

# 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\*

赵国栋<sup>1)2)3)4)</sup> 曹进<sup>1)2)3)4)</sup> 梁婷<sup>1)2)3)4)</sup>冯敏<sup>1)2)3)4)</sup> 卢本全<sup>1)2)†</sup> 常宏<sup>1)2)3)4)‡</sup>

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)

(2024 年 1 月 5 日收到; 2024 年 2 月 22 日收到修改稿)

在镱原子中, 利用  $5d6s\ ^3D_1 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  跃迁探索宇称破缺效应已经得到了深入的研究. 但是  $5d6s\ ^3D_1$  态与基态  $6s^2\ ^1S_0$  之间的 M1 跃迁和超精细诱导 E2 跃迁很大程度上影响了宇称破缺信号的探测. 因此, 很有必要精确计算  $5d6s\ ^3D_1$  态与基态  $6s^2\ ^1S_0$  之间的 M1 跃迁和超精细诱导 E2 跃迁的跃迁概率. 本文利用多组态 Dirac-Hartree-Fock 理论精确计算了  $5d6s\ ^3D_1 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  M1 跃迁和超精细诱导  $5d6s\ ^3D_{1,3} \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  E2 跃迁的跃迁概率. 计算时详细分析了电子关联效应对跃迁概率的影响. 此外, 还分析了不同微扰态和不同超精细相互作用对跃迁概率的影响. 本文计算的  $^3D_{1,2,3}$  和  $^1D_2$  态的超精细常数与实验测量结果符合得很好, 从而证明了本文所用计算模型的合理性. 结合实验测量的超精细常数和本文理论计算所得的核外电子在原子核处的电场梯度, 重新评估了  $^{173}\text{Yb}$  原子核电四极矩  $Q = 2.89(5)$  b, 评估结果与目前被推荐的结果符合得很好.

**关键词:** 超精细诱导跃迁, 镱原子, 超精细常数, 多组态 Dirac-Hartree-Fock 方法

**PACS:** 31.10.+z, 31.15.-p, 31.15.vj, 32.10.Fn

**DOI:** 10.7498/aps.73.20240028

## 1 引言

弱相互作用力是迄今为止唯一已知违反空间反演对称性(宇称)的基本相互作用力<sup>[1]</sup>. 这种宇称破缺 (parity violation, PV) 效应可以用来分离出原子系统中的弱相互作用, 为检验标准模型提供了一种新的方法<sup>[2,3]</sup>. 宇称破缺效应在镱原子  $5d6s\ ^3D_1 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  跃迁中得到了广泛研究<sup>[4,5]</sup>, 最新实验<sup>[6]</sup>的精度达到了 0.5%, 在此精度下不仅能够

探测镱原子的 PV 振幅随同位素的变化, 从而获得附加 Z 玻色子与电子、质子和中子相互作用的极限, 而且可以观察到与核自旋相关的 PV 振幅, 其大小比与核自旋无关的宇称破缺振幅小两个数量级.

对于实验观测到的镱原子  $5d6s\ ^3D_1 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  跃迁中宇称破缺信号, 最大的贡献来自 PV 振幅与 Stark 诱导跃迁振幅的干涉项<sup>[7,8]</sup>, 其他较小的贡献则来自 M1 禁戒跃迁和超精细诱导 E2 跃迁与 PV 振幅的干涉. 因此, 精确计算  $5d6s\ ^3D_1 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  M1 跃迁和超精细诱导  $5d6s\ ^3D_1 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$

\* 中国科学院战略性先导科技专项 (B 类)(批准号: XDB35010202) 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

E2 跃迁的跃迁概率对于解释  $^3D_1 \rightarrow ^1S_0$  跃迁的宇称破缺信号具有重要的研究意义. 调研发现, Stal-naker 等<sup>[9]</sup> 以及 Sur 和 Chaudhuri<sup>[10]</sup> 分别对  $5d6s\ ^3D_1 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  M1 禁戒跃迁的跃迁概率进行了测量和计算. 而对于超精细诱导  $5d6s\ ^3D_1 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  E2 跃迁, 仅有 Kozlov 等<sup>[11]</sup> 考虑了超精细诱导下  $^3D_1$  和  $^3D_2$  态之间的混合, 并利用组态相互作用结合多体微扰理论 (configuration interaction combined many-body perturbation theory, CI + MBPT) 方法计算了超精细诱导禁戒跃迁的跃迁概率. 他们的结果不仅忽略了  $^1D_2$  态与  $^3D_1$  态的超精细诱导态混合对跃迁概率的影响, 而且超精细常数的计算结果与实验值之间存在 3%—26% 的差距. 因此, 我们认为有必要利用不同的理论重新计算超精细诱导禁戒跃迁的跃迁概率.

本文采用多组态 Dirac-Hartree-Fock (multi-configuration Dirac-Hartree-Fock, MCDHF) 方法重新计算了  $^{171,173}\text{Yb}$  原子中  $5d6s\ ^3D_1 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  M1 跃迁和超精细诱导  $5d6s\ ^3D_{1,3} \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  E2 跃迁的跃迁概率以及  $5d6s\ ^3D_{1,2,3}$ ,  $^1D_2$  态的超精细常数. 计算诱导跃迁概率时同时考虑了  $5d6s\ ^3D_2$  态和  $5d6s\ ^1D_2$  态与  $5d6s\ ^3D_{1,3}$  态的超精细诱导态混合, 并给出了  $^{171,173}\text{Yb}$  原子中  $5d6s\ ^3D_{1,3} \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  E2 跃迁的跃迁概率. 此外, 我们计算的  $^3D_{1,2,3}$  和  $^1D_2$  态的超精细常数与实验测量结果符合得很好. 结合实验上测量的电四极超精细常数  $B$  和理论上计算的核外电子在原子核处的电场梯度, 重新评估了  $^{173}\text{Yb}$  原子核电四极矩  $Q = 2.89(5)$  b, 与目前  $^{173}\text{Yb}$  原子核电四极矩的推荐结果<sup>[12]</sup> 符合得很好.

## 2 理论计算

### 2.1 超精细相互作用

由于  $^{171}\text{Yb}$  和  $^{173}\text{Yb}$  原子核内的质子和中子都存在轨道运动与自旋, 其矢量和产生的电磁多极矩将会与原子核外电子发生超精细相互作用, 使原子核自旋  $I$  与电子的总角动量  $J$  发生耦合, 并产生新的总角动量  $F = I + J$ . 超精细相互作用的哈密顿量  $H_{\text{hfs}}$  可用一系列张量算符展开<sup>[13]</sup>:

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

式中  $\mathbf{T}^{(k)}$  与  $\mathbf{M}^{(k)}$  分别表示作用于电子坐标空间

和原子核坐标空间上的  $k$  阶球张量算符,  $k = 1$  表示磁偶极相互作用,  $k = 2$  表示电四极相互作用, 由于超精细作用高阶效应影响较小, 这里忽略  $k > 2$  的部分. 根据 Racah<sup>[14]</sup> 提出的理论, 超精细相互作用矩阵元可写为

$$\begin{aligned} & \langle \gamma I J F M | \mathbf{T}^{(k)} \cdot \mathbf{M}^{(k)} | \gamma' I' J' F M \rangle \\ &= (-1)^{I+J+F} \begin{Bmatrix} I & J & F \\ J' & I & k \end{Bmatrix} \\ & \times \langle \gamma J || \mathbf{T}^{(k)} || \gamma' J' \rangle \langle I || \mathbf{M}^{(k)} || I \rangle, \end{aligned} \quad (2)$$

式中  $M$  表示磁量子数,  $\gamma$  表示用来区分量子态的其他量子数. 在相对论框架下, 电子部分的球张量算符可表示为<sup>[15]</sup>

$$\begin{aligned} \mathbf{T}^{(1)} &= \sum_{j=1}^N -i\sqrt{2}\alpha r_j^{-2} (-\alpha_j \mathbf{C}^{(1)}(j))^{(1)}, \\ \mathbf{T}^{(2)} &= -\sum_{j=1}^N \mathbf{C}^{(2)}(j) r_j^{-3}, \end{aligned} \quad (3)$$

其中  $\alpha$  为精细结构常数,  $\alpha$  为狄拉克矩阵,  $\mathbf{C}^{(k)}$  为球谐张量算符, 求和指标  $j$  表示第  $j$  个电子,  $\mathbf{r}_j$  为第  $j$  个电子的位移矢量. 而对于原子核部分的约化矩阵元<sup>[15]</sup>:

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

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

其中  $\mu_I$  与  $Q$  分别为原子核磁偶极矩和电四极矩.

