

基于 MCDHF 方法的铯原子 $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$, 1D_2 和 $5s6s\ ^3S_1$ 态超精细结构常数、朗德 g 因子及寿命的理论研究*

王艺铭¹⁾³⁾ 冯敏¹⁾²⁾³⁾⁴⁾ 梁婷¹⁾²⁾³⁾⁴⁾ 曹进¹⁾²⁾³⁾⁴⁾
卢本全^{1)2)3)†} 常宏^{1)2)3)4)‡}

1) (中国科学院国家授时中心, 西安 710600)

2) (时间基准及应用重点实验室, 西安 710600)

3) (中国科学院大学天文与空间科学学院, 北京 101408)

4) (合肥国家实验室, 合肥 230026)

(2025 年 12 月 31 日收到; 2026 年 2 月 13 日收到修改稿)

本文采用多组态 Dirac-Hartree-Fock 理论, 系统优化了铯原子 $5s5p\ ^3P_{0,1,2}$, 1P_1 , $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$, 1D_2 和 $5s6s\ ^3S_1$, 1S_0 态的能级结构, 计算了 $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$, 1D_2 和 $5s6s\ ^3S_1$ 态的超精细结构常数、朗德 g 因子和寿命. 在计算中, 系统分析了电子关联效应、Breit 相互作用和量子电动力学修正等因素对原子参数的影响. 结果表明, 对于 $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$ 三重态, 理论计算得到的磁偶极超精细结构常数 A 与实验测量值之间的偏差小于 3%, 对于 $5s6s\ ^3S_1$ 态, A 的理论计算与实验测量之间的偏差为 0.4%, 显著减小了理论计算与实验测量之间的差异. 此外, 本文还给出了 $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$, 1D_2 和 $5s6s\ ^3S_1$ 态的电四极超精细结构常数 B 的理论结果, 与实验数据基本一致. 计算的 $5s4d\ ^3D_1$ 态的朗德 g 因子与实验的偏差不超过 10^{-4} 量级. 本文的研究不仅为量子信息、精密测量等相关实验研究提供了可靠的理论参数, 也为进一步基于该方法系统研究电子关联等物理效应对高激发态原子参数的影响提供了依据.

关键词: 铯原子, 多组态 Dirac-Hartree-Fock 方法, 超精细结构常数, 朗德 g 因子, 寿命

DOI: 10.7498/aps.75.20251796

CSTR: 32037.14.aps.75.20251796

1 引言

铯原子光晶格钟是目前精度最高的光钟之一, 其不仅是未来秒定义的有力候选者^[1-3], 还在大地测量^[4,5]、广义相对论检验^[6]、引力波探测^[7]及暗物质搜寻^[8]等领域具有重要应用. 此外, 铯原子在精密测量与量子信息等也展现出广泛的应用前

景, 其激发态 $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$, 1D_2 和 $5s6s\ ^3S_1$ 在量子寄存器的相干操控^[9]、量子比特的高保真度调控^[10]、激光冷却^[11]、亚稳态磁光阱束缚^[12]和原子阵列的波前控制^[13]等实验发挥着关键作用. 然而, 要实现对这些能级的精确调控, 必须掌握其在外加磁场下的塞曼 (Zeeman) 效应特性, 尤其是朗德 g 因子等关键参数. 对于 ^{87}Sr 这类具有核自旋的原子, 还需要进一步考虑超精细相互作用的影响. 因此, 精确

* 陕西省自然科学基金 (批准号: 2025JC-YBMS-038)、国家自然科学基金 (批准号: 12574283)、“量子通信与量子计算机”国家科技重大专项 (批准号: 2021ZD0300902) 和中国科学院重大科技基础设施运行维护项目 (批准号: 2024000014) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: lubenquan@ntsc.ac.cn

‡ 通信作者. E-mail: changhong@ntsc.ac.cn

计算 $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$, 1D_2 和 $5s6s\ ^3S_1$ 态的超精细结构常数和朗德 g 因子, 对相关实验设计具有重要支撑作用, 也为量子信息与精密测量等方向的研究提供了可靠的理论依据.

目前对于 ^{87}Sr 原子 $^3D_{1,2,3}$, 1D_2 态和 3S_1 态超精细结构常数的理论研究相对匮乏, 现有部分实验数据也存在偏差. 对于 $5s4d\ ^3D_1$ 态, Mani 和 Angom^[14] 采用 Fock 空间相对论耦合簇 (Fock space relativistic coupled-cluster, FSRCC) 方法计算的磁偶极超精细结构常数 A 为 158.586 MHz; 实验上, Barsanti 等^[15] 基于饱和吸收光谱法获得的实验结果为 139.9(2) MHz, Bushaw 等^[16] 通过共线激光吸收法测量的结果为 140(2) MHz. 两个实验结果之间偏差小于 0.1%, 但与 Mani 和 Angom^[14] 的理论值偏差均超过 10%. 关于该态电四极超精细结构常数 B , 上述两个实验组给出的结果分别为 $-6(4)$ MHz 和 $15(2)$ MHz, 结果差异显著, 难以为实验提供可靠的数据支撑. 然而, 目前尚无 3D_1 态电四极超精细结构常数 B 的理论计算结果, 有必要开展高精度理论计算来填补该参数的理论空白, 并为实验提供参考. 对于 3D_2 和 3D_3 态, 仅 Mani 和 Angom^[14] 给出了 A 的理论值, 分别为 -49.65 MHz 和 -133.78 MHz, 与 Bushaw 等^[16] 的实验结果 $-78.08(5)$ MHz 和 $-115.3(2)$ MHz 相比, 偏差均超过 10%. Bushaw 等^[16] 测量的 B 值为 $18(1)$ MHz 和 $51(9)$ MHz, 但尚无相应的理论研究. 对 1D_2 态, Tang^[17] 采用组态相互作用结合耦合簇方法 (relativistic configuration-interaction combined with a coupled-cluster method, RCICC) 方法计算的 A 值为 $-5.3(0.3)$ MHz; Grundevik 等^[47] 实验测量的 A 值为 $-5.5734(4)$ MHz, B 值为 $55.421(6)$ MHz, 理论与实验得到的 A 值偏差约为 5%, 但还没有 B 值的理论结果. 对于 3S_1 态, Bender 等^[18] 测得的 A 值为 $-542.1(4)$ MHz, Barsanti 等^[15] 为 $543(2)$ MHz, Bushaw 和 Cannon^[19] 为 -542.57 MHz, Courtillot 等^[20] 则为 $-542.0(1)$ MHz, 各实验结果间偏差小于 0.2%, 表现出较好的一致性, 但仍缺乏系统的理论计算结果与之对照. 综上所述, 目前亟需高精度的理论方法系统计算 ^{87}Sr 原子 $^3D_{1,2,3}$ 和 3S_1 态的超精细结构常数.

Olmos 等^[21] 提出, 铯原子 $5s5p\ ^3P_0 \rightarrow 5s4d\ ^3D_1$ 跃迁可通过交换虚光子产生偶极-偶极相互作用, 为研究具有长程相互作用的量子多体系统提供了新的实验平台. 在该类实验中, 3D_1 态的朗德 g 因

子等关键参数的精确取值至关重要^[21,22]. 然而, 目前对铯原子 $5s4d\ ^3D_1$ 态的朗德 g 因子的理论研究仍显不足. 仅 Zhang 等^[22] 基于 LS 耦合近似给出了理论值 0.4988, 与其通过边带塞曼光谱法测得的实验值 0.4995(88) 之间的偏差为 0.2%, 尚缺乏其他理论计算的独立印证. 此外, 针对 $^3D_{2,3}$ 和 3S_1 态的朗德 g 因子的研究迄今尚未见报道.

另一方面, 3D_1 态和 3S_1 态至 3P_0 态的电偶极跃迁几率对 3P_0 态的静态及动力学极化率具有显著贡献^[23-25], 精确确定 3D_1 态和 3S_1 态至 3P_0 态的跃迁矩阵元对评估黑体辐射频移和计算魔术波长有重要意义^[24]. 根据实验测量的能级差和理论计算的跃迁矩阵元可以计算出能级寿命, 此外结合能级寿命的实验测量结果, 还可以为跃迁矩阵元和极化率的准确性提供检验依据^[24]. 目前已有多项实验研究^[2,26-30] 报道了 3D_1 态和 3S_1 态的能级寿命测量结果, 但 3S_1 态的实验结果之间存在显著差距 (偏差达 7%—27%)^[26-29]. 理论研究方面, 文献^[24,25,31] 给出了这两个态寿命的计算结果, 但 3S_1 态的理论结果^[25,31] 之间存在 6% 的偏差, 而且与部分实验数据^[26-28] 的偏差可达 6%—22%, 因此有必要通过更多理论计算来验证当前理论与实验结果的可靠性.

