原子氢中 2S态-nP 跃迁的精密光谱学

Lothar Maisenbacher



慕尼黑 2020年

原子氢中 2S态-nP 跃迁的精密光谱学

Lothar Maisenbacher

提交于慕尼黑路德维希-马克西米利安大学物理学院的博士论文

由 Lothar Maisenbacher 提交

慕尼黑，2020年12月10日

关于此版本的说明

这是最初于2020年12月提交的学位论文的修订版。小幅修订包括在准备后续出版物期间发现的修正。本文件末尾列出了变更内容。原始学位论文可通过慕尼黑路德维希-马克西米利安大学图书馆获取，doi:10.5282/edoc.29054。

修订：2025年12月

第一评审人：Theodor W. Hänsch 教授、
博士；第二评审人：Randolf Pohl 教授、
博士；口试日期：2021年1月27日

摘要

原子氢的精密光谱学是检验束缚系统量子电动力学（QED）的重要方法，而量子电动力学是标准模型的基石之一。最简单的检验方法，是将测得的跃迁频率与 QED 的预测值进行比较；对于氢原子，QED 预测值可以极高精度地计算出来。不过，这些计算需要以某些物理常数作为输入参数，其中包括里德伯常数 R_∞ 和质子电荷半径 r_p。目前，这两个参数在很大程度上也都是通过氢光谱学测定的。因此，要检验 QED，就必须测定至少三种不同跃迁的跃迁频率。同样，比较通过测量不同跃迁而确定的 R_∞ 和 r_p 的数值，也是一种 QED 检验。

为此，本研究对光学 2S-nP 跃迁进行了激光光谱学研究。由于这些跃迁属于单光子跃迁，其所受系统效应与双光子跃迁不同，而大多数其他氢原子光谱测量都基于双光子跃迁。要为检验量子电动力学作出贡献，必须以约为一比 10^{12} 的相对不确定度测定其跃迁频率，换算为绝对单位约为 1 千赫兹。这一精度比 2S-nP 跃迁相对较大的自然线宽小约 10000 倍，因此，成功测量既需要极高的信噪比，也需要对所观测共振的线形有深入的理论理解。

在经光学激发至亚稳态2S态的氢原子低温束流中，对 2S-nP 跃迁进行了研究。原子束与两束方向相反的光谱学激光束垂直交叉，这两束激光进一步将原子激发至 nP 态。随后发生的快速自发衰变所产生的荧光用作测量信号。利用两束方向相反的光束进行激发，会产生两个大小相同、符号相反的多普勒频移，因此彼此抵消。通过按原子速度分辨进行探测，可以确定是否存在残余多普勒频移；然而，在测量不确定度范围内，下面介绍的两项测量均排除了这种可能。

在一项初步实验中，研究了 2S-4P跃迁。相邻原子共振之间的量子干涉导致谱线线形出现细微变形；由于相对于线宽具有极高的分辨率，这些变形显得十分显著。由这些变形引起的谱线位移可以直接观测到，并通过基于微扰理论的谱线线形模型予以消除。因此，跃迁频率的测量相对不确定度可达到 4 至 10^{12} 。结合精确测得的 1S-2S-

跃迁频率，这使得当时能够通过对原子氢进行光谱学测量，以最高精度确定 R_∞ 和r_p 。此外，测量结果与通过对μ子氢进行光谱学测量而得出的 r_p 值高度吻合；该值的精度高得多，且与此前对（电子）氢的测量结果显著不同，因此曾引发了对量子电动力学（QED）有效性的质疑。此后，其他实验也证实了μ子氢的 r_p 值。本文附录将讨论 2S-4P 测量。

尽管信噪比很高，2S-4P 测量的精度仍受测量信号计数率的限制。为了进一步提高精度，需要采用线宽更窄的跃迁，并改善实验信号。因此，我们开始研究 2S-6P 跃迁，其自然线宽仅为原来的三分之一。我们改造了原子束装置，从而相应降低了实验观测到的线宽，并使原子束中的慢原子通量提高了近一个数量级。再加上重新设计探测器，与 2S-4P 测量相比，信号最高提升了 16 倍，为提高精度创造了条件。为了实现这一精度，还需要进一步改进多普勒频移抑制。为此，我们开发了一种光纤准直器，可在新的 410nm 跃迁波长下，为光谱学激光束提供出色的光束质量。

这使得能够以 430赫兹的统计不确定度测量 2S-6P 跃迁频率，比 2S-4P 测量低五倍。这相当于将多普勒频移抑制了六个数量级。在这种精度下，原子在由相向传播的激光束产生的光学晶格上发生衍射所导致的光力频移变得显著。这种光力频移首次在 2S-nP 跃迁中被观测到，并且能够通过为此开发的模型得到良好描述。除已知得非常精确的反冲频移外，对所有其他系统效应的大小估计均小于 500 赫兹。本文撰写时，盲数据分析仍在进行，因此尚无法给出跃迁频率。不过，初步分析表明，与 2S-4P 测量相比， R_∞ 和 r_p 的测定精度预计将提高五倍；与目前对原子氢最精确的测定相比，预计将提高两倍。因此， r_p 测定值的不确定度将处于缪氢测定值不确定度的五倍以内。2S-6P 测量是本文的核心内容。

摘要

原子氢的精密光谱学是检验束缚态量子电动力学（QED）的重要手段，而后者是标准模型的基本组成部分之一。在最简单的情况下，此类检验包括将测得的跃迁频率与其量子电动力学预言进行比较；对于氢原子而言，该预言可以以极高精度计算。然而，这些计算需要以物理常数的形式输入一些参数，例如里德伯常数 R_∞ 和质子电荷半径 r_p，而这两个量目前在很大程度上正是通过氢光谱学测定的。因此，至少需要测量三种不同跃迁的频率，才能检验量子电动力学。等价地，将通过不同跃迁的测量确定的 R_∞ 和 r_p 的数值进行比较，也构成了对量子电动力学的检验。

为此，本研究对光学2S-nP跃迁进行了激光光谱学研究。由于这些跃迁属于单光子跃迁，因此它们受到的系统效应不同于氢的大多数其他光谱测量所基于的双光子跃迁。为了有助于检验QED，必须将其跃迁频率的相对不确定度确定在 10^{12},分之一的量级，即绝对值约为1千赫兹。这又比2S-nP跃迁相对较宽的自然线宽小约10 000倍；要实现成功测量，既需要极高的实验信噪比，也需要对观测到的共振线型有深入的理论理解。

2S-nP跃迁是在低温氢原子束上进行探测的，氢原子通过光学激发进入亚稳态2S能级。原子束与反向传播的光谱激光束以直角相交，后者进一步将原子激发至nP能级。随后快速自发衰变产生的荧光作为实验信号。使用两束反向传播光束进行激发会产生大小相等、符号相反的两个多普勒频移，因而彼此抵消。采用速度分辨探测来确定任何残余多普勒频移；对于下文讨论的两次测量，在测量不确定度范围内均可排除残余多普勒频移。

在第一项实验中，研究了2S-4P跃迁。相邻原子共振的量子干涉造成了细微的线型畸变；由于分辨率相对于线宽极高，这些畸变的影响十分显著。畸变导致的谱线位移被直接观测到，并可通过采用基于微扰计算的线型模型予以消除。由此，跃迁频率的相对不确定度确定为 10^{12}分之4。结合测量精度极高的1S-2S跃迁频率，这使得当时得以利用原子氢对 R_∞ 和 r_p 作出最精确的测定。此外，从μ子氢光谱学中提取出的 r_p 数值精度高得多，与之也吻合良好；此前这一数值与来自（电子）氢的既有数据存在显著分歧，引发了人们对量子电动力学有效性的担忧

。此后，其他实验也证实了这一结果。本学位论文附录中讨论了2S-4P测量。

尽管2S-4P测量具有较高的信噪比，但仍受计数统计限制。为提高精度，需要采用线宽更窄、实验信号更强的跃迁。因此，我们开始研究2S-6P跃迁，其自然线宽窄了三倍。我们升级了原子束装置，使实验观测到的线宽相应减小，同时原子束低速尾部的原子通量增加了近一个数量级。再加上对探测器的重新设计，其信号最高可达到2S-4P测量的16倍，为提高精度创造了条件。我们还重新设计了多普勒频移抑制系统，以满足这一精度要求，其中包括专门研制的光纤准直器，可在新的410纳米跃迁波长下提供高质量的光谱学光束。

这使得我们能够测量2S-6P跃迁频率，其统计不确定度为430赫兹，比2S-4P测量低五倍，相当于将多普勒频移抑制了六个数量级。在这一精度水平下，反向传播的光谱学光束形成的光栅对原子产生衍射所导致的光力频移变得不可忽略。我们首次直接观测到2S-nP跃迁中的这种光力频移，并发现用于描述它的模型能够很好地解释这一现象。除已知得非常精确的反冲频移外，其他所有系统效应的大小估计均低于500赫兹。撰写本文时，盲法数据分析仍在进行，因此目前还无法给出跃迁频率。不过，初步分析表明，与2S-4P测量相比， R_∞ 和 r_p 的测定精度提高了五倍；与目前原子氢最精确的测定结果相比，则提高了两倍。这使得 r_p 测定值的不确定度与μ子值的不确定度相差不超过五倍。本文正文将讨论2S-6P测量。

目录

1 引言 1

2 理论 11

2.1 原子氢的能级.11 2.2 2S-nP跃迁.12 2.2.1 一般性质.12 2.2.2 2S-6P跃迁.14 2.2.3 单光子吸收的共振条件.16 2.2.4 一阶多普勒频移的抑制.18 2.2.5 多普勒展宽.21 2.2.6 利用1S-2S跃迁制备亚稳态2S原子 . . . . 23 2.3 原子-光相互作用.25 2.3.1 多能级原子原子-光相互作用的主方程 . . . 25 2.3.2 2S-6P跃迁的大模型与量子干涉.30 2.4 通过荧光观测到的共振的直流斯塔克位移.34

3 光力频移 **39**

3.1 实验几何结构与参数.39 3.2 原子束的相干性.40 3.2.1 范西特-泽尼克定理.41 3.3 原子束的量子力学描述.43 3.3.1 维格纳函数与一阶关联函数的定义 . . . 43 3.3.2 喷嘴处的维格纳函数.44 3.3.3 无中间孔径时光栅处的维格纳函数 . . 45 3.3.4 有中间孔径时光栅处的维格纳函数 . . . . 47 3.3.5 与完全相干高斯波包的比较 . . . . . 49 3.4 2S-6P跃迁的光力频移.50 3.4.1 包含动量交换的原子-光相互作用 50 3.4.2 原子束的光力频移.57

4 氢原子束谱仪 59

4.1 原子束装置.59 4.2 真空系统.62 4.2.1 真空室.63 4.2.2 外部真空区域.64 4.2.3 高真空区域和低温泵.64

4.2.4 真空诊断系统.64 4.2.5 真空内243纳米增强腔的安装.65 4.2.6 氢喷嘴低温恒温器的安装.65 4.2.7 低温泵引起的温度漂移和梯度.66 4.2.8 低温泵引起的振动.67 4.2.9 真空室内部的访问.67 4.2.10 典型压力和温度.68 4.3 1S-2S 制备激光器.71 4.3.1 243纳米激光系统.71 4.3.2 光学斩波器.73 4.3.3 真空内243纳米增强腔.74 4.4 2S-6P 光谱激光器.88 4.4.1 410 nm 激光系统.89 4.4.2 主动式光纤回射器.90 4.4.3 低像差准直器.93 4.4.4 回射控制与稳频.101 4.4.5 强度稳定.104 4.4.6 偏振监测器.105 4.5 低温原子束.110

4.5.1 氢解离器.111 4.5.2 低温喷嘴.113 4.5.3 可变束流光阑.131

4.6 荧光探测器组件.1 32

4.6.1 探测器设计.133 4.6.2 通道电子倍增器.136 4.6.3 通过2S原子的光电离导致通道电子倍增器饱和.139 4.6.4 通道电子倍增器的增益切换.143 4.6.5 与探测效率相关的探测器特性.146 4.6.6 空间探测效率的模拟.148 4.6.7 探测器电极和偏置电场.151 4.7 数据采集.152

4.7.1 数据结构.152 4.7.2 软件与硬件概述及线扫描.154 4.7.3 时间分辨探测.155 4.7.4 附加参数记录.157 4.8 激光频率的测定.157

5 数 分析与数值建模 16 **1**

5.1 数据分析流程.161 5.1.1 线型函数.161 5.1.2 延迟分析和多普勒外推.166 5.1.3 共振频率采样.169 5.2 亚稳态氢原子束的建模.171 5.2.1 2S轨迹的蒙特卡罗模拟.172 5.2.2 2S轨迹的速度分布.174 5.3 2S-6P 荧光信号的建模.177

5.3.1 评估原子束的大模型和光力频移模型 . . . . 177 5.3.2 对荧光信号有贡献的原子的速度分布 . . 179 5.3.3 预期荧光信号与实验观测荧光信号的比较 181

6 2S- 6P跃迁频率测量 18 3

6.1 采集数据概述及分析流程.183 6.1.1 2019年测量批次.183 6.1.2 数据组及其分析.184 6.2 2S-6P测量的初步结果.188 6.2.1 盲化跃迁频率.188 6.2.2 光力频移模型的实验测试和不确定度 193 6.2.3 量子干涉线频移修正.197 6.2.4 额外修正和不确定度.199

7 Co结论与展望 20 7

A 2S-4P 跃迁频率测量 215 B 补充图表 249

B.1 2S-4P跃迁性质.250 B.2 探测效率.253

C No非共振交流斯塔克频移与光电离系数 25 5

C.1 非共振交流斯塔克位移.255 C.1.1 光移算符.255 C.1.2 微扰理论与共振贡献.257 C.1.3 与布洛赫-西格特频移的关系.258 C.1.4 球张量分解.258 C.1.5 精细与超精细能级的交流斯塔克频移系数.260 C.1.6 反向传播激光束的交流斯塔克频移.262 C.2 光电离.264

参考文献 267

图目录

1.1 氢光谱学得出的质子电荷半径 r_{p} 和里德伯常数 R_{∞} 2 1.2 原子氢激光光谱学中的频率不确定度和线宽 4 1.3 2S-6P 与 2S-4P 共振的荧光信号比较 . . 6 1.4 2S-6P测量的测量时间.8

2.1 2S-6P跃迁光谱学的能级图.13 2.2 一阶多普勒频移和多普勒展宽的抑制 18

3.1 低温原子束上 2S-6P跃迁光谱的几何结构 40 3.2 光力频移模型的梯形能级结构.52 3.3 2S-6P跃迁的光力频移.55 3.4 光力频移与光谱激光功率的关系.56 4.1 原子束装置三维视图.60 4.2 真空系统.63 4.3 真空室中的典型压力和温度.68 4.4 冻结周期中的典型压力和温度.69 4.5 243纳米激光系统示意图.71 4.6 1S-2S光谱激光束的光学布局.73 4.7 243 nm增强腔镜面退化模型.74 4.8 243 nm增强腔镜面随时间的退化.77 4.9 观测到的243 nm增强腔功率增强.78 4.10 243 nm增强腔腔内功率的校准因子.81 4.11 腔长和腔内功率的稳频.84 4.12 2S-6P测量期间1S-2S腔内激光功率稳定性.85 4.13 243 nm增强腔内的孔径损耗.88 4.14 410 nm激光系统示意图.89 4.15 2S-6P光谱激光器和AFR的光学布局.91 4.16 真空内AFR装置的三维视图.91 4.17 AFR所用四透镜准直器的设计.95 4.18 AFR中的模拟多普勒频移.97 4.19 AFR准直器的焦散测量.99 4.20 AFR的光束轮廓.100 4.21 AFR的倾斜稳定.102 4.22 AFR的光纤—准直器距离控制.103 4.23 AFR强度稳定信号的光谱. 104 4.24 AFR中的偏振.109

4.25 氢喷嘴图示.114 4.26 2S-6P测量期间的喷嘴温度稳定性.115 4.27 固态H_2 的蒸气压和氢原子复合系数.120 4.28 不同H_2 流量下的荧光信号.123 4.29 喷嘴温度在3.7 K至5.2 K范围内的荧光信号 . . . . . 125 4.30 喷嘴温度在3.7 K至6.0 K范围内的荧光信号 . . . . . 126 4.31 不同喷嘴参数下的荧光信号与模拟结果对比 . . . . . 128 4.32 2S-6P测量B次运行期间的荧光信号.129 4.33 喷嘴成像和对准.130 4.34 探测器组件内部区域图示.133 4.35 通道电子倍增器的脉冲高度分布.138 4.36 暗相位和亮相位期间的探测器计数率. 140 4.37 亮相位和本底计数率与下电极电压的关系.141 4.38 亮相位和本底计数率与上电极电压的关系.142 4.39 高压开关电路图.143 4.40 2S-6P测量期间的增益切换和荧光上升时间 . . . . . 145 4.41 顶部和底部探测器的空间探测效率.149 4.42 数据采集的时序方案.153 5.1 不同延迟下的2S-6P线扫描.162 5.2 原子束与激光束存在偏移角时的2S-6P线扫描 . . . . . 164 5.3 2S-6P线扫描的多普勒外推.167 5.4 亚稳态原子束的模拟.175 5.5 对6P荧光信号有贡献的原子的速度分布.180 6.1 2S-6P测量期间截止速度的变化.186 6.2 2S-6P$_{1/2}$ 跃迁测量的盲化结果.189 6.3 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁测量的盲化结果.192 6.4 2S-6P跃迁频率中包含的模拟修正.193 6.5 2S-6P跃迁频率与2S-6P光谱激光功率的关系 . . . . . 194 6.6 2S-6P$_{1/2}$ 跃迁的光力频移模拟与测量.195 6.7 2S-6P跃迁频率与原子束和激光束夹角偏移量的关系 . . . 196 6.8 量子干涉谱线位移的模拟.198 6.9 2S-6P跃迁频率与线性激光偏振角的关系.199 6.10 杂散电场的原位测定.200 6.11 包含精细结构和超精细结构的2S-6P能级图 . . . . . 204 7.1 2S-6P测量中 r_{p} 和 R_∞ 的不确定度初步结果 208 7.2 不同延迟下的1S-2S线扫描.210 B.1 探测器探测效率建模所用的材料性质.253

表格目录

2.1 2S-6P跃迁的原子性质.15 2.2 按球分量分组的6P$_{1/2}^{F=1}$能级衰变路径 . . . . . 31 2.3 按球分量分组的6P$_{3/2}^{F=1}$能级衰变路径 . . . . . 31 2.4 按最终超精细能级分组的6P$_{1/2}^{F=1}$能级衰变路径 . . . . . 32 2.5 按最终超精细能级分组的6P$_{3/2}^{F=1}$能级衰变路径 32 2.6 2S-6P跃迁的直流斯塔克二次位移系数.37

4.1 探测效率建模中使用的材料性质.147 4.2 探测效率模拟的结果.150 4.3 施加偏置电压时相互作用区域中的电场 152

5.1 时间分辨荧光的延迟.163 5.2 共振采样的频率失谐.169 5.3 2S轨迹蒙特卡罗模拟的参数.171 5.4 2S激发概率.173 5.5 延迟的速度分布.174

6.1 2S-6P测量轮次.184 6.2 2S-6P数据组.185

B.1 2S-4P跃迁的原子性质.250 B.2 按球分量归类的4P$_{1/2}^{F=1}$能级衰变路径 . . . . . 251 B.3 按球分量归类的4P$_{3/2}^{F=1}$能级衰变路径 . . . . . 251 B.4 按最终超精细能级归类的4P$_{1/2}^{F=1}$能级衰变路径 . . . . . 252 B.5 按最终超精细能级归类的4P$_{3/2}^{F=1}$能级衰变路径 252

C.1 2S-nP跃迁的交流斯塔克频移系数 $\tilde{\beta}_{\mathrm{ac}}^{(k)}$.260 C.2 1S-$n$S、1S-$n$D和2S-$n$D跃迁的交流斯塔克频移系数 $\tilde{\beta}_{\mathrm{ac}}^{(k)}$ . . . . 261 C.3 2S-nP跃迁的光电离系数 $\tilde{\beta}^{(k)}{}_{\text{电离}}$.264 C.4 1S-$n$S、1S-$n$D和2S-$n$D跃迁的光电离系数 $\tilde{\beta}^{(k)}{}_{\text{电离}}$ . . 265

第1章

引言

氢光谱学

氢光谱学 [1] 是我们理解物理学的基础，这不仅是因为它在量子力学 [2] 的发展以及随后演化为量子电动力学（QED） [3]的过程中发挥了重要作用。QED [4, 5], 的成功进而启发了量子场论（QFT），后者构成了粒子物理标准模型的基础，并将QED作为其组成模块之一。标准模型已得到广泛的实验检验，最终促成了长期以来所预言的希格斯玻色子 [6, 7]的发现。然而，标准模型并不完备，因为它只包含四种基本相互作用中的三种，缺少描述引力的量子场论。以目前的形式，它也无法描述诸如中微子振荡 [8, 9],这样的实验观测，而后者表明中微子具有非零质量。此外，诸如星系旋转曲线 [10] 以及宇宙微波背景的各向异性 [11] 等天体物理观测，对我们当前关于物质以及宇宙自身演化的理解提出了挑战，并由此产生了暗物质和暗能量 [12]的假说。人们预计，这些超出标准模型的物理学，或简称新物理，将通过与各种假设的场和粒子 [13–18]的相互作用，在原子与分子物理学实验中留下可探测的痕迹。

氢光谱学在这一探索中的作用，是以日益提高的实验精度比较各种跃迁的频率，即原子能级之间的能量差，与束缚态量子电动力学的理论预测。这是因为，对于所有稳定原子中最简单的氢原子，其能级的量子电动力学理论预测可以极其精确地计算出来；某些跃迁的精度甚至超过 12 位数字 [4]。

质子半径之谜

然而，通常需要从实验中获取一些以物理常数形式表示的输入，才能计算这些预测值。这是因为所需的常数尚无法计算，例如精细结构常数 α、电子与质子的质量比 $m_{\mathrm{e}}/m_{\mathrm{p}}$ 和质子电荷半径 r_{p}；或者这些常数用作从自然单位转换为实验室所用单位制的换算因子，里德伯常数 R_{∞} 就属于这种情况。就目前的理论和实验水平而言， r_{p} 和 R_{∞} 至少有一部分是通过氢

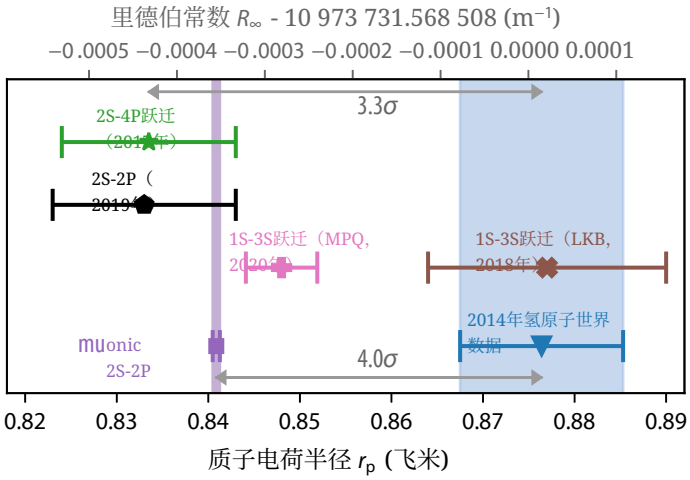


图1.1：氢光谱学测得的里德伯常数 R_∞（上方坐标轴）和质子电荷半径 r_p（下方坐标轴）。2014年氢原子世界数据（ [4], 蓝色三角形和蓝色阴影区域所示的第8次调整值）由16项精度最高的氢光谱学测量组成，其中包括截至2014年 [23], 可获得的1S-2S测量。μ子氢中2S-2P跃迁的测量（[22], 紫色方块和紫色阴影区域）给出的 r_p数值精度高得多，但与2014年氢原子世界数据相差 4σ （灰色箭头）。该项2S-4P跃迁频率测量（绿色星形）发表于 2017 [24] 并收录于附录A，是一批旨在解决这一差异的新测量中的首项。2S-4P结果与缪子结果一致，但与2014年氢原子世界数据相差3.3σ。2019年微波测量2S-2P跃迁（[25], 黑色五边形）得到的 r_p 数值与2S-4P结果非常相近。采用不同激光光谱学技术对1S-3S跃迁进行的两项测量，一项支持缪子结果（MPQ， [26], 粉色加号），另一项支持2014年氢原子世界数据（LKB， [27], 棕色叉号）。本学位论文讨论的2S-6P测量结果仍处于盲测状态，因此未在图中显示。测得的 r_p 和 R_∞ 数值高度相关，因此可以在同一张图中展示。

光谱学[1]，确定的，因此需要测量至少三个不同的跃迁，才能将理论预测与实验结果进行比较。换句话说，如果量子电动力学正确，那么通过不同测量确定的这些常数预计会彼此一致。因此，通过μ子氢[2] [21, 22]中2S-2P跃迁的光谱学，以一种新颖且极为精确的方式测定质子电荷半径，引起了广泛关注，也就不足为奇了。这是因为该测定结果与此前确立的数值（“2014年氢原子世界数据”，第8次调整 [4]）相差四个标准差（σ）；此前的数值是通过（电子）原子氢（H）的光谱学确定的。这一情况见图1.1。尽管理论研究十分活跃，但迄今尚未提出公认的质子半径之谜（PRP）解决方案。

[1] r_p 也可以通过弹性电子—质子散射 [19, 20]来确定。不过，目前这类确定方法的精度不如通过氢光谱学进行的确定方法；而且由于本研究聚焦于光谱测量，这里不再进一步讨论。[2]μ子氢是一种由质子和负缪子组成的原子。缪子的质量约为电子的 200 倍，因此 μ子氢的玻尔半径约为普通（电子）氢的 200 分之一。因此，质子的有限尺寸对原子 S 能级能量的影响更大，使得利用 μ子氢能够更精密地测量 r_p。

2S-4P跃迁频率的测量

质子半径之谜也促使世界各地的精密测量团队开始新的电子氢光谱测量，或改进已有的测量。马克斯·普朗克量子光学研究所（MPQ）的激光光谱学部也是如此：他们改造了现有的氢光谱仪器，使其能够测量2S-4P跃迁。此前，该装置曾通过双光子激光光谱学测定1S-2S跃迁频率，相对不确定度为 4.2×10^{-15} [23]；在那项实验中，2S-4P跃迁曾用于测定原子的速度分布。因此，相应的激光系统已可直接使用。

1S-2S装置可产生一束低温氢原子束，其中的氢原子处于亚稳态2S能级，随后可通过激光进一步激发至更高的 nP能级。这项测量面临两项主要挑战：首先，单光子2S-nP跃迁的多普勒频移必须抑制许多个数量级，因为原子仍以相对较高的速度运动。其次，要达到有竞争力的精度，必须将共振谱线中心确定到观测线宽的约 $N = 10\,000$ 分之一，而该线宽相对较大，为 $\Gamma_{\mathrm{F}} \approx 20$兆赫兹。 N 称为谱线分裂，在图1.2中展示了氢原子的多种激光光谱测量结果。如此大的谱线分裂要求实验信号具有很高的信噪比（SNR），并且需要对线型有深入的理论理解。研究人员利用精密光学技术成功应对了这些挑战，包括采用主动式光纤回射器（AFR， [28]）抑制多普勒频移、使用高效率且信噪比高的荧光探测器，以及采用纳入量子干涉畸变的线型模型 [29], 。由此测得的2S-4P跃迁频率不确定度为2.3千赫兹，远小于质子半径之谜对应的数值；后者换算成跃迁频率为8.9千赫兹。当时，这一精度仅次于线宽窄得多的1S-2S跃迁测量 [23]。由于次优的测量结果（现已得到改进）限制了物理常数的测定，将2S-4P和1S-2S测量结果结合起来，能比其他任何一对氢原子测量更准确地确定 R_∞ 和 r_{p}（图1.1和图1.2中的绿色星号）。事实上，所得不确定度与2014年氢原子世界数据的整体不确定度相当。该测定结果与后者相差 3.3σ ，但与μ子值吻合良好。换言之，以1S-2S测量和缪氢2S-2P测量为输入所得的2S-4P跃迁频率量子电动力学预言，在其12位精度范围内与实测的2S-4P跃迁频率一致。这一结果压缩了基于缪子与电子之间假设存在基本差异来解释质子半径之谜的理论空间，同时提高了氢光谱学中存在某种潜在实验问题的可能性。

经过两年多的数据分析后，2S-4P测量结果于 2017 [24], 发表，并收录于附录A。作者于2014年初加入MPQ激光光谱学部，参与了实验的准备和实施，获得了 [24], 数据集，并对该数据集进行了最终分析，相关内容见 [24]。合著者Axel Beyer自2010年起一直参与该项目，他在2016年的学位论文中给出了初步数据分析 [30], 。A. B.和作者因在2S-4P测量方面的工作共同获得了2018年亥姆霍兹奖。

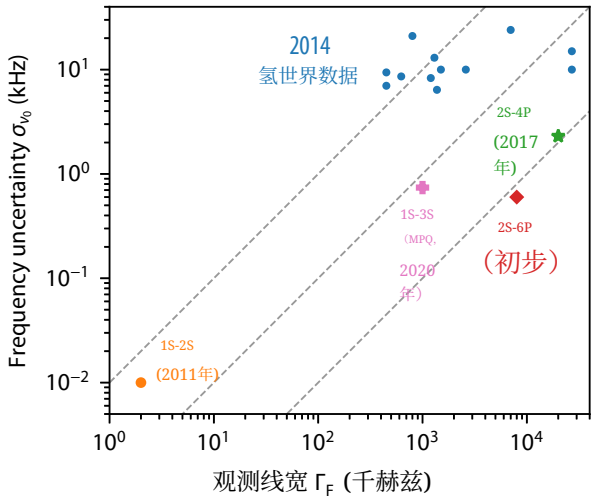


图 1.2：所选原子氢激光光谱精密测量的频率不确定度 σ_{ν_0} 与观测线宽 Γ_F （半高全宽）的关系。具有恒定谱线分裂 N的测量，其定义为 $\sigma_{\nu_0} = \Gamma_F/N$，位于对角线上；图中给出了 $N = 100$、1000 和 10 000 对应的情况（虚线）。图中显示了 2014 年氢原子世界数据（ [31–34], 小蓝圆圈）中包含的所有激光光谱学结果，包括 1S-2S测量（[23], 橙色圆圈）。1S-2S跃迁频率的测定不确定度远小于其他跃迁；由于该跃迁的线宽也远小于其他跃迁，适中的 N 值 200 已足够。2017年 2S-4P测量（附录 A，绿色星形）达到近乎 $N = 10\,000$的谱线分裂，但其频率不确定度最近被 2020年对线宽更窄的 1S-3S跃迁的测量（[26], 粉色加号）超越；该测量所需的谱线分裂几乎低了一个数量级。本学位论文讨论的 2S-6P测量（红色菱形）预计达到比 2S-4P测量高 50% 的谱线分裂；由于其线宽更窄，频率不确定度将降低至四分之一。

氢光谱学的最新发展

自2S-4P测量以来，又有三项氢光谱学结果发表：首先，2018年，卡斯特勒-布罗塞尔实验室（LKB，图1.1中的棕色叉号）改进了对1S-3S跃迁频率的测量 [27] 。这一结果与1S-2S测量结果结合后，同样更支持2014年氢原子世界数据，而非μ子值和2S-4P结果。其次， 2019 [25] 公布了对2S-2P跃迁（即兰姆位移）的改进微波测量结果。根据这项测量，无需借助另一项氢测量的高精度输入，即可确定 r_p ，所得结果及不确定度（图1.1中的黑色五边形）与2S-4P测量结果非常相近。第三，最近，MPQ走廊另一侧完成了一项具有竞争性的1S-3S测量 [26]（图1.1和图1.2中的粉色加号）；该测量同样更支持μ子值，而非2014年氢原子世界数据，但其不确定度比2S-4P结果低2.4倍。这一结果颇具吸引力，因为无需使用任何理论输入，就能将其与LKB对同一跃迁的测量结果直接比较；目前，这种比较的统计效能受限于LKB测量。

总而言之，PRP 仍未得到完全理解，但随着更高准确度的测量结果逐渐获得，它或许会自行消退。事实上，如果假设理论和 μ子值都是正确的，那么只有找到一个使2014年氢原子世界数据的测量结果发生偏移的共同实验因素，才能称得上真正解决了这一问题；而这种因素也许永远无法被确定。从某种意义上说，

通过氢光谱学确定 r_{p}，会使测试量子电动力学并寻找新物理的工作受到干扰，因为当 r_{p} 可以取自精度高得多的 μ子测量时，自由参数就少了一个。这样，比较任意两个不同跃迁的频率就构成了一项量子电动力学测试，而比较同一跃迁的两次测量，则可用于检验氢光谱学本身的准确度。

利用 2S-6P跃迁提高精度之路

本学位论文所呈现的工作，旨在不断追求更高的准确度，从而更好地检验量子电动力学。早在进行 2S-4P测量时，我们就已发现，较大的线宽严重限制了测量精度：尽管信噪比较高，测量仍受计数统计限制。另一方面，为这项测量开发的技术，尤其是借助 AFR 实现的多普勒频移抑制，似乎尚未成为限制因素。因此，一个合乎逻辑的选择是转向主量子数更高的 2S-nP 跃迁 n，因为自然线宽 Γ大致会按 n^{-3} 递减（见第 2.2.1 节），而测量方案本身则基本可以保持不变。因此，采用 2S-6P跃迁而非 2S-4P跃迁，会使 Γ 降低 3.3 倍，从 12.9 兆赫兹降至 3.90 兆赫兹。

此外，跃迁频率从 $\nu_{\text{2S-4P}} = 617$太赫兹变为 $\nu_{\text{2S-6P}} = 731$太赫兹后，与1S-2S跃迁频率结合时，对 R_∞ 和 r_{p} 的敏感度会提高。这使得以2S-6P跃迁频率表示的质子半径之谜（PRP）数值增加了12。1 千赫兹。一种理解方式是：1S-2S跃迁频率中包含质子有限尺寸对1S能级能量造成的大幅修正（见式（2.1））， 而2S-nP跃迁频率则基本不受影响。因此，对后者的测量主要确定 R_∞，它与该跃迁成正比。

从理论上说，改用2S-6P跃迁只需直接更换激光系统和一些光学元件[1]。但事情果然没那么简单。首先，只有在观测线宽 Γ_{F} 不受其他效应限制时，较小的自然线宽 Γ 才有意义；在本实验中，主要影响因素是原子束发散造成的多普勒展宽。通过加装可变束流光阑、调整实验几何结构，并改进对准诊断和操作流程，最终实现了低至 ≈6兆赫兹的观测线宽，比图 1.3所示的2S-4P跃迁观测线宽低了三倍。

下一个挑战涉及 AFR 的核心部件——一种能产生高斯光束且像差极小的光纤准直器 [28], ，这是成功抑制多普勒频移所必需的。不幸的是，由于波长缩短至 410纳米（此前为 486纳米），先前使用的、由现成光学元件组装而成的准直器无法重复使用。同时，在新的波长下没有现成的光学元件可用，最初的定制设计也未能成功。由此开启了一个历时一年多的过程，旨在改进光学设计流程和测量流程。幸运的是，正是在 2017年初，Vitaly Wirthl 加入了该项目，承担了这项工作的很大一部分；截至本文撰写时，他正在准备一篇相关出版物 [35, 36]。最终的准直器设计连同 AFR 的其他改进，使得在测量 2S-6P跃迁时能够完全抑制多普勒频移，这一点

[1]通过分别使用二次谐波和四次谐波，单个820纳米激光系统即可驱动2S-6P和1S-3S跃迁。这样的激光系统早在2014年就已搭建完成，既用作2S-6P测量的主激光器，也用作上述1S-3S测量的参考激光器。

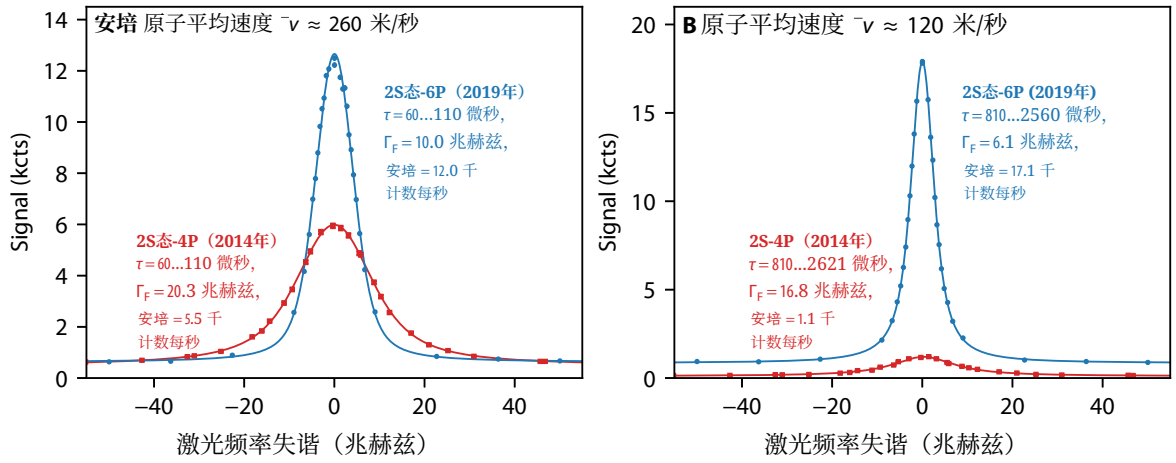


图1.3：单次线扫描中，2S-6P$_{1/2}$ 共振（蓝色点）和2S-4P$_{1/2}$ 共振（红色方块）的典型实验荧光信号对比。图中显示了延迟时间 τ 的两个积分范围（见第4章），对应于原子平均速度分别为（**安培**）$\bar{v} \approx 260$米/秒和（**B**）$\bar{v} \approx 120$ 米/秒的原子所产生的信号，这些速度根据2S-6P跃迁确定。对数据进行的Voigt拟合（彩色线）显示了观测线宽 Γ_F 和振幅 A。2S-6P数据记录于2019年，使用强度为 $I = 3.9$瓦/米^2 的光谱激光器（每个方向上的峰值强度，对应于 $P_{2S\text{-}6P} = 30$微瓦），进入系统的通量为 3.1×10^{17} 原子/秒，喷嘴温度为 $T_N = 4.8$开尔文。2S-4P数据记录于2014年，属于2017年出版物的一部分（见附录A）；其中展示的线扫描与该文图2（B）相同。记录时的激光强度为 $I = 2.8$瓦/米^2,，原子通量高出五倍以上，为 1.7×10^{18} 原子/秒，温度为 $T_N = 5.8$ 开尔文。原子被共振激发至 nP能级的概率在此近似正比于 $\mu^2 I/\Gamma$，其中 Γ 为自然线宽，μ 为偶极矩（见表2.1和B.1）。对于此处使用的参数，2S-4P跃迁的激发概率高出 ≈20%。尽管原子通量和激发概率较低，图（A）〔（B）〕所示2S-6P共振的信号仍大出2.2（16）倍，观测线宽则低 ≈2 （≈3）倍；这是本学位论文研究期间对原子束形成与整形以及探测器组件进行改进的结果。

可从下文讨论的初步数据分析中得出。2S-6P 光谱激光器和 AFR 将在第 4.4 节中详细讨论。

尽管随着 n 增大，2S-nP 跃迁的线宽会减小，但其对杂散电场的敏感性，以及因此对跃迁频率产生的直流斯塔克位移，会显著增强。因此，对于 2S-6P测量，有必要原位测定装置内部的电场；而对于 2S-4P测量，则认为根据以往实验进行估算已足够。为此，需要重新设计探测器组件，以减少可能的杂散电场来源并容纳电极。后者使得原子本身能够在跃迁频率测量期间充当电场传感器。

探测器组件的重新设计也为进一步提高6P能级衰变所发射荧光光子的收集效率创造了条件，从而提升了测量的信噪比。如果不仅提高探测效率，还增大探测立体角，就能减少量子干涉（QI）造成的线形畸变，如2S-4P测量所示（见附录A和 [29]）。事实上，后一项测量中的探测方案旨在将QI效应最大化，同时仍保持较高的信噪比。在研究并理解QI效应之后，现在可以将其降至最低，同时

提高收集效率。这是通过采用改进的探测几何结构实现的，其中最重要的是使用了量子效率更高的光发射材料。实际上，此时信号强度已如此之高，以至于探测器接近其可持续计数率上限，因此需要更复杂的诊断系统和电子学系统。不过，如图1.3所示，这些努力带来了显著高于2S-4P测量的信噪比，使进入系统的原子数量和光谱激光器强度都得以降低，从而减弱了各种系统效应的影响。第4.6节将讨论探测器组件。

多普勒频移的抑制不仅依赖于 AFR，也依赖于对平均速度不同的原子进行探测 $\bar{v}$。这样，任何残余多普勒频移（其与 $\bar{v}$ 成正比）都可以通过外推至零速度来确定并消除。在实验中，产生 2S原子后经过一段延迟时间 τ，即可获得较低速度的原子；这使初始热速度分布中较快的原子逸出，只留下较慢的原子供探测。在最初的 2S-6P测量中，仍使用 2S-4P测量所用的低温氢喷嘴，并保持相同的原子通量，但发现光束中的慢原子数量远低于热分布所预期的值。即使将 2S原子的光电离考虑在内，这一现象依然成立；此前在 1S-2S测量 [37] 中，人们曾将此类耗尽归因于光电离。通过研究不同的原子通量、喷嘴温度和喷嘴设计，我们确认，导致光束中慢原子减少的主要原因是原子碰撞。值得注意的是，只需加入一个参数来表示对慢原子的指数抑制，即可很好地描述这种耗尽后的速度分布。根据这些研究获得的认识，我们确定了一种喷嘴设计和一组光束参数，使光束中的慢原子数量显著增加。因此，图1.3 (B) 所示的信号来自平均速度为 $\bar{v} \approx 120\mathrm{m/s}$ 的原子，在 2S-6P测量中的强度是 2S-4P测量中的 16 倍；而图1.3 (A) 所示、来自速度较快（ $\bar{v} \approx 260\mathrm{m/s}$）的原子的信号则为 2.2 倍。第 4.5 节将详细介绍这项研究。

用于将原子激发至亚稳态2S能级的紫外1S-2S制备激光器，已在2S-4P测量期间投入使用。在这次测量中，其真空内增强腔的可靠性严重限制了装置的运行时间，最终导致最后一次测量运行提前结束。因此，如第 4.3 节所述，该腔经历了多项设计变更和改进。实验的各项升级还使得更换新的数据采集系统（DAQ）成为必要；在2S-4P测量期间，该系统仍使用已有20多年的软件。为此，2015年按照第 4.7 节所述，更换了数据采集系统的全部软件和硬件。

2S-6P测量

截至2019年3月，实验装置终于准备就绪，可以尝试对2S-6P跃迁进行精密测量。在随后的五个月里，共进行了三轮测量（A–C，见表6.1），记录了2S-6P共振的3155次线扫描，超过了构成已发表2S-4P测量数据集的 $\approx$2400 次线扫描。在各轮测量之间，实验装置得到进一步优化，记录的数据也经过了初步分析。尽管许多测量流程已实现自动化，但装置仍无法在无人值守或远程操控的情况下运行。此外，每个测量日都需要进行一系列对准程序，因此，光谱数据通常只能在数小时的准备工作后才能采集——

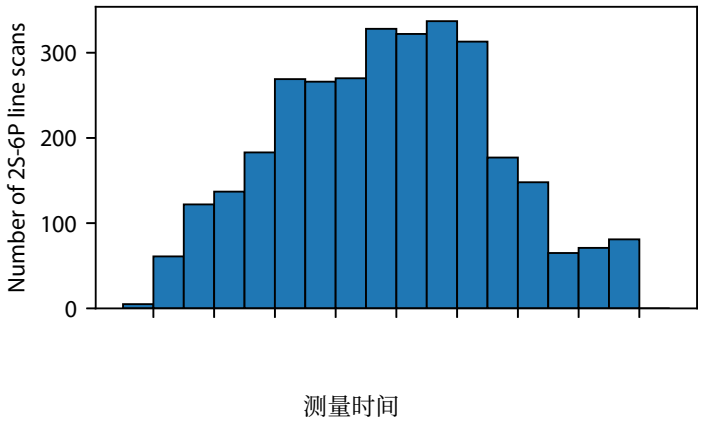


图 1.4：2S-6P测量的全部 3155 次线扫描在当地时区的测量时间，分布在 25 个测量日内。

正如常有的情况，这导致大量精密数据是在傍晚和夜间采集的，如图1.4所示。

在最初的运行 A 中，2S-6P跃迁的两个精细结构分量 2S-6P$_{1/2}$ 和 2S-6P$_{3/2}$分别采用了 $P_{\text{2S-6P}}$ 30 微瓦和 15 微瓦的光谱激光功率。这对应于与 2S-4P测量所用功率相近的 nP 激发比例。得益于上述改进，本次运行的 447 次线扫描足以使统计频率不确定度达到整个 2S-4P测量总不确定度的一半。因此，测量跃迁频率的不确定度低于 1 千赫兹已成为可能。然而，随着统计不确定度降低，系统不确定度对总不确定度的相对贡献随之增加。光力频移（LFS）恰好在 1 千赫兹量级，对于 2S-4P测量而言相对无关紧要，而如今却成为一种可能限制测量精度的系统效应。LFS 是原子部分相干物质波在由反向传播的光谱激光束形成的光栅上发生衍射所致；该光栅会抑制大得多的一阶多普勒频移。由于 LFS 近似随光谱激光功率线性变化，因此决定[1] 降低这一功率，以牺牲统计精度为代价减小 LFS。

因此，在包含 2085 次线扫描的 B次运行中，大多数扫描都是针对 2S-6P$_{1/2}$ 跃迁及其对应的 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁，以低三倍的 10 微瓦激光功率采集的。其余扫描则采用了 20 微瓦、30 微瓦及相应的功率，以便约束结果中可能残留的激光功率依赖性。低功率扫描的统计数据已足以将跃迁频率确定至≈600赫兹，而所需系统修正的总量级也大致相同。这相当于谱线分裂为 13 000 倍于平均观测线宽 ≈ 8 兆赫兹。

与量子干涉导致的谱线位移不同，尚未直接观测到 2S态-nP 跃迁中的光力频移。此外，光力频移取决于原子束一些仅被近似了解的性质，而自 2S-4P测量以来，如何正确地对光力频移建模一直存在争议。本研究建立的光力频移模型将在第3章中讨论，该模型预测，引入一个小的偏移角 α_0 时，光力频移的符号会发生改变

[1]作者感谢 Eric Hessels 在 2019年5月访问 MPQ 期间，就 2S-6P测量进行了非常有益的讨论。

该偏移角位于原子束与光谱激光束之间；通常二者对准后以直角交叉。为检验这一模型，在运行 C 的大多数线扫描中都设置了这样的偏移角。测得有此偏移角时的数据与无此偏移角时的数据之间的频率差，与光力频移模型的预测高度吻合。

此时，各种设备、激光、反馈回路等的故障率开始超过维修速度，因此测量于八月底结束。

2S-6P测量分析的当前状况

此后，作者采用了双管齐下的方法：首先，对2S-6P测量进行初步分析，以便迅速发现可能需要补充采集数据或评估新的系统效应的不一致之处或其他问题。其次，对2017年至2020年间快速连续进行的实验装置和日常操作的诸多改动，以及各种测试测量，进行描述和仔细分析。这不仅有助于记录存档，而且似乎正日益成为完整分析2S-6P测量的先决条件。

这就是为什么第4章中对实验装置的描述占据了这篇学位论文的大部分篇幅。该内容基本独立于其他章节；不过，对于不熟悉氢光谱学的读者，第2章介绍了一些一般概念，尤其是2S-6P跃迁。

2S-6P测量的分析分布于多个章节中。第2章包含描述2S-6P跃迁动力学和线型所需的光学布洛赫方程的推导。光力频移模型的动机、推导和评估构成了第3章的内容。该模型尤其依赖于对亚稳态原子光束的准确描述，这在第5章中给出。本章还涵盖了线扫描的分析。

第6章介绍了2S-6P测量的初步结果。本章旨在概述数据集，因为数据分析仍在进行中，结果也可能发生变化。为防止实验者偏差，实验采用盲分析，即在2S-6P跃迁频率中加入一个未知偏移量。只有在数据分析被认为完成后，才会移除该偏移量。因此，目前还无法给出2S-6P跃迁频率的数值。不过，文中详细讨论了统计显著性、模拟修正，以及系统偏移的大小和不确定度。2S-6P测量的估计频率不确定度及相应的谱线分裂如图1.2所示。

最后，第7章给出了结论和展望。

第2章

理论

2.1 原子氢的能级

原子氢（H）的能级可表示为（见 [4]和附录A）

$$E_{nlJ} = chR_\infty \left(-\frac{1}{n^2} + f_{nlJ}(\alpha, \frac{m_\mathrm{e}}{m_\mathrm{p}}, \dots) + \delta_{l0} \frac{C_\mathrm{NS}}{n^3} \ r_\mathrm{p}^2 \right), \tag{2.1}$$

其中， n、 l 和 J 分别是主量子数、轨道角动量量子数和总角动量量子数。第一项描述了氢的粗结构随 n的变化。里德伯常数 $R_\infty = m_\mathrm{e}\alpha^2 c/2h$ 将原子系统的自然能量尺度与实验室使用的国际单位制（SI）联系起来。因此， R_∞ 将电子质量 m_e、精细结构常数 α、普朗克常数 h和真空中的光速 c联系起来。

方程（2.1）中的第二项 f_{nlJ}（α， $\frac{m_\mathrm{e}}{m_\mathrm{p}}$，.....） $= X_{20}\alpha^2 + X_{30}\alpha^3 + X_{31}\alpha^3 \ln$（$\alpha$） $+ X_{40}\alpha^4 + \dots$，考虑了相对论修正、束缚态系统与量子电动力学（QED）真空场相互作用所产生的贡献，以及在量子电动力学框架下计算的其他修正。电子与质子的质量比 $m_\mathrm{e}/m_\mathrm{p}$ 通过有限质子质量m_p所引起的反冲修正，进入系数 X_{ik} 。

式（2.1）中系数为 C_NS 的最后一项，是由质子的有限电荷半径 r_p引起的最低阶修正；r_p定义为其电荷分布 [4]的均方根（RMS）。它只影响在原点处电子波函数不为零的原子 S 能级（其中 $l = 0$）。更高阶的核电荷分布贡献包含在 f_{nlJ}(α， $\frac{m_\mathrm{e}}{m_\mathrm{p}}$，.....)中。

—

文献 [38]对式（2.1）的推导作了颇具启发性且全面的概述，虽然内容略显过时，其中包括外场的影响以及量子电动力学和核效应引起的最低阶修正。当前最先进的量子电动力学计算总结于 [4]。据此，量子电动力学对2S-6P跃迁频率的预言，其不确定度约为300赫兹，对应的相对不确定度为 4×10^{-13}。

式（2.1）未考虑超精细结构（HFS），其主要源于核磁偶极矩与电子产生的磁场之间的相互作用。超精细结构对应于附加量子数 F。虽然 [4], 的描述中未包含超精细结构，但文献 [39]对此作了详细讨论。

Thr在本文中，式（2.1）的国际单位制数值取自最近的 t

汇编 [40], ，必要时加入取自 [39]的额外超精细结构修正（参见第 6.2.4.6 节）。与 [4], [40] 不同，使用取自 [22]的质子半径 μ子值 r_{p} 。

通过氢光谱学以外的实验，可以足够准确地确定进入 $f_{nlJ}(\alpha,\ \frac{m_{\mathrm{e}}}{m_{\mathrm{p}}},\ \ldots\ldots)$ 的常数。因此，实际上，式 (2.1) 中还有两个常数需要通过氢光谱学来确定： R_∞ 和 r_{p}。结合 1S-2S跃迁频率 [23]，利用 2S-4P跃迁的测量（见附录A），已将 R_∞ 测定至相对不确定度为 8.7×10^{-12}。近期对 1S-3S跃迁 [26] 的测量进一步将相对不确定度降低至 3.6×10^{-12}。利用通过μ子氢光谱学测定的 r_{p} [22] ，并同样将其与 1S-2S跃迁频率结合，可以将 R_∞测定至相对不确定度为 9×10^{-13} [40]。这使 R_∞ 成为迄今为止测定得最精确的自然常数之一。正如第1章所述，比较通过不同光谱测量组合确定的 R_∞ 和 r_{p} 的数值，是对量子电动力学进行有力检验的方法。

2.2 2S-nP跃迁

2.2.1 一般性质

本学位论文研究的是原子氢中的2S-nP跃迁（$n>2$），具体而言是2S-6P跃迁。2S-nP跃迁是能量相差为$h\nu_{\mathrm{A},0}$的电子能级之间的跃迁，其中$\nu_{\mathrm{A},0}$ 是数百太赫兹量级的光学频率。相关能级的轨道量子数分别为 $l=0$ 和 $l=1$，因此具有不同的宇称，这意味着存在电偶极矩 μ。因此，这些跃迁是偶极允许跃迁（E1），可以通过吸收能量接近$h\nu_{\mathrm{A},0}$的单个光子而被激发。图2.1展示了2S-6P跃迁相关的能级图。

较低能量的能级是亚稳态2S能级。该能级的特殊之处在于，其向1S 基态的主要[1] 衰变机制不是偶极允许跃迁，而是同时发射两个光子，且这两个光子的总能量等于1S态与2S态之间的能量差。这使其辐射寿命相对非常长，为 $\tau_{2\mathrm{S}}=121.53(2)$毫秒 [43], ，从而使1S-2S跃迁成为原子氢中线宽最窄的光学跃迁，其自然线宽为[2] $\Gamma_{2\mathrm{S}}=1.31$赫兹。

在本学位论文所讨论的实验中，原子通常会在约1毫秒内穿过整个实验装置[3] ，导致2S能级中的0.9%的原子发生衰变。探测2S-6P跃迁的相互作用时间甚至更短，其中甚至

[1]2S能级还可以通过其他机制衰变，但这些机制在此处可忽略 [38]: 磁偶极（M1）跃迁至1S 基态，其寿命约为2天；以及电偶极（E1）跃迁至能量较低的$2\mathrm{P}_{1/2}$ 能级（该能级随后会迅速衰变至1S能级）。由于2S态与$2\mathrm{P}_{1/2}$ 能级之间的能级间隔很小，该跃迁的寿命约为20年。[2]此处采用以下单位约定，参考了 [44]: 寿命 τ 以秒为单位。衰变率和线宽 A，γ，Γ 以每秒衰变次数（dcy/s）或赫兹（每秒周期数）表示，其数值分别为 $1/\tau$或 $1/2\pi\tau$。频率以弧度每秒（rad/s）或赫兹表示，其中以rad/s表示的数值等于以赫兹表示的数值乘以 2π。在可能的情况下，前一种情况使用符号 ω，后一种情况使用符号 f，ν。[3]传播长度为 $L+r_{\mathrm{det}}\approx0.23\,\mathrm{m}$，典型原子速度为 $v_{\mathrm{typ}}=200\,\mathrm{m/s}$（详情参见第4章）。

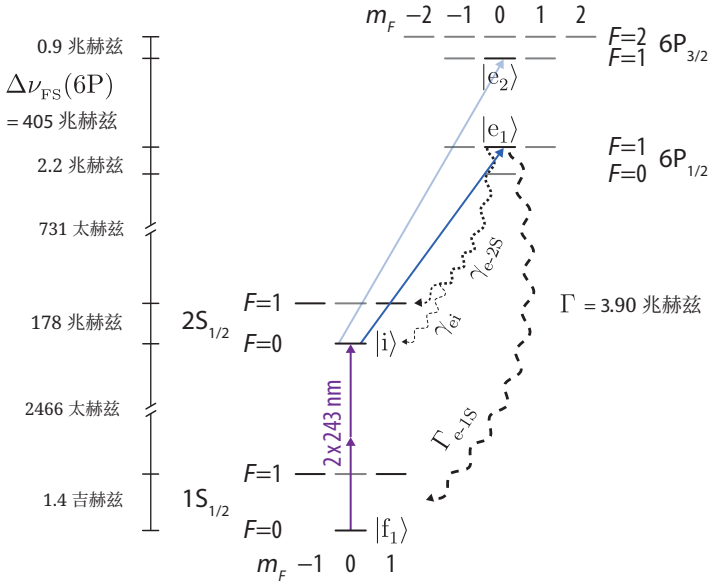


图 2.1：2S-6P 跃迁光谱的能级图（未按比例绘制），展示了原子氢的相关能级，以及它们通过激光和辐射衰变产生的耦合。通过 1S-2S制备激光器（$\lambda_{\text{1S-2S}} = 243$纳米，紫色）驱动从 $1S_{1/2}^{F=0}$, $m_F = 0$基态能级（|f1⟩）出发的双光子跃迁，原子被制备到亚稳态 $2S_{1/2}^{F=0}$, $m_F = 0$能级（|i⟩）（见第2.2.6节）。2S-6P光谱激光器（$\lambda_{\text{2S-6P}} = 410$纳米，蓝色）探测从 |i⟩ 到两个激发能级之一的跃迁：$6P_{1/2}^{F=1}$, $m_F = 0$（|e1⟩）或 $6P_{3/2}^{F=1}$, $m_F = 0$（|e2⟩），两者的能量间隔为 6P精细结构分裂 $\Delta\nu_{\text{FS}}(6P) \approx 405$兆赫兹。图中显示了到 |e1⟩的共振激发，而 |e2⟩仅被非共振地激发（浅蓝色）。激发能级迅速衰变，直接或通过级联跃迁到达 1S 和 2S 流形，衰变率分别为 $\Gamma_{\text{e-1S}}$ 和 $\gamma_{\text{e-2S}}$，由此产生的自然线宽为 $\Gamma = 3.90$兆赫兹。大多数衰变（分支比为 $\Gamma_{\text{e-1S}}/\Gamma = 88.2\%$）是通向 1S 流形的莱曼（Ly）衰变，其中，实验主要探测来自 6P 能级组的直接衰变（Ly-ϵ 衰变，分支比为 $\Gamma_{\text{det}}/\Gamma = 80.5\%$，能量为 $h\nu = 13.22$ 电子伏特）。其余 $\gamma_{\text{e-2S}}/\Gamma = 11.8\%$ 的衰变是通向 2S 流形的巴耳末（Ba）衰变，其中分别有 $\gamma_{\text{ei}}/\Gamma = 3.9\%$ 和 $\gamma_{\text{ei}}/\Gamma = 7.9\%$ 衰变从 |e1⟩和 |e2⟩返回初始能级 |i⟩。灰色所示的能级仅通过衰变级联或光抽运弱耦合；根据角动量守恒，从 |i⟩激发到 $6P_{1/2}^{F=0}$和 $6P_{3/2}^{F=2}$能级是禁戒的。