根据超精细相互作用矩阵的对角元 ( $J = J'$ ), 可以定义磁偶极超精细常数  $A$  和电四极超精细常数  $B$  为<sup>[16]</sup>

$$A = \frac{\mu_I}{I} \frac{\langle \gamma J || \mathbf{T}^{(1)} || \gamma J \rangle}{\sqrt{J(J+1)}}, \quad (6)$$

$$B = \frac{2Q\sqrt{J(2J-1)}}{\sqrt{(J+1)(2J+3)}} \langle \gamma J || \mathbf{T}^{(2)} || \gamma J \rangle. \quad (7)$$

根据 (7) 式, 核电四极矩可由下式计算<sup>[17-19]</sup>:

$$Q = \frac{4.2559579 \times 10^{-3}}{\text{EFG}} B, \quad (8)$$

$Q$  单位为 b, 其中

$$\text{EFG} = \frac{2\sqrt{J(2J-1)}}{\sqrt{(J+1)(2J+3)}} \langle \gamma J || \mathbf{T}^{(2)} || \gamma J \rangle \quad (9)$$

为原子核附近核外电子的电场梯度 (electric field

gradient, EFG), (8) 式中超精细相互作用常数  $B$  和 EFG 分别以 MHz 和 a.u. 为单位.

## 2.2 超精细诱导跃迁

可以将初态  $|\gamma' I J F' M'\rangle$  与末态  $|\gamma I J F M\rangle$  之间电四极 E2 跃迁的跃迁概率表示为<sup>[20,21]</sup>:

$$R(\gamma' I J F', \gamma I J F) = \frac{1.120 \times 10^{18}}{\lambda^5} \frac{|\langle \gamma I J F | \mathbf{E2} | \gamma' I J F' \rangle|^2}{2F' + 1}, \quad (10)$$

其中  $\lambda$  为跃迁上下能级差对应的波长. 对同一精细结构内的所有超精细低能级求和后的跃迁概率为<sup>[22]</sup>

$$R(\gamma' I J F', \gamma I J) = \frac{1.120 \times 10^{18}}{(2J' + 1)\lambda^5} |\langle \gamma J | \mathbf{E2} | \gamma' J' \rangle|^2. \quad (11)$$

在超精细相互作用下, 相同宇称和总角动量子数  $F$  的原子态间将发生混合, 一定程度上打开

了原本完全禁戒的跃迁, 这种跃迁称为超精细诱导跃迁<sup>[23-26]</sup>. 本文令超精细混合后的跃迁初态为  $|\gamma' I \tilde{J} F' M'\rangle$ , 末态为  $|\gamma I \tilde{J} F M\rangle$ , 式中的波浪号表示波函数的主要分量. 根据一阶微扰理论, 此时初态可展开为

$$|\gamma' I \tilde{J} F' M'\rangle = |\gamma' I J F' M'\rangle + \sum_n \varepsilon_n |\gamma'_n I J'_n F' M'\rangle, \quad (12)$$

式中  $|\gamma'_n I J'_n F' M'\rangle$  为微扰态; 展开系数  $\varepsilon_n$  为混合系数,

$$\varepsilon_n = \frac{\langle \gamma'_n I J'_n F' M' | H_{\text{hfs}} | \gamma I J F' M' \rangle}{E_{J'} - E_{J'_n}}. \quad (13)$$

根据 (2) 式, 混合系数可分为磁偶极混合系数  $\varepsilon_n^A$  与电四极混合系数  $\varepsilon_n^B$  两部分,  $\varepsilon_n = \varepsilon_n^A + \varepsilon_n^B$ . 利用 Wigner-Eckart 定理,  $\varepsilon_n^A$  与  $\varepsilon_n^B$  可简化为

$$\varepsilon_n^A = (-1)^{I+F'+J'_n} \mu_I \sqrt{\frac{I+1}{I}} \begin{Bmatrix} I & J'_n & F' \\ J' & I & 1 \end{Bmatrix} \frac{\langle \gamma'_n J'_n | \mathbf{T}^{(1)} | \gamma' J' \rangle}{E_{J'} - E_{J'_n}}, \quad (14)$$

$$\varepsilon_n^B = (-1)^{I+F'+J'_n} \frac{1}{2} Q \sqrt{\frac{(I+1)(2I+3)}{I(2I-1)}} \begin{Bmatrix} I & J'_n & F' \\ J' & I & 2 \end{Bmatrix} \frac{\langle \gamma'_n J'_n | \mathbf{T}^{(2)} | \gamma' J' \rangle}{E_{J'} - E_{J'_n}}. \quad (15)$$

原子末态可用同样的方法展开,

$$|\gamma I \tilde{J} F M\rangle = |\gamma I J F M\rangle + \sum_m \varepsilon_m |\gamma_m I J_m F M\rangle, \quad (16)$$

原子初态  $|\gamma' I \tilde{J} F' M'\rangle$  与末态  $|\gamma I \tilde{J} F M\rangle$  间的 E2 跃迁矩阵元等于

$$\begin{aligned} \langle \gamma I \tilde{J} F M | \mathbf{E2} | \gamma' I \tilde{J} F' M' \rangle &= \langle \gamma I J F M | \mathbf{E2} | \gamma' I J F' M' \rangle + \sum_m \varepsilon_m \langle \gamma_m I J_m F M | \mathbf{E2} | \gamma' I J F' M' \rangle \\ &+ \sum_n \varepsilon_n \langle \gamma I J F M | \mathbf{E2} | \gamma'_n I J'_n F' M' \rangle + \sum_n \sum_m \varepsilon_n \varepsilon_m \langle \gamma_m I J_m F M | \mathbf{E2} | \gamma'_n I J'_n F' M' \rangle. \end{aligned} \quad (17)$$

利用矩阵元约化公式<sup>[27]</sup> 以及 Wigner-Eckart 定理, 可将跃迁矩阵元约化为

$$\begin{aligned} \langle \gamma I \tilde{J} F M | \mathbf{E2} | \gamma' I \tilde{J} F' M' \rangle &= \sqrt{(2F'+1)(2F+1)} \begin{Bmatrix} J'_n & I & F' \\ F & 2 & J \end{Bmatrix} \times (\langle \gamma J | \mathbf{E2} | \gamma' J' \rangle + \sum_m \varepsilon_m \langle \gamma_m J_m | \mathbf{E2} | \gamma' J' \rangle) \\ &+ \sum_n \varepsilon_n \langle \gamma J | \mathbf{E2} | \gamma'_n J'_n \rangle + \sum_n \sum_m \varepsilon_n \varepsilon_m \langle \gamma_m J_m | \mathbf{E2} | \gamma'_n J'_n \rangle, \end{aligned} \quad (18)$$

将约化后的跃迁矩阵元代入 (11) 式, 可得出超精细诱导跃迁概率的表达式:

$$\begin{aligned} R(\gamma' I \tilde{J} F', \gamma I \tilde{J}) &= \frac{1.120 \times 10^{18}}{(2J'+1)\lambda^5} |\langle \gamma J | \mathbf{E2} | \gamma' J' \rangle + \sum_m \varepsilon_m \langle \gamma_m J_m | \mathbf{E2} | \gamma' J' \rangle|^2 \\ &+ \sum_n \varepsilon_n \langle \gamma J | \mathbf{E2} | \gamma'_n J'_n \rangle + \sum_n \sum_m \varepsilon_n \varepsilon_m \langle \gamma_m J_m | \mathbf{E2} | \gamma'_n J'_n \rangle|^2. \end{aligned} \quad (19)$$

### 2.2.1 镱原子超精细诱导 $5d6s\ ^3D_1IF' \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$ E2 跃迁

对于  $5d6s\ ^3D_1IF' \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  跃迁, 利用 (12) 式可将初态  $5d6s\ ^3D_1IF'M'$  表示为

$$\begin{aligned} & |5d6s\ ^3\widetilde{D}_1IF'M'\rangle \\ &= |5d6s\ ^3D_1IF'M'\rangle + \varepsilon_1|5d6s\ ^3D_2IF'M'\rangle \\ &+ \varepsilon_2|5d6s\ ^1D_2IF'M'\rangle, \end{aligned} \quad (20)$$

对于  $5d6s\ ^3D_1$  激发态, 仅考虑同一组态中  $^3D_2$ ,  $^1D_2$  态与  $^3D_1$  态的混合. 其他不同组态的相互作用可以忽略不计, 因为它们之间的能级差太大并且超精细相互作用很弱. 末态  $6s^2\ ^1S_0$  为基态, 由于镱原子基态与其他能级间的能级差太大, 导致相应的混合强度很弱, 因此基态与其他能级间的混合可忽略不计. 所以末态的波函数可表示为

$$|6s^2\ ^1\widetilde{S}_0\rangle = |6s^2\ ^1S_0\rangle. \quad (21)$$

此时超精细诱导 E2 跃迁的跃迁矩阵元等于

$$\begin{aligned} & \langle 6s^2\ ^1S_0IF\|\mathbf{E2}\|5d6s\ ^3\widetilde{D}_1IF'\rangle \\ &= \sqrt{(2F'+1)(2F+1)} \begin{Bmatrix} 2 & I & F' \\ I & 2 & 0 \end{Bmatrix} \\ & \times (\varepsilon_1\langle ^1S_0\|\mathbf{E2}\|^3D_2\rangle + \varepsilon_2\langle ^1S_0\|\mathbf{E2}\|^1D_2\rangle), \end{aligned} \quad (22)$$