本文采用多组态 Dirac-Hartree-Fock (multi-configuration Dirac-Hartree-Fock, MCDHF) 方法, 系统优化了铯原子 $5s5p\ ^3P_{0,1,2}$, 1P_1 , $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$, 1D_2 和 $5s6s\ ^3S_1$, 1S_0 态的能级结构, 计算了 $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$, 1D_2 和 $5s6s\ ^3S_1$ 态的超精细结构常数, 朗德 g 因子和能级寿命. 计算中, 系统分析了电子关联效应、Breit 相互作用和量子电动力学修正 (quantum electrodynamics, QED) 等因素对原子参数的影响. 本文计算的磁偶极超精细常数 A 与实验值偏差小于 3%, 3S_1 态的计算偏差不超过 0.4%, 给出了理论计算的电四极超精细常数 B 值, 与实验测量结果一致. 此外, 本文朗德 g 因子的计算精度也优于以前的理论结果.

2 理论方法

2.1 超精细相互作用

原子核的电磁多极矩与电子部分之间的相互作用称为超精细相互作用, 其哈密顿量可表示为原子核空间与电子空间的张量算符之积^[32]:

$$H_{\text{hfs}} = \sum_{k \geq 1} \mathbf{T}^{(k)} \cdot \mathbf{M}^{(k)}, \quad (1)$$

$\mathbf{T}^{(k)}$ 和 $\mathbf{M}^{(k)}$ 分别是作用于电子空间和原子核空间的 k 阶球张量算符. $k = 1$ 和 $k = 2$ 分别对应磁偶极相互作用和电四极相互作用. 由于更高阶 ($k \geq 3$) 超精细相互作用的贡献通常远小于前两项, 在大多数研究中可以忽略.

在原子单位制下, 电子部分张量算符 $\mathbf{T}^{(k)}$ 可表示为

$$\mathbf{T}^{(1)} = \sum_{j=1}^N -i\sqrt{2}\alpha r_j^{-2} \left(\alpha_j \mathbf{C}^{(1)}(j) \right)^{(1)}, \quad (2)$$

$$\mathbf{T}^{(2)} = - \sum_{j=1}^N r_j^{-3} \mathbf{C}^{(2)}(j), \quad (3)$$

其中, i 为虚数单位, α 为精细结构常数, α_j 为狄拉克矩阵, r_j 为第 j 个电子到原子核的距离, $\mathbf{C}^{(k)}$ 是 k 阶球张量算符.

核空间张量算符 $\mathbf{M}^{(k)}$ 与原子核磁偶极矩 μ_I 和电四极矩 Q_I 的关系为^[33]

$$\langle I || \mathbf{M}^{(1)} || I \rangle = \mu_I \sqrt{\frac{I+1}{I}}, \quad (4)$$

$$\langle I || \mathbf{M}^{(2)} || I \rangle = \frac{Q}{2} \sqrt{\frac{(2I+3)(I+1)}{I(2I-1)}}, \quad (5)$$

其中, I 为原子核自旋量子数. 磁偶极超精细结构常数 A 与电四极超精细结构常数 B 为^[33]

$$A = \frac{\mu_I}{I} \frac{1}{[J(J+1)]^{1/2}} \langle \Gamma J || \mathbf{T}^{(1)} || \Gamma J \rangle, \quad (6)$$

$$B = 2Q \left[\frac{J(2J-1)}{(J+1)(2J+3)} \right]^{1/2} \langle \Gamma J || \mathbf{T}^{(2)} || \Gamma J \rangle. \quad (7)$$

2.2 Zeeman 效应

当原子 (或离子) 处于磁场中时, 其与磁场的 Zeeman 相互作用为^[33]

$$H_m = (\mathbf{N}^{(1)} + \Delta \mathbf{N}^{(1)}) B, \quad (8)$$

其中, $\mathbf{N}^{(1)}$ 和 $\Delta \mathbf{N}^{(1)}$ 分别表示一阶磁偶极相互作用算符及其相对论修正项. 对于一个 N 电子体系, 电子部分的磁偶极算符为

$$\mathbf{N}^{(1)} = \sum_{j=1}^N \mathbf{n}^{(1)}(j) = \sum_{j=1}^N -i \frac{\sqrt{2}}{2\alpha} r_j \left(\alpha_j \cdot \mathbf{C}^{(1)}(j) \right)^{(1)}, \quad (9)$$

$$\Delta \mathbf{N}^{(1)} = \sum_{j=1}^N \Delta \mathbf{n}^{(1)}(j) = \sum_{j=1}^N \frac{(g_s - 2)}{2} \beta_j \boldsymbol{\Sigma}_j, \quad (10)$$

其中, $\boldsymbol{\Sigma}_j$ 为相对论自旋矩阵, $g_s = 2.00232$ 为电子的朗德 g 因子. 根据一阶微扰理论, 精细结构朗德 g 因子 g_J 定义为

$$g_J = 2 \frac{\langle \Gamma J || \mathbf{N}^{(1)} + \Delta \mathbf{N}^{(1)} || \Gamma J \rangle}{\sqrt{J(J+1)}}, \quad (11)$$

其中 P 为宇称, J 为总角动量量子数, M_J 为磁量子数, $|\Gamma J\rangle$ 为原子态波函数 (atomic state wavefunction, ASF).

2.3 电偶极跃迁

原子态 $|\Gamma J\rangle$ 与 $|\Gamma' J'\rangle$ 之间与跃迁相关的参数可以用跃迁矩阵元表示:

$$\langle \Gamma J || \mathbf{O}^{(k)} || \Gamma' J' \rangle, \quad (12)$$

其中, $\mathbf{O}^{(k)}$ 是 k 阶电多极跃迁算符. 电偶极 ($k = 1$) 跃迁算符在 Babushkin 规范和 Coulomb 规范下具有不同的数学形式, 两种规范分别对应非相对论条件下的长度规范和速度规范, 在本文的计算中均采用长度规范结果.

对于电偶极跃迁, 根据含时微扰论, 原子态 $|\Gamma_b J_b\rangle$ 与 $|\Gamma_a J_a\rangle$ 之间的电偶极跃迁几率可表示为^[34]

$$A_{\text{E1}}(\Gamma_b J_b, \Gamma_a J_a) = \frac{8\pi^2}{3\epsilon_0 \hbar \lambda_{ba}^3} \frac{S^{\text{E1}}(J_b, J_a)}{2J_b + 1}, \quad (13)$$

转化为原子单位制, 表达式为

$$A_{\text{E1}}(\Gamma_b J_b, \Gamma_a J_a) = \frac{2.02613 \times 10^{18}}{\lambda_{ba}^3} \frac{S^{\text{E1}}(J_b, J_a)}{2J_b + 1}, \quad (14)$$

其中, S^{E1} 为电偶极跃迁的线强度 (单位为 a.u.), λ_{ba} 为波长 (单位为 Å), J 为 $|\Gamma J\rangle$ 态的总角动量量子数.

原子态的寿命由其向所有能量更低态的跃迁共同决定, 原子态 $|\Gamma_b J_b\rangle$ 的寿命 τ_b 可表示为所有可能跃迁通道的跃迁几率之和的倒数:

$$\tau_b = \frac{1}{\sum_{a \leq b} A_{ba}}. \quad (15)$$

3 计算方法与计算模型

在 MCDHF 理论中, 原子态波函数可由一组具有相同宇称 P 、总角动量 J 及磁量子数 M_J 的组态波函数 (configuration state function, CSF) 线

性展开^[35-37]:

$$|ΓPJM_J\rangle = \sum_i^{\text{NCSF}} c_i |\gamma_i PJM_J\rangle, \quad (16)$$

其中, NCSF 表示组态波函数的数目, c_i 是对应于第 i 个 CSF 的混合系数, γ_i 表示除 P, J 和 M_J 以外描述该 CSF 的其他量子数. 每个组态波函数 $|\gamma_i PJM_J\rangle$ 可由一组相对论单电子轨道波函数的 Slater 行列式的线性组合表示.

