arXiv:2302.07537v1 [physics.atom-ph] 15 Feb 2023

氢/氘原子的1S-3S连续波光谱学

PaulineYzombard[1,3], SimonThomas[1,2], LucileJulien[1], FrancoisBiraben[1], FrancoisNez[1]

[1] *Laboratoire Kastler Brossel, Sorbonne Universit,CNRS, ENS-PSL Research University, Collge de France, 4 place Jussieu, Case 74, 75252 Paris Cedex 05, France*

[2] *(current affiliation): Laboratoire de physique des lasers. Universit Sorbonne Paris Nord (USPN) - Institut Galile, 99, av. J.B. Clment - 93430 Villetaneuse, France and*[3] *corresponding author: pauline.yzombard@lkb.upmc.fr*

我们利用自制的205 nm连续波激光源，研究热原子束中氢原子的1S-3S双光子跃迁。本文介绍了实验方法，并在2017年测得氢原子的1S-3S跃迁频率，相对不确定度为9×10^{-13}。这一结果有助于解决"质子之谜"，但与其他一些实验的结果不一致。近期，我们改进了实验装置，旨在对氘进行同样的测量。借助改进后的探测系统，我们观测到一个展宽的荧光信号，它叠加在迄今研究的窄信号之上，其来源是真空室中原子的意外积聚。本文还讨论了由此可能产生的系统效应。

PACS 编号:

I. 引言

数十年来，我们巴黎的研究小组一直在原子束中研究氢原子的双光子1S-3S跃迁。这类研究面临的主要问题是如何产生激发所需的205 nm激光辐射。首先，我们使用LBO晶体和BBO晶体，在两个增强腔内对自制的820 nm钛宝石激光器连续进行两次倍频 [1], 。为避免BBO晶体迅速劣化，必须对第二个腔进行调制，从而形成准连续工作模式；在这种模式下，紫外强度由频率为30 kHz的 3 μs 脉冲构成 [2]。20世纪90年代，我们利用这一光源，通过比较频率比接近4:1 [2, 3]的1S-3S和2S-6 D跃迁，测定了1S兰姆位移。

在本实验中，激发发生在增强腔内，且两束反向传播的紫外光束与逸出式热原子束共线，因此减小了渡越时间展宽。尽管一阶多普勒效应被抵消，二阶多普勒效应仍是主要的系统效应，因为对于速度为 3 km/s 的原子，它会使信号移动约 150 kHz。

我们小组在 1991 [4], 提出了一种控制该效应的方法，关于该方法的更多细节将在第 IV 节介绍。该方法由我们小组成功实施 [5], ，这使我们得以在数年后利用频率梳首次测量1S-3S跃迁的光学频率 [6]。所得结果的相对不确定度为 4.5×10^{-12}，使这一频率成为氢原子光学频率中第二个被精确测定的频率。

首先是1S-2S双光子跃迁频率，加兴研究组长期以来一直在研究这一频率 [7][8]。由于2S态具有亚稳性，这一跃迁的线宽极窄，目前其频率的测量精度为 4.2×10^{-15}。将这一频率与另一个光学频率结合起来，可以确定里德伯常数和1S兰姆位移，这得益于兰姆位移近似遵循的 $1/n^3$ 标度定律，以及对偏离该定律的程度已进行精确计算这一事实[9]。

兰姆位移的主要贡献来自量子电动力学辐射修正，而这些修正目前已能够以极高精度计算。如果假设其计算结果是正确的，就可以通过测量兰姆位移推导出核尺寸效应。直到2010年，质子电荷半径的数值要么通过采用这种方法的原子氢光谱学获得，要么通过散射实验获得，其普遍接受的数值 [10]为 $r_{\mathrm{p}} = 0.8775(51)$ fm。然而，CREMA合作组在保罗·谢errer研究所（瑞士）对μ子氢中2S-2P间隔进行的测量，得到了一个精度高出十倍的半径数值 $r_{\mathrm{p}} = 0.84087(39)$ fm [11][12], ，但该数值与先前结果相差 7 σ 。在过去十年中，为解决这一差异，理论和实验领域均开展了大量研究工作；如今这一差异被称为"质子之谜" [13]。

最近，人们对原子氢中的单光子和双光子跃迁都进行了研究，并获得了新的频率测量结果：加兴的 2S-4P [14] 和 1S-3S [15] 、约克的 2S-2P [16], 2以及博尔德的 S-8D [17]。其中一些结果与从 μ子氢光谱中推导出的 r_{p} 值的测量结果一致，但另一些则不一致。

加兴研究组采用皮秒脉冲激发 1S-3S 双光子跃迁，而我们在巴黎研制了一种 205 nm 连续激光光源 [18] ，用于实现 1S-3S跃迁激发，并对跃迁频率 [19] 进行新的精密测量。采用