由 (19) 式可知诱导跃迁概率

$$\begin{aligned} & R(5d6s\ ^3D_1IF', 6s^2\ ^1S_0) \\ &= \frac{1.120 \times 10^{18}}{3\lambda^5} |\varepsilon_1\langle ^1S_0\|\mathbf{E2}\|^3D_2\rangle \\ &+ \varepsilon_2\langle ^1S_0\|\mathbf{E2}\|^1D_2\rangle|^2. \end{aligned} \quad (23)$$

### 2.2.2 镱原子超精细诱导 $5d6s\ ^3D_3IF' \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$ E2 跃迁

镱原子跃迁初态  $5d6s\ ^3D_3IF'M'$  在超精细相互作用下可展开为

$$\begin{aligned} & |5d6s\ ^3\widetilde{D}_3IF'M'\rangle = |5d6s\ ^3D_3IF'M'\rangle \\ &+ \varepsilon_1|5d6s\ ^3D_2IF'M'\rangle + \varepsilon_2|5d6s\ ^1D_2IF'M'\rangle, \end{aligned} \quad (24)$$

与  $5d6s\ ^3D_1IF'M'$  类似, 仅考虑同一组态中  $^3D_2$ ,  $^1D_2$  态与  $^3D_3$  态之间的混合. 此时跃迁矩阵元等于

$$\begin{aligned} & \langle 6s^2\ ^1S_0IF\|\mathbf{E2}\|5d6s\ ^3\widetilde{D}_3IF'\rangle \\ &= \sqrt{(2F'+1)(2F+1)} \begin{Bmatrix} 2 & I & F' \\ I & 2 & 0 \end{Bmatrix} \\ & \times (\varepsilon_1\langle ^1S_0\|\mathbf{E2}\|^3D_2\rangle + \varepsilon_2\langle ^1S_0\|\mathbf{E2}\|^1D_2\rangle), \end{aligned} \quad (25)$$

代入 (19) 式后可得如下跃迁概率公式:

$$\begin{aligned} & R(5d6s\ ^3D_3IF', 6s^2\ ^1S_0) \\ &= \frac{1.120 \times 10^{18}}{7\lambda^5} |\varepsilon_1\langle ^1S_0\|\mathbf{E2}\|^3D_2\rangle \\ &+ \varepsilon_2\langle ^1S_0\|\mathbf{E2}\|^1D_2\rangle|^2. \end{aligned} \quad (26)$$

## 2.3 多组态 Dirac-Hartree-Fock 理论

在多组态 Dirac-Hartree-Fock 方法 [28-30] 中, 原子态波函数  $\Psi(\Gamma PJM_J)$  由一组具有相同的宇称  $P$ 、总角动量  $J$  以及磁量子数  $M_J$  的组态波函数  $\Phi(\gamma PJM_J)$  的线性组合来表示, 即

$$\Psi(\Gamma PJM_J) = \sum_j^N c_j \Phi(\gamma PJM_J), \quad (27)$$

其中  $c_j$  为组态混合系数,  $\Gamma$  与  $\gamma$  表示除  $P, J, M_J$  外区分量子态的其他量子数. 组态波函数由相对论单电子自旋轨道波函数的乘积线性组合而成. 单电子狄拉克轨道具有以下形式:

$$\phi(r, \theta, \varphi) = \frac{1}{r} \begin{Bmatrix} P(r)\chi_{\kappa m}(\theta, \varphi) \\ iQ(r)\chi_{-\kappa m}(\theta, \varphi) \end{Bmatrix}, \quad (28)$$

式中  $P(r)$  与  $Q(r)$  为单电子狄拉克轨道的径向部分,  $\chi_{\kappa m}(\theta, \varphi)$  与  $\chi_{-\kappa m}(\theta, \varphi)$  为角向部分. 自洽场 (self-consistent field, SCF) 中通过求解多参考组态方程, 组态混合系数  $c_j$  和单电子狄拉克轨道的径向部分被同时优化. 在相对论组态相互作用 (relativistic configuration interaction, RCI) 中, 仅有组态混合系数被优化. 在组态相互作用中可以考虑 [28] 高阶电子关联效应、Breit 相互作用和量子电动力学 (quantum electrodynamics, QED) 修正. 获得原子态波函数后, 跃迁概率可通过约化矩阵元  $\langle \gamma J\|\mathbf{O}^\lambda\|\gamma' J'\rangle$  来计算, 其中  $\mathbf{O}^\lambda$  为电磁场多极算符.

## 3 计算模型

电子关联效应是指量子态实际的能量与 Hartree-Fock 近似下所得的能量间的差异. 对于多电子原子体系, Dirac-Hartree-Fock 近似不足以准确描述原子的结构和性质, 原因在于电子关联效应对多电子原子体系的影响较大. 计算时我们采用活动空间方法 [30,31] 系统评估电子关联效应. 由微扰论可知, 电子关联效应分为一阶关联和高阶关联. 一阶关联进一步分为价电子间的关联 (valence-



表 1 不同计算模型下打开的光谱轨道 (active orbitals, AO)、虚轨道 (virtual orbitals, VO) 以及模型产生的组态空间内总的组态个数 (number of configuration state wavefunctions, NCFs).  $J = 0$  表示  $^1S_0$  态,  $J = 1, 3$  表示  $^3D_{1,3}$  态, 而  $J = 2$  对应  $^3D_2$  和  $^1D_2$  态

Table 1. Active orbitals (AO), virtual orbitals (VO) opened under different calculation models, and NCFs is the total number of the configurations in the configuration space.  $J = 0$  represents  $^1S_0$  state,  $J = 1, 3$  represents  $^3D_{1,3}$  states, and the  $J = 2$  corresponds to the  $^3D_2$  and  $^1D_2$  states, respectively.

Models	AO	VO	NCFs			
			$J = 0$	$J = 1$	$J = 2$	$J = 3$
DHF			1	1	2	1
VV-1	{ 5d6s ; 6s <sup>2</sup> }	{ 7s, 6p, 6d, 5f, 5g }	15	16	35	24
C5V-2	{ 5s <sup>2</sup> 5p <sup>6</sup> 5d6s ; 5s <sup>2</sup> 5p <sup>6</sup> 6s <sup>2</sup> }	{ 8s, 7p, 7d, 6f, 6g, 6h }	336	1954	4361	3213
C4V-3	{ 4s <sup>2</sup> 4p <sup>6</sup> 4d <sup>10</sup> 4f <sup>14</sup> 5s <sup>2</sup> 5p <sup>6</sup> 5d6s ; 4s <sup>2</sup> 4p <sup>6</sup> 4d <sup>10</sup> 4f <sup>14</sup> 5s <sup>2</sup> 5p <sup>6</sup> 6s <sup>2</sup> }	{ 9s, 8p, 8d, 7f, 7g }	2896	20054	49368	37668
C4V-4	{ 4s <sup>2</sup> 4p <sup>6</sup> 4d <sup>10</sup> 4f <sup>14</sup> 5s <sup>2</sup> 5p <sup>6</sup> 5d6s ; 4s <sup>2</sup> 4p <sup>6</sup> 4d <sup>10</sup> 4f <sup>14</sup> 5s <sup>2</sup> 5p <sup>6</sup> 6s <sup>2</sup> }	{ 10s, 9p, 9d, 8f, 8g, 8h }	5058	35649	88596	68104
C4V-5	{ 4s <sup>2</sup> 4p <sup>6</sup> 4d <sup>10</sup> 4f <sup>14</sup> 5s <sup>2</sup> 5p <sup>6</sup> 5d6s ; 4s <sup>2</sup> 4p <sup>6</sup> 4d <sup>10</sup> 4f <sup>14</sup> 5s <sup>2</sup> 5p <sup>6</sup> 6s <sup>2</sup> }	{ 11s, 10p, 10d, 9f, 9g, 9h }	7822	55699	139251	107472
C4V-6	{ 4s <sup>2</sup> 4p <sup>6</sup> 4d <sup>10</sup> 4f <sup>14</sup> 5s <sup>2</sup> 5p <sup>6</sup> 5d6s ; 4s <sup>2</sup> 4p <sup>6</sup> 4d <sup>10</sup> 4f <sup>14</sup> 5s <sup>2</sup> 5p <sup>6</sup> 6s <sup>2</sup> }	{ 12s, 11p, 11d, 10f, 10g, 9h }	10681	76208	190245	146319
C4V-7	{ 4s <sup>2</sup> 4p <sup>6</sup> 4d <sup>10</sup> 4f <sup>14</sup> 5s <sup>2</sup> 5p <sup>6</sup> 5d6s ; 4s <sup>2</sup> 4p <sup>6</sup> 4d <sup>10</sup> 4f <sup>14</sup> 5s <sup>2</sup> 5p <sup>6</sup> 6s <sup>2</sup> }	{ 13s, 12p, 12d, 11f, 10g, 9h }	13213	93967	232975	177889
CC5-7	$\cup$ { 5s <sup>2</sup> 5p <sup>6</sup> 5d6s ; 5s <sup>2</sup> 5p <sup>6</sup> s <sup>2</sup> }	{ 13s, 12p, 12d, 11f, 10g, 9h }	154602	435843	643878	750192
MR-3	$\cup$ { 5s <sup>2</sup> 5p <sup>6</sup> p <sup>2</sup> ; 5s <sup>2</sup> 5p <sup>2</sup> 5d <sup>2</sup> ; 5s <sup>2</sup> 5p <sup>4</sup> 6s <sup>2</sup> 6d7d ; 5s <sup>2</sup> 5p <sup>6</sup> s7s ; 5s <sup>2</sup> 5p <sup>6</sup> 6d7s ; 5s <sup>2</sup> 5p <sup>4</sup> 5d6s <sup>2</sup> 6d ; 5s <sup>2</sup> 5p <sup>5</sup> 5d6s6p ; 5s <sup>2</sup> 5p <sup>6</sup> 5f6p ; 5s <sup>2</sup> 5p <sup>6</sup> 6s6d }	{ 9s, 8p, 8d, 7f, 7g, 7h }	754484	2123833	3122817	3614260

