三电子原子 ${}^6\text{Li}$ D线跃迁绝对频率的精密测量

芮扬, 武跃龙, 李睿, 武海斌*

华东师范大学, 精密光谱科学与技术国家重点实验室, 上海 200062

*联系人, E-mail: hbwu@phy.ecnu.edu.cn

收稿日期: 2020-12-07; 接受日期: 2021-02-23; 网络出版日期: 2021-05-19

国家自然科学基金(编号: 11925401, 11734008)和国家重点基础研究发展计划(编号: 2017YFA0304201)资助项目

摘要 在 ${}^6\text{Li}$ 冷原子系综中, 本团队发展了弱探测光和强本地光差拍探测的技术, 在极低探测光功率密度的条件下($<10^{-3}$ 饱和光强), 实现了达到光子散粒噪声极限的光谱测量. 基于高精度光学频率梳的频率稳定性传递链, 将探测光锁到光梳上, 精确测量了 ${}^6\text{Li}$ 原子的D线跃迁频率, 得到不确定度优于1 kHz的 ${}^6\text{Li}$ D₁线跃迁的绝对频率, 比当前最高精度的测量提高了一个量级. 2P能级精细结构劈裂和 $2\text{P}_{1/2}$ 能级超精细结构劈裂分别为10052.7804(18)和26.1031(14) MHz, 与最近的相对论修正及量子电动力学修正的理论计算相符合. 本团队的测量结果给更高精度的理论计算提供了实验基准, 同时也有助于解决之前不同实验测量的差异.

关键词 冷原子, 绝对频率测量, 散粒噪声极限

PACS: 32.10.Fn, 42.62.Eh, 37.10.De, 42.50.Ar

1 引言

近年来, 锂原子的高精度光谱学在理论和实验上都引起了人们广泛的关注^[1-5]. 中性锂原子核外只有三个电子, 具有相对简单的能级结构, 可以在理论上进行精确计算, 得到高精度的理论预测结果. 在实验上通过精密光谱测量的方法确定能级结构, 可以对已有的相关理论模型进行检验和修正, 并有望发现新的物理模型.

近30年来, 少电子原子体系的精密计算取得了巨大的研究进展. 通过Drake, Yan, Pachucki以及Korobov等理论工作者的大量开创性工作^[6-12], 氢原子、氦原子和锂原子等少电子原子体系能级计算得

到了迅猛发展. 与此同时, 在实验测量方面, 氢原子、氦原子光谱测量也取得了很大进展^[13-18].

原子跃迁谱线的精密测量可以验证相对论和量子电动力学(Quantum Electrodynamics, QED). 原子结构中相对论效应的计算通常是通过直接使用Dirac方程进行的, 例如相对论组态相互作用^[9]、多体微扰理论^[19]、相对论耦合簇^[20]或多组态Dirac-Fock方法^[21]. 对于少电子系统, 更加精确的计算方法是对精细结构常数中的能量进行级数展开, 对高阶项进行修正. 该方法包含了相对论和量子电动力学的贡献, 因为每次修正都可以用具有非相对论波动函数的算子期望值表示. 通过使用显式相关的基函数, 可以非常精确地求解少电子系统的

引用格式: 芮扬, 武跃龙, 李睿, 等. 三电子原子 ${}^6\text{Li}$ D线跃迁绝对频率的精密测量. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2021, 51: 074209

Rui Y, Wu Y L, Li R, et al. Precise absolute frequency measurement of three-electron ${}^6\text{Li}$ atom D-line transitions (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2021, 51: 074209, doi: [10.1360/SSPMA-2020-0483](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2020-0483)

非相对论Schrödinger方程. 但实现高精度的相对论和QED修正, 需要计算与电子间距的反幂相关的复杂积分. 对于锂原子, 目前2P精细结构劈裂的最精确计算已达到 $m\alpha^6$ 和 $m\alpha^7 \ln\alpha$ 修正^[11,12].

原子核半径在核物理中至关重要^[22], 同位素位移的精密测量对原子核半径的标定有巨大的帮助. 尽管对于稳定同位素 ^6Li 和 ^7Li 的核半径大小的精度可以达到1%水平^[23], 但对于不稳定的同位素 ^8Li , ^9Li 和 ^{11}Li , 其原子核半径却仍然不清楚. 除了传统的核散射方法外, 还可以通过同位素位移实验测量和理论计算相比较的方法研究核电荷的分布, 从而确定核半径的大小. 尽管有限的核电荷分布对原子能级有影响, 但是Drake^[24]指出, 对于选定的跃迁, 如果对同位素位移中所有与质量相关的贡献都可以计算得足够精确, 则实验和理论之间的差异就是由核电荷半径的差异所引起的. 轻原子的QED项在大小上可与核半径大小的一阶修正量相比拟, 且与核质量无关, 因此它能在很大程度上与计算得出的同位素位移相抵消. 因此, 该方法的重要性在于可以不需要QED修正来确定核半径. 该方法已成功应用于 ^4He - ^3He ^[22,25]和 ^7Li - ^6Li ^[26]的研究, 所确定的 ^3He 和 ^6Li 的均方根半径不但与核散射数据非常吻合, 而且还大大提高了精度.