观测到的最慢原子穿过激光束所需的时间也仅约为60 μs[1]，期间有 5×10^{-4} 的2S原子发生衰变。因此，在本学位论文中与 nP能级辐射衰变相关的讨论里，1S能级和2S能级均视为稳定态。也就是说，所有衰变和衰变级联最终都会使原子处于1S能级或2S能级，因而最终衰变分别为莱曼（Ly）衰变或巴耳末（Ba）衰变。不过，在按照第5.2节所述通过从1S能级进行双光子吸收来制备2S能级原子的模拟中，仍计入了2S衰变。

2S-nP跃迁的上能级为两个精细结构流形 $n\text{P}_J$，其$J = 1/2$，并且 $J = 3/2$，轨道量子数为 $l = 1$。将这两个流形在能量上分开的精细结构分裂$\Delta\nu_{\text{FS}}(n\text{P})$ 近似按 n^{-3}缩放。这些能级可通过偶极允许跃迁衰变至较低的 S 和 D 能级，直接衰变或经由

[1]相互作用时间近似为 $T \approx 2W_0/v$，其中 W_0 是原子飞过的 2S- 6P光谱激光束的光束半径，v 是原子的速度。这里，$W_0 = 2.2$ 毫米，并且观测到速度低至 $v \approx 70$米/秒的原子（见第4章）。

级联跃迁到达 1S态或 2S态。这包括直接衰变至 1S能级；由于跨越的能量差很大（$h\nu > (3/4)R_\infty$），这是主要的衰变通道，例如， $n = 6\,(n = 4)$ 的衰变中有 81 %（84 %）属于此类。因此，与nl、 $l \neq 1$ 能级相比， $n\mathrm{P}_J$能级的辐射寿命 τ 较短，因而自然线宽 Γ 较宽；对于后者，衰变至 1S能级并非偶极允许跃迁。例如，2S-6P跃迁的线宽为 $\Gamma = 3.90$兆赫兹，而 2S-6S 和 2S-6D跃迁的线宽分别为 0.30 兆赫兹和 1.34 兆赫兹 [33]。

随着 n的增加，可能发生的衰变数量和所跨越的能量差都会增加；但对于给定的下能级，波函数重叠以及偶极矩 μ 的大小会随 n的增加而减小。例如，拉比频率Ω与 μ 成正比（见第2.3节），2S-6P跃迁的拉比频率比2S-4P跃迁低2.4倍。总的来说，较小的偶极矩占主导地位，因此2S-nP跃迁的自然线宽大致随 n 减小，变化关系约为 $\Gamma \propto n^{-3}$。因此，从 $n = 4$ 到 $n = 6$ 会使 Γ 从12.9兆赫兹降至3.90兆赫兹，减小3.3倍。这一减小是选择2S-6P跃迁而非此前研究的2S-4P跃迁（见附录A）的主要原因，以改进本文正文中所介绍的2S-nP跃迁频率测量。

初始2S态经由任一精细结构流形通向给定末态的两条可能路径之间的量子干涉（QI），会导致观测到的共振发生畸变（见第2.3.2.3节）。若未妥善考虑这些畸变，观测到的跃迁频率可能产生高达 $\Gamma^2/\Delta\nu_{\mathrm{FS}}(n\mathrm{P})$ [29, 45]的系统偏移。由于 Γ 和 $\Delta\nu_{\mathrm{FS}}(n\mathrm{P})$均按 n^{-3}缩放，且比值 $\Delta\nu_{\mathrm{FS}}(n\mathrm{P})/\Gamma$ 约为100，频移可达 $\Gamma/100$，这构成了转向更高 n值的另一项优势。

然而，转向更高 n值有一项主要缺点，即直流斯塔克位移随 n^7缩放。第 2.4 节将对此进行详细讨论。

2.2.2 2S-6P跃迁

与此处讨论的实验相关的2S-6P跃迁能级图如图2.1所示。首先，通过从热布居的1S态$^{F=0}_{1/2}$，$m_F = 0$ 基态能级进行光学激发，使原子制备到亚稳态2S态$^{F=0}_{1/2}$, $m_F = 0$ 能级。两能级之间的频率差为 $\nu_{\text{1S-2S}} = 2.466$PHz。为此，利用波长为 $\lambda_{\text{1S-2S}} = 243$nm的1S-2S制备激光器，以无多普勒方式驱动这两个能级间的双光子跃迁（见第2.2.6节）。

2S-6P跃迁的跃迁频率为 $\nu_{\text{2S-6P}} = 730.7$太赫兹，采用第二台激光器进行探测。这台2S-6P光谱激光器为线偏振，波长为 $\lambda_{\text{2S-6P}} = 410$纳米，其频率调谐至与从初始2S态$^{F=0}_{1/2}$，$m_F = 0$能级到6P$^{F=1}_{1/2}$, $m_F = 0$或6P$^{F=1}_{3/2}$, $m_F = 0$激发能级的两种跃迁之一共振。在本研究中，这两种跃迁分别称为2S-6P$_{1/2}$ 和2S-6P$_{3/2}$ 跃迁；而提及两种跃迁时，则使用“2S-6P跃迁”这一术语。6P$^{F=1}_{1/2}$, $m_F = 0$能级和6P$^{F=1}_{3/2}$, $m_F = 0$能级属于不同的精细结构流形，其能量差为6P精细结构分裂 $\Delta\nu_{\mathrm{FS}}(6\mathrm{P}) \approx 405$ 兆赫兹（见第6.2.4.6节）。

使用反向传播激光束来抑制该单光子跃迁的一阶多普勒频移（见第 2.2.4 节）。由于角动量守恒，光谱激光器无法激发其他所有 6P 能级。这样，只有一个

表 2.1：本文模拟和理论修正中所使用的 2S-6P跃迁的原子性质。使用线偏振激光探测从初始亚稳态 $2S_{1/2}^{F=0}$, $m_F=0$能级（|i⟩）到激发态 $6P_J^{F=1}$, $m_F=0$能级（对于 $J=1/2$ 和 $J=3/2$，分别为 |e1⟩ 和 |e2⟩）的两个偶极允许的单光子跃迁中的任一个。计算这些性质所需的氢原子能级能量（包括精细结构和超精细结构）取自 [40]，并采用 [22]中的质子半径 r_p 的μ子值。将原子单位转换为国际单位制单位所需的物理常数取自 [46]。偶极矩、拉比频率、衰变率、交流斯塔克频移和光电离系数均利用由非相对论波函数 [38] 导出的偶极矩计算得到（偶极矩的相对论修正约为 α^2 [47]）。这里只考虑电偶极（E1）跃迁，这在给定的准确度下已足够 [47]。2S-4P跃迁的相应原子性质见表 B.1。

J （激发能级）	1/2（|e1⟩）	3/2 (|e2⟩)
跃迁频率 $\nu_{\mathrm{A},0}$ （千赫兹）	730 690 111 486.4	730 690 516 650.9
跃迁波数 K_L (1/米)	15 314 132	15 314 141
偶极矩 μ ($e\,a_0$)	$-\frac{m_\mathrm{e}+m_\mathrm{p}}{m_\mathrm{p}}\frac{9}{512}\sqrt{105}$	$\frac{m_\mathrm{e}+m_\mathrm{p}}{m_\mathrm{p}}\frac{9}{512}\sqrt{2\times 105}$
偶极矩 μ (10^{-30} 摄氏度 m)	-1.528	2.161
拉比频率 Ω_0 (krad/s (W/m^2)$^{-1/2}$)	$2\pi\times 63.30$	$2\pi\times 89.52$
自然线宽 Γ (千赫兹)	3 899	
衰变率 A (kdcy/s)		
$\gamma_{\text{e-2S}}$: $\|\mathrm{e}_{1/2}\rangle \to$ 2S 流形	$2\pi\times 462.0$	
γ_{ei}: $\|\mathrm{e}_{1/2}\rangle \to \|i\rangle$	$2\pi\times 153.6$	$2\pi\times 306.4$
$\Gamma_{\text{e-1S}}$: $\|\mathrm{e}_{1/2}\rangle \to$ 1S 流形	$2\pi\times 3\,437$	
Γ_det: 探测信号 (莱曼-ϵ)[a]	$2\pi\times 3\,140$	
非共振交流斯塔克位移系数[b] $\beta_{\mathrm{ac},0}$ (赫兹/(瓦/米^2))	8.879×10^{-5}	9.275×10^{-5}
光电离系数[c] β_ioni (赫兹/(瓦/米^2))	1.611×10^{-5}	1.887×10^{-5}
氢原子质量 m_H (kg)	$1.673\,533\times 10^{-27}$	
反冲频移 $\Delta\nu_\mathrm{rec}$ (赫兹)	1 176 026	1 176 027
反冲速度 v_rec (米/秒)	0.965 016	0.965 016

[a]在实验中，只检测莱曼衰变，其中莱曼-ϵ 光子占信号的 ∼97%（见表 2.2 和 4.1）。[b]该系数由微扰计算得出（见附录C.1），不包括近共振贡献。[c]见附录 C.2。只有激发能级能够被频率为$\nu_{\mathrm{A},0}$的光电离。

每个流形中都会寻址一个超精细子能级。若情况并非如此，例如使用圆偏振而非线性激光偏振，未分辨超精细结构就会导致共振重叠，因为6P 能级的超精细分裂小于其线宽。

如上所述，激发能级会以速率 $\Gamma_{\text{e-1S}}$ 和 $\gamma_{\text{e-2S}}$ 迅速直接衰变或通过级联跃迁衰变至 1S态和 2S 流形，从而产生 $\Gamma = 3.90$ 兆赫兹的自然线宽。这些衰变产生的荧光作为实验中的信号——

的实验[1]。大多数衰变（分支比为 $\Gamma_{\text{e-1S}}/\Gamma = 88.2\%$）是通向 1S 流形的莱曼（Ly）衰变，其中直接的 Ly-ϵ 衰变（分支比为 $\Gamma_{\text{det}}/\Gamma = 80.5\%$，能量为 $h\nu = 13.22$ 电子伏特）在实验中占主导地位并被探测到。其余 $\gamma_{\text{e-2S}}/\Gamma = 11.8\%$ 的衰变是通向 2S 流形的巴耳末（Ba）衰变，其中分别有 $\gamma_{\text{ei}}/\Gamma = 3.9\%$ 和 $\gamma_{\text{ei}}/\Gamma = 7.9\%$ 从 $6\text{P}_{1/2}^{F=1}$、$m_F = 0$ 能级和 $6\text{P}_{3/2}^{F=1}$、$m_F = 0$ 能级返回初始能级。这种后续反向衰变的速率是 2S-6P$_{1/2}$ 与 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁之间的主要差异，并会影响观测到的线型。具体而言，光力频移（见第3章）和量子干涉频移（见第 2.3.2 节）都会随着反向衰变的增加而增大。

表 2.1 总结了 2S-6P$_{1/2}$ 和 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁的原子性质。据我们所知，迄今尚未使用激光光谱学对 2S-6P 跃迁进行详细研究[2]。

2.2.3 单光子吸收的共振条件

能量和动量守恒要求，原子吸收的激光频率 $\nu_{\text{L},\,0}$（在实验室参考系中测定）必须不同于原子的共振频率 $\nu_{\text{A},\,0}$。对于速度为 $\boldsymbol{v}$ ($|\boldsymbol{v}| \equiv v$) 的原子与波矢为 $\boldsymbol{K}_{\mathbf{L}}$ ($|\boldsymbol{K}_{\mathbf{L}}| \equiv K_{\text{L}} = 2\pi\nu_{\text{L},\,0}/c$) 的激光束相互作用，若 $\boldsymbol{v}$ 和 $\boldsymbol{K}_{\mathbf{L}}$ 均在实验室参考系中测量，则相对论性能量和动量平衡给出 [48]

$$\frac{\nu_{\text{L},0}}{\nu_{\text{A},0}} = \frac{\sqrt{1-\frac{v^2}{c^2}}}{1-\frac{\boldsymbol{K}_{\mathbf{L}}}{2\pi\nu_{\text{L},0}}\cdot\boldsymbol{v}}\left(\frac{1}{1-\frac{h\nu_{\text{A},0}}{2mc^2}}\right). \tag{2.2}$$

这里，m是原子的质量，取在相隔 $\nu_{\text{A},\,0}$ 的上、下原子能级正中间处，即 $m = m_{\text{H}} + h(\nu_l + \nu_{\text{A},\,0})/c^2$ 其中 m_{H} 是原子基态能级的静止质量，$h\nu_l$ 是下能级的能量。

在本文所述的实验中，原子以几乎直角的方向穿过激光束$\alpha = \pi/2 - \delta\alpha$，因此 $\boldsymbol{K}_{\mathbf{L}}\cdot\boldsymbol{v}/2\pi\nu_{\text{L},\,0} = \cos(\alpha)v/c = \sin(\delta\alpha)v/c$，其中 $\delta\alpha$ ($|\delta\alpha| \ll \pi/2$)是从正交方向朝激光束传播方向偏转的小角度。将式 (2.2) 按 v/c 和 $h\nu_{\text{A},\,0}/m_{\text{H}}c^2$ 展开，可得

$$\nu_{\text{L},0} = \nu_{\text{A},0} + \nu_{\text{A},0}\frac{\sin(\delta\alpha)v}{c} + \frac{h\nu_{\text{A},0}^2}{2m_{\text{H}}c^2} - \frac{\nu_{\text{A},0}}{2}\left(\frac{v}{c}\right)^2, \tag{2.3}$$

其中保留了 v/c 的二阶项，以及 $hR_\infty/m_{\text{H}}c$ 和 $\sin(\delta\alpha)v/c$ 的一阶项；计算后一表达式时，采用氢原子结合能的上限 cR_∞，对应 $\nu_{\text{A},\,0}$ 和ν_l。对于典型实验速度 $v_{\text{typ}} = 200\,\text{m/s}$ 和典型角度 $\delta\alpha_{\text{typ}} = 4$ 毫弧度，$v/c \approx 6.7\times10^{-7}$、$(v/c)^2 \approx 4.5\times10^{-13}$、$\sin(\delta\alpha)v/c \approx 2.7\times10^{-9}$和 $hR_\infty/m_{\text{H}}c \approx 1.4\times10^{-8}$。因此，忽略高阶项对于此处所需的 1/ 10^{-13} 相对准确度而言是很好的近似。

公式（2.3）中与 v 成线性关系的第二项是一阶多普勒频移，

$$\Delta\nu_{\text{D}} = \frac{\nu_{\text{A},0}}{c}\sin(\delta\alpha)v = \beta_{\text{D}}v_{\parallel}, \tag{2.4}$$

[1]也可以探测 2S 流形中剩余的布居数，例如，测量 [32]的 2S-4P跃迁时便采用了这种方法。[2]文献 [33] 利用 2S-6P跃迁研究了氢原子束的速度分布，但未报告其跃迁频率的精密测量结果。

其中沿激光束方向的速度分量为 $v_{\parallel}=\sin(\delta\alpha)v$，一阶多普勒频移系数为 $\beta_{\mathrm{D}}=\nu_{\mathrm{A},\,0}/c$。对于 2S-6P 跃迁，$\beta_{\mathrm{D}}\approx 2.437$兆赫兹/(m/s)，当 v_{typ} 且角度为典型值 $\delta\alpha_{\mathrm{typ}}=4$ 毫弧度时，产生的频移为 $\Delta\nu_{\mathrm{D}}\approx 2.0$ 兆赫兹。该频移比实验的准确度高出近四个数量级，因此需要采用复杂的抑制方法，如图2.2所示，并将在下一节中讨论。

对于此处讨论的实验而言，一个特别重要的事实是，任何一阶多普勒频移都可以表示为多普勒斜率[1] κ 与原子v速度的乘积，

$$\Delta\nu_{\mathrm{D}}=\kappa v. \tag{2.5}$$

对于式（2.4）所述的情况，多普勒斜率为 $\kappa=\beta_{\mathrm{D}}\sin(\delta\alpha)$，当 $\delta\alpha_{\mathrm{typ}}$ 时，其结果为 $\kappa=9.7$千赫兹/(m/s)。因此，该实验要求将多普勒斜率抑制到 $\kappa=1$赫兹/(m/s)的量级。如果初始时不知道多普勒斜率 κ，则可通过在不同的 v取值下测量 $\nu_{\mathrm{L},\,0}$，从实验中确定它。由于$\Delta\nu_{\mathrm{D}}$ 是 $\nu_{\mathrm{L},\,0}$中唯一与 v 呈线性关系的项，因此 $\nu_{\mathrm{L},\,0}$ 对 v 的线性关系斜率等于 κ。同样，将这一线性关系外推至 $v=0$m/s，可得到不受一阶多普勒频移影响的 $\nu_{\mathrm{L},\,0}$。此处将这一过程称为多普勒外推。请注意，通过多普勒外推得到的 $\nu_{\mathrm{L},\,0}$，与在 $v=0$m/s 时的 $\nu_{\mathrm{L},\,0}$ 并不相同，因为下文讨论的、与 v 的平方成正比的二阶多普勒频移并未被消除。

公式（2.3）中的第三项是反冲频移，

$$\Delta\nu_{\mathrm{rec}}=\frac{h\nu_{\mathrm{A},0}^{2}}{2m_{\mathrm{H}}c^{2}}, \tag{2.6}$$

它与 v无关。在这里所采用的近似下，对于初始静止的原子，$h\Delta\nu_{\mathrm{rec}}$ 可以理解为原子获得光子动量 $\hbar K_{\mathrm{L}}$所需的动能。对于每个被吸收的动量 $\hbar K_{\mathrm{L}}$，原子沿激光束方向 $\boldsymbol{K}_{\mathbf{L}}/K_{\mathrm{L}}$的速度都会增加反冲速度 v_{rec}，其中

$$v_{\mathrm{rec}}=\frac{h\nu_{\mathrm{A},0}}{m_{\mathrm{H}}c} \tag{2.7}$$

使用[2] $\nu_{\mathrm{L},\,0}\approx\nu_{\mathrm{A},\,0}$。原子发射光子时也会发生相同的速度变化，但此时原子的速度会沿发射方向减小。对于受激发射，发射方向沿受激光束；而对于自发辐射，方向则由该跃迁相应的辐射方向图决定。对于2S-6P跃迁，$\Delta\nu_{\mathrm{rec}}\approx 1.176$兆赫兹，且 $v_{\mathrm{rec}}=0.965$米/秒（见表 2.1）。注意，速度为$v_{\parallel}=v_{\mathrm{rec}}$ 的原子的一阶多普勒频移为 $\Delta\nu_{\mathrm{D}}=\beta_{\mathrm{D}}v_{\mathrm{rec}}=2\Delta\nu_{\mathrm{rec}}$，也就是说，原子从静止状态吸收一个光子后，会感受到对应于两倍反冲频率的一阶多普勒频移。反冲频移已在 [48]的吸收光谱学中被直接观测到。

公式（2.3）中的最后一项是二阶多普勒频移，即相对论多普勒频移，

$$\Delta\nu_{\mathrm{SOD}}=-\frac{\nu_{\mathrm{A},0}}{2}\left(\frac{v}{c}\right)^{2}, \tag{2.8}$$

[1]在 [28], 中，符号 η 用于表示多普勒斜率。然而，由于本文使用 η 表示不对称参数，因此此处改用 κ 表示多普勒斜率。[2]此处定义的反冲速度 v_{rec} 不会影响任何频率修正，但它是进行定性描述时一个方便的物理量。因此，此处所作的近似是足够的。

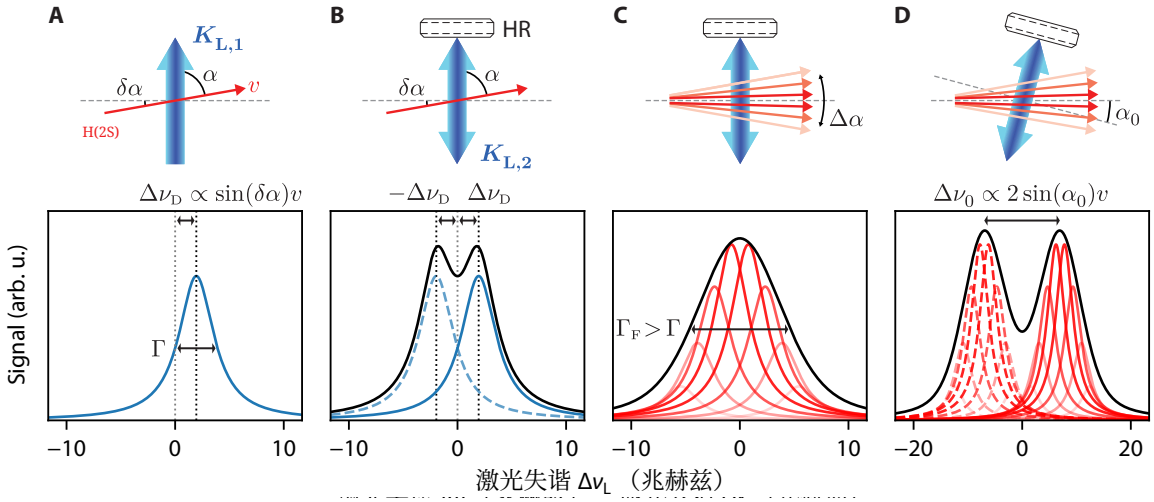


图 2.2：抑制一阶多普勒频移的示意图，以及原子束发散导致多普勒展宽的机制，展示了原子束和激光束（顶部）以及观测到的荧光信号随激光失谐的变化（底部）。**(A)** 亚稳态2S能级上的氢原子（H(2S)，红色箭头）以速度 v 与波矢为 $\boldsymbol{K}_{\mathbf{L},1}$ 的单束激光（蓝色箭头）以角度 $\alpha = \pi/2 - \delta\alpha$ 相交时，会经历一阶多普勒效应，使观测到的原子共振（洛伦兹线型，蓝线）相对于其未受扰动的位置（黑色和灰色虚线）偏移 $\Delta\nu_D \propto \sin(\delta\alpha)v$。共振线宽 Γ 与其未受扰动时的值不变。**(B)** 波矢为 $\boldsymbol{K}_{\mathbf{L},2}$ 的反向传播激光束沿第一束激光的相位路径返回（$\boldsymbol{K}_{\mathbf{L},2} = -\boldsymbol{K}_{\mathbf{L},1}$），例如，通过反射镜（HR）适当反向反射产生该光束，它会在信号中增加第二个共振（蓝色虚线）。该共振发生大小相等、方向相反的多普勒频移 $-\Delta\nu_D$。这对共振形成的总信号（黑线）在频率上没有偏移。**(C)** 多个原子（红色箭头）形成原子束，其角发散为 $\Delta\alpha$。总信号（Voigt线型，黑线）由许多具有不同多普勒频移的共振双峰组成。由于每个双峰在频率上均未偏移，因此总信号也没有偏移。然而，其线宽 Γ_F 相较于每个原子共振的线宽 Γ 有所展宽。**(D)** 原子束和激光束之间偏离正交方向的角度 α_0，会使总信号分裂为两个共振，分别来自正向传播（红色实线）和反向传播（红色虚线）的激光束；该双峰的频率分裂为 $\Delta\nu_0 \propto 2\sin(\alpha_0)v$。

顾名思义，它是相对论时间膨胀的结果，使得原子共动系中的激光频率高于在实验室参考系中测得的激光频率。因此，与一阶多普勒频移不同，它不取决于原子速度的方向 $\boldsymbol{v}/v$，而只取决于原子速度的平方 v。对于2S-6P跃迁以及 v_{typ}、$\Delta\nu_{\mathrm{SOD}} \approx -163$赫兹，$\Delta\nu_{\mathrm{SOD}}$ 已在与此处 [49] 所讨论实验类似的横向构型中进行了6%的检验，并且在纵向构型中以高得多的精度进行了检验，例如 [50]。

2.2.4 一阶多普勒频移的抑制

如上一节所述，要实现2S-nP单光子跃迁的精密光谱学，必须将原子穿过激光束时经历的一阶多普勒频移抑制多个数量级。这里采用的基本思路是不使用单束激光，而是用两束反向传播的激光束探测原子，使来自每束激光的荧光信号中的多普勒频移相互抵消。这一

方案如图2.2所示，并已在重点讨论2S-4P跃迁 [28]和2S-6P跃迁 [35, 36]的出版物中作过较为详细的论述。

2.2.4.1 抑制方案

首先，再次考虑处于亚稳态2S能级、速度为 $\boldsymbol{v}(|\boldsymbol{v}| \equiv v)$的氢原子穿过一束波矢为$\boldsymbol{K}_{\mathbf{L},\ 1}$、频率为$\nu_{\mathrm{L}} = \nu_{\mathrm{L},\ 0} + \Delta\nu_{\mathrm{L}}$的激光束的情形（见图2.2 (A)），其中$\nu_{\mathrm{L},\ 0}$ 表示不存在多普勒频移时预期的共振频率。由此产生的荧光信号因一阶多普勒效应而发生频移，频移量为

$$\Delta\nu_{\mathrm{D}} = \frac{1}{2\pi}\boldsymbol{K}_{\mathbf{L,1}} \cdot \boldsymbol{v} = \beta_{\mathrm{D}} \sin(\delta\alpha) v, \tag{2.9}$$

其中，交叉角 $\delta\alpha$ 仍指原子运动轨迹与激光束之间相对于正交方向的小角度， β_{D} 是一阶多普勒频移系数，在式（2.4）中引入。若不存在均匀展宽、饱和及量子干涉效应，信号将呈洛伦兹线型，其半高全宽（FWHM）线宽对应于自然线宽 Γ [51]。

加入一束波矢为 $\boldsymbol{K}_{\mathbf{L},\ 2}$ 的反向传播激光束，使得在任意一点都有 $\boldsymbol{K}_{\mathbf{L},\ 2} = -\boldsymbol{K}_{\mathbf{L},\ 1}$，会使信号中出现第二个共振（见图2.2 (B)）。条件 $\boldsymbol{K}_{\mathbf{L},\ 2} = -\boldsymbol{K}_{\mathbf{L},\ 1}$ 意味着第二束光的相位恰好回溯第一束激光的相位，且两束光的频率相同。因此，第二个共振的多普勒频移与第一个共振大小相等、方向相反 $-\Delta\nu_{\mathrm{D}}$。此时，总荧光信号呈现共振双峰，两个峰的频率间隔为 $2\Delta\nu_{\mathrm{D}}$。如果两束光在任意一点的强度也完全相同，那么总信号关于未受扰动的共振频率呈对称分布，其质心不受一阶多普勒效应影响[1]。

2.2.4.2 实验实现与缺陷

虽然使用两束激光的多普勒抑制方案在概念上简单明了，但要达到此处所需的抑制程度，其实验实施颇具挑战性 [28, 35, 36]。此处采用的方案是：用一面高反射率（HR）平面反射镜逆向反射单束激光，从而产生第二束反向传播光束。若第一束前向传播光束的束腰恰好位于镜面上，且镜面完全平整并与光束轴正交，则满足相位回溯条件。如果反射镜也完全反射，前向传播光束与反向传播光束的强度就会相同，从而满足多普勒抑制的所有条件。实验实现及其缺陷将在第 4.4 节讨论。

反向传播光束的缺陷会以两种方式削弱抑制效果[28]。首先，如果两束光在某一点的波矢并非完全反平行，而是彼此之间有一个很小的 ϵ $(|\epsilon| \ll \pi)$角度，那么总信号将产生残余

[1]在实验中，通过将线型函数拟合到采样数据上来确定总信号的共振频率，这是一个非线性过程。为确保确定的共振频率接近无多普勒质心，必须谨慎选择与数据吻合良好的线型函数，并对数据进行充分采样。

多普勒频移

$$\Delta\nu_{\mathrm{D}} = \beta_{\mathrm{D}}\frac{\sin(\delta\alpha)+\sin(-\delta\alpha+\epsilon)}{2}v \approx \frac{1}{2}\beta_{\mathrm{D}}\epsilon v = \kappa(\epsilon)v, \tag{2.10}$$

其中，近似中忽略了量级为 $\epsilon(\delta\alpha)^2$ 的项。因此，由这种角度失配导致的残余多普勒斜率为 $\kappa(\epsilon)=\frac{1}{2}\beta_{\mathrm{D}}\epsilon$，与交叉角 $\delta\alpha$ 无关。残余多普勒斜率为 $\kappa(\epsilon)=1$赫兹/(米/秒) 时，对应的角度为 $\epsilon = 0.8$ 微弧度。在实验中，预计由高反射镜相对于光束轴的俯仰调节所确定的 ϵ 对准水平无法达到这一程度[1]。此外，原子穿过激光束时所感受到的局部角度失配可能大得多，因为束腰未准确置于高反射镜处，或光束中存在残余像差，都会导致相位回溯条件被破坏。然而，随着振动影响俯仰调节，以及在测量轮次中多次重新进行实验对准以尽可能降低 ϵ（包括束腰的位置），预计 ϵ 会随机变化。这样，如果 ϵ 的平均值约为零，那么 $\kappa(\epsilon)$ 的平均值也预计为零。

其次，两束光的强度也可能略有不同。例如，如果高反射镜的反射率为 $R = 1-\xi$，则反向传播光束的功率，以及在两束光相位回溯时的强度，仅为前向传播光束的 $1-\xi$。此时的残余多普勒频移为

$$\Delta\nu_{\mathrm{D}} = \beta_{\mathrm{D}}\frac{\sin(\delta\alpha)+(1-\xi)\sin(-\delta\alpha)}{2}v \approx \frac{1}{2}\beta_{\mathrm{D}}\delta\alpha\xi v = \kappa(\xi)v. \tag{2.11}$$

残余多普勒斜率 $\kappa(\xi)=\frac{1}{2}\beta_{\mathrm{D}}\delta\alpha\xi$ 现在取决于交叉角 $\delta\alpha$，这与前一种情况不同。对于实验中使用的高反射镜，$\xi = 5\times10^{-5}$，在典型交叉角为 $\delta\alpha_{\mathrm{typ}} = 4$ 毫弧度时，得到$\kappa(\xi) = 0.24$ 赫兹/(m/s)，这一数值足够小，不会影响实验所达到的准确度。不过，与局部角度失配的情况一样，原子所感受到的局部强度失配可能大得多，因此高反射镜的反射率不能作为强度失配的上限。与第一种情况一样，如果 $\delta\alpha$，且与束腰位置有关的 ξ 部分在不同次对准之间围绕零值变化，那么 $\kappa(\xi)$ 的平均值也预计为零。

对于经过对准的对称原子束，平均而言，原子以相对于正交方向的小偏移角 α_0 ($|\alpha_0| \ll \pi/2$) 穿过激光束。对于每个交叉角为 $\alpha_0+\delta\tilde{\alpha}$ 的原子，都有另一个原子的交叉角为 $\alpha_0-\delta\tilde{\alpha}$，其中 $\delta\tilde{\alpha}$ 是光束发散角范围内的一个角度。对于第一种不完美情况，多普勒频移仍由式 (2.10) 给出，且与 $\delta\tilde{\alpha}$ 和 α_0 均无关。对于第二种情况，式 (2.11) 中的 $\delta\alpha$ 被 α_0 取代。结合这两种情况可得

$$\Delta\nu_{\mathrm{D}} \approx \frac{1}{2}\beta_{\mathrm{D}}\left(\epsilon+\alpha_0\xi\right)v = \kappa(\epsilon,\xi)v, \tag{2.12}$$

其中与 $\epsilon\xi$ 成正比的一项已被省略。因此，将偏移角 α_0以及上述影响 ϵ 和 ξ 的对准调至尽可能接近零的值，对于充分抑制多普勒频移至关重要。如下文所述，在某些测量中会施加最高达 $\alpha_0 = 12$毫弧度的偏移角，以帮助表征某些系统效应。为了仍能确保多普勒频移

[1]仅 $\epsilon = 0.8$ 微弧度的失准就会使耦合回光纤的功率（这是一个实验上可测量的量）降低 5×10^{-5}，远低于可检测到的 $\approx 0.1\%$ 降幅；该降幅对应于 $\epsilon \approx 4$ 微弧度。

平均值为零，该偏移量的符号会不时翻转，例如，实际测量时采用 $\alpha_0 = \pm 12$毫弧度。

因此，尽管理想情况下多普勒斜率应当平均为零，但这种平均在多长的时间尺度上发生，以及重新对准是否会在零值附近随机变化而不存在系统偏移量，目前尚不清楚。此外，光束像差与原子的激发动力学相结合，可能导致多普勒斜率不随重新对准而变化。因此，在上一节所述的实验中，会观测不同速度原子 v 的共振频率，从而在实验上确定残余多普勒斜率 κ，并据此对抑制方案进行原位表征。重要的是，即便进行了这种测定，仍必须尽可能实现最佳抑制，因为线型的建模以及多普勒频移以外系统效应的建模，都依赖于相位回溯光束的存在。此外，用于实验测定的速度 v 同样由模拟得出，其不确定度会对过大的 κ值构成限制。

2.2.4.3 使用反向传播光束激发

使用两束反向传播光束代替单束激光束，平均而言不仅使原子所感受到的强度加倍，还会产生周期为 $\lambda_{2S-6P}/2 = 205$纳米的强度驻波，原子将穿过其中。这会改变激发动力学，因为原子现在可以从任一光束吸收光子，相应的反冲方向彼此相反。反过来，这会产生光力频移，这是2S-6P测量的主要系统效应之一，也是第3章的主题。

2.2.4.4 无多普勒双光子吸收

最后，反向传播光束也常用于抑制双光子跃迁的一阶多普勒频移 [52]。事实上，本研究采用了这一技术，通过在1S-2S跃迁上进行无多普勒双光子吸收，将原子制备到亚稳态2S能级，正如1S-2S测量 [23] 和2S-4P测量中所采用的方法（见附录A）。对于单光子和双光子跃迁而言，基本原理相同，即抵消两束光的多普勒频移，但其机制不同。在双光子跃迁中，每束光各有一个光子被吸收，从而产生一个不受多普勒频移影响的单一共振；相比之下，单光子跃迁产生两个共振，只有在检测它们的合并信号时才不受多普勒频移影响。因此，这一无多普勒成分也不会受到多普勒展宽的影响（见下一节）。此外，还存在一个发生多普勒频移和展宽的成分，对应于从任一光束吸收两个光子。然而，与无多普勒成分相比，该成分的线宽很大，因此其对信号的贡献通常可以忽略不计。

2.2.5 多普勒展宽

虽然使用上一节讨论的两束反向传播激光束可以抑制一阶多普勒频移，但无法抑制由此产生的观测线宽的多普勒展宽。首先考虑两种极限情况会很有帮助：如果多普勒频移远小于自然线宽 $|\Delta\nu_{\mathrm{D}}| \ll \Gamma$，两个共振几乎完全重叠，总信号的线宽接近 Γ。另一方面，对于 $|\Delta\nu_{\mathrm{D}}| \gg \Gamma$，双峰在频率上将明显分离，并且每个共振将再次

呈现为洛伦兹型。然而，如果多普勒频移 $\Delta\nu_{\mathrm{D}}$ 与自然线宽 Γ处于同一量级，两个共振将部分重叠，总信号将呈现出增大的半高全宽线宽 Γ_{F}，如图2.2（B）所示。

在本文所述的原子束实验中，探测的是具有不同交叉角 $\delta\alpha$ 的一组原子轨迹，每条轨迹都会对总信号贡献一个频率间隔为 $2\Delta\nu_{\mathrm{D}}$ 的双峰（见图2.2 (C)）。随后，总信号还会发生非均匀展宽，即展宽源于总信号由许多原子的信号组成，而每个原子具有不同的线型。如果 $\delta\alpha$ 的分布可以近似为半高全宽为 $\Delta\alpha \ll \pi$、中心位于 $\alpha_0 = 0$毫弧度的高斯分布（对应于原子束发散），那么多普勒频移 $\Delta\nu_{\mathrm{D}}$ 的分布也近似为半高全宽为$\Gamma_{\mathrm{G}} \approx \nu_{\mathrm{A},\,0}\Delta\alpha v/c$的高斯分布。总信号的线型由每个原子的双峰线型（近似为两个洛伦兹型函数）与多普勒频移的高斯分布卷积得到，形成 Voigt 线型 [51]。Voigt 线型的总半高全宽线宽近似为 [53]

$$\Gamma_{\mathrm{F}} \approx 0.5346\Gamma_{\mathrm{L}} + \sqrt{0.2166\Gamma_{\mathrm{L}}^2 + \Gamma_{\mathrm{G}}^2} \tag{2.13}$$

且始终等于或高于 Γ_{L} 和 Γ_{G}。用于 2S-6P跃迁光谱学的原子束发散度为 $\Delta\alpha \approx 10$毫弧度，在典型实验速度 $v_{\mathrm{typ}} = 200$米/秒下，会导致 $\Gamma_{\mathrm{G}} \approx 4.9$兆赫兹和 $\Gamma_{\mathrm{F}} \approx 7.3$兆赫兹的展宽，几乎是 $\Gamma = 3.9$兆赫兹的 2S-6P 自然线宽的两倍。

这种展宽对实验有重大影响。首先，在其他条件相同的情况下，它会增大共振频率测定的统计不确定度，该不确定度近似与总线宽成正比。因此，为了从随 n 增大而变窄的 2S-nP 跃迁自然线宽中获益，原子束的发散度就不能成为限制总线宽的因素。其次，这会使线型的理论建模更加复杂并增加不确定度，因为模型必须纳入原子束的特性，而这些特性只能用高斯分布近似描述。但重要的是，只要激光束具有相位回溯特性，总线型的质心就不受一阶多普勒效应影响，与原子束的特性无关。

到目前为止，假定 $\alpha_0 = 0$毫弧度，即激光束与原子束的质心恰好以直角相交。在实验中，通常采用这种构型采集光谱数据，并通过原位准直来确保这一点：在准直过程中，激光束相对于原子束旋转。另一方面，如果偏移角 α_0 不为零，总信号又会分裂成两个共振组成的双峰（见图2.2 (D)），频率分裂为 $\Delta\nu_0 = 2\nu_{\mathrm{A},\,0}\sin(\alpha_0)v/c$。每个共振都与其中一束激光束相关联，但包含所有原子的信号。因此，总线型是两个 Voigt 线型之和，在本文中称为 Voigt 双峰。尽管这种构型会增大统计不确定度，但它会改变一些系统效应（例如光力频移）的表现，因此可用于检验这些效应的理论建模。事实上，出于这一原因，在 2S-6P测量中，针对 $\alpha_0 = 7.5$毫弧度和 $\alpha_0 = 12.0$毫弧度采集了部分光谱数据；对于 v_{typ}，它们分别对应 $\Delta\nu_0 = 7.3$兆赫兹和 $\Delta\nu_0 = 11.7$兆赫兹。需要注意的是，实验中对 α_0 的测定和设定准确度有限，因此即使未明确施加偏移角，也会存在一个较小的非零残余偏移角 α_0，从而可能导致额外的线展宽。

到目前为止的讨论忽略了饱和效应。取决于原子的多普勒频移 $\Delta\nu_{\mathrm{D}}$，在一种极端情况下（$|\Delta\nu_{\mathrm{D}}| \gg \Gamma$），原子只会与一束激光发生共振相互作用；而在另一种极端情况下（$|\Delta\nu_{\mathrm{D}}| \ll \Gamma$），原子会同时与两束激光发生共振相互作用。因此，原子感受到的强度取决于 $\Delta\nu_{\mathrm{D}}$，这意味着如果饱和效应不可忽略，后一种情况下观测到的信号不会像原本预期的那样，是前一种情况下信号的两倍。因此，$\Delta\nu_{\mathrm{L}} \lesssim \Gamma$ 对应的总信号会小于根据 Voigt 线型或 Voigt 双峰线型预期的值；模拟和实验中均观察到了这一现象。理论上，可以将这些饱和效应纳入更复杂的线型模型。然而，在实验上，它们很难与原子束非高斯分布所导致的偏差区分开来。

2.2.6 使用 1S-2S跃迁制备亚稳态2S原子

原子氢中的 1S-2S跃迁已得到广泛研究 [23, 54, 55] ，因为其自然线宽仅为 $\Gamma_{2\mathrm{S}} = 1.31$赫兹，是精密测量的理想选择。与 2S-$n$P 跃迁不同，1S-2S跃迁并非偶极允许跃迁，但可通过吸收波长为 $\lambda_{1\mathrm{S}-2\mathrm{S}} = 243$纳米的两个光子而被激发。因此，可以利用双光子激光光谱（见第 2.2.4.4 节）对其进行研究，而不受一阶多普勒频移的影响。

在此，采用该技术将进入实验装置时最初处于 1S 基态的氢原子制备到亚稳态2S能级。具体而言，如图2.1所示，利用 1S-2S制备激光器驱动从 $1\mathrm{S}_{1/2}^{F=0}$, $m_F = 0$能级（$|\mathrm{i}\rangle$）到 $2\mathrm{S}_{1/2}^{F=0}$, $m_F = 0$能级（$|\mathrm{i}\rangle$）的跃迁。其跃迁频率的预测值为

$$\begin{aligned}\nu_{\text{1S-2S}} &= \nu_{\text{1S-2S,cent}} + (3/4)\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}(1\mathrm{S}_{1/2}) - (3/4)\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}(2\mathrm{S}_{1/2}) \\ &= 2\,466\,062\,345\,323\,723(11)\,\mathrm{Hz},\end{aligned} \tag{2.14}$$

其中，$\nu_{\text{1S-2S, cent}}$ 是1S-2S超精细质心的频率，以 [23], 测量；$\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}(1\mathrm{S}^{1/2})$和 $\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}(2\mathrm{S}^{1/2})$分别是1S态和2S态的超精细分裂，分别以 [56] 和 [57],测量。该激发方案作用于热布居1S原子的四分之一，因为三个 $F = 1$ 基态能级未与制备激光器发生共振耦合。同样，$2\mathrm{S}^{1/2}$ 流形的三个 $F = 1$ 能级也未被布居。

该跃迁的双光子激发已在 [58]中进行了详细研究。激发的时间尺度由双光子拉比频率给出

$$\Omega_{\text{1S-2S}} = 2\left(\frac{m_{\mathrm{p}} + m_{\mathrm{e}}}{m_{\mathrm{p}}}\right)^3 2\left(2\pi\beta_{\mathrm{ge}}\right) I = I \times \left(463\,(\mathrm{rad/s})/(\mathrm{MW/m^2})\right), \tag{2.15}$$

其中，I 是每个方向上的激光强度，即每束反向传播光束的强度。系数 $\beta_{\mathrm{ge}} = 3.681\,11 \times 10^{-5}$ 赫兹/(瓦特/米^2)见 [58], 的表 II；m_{p}和 m_{e} 分别是质子和电子的质量。对于本文采用的典型参数，光束中心处的强度为 $I = 7.2$兆瓦/米^2, ，对应的 $\Omega_{\text{1S-2S}} = 3.3 \times 10^3$弧度/秒。请注意，双光子拉比频率与强度成正比，因此与激光电场的平方成正比；而第 2.3.1 节中介绍的单光子拉比频率则与电场成正比。对于较短的相互作用时间 $t \ll 1/\Omega_{\text{1S-2S}}$，2S激发概率近似为 $P_{2\mathrm{S}} \approx (\Omega_{\text{1S-2S}}t)^2 \propto t^2 I^2$。在本文所述的实验中，$t$ 可达约 1 毫秒，因此远超短相互作用时间的范围。

来自制备激光器的单个光子能量为 $(3/8)hcR_\infty = 5.10$电子伏特，足以使2S能级发生光电离；该能级的电离能为 $(1/4)hcR_\infty$ =3.40 电子伏特。由此产生的电离率（见附录 C.2）为

$$\begin{aligned}\gamma_{\text{ioni}}(2\text{S}) &= 2\left(\frac{m_\text{p}+m_\text{e}}{m_\text{p}}\right)^3\left(-\sqrt{1/3}\right)2\pi\tilde{\beta}^{(0)}_{\text{ioni}}(2\text{S})I \\ &= I\times\left(1513\,(\text{ionizations/s})/(\text{MW/m}^2)\right), \end{aligned} \tag{2.16}$$

如表 C.4 所示，电离率为 $\tilde{\beta}^{(0)}{}_{\text{电离}}(2\text{S}) = -2.082\,06\times10^{-4}$赫兹/(W/m²)。对于此处使用的参数，电离导致的 2S原子损失远大于 2S能级的自然衰减，使寿命最多缩短三个数量级。电离限制了 2S能级中可达到的最大布居数，因为随着 2S布居数增加，电离造成的损失率开始超过向 2S能级的激发率。事实上，可以证明 [58] ，无论使用何种激光强度，2S布居数都不能超过 [1] $P_{2\text{S}} = 0.175$。

对于此处采用的线性激光偏振，沿方向 $(\phi,\ \theta)$ 向无穷小立体角 dΩ 内发射光电子的概率为 $p(\theta)\,\text{d}\Omega \propto \cos^2(\theta)\,\text{d}\Omega$，其中 θ是与偏振方向 [38]之间的角度。光电子以 1.70 电子伏特的能量逸出，带走多余能量的 $m_\text{p}/(m_\text{e}+m_\text{p}) \approx 0.998$ 。另一方面，质子仅获得 0.9 毫电子伏特，并以 421 m/s 的速度反冲；不过，这一速度与此处所用原子束中冷原子的热速度相当。

虽然激发不受一阶多普勒频移影响，但会受到二阶多普勒频移和交流斯塔克频移的影响。根据公式（2.8），二阶多普勒频移为

$$\Delta\nu_{\text{SOD,1S-2S}} = -\frac{\nu_{\text{1S-2S}}}{2}\left(\frac{v}{c}\right)^2 = v^2\times\left(-13.7\,\text{mHz}/(\text{m/s})^2\right). \tag{2.17}$$

本实验中探测的原子的平均速度范围为 $\bar{v}$ =66 m/s ... 256 m/s（见表 5.1），对应的频移为 $\Delta\nu_{\text{SOD,1S-2S}} = -60$ 赫兹 $\ldots -899$ 赫兹。

交流斯塔克频移是指与振荡激光场相互作用导致的能级频移，附录C.1对此进行了详细讨论。对于1S-2S跃迁，其表达式为

$$\begin{aligned}\Delta\nu_{\text{ac,1S-2S}} &= 2\left(\frac{m_\text{p}+m_\text{e}}{m_\text{p}}\right)^3\left(-\sqrt{1/3}\right)\left(\tilde{\beta}^{(0)}_{\text{ac}}(2\text{S})-\tilde{\beta}^{(0)}_{\text{ac}}(1\text{S})\right)I \\ &= I\times\left(334\,\text{Hz}/(\text{MW/m}^2)\right). \end{aligned} \tag{2.18}$$

系数 $\tilde{\beta}^{(0)}_{\text{ac}}$列于表C.2。对于光束中心处的典型强度，交流斯塔克频移为 $\Delta\nu_{\text{ac,1S-2S}} = 2.4$千赫兹。

因此，这两种频移通常都远大于自然线宽。由于原子的速度以及穿过激光束的路径各不相同，每个原子感受到的$\Delta\nu_{\text{SOD, 1S-2S}}$ 和$\Delta\nu_{\text{ac, 1S-2S}}$有效值也各不相同。这会导致线宽显著的非均匀展宽。另一方面，电离会导致均匀展宽和线形畸变。此外，观测到的共振还会受到飞行时间展宽的影响 [59],

[1]最大 2S 布居数的给定值是在忽略自然衰减、二阶多普勒频移和交流斯塔克频移的情况下计算得到的，但纳入这些效应并不会显著改变该数值。

因为原子飞过装置所需的时间（0。8 ms. . . 3。1 ms）远短于2S能级的寿命τ_{2S} 。展宽程度同样取决于原子穿过激光束时所走的路径，但其量级为千赫兹，因为它近似等于相互作用时间的倒数。总而言之，这四种机制使观测线宽达到 $\Gamma_{\mathrm{F}} \sim 3$千赫兹；而符号相反的二阶多普勒频移和交流斯塔克频移共同作用，使观测到的跃迁频率发生数百赫兹量级的频移。为准确考虑这些机制对亚稳态2S原子原子束形成过程的影响，本文采用了第5.2节所述的多条原子轨迹蒙特卡罗模拟。图7.2展示了使用本文所述装置对1S-2S共振的一次典型观测。

静电场会将2S能级耦合到寿命较短的2P能级，从而引起直流斯塔克位移和猝灭。1S能级不受影响，因为不存在主量子数相同、宇称相反的能级。具体而言，$2\mathrm{S}_{1/2}^{F=0}$, $m_F = 0$ 能级分别与$2\mathrm{P}_{1/2}^{F=1}$和$2\mathrm{P}_{3/2}^{F=1}$能级耦合，它们的能量间隔分别为 -910兆赫兹和10.0 GHz。这使$2\mathrm{S}_{1/2}^{F=0}$, $m_F = 0$能级[1], 以及跃迁发生位移，位移量为

$$\Delta\nu_{\mathrm{dc,1S\text{-}2S}} = \beta_{\mathrm{dc}}(2\mathrm{S}_{1/2}^{F=0},\, m_F = 0)F^2 = F^2 \times \left(442\,\mathrm{mHz/(V/m)^2}\right), \tag{2.19}$$

其中， F 是静电场 $\boldsymbol{F}$的大小。该表达式适用于$\Delta\nu_{\mathrm{dc,1S\text{-}2S}} \ll$910 兆赫兹。

静电场会猝灭2S能级，即缩短其有效寿命，因为通过耦合转移到2P能级的布居数会迅速衰变到1S 基态，寿命为 $\tau_{2\mathrm{P}} = 1/\Gamma_{2\mathrm{P}} = 1.6$ 纳秒。猝灭后的$2\mathrm{S}_{1/2}^{F=0}$, $m_F =$0能级[2] 的衰变率可估算为

$$\begin{aligned}\Gamma_{2\mathrm{S,qu}} &= \Gamma_{2\mathrm{S}} + \beta_{\mathrm{dc,qu}}(2\mathrm{S}_{1/2}^{F=0},\, m_F = 0)\Gamma_{2\mathrm{P}}F^2 \\ &= \Gamma_{2\mathrm{S}} + \Gamma_{2\mathrm{P}}F^2 \times (6.0 \times 10^{-10}\,1/(\mathrm{V/m})^2) \approx F^2 \times \left(0.38\,(\mathrm{dcy/s})/(\mathrm{V/m})^2\right),\end{aligned} \tag{2.20}$$

在 $F > 47\,\mathrm{V/m}$ 范围内，该近似的有效性可达 1%。因此，近似的淬灭 2S 态寿命为

$$\tau_{2\mathrm{S,qu}} \approx 1/F^2 \times \left(2.6\,\mathrm{s}\,(\mathrm{V/m})^2\right). \tag{2.21}$$

请注意，淬灭 2S 能级的最短寿命为 $2\tau_{2\mathrm{P}}$。

2.3 原子-光相互作用

2.3.1 多能级原子的原子-光相互作用主方程

原子-光相互作用的主方程描述了原子与电磁场（EM 场）之间的相互作用，并将电磁场建模为光子库。电磁场由

[1]直流斯塔克位移系数通过求解含时无关的薛定谔方程得到，所使用的是 [40] 的能级能量，因而包括精细结构和超精细结构。不同于上文给出的交流斯塔克频移（其中忽略了精细结构和超精细结构），这将导致不同 2S 超精细能级具有不同的系数：对于 $2\mathrm{S}_{1/2}^{F=1}$， $m = 0$和 $m = \pm 1$ 子能级，在电场沿 z-轴方向时， β_{dc}分别为 352 mHz/(V/m)^2 和 329 mHz/(V/m)^2。[2]对于直流斯塔克位移，淬灭衰变率也取决于所讨论的 2S 超精细能级：对于 $2\mathrm{S}_{1/2}^{F=1}$， $m = 0$和 $m = \pm 1$ 子能级，$\beta_{\mathrm{dc,\ qu}}$分别为 $3.8 \times 10^{-10}\,1/(\mathrm{V/m})^2$ 和 $4.3 \times 10^{-10}\,1/(\mathrm{V/m})^2$。若忽略超精细结构，则 $\Gamma_{2\mathrm{S,\ qu}} \approx F^2 \times \left(0.27\,(\mathrm{dcy/s})/(\mathrm{V/m})^2\right)$，与 [60] 的值相当。

相干激光场和真空电磁场共同组成，因此该描述涵盖了从激光场中吸收、向激光场中的受激发射，以及向自由空间模式中的自发辐射；后者对应于受真空场激发的发射。主方程给出了原子的密度矩阵 $\varrho(t)$在与电磁场耦合过程中随时间的演化。由此得到的关于 $\varrho(t)$各元素的耦合一阶微分方程称为光学布洛赫方程（OBE）。根据 $\varrho(t)$，可以计算算符在时间 t 的期望值，例如原子能级中的布居数。此处重现的主方程推导见 [61]中的第2章。我们将简要概述其推导过程及其中所作的假设。

我们考虑一个具有 $M+1$ 个能级的静止原子，其能量本征态为 $|n\rangle$ n =0，1，.....，M，对应的能量为 $\hbar\tilde{\omega}_n$。未扰动原子由哈密顿量描述：

$$H_0 = \hbar \sum_{n=0}^{M} \tilde{\omega}_n |n\rangle\langle n|. \tag{2.22}$$

每个能级的布居数由 $a_n(t)$ =Tr($\varrho(t)|n\rangle\langle n|$) 给出。氢原子有无限多个束缚态，但对于未被激光激发或未因衰变而布居的能级，可以假设其布居数始终为零，因此我们只需考虑有限个能级。此外，我们忽略与原子电离相对应的连续态。对于给定的精度目标，只要激光强度足够低，这两种近似便成立；本文所考虑的实验情形即属此类。

这里仅考虑能级之间的偶极允许跃迁，因为这类跃迁通常比电偶极禁戒跃迁强许多数量级。对于偶极允许的 2S-nP 跃迁的光谱学研究，这种描述是充分的；但例如，它无法描述1S-2S跃迁的激发。下能级 $|m_i\rangle$ 与上能级 $|n_i\rangle$之间有 K 个偶极允许跃迁， $i = 1$，2，.....，K，其对应的角跃迁频率为 $\omega_{n_i,\ m_i} = (E_{n_i} - E_{m_i})/\hbar$。这些跃迁由唯一索引 i标识，其对应的投影算符为

$$S_i^+ = |n_i\rangle\langle m_i|, \tag{2.23}$$
$$S_i^- = |m_i\rangle\langle n_i|, \tag{2.24}$$

以及角跃迁频率

$$\omega_i \equiv \omega_{n_i,m_i}. \tag{2.25}$$

这里，我们通过以下近似将推导限定于光学跃迁，即， ω_i的数量级为数百太赫兹。

每个跃迁都与一个偶极矩 $\boldsymbol{\mu_i}$ 相关，该偶极矩由电偶极算符的相应矩阵元 $\boldsymbol{\mu}$, $\boldsymbol{\mu_i}$ = $\langle n_i|\boldsymbol{\mu}|m_i\rangle$给出。跃迁频率和偶极矩的大小 $\mu_i = |\boldsymbol{\mu_i}|$决定了跃迁 i的自发辐射率 Γ_i，其表达式为

$$\Gamma_i = \frac{\omega_i^3 \mu_i^2}{3\pi\epsilon_0 \hbar c^3}, \tag{2.26}$$

其中， c 是真空光速， ϵ_0 是真空介电常数。 Γ_i 与爱因斯坦 A 系数相同。

为了描述一对跃迁i 和 j之间通过自发辐射产生的交叉阻尼 $i \neq j$，我们将参数γ_{ij} 定义为

$$\gamma_{ij} = \sqrt{\Gamma_i \Gamma_j} \frac{\boldsymbol{\mu_i} \cdot \boldsymbol{\mu_j}}{\mu_i \mu_j} \quad (i \neq j). \tag{2.27}$$

γ_{ij} 因此取决于偶极矩 $\boldsymbol{\mu_i}$ 与 $\boldsymbol{\mu_j}$的相对取向；偶极矩处于正交方向时，γ_{ij}为零。对于 $i = j$， γ_{ij} 简化为 $\gamma_{ii} \equiv \Gamma_i$。

为简化方程，我们采用相互作用绘景，在该绘景中，未扰动原子的时间演化从密度矩阵 ϱ 转移到态矢量 $|n\rangle$上。利用幺正变换 $U = e^{iH_0 t/\hbar}$，相互作用绘景中的密度矩阵表示为

$$\varrho^{\mathrm{I}} = U \varrho U^{\dagger}. \tag{2.28}$$

注意，由于 H_0 是对角矩阵， U 也为对角矩阵，因此这一变换相当于对每个态矢量乘以一个相位因子。于是，$\mathrm{Tr}(\varrho^{\mathrm{I}}(t)|n\rangle\langle n|) = \mathrm{Tr}(\varrho(t)|n\rangle\langle n|) = a_n(t)$。由于此处我们只关心能级布居数 $a_n(t)$ （及其变化），而荧光信号可由此计算，因此无需变换回 ϱ 来解释结果。