valence, VV), 价电子与壳层电子间的关联 (core-valence, CV) 以及壳层电子之间的关联 (core-core, CC) 三种. 通过单参考组态单激发 (single excitation) 或双激发 (double excitation) 至活动空间形成的组态空间来描述一阶关联. 待一阶关联描述充分后, 挑选组态空间中混合系数较大的组态加入多参考组态 (multi-reference, MR) 基组, 利用 MR 基组单双激发产生的组态空间来描述高阶电子关联效应<sup>[19]</sup>. 由于从 MR 基组单双激发等价于从单参考组态三四激发<sup>[32]</sup>, MR 方法在很大程度上节约了计算资源, 提高了计算效率.

计算时将基态 6s<sup>2</sup> 和激发态 5d6s 同时优化. 首先, 在 Dirac-Hartree-Fock (DHF) 近似中, 优化了参考组态 { 4s<sup>2</sup>4p<sup>6</sup>4d<sup>10</sup>4f<sup>14</sup>5s<sup>2</sup>5p<sup>6</sup>5d6s ; 4s<sup>2</sup>4p<sup>6</sup>4d<sup>10</sup>4f<sup>14</sup>5s<sup>2</sup>5p<sup>6</sup>6s<sup>2</sup> } 中的光谱轨道. 参考组态中最外层 5d 和 6s 轨道上的电子被当成价电子, 其他的电子为壳层电子. 随后在自洽场中, 考虑了价电子与价电子及  $n \geq 3$  壳层电子与价电子之间的关联效应. 组态空间的扩展是通过从参考组态限制性单双激发产生组态波函数的形式实现的. 限制性单双激发代表最多只有一个电子从壳层电子激发, 其他的来自于价电子的激发. 在本文的计算中, 占据的壳层逐层打开以激发至虚轨道, 即先打开 5sp 壳层, 随后打开 4spd 壳层. 同时, 虚轨道也是通过一层层扩展的,

并且每次只优化新加入的虚轨道. 为了充分考虑 VV 和 CV 关联, 扩展了七层虚轨道以确保计算的物理量的收敛性. 计算中, 每一步的计算模型被标记为  $C_nV-m$ , 其中  $n$  代表最新打开的壳层,  $m$  代表添加的虚轨道层数. 为了提高计算效率, 去除了与参考组态无相互作用的组态<sup>[33]</sup>. 在 C4V-7 计算模型中获得的轨道基被用于随后的 RCI 计算.

随后, 在 RCI 中考虑了  $n = 5$  壳层间的 CC 关联. 为了充分考虑这部分的 CC 关联效应, 七层虚轨道被激发以实现组态空间的继续扩展. 相应的计算模型被标记为 CC5-7. 此外, 通过多参考组态单双激发的方法<sup>[32]</sup>来考虑  $n \geq 5$  电子的高阶关联效应. 多参考组态是通过在 CC5-7 的组态空间中挑选出重要的组态形成的, 即组态混合系数大于等于 0.05 的组态. 计算中挑选出的多参考组态为 { 5s<sup>2</sup>5p<sup>6</sup>6p<sup>2</sup> ; 5s<sup>2</sup>5p<sup>6</sup>5d<sup>2</sup> ; 5s<sup>2</sup>5p<sup>4</sup>6s<sup>2</sup>6d7d ; 5s<sup>2</sup>5p<sup>6</sup>6s7s ; 5s<sup>2</sup>5p<sup>4</sup>5d6s<sup>2</sup>6d ; 5s<sup>2</sup>5p<sup>5</sup>5d6s6p ; 5s<sup>2</sup>5p<sup>6</sup>5f6p ; 5s<sup>2</sup>5p<sup>6</sup>6s6d ; 5s<sup>2</sup>5p<sup>6</sup>6d7s }. 为了实现组态空间的继续扩展, 从多参考组态的单双激发至前三层虚轨道产生的组态被加入进来, 相应的计算模型被标记为 MR-3. 最后, 基于 MR-3 模型, Breit 相互作用和 QED 效应的影响被评估. 不同计算模型下的组态个数如表 1 所列, 并利用 GRASP2018 程序包<sup>[34]</sup>完成计算. 此外, 利用 rhfszeeman 程序<sup>[23]</sup>计算非对角超精细相

相互作用矩阵元, 用 transition-phase 程序<sup>[23]</sup> 计算电四极跃迁矩阵元.

## 4 计算结果及讨论

### 4.1 $5d6s\ ^3D_1 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$ M1 跃迁及 $5d6s\ ^1,^3D_2 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$ E2 跃迁

如图 1 所示, 本文计算并比较了不同虚轨道层数对应的  $5d6s\ ^3D_1 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  的 M1 跃迁概率和

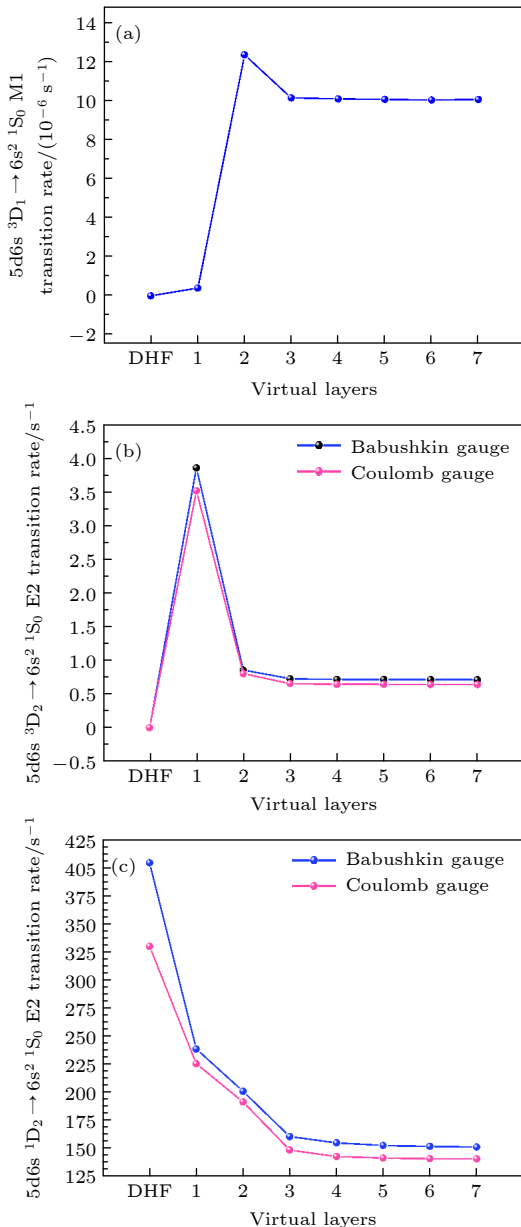


图 1  $5d6s\ ^3D_1 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  M1 跃迁及  $5d6s\ ^1,^3D_2 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  E2 跃迁的跃迁概率随虚轨道扩展的变化

Fig. 1. Transition rates for  $5d6s\ ^3D_1 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  M1 transition and  $5d6s\ ^1,^3D_2 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  E2 transition as a function of virtual orbital expansion.

$5d6s\ ^1,^3D_2 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  E2 跃迁概率. 由图 1 可知虚轨道添加至第七层后,  $^3D_1 \rightarrow ^1S_0$  以及  $^1,^3D_2 \rightarrow ^1S_0$  跃迁概率的计算结果均达到收敛.