在自洽场 (self-consistent field, SCF) 方法中, 基于变分原理同时优化单电子轨道波函数与组态混合系数以获得轨道基组. 在相对论组态相互作用 (relativistic configuration interaction, RCI) 方法中, 仅对组态混合系数进行优化, 单电子轨道波函数不再发生改变. 在 RCI 计算中, 本文可以进一步考虑 Breit 相互作用和 QED 修正, 其中 QED 修正包括真空极化效应和自能修正等.

本文通过活动空间方法^[38,39]考虑电子关联效应. 根据微扰论, 电子关联效应可以分为一阶电子关联效应和高阶电子关联效应. 在计算中, 通过使原子实电子和价电子单双激发至虚轨道的方式构建组态空间. 我们通过从单 (多) 参考组态单双激发的方法考虑一阶电子关联效应. 其中一阶关联主要包括价电子与价电子之间的关联 (valence-valence correlation), 价电子和原子实电子之间的

关联 (core-valence correlation), 以及原子实电子之间的关联 (core-core correlation). 随后, 我们在—阶电子关联的组态空间中挑选出重要的组态构成多参考组态, 通过多参考组态单双激发的方式构建的组态空间来考虑高阶电子关联效应. 在 MCDHF 计算中, 将偶宇称组态 $\{1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s^2, 1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s 4d, 1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s 6s\}$ 和奇宇称组态 $\{1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s 5p\}$ 作为参考组态, 首先从 DHF (Dirac-Hartree-Fock) 近似出发, 对参考组态的光谱轨道进行优化. 所有参考组态中最外层的两个电子被视为价电子, 其余电子作为原子实电子. 在 SCF 计算中, 本文考虑了价电子和价电子 (valence-valence, VV), 原子实电子和价电子 (core-valence, CV) 之间的关联效应. 组态空间的扩展通过从参考组态的限制性单双激发 (restricted single and double excitations, rSD) 实现, 即最多允许一个电子从原子实激发至虚轨道, 其余激发来自价电子. 原子实电子的激发按照先打开 4sp 壳层, 后打开 3spd 壳层的顺序, 逐层打开激发至虚轨道. 为了确保计算收敛, 本文共扩展了 7 层虚轨道, 该计算模型记为 C3V-7. 扩展的虚轨道以及产生的组态数目见表 1. 在 RCI 计算中, 本文进一步考虑剩余的 CV 关联以及 $n = 4$ 原子实电子之间的 CC 关联效应. 在此阶段, 组态空间的扩展是通过从参考组态的 (限制

表 1 在不同模型中, 由偶宇称 $5s^2, 5s4d, 5s6s$ 组态和奇宇称 $5s5p$ 组态产生的组态波函数数目

Table 1. Numbers of configuration state functions (NCSFs) generated from the even-parity $5s^2, 5s4d, 5s6s$ configuration and the odd-parity $5s5p$ configuration in different computational models.

| 模型 | 活动轨道 | 虚轨道 | NCSF | | | |
|-------|---|-----------------------|---------|---------|---------|---------|
| | | | $J = 0$ | $J = 1$ | $J = 2$ | $J = 3$ |
| DHF | $\{5s^2; 5s4d; 5s6s\}$ | | 2 | 2 | 2 | 1 |
| | $\{4s^2 4p^6 5s^2; 4s^2 4p^6 5s 4d; 4s^2 4p^6 5s 6s\}$ | 7s, 5p, 5d, 4f, 5g | 598 | 2175 | 3196 | 2771 |
| | $\{3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s^2; 3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s 4d; 3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s 6s\}$ | 8s, 6p, 6d, 5f, 6g | 1966 | 8110 | 14913 | 11108 |
| | $\{3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s^2; 3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s 4d; 3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s 6s\}$ | 9s, 7p, 7d, 6f, 7g | 3665 | 15658 | 27965 | 20469 |
| | $\{3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s^2; 3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s 4d; 3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s 6s\}$ | 10s, 8p, 8d, 7f, 8g | 6181 | 27168 | 48271 | 35429 |
| | $\{3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s^2; 3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s 4d; 3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s 6s\}$ | 11s, 9p, 9d, 8f | 8738 | 38732 | 67912 | 49339 |
| | $\{3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s^2; 3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s 4d; 3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s 6s\}$ | 12s, 10p, 10d, 9f | 11760 | 52441 | 91070 | 65644 |
| C3V-7 | $\{3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s^2; 3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s 4d; 3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s 6s\}$ | 13s, 11p, 11d | 14187 | 63104 | 107939 | 76885 |
| C1V-7 | $\{1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s^2; 1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s 4d; 1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 5s 6s\}$ | 13s, 11p, 11d, 9f, 8g | 19897 | 87697 | 147242 | 104686 |
| CC4-7 | $\{4s^2 4p^6 5s^2; 4s^2 4p^6 5s 4d; 4s^2 4p^6 5s 6s\}$ | 13s, 11p, 11d, 9f, 8g | 32954 | 157132 | 284219 | 188120 |
| MR-3 | $\cup \{4s^2 4p^6 5p^2; 4s^2 4p^6 5p 6p; 4s^2 4p^6 5s^2 4d 5d\}$ | 9s, 7p, 7d, 6f, 7g | 543726 | 1522251 | 2214686 | 2524821 |

表 1 (续) 在不同模型中, 由偶宇称 $5s^2$, $5s4d$, $5s6s$ 组态和奇宇称 $5s5p$ 组态产生的组态波函数数目
 Table 1 (continued). Numbers of configuration state functions (NCSFs) generated from the even-parity $5s^2$, $5s4d$, $5s6s$ configuration and the odd-parity $5s5p$ configuration in different computational models.

| 模型 | 活动轨道 | 虚轨道 | NCSF | | | |
|-------|---|-----------------------|---------|---------|---------|---------|
| | | | $J = 0$ | $J = 1$ | $J = 2$ | $J = 3$ |
| DHF | { $5s5p$ } | | 1 | 2 | 1 | — |
| | { $4s^24p^65s5p$ } | 7s, 5p, 5d, 4f, 5g | 584 | 2000 | 1827 | — |
| | { $3s^23p^63d^{10}4s^24p^65s5p$ } | 8s, 6p, 6d, 5f, 6g | 1780 | 7096 | 6859 | — |
| | { $3s^23p^63d^{10}4s^24p^65s5p$ } | 9s, 7p, 7d, 6f, 7g | 3627 | 15341 | 15059 | — |
| | { $3s^23p^63d^{10}4s^24p^65s5p$ } | 10s, 8p, 8d, 7f, 8g | 6125 | 26735 | 26427 | — |
| | { $3s^23p^63d^{10}4s^24p^65s5p$ } | 11s, 9p, 9d, 8f | 8664 | 38220 | 37642 | — |
| C3V-7 | { $3s^23p^63d^{10}4s^24p^65s5p$ } | 12s, 10p, 10d, 9f | 11660 | 51856 | 50915 | — |
| C1V-7 | { $1s^22s^22p^63s^23p^63d^{10}4s^24p^65s5p$ } | 13s, 11p, 11d, 9f, 8g | 14058 | 62459 | 60780 | — |
| CC4-7 | { $4s^24p^65s5p$ } | 13s, 11p, 11d, 9f, 8g | 19914 | 86726 | 83569 | — |
| MR-3 | $\cup \{4s^24p^64d5p; 4s^24p^65s6p, 4s^24p^65p6s; 4s^24p^64d6p\}$ | 13s, 11p, 11d, 9f, 8g | 27603 | 152938 | 142523 | — |
| | | 9s, 7p, 7d, 6f, 7g | 175310 | 486011 | 692056 | — |

性) 单双激发至全部虚轨道实现的, 相应模型分别标记为 C1V-7 与 CC4-7. 此外, 在偶宇称和奇宇称的 CC4-7 的组态空间中, 分别以组态混合系数 $|c_i| \geq 0.05$ 和 0.04 为截断条件, 筛选出重要组态, 构建多参考组态集. 最终, 偶宇称选取的组态为 $\{4s^24p^65p^2, 4s^24p^65p6p, 4s^24p^65s^24d5d\}$, 奇宇称部分则为 $\{4s^24p^64d5p, 4s^24p^65s6p, 4s^24p^65p6s, 4s^24p^64d6p\}$. 为考虑 $n \geq 4$ 原子实电子的高阶关联效应, 本文采用多组态单双激发 (multi-reference single and double, MR-SD) 方法 [37,40–43], 将上述多参考组态中的电子单双激发至前 3 层虚轨道来进一步扩展组态空间, 该模型记为 MR. 在 MR 模型的基础上, 本文系统评估了 Breit 相互作用与 QED 修正的影响, 模型记为 MR-BQ. 通过构建以上计算模型, 我们系统考虑了一阶电子关联效应 (VV, CV 和 CC 关联), 高阶电子关联, Breit 相互作用和 QED 修正等物理效应对 $5s^2$, $5s4d$, $5s6s$ 和 $5s5p$ 组态的能级结构, 超精细结构常数和朗德 g 因子等参数的影响. 所有计算都是通过 GRASP 2018 程序 [44] 实现.

