论值 $C/\Omega \approx -1820(73)\ \text{Hz}/(\text{b} \times \mu_N)$，我们可以求得八极矩 Ω。

为了确定其不确定度，我们注意到，在计算 $C/\Omega$ 时，我们使用了与计算 $A(5d\,^2D_{3/2})$ 和 $B(5d\,^2D_{3/2})$ 相同的 $5d\ ^2D_{3/2}$ 态波函数。此外，我们还通过比较理论能量和实验能量对波函数的质量进行了检验。基于此，我们假设 $C/\Omega$ 的不确定度与超精细结构常数 $A$ 和 $B$ 的不确定度相当，即 $\sim 4\%$。

求得相对不确定度 $\delta\Omega$ 为

$$\delta\Omega = \sqrt{(\delta C)^2 + (\delta(C/\Omega))^2} \approx 0.122,$$

我们得到八极矩 Ω 为

$$\Omega = -0.062(8)\ (b \times \mu_N). \tag{15}$$

[1] D. Leibfried、R. Blatt、C. Monroe 和 D. Wineland，《单个囚禁离子的量子动力学》，《现代物理评论》**75**，281（2003）。[2] M. Abdel-Hafiz、P. Ablewski、A. Al-Masoudi、H. ´Alvarez Mart´ınez、P. Balling、G. Barwood、E. Benkler、M. Bober、M. Borkowski、W. Bowden、R. Ciury lo、H. Cybulski、A. Didier、M. Dole˘zal、S. D¨orscher、S. Falke、R. M. Go- dun、R. Hamid、I. R. Hill、R. Hobson、N. Huntemann、Y. L. Coq、R. L. Targat、T. Legero、T. Lindvall、C. Lis- dat、J. Lodewyck、H. S. Margolis、T. E. Mehlst¨aubler、E. Peik、L. Pelzer、M. Pizzocaro、B. Rauf、A. Rolland、N. Scharnhorst、M. Schioppo、P. O. Schmidt、R. Schwarz、C¸a˘grı S¸enel、N. Spethmann、U. Sterr、C. Tamm、J. W. Thomsen、A. Vianello 和 M. Zawada，《研制光学钟的指南：分数频率不确定度》（2019），arXiv:1906.11495 [physics.atom-ph]。[3] M. G. Kozlov、S. G. Porsev 和 V. V. Flambaum，《铋中 M1 跃迁对核反磁矩的体现》，J. Phys. B **29**，689（1996）。[4]M. G. Kozlov、S. G. Porsev、M. S. Safronova 和 I. I. Tupitsyn，《CI-MBPT：一种结合组态相互作用与多体微扰理论方法的相对论原子计算程序包》，Comp. Phys. Comm. **195**，199（2015）。[5] Yu. Ralchenko、A. Kramida、J. Reader 和 NIST ASD团队（2011）。NIST原子光谱数据库（第4.1版）。网址：http://physics.nist.gov/asd。美国国家标准与技术研究院，马里兰州盖瑟斯堡。[6] M. Roberts、P. Taylor、S. V. Gateva-Kostova、R. B. M. Clarke、W. R. C. Rowley 和 P. Gill，《单个 $^{171}Yb^+$ 离子钟跃迁的测量》，《物理评论A》**60**，2867（1999）。[7] D. Xiao、J. Li、W. C. Campbell、T. Dellaert、P. McMillin、A. Ransford、C. Roman 和 A. Derevianko，《 $^{173}Yb^+$的超精细结构：探索 $^{173}$Yb核八极矩之谜》，《物理评论A》**102**，022810（2020）。