锂原子的精密光谱测量还导致了中子晕的发现^[27-29]. 许多已知轻元素的稳定核心会影响弥散在外部的中子的分布^[30]. 在锂的同位素中, 最著名的是具有两个晕中子的 ^{11}Li , 它由 ^9Li 的核与核外包围的两个松散结合的中子共同组成^[31]. ^{11}Li 的质量半径虽然已经从核的散射截面测量中确定^[27], 但由于两个晕中子对核电荷半径有影响, 所以不能仅用核模型来确定核电荷半径. 因此, 关于晕中子是否影响 ^9Li 核中质子分布的问题仍未解决. 对于有两个晕中子 ^6He 的核电荷半径的测量^[32]表明, 它的晕是绕 ^4He 核的中子形成的. ^6He 的核心是强结合的粒子, 模型^[33]计算其核心仅比 ^4He 增加4%. 相比之下, ^{11}Li 中的 ^9Li 核心是“较软”的, 晕中子与 ^9Li 核心之间的相互作用可能会大大极化核心. 将实验测量结果与核结构计算的结果进行比较, 将有助于更好地了解中子滴线附近的核结构.

锂的高精度光谱学的发展为这些理论提供了

基准, 可用于确定核半径和测量精细结构常数, 从而在更高的精度上检验基本物理定律. 与此同时, 已经有许多实验测量了 ^6Li 和 ^7Li 的 D_1 和 D_2 线的精细结构劈裂和超精细结构劈裂以及同位素位移^[34-43]. 常见的测量方法是在热原子束中测量由激光激发的荧光谱. 这种方法得到的数据为当前三电子模型的最精确理论计算提供了重要的对比. 但这些实验结果本身就有差异, 特别是在锂的 D_1 跃迁的同位素位移测量中差异明显. Das和Natarajan^[36]测量了 $2P_J \rightarrow 2S$ 跃迁的同位素位移, 他们获得的精度对于 D_1 线($J=1/2$)为3.9 ppm, 对于 D_2 线($J=3/2$)为6.8 ppm. 后来Sansonetti等人^[42]测量 $2P_J \rightarrow 2S$ 跃迁的同位素位移, 他们达到的精度对于 D_1 线是0.9 ppm, 对于 D_2 线是29 ppm. 同时他们的测量值相互有偏差, D_1 线同位素偏移测量值大约相差12 σ , D_2 线的同位素偏移测量值大约相差15 σ . Wang等人^[12]的最新理论计算同位素偏移和Sansonetti等人^[42]比较, D_1 线的理论预测和实验测量相差180 σ , D_2 线的理论预测和实验测量相差60 σ . 实验结果的不一致以及实验与理论之间的差异仍然存在, 所以需要发展更高精度的锂原子光谱以更精确地测量其频率.

2 实验测量

与以往在热原子束中测量不同, 本实验测量了 ^6Li 冷原子的吸收光谱. 在冷原子中, 低温可以极大地抑制一阶多普勒展宽, 并且二阶多普勒偏移可以忽略. 同时, 在小跃迁几率处提高原子团的光学密度, 从而获得较高信噪比的谱线. 结合光学频率梳及差拍探测技术, 实现了光子散粒噪声极限的谱线测量. 本团队^[44]精确测量了 ^6Li D 线跃迁的绝对频率、精细结构劈裂和2P精细结构劈裂, 并获得了不确定度低于1 kHz的 D_1 线跃迁频率. ^6Li 的 $2P_{1/2}$ 超精细结构劈裂和2P精细结构劈裂分别为26.1031(14)和10052.7804(18) MHz, 这与最新理论计算相吻合.

2.1 冷原子的制备

本团队^[45,46]在超高真空中(近 10^{-12} Torr)采用标

准的磁光阱(Magneto-optical Trap, MOT)技术, 用三对正交的圆偏光和磁阱俘获原子, 所采用的能级结构以及每支光的频率失谐如图1所示, 冷却光和再泵浦光的失谐为-36和-24 MHz, 光强分别为27和9 mW, 光斑大小均为直径2 cm. 塞曼光的失谐为-220 MHz, 光强为100 mW, 偏振为圆偏光, 由透镜将塞曼光汇聚至加热炉处. 磁场由一对反亥线圈提供, 原子处的磁场梯度为10 Gauss/cm. 通过装载、冷却阶段, 可以获得温度为300 μ K, 原子数约为 10^8 个的冷原子团.

由于 ^6Li $2P_{3/2}$ 态能级分裂为4.6 MHz, 小于自然线宽5.8 MHz, 能级不可完全分辨, 没有通常意义上的有效亚多普勒冷却机制. 为了使原子获得更低的温度, 本团队发展了 D_1 线的灰色黏胶冷却^[47]技术. 西西弗斯冷却(Sisyphus Cooling)和速度选择的相干布居俘获(Velocity-Selected Coherent Population Trapping)两者的冷却效应在灰色黏胶冷却中同时发挥效应. 在灰色黏胶冷却中两束蓝失谐的光将原子缀饰出亮态和暗态. 对打的偏振光在空间上产生偏振梯度, 使亮态在不同的空间位置产生不同的光致失谐, 而暗态不耦合. 速度较高的原子才能从暗态跃迁到亮态, 而处在亮态的原子在爬坡过程中损失动能, 爬到势能高处后将通过双光子过程落回暗态, 从而不断地损失动能, 最终将低速的原子囚禁在暗态. 实验中 D_1 线冷却光路和MOT光路重合, 冷却光和再泵浦光频率如图2所示, D_1 线冷却光的单光子失谐为-30 MHz, 双光子失谐为0 MHz. 原子处 D_1 线冷却光的光束直径为5.6 mm, 单支冷却光的光功率为10 mW, 再泵浦光的光功率为1 mW. 作用1.5 ms的 D_1 冷却光后, 最终获得了温度为50 μ K, 原子数约为 5×10^7 个的冷原子团^[48].

2.2 背景磁场的精确标定

磁场会带来塞曼劈裂和塞曼频移, 为了得到精确的跃迁频率, 冷原子团所处的磁场需要尽可能地补偿到零. 除了地磁场的贡献外, 离子泵所产生的剩余磁场和补偿线圈电流精度都会对原子处的磁场造成影响, 因此精确地标定原子处的磁场大小成为抑制磁场的关键. 为了让各个速度分布的原子都参

与作用, 本实验采取同向拉曼共振的方法标定原子处的磁场^[49].