加兴和巴黎研究组采用两种不同技术研究同一跃迁，这很有意义，因为这或许能揭示导致谱线偏移的潜在系统误差。下文将介绍我们用于测量的实验装置以及近期对实验装置所做的改进。

II. 氢实验装置及所得结果

图1展示了截至2020年测量活动所使用实验装置的简化示意图。氢原子束由作用于H_2气体的兆赫解离器产生，产生率约为10^{18}个原子/秒，并被注入真空室。一组光阑确保原子束得到准直。通过搭建一台腔内205 nm法布里-珀罗（FP）增强腔，实现了双光子1S-3S激光激发。FP腔焦点处的激发概率最高；焦点上方安装了集光光学元件和光电倍增管（PM），用于记录3S→ 2P态衰变时发出的红光荧光光子。图3 a)展示了实验腔室更详细的示意图。

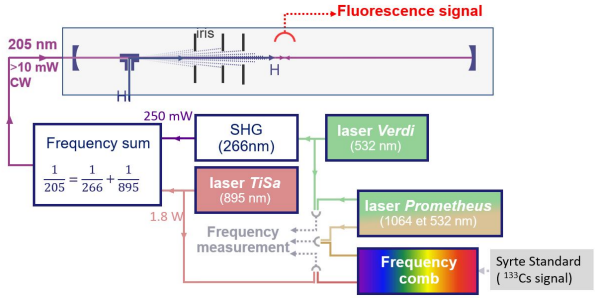


图1：实验装置的简化示意图。

为产生205纳米连续波激光，我们在β硼酸钡（BBO晶体）中进行和频，将Nd:YAG激光器在266纳米处的四次谐波辐射（由532纳米*Verdi V6 Coherent*激光器倍频产生）与自制的894纳米可调谐钛蓝宝石（Ti:Sa）激光器 [18]的辐射相加。通常可将12毫瓦的205纳米光注入法布里-珀罗腔。过去，激光器的频率稳定性由多个法布里-珀罗腔保证，这些腔均参考锁定在 ^{85}Rb [20, 21] 双光子超精细跃迁上的778纳米激光二极管的辐射。S. Thomas在博士论文 [22], 期间对激光系统的锁定系统进行了改进，使激光频率能够在更宽的范围内扫描；相关内容将在下文第三节讨论。为了测量不同的激光频率，我们使用一台*Menlo Systems*飞秒（fs）频率梳，其780纳米输出光经光子晶体光纤（PCF）展宽光谱后，将各台激光器分别与频率梳的一根梳齿拍频，并计数由此产生的射频信号。尽管使用了PCF，飞秒频率梳信号在532纳米附近的展宽仍相当有限，导致VERDI与飞秒频率梳之间的拍频信号太弱，无法可靠地提取其频率。因此，自2016年以来，我们一直使用一台中间Nd:YAG激光器（*Prometheus*，*Innolight*），同时提供1064纳米和532纳米输出。532纳米光束与VERDI激光器拍频，而1064纳米输出则与飞秒频率梳进行比较 [23]。最后，频率梳通过光纤链路 [20]参考至LNE-SYRTE铯喷泉基准频率标准。

III. 近期改进

过去几年中，我们对实验装置进行了两项主要改进。首先，为了改善统计数据，我们致力于降低背景信号，并提高 205 nm 法布里-珀罗锁定系统的整体稳定性。

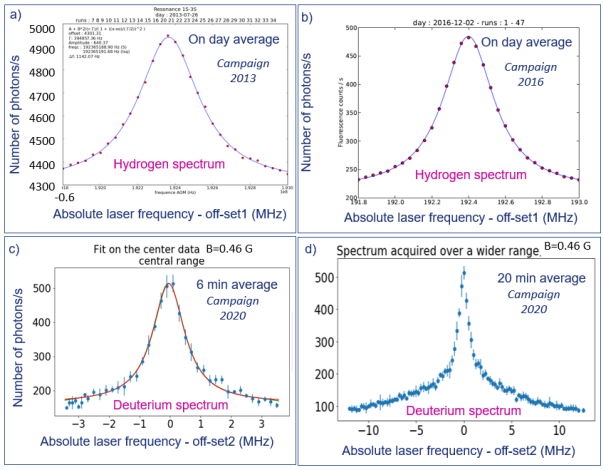


图 2：氢*a.) and b).* 和氘 *c.) and d).* 实验期间典型的 1S-3S 跃迁荧光信号。多项技术改进降低了背景信号，并扩大了 d) 中获得的激光扫描频率范围。a) S. Galtier 博士论文期间采集的数据 [24], b) H. Fleurbaey 博士论文期间采集的数据 [23], c) 和 d) S. Thomas 博士论文期间采集的数据 [22]