为了推导主方程，必须进行若干近似。 [61] 中的第一个近似是 Born近似，它假设电磁场的状态不会因与原子的相互作用而随时间发生改变。在我们的情况下，这是一个有效的近似，因为激光场中只有极少数光子会被原子吸收，并且原子的自发衰变会将光子分布到电磁场的足够多种模式中，因为不存在首选模式；例如，在腔中情况就会有所不同。

所采用的第二个近似是旋波近似（RWA），在推导过程中忽略了角频率为$\omega_i + \omega_j$ 的快速振荡项。忽略这些项会导致一种模型误差，即布洛赫-西格特频移；对于光学跃迁而言，该频移通常非常小。例如，对于2S-6P跃迁，使用表 2.1中给出的典型参数时，该频移约为1μHz。我们将布洛赫-西格特频移计入非共振交流斯塔克位移中，详见附录C.1。

所作的第三个近似是马尔可夫近似。在此近似下，假设 ϱ 的演化时间尺度远短于原子中辐射过程的时间尺度，而后者又决定了原子-场相互作用的典型关联时间。之所以可以作此近似，是因为辐射过程的时间尺度由角跃迁频率 ω_i给出，而 ϱ 的演化至多以自发辐射率 Γ_i （此处为 $\Gamma_i \sim$几十Mdcy/秒）进行，这些速率小了许多个数量级。

一般来说，可以有 W 个激光场与原子相互作用，其角频率为$\omega_{\mathrm{L},\, l}$，拉比频率为 $\Omega_i^{(l)}$，其中 $l = 1, \ldots, W$。这种相互作用由原子-激光相互作用哈密顿量 H_{L}描述，激光场则表示为相干光场[1]，，其形式为

$$H_{\mathrm{L}}(t) = -\frac{1}{2}\hbar \sum_{l=1}^{W} \sum_{i=1}^{K} \left[\Omega_i^{(l)} S_i^{+} e^{-i(\omega_{\mathrm{L},l} - \omega_i)t} + \mathrm{H.c.} \right]. \tag{2.29}$$

[1]在 [61], 的式（2.65）中给出了 $H_{\mathrm{L}}(t)$的类似表达式，但此处的表达式对应于相位偏移了 $\pi/2$ 的激光场，从而恢复通常所用的光学布洛赫方程，例如 [62]中给出的形式。我们式（2.29）中的 $1/2$ 因子源于旋波近似，因为只保留了计及一半电场的同向旋转项。

跃迁 i 与激光场 l 的拉比频率为

$$\Omega_i^{(l)} = \frac{1}{\hbar}\boldsymbol{\mu_i}\cdot\boldsymbol{E_l}. \tag{2.30}$$

激光的电场为

$$\boldsymbol{E_l} = \bar{\boldsymbol{e}}_l\sqrt{\frac{2I_l}{c\epsilon_0}}, \tag{2.31}$$

其中， $\bar{\boldsymbol{e}}_l$ 是表示激光偏振取向的单位向量， I_l 是激光束的强度。

在本学位论文讨论的实验中，任意时刻只有一台角频率为 ω_{L} 的单频激光与原子相互作用。然而，激光束经过反向反射后，形成一束向前传播的（“+”， $l=1$）光束和一束向后传播的（“–”， $l=2$）光束，两束光的频率相同，为 $\omega_{\mathrm{L}} = \omega_{\mathrm{L},\ 1} = \omega_{\mathrm{L},\ 2}$。在理想的反向反射情况下，两束光的偏振和强度均相同，分别为 $\bar{\boldsymbol{e}} = \bar{\boldsymbol{e}}_1 = \bar{\boldsymbol{e}}_2$ 和 $I = I_1 = I_2$。设传播方向沿 x 轴，激光波数为 $K_{\mathrm{L}} = \omega_{\mathrm{L}}/c$，则两束光的拉比频率为

$$\Omega_i^{(1)} \equiv \Omega_i^{+} = \Omega_{i,0}e^{iK_{\mathrm{L}}x}, \tag{2.32}$$

$$\Omega_i^{(2)} \equiv \Omega_i^{-} = \Omega_{i,0}e^{-iK_{\mathrm{L}}x}, \tag{2.33}$$

$$\Omega_{i,0} = \boldsymbol{\mu_i}\cdot\bar{\boldsymbol{e}}\sqrt{\frac{2I}{\hbar^2 c\epsilon_0}}. \tag{2.34}$$

由此，式（2.29）变为

$$\begin{aligned} H_{\mathrm{L}}(t) &= -\frac{1}{2}\hbar\sum_{i=1}^{K}\left[\Omega_{i,0}\left(e^{iK_{\mathrm{L}}x}+e^{-iK_{\mathrm{L}}x}\right)S_i^{+}e^{-i(\omega_{\mathrm{L}}-\omega_i)t}+\mathrm{H.c.}\right] \\ &= -\hbar\cos(K_{\mathrm{L}}x)\sum_{i=1}^{K}\left[\Omega_{i,0}S_i^{+}e^{-i(\omega_{\mathrm{L}}-\omega_i)t}+\mathrm{H.c.}\right], \end{aligned} \tag{2.35}$$

这对应于原子穿过局域强度为 $I_{\mathrm{loc}} = 4I\cos^2(K_{\mathrm{L}}x)$、周期为激光波长一半 $\lambda = c/\omega_{\mathrm{L}}$的驻波光场。需要指出的是，尽管两束激光在实验室参考系中的频率相同，但沿 x轴以速度 v_x 运动的原子将观测到频率 $\omega_{\mathrm{L}} \pm K_{\mathrm{L}}v_x$，这是由于一阶多普勒频移所致（见式（2.4））。

现在我们可以给出相互作用绘景下原子-光相互作用的主方程表达式，其中包括相干激光场（参见 [61], 中的公式（2.74），这里我们假设不存在热光子[1]）：

$$\frac{\delta\varrho^{\mathrm{I}}}{\delta t} = \frac{1}{i\hbar}\left[H_{\mathrm{L}}(t),\varrho^{\mathrm{I}}\right]+\mathcal{L}^{\mathrm{relax}}(\varrho^{\mathrm{I}}), \tag{2.36}$$

$$\text{with}\quad \mathcal{L}^{\mathrm{relax}}(\varrho^{\mathrm{I}}) = \sum_{i,j=1}^{K}\mathcal{L}_{ij}^{\mathrm{relax}}(\varrho^{\mathrm{I}}), \tag{2.37}$$

$$\text{and}\quad \mathcal{L}_{ij}^{\mathrm{relax}}(\varrho^{\mathrm{I}}) = \gamma_{ij}e^{i(\omega_i-\omega_j)t}\left(-\frac{1}{2}\left(S_i^{+}S_j^{-}\varrho^{\mathrm{I}}+\varrho^{\mathrm{I}}S_i^{+}S_j^{-}\right)+S_j^{-}\varrho^{\mathrm{I}}S_i^{+}\right). \tag{2.38}$$

[1]这对应于 [61]中的 $N=0$ 。

公式（2.36）是林德布拉德形式的主方程。第一项给出了由厄米哈密顿量 H_{L} 产生的时间演化，正如刘维尔方程的量子类比——冯·诺依曼方程所描述的那样。它描述了原子与相干激光场的相互作用，即激光光子的吸收和受激发射。第二项是作用于密度矩阵 ϱ^{I} 的弛豫超算符 $\mathcal{L}^{\mathrm{relax}}$ $\mathcal{L}^{\mathrm{relax}}(\varrho^{\mathrm{I}})$，对应于原子与真空电磁场相互作用所导致的光子自发辐射。按照构造，真空场本身的动力学并未由 ϱ^{I}描述。在本文中，当我们提到光学布洛赫方程时，通常是指公式（2.36）中给出的 ϱ^{I} 各元素所满足的耦合一阶微分方程。

我们注意到，$\mathcal{L}^{\mathrm{relax}}(\varrho^{\mathrm{I}})$不仅包含与 $\gamma_{ii} \equiv \Gamma_i$ 成正比的项，因而描述跃迁 i的光子自发辐射；还包含与γ_{ij}, $i \neq j$成正比的项，描述跃迁 i和 j之间通过自发辐射产生的交叉阻尼。

详细考察$\langle u|\mathcal{L}_{ij}^{\mathrm{relax}}(\varrho^{\mathrm{I}})|v\rangle$ 对 $\delta\varrho^{\mathrm{I}}/\delta t$ 的矩阵元$\langle u|\delta\varrho^{\mathrm{I}}/\delta t|v\rangle$ 的贡献是很有启发性的，其中 $\delta\varrho^{\mathrm{I}}/\delta t$ 来自$\mathcal{L}^{\mathrm{relax}}(\varrho^{\mathrm{I}})$，涉及跃迁 i 和 j。我们区分两种情况：第一，i和 j 具有相同的下能级，$|m_i\rangle \equiv |m_j\rangle$ ($m_i = m_j$)；第二，i 和 j 具有不同的下能级，$|m_i\rangle \neq |m_j\rangle$ ($m_i \neq m_j$)。此时$\langle u|\mathcal{L}_{ij}^{\mathrm{relax}}(\varrho^{\mathrm{I}})|v\rangle$ 由下式给出

$$
\begin{aligned}
&\langle u|\mathcal{L}_{ij}^{\mathrm{relax}}(\varrho^{\mathrm{I}})|v\rangle \\
&= \gamma_{ij} e^{i(\omega_i-\omega_j)t}\left(-\frac{1}{2}\delta_{m_i,m_j}\left(\delta_{u,n_i}\langle n_j|\varrho^{\mathrm{I}}|v\rangle + \delta_{v,n_j}\langle u|\varrho^{\mathrm{I}}|n_i\rangle\right) + \delta_{u,m_j}\delta_{v,m_i}\langle n_j|\varrho^{\mathrm{I}}|n_i\rangle\right) \\
&= \gamma_{ij} e^{i(\omega_i-\omega_j)t}\begin{cases} -\frac{1}{2}\left(\delta_{u,n_i}\langle n_j|\varrho^{\mathrm{I}}|v\rangle + \delta_{v,n_j}\langle u|\varrho^{\mathrm{I}}|n_i\rangle\right) + \delta_{u,m_j}\delta_{v,m_i}\langle n_j|\varrho^{\mathrm{I}}|n_i\rangle & m_i = m_j \\ \delta_{u,m_j}\delta_{v,m_i}\langle n_j|\varrho^{\mathrm{I}}|n_i\rangle & m_i \neq m_j. \end{cases}
\end{aligned}
\tag{2.39}
$$

对于第一种情况，考虑跃迁 i 和 j的自发衰变导致（共同）下能级布居数的变化，$\langle m_i|\mathcal{L}_{ij}^{\mathrm{relax}}(\varrho^{\mathrm{I}})|m_i\rangle \propto \gamma_{ij}\langle n_j|\varrho^{\mathrm{I}}|n_i\rangle$。对于检测荧光的实验而言，这个矩阵元尤其值得关注，因为它等于这些衰变产生的荧光信号。对于 $i = j$，这一项仅描述上能级 $|n_i\rangle$的自发衰变。然而，对于 $i \neq j$，这一项则成为交叉阻尼项，并描述荧光信号的一个额外贡献，该贡献与 γ_{ij} 以及两个上能级之间的相干性$\langle n_j|\varrho^{\mathrm{I}}|n_i\rangle$均成正比。例如，从共同初始能级同时激发上能级（共振或非共振）即可产生这种相干性。对于本文讨论的实验，这种形式的项使两个不同精细结构流形的激发及其后续衰变之间产生量子干涉（见第2.3.2.3节）。

在第二种情况下，唯一非零的矩阵元是 $\langle m_j|\mathcal{L}_{ij}^{\mathrm{relax}}(\varrho^{\mathrm{I}})|m_i\rangle \propto \gamma_{ij}\langle n_j|\varrho^{\mathrm{I}}|n_i\rangle$，它描述了跃迁 i 与 j的不同下能级之间相干性的演化。因此，这种相干性是由两个跃迁之间的自发辐射交叉阻尼所诱导的。在上能级也彼此不同时，这种情况描述了上能级间的相干性向下能级的转移；在之后考虑原子-光相互作用中的原子与光子间动量交换时，这将发挥重要作用（见第 3.4.1 节）。然而，与第一种情况不同，对于来自具有不同下能级的两种衰变的荧光信号，不存在量子干涉项（即$\langle m_i|\mathcal{L}_{ij}^{\mathrm{relax}}(\varrho^{\mathrm{I}})|m_i\rangle = \langle m_j|\mathcal{L}_{ij}^{\mathrm{relax}}(\varrho^{\mathrm{I}})|m_j\rangle$ {v40>），无论这些衰变是否具有共同的上能级。

在 [61], 中给出的 $\delta\varrho^{\mathrm{I}}/\delta t$ 对应表达式中，还存在与系数 δ_{ij} 成正比的项，其中指标 i,j 同样标识原子跃迁。与 δ_{ii} 成正比的项对应于真空场耦合导致的能级位移。然而，这些能级位移已吸收到此处使用的能级能量 ω_i 中，因为它们已包含在前文讨论的量子电动力学修正中。与 $\delta_{ij}, i \neq j$ 成正比的项描述了由真空场驱动的原子跃迁之间的动力学耦合。然而，对于氢原子可以证明，当只考虑不同主量子数 n 的流形之间的（光学）跃迁时，这些贡献会相互抵消 [63], ，本处正是如此。

2.3.2 2S-6P跃迁的量子干涉与大模型

根据上一节所述的步骤，推导出了一个用于描述本文所述2S-6P跃迁光谱学的模型，如图2.1所示。由于该模型包含所有相关的原子能级，因此本文将其称为大模型。类似的模型曾用于2S-4P测量（见附录A）和 [26]的1S-3S测量。大模型基于Arthur Matveev的研究工作。

2.3.2.1 激光驱动激发

假设原子最初处于2S态$^{F=0}_{1/2}$, $m_F=0$能级，并根据第2.2.1节的说明，将其视为稳定态。通过对原子束采用单独的模型来考虑对该初始能级的光学激发，相关描述见第5.2节。光谱激光器的反向传播光束沿 z轴线偏振，将初始能级与6P态$^{F=1}_{1/2}$, $m_F=0$和6P态$^{F=1}_{3/2}$, $m_F=0$能级耦合。与实验中一样，光谱激光器频率在两个对应跃迁中的一个上扫描，即2S-6P$_{1/2}$或2S-6P$_{3/2}$ 跃迁。对于所选的初始能级和激光偏振，角动量守恒禁止了所有其他通往6P能级组的激发。然而，通过衰变，2S态$^{F=1}_{1/2}$能级可能被布居；这些能级与6P能级组非共振耦合。因此，大模型包含了从2S 流形到6P 能级组的所有偶极允许激发，以及相应的能级。

大模型未考虑激光从 2S态（6P 能级）到主量子数为 $n \neq 6$ （$n \neq 2$）的 nP（nS 和 n D）能级的非共振耦合。相反，由此产生的非共振交流斯塔克位移和光电离在附录 C 中分别进行处理，但发现，在当前的准确度水平以及本文所使用的激光强度下，它们可以忽略不计（见表 2.1）。

2.3.2.2 自发衰变

从 6P$^{F=1}_{1/2}$, $m_F=0$和 6P$^{F=1}_{3/2}$, $m_F=0$能级出发的电偶极允许衰变，无论是直接衰变还是经由级联跃迁，最终都会到达 1S态或 2S 流形，因此存在许多不同的可能衰变路径；最终衰变分别总是莱曼衰变或巴耳末衰变。衰变过程中，原子的角动量变化 $\hbar$，这是动量守恒所要求的，因为发射光子的自旋为 1。光子角动量在 z轴上的投影为 $q\hbar$，其中 $q=-1$，0，1。因此，用于标识原子超精细子能级的量子数 m_F变化 $\Delta m_F=-q$，即 $m_F \to m_F-q$。

表 2.2：对于最初处于 $6P_{1/2}^{F=1}$, $m_F = 0$ 能级的原子，莱曼（Ly）和巴耳末（Ba）衰变路径（即最终衰变分别从 n'P能级到 nS能级的衰变级联）的概率 p 和数量 N，分别对应 $n = 1$ 和 $n = 2$。衰变路径按最终衰变的球分量 $q = -\Delta m_F = 0,\ \pm 1$ 分组，分别对应 π，$\sigma^{\pm}$ 衰变。p 表示所考虑的衰变路径的强度与所有通向 1S态和 2S能级的偶极允许衰变路径总强度之比。 N 包括通向最终衰变起始所在的n'P能级的可能路径数量。不存在通向 5P能级的衰变路径，因此没有 Ly-δ或 Ba-γ 衰变。

	n	n'	能量	π ($q=0$)		$\sigma^{\pm}$ ($q=\pm 1$)		总和 ($\sigma^- + \pi + \sigma^+$)	
			(eV)	p (%)	N	p (%)	N	p (%)	N
Ly-α	1	2	10.20	1.910	4479	2.188	4272	6.287	13 023
Ly-β	1	3	12.09	0.339	108	0.387	106	1.113	320
Ly-γ	1	4	12.75	0.068	54	0.078	53	0.223	160
Ly-ϵ	1	6	13.22	26.843	1	26.843	1	80.528	3
Ly	1			29.160	4642	29.496	4432	88.152	13 506
Ba-α	2	3	1.89	0.046	108	0.052	106	0.149	320
Ba-β	2	4	2.55	0.010	54	0.011	53	0.032	160
Ba-δ	2	6	3.02	3.889	1	3.889	1	11.667	3
Ba	2			3.952	160	3.952	160	11.848	483
Sum				33.448	4805	33.448	4592	100.000	13 989

表 2.3：与表 2.2 相同，但适用于初始处于 $6P_{3/2}^{F=1}$, $m_F = 0$ 能级的原子。

	n	n'	能量	π ($q=0$)		$\sigma^{\pm}$ ($q=\pm 1$)		总和 ($\sigma^- + \pi + \sigma^+$)	
			(eV)	p (%)	N	p (%)	N	p (%)	N
Ly-α	1	2	10.20	2.087	6201	2.100	5898	6.287	17 997
Ly-β	1	3	12.09	0.371	134	0.371	130	1.113	394
Ly-γ	1	4	12.75	0.074	67	0.074	65	0.223	197
Ly-ϵ	1	6	13.22	53.685	1	13.421	1	80.528	3
Ly	1			56.218	6403	15.967	6094	88.151	18 591
Ba-α	2	3	1.89	0.005	134	0.005	130	0.149	394
Ba-β	2	4	2.55	0.011	67	0.011	65	0.032	197
Ba-δ	2	6	3.02	7.778	1	1.945	1	11.667	3
Ba	2			7.839	202	2.005	196	11.849	594
Sum				64.057	6605	17.972	6290	100.000	19 185

分别将 $q = -1,0,1$ 的衰变称为 σ^-、π、σ^+ 衰变[1]。按照 q 的值对衰变进行分类，相当于将电偶极算符 $\boldsymbol{\mu}$ 分解为具有球分量 $\boldsymbol{\mu}_q$ [29]的球谐函数。为简洁起见，此处将 q 称为

[1]此处采用的定义是：沿正 z轴发射的光，对于 σ^+ (σ^-)衰变，绕 z轴呈右旋（左旋）圆偏振。沿其他任何发射方向，光都不是纯圆偏振。

表 2.4：莱曼（Ly）和巴耳末（Ba）衰变路径的概率 p 和数量 N，即对于分别对应 $n = 1$ 和 $n = 2$ 的情况，最终衰变从 n' P能级跃迁至 n S能级的衰变级联；初始时原子处于 $6P_{1/2}^{F=1}$, $m_F = 0$ 能级。与表 2.2 类似，但衰变路径按到达的最终超精细能级分组。

	n	n'	$nS_{1/2}^{F=0}, m_F = 0$		$nS_{1/2}^{F=1}, m_F = 0$		$nS_{1/2}^{F=1}, m_F = \pm 1$	
			p (%)	N	p (%)	N	p (%)	N
Ly-α	1	2	1.774	2623	1.177	3528	1.668	3436
Ly-β	1	3	0.314	72	0.209	76	0.295	86
Ly-γ	1	4	0.063	36	0.042	38	0.059	43
Ly-ϵ	1	6	26.843	1	0	0	26.843	1
Ly	1		28.994	2732	1.427	3642	28.865	3566
Ba-α	2	3	0.042	72	0.028	76	0.004	86
Ba-β	2	4	0.009	36	0.006	38	0.008	43
Ba-δ	2	6	3.889	1	0	0	3.889	1
Ba	2		3.940	109	0.034	114	3.937	130

表 2.5：与表 2.4 相同，但适用于初始处于 $6P_{3/2}^{F=1}$, $m_F = 0$ 能级的原子。

	n	n'	$nS_{1/2}^{F=0}, m_F = 0$		$nS_{1/2}^{F=1}, m_F = 0$		$nS_{1/2}^{F=1}, m_F = \pm 1$	
			p (%)	N	p (%)	N	p (%)	N
Ly-α	1	2	2.759	3557	1.011	4916	1.258	4762
Ly-β	1	3	0.491	86	0.178	96	0.222	106
Ly-γ	1	4	0.098	43	0.036	48	0.044	53
Ly-ϵ	1	6	53.685	1	0	0	13.421	1
Ly	1		57.034	3687	1.225	5060	14.946	4922
Ba-α	2	3	0.066	86	0.024	96	0.03	106
Ba-β	2	4	0.014	43	0.005	48	0.006	53
Ba-δ	2	6	7.778	1	0	0	1.945	1
Ba	2		7.858	130	0.029	144	1.981	160

称为球分量。发射光子的角分布 $p(\theta)$，其中θ 是与 z轴的夹角，同样受角动量守恒定律支配 [64]。由此可得

$$p(\theta) = \frac{3}{8\pi}\left(1 - \cos^2(\theta)\right) \tag{2.40}$$

对于 π ($q = 0$)衰变，且

$$p(\theta) = \frac{3}{16\pi}\left(1 + \cos^2(\theta)\right) \tag{2.41}$$

对于 $\sigma^{\pm}$ ($q = \pm 1$)衰变。

表 2.2 和表 2.3 分别按照球分量 q 列出了从 $6P_{1/2}^{F=1}$, $m_F = 0$和 $6P_{1/2}^{F=1}$, $m_F = 0$能级出发的所有偶极允许衰变路径。同样，

表 2.4 和表 2.5 列出了这两个激发能级的相同衰变路径，但按照到达的最终超精细能级分组。所有列出的 13 989 条或 19 185 条衰变路径，以及涉及的中间能级和最终能级，均纳入大模型中。附录 B 中给出了 4P 激发能级对应的表 B.2 至表 B.5。

2.3.2.3 量子干涉

初始能级到荧光光子探测之间存在两条可能路径，分别经过不同的精细结构流形；这两条路径之间的量子干涉（QI）会导致观测到的荧光信号出现畸变 [29, 45]。第一条（第二条）路径包括激光驱动激发至 $6P_{1/2}^{F=1},\, m_F=0$（$6P_{3/2}^{F=1},\, m_F=0$）能级，随后发生球分量为 q 的衰变。由于激光在任何时刻都只接近其中一个激发能级的共振，而这些能级在能量上相隔 $\Delta = \Delta\nu_{\mathrm{FS}}(6P) \approx 100\times\Gamma$，因此非共振路径实际上会对共振路径产生微扰。2S-nP 跃迁所产生的畸变线型将在附录A和 [29] 中详细讨论。文中还基于 Kramers-Heisenberg公式推导了相应的线型模型——Fano-Voigt线型，该公式描述了原子电子对光子的散射 [65]。本文不采用这一线型模型，而是使用大模型来描述并校正量子干涉造成的线形畸变。

量子干涉由激发能级的衰变 i 和 j 之间通过自发辐射产生的交叉阻尼所促成，这可由主方程中相应的交叉阻尼项描述（见式（2.36）和（2.39）），这些项与γ_{ij} 成正比（见式（2.27））。如果衰变 i 和 j 对应不同的球分量q，其偶极矩$\boldsymbol{\mu}_i$ 和$\boldsymbol{\mu}_j$ 彼此正交，且γ_{ij} 为零，因此不会发生干涉。由此，不同 q的衰变会分别产生干涉效应；其荧光信号及相应的特征角发射分布（如式（2.40）和（2.41）所示）可以非相干地相加。对于通向不同终态能级的衰变，其荧光信号中不会发生干涉，因为此时各条路径可以区分，相应的交叉阻尼项为零，但γ_{ij}不为零（见式（2.39）及其后续讨论）。

如上所述，量子干涉可在激发能级的任何衰变所产生的荧光信号中观测到。原则上，来自中间能级并形成衰变级联的后续衰变也会受到量子干涉的影响。然而，随着衰变级联的进行，干涉往往会逐渐消失，因为其中涉及许多中间能级。

此外，除了通过具有相同主量子数 n 的任一精细结构流形的两条路径外，还存在经过具有不同主量子数 $n' \neq n$ 的远失谐路径P能级n'。然而，由于这些能级与共振能级之间的能量间隔为 $\Delta > 4\,000\,000\times\Gamma$，且量子干涉导致的线形畸变近似按 Γ^2/Δ [29] 缩放，因此这些路径产生的影响可以忽略不计。

在此描述的实验中，激发能级直接经莱曼-ϵ 衰变至1S基态能级的过程约占探测到的荧光信号总量的97%（见第4.6.5节），因此几乎完全受到量子干涉畸变的影响。由于量子干涉畸变和角发射分布都取决于 q，观测到的量子干涉畸变也取决于荧光探测的立体角 [29]。只有在全覆盖探测的情况下，即探测立体角为 4π时，畸变才会在光抽运效应可忽略的极限下消失。这是可能的，因为

在此使用的激发方案中，荧光信号在 π 和 $\sigma^{\pm}$ 衰变中的畸变符号相反。我们在2S-4P测量中详细研究了线形畸变对探测条件的依赖（见附录A）。对于本文讨论的2S-6P测量，我们选择了探测立体角以及线性激光偏振相对于探测器组件的取向，以尽量减小量子干涉畸变及其相关谱线位移。

2.3.2.4 光学布洛赫方程的推导

根据激发和衰变列表以及涉及的全部150个能级，使用式（2.36）推导出大模型的光学布洛赫方程（OBEs）。值得注意的是，这些方程包含与γ_{ij}、 $i \neq j$成正比的交叉阻尼项，由此产生量子干涉。能级能量取自 [40], ，而将原子单位转换为国际单位制所需的物理常数取自 [46]。为了加快数值积分，光学布洛赫方程中移除了一些不影响系统动力学的快速旋转项，因为这些项的影响要么很小，要么会相互抵消。上述即将发表的出版物将详细介绍这一过程。

为了模拟实验中观测到的荧光，针对每种莱曼系或巴耳末系衰变以及每个球分量 q ，分别添加信号方程。每个信号方程定义为所有相关衰变及其交叉阻尼项所贡献的总和，即上能级自发衰变导致相应下能级布居数的增加，如式（2.39）所示。这样，可以将实验中的有效探测立体角纳入考虑：对具有不同 q 的信号，按其角发射分布（见式（2.40）和式（2.41））与通过模拟得到的荧光探测空间探测效率的乘积进行加权（见第4.6.6节）。同样，对应不同频率荧光的信号也可以根据荧光探测的光谱灵敏度进行加权（见第4.6.5节）。

最后，将所得方程分为实部和虚部，并移除对于上述初始态始终为零的方程。总的来说，该过程得到由 732 个实值耦合微分方程组成的光学布洛赫方程，其中包括 42 个信号方程。随后，针对给定轨迹（即一个原子穿过光谱激光束时所经过的路径），以及光谱激光器的不同频率失谐$\Delta\nu_{\mathrm{2S\text{-}6P}}$ ，对光学布洛赫方程进行数值积分，具体细节见第 5.3 节。

此处所述的大模型不包含外部电场或磁场，但二者均可纳入哈密顿量。针对电场已完成这一处理，以模拟直流斯塔克位移，相关讨论见第 2.4 节。

2.4 通过荧光观测到的共振的直流斯塔克位移 e

静电场与激光的时变电场一样，会耦合不同的原子能级。这种耦合会导致能级能量发生直流斯塔克位移，并产生新的本征态；这些本征态包含其他能级混入相关能级的成分。

能量为 $E(|1\rangle)$和 $E(|2\rangle)$的能级 $|1\rangle$ 与 $|2\rangle$ 之间的耦合，会产生新的本征态 $|1'\rangle$ 和 $|2'\rangle$ ，其能量分别为 $E(|1'\rangle)$和 $E(|2'\rangle)$。由能级 $|1\rangle$ 与 $|2\rangle$之间的电场诱导耦合形成的能级 $|1'\rangle$，其能量在最低阶近似下由

定态二阶微扰理论给出，为 [64]

$$E(|1'\rangle) = E(|1\rangle) - \frac{|\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{F}|^2}{\Delta E}, \tag{2.42}$$

其中 $\Delta E = E(|2\rangle) - E(|1\rangle)$。 $\boldsymbol{\mu}$ 是 $|1\rangle$ 与 $|2\rangle$之间跃迁的偶极矩（见第 2.3.1 节），而 $\boldsymbol{F}$ 是施加的静电场，其场强为 $F = |\boldsymbol{F}|$。能级 $|2'\rangle$的能量也有类似的表达式。未受扰动的能级 $|1\rangle$ 与受扰动的能级 $|1'\rangle$ 之间以频率为单位的能量差，称为能级 $|1\rangle$的直流斯塔克位移，

$$\Delta\nu_{\mathrm{dc}}(|1\rangle) = \frac{E(|1'\rangle) - E(|1\rangle)}{h} = -\frac{|\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{F}|^2}{h\Delta E} = \beta_{\mathrm{dc}}(|1\rangle)F^2. \tag{2.43}$$

同样，$\Delta\nu_{\mathrm{dc}}(|2\rangle) = -\Delta\nu_{\mathrm{dc}}(|1\rangle)$。$\beta_{\mathrm{dc}}(|1\rangle)$是能级 $|1\rangle$的直流斯塔克位移二次系数，该系数通常取决于 $\boldsymbol{\mu}$ 与 $\boldsymbol{F}$的相对取向。位移与耦合能级之间能量差的倒数以及电场强度 F的平方成正比；若 $\Delta E > 0$，则 $\Delta\nu_{\mathrm{dc}}(|1\rangle)$为负，否则为正。也就是说，随着 F增大，$|1'\rangle$ 与 $|2'\rangle$ 之间的能量差也会增大。

同样，利用定态二阶微扰理论，新的本征态可表示为

$$|1'\rangle = \left(1 - \frac{1}{2}\frac{|\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{F}|^2}{\Delta E^2}\right)|1\rangle - \frac{\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{F}}{\Delta E}|2\rangle = a|1\rangle - b|2\rangle, \tag{2.44}$$

$$|2'\rangle = \left(1 - \frac{1}{2}\frac{|\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{F}|^2}{\Delta E^2}\right)|2\rangle + \frac{\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{F}}{\Delta E}|1\rangle = a|2\rangle + b|1\rangle, \tag{2.45}$$

其中 $|a|^2 + |b|^2 = 1 + \mathcal{O}(|\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{F}|^4/\Delta E^4)$.

现在，考虑这样的情况：$|1$ 是某个偶极允许跃迁的激发能级，该跃迁从初始能级 $|\mathrm{i}$ 出发，能量差为 $E(|1) - E(|\mathrm{i})$ $\gg |\Delta E|$。由于按定义二者具有相同的宇称，$|\mathrm{i}$ 与 $|2$ 之间不存在偶极矩，因此若不施加电场，只有跃迁 $|\mathrm{i}$ $\rightarrow$ $|1$ 是偶极允许的。然而，若施加电场，新的本征态 $|1'$ 和 $|2'$ 都含有来自 $|1$ 的贡献。因此，跃迁 $|\mathrm{i}\rangle \rightarrow |1'\rangle$ 和跃迁 $|\mathrm{i}\rangle \rightarrow |2'\rangle$ 均为允许跃迁；在不存在饱和效应时，与 $|1'\rangle$ 相比，$|2'\rangle$ 的相对激发概率为 $|b|^2/|a|^2 = |\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{F}|^2/\Delta E^2 + \mathrm{O}(|\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{F}|^4/\Delta E^4)$。

跃迁频率的有效直流斯塔克位移取决于频率的确定方式。如果 $|\mathrm{i}\rangle \rightarrow |1'\rangle$ 和 $|\mathrm{i}\rangle \rightarrow |2'\rangle$ 跃迁的共振在频率上明显分离，则在忽略共振远翼斜率产生的非相干谱线位移以及量子干涉产生的相干谱线位移的情况下，可以分别确定它们的跃迁频率。此时，所确定的 $|\mathrm{i}\rangle \rightarrow |1'\rangle$（$|\mathrm{i}\rangle \rightarrow |2'\rangle$）跃迁的频率将发生 $\Delta\nu_{\mathrm{dc}}$（$|1\rangle$）（$\Delta\nu_{\mathrm{dc}}$（$|2\rangle$）$= -\Delta\nu_{\mathrm{dc}}$（$|1\rangle$））的频移。也就是说，跃迁频率的频移对应于能级能量的频移。

然而，如果这些共振在频率上并未充分分离，测量结果将是跃迁频率及其相关直流斯塔克位移的某种组合。例如，若测量确定的是两个共振的质心，则测得的跃迁频率将偏离该跃迁的未受扰频率，偏移量为

$|\mathrm{i}\rangle \to |1\rangle$ 跃迁，偏移量为

$$\begin{aligned}\Delta\nu_{\mathrm{dc}}(\mathrm{COM}) &= |a|^2\Delta\nu_{\mathrm{dc}}(|1\rangle) + |b|^2\left(\frac{\Delta E}{h} + \Delta\nu_{\mathrm{dc}}(|2\rangle)\right)\\ &= -\left(1-\frac{1}{2}\frac{|\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{F}|^2}{\Delta E^2}\right)^2\frac{|\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{F}|^2}{h\Delta E} + \frac{|\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{F}|^2}{\Delta E^2}\left(\frac{\Delta E}{h} + \frac{|\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{F}|^2}{h\Delta E}\right)\\ &= \mathcal{O}\left(\frac{|\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{F}|^4}{\Delta E^4}\right).\end{aligned} \tag{2.46}$$

也就是说，在主导阶，直流斯塔克位移相互抵消，未微扰的跃迁频率得以恢复。因此，观测到的共振的频移并不等于能级能量的频移，而可能小得多。

在真实的原子系统中，能级 $|1\rangle$ 和 $|2\rangle$ 的寿命有限，因此线宽非零，而且二者的线宽也不一定相同。定态微扰理论无法纳入寿命；如果耦合能级之间的频率差接近其线宽，则上述推导的表达式不再适用。此时需要考虑系统的时间演化，例如使用光学布洛赫方程（OBE）。

激发能级通常也不会衰变到相同的末态，而且在给定的实验装置中，发出的荧光通常也不会以相同的效率被探测到；也就是说，共振的相对权重取决于实验实现。此外，可能需要考虑不止一个微扰能级 $|2\rangle$ 。更复杂的是，若干共振组合后的位移不一定由质心决定。在本文讨论的实验中，跃迁频率是通过将线型函数拟合到按离散频率失谐采样的共振上来确定的，这是一个非线性过程。不过，上述两种极限情况仍有启发意义；事实上，2S-6P$_{1/2}$ 跃迁的直流斯塔克位移近似等于2S-6P$_{1/2}$ 能级的直流斯塔克位移，而2S-6P$_{3/2}$ 跃迁所受的直流斯塔克位移则远小于根据6P$_{3/2}^{F=1}$ 能级的位移所预期的值。

6P$_{1/2}^{F=1}$, $m_F=0$ 能级的直流斯塔克位移主要源于与6S$_{1/2}^{F=0}$和6S$_{1/2}^{F=1}$能级的耦合；这两个能级与6P$_{1/2}^{F=1}$能级的频率间隔分别为34 MHz和41 MHz，因此均在自然线宽 $\Gamma = 3.90$ MHz和观测线宽 $\Gamma_{\mathrm{F}} \lesssim 10$MHz之外。于是，观测到的2S-6P$_{1/2}$ 跃迁的直流斯塔克位移 $\Delta\nu_{\mathrm{dc}}$(2S-6P$_{1/2}$)近似等于6P$_{1/2}^{F=1}$, $m_F=0$ 能级的直流斯塔克位移，减去较小得多的初始2S$_{1/2}^{F=0}$, $m_F=0$ 能级的直流斯塔克位移（见第2.2.6节）。由此得到

$$\Delta\nu_{\mathrm{dc}}(2\mathrm{S}\text{-}6\mathrm{P}_{1/2}) = \left(\beta_{\mathrm{dc}}(6\mathrm{P}_{1/2}^{F=1},\, m_F=0)F^2 - \beta_{\mathrm{dc}}(2\mathrm{S}_{1/2}^{F=0},\, m_F=0)\right)F^2, \tag{2.47}$$

其数值 β_{dc} 见表 2.6。图6.10（A、C）展示了实验中观测到的2S-6P$_{1/2}$ 跃迁位移示例。

另一方面，6P$_{3/2}^{F=1}$, $m_F=0$ 能级的直流斯塔克位移主要源于与6D$_{3/2}^{F=2}$和6D$_{3/2}^{F=1}$能级的耦合；这两个能级与6P$_{3/2}^{F=1}$能级的频率间隔分别仅为57 千赫兹和 -469 千赫兹。也就是说，它们都处于6P$_{3/2}^{F=1}$能级的线宽范围内，因此预计观测到的2S-6P$_{3/2}$ 跃迁位移不会

表 2.6：相关2S和6P能级的直流斯塔克二次位移系数 β_{dc}, $\beta_{\mathrm{dc},\pi}$和$\beta_{\mathrm{dc},\sigma^\pm}$。$\beta_{\mathrm{dc}}$通过二阶微扰理论计算，给出能级能量的位移，适用于$2S_{1/2}^{F=0}$, $m_F=0$和$6P_{1/2}^{F=1}$, $m_F=0$能级。另一方面，$\tilde{\beta}_{\mathrm{dc},\pi}$和$\tilde{\beta}_{\mathrm{dc},\sigma^\pm}$是根据2S-6P3/2跃迁观测到的共振位移的初步模拟（使用大模型；$|\boldsymbol{F}| = 0\,\mathrm{V/m}\ldots1.2\,\mathrm{V/m}$）得出的。$\beta_{\mathrm{dc},\pi}$和$\beta_{\mathrm{dc},\sigma^\pm}$分别给出 π 衰变和 $\sigma^\pm$ 衰变产生的荧光信号位移（此处为所有莱曼衰变的简单总和）。若所有衰变均以相同效率探测，则观测到的位移由 $\pi+2\sigma^\pm$给出。静电场 $\boldsymbol{F}$ 取为与线偏振激光的电场 $\boldsymbol{E}$ 平行（$\parallel$）或垂直（$\perp$）。详情见正文。

能级	取向 $\boldsymbol{F}$	β_{dc}	$\tilde{\beta}_{\mathrm{dc},\pi}$	$\tilde{\beta}_{\mathrm{dc},\sigma^\pm}$	$\tilde{\beta}_{\mathrm{dc},\pi}+2\tilde{\beta}_{\mathrm{dc},\sigma^\pm}$
		(赫兹/(V/m)^2)			
2S态$_{1/2}^{F=0}$, $m_F=0$	—	0.442	—	—	—
$6\mathrm{P}^{F=1/2}_{m_F=0}$,	$\boldsymbol{F}\parallel\boldsymbol{E}$	−1751	—	—	—
	$\boldsymbol{F}\perp\boldsymbol{E}$	−1505	—	—	—
$6\mathrm{P}^{F=3/2}_{m_F=0}$,	$\boldsymbol{F}\parallel\boldsymbol{E}$	−33 602	−370	−441	−411
	$\boldsymbol{F}\perp\boldsymbol{E}$	−167	1215	−2165	−115

对应于 $6\mathrm{P}_{3/2}^{F=1}$, $m_F=0$能级的位移。这也意味着，如果施加足够强的电场，观测到的共振会分裂为多个分量，其中来自 $6\mathrm{D}_{3/2}^{F=2}$能级的贡献占主导，因为激发概率按 $1/\Delta E^2$ 缩放。

为了求出荧光信号中观测到的 2S-6P3/2 跃迁的直流斯塔克位移，需要将静电场引起的耦合纳入大模型的光学布洛赫方程（见第 2.3.2 节）。请注意，为此需要加入原本不会发生耦合的能级，即 6S 和 6D能级，以及它们衰变到的、可能尚未纳入考虑的能级。随后，针对不同的电场强度F 求解光学布洛赫方程，并令电场分别沿激光场的电场矢量E 方向或与其垂直。对于 $F\gtrsim 5\mathrm{V/m}$ 的场强，可以观察到共振分裂为两个分量，并且随着 F 增大，这两个分量向相反方向移动。实验中也清楚地观察到了这一现象，如图 6.10 (B) 所示。

建模之所以复杂，是因为不同莱曼衰变以及衰变的不同球分量所产生的线型通常各不相同，即 π 和 $\sigma^\pm$ 衰变。与第 2.3.2 节讨论的量子干涉引起的谱线位移相同，观测到的直流斯塔克位移因此取决于不同莱曼衰变的光谱探测效率，也取决于衰变不同辐射方向图所导致的空间探测效率，以及激光电场 $\boldsymbol{E}$ 相对于探测器组件的取向。对于此处讨论的初步模拟，每种球分量的信号均采用所有莱曼衰变的简单总和，并将进一步研究光谱探测效率的影响。分别对与 π 和 $\sigma^\pm$ 衰变对应的线型进行拟合，使用线型函数提取共振频率 ν_0。随后，ν_0 与 F 的关系给出给定球分量下 2S-6P3/2 跃迁的直流斯塔克位移。对于此处采用的实验参数以及所研究的场强范围 $F=0\mathrm{V/m}\ldots1.2\,\mathrm{V/m}$，$\nu_0$位移随 F近似呈二次变化；对 ν_0 与 F 的关系进行抛物线拟合，以提取 $\tilde{\beta}_{\mathrm{dc},\,\pi}$ 和 $\tilde{\beta}_{\mathrm{dc},\,\sigma^\pm}$ 的有效直流斯塔克位移系数，分别对应 π 和 $\sigma^\pm$ 衰变。

这些系数还取决于激光功率、共振频率采样以及线型函数。图6.10（D）展示了这种二次行为的一个实验示例。

表 2.6 给出了原子以 $v_{\mathrm{typ}} = 200\mathrm{m/s}$ 的速度、以 $\delta\alpha = 2\mathrm{mrad}$ 的角度穿过 2S-6P 光谱激光束时的结果。采用了 $P_{\mathrm{2S\text{-}6P}} = 10\mu\mathrm{W}$ 的光谱激光功率、均匀频率采样和沃伊特线型。$\beta_{\mathrm{dc},\ \pi}$和 $\beta_{\mathrm{dc},\ \sigma^{\pm}}$ 比电场取向与激光场平行（$\boldsymbol{F} \parallel \boldsymbol{E}$）时的 β_{dc} 小两个数量级。如果没有这种部分抵消，由 β_{dc} 给出的直流斯塔克位移无疑会成为实验的限制因素。对于垂直取向（$\boldsymbol{F} \perp \boldsymbol{E}$），情况则相反，$\beta_{\mathrm{dc},\ \pi}$ 和$\beta_{\mathrm{dc},\ \sigma^{\pm}}$ 比 β_{dc}大一个数量级，但后者本身就相对较小。当光谱激光功率增大至三倍时，系数 $\beta_{\mathrm{dc},\ \pi}$和 $\beta_{\mathrm{dc},\ \sigma^{\pm}}$ 的变化小于 15%。总的来说，通过荧光观测到的 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁的直流斯塔克位移，与 2S-6P$_{1/2}$ 跃迁的直流斯塔克位移相似。

在此处讨论的实验中，杂散电场及其导致的直流斯塔克位移是在原位确定的。为此，沿给定方向施加强度为 $F = 10\,\mathrm{V/m} \ldots 45\ \mathrm{V/m}$ 的偏置电场（见第4.6.7节），并测量共振频率随 F 的变化。随后，用以下形式的抛物线对这些数据进行拟合：

$$\nu_0(F) = \tilde{\beta}_{\mathrm{dc}}(F - \Delta F)^2 + \nu_0(F = 0\,\mathrm{V/m}), \tag{2.48}$$

其中，ΔF 为杂散电场的强度，β_{dc} 为沿所施加偏置场方向的有效二次直流斯塔克位移系数。据此，沿给定偏置场方向由杂散电场引起的直流斯塔克位移可通过下式求得：

$$\Delta\nu_{\mathrm{dc,2S\text{-}6P}} = \tilde{\beta}_{\mathrm{dc}}\Delta F^2. \tag{2.49}$$

对全部三个方向重复这一过程，并将三个直流斯塔克位移相加，得到总直流斯塔克位移。图6.10（C、D）展示了2S-6P测量中这一过程的示例。

根据2S-6P测量期间的这类测定，对于不同方向的2S-6P$_{1/2}$ 跃迁，β_{dc} 约在 -1700 Hz/(V/m)^2 至 -1470Hz/(V/m)^2 之间，与上述数值吻合良好。对于2S-6P$_{3/2}$ 跃迁，所有方向上的 $\tilde{\beta}_{\mathrm{dc}}$ 约为 -400Hz/(V/m)^2，这表明观测到的共振具有远低于能级能量位移的有效直流斯塔克位移系数。仍有待开展一项详细研究，以考察光谱和空间探测效率，以及所使用的不同光谱激光功率。

最后，偶极矩 $\boldsymbol{\mu}$和能级间隔 ΔE 在具有相同n 的能级之间分别按与 n^2 和 n^{-3}相同的 nl 标度变化 [38]。因此，2S-nP 跃迁的直流斯塔克位移近似按 n^7标度变化。对于 $n = 4 \to n = 6$，这意味着对杂散电场的灵敏度提高了 17 倍，这也是为什么在 2S-6P测量中必须原位测定这些电场，而在 2S-4P测量中只需估算位移即可。

第3章

光力频移

本学位论文所研究实验的基本原理是：让一束氢原子（H）原子束与两束反向传播的激光束相交，这两束激光与 2S-6P跃迁共振。反向传播的光束能够抑制一阶多普勒频移，同时形成驻波光场。这种情形如图 3.1 所示。驻波光场可以看作一种光栅，它会使原子或物质波发生衍射；这类似于机械光栅使光波发生衍射。本章将探讨如何描述和建模光栅、物质波及其相互作用，并最终分析荧光中观测到的共振频移。该频移称为光力频移（LFS）。

由于实验几何结构对于确定如何建立光力频移模型至关重要，第 3.1 节将简要介绍几何结构和重要参数。第 3.2 节将讨论原子束的相干性，以及原子是否确实必须被描述为在光栅处发生干涉的物质波这一问题，并与经典光学进行类比。第 3.3 节将利用经典相空间密度与其量子类比——维格纳函数之间的联系，推导原子束的量子力学描述。第 3.4 节则将运用从量子力学描述中获得的知识，建立一个考虑原子-光相互作用中动量交换的光力频移模型。

本文所述光力频移的分析得益于 Yue Chang 和 Tao Shi 提供的理论支持。他们在马克斯·普朗克量子光学研究所理论部工作期间，最初围绕 2S-4P测量开展了这一问题的研究。一篇详细介绍这些工作的联合论文正在筹备中。

3.1 实验几何与参数

如图 3.1 所示，室温下的氢原子被送入低温（$T_{\mathrm{N}} = 4.8$开尔文）喷嘴中，在此通过黏附于并再次逸出 H_2 涂层壁面而实现热化。它们经由半径为 $r_1 = 1$毫米的孔口离开喷嘴，形成沿 z 轴方向传播的光束。每个离开喷嘴的原子都可以赋予一条具有动量 $\boldsymbol{p} = (p_x,\ p_y,\ p_z)$ 的经典轨迹，用于描述其质心运动。原子还可能在喷嘴内发生碰撞，从而产生横向动量最低的轨迹（$|p_x| \ll |p_z|$）。有关喷嘴的详细图示，请参见图4.25。

The 1S-2S 制备激光器（$\lambda_{\mathrm{1S\text{-}2S}} = 243$纳米）沿 z 轴传播，将 e

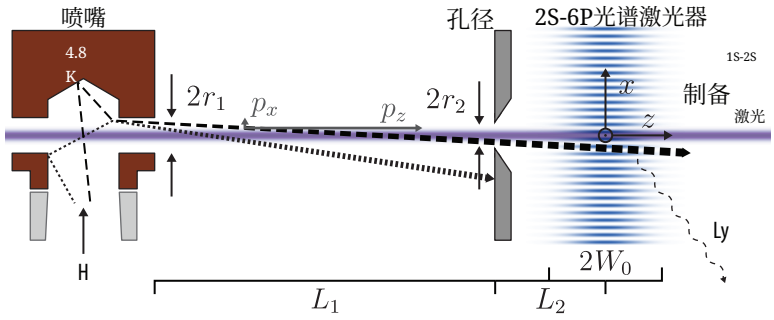


图 3.1：低温原子束上 2S-6P 跃迁光谱测量的几何结构。室温下的氢原子（H，虚线和点线）被送入冷却的（$T_{\mathrm{N}} = 4.8\mathrm{K}$）喷嘴（孔口半径 $r_1 = 1\mathrm{mm}$），在此处，氢原子附着到涂有 H_2 的壁面上，随后再次逸出并热化，形成沿 z 轴传播的原子束。每个离开喷嘴的原子都可赋予一条经典轨迹，其动量为 $\boldsymbol{p} = (p_x,\ p_y,\ p_z)$，用于描述其质心运动。原子也可能在喷嘴中发生碰撞，从而产生横向动量最小的轨迹（$|p_x| \ll |p_z|$）。沿 z 轴传播的 1S-2S 制备激光器（$\lambda_{\mathrm{1S\text{-}2S}} = 243$纳米，紫色）将基态能级（1S态，$|\mathrm{f}\rangle$）的原子激发至初始能级（2S态，$|\mathrm{i}\rangle$）。在距喷嘴孔口 $L_1 = 154\mathrm{mm}$ 处，宽度为 $2r_2 = d_2 = 1.2\mathrm{mm}$ 的孔径通过阻挡部分原子，缩窄原子束沿 x 轴方向的横向速度分布（孔径沿 y 方向的高度为 $2r_{2,\ y} = d_{2,\ y} = 2\mathrm{mm}$）。距孔径再远 $L_2 = 50\,\mathrm{mm}$ 处，两个横向强度半径为 $W_0 = 2.2\,\mathrm{mm}$、反向传播的光束沿 x 轴形成驻波光场（蓝色）。这些光束源自 2S-6P 光谱激光器（$\lambda_{\mathrm{2S\text{-}6P}} = 410$纳米），用于探测 2S-6P（$|\mathrm{i}\rangle \to |\mathrm{e}\rangle$）跃迁；原子衰变至基态能级（$|\mathrm{e}\rangle \to |\mathrm{f}\rangle$）时发射的莱曼光子（波浪线）作为信号。驻波光场对原子而言相当于周期为$\lambda_{\mathrm{2S\text{-}6P}}/2 = 205$纳米的光栅，使观测到的 2S-6P 共振发生光力频移。原子波的横向相干长度在传播过程中逐渐增加，如线条变宽所示，并与光栅的周期相当。

基态能级（1S态，$|\mathrm{f}\rangle$）的原子激发至初始能级（2S态，$|\mathrm{i}\rangle$）。在距喷嘴孔口 $L_1 = 154$毫米处，宽度为 $2r_2 = 1.2$毫米的孔径通过阻挡部分原子，使原子束的横向（沿 x 轴）速度分布变窄（沿 y 方向的孔径高度为 $2r_{2,\ y} = 2$毫米）。在距孔径更远 $L_2 = 50$毫米处，主动式光纤回射器的两束反向传播光束沿 x 轴形成驻波光场，用于抑制 2S-6P 跃迁的多普勒频移。光束的横向强度半径为 $1/e^2$ $W_0 = 2.2$毫米，光束由 2S-6P光谱激光器（$\lambda_{\mathrm{2S\text{-}6P}} = 410$纳米）产生。由此探测 2S-6P（$|\mathrm{i}\rangle \to |\mathrm{e}\rangle$）跃迁；跃迁衰变至基态能级（$|\mathrm{e}\rangle \to |\mathrm{f}\rangle$）时发射的莱曼光子作为信号。对于原子而言，驻波光场起到光栅的作用，其周期为 $\lambda_{\mathrm{2S\text{-}6P}}/2 = 205$纳米，导致观测到的 2S-6P共振发生光力频移（LFS）。

3.2 原子光束的相干性

光栅与原子之间的相互作用可区分为两种极限情形。在第一种极限下，原子表现为经典的、局域性良好的粒子，受到作用于其质心的光栅力。 [62,66], 中讨论了这一极限，例如，它曾用于描述光栅中的原子沟道效应 [67], 以及氦原子饱和光谱学中的谱线位移 [68]。在另一种极限下，原子则

完全离域，表现为平面波，同时在所有位置与光栅相互作用。这会导致物质波在光栅上发生衍射 [69]„ 其原理与光波在固体光栅上的衍射完全类似。实验所处的状态——无论是这两种极限之一，还是介于两者之间——取决于原子的相干长度 l_{c} ，即能够观察到干涉的长度尺度。如果相干长度远小于光栅的周期，原子就可以视为局域粒子；否则，就需要考虑衍射效应。

从量子力学的角度看，喷嘴可以视为物质波的光源。动量为 $\boldsymbol{p}$ 的粒子的物质波，其波长对应于德布罗意波长

$$\lambda_{\mathrm{dB}}=\frac{h}{p}, \tag{3.1}$$

其中 $p=|\mathbf{p}|$。对于以 $v_{\mathrm{typ}}=200\mathrm{m/s}$ 运动的氢原子，德布罗意波长为 2 nm。德布罗意波长决定了给定粒子所能构造的最小波包的大小 [66], ，但通常不等同于相干长度；正如我们将在下文看到的，相干长度可能大得多。从这个意义上说，物质波的行为与光波完全相同。

在温度为 T_{N}的原子热气体中（例如喷嘴内部），平均德布罗意波长可近似为热德布罗意波长

$$\lambda_{\mathrm{dB,th}}=\sqrt{\frac{2\pi\hbar^2 k_{\mathrm{B}}T_{\mathrm{N}}}{m_{\mathrm{H}}}}, \tag{3.2}$$

其中 m_{H} 是氢原子的质量， k_{B} 是玻尔兹曼常数。对于实验中采用的 T_{N} =4.8 K， $\lambda_{\mathrm{dB,\ th}}=0.8\mathrm{nm}$。对于原子热气体这一特殊情况，其相干长度与热德布罗意波长相同 [70]。

如果我们简单地假设光栅处的相干长度由喷嘴内热气体的相干长度决定，那么看起来，周期为 $\lambda_{\mathrm{2S\text{-}6P}}/2\gg l_{\mathrm{c}}\equiv\lambda_{\mathrm{dB,\ th}}$ 的光栅所产生的干涉效应应当可以忽略。然而，正如下文讨论的经典光学中的范西特-泽尼克定理所熟知的那样，即使光源不相干，也就是说，即使光源的相干长度相对于光栅周期可以忽略，放置在光束中的光栅仍然可以产生可观测的干涉图样。这种特殊类型的相干性由实验的几何结构决定，并以横向相干长度 $l_{\mathrm{c,\ t}}$ 为特征。正如我们将在第 3.3 节所述的量子力学处理中看到的，对于原子束的描述也存在类似效应，并且横向相干长度被发现与光栅的周期相当。因此，在实验的理论描述中必须考虑光栅处的衍射。

3.2.1 范西特-泽尼克定理

根据经典光学，我们知道，来自扩展非相干光源[1] 的光能够产生干涉图样，也就是说，具有一定程度的空间相干性，因此能够相干地

[1]此处，不相干是指从光源不同区域发出的波的相位互不相关，即从不同区域发出的场的乘积的时间平均值为零。请注意，光源的不相干意味着波长存在一定的展宽，也就是说，光源不可能是严格单色的 [71]。

照亮某个区域。相干度由函数 $g^{(1)}(\mathbf{P_1},\mathbf{P_2})$ 表示，其绝对值给出了来自空间分离的点 $\mathbf{P_1}$ 和 $\mathbf{P_2}$的光所形成干涉图样的可见度。这里省略了 $g^{(1)}$的时间依赖性，因为我们只关注空间相干性，而不关注时间相干性。

扩展非相干光源的相干度由范西特-泽尼克定理描述。下面我们将参照 [71] 第 10.4.2 节作简要概述。假设强度恒定的非相干光源 A 占据光源平面的一部分，其范围由 $I(\xi,\ \eta)$ 给出，其中 $(\xi,\ \eta,\ 0)$ 是光源平面上点 $\mathbf{S}$ 的笛卡尔坐标。我们假设 I 已归一化，即$\iint_A I(\xi,\ \eta)\, d\xi d\eta\ =\ 1$。在与光源平面平行且相距 L 的观测平面上，观测点为 $\mathbf{P_1}$ 和 $\mathbf{P_2}$。点 $\mathbf{P_1}$ 和$\mathbf{P_2}$ 的笛卡尔坐标分别为 $(X_1,\ Y_1,\ L)$ 和 $(X_2,\ Y_2,\ L)$。

我们还假设光源的范围和观测区域（即包含$\mathbf{P_i}$的区域）相对于$\mathbf{P_i}$ 与光源之间的距离而言都很小，并且光源和观测区域以垂直于各平面的轴为中心。这对应于良好准直的光或原子束沿 z 轴传播的情形。