如图3所示, 将原子制备在 $2S_{1/2}$, $F=1/2$ 基态上, 然后用单光子失谐为-2 GHz的同向拉曼光作用在原子上. 通过改变拉曼光的双光子失谐, 探测 $2S_{1/2}$, $F=3/2$ 的原子数, 可以得到拉曼共振谱. 通过计算 ^6Li 原子在弱磁场下的塞曼能级劈裂, 便可以得到原子处的磁场大小. 调节补偿线圈的电流大小最

图 1 (网络版彩图) ^6Li MOT光能级图. 冷却光失谐-36 MHz, 再泵浦光失谐-24 MHz, 光斑大小为直径2 cm

Figure 1 (Color online) The energy level diagram of ^6Li MOT. The frequency detunings of cooling and repumping laser light are -36 and -24 MHz, respectively. The diameter of these laser beams is 2 cm.

图 2 (网络版彩图) D_1 冷却光能级图. 冷却光和再泵浦光失谐都为蓝失谐+30 MHz, 光斑大小为直径5.6 mm

Figure 2 (Color online) The energy level diagram of ^6Li for D_1 line gray cooling. The detunings of cooling beam and repumping beam are +30 MHz and the diameter of beam is 5.6 mm.

图 3 (网络版彩图) 标定磁场的拉曼光能级图. ω_1 和 ω_2 为两支同向拉曼光的频率, 单光子失谐为红失谐 -2 GHz

Figure 3 (Color online) The configuration of Raman beams for calibrating background magnetic field. ω_1 and ω_2 are frequencies of Raman beams and the single photon detuning is -2 GHz.

终将磁场控制在 8 mGauss 以下.

2.3 光梳的稳定性传输

如图 4 所示, 飞秒钛宝石激光器的超连续激光的频率锁到窄线宽激光器上^[50], 重复频率 $f_r = 998$ MHz. 一方面, 窄线宽激光器锁定在超稳腔上, 超稳腔的秒稳优于 1×10^{-15} . 但光梳的超稳腔随温度变化而漂移, 会对频率测量带来影响. 在实验中, f_r 每小时大约漂移 2×10^{-3} Hz, 对应于光频的变化大约为 1 kHz. 每次测量时, 可实时记录 f_r , 将超稳腔带来的频率漂移计入谱线测量的绝对频率中.

另一方面, 重频 f_r 和零频 f_0 都以氢钟作为参考, 积分时间大于 1000 s, 氢钟的频率稳定性为 2×10^{-15} . 氢钟的参考频率通过全球定位系统 (Global Positioning System, GPS) 与美国海军天文台 (United States Naval Observatory, USNO) 的 Cs 原子钟相连. 通过长时间对比氢钟和原子钟的 1 pps 信号, 发现两者的时间间隔有微小的偏移. 如图 5 所示, 两条蓝线是两次记录的数据, 红线是线性拟合, α_1 和 α_2 是线性拟合的斜率, 表示的是氢钟和原子钟的频率偏差. $\alpha_1 = 2.7858(5) \times 10^{-13}$ 意味着本地氢钟比原子钟的频率信号偏低 $2.7858(5) \times 10^{-13}$, 折算成光频移为 134 Hz. 同时, 两次测量氢钟的频率也在漂移, 漂移量优于 1×10^{-13} , 本实验取上限, 认为在测量时, 氢钟的不确定度为 1×10^{-13} , 对应的绝对频率的不确定度为 45 Hz.

图 4 (网络版彩图) 稳定性传递. 窄线宽 1064 nm 激光器锁定到超稳腔上, 飞秒钛宝石激光器锁定到窄线宽激光器上. PCF: 光子晶体光纤; PBS: 偏振极化棱镜; M: 全反镜; PD: 光电探测器

Figure 4 (Color online) The stability transfer. The 1064 nm Laser with narrow linewidth is locked to ultra-stable cavity, and the fs Ti:sapphire is locked to 1064 nm laser. PCF: photonic crystal fiber; PBS: polarized beam splitter; M: mirror; PD: photodetector.

图 5 (网络版彩图) 本地氢钟的稳定性. 蓝线为记录的数据, 红线为线性拟合, 斜率即为本地氢钟和原子钟的频率偏移

Figure 5 (Color online) The stability of local hydrogen maser. The blue dots are measured data and the red line is a linear fit. The slope of the linear fit represents the frequency shift between the maser and the atomic clock.

2.4 光场散粒噪声极限的差拍探测

为了最大程度地减少光泵浦和 AC stark 效应, 实验中探测光的功率被降低到几 nW 进行测量. 在探测

光非常弱的情况下, 如果直接使用探测器采集光信号, 信号将完全被噪声淹没. 相比于电放大的方法可能带进来电子器件的噪声, 本实验使用差拍探测的方法用强的本地光来放大探测光信号. 这样的光放大可以仅将共振探测器共振频率处的信号进行放大, 避免将其他频段的噪声放大.

由于使用的探测光是相干激光, 在一段时间内的光子数会有起伏, 光子数的噪声即为散粒噪声. 理论上探测光的信噪比^[51]为 $\delta_{\text{shot}} = C \sqrt{\eta N_{\text{Probe}}}$, 其中 C 是模式匹配度, η 是探测器量子效率, N_{Probe} 是探测光的光子数. 当探测信号的噪声大多数是由光子散粒噪声贡献时, 认为此时达到光子的散粒噪声极限. 在不同长度脉冲下, 可通过测量被本地光放大后的探测光的噪声, 并与理论上光子的散粒噪声作比较, 以此反映差拍探测是否达到散粒噪声极限.