图 2 展示了最近三轮氢和氘原子 1S-3S跃迁测量中的典型信号。在 a) 中可以看到，背景信号约为 4300 次/秒。我们更换了光子计数电子模块，同时进一步校准了光子计数的触发阈值。我们还更好地隔离了杂散光子：除了让红光光子仅通过光电倍增管的干涉滤光片外，我们最近还在集体光学元件前加装了一面二向色镜，以阻止任何紫外线光子

穿透（如图 3 a) 和 b) 所示）。事实上，我们观察到 205 nm 的紫外线会在玻璃中诱发红色荧光，如图 3 c) 所示。这些探测装置的改进大幅降低了背景计数信号，使其降至约 200 次/秒，如图 2 b)、c) 和 d) 所示。

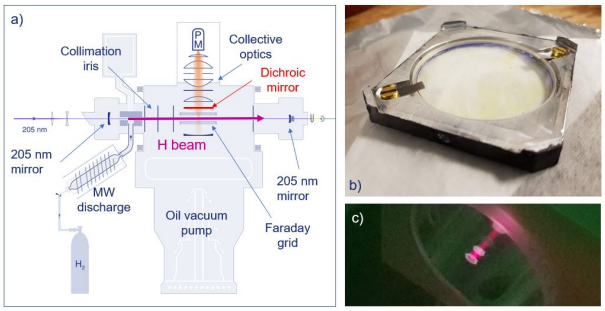


图3：a）实验装置概览。最近新增了一面二向色镜，用于阻挡玻璃中由紫外线荧光产生的红色荧光光子；从而显著降低背景信号。b）该二向色镜可阻挡紫外线 205 nm 光子，并允许来自 $n = 3 \to n = 2$ 退激发的可见光子透射至光电倍增管。c）由紫外线光子（266纳米光束）在玻璃中激发荧光产生的典型荧光信号。

第二项主要改进涉及激光系统。我们致力于提高 205 nm 激光器的频率稳定性和可调谐性。2018年以前，通常的激光频率扫描范围是在共振频率附近约 1.5 兆赫（由于激发通过双光子吸收实现，这意味着对原子跃迁进行总宽度为 $\pm$ 3 兆赫的扫描）。这相当于约为该跃迁自然线宽5倍的可调谐范围。完成一次完整测量约需6分钟，其中包括对该跃迁进行10次扫描。每次扫描由31个数据点组成。扫描范围可扩展至5兆赫的扫描宽度，对应约10个自然线宽；对每次包含51个数据点的10次扫描，这约需11分钟 [23]。激光器的新锁定系统允许进行最宽达30兆赫的扫描，对应约60个自然线宽，记录10次扫描需20分钟。技术细节见 [22]。

简而言之，得益于为激光器设计了新的锁定机制，我们得以实现更宽的扫描频率范围。过去，我们通过调节 984 nm 频率，利用双程声光调制器为 205 nm 光束施加所需的频移，同时保持 266纳米 光束的频率不变。该方案的局限在于，声光调制器偏离其谐振电路调谐时，效率会迅速下降，因此扫描范围最多约为 4–5 兆赫。新的锁定方案转而调谐 532 nm 激光器，该激光器通过倍频产生 266纳米 辐射。与调谐 532 nm 激光器相比，这使 205 nm 光束的有效扫描范围扩大了一倍。

用于产生 266纳米 光的绿光激光器是 VERDI V-6 Coherent，它能够在较宽范围内轻松调谐，且强度不会明显下降。为稳定其频率，我们采用 Pound-Drever-Hall 锁定方案 [25] 将其锁定到辅助法布里-珀罗腔（FPA）。我们施加误差信号来改变 FPA 腔长，从而改变其自由光谱范围（FSR），并使 VERDI 激光器锁定的共振峰移动。因此，532 nm 激光器的频率会跟随共振峰相应偏移。这样一来，205 nm 光束的扫描范围可扩展至 30 兆赫，且未观察到强度明显下降或不稳定。这导致了一种新的系统效应，我们将在下一节进一步讨论。

IV. 对一种可能新发现的系统效应进行分析

这里展示的是2020年10月至12月氘原子 1S-3S 实验期间采集的数据，该实验记录于 S. Thomas 的博士论文中 [22]。

A. 主要系统效应：二阶多普勒效应

影响我们数据的主要系统效应已在 [19]中得到充分表征并详细说明。本文不可能在此逐一回顾这些效应。本节旨在介绍我们近期发现的一种新系统效应的初步研究结果；这一发现得益于信号检测、激光稳定性和调谐范围方面的实验改进。这里我们仅简要概述跃迁谱线的理论建模，以及原子束的速度分布；这对于估算系统效应至关重要。事实上，我们实验中的主要系统效应是二阶多普勒效应（SOD），对于氘原子，其量级约为 60 kHz，并且取决于室温原子束的速度分布。为确定这一分布，我们采用了 [4]中详述的方法。该方法是在相互作用区域施加横向磁场，使得以速度 $\vec{v}$ 运动的原子 $\vec{E} = \vec{v} \times \vec{B}$会经历一个运动电场。原子所经历的运动斯塔克位移与其速度的平方成正比，与SOD位移类似。对于特定的磁场强度，在能级交叉附近，该位移可抵消束流中所有原子速度对应的二阶多普勒效应。实际上，考虑运动斯塔克效应和塞曼效应后，SOD效应对跃迁的位移仅会部分减小，因为只有部分超精细 m_F 能级参与其中。因此，这种方法可用于研究束流中的原子速度分布：通过拟合数据，得到依赖于所施加磁场的理论线型