因此，我们发现观测平面中相干度的绝对值$|g^{(1)}|$ （在 [71] 中记作 $|\mu_{12}|$ ）由下式给出

$$|g^{(1)}(\mathbf{P_1},\mathbf{P_2})| = \left| \iint_A I(\xi,\eta) e^{-ik_{\mathrm{dB}}(p\xi+q\eta))}\, \mathrm{d}\xi\, \mathrm{d}\eta \right|, \tag{3.3}$$

其中 $p = (X_1 - X_2)/L$、$q = (Y_1 - Y_2)/L$，且 $k_{\mathrm{dB}} = 2\pi/\lambda_{\mathrm{dB}}$。因此，$|g^{(1)}|$ 等于光源强度 I 的傅里叶变换的绝对值。相应地，$|g^{(1)}|^2$ 是观测平面上的远场衍射图样的强度分布；该图样由源平面中一个形状与光源相同、且受到均匀照明的衍射孔径产生。

对于半径为 r_1 的圆形光源这一特殊情况，式（3.3）可化为

$$|g^{(1)}| = \frac{2J_1(v)}{v}, \tag{3.4}$$

其中，J_1 是第一类一阶贝塞尔函数，且 $v\ =\ 2\pi r_1\sqrt{p^2+q^2}/\lambda_{\mathrm{dB}}\ =2\pi r_1\sqrt{(X_1-X_2)^2+(Y_1-Y_2)^2}/\lambda_{\mathrm{dB}}L$。表达式 $2J_1(v)/v$ 的中央主瓣振幅为 1，在 $\Delta v \approx 2.584$ 处下降至 $1/e$。经过一个过零点后，此处观察不到干涉；在更大的 v 处，相干度再次达到一定程度，形成另一个旁瓣，但其最大振幅仅为 0.132。随着 v 增大，振幅进一步减小。因此，我们可以将 Δv 视为观测到相干性的典型 v 尺度。这对应于这样的典型长度尺度：点 $\mathbf{P_1}$ 和 $\mathbf{P_2}$ 沿垂直于系统轴线的方向相距不超过该尺度时，仍可受到相干照明，其长度由下式给出

$$l_{\mathrm{c,t}} = \frac{\Delta v}{2\pi}\frac{L}{r_1}\lambda_{\mathrm{dB}} = \frac{1.29}{\pi}\frac{L}{r_1}\lambda_{\mathrm{dB}}. \tag{3.5}$$

我们将这一典型长度尺度称为横向相干长度 $l_{\mathrm{c,\ t}}$，它对应于双缝垂直于光束放置时，所观察到的干涉条纹可见度为 $1/e$ 的双缝间距。

为简化起见，并便于与下文推导的结果进行比较，我们用宽度为 r_1 的高斯光源替代圆形光源，即 $I(\xi,\ \eta)\ = e^{-(\xi^2+\eta^2)/r_1^2}/\pi r_1^2$。

于是，相干度（式 (3.3)）本身（取绝对值）也是一个高斯函数，

$$|g^{(1)}| = \exp\left(-\frac{k_{\mathrm{dB}}^2 r_1^2}{4L^2}\left((X_1 - X_2)^2 + (Y_1 - Y_2)^2\right)\right), \tag{3.6}$$

具有相应的横向相干长度

$$l_{\mathrm{c,t}} = \frac{1}{\pi}\frac{L}{r_1}\lambda_{\mathrm{dB}}. \tag{3.7}$$

因此，采用这样的高斯光源尺寸，所得结果与圆形光源的结果相当。

3.3 原子束的量子力学描述

3.3.1 维格纳函数和一阶关联函数的定义

到目前为止，我们采用的是经典描述，忽略了不确定性原理等量子特征。更完整的描述是维格纳函数[1] $W(x,\ p_x)$，它是一种位置 x 和动量 p_x上的准概率分布，是经典相空间分布 [72, 73]的量子类比。它通过维格纳变换与密度矩阵 ρ 相关联，维格纳变换定义如下:

$$W(x,p_x) = \frac{1}{\pi\hbar}\int_{-\infty}^{\infty}\langle x+x'|\rho|x-x'\rangle e^{-2ip_x x'/\hbar}\,\mathrm{d}x', \tag{3.8}$$

具有归一化性质 $\iint W(x,p_x)\mathrm{d}x\mathrm{d}p_x = 1$。

$W(x,p_x)$的边缘分布给出 x和 p_x的概率分布， $f_x(x)\ =\int_{-\infty}^{\infty}W(x,p_x)\mathrm{d}p_x$和 $f_p(p_x)\ =\int_{-\infty}^{\infty}W(x,p_x)\mathrm{d}x$。

ρ can 可通过对 $W(x,p_x)$ 作 Weyl变换恢复，由此可在位置空间中得到 ρ a s

$$\langle x|\rho|x'\rangle = \int_{-\infty}^{\infty}W(\frac{x+x'}{2},p)e^{i(x-x')p_x/\hbar}\,\mathrm{d}p_x. \tag{3.9}$$

同样， ρ 的动量空间表示可通过以下方式获得

$$\langle p_x|\rho|p_x'\rangle = \int_{-\infty}^{\infty}W(x,\frac{p_x+p_x'}{2})e^{i(p_x-p_x')x/\hbar}\,\mathrm{d}x. \tag{3.10}$$

当 δx 发生平移且动量分别产生偏移量 δp_x时，位置空间和动量空间中的相干性由以下一阶关联函数给出

$$g^{(1)}(\delta x) = \frac{\langle x+\frac{\delta x}{2}|\rho|x-\frac{\delta x}{2}\rangle}{\sqrt{\langle x+\frac{\delta x}{2}|\rho|x+\frac{\delta x}{2}\rangle\langle x-\frac{\delta x}{2}|\rho|x-\frac{\delta x}{2}\rangle}}, \tag{3.11}$$

$$g^{(1)}(\delta p_x) = \frac{\langle p_x+\frac{\delta p_x}{2}|\rho|p_x-\frac{\delta p_x}{2}\rangle}{\sqrt{\langle p_x+\frac{\delta p_x}{2}|\rho|p_x+\frac{\delta p_x}{2}\rangle\langle p_x-\frac{\delta p_x}{2}|\rho|p_x-\frac{\delta p_x}{2}\rangle}}. \tag{3.12}$$

这个定义类似于经典光学中的相干度，如上文在推导范西特-泽尼克定理时所用。

[1]请注意，在本研究中，符号 W 和 W_0 分别表示 2S-6P 光谱激光器的光束半径 W 和束腰半径 W_0，同时也用于表示维格纳函数 $W(x,\ p_x)$ 和 $W_0(x,\ p_x)$。

3.3.2 喷嘴处的维格纳函数

然而，要用维格纳函数描述我们的实验，就需要知道离开喷嘴的原子的密度矩阵，而该矩阵事先是未知的。我们将问题简化为两个维度：横向维度和沿原子束方向的维度，分别选为沿 x 轴和 z 轴。由于我们关注的是光束的横向相干性，因此将维格纳函数限制在横向维度（x, p_x）；而沿光束轴方向的运动（z, p_z）则按经典方式处理，也就是说，它仅作为一个参数进入维格纳函数。

首先，我们来求原子离开喷嘴时的经典相空间分布 $f_0(x,p_x)$。假设原子处于热平衡态，因此其横向动量分布遵循麦克斯韦-玻尔兹曼分布。动量为 p_x 的原子出现的概率为 $f_p(p_x) = \exp\left(-p_x^2/2\sigma_{p_x}^2\right)/\sqrt{2\pi}\sigma_{p_x}$，其中横向动量分布宽度为 $\sigma_{p_x} = \sqrt{m_\mathrm{H}/\beta}$。这里，$m_\mathrm{H}$ 是氢原子的质量，$\beta = k_\mathrm{B}T_\mathrm{N}$，而 k_B 是玻尔兹曼常数。为模拟半径为 r_1 的喷嘴的空间约束，我们再次选择使用空间上的高斯分布，以简化推导出的表达式，即位置为 x 的原子出现的概率为$f_x(x) = \exp(-x^2/r_1^2)/\sqrt{\pi}r_1$。因此，喷嘴处的经典相空间分布为

$$f_0(x,p_x) = \frac{1}{\sqrt{2}\pi\sigma_{p_x}r_1}\exp\left(-\frac{p_x^2}{2\sigma_{p_x}}\right)\exp\left(-\frac{x^2}{r_1^2}\right). \tag{3.13}$$

让人不禁假设，初始维格纳函数与 $f_0(x,p_x)$ 完全相同，但通常情况下并非如此。这样的直接替换例如不会排除 σ_{p_x} 和 r_1 同时趋近于零的情况，从而导致违反海森堡不确定性原理。

为了判断在我们的情况下，$f_0(x,p_x)$ 是否可以很好地近似相应的维格纳函数 $W_0(x,p_x)$，比较热激发的一维经典谐振子的经典相空间分布 $f_\mathrm{HO}(x,p_x)$ 与其量子对应系统 [72, 74] 的维格纳函数 $W_\mathrm{HO}(x,p_x)$ 将很有帮助。这些系统的哈密顿量表示为 $H = (p_x^2/2m_\mathrm{H}) + \frac{1}{2}m_\mathrm{H}\omega^2x^2$，其中 ω 为振子的角频率；在量子情况下，则将 H, x, p_x 替换为相应的算符。我们得到

$$f_\mathrm{HO}(x,p_x) = \frac{\beta\omega}{2\pi}\exp\left(-\beta\left(\frac{p_x^2}{2m_\mathrm{H}} + \frac{1}{2}m_\mathrm{H}\omega^2x^2\right)\right) \tag{3.14}$$

对于经典情形和

$$W_\mathrm{HO}(x,p_x) = \frac{1}{\pi\hbar}\tanh\left(\hbar\omega\beta/2\right)\exp\left(-\beta\frac{\tanh\left(\hbar\omega\beta/2\right)}{\hbar\omega\beta/2}\left(\frac{p_x^2}{2m_\mathrm{H}} + \frac{1}{2}m_\mathrm{H}\omega^2x^2\right)\right) \tag{3.15}$$

对于量子力学情形。

经典情形与量子情形的差异在于指数中的因子 $\kappa = \tanh(\hbar\omega\beta/2)\,\hbar\omega\beta/2$，它确保不确定性原理不会被违反，因为 $T_\mathrm{N} \to 0$。在我们的情形下，当 $\omega = \sqrt{2/\beta m_\mathrm{H}}r_1$ 时，$f_\mathrm{HO}(x,p_x)$ 与 $f_0(x,p_x)$ 相同；也就是说，我们可以将喷嘴出口处的原子建模为谐振子。对于本实验的典型数值（m_H 见表 2.1），$T_\mathrm{N} = 4.8\,\mathrm{K}$，$r_1 = 1\,\mathrm{mm}$，我们得到 $1-\kappa \approx 2\times10^{-14}$。因此，

在我们的情形下，经典情形与量子情形之间的差异非常小，因此我们可以合理地假设，$W(x,p_x)$ 可由 $f(x,p_x)$ 很好地近似。

现在已知初始维格纳函数 $W_0(x,\ p_x)$、$W_0(x,\ p_x) \equiv f_0(x,\ p_x)$，我们可以利用式 (3.9) 和 (3.10) 写出初始密度矩阵 ρ_0 的表达式：

$$\langle x+\frac{x'}{2}|\rho_0|x-\frac{x'}{2}\rangle = \frac{1}{\sqrt{\pi}}\frac{1}{r_1}\exp\left(-\frac{1}{r_1^2}x^2-\frac{\sigma_{p_x}^2}{2\hbar^2}x'^2\right), \tag{3.16}$$

$$\langle p_x+\frac{p_x'}{2}|\rho_0|p_x-\frac{p_x'}{2}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_{p_x}}\exp\left(-\frac{1}{2\sigma_{p_x}^2}p_x^2-\frac{r_1^2}{4\hbar^2}p_x'^2\right). \tag{3.17}$$

由式 (3.11) 和 (3.16) 可得喷嘴处的横向相干长度 $l_{\mathrm{c,\ t,\ 0}}$，假设 $\delta x \ll r_1$：

$$l_{\mathrm{c,t,0}} = \frac{\sqrt{2}\hbar}{\sigma_{p_x}} = \frac{\lambda_{\mathrm{dB,th}}}{\sqrt{\pi}}. \tag{3.18}$$

正如预期，它对应于热德布罗意波长，前面的系数为 $1/\sqrt{\pi}$，这是由于文献中对相干长度的定义不有所不同。

类似于相干长度，可以给出原子态保持相干时所对应的典型动量。这一性质将决定干涉仪的可见度，而干涉仪会在两条干涉路径之间产生动量差。由式 (3.12) 和 (3.17) 可得横向动量相干尺度 $p_{\mathrm{c,\ t,\ 0}}$，假设 $\delta p_x \ll \sigma_{p_x}$：

$$p_{\mathrm{c,t,0}} = \frac{2\hbar}{r_1}. \tag{3.19}$$

对于迄今使用的实验参数，$l_{\mathrm{c,\ t,\ 0}} = 0.45$纳米和 $p_{\mathrm{c,\ t,\ 0}}/m_{\mathrm{H}} = 1.3\times10^{-4}$ 米/秒。

3.3.3 无中间孔径时光栅处的维格纳函数

已知喷嘴出口处的维格纳函数 $W_0(x,\ p_x)$，在假设原子间相互作用可以忽略的情况下，可以很容易地求出沿 z 轴方向原子束下游位置处的维格纳函数。在这种情况下，原子无受力传播，维格纳函数的时间演化由经典刘维尔方程 [72] 给出。在光栅位置 $z=L$ 处，维格纳函数为

$$\begin{aligned} W_{2'}(x,p_x) &= W_0(x-p_x\frac{L}{p_z},p_x) \\ &= \frac{1}{\sqrt{2}\pi\sigma_{p_x}r_1}\exp\left(-\frac{p_x^2}{2\sigma_{p_x}}\right)\exp\left(-\frac{\left(x-p_x\frac{L}{p_z}\right)^2}{r_1^2}\right). \end{aligned} \tag{3.20}$$

因此，原子的自由演化会使维格纳函数在相空间中发生剪切，将初始动量分布映射到位置分布。随后，可以测量不同演化距离 L处的位置分布，以重构维格纳函数，例如，已有研究对氦原子光束 [75]进行了此类测量。

将 $W_{2'}(x,p_x)$ 代入方程（3.9）和（3.10），即可得到 $z=L$ 处的密度矩阵：

$$\langle x+\frac{x'}{2}|\rho_{2'}|x-\frac{x'}{2}\rangle=\frac{1}{\sqrt{\pi}}\frac{1}{r_{\mathrm{b},2'}}\exp\left(-\frac{1}{r_{\mathrm{b},2'}^2}x^2-\frac{r_1^2}{r_{\mathrm{b},2'}^2}\frac{\sigma_{p_x}^2}{2\hbar^2}x'^2+i\frac{2\sigma_{p_x}^2L}{\hbar r_{\mathrm{b},2'}^2p_z}xx'\right), \tag{3.21}$$

$$\begin{aligned}\langle p_x+\frac{p_x'}{2}|\rho_{2'}|p_x-\frac{p_x'}{2}\rangle&=\frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_{p_x}}\exp\left(-\frac{1}{2\sigma_{p_x}^2}p_x^2-\frac{r_1^2}{4\hbar^2}p_x'^2+i\frac{L}{\hbar p_z}p_xp_x'\right)\\&=\langle p_x+\frac{p_x'}{2}|\rho_0|p_x-\frac{p_x'}{2}\rangle\exp\left(i\frac{L}{\hbar p_z}p_xp_x'\right),\end{aligned} \tag{3.22}$$

其中，$r_{\mathrm{b},\,2'}=\sqrt{r_1^2+2\sigma_{p_x}^2\left(\frac{L}{p_z}\right)^2}$ 是位置空间中分布的最终宽度。

宽度$r_{\mathrm{b},\,2'}$ 的增加可理解为两个高斯分布的卷积所致：一个是初始位置分布，另一个是由初始动量分布决定的该分布中各点在空间中的扩展。方程（3.21）中的相位因子 $\exp(i(2\sigma_{p_x}^2L/\hbar r_{\mathrm{b},\,2'}^2p_z)xx')$ 描述了从喷嘴射出的波前曲率。

由方程（3.11）和（3.21）可得，$z=L$ 处的横向相干长度为（假设$\delta x\ll r_{\mathrm{b},\,2'}$）

$$\begin{aligned}l_{\mathrm{c,t},2'}&=\frac{r_{\mathrm{b},2'}}{r_1}\frac{\sqrt{2}\hbar}{\sigma_{p_x}}=\frac{r_{\mathrm{b},2'}}{r_1}l_{\mathrm{c,t},0}\\&=\sqrt{l_{\mathrm{c,t},0}^2+\frac{4\hbar^2L^2}{p_z^2r_1^2}}.\end{aligned} \tag{3.23}$$

因此，横向相干长度增大了几何因子$r_{\mathrm{b},\,2'}/r_1$，这一行为符合范西特-泽尼克定理的预期。$l_{\mathrm{c},\,\mathrm{t},\,2'}$ 也可解释为初始横向相干长度$l_{\mathrm{c},\,\mathrm{t},\,0}$ 与一个随 L线性增长的贡献的平方和的平方根；当 $L\gg r_1(p_z^2/\sigma_{p_x}^2)$时，后者占主导。

对于上述范西特-泽尼克定理推导中所假设的准直良好的原子束，$p_x\ll p_z$ 和 $L\gg r_1$，因此 $p\approx p_z$ 和 $\lambda_{\mathrm{dB}}\approx h/p_z$。在这些近似下，我们得到

$$l_{\mathrm{c,t},2'}\approx\sqrt{l_{\mathrm{c,t},0}^2+\left(\frac{1}{\pi}\frac{L}{r_1}\lambda_{\mathrm{dB}}\right)^2}\approx\frac{1}{\pi}\frac{L}{r_1}\lambda_{\mathrm{dB}}, \tag{3.24}$$

这与式（3.7）中给出的范西特-泽尼克定理结果完全相同。在这些假设下，式（3.21）中的相位因子化简为 $\exp\left(i(\pi/L\lambda_{\mathrm{dB}})r^2\right)$，其中 r 是距光束轴的横向距离（$x=r/2,\,x'=-r$）。

另一方面，横向动量相干尺度在传播过程中不会增强，并保持其初始值不变，即$p_{\mathrm{c},\,\mathrm{t},\,2'}\equiv p_{\mathrm{c},\,\mathrm{t},\,0}$。事实上，动量空间中的密度矩阵只获得了一个相位因子，这对应于不同动量分量之间的相位偏移 p_x。

对于迄今使用的实验参数，$l_{\mathrm{c,t},2'}=129$纳米，因此 $l_{\mathrm{c,t},2'}\gg l_{\mathrm{c,t},0}$，这是由于自由传播过程中的几何增强所致。

3.3.4 存在中间孔径时光栅处的维格纳函数

在实验中，喷嘴与光栅之间设有一个孔径，以减小原子束的横向动量宽度，从而减小所观测氢共振的多普勒展宽。孔径的半径为 r_2，设置在 $z = L_1 < L$ 处。光栅与该孔径之间的距离则为 $L_2 = L - L_1$。

与推导喷嘴处的维格纳函数时一样，$W_0(x,\ p_x)$，我们假设可以将维格纳函数视为经典相空间密度。于是，可以通过将 $z = L_1$ 处的维格纳函数乘以位置空间中的一个掩模来考虑孔径的作用，该掩模的透射率正比于 $\exp(-x^2/r_2^2)$，从而将孔径建模为一个软高斯孔径，就像处理喷嘴时那样。由此得到的维格纳函数为

$$W_1(x,p_x) = \frac{r_\mathrm{m}}{r_2}\sqrt{1+\frac{2L_1^2\sigma_{p_x}^2}{p_z^2 r_\mathrm{m}^2}}\exp\left(-\frac{x^2}{r_2^2}\right)W_0(x - p_x\frac{L_1}{p_z}, p_x), \tag{3.25}$$

其中，$r_\mathrm{m} = \sqrt{r_1^2 + r_2^2}$ 和前置因子确保了正确的归一化。

将 $W_1(x,\ p_x)$沿 z轴再传播距离 L_2 后，我们得到孔径之后、光栅所在位置处的维格纳函数 $z = L$,

$$\begin{aligned} W_2(x,p_x) &= W_1(x - p_x\frac{L_2}{p_z}, p_x) \\ &= \frac{r_\mathrm{m}}{\sqrt{2}\pi\sigma_{p_x} r_1 r_2}\sqrt{1+\frac{2L_1^2\sigma_{p_x}^2}{p_z^2 r_\mathrm{m}^2}}\exp\left(-\frac{p_x^2}{2\sigma_{p_x}}\right)\exp\left(-\frac{\left(x - p_x\frac{L}{p_z}\right)^2}{r_1^2} - \frac{\left(x - p_x\frac{L_2}{p_z}\right)^2}{r_2^2}\right). \end{aligned} \tag{3.26}$$

A与之前一样，将 $W_2(x,\ p_x)$代入式（3.9），可得到位置空间中的密度矩阵 ce

$$\langle x + \frac{x'}{2}|\rho_2|x - \frac{x'}{2}\rangle = \frac{1}{\sqrt{\pi}}\frac{1}{r_{\mathrm{b},2}}\exp\left(-\frac{1}{r_{\mathrm{b},2}^2}x^2 - \frac{1}{l_{\mathrm{c,t},2}^2}x'^2 + i\frac{\phi_2}{r_1^2}xx'\right), \tag{3.27}$$

$$\text{with}\quad r_{\mathrm{b},2} = \frac{r_1 r_2}{r_\mathrm{m}}\sqrt{\frac{\frac{p_z^2}{\sigma_{p_x}^2} + 2\left(\frac{L^2}{r_1^2} + \frac{L_2^2}{r_2^2}\right)}{\frac{p_z^2}{\sigma_{p_x}^2} + 2\frac{L_1^2}{r_\mathrm{m}^2}}}, \tag{3.28}$$

$$ł_{\mathrm{c,t},2} = \sqrt{l_{\mathrm{c,t},0}^2 + \frac{4\hbar^2}{p_z^2}\left(\frac{L^2}{r_1^2} + \frac{L_2^2}{r_2^2}\right)}, \tag{3.29}$$

$$\phi_2 = \frac{p_z}{\hbar}\frac{2\left(L + \frac{r_1^2}{r_2^2}L_2\right)}{\frac{p_z^2}{\sigma_{p_x}^2} + 2\left(\frac{L^2}{r_1^2} + \frac{L_2^2}{r_2^2}\right)}. \tag{3.30}$$

位置空间中分布的宽度$r_{\mathrm{b},\ 2}$有两个极限状态，由 r_m/L_1 与 σ_{p_x}/p_z的比值决定；它们分别与仅由几何结构决定的光束发散角，以及仅由初始横向动量宽度决定的光束发散角相关。对于$L_2 \gg L_1$，$L \approx L_2$，喷嘴和孔径构成一个单一光源，宽度可写为 $r_{\mathrm{b},\ 2} \approx L\alpha_\mathrm{far}$ 其中远场 $1/e$ 光束发散角为 α_far。接下来，在

$r_{\mathrm{m}}/L_1 \gg \sigma_{p_x}/p_z$时，发散角变为 $\alpha_{\mathrm{far}} = \sqrt{2}\sigma_{p_x}/p_z$；而对于 $r_{\mathrm{m}}/L_1 \ll \sigma_{p_x}/p_z$，其值为 $\alpha_{\mathrm{far}} = r_{\mathrm{m}}/L_1$。我们的实验处于后一种极限状态。

与前面一样，利用式 (3.11) 并假设 $\delta x \ll r_{\mathrm{b},\,2}$，我们可以将 $l_{\mathrm{c},\,\mathrm{t},\,2}$ 确定为横向相干长度。将其与无孔径的情况 $l_{\mathrm{c},\,\mathrm{t},\,2'}$（式 (3.23)）进行比较，可得

$$\frac{l_{\mathrm{c,t,2}}}{l_{\mathrm{c,t,2'}}} = \sqrt{1 + \left(\frac{L_2}{L}\frac{r_1}{r_2}\right)^2}. \tag{3.31}$$

因此，只有当$\frac{L_2}{r_2} \gg \frac{L}{r_1}$ 时，孔径对横向相干长度的影响才占主导地位；在这种情况下，孔径实际上起到了光源的作用。

相位 ϕ_2 现在包含了孔径衍射对波前曲率的影响；与横向相干长度的情况一样，只有当 $\frac{L_2}{r_2} \gg \frac{L}{r_1}$ 时，这些影响才会占主导地位。

利用式 (3.9)，由 $W_2(x,\ p_x)$ 得到的动量空间中的密度矩阵为

$$\begin{aligned}\langle p_x + \frac{p'_x}{2}|\rho_2|p_x - \frac{p'_x}{2}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_{p_x}}\sqrt{1 + \frac{2L_1^2\sigma_{p_x}^2}{p_z^2 r_{\mathrm{m}}^2}}\exp\left(-\frac{1}{2\sigma_{p_x,2}^2}p_x^2 - \frac{r_2^2}{r_{\mathrm{m}}^2}\frac{r_1^2}{4\hbar^2}p_x'^2\right)\\ \times \exp\left(i\frac{1}{\hbar p_z}\left(\frac{r_2^2}{r_{\mathrm{m}}^2}L_1 + L_2\right)p_x p'_x\right),\end{aligned} \tag{3.32}$$

$$\text{with}\quad \sigma_{p_x,2} = \sigma_{p_x}\frac{1}{\sqrt{1 + \frac{2\sigma_{p_x}^2 L_1^2}{p_z^2 r_{\mathrm{m}}^2}}} = p_z\frac{1}{\sqrt{\frac{p_z^2}{\sigma_{p_x}^2} + \frac{2L_1^2}{r_{\mathrm{m}}^2}}}, \tag{3.33}$$

$$p_{\mathrm{c,t,2}} = \frac{2\hbar r_{\mathrm{m}}}{r_1 r_2} = \frac{r_{\mathrm{m}}}{r_2}p_{\mathrm{c,t,0}}. \tag{3.34}$$

不出所料，动量空间中分布的宽度$\sigma_{p_x,\,2}$ 又有两个极限区间。当 $r_{\mathrm{m}}/L_1 \gg \sigma_{p_x}/p_z$ 时，孔径的影响可以忽略，且$\sigma_{p_x,\,2} \approx \sigma_{p_x,\,2'}$；而当 $r_{\mathrm{m}}/L_1 \ll \sigma_{p_x}/p_z$ 时，动量宽度由喷嘴和孔径半径决定，而不受初始动量分布宽度支配，因此得到 $\sigma_{p_x,\,2} \approx (p_z/\sqrt{2})(r_{\mathrm{m}}/L_1) \ll \sigma_{p_x}$。

回顾一下，到目前为止，横向动量相干尺度 $p_{\mathrm{c},\,\mathrm{t},\,0}$（式 (3.19)）由源尺寸的倒数给出；与横向相干长度不同，它并未得到几何增强。利用式 (3.12) 并假设 $\delta p_x \ll \sigma_{p_x}$ 得到的横向动量相干尺度 $p_{\mathrm{c},\,\mathrm{t},\,2}$（式 (3.34)）也是如此。$p_{\mathrm{c},\,\mathrm{t},\,2}$ 现在反映了源和孔径的尺寸，却不受传播距离影响；相较于先前的值 $p_{\mathrm{c},\,\mathrm{t},\,0}$，它仅变化了 r_{m}/r_2 倍。横向相干长度所受的几何效应则再次体现在密度矩阵的相位因子中，这次同时考虑了 L_1 和 L_2。

推导出这些结果后，再来考察我们的实验情形很有启发性：孔径置于光栅附近（$L_2/L_1 = 0.33$），其尺寸与喷嘴大致相同（$r_2/r_1 = 0.6$），因此 $r_{\mathrm{m}} \approx 1.17$ 毫米。由于孔径的目的是减小光束的动量宽度，参数选取满足 $r_{\mathrm{m}}/L_1 \ll \sigma_{p_x}/p_z$，使其从 $\sigma_{p_x}/m_{\mathrm{H}} = 199$ m/s 降至 $\sigma_{p_x,\,2} = 1.07$m/s，对应的发散角为 $\alpha_{\mathrm{far}} = r_{\mathrm{m}}/L_1 = 7.6$ 毫弧度。同时，与不使用孔径的情形相比，横向相干长度 $l_{\mathrm{c},\,\mathrm{t},\,2}$ 仅小幅增加（式 (3.31)），增大了 1.08 倍。换言之，横向相干长度与横向动量宽度之间不存在直接关系。

因此，对于迄今为止所用的实验参数，$l_{\mathrm{c},\,\mathrm{t},\,2} = 139$纳米，且 $p_{\mathrm{c},\,\mathrm{t},\,2}/m_{\mathrm{H}} = 2.5 \times 10^{-4}$ 米/秒。

3.3.5 与完全相干高斯波包的比较

值得将上述结果与完全相干高斯波包进行比较。上述结果假设原子处于具有基本经典行为的热态，而完全相干高斯波包则由纯态描述。此类一维波包的波函数 ψ_{G} 在初始 $1/e$ 概率半径为 $w_x(t=0)\equiv w_{x,\,0}$ 且中心位于位置 $x=x_0$ 时，在时间 $t=0$ 的位置空间和动量空间中分别为

$$\langle x|\psi_{\mathrm{G}}\rangle=\frac{1}{\sqrt{\sqrt{\pi}w_{x,0}}}\exp\left(-\frac{(x-x_0)^2}{2w_{x,0}^2}\right), \tag{3.35}$$

$$\langle p_x|\psi_{\mathrm{G}}\rangle=\sqrt{\frac{w_{x,0}}{\sqrt{\pi}\hbar}}\exp\left(-\frac{w_{x,0}^2p_x^2}{2\hbar^2}+i\frac{x_0p_x}{\hbar}\right). \tag{3.36}$$

因此，其在动量空间中的标准差概率宽度为 $\sigma_{p_x,\ \text{高斯函数}}=\hbar/w_{x,\,0}\sqrt{2}$。该波包对应于不确定度最小的情况，其中 $\sigma_{p_x}\sigma_{x,\,0}=\sigma_{p_x}w_{x,\,0}/\sqrt{2}=\hbar/2$。

对于质量为 m_{H}的自由粒子，含时薛定谔方程的解（哈密顿量为 $H_{\mathrm{FP}}=p_x^2/2m_{\mathrm{H}}$）可直接在动量空间中写为

$$\langle p_x|\psi_{\mathrm{G}}(t)\rangle=\langle p_x|\psi_{\mathrm{G}}\rangle\exp\left(-i\frac{tp_x^2}{2\hbar m_{\mathrm{H}}}\right). \tag{3.37}$$

正如自由粒子所预期的那样，其动量宽度不随时间变化。在位置空间中，我们得到

$$\langle x|\psi_{\mathrm{G}}(t)\rangle=\frac{1}{\sqrt{\sqrt{\pi}}}\sqrt{\frac{1}{w_{x,0}+i\frac{\hbar t}{w_{x,0}m_{\mathrm{M}}}}}\exp\left(-\frac{(x-x_0)^2}{2w_x^2(t)}+i\frac{\hbar t(x-x_0)^2}{2m_{\mathrm{H}}w_{x,0}^2w_x^2(t)}\right), \tag{3.38}$$

其中，时刻 t 的概率宽度为 $1/e$

$$w_x(t)=\sqrt{w_{x,0}^2+\frac{\hbar^2t^2}{m_{\mathrm{H}}^2w_{x,0}^2}}. \tag{3.39}$$

波包的大小会随时间增大，其在空间任意一点被观测到的概率也因此扩散。这种扩散本身并非量子力学的特征，而只是一个由自由膨胀的经典粒子组成的系综所具有的预期概率密度：这些粒子最初位于大小为$w_{x、\,0}$ 且动量分布宽度为$\sigma_{p_{x、\,\mathrm{G}}}$的区域内。不过，在经典情况下，我们可以独立选择初始大小和动量分布，而这里则由不确定性原理决定。

时间 t 下的密度矩阵为

$$\langle x+\frac{x'}{2}|\rho_G|x-\frac{x'}{2}\rangle=\frac{1}{\sqrt{\pi}w_x(t)}\exp\left(-\frac{(x-x_0)^2}{w_x^2(t)}-\frac{x'^2}{4w_x^2(t)}+i\frac{\hbar t(x-x_0)x'}{m_{\mathrm{H}}w_{x,0}^2w_x^2(t)}\right), \tag{3.40}$$

$$\langle p_x+\frac{p_x'}{2}|\rho_G|p_x-\frac{p_x'}{2}\rangle=\frac{w_{x,0}}{\sqrt{\pi}\hbar}\exp\left(-\frac{w_{x,0}^2p_x^2}{\hbar^2}-\frac{w_{x,0}^2p_x'^2}{4\hbar^2}+i\frac{x_0p_x'}{\hbar}+i\frac{tp_xp_x'}{\hbar m_{\mathrm{H}}}\right). \tag{3.41}$$

将密度矩阵代入相干度的表达式（方程和（3.12）），得到 (3.11)

$$g^{(1)}(\delta x) = \exp\left(i\frac{\hbar t(x-x_0)\delta x}{m_{\mathrm{H}} w_{x,0}^2 w_x^2(t)}\right), \tag{3.42}$$

$$g^{(1)}(\delta p_x) = \exp\left(-i\frac{x_0\delta p_x}{\hbar} + i\frac{t p_x \delta p_x}{\hbar m_{\mathrm{H}}}\right). \tag{3.43}$$

在位置空间和动量空间中，相干度在所有时间里都是绝对值为 1 的纯相位因子，因此相干长度和相干动量尺度均为无限大。

可以证明，只要求和涵盖与波包相同的动量成分，对光栅周期范围内的初始位置 x_0 进行平均，所得信号就与完全离域原子信号的（非相干）总和相同（见第 3.4.2 节）。因此，对于我们的实验参数，对初始位置取平均后的波包将得到与维格纳函数相同的结果。考虑到有些作者将波包用作实验情形的输入态，而这些情形或许更适合用维格纳函数所描述的热态来刻画，这一点尤为重要 [76]。

3.4 2S-6P跃迁的光力频移

在上一节中，利用维格纳函数推导出了光栅位置处原子束的密度矩阵 ρ_2 （方程 (3.27) 和 (3.32)）。由此得到的横向相干长度与2S-6P光谱激光器形成的光栅周期相当，因此，原子经过光栅时不能被视为局域粒子，而必须用量子力学方法处理。下文将建立一个考虑这种离域效应的2S-6P激发模型。随后利用该模型模拟原子束中观测到的2S-6P跃迁光力频移（LFS）。

3.4.1 包含动量交换的原子-光相互作用

为此，必须修改第 2.3.1 节中引入的光学布洛赫方程（OBE），使其不仅考虑原子的内自由度，即能量本征态或能级 $|n\rangle$，还要考虑其外自由度，即动量 $\boldsymbol{p}$。外自由度与内自由度通过原子-光相互作用耦合，因为原子每吸收一个激光光子，不仅会改变其内态能级，还会获得该光子的动量 $\hbar\boldsymbol{K}_{\mathbf{L}}$，其中 $\boldsymbol{K}_{\mathbf{L}}$ 是激光束的波矢。同样，原子在发射过程中既会失去动量，也会改变其内态能级。因此，原子的态可以用组合基底 $|n\rangle|\boldsymbol{p}\rangle$来描述，其中 $|\boldsymbol{p}\rangle$ 是动量本征态。在位置空间中，动量本征态$|\boldsymbol{p}\rangle$ 对应于波矢为 $\boldsymbol{p}/\hbar$的平面波态。

光子的吸收和受激发射只会使原子的动量沿激光束方向发生离散变化，即变化 $\pm\hbar\boldsymbol{K}_{\mathbf{L}}$，对应的速度变化为 $v_{\mathrm{rec}} = \hbar|\boldsymbol{K}_{\mathbf{L}}|/m_{\mathrm{H}} \approx 0.97\mathrm{m/s}$。另一方面，自发辐射会使动量沿随机方向发生变化，其方向由该

跃迁的辐射方向图决定，动量变化量则由衰变所释放的能量决定。然而，原子穿过激光束时，发射事件最多只有几次，因为原子主要衰变至 1S 基态，而该态不与光谱激光器耦合。沿原子束的轴线（z轴），典型速度远大于反冲速度 $v_z \gg v_{\mathrm{rec}}$，因此自发辐射不会明显改变这一速度，也不会明显改变相互作用时间 $T = W_0/v_z$。沿 y轴的速度与 x轴上的速度 $v_y \approx v_x$ 相当，但与 x轴不同， y轴上没有光栅。沿 y轴发射 N 个光子，会使原子穿过 $\Delta y = N v_{\mathrm{rec}} T = N W_0 v_{\mathrm{rec}}/v_z$光束后在 y位置产生偏移。由于 $v_z \gg v_{\mathrm{rec}}$，该偏移远小于光束尺寸，因此不会改变原子-光相互作用的动力学过程。因此，我们在此仅将动量的量子力学处理限制在沿激光束方向的维度（x轴）。这一限制将动量本征态的基底缩减为 $|p\rangle_x$，其中 p是沿 x轴的横向动量，而组合基底则为 $|n\rangle|p\rangle_x$。

用于描述光力频移（LFS）的2S-6P 光谱能级图（见图2.1）经过了简化。为了描述光谱激光器对原子的激发，我们假设激光场仅耦合到单个跃迁[1]，，即$2\mathrm{S}_{1/2}^{F=0}$, $m_F=0$−$6\mathrm{P}_J^{F=1}$, $m_F=0$跃迁（此处简称为2S-6P），其精细结构分量为 J，可以是 $1/2$或 $3/2$。该跃迁的跃迁频率为$\nu_{\mathrm{A},\,0}$，它将亚稳初始能级 $|\mathrm{i}\rangle = |2\mathrm{S}_{1/2}^{F=0}, m_F=0\rangle$与激发能级 $|\mathrm{e}\rangle = |6\mathrm{P}_J^{F=1}, m_F=0\rangle$ 耦合起来。假设原子初始处于 $|\mathrm{i}\rangle$能级，这与实验中的情况相同。按照第 2.3.1 节的推导，假设激光场由两束沿 x轴反向传播的激光束组成，二者具有相同的频率 ν_{L}、偏振和强度，因此前向传播（+）和后向传播（−）的光束具有相同的拉比频率 $\Omega_{\pm}$。从前向传播（后向传播）光束中吸收光子，以及向其中受激发射光子，分别会使原子的动量改变 $\hbar K_{\mathrm{L}}$ （$-\hbar K_{\mathrm{L}}$）和 $-\hbar K_{\mathrm{L}}$ （$\hbar K_{\mathrm{L}}$），其中 $K_{\mathrm{L}} = |\boldsymbol{K}_{\mathbf{L}}|$ 为激光束的波数。

作为进一步的简化，激发能级 $|\mathrm{e}\rangle$ 的衰变通道被限定为两种：以速率 γ_{ei} 发生巴尔末系-δ 衰变，回到初始能级 $|\mathrm{i}\rangle$ （“反向衰变”）；以及以速率 $\Gamma_{\mathrm{ef}} \gg \gamma_{\mathrm{ei}}$发生莱曼-$\epsilon$ 衰变，跃迁至 1S 基态 $|\mathrm{f}\rangle$。这样，原子的内部动力学便简化为一个三能级系统，其中包括 $2\mathrm{S}_{1/2}^{F=0}$能级；激发能级以速率$\gamma_{\text{e-2S}} - \gamma_{\mathrm{ei}}$向这些能级的衰变未被明确纳入考虑。对于 $2\mathrm{S}$-$6\mathrm{P}_{3/2}$ 跃迁， γ_{ei} 比 $2\mathrm{S}$-$6\mathrm{P}_{1/2}$ 跃迁的对应值（$\gamma_{\mathrm{ei}}/\Gamma \approx 4\%$）大一倍（$\gamma_{\mathrm{ei}}/\Gamma \approx 8\%$），因此如下文所示，前一种跃迁会产生更大的光力频移。为了使激发能级的线宽与自然线宽 Γ相符，假设向 $2\mathrm{S}_{1/2}^{F=0}$能级的衰变最终到达基态，即 $\Gamma_{\mathrm{ef}} = \Gamma_{\text{e-1S}} + \gamma_{\text{e-2S}} - \gamma_{\mathrm{ei}}$。这是合理的近似，因为光谱激光器仅通过非共振方式将 $2\mathrm{S}_{1/2}^{F=0}$耦合到 6P 能级组。莱曼-ϵ 衰变构成实验中的荧光信号。为了在模型中提取该信号，将衰变回基态时观测到的信号乘以 $\Gamma_{\mathrm{det}}/\Gamma$。请注意，这不会改变系统的动力学。光谱激光器不会耦合基态，因此，在实验描述中，到达该能级的原子无关紧要。衰变率的数值见表 2.1。

[1]这意味着，这种光力频移模型未考虑 2S-6P跃迁的精细结构分量之间的量子干涉；对此则采用包含两个精细结构分量和其他耦合能级、但不考虑原子动量的大模型进行处理（见第 2.3.2 节）。

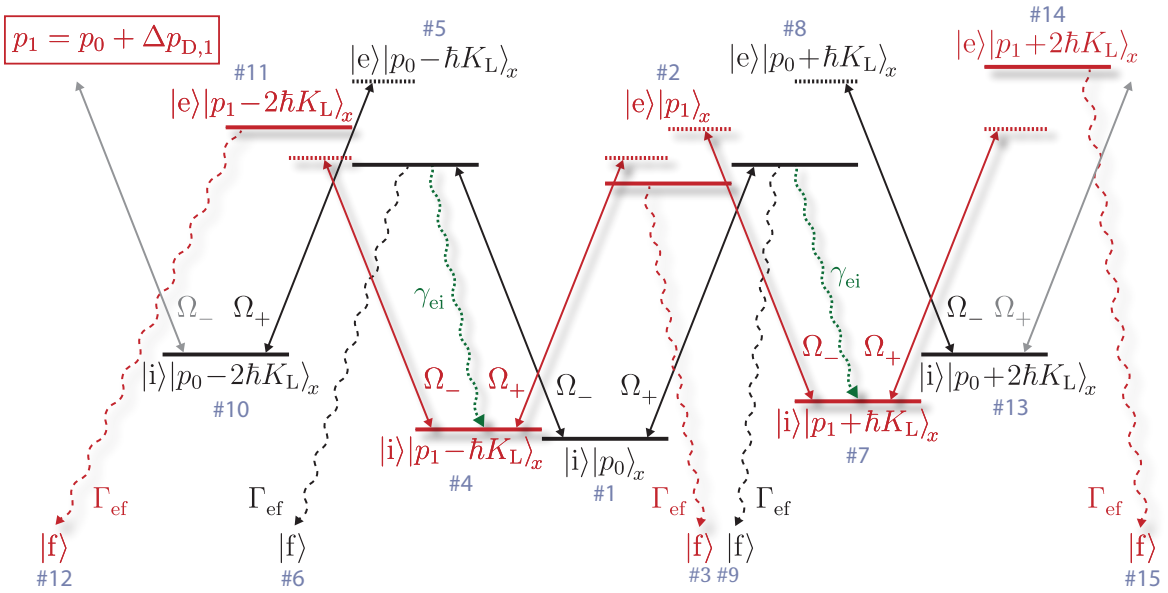


图 3.2：在吸收和受激发射事件（直箭头）中，反向传播激光束（拉比频率 $\Omega_\pm$）与原子之间通过动量转移 $\hbar K_\mathrm{L}$ 耦合内部原子能级与原子的动量，从而形成梯形能级结构（黑色）。耦合的内部原子能级分别为初始能级（2S态，$|\mathrm{i}\rangle$）、激发能级（6P，$|\mathrm{e}\rangle$）和基态（1S态，$|\mathrm{f}\rangle$）。以动量本征态 $|p_x\rangle$ 为基，其中 p 是原子沿 x 轴的横向动量，原子的状态可用组合基 $|\mathrm{i/e/f}|p_x\rangle$ 描述（实心水平线）。梯形结构沿正、负动量方向无限延伸（灰色箭头）；此处展示的是失谐为零时的实验室参考系情况。以速率 γ_ei 发生的自发反向衰变会使动量沿 x 轴随机改变 $\Delta p_{\mathrm{D},1} \in [-\hbar K_\mathrm{L}, \hbar K_\mathrm{L}]$，即 $p_0 \to p_1 = p_0 + \Delta p_{\mathrm{D},1}$：该衰变从 $|\mathrm{e}\rangle$ 到 $|\mathrm{i}\rangle$（绿色点状波浪线），并形成动量偏移后的梯形能级结构（红色）。衰变至 $|\mathrm{f}\rangle$（速率 Γ_ef，黑色和红色虚线波浪线）也会改变动量，但这不会影响系统的演化，因为激光束不会将 $|\mathrm{f}\rangle$ 与其他能级耦合。点状水平线表示激光相对于激发态的失谐（未按比例绘制）；激光与 $|\mathrm{i}\rangle|0\hbar K_\mathrm{L}x\rangle$ 至 $|\mathrm{e}\rangle|\pm\hbar K_\mathrm{L}x\rangle$ 跃迁共振。浅蓝色数字为图中所示态的编号。

频率确定但方向随机的一次自发辐射事件，会使动量沿 x轴随机改变 Δp_D。对于衰变回初始能级的反向衰变，$\Delta p_\mathrm{D} \in [-\hbar K_\mathrm{L}, \hbar K_\mathrm{L}]$ 具有归一化概率密度 [77]

$$\mathcal{N}(\Delta p_\mathrm{D}) = (3/8)\left(1 + \left(\frac{\Delta p_\mathrm{D}}{\hbar K_\mathrm{L}}\right)^2\right), \tag{3.44}$$

对应于将一次 π 衰变的辐射方向图投影到 x轴上（参见式（2.40））。

内部原子能级与原子动量的耦合形成了梯形能级结构，如图 3.2 所示。在实验室参考系中，两束激光束具有相同的频率。各态通过吸收和受激发射（图 3.2 中的直箭头）以及自发辐射（波浪线）由激光束耦合。一个最初完全离域、横向动量为 p_0 且沿 x 轴的原子处于态 $|\mathrm{i}\rangle|p_0\rangle_x$（#1）。通过吸收动量为 $\pm\hbar K_\mathrm{L}$ 的光子，原子从

向前或向后传播的激光束中任意一束吸收光子后，被激发至能级 $|\mathrm{e}\rangle$，同时获得光子的动量，即此时处于态 $|\mathrm{e}\rangle|p_0 \pm \hbar K_\mathrm{L}\rangle_x$。通常，原子会同时与两束激光束的合成场相互作用，从而处于多个态的叠加态。这种叠加态的概率密度以 $\lambda_{\mathrm{2S\text{-}6P}}/2$的空间频率发生调制，对应于原子通过与光栅的相互作用实现局域化。

由于存在两束反向传播的激光束，能级图以及由此产生的光力频移（LFS）关于入射横向动量呈对称性，即对$p_0 \to -p_0$保持不变。此外，通过考虑动量交换，反冲频移和一阶多普勒频移已自然地纳入模型。也就是说，态 $|\mathrm{i}\rangle|p_0\rangle_x$ 与态 $|\mathrm{e}\rangle|p_0 \pm \hbar K_\mathrm{L}\rangle_x$ 之间的能量差为 $h\nu_{\mathrm{A},0} + \hbar^2 K_\mathrm{L}^2/2m_\mathrm{H} + p_0\hbar K_\mathrm{L}/m_\mathrm{H}$，其中三项分别对应跃迁频率 $\nu_{\mathrm{A},0}$、反冲频移 $\Delta\nu_{\mathrm{rec}}$和一阶多普勒频移 $\Delta\nu_\mathrm{D}$ （见第 2.2.3 节）。此处将光谱激光器的频率失谐 $\Delta\nu_{\mathrm{2S\text{-}6P}}$ 定义为包含反冲频移，因此零失谐对应的激光频率为 $\nu_{\mathrm{A},0} + \Delta\nu_{\mathrm{rec}}$。

向激光束中的一次受激发射事件可进一步增加原子的动量（态 #10 和 #13），从而产生总动量传递 $\pm 2\hbar K_\mathrm{L}$。对于 $p_0 = \pm\hbar K_\mathrm{L}$ 这一特殊情况，该双光子过程处于共振状态，并对应于原子在光栅 [78] 上发生的一阶布拉格散射。然而，由于激光频率保持接近初始能级与激发能级之间的跃迁频率，该过程与中间激发态 $|\mathrm{e}\rangle|0\hbar K_\mathrm{L}\rangle_x$ 近共振，导致原子通过自发衰变损失到基态能级。对于更高动量传递，也可能发生更高阶共振过程，即从 $|\mathrm{i}\rangle|\pm N\hbar K_\mathrm{L}\rangle_x$ 跃迁至 $|\mathrm{i}\rangle|\mp N\hbar K_\mathrm{L}\rangle_x$，其中 N 为整数。由于涉及 N 个中间近共振态，自发发射造成的损耗也相应增加，从而限制了该过程的效率。因此，根据所需的准确度，通过吸收和受激发射产生的最大动量变化可受到限制，以便进行数值解。为此，引入整数 $N_{k,\ \max}$ ，最大动量变化表示为 $\pm N_{k,\ \max}\hbar K_\mathrm{L}$，从而对于 p 的每个取值，有 $2N_{k,\ \max}+1$ 个态。

从 $|\mathrm{e}\rangle$ 到 $|\mathrm{i}\rangle$ 的自发反向衰变（图 3.2 中绿色点状波浪线）会使沿 x-轴的动量改变随机量 $\Delta p_{\mathrm{D},1}$，即 $p_0 \to p_1 = p_0 + \Delta p_{\mathrm{D},1}$，从而形成动量发生偏移的梯形能级结构（红色）。如果原子再次被激发至 $|\mathrm{e}\rangle$，另一次具有 $p_1 \to p_2 = p_1 + \Delta p_{\mathrm{D},2}$ 的反向衰变会使另一能级图沿动量方向偏移随机量 $\Delta p_{\mathrm{D},2}$。原则上，这一过程可以无限持续。然而，由于 $\Gamma_{\mathrm{ef}} \gg \gamma_{\mathrm{ei}}$，原子在大多数情况下会衰变至基态能级 $|\mathrm{f}\rangle$，此后便无法再次被激发。因此，对于给定的准确度要求，反向衰变的最大次数可限制为$N_{\mathrm{BD,max}}$。经过 $N_{\mathrm{BD,max}}$ 次反向衰变后，原子便只能衰变至 1S 基态。为使激发能级的线宽保持为其自然线宽 Γ，该最终衰变的衰变率设为 Γ。

如上所述，原子一般处于激发态叠加中。随后发生的自发衰变会将这一叠加态从激发态转移至初始能级或基态能级，并使其中所有态的动量发生相同的变化。也就是说，动量不同但内态能级相同的态之间的相干性得以保留。只有通过这种相干性转移，激发能级概率密度的空间调制才会同样转移至初始能级或基态能级。正如第 2.3.1 节所述，这种相干性转移包含在连接相应激发能级与初始能级或基态能级的衰变之间的交叉阻尼中。重要的是，这也意味着

如果要用光学布洛赫方程描述该系统，就不能忽略主方程（见式 (2.36)）中相应的交叉阻尼项。

由于 Δp_{D}，因此 $\Delta p_{\mathrm{D},\,1}$，$\Delta p_{\mathrm{D},\,2}$，……都是随机的，所以原则上，梯形能级结构包含无限多个态，即使引入了有限的 $N_{k,\,\max}$ 和 $N_{\mathrm{BD},\,\max}$ 也是如此。为将该系统转化为光学布洛赫方程，采用以下近似：将 $N_{\mathrm{BD},\,\max}$ 和 $N_{k,\,\max}$ 分别设为 1 和 4，并固定 $\Delta p_{\mathrm{D},\,1}$ 的值。由此得到的光学布洛赫方程包含 27 个态，由 207 个实值耦合微分方程组成。其中包含四个信号方程，分别对应巴尔末系-δ 反向衰变的信号、发生反向衰变前的莱曼-ϵ 衰变、发生反向衰变后的莱曼-ϵ 衰变，以及后两者之和[1]，其中莱曼-ϵ 信号已按上述方法进行了缩放。对于每组输入参数，对光学布洛赫方程进行数值积分 $N_{\Delta p_{\mathrm{D}}}$ 次，分别取 $N_{\Delta p_{\mathrm{D}}}$ 个不同的 $\Delta p_{\mathrm{D},\,1}$ 值，然后根据式（3.44）对结果取平均。具体而言，我们使用含有 $N_{\Delta p_{\mathrm{D}}} = 4$ 个节点的高斯求积公式，对 $\Delta p_{\mathrm{D},\,1}$ 进行平均。

随后，对给定的输入态和一系列激光失谐 $\Delta\nu_{\text{2S-6P}}$，按照这一平均过程即可求得光力频移。从这些结果可以构建线扫描，即信号随 $\Delta\nu_{\text{2S-6P}}$ 变化的曲线；与实验中一样，所有 Ly-ϵ 衰变都构成该信号。接着将此线扫描视作实验线扫描（见第5章），并通过拟合线型函数求得光力频移 $\nu_{0,\,\mathrm{LFS}}$。

图 3.3 展示了对 2S-6P$_{1/2}$ 和 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁的光力频移模型进行数值积分的结果。输入态对应于横向动量为 p_0 的完全离域原子，也就是说，在数值积分开始时，只有态 $|\mathrm{i}\rangle|p_0\rangle_x$ 被占据。原子速度为 $v = 200\,\mathrm{m/s}$，因此它以偏离正交方向 $\delta\alpha \approx p_0/m_{\mathrm{H}}v$ 的角度穿过光栅。此处通过拟合 Voigt线型来确定模拟线扫描的共振频率 ν_0，其中 $\nu_{0,\,\mathrm{LFS}} \equiv \nu_0$ 为光力频移。对于 2S-6P$_{1/2}$（2S-6P$_{3/2}$）跃迁，光谱激光器的功率为 $P_{\text{2S-6P}} = 30$微瓦（15 微瓦）；横向光束剖面为高斯函数，强度半径为 $1/e^2$ $W_0 = 2.2\,\mathrm{mm}$，与实验中所用参数相同。注意，2S-6P$_{3/2}$ 跃迁的偶极矩比 2S-6P$_{1/2}$ 跃迁的大 $\sqrt{2}$ 倍，因此，在 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁中使用功率 $P_{\text{2S-6P}}/2$，等效于在 2S-6P$_{1/2}$ 跃迁中使用 $P_{\text{2S-6P}}$。$\nu_{0,-\mathrm{LFS}}$ 在 $p_0 \approx 0.3\hbar K_{\mathrm{L}}$，$0.85\hbar K_{\mathrm{L}}$、……处显示出细微波动，这是对反向衰变动量变化 $\Delta p_{\mathrm{D},\,1}$ 进行平均时产生的数值伪影。

如图 3.3 (A) 所示，当 p_0 为零时，2S-6P$_{1/2}$ 跃迁（绿色实线）和 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁（红色虚线）的光力频移均约为 -600赫兹。随着 p_0 增大，光力频移变得更加负，直到在 $p_0 = \hbar K_{\mathrm{L}}$ 处出现类共振特征。超过该共振后，光力频移始终为正。2S-6P$_{3/2}$ 跃迁的光力频移通常更大，这是因为其反向衰变率 γ_{ei} 大了一倍。将 γ_{ei} 人为设为零（黑色点线）即可证明这一点。

图 3.3 (A) 未完整显示 $p_0 = \hbar K_{\mathrm{L}}$ 处的共振，但在图 3.3 (B) 中进行了突出显示。在该点附近，光力频移最高可达 230 千赫兹。这是由 $|\mathrm{i}\rangle|\hbar K_{\mathrm{L}}\rangle_x$ 到 $|\mathrm{i}\rangle|-\hbar K_{\mathrm{L}}\rangle_x$ 的双光子跃迁所导致的；如上文所述，当 $p_0 = \hbar K_{\mathrm{L}}$ 时，该跃迁变为共振。这里的光力频移对于两种跃迁都相同，因为该共振并非反向衰变所致；在 γ_{ei} 为零时也观察到了相同的光力频移。该双光子共振的宽度由原子与