表 2 列出了不同模型下  $5d6s\ ^3D_1 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  M1 跃迁激发能  $\Delta E$ 、约化跃迁矩阵元 (reduced matrix element, RME) 和跃迁概率  $R$  的计算结果. 由表 2 可知 VV 和 CV 关联是影响  $^3D_1 \rightarrow ^1S_0$  M1 跃迁参数的主要因素, 它们使跃迁能和约化矩阵元分别变化了 5.13% 和 98.8%. CC 关联对 M1 跃迁也存在较大影响. 激发能和约化矩阵元在它们影响下的变化量分别为 3.43% 与 38.79%. 此外, 高阶电子关联效应和 CC 关联之间存在一定程度的抵消效应. M1 跃迁激发能的计算结果与 NIST 数据库<sup>[35]</sup> 给出的推荐值接近, 二者相差 0.24%. 最后, 在考虑了 Breit 相互作用和 QED 效应后, 激发能和约化矩阵元的变化量分别为 0.53% 和 1.37%. 本文约化矩阵元的计算结果处在文献<sup>[9]</sup> 给出的测量误差范围以内.

表 2 不同计算模型下  $5d6s\ ^3D_1 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  M1 跃迁的激发能  $\Delta E$  ( $\text{cm}^{-1}$ ), RME (a.u.) 和跃迁概率  $R$  ( $\text{s}^{-1}$ ). 方括号中的值表示以 10 为底的指数, 圆括号内的值表示误差

Table 2. Excitation energy  $\Delta E$  (in  $\text{cm}^{-1}$ ), transition probability  $R$  (in  $\text{s}^{-1}$ ), and RME (in a.u.) for the  $5d6s\ ^3D_1 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  M1 transition under various computational models. The values in brackets represent exponents with a base of 10, and values in parentheses indicate errors.

Models	$\Delta E$	RME	$R$
DHF	21063.62	1.83[-6]	1.134[-9]
VV-1	24989.1	2.69[-5]	4.059[-7]
C4V-7	22195.61	1.61[-4]	1.019[-5]
CC5-7	22987.31	1.16[-4]	5.887[-6]
MR-3	24430.65	1.47[-4]	1.137[-5]
Breit+QED	24301.85	1.45[-4]	1.088[-5]
Sur 等 <sup>[10]</sup>		1.34[-4]	
Expt. <sup>[9]</sup>		1.33(20)[-4]	
NIST <sup>[35]</sup>	24489.10		

表 3 列出了不同模型下计算的  $5d6s\ ^1,^3D_2 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  E2 跃迁的激发能  $\Delta E$ , RME 和跃迁速率  $R$ . 表中 V 表示速度规范, L 表示长度规范. 理论上不同规范下的跃迁矩阵元应给出同样的跃迁线强和跃迁速率的计算结果, 但采用 MCDHF 方法得到的原子态波函数为实际原子态波函数的近似, 从而造成两种规范下的计算结果有一定差别. 由表 3

表 3  $5d6s\ ^1\ ^3D_2 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  E2 跃迁的激发能  $\Delta E$  ( $\text{cm}^{-1}$ ), RME(a.u.) 和跃迁概率  $R$  ( $\text{s}^{-1}$ ) 在不同计算模型下的结果. V 表示速度规范, L 表示长度规范

Table 3. Excitation energy  $\Delta E$  (in  $\text{cm}^{-1}$ ), RME (in a.u.), and transition probability  $R$  (in  $\text{s}^{-1}$ ) for the  $5d6s\ ^1\ ^3D_2 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  E2 transition under various computational models. "V" denotes the velocity gauge, and "L" represents the length gauge.

Models	$^3D_2 \rightarrow ^1S_0$					$^1D_2 \rightarrow ^1S_0$				
	$\Delta E$	RME <sub>L</sub>	RME <sub>V</sub>	$R_L$	$R_V$	$\Delta E$	RME <sub>L</sub>	RME <sub>V</sub>	$R_L$	$R_V$
DHF	21114.02	0.05	0.05	0.001	0.001	28822.95	-15.05	-13.59	403.87	329.46
VV-1	25010.57	2.09	2.00	3.85	3.51	26254.24	-15.26	-14.84	238.18	225.08
C4V-7	22406.02	1.18	1.12	0.71	0.64	26208.26	-11.67	-11.26	150.96	140.41
CC5-7	23171.20	0.86	0.85	0.45	0.43	28126.76	-13.55	-12.75	289.61	256.70
MR-3	24685.75	1.21	1.15	1.20	1.10	28313.29	-12.63	-12.84	260.01	232.25
Breit+QED	24553.44	1.18	1.13	1.11	1.02	28206.64	-12.61	-11.94	254.33	228.31
Bowers等 <sup>[36]</sup>		1.12(4)								
Expt. <sup>[36]</sup>		1.45(7)								
NIST <sup>[35]</sup>	24751.95					27677.67				

可知, VV 和 CV 关联对  $5d6s\ ^3D_2 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  E2 跃迁的跃迁能和跃迁概率的影响分别为 5.1% 和 100%. 在高阶电子关联效应的影响下,  $^3D_2$  与  $^1D_2$  至  $^1S_0$  E2 跃迁的激发能接近于 NIST 的推荐值, 与其分别相差 0.26% 和 2.99%.

#### 4.2 $5d6s\ ^3D_{1,2,3},\ ^1D_2$ 态超精细常数与 $^{173}\text{Yb}$ 核电四极矩

表 4 列出了  $^{171}\text{Yb}$  及其同位素  $^{173}\text{Yb}$  的磁偶极超精细常数  $A$  与电四极超精细常数  $B$  的计算结果, 并与以往的理论计算和实验测量结果进行了比较. 表中 Expt. 与 Theory 分别表示实验测量值与理论计算值. 与其他理论的计算结果相比, 本文采用 MCDHF 方法计算的  $^{171,173}\text{Yb}$  原子  $5d6s\ ^3D_{1,2,3}$  态磁偶极和电四极超精细常数更接近实验值<sup>[36-39]</sup>. 例如  $^{173}\text{Yb}$  的  $5d6s\ ^3D_1$  态, 本文计算所得的超精细常数  $A, B$  与实验值分别相差 3.73% 和 0.43%, 而文献 [11,40] 中利用 CI+MBPT 理论计算的  $A$  和  $B$  与实验测量结果的差距大于 5% 和 13%. 对于  $5d6s\ ^3D_2$  态, 本文计算的  $A$  和  $B$  与实验值的差距小于 1%, 文献 [40] 结果与实验值分别相差 3.41% 和 9.65%, 文献 [11] 结果与实验值分别相差 2.6% 和 20.5%. 在文献 [40] 的计算中, 仅考虑了 VV 与 CV 关联, 而在本文的计算中, 不仅考虑了 VV 与 CV 关联, 还考虑了 CC 和高阶关联效应. 对于  $5d6s\ ^1D_2$  态超精细常数  $B$ , 本文计算结果比文献 [40] 的结果稍差, 但仍处在实验测量结果<sup>[39]</sup> 的误差范围内.

表 5 列出了不同模型下  $^{173}\text{Yb}$  原子  $5d6s\ ^3D_{1,2,3}$  态的 EFG 值. 结合实验测量的电四极超精细常数  $B$ , 重新评估了  $^{173}\text{Yb}$  原子核电四极矩. 根据 MR-3 模型的计算结果,  $5d6s\ ^3D_{1,2,3}$  态下本文评估的核电四极矩分别为  $Q(^3D_1) = 2.79\text{ b}$ ,  $Q(^3D_2) = 2.77\text{ b}$ ,  $Q(^3D_3) = 3.04\text{ b}$ . 取它们的平均为最终的评估结果  $Q = 2.89\text{ b}$ , 统计误差为 0.02 b. 将  $5d6s\ ^1D_2$  态排除在外, 因为它的超精细常数对电子关联效应特别敏感. 由于壳层电子与壳层电子之间的关联与对应的高阶关联效应存在部分抵消现象<sup>[42,43]</sup>, 将  $n = 4$  的 CC 关联效应对 EFG 的影响作为剩余电子关联效应引起的误差. 取以上两种方法中最大的误差为最终误差. 因此, 本文评估的  $^{173}\text{Yb}$  原子核电四极矩为  $Q(^{173}\text{Yb}) = 2.89(5)\text{ b}$ .

Holmgren<sup>[41]</sup> 利用相对论自洽场方法计算了  $^{173}\text{Yb}$  原子  $6s5d\ ^3D_{1,2,3},\ ^1D_2$  和  $6s6p\ ^3P_{1,2},\ ^1P_1$  态的波函数, 并结合实验测量的超精细常数  $B$ , 评估的  $^{173}\text{Yb}$  原子核电四极矩  $Q = 3.6\text{ b}$ . 此外, Singh 等<sup>[44]</sup> 测量了  $^{173}\text{Yb}$  原子  $^3P_2$  态的电四极超精细常数  $B$ , 并结合他们利用相对论耦合簇 (relativistic coupled-cluster, RCC) 方法计算的核外电子在原子核处的电场梯度, 评估  $^{173}\text{Yb}$  原子核电四极矩为  $Q = 2.46(12)\text{ b}$ . 目前,  $^{173}\text{Yb}$  核电四极矩的推荐值  $Q(^{173}\text{Yb}) = 2.80(4)\text{ b}$  是通过测量  $\mu$  镱原子 X 射线和原子核  $\gamma$  射线得到的<sup>[45]</sup>, 本文计算所得的结果与其符合得很好. 与 Holmgren 以及 Singh 等评估的结果相比, 本文的结果更接近于  $^{173}\text{Yb}$  原子核电四极矩的推荐值, 同时评估误差更小.