并将速度分布变量作为拟合参数。为提取速度分布的最佳参数，我们记录了未施加磁场（残余磁场为 0.04 mT）以及不同磁场强度下的跃迁信号。为避免可能存在的杂散电场造成偏差，我们还反转了磁场方向。有关该流程的更多详情，请参见 [19]。

我们的速度分布模型：

$$f(v,\sigma\, v_0) \sim v^3 \exp\left(-\frac{v^2}{2\sigma^2}\right) P\left(\frac{v}{\sigma}\right) \exp\left(-\frac{v_0}{v}\right) \quad (1)$$

基于逸出束的麦克斯韦型分布（$\sigma = \sqrt{\frac{kT}{M}}$、 T 温度、 M 原子质量）[19]，并包含修正项 $P\left(\frac{v}{\sigma}\right)$，该修正项描述了喷嘴内相互作用导致的慢原子损耗 [26]。模型还乘以一个指数衰减项，用于描述逸出束中慢原子可能发生的额外损耗。该原子速度分布可由两个参数 σ 和 v_0 [21]完全建模。数据分析基于 [6] 所述的理论线型，其中包含二阶多普勒效应以及运动斯塔克位移和塞曼位移。因此，我们可以生成完全推导出的理论线型，该线型取决于速度分布参数 σ 和 v_0，从而通过 χ^2 最小化分析提取这些参数。最后，我们通过将理论谱线与洛伦兹函数卷积，考虑展宽效应，主要包括渡越时间展宽和压力展宽；洛伦兹函数的宽度 Γ 是数值拟合中的自由参数。

这一计算得到的理论线型可用于拟合数据，并提取零磁场下的共振频率 ν_0，如图 4 a) 所示。对于参数为 (σ, v_0) 的原子速度分布，得到的理论线型 $\mathcal{F}^{\sigma,\ v_0}_{\ th}$ 经半高全宽（FWHM）为 Γ 的洛伦兹曲线（$\mathcal{L}$or）卷积后展宽，因此拟合模型为：

$$\mathcal{F}_{\mathrm{fit},1}(\nu_0,\Gamma) = \mathcal{F}^{\sigma,v_0}_{\mathrm{th}}(\nu_0) \otimes \mathcal{L}or(\Gamma) \quad (2)$$

值得注意的是，这一计算得到的谱线轮廓主要因 2^{nd} 多普勒阶效应而呈现不对称，因此，确定光束的速度分布对于正确分析我们的数据至关重要。

B. 对荧光信号中新发现的贡献

得益于第 III 节所述的激光稳定性和可调谐性的近期改善，我们得以针对不同的磁场值，在更宽的频率范围内记录了几组数据。每组数据由 10 次扫描组成，每次扫描包含 72 个在不同激光频率下记录的数据点。每组数据的采集时间约为 20 分钟。为提取共振频率 ν_0，我们随后使用 $\mathcal{F}_{\mathrm{fit},1}$进行 Python 拟合。图 4 展示了在 $B = 0.46$ G（残余地球磁场）下记录的典型谱线，其激光扫描频率范围为$[-12.5\,, +12.5]$ 兆赫。在图 4(a) 中，我们仅将拟合模型公式 (2) 应用于中心数据，将拟合数据限制在 $[-5\,, +5]$ 兆赫范围内，以便与过去测量活动中通常采用的扫描范围进行比较。拟合结果显示出良好的一致性：拟合结果与数据相比的相关系数为 $R^2 = 0.96$，单次扫描获得的拟合不确定度约为 10 千赫。经过 1 天的测量后，该不确定度平均可降至几千赫。在图 4(b) 中，我们给出了对全部数据进行拟合的结果，仍然采用公式 (2) 中相同的理论线型。在这种情况下，可以看出理论线型无法跟随数据的“尾部”：氢原子束产生的荧光信号叠加在一个“基底”荧光信号之上，而第一个模型未将其考虑在内。