[1]对于这两个信号的非相干和，无需另设信号方程，但为方便起见仍将其列出。

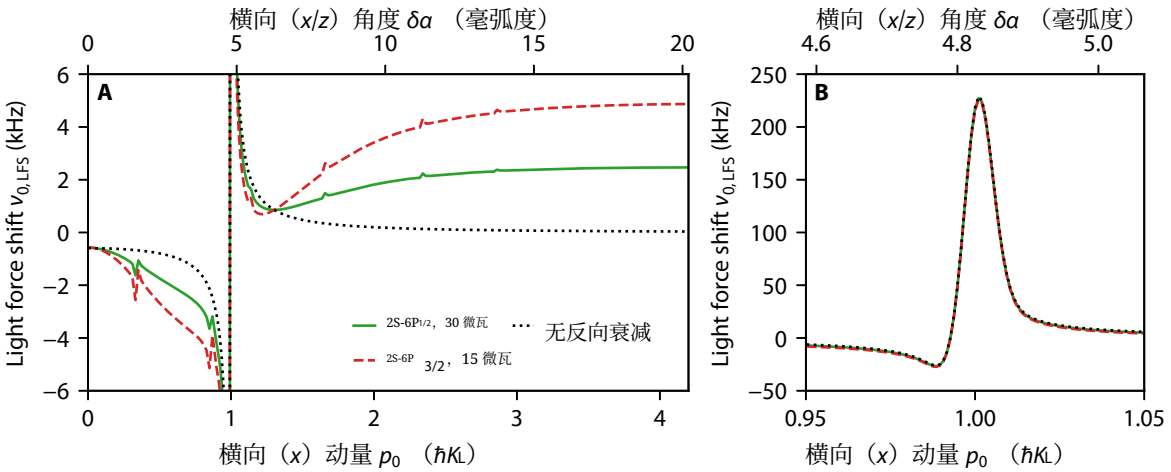


图3.3：（**安培**）光力频移（LFS）$\nu_{0,\,\mathrm{LFS}}$ 随横向动量 p_0 （底部坐标轴）的变化模拟图，针对2S-6P$_{1/2}$ 跃迁（实绿色线）和2S-6P$_{3/2}$ 跃迁（红色虚线）。p_0以光子动量 $\hbar K_{\mathrm{L}}$为单位，表示沿形成光栅的光谱激光束方向的动量。入射原子处于2S能级，并沿横向（$|\mathrm{e}\rangle|p_0\rangle_x$）离域。原子速度为 $v = 200\mathrm{m/s}$，因此它以偏离正交方向 $\delta\alpha \approx p_0/m_{\mathrm{H}}v$ （顶部坐标轴）的角度穿过光栅。$\nu_{0,\,\mathrm{LFS}}$ 通过将沃伊特线型拟合到由光力频移模型的光学布洛赫方程积分得到的模拟线扫描来确定。相应的能级图见图 3.2。2S-6P$_{1/2}$跃迁的光谱激光功率为$P_{\mathrm{2S\text{-}6P}} = 30$ 微瓦（15 微瓦），2S-6P$_{3/2}$跃迁亦然；由于2S-6P$_{3/2}$ 跃迁的偶极矩较大，两种跃迁的拉比频率相同。2S-6P$_{3/2}$ 跃迁的光力频移较大，是因为其到2S初始能级的反向衰变率 γ_{ei} 高出一倍。图中还显示了无反向衰变时的光力频移，即令 γ_{ei} 为零（黑色点线），并采用与 γ_{ei}非零时相同的拉比频率。 $p_0 \approx 0.3\hbar K_{\mathrm{L}}$， $0.85\hbar K_{\mathrm{L}}$，.....处的波动是对反向衰变动量变化$\Delta p_{\mathrm{D},\,1}$求平均时产生的数值伪影。（**B**）与（**A**）相同的数据，但显示 $p_0 = \hbar K_{\mathrm{L}}$附近的区域；在该区域，双光子共振会导致特别大的光力频移，且与反向衰变率无关。

激光束之间有限的相互作用时间决定。由于共振总是发生在 $p_0 = \hbar K_{\mathrm{L}}$ 处，相应的横向角 $\delta\alpha \approx \hbar K_{\mathrm{L}}/m_{\mathrm{H}}v$ 与 v 成反比。

在共振以上，此时为正的光力频移分别趋近于 2.7 千赫兹和 4.9 千赫兹，对应 2S-6P$_{1/2}$ 和 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁。然而，如果描述中未纳入反向衰变，光力频移在共振以上会趋近于零，这再次表明在描述光力频移时纳入反向衰变的重要性。

图3.4显示了 2S-6P$_{1/2}$ 跃迁的光力频移；在 2S-6P测量中使用的光谱激光功率取三个不同值： $P_{\mathrm{2S\text{-}6P}} = 10$微瓦、20 微瓦和 30 微瓦。光力频移与激光功率近似呈线性关系，与横向动量的取值无关，包括在共振处也是如此。

OBE模型的准确度通过基于蒙特卡罗波函数（MCWF）（或量子跳跃）方法 [77, 79, 80] 的模拟得到了验证。在该方法中，反向衰变的数量无需受限，反向衰变动量变化 Δp_{D} 也无需离散化。这是因为在该方法中，波函数利用伪哈密顿量随时间演化，并且在每个时间步长都可能发生一次具有随机动量变化的衰变

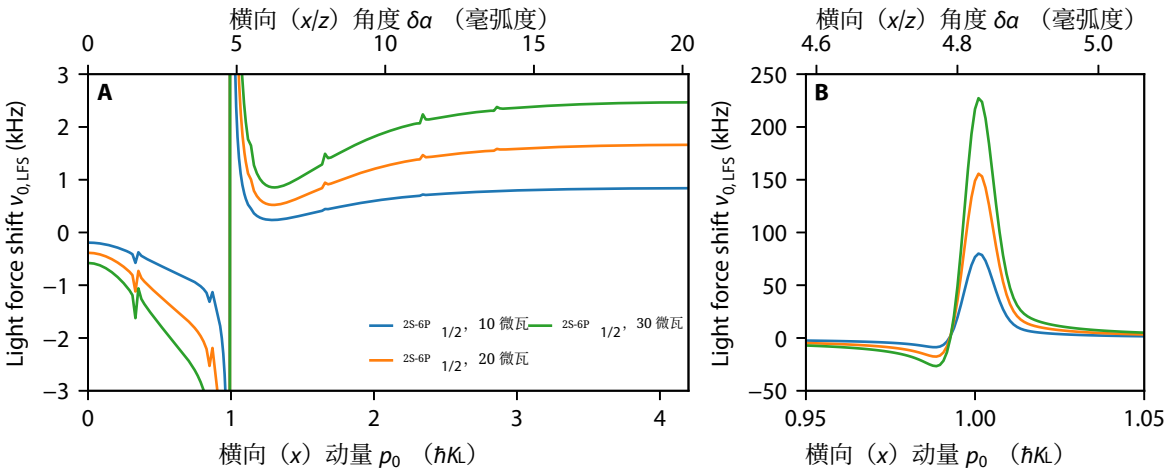


图 3.4: （**A**）光力频移（LFS）模拟 $\nu_{0,\,\mathrm{LFS}}$ 随横向动量 p_0 和光谱激光功率 $P_{\mathrm{2S\text{-}6P}}$的变化。与图 3.3 类似，但仅包含 2S-6P$^{1/2}$ 跃迁的结果。LFS 与 $P_{\mathrm{2S\text{-}6P}}$近似呈线性关系，且与横向动量的大小无关。（**B**）数据与（A）相同，但展示了 $p_0 = \hbar K_{\mathrm{L}}$附近的区域；此处的双光子共振会导致特别大的 LFS，且 LFS 也与 $P_{\mathrm{2S\text{-}6P}}$近似呈线性关系。

。随后，对许多这样的量子轨迹[1] 重复这一过程，以求得系统的平均演化；由此可以得到密度矩阵，而密度矩阵正是光学布洛赫方程所计算的对象。因此，尽管MCWF方法是求解涉及自发衰变问题的一种非常灵活的方法，但对于此处讨论的问题，它的计算成本远高于光学布洛赫方程方法，因为要准确模拟光力频移，需要大量量子轨迹。

使用蒙特卡洛波函数方法计算速度为 $v = 200\mathrm{m/s}$、横向动量为 $p_0/\hbar K_{\mathrm{L}} = 0$、1、2 的原子的 LFS，每种情况均使用 2×10^8 条量子轨迹。采用 2S-6P$^{3/2}$ 跃迁，激光功率设为 $P_{\mathrm{2S\text{-}6P}} = 15$微瓦。首先，不限制反向衰变的次数，并改变$N_{k,\mathrm{max}}$，即最大动量变化。即使在 $p_0/\hbar K_{\mathrm{L}} = 1$的共振处，$\nu_{0,\mathrm{LFS}}$ 的变化也小于 5 赫兹，从 $N_{k,\mathrm{max}} = 3$ 到$N_{k,\mathrm{max}} = 4$；进一步将 $N_{k,\mathrm{max}}$ 增加至 5 时，变化小于 100 毫赫兹。其次，使用$N_{k,\mathrm{max}} = 4$改变最大反向衰变次数 $N_{\mathrm{BD,max}}$，并与不施加此限制的情况进行比较。对于 $N_{\mathrm{BD,max}} = 1$ （$N_{\mathrm{BD,max}} = 2$），与后一种情况的差异小于 30 赫兹（0.4 赫兹），相当于相应 LFS 的 4%（5×10^{-4}）以下。因此，在 OBE 模型中使用 $N_{k,\mathrm{max}} = 4$ 和 $N_{\mathrm{BD,max}} = 1$ 是合理的近似，符合当前的准确度要求；在此准确度下，LFS 需要校正至其数值的~30%以内。本文将这一 OBE 模型称为 LFS 模型，并用它校正 2S-6P测量的结果，具体讨论见下文。

最后，估算了在光力频移模型中使用高斯求积公式对反向衰变动量变化 $\Delta p_{\mathrm{D},1}$ 进行平均所产生的误差。为此，一方面，使用含有 $N_{\Delta p_{\mathrm{D}}} = 4$ 的高斯求积公式，另一方面，对 $\Delta p_{\mathrm{D},1}$ 进行等间隔采样，并据此计算了从 $\delta\alpha = 0$ 毫弧度到 20 毫弧度范围内的平均光力频移，

[1]不要将其与原子（经典）轨迹混淆，也就是原子位置随时间的变化。这里，术语“轨迹”用于指这类经典轨迹，尤其是在原子束的蒙特卡罗模拟中；而 MCWF 方法中的量子轨迹则称为量子轨迹。

$N_{\Delta p_{\mathrm{D}}} = 101$。使用后者时未发现数值伪影，但计算时间增加了 25 倍。结果之间的差异在 ≈ 1 % 以内，因此我们将其视为使用高斯求积公式所产生的误差。

3.4.2 原子束的光力频移

在上一节中，我们已经说明如何使用光学布洛赫方程（OBE），对具有确定横向动量 p_0 和速度v的单个离域原子的 2S-6P跃迁光力频移（LFS）进行建模。现在我们回到如何模拟原子束中观测到的光力频移这一问题。原则上，可以直接将原子束密度矩阵的动量空间表示 ρ_2（式（3.32））用作光力频移模型的输入态。但有两个需要注意之处：首先， ρ_2 是连续的，而模型使用离散的动量态。其次，此前一直忽略了通过1S-2S制备激光器的双光子吸收将原子激发至2S初始能级的过程，并且将圆形喷嘴和矩形光阑近似为高斯分布。

通过比较原子束的横向动量相干尺度$p_{\mathrm{c,\ t,\ 2}} = m_{\mathrm{H}} \times 2.5 \times 10^{-4}\mathrm{m/s}$（在第 3.3.4 节中推导）与原子-光相互作用的典型横向动量尺度 $\hbar K_{\mathrm{L}} = m_{\mathrm{H}} v_{\mathrm{rec}} \approx m_{\mathrm{H}} \times$0。97 m/s，可以解决这些问题。由于$p_{\mathrm{c,\ t,\ 2}} \ll \hbar K_{\mathrm{L}}$，在描述光力频移时，可以忽略动量态之间的相干性。换言之，动量空间中的密度矩阵可以视为对角矩阵，因为占据态之间的相干性会极快地衰减；对于激光耦合的动量态而言，这种相干性实际上为零。同样，彼此具有一定相干性的动量态之间的动量差，与相互作用的动量尺度相比小得多，因此可以将它们视为同一个输入态。

因此，我们可以将原子束建模为离域原子的非相干和，即位置空间中的平面波。这与前文讨论的扩展非相干光源情形十分相似（见第 3.2.1 节）：光源中的每个点都会发射完全相干的平面波。只有通过非相干和，也就是将每个平面波产生的强度干涉图样相加，相干性才会受到限制，达到空间相干长度所对应的数值。

通过这种方式，光力频移模型可以与原子束建模联系起来：将原子束视为一组具有确定位置和动量的 N_{traj} 经典原子轨迹，这一方法已在第5.2节中介绍。该蒙特卡罗建模通过对轨迹进行适当加权，将1S-2S激发和实验中的时间分辨探测纳入考量。随后，针对每条轨迹，求解光力频移模型，其中离域原子的横向动量与该轨迹的横向动量相匹配。以这种方式得到的信号再对所有 N_{traj} 轨迹求和，相当于对信号中观测到的干涉图样进行非相干求和。然后，将信号总和随激光失谐变化的关系用适当的线型函数拟合，所得共振频率$\nu_{0,\ \mathrm{LFS}}$对应于这组轨迹的光力频移。图6.6（A）展示了采用描述2S-6P测量的轨迹集进行这一流程所得的结果。

请注意，使用这类经典轨迹代替维格纳函数，相当于忽略原子束在孔径处的衍射，但重要的是，并未忽略光栅的衍射。不过，孔径处的衍射可以忽略，因为孔径远大于横向相干长度。

第4章

氢光谱仪

本章介绍在马克斯·普朗克量子光学研究所（MPQ）激光光谱学部用于对原子氢（H）中的2S-nP 跃迁进行激光光谱学测量的实验装置，即氢光谱仪。首先，第 4.1 节介绍光谱仪的核心组件——原子束装置。第 4.2 节将讨论容纳原子束装置的真空系统。第 4.3 节将详细介绍用于将氢原子从 1S 基态激发至亚稳态 2S 能级的激光系统。第 4.4 节将详细介绍驱动2S-6P跃迁的光谱激光器，以及用于抑制穿过光谱激光束的运动原子所产生的一阶多普勒频移的主动式光纤反射器（AFR）。第 4.5 节介绍氢原子低温原子束的形成。第 4.6 节聚焦于探测器组件，该组件收集原子从 6P能级衰变时发出的荧光。第 4.7 节将讨论控制实验、采集并存储测量数据的数据采集硬件和软件。最后，第 4.8 节介绍如何确定以国际单位制表示的激光频率。

4.1 原子束装置

氢光谱仪的核心部分——原子束装置的三维视图如图 4.1 所示。下面介绍图中标出的各个组件，每个组件均以一个双字母缩写标记，后续章节将对其作更详细的讨论。

原子束装置位于真空室内，真空室分为两个差分抽气区域（见第 4.2 节）。外部真空区域由涡轮分子泵抽气，仅通过高真空入口（**EA**）和出口（**OA**）孔径与内部高真空区域相连。高真空区域通过高真空外壳（**HV**）底部的孔洞（**CC**），以及探测器圆筒（**DC**）底部的金属丝网，由低温泵抽气。单层磁屏蔽罩（**MS**）包围着高真空区域。

室温下的原子氢（H）通过解离分子氢生成（见第4.5.1节），经由由聚四氟乙烯制成的管道（**TT**）[1] 输送至铜喷嘴（**NZ**）（见第4.5.2节）。喷嘴连接到氦连续流低温恒温器（**CS**），并

[1]聚四氟乙烯：聚四氟乙烯，通常以其品牌名特氟龙为人所知。

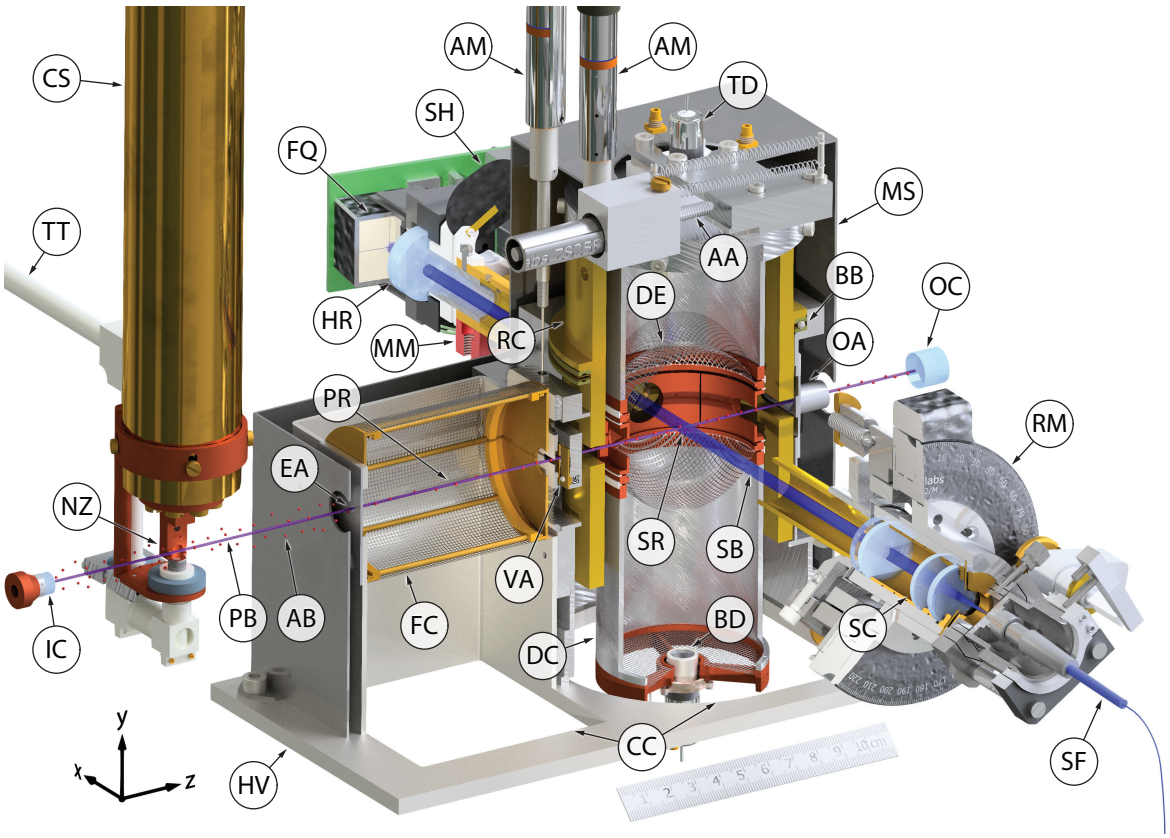


图4.1：用于测定2S-6P跃迁频率的原子束装置三维视图（正投影）。部分部件以剖开方式显示，以呈现其他情况下被遮挡的细节。详情参见第4.1节。**AA**：α_0 对准执行器，**AB**：原子束，**AM**：可变光阑执行器，**BB**：底座圆柱滚珠轴承，**BD**：底部探测器，**CC**：连接至低温泵，**CS**：低温恒温器，**DC**：探测器圆筒，**DE**：探测器电极，**EA**：高真空入口光阑，**FC**：1S-2S法拉第笼，**FQ**：AFR四象限光电倍增管，**HR**：AFR高反射镜，**HV**：高真空外壳，**IC**：压电驱动的 243 nm 入射耦合镜，**MM**：压电驱动的AFR镜架，**MS**：磁屏蔽罩，**NZ**：铜喷嘴，**OA**：高真空出口光阑，**OC**：243纳米耦出镜，**PB**：原子束和1S-2S制备激光束，**PR**：1S-2S 制备区，**RC**：可旋转底座圆筒，**RM**：准直器旋转架，**SB**：2S-6P光谱激光束，**SC**：四透镜光纤准直器，**SF**：保偏光纤，**SH**：AFR快门，**SR**：2S-6P光谱区，**TD**：顶部探测器，**TT**：聚四氟乙烯管，**VA**：可变光阑；AFR：主动式光纤回射器，PTFE：聚四氟乙烯（特氟龙）。

冷却至 $T_{\mathrm{N}} = 4.8$开尔文。氢热化至喷嘴温度，并通过两个孔口离开喷嘴通道，形成冷原子束（**AB**）。实验中仅探测通过高真空入口光阑（即图 4.1中向右的方向）并进入高真空区域的原子。与喷嘴通道一起，下游一个高度固定、宽度可变的孔径（**VA**）进一步限制原子束的发散度。孔径宽度通过两个致动器（**AM**）进行远程控制（见第4.5.3节）。

从喷嘴逸出的原子最初处于电子基态能级1S态。为了产生处于亚稳态2S能级的冷原子束（2S原子），原子束与波长为243纳米、与1S-2S双光子跃迁共振的共线制备激光束（**制备光束**）重叠（见第 4.3 节）。一个线性双镜增强

腔的 $1/e^2$ 强度半径为0.3毫米（**输入耦合镜**：反射率为$R_{\mathrm{IC}} = 98.4\%$的243纳米输入耦合镜，**输出耦合镜**：反射率为 $R_{\mathrm{OC}} = 99.8\%$的243纳米输出耦合镜），用于增强原子所感受到的 1S-2S 激光强度（见第 4.3.3 节）。这样，原子在飞经装置时被激发至2S能级，同时由 1S-2S法拉第笼屏蔽，免受1S-2S 制备区（**制备区**）内杂散电场的影响（**法拉第笼**）。

原子束穿过可变光阑（**VA**）后，便在 2S-6P 光谱区（**SR**）与两束波长为 410纳米、反向传播的 2S-6P 光谱激光束（**SB**）相互作用。这些激光束由 2S-6P 光谱激光器产生（见第 4.4.1 节），并通过保偏光纤（**SF**）导入真空室。装置的核心是主动式光纤回射器（AFR，见第 4.4.2 节），由四透镜光纤准直器（**SC**）、安装在压电驱动反射镜架（**MM**）上的高反射率（HR）反射镜（**HR**）、远程操作快门（**SH**）以及四象限光电倍增管（PMT）（**FQ**）组成。准直器产生高质量的高斯光束，其 $1/e^2$ 强度半径为 $W_0 = 2.2$毫米，光束在高反射镜处被反向反射。通过驱动反射镜架主动控制反射镜的俯仰角，使光束耦合回光纤。这样便产生了两束反向传播、波前回溯的[1] 激光束。也可以用快门在前向传播光束到达反射镜前将其挡住，从而避免产生返回的激光束。少量激光会透过高反射镜泄漏出来，并由四象限光电倍增管探测。借助手动旋转架（**RM**），可以让准直器和光纤绕光束轴旋转，从而转动由光纤决定的线偏振方向。

2S原子飞过2S-6P光谱激光束时，会被激发至寿命很短的6P能级。它们在仍处于光谱区时便发生衰变，主要发射波长为93.8 纳米的荧光光子。这些光子的能量足以从探测器圆筒（**DC**）的壁面上打出光电子（见第4.6节），随后由探测器圆筒顶部（**TD**）和底部（**BD**）的电子倍增器探测。电子倍增器的输入端面相对于接地探测器圆筒保持正偏置电压，以吸引光电子。为避免干扰原子，使用光谱区上方和下方的金属丝网（**DE**）屏蔽由此产生的电场。可在这些金属丝网以及构成光谱区内探测器圆筒壁面的四个铜电极上施加偏置电压，以测量并抵消残余杂散电场（见图 4.34）。

探测器圆筒安装在可旋转底座圆筒（**RC**）上，而该底座圆筒通过滚珠轴承（**BB**）与高真空外壳相连。借助 α_0 对准执行器[2] （**AA**），可远程绕其轴线旋转探测器圆筒。由于 AFR 的各个组件（它们确定了光谱激光的传播轴）都安装在旋转安装架上，因此可以调整 α_0 光谱激光与原子束之间的偏移角。该偏移角由孔径和制备激光束的传播轴定义。请注意，偏移角 α_0 定义为原子束与激光束的传播方向相对于正交方向的夹角；两束

[1]此处所说的波前回溯，是指两束光在任意点处的波矢均反向平行。这一特性在我们先前的出版物中称为相位回溯 [24, 28]。[2]Thorlabs Z825BV 直流伺服电机执行器，配备旋转编码器。其绝对轴向精度标称为 130 µm，双向重复性为 $<1.5\,\mu$m。圆筒转动 16.7 mrad，对应 1 mm 的线性位移，转动量为 $\alpha_0 \approx 0$mrad。在实验中，原位确定执行器（由其编码器给出）对应于 $\alpha_0 = 0$mrad 的位置 [28], ，之后所有转动均以此位置为基准进行。

be光束以接近直角的角度相交，因此 α_0 该角度约为几毫弧度 .

实验本身通过重复固定的测量周期（即斩波器周期）来进行，频率为 $f_{\mathrm{chop}} = 160$赫兹。首先，解除对1S-2S制备激光束的遮挡，并将增强腔的长度稳定到该激光束的频率上。因此，穿过装置的原子会被激发至2S亚稳态能级。经过（$1/f_{\mathrm{chop}}$）$/2 = 3.125$毫秒后，再次挡住1S-2S 激光束。2S-6P 光谱激光束不受遮挡，因此穿过这些光束的原子可以从2S态激发至6P能级。挡住1S-2S 激光束会触发荧光时间分辨探测的开始，并在 $\tau = 0$微秒处开始探测从6P能级衰变的原子所发出的荧光。来自任一电子倍增器的每个脉冲都记录为一次计数。由于在探测期间1S-2S 激光束被挡住，它无法将2S原子光电离，否则会导致很高的本底计数率。同时，由于不再发生1S-2S激发，在延迟时间为 τ 时探测到的原子必定已经在装置中飞行了至少 τ的时间。这将被探测原子的最大速度限制为[1] $v_{\mathrm{max}} \approx L/\tau$，其中 L 是从喷嘴到2S-6P激光束的距离。因此，时间分辨探测转变为速度分辨探测。经过再次进行3.125毫秒的探测后，重新解除对1S-2S 激光束的遮挡，周期开始新一轮循环。

总计，160个斩波器周期在1 s内重复进行，延迟时间 τ 对应的计数数目在这些周期内累加。随后，改变实验参数（例如2S-6P光谱激光器的频率），并重复实验（见第4.7节）。由此得到的基本数据集是计数数目随延迟时间τ 和激光频率变化的关系，本文中称之为线扫描。结合激光频率的测定结果，即可确定2S-6P跃迁的跃迁频率（见第4.8节）。

另一个更长的实验周期，是由于喷嘴会被冻结的氢逐渐堵塞。随着时间推移，喷嘴通道的直径会因此减小，直到穿过通道的1S-2S激光束衰减到无法继续进行实验的程度。随后将喷嘴加热至室温，以去除冻结的氢和其他痕量气体（“解冻喷嘴”）。本文将这一实验周期称为冻结周期（FC），每个测量日分为多个冻结周期。对于本文采用的喷嘴几何结构、喷嘴温度和氢气流量，一个冻结周期约为 $\Delta t_{\mathrm{FC}} = 120$分钟。组成2S-6P测量的各个FC，均按其所属的测量运行（见表6.1）及该运行内的顺序编号命名，例如，B29是运行B中的第 29th 个FC。

4.2 真空系统

第 4.1 节介绍的原子束装置置于真空室内，以便探测不受背景气体粒子碰撞影响的氢原子。真空系统的三维视图如图 4.2 所示。与图 4.1 一样，关键部件以两个字母的缩写标注，两图中均出现的部件使用相同的缩写。

[1]严格来说，沿原子束方向的最大纵向速度 v_z 受限于 L/τ，但这里 $v \approx v_z$，因为原子束准直良好。

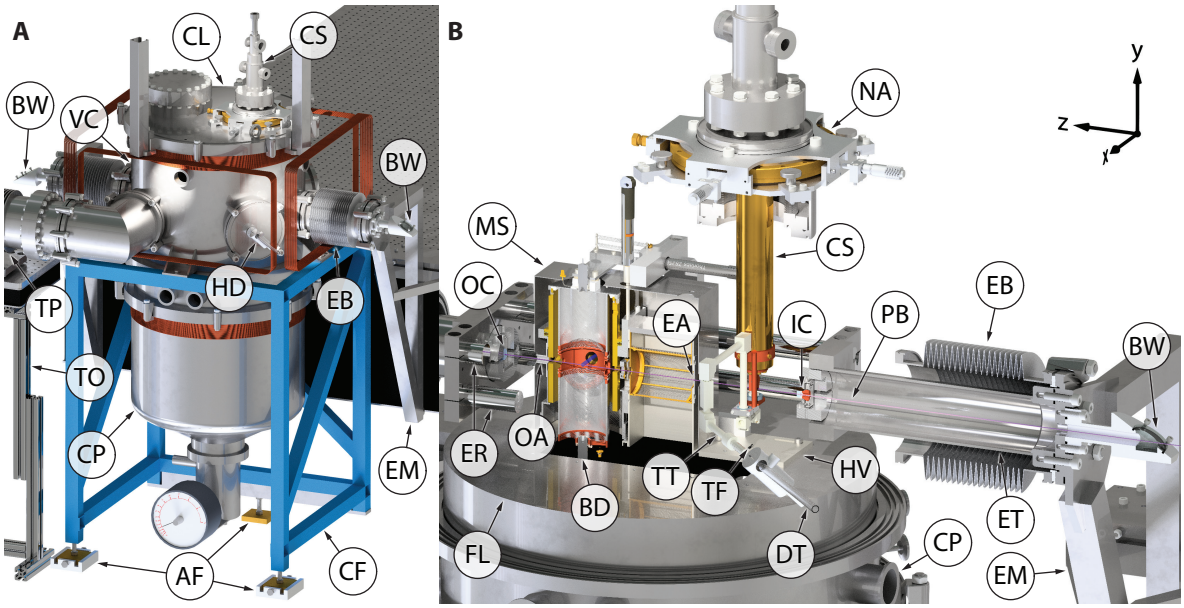


图 4.2：包含原子束装置的真空系统三维视图（正投影）（见图 4.1）：（**A**）包括支撑框架和泵在内的完整系统；（**B**）系统上部，其中圆形真空腔室的盖已移除，增强腔间隔件和原子束装置已剖开，以展示安装方式和差分抽气方案。两幅视图的坐标轴均显示在右上角。详情请参见第 4.2 节。**AF**：可调支脚，**BD**：底部探测器，**BW**：243 nm 布儒斯特窗，**CF**：真空腔室框架，**CL**：真空腔室盖，**CP**：低温泵，**CS**：低温恒温器，**DT**：解离器放电管，**EA**：高真空入口光阑，**EB**：增强腔间隔件波纹管，**EM**：增强腔安装支架，**ER**：增强腔间隔件因瓦杆，**ET**：增强腔间隔管，**FL**：圆柱形真空腔室底板，**HD**：氢解离器，**HV**：高真空外壳，**IC**：压电驱动的 243 nm 入射耦合镜，**MS**：磁屏蔽罩，**MW**：解离器微波腔，**NA**：喷嘴对准台，**OA**：高真空出口光阑，**PB**：原子束和1S-2S制备激光束，**TF**：真空腔室底板温度传感器，**TO**：涡轮分子泵光学平台，**TP**：涡轮分子泵，**TT**：聚四氟乙烯管，**VC**：圆柱形真空腔；EC：243 nm增强腔，PTFE：聚四氟乙烯（特氟龙）。

4.2.1 真空室

容纳原子束装置的真空室（**VC**）是不锈钢圆筒，内径为 498 毫米，可用高度为 332 毫米，测量范围从腔室底部（**FL**）到腔室盖（**CL**）。真空室分为两个差分抽气区域：外部真空区域主要容纳低温恒温器（**CS**）、氢喷嘴和 243 nm增强腔；内部高真空区域则包含 1S-2S 制备区和 2S-6P光谱区。两个真空区域由腔室底部和高真空外壳（**HV**）隔开，仅通过两个孔径相连：入口光阑（**EA**），直径为 2.4 毫米、长度为 1.0 毫米；以及出口孔（**OA**），直径为 7 毫米、长度为 13 毫米。此外，还可以使用阀门控制的旁通管路暂时连通这两个区域，从而获得高得多的流导。

4.2.2 外部真空区域

外部真空区域由一台混合轴承涡轮分子泵[1]（**TP**）抽气，其对 H_2 的抽气速率为 555 l/s。所需的前级真空由一台无油粗抽泵[2]产生。涡轮分子泵通过隔振器连接到真空室，并安装在一张独立的光学平台（**TO**）上，该平台置于实验室地面上。当没有氢气进入真空系统时，外部真空区域的本底压力（P_{OV}，按 N_2 气体校准，见下文）通常为 2×10^{-6}mbar。

4.2.3 高真空区域与低温泵

内部高真空区域由一台低温泵[3] （**CP**）抽气，该泵安装在真空室底部，对 H_2, 的抽气速率为 10 000 l/s。低温泵基于吉福德-麦克马洪循环 [81], ，以氦作为工作流体，并配有外置压缩机。低温泵是设计中的一项重大限制因素，原因在于它体积庞大、其内部排移器运动会引发强烈振动，以及真空室与低温泵之间存在较大的温差。事实上，只有在低温泵停止运行时才能采集光谱数据，因此实验周期需要每隔几分钟在运行低温泵和采集数据之间切换。然而，与其他类型的无油真空泵相比，低温泵对氢气具有无可匹敌的抽气速率和抽气容量。低温泵可冷却至 19 K，低于水蒸气、氮气和氧气等常见残余气体的冰点，但高于氢的冰点。相反，氢是通过低温吸附从环境中去除的，吸附剂为涂覆在低温泵内部的活性炭 [81]。低温泵对 N_2 和 H_2O 的抽气速率分别高达 10 000 l/s 和 29 000 l/s，因此维护时破除真空后，可在约 8 h 内快速循环并抽至约 1×10^{-7} mbar 的压力。当没有氢气进入真空系统时，高真空区域的本底压力（P_{HV2}，按 N_2 气体校准，见下文）通常为 5×10^{-8}mbar。

4.2.4 真空诊断

两个真空区域的压力由混合式压力计测量[4], ，该压力计结合了基于气体热导率测量的真空计（皮拉尼真空计）和热阴极电离规（贝阿德-阿尔珀特规），分别用于高于和低于5×10^{-3} mbar的压力。为监测外部真空区域的压力 P_{OV}，在连接到真空室的直角弯管之后安装了一个真空计。高真空区域由两个压力计监测。其中一个压力计直接连接到真空室腔室底部下方的一个接口，从而探测 P_{HV1} 接近光谱区处的压力。然而，该压力计的热灯丝会产生带电粒子，这些粒子主要由底部电子倍增器（**BD**）检测到，使本底计数率达到约每/s 100次计数，比关闭热灯丝时高出一百倍。为

[1]Pfeiffer HiPace 700，H_2, 的压缩比为 4×10^5，高真空侧采用静磁轴承，前级真空侧采用机械轴承。测量结束后，为进一步减少机械振动，将涡轮分子泵更换为规格相近的磁悬浮版本。[2]Pfeiffer ACP 40，标称抽速为 37 m^3/h。[3]Leybold RPK 10000。[4]Leybold Ionivac ITR 90 和 Ionivac ITR 200 S。

因此，第二个压力计用于测量压力 P_{HV2}，安装在连接至腔室底部下方另一个接口的两段直角弯管之后。该压力计不会导致本底计数率增加；测量期间只开启此压力计（以及外部真空计）。两个高真空计之间的压力比通常取决于压力、温度和所含气体种类。在测量条件下，即低温泵和喷嘴均处于低温状态且氢气流入装置时，$P_{\mathrm{HV1}}/P_{\mathrm{HV2}} \approx 0.65$。此外，在这些条件下，背景气体以 H_2, 为主，而真空计是按 N_2 气体校准的，因此需要采用由制造商确定的 2.4 修正系数。这两个因素用于根据 P_{HV2}的测量值确定高真空区域的本底压力。

通过一个直角弯管，还在高真空区域连接了一个采用四极杆质谱仪的残余气体分析仪[1]（RGA）。RGA 主要用于真空诊断，例如检测微小泄漏。

4.2.5 真空内243 nm增强腔的安装

为使243 nm增强腔在低温泵运行时仍与激光保持共振，增强腔与真空室相互隔离。真空室安装在铝框架（**CF**）上，而铝框架固定在实验室地面上。增强腔则安装在间隔件上，间隔件通过支架（**EM**）安装在光学平台上。激光系统本身也放置在该光学平台上。间隔件（见图 4.2 (B)）由两根钢管（**ET**）和四根因瓦杆（**ER**）组成。真空室与间隔件通过柔性波纹管（**EB**）连接，以密封真空连接，同时抑制振动传递。增强腔的输入耦合（**IC**）和输出耦合（**OC**）反射镜安装在可手动操作、从顶部调节的反射镜架中。为调节高真空区域相对于增强腔光束轴的位置，可以通过三个可调支脚（**AF**）移动整个真空室，而基本不影响增强腔。三个支脚的高度均可独立调节；位于前方、即远离光学平台一端的两个支脚，可以朝向或远离光学平台移动。为实现后一种移动，靠近光学平台的支脚可以在金属板上滑动。

在2S-4P测量期间（见附录A），为进一步减少从真空室传递到增强腔的振动，我们在第一个间隔件内安装了第二个用于固定反射镜架的间隔件，并使用针状杆和O形圈进行固定。然而，在抽真空时，这种设计会导致增强腔的对准频繁偏移；最终发现，与当前布置相比，它对真空室的振动更为敏感。

4.2.6 氢喷嘴低温恒温器的安装

将氢喷嘴冷却至 $T_{\mathrm{N}} = 4.8$开尔文的低温恒温器（**CS**）以直立位置安装在真空室的盖上。它是一种使用储存杜瓦瓶中的液氦的连续流低温恒温器。蒸发氦由回收系统收集。从室温开始冷却时，低温恒温器会收缩[2] ，使得喷嘴通道

[1]Pfeiffer PrismaPlus QMG 220 F1。[2]收缩主要导致喷嘴垂直移动，但由于弯曲运动，喷嘴也会在水平面内发生一定程度的移动。

未与穿过其中的1S-2S 激光束对准。为补偿这一点并使喷嘴与激光束对准，可使用喷嘴对准台（**NA**）在三个维度上调节低温恒温器相对于腔室盖的位置。伸入真空室的柔性波纹管用于密封真空，同时允许使用千分尺螺钉将低温恒温器沿腔室盖横向推动，并使用平移螺钉使其沿垂直方向移动。

低温恒温器还充当外部真空区域的低温泵。喷嘴冷却后，低温恒温器的隔热罩（在图 4.2 (B) 中可见，为金色管状部件）保持在中间温度。凭借其较大的表面积，它会使水蒸气及其他污染物（例如残留的有机溶剂和碳氢化合物）冻结沉积。这一机制有望延长 243 nm 增强腔镜的使用寿命；人们认为，分子键裂解紫外光会促使碳氢化合物在镜面上累积，从而导致腔镜性能退化。因此，只有在喷嘴（也就是低温恒温器）冷却后，才会运行增强腔。

4.2.7 低温泵引起的温度漂移和梯度

遗憾的是，低温泵还会通过辐射冷却和直接热接触，使真空室及其组件降温。一个贴在低温泵正上方的高真空外壳内侧温度传感器[1] **(TF)**测量真空腔室底部的温度。另一个传感器测量增强腔间隔件的温度。仅运行低温泵、而喷嘴仍处于室温时，真空腔室底部会在约 10 h 内从室温降至约 13 ℃。实验周期中，喷嘴也冷却后，该温度会进一步下降，最低可达10 ℃。这是因为喷嘴的低温恒温器通过其安装所在的盖使真空室降温[2]。

这种冷却会以多种方式对实验产生不利影响。首先，各个部件以不同速率收缩，其对准状态会随着温度变化而漂移。这对2S-6P 光谱激光束的光学元件影响最为关键，尤其是光纤与光纤准直器之间的距离，对微米级的变化极为敏感。其次，温度变化本身可能直接影响部件。特别是底部电子倍增器（**底部探测器**）位于低温泵正上方，且没有热屏蔽，因此会冷却到足以显著改变其内阻和增益特性的程度（见第4.6.2节）。第三，随着腔室底部冷却，而真空室其余部分保持在室温，整个装置内不可避免地会出现热梯度。因此，预计梯度主要沿垂直方向分布。在不同的探测器设计中，都曾反复观测到光谱区沿这一方向存在杂散电场（这项测量基于2S-6P跃迁的光谱学，因此仅在低温泵冷却时进行）；怀疑该电场是由此类温度梯度引起的，尤其是因为探测器圆筒与真空室之间的热耦合较弱。

To 为减轻这些不利影响，温度状态接近稳态是有利的 .

[1]Analog Devices AD590。[2]没有采取任何措施来屏蔽真空内温度传感器，使其免受热辐射影响；低温恒温器冷却时两个传感器测得的温度下降，至少有一部分可能是由热辐射造成的。

具体做法是在开始测量之前运行低温泵，直至腔体内的温度稳定下来，这一过程大约需要半天。这远长于低温泵本身达到目标温度所需的时间，后者约为 2 h。不过，测量一天后仍有必要停止低温泵，以释放低温泵捕集的粒子，避免泵达到饱和。但这只需约 5 h，之后便可重新启动低温泵。在此期间，腔体内的组件只会略微升温；运行低温泵约 6 h 后即可恢复实验。这一流程大幅减少了剩余的温度漂移和梯度。不过，从冷的低温泵到温暖的真空室之间，整体温度梯度当然仍然存在。请注意，这一流程与此前进行 1S-2S测量 [23]和 2S-4P测量（见附录A）时的实验操作方式有很大不同：当时只在开始测量前几小时才开启低温泵，导致温度强烈漂移，测量期间必须不断调整各种组件。

4.2.8 低温泵引起的振动

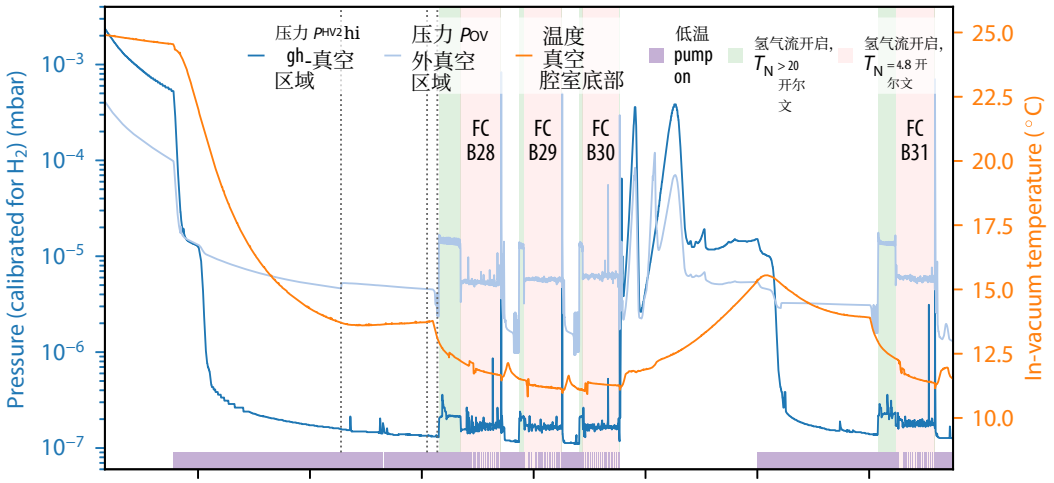
第 4.2 节所讨论的原子束装置，除 243 nm增强腔和低温恒温器外，均安装在真空腔室底部。因此，该装置在机械上直接耦合到实验室地面，并受到低温泵产生的振动影响。这尤其会影响主动式光纤回射器（AFR），因为它依赖于对其高反射率镜的精确对准，以产生回射光束。事实上，实验室地面的扰动（例如人员走动）会很容易地表现为耦合回 AFR 光纤中的光量发生波动。当低温泵运行时，该信号会受到强烈干扰。因此，在采集光谱数据时，会关闭低温泵，并避免实验室中的任何扰动。

对此情况的一项改进措施，可以是将高真空外壳及其内部组件安装到固定 243 nm增强腔的间隔件上，并用柔性密封件封闭外壳与真空腔室底部之间由此形成的间隙。由于现在无法再通过调整真空腔室位置来使外壳相对于增强腔对准，因此这种安装方式必须具备可调性。目前正在评估这种安装方式。其是否会对增强腔的性能产生不利影响，仍有待观察。

4.2.9 进入真空腔室内部

要进入真空室内部，可以使用连接到桥式起重机上的滑轮，将腔室盖（包括低温恒温器）吊起。但首先，必须断开从氢解离器的放电管通往喷嘴的聚四氟乙烯管（**TT**）。具体做法是先拆下通往涡轮分子泵的直角弯管，然后通过此时可接近的法兰断开聚四氟乙烯管。遗憾的是，这还需要拆下图 4.1 中的四象限光电倍增管（（**FQ**）。

为解除真空，真空室中充入干燥氮气，这些氮气来自储存在杜瓦瓶中的液氮蒸发后捕集的气体。即使腔室盖打开，也要确保氮气持续流动，以减少真空室污染，并保护电子倍增器免受水分影响。



白天（期间：2019年6月4日 19:00 - 2019年6月6日 16:30（协调世界时））

图 4.3：实验运行期间真空室中的典型压力和温度。图中显示了高真空区域（深蓝色曲线）和外真空区域（浅蓝色曲线）的压力（左侧刻度），以及真空腔室底部的温度（右侧刻度，橙色曲线）。图中还标出了低温泵运行的时间（紫色阴影），以及在温度为 $T_N > 20$开尔文（绿色阴影）或$T_N = 4.8$开尔文（浅粉色阴影）时，氢气通过喷嘴导入装置的时间。在后一个时段采集了实验数据，并将其分为若干冻结循环（FC）。部分氢会在喷嘴上冻结，最终导致喷嘴堵塞，因此需要在冻结循环之间进行一次中间解冻。涡轮分子泵在图示数据开始前两小时（17:00）启动；此前真空室因维护而打开，并在环境压力下暴露于干燥氮气中 7 小时。压力读数已针对 H_2进行了校准。详情及特殊时刻（灰色虚线）请参见正文。

4.2.10 典型压力和温度

图4.3显示了测量日内真空室中的压力和温度。图中的压力读数已针对 H_2 进行校准（相对于标准 N_2 校准提高了.4 倍），因此在没有氢气流入系统时会高估压力。此处给出的压力值在氢气引入系统时针对 H_2 校准，否则则针对 N_2校准。此处讨论的操作流程和时间安排与其他所有测量日相似。

前一天，真空室为维护而打开，并在环境压力下暴露于干燥氮气中 7 小时。期间，氢喷嘴从低温恒温器上拆下，按照第 4.5.2.1 节所述进行清洁，然后重新安装。图4.3所示数据开始记录前两小时，真空室关闭，涡轮分子泵启动。约 5 小时后，外真空区域（图4.3中的浅蓝色曲线）和高真空区域（图4.3中的深蓝色曲线）的压力分别达到 $P_{OV} = 4 \times 10^{-5}$mbar 和 $P_{HV2} = 2 \times 10^{-4}$ mbar，随后开启低温泵（紫色阴影区域）。约 2 小时后，低温泵达到 19 K 的目标温度；此期间可见的两次压力骤降，被认为分别对应低温泵达到水蒸气和氮气的冰点。在接下来的 14 小时内，压力

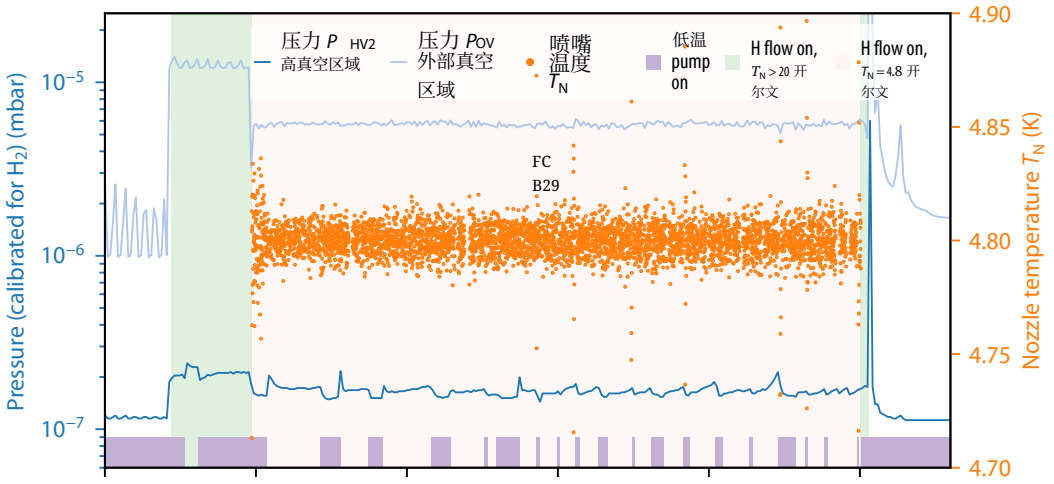


图4.4：与图4.3类似，但仅展示冻结循环 FC B29 期间的情况。图中显示的是喷嘴的温度 T_{N} （橙色点），而非真空腔室底部的温度。

降至 $P_{\mathrm{OV}} = 2 \times 10^{-6}$ mbar 和 $P_{\mathrm{HV2}} = 6 \times 10^{-8}$mbar。与此同时，真空室底部的温度（橙色曲线）从室温降至 14 ℃，最初的降温过程约耗时 10 小时。然而，距离低温泵较远的其他部件在这次初始降温后仍在变化，例如，2S-6P 光谱激光束的准直情况就观察到了这一现象。7:40，真空区域之间的旁通管路关闭；由于低温泵基本停止对该区域抽气，外部真空区域的压力略有上升。

12:17，开始对低温恒温器进行降温。由于低温恒温器的隔热罩充当低温泵，外部真空区域的压力略有下降（降至 $P_{\mathrm{OV}} = 1.3 \times 10^{-6}$mbar）；同时，随着低温恒温器使腔室盖降温，腔室底部的温度也进一步下降。到12:50，喷嘴温度已达到 $T_{\mathrm{N}} = 30$K，并通过缠绕在低温恒温器周围的加热丝将其保持在该温度。在此温度下，氢不会在喷嘴上冻结沉积。由于反馈回路针对更低温度进行了优化，实际温度会振荡数个K，从而导致图4.4中可见的压力振荡。接下来，通过向系统中通入 $Q_{\mathrm{H_2}} = 0.35\,\mathrm{ml/min}$（温度为 0 ℃、压力为1013.25 mbar）的 H_2 并启动放电（绿色阴影区域），使氢解离器投入运行。这使两个真空区域中的压力分别升高至 $P_{\mathrm{OV}} = 1.4 \times 10^{-5}$mbar和 $P_{\mathrm{HV2}} = 2.2 \times 10^{-7}$mbar；由于氢占主导地位而超过背景气体，此时读数已针对H_2 完成校准。该流量对应的漏率为 $6.3 \times 10^{-3}\,\mathrm{mbar\,l/s}$，因此根据 P_{OV} 的数值可以推导出氢从外部真空区域排出的有效抽气速率为450 l/s。由于喷嘴刚刚完成清洁，放电持续运行约1小时，以冲洗清洁过程中产生的残留物（见第 4.5.2.1 节）。与此同时，对243 nm增强腔进行对准。

为开始数据采集，喷嘴于14:05冷却至 $T_{\mathrm{N}} = 4.8$开尔文。这对应于一个冻结周期（FC）的开始，因为在此温度下，氢会冻结在

喷嘴上。因此，流入真空室的氢气减少，使压力降至[1] 至$P_{\mathrm{OV}} = 5.5 \times 10^{-6}$毫巴和 $P_{\mathrm{HV2}} = 1.6 \times 10^{-7}$ 毫巴。根据这一压力降以及无氢气时的压力，可以估算未在喷嘴上冻结沉积的氢气比例 $Q_{\mathrm{cold}}/Q_{\mathrm{warm}}$ 。考虑外部真空区域中的压力；在该区域，氢气流入腔体时的压力远高于背景压力，$Q_{\mathrm{cold}}/Q_{\mathrm{warm}}$ 约为 $1/3$。这项测量具有可重复性，可用于表征氢输运和喷嘴特性，详见第4.5.2节。

在冻结周期期间，为了采集光谱数据，需要间歇性关闭低温泵。图4.3显示了FC B29期间的压力和喷嘴温度，说明了低温泵的运行情况（此处展示的是FC B29而非FC B28，因为FC B28期间进行的对准使其成为一个不太典型的示例）。通常，在一个FC周期中，低温泵开启的时间约占四分之一，使高真空区域的压力保持在 $P_{\mathrm{HV2}} = 2 \times 10^{-7}$毫巴以下。不过，这一操作所耗费的测量时间超过了四分之一，因为AFR的高反射镜进行尖端-倾斜稳频后，需要一段时间才能稳定下来，之后才能继续采集光谱数据。

约2小时后，喷嘴中冻结的氢开始影响243 nm增强腔的运行，因此需要加热喷嘴以融化氢冰。当喷嘴温度升至氢的冰点以上时，大量氢突然释放，导致压力在几秒钟内骤升至 $P_{\mathrm{OV}} = 1 \times 10^{-2}$毫巴。随后将喷嘴加热至室温，以去除冻结在其上的污染物。在2S-4P测量期间（见附录A），喷嘴仅加热至约50 K，不同FC周期的荧光信号差异很大。研究发现，另一方面，将喷嘴加热至室温可以获得相当稳定、可重复的荧光信号。氢解离器中可能会产生水蒸气，并在喷嘴上冻结；如果不在各个FC周期之间将其清除，就可能影响原子束的形成。

将喷嘴加热至室温，再冷却至 30 开尔文，约需 45 分钟。随后即可按照上述流程启动下一次 FC。在测量日最后一次 FC 结束时（此处为 22:35 结束 FC B30 后），将喷嘴加热，关闭低温泵，并打开从高真空区域通往外部真空区域的旁通管路。低温泵升温时会释放其捕集的气体，导致压力多次出现峰值；约 5 小时后，压力稳定在 $P_{\mathrm{OV}} = 2 \times 10^{-6}$ 毫巴和 $P_{\mathrm{HV2}} = 5 \times 10^{-6}$ 毫巴。低温泵总共关闭 7.5 小时，然后在下一个测量日开始时的 6:00 重新启动。这样可确保原子束装置的温度不会发生太大漂移；真空腔室底部的温度达到峰值 $16\,^{\circ}$ 摄氏度后又开始下降。低温泵运行约 7 小时后，次日的第一次 FC 开始。该测量日程会持续进行，直到反射镜退化等实验问题（例如 243 nm增强腔的反射镜退化）迫使测量运行中断。本学位论文所用数据中，最长的一次此类运行持续了 8 天。

[1]如果没有氢流入真空室，将喷嘴温度从 30 开尔文降至 4。8 开尔文时，压力的下降幅度会小得多；也就是说，与氢在喷嘴上的损失相比，额外的低温泵吸可以忽略不计。

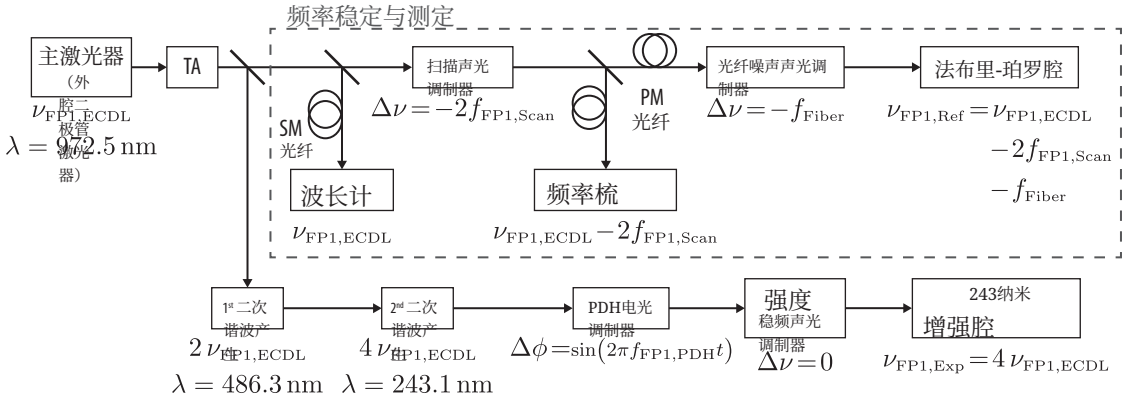


图 4.5：243纳米激光系统（“FP1”）相关组件示意图。该系统是1S-2S制备激光器的一部分，重点展示了会改变激光频率、相位或功率的组件。详情请参见第 4.3.1 节。AOM：声光调制器；ECDL：外腔二极管激光器；EOM：电光调制器；PDH：Pound-Drever-Hall技术；PM fiber：保偏光纤；SHG：二次谐波产生；SM fiber：单模光纤；TA：锥形放大器。

4.3 1S-2S制备激光器

1S-2S制备激光器通过从 1S 基态进行无多普勒双光子激发，使氢原子处于亚稳态2S能级。具体而言，如第2.2.6节所述，激发的是 $1S^{F=0}_{1/2} - 2S^{F=0}_{1/2}$跃迁，其跃迁频率为 $\nu_{\text{1S-2S}}$ =2.466 拍赫兹；原子失谐 $\Delta\nu_{\text{1S-2S}}$ 是相对于该跃迁频率测得的，而非相对于其一半大小的紫外激光频率。所需波长为 $\lambda_{\text{1S-2S}} = 243.1$纳米的紫外激光的产生方式见第 4.3.1 节。为实现实验中采用的速度分辨探测，使用第 4.3.2 节所述的光学斩波器对该激光进行周期性通断。激光系统输出的紫外激光功率不足以激发足够多的原子跃迁至亚稳态2S能级，因此利用真空内增强腔进一步提高原子所受到的光强。第 4.3.3 节将详细介绍该腔及其在实验中的运行。

4.3.1 243纳米激光系统

图4.5示意了243纳米激光系统（在氢实验室中称为“FP1”）的相关组件。该系统产生驱动1S-2S跃迁所需的激光。下面的讨论主要聚焦于会改变激光频率、相位或功率的组件。

该激光系统以一台自制的红外主激光器为起点，其频率为$\nu_{\text{FP1, ECDL}}$ （$\lambda \approx 972.5$纳米）。该激光器是采用利特罗结构的外腔半导体二极管激光器（ECDL，腔长为23厘米），详情见 [82]。该激光器输出的30毫瓦功率经半导体锥形放大器（TA）放大，在4安培电流下最高可输出2.7瓦。

这部分红外光（≈65毫瓦）被分出一部分，用于测量并稳定激光频率（图 4.5 中的虚线框）。为了粗略确定主激光器的频率，一部分光被

通过单模（SM）光纤送至波长计[1]，其频率准确度为 60 兆赫兹。其余光通过采用 -1st 衍射级次的双程配置声光调制器（扫描声光调制器）进行移频，即总频移 $\Delta\nu$ 相当于送入声光调制器的（射频）频率的两倍，$f_{\text{FP1, Scan}} \approx 435$兆赫兹，因此得到$\Delta\nu = -2f_{\text{FP1, Scan}}$。此声光调制器用于扫描并设定装置中与原子相互作用的光的频率。部分光（此时频率为$\nu_{\text{FP1, ECDL}} - 2f_{\text{FP1, Scan}}$）被分出，并经保偏（PM）光纤送至第 4.8 节所述的频率梳，以确定激光频率（单位为赫兹），并比较主激光器与 2S-6P 光谱激光器的光学频谱。