在差拍探测中, 探测光和本地光之间的模式匹配非常关键, 越接近100%越容易达到散粒噪声极限. 在本实验的测量中, 两束光的拍频干涉对比度优于97%. 差拍探测的噪声测量如图6所示, 将弱探测光的噪声归一化为理论的散粒噪声. 对于1–1000 μs 的脉冲时间, 归一化的噪声非常接近1, 即达到光子散粒噪声极限. 脉冲宽度小于1 μs 时, 对应的归一化噪声小于1是由测量系统中的低通滤波器造成的. 脉冲宽度大于1000 μs 时, 对应的归一化噪声大于1是由测量时探测光光强的缓慢变化和相对相位的漂移导致.

在实验中, 垂直线偏的两束探测光对打探测冷原子, 再用携带原子信息的探测光和本地光拍频, 分别用两个共振频率为21 MHz的共振探测器接收信号. 然后分别将共振探测器的电信号和相位差90°的21 MHz电信号进行混频. 两个混频器得到的混频信号 S_I 和 S_Q 分别平方再相加, 就能够得到原子吸收谱线信号 S_T , 所发展的这种探测手段可以有效解决在普通差拍探测中对探测光的相对相位敏感问题.

2.5 实验光路

实验装置示意图如图7所示. 首先制得原子数为 5×10^7 , 温度为50 μK 的冷原子团. 再用一个输出30 mW的外腔反馈半导体激光器提供本地光和探

测光. 同时分出一路光和光梳拍频, 将激光器锁到光梳上. AOM1用来扫频及锁定功率, 通过光强锁定将功率起伏抑制在1%以下. 用差拍探测的方法测量原子的吸收谱. 探测光和本地光的光频差为21 MHz, 由AOM2和AOM3控制. 探测光在原子团处的光斑直径约为2.6 mm, 两束探测光角度小于200 μrad , 光强不平衡度小于 5×10^{-3} . 探测光光强在nW量级, 本

图6 (网络版彩图)差拍探测的散粒噪声测量. 本地光为600 μW , 探测光为30 nW, 持续时间为0.1–1000 μs

Figure 6 (Color online) Shot noise of heterodyne detection. The power of local beam and probe beam are 600 μW and 30 nW and the duration time from 0.1 to 1000 μs .

图7 (网络版彩图)实验光路图. PBS: 偏振极化棱镜; BS: 极化棱镜; M: 全反射镜; AOM: 声光调制器; PD: 光电探测器; RD: 共振探测器; BD: 光束收集器; FC: 光纤耦合头; FLC: 频率锁定电路; PLC: 功率锁定电路

Figure 7 (Color online) Setup of the experiment. PBS: polarized beam splitter; BS: beam splitter; M: mirror; AOM: acousto-optic modulator; PD: photodetector; RD: resonance detector; BD: beam collector; FC: fiber coupler; FLC: frequency locking circuit; PLC: power locking circuit.

地光约600 μW . 探测光和本地光通过BS进行拍频, 用透镜将光汇聚到共振探测器靶面上.

3 实验结果

3.1 原子跃迁绝对频率

在频率测量时, 弱探测光的脉冲持续时间固定为200 μs , 在这段时间内扫描探测光的频率, 即可获得原子跃迁的吸收谱线. 如图8所示, 跃迁为 $2S_{1/2}$, $F=3/2 \rightarrow 2P_{1/2}$, $F'=3/2$ 的吸收光谱及其对应的拟合曲线. 拟合线宽约为7.37 MHz, 比5.8 MHz的自然线宽25%, 这主要是由残留的多普勒效应导致.

随着探测光功率密度的减小, 绝对频率的测量值会发生偏移. 图9给出了 $2S_{1/2}$, $F=3/2 \rightarrow 2P_{1/2}$, $F'=3/2$ 跃迁的绝对频率与探测光功率密度变化的关系, 其中虚线表示NIST在2011年测量^[42]的参考频率 f_{rel} ($f_{\text{rel}}=446789528.716(10)$ MHz). 显然, 由探测光光强引起的频移在kHz量级, 是不可忽略的. 当光强从1 $\mu\text{W}/\text{cm}^2$ 增强为8 $\mu\text{W}/\text{cm}^2$ 时, 可观察到大约30 kHz的偏移. 在6 $\mu\text{W}/\text{cm}^2$ 的条件下, 本实验获得了和NIST相接近的值. 最终的绝对频率是将测量值通过线性拟合把光强外推至零处而获得的.

表1给出了实验测量的所有能级跃迁的频率以及 ^6Li 的 D_1 和 D_2 线的中心频率.

3.2 不确定度分析

如表2所示, 考虑每个误差来源所带来的不确

图8 (网络版彩图) ^6Li D_1 线吸收信号拟合和残差. 上图红线是拟合图形, 下图橙线为拟合残差

Figure 8 (Color online) The absorption signal of D_1 transition of ^6Li . Red line is fitting curve and orange line is fitting residual.

图9 (网络版彩图)随着探测光光强变化, 频率测量会有一些的偏移. 蓝点是测量数据, 橙线是线性拟合

Figure 9 (Color online) The measured frequency shift as a function of the probe beam intensity. Blue dots are the measured data and orange solid line is a linear fit to extract the frequency with zero intensity of probe beams.