4 结果与讨论

4.1 超精细结构常数

表 2 列出了基于 MCDHF 方法计算得到的 $5s4d$ $^3D_{1,2,3}$, 1D_2 态和 $5s6s$ 3S_1 态超精细结构常数值. 计算中采用的核参数为: $\mu = -1.0936 \mu_N$ [45],

$Q = 0.328 b$ [46].

在磁偶极超精细结构常数 A 的计算中, VV 和 CV 电子关联是最主要的关联效应. 从 DHF 模型到 C3V 模型, $5s4d$ $^3D_{1,2,3}$, 1D_2 态和 $5s6s$ 3S_1 态的 A 值变化依次为 29%, 44%, 28%, 30% 和 69%. 由 C3V 扩展至 C1V 模型时, $^3D_{1,2,3}$ 态和 3S_1 态的 A 值变化分别为 2.0%, 0.2%, 0.6% 和 1.7%, 而 1D_2 态变化约为 9%. CC 关联对各态 A 值的贡献分别为 -6%, -17%, -10%, 17% 和 -18%. 高阶电子关联对 $^3D_{1,3}$ 态 A 值的影响不超过 0.5%, 对 3D_2 态和 1D_2 态的影响小于 5%, 对 3S_1 态的贡献约为 11%. Breit 相互作用和 QED 效应对于 $^3D_{1,2,3}$ 态和 3S_1 态 A 值的影响均在 0.3%, 而对 1D_2 态的影响可达 7%. 对于电四极超精细结构常数 B , C3V 模型的贡献最为显著, 对 $5s4d$ $^3D_{1,2,3}$, 1D_2 态和 $5s6s$ 3S_1 态的贡献均超过 60%; 而 C1V 模型的影响较小, 仅在 0.4%—0.7% 之间. CC 关联同样具有显著影响, 对 $5s4d$ $^3D_{1,2,3}$ 态和 1D_2 态的贡献分别为 -8%, -9%, -8% 和 -19%. 高阶关联对 $5s4d$ $^3D_{1,2,3}$ 态的贡献约为 1.5%, 对 1D_2 态的影响约为 26%. Breit 和 QED 修正对各态 (除 3S_1) 的贡献均低于 0.4%.

本文在计算中将虚轨道扩展至 $n \leq 13$ 和 $l \leq 4$, 更高 n 与 l 的轨道未包含, 将 CV 关联与 $n = 4$ 壳层的 CC 关联中最后两层虚轨道扩展的结果之差作为收敛误差. 在 CV 关联部分, 收敛误差对 $^3D_{1,2,3}$, 1D_2 态和 3S_1 态超精细结构常数 A 值的影响分别为 0.3%, 0.02%, 0.2%, 1.3% 和 0.03%; 对以上各态

表 2 ^{87}Sr 原子 $5s4d\ ^3\text{D}_{1,2,3}$, $^1\text{D}_2$ 态和 $5s6s\ ^3\text{S}_1$ 态超精细结构常数 (MHz), 圆括号内的值为不确定度, 方括号内的值表示以 10 为底的指数

Table 2. Hyperfine structure constants (MHz) of the $5s4d\ ^3\text{D}_{1,2,3}$, $^1\text{D}_2$ and $5s6s\ ^3\text{S}_1$ states for ^{87}Sr , values in parentheses represent the uncertainties, and values in square brackets represent the exponents with a base of 10.

| | $^3\text{D}_1$ | | $^3\text{D}_2$ | | $^3\text{D}_3$ | | $^1\text{D}_2$ | | $^3\text{S}_1$ | |
|-----------------------------------|----------------|-----------|----------------|-----------|----------------|-----------|----------------|-----------|-----------------------------|------------|
| | A | B | A | B | A | B | A | B | A | B |
| DHF | 112.1 | 8.9 | -60.3 | 12.6 | -99.6 | 24.3 | -11.8 | 24.7 | -349.0 | 0 |
| C3V-7 | 145.1 | 14.8 | -87.0 | 21.3 | -127.8 | 40.9 | -8.2 | 55.3 | -589.5 | -2.9[-4] |
| C1V-7 | 148.0 | 14.8 | -87.2 | 21.5 | -128.6 | 41.2 | -7.5 | 55.6 | -599.4 | -2.9[-4] |
| CC4-7 | 139.2 | 13.6 | -72.4 | 19.5 | -116.1 | 37.8 | -8.8 | 45.2 | -493.9 | -2.0[-3] |
| MR | 138.9 | 13.8 | -76.0 | 19.8 | -116.5 | 38.4 | -9.1 | 56.8 | -547.4 | 1.1[-3] |
| MR-BQ | 139.2(5) | 13.9(1.0) | -75.7(7) | 19.9(1.5) | -116.9(2) | 38.5(2.8) | -9.7(1.0) | 56.7(4.1) | -549.2(7) | 1.0(0)[-3] |
| Other theories | | | | | | | | | | |
| Mani and Angom ^[14] | 151.59 | — | -49.65 | — | -133.78 | — | — | — | — | — |
| Tang ^[17] | — | — | — | — | — | — | -5.3(0.3) | — | — | — |
| Experiments | | | | | | | | | | |
| Bushaw et al. ^[16] | 139.9(2) | 15(2) | -78.08(5) | 18(1) | -115.3(2) | 51(9) | — | — | -542.57(10) ^[19] | — |
| Bender et al. ^[18] | — | — | — | — | — | — | — | — | -542.1(4) | 0.00 |
| Barsanti et al. ^[15] | 140(2) | -6(4) | — | — | — | — | — | — | -543(2) | — |
| Courtillot et al. ^[20] | — | — | — | — | — | — | — | — | -542.0(1) | 0.1(5) |
| Grundevik et al. ^[47] | — | — | — | — | — | — | -5.5734(4) | 55.421(6) | — | — |

注: ^[14] 福克空间相对论耦合簇方法 (Fock space relativistic coupled cluster method, FSRCC);

^[17] 组态相互作用结合耦合簇方法 (relativistic configuration-interaction combined with a coupled-cluster method, RCICC).

($^3\text{S}_1$ 态除外) 的 B 值影响均约 0.8%. 在 $n = 4$ 壳层的 CC 关联部分, 收敛误差对 A 与 B 值的影响均低于 0.1%. 由于 CC 关联与相应的高阶关联效应存在部分抵消, 本文将 $n = 3$ 壳层的 CC 关联效应视为剩余电子关联效应所引入的不确定度. 该效应对 $^3\text{D}_{1,2,3}$, $^1\text{D}_2$ 态和 $^3\text{S}_1$ 态 A 值的贡献分别为 0.2%, 0.07%, 0.05%, 0.6% 和 0.1%, 对相应态 ($^3\text{S}_1$ 态除外) B 值的影响较为显著, 均在 7%—8% 之间. 在 MR 模型中, 组态空间进一步扩展至 3 层虚轨道, 其与仅扩展两层虚轨道的结果之差作为 MR 的收敛误差. 对于 $^3\text{D}_{1,2,3}$, $^1\text{D}_2$ 态和 $^3\text{S}_1$ 态的 A 值, MR 收敛的误差均小于 0.1%, 对相应态 ($^3\text{S}_1$ 态除外) B 值的影响均小于 0.3%. 最终不确定度取各类误差中的最大值. 基于上述分析, 本文最终评估的 $^3\text{D}_1$ 态 A 为 139.2(5) MHz, B 为 13.9(1.0) MHz. $^3\text{D}_2$ 态 A 为 -75.7(7) MHz, B 为 19.9(1.5) MHz. $^3\text{D}_3$ 态 A 为 -116.9(2) MHz, B 为 38.5(2.8) MHz. $^1\text{D}_2$ 态 A 为 -9.7(1) MHz, B 为 56.7(4.1) MHz. $^3\text{S}_1$ 态 A 为 -549.2(7) MHz. 以上理论结果与已有实验测量值在误差范围内吻合.