剩余的光通过另一根保偏光纤，传送至一处配备被动声学噪声隔离和主动振动隔离的外壳。在这里，另一台声光调制器（光纤噪声声光调制器）以-1st 衍射级次工作，使光频率偏移 $\Delta\nu = -f_{\text{Fiber}} = 39\,337\,184$ 赫兹。这台声光调制器属于一套消除相位噪声的方案，用于抵消连接该外壳与主激光器 [83]的保偏光纤中由热膨胀和声学噪声引入的相位噪声。随后，剩余的光（约为 6 微瓦）被送入一台高精细度法布里-珀罗腔（精细度为 $\approx 400\,000$，自由光谱范围为 1.933 吉赫兹）。该腔由两块高反射镜和一个由超低膨胀玻璃（ULE）制成的间隔件构成，置于热稳定真空外壳内，详见 [84]。主激光器的频率通过 Pound-Drever-Hall（PDH）技术 [85] 稳定至该参考腔的共振频率（“锁定”）（调制频率为 $\approx$ 20兆赫兹）。为此，主激光器腔内的电光调制器（EOM）用作执行器；快速（带宽为 $\sim$1兆赫兹）和慢速（带宽为 $\sim$100千赫兹）反馈回路的输出分别施加到该电光调制器晶体的两个电极上 [82, 84]。另一条反馈回路（带宽为 $\sim$1赫兹）通过移动构成腔端反射镜的光栅来补偿腔长漂移。

红外光的主要部分被转换为紫外光，并用于实验中（图 4.5 中的下支路）。为此，使用两个采用四镜蝴蝶结结构的谐振二次谐波产生（SHG）环形腔对光进行两次倍频 [86]。这两个 SHG 腔以及前文所述的 TA 均属于一套商用激光系统[2]。第一个 SHG 腔使用三硼酸锂（LBO）晶体作为非线性材料，在 $\lambda \approx 486.3$纳米波长下可产生高达 1。2 W 的功率。第二个 SHG 腔使用 β-硼酸钡（BBO）晶体作为非线性材料，在 $\lambda_{\text{1S-2S}} \approx 243.1$纳米波长下可产生高达 90毫瓦的功率，即频率为 $\nu_{\text{FP1, Exp}} = 4\nu_{\text{FP1, ECDL}}$的光。两个 SHG 腔均采用临界相位匹配 [87]，其光学腔长通过 PDH 技术和压电致动器进行稳定。研究发现，第一个 SHG 腔的输出功率相当稳定，每天只需优化一次；而第二个 SHG 腔的输出功率容易发生缓慢下降的漂移和突然跳变。通常，移动 BBO 晶体，使 SHG 过程中使用晶体的不同部位，即可恢复原有的输出功率。

生成的紫外光的强度和相位随后会进一步调整，然后耦合进入真空内243纳米增强腔，在该腔中以频率 $\nu_{\text{FP1,Exp}}$与氢原子相互作用。图 4.6展示了所涉及的各种光学元件，下一节将对其进行讨论。

[1] HighFinesse WS7。 [2] Toptica TA-FHG pro。

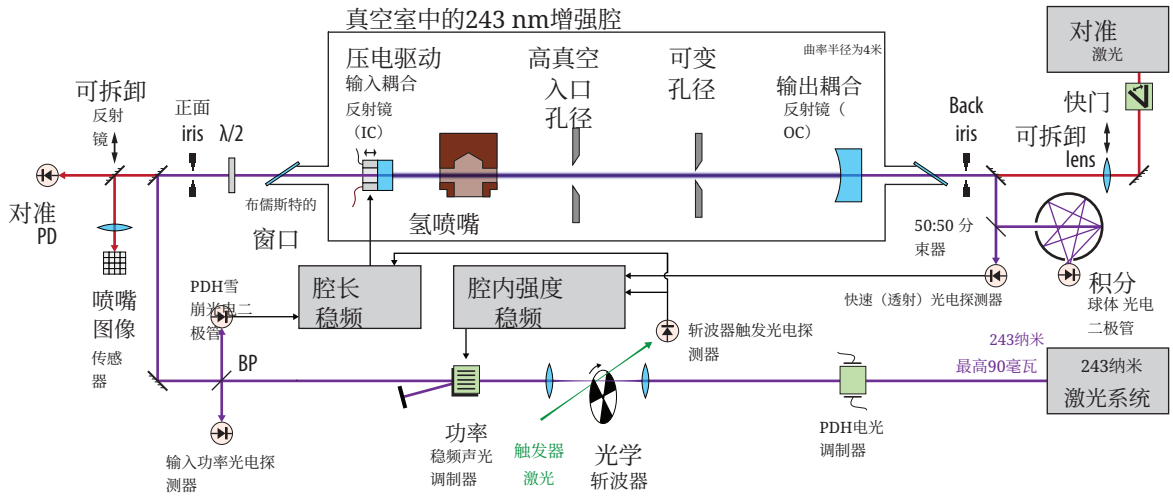


图4.6：1S-2S制备激光束和243 nm增强腔的光学布局。详情见第 4.3.3 节。 $\lambda/2$：半波片，AOM：声光调制器，APD：雪崩光电二极管探测器，BP：分光取样器，BS：分束器，EOM：电光调制器，PD：光电二极管，PDH：Pound-Drever-Hall技术，ROC：曲率半径。

4.3.2 光学斩波器

我们的测量方案依赖于对亚稳态氢原子进行速度分辨探测，如第 4.1 节所述。通过间歇性阻断1S-2S制备激光束，周期性地关闭和开启氢原子向亚稳态能级的激发，从而实现这种探测。为此，激光束聚焦穿过一个带有等宽开槽轮的光学斩波器[1] 。斩波器以160赫兹运行，即每3.125毫秒切换一次透射状态，产生的两个阶段分别称为明阶段和暗阶段。上升和下降时间为3微秒，受焦点尺寸和槽宽限制。由于实验的大部分环节都由这种光束斩波触发，因此，利用辅助触发激光器[2] 产生电触发信号是有利的，如图 4.6所示。两束激光在斩波轮平面内以一个小角度交叉，触发激光由光电探测器探测。我们会定期检查两束光的重叠情况，通常发现两束光切换时间的抖动小于3微秒。可能由于斩波轮存在缺陷，激光开启或关闭的持续时间还会有约 ± 5微秒的变化。根据光电探测器信号，可导出兼容TTL的[3] 斩波器触发信号，并将其分配[4] 至各种设备。

[1]Stanford Research Systems SR540（O540RCH 头和 O5402530 刀片），配有 New Focus 3501 控制器。[2]Thorlabs CPS532-C2（532 nm，0.9 mW）或 CPS405（405 nm，4.5 mW）。[3]TTL：晶体管-晶体管逻辑，此处指真状态要求逻辑电平为 5 V。[4]TTL 触发信号通过扇出线路驱动器（Pulse Research Labs PRL-414C-BNC）分配，以驱动部分设备上以 50 Ω 端接的触发输入。延迟触发信号由脉冲发生器（Quantum Composers 9300）或各种函数发生器（Rigol DG1022Z、DG1062Z）产生；事实证明，这些设备的用途非常广泛。

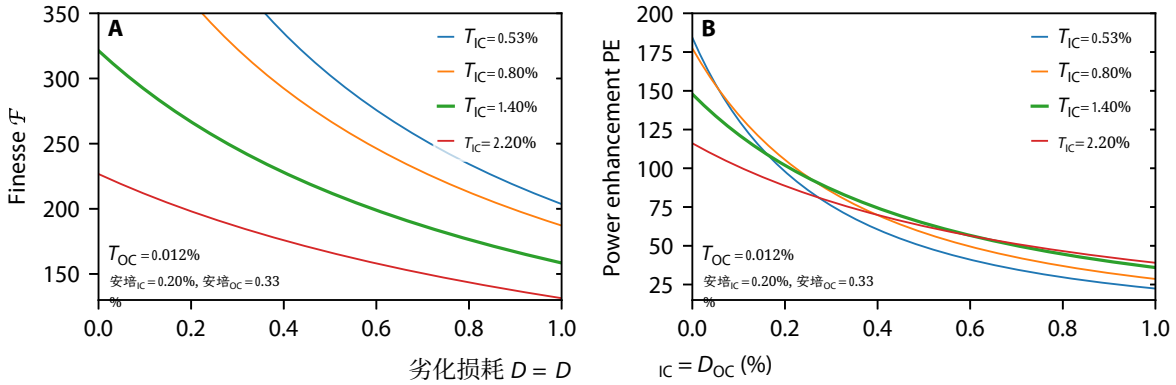


图4.7：反射镜退化对 243 nm增强腔的影响模型：对（**A**）精细度 $\mathcal{F}$ 以及（**B**）功率增强 PE 的影响。D 表示输入耦合镜（IC）和输出耦合镜（OC）每次反射时因退化而损失的光所占的比例，即 $D = D_{\mathrm{IC}} = D_{\mathrm{OC}}$。OC 的透射率为 $T_{\mathrm{OC}} = 0.012\%$，IC 和 OC 的吸收及散射损耗分别为$A_{\mathrm{IC}} = 0.20\%$ 和 $A_{\mathrm{OC}} = 0.33\,\%$。图中展示了 IC 透射率 T_{IC} 的不同取值（彩色曲线），其中 $T_{\mathrm{OC}} = 1.40\%$（绿色曲线）对应实验情形。

4.3.3 真空内 243 nm增强腔

激光系统输出的紫外激光功率不足以在原子从喷嘴飞行至光谱区的有限时间内，将足够大比例的氢原子激发至亚稳态2S能级。为增大原子所感受到的电磁场振幅，从而提高激发比例，采用了一种置于真空中的双反射镜增强腔，使紫外光在其中共振循环 [88]。然而，在强紫外光照射下，腔镜会发生退化，从而限制实验的运行时间，并要求在设计上作出一些折衷。下文将讨论腔的设计（见第 4.3.3.1 节和第 4.3.3.2 节）、反射镜退化（见第 4.3.3.3 节）、腔内功率的确定（见第 4.3.3.4 节）、腔长和腔内功率的稳频（见第 4.3.3.5 节），以及辅助对准激光器（见第 4.3.3.6 节）。

4.3.3.1 腔体布局、精细度和功率增强

该腔由一面平面输入耦合镜（IC）（$r_{\mathrm{IC}} = \infty$）和一面凹面输出耦合镜（OC）组成，后者的标称曲率半径（ROC）为 $r_{\mathrm{OC}} = 4\mathrm{m}$，两镜间距为 L_{EC} =355 mm（见图4.6）。这对应于一个行波半对称腔 [88]，其自由光谱范围 FSR 为 $= c/2L_{\mathrm{EC}} = 422\mathrm{MHz}$。束腰位于平面 IC 上，其 $1/e^2$ 强度半径为 $w_{\mathrm{1S\text{-}2S}} = 297\mu\mathrm{m}$；由于瑞利长度 $z_{\mathrm{r,\ 1S-2S}} = 1.14\,\mathrm{m}$ 超过 L_{EC}的三倍，光束半径在 OC 处仅增至 311 μm。腔内激光场的线偏振沿（水平） x轴取向，即在图4.6中垂直纸面向外。

腔的共振频率 $\nu_{q,\ n,\ m}$ 对于第 nm 阶厄米-高斯模，其表达式为（参见 [88] 第 19 章的公式（23））

$$\nu_{q,n,m} = \left(q + (n + m + 1)\frac{\arccos(\sqrt{g_1 g_2})}{\pi} \right) \mathrm{FSR}, \tag{4.1}$$

其中 q 是整数，且 g_1，$g_2 > 0$。对于增强腔，$g_1 = 1 - L_{\mathrm{EC}}/r_{\mathrm{IC}}$ 和 $g_2 = 1 - L_{\mathrm{EC}}/r_{\mathrm{OC}}$。因此，高阶模式的共振频率相对于基模（高斯模式）的共振频率（$n = m = 0$）偏移了横模间隔

$$\Delta\nu_{\mathrm{TMS}} = \frac{\arccos(\sqrt{g_1 g_2})}{\pi}\,\mathrm{FSR}. \tag{4.2}$$

对于增强腔，$\Delta\nu_{\mathrm{TMS}} = 40.7$兆赫兹，因此 $\mathrm{FSR}/\Delta\nu_{\mathrm{TMS}} \approx 10.4$。

输入耦合镜和输出耦合镜的反射率 R_{IC} 和 R_{OC} 分别可写为 a s

$$R_{\mathrm{IC}} = 1 - T_{\mathrm{IC}} - A_{\mathrm{IC}} - D_{\mathrm{IC}} = R_{\mathrm{IC},0} - D_{\mathrm{IC}}, \tag{4.3}$$
$$R_{\mathrm{OC}} = 1 - T_{\mathrm{OC}} - A_{\mathrm{OC}} - D_{\mathrm{OC}} = R_{\mathrm{OC},0} - D_{\mathrm{OC}}, \tag{4.4}$$

其中，T_{IC} 和 T_{OC} 为透射率，A_{IC} 和 A_{OC} 为吸收和散射造成的损耗。D_{IC} 和 D_{OC} 是镜面退化造成的额外损耗，即假设它们最初为零，此时反射镜的反射率为 $R_{\mathrm{IC},\,0}$ 和 $R_{\mathrm{OC},\,0}$；但随着反射镜退化，它们会增加。

增强腔的精细度 $\mathcal{F}$ 由 [88]给出

$$\mathcal{F} = \frac{\pi\,(R_{\mathrm{IC}}R_{\mathrm{OC}})^{1/4}}{1 - \sqrt{R_{\mathrm{IC}}R_{\mathrm{OC}}}}. \tag{4.5}$$

精细度是一个特别有用的量，因为它可以通过测量腔共振的谱宽 $\delta\nu$ 在实验中获得，由此精细度可表示为 $\mathcal{F}$ =FSR/$\delta\nu$。

功率增强 PE 定义为入射到 IC 上的光功率 P_{in} 与腔内沿每个方向循环传播的光功率 P_{circ} 之比。考虑镜面退化的影响后，其表达式为

$$\mathrm{PE} = \frac{P_{\mathrm{circ}}}{P_{\mathrm{in}}} = \eta_{\mathrm{mode}}\frac{(1 - D_{\mathrm{IC}})\,T_{\mathrm{IC}}}{\left(1 - \sqrt{R_{\mathrm{IC}}R_{\mathrm{OC}}}\right)^2}, \tag{4.6}$$

其中，η_{mode} 是自由空间模式与谐振腔模式之间的空间重叠或模式匹配程度。分子中的因子（$1 - D_{\mathrm{IC}}$）体现了镜面退化也会降低耦合进入腔内的功率。对于除 IC 透射率 $L_{\mathrm{total}} = T_{\mathrm{OC}} + A_{\mathrm{IC}} + A_{\mathrm{OC}} + D_{\mathrm{IC}} + D_{\mathrm{OC}}$ 之外的所有损耗均给定的情况，在 $T_{\mathrm{IC}} = L_{\mathrm{total}}$ 的阻抗匹配情形下，功率增强达到最大值。

在实验中，通过适当稳定（“锁定”）腔长，使腔与制备激光器的基模高斯模式保持共振。利用光束整形光学元件优化入射激光束与该模式的重叠，平均模式匹配度达到 $\eta_{\mathrm{mode}} \approx 85\%$。此处通过测量基模和可见高阶模式的腔透射来确定 η_{mode}。

精细度$\mathcal{F}$ 和功率增强 PE 随劣化损耗 D =$D_{\mathrm{IC}} = D_{\mathrm{OC}}$ 变化的关系，以及不同 T_{IC} 取值下的情况，见图 4.7。这里假设模式匹配完美，即 $\eta_{\mathrm{mode}} = 1$。OC 的透射率 T_{OC}，以及 IC 和 OC 的吸收损耗与散射损耗（分别为 A_{IC} 和 A_{OC}），均设为此处所用反射镜测得的数值（见第 4.3.3.2 节）。请注意，改为假设 $D_{\mathrm{IC}} = 2D$，$D_{\mathrm{OC}} = 0$ （或反之）不会改变$\mathcal{F}$ 的数值，只会使 PE 改变几个百分点。对于没有劣化的情况，阻抗匹配情形（$T_{\mathrm{IC}} = 0.53\%$，蓝色曲线）的功率

增强为 184。然而，随着劣化损耗增加，原本阻抗匹配的情形会转变为欠耦合情形（$T_{\mathrm{IC}} < L_{\mathrm{total}}$），功率增强也会迅速下降。但如果腔最初处于过耦合状态（$T_{\mathrm{IC}} > L_{\mathrm{total}}$），其最大功率增强起初较低，却能在更大的劣化损耗范围内保持高于某一阈值。此处采用的正是这种工作状态，T_{IC} 选为 1.40 %（绿色曲线）；预计功率增强最高可达 148，考虑典型的实验模式匹配后则降至 126。

4.3.3.2 腔输入耦合镜和输出耦合镜

IC[1] 具有多层介质膜，在 0° 入射角（AOI）下，制造商[2]确定的反射率为 98.3 %，透射率为 1.4 %。该涂层由二氧化铪（HfO_2，$n \approx 2.1$ [89]）和二氧化硅（SiO_2,$n \approx 1.51$ [90]）交替沉积而成，并通过离子束溅射（IBS）沉积到基底上，计算得到的吸收为 0.18 %。为避免两个反射镜表面之间形成多光束干涉，IC 的背面既具有增透膜（反射率为 $< 2 \times 10^{-4}$），又楔角为 $30'$。虽然在实验室中确认透射率测量相对直接，所得数值为 $T_{\mathrm{IC}} = 1.4\%$，与制造商确定的数值相同，但要可靠地测量反射率则更具挑战性。为此，使用了一个具有相同涂层的 OC[3]；该涂层与 IC 的涂层在同一次运行中施加。由 IC 和这个特殊 OC 构成的腔，其精细度 $\mathcal{F}$ 测得为 195，对应于每次往返 3.2 % 的总损耗。利用测得的透射率，可以推 deduce 出由吸收和散射造成的剩余损耗为每个反射镜 $A_{\mathrm{IC}} = 0.20\%$。该数值与计算得到的镀膜吸收高度一致，因此镀膜吸收似乎是限制因素，而散射损耗的作用可以忽略。根据这些测量结果，IC 未退化时的反射率为 $R_{\mathrm{IC},\,0} = 98.4\%$。

常用的输出耦合镜[4] 采用多层介质高反射率膜，规定反射率为 $> 99.9\%$。镀膜材料和沉积技术与输入耦合镜相同，因此获得了相近的反射带宽。遗憾的是，背面既未镀增透膜，也未做成楔形，因此在腔内采用的 0° 入射角配置下，透射光会产生约 4% 的多光束干涉效应。在不同的校准增益设置下，使用光电探测器测得输出耦合镜在 8° 入射角下的透射率为 $T_{\mathrm{OC}} = 1.2 \times 10^{-4}$。再次通过腔的精细度推算反射率，此次使用上述输入耦合镜和输出耦合镜。在此配置下观测到的最大精细度为 精细度 $= 320$ （见图 4.8），对应每次往返的总损耗为 1.94%。根据测得的透射率以及输入耦合镜的吸收和散射损耗，可得输出耦合镜的总损耗为 0.34%。扣除测得的透射率后，吸收和散射造成的损耗为 $A_{\mathrm{OC}} = 0.33\%$。尽管没有提供镀膜吸收的计算值

[1]来自 LayerTec 的基底和定制涂层（购买于 2016年，产品编号 132659，镀膜批次号为 131914（正面）和 131916（背面））。基底材料为准分子级熔融石英，尺寸为直径 7.75 毫米、厚度 4 毫米，通光孔径为直径 6 毫米。基底经过超精密抛光，均方根表面粗糙度低于 0.15 纳米。[2]测定过程会调整工艺参数，使涂层的理论模型与宽带透射率测量结果（230 纳米. . . 1100 纳米）相匹配。随后从调整后的模型中获取目标波长处的反射率和透射率。[3]LayerTec（产品编号 132666），基底材料和抛光工艺与输入耦合镜相同，尺寸为直径 12.7 毫米、厚度 6.35 毫米。[4]来自 Research Electro-Optics 的基底和定制涂层（购买于 2002年，批号 602-0617-02，镀膜批次号 C2512）。基底材料为熔融石英，尺寸为直径 12.7 毫米、厚度 10 毫米。基底经过超精密抛光，均方根表面粗糙度低于 0.1 纳米。

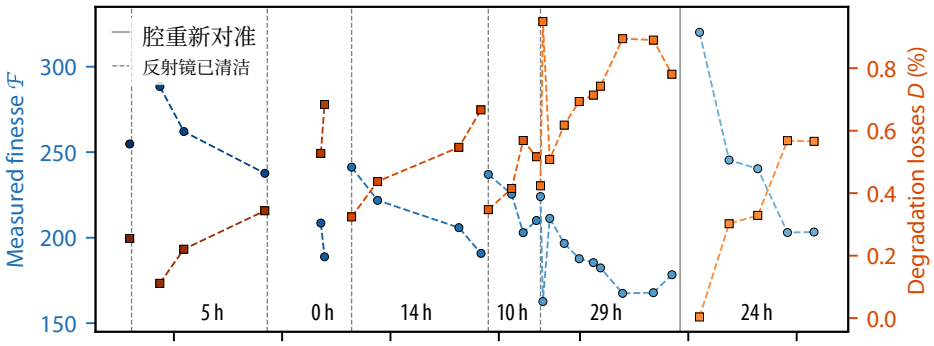


图4.8：243 nm增强腔随时间变化的实测精细度（蓝色圆点）和推导出的劣化损耗 D （红色方块）。D表示输入耦合镜（IC）和输出耦合镜（OC）每次反射时因劣化而损失的光比例，其数值通过假设精细度的任何下降都是由 D增加所导致而确定。灰色竖线标示了腔重新对准的时间（实线），此时腔内的光会在反射镜上的不同位置入射；同时也标示了反射镜清洁的时间（虚线）。此前于2019年4月18日进行的一次腔重新对准未在图中标出，此后直到本文所示数据开始采集时，腔一直未运行。在每个区段内，从第一次到最后一次精细度测量之间的时间范围（由竖线标示）内，腔的运行时间，即腔与制备激光器保持共振的时间，标注在图的底部。

制造商未提供镀膜吸收数据，但可以合理推断，这些损耗也主要由镀膜吸收造成，因为其镀膜和基底抛光工艺与输入耦合镜非常相似。此外，由于输出耦合镜的反射率更高，因此需要更多镀膜层，预计其镀膜吸收也略高。最后，输出耦合镜未劣化的反射率为 $R_{\mathrm{OC},\,0} = 99.7\%$，低于规定值。

IC 的规格要求其通光孔径上的不规则度和球面屈光力小于[1] 55纳米，对应的 ROC 小于 ±80米。OC 的 ROC 公差未有记录，但同一制造商生产的类似反射镜的规定公差为 1 %。幸运的是，束腰半径对反射镜 ROC 的变化不太敏感。将 r_{IC} 按其公差变化，并将 r_{OC} 控制在 5 % 以内时，腔束腰半径仅在 $w_{\mathrm{1S\text{-}2S}} = 290$ 微米…304 微米之间变化。此范围不会限制强度测定的准确度（见第 4.3.3.4 节），也不会显著影响原子束模拟的结果，因此采用标称值 $w_{\mathrm{1S\text{-}2S}} = 297$微米，并将束腰置于 IC 的位置。

横模间隔的测量 $\Delta\nu_{\mathrm{TMS}}$ 也可用于确定任一反射镜的 ROC，前提是已知另一反射镜的 ROC 或两者 ROC 之比。然而，研究发现，粘接 IC 的压电致动器（见第 4.3.3.5 节）会使 IC 变形，导致 $\Delta\nu_{\mathrm{TMS}}$ 随施加到压电致动器上的电压而

[1]这对应于测量波长 $\lambda = 546$纳米下的 $\lambda/10$ 不规则度和球面屈光力。

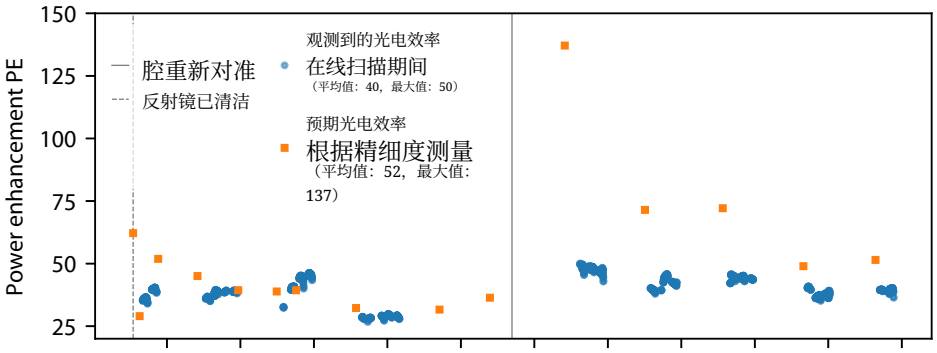


图4.9：243 nm增强腔的实测功率增强 PE（蓝色圆圈）和预期功率增强 PE（橙色方块）随时间的变化。实测 PE 根据入射功率 P_{in}、循环功率 P_{circ} 和模式匹配 η_{mode} 的测量结果确定，图中仅显示线扫描期间的 PE 值。预期 PE 根据图 4.8 所示的一部分精细度测量结果并使用公式 (4.6) 推算得出。灰色竖线标示了重新对准腔体的时间（实线），此时腔内光束会以不同位置照射反射镜；虚线则标示了清洁反射镜的时间。

变化[1]。假设 $r_{\mathrm{OC}} = 4\mathrm{m}$，对于测量中使用的 IC，这种变形对应于 r_{IC}，范围介于 $-1000\,\mathrm{m}$ 和 $-50\,\mathrm{m}$ 之间；也就是说，从腔内看，IC 会变成凸面。

4.3.3.3 镜面退化与功率增强

在不同条件下、针对不同类型的反射镜涂层 [91–95]，人们在多项实验中观察到了强紫外光照射下反射镜的退化现象。已发现几种可能相关的退化机制：第一，背景气体中存在的碳氢化合物经紫外辅助光沉积，导致反射镜表面受到污染 [91, 96]。第二，涂层内部及反射镜基底本身形成缺陷，导致体相劣化 [91]。第三，某些涂层材料的顶部涂层层中的氧耗减 [97]。

243纳米增强腔的反射镜退化严重限制了腔在功率增强降至可接受水平以下之前的运行时间。如图 4.8 所示，在2S-6P测量的B次运行时间段内（见表6.1），退化表现为精细度随时间降低，这一点十分明显。通过间歇性清洁腔镜可以在一定程度上减缓退化[2]（图 4.8 中的虚线），但这需要破坏真空，并可能导致腔失准。在某个阶段，功率增强无法通过清洁恢复，此时要么必须更换反射镜，要么需要重新对准腔，使腔模照射反射镜上的

[1]人们可能会认为，未施加压电电压时，输入耦合镜不会发生形变；考虑到输入耦合镜的曲率半径公差，测得的值为 4.03 17 ( ) m。然而，粘接输入耦合镜时，压电致动器、反射镜和压电支架都被加热至 ≈50 °摄氏度，因此在室温下可能会发生永久形变。[2]清洁时使用了甲醇或丙酮作为溶剂，两者的清洁效率没有明显差异。

不同位置。对于图 4.8 所示的数据，两次此类重新对准之间的运行时间为 60 小时，在此期间反射镜被清洁了四次。在这段时间内，精细度从 ≈300 降至 ≈180。为了延长反射镜的使用寿命，从而尽可能延长实验的运行时间，腔仅在测量过程中锁定，所有其他对准操作均在扫描腔的长度时进行。这也确保了运行期间除氢以外的残余痕量气体含量尽可能降低，因为低温泵和低温恒温器的隔热罩应能有效去除背景气体中的痕量气体，尤其是碳氢化合物。

劣化的反射镜呈现出局部斑点，尤其是在对着反射镜呼气时，在腔模位置处可以明显看到这些斑点。使用常见的有机溶剂无法去除这些斑点。有趣的是，无论是在清洁还是更换反射镜时，都发现输入耦合镜（IC）受到的劣化影响明显大于输出耦合镜（OC），以至于在整个 2S-6P测量期间，只需清洁 OC，而必须多次重新校准 IC 上的光束位置。需要注意的是，精细度和功率增强的降低程度预计分别与哪一面反射镜发生劣化无关或仅有弱相关。在 2S-6P测量期间，所有清洁反射镜、重新校准腔体或更换 IC 的时刻，均已标记在图4.10中。使用同一制造商生产的、与当前 OC 同批次的 IC 之前批次中，也观察到了类似行为；这些 IC 很可能采用电子束蒸发镀膜，而不是当前 IC 批次所采用的 IBS 镀膜。IC 与 OC 之间一个显著的差异在于它们到喷嘴的距离不同，因此所处的原子氢通量也不同：IC 到喷嘴的距离仅为 OC 的六分之一。不过，在 [95] 的实验中，即使不存在氢，也观察到 IC 受到的劣化影响更大；该实验使用了相同波长和相似的腔体配置[1] 。这表明体相劣化可能发挥了作用，因为对于 IC，较深的镀膜层和基底会暴露在入射光的强度之下。而对于 OC，这些部分仅暴露于透射光，其强度小于入射光两个数量级以上。此外，在反氢研究 [93] 中也发现镜面退化是一个问题。该研究使用了与本文讨论的增强腔非常相似的腔体，但将其置于低温恒温器内部，因此处于本底压力低得多的环境中，这应当能够大幅减少表面污染。他们还在类似本文所用的高真空环境中测试了腔体，并发现劣化速率快得多。在 [97] 中发现的顶层氧耗损，可以通过使用 SiO_2 作为顶层材料来避免；IC 正是这种情况，而 OC 顶层的材料尚不清楚。然而，[95]，中使用的两面反射镜，如前所述，也观察到了与本文相似的劣化现象，并且它们的顶层均为 SiO_2 。总而言之，很可能有多种劣化机制同时起作用，并且在不同强度和真空污染物条件下，起主导作用的机制也不同。

在 [91] 中发现，结合使用氧等离子体处理来清洁表面，以及热退火来修复体材料中的缺陷，可以部分恢复劣化的镜面。 [92, 95] 的实验则将反射镜置于氧气氛中，结果发现，在约 1 mbar的足够压力下，这可以防止劣化。受此启发，本实验尝试通过向真空室中充入 ≈10 mbar的氧气并锁定腔，来消除劣化。这确实使

[1] D. C. Yost，私人通信。

循环功率在数分钟的时间尺度内得到提高。有趣的是，用氮气代替氧气时也观察到了相同的行为。然而，当随后在测量期间再次锁定腔时，功率增强以及精细度迅速下降到清洁流程之前的水平。有趣的是，类似的流程曾成功用于消除 [93]中的部分劣化。在完成2S-6P测量后，开始着手为243 nm增强腔的反射镜实施氧气氛。不过，这需要多个差分抽气级，以使光谱区的氧分压保持在足够低的水平。

观测到的精细度 $\mathcal{F}$ 降低可转化为劣化损耗 D，详见第 4.3.3.1 节。假设每个反射镜均存在额外损耗D，所得数值如图 4.8 所示，范围为 0 %...1 %；后一个数值过大，无法继续进行实验。假设 IC 或 OC 之一存在损耗 $2D$ 时，也可得到几乎等效的图表。利用这些数值和公式 (4.6)，可以计算预期的功率增强，其与观测到的功率增强一起显示在图 4.9 中，所示为测量运行B部分测量日期的数据。对于所示数据的前半部分，观测到的 PE 与预期 PE 基本一致；而对于后半部分，在腔重新对准后，预期 PE 大于观测到的 PE。尤其是，在重新对准后立即通过精细度测量推导出的 137 这一较大 PE，在测量期间未能观测到，此时达到的最大[1] PE 为 50。事实上，对于初始精细度非常高的配置，在锁定腔时通常会观测到几十秒内的快速劣化；如图 4.8 所示，随后劣化速度会显著减慢。

4.3.3.4 腔内功率的测定

增强腔内循环的功率 $P_{\text{1S-2S}} = P_{\text{circ}}$，通过测量透过腔的输出耦合镜（OC）的光功率 P_{tr} 来推算，其量级约为 100 微瓦。这里，$P_{\text{1S-2S}}$ 定义为光学斩波器亮相位期间腔内每个方向上的功率，即制备激光器未被遮挡时，原子看到两束反向传播的光束，每束功率为 $P_{\text{1S-2S}}$。由于这里的功率以亮相位为基准，因此在多个斩波器周期内取平均的循环功率为 $\eta_{\text{circ}} P_{\text{1S-2S}}$，其中 η_{circ} 是光被允许进入腔内的时间比例。对于这里使用的等狭缝宽度斩波器，η_{circ} 名义上为 $1/2$。一个 50:50 非偏振分束器[2] 使透射光能够同时由安装在积分球[4], 上的高增益、低带宽光电探测器[3]和低增益、高带宽光电探测器[5]监测。两个光电探测器的输出均经过低噪声电压前置放大器[6],进一步放大和滤波；积分球和

[1] [95] 在相同波长下，使用类似的腔镜测得的光电效率为 80，但如上所述，腔镜置于氧气氛中。[2] Thorlabs BSW20。[3] 自制，带宽为 5 千赫兹。[4] LabSphere LBS-3P-GPS，直径为 5.3 英寸。球体内表面的反射率标称为：在 250 纳米波长和 8° 入射角下为 97 %。[5] Thorlabs PDA25K2，采用基于磷化镓（GaP）的光电二极管，在 243 纳米处的响应度为 0.024 安培/瓦。它内置可调增益的跨阻放大器，采用 20 dB 增益设置时，增益为 15 kV/A，带宽为 1 兆赫兹。[6] Stanford Research Systems SR560。对于积分球和快速光电探测器，分别使用 200 和 50（2019年5月28日之前）或 20（自2019年5月28日起）的电压增益，以及转折频率分别为 30 千赫兹和 1 兆赫兹的低通滤波器（6 dB/十倍频程）。

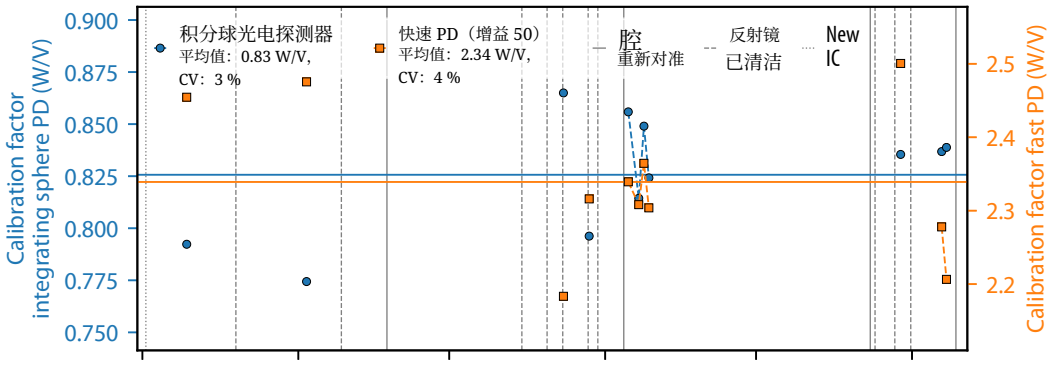


图4.10：积分球光电探测器（蓝色点，左侧刻度）和快速光电探测器（橙色点，右侧刻度）的校准因子。两个探测器均监测透过243 nm增强腔的光，由此推得腔内功率 $P_{\text{1S-2S}}$ 。相应的实心水平线表示平均值。与图 4.8 中一样，灰色竖线标记了腔重新对准的时间（实线）、腔镜清洁的时间（虚线）以及安装新输入耦合镜的时间（点线）。快速光电探测器的校准因子以其前置放大器增益为50时的数值表示，该数值是根据增益为20时的测量值按比例换算得到的。CV：变异系数；IC：输入耦合镜。

快速光电探测器的探测带宽总计分别为 5 千赫兹和 1 兆赫兹。光束聚焦在快速光电探测器上，而在积分球处则保持准直。两个光电探测器均使用遮光布和光束管屏蔽杂散光，并在前置放大器处扣除电子偏置。使用积分球可减小光束指向波动和漂移对探测器信号的影响，因为其上安装的光电探测器会从多个方向、多个位置受到照明。不过，这会降低探测器接收到的功率，因此需要较大的增益，也就降低了带宽。因此，在扫描腔长时，使用带宽较高的探测器推算腔的精细度，并消除强度噪声，详见第 4.3 节 3.3.5。当然，后一种用途原则上会使快速探测器的任何光束指向依赖性都引入强度噪声。不过，这些光束指向效应发生在比典型频率扫描更长的时间尺度上。

为了将光电探测器的电压读数转换为光功率，使用经校准的光电二极管功率计测量透射功率[1] ，测量时腔长已锁定˜至激光。功率计的读数 $P_{\text{tr, PM}}$是数秒内的平均透射功率；激光未被光斩波器˜挡住时的平均循环功率为 $P_{\text{tr, PM}} = P_{\text{tr, PM}}/\eta_{\text{circ}}$。功率计直接放置在分束器之前（见图4.6），因此，透过输出耦合镜的光还要经过布儒斯特窗，并在到达功率计前由转向镜反射。这段额外光路会使功率降至输出耦合镜位置处功率的 92 %，因此透射功率为 $P_{\text{tr}} = P_{\text{tr, PM}}/0.92$。利用测得的输出耦合镜透射率 T_{OC} ，腔内循环功率可表示为 $P_{\text{1S-2S}} = P_{\text{tr, PM}}/(0.92 \times T_{\text{OC}}) = P_{\text{tr, PM}}/1.1 \times 10^{-4}$。最后，将 $P_{\text{tr, PM}}$ 与放置功率计前后两个光电探测器的电压读数进行比较

[1]Newport 918D-UV-OD3R，基于紫外增强型硅光电二极管。校准不确定度标称为 ±2%，对应波长为 $\lambda = 243$ 纳米。

在分束器之前，由此推导出两个校准因子，分别对应腔内功率 $P_{\text{1S-2S}}$ 与电压读数之比。电压读数根据光电探测器的时间分辨信号得出，详见第 4.3.3.5 节。每当重新对准增强腔时以及其间的其他时刻，都会测量这些校准因子；在精密测量时间段内，每个光电探测器共获得 11 个校准因子。这些校准因子如图4.10所示；快速光电探测器的校准因子以其前置放大器增益为 50 时的数值表示，该数值由增益为 20 时的测量结果按比例换算得到。积分球光电探测器的平均校准因子为 0.83 W/V，变异系数（CV）为 3 %，与平均值的最大偏差为 6 %。快速光电探测器的平均校准因子为 2.34 W/V，变异系数为 4 %，与平均值的最大偏差为 7 %。有趣的是，快速光电探测器的重复性因此与积分球光电探测器相当。

按以下方式确定每次线扫描的腔内功率 $P_{\text{1S-2S}}$：首先获取适用的校准因子，可以使用当天或更早日期测得的数值。然后，将积分球光电探测器（见图 4.11 和第 4.3.3.5 节）在线扫描内各数据点的平均电压读数乘以校准因子，从而得到每个数据点的 $P_{\text{1S-2S}}$ 值。最后，计算这些数据点上 $P_{\text{1S-2S}}$ 的平均值和标准差，并将其指定给相应的线扫描。图 4.12 显示了本文所讨论的 2S-6P测量所得的 $P_{\text{1S-2S}}$ 数值。

4.3.3.5 腔长和腔内功率的稳频

利用伺服环路将243纳米增强腔的长度稳定下来，使其与制备激光器的光保持共振。通过改变施加在圆形压电致动器上的电压，可以调节腔的长度；输入耦合镜粘接在该压电致动器上[1]。利用Pound-Drever-Hall（PDH）技术 [85, 98]生成修正或误差信号，并通过比例–积分（PI）控制器[2]将其反馈至压电致动器。该误差信号以及伺服环路的捕获范围，即误差信号仍可用于使腔返回共振状态的最大瞬时长度变化，对稳频至关重要。这是因为在光斩波器阻挡制备激光器的3毫秒暗阶段内，没有可用的误差信号，也无法向压电致动器施加反馈。因此，此期间任何超过捕获范围的长度变化都会扰乱稳频；尤其是在低温泵运行时，更容易出现较大的扰动。PDH误差信号的捕获范围为 $f_{\text{PDH}}\lambda_{\text{1S-2S}}/\text{FSR}$，其中 f_{PDH}是PDH技术所需的激光光正弦相位调制频率。这里使用 $f_{\text{PDH}} \approx 47.3$兆赫兹，对应的捕获范围为 $\approx$27 纳米；在此范围内，即使低温泵运行，也能可靠地稳定腔长[3]。

使用电光调制器对激光进行相位调制[4]（图4.6中的 PDHEOM）。电光调制器的非线性材料是 BBO晶体，因为这种材料具有很高的损伤

[1]PI Ceramic PD080.31，外径 8.0 毫米，内径 4.5 毫米，量程为 2 µm。使用 Agilent Torr Seal 将反射镜粘接到执行器上，并将执行器粘接到铜支架上。[2]Vescent Photonics D2-125。[3]此前使用的调制频率为 20 MHz，并与此前使用的第二腔体间隔件配合时，情况并非如此，详情见第4.2.5节。[4]Qubig EO-47B3-UV，集成了谐振电路，在 47.2 MHz 下的标称品质因数为 125。请注意，确切的共振频率取决于施加到电光调制器的射频功率大小。

阈值，适用于紫外区域 [99]。该晶体镀有增透膜，初始（2014年）的透射率为 95%，到 2019年已降至 85%。遗憾的是，观察到了不希望出现的静态双折射[1] ，据认为这是由晶体支架引起的应变[2] 或晶体切割不当所致。这种双折射会破坏紫外光的线偏振。可以通过调整偏振方向来尽量减小这种影响。然而，以这种方式确定的方向不得与晶体的调制轴重合，否则与布儒斯特窗等偏振元件结合时会产生残余幅度调制。采用一种折中的调整方式，以尽量减小残余圆偏振和幅度调制。由于只有线偏振光才能驱动 $1S_{1/2}^{F=0} - 2S_{1/2}^{F=0}$跃迁，圆偏振的存在会降低有效激发率。

激光进入腔之前，先用一块增透膜平面窗作为分光取样器，分出一小部分光并送至入射功率光电探测器（见图4.6），因此其信号与 P_{in} 成正比。同样，腔的反向传播反射光被送至雪崩光电二极管探测器[3], ，并根据其信号得出 PDH误差信号。暗阶段会关闭长度稳定，以防误差信号上的噪声和偏移量影响伺服环路，否则可能导致腔长超出环路的捕获范围。具体而言，在光学斩波器产生的触发信号（见第 4.3.2 节）指示亮相位开始后 10 μs，稳频开启并持续 2995 μs，因此通常会在亮相位结束前 $\approx$20μs 关闭。这一安全裕度确保稳频总是在光束被遮挡之前关闭。不过，这也使延迟时间 τ 实际增加了 $\approx$20μs；该延迟时间名义上从斩波器触发信号确定的暗阶段开始时计起。

图 4.11 (A) 展示了典型冻结周期中，从各个光电探测器信号观察到的腔长稳定性能；图 4.11 (B) 和 (C) 则详细展示了亮相位的开始和结束。光学斩波器在 $\tau \approx -3130$μs 时解除对制备激光器的遮挡，此时斩波器触发信号（绿色曲线及阴影区域）发出信号；入射功率光电探测器（红色曲线及阴影区域）上则表现为阶跃式上升。快速光电探测器测得的腔透射（紫色曲线及阴影区域）起初较低，在开启长度稳定（虚线）后上升至稳态值。通常，稳定过程会在亮相位开始后的 $\approx$150μs 内趋于稳定；在捕获范围内经历初始漂移后，信号大致以 50 μs 的时间常数上升，对应的稳定带宽为 $\approx$7 kHz。积分球光电探测器（蓝色曲线及阴影区域）的上升时间较慢，为 90 μs，受其探测带宽限制。亮相位结束时，长度稳定关闭后透射率迅速下降，随后不久激光器本身也被遮挡。请注意，此处亮相位持续了 $\approx$3130μs，而非预期的 3125 μs，这可能是光学斩波轮存在缺陷所致。这也解释了为何此处长度稳定在亮相位结束前 $\approx$25μs 而非 $\approx$20μs 关闭。为确定延迟时间平均入射功率和腔内功率

[1]BBO 是一种单轴晶体，其主要电光系数为 $r_{11} = 2.5$pm/V。因此，要进行相位调制，光沿光轴传播，并沿垂直于光轴的方向施加正弦电场。理想情况下，此时不应存在静态双折射。[2]随着施加到电光调制器上的射频功率增大，双折射也会增强。从增强所需的时间尺度来看，这种效应似乎源于热效应。[3]Thorlabs APD430A2/M。

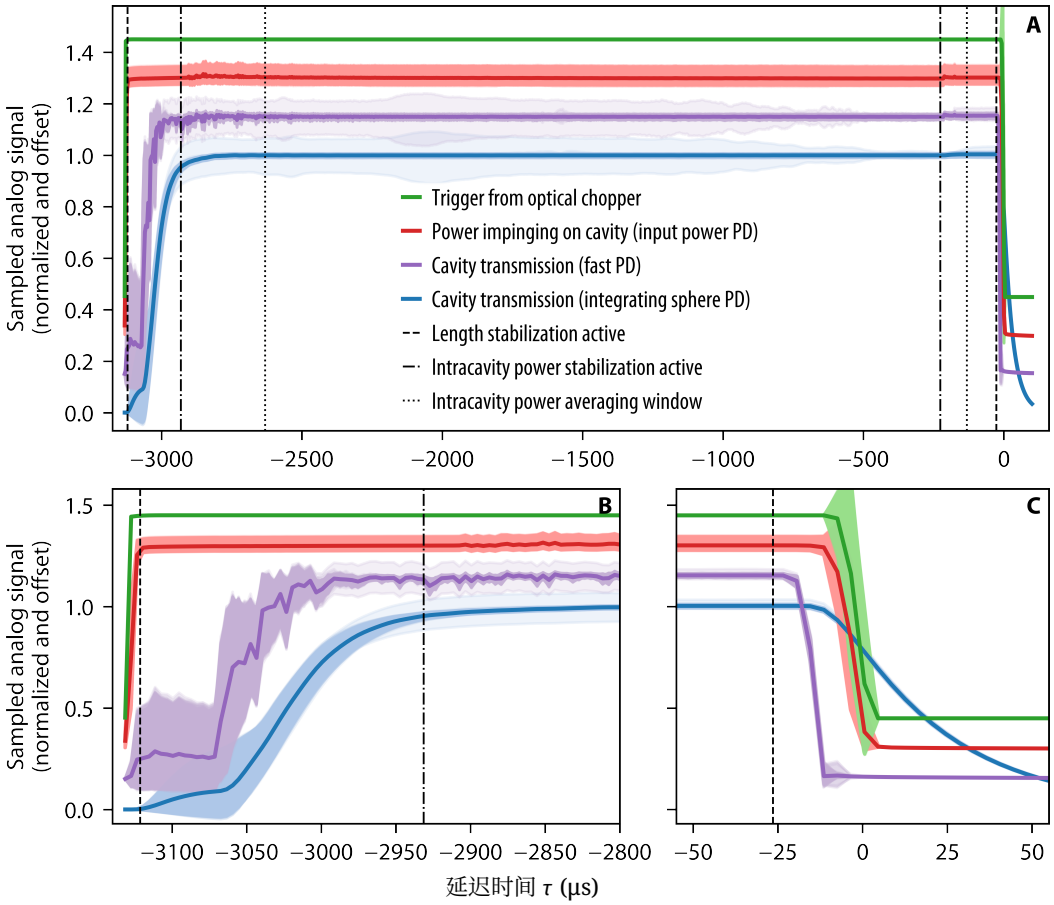


图4.11：243 nm增强腔的腔长与腔内功率稳频性能。图中显示的是一个冻结周期（FC B35）中64次线扫描所包含的1920个数据点的延迟时间分辨采样模拟信号；为便于观察，信号经过归一化并加上偏移量。每个数据点的信号均取自160个斩波器周期的平均值，阴影区域叠加显示这些周期内的标准差。实线表示所有数据点和斩波器周期的平均值。**(A)** 光斩波器周期亮相位期间的信号。图中显示了光学斩波器的触发信号（绿色）、由入射功率光电探测器测得的入射到腔上的功率（红色），以及分别由快速光电探测器（紫色）和积分球光电探测器（蓝色）测得的腔透射信号。透射信号上可见的浅色阴影区域标准差较大，这是由单个数据点造成的。竖线标示了腔长（虚线）和腔内功率（点划线）稳频启用的时间段，以及用于确定平均腔内功率的透射信号部分 $P_{\mathrm{1S\text{-}2S}}$ （点线）。下排详细显示了亮相位**(B)**开始和**(C)**结束时的相同信号。

功率，将相应信号在亮相位开始后的 500 µs 至 3000 µs 时间窗口内取平均（图 4.11 中的点线）（另见第4.7.3节）。如第 4.3.3.4 节所述，腔内功率 $P_{\mathrm{1S\text{-}2S}}$ 根据积分球光电探测器的信号计算，且平均窗口的起始时间与该探测器的上升时间相匹配。

开启和关闭长度稳频时的瞬态行为也会影响腔内功率的确定。在第 4.3.3.4 节中，假设在时间的 $\eta_{\mathrm{circ}} = 1/2$ 内，腔以恒定的循环功率 $P_{\mathrm{1S\text{-}2S}}$ 处于稳频状态，而在

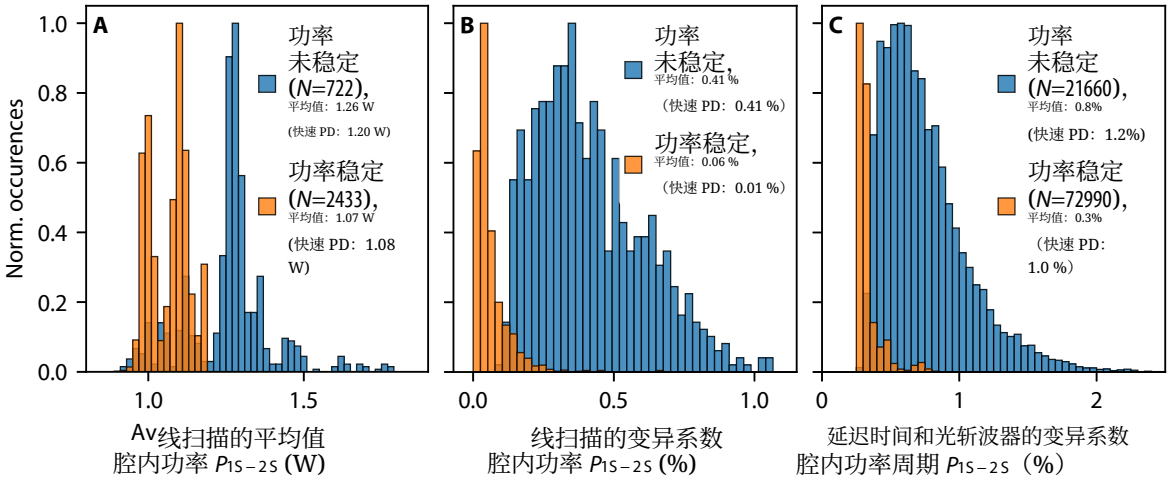


图4.12：2S-6P测量期间 1S-2S 腔内激光功率的稳定性 $P_{1S\text{-}2S}$ ，按腔内功率未稳定（722 次线扫描，蓝色柱）或已稳定（2433 次线扫描，橙色柱）的线扫描分类（见表6.1）。**(A)** 通过对每次扫描所含 30 个数据点的 $P_{1S\text{-}2S}$ 取平均值，得到分配给线扫描的 $P_{1S\text{-}2S}$ 直方图。对于每个数据点， $P_{1S\text{-}2S}$ 则通过对一个延迟时间和斩波器周期窗口内的时间分辨腔透射信号取平均值（如图 4.11 所示），并根据图4.10的校准因子将信号转换为功率读数而得。使用的是积分球光电探测器的信号，但图例中给出的是快速光电探测器的平均值。**(B)** 每次线扫描内各点的 $P_{1S\text{-}2S}$ 变异系数（CV），相邻点的平均时间间隔为 2.3 s。**(C)** 每个数据点内延迟时间和斩波器周期的变异系数。详情见正文。

其余时间则没有循环功率。由于瞬态行为，在亮相位开始时，实验中的原子实际感受到的循环功率低于 $P_{1S\text{-}2S}$ ，但当腔稳定后，感受到的循环功率则高于 $P_{1S\text{-}2S}$ 。一方面，对平均窗口内的透射光电二极管信号进行积分；另一方面，对整个斩波器周期内的信号进行积分。通过比较这两个积分，可以将平均窗口内的瞬时功率与功率计测得的、在多个斩波器周期上取平均的功率联系起来。对于图4.11所示的快速光电探测器数据，两个积分的比值为 2.054。也就是说，假设腔恰好有一半时间完全处于稳频状态，则瞬时功率比平均功率高 $2.054/2 - 1 = 2.7\%$。无论如何，实验中的原子经历的是完整的亮相位，而不仅仅是平均窗口。因此，为了全面描述实验，模拟（见第5.2节）理想情况下应采用由完整的光电二极管信号和功率计测量结果共同确定的时变功率。作为近似，这里假设腔恰好有一半时间完全处于稳频状态，且瞬时功率等于平均功率 $P_{1S\text{-}2S}$。

在2S-4P测量期间（见附录A），亮相位期间的腔内功率未进行稳定，而是自由运行，因此会受到输入功率和腔功率增强漂移的影响。2S-6P测量期间获取的部分数据也存在同样情况。然而，2019年5月28日增加了腔内功率稳定系统，并在测量运行B的大部分时间以及完整的运行C期间使用（见

表6.1）。为此，使用AOM[1] 通过将部分光衍射至光束倾倒器，控制入射到腔上的功率。被倾倒的光量由发送至AOM的射频功率大小控制[2]。快速透射光电探测器用于生成该稳定系统的误差信号，该系统采用与长度稳定相同的比例积分控制器。积分球光电探测器提供腔透射的环外信号。功率稳定仅在亮相位的一部分时间内启用，以尽量减少其与长度稳定之间的干涉。它在亮相位开始后200 µs开启，以确保长度稳定已经稳定下来；再经过2705 µs后关闭（图4.11中的点划线），即在长度稳定关闭前200 µs关闭[3]。腔内功率稳定的效果在图4.11中清晰可见：稳态腔透射率（紫色阴影）随时间的变化小于输入功率（红色阴影）；输入功率是在AOM之后测量的，因此显示了反馈回路施加的补偿。

图 4.12 展示了 2S态- 6P 测量线扫描期间腔内功率 $P_{\mathrm{1S\text{-}2S}}$ 的变化情况，并将数据分为功率未稳频（蓝色柱）和功率已稳频（橙色柱）两组。功率未稳频时，每次线扫描中各数据点的变异系数（CV；见图 4.12 (B)）平均为 0.41 %，而启用功率稳频后，数据的变异系数降至 0.06 %。值得注意的是，在后一种情况下，快速光电探测器测得的平均变异系数更低，为 0.01 %；而在前一种情况下则测得相同的变异系数，这符合预期，因为它属于反馈回路的一部分。同样，每个数据点在延迟时间和斩波器周期内的平均变异系数（见图 4.12 (C)）从 0.8 % 降至 0.3 %。有趣的是，快速光电探测器测得的平均变异系数较高，为 1.0 %，且稳频在此情况下影响很小。这被认为是由快速光电二极管的探测带宽所致：该带宽受信号采样限制为 250 kHz，超过了稳频的 $\approx$50 kHz 反馈带宽。

4.3.3.6 对准激光

如图4.6所示，一台辅助对准激光器沿着1S-2S制备激光器穿过真空室的光束路径传播，用于调节可变光阑并对氢喷嘴成像。为此使用波长为 $\lambda = 632.8$纳米的氦氖激光器，因为增强腔中使用的243纳米反射镜和用于转向的反射镜在该波长下反射率较低，而且该激光器的光束质量良好。对准激光和1S-2S激光的光束反向传播，在真空室两个布儒斯特窗的前后，利用转向镜作为分束器将两束光合并。两个光阑分别放置在两面反射镜附近，并分别称为前光阑和后光阑，用于精细调节两束光的重合度。每个测量日开始测量前，至少会调节一次两束光的重合度。对准激光可通过遥控快门遮挡；采集光谱数据时，激光始终处于遮挡状态。

一面可拆卸反射镜将对准激光的光束在穿过真

[1] IntraAction ASM-1101M3，中心频率为 110 兆赫兹。增益介质为紫外级熔融石英，镀有宽带紫外增透膜，在 243纳米处的透射率为 98 %。[2] 为调节射频功率，采用射频合成器（Rohde & Schwarz SMC100A）的幅度调制功能（带宽为 50 千赫兹，3 dB）。[3] 因此，腔内功率稳定在平均窗口结束前 $\approx$100 µs 关闭。此举并非有意为之，只是在测量结束后才发现。实际上，没有理由不让功率稳定保持开启，直到长度稳定关闭前一刻。