表 4  $5d6s\ ^3D_{1,2,3}$  态与  $^1D_2$  态的磁偶极超精细常数  $A$  (MHz) 和电四极超精细常数  $B$  (MHz)

 Table 4. Magnetic dipole hyperfine constant  $A$  (in MHz) and electric quadrupole hyperfine constant  $B$  (in MHz) for the  $5d6s\ ^3D_{1,2,3}$  and  $^1D_2$  states.

	$^{171}\text{Yb}$		$^{173}\text{Yb}$		Ref.	
	$A$	$B$	$A$	$B$		
$^3D_1$	Expt.	-2040(2)		562.8(5)	337(2)	[36]
						[37]
						[38]
					[39]	
	Theory			563(1)	335(1)	[11]
				648	249	[40]
			596	290	[41]	
					This work	
		-2349				
$^3D_2$	Expt.	1315(4)		-363.4(10)	487(5)	[36]
						[39]
						[11]
	Theory			-373	387	[40]
				-351	440	[41]
				-765		[41]
					This work	
		1354				
$^3D_3$	Expt.	1314.62		-362.13	491.39	This work
						[39]
						[40]
	Theory			-430(1)	909(29)	[39]
				-420	728	[40]
				-477		[41]
					This work	
		1626.97				
$^1D_2$	Expt.			100(18)	1115(89)	[39]
						[40]
	Theory			131	1086	[40]
				465		[41]
					This work	
		-313.87		86.46	1053.44	

 表 5 不同模型下的 EFG(a.u.), 以及重新评估后的  $^{173}\text{Yb}$  原子核电四极矩  $Q$ (b)

 Table 5. The EFG (in a.u.) calculated under different models, along with the reassessment of the nuclear electric quadrupole moment  $Q$  (in b) for  $^{173}\text{Yb}$ .

Models	$^3D_1$		$^3D_2$		$^3D_3$	
	EFG	$Q$	EFG	$Q$	EFG	$Q$
DHF	0.23	6.09	0.32	6.47	0.55	7.07
C4V-7	0.52	2.75	0.77	2.69	1.29	2.99
CC5-7	0.43	3.26	0.63	3.27	1.10	3.52
MR-3	0.51	2.79	0.74	2.77	1.27	3.04

### 4.3 $^{171}\text{Yb}$ 和 $^{173}\text{Yb}$ 超精细诱导 $5d6s\ ^3D_{1,3}IF' \rightarrow 6s^2\ ^1S_0E2$ 跃迁

表 6 列出了  $^{171}\text{Yb}$  和  $^{173}\text{Yb}$  原子中超精细诱导  $5d6s\ ^3D_{1,3} \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  E2 跃迁的混合系数. 计算混合系数时核磁偶极矩、核电四极矩、矩阵元以及能级差均采用原子单位 [46]. 原子单位下核磁矩  $\mu_I(\text{a.u.}) = \mu_N \times \mu_I(\text{nm})$ ,  $\mu_N = 1.987131 \times 10^{-6}$ , 核电四极矩  $Q(\text{a.u.}) = 3.5706 \times 10^{-8} \times Q(\text{b})$ . 对于  $^{171}\text{Yb}$ ,  $\mu_I = 0.49367(1)\text{ nm}$ ,  $Q = 0$ . 而对于  $^{173}\text{Yb}$ ,  $\mu_I = -0.67989(3)\text{ nm}$ ,  $Q = 2.8\text{ b}$ .

将表 3 中  $5d6s\ ^1D_2 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  E2 跃迁的跃迁矩阵元以及表 6 所列的混合系数代入 (23) 式与 (26) 式, 即可得到  $^{171}\text{Yb}$  和  $^{173}\text{Yb}$  的超精细诱导  $5d6s\ ^3D_{1,3}IF' \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  跃迁的跃迁概率. 计算并统计了不同微扰态和不同超精细相互作用对超精细诱导 E2 跃迁的跃迁概率的贡献. 如表 7 所列, 磁偶极超精细相互作用对跃迁概率的贡献比电四极超精细相互作用的贡献高 2—3 个数量级, 因此在超精细诱导跃迁中磁偶极超精细作用导致的态混合始终为主要部分. 超精细诱导  $5d6s\ ^3D_1IF' \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$



E2 跃迁在磁偶极超精细作用下,  $^3D_2$  微扰态与  $^1D_2$  微扰态对应的跃迁概率都随着总角动量量子数  $F'$  的减小而减小, 但同一  $F'$  下  $^3D_2$  态的贡献始终是  $^1D_2$  态的 3 倍以上; 在电四极超精细作用下,  $^3D_2$  态的贡献比  $^1D_2$  态高 1—2 个数量级. 对于超精细诱导

导  $5d6s\ ^3D_3IF' \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  E2 跃迁, 磁偶极超精细作用下  $^1D_2$  微扰态的贡献始终大于  $^3D_2$  微扰态的贡献. 最终计算并总结了不同总角动量量子数  $F'$  对应的超精细诱导  $5d6s\ ^3D_{1,3}IF' \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  E2 跃迁的跃迁概率. 相应的计算结果统计于表 7 的 Total 列.

表 6  $^{171}\text{Yb}$  和  $^{173}\text{Yb}$  原子的超精细诱导  $5d6s\ ^3D_{1,3}IF' \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  E2 跃迁的混合系数 (a.u.)

Table 6. Mixing coefficients (in a.u.) for the hyperfine-induced  $5d6s\ ^3D_{1,3}IF' \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  E2 transition in  $^{171}\text{Yb}$  and  $^{173}\text{Yb}$ .

	$F'$	$(^3D_2, ^3D_1)$			$(^1D_2, ^3D_1)$		
		$\epsilon_1^A$	$\epsilon_1^B$	$\epsilon_1$	$\epsilon_2^A$	$\epsilon_2^B$	$\epsilon_2$
$^{171}\text{Yb}$	3/2	-1.54[-4]	0	-1.54[-4]	7.1[-6]	0	7.1[-6]
	7/2	-7.36[-5]	-5.47[-6]	-7.91[-5]	3.39[-6]	4.04[-8]	3.43[-6]
$^{173}\text{Yb}$	5/2	-7.17[-5]	3.99[-6]	-6.77[-5]	3.30[-6]	-2.95[-8]	3.27[-6]
	3/2	-5.03[-5]	7.47[-6]	-4.28[-5]	2.31[-6]	-5.53[-8]	2.26[-6]
	$F'$	$(^3D_2, ^3D_3)$			$(^1D_2, ^3D_3)$		
		$\epsilon_1^A$	$\epsilon_1^B$	$\epsilon_1$	$\epsilon_2^A$	$\epsilon_2^B$	$\epsilon_2$
$^{171}\text{Yb}$	5/2	5.28[-5]	0	5.28[-5]	-1.37[-5]	0	-1.37[-5]
	9/2	2.35[-5]	2.56[-6]	2.61[-5]	-6.13[-6]	-3.78[-8]	-6.17[-6]
	7/2	2.54[-5]	-3.46[-7]	2.51[-5]	-6.61[-6]	5.1[-9]	-6.61[-6]
$^{173}\text{Yb}$	5/2	2.21[-5]	-2.41[-6]	1.97[-5]	-5.76[-6]	3.55[-8]	-5.73[-6]
	3/2	1.61[-5]	-2.84[-6]	1.32[-5]	-4.81[-6]	4.19[-8]	-4.14[-6]
	1/2	8.40[-6]	-1.83[-6]	6.57[-5]	-2.19[-6]	2.7[-8]	-2.16[-6]

表 7  $^{171}\text{Yb}$  和  $^{173}\text{Yb}$  的超精细诱导  $5d6s\ ^3D_{1,3}IF' \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  E2 跃迁的跃迁概率 ( $s^{-1}$ ).  $T_1$  与  $T_2$  分别表示磁偶极超精细相互作用与电四极超精细相互作用下的诱导跃迁概率.  $R_1$  与  $R_3$  表示超精细诱导跃迁  $5d6s\ ^3D_1IF' \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  中  $^3D_2$  微扰态和  $^1D_2$  微扰态与  $^3D_1$  态混合后的诱导跃迁概率.  $R'_1$  与  $R'_3$  表示超精细诱导跃迁  $5d6s\ ^3D_3IF' \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  中  $^3D_2$  微扰态和  $^1D_2$  微扰态与  $^3D_3$  态混合后的诱导跃迁概率. 方括号内的数值代表以 10 为底的指数, 圆括号内的数值代表误差 Table 7. Transition probabilities (in  $s^{-1}$ ) for the hyperfine-induced  $5d6s\ ^3D_{1,3}IF' \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  E2 transitions in  $^{171}\text{Yb}$  and  $^{173}\text{Yb}$ .  $T_1$  and  $T_2$  represent the induced transition probabilities under magnetic dipole hyperfine interaction and electric quadrupole hyperfine interaction, respectively.  $R_1$  and  $R_3$  represent the transition probabilities in the hyperfine-induced transition  $5d6s\ ^3D_1IF' \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$ , where the perturbed states  $^3D_2$  and  $^1D_2$  are mixed with the  $^3D_1$  state. Similarly,  $R'_1$  and  $R'_3$  denote the transition probabilities in the hyperfine-induced transition  $5d6s\ ^3D_3IF' \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$ , where the perturbed states  $^3D_2$  and  $^1D_2$  are mixed with the  $^3D_3$  state. The numerical values in square brackets denote the exponentiation with base 10, while the values in parentheses represent the error.