我们通过改变注入法布里-珀罗腔的激光强度、真空室内的压力以及原子束中的氢通量，研究了这一基座信号的来源。结果表明，该信号随激光强度的平方变化，并在原子压强降低时减弱。我们将这一基座信号归因于残余气体氢原子的 1S-3S跃迁荧光信号；由于氢原子难以抽除，它们会积聚在真空室中。真空室中的氢原子可以从任意方向穿过激光束，与激光相互作用的时间比原子束中的氢原子更短；由于有限渡越时间，这会使跃迁谱线相较于 H形光束产生的荧光展宽（有关有限渡越时间导致展宽的更多详情，见 [22, 23] ）。为了将残余气体氢原子对总荧光信号的贡献考虑在内，我们修改了拟合模型，在之前的 $\mathcal{F}_{\mathrm{fit},\ 1}$ 基础上加入一条额外的洛伦兹曲线来拟合基座信号，并将中心位置（ν_p）和半高全宽（Γ_p）也作为自由拟合参数：

$$\mathcal{F}_{\mathrm{fit},2} = \mathcal{F}^{\sigma,v_0}_{\mathrm{th}}(\nu_0) \otimes \mathcal{L}or(\Gamma) + \mathcal{L}or(\nu_p,\Gamma_p) \quad (3)$$

新拟合模型$\mathcal{F}_{\mathrm{fit},\ 2}$ 的结果显示于图5中，其中展示了总拟合曲线（紫色曲线）的两个组成部分：来自基座荧光信号的部分（橙色虚线）以及来自氘原子束的部分（粉色虚线）。从绘制的残差可以看出，该模型对尾部数据的拟合更好，且中心频率的不确定度 ν_0 略有降低。

我们还尝试用一条展宽的理论曲线来拟合基座信号 $\mathcal{F}^{\sigma_p,}_{v_{0,\ p}\ \mathrm{th}}(\nu_p) \otimes \mathcal{L}or(\Gamma)$，由此得到第三种拟合模型$\mathcal{F}_{\mathrm{fit},\ 3}$：

$$\mathcal{F}_{\mathrm{fit},3} = \mathcal{F}^{\sigma,v_0}_{\mathrm{th}}(\nu_0) \otimes \mathcal{L}or(\Gamma) + \mathcal{F}^{\sigma_p,v_{0,p}}_{\mathrm{th}}(\nu_p) \otimes \mathcal{L}or(\Gamma_p) \quad (4)$$

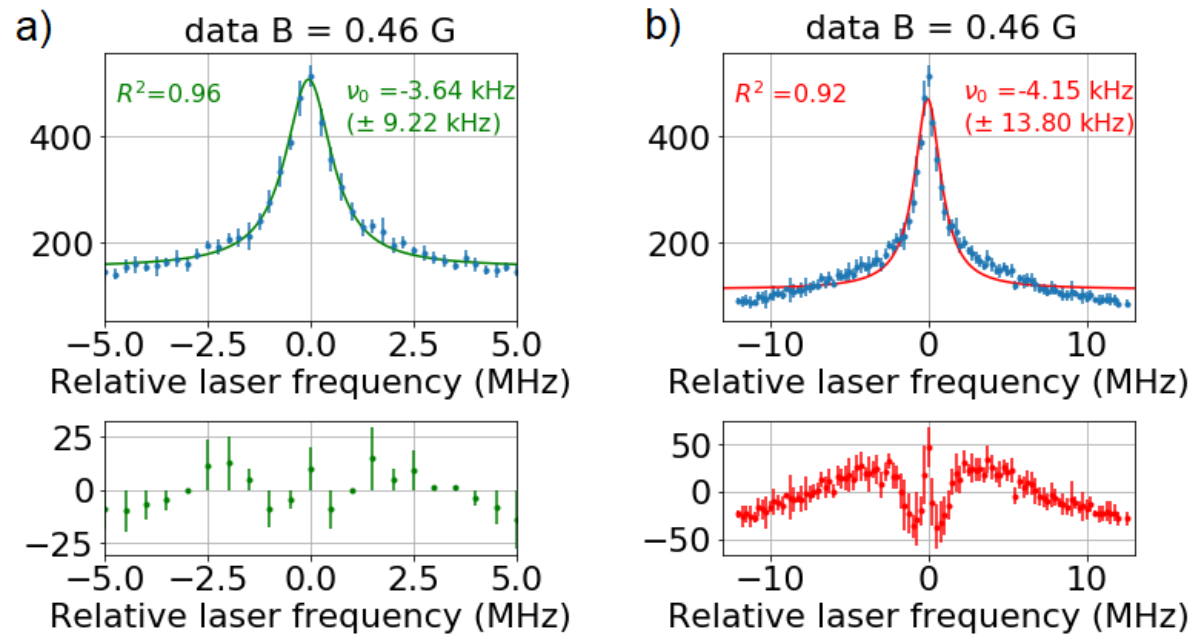


图 4：在 B $= 0.46$ G 条件下记录的典型氘原子荧光 1S-3S跃迁信号。a) 平均计数率（对 1 次运行中的 $= 10$ 次扫描取平均）以及使用式（2）的拟合模型对 $[-5, +5]$ 兆赫范围内的中心数据进行拟合所得到的最佳拟合结果（绿色曲线）。b) 相同数据在整个 $[-12.5, +12.5]$ 兆赫范围内的图示，以及使用式（2）的拟合模型对整个数据范围进行拟合所得到的最佳拟合结果（红色曲线）。图底部绘出了数据与最佳拟合结果对应的残差。