空腔体后，导向光电探测器（对准光电二极管）或图像传感器（喷嘴图像传感器）。使用激光调节可变光阑的宽度时，将其强度半径为 $1/e^2$ ≈450μm 的准直光束穿过腔体，并由对准光电探测器检测，以便按照第 4.5.3 节所述进行刀口测量。为抑制这些测量过程中的强度涨落，使用额外的光电探测器将测量信号归一化至对准激光的输出功率。

为了对喷嘴成像，使用可拆卸透镜使对准激光束发散，从而形成中间焦点，使喷嘴通道得到近似均匀的照明。随后，在喷嘴图像传感器前放置一枚附加透镜，将喷嘴通道成像到传感器上。利用该图像调整喷嘴位置，并在测量过程中观察喷嘴，详见第4.5.2.5节。

4.3.3.7 腔内孔径与腔对准

如图 4.1和图4.6所示，243 nm增强腔内有多个孔径。其中，圆形喷嘴通道（直径 $2r_1 = 2$ 毫米）、圆形高真空入口光阑（直径2.4毫米）和矩形可变光阑（尺寸1.2毫米×2毫米）与腔的运行有关。激光束每次通过孔径都会造成损耗 A_{AL}，使腔内每次往返的总损耗增加 $2A_{\mathrm{AL}}$。对于腔的光束参数，圆形、方形和矩形孔径造成的损耗 A_{AL} 如图4.13所示，以上三种孔径造成的损耗均低于 6×10^{-5}。不过，这只有在激光束恰好居中穿过孔径时才成立。若激光束沿可变光阑较窄的方向偏离中心200 μm，孔径损耗将增至 $A_{\mathrm{AL}} = 0.35\%$，与对准完美、损耗未恶化的情况相比，总往返损耗几乎高出40 %。因此，可远程沿水平方向（x轴）调节可变光阑的宽度，以补偿对准漂移（见第4.5.3节）。此外，随着冻结周期中固态氢不断积聚，喷嘴通道直径逐渐减小；当直径低于某一阈值时，损耗会迅速增大，直径分别为 $2r_1 = 1$毫米和 $2r_1 = 0.9$ 毫米时，损耗达到 $A_{\mathrm{AL}} = 0.35\%$和$A_{\mathrm{AL}} = 1.0\,\%$。达到该阈值后，必须停止实验，因为腔的功率增强不足。

相对于腔体光轴的孔径对准分多个步骤进行。增强腔的初始对准在移除真空腔室盖的情况下进行：移除高真空外壳的入口光阑和出口孔，将低温恒温器及其连接的喷嘴移出腔内光束路径，并将可变光阑完全打开。随后，使用腔体前方的转向镜，使光束分别在 IC 和 OC 上居中，然后通过先调节 OC、再调节 IC 的俯仰调节，闭合腔体内的光束路径。增强腔对准完成后，重新安装入口光阑和出口孔。如图 4.2 所示，利用真空室的可调支脚调整腔体的位置，使固定有孔径的真空室中的 1S-2S 激光束在入口光阑和仍处于完全打开状态的可变光阑上居中。在此对准程序中，使用光束分析相机和镜头纸；镜头纸会散射激光束，使孔径的阴影清晰可见。相机交替放置在入口光阑和可变光阑之后。预计该对准程序的精度在 100 微米以内。当腔体抽真空时，由于腔体固定在光学平台上而非真空室本身，对准

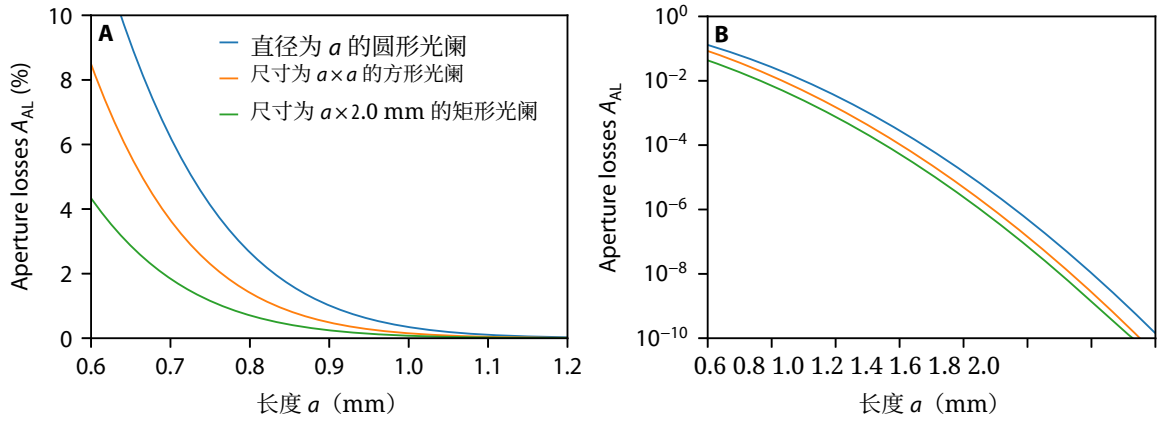


图 4.13：（**A**）对于243 nm增强腔中使用的束腰半径为 $w_{1S\text{-}2S} = 297$微米的高斯激光束，不同孔径引入的计算损耗 A_{AL}：直径为 a的圆形光阑（蓝色曲线）、尺寸为 $a \times a$的方形光阑（橙色曲线）以及 $a \times 2$毫米的矩形光阑（绿色曲线）。（**B**）显示了与（**A**）相同的结果，但采用对数刻度。

可能会发生漂移。通过观察腔体高阶模式的透射率来监测这种漂移，因为高阶模式的空间范围更大，尤其容易受到孔径损耗的影响。通常不会观察到透射率发生变化，因此认为抽真空后对准仍然保持良好。

喷嘴位置和可变光阑的水平宽度可以独立于其他孔径进行调节，并且可在腔体处于真空状态时进行。这些对准操作分别在第4.5.2.5节和第4.5.3节中介绍。

根据孔径损耗，可以估算出射入荧光探测器组件内部的光子数量。绝大多数损耗 5.3×10^{-5} 发生在可变光阑处。通过蒙特卡罗积分估算，受几何结构限制，从该光阑边缘散射的光子中有5%能够到达探测器的内壁。对于 $P_{1S\text{-}2S} = 1$瓦的腔内功率，这相当于在光学斩波器的亮相位期间，有 3.3×10^{12}光子/秒撞击探测器壁面。探测器壁面受照射的部分涂有石墨，根据表 4.1 中给出的光电子产额，会产生 2×10^{7}光电子/秒。需要注意的是，2S-6P 荧光信号仅在光学斩波器的暗阶段被探测，即制备激光器被阻断时，因此这些散射光子及其产生的光电子不会影响信号。

4.4 2S-6P光谱激光器

2S-6P 光谱激光器通过频率为 $\nu_{2S\text{-}6P} = 730.7$太赫兹（相应波长为$\lambda_{2S\text{-}6P} = 410.3$纳米）的光，将氢原子从亚稳态2S能级激发至6P能级，其相对于跃迁频率的失谐 $\Delta\nu_{2S\text{-}6P}$ 是相对于 $\nu_{2S\text{-}6P}$ 测量的。激光通过对红外激光进行倍频产生，如第 4.4.1 节所述。2S-nP 跃迁的光谱学中一个关键组件是主动式光纤反射器（AFR），它利用反向传播激光束来抑制氢原子穿过光束时本会产生的一阶多普勒频移

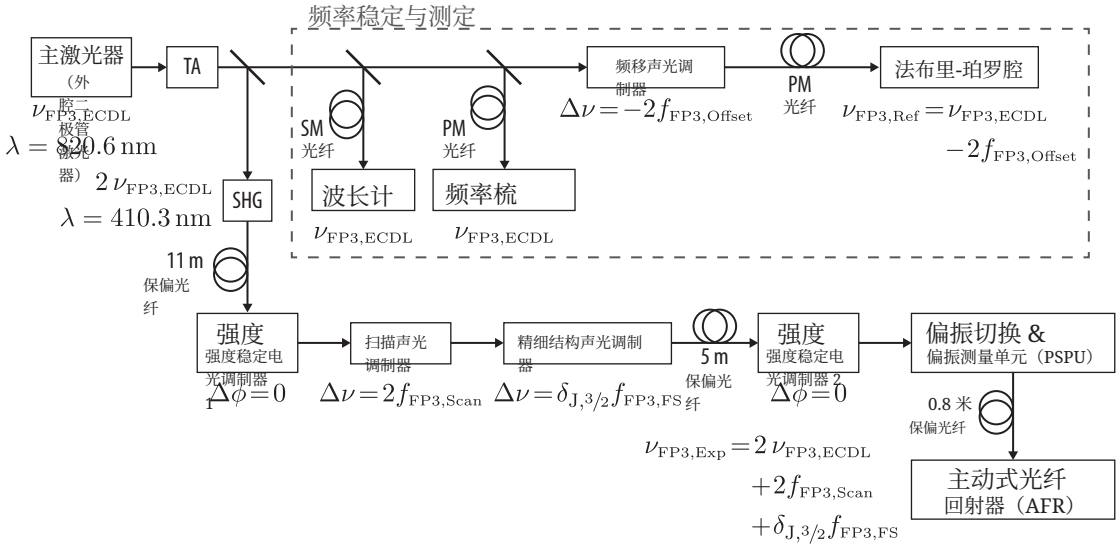


图4.14：410纳米激光系统（“FP3”）相关组件示意图，该系统是2S-6P光谱激光器的一部分，图中重点展示了会改变激光频率、相位或功率的组件。$\delta_{J,\,3/2}$ 在探测2S-6P$_{1/2}$ （2S-6P$_{3/2}$）跃迁时为0（1）。详情请参见第 4.4.1 节。AOM：声光调制器；ECDL：外腔二极管激光器；EOM：电光调制器；PM fiber：保偏光纤；SHG：二次谐波产生；SM fiber：单模光纤；TA：锥形放大器。

。为此，需要使用低像差准直器，该准直器必须专为2S-6P跃迁设计，详见第 4.4.3 节。用于产生反向传播光束的反向反射控制与稳频将在第 4.4.4 节讨论，而这些光束的强度稳频则是第 4.4.5 节的主题。最后，如第 4.4.6 节所示，还会监视激光束的偏振。本节内容与一篇由 Vitaly Wirthl [35, 36], 合著的出版物基本相同，更多详情请参阅该出版物。

4.4.1 410纳米激光系统

410纳米激光系统（在氢实验室中称为“FP3”）如图 4.14 所示，用于产生驱动2S-6P跃迁所需的激光。该系统与第 4.3.1 节所述的243纳米激光系统非常相似。主激光器工作于红外波段，频率为$\nu_{\mathrm{FP3,\ ECDL}}$ （$\lambda \approx 820.6$纳米），是一台自制的利特罗结构外腔二极管激光器（ECDL，腔长为20厘米） [82]。主激光器的输出经锥形放大器（TA）放大，光功率达到1。1瓦，供电电流为2。2安培。与243纳米激光系统不同，红外光只进行一次倍频。该过程通过一块置于自制蝴蝶结形环形腔中的三硼酸锂（LBO）晶体实现，可产生100毫瓦至150毫瓦的410纳米激光。随后，激光经一根长11米的保偏光纤传输至氢光谱仪的光学平台。

410纳米系统的频率稳定与测定与243纳米系统类似。主激光器的频率锁定到一个结构相同的高精细度法布里-珀罗参考腔上（自由光谱范围为1.932吉赫兹）。部分光

频率 $\nu_{\mathrm{FP3,ECDL}}$ 经保偏光纤送入频率梳，以测定激光频率（单位为赫兹），并将主激光器的光谱与1S-2S制备激光器的光谱进行比较（见第4.8节）。

然而，与243纳米系统不同，由于对激光光谱的要求较低，因此未对光纤在腔与主激光器之间引入的相位噪声进行消除。置于主激光器与参考腔之间的双程声光调制器（频移声光调制器）将激光频率偏移$-2f_{\mathrm{FP3,\ Offset}}$，使其与参考腔发生共振。不同于243纳米系统，该声光调制器不用于扫描原子所感受到的光的频率，因为二次谐波处所需的100兆赫兹范围超出了主激光器的调谐范围。相反，使用工作于$f_{\mathrm{FP3,\ Scan}} = 325$兆赫兹 .....375兆赫兹的双程声光调制器[1]（扫描声光调制器）来偏移倍频光的频率。在寻址2S-6P$_{3/2}$ 跃迁时，额外的声光调制器[2]（精细结构声光调制器）会进一步将频率偏移$f_{\mathrm{FP3,\ FS}} \approx 406$兆赫兹；而在探测2S-6P $_{1/2}$ 跃迁时，则将其旁通。

其余组件将在下一节作为主动式光纤反射器的一部分进行讨论。

4.4.2 主动式光纤反射器

文献 [28] 详细讨论了主动式光纤反射器（AFR）的一般概念。其核心思路是将单模光纤发出的激光束准直，并利用高反射镜（HR）使光经准直器耦合回同一根光纤。通过在光纤前放置分束器，可以监测反向耦合光比例，并通过调整准直器与光纤之间的距离以及高反射镜的俯仰-偏转对准，使该比例达到最大。此俯仰-偏转对准通过安装在反射镜架上的压电执行器进行主动稳定[3]。使反向耦合光比例最大化，相当于优化光束的波前回溯特性：对于完全平坦且全反射的高反射镜，以及无像差光束，当准直光束的束腰位于反射镜上时，波前回溯和振幅匹配条件均得到满足，从而使全部光功率耦合回光纤。

与 AFR 相关的氢光谱仪光学装置如图4.15所示。首先，将约 100毫瓦的 410纳米激光从 410 nm 激光系统经由一根长 11 米的保偏（ PM ）光纤送入实验装置。使用声光调制器（AOM，与图 4.14 中的扫描声光调制器相同）扫描共振范围内的光学频率，并依次利用电光调制器（EOM 1）、偏振分束器（PBS）和半波片进行强度控制。激光经另一根长 5 米的保偏光纤传输至偏振切换与偏振测量单元（PSPU）。利用光电探测器 PD 1 的信号，并以 EOM 1 作为执行器，对该光纤之后的强度进行稳定（1st 强度稳定）。其他光电探测器（ PD 2、PD 3 和光电探测器4）用于监测环路外的强度。为在水平和垂直线偏振之间切换，通过机械快门打开两条光路中的其中一条。偏振消光比为 > 50 dB 的格兰-汤普森偏振片可提高耦合进入末端光纤的光的偏振消光比 PER $=P_{\max}/P_{\min}$ ，其中 $P_{\max}$ 和 $P_{\min}$ 分别为两个正交偏振方向上的最大和

[1]Brimrose TEF-350-100-400，中心频率为 350 兆赫兹，带宽为 100 兆赫兹。[2]TEF-350-200-380/500，中心频率为 350 兆赫兹，带宽为 150.....200 兆赫兹。[3]Radiant Dyes MDI-H，配备压电驱动。另增设了两台 Newport 8301-UHV Picomotor 精密电机，以扩大对准范围。

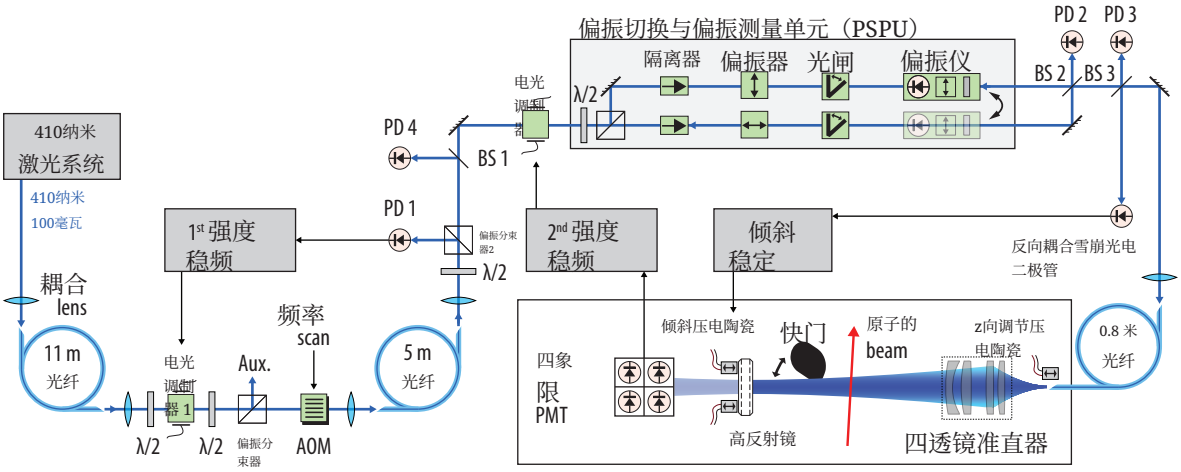


图4.15：2S-6P 光谱激光器和主动式光纤回射器的光学布局。请注意，图 4.14 中包含的精细结构声光调制器未在此处显示，但实验中确有使用。 $\lambda/2$：半波片，AFR：主动式光纤回射器，AOM：声光调制器，APD：雪崩光电二极管探测器，BS：分束器，EOM：电光调制器，HR mirror：高反射率镜，PBS：偏振分束器，PD：光电探测器，PMT：光电倍增管，z向调节压电陶瓷：光纤-准直器距离的调整值。

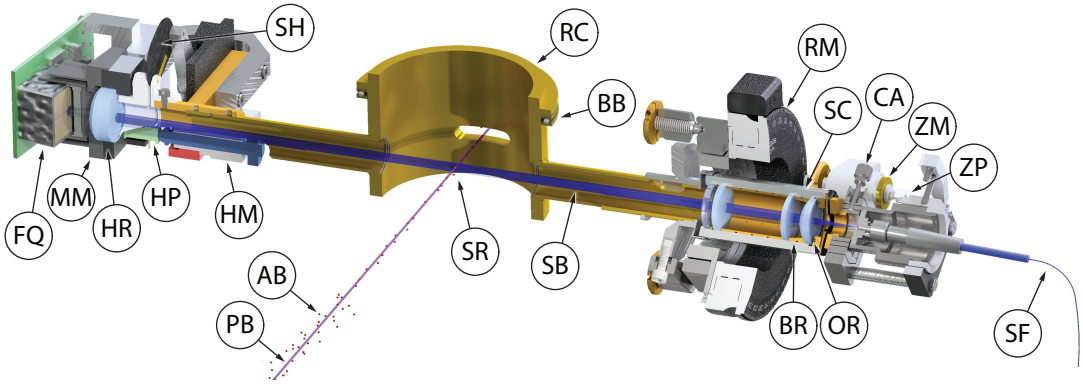


图 4.16：真空内主动式光纤回射器（AFR）装置的三维视图（正投影），该装置是图 4.1 所示原子束装置的一部分。**AB**：原子束，**BB**：底座圆柱滚珠轴承，**BR**：准直透镜之间的黄铜环形垫片，**CA**：准直器–光纤对准，**FQ**：AFR四象限光电倍增管，**HM/HP**：水平（倾斜）精密电机（HM）和压电致动器（HP），**HR**：AFR高反射镜，**MM**：压电驱动的AFR镜架，**OR**：将准直透镜系统固定到位的O形圈，**PB**：1S-2S制备激光束，**RC**：可旋转底座圆筒，**RM**：准直器旋转架，**SB**：2S-6P光谱激光束，**SC**：四透镜准直器，**SF**：保偏光纤，**SH**：AFR快门，**SR**：2S-6P光谱区，**ZM/ZP**：用于调整光纤-准直器距离的精密电机（ZM）和压电致动器（ZP）。

最小透射光功率。每条光路中的隔离器可抑制光学标准具；隔离器之后尽可能减少光学表面的数量，并由快门关闭未使用的光路。经过 PSPU 后，激光通过非偏振分束器（BS 2），再经由另一个分束器（BS 3）传输。

Fin最终，激光经由光纤（激光功率为 5 微瓦.....30 微瓦）到达真空内 AFR 装置 ，

如图 4.16 所示，激光通过一根 80 厘米长的保偏（PM）光纤[1] （**SF**）传输。整个真空内 AFR 装置安装在可旋转底座圆筒（**RC**）上，底座圆筒置于滚珠轴承（**BB**）上，因此可以将光谱激光束（**SB**）与亚稳态氢原子束（**AB**）之间的夹角调整至接近 $90°$；亚稳态氢原子束与 1S-2S 制备激光束（**PB**）共线。四透镜准直器（**SC**）安装在与手动精密旋转台组合的反射镜架上[2] （**RM**）。光纤端头和准直器最后一个透镜表面到圆筒中心的距离分别为 20 厘米和 12 厘米。准直通过商用光纤平移架[3] 进行调整；我们对其进行了改造，利用精密电机[4] （**ZM**）与压电致动器[5] （z向调节压电陶瓷，**ZP**）组合，实现精确的距离控制。该部分安装在笼式系统上，笼式系统固定于柔性调节板[6] （**CA**），以便精确地将光纤与准直器居中对准。光线经高反射镜[7] （**HR**）逆向反射；该反射镜安装在压电驱动镜架（**MM**）上，距圆筒中心 16 厘米。反射光沿原路返回并通过光纤，约一半的反向耦合光在 BS 3 后由雪崩光电二极管（反向耦合雪崩光电二极管）探测，其信号用于利用反射镜架的压电致动器进行倾斜稳定（图 4.16 中仅示出了水平压电执行器（**HP**））。另一部分反向耦合光通过 BS 2；偏振仪放置在未使用的光束路径中。自制的远程控制快门（**SH**）可阻挡反射光束，从而采集未受反向传播光束所提供的多普勒抑制影响的光谱数据。

高反射镜后的四象限光电倍增管[8] （光电倍增管，**FQ**）的求和信号用于对波前回溯光束进行第二级强度稳定，电光调制器 2 作为执行器。光电倍增管以 $\approx 10°$ 的角度安装，并配有干涉带通滤光片[9] 和散射盘[10]。使用位置灵敏光电倍增管的实际优势在于可以进行失准监测。高反射镜或准直器—光纤系统发生 200 微弧度的角度失准，会导致回耦信号 [28]完全丢失。如果 AFR 的最佳取向发生偏移（例如在装置上进行操作期间），光电倍增管的水平和垂直位置信号有助于恢复对准。

在 2S-6P测量期间，每个测量日都使用一台经过校准的功率计[11]，在真空内 AFR 装置的光纤前测量 410 nm 激光功率。2S-6P 光谱激光功率 $P_{\mathrm{2S\text{-}6P}}$ 等于光纤耦合效率乘以功率计读数。功率计的校准不确定度为 $\pm 5\%$，功率线性度为 $\pm 1\%$，有效面积均匀性为 $\pm 1\%$。通过在每次功率测量时将功率计置于指定支架中，我们发现

[1]真空兼容型 Nufern PM-S405-XP 光纤，采用直径 900 微米的 PEEK 护套，由 Diamond GmbH 生产并进行增透膜镀覆。[2]Thorlabs POLARIS-K2S3，PRM2/M。[3]Thorlabs SM1。[4]Newport 8301-V。[5]Thorlabs PK4FQP2。[6]Thorlabs CP1XY。[7]向 LayerTec 定制：反射率为 $R > 99.995\,\%$，透射率为 $T \approxeq 2 \times 10^{-5}$，基底在 633 纳米处具有$\lambda/30$的不规则度和 <1.5 埃的均方根粗糙度。[8]Hamamatsu R11265-200-M4。[9]Edmund Optics 34-494，通带宽度为 10 纳米（半高全宽），中心波长为 413 纳米。[10]DG10-1500-A。[11]Thorlabs PM160。

由有效面积均匀性导致的相对测量不确定度可降至 $\approx 0.5\%$。测得的光纤耦合效率[1] 分别为垂直偏振下的 0.788(7) 和水平偏振下的 0.807(7)；在 2S-6P测量期间，这两个偏振方向分别用于将线性激光偏振角设为 $\theta_{\mathrm{L}} = 56.5^{\circ}$ 和 $\theta_{\mathrm{L}} = 146.5^{\circ}$。每个测量日都会通过优化光电倍增管上的总和信号来优化光纤耦合（此时关闭强度稳定）。根据功率计的规格估算，$P_{\text{2S-6P}}$ 绝对值的不确定度为 $\approx 7\%$；测量日之间的相对不确定度估算为 $\approx 1.3\%$（光纤耦合效率、功率计线性度和有效面积均匀性的不确定度平方和开根号）。

4.4.3 低像差准直器

在 AFR 中，准直器发挥着核心作用，因为像差可能会印刻在光谱激光束的波前上。这些像差会使波前变形，导致准直光束中可能不存在波前为平面波的位置，因此反向传播光束无法沿前向传播光束的波前回溯。反向耦合光比例是衡量波前回溯特性保持程度的量，因为它与正向和反向传播光束的重叠积分直接相关。在我们此前于 486纳米处搭建的 AFR 装置中，我们采用了基于两组消色差双胶合透镜的准直器设计，以尽量减小像差，并使反向耦合光比例达到与 100 % 相差不超过 1 % 的水平 [28]。除校正色差外——对于我们的单波长应用而言，色差无关紧要——与单个透镜相比，消色差双胶合透镜还有助于减小球差。

波长越短，设计合适的光学元件就越具挑战性，因为满足透明度要求、且可组合成消色差双胶合透镜的玻璃类型更少。理论上，使用具有所需形状的单个非球面透镜即可实现无像差准直。为此，我们测试了采用磁流变抛光（MRF）这一先进技术加工的定制非球面透镜[2] 。遗憾的是，抛光造成的瑕疵在准直光束上仍清晰可见，反向耦合光比例也只能达到约 80%。

因此，我们选择仅使用表面粗糙度较低的球面透镜。首先，我们在 410纳米波长下测试了一种基于球面熔融二氧化硅透镜的三透镜准直器[3]。我们采用优化点扩散函数、最小化光线光程差等传统光线追迹技术，找到了像差最小的设计方案；这与先前在 486纳米下采用的双胶合透镜设计类似 [28]。然而，在测试组装好的定制准直器时，我们发现残余球差将反向耦合比例限制在 94(1.2) %。这与我们先前的经验相反：当时，准直器缺陷会在准直光束中形成明显的畸变 [28], ，但此处的像差

[1]请注意，测量光纤前的功率时，必须将分束器 BS 3 产生的二阶反射纳入计算，或将其挡住。该反射与主光束成一定角度传播，不会耦合进光纤，但其功率占两束光总功率的 1.7%。[2]Thorlabs 采用磁流变抛光加工的衍射极限高精度非球面透镜 AL1225H（库存产品）和 AL1225H- 50URAD-SP（定制产品，表面质量达到最佳，峰谷斜率为 50 微弧度，针对 380–410纳米范围内的性能进行了优化。）[3]请注意，这并非 [28], 中提到的三透镜准直器。后者是更早期的版本，制造质量较差，设计也不理想，因为最后一个透镜的最后一个表面被设计为平面，与高反射镜构成了一个标准具。

在准直光束的强度分布中无法看到三透镜准直器的像差，只能通过焦散测量发现，即在焦散范围内不同位置进行光束剖面测量，如下方图 4.19 所示。对于我们的应用，常规的光线追迹设计过程必须借助波动光学传播工具加以扩展。最终，我们与制造公司[1] 共同确定了四透镜设计；通过焦散测量确认了其光学性能，且未发现超过检测限的像差。使用该准直器，我们测得反向耦合光比例为 99.3(1.2)%，与 100 % 相符。下文将概述四透镜准直器的设计与表征过程。

4.4.3.1 设计过程

对于我们此前用于 486纳米 的准直器，每个商用消色差双合透镜本身的球差都很小，而通过光线追迹找到的两个双合透镜组合，经验证无需进一步研究便满足 AFR 的要求。对于更短波长，在发现仅通过光线追迹光学元件设计的三透镜准直器存在残余像差（焦散测量结果显示了这些像差，见下文介绍的图 4.19）后，我们借助波动光学传播工具扩展了设计过程[2]。光线追迹能够在给定孔径宽度内将波前像差降至最低，但难以将高斯光束分布纳入考量。对于给定数量的透镜，必须在用于最小化波前偏差的孔径宽度与可接受的偏离无像差波前的偏差幅度之间作出折衷。

无像差聚焦相位和主要的球差项可写为

$$\phi_{\mathrm{foc}}(r) = -\frac{k\,r^2}{2\,f}, \quad \phi_{\mathrm{ab}}(r) \approx S\left(\frac{r^4}{W^4} - 2\frac{r^2}{W^2}\right), \tag{4.7}$$

其中， f 为焦距， k 为波数， W 为像差刻印位置处的光束半径。 $\phi_{\mathrm{ab}}(r)$中 r^4项的聚焦效应由 r^2项补偿，从而单独分离出像差的贡献。参数 S表征球差的强度。对于我们的情况（ $\lambda = 410$纳米、 $f = 30$毫米、$W = 2.2$毫米），如果使用单个薄平凸准直球面透镜，根据 [102]的解析表达式，球差将高达 $S \approx 3$ 。对于球差，偏离无像差波前的程度会随着 $\propto r^4$增大。因此，径向距离 r 越大，就越难在用于减小波前偏差的孔径宽度与可接受偏差的大小之间满足光线追迹的折中要求，尤其是在波长较短时。由于激光束的翼部会延伸至较大的 r，因此应采用何种光线追迹准则并不显而易见。

因此，我们与制造公司共同采用了迭代设计流程。根据透镜的可制造性以及有效焦距需达到 $f \approx 30\mathrm{mm}$ 的要求，使用光线追迹作为设计指导。通过波动光学传播，对由此得到的设计进行评估，并在焦散测量仿真中模拟其强度分布。此外，还提取了电场相位和振幅，以便利用光学布洛赫方程模拟残余多普勒频移。另一项重要的设计准则是考虑透镜表面的残余反射返回光纤

[1]Bernhard Halle Nachfl. GmbH，德国。[2]Zemax OpticStudio 15.5 Professional，包含物理光学传播（POP）模块。

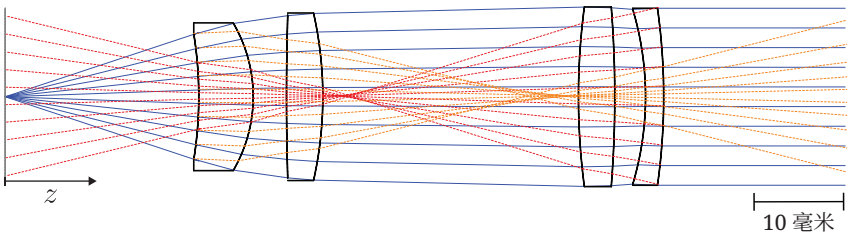


图4.17：四透镜准直器设计，其中蓝色实线光线表示来自光纤的准直光束。图中所示透镜半径对应于透镜孔径。虚线光线示例性地表示从最后一个表面反射回光纤的光线（红色），以及从第一个表面反射回高反射镜的光线（橙色）。对这些杂散反射进行分析对于准直器设计过程十分重要，因为它们可能导致主动式光纤回射器的性能损失，或引起残余多普勒频移。

以及返回光谱区的情况。经过多次迭代，我们发现三片透镜无法满足要求，因此需要采用四透镜设计。为了能够使用同一个准直器对所有 2S态-nP 跃迁进行光谱学测量（ $n \geq 4$），准直器的设计波长范围为 380nm 至 486nm。最终的准直器设计有效焦距为 $f = 31.02\text{mm}$，如图 4.17 所示。该焦距与此处使用的光纤相结合，可产生束腰半径为$W_0 = 2.2\text{mm}$ [35, 36] 的准直光束。

4.4.3.2 透镜表面的残余反射

尽管所有准直透镜都针对所需波长镀有增透膜[1]，，残余反射仍可能导致主动式光纤回射器的性能损失。在此，我们仅考虑来自透镜表面的单次反射，因为多次反射会通过增透膜得到强烈抑制。随后，需要考虑两类反射。第一类是正向传播波从透镜表面反射并返回光纤的反射。其中耦合回光纤的部分反射光会干扰倾斜稳定。为减小这些反射的影响，需要避免与光纤的高效耦合，这可以通过计算反射光束与光纤模式之间的空间重叠 η_{fiber} 来评估。

第二类反射是反向传播光束的反射，使其返回原子光谱区和高反射镜。这些反射会以两种方式影响光谱测量。与朝向光纤的反射类似，它们会与准直光束形成光学标准具，其空间重叠由 η_{coll} 给出。该标准具会导致光谱区内的强度发生变化，变化取决于反射表面与高反射镜之间的距离，以及用于记录原子共振而不断变化的激光频率。不过，由于激光强度依据高反射镜后方光电倍增管的信号进行稳频，这些强度调制会受到抑制，转而影响反向耦合光，可能干扰倾斜稳定。反射还可能导致残余多普勒效应。反射光越集中于光谱区附近（无论是在高反射镜反射之前还是之后），原子所感受到的光束间强度不平衡就越大。为尽量减小这些反射的影响

[1]LayerTec 提供的定制涂层，在 400–490 纳米波长范围内、入射角为 0–10° 时，反射率为 $R < 0.15\%$。如果要将准直器用于更短波长（例如 2S-8/9/10P跃迁），则需要采用不同的增透膜。为此，我们提供无涂层版本的准直器。

设计采用了这样的方案，使所有反射光在首次通过光谱区时均为发散光束，光束半径为 $W_{\mathrm{refl}} \gg W$。

对于所有 8 种可能的一阶反射， η_{fiber} 和 η_{coll} 的值均小于$\eta < 1 \times 10^{-5}$，因此再加上增透膜的抑制作用后，重叠<1×10^{-8}。第二类反射的光束半径 W_{refl}始终大于 20 mm。图 4.17 中以红色虚线光线示出了从最后一个准直器表面反射回光纤的一个示例。橙色虚线光线表示光线从第一个表面反射回高反射镜和光谱区的路径，说明并非只有负曲率半径的表面才会将反射光束聚焦到原子处。前向传播光束中，由两个透镜表面反射形成的 28 种组合受到强烈抑制，其中 26 束在光谱区强烈发散，另有两束近乎准直。

4.4.3.3 使用光学布洛赫方程模拟多普勒频移

使用光学布洛赫方程进行多普勒频移模拟，在准直器设计过程中发挥了决定性作用。我们使用光学设计软件中的波动光学传播工具评估准直器设计，并将高斯光束分布（束腰半径为 $w_0 = 1.9\mu\mathrm{m}$，代表光纤模式）作为入射光束。实际光纤模式与高斯光束分布略有偏差，[35, 36]对此进行了详细讨论。我们提取准直器后的电场振幅和相位，以模拟 AFR 中的残余多普勒频移。为此，我们针对实验配置，对氢原子中 2S-6P跃迁的原子系统数值求解光学布洛赫方程，激光功率为 10 μW。我们模拟了原子以不同角度 $\alpha = 90^\circ + \delta\alpha$穿过激光束中心时的单条轨迹，并通过对所得荧光线型拟合 Voigt函数，确定多普勒频移 $\Delta\nu_{\mathrm{D}}$。原子速度设为 $v = 200\mathrm{m/s}$，此时未受抑制的共线（$\alpha = 0^\circ$）多普勒频移为 $\Delta\nu_{\mathrm{D}} = 490\mathrm{MHz}$；角度为 $\delta\alpha = 4\mathrm{mrad}$ 时，频移为 $\Delta\nu_{\mathrm{D}} = 2\mathrm{MHz}$。在模拟中，我们评估多普勒频移随光纤 - 准直器距离 δd_{fc} 的变化；该距离的定义使得零 δd_{fc} 对应于反向耦合光比例最大的准直状态。此处假设高反射镜反射光束不存在倾斜失准。

图4.18 (A) 比较了理想近轴准直与四透镜准直器的模拟结果。两种情况均针对不同角度 $\delta\alpha$ 进行评估。顶部图显示所得多普勒频移 $\Delta\nu_{\mathrm{D}}$。底部图显示 AFR 光束的两项特性：正向和反向传播光束在其光束中心处的强度失配 ξ_{cent}，以及反向耦合光比例 P_{bc}。在完全正交的情况下（ $\delta\alpha$ 为零，灰色点和线），多普勒频移受到强烈抑制；在此处，该频移在数值不确定度范围内为零，且与 δd_{fc} 无关。对于 $\delta\alpha \neq 0$，只有一个特殊的 δd_{fc} 值能使多普勒频移与 $\delta\alpha$ 无关地变为零。对于无像差高斯光束，该值对应于反向耦合光比例的最大值（ $\delta d_{\mathrm{fc}} = 0$ μm）。

这里仅评估单条原子轨迹，尽管实验中存在 8–10 毫弧度（半高全宽）的有限原子束发散（见图 5.4）。然而，如图4.18 (A) 所示，在关注范围内，多普勒频移与 $\delta\alpha$ 近似呈线性关系。对于对称原子束，若其经过对准，使得原子平均以相对于正交方向的小偏移角 α_0 （$|\alpha_0| \ll \pi/2$）穿过激光束，则对于每个交叉角为 $\alpha_0 + \delta\tilde{\alpha}$ 的原子，都有另一个原子的交叉角为 $\alpha_0 - \delta\tilde{\alpha}$，其中$\delta\tilde{\alpha}$ 是束流发散角范围内的一个角度。这会使总多普勒频移部分抵消，剩余的残余多普勒频移相当于单条

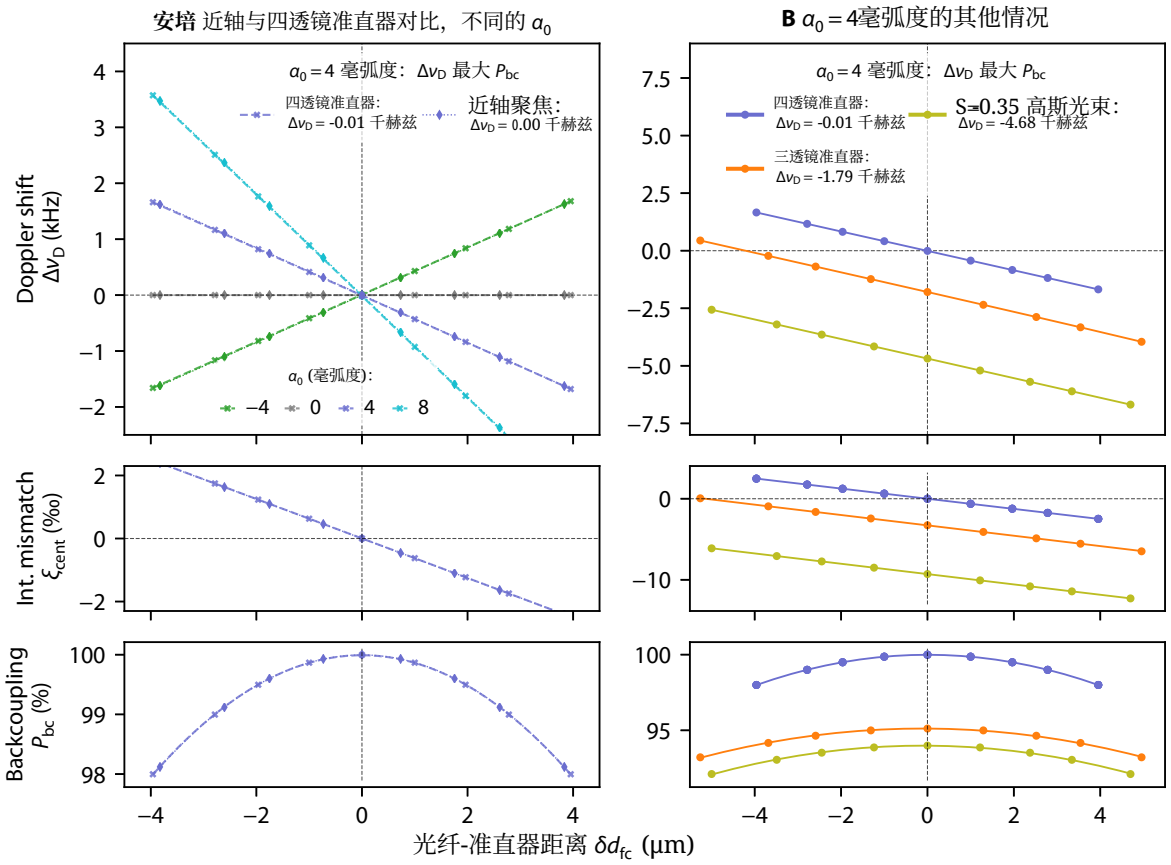


图 4.18：上方图表显示了不同主动式光纤回射器（AFR）配置下，2S-6P跃迁的模拟多普勒频移 $\Delta\nu_D$ 随光纤-准直器距离 δd_{fc}的变化。下方图表显示了强度失配 ξ_{cent} 和反向耦合光比例 P_{bc}，它们也随 δd_{fc}变化。（**A**）不同角度$\delta\alpha$下，无像差近轴准直与四透镜准直器的比较。作为品质因数，在 $\delta\alpha = 4$ 毫弧度（蓝色点和线）下，评估反向耦合达到最大值（$\delta d_{fc} = 0\mu m$）时的多普勒频移。结果表明，四透镜准直器的表现几乎与无像差准直相当，模拟中未观察到明显差异。（**B**） $\delta\alpha = 4$毫弧度下的模拟。四透镜准直器的模拟结果以蓝色显示，作为（A）的参考。三透镜准直器（橙色）以及带球差的高斯光束（绿色）均显示出 $\Delta\nu_D \approx 2$–5 千赫兹的残余多普勒频移，从而限制了AFR的性能。这一残余多普勒频移主要由强度失配 ξ_{cent} 造成；当 δd_{fc} 约为使多普勒频移消失时对应的值时，强度失配也会消失。

角度为 $\delta\alpha = \alpha_0$的轨迹所对应的频移。作为评估 AFR 性能的品质因数，我们评估角位移为 $\delta\alpha = 4$毫弧度时，在反向耦合达到最大值（ δd_{fc}为零）的位置处的多普勒频移；该角位移对应于实验中的典型对准精度（见图4.18 (A) 中的蓝色点和线）。使用高斯光束进行无像差准直时，残余多普勒频移恰好为零。对于以高斯光束作为入射光束的四透镜准直器，我们发现其与无像差高斯光束几乎没有差别，因此 $\Delta\nu_D = -0.01$千赫兹。

图4.18 (B) 展示了 $\delta\alpha = 4$毫弧度下的若干模拟。对于以高斯光束为输入的三透镜准直器（橙色曲线），我们得到 $\Delta\nu_D = -1.79$千赫兹。尽管这一残余多普勒频移仍对应于完整共线频移的抑制因子 $>10^5$，但其数值与此前 2S-4P 结果 $\delta\alpha = 4$ 的不确定度相当。

对于三透镜准直器，计算得到的反向耦合光比例与测量值 94.0(1.2) % 大致一致。根据式 (4.7)，具有 $S \approx -0.35$ 球差的高斯光束（根据图 4.19 测得的光束品质因数得出的近似值）产生 $\Delta\nu_{\mathrm{D}} = -4.68$ 千赫兹（绿色曲线）。我们再次发现，残余多普勒频移主要由强度失配造成；当 δd_{fc} 取相同数值时，强度失配近乎消失。因此，原则上，对于 AFR 中存在像差的光束，可以调整 δd_{fc} ，使多普勒频移归零。然而在实践中，除非该位置对应反向耦合光比例的最大值，否则要可靠地确定并调整这一位置颇具挑战。

有两种效应可能导致 AFR 中出现残余多普勒频移（见第 2.2.4 节）：第一，正向和反向传播光束的波前不匹配；第二，两者的强度不平衡。令人惊讶的是，我们在模拟中发现，对于像差造成的缺陷，第二种效应主导了引起的多普勒频移。若在正向和反向传播光束传播后，在光谱区完全忽略两束光的波前失配，但不忽略强度失配，则模拟结果不会出现显著偏差。因此，尽管像差最初会印入光束的波前，但经过传播后，就其对多普勒频移的影响而言，像差实际上表现为强度失配。对于无像差光束，具有最佳反向耦合比例的光纤-准直器距离（$\delta d_{\mathrm{fc}} = 0\mu\mathrm{m}$），与正向和反向传播光束强度平衡时的距离相同。而存在像差时，这两个距离并不相同，因此在 $\delta d_{\mathrm{fc}} = 0\mu\mathrm{m}$ 处会出现残余多普勒频移，主要由强度不平衡造成。

4.4.3.4 准直器性能测量

我们通过分析图 4.19 所示焦散测量中的强度分布，测量了准直器在 410纳米下的性能。若通过横向强度分布的二阶矩定义具有任意模式分解的光束半径 $W(z)$（按照 ISO标准 [103]，称为“D4σ 方法”），则任意光束半径 $W(z)$均遵循双曲传播定律 [88, 104, 105]，

$$W(z) = W_0 \sqrt{1 + (z - z_0)^2 / z_{\mathrm{R}}^2}, \quad \text{with} \quad z_{\mathrm{R}} = \frac{\pi W_0^2}{M^2 \lambda}, \tag{4.8}$$

其中， z_0 为束腰位置， z_{R} 为瑞利长度， W_0 为束腰处的光束半径（或简称束腰半径）。通过 z_{R} 进入上述公式的因子 M^2 称为光束质量因子。该因子将上述定义的束腰半径 W_0 与具有相同瑞利长度 z_{R} 的高斯光束束腰半径 w_0 通过 $W_0 = M\, w_0$关联起来。如下文所示，此处使用的准直器的 M^2 值非常接近 1，因此在这种特殊情况下， W_0 和 w_0 的值在测量不确定度范围内相同。

对于光束质量因子为 M_0^2 的入射光束，经过具有球面像差（强度为 S ，定义见式 (4.7)）的光学元件后，透射光束的光束质量因子 M^2 会增加一项贡献 M_S^2 ，即 [102]

$$M^2 = \sqrt{\left(M_0^2\right)^2 + \left(M_S^2\right)^2}, \quad \text{with} \quad M_S^2 \approx \sqrt{2} S. \tag{4.9}$$

根据二阶矩定义，采用自收敛宽度因子 [106] 为 $F_s = 3$，确定正交的 x 和 y 横向方向上的光束半径 $W(z)$。

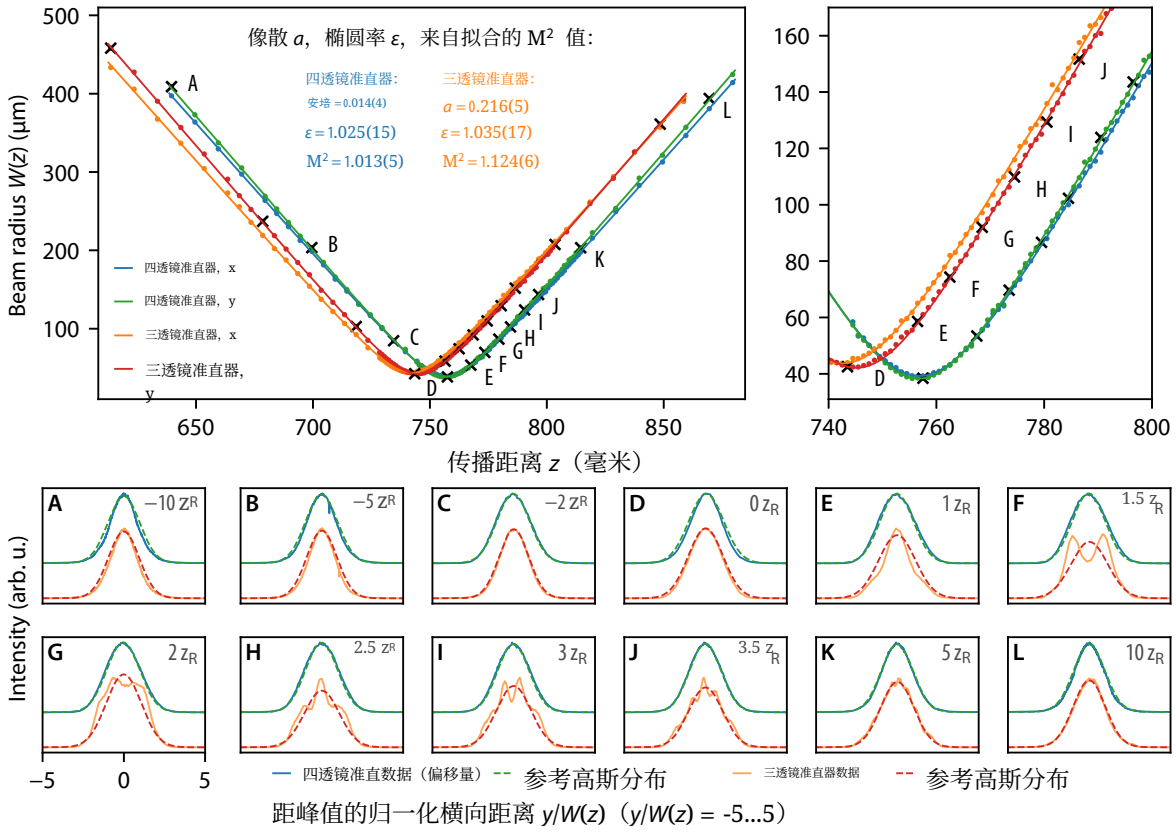


图4.19：410纳米下三透镜准直器和四透镜准直器的焦散测量。**顶部：** 光束半径 $W(z)$是根据 x 和 y 方向上的二阶矩得出的，图中展示了它随传播距离 z 的变化（两个准直器的数据采用不同偏移量），测量位置在 $f = 750$毫米聚焦透镜之后。右侧图详细展示了相同数据中焦点之后最多四个瑞利长度 z_R 范围内的部分；预计球差导致的畸变在此处最为显著。三透镜准直器拟合得到的光束质量值为 $M^2 = 1.124(6)$，这是由球差（$|S| \approx 0.34$）造成的；而四透镜准直器的光束质量 $M^2 = 1.013(5)$不受球差限制，仅受光纤模式分布限制。**底部：** 图中还展示了所选传播距离**A** 至**L** 处（从 $-10\,z_R$ 到 $+10\,z_R$，标注在上方的图中）的归一化强度分布，以及$1/e^2$ 强度半径为 $W(z)$的参考高斯光束。

在 M^2透镜焦点周围的不同位置（$f = 750$mm）测定光束半径，这些位置对应于束腰位置周围从 $-10\,z_R$ 到 $+10\,z_R$ 的传播距离。通过根据公式（4.8）进行拟合，提取出束腰半径$W_{0,\,x}$和$W_{0,\,y}$、束腰位置$z_{0,\,x}$和$z_{0,\,y}$，以及光束质量因子 M_x^2和 M_y^2。这些数值决定了椭圆率 ε、像散 a和组合光束质量因子 M^2，其表达式为

$$\varepsilon = \max\left(\frac{W_{0,x}}{W_{0,y}}, \frac{W_{0,y}}{W_{0,x}}\right), \quad a = \frac{z_{0,x} - z_{0,y}}{(z_{R,x} + z_{R,y})/2}, \quad M^2 = \sqrt{M_x^2\, M_y^2}. \tag{4.10}$$

拟合结果和确定的参数如图 4.19 上半部分所示。测得的椭圆率为百分之几，与保偏光纤产生的略呈椭圆形的光束相符。借助焦散测量进行对准，四透镜准直器的像散降低至 $\alpha = 0.014(4)$；相比之下，三透镜准直器的像散为 $\alpha = 0.216(5)$，其对准则是通过

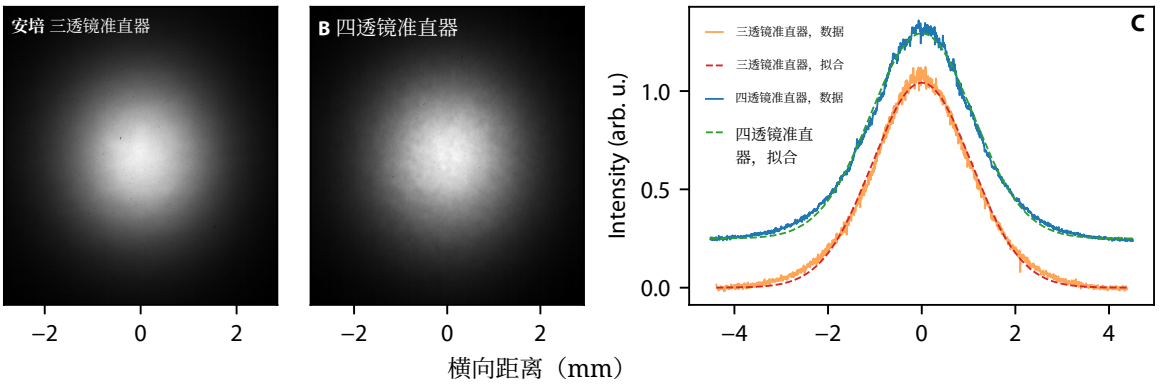


图4.20：主动式光纤回射器光谱区内准直光束的测量光束轮廓（位于准直器后方 12 cm 处）：（**安培**）三透镜准直器，（**B**）四透镜准直器。两个光束轮廓中都能看到微弱的“橘皮”结构，但在四透镜准直器的光束轮廓中更为明显。（**C**）显示了穿过光束轮廓的截面，以及对数据的高斯拟合（四透镜准直器的偏移量）。

将强度分布中观察到的畸变居中来完成的。对于三透镜准直器，我们得到 $M^2 = 1.124(6)$，根据公式 (4.9)，这对应于 $|S| = 0.33(1)$。像差还会表现为 M^2 透镜后焦点附近强度的畸变，见图 4.19 底部，其中展示了顶部标出的选定位置 A 至 L 处的强度分布。对于三透镜准直器，我们观察到了具有球差的光束所呈现的特征性强度分布 [107]。请注意，强度畸变仅出现在焦点之后 z_R 与 $4\,z_\mathrm{R}$ 之间的区域，这表明如果不进行焦散测量，就难以直接从准直光束的强度中观察到像差的表现。对于给定的三透镜准直器设计，在焦散强度分布模拟中，我们发现其凹陷深度更大，强度分布畸变也比实测结果更明显；我们认为这是由于其对单模光纤输入参数高度敏感。对于四透镜准直器，未观察到光束轮廓畸变，这与采用给定透镜设计进行的模拟结果一致；其光束质量因子 $M^2 = 1.013(5)$仅受单模光纤产生的非理想高斯线型限制 [35, 36]。

三透镜和四透镜准直器在光谱区内的准直光束强度分布（对应于准直器后 12 cm 的传播距离）分别如图 4.20 (A) 和 (B) 所示。尽管焦散测量未发现四透镜准直器存在性能缺陷，但两个准直器的准直光束上都观察到微弱的残余“橘皮”结构，且四透镜准直器上的结构更为明显。通过强度分布所作的截面图中几乎观察不到这一结构，如图 4.20 (C) 所示。我们在非球面透镜的光束轮廓中观察到类似但强得多的偏差，这类透镜的中空间频率误差更为明显；在其他一些准直器中也观察到了此类偏差。需要注意的是，这些透镜缺陷会引入相位畸变，可能破坏 AFR 的波前回溯特性。传播后，这些相位畸变会转化为强度畸变，并可能引入残余多普勒频移。因此，确保透镜抛光质量尽可能好、尽量减小中空间频率误差十分重要。在我们的实验中，导致图 4.20 (B) 所示偏差的透镜表面及抛光工艺尚未查明，目前仍在调查中。最终，对于我们的实验，只有速度分辨

光谱测量才能确定多普勒频移的抑制因子。在本学位论文讨论的初步数据分析中，在测量不确定度范围内，我们没有发现残余多普勒频移的证据[1]。

如本节开头所述，反向耦合光比例是衡量准直器性能的一项重要品质因数。与反向耦合比例为 94.0(1.2) % 的三透镜准直器相比，测得四透镜准直器的反向耦合光比例为 99.3(1.2) %。请注意，该数值表示 AFR 中正向和反向传播光束的空间重叠，并已计入从光谱区到反向耦合雪崩光电二极管的光束路径中已知的透射损耗。1.2 % 的不确定度是根据位置相关的光电二极管灵敏度、分束器透射率、光纤衰减，以及光纤耦合透镜、光纤端头和准直透镜的增透膜不确定度的平方和开平方得出的。

4.4.4 反向反射控制与稳频

为了在 AFR 中实现波前复现回射，需要调节光纤与准直器之间的距离（准直距离），使准直光束的平面波前位置落在高反射镜处。此外，高反射镜的水平和垂直（俯仰调节）方向需要调整到适当取向，使正向传播波和反向传播波的波矢彼此反向平行。若两项条件（准直和俯仰-偏转对准）均达到最佳，反向耦合光比例便会最大。

高反射镜俯仰方向的稳频在前期工作 [28] 中有详细描述。简言之，对用于调节高反射镜架俯仰运动的两个压电致动器施加频率不同的微弱信号（产生约 ± 1微弧度的最大角度失准），并用两个锁相放大器检测反向耦合光中的这种调制，可生成两个误差信号，用于俯仰和偏转稳频反馈回路。我们尝试采用更高的调制频率来提高反馈带宽。由于反射镜架的水平和垂直移动相互耦合，且存在机械共振，水平和垂直压电致动器之间会产生串扰。为了找到水平和垂直调制之间串扰最小的频率，我们测量了高反射镜组件相应的传递函数。测量时，我们使用一束辅助激光从高反射镜背面入射，以便在较小的（$\approx 5^\circ$）角度下进行原位测量（此时光电倍增管已移除）；同时，在扫描水平和垂直压电致动器的频率时，使用位置敏感探测器检测反射光。虽然找到了串扰较小的较高调制频率，即 1.52 千赫兹（垂直）和 2.09 千赫兹（水平）（水平误差信号与垂直误差信号的振幅比通常为 10–30%），但由于整个 AFR 装置的可旋转结构在 30 赫兹附近产生较大的机械共振，反馈带宽无法得到提高。

图 4.21 展示了倾斜稳定的性能，其中 (A) 和 (B) 绘出了环内误差信号。根据环内误差信号推得，稳频带宽约为 10 赫兹。然而，在 (C) 所示的反向耦合光频谱中，并未观察到显著的噪声抑制；开启倾斜稳定后，低频处的噪声甚至略有增加。只有在约 30 赫兹的