与现有理论及实验比较可见: 对于 $^3\text{D}_1$ 态, Mani

和 Angom^[14] 基于 FSRCC 方法计算得到的 A 为 151.59 MHz, 与实验测量值 139.9(2) MHz^[16] 和 140(2) MHz^[15] 的偏差约为 8%, 而本文的结果 139.2 MHz 与实验偏差仅在 0.5% 左右. 本文计算的 B 为 13.9 MHz, 也处于 Bushaw 等^[16] 实验测量的误差范围内. 对于 $^3\text{D}_2$ 态, 本文 A 值与实验相差约 3%. B 值与实验测量值 18(1) MHz^[16] 相符. 对于 $^3\text{D}_3$ 态, 实验^[16] 测得 A 为 -115.3(2) MHz, 与 FSRCC 方法给出的结果 -133.78 MHz 偏差约 16%. 本文的结果为 -116.9 MHz, 与实验偏差仅为 1% 左右. 对 $^1\text{D}_2$ 态, 本文计算的 A 值差异较大, 这是因为其对电子关联效应特别敏感, 需要考虑更多电子关联效应. $^3\text{S}_1$ 态 A 值与实验测量值 -543(3) MHz^[15], -542.1(4) MHz^[18], -542.57(10) MHz^[19] 和 -542.0(1) MHz^[20] 偏差约为 1%. B 值在 10^{-3} 数量级, 趋近于零, 与实验测量值一致, 符合 S 态电四极相互作用可忽略的物理预期.

4.2 朗德 g 因子

表 3 给出了朗德 g 因子随计算模型的变化. 朗德 g 因子随电子关联效应 (包括 VV 和 CV 关联、

表 3 Sr 原子 $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$, 1D_2 和 $5s6s\ ^3S_1$ 态的朗德 g 因子, 圆括号内表示不确定度
 Table 3. Landé- g factors of the $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$, 1D_2 and $5s6s\ ^3S_1$ states for Sr. values in parentheses represent the uncertainties.

| | 3D_1 | 3D_2 | 3D_3 | 1D_2 | 3S_1 |
|------------|----------------------------|-------------|-------------|-------------|--------------|
| DHF | 0.498793 | 1.166999 | 1.334060 | 0.999960 | 2.002293 |
| C3V-7 | 0.498748 | 1.166705 | 1.334054 | 1.000235 | 2.002257 |
| C1V-7 | 0.498747 | 1.166703 | 1.334054 | 1.000236 | 2.002257 |
| CC4-7 | 0.498772 | 1.166920 | 1.334061 | 1.000032 | 2.002302 |
| MR | 0.498759 | 1.166806 | 1.334064 | 1.000157 | 2.002300 |
| MR-BQ | 0.498759(4) | 1.166828(3) | 1.334063(1) | 1.000134(3) | 2.002300(37) |
| Theory | 0.4988 ^[22] | — | — | — | — |
| Experiment | 0.4995(88) ^[22] | — | — | — | — |

CC 关联和高阶关联) 的变化非常小, 最大变化不超过 0.02%. VV 和 CV 关联 (包含 C3V 和 C1V) 对 $g(^3D_{1,2,3}, ^1D_2)$ 和 $g(^3S_1)$ 的影响分别为 -4.6×10^{-5} , -2.4×10^{-5} , -5.7×10^{-6} , 2.7×10^{-4} 和 -3.6×10^{-5} . CC 关联对于 $g(^3D_{1,2,3}, ^1D_2)$ 和 $g(^3S_1)$ 的影响分别为 2.5×10^{-5} , 2.2×10^{-4} , 6.9×10^{-6} , -2.0×10^{-4} 和 4.5×10^{-5} , 高阶电子关联效应的影响分别为 -1.3×10^{-5} , -1.1×10^{-4} , 2.7×10^{-6} , 1.3×10^{-4} 和 -1.3×10^{-6} , CC 关联和高阶关联对 g 因子的影响存在相互抵消. Breit 相互作用和 QED 效应对 g 因子的影响比高阶关联小一个数量级. g 因子的不确定度评估方法与超精细结构常数所采用的方法一致. 对于 $g(^3D_{1,3})$ 和 $g(^3S_1)$, CV 关联与 $n = 4$ 壳层的 CC 关联效应带来的收敛误差以及 MR 收敛误差均在 10^{-7} 量级, $n = 3$ 壳层 CC 关联效应作为剩余电子关联效应引入的误差最大, 其贡献分别为 -4.1×10^{-6} , 1.0×10^{-6} 和 3.7×10^{-5} . 对于 $g(^1D_2)$, 最大的不确定度来源于 CV 与 CC 关联效应的收敛误差, 其大小分别为 3.1×10^{-6} 和 2.8×10^{-6} . 剩余电子关联效应的贡献分别为 -1.6×10^{-6} 和 1.4×10^{-7} . 最终计算的 $g(^3D_1)$ 为 0.498759(4), 与实验测得的结果 0.4995(88) 偏差在 10^{-4} 量级.

4.3 $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$ 和 $5s6s\ ^3S_1$ 态能级寿命

本文计算了 $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$, $5s6s\ ^3S_1$ 与 $5s5p\ ^3P_{0,1,2}$ 态之间的电偶极 (E1) 跃迁矩阵元, 结合美国国家标准与技术研究院 (National Institute of Standards and Technology, NIST) 数据库^[48] 中的能级差, 给出了这些态之间的跃迁概率和 $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$, $5s6s\ ^3S_1$ 态的寿命, 结果如表 4 所示. 电偶极跃迁矩阵元不确定度评估的方法, 与前述 g 因子及超精细结构常数所采用的方法一致. 剩余电子关联效应

引入的不确定度最为显著: 对于 $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$ 态电偶极跃迁矩阵元的影响均在 1.8%—3.2% 之间, 对 $5s4d\ ^3D_1 \rightarrow 5s5p\ ^3P_0$ 态电偶极跃迁矩阵元的贡献约为 1.4%; 对于 $5s6s\ ^3S_1$ 态的电偶极跃迁矩阵元的影响约为 0.4%. MR 收敛误差对上述矩阵元的影响均低于 0.2%.

对于 $5s4d\ ^3D_1 \rightarrow 5s5p\ ^3P_0$ 的 E1 跃迁矩阵元, 本文计算的结果与 Wu 等^[23] (DFCP+RCI) 的结果偏差小于 1.3%, 与 Safronova 等^[24] (CI+all-order) 和 Porsev 等^[25] (CI+MBPT) 的理论值偏差均小于 3.0%. 本文计算的 3D_1 态的理论寿命与 Porsev 等^[25] (CI+MBPT) 的结果相差为 2.7%, $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$ 态寿命与 Safronova 等^[24] (CI+all-order) 的理论值相差在 5%—9% 内, 3D_1 态的理论寿命与实验结果^[2] (2156.4 ns) 相差约 8%. 对于 $5s6s\ ^3S_1 \rightarrow 5s5p\ ^3P_0$ 跃迁, 与 Wu 等^[23] (DFCP+RCI) 的结果偏差小于 4.5%. 对于 $5s6s\ ^3S_1 \rightarrow 5s5p\ ^3P_1$ 跃迁, 本文的结果 (3.67 a.u.) 与 Cooper 等^[51] 基于 CI+all-order 方法给出的理论值 3.425 (17) a.u. 存在约 7% 的偏差. 对 3S_1 态能级寿命, MCDHF 方法的计算结果与 Havey 等^[27] 的实验值偏差约为 6%.