$F'$	$R_1$		$R_3$		Total
	$T_1$	$T_2$	$T_1$	$T_2$	
3/2	1.09[-8]	0	2.64[-9]	0	2.42(23)[-8]
7/2	2.48[-9]	1.37[-11]	6.00[-10]	8.53[-14]	6.13(60)[-9]
5/2	2.35[-9]	7.29[-12]	5.69[-10]	4.55[-14]	4.82(47)[-9]
3/2	1.16[-9]	2.55[-11]	2.80[-10]	1.60[-13]	2.05(20)[-9]
$F'$	$R'_1$		$R'_3$		Total
	$T_1$	$T_2$	$T_1$	$T_2$	
5/2	6.41[-10]	0	4.96[-9]	0	9.16(89)[-9]
9/2	1.27[-10]	1.51[-12]	9.85[-10]	3.75[-14]	1.94(18)[-9]
7/2	1.48[-10]	2.74[-14]	1.15[-9]	6.82[-16]	2.10(20)[-9]
5/2	1.12[-10]	1.33[-12]	8.70[-10]	3.30[-14]	1.50(14)[-9]
3/2	5.92[-11]	1.85[-12]	4.58[-10]	4.60[-14]	7.58(74)[-10]
1/2	1.62[-11]	7.68[-13]	1.25[-10]	1.91[-14]	2.02(19)[-10]

表 8  $^{171}\text{Yb}$  和  $^{173}\text{Yb}$  的超精细诱导  $5d6s\ ^3D_1IF' \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  E2 跃迁的跃迁幅度.  $E_{2A}$  与  $E_{2B}$  分别表示磁偶极超精细相互作用与电四极超精细相互作用下的诱导跃迁幅度.  $E_{2\text{tot}}$  表示磁偶极与电四极超精细相互作用共同作用下的诱导跃迁幅度. 方括号内的数值代表以 10 为底的指数, 圆括号内的数值代表误差

Table 8. Transition amplitude of the hyperfine-induced  $5d6s\ ^3D_1IF' \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  E2 transition in  $^{171}\text{Yb}$  and  $^{173}\text{Yb}$ .  $E_{2A}$  and  $E_{2B}$  represent the induced transition amplitudes under the magnetic dipole hyperfine interaction and electric quadrupole hyperfine interaction, respectively.  $E_{2\text{tot}}$  denotes the induced transition amplitude under the combined influence of magnetic dipole and electric quadrupole hyperfine interactions. The numerical values in square brackets denote the exponentiation with base 10, while the values in parentheses represent the error.

	IF				Ref.
	1/2, 3/2	5/2, 3/2	5/2, 5/5	5/2, 7/2	
$E_{2A}$	6.43[ - 4]	-3.63[ - 4]	6.34[ - 4]	-7.52[ - 4]	Kozlov <sup>[11]</sup>
	1.62[ - 4]	-0.53[ - 4]	9.26[ - 5]	-1.09[ - 4]	This work
$E_{2B}$	0	-3.90[ - 5]	2.10[ - 5]	2.80[ - 5]	Kozlov <sup>[11]</sup>
	0	-7.88[ - 6]	5.16[ - 6]	8.16[ - 6]	This work
$E_{2\text{tot}}$	6.40(1.0)[ - 4]	-4.00(60)[ - 4]	6.60(1.0)[ - 4]	-7.20(1.2)[ - 4]	Kozlov <sup>[11]</sup>
	1.62(6)[ - 4]	-4.50(20)[ - 5]	9.76(41)[ - 5]	-1.01(4)[ - 4]	This work

表 8 列出了本文与其他理论计算的超精细诱导  $5d6s\ ^3D_1 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  跃迁振幅的计算结果的比较. 跃迁振幅正比于混合系数与约化跃迁矩阵元的乘积, 通过比较发现, 本文计算得到的跃迁振幅与 Kozlov 等<sup>[11]</sup> 的结果存在差异的主要原因是混合系数不同. 由于混合系数与超精细相互作用非对角元相关, 而本文计算的超精细常数更接近于实验测量结果.

通过两种方法来评估超精细诱导跃迁概率的计算误差: 1) 规范一致性引起的误差; 2) 剩余电子关联效应引起的误差. 对于前一种误差利用如下公式计算:

$$d = \frac{|R_L - R_V|}{\text{Max}[R_L, R_V]}, \quad (29)$$

其中,  $R_L$  和  $R_V$  分别是长度规范和速度规范下计算的跃迁概率. 而对于后一种误差, 将  $n = 4$  的 CC 关联效应对跃迁概率的影响作为剩余电子关联效应引起的误差. 最终, 取两种方法中误差较大者作为最终的计算误差, 评估后的误差展示在表 7 和表 8 中.

## 5 结 论

本文基于 MCDHF 理论, 计算了  $^{171}\text{Yb}$  和  $^{173}\text{Yb}$  原子超精细诱导  $5d6s\ ^3D_{1,3}IF' \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  E2 跃迁的跃迁概率. 同时, 详细分析了不同微扰态和不同超精细相互作用的跃迁概率的贡献. 通过计算发现, 微扰态  $^3D_2$  与  $^3D_1$ ,  $^3D_3$  之间的磁偶极超精细相

互作用占主要贡献. 此外,  $^3D_1 \rightarrow ^1S_0$  M1 跃迁和超精细诱导 E2 跃迁的跃迁概率之比约为 450:1.

结合计算所得的  $^3D_{1,2,3}$  态核外电子在原子核处的电场梯度和实验测量的超精细常数  $B$ , 重新评估了  $^{173}\text{Yb}$  原子核电四极矩  $Q(^{173}\text{Yb}) = 2.89(5)$  b. 该工作利用原子物理方法评估了  $^{173}\text{Yb}$  原子核电四极矩值, 评估结果与目前被推荐的结果符合得很好.

## 参考文献

- [1] Bouchiat M, Bouchiat C 1974 *J. Phys.* **35** 899
- [2] Safronova M, Budker D, DeMille D, Kimball D F J, Derevianko A, Clark C W 2018 *Rev. Mod. Phys.* **90** 025008
- [3] Roberts B, Dzuba V, Flambaum V 2015 *Annu. Rev. Nucl. Part. Sci.* **65** 63
- [4] DeMille D 1995 *Phys. Rev. Lett.* **74** 4165
- [5] Tsigmatkin K, Dounas Frazer D, Family A, Stalnaker J E, Yashchuk V V, Budker D 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 071601
- [6] Antypas D, Fabricant A, Stalnaker J E, Tsigmatkin K, Flambaum V, Budker D 2019 *Nat. Phys.* **15** 120
- [7] Tsigmatkin K, Dounas Frazer D, Family A, Stalnaker J E, Yashchuk V V, Budker D 2010 *Phys. Rev. A* **81** 032114
- [8] Dzuba V, Flambaum V 2011 *Phys. Rev. A* **83** 042514
- [9] Stalnaker J, Budker D, DeMille D, Freedman S, Yashchuk V V 2002 *Phys. Rev. A* **66** 031403
- [10] Sur C, Chaudhuri R K 2007 *Phys. Rev. A* **76** 012509
- [11] Kozlov M, Dzuba V, Flambaum V 2019 *Phys. Rev. A* **99** 012516
- [12] Stone N 2016 *At. Data Nucl. Data Tables* **111–112** 1
- [13] Schwartz C 1955 *Phys. Rev.* **97** 380
- [14] Racah G 1942 *Phys. Rev.* **62** 438
- [15] Andersson M, Jönsson P 2008 *Comput. Phys. Commun.* **178** 156
- [16] Radzig A A, Smirnov B M 2012 *Reference Data on Atoms, Molecules, and Ions* (Berlin: Springer) p99
- [17] Lu B, Lu X, Wang T, Chang H 2022 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **55** 205002