表1 ^6Li 跃迁频率和 D_1 线 D_2 线的中心频率

Table 1 Measured frequencies of hyperfine components and centers of gravity (COG) of the ^6Li D lines

跃迁	基态F	激发态F	频率 (MHz)
$2S_{1/2} \rightarrow 2P_{1/2}$	3/2	1/2	446789502.6393(9)
	3/2	3/2	446789528.7442(9)
	1/2	1/2	446789730.8424(23)
	1/2	3/2	446789756.9439(8)
D_1 COG			446789596.1094(8)
$2S_{1/2} \rightarrow 2P_{3/2}$	3/2	5/2	446799571.0796(19)
	3/2	3/2	446799573.9743(19)
	3/2	1/2	446799575.6861(19)
	1/2	3/2	446799802.1758(16)
	1/2	1/2	446799803.8876(16)
D_2 COG			446799648.8898(16)

表2 绝对频率的不确定度组成

Table 2 Uncertainty budgets (Hz) for the measurement

不确定度	D_1 线 (Hz)	D_2 线 (Hz)
统计误差	813	1048
光梳参考误差	45	45
一阶多普勒效应	375	375
磁场	57	57
超精细结构常数	0	1150
局域场效应	3	6
AC Stark效应	40	10
碰撞	<100	<100
合计	906	1606

定度, 总不确定度是将各个不确定度矢量叠加得到. 对于可分辨的 D_1 线, 测量不确定度小于1 kHz, 对于不可分辨的 D_2 线, 其不确定度小于2 kHz.

3.2.1 一阶多普勒效应

原子团温度为50 μK , 其最概然速度是0.37 m/s, 对应的一阶多普勒展宽为551.2 kHz. 通过对打探测光的方式对测量的绝对频率进行抑制, 精细调节两支探测光的角度, 使角度差在200 μrad 以下, 对应的不确定度约为110 Hz.

此外, 由于锂原子较轻, 需要考虑探测光对原子的推动. 受限半波片和PBS的控制精度, 两支探测光的光强不平衡度优于5%, 这将带来360 Hz的不确定度. 总的多普勒效应将带来375 Hz的不确定度.

3.2.2 磁场

在弱磁场情况下, 磁子能级会发生能级偏移, 对于不同探测光的偏振, 会导致原子的跃迁频率发生偏移. 但同时, 总有与之对应的一种偏振将这一偏移抵消, 使得跃迁频率的测量值产生展宽. 然而不同磁子能级的原子数会有很小的差异, 这一差异使得这一对跃迁的谱线强度不一致, 最终导致跃迁频率有微小的偏移.

在本实验中, 原子布居数不平衡在0.7%, 磁子能级之间的最大间隔为28 kHz, 通过拟合得到因磁场带来的偏移为57 Hz. 由于不确定剩余磁场方向, 磁场带来的噪声取上限57 Hz.

3.2.3 超精细结构常数

由于 D_2 线的劈裂只有4.6 MHz, 小于自然线宽, 不可分辨, 本实验采取固定能级间隔的方法拟合 D_2 线的绝对频率. 此时, 造成 D_2 线频率的不确定性的最大因素是超精细结构常数^[9]的不准确.

图10所示为 ${}^6\text{Li}$ $2P_{3/2}$ 的超精细结构能级. 每个超精细结构能级的偏移量:

$$\Delta E_{HF} = \frac{1}{2}AC + \frac{3}{8}B \frac{C(C+1)}{I(2I-1)J(2J-1)}, \quad (1)$$

其中 $C = F(F+1) - J(J+1) - I(I+1)$. A 和 B 分别是磁偶级超精细常数和电四极超精细常数, 能级间隔

$\text{splitting1}=1.7118(12) \text{ MHz}$, $\text{splitting2}=2.8947(7) \text{ MHz}$. 在对吸收谱线进行拟合时, 需要考虑能级间隔的误差对拟合结果带来的不确定度, 本文认为, 这个不确定度近似于 splitting1 和 splitting2 的不确定度, 即 f_5 , f_6 , f_7 的不确定度为1350 Hz, f_8 , f_9 的不确定度为1150 Hz.

3.2.4 局域场效应

由于测量的是吸收谱, 需要对局域场效应做出估算. 由于实验中较小的原子数密度($n_0 k^{-3} = 3.8 \times 10^{-6}$, $k=2\pi/\lambda$)和弱探测光, 来自散射的集体效应也很小^[52]. 在低阶近似下, 当探测光频率扫过共振时, 会存在Lorentz shift^[53]:

$$\Delta LL = \frac{-n_0 d^2}{3\epsilon_0 \hbar}, \quad (2)$$

其中 n_0 是原子数密度, d 是跃迁偶极矩, ϵ_0 是真空介电常数. 由局域场效应引起的频移约为 D_1 线-28 Hz, D_2 线-57 Hz. 考虑原子数密度的抖动和探测光的抖动, 取绝对频率的不确定度为3 Hz和6 Hz.

3.2.5 量子干涉

在 D_2 跃迁谱线的测量中, 与NIST的测量类似^[42], 由于 D_2 跃迁谱线间隔太近, 需要考虑量子干涉带来的影响^[43].

以 $2S_{1/2}$, $F=1/2 \rightarrow 2P_{3/2}$ 跃迁为例, 加入了量子干涉修正后的谱线拟合如图11所示, 本实验通过固定两个跃迁峰的间隔进行拟合, 两者之间的频率间隔1.712 MHz. 从图中可以看出, 量子干涉部分对于整个谱线影响较大, 所以不同能级之间的量子干涉不可忽略.

图10 (网络版彩图) ${}^6\text{Li}$ 的 $2P_{3/2}$ 能级超精细结构劈裂
Figure 10 (Color online) $2P_{3/2}$ hyperfine structure energy levels of ${}^6\text{Li}$.

图 11 (网络版彩图) $2S_{1/2}, F=1/2 \rightarrow 2P_{3/2}$ 跃迁有荧光干涉修正拟合

Figure 11 (Color online) Fitting with quantum interference correction for $2S_{1/2}, F=1/2 \rightarrow 2P_{3/2}$ transition.