上述结果表明, 本文计算得到的 $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$, $5s6s\ ^3S_1$ 至 $5s5p\ ^3P_{0,1,2}$ 态的电偶极跃迁矩阵元与 Safronova 等^[24] 的结果存在差异. 这一现象在其他体系的计算中也曾观察到, 例如 Si 等^[53] 在 Zn XVIII 离子 $3p3d(^3F)4s\ ^4F_{9/2}$ 和 $3p2(^3P)4f\ ^2G_{9/2}$ 态跃迁几率的计算中, 发现 MCDHF 与 CI+MBPT 方法之间出现了超过 7% 的偏差. 该研究分析指出, 这种偏差主要源于两种方法对激发态电子组态混合系数的描述不同, 从而影响了跃迁矩阵元与跃迁概率的精度. 本文分析, MCDHF 方法的结果与其他理论存在差异, 可能有以下两点原因: 1) 不同理

表 4 5s4d $^3D_{1,2,3}$, 5s6s 3S_1 态与 5s5p $^3P_{0,1,2}$ 态之间的电偶极跃迁矩阵元 D (Babushkin 规范)(a.u.) 和跃迁概率 $A(s^{-1})$, 5s4d $^3D_{1,2,3}$, 5s6s 3S_1 态寿命 $\tau(ns)$, 圆括号内为不确定度, 方括号内的值表示以 10 为底的指数
 Table 4. Electric dipole transition matrix elements D (Babushkin gauge) (a.u.) and transition rates $A(s^{-1})$ for the 5s4d $^3D_{1,2,3}$, 5s6s 3S_1 states to the 5s5p $^3P_{0,1,2}$ states, and lifetimes $\tau(ns)$ of 5s4d $^3D_{1,2,3}$, 5s6s 3S_1 states, the values in parentheses represent the uncertainties, the values in square brackets represent the exponents with a base of 10.

| Upper level | Lower level | $D/a.u.$ | | A/s^{-1} | | | τ/ns | | |
|-------------|-------------|-----------|---|---------------|---|------------|---|---|---|
| | | This work | Other theories | This work | Experiments | This work | Other theories | Experiments | |
| 3D_1 | 3P_0 | 2.80(8) | 2.74 ^[25] , 2.712 ^{[24]a} , 2.667 ^{[24]b} , 2.76 ^[23] , 2.319 ^[14] , 2.4957 ^[49] , 2.53(14) ^[50] | 3.00(17)[5] | 2.7619(64)[5] ^[2] | 1984(137) | 2163 ^{[24]a} , 2113 ^{[24]b} , 2171(24) ^{[24]c} , 2040 ^[25] | 2180(10) ^[30] , 2156(5) ^[2] | |
| | | | 3P_1 | 2.43(5) | 2.3781 ^[14] , 2.322(11) ^[51] | 1.95(8)[5] | — | — | — |
| | 3P_2 | 0.63(9) | 0.963 ^[14] | 9.29(2.65)[3] | — | — | — | — | |
| 3D_2 | 3P_1 | 4.21(7) | 3.4114 ^[14] | 3.66(12)[5] | — | 2203(100) | 2337 ^{[24]a} , 2403(27) ^{[24]b} | — | |
| | 3P_2 | 2.44(4) | 2.3952 ^[14] | 8.83(28)[4] | — | — | — | — | |
| 3D_3 | 3P_2 | 5.78(14) | 5.3938 ^[14] | 3.87(19)[5] | — | 2584(172) | 2738 ^{[24]a} , 2816(31) ^{[24]b} | — | |
| 3S_1 | 3P_0 | 2.10(3) | 1.962 ^[25] , 1.96 ^{[24]a} , 1.94 ^{[24]b} , 2.002 ^[23] , 1.9734 ^[49] , 1.90(1) ^[50] | 9.50(27)[6] | 8.9(8)[6] ^[52] | 12.15(13) | 14.1 ^[25] , 13.3 ^[31] | 13.92(11) ^[29] , 10.9(11) ^[26] , 12.9(7) ^[27] , 15.0(8) ^[28] | |
| | | | 3P_1 | 3.67(1) | 3.425(17) ^[51] | 2.79(2)[7] | 2.71(20)[7] ^[52] | — | — |
| | 3P_2 | 4.85(2) | — | 4.49(4)[7] | 4.15(40)[7] ^[52] | — | — | — | |

注: ^[25] 组态相互作用结合多体微扰理论方法(configuration interaction combined with many-body perturbation theory, CI+MBPT, random phase approximation correction was included);
^{[24]a} 组态相互作用结合多体微扰理论方法(configuration interaction combined with many-body perturbation theory, CI+MBPT, random phase approximation correction was included);
^{[24]b} 组态相互作用结合全阶方法(configuration interaction combined with all-order method, CI+all-order, random phase approximation+core Brueckner+two-particle+structural radiation+normalization correction were included);
^{[24]c} 组态相互作用结合全阶方法(configuration interaction combined with all-order method, CI+all-order, recomand value);
^[51] 组态相互作用结合全阶方法(configuration interaction combined with all-order method, CI+all-order, random phase approximation correction was included);
^[23] 相对论芯极化势和相对论组态相互作用方法(Dirac-Fock plus core polarization and relativistic configuration interaction method, DF-CP+RCI);
^[14] 福克空间相对论耦合簇方法(Fock space relative coupled cluster method, FSRCC);
^[49] 福克空间相对论耦合簇方法(Fock space relative coupled cluster method, FSRCC);
^[50] 组态相互作用加半经验核极化模型势方法(configuration interaction with a semiempirical core-polarization model potential method, CI+CPMP);
^[31] 半经验方法(semi-empirical method).

论方法对电子关联效应的处理方式不同. MCDHF 方法通过活动空间方法^[37,39] 系统考虑电子关联效应, CI+all-order 等方法通过组态相互作用方法考虑价电子之间的关联效应, 采用多体微扰理论考虑了原子实电子之间和价电子与原子实电子之间的关联效应. 这可能导致不同方法计算的波函数混合系数与跃迁矩阵元产生系统性差异. 为了证明这一点, 我们还利用 CI+all-order 方法计算了 5s² 1S_0 ,

5s4d $^3D_{1,2,3}$, 5s6s 3S_1 态的能级结构, 获得了对这些原子态贡献最大的部分组态和对应的混合系数. 表 5 展示了不同理论计算得到的混合系数的结果. 2) MCDHF 方法在实际计算中受限于计算资源, 无法考虑所有的高阶电子关联效应. 此外, CI+all-order 或 CI+MBPT 方法在构建组态空间与微扰项的计算方式上的差别也是导致跃迁矩阵元出现偏差的重要原因.

表 5 利用 MCDHF 方法和 CI+all-order 方法计算的 $5s^2\ ^1S_0$, $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$ 和 $5s6s\ ^3S_1$ 态贡献最大的部分组态和对应的混合系数的绝对值

Table 5. The dominant partial configurations and the absolute value of their corresponding mixing coefficients for the $5s^2\ ^1S_0$, $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$ and $5s6s\ ^3S_1$ states, calculated by the MCDHF and CI+all-order methods.

| 原子态 | 组态 | MCDHF | CI+all-order |
|---------------|---------------|-------|--------------|
| $5s^2\ ^1S_0$ | $5s^2\ ^1S_0$ | 0.96 | 0.96 |
| | $5p^2\ ^1S_0$ | 0.12 | 0.13 |
| | $5p6p\ ^1S_0$ | 0.09 | 0.02 |
| | $5p^2\ ^3P_0$ | 0.09 | 0.18 |
| | $5s6s\ ^1S_0$ | 0.08 | 0.13 |
| | $5s7s\ ^1S_0$ | 0.07 | 0.03 |
| | $5p6p\ ^3P_0$ | 0.07 | 0.03 |
| | $4d^2\ ^3P_0$ | 0.06 | 0.07 |
| $5s4d\ ^3D_1$ | $5s4d\ ^3D_1$ | 0.98 | 0.97 |
| | $5s5d\ ^3D_1$ | 0.10 | 0.16 |
| $5s4d\ ^3D_2$ | $5s4d\ ^3D_2$ | 0.79 | 0.78 |
| | $5s4d\ ^1D_2$ | 0.59 | 0.58 |
| | $5s5d\ ^3D_2$ | 0.08 | 0.04 |
| | $5s5d\ ^1D_2$ | 0.06 | 0.03 |
| $5s4d\ ^3D_3$ | $5s4d\ ^3D_3$ | 0.98 | 0.97 |
| | $5s5d\ ^3D_3$ | 0.11 | 0.05 |
| $5s6s\ ^3S_1$ | $5s6s\ ^3S_1$ | 0.98 | 0.93 |
| | $6s7s\ ^3S_1$ | 0.13 | 0.01 |
| | $5s7s\ ^3S_1$ | 0.06 | 0.32 |

5 总结

本文采用 MCDHF 理论, 系统优化了铯原子 $5s5p\ ^3P_{0,1,2}$, 1P_1 , $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$, 1D_2 和 $5s6s\ ^3S_1$, 1S_0 态的能级结构, 并重点计算了 $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$, 1D_2 和 $5s6s\ ^3S_1$ 态的超精细结构常数, 朗德 g 因子和寿命. 在计算中系统考虑了电子关联效应 (包括 VV、CV、CC 和高阶关联)、Breit 相互作用和量子电动力学 (QED) 修正等因素对原子参数的影响, 并对各项参数进行了细致的不确定度评估. 在超精细结构常数方面, $^3D_{1,2,3}$ 和 3S_1 态的磁偶极超精细结构常数 A 的理论计算值与实验测量值偏差分别为 0.6%, 2.9%, 1.4% 和 1.3%; 并首次给出了 $^3D_{1,2,3}$ 态的电四极超精细结构常数 B 值的理论值, 计算结果与实验接近, 填补了该参数在理论计算方面的空白. 朗德 g 因子的计算精度同样较高, 3D_1 态的朗

德 g 因子与实验偏差小于 8×10^{-4} . 能级寿命的计算结果表明, $^3D_{1,2,3}$ 和 3S_1 态的理论寿命与其他理论预测及实验测量值相符. 通过对比不同理论方法在跃迁矩阵元计算结果上的差异, 本文进一步分析了 MCDHF 方法与 CI+all-order, CI+MBPT 等方法在电子关联效应处理机制、组态空间构建和高阶关联纳入程度等方面的系统性差别, 为理解不同理论计算之间的偏差提供了物理依据.