- [18] Bieroń J, Pyykkö P, Sundholm D, Kellö V, Sadlej A J 2001 *Phys. Rev. A* **64** 052507
- [19] Li J, Godefroid M, Wang J 2016 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **49** 115002
- [20] Hertel I V, Schulz C P 2014 *Atoms, Molecules and Optical Physics* (Berlin: Springer) p212
- [21] Johnson W R 2007 *Atomic Structure Theory* (Berlin: Springer) p181
- [22] Andersson M, Yao K, Hutton R, Zou Y, Chen C, Brage T 2008 *Phys. Rev. A* **77** 042509
- [23] Li W, Grumer J, Brage T, Jönsson P 2020 *Comput. Phys. Commun.* **253** 107211
- [24] Lu X, Guo F, Wang Y, Feng M, Liang T, Lu B, Chang H 2023 *Phys. Rev. A* **108** 012820
- [25] Johnson W 2010 *Can. J. Phys.* **89** 429
- [26] Grumer J, Brage T, Andersson M, Li J, Jönsson P, Li W, Yang Y, Hutton R, Zou Y 2014 *Phys. Scr.* **89** 114002
- [27] Fischer C F, Brage T, Jönsson P 2022 *Computational Atomic Structure: an MCHF Approach* (New York: Routledge) p217
- [28] Li J, Jönsson P, Godefroid M, Dong C, Gaigalas G 2012 *Phys. Rev. A* **86** 052523
- [29] Jönsson P 1993 *Phys. Scr.* **48** 678
- [30] Jönsson P, Gaigalas G, Fischer C F, Bieroń J, Grant I P, Brage T, Ekman J, Godefroid M, Grumer J, Li J 2023 *Atoms* **11** 68
- [31] Olsen J, Roos B O, Jorgensen P, Jensen H 1988 *J. Chem. Phys.* **89** 2185
- [32] Jönsson P, Godefroid M, Gaigalas G, Ekman J, Grumer J, Li W, Li J, Brage T, Grant I P, Bieroń J, Fischer C F 2023 *Atoms* **11** 7
- [33] Jönsson P, He X, Fischer C F, Grant I 2007 *Comput. Phys. Commun.* **177** 597
- [34] Fischer C F, Gaigalas G, Jönsson P, Bieroń J 2019 *Comput. Phys. Commun.* **237** 184
- [35] Kramida A, Ralchenko Y, Reader J 2023 *NIST Atomic Spectra Database* (Version 5.11) <https://physics.nist.gov/pml/atomic-spectra-database>
- [36] Bowers C, Budker D, Freedman S, Gwinner G, Stalnaker J, DeMille D 1999 *Phys. Rev. A* **59** 3513
- [37] Beloy K, Sherman J A, Lemke N D, Hinkley N, Oates C W, Ludlow A D 2012 *Phys. Rev. A* **86** 051404
- [38] Ai D, Jin T, Zhang T, Luo L, Liu L, Zhou M, Xu X 2023 *Phys. Rev. A* **107** 063107
- [39] Kronfeldt H D 1998 *Phys. Scr.* **1998** 5
- [40] Porsev S, Rakhlina Y G, Kozlov M 1999 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **32** 1113
- [41] Holmgren L 1975 *Phys. Scr.* **12** 119
- [42] Zhang T, Xie L, Li J, Lu Z 2017 *Phys. Rev. A* **96** 012514
- [43] Bieroń J, Fischer C F, Jönsson P, Pyykkö P 2008 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **41** 115002
- [44] Singh A K, Angom D, Natarajan V 2013 *Phys. Rev. A* **87** 012512
- [45] Zehnder A, Boehm F, Dey W, Engfer R, Walter H, Vuilleumier J 1975 *Nucl. Phys. A* **254** 315
- [46] Cheng K, Chen M, Johnson W 2008 *Phys. Rev. A* **77** 052504

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

Zhao Guo-Dong<sup>1)2)3)4)</sup> Cao Jin<sup>1)2)3)4)</sup> Liang Ting<sup>1)2)3)4)</sup> Feng Min<sup>1)2)3)4)</sup>  
Lu Ben-Quan<sup>1)2)†</sup> Chang Hong<sup>1)2)3)4)‡</sup>

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 5 January 2024; revised manuscript received 22 February 2024 )

## Abstract

The parity violation effects via the  $5d6s\ ^3D_1 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  transition have been extensively investigated in ytterbium atoms. However, the M1 transition between the excitation state  $5d6s\ ^3D_1$  and the ground state  $6s^2\ ^1S_0$ , as well as the hyperfine-induced E2 transition, significantly affects the detection of parity violation signal. Therefore, it is imperative to obtain the accurate transition probabilities for the M1 and hyperfine-induced E2 transitions between the excitation state  $5d6s\ ^3D_1$  and the ground state  $6s^2\ ^1S_0$ . In this work, we use the multi-configuration Dirac-Hartree-Fock theory to precisely calculate the transition probabilities for the  $5d6s\ ^3D_1 \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  M1 and hyperfine-induced  $5d6s\ ^3D_{1,3} \rightarrow 6s^2\ ^1S_0$  E2 transitions. We extensively analyze the influences of electronic correlation effects on the transition probabilities according to our calculations. Furthermore, we analyze the influences of different perturbing states and various hyperfine interactions on the transition probabilities. The calculated hyperfine constants of the  $e\ ^3D_{1,2,3}$  and  $^1D_2$  states accord well with experimental measurements, validating the rationality of our computational model. By combining experimentally measured hyperfine constants with the theoretically derived electric field gradient of the extra nuclear electrons at the nucleus, we reevaluate the nuclear quadrupole moment of the  $^{173}\text{Yb}$  nucleus as  $Q = 2.89(5)\text{ b}$ , showing that our result is in excellent agreement with the presently recommended value.

**Keywords:** hyperfine induced transition, Yb atom, hyperfine constant, multi-configuration Dirac-Hartree-Fock method

**PACS:** 31.10.+z, 31.15.-p, 31.15.vj, 32.10.Fn

**DOI:** [10.7498/aps.73.20240028](https://doi.org/10.7498/aps.73.20240028)

\* Project supported by the Strategic Priority Research Program of Chinese Academy of Sciences (Grant No. XDB35010202).

† Corresponding author. E-mail: [lubenquan@ntsc.ac.cn](mailto:lubenquan@ntsc.ac.cn)

‡ Corresponding author. E-mail: [changhong@ntsc.ac.cn](mailto:changhong@ntsc.ac.cn)



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

赵国栋 曹进 梁婷 冯敏 卢本全 常宏

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

Zhao Guo-Dong Cao Jin Liang Ting Feng Min Lu Ben-Quan Chang Hong

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 093101 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20240028

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240028>

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

Hg<sup>+</sup>离子 $5d^{10}6s\ ^2S_{1/2}\rightarrow 5d^96s^2\ ^2D_{5/2}$ 钟跃迁同位素位移和超精细结构的理论研究

Theoretical investigation on hyperfine structure and isotope shift for  $5d^{10}6s\ ^2S_{1/2}\rightarrow 5d^96s^2\ ^2D_{5/2}$  clock transition in Hg<sup>+</sup>

物理学报. 2019, 68(4): 043101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20182136>

Al<sup>+</sup>离子 $3s^2\ ^1S_0\rightarrow 3s3p\ ^3,1P_1$ 跃迁同位素偏移的理论研究

Theoretical study on the isotope shift factors for the  $3s^2\ ^1S_0\rightarrow 3s3p\ ^3,1P_1$  transitions in Al<sup>+</sup> ion

物理学报. 2018, 67(5): 053101 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172261>

6Li原子跃迁频率和超精细分裂的精密测量

Precise measurement of 6Li transition frequencies and hyperfine splitting

物理学报. 2018, 67(16): 163201 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181021>

钫原子磁偶极超精细结构常数及其同位素的磁偶极矩的理论计算

*Ab initio* calculation of hyperfine-structure constant *A* of Fr and evaluation of magnetic dipole moments of Fr isotopes

物理学报. 2019, 68(9): 093101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190113>

基于多组态含时Hartree-Fock方法研究电子关联对于H<sub>2</sub>分子强场电离的影响

Multiconfiguration time-dependent Hartree-Fock treatment of electron correlation in strong-field ionization of H<sub>2</sub> molecules

物理学报. 2018, 67(10): 103301 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172701>

铥原子收敛于 $4f^{13}(2F7/2o)6s(7/2, 1/2)4o$ 和 $4f^{13}(2F7/2o)6s(7/2, 1/2)3o$ 偶宇称里德伯系列能级的电子关联效应

Electron correlation effects in even Rydberg series converging to  $4f^{13}(2F7/2o)6s(7/2, 1/2)4o$  and  $4f^{13}(2F7/2o)6s(7/2, 1/2)3o$  of thulium atom

物理学报. 2018, 67(18): 183102 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180797>