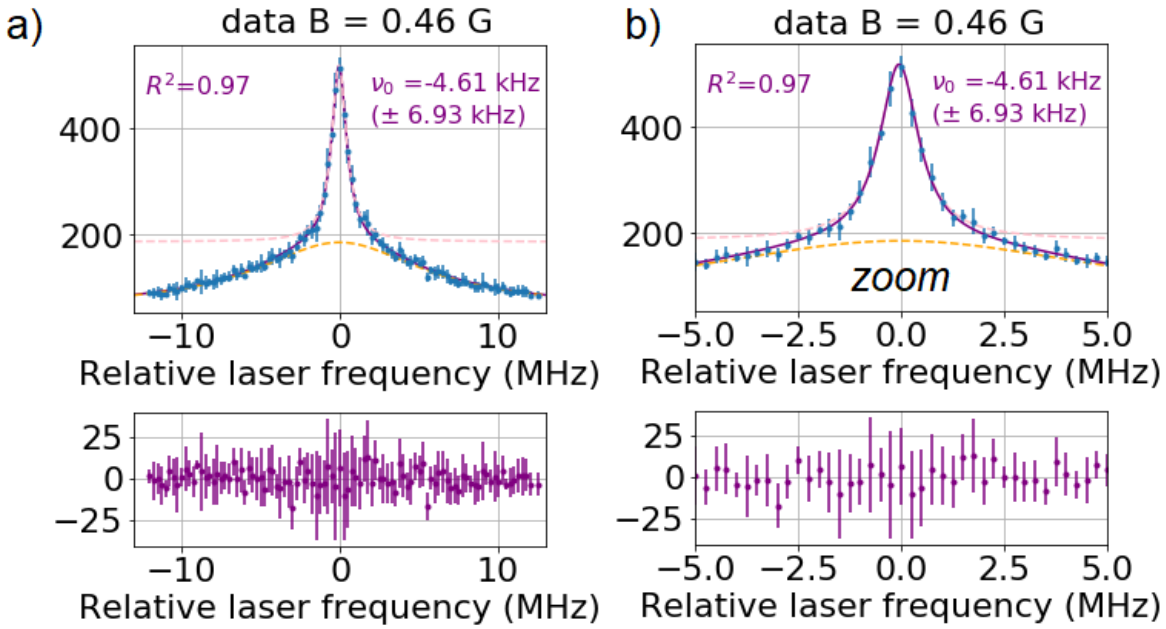


图 5：与图 4 相同的氘原子荧光 1S-3S跃迁数据，在 B $= 0.46$ G 条件下记录。a) 平均计数率（对 1 次运行中的 $= 10$ 次扫描取平均）以及使用式（3）的拟合模型对整个 $[-12.5, +12.5]$ 兆赫数据范围进行拟合所得到的最佳拟合结果（紫色线）。拟合得到的基线信号贡献以橙色虚线绘出，而粉色虚线表示原子束的荧光信号贡献。b) 对 a) 中拟合结果的 $[-5, +5]$ 兆赫范围进行放大。与式（2）的模型相比，尾部似乎拟合得更好。图底部绘出了数据与最佳拟合结果对应的残差。

拟合$\mathcal{F}_{\mathrm{fit},\ 3}$ 得到的结果给出了相似的参数 与使用 $\mathcal{F}_{\mathrm{fit}}$ 得到的结果相比 $_{,2}$. 这一结果

这是意料之中的，因为跃迁的自然线宽（由 $\mathcal{F}_{\rm th}$ 建模）为 1兆赫，而基座信号的宽度约为 8-10兆赫。两条曲线的卷积主要产生一条展宽的洛伦兹曲线。荧光信号的不对称性似乎被较短的渡越时间展宽所抹平；在拟合结果的不确定度范围内，我们无法区分这两个模型。