综上, 本研究不仅为铯原子光晶格钟、量子信息及精密测量等相关实验提供了高精度的理论参考数据, 也验证了 MCDHF 方法在系统研究电子关联等物理效应对高激发态原子参数影响方面的有效性与可靠性.

特别感谢深圳技术大学唐永波老师在稿件修改过程中提出的建设性意见与建议.

参考文献

- [1] Lu X T, Guo F, Liu Y Y, Cao J, Li J A, Xia J J, Xu Q F, Lu B Q, Wang Y B, Chang H 2025 *Metrologia* **62** 035007
- [2] Aeppli A, Kim K, Warfield W, Safronova M S, Ye J 2024 *Phys. Rev. Lett.* **133** 023401
- [3] Yu H W, Liu P, Li Y, Jia Z P, Zhang X, Yan J R, Li J, Dai H N, Chen Y A 2026 *Measurement* **257** 118527
- [4] Zhao G D, Xia J, Liu Y, et al. 2025 *Chin. Phys. Lett.* **42** 063701
- [5] Grotti J, Nosske I, Koller S B, et al. 2024 *Phys. Rev. Appl.* **21** L061001
- [6] Bothwell T, Kennedy C J, Aeppli A, Kedar D, Robinson J M, Oelker E, Staron A, Ye J 2022 *Nature* **602** 420
- [7] Kolkowitz S, Pikovski I, Langellier N, Lukin M D, Walsworth R L, Ye J 2016 *Phys. Rev. D* **94** 124043
- [8] Filzinger M, Dörscher S, Lange R, et al. 2023 *Phys. Rev. Lett.* **130** 253001
- [9] Gorshkov A V, Rey A M, Daley A J, Boyd M M, Ye J, Zoller P, Lukin M D 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 110503
- [10] Tao R, Lib O, Gyger F, Timme H, Ammenwerth M, Bloch I, Zeiher J 2025 *arXiv: 2506.10714* [quant-ph]
- [11] Akatsuka T, Hashiguchi K, Takahashi T, Ohmae N, Takamoto M, Katori H 2021 *Phys. Rev. A* **103** 023331
- [12] Hobson R, Bowden W, Vianello A, Hill I R, Gill P 2020 *Phys. Rev. A* **101** 013420
- [13] Ballantine K E, Wilkowski D, Ruostekoski J 2022 *Phys. Rev. Res.* **4** 033242
- [14] Mani B K, Angom D 2011 *Phys. Rev. A* **83** 012501
- [15] Barsanti M, Gianfrani L, Pavone F, Sasso A, Silvestrini C, Tino G M 1992 *Z. Phys. D* **23** 145
- [16] Bushaw B A, Kluge H J, Lantzsich J, Schwalbach R, Stenner J, Stevens H, Wendt K, Zimmer K 1993 *Z. Phys. D* **28** 275
- [17] Tang Y B 2026 *Phys. Rev. A* **113** 022812
- [18] Bender D, Brand H, Pfeufer V 1984 *Z. Phys. A* **318** 291
- [19] Bushaw B A, Cannon B D 1997 *Spectrochim. Acta Part B* **52** 1839
- [20] Courtillot I, Quessada-Vial A, Bruschi A, Kolker D, Rovera G D, Lemonde P 2005 *Eur. Phys. J. D* **33** 161

- [21] Olmos B, Yu D, Singh Y, Schreck F, Bongs K, Lesanovsky I 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 143602
- [22] Zhang S N, Ramchurn P, Menchetti M, et al. 2020 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **53** 235301
- [23] Wu F F, Tang Y B, Shi T Y, Tang L Y 2019 *Phys. Rev. A* **100** 042514
- [24] Safronova M S, Porsev S G, Safronova U I, Kozlov M G, Clark C W 2013 *Phys. Rev. A* **87** 012509
- [25] Porsev S G, Ludlow A D, Boyd M M, Ye J 2008 *Phys. Rev. A* **78** 032508
- [26] Brinkmann U 1969 *Z. Phys.* **228** 440
- [27] Havey M D, Balling L C, Wright J J 1977 *J. Opt. Soc. Am.* **67** 488
- [28] Jönsson G, Levinson C, Persson A, Wahlström C G 1984 *Z. Phys. A* **316** 255
- [29] Heinz A, Park A J, Šantić N, et al. 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 203201
- [30] Nicholson T L, Campbell S L, Hutson R B, et al. 2015 *Nat. Commun.* **6** 6896
- [31] Ruczkowski J, Elantkowska M, Dembeżyński J 2016 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **170** 106
- [32] Schwartz C 1955 *Phys. Rev.* **97** 380
- [33] Andersson M, Jönsson P 2008 *Comput. Phys. Commun.* **178** 156
- [34] Hertel I V, Schulz C P 2015 *Atoms, Molecules and Optical Physics 1: Atoms and Spectroscopy* (Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg) pp169–226
- [35] Jönsson P 1993 *Phys. Scr.* **48** 678
- [36] Li J G, Jönsson P, Godefroid M, Dong C Z, Gaigalas G 2012 *Phys. Rev. A* **86** 052523
- [37] Jönsson P, Gaigalas G, Fischer C F, et al. 2023 *Atoms* **11** 68
- [38] Roos B O, Taylor P R, Sigbahn P E M 1980 *Chem. Phys.* **48** 157
- [39] Olsen J, Roos B O, Jørgensen P, Jensen H J A 1988 *J. Chem. Phys.* **89** 2185
- [40] Lu B Q, Lu X T, Li J G, Chang H 2022 *Chin. Phys. B* **31** 43101
- [41] Lu B Q, Lu X T, Li J G, Chang H 2022 *Chin. Phys. Lett.* **39** 073201
- [42] Lu B Q, Lu X T, Wang T, Chang H 2022 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **55** 205002
- [43] Lu B Q, Chang H 2022 *Chin. Phys. B* **32** 13101
- [44] Froese Fischer C, Gaigalas G, Jönsson P, Bieroń J 2019 *Comput. Phys. Commun.* **237** 184
- [45] Mertzimekis T J, Stamou K, Psaltis A 2016 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A* **807** 56
- [46] Lu B Q, Zhang T X, Chang H, Li J G, Wu Y, Wang J G 2019 *Phys. Rev. A* **100** 012504
- [47] Grundevik P, Gustavsson M, Lindgren I, Olsson G, Olsson T, Rosén A 1983 *Z. Phys. A* **311** 143
- [48] Kramida A R Y, Reader J and NIST ASD Team 2024 NIST Atomic Spectra Database (version 5.12) <https://www.nist.gov/pml/atomic-spectra-database>
- [49] Gakkhar P, Angom D, Mani B K 2026 *Phys. Rev. A* **113** 032817
- [50] Guo K, Wang G F, Ye A P 2010 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **43** 135004
- [51] Cooper A, Covey J P, Madjarov I S, Porsev S G, Safronova M S, Endres M 2018 *Phys. Rev. X* **8** 041055
- [52] García G, Campos J 1988 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **39** 477
- [53] Si R, Zhang C Y, Liu Y W, et al. 2017 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **189** 249

Theoretical calculation of hyperfine structure constants, Landé g factors, and lifetimes of the $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$, 1D_2 and $5s6s\ ^3S_1$ states in strontium based on the multi-configuration Dirac-Hartree-Fock method*