3.2.6 其他误差

系统的其他不确定性, 例如光泵浦、多激发光子反冲和AC Stark效应, 由于探测光非常弱, 并且本实验通过光强外推获得的绝对频率, 因此不确定度很小.

应当指出, $2S_{1/2}, F=1/2 \rightarrow 2P_{1/2}, F'=3/2$ 的跃迁概率是 $2S_{1/2}, F=1/2 \rightarrow 2P_{1/2}, F'=1/2$ 的8倍. 为了获得最佳的信噪比, 本实验在测量 $2S_{1/2}, F=1/2 \rightarrow 2P_{1/2}, F'=1/2$ 这一跃迁时, 增加了原子团的光学密度.

3.3 对比分析

从20世纪50年代开始, 就有人开始测量 ^6Li 的精细结构能级^[41,54–56], 随着测量方法的不断改进, 测量的精度也在不断提高. 与此同时, 由于 ^6Li 外层只有三个电子, 便于理论计算, 理论模型也在不断修正. 图12所示为几十年来实验测量和理论计算的精细结构劈裂的不确定度.

目前Das和Sansonetti等人^[36,42]报道了 ^6Li 的绝对跃迁频率的精确测量结果. 本实验的测量结果和Das的相比, D线跃迁频率值差了20–85 σ . 本实验的测量结果和NIST的测量值相比, 测量频率的不确定度小一个数量级, D₁线的绝对跃迁频率偏高2–28 kHz. 本文认为, 这些差异可能是由于测量中大光强引起的频率偏移. 对于D₂线, 本实验的结果与他们的结果在1 σ 量级上是一致的.

本实验的精细结构劈裂和超精细结构劈裂结

果与先前实验的比较如表3所示. 测得的 $2P_{1/2}$ 超精细结构劈裂为26.1031(14) MHz, 这与最近的理论计算26.1026(6) MHz非常吻合^[8]. 本实验测量基态超精细结构劈裂的结果是228.2015(14) MHz, 与Beckmann等人^[37]用原子束磁共振方法测量的结果相差2.6 σ . 他们测量的不确定度号称为Hz, 比本实验的测量精度高约3个量级. 在这个量级中, 必须考虑更多的系统误差, 需要进一步研究两者之间的差异.

图 12 (网络版彩图) 不同小组实验或计算得到的 ^6Li 2P精细结构能级的不确定度

Figure 12 (Color online) Uncertainty of 2P fine-structure of ^6Li from different groups.

表 3 不同理论计算和实验测量的 ^6Li 超精细结构能级劈裂和精细结构能级劈裂

Table 3 Fine structure splitting and hyperfine structure splitting of ^6Li from different groups

时间间隔	能级劈裂 (MHz)	参考文献	年份
2S hfs	228.215(17)	Sansonetti等人 ^[42]	2011
	228.205261(3)	Beckmann等人 ^[37]	1974
	228.2015(14)	Li等人 ^[44]	2020
2P _{1/2} hfs	26.111(15)	Sansonetti等人 ^[42]	2011
	26.091(6)	Das等人 ^[36]	2007
	26.079(46)	Walls等人 ^[38]	2003
	26.110(56)	Noble等人 ^[35]	2006
	26.1026(6)	Puchalski等人 ^[8]	2009
	26.1087(8)	Yerokhin ^[9]	2008
	26.1031(14)	Li等人 ^[44]	2020
2P fs	10052.72(6)	Puchalski等人 ^[11]	2014
	10052.799(22)	Sansonetti等人 ^[42]	2011
	10052.76(22)	Brog等人 ^[41]	1967
	10052.964(50)	Noble等人 ^[35]	2006
	10052.044(91)	Walls等人 ^[38]	2003
	10052.862(41)	Das等人 ^[36]	2007
	10052.7804(18)	Li等人 ^[44]	2020

${}^6\text{Li}$ 的 2P 能级精细结构劈裂的测量值为 10052.7804(18) MHz, 这与最新的测量结果^[42]一致, 与 $m\alpha^6$ 和 $m\alpha^7 \ln\alpha$ 修正的理论^[11,12] 也是一致的.

4 结论

本实验实现了光子散粒噪声极限的 ${}^6\text{Li}$ 精密光

谱, 使用光学频率梳测量了 ${}^6\text{Li}$ 冷原子的 D 线跃迁的绝对频率. 测量精度比目前最好的实验结果提高了一个数量级. 这些测量结果与最近由高阶相对论和 QED 修正的 2P 精细结构劈裂计算结果符合得很好, 并有助于解决理论与实验之间的巨大分歧. 若将此类测量推广到 ${}^6\text{Li}$ 和 ${}^7\text{Li}$ 的冷原子, 将在更高精度的水平上确定同位素位移和相对核电荷半径.