C. 一个显著的新系统效应?

一旦发现基座信号，首要问题便是估算这一寄生信号对所拟合的 1S-3S跃迁 ν_0 中心频率可能产生的最大贡献。事实上，残余气体中氢原子的速度分布很可能不同于溢流原子束中的速度分布，因为前者在一阶近似下可建模为热气体。在这种热残余气体中，原子的运动轨迹受到腔室几何形状的限制，途中还会受到准直光阑和集体光学元件的影响。总体而言，对这一基座荧光有贡献的原子，其速度分布没有理由与溢流、准直原子束中的速度分布相似，从而导致不同的 2^{nd} 阶多普勒效应，进而产生不同的谱线轮廓不对称性。因此，当所关注的信号叠加在一条更宽的不对称曲线上时，这一效应可能会使表观中心频率 ν_0发生偏移。实际上，在我们的数据中，这一效应相当有限：在零场下，使用不同拟合模型并分别应用于中心数据（图4 a））或整个数据范围（图4 b）和图5）所提取的 1S-3S跃迁中心的拟合 ν_0 值彼此一致，差异均在当前不确定度范围内。事实上，来自残余气体中氢原子的荧光信号展宽得非常明显，因此在数据不确定度范围内，它在原子束中激发原子产生的荧光峰位置处看起来是平坦的。激光频率保持不变时，强度信号的波动主要源于增强型法布里-珀罗腔锁定的快速不稳定性，以及注入的 205 nm激光束强度的快速不稳定性。在氘的 2020年测量活动期间，对于每个磁场值，我们仅记录了少数几次具有扩展频率扫描范围的有效测量。为了对这一基座荧光信号的定量影响得出结论，我们需要在更宽的激光频率范围内积累更多测量数据。这项初步研究只能说明：如果存在任何系统效应，那么在目前的不确定度范围内尚无法探测到。除积累更多统计数据外，还需要降低数据在短时间尺度和长时间尺度上的强度波动。

V. 结论与展望

本文首先讨论了我们为开展氢原子和氘原子的束内双光子1S-3S连续波光谱学，对实验装置所做的近期改进。得益于这些升级，我们随后介绍了一种近期发现的潜在新系统效应：氢原子束中激发原子产生的荧光峰下方存在基座荧光信号。2020年测量活动期间对氘开展的初步研究，倾向于证实我们对这一基座信号来源的假设：它来自未能足够迅速地被抽走、因而逐渐积累的氘残余气体原子；这些原子在穿过光束时，会在短暂的相互作用时间内被205 nm激光束激发。这段短暂的激发过程会使1S-3S谱线展宽，并形成线宽通常为8-10 MHz的宽基座信号。更新后的理论模型（式（3）和（4））能够提取中心频率ν_0 ，且所有拟合参数的不确定度都略低于采用单一理论谱线模型（式（2））时的结果。不过，不同拟合模型所得结果在不确定度范围内一致。因此，尽管我们需要对这一效应进行更系统、审慎的研究，并已计划在下一次测量活动中开展，目前可以认为该效应并不显著，很可能无法解释测得的1S-3S频率 [19][15]之间的差异。目前我们正在完成实验装置的若干重大升级，主要聚焦于两方面：激光系统和真空室。关于激光器，我们决定将用于产生266纳米的泵浦激光器（VERDI Coherent激光器）更换为一台新的Y10 Azurlight光纤放大532 nm连续激光器，其标称带宽约为1 kHz。我们改进了激光锁定系统 [22] ，以便将所有激光器锁定到频率梳上；频率梳本身则稳定在LNE-SYRTE实验室 [20]的10兆赫兹参考信号上。这应能显著减小由激光带宽导致的谱线展宽。关于真空室，我们决定弃用旧的油泵真空系统，换成全新的H形光束和真空室，并使用涡轮泵和涡旋泵抽气。我们进行了机械设计研究，以设计出能尽可能减小泵的振动对增强法布里-珀罗腔紫外镜影响的腔室（从而减小紫外光束的快速波动，时间尺度为10 ms-1 s）。我们还将安装差分抽气级，尝试通过注入少量氧气通量来翻新镀膜表面，从而提高紫外205 nm镜的耐久性；相关做法见 [27] 及其中的参考文献。这也有助于增强腔的长期稳定（时间尺度约为30 min-1 h）。总之，这些改进将使我们能够尽快重新测量氢和氘的1S-3S跃迁频率，并仔细检查和研究系统效应；这将推动我们实现下一个目标：在194 纳米处开展1S-4S 激光光谱学。迄今尚未观测到这一过程，而通过少量升级，我们现有的激光系统即可轻松实现。

对氢和氘开展测量，并仔细检查和研究系统效应；这将推动我们实现下一个目标：在194 纳米处开展1S-4S 激光光谱学。迄今尚未观测到这一过程，而通过少量升级，我们现有的激光系统即可轻松实现。本研究获得美国商务部、美国国家标准与技术研究院（NIST）资助，资助编号为60NANB18D281。

VI. 作者贡献声明

所有作者对本文的贡献均等同 r.