WANG Yiming¹⁾³⁾ FENG Min¹⁾²⁾³⁾⁴⁾ LIANG Ting¹⁾²⁾³⁾⁴⁾ CAO Jin¹⁾²⁾³⁾⁴⁾
 LU Benquan^{1)2)3)†} CHANG Hong^{1)2)3)4)‡}

1) (National Time Service Center, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710600, China)

2) (Key Laboratory of Time Reference and Applications, Xi'an 710600, China)

3) (School of Astronomy and Space Science, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 101408, China)

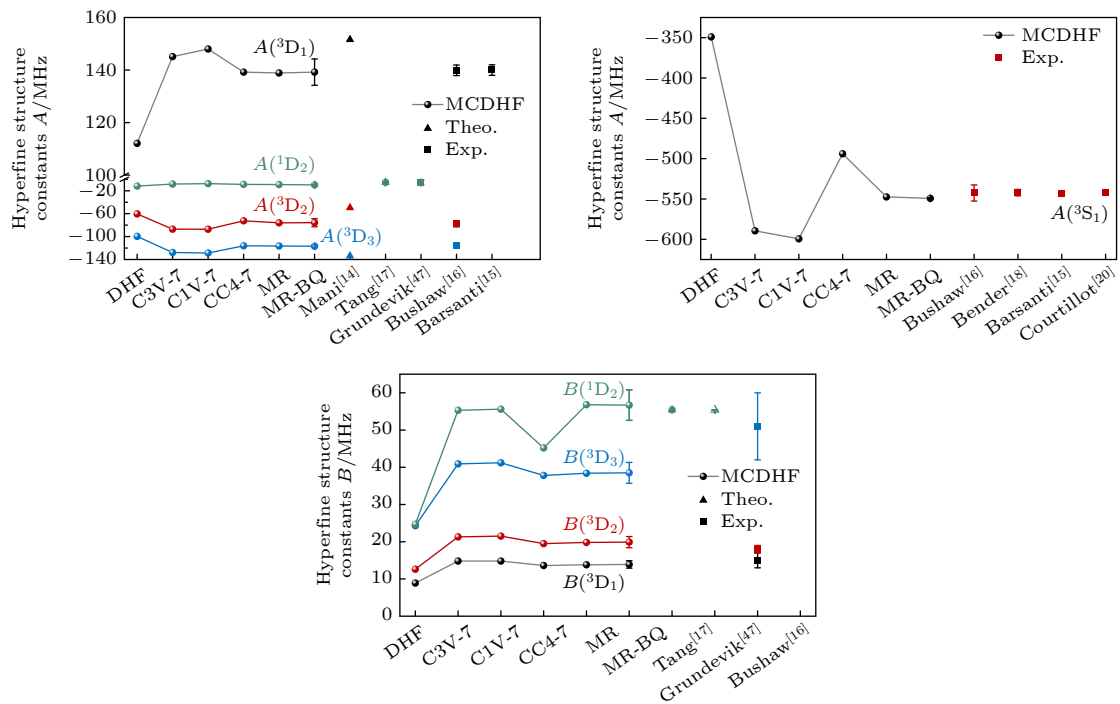
4) (Hefei National Laboratory, Hefei 230026, China)

(Received 31 December 2025; revised manuscript received 13 February 2026)

Abstract

Strontium atoms are widely used in quantum information and precision measurement, with their excited states $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$ and $5s6s\ ^3S_1$ playing key roles in related experiments. However, existing key atomic parameters such as hyperfine structure constants and Landé- g factors are inconsistent, limiting further research. In this work, we employed the Multi-configuration Dirac-Hartree-Fock (MCDHF) method to systematically optimize the energy levels of the $5s5p\ ^3P_{0,1,2}$, $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$, 1D_2 and $5s6s\ ^3S_1$, 1S_0 states for strontium, and focused on calculating the hyperfine structure constants (A and B) and Landé- g factors of the $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$, 1D_2 , and $5s6s$

3S_1 states. We comprehensively considered electronic correlation effects through an active space approach and multi-reference single and double excitations (MR-SD) method. The Breit interaction and quantum electrodynamics (QED) corrections were also included to improve calculation accuracy. Moreover, a rigorous uncertainty assessment was conducted in this work. Our results show that the magnetic dipole hyperfine structure constant A of the $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$ triplet has a deviation of less than 3% from experimental values, while that of the $5s6s\ ^3S_1$ state is only 0.4%, significantly reducing the prior theory-experiment discrepancy, as shown in figure. Notably, we first reported the theoretical values of the electric quadrupole hyperfine structure constant B for the $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$ states, which are in good agreement with experimental data, filling the theoretical gap. The Landé- g factor of the $5s4d\ ^3D_1$ state deviates by no more than 10^{-4} from the experimental value, achieving higher precision than previous studies. Additionally, the calculated lifetimes of these states are consistent with most theoretical and experimental results. This work provides high-precision theoretical parameters for experiments related to strontium optical lattice clocks and quantum information, and verifies the reliability of the MCDHF method in studying highly excited atomic states, laying a foundation for further research on atomic structure and properties.



Keywords: strontium, multi-configuration Dirac-Hartree-Fock method, hyperfine structure constant, Landé- g factor, lifetime

DOI: [10.7498/aps.75.20251796](https://doi.org/10.7498/aps.75.20251796)

CSTR: [32037.14.aps.75.20251796](https://cstr.net/urn:urn:cnki:CUJL2-9013-2026-100303)

* Project supported by the Natural Science Foundation of Shaanxi Province, China (Grant No. 2025JC-YBMS-038), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12574283), the National Science and Technology Major Project of the Ministry of Science and Technology of China (Grant No. 2021ZD0300902), and the Operation and Maintenance of Major Scientific and Technological Infrastructure of the Chinese Academy of Sciences (Grant No. 2024000014).

† Corresponding author. E-mail: lubenquan@ntsc.ac.cn

‡ Corresponding author. E-mail: changhong@ntsc.ac.cn

基于MCDHF方法的锶原子 $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$, 1D_2 和 $5s6s\ ^3S_1$ 态超精细结构常数、朗德 g 因子及寿命的理论研究

王艺铭 冯敏 梁婷 曹进 卢本全 常宏

Theoretical calculation of hyperfine structure constants, Landé g factors, and lifetimes of the $5s4d\ ^3D_{1,2,3}$, 1D_2 and $5s6s\ ^3S_1$ states in strontium based on the multi-configuration Dirac-Hartree-Fock method

WANG Yiming FENG Min LIANG Ting CAO Jin LU Benquan CHANG Hong

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 75, 100303 (2026) DOI: 10.7498/aps.75.20251796

CSTR: 32037.14.aps.75.20251796

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.75.20251796>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

类铝离子钟跃迁能级的超精细结构常数和朗德 g 因子

Hyperfine interaction constants and Landé g factors of clock states of Al-like ions

物理学报. 2023, 72(22): 223101 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230940>

镱原子超精细诱导 $5d6s\ ^3D_{1,3} \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$ E2跃迁及超精细常数的精确计算

Accurate calculation of hyperfine-induced $5d6s\ ^3D_{1,3} \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$ E2 transitions and hyperfine constants of ytterbium atoms

物理学报. 2024, 73(9): 093101 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240028>

类碳离子($Z = 10, 14, 32, 36, 50$) $1s^2 2s^2 2p^2$ 和 $1s^2 2s 2p^3$ 组态的能级和电偶极跃迁

Energy levels and electric dipole transitions of $1s^2 2s^2 2p^2$ and $1s^2 2s 2p^3$ configurations in carbon-like ions ($Z = 10, 14, 32, 36, 50$)

物理学报. 2025, 74(15): 153103 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250568>

氢分子离子超精细结构理论综述

Review of the hyperfine structure theory of hydrogen molecular ions

物理学报. 2024, 73(20): 203104 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20241101>

原子兰姆位移与超精细结构中的核结构效应

Nuclear structure effects to atomic Lamb shift and hyperfine splitting

物理学报. 2024, 73(20): 202101 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20241063>

Ga^+ 离子 $4s^2\ ^1S_0 - 4s4p\ ^3P_0$ 跃迁动态极化率的理论计算

Theoretical calculation of dynamic polarizability of $4s^2\ ^1S_0 - 4s4p\ ^3P_0$ transition for Ga^+ ion

物理学报. 2025, 74(10): 103202 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250125>