参考文献

- 1 Yan Z C, Drake G W F. Lithium fine structure in the $1s^2 2p^2 P_J$ states. *Phys Rev Lett*, 1997, 79: 1646–1649
- 2 Guan X X, Wang Z W. The hyperfine structure of the $1s^2 ns^2 S$ and $1s^2 np^2 P$ states ($n=2, 3, 4$, and 5) for the lithium isoelectronic sequence. *Eur Phys J D*, 1998, 2: 21–27
- 3 Yamanaka N. Multiconfigurational Hartree-Fock calculations of the hyperfine structure constants for the $1s^2 2s^2 S$ and $1s^2 2p^2 P$ states of ${}^7\text{Li}$ and ${}^9\text{Be}^+$. *J Phys Soc Jpn*, 1999, 68: 2561–2569
- 4 Yan Z C, Drake G W F. Lithium isotope shifts as a measure of nuclear size. *Phys Rev A*, 2000, 61: 022504
- 5 Godefroid M, Fischer C F, Jönsson P. Non-relativistic variational calculations of atomic properties in Li-like ions: Li I to O VI. *J Phys B*, 2001, 34: 1079–1104
- 6 Yan Z C, Drake G W F. Lithium transition energies and isotope shifts: QED recoil corrections. *Phys Rev A*, 2002, 66: 042504
- 7 Yan Z C, Nörtershäuser W, Drake G W F. High precision atomic theory for Li and Be^+ : QED shifts and isotope shifts. *Phys Rev Lett*, 2008, 100: 243002
- 8 Puchalski M, Pachucki K. Fine and hyperfine splitting of the 2P state in Li and Be^+ . *Phys Rev A*, 2009, 79: 032510
- 9 Yerokhin V A. Hyperfine structure of Li and Be^+ . *Phys Rev A*, 2008, 78: 012513
- 10 Puchalski M, Moro A M, Pachucki K. Isotope shift of the $3^2S_{1/2}$ - $2^2S_{1/2}$ transition in lithium and the nuclear polarizability. *Phys Rev Lett*, 2006, 97: 133001
- 11 Puchalski M, Pachucki K. Quantum electrodynamics corrections to the 2P fine splitting in Li. *Phys Rev Lett*, 2014, 113: 073004
- 12 Wang L M, Li C, Yan Z C, et al. Isotope shifts and transition frequencies for the S and P states of lithium: Bethe logarithms and second-order relativistic recoil. *Phys Rev A*, 2017, 95: 032504
- 13 Minardi F, Bianchini G, Pastor P C, et al. Measurement of the helium 2^3P_0 - 2^3P_1 fine structure interval. *Phys Rev Lett*, 1999, 82: 1112–1115
- 14 Zelevinsky T, Farkas D, Gabrielse G. Precision measurement of the three 2^3P_J helium fine structure intervals. *Phys Rev Lett*, 2005, 95: 203001
- 15 Borbely J S, George M C, Lombardi L D, et al. Separated oscillatory-field microwave measurement of the 2^3P_1 - 2^3P_2 fine-structure interval of atomic helium. *Phys Rev A*, 2009, 79: 060503
- 16 Smiciklas M, Shiner D. Determination of the fine structure constant using helium fine structure. *Phys Rev Lett*, 2010, 105: 123001
- 17 Zheng X, Sun Y R, Chen J J, et al. Laser spectroscopy of the fine-structure splitting in the 2^3P_J levels of ${}^4\text{He}$. *Phys Rev Lett*, 2017, 118: 063001
- 18 Zheng X, Sun Y, Chen J J, et al. Precision spectroscopy on the 2^3S - 2^3P transition of atomic helium. *Acta Phys Sin*, 2018, 67: 164203
- 19 Johnson W R, Safronova U I, Derevianko A, et al. Relativistic many-body calculation of energies, lifetimes, hyperfine constants, and polarizabilities in ${}^7\text{Li}$. *Phys Rev A*, 2008, 77: 022510
- 20 Derevianko A, Porsev S G, Beloy K. Convergence of all-order many-body methods: Coupled-cluster study for Li. *Phys Rev A*, 2008, 78: 010503
- 21 Bieroń J, Jönsson P, Froese Fischer C. Effects of electron correlation, relativity, and nuclear structure on hyperfine constants of Be^+ and F^{6+} . *Phys Rev A*, 1999, 60: 3547–3557
- 22 Shiner D, Dixon R, Vedantham V. Three-nucleon charge radius: A precise laser determination using ${}^3\text{He}$. *Phys Rev Lett*, 1995, 74: 3553–3556
- 23 De Jager C W, De Vries H, De Vries C. Nuclear charge- and magnetization-density-distribution parameters from elastic electron scattering. *Atomic Data Nucl Data Tables*, 1974, 14: 479–508
- 24 Drake G. Long-range casimir forces: Theory and recent experiments on atomic systems. *Phys Today*, 1993, 47: 7, 67
- 25 Marin F, Minardi F, Pavone F S, et al. Hyperfine structure of the 3^3P state of ${}^3\text{He}$ and isotope shift for the 2^3S - 3^3P_0 transition. *Z Phys D*, 1995, 32: 285–293
- 26 Riis E, Sinclair A G, Poulsen O, et al. Lamb shifts and hyperfine structure in ${}^6\text{Li}^+$ and ${}^7\text{Li}^+$: Theory and experiment. *Phys Rev A*, 1994, 49:

207–220

- 27 Tanihata I, Hamagaki H, Hashimoto O, et al. Measurements of interaction cross sections and nuclear radii in the light p-shell region. *Phys Rev Lett*, 1985, 55: 2676–2679
- 28 Ewald G, Nörtershäuser W, Dax A, et al. Nuclear charge radii of ^8Li determined by laser spectroscopy. *Phys Rev Lett*, 2004, 93: 113002
- 29 Sánchez R, Nörtershäuser W, Ewald G, et al. Nuclear charge radii of ^9Li : The influence of halo neutrons. *Phys Rev Lett*, 2006, 96: 033002
- 30 Jensen A S, Riisager K, Fedorov D V, et al. Structure and reactions of quantum halos. *Rev Mod Phys*, 2004, 76: 215–261
- 31 Tanihata I. Neutron halo nuclei. *J Phys G-Nucl Part Phys*, 1996, 22: 157–198
- 32 Wang L B, Mueller P, Bailey K, et al. Laser spectroscopic determination of the ^6He nuclear charge radius. *Phys Rev Lett*, 2004, 93: 142501
- 33 Pieper S C, Wiringa R B. Quantum Monte Carlo calculations of light nuclei. *Annu Rev Nucl Part Sci*, 2001, 51: 53–90
- 34 Bushaw B A, Nörtershäuser W, Ewald G, et al. Hyperfine splitting, isotope shift, and level energy of the 3S states of ^6Li . *Phys Rev Lett*, 2003, 91: 043004
- 35 Noble G A, Schultz B E, Ming H, et al. Isotope shifts and fine structures of ^6Li D lines and determination of the relative nuclear charge radius. *Phys Rev A*, 2006, 74: 012502
- 36 Das D, Natarajan V. Absolute frequency measurement of the lithium D lines: Precise determination of isotope shifts and fine-structure intervals. *Phys Rev A*, 2007, 75: 052508
- 37 Beckmann A, Böklen K D, Elke D. Precision measurements of the nuclear magnetic dipole moments of ^6Li , ^7Li , ^{23}Na , ^{39}K and ^{41}K . *Z Physik*, 1974, 270: 173–186
- 38 Walls J, Ashby R, Clarke J J, et al. Measurement of isotope shifts, fine and hyperfine structure splittings of the lithium D lines. *Eur Phys J D*, 2003, 22: 159–162
- 39 Huang Y C, Luo W J, Kuo Y T, et al. Precision measurement of hyperfine intervals in the D_1 lines of atomic ^7Li . *J Phys B At Mol Opt Phys*, 2013, 46: 075004
- 40 Lien Y H, Lo K J, Chen H C, et al. Absolute frequencies of the ^6Li $2\text{S }^2\text{S}_{1/2} \rightarrow 3\text{S }^2\text{S}_{1/2}$ transitions. *Phys Rev A*, 2011, 84: 042511
- 41 Brog K C, Eck T G, Wieder H. Fine and hyperfine structure of the 2^2P term of ^6Li and ^7Li . *Phys Rev*, 1967, 153: 91–103
- 42 Sansonetti C J, Simien C E, Gillaspay J D, et al. Absolute transition frequencies and quantum interference in a frequency comb based measurement of the ^6Li D lines. *Phys Rev Lett*, 2011, 107: 023001
- 43 Brown R C, Wu S, Porto J V, et al. Quantum interference and light polarization effects in unresolvable atomic lines: Application to a precise measurement of the ^6Li D_2 lines. *Phys Rev A*, 2013, 87: 032504
- 44 Li R, Wu Y, Rui Y, et al. Absolute frequency measurement of ^6Li D lines with kHz-level uncertainty. *Phys Rev Lett*, 2020, 124: 063002
- 45 Deng S, Chenu A, Diao P, et al. Superadiabatic quantum friction suppression in finite-time thermodynamics. *Sci Adv*, 2018, 4: eaar5909
- 46 Deng S, Shi Z Y, Diao P, et al. Observation of the Efimovian expansion in scale-invariant Fermi gases. *Science*, 2016, 353: 371–374
- 47 Grier A T, Ferrier-Barbut I, Rem B S, et al. Enhanced sub-Doppler cooling of lithium atoms in D_1 gray molasses. *Phys Rev A*, 2013, 87: 063411
- 48 Wu Y L, Li R, Rui Y, et al. Precise measurement of ^6Li transition frequencies and hyperfine splitting. *Acta Phys Sin*, 2018, 67: 163201
- 49 Savard T A, Granade S R, O'Hara K M, et al. Raman-induced magnetic resonance imaging of atoms in a magneto-optical trap. *Phys Rev A*, 1999, 60: 4788–4795
- 50 Chen H Q, Jiang Y Y, Bi Z Y, et al. Progress and trend of narrow-linewidth lasers. *Sci China Technol Sci*, 2013, 56: 1589–1596
- 51 Pino J M, Wild R J, Makotyn P, et al. Photon counting for Bragg spectroscopy of quantum gases. *Phys Rev A*, 2011, 83: 033615
- 52 Zhu B, Cooper J, Ye J, et al. Light scattering from dense cold atomic media. *Phys Rev A*, 2016, 94: 023612
- 53 Lorentz H. The Theory of Electrons. Leipzig: Teubner, 1916
- 54 Hughes R H. Isotope shift in the first spectrum of atomic lithium. *Phys Rev*, 1955, 99: 1837–1839
- 55 Windholz L, Jäger H, Musso M, et al. Laserspectroscopic investigations of the lithium-D-lines in magnetic fields. *Z Phys D*, 1990, 16: 41–47
- 56 Scherf W, Khait O, Jäger H, et al. Re-measurement of the transition frequencies, fine structure splitting and isotope shift of the resonance lines of lithium, sodium and potassium. *Z Phys D*, 1996, 36: 31–33

Precise absolute frequency measurement of three-electron ${}^6\text{Li}$ atom D-line transitions

RUI Yang, WU YueLong, LI Rui & WU HaiBin*

State Key Laboratory of Precision Spectroscopy, East China Normal University, Shanghai 200062, China

We achieve the photon shot-noise limited optical spectroscopy of ${}^6\text{Li}$ cold atoms by developing a heterodyne detection technique, under the condition of extremely low optical power density (below 10^{-3} saturation intensity) of probe beam. We establish a transport chain of frequency stability based on an optical frequency comb, and achieve absolute frequencies measurement of D_1 lines with an uncertainty of about 1 kHz, which is one order of magnitude more accurate than previous measurements. The 2P fine structure splitting of ${}^6\text{Li}$ and the hyperfine splitting of $2\text{P}_{1/2}$ are 10052.7804(18) and 26.1031(14) MHz, respectively, in agreement with recent theoretical calculations. Our results could provide a benchmark to test the theory at the higher precision and help to resolve large discrepancies among previous experiments.

cold atoms, absolute frequency measurement, shot noise limit

PACS: 32.10.Fn, 42.62.Eh, 37.10.De, 42.50.Ar

doi: [10.1360/SSPMA-2020-0483](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2020-0483)