VII. 数据可用性声明

本研究期间分析的数据集目前尚未公开，因为这些数据属于仍在分析中的2020年整体数据采集活动的一部分；但经合理请求，可向通讯作者获取。

VIII. 参考文献

[1] S. Bourzeix、M.D. Plimmer、F. Nez、L. Julien 和 F. Biraben，《Optics Comm.》**99**，89（1993年）。[2] S. Bourzeix、B. de Beauvoir、F. Nez、M.D. Plimmer、F. de Tomasi、L. Julien、F. Biraben 和 D.N. Stacey，《物理评论快报》**76**，384（1996年）。[3] S. Bourzeix、B. de Beauvoir、F. Nez、F. de Tomasi、L. Julien 和 F. Biraben，《Optics Comm.》**133**，239（1997年）。[4] F. Biraben、L. Julien、J. Plon 和 F. Nez，《Europhys. Lett.》**15**，831（1991年）。[5] G. Hagel、R. Battesti、F. Nez、L. Julien 和 F. Biraben，《物理评论快报》**89**，203001（2002年）。[6] O. Arnoult、F. Nez、L. Julien 和 F. Biraben，《Eur. Phys. J. D》243页（2010年）。[7] M. Fischer、N. Kolachevsky、M. Zimmermann、R. Holzwarth、Th. Udem、T.W. Hnsch、M. Abgrall、J. Grnert、I. Maksimovic、S. Bize、H. Marion、F. Pereira Dos Santos、P. Lemonde、G. Santarelli、P. Laurent、A. Clairon、C. Salomon、M. Haas、U.D. Jentschura 和 C.H. Keitel，《物理评论快报》**92**，230802（2004年）。[8] C.G. Parthey、A. Matveev、J. Alnis、B. Bernhardt、A. Beyer、R. Holzwarth、A. Maistrou、R. Pohl、K. Pre- dehl、Th. Udem、T. Wilken、N. Kolachevsky、M. Abgrall、D. Rovera、C. Salomon、P. Laurent 和 T.W. Hnsch，《物理评论快报》**107**，203001（2011年）。[9] A. Czarnecki、U. D. Jentschura 和 K. Pachucki，《物理评论快报》**95**，180404（2005年）。[10] P.J. Mohr、B.N. Taylor 和 D.B. Newell，《Rev. Mod. Phys.》**84**，1527（2012年）。[11] R. Pohl *et al.*，《Nature》**466**，213（2010年）。[12] A. Antognini *et al.*，《Science》**339**，417（2013年）。[13] J.-Ph. Karr 和 D. Marchand，《Nature》**575 (7781)**，61（2019年）。[14] A. Beyer、L. Maisenbacher、A. Matveev、R. Pohl、K. Khabarova、A. Grinin、T. Lamour、D.C. Yost、T.W. Hnsch、N. Kolachevsky 和 Th. Udem，《Science》**358 (6359)**，79（2017年）。[15] A. Grinin、A. Matveev、D.C. Yost、L. Maisenbacher、V. Wirthl、R. Pohl、T.W. Hnsch 和 Th. Udem，《Science》**370 (6520)**，1061（2020年）。[16] N. Bezginov、T. Valdez、M. Horbatsch、A. Marsman、A.C. Vutha 和 E.A. Hessels，《Science》**365**，1007（2019年）。[17] A.D. Brandt、S.F. Cooper、C. Rasor、Z. Burkley、A. Matveev 和 D.C. Yost，《物理评论快报》**128**，023001（2022年）。[18] S. Galtier、F. Nez、L. Julien 和 F. Biraben，《Optics 《通讯》**324 (2014)**。[19] H. Fleurbaey、S. Galtier、S. Thomas、M. Bonnaud、L. Julien、F. Biraben、F. Nez、M. Abgrall 和 J. Guna，《物理评论快报》**120 (2018)**。[20] D. Touahri、O. Acef、A. Clairon、J.-J. Zondy、R. Felder、L. Hilico、B. de Beauvoir、F. Biraben 和 F. Nez，《光学通讯》**133 (1997)**，网址：https://doi.org/10.1016/S0030-4018(96)00471-3。[21]S. Galtier、H. Fleurbaey、S. Thomas、L. Julien、F. Biraben 和 F. Nez，《物理与化学参考数据杂志》**44**，031201 (2015)，https://doi.org/10.1063/1.4922255，网址：https://doi.org/10.1063/1.4922255。[22]S. Thomas，博士论文，索邦大学（巴黎）（2021），网址：https://theses.hal.science/tel-03828489。[23]H. Fleurbaey，博士论文，索邦大学（巴黎）（2017），网址：https://theses.hal.science/ tel-01633631。[24]S. Galtier，博士论文，索邦大学（巴黎）（2014），网址：https://hal.archives-ouvertes.fr/ tel-01080669。[25] R. W. P. Drever、J. L. Hall、F. V. Kowalski、J. Hough、G. M. Ford、A. J. Munley 和 H. Ward，《应用物理B》**31(2) (1983)**。[26] D. R. Olander、R. H. Jones 和 W. J. Siekhaus，《应用物理杂志》**41 (4388) (1970)**。[27] Z. Burkley、L. de Sousa Borges、B. Ohayon、A. Golovizin、J. Zhang 和 P. Crivelli，《光学快报》**29**，27450 (2021)，网址：https://opg.optica.org/oe/abstract.cfm?URI= oe-29-17-27450。