[1] 2S-6P测量的初步分析（见第6章）得出残余多普勒斜率为$|\kappa| < 3.5$赫兹/(米/秒)，对应于速度为 $v = 200$ 米/秒的原子的 < 700 赫兹多普勒频移。

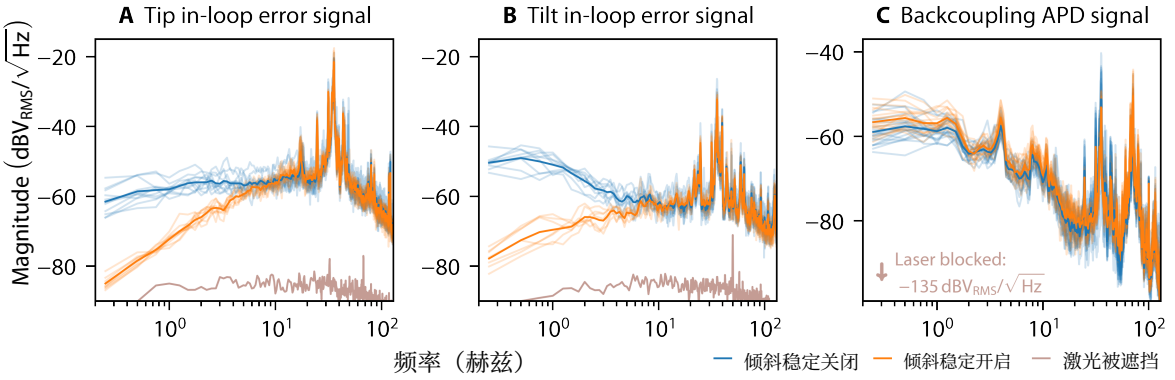


图4.21：主动式光纤回射器的倾斜稳定性能。图中展示了锁相放大器（时间常数为 1 毫秒）产生的水平和垂直（俯仰调节）高反射镜反馈的环内误差信号频谱，分别见（**A**）和（**B**）。反向耦合雪崩光电二极管上的反向耦合光频谱（见图4.15）如（**C**）所示。所有频谱均分别在倾斜稳定开启（橙色曲线）、关闭（蓝色曲线）以及激光被遮挡（灰色曲线）时测得。每条浅色曲线为一次 15 秒平均，分辨率带宽为 0.25 赫兹；粗线则是所有数据的平均值。所有信号在约 30 赫兹处均可观察到较大的共振；根据环内误差信号推断，这使反馈带宽限制在约 10 赫兹。

共振处，反向耦合光的噪声才略有降低。除下文讨论的光纤瑞利散射外，反向耦合光中未观察到噪声抑制，可能是因为两个方向共有的大量噪声无法抑制，这是由于串扰较大所致。虽然我们的装置没有倾斜稳定的环外测量数据来检查这一问题，但在扫描用于控制光纤-准直器距离的压电致动器时，可以在反向耦合光中清楚地观察到倾斜反馈的性能，如下文所述并见图 4.22。同样，在典型的持续一小时的精密光谱测量过程中，倾斜反馈能够维持逆向反射状态。

在之前的装置中， [28] 我们通过遥控电机调整准直距离，并使反向耦合雪崩光电二极管上观测到的信号最大化。采用这一方法，通常可以将反向耦合信号优化到 ≈1%。我们在精密电机上加装压电致动器，改进了距离控制；现在精密电机仅用于预对准。为确定最佳压电电压，我们通常以 1 Hz 的频率扫描施加的电压，持续 30 s，从而对反向耦合雪崩光电二极管上的波动取平均值，见图 4.22。由于光纤的平移并未完全沿轴进行，我们在 (C) 和 (D) 所示的环内误差信号中观察到倾斜失准；在关闭倾斜稳定时（棕色曲线），这导致 (A) 所示的反向耦合光比例大幅下降（3%）。开启倾斜稳定后（蓝色和橙色曲线），在 $\delta d_{\mathrm{fc}} = 0$ µm附近、跨度为 ±1.5µm的范围内，反向耦合光比例下降 ±0.5 %，这与图4.18中的模拟结果一致。根据拟合的虚线确定最佳压电电压，从而将光纤-准直器距离设置在距最佳值约 ±0.2 µm以内，对应于最大反向耦合光比例的 ±0.1 %。在我们的装置中，最佳准直距离仅出现缓慢漂移，约为每小时 0。2 µm（与温度相关），因此通常每隔 1-2 小时调整一次，无需主动稳定。

The 图 4.22 (A) 中观测到的反向耦合光比例调制表明 s

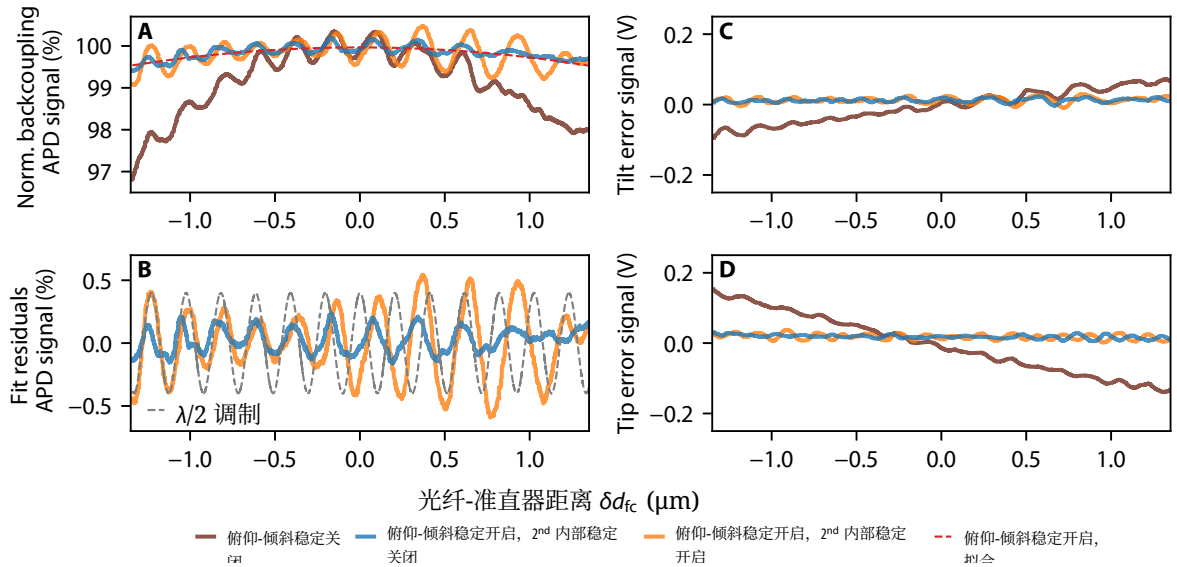


图 4.22：演示使用压电致动器改进光纤—准直器距离控制。所有图均显示以 1 赫兹频率扫描压电致动器电压、在 30 秒平均时间内记录的数据。共同的 x 轴由施加电压和杠杆系数换算为光纤-准直器距离 δd_{fc}，其中零 δd_{fc} 对应于最大反向耦合。在（**A**）中显示了反向耦合光的归一化信号。如果关闭倾斜稳定（棕色曲线），则会观察到明显的倾斜失准，体现在（**C**）和（**D**）所示的倾斜稳定环内误差信号上，导致（A）中整个距离范围内的反向耦合光比例大幅下降 ≈3%。启用倾斜稳定（蓝色和橙色曲线）后，这一下降减小至 ≈0.5%，与图 4.18 中的模拟结果一致。（A）中的虚线表示对开启倾斜稳定时的数据进行的二次拟合。所有信号上都能清楚地观察到调制，这是由光纤内的瑞利散射引起的，并产生了类标准具效应。除了（**B**）中反向耦合比例的拟合残差外，还绘出了预期的 $\lambda/2$ 调制（灰色虚线），这也揭示了压电致动器的非线性。正如预期，与未稳定强度的情况（蓝色曲线）相比，开启 2nd 强度稳定（稳定 HR 镜后的光电倍增管信号）时，调制更强（橙色曲线）。

除了精确控制距离之外，压电致动器还可用于检查 AFR 中是否存在光学标准具。相应的 $\lambda/2$ 调制与拟合残差一同显示在 (B) 中。由于压电致动器在整个范围内存在预期的 ∼20%非线性，因此曲线无法与所有数据完全吻合。为避免多光束干涉，我们仅使用增透膜光学元件，并将所有光电探测器置于较大的角度位置（$\gtrsim 10°$）。光纤端头经角度切割，角度小于 $8°$，并镀有增透膜。经过深入研究，我们发现观测到的调制源自光纤内部的瑞利散射。光纤熔融石英中随机分布的散射点所产生的散射光中，约有10^{-3} 的一小部分沿光纤模式向前和向后传播 [108–110], ，并与高反射镜的强反射发生干涉。正如预期的那样，与关闭稳频时（蓝色曲线）相比，稳频光纤后的强度会导致调制增大（橙色曲线）。由于反向耦合光中瑞利散射引起的波动振幅随光纤长度的平方根增大，因此我们尽可能使用短光纤。关于瑞利散射引起的类标准具效应的详细研究报告

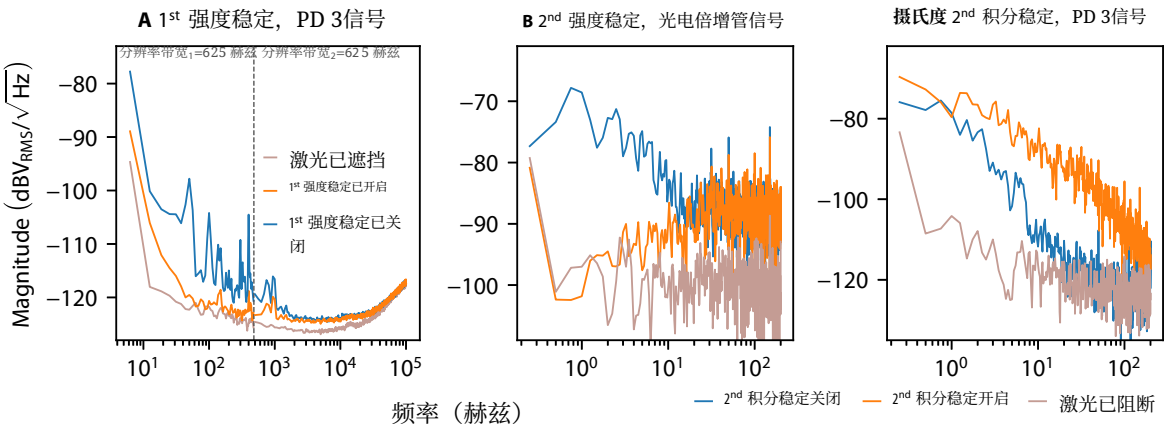


图4.23：PMT和PD 3光电探测器信号的频谱，展示主动式光纤回射器两种强度稳定的性能；分别显示主动稳定开启（橙色曲线）或关闭（蓝色曲线）时的情况，以及背景噪声（灰色曲线）。（**A**）环外PD 3探测器上的频谱，展示对PD 1实施的第一种高带宽（∼30 千赫兹）强度稳定的性能（第二种强度稳定已关闭）。500赫兹以下的频段采用6.25赫兹的分辨率带宽（RBW_1）绘制，较高频率则采用$\mathrm{RBW}_2 = 62.5$ 赫兹。（**B**，**C**）利用高反射镜后的PMT信号对波前回溯光束实施第二种强度稳定（第一种强度稳定已开启）。(B)中的环内光电倍增管频谱显示带宽约为10赫兹，而如(C)所示，PD 3上叠加了额外噪声。

光纤中的散射将作为未来一篇出版物的主题。

4.4.5 强度稳定

由于荧光信号取决于激发激光束的强度，因此在 AFR 中实施强度稳定是有利的。指向波动、偏振漂移、激光系统中的电子噪声或声光调制器效率随频率变化等多种因素，都会在光到达 AFR 光纤之前就引起强度涨落。在先前的装置中，仅对光纤前的光强度进行了稳定 [28]。然而，AFR 中波前回溯光束的强度仍会受到 AFR 光纤耦合效率的影响（该效率易受指向波动影响），也会受到上述瑞利散射产生的频率相关干涉的影响。为了稳定波前回溯光束的强度，我们使用高反射镜后方光电倍增管（PMT）四个象限信号的总和（见图4.15）。由于到达 PMT 的功率很低（70–400 pW），导致散粒噪声较大，因此只能实现低带宽稳定；为抑制其他噪声，仍需要高带宽第一强度稳定（由图4.15中的 PD 1 充当探测器）。我们使用两种不同的电光调制器（图4.15中的 EOM 1 和 EOM 2）作为致动器，并在 EOM2 前设置低通滤波器，以适应较低的反馈带宽。

图4.23通过比较相应稳频开启（橙色曲线）和关闭（蓝色曲线）时的频谱，展示了两种强度稳定的性能。(A)中，环外探测器PD3的频谱显示了第一种强度稳定的（∼30 千赫兹带宽（第二种强度稳定关闭）。第二种强度稳定的环内探测器——光电倍增管信号的频谱

如(B)所示，从蓝色和橙色数据曲线的交汇点可以看出反馈带宽为 ∼10赫兹。第二种强度稳定将稳频信号的噪声从光电倍增管传递到光纤前的光中，这一点可从(C)中PD 3信号的频谱观察到。请注意，光电倍增管信号中的散粒噪声也会被传递，这无法完全避免。在第二种强度稳定中使用拐角频率为80赫兹的低通滤波器后，我们在充分抑制噪声与可接受地增加低频散粒噪声传递之间找到了折中。

扫描原子共振时，在每个扫描点都会切换施加到图4.15中声光调制器上的频率，因此会产生一段短暂的死时间（在我们的实验中，使用信号发生器[1]时为 ∼400µs），此时没有光通过声光调制器。死时间内噪声产生的误差信号会扰动反馈回路。为避免这种情况，我们使用一个由频率切换触发的脉冲发生器，在死时间期间及之后暂停反馈回路，并针对各个反馈回路分别设置暂停时长（ 1st 强度稳定为20 ms， 2nd 强度稳定为22 ms，倾斜稳定为50 ms）。

此外，我们还实现了自动切换光谱激光束功率的功能：在光电二极管的输出端串联接入数字步进衰减器[2] 。这样一来，反馈回路的信号电平便能保持不变，无需修改反馈回路参数。切换功率使我们能够同时进行不同激光功率下的光谱测量，从而研究第3章中讨论的光力频移。

4.4.6 偏振监测器

对于 2S-6P跃迁测量，我们力求使波前回溯光束具有尽可能理想的线偏振。任何残余圆偏振光都会导致一阶塞曼频移，而对于完全线偏振光，该频移会消失（见第 6.2.4.3 节）。此外，原子所在位置处的线偏振旋转角 θ_{L} 会强烈影响量子干涉谱线位移（见第 6.2.3 节）。在 AFR 中实现良好可控偏振的一种方法，是在准直器之后放置一个具有高偏振消光比（PER）的偏振片。然而，这种偏振片可能导致光学标准具、波前畸变和残余强度涨落，并且需要额外空间，而目前我们的装置无法提供该空间。因此，我们选择仅使用特性已得到充分表征的保偏（PM）光纤。

在这里，我们使用斯托克斯形式描述偏振态的演化。在任意位置，偏振态均由斯托克斯矢量 $\boldsymbol{S} = (S_0, S_1, S_2, S_3)$ [111] 给出。特别地，残余圆偏振光所占的比例为 S_3/S_0，其中 S_0 是总强度，S_3 是右旋与左旋圆偏振光之间的强度差。偏振椭圆的取向，即线偏振旋转角 θ，由另外两个斯托克斯参数表示为 $\tan 2\theta = S_2/S_1$。对于完全偏振光（本例即为如此），$S_1^2 + S_2^2 + S_3^2 = S_0^2$，且偏振消光比 PER 与残余圆偏振光所占比例的关系为 $|S_3/S_0| \approx 2\sqrt{1/\text{PER}}$，其中 $\text{PER} \gg 1$。

为了在保偏光纤之后获得较高的偏振消光比，重要的是使用偏振消光比较高的入射光，并使入射光的线偏振旋转角与光纤的保偏轴对准。对于我们的保偏光纤，这种对准的误差必须小于 $1°$。我们通过将 PSPU 中的偏振器（见图4.15）安装在旋转安装架上来实现这一点

[1] Rohde & Schwarz SMC100A.
[2] Mini-Circuits ZX76-31R5A-PPS+.

。此外，我们发现，偏振器之后的耦合透镜、反射镜和分束器可能会因应力诱导双折射而使输入偏振发生畸变。为尽量减小这一影响，我们还将光纤安装在旋转安装架上，并系统地改变偏振器和光纤安装架的取向。将它们调至最佳取向后，偏振方向既与偏振器之后光学元件的应力诱导双折射轴对准（从而尽量减小其双折射造成的影响），也与光纤的保偏轴对准。

通常，对于近紫外波段的保偏光纤，输出偏振的指定偏振消光比（输入偏振经过最佳对准时）约为 20 dB，对应的圆偏振分量为 $|S_3/S_0| < 20\%$。对于我们的保偏光纤，我们发现，光纤连接器处的应力诱导双折射在很大程度上限制了可达到的偏振消光比；而在一批商用连接器光纤样品中，有些光纤的偏振消光比更高，可达 >26dB，对应 $|S_3/S_0| < 10\%$。同样，光纤输出端偏振椭圆取向随时间的波动也低于 $3°$。AFR 中使用了这样一根经过特别筛选的光纤。此外，我们发现，对真空外的光纤部分进行热隔离后，只会在数小时的时间尺度上发生缓慢的偏振漂移。

为了监测 AFR 中的偏振，我们在图4.15所示的 BS 2 前未使用的光束路径中放置了偏振仪[1]，以测量反向耦合光的偏振态 $\boldsymbol{S}_{\mathrm{meas}}$。这使我们能够部分重建准直器之后的偏振态 $\boldsymbol{S}_{\mathrm{atom}}$，从而获知与原子相互作用的光的偏振态。原则上，可以通过测量从高反射镜泄漏的光来获得完整的偏振态，前提是高反射镜对透射偏振态的影响已得到充分表征，并且随时间保持恒定。由于这种方法会进一步增加装置的复杂性，并且需要用真空内偏振仪测量 <100 pW 的激光功率，因此这里没有采用这种方法。

下面总结测得的反向耦合光偏振态 $\boldsymbol{S}_{\mathrm{meas}}$ 与和原子相互作用的光的偏振态 $\boldsymbol{S}_{\mathrm{atom}}$ 之间的关系。光起初具有一个已充分表征的偏振态 $\boldsymbol{S}_{\mathrm{in}}$；在我们的装置中，该位置取在分束器 BS 2和BS 3之间（见图4.15）。随后，光沿正向通过各种光学元件，包括光纤和准直器，形成偏振态 $\boldsymbol{S}_{\mathrm{atom}}$。接着，光在高反射镜处反向反射，并沿反向再次通过相同的元件，在与定义 $\boldsymbol{S}_{\mathrm{in}}$ 的位置相同处形成偏振态 $\boldsymbol{S}_{\mathrm{back}}$。最后，反向耦合光通过其他元件后到达偏振仪，并在那里测量偏振态 $\boldsymbol{S}_{\mathrm{meas}}$。我们将问题分为两部分。首先，研究如何根据 $\boldsymbol{S}_{\mathrm{back}}$ 重构 $\boldsymbol{S}_{\mathrm{atom}}$；这只涉及正向和反向传播路径共有的元件。光纤也属于这部分；在这里，光纤是偏振漂移的主要来源，而偏振漂移主要由实验室的温度波动引起。其次，考察从 $\boldsymbol{S}_{\mathrm{back}}$ 到 $\boldsymbol{S}_{\mathrm{meas}}$ 的偏振演化；这涉及正向和反向传播路径中不共有的元件，而在我们的装置中，这些元件不会受到显著的偏振漂移影响。

任意数量的非偏振元件产生的总双折射效应，可用组合穆勒矩阵 $\boldsymbol{R}(\phi)\,\boldsymbol{\Gamma}(\delta,\beta)$ [112, 113] 描述。$\boldsymbol{R}(\phi)$ 是旋光器（例如具有圆双折射的元件）的穆勒矩阵，其旋转角为 ϕ；$\boldsymbol{\Gamma}(\delta,\beta)$ 是线性延迟器（例如波片）的穆勒矩阵，其相位延迟为 δ，双折射轴的取向角为 β。矩阵 $\boldsymbol{R}(\phi)$ 不会改变圆偏振

[1] Schäfter+Kirchhoff SK010PA-UV。

分量 S_3/S_0，而只会旋转偏振椭圆的取向。请注意，参数 ϕ、δ 和 β 只是描述系统整体偏振行为的有效参数，不一定与各个元件（例如光纤）的圆双折射或线性双折射相关联。

值得注意的是，描述有效圆双折射的参数 ϕ 即使在系统中没有任何物理元件呈现圆双折射时，也可以不为零，例如多个线性延迟器级联时就是如此。在庞加莱球上对此进行可视化，便能轻松理解这一点：波片的作用对应于绕赤道平面内某一轴旋转，而旋光器的作用对应于绕南北轴旋转。两个或多个波片的组合可以描述为一次旋转，但该旋转的轴通常不在赤道平面内。因此，最终的旋转无法用单个波片来描述，必须采用波片与旋光器的组合。

因此，我们可以用穆勒矩阵描述光束在公共光学系统中的前向传播

$$\boldsymbol{F}(\delta,\beta,\phi)=\boldsymbol{R}(\phi)\boldsymbol{\Gamma}(\delta,\beta), \tag{4.11}$$

使得

$$\boldsymbol{S}_{\mathrm{atom}}=\boldsymbol{F}(\delta,\beta,\phi)\boldsymbol{S}_{\mathrm{in}}. \tag{4.12}$$

由于返回路径所用的坐标系不同，公共光学系统不能再用与正向相同的穆勒矩阵描述，而应使用其在返回光束坐标系中的表示。对于线性延迟器，这相当于将取向相对于竖直方向的符号反转，即 $\beta\to-\beta$，而延迟量保持不变。另一方面，对于互易介质，以传播方向为参照时，旋转方向始终相同，因此返回路径中旋光器的穆勒矩阵与正向路径中的相同。因此，光束在系统中前向传播、经逆向反射后再反向通过系统时的组合穆勒矩阵为

$$\boldsymbol{B}(\delta,\beta,\phi)=\boldsymbol{\Gamma}(\delta,-\beta)\boldsymbol{R}(\phi)\boldsymbol{M}\boldsymbol{R}(\phi)\boldsymbol{\Gamma}(\delta,\beta), \tag{4.13}$$

因此

$$\boldsymbol{S}_{\mathrm{back}}=\boldsymbol{B}(\delta,\beta,\phi)\boldsymbol{S}_{\mathrm{in}}. \tag{4.14}$$

此处，$\boldsymbol{M}=\boldsymbol{\Gamma}(\pi,0)$ 是反射镜 $[111]$ 的穆勒矩阵。我们注意到

$$\boldsymbol{R}(\phi)\boldsymbol{M}\boldsymbol{R}(\phi)=\boldsymbol{M}, \tag{4.15}$$

也就是说，无法根据反向耦合光确定前向传播后偏振椭圆的取向，因为它在正向的旋转会在反向时完全逆转。不过，由于椭圆的形状不受影响，前向传播后的圆偏振分量信息仍包含在反向耦合光中。

首先考虑理想的入射水平偏振或线偏振，$(S_2/S_0)_{\rm in} = \pm 1$，$(S_2/S_0)_{\rm in} = (S_3/S_0)_{\rm in} = 0$，并为简便起见，$(S_0)_{\rm in} = 1$。这一选择导致前向传播后的偏振态为

$$\begin{aligned}\boldsymbol{S}_{\rm atom} &= \boldsymbol{F}(\delta,\beta,\phi)\boldsymbol{S}_{\rm in}\\ &= \begin{pmatrix} 1 \\ \pm\cos(2\beta)\cos(2\beta+2\phi) \pm \sin(2\beta)\cos(\delta)\sin(2\beta+2\phi) \\ \pm\cos(2\beta)\sin(2\beta+2\phi) \mp \sin(2\beta)\cos(\delta)\cos(2\beta+2\phi) \\ \pm\sin(2\beta)\sin(\delta) \end{pmatrix},\end{aligned} \tag{4.16}$$

以及回耦偏振态

$$\begin{aligned}\boldsymbol{S}_{\rm back} &= \boldsymbol{B}(\delta,\beta,\phi)\boldsymbol{S}_{\rm in}\\ &= \begin{pmatrix} 1 \\ \pm\sin^2(2\beta)\cos(2\delta) \pm \cos^2(2\beta) \\ \mp\sin(4\beta)\sin^2(\delta) \\ \mp\sin(2\beta)\sin(2\delta) \end{pmatrix}.\end{aligned} \tag{4.17}$$

正如预期，$\boldsymbol{S}_{\rm atom}$的第二和第三个分量描述了前向传播后偏振椭圆的取向 $\theta_{\rm atom} \equiv \theta_{\rm L}$，取决于有效圆双折射旋转角度 ϕ，而 $\boldsymbol{S}_{\rm back}$ 与 ϕ 无关，仅取决于 δ 和 β。因此，无法根据 $\boldsymbol{S}_{\rm back}$ 确定$\theta_{\rm L}$ 。即使在 $\phi = 0$的情况下，通常也无法重建 $\theta_{\rm L}$ ；例如，考虑半波片（$\delta = \pi$）的情况即可看出这一点。

$\boldsymbol{S}_{\rm atom}$的第四个分量（$S_3/S_0$）$_{\rm atom}$描述了圆偏振分量，仅取决于 δ 和 β；给定 $\boldsymbol{S}_{\rm back} =$ ，我们可以求解（S_3/S_0）$_{\rm atom}$ （$\mathbf{1}$，s_1，s_2，s_3）。事实证明，可以通过这种方式确定（S_3/S_0）$_{\rm atom}$ 的绝对值，但无法确定其符号。此外，对于 |（S_3/S_0）$_{\rm atom}$|，存在两个解，分别为

$$|(S_3/S_0)_{\rm atom}|_{\pm} = A_{\pm}|s_3|\sqrt{s_3^4 + s_2^2\left(2 + s_3^2 \pm 2\sqrt{1-s_2^2-s_3^2}\right)}, \tag{4.18}$$

$$\text{with}\quad A_{\pm} = \sqrt{\frac{2s_2^2 + s_3^2 \pm s_3^2\sqrt{1-s_2^2-s_3^2}}{2s_3^2(s_2^2+s_3^2)(4s_2^2+s_3^4)}}. \tag{4.19}$$

我们发现 $|(S_3/S_0)_{\rm atom}|_- \le 1/\sqrt{2}$ 和 $|(S_3/S_0)_{\rm atom}|_+ \ge 1/\sqrt{2}$。如果我们能够约束 $|(S_3/S_0)_{\rm atom}|$的值，例如通过辅助测量，就可以消除$|(S_3/S_0)_{\rm atom}|_+$ 与 $|(S_3/S_0)_{\rm atom}|_-$ 之间的歧义。AFR 就是这种情况，其中$|(S_3/S_0)_{\rm atom}| < 20\%$，因此我们将在下文中对 $|(S_3/S_0)_{\rm atom}|$ 采用解 $|(S_3/S_0)_{\rm atom}|_-$ 。

仅保留 $s_2 \equiv (S_2/S_0)_{\rm back}$ 和 $s_3 \equiv (S_3/S_0)_{\rm back}$的最低阶项后，$|(S_3/S_0)_{\rm atom}|_-$ 可化简为

$$|(S_3/S_0)_{\rm atom}|_- \simeq \frac{1}{2}\sqrt{(S_2/S_0)_{\rm back}^2 + (S_3/S_0)_{\rm back}^2}. \tag{4.20}$$

与 $|(S_3/S_0)_{\rm atom}| < 0.3$ 的完整解相比，这一近似的偏差小于 2 %，与我们的典型测量不确定度相当。假设式 (4.16) 和 (4.17) 中 $|\beta| \ll 1$ ，也可以直接得到同一近似。后一种推导

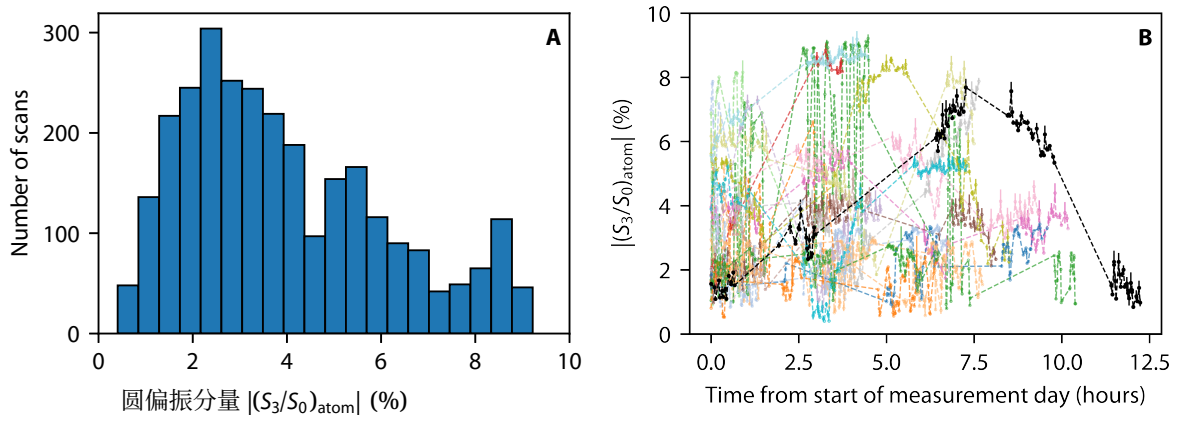


图 4.24：根据对经主动式光纤回射器回耦的光进行偏振测量，推得原子所见光的圆偏振分量 $|(S_3/S_0)_{\mathrm{atom}}|$ 的绝对值。$|(S_3/S_0)_{\mathrm{atom}}|$ 使用公式（4.21）和（4.22）计算。（**A**）汇总 2875 次 2S-6P线扫描（22 个测量日）偏振数据的直方图。 $|(S_3/S_0)_{\mathrm{atom}}|$ 始终小于 10%，对应的偏振消光比 PER 为 > 26 dB。（**B**）各测量日单次线扫描的 $|(S_3/S_0)_{\mathrm{atom}}|$ 随时间变化的情况（浅色线），并突出显示一个示例测量日（199 次光谱线扫描，黑线）。

符合这样一种直观图像：对于给定的、 δ 取任意值的波片，只有在 $\beta \ll 1$ 时，线性输入偏振才会（近似）保持不变。

最后，入射偏振态 $\boldsymbol{S}_{\mathrm{in}}$ 的微小偏差，即少量圆偏振成分 $(S_3/S_0)_{\mathrm{in}} \ll 1$，以及相对于垂直或水平方向的微小旋转 $(S_2/S_0)_{\mathrm{in}} \ll 1$，可以通过以下方式纳入考虑：

$$|(S_3/S_0)_{\mathrm{atom}}| \simeq \frac{1}{2}\sqrt{\left((S_3/S_0)_{\mathrm{back}} - (S_3/S_0)_{\mathrm{in}}\right)^2 + \left((S_2/S_0)_{\mathrm{back}} + (S_2/S_0)_{\mathrm{in}}\right)^2}. \tag{4.21}$$

在我们的装置中，对于垂直（水平）输入偏振，$(S_3/S_0)_{\mathrm{in}} \simeq -0.024 (\simeq 0.012)$ 和 $(S_2/S_0)_{\mathrm{in}} \simeq -0.036 (\simeq 0.039)$。

光学元件（包括非偏振分束器）可能会出现与偏振相关的透射率和反射率，因而起到部分偏振器的作用。对于公共光学系统中的各个组件，我们发现，后者在正交偏振之间的差异仅为 2 %，因此可以忽略不计。如果情况并非如此，那么上述处理就不够充分，系统应改为建模为一个部分偏振器置于两块不同波片之间，并另加一个旋光器 [112]。

现在，我们来考虑反向耦合光在从 $\boldsymbol{S}_{\mathrm{back}}$ 到 $\boldsymbol{S}_{\mathrm{meas}}$的非共路路径上的偏振演化，该过程可由穆勒矩阵 $\boldsymbol{M}_{\mathrm{BS}}$描述，使得

$$\boldsymbol{S}_{\mathrm{back}} = \boldsymbol{M}_{\mathrm{BS}}^{-1}\,\boldsymbol{S}_{\mathrm{meas}}. \tag{4.22}$$

$\boldsymbol{M}_{\mathrm{BS}}$ 通过实验确定，发现其主要取决于分束器 BS2 的特性（见图4.15）。BS2 表现出约 20% 的偏振效应。由于反射回来的光对于垂直偏振和水平偏振分别透过 BS2 或被 BS2 反射，因此发现对于两种输入偏振， $\boldsymbol{M}_{\mathrm{BS}}$ 的值不同。

给定偏振仪之前光学元件的偏振效应特性，方程（4.21）和（4.22）可以通过对反向耦合光进行偏振测量，监测原子所见光中圆偏振部分的绝对值。在一次测试测量中，我们使用放置在高反射镜后方的第二个偏振仪（已移除图4.15中的光电倍增管 PMT），测量准直器后的偏振，并将其与通过同步测量反向耦合光偏振得到的推导结果进行比较，从而验证了该方法。根据斯托克斯参数测量的不确定度（$\sim$1 %），结合确定 M_{BS}时的不确定度，我们估计推导 $|(S_3/S_0)_{\mathrm{atom}}|$ 的绝对准确度为 2%。同一次测试测量还用于确认，在原子所在位置，线偏振旋转角随时间的波动 θ_{L}低于 3°。

在 2S-6P测量的大多数测量日，我们都会持续采集偏振测量数据。图 4.24 展示了原子所见光的圆偏振分量 $|(S_3/S_0)_{\mathrm{atom}}|$的绝对值，该值是根据上述方程对反向耦合光进行偏振测量后推得的。图 4.24 (A) 的直方图展示了 22 个测量日的$|(S_3/S_0)_{\mathrm{atom}}|$ 数值，共包含 2875 次光谱线扫描。$|(S_3/S_0)_{\mathrm{atom}}|$ 始终低于 10%，对应的偏振消光比 PER 为 >26 dB。请注意，$|(S_3/S_0)_{\mathrm{atom}}|$ 的分布呈偏斜状，部分原因是光纤连接器和准直器的应力诱导双折射导致 $(S_3/S_0)_{\mathrm{atom}}$ 出现偏移量。图 4.24 (B) 展示了圆偏振分量随时间的变化，可见其在数小时的时间尺度上缓慢漂移，这归因于实验室中的热涨落。由于对 $|(S_3/S_0)_{\mathrm{atom}}|$进行原位监测，因此在需要时可以筛选出 $|(S_3/S_0)_{\mathrm{atom}}|$ 远低于 10% 的部分线扫描。

4.5 低温原子束

为了在 2S-nP 跃迁的光谱测量中达到所需的准确度，需要使用具有高氢原子通量的低温原子束。这是因为光束中原子的温度 T_{N} 越低，其速度 $v \propto \sqrt{T_{\mathrm{N}}}$就越低，进而减少系统效应，尤其是一阶多普勒效应，其大小与 $\propto v$成正比。高通量是获得足够高的统计量、准确确定谱线中心所必需的。此处采用的温度为 $T_{\mathrm{N}} \approx 5$K，利用相对简单的液氦低温恒温器即可达到。产生这种光束的主要挑战是氢原子（H）复合成能量上更稳定的氢分子。这些氢原子最初由解离器（见第4.5.1节）将分子氢（H_2）解离产生。原子与壁面碰撞时容易发生复合，而在特定温度下，只有某些材料才能使复合可以忽略。另一方面，原子需要从解离器引导至温度为 T_{N} 的冷喷嘴（见第4.5.2节），也就是说，它们要通过与壁面碰撞而移动；随后，原子会再次通过碰撞而热化，然后逸入真空并形成原子束。因此，挑战在于找到一种设计，既尽可能减少复合，又能使原子热化至低温。本实验通过在喷嘴冷壁上积聚固态 H_2 实现这一点。最后，还需对由此产生的原子束进行准直，以限制原子共振的多普勒展宽；这通过可变束流光阑实现（见第4.5.3节）。

4.5.1 氢解离器

实验中探测的氢原子由解离器产生，其中氢分子（H_2）被解离成两个氢原子（H）。氢气 $_2$ 取自气瓶，纯度为 $\geq 99.999\%$。气体经过钯氢气净化器[1]，以进一步提高纯度。

氢解离器本身由一个插入微波（MW）腔中的充满 H_2 的放电管组成。MW 场在管内维持无电极放电，产生等离子体，最终生成氢原子。放电管组件和微波腔的设计与 [114] 中详细介绍的设计非常相似（尤其参见其中的图 2 和图 3）。MW 腔沿放电管延伸约 28毫米，谐振频率为 2.45 GHz。输入 MW 来自一个固态微波发生器[2]。向腔内输送 40 W 的 MW 功率；调整 MW 腔长后，通常在放电运行时不会观察到反射回发生器的功率，放电管老化时除外（见下文）。

放电管内径为 7.25 mm（外径 9.3 mm，长度 250 mm），由单晶蓝宝石（Al_2O_3）制成；与 [114] 中使用的熔融石英相比，其导热性更佳。与 [114], 中使用的放电管不同，蓝宝石管本身没有内置小孔口来限制 H 流入真空室。取而代之的是，在放电管靠近真空室的一端插入一根聚四氟乙烯管，其内径为 5.3 mm，并伸入放电管内 35 mm。聚四氟乙烯管本身带有一个可更换的[3] 孔口，直径为 300 µm、长度为 2.07 mm；根据 [115] 中给出的方程，在温度为 $-20\,$℃ 时，该孔口对 H 的流导为 $6.0\times10^{-6}\,\mathrm{m^3/s}$。孔口距 MW 腔中心 60 mm。放电管在 MW 腔所在位置由氮气冷却，而氮气本身则通过浸在液氮中的管道冷却。放电管后方氮气的温度通常保持在 $-30\circ$C。. . $-10\circ$C，通过调节氮气流量进行控制。

进入放电管的 H_2 流量（ $Q_{\mathrm{H_2}}$）由气体计量阀控制。流量由阀门前的热式质量流量计[4], 测量，读数为体积流量，单位是 ml/min，并以温度 $0\,$℃ 和压力 1013.25 mbar 为参考值。在本研究中，所有以 ml/min 为单位的流量均采用这些参考条件。此外，还使用压力计[5] 在阀门后、放电管前直接监测 H_2 的压力；该压力计通过测量气体的热导率来测定压力（皮拉尼真空计）。通常，放电运行时的流量为$Q_{\mathrm{H_2}} = 0.35\mathrm{ml/min}$，对应于 1.57×10^{17} 分子/s，此时测得的 H_2 压力约为 1.6 mbar。利用 H 的孔口流导并假设

[1]在2019年7月底进行光力频移测量期间，已移除纯化器，因为发现分子氢的纯度很可能受纯化器之后的空气泄漏所限制。[2]SAIREM GMS，最大输出功率为200 W。[3]2019年2月至5月，使用直径为500 µm、长度为3.5 mm的孔口（氢在和∘C下的流导为$1.7\times10^{-5}\,\mathrm{m^3/s}$）。为使用较新的较小孔口获得相同的氢气流，氢气压力提高了约三倍。较小孔口可在不损坏放电管的情况下实现更低的氢气流。[4]Bronkhorst F-111B，针对分子氢进行校准，适用于0.18 ml/min至9 ml/min的体积流量。流量测量的不确定度为读数的 $\pm0.5\,\%$加$\pm0.009\,\mathrm{ml/min}$，即在0.35 ml/min时为3%。[5]Leybold TTR 101 N。压力计读数针对N_2气体进行校准，并根据制造商提供的校准曲线换算为氢气读数。

气体温度为 $-20\,^{\circ}\mathrm{C}$，可计算出该压力下的流量为 0.31 ml/min，与测得的流量相当吻合。

解离器的操作步骤如下：首先向放电管中充入 H_2，，然后开启微波功率并启动放电管冷却，最后在放电管外侧施加高压脉冲以启动放电[1]。放电启动后，压力读数略有下降，这归因于放电管内气体混合物温度升高。与此同时，流量读数保持不变，表明限制流量的冷却孔口温度保持恒定。我们没有尝试测量离开放电区的气体的解离度。不过，在 [114] 的类似设计中，通常能达到约 90% 的解离度[2] α_{dis}；我们有理由认为，本系统的性能也相近。此外，解离度的限制因素很可能是气体向喷嘴的输运。

放电管的输出端伸入真空室。将内径为 6 mm 的聚四氟乙烯管连接到插入放电管的聚四氟乙烯管上，用于将产生的 H 引导至喷嘴。受原子束装置几何结构的影响，输运路径总长为 435 mm，其中包括五处直角弯管（管道后半段可见于图 4.1 左侧，标记为（ **TT** ））。直线段使用市售聚四氟乙烯管，而弯管则由块状聚四氟乙烯加工而成。研究发现，H 在聚四氟乙烯表面上的单次碰撞复合概率，对于商用聚四氟乙烯管而言，范围为 $\gamma_{\mathrm{PTFE}} = 1\times10^{-4}\ldots4.5\times10^{-4}$，见[3] [114]。忽略管道中的弯管并假设为自由分子流，计算得出 H 在管道中输运时的壁面碰撞次数约为 8000 [114]。由于存在弯管，实际碰撞次数肯定更高，但我们没有尝试估算这一修正。根据这一碰撞次数，初始为纯原子氢时，经过管道后的解离度预计在 14% 至 53% 之间。若管道输入端的解离度为$\alpha_{\mathrm{dis}} = 90\%$，则喷嘴处的解离度将进一步降至 $\alpha_{\mathrm{dis}} = 12\,\%$ 至47%。2S-6P测量中观测到的信号表明，实际解离度可能远低于此处估算值；管道中的碰撞次数被低估，很可能是造成这一差异的原因。

虽然可能很想使用连接在腔体上的残余气体分析仪（RGA）来测量 α_{dis}，但这并不容易实现，因为氢原子在到达 RGA 之前必须经历多次壁面碰撞，而每次碰撞都伴随着很高的复合概率（见第 4.2.4 节）。此外，质谱仪还会因较重的含氢化合物解离而始终产生一个与氢原子质量对应的强信号

[1] Electro-Technic Products BD-10ASV 高频发生器，可产生 20 kV. . . 50 kV 脉冲。[2] 本文采用的解离度定义为 $\alpha_{\mathrm{dis}} = N_{\mathrm{H}}/(N_{\mathrm{H}}+2N_{\mathrm{H_2}})$， [114], 中也采用了这一相同定义，其中 N_{H} 和 $N_{\mathrm{H_2}}$ 分别表示氢原子和氢分子的数量。[3] 有趣的是， [114] 在讨论自身结果之前，也引用了 [116]所述的一项实验，并给出了该实验中 γ_{PTFE} 的解离度 2×10^{-5}，其数值低得多。然而， [116] 并未给出单次碰撞复合概率 γ_{PTFE}，而是测量了在室温下的聚四氟乙烯覆盖壁面上发生复合所导致的损失率 $2.1/\mathrm{s}$。要将这一损失率换算为 γ_{PTFE}，就需要估算 [116] 实验中的壁面碰撞频率，但 [116]并未进行这项估算。显然， [114], 进行了这一并不简单的换算，但没有提及，从而得出 $\gamma_{\mathrm{PTFE}} = 2\times10^{-5}$。由于无法追溯这一换算过程，而且以此方法得到的 γ_{PTFE} 远低于 [114], 中测得的数值，因此本文不采用这一结果。另一方面， [114], 测得并在正文中给出的 γ_{PTFE}，是根据经过一根笔直的聚四氟乙烯管后测得的解离度 α_{dis}，并结合对分子在该管中输运时碰撞次数的详细估算得出的。

对应的信号。然而，通过监视与分子氢对应的信号，可以在一定程度上了解解离度。此前，RGA 连接在圆柱形真空腔上，即探测外部真空区域。在这种配置下，启动解离器中的放电且喷嘴处于室温时，观察到分子氢信号下降了 $\approx 6\%$。请注意，对于此次测量，$Q_{\mathrm{H_2}}$ 被设为 ≈ 2.3毫升/分钟，远高于本文所述实验中的使用值。

实验过程中，有时会观察到，无法再通过调节微波谐振腔消除腔体反射的微波功率（同时，放电的紫色辉光明显变暗），而且情况会随着时间推移而恶化，最终导致放电无法再启动。这种现象与放电管的劣化同时出现：微波谐振腔所在位置的内壁上会形成一层金属膜。推测该膜由铝构成，是蓝宝石与原子氢发生反应的产物。金属膜形成的时间间隔与放电运行时间之间并无明确关联。有一次，在放电所用的氢气压力低于此前使用的压力（<1mbar）时，金属膜形成得比平时更快。研究发现，将放电管浸入由 5 % 氢氧化钠和去离子水配制的溶液中，便可迅速去除这层膜。随后，使用超声波清洗器和异丙醇清洗放电管。重新组装放电装置后，让放电运行数小时，以清除残留的溶剂或其他污染物。完成这一流程后，即可继续进行实验。

4.5.2 低温喷嘴

4.5.2.1 喷嘴设计与温度稳频

室温氢原子经聚四氟乙烯管输运后到达低温喷嘴，在形成原子束之前，理想情况下会热化至喷嘴的温度 T_{N}。图4.25所示的喷嘴是一个铜块，其上有一个直径为2.0 mm、长度为8.0 mm的通孔，作为喷嘴通道；另有一个直径为4.0 mm的盲孔，作为输入通道，因此两个通道形成T形结构。采用这种通孔设计是必要的，因为1S-2S制备激光束与原子束共线，因此需要穿过喷嘴通道传播。喷嘴块连接到氦连续流低温恒温器的冷指上[1]。硅二极管温度传感器[2]安装在喷嘴块上，用于测量其温度 T_{N}。在喷嘴与低温恒温器以及喷嘴与温度传感器之间的抛光接触面上涂覆一层薄薄的导热硅脂[3] 。安装时使用黄铜螺钉，因为黄铜是非磁性的，且其热膨胀略高于铜部件。另一个传感器[4] 用于测量低温恒温器冷指内部的温度。

输送放电产生的氢原子的聚四氟乙烯管朝喷嘴入口通道逐渐变细，以便将原子高效地送入喷嘴。聚四氟乙烯间隔件[5] 的壁

[1]ICEoxford ICICLE，在 4.2 开尔文（4.7 开尔文）时的冷却功率为 3.6 瓦（4.6 瓦）。[2]LakeShore DT-670-BO-1.4L，温度读数在 1 开尔文至 10 开尔文之间的准确度为 ± 12 毫开尔文。[3]Apiezon N。[4] LakeShore CX-1030-AA-1.4L 薄膜电阻低温温度传感器。2019年5月28日安装聚四氟乙烯间隔件之前，使用的是聚脲气凝胶间隔件。然而，由于这种间隔件质地柔软，安装喷嘴时很容易被压扁，因此难以在喷嘴与聚四氟乙烯管之间保持受控的小间隙。

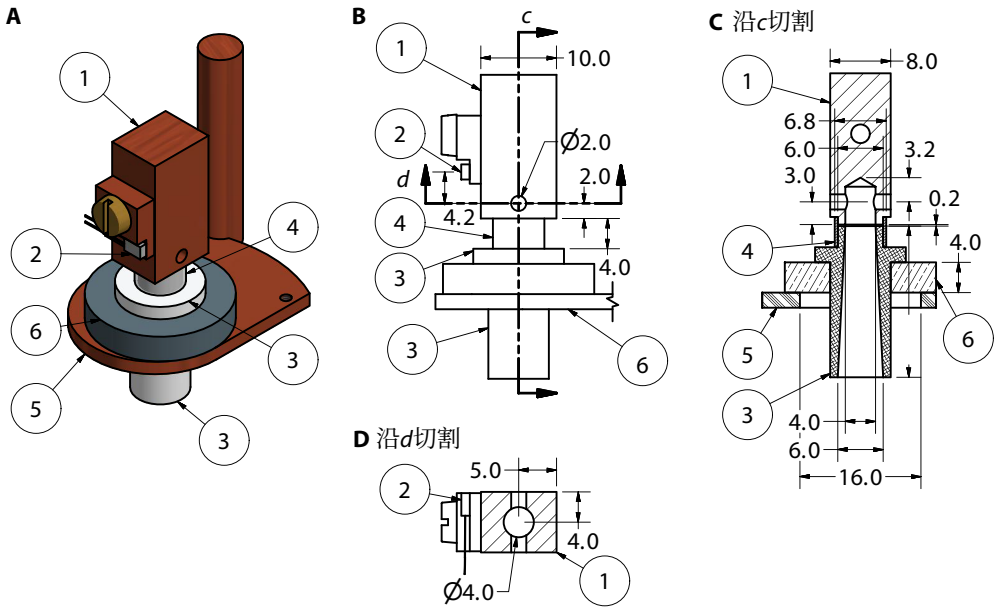


图4.25：氢喷嘴示意图：**(A)** 正投影，**(B)** 从2S-6P光谱区观察到的 x-y平面图，以及沿**(C)**（垂直） y-z平面c 和**(D)**（水平） x-z平面d的剖视图。所有尺寸单位均为 mm。(1) T形喷嘴为一铜块，其上有一个直径为2.0 mm、长度为8.0 mm的通孔，作为喷嘴通道；另有一个直径为4.0 mm的盲孔，作为输入通道。喷嘴块连接至低温恒温器的冷指（未显示喷嘴块和低温恒温器的上部）。(2) 温度传感器连接在喷嘴块上。氢原子经由(3)聚四氟乙烯管流向喷嘴，该管道朝喷嘴入口通道逐渐变细。薄壁(4)聚四氟乙烯间隔件在管道与输入通道之间形成一个小间隙，并降低热传导。管道由(5)铜支架支撑，该支架连接至低温恒温器的热屏蔽罩（未显示支架和热屏蔽罩的上部）。管道与支架之间使用(6)聚脲气凝胶间隔件进行热隔离。PTFE：聚四氟乙烯（特氟龙）。

厚仅为 0.45 mm，在管道与喷嘴的低温输入通道之间形成 0.2 mm 宽的小间隙，同时减少两者之间的热传导。管道由一个连接在低温恒温器热屏蔽罩上的铜支架支撑，管道与支架之间用聚脲气凝胶间隔件[1]进行热隔离。此设计旨在避免聚四氟乙烯管冷却至喷嘴温度；该管另一端靠近解离器，维持在室温，而在喷嘴温度下，聚四氟乙烯上的复合概率会大幅增加 [117, 118]。在较早版本的喷嘴中（用于获取图4.28和图4.30所示数据，但未用于2S-6P测量），聚四氟乙烯管直接连接在喷嘴上，没有使用间隔件。

如下文所述，荧光信号对喷嘴温度 T_{N} 以及温度波动较为敏感，尤其在线扫描期间，应尽可能减小温度波动，以避免在信号中引入过多噪声。为此，利用低温恒温器内部的加热丝作为执行器，对喷嘴温度进行主动稳定[2] 。该反馈回路的带宽受限于控制器每 10赫兹的更新速率，温度每个数据点读取并保存一次，

[1]Aerogel Technologies Airloy X103 M，热导率为 $k = 29$毫瓦/（米·开尔文）。[2]采用 Cryogenic Control Systems (Cryo-con) Model 32B温度控制器及其内置 PID控制器实现。

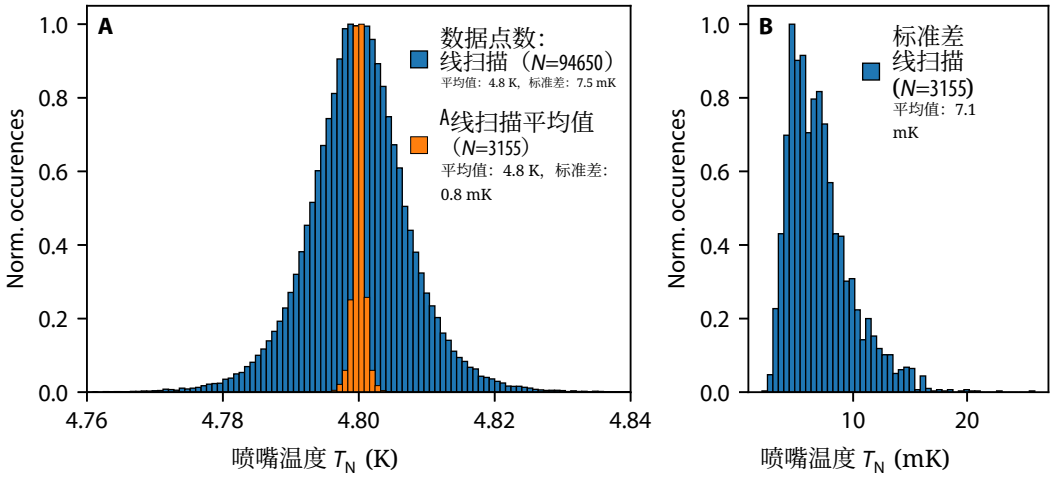


图4.26：2S-6P测量期间喷嘴温度 T_N 的稳定性。（**安培**）测量期间的 3155 次线扫描中 T_N 的直方图（见表6.1）。每次线扫描包含 30 个数据点，平均时间间隔为 2.3 秒；每个数据点读取一次喷嘴温度。T_N稳定在 4.8 K，点与点之间的波动（蓝色柱）标准差（SD）为 7.5 mK。按扫描取平均的喷嘴温度（橙色柱）在不同扫描之间的波动小得多，标准差为 0.8 mK。（**B**）每次线扫描中 T_N 标准差的直方图。详情见正文。

大约每 2 秒一次。图 4.4 显示了典型冻结周期内的喷嘴温度，而图 4.26（A）显示了2S-6P测量的线扫描和数据点对应的喷嘴温度直方图，其中 T_N稳定在 4.8 开尔文。对于后者， T_N 各数据点之间的波动标准差为 7.5 毫开尔文。不同扫描之间扫描平均温度的波动（各扫描至少间隔 ≈1分钟）则要小得多，标准差为 0.8 毫开尔文。因此，可见波动的时间尺度约为数秒，这符合反馈回路的预期。由于冷头和喷嘴的宏观尺寸，时间尺度更短、在此处未被分辨的波动似乎不太可能存在。如图 4.26（B）所示，对每次线扫描期间的 T_N 标准差进行统计得到的直方图表明，各次线扫描的波动相当相似。反馈回路参数的具体选择似乎对波动幅度影响很小，这提示反馈带宽不足以抑制这些波动。不过，通过寻找氦气流量与输送至加热丝的功率之间的适当组合，可以在一定程度上减小波动；较低的流量往往会产生较低的波动。但必须注意，任何时候都应具备足够的冷却功率，即足够的氦气流量，以确保反馈回路能够运行。否则，可能会出现较大的温度尖峰，从而使冻结氢从喷嘴中释放出来，并进一步导致真空室内出现压力尖峰。

有时会发现入口附近的喷嘴上有黄色沉积物。使用工业皂[1]，可以去除这些沉积物，随后用异丙醇清洁喷嘴；这两个步骤都使用了超声波清洗器。一种推测是，这些沉积物是清洁放电管时留下的残留物，相关内容见第4.5.1节。安装新加工的喷嘴时，也采用了相同的清洁流程。喷嘴温度

[1]Edisonite Super。

发现，在经过此类清洁流程后的最初几个冻结循环中，温度会间歇性出现尖峰，这可能是肥皂和溶剂残留物干扰了H_2冻结层的形成所致。

4.5.2.2 原子束中的轨迹分布

对于温度为 T_{N}、与容器壁处于热平衡状态且装有原子氢的封闭容器中的理想气体，原子的速度[1]v 的概率分布$p_{\mathrm{eq}}(v)$由麦克斯韦-玻尔兹曼分布给出： [119]

$$p_{\mathrm{eq}}(v)\,\mathrm{d}v = \left(\frac{m_{\mathrm{H}}}{2\pi k_{\mathrm{B}} T_{\mathrm{N}}}\right)^{3/2} 4\pi v^2 e^{-\frac{m_{\mathrm{H}} v^2}{2k_{\mathrm{B}} T_{\mathrm{N}}}}\,\mathrm{d}v, \tag{4.23}$$

其中， k_{B} 是玻尔兹曼常数，$p_{\mathrm{eq}}(v)\mathrm{d}v$ 表示找到一个原子速度处于 v 至 $v+\mathrm{d}v$区间内的概率。该分布的平均速度为

$$v_{\mathrm{th}} = \sqrt{\frac{8k_{\mathrm{B}} T_{\mathrm{N}}}{\pi m_{\mathrm{H}}}}, \tag{4.24}$$

此处以该值作为热速度的度量。在室温下， v_{th} 为 2482 m/s；而在典型的 $T_{\mathrm{N}} = 4.8$K喷嘴温度下，v_{th} 则降至 318 m/s。

在容器上开设一个小型源孔，即可形成逸出原子束，同时容器内的速度分布保持不变。原子经孔口逸出容器的概率与 v成正比，因此，对信号有贡献的原子的速度分布 $p_{\mathrm{eff}}(v)$与$p_{\mathrm{eq}}(v)$乘以 v [119]成正比，即:

$$p_{\mathrm{eff}}(v)\,\mathrm{d}v \propto v^3 e^{-\frac{m_{\mathrm{H}} v^2}{2k_{\mathrm{B}} T_{\mathrm{N}}}}\,\mathrm{d}v. \tag{4.25}$$

该分布的平均速度为 [119]

$$v_{\mathrm{eff}} = \frac{3}{4}\sqrt{\frac{2\pi k_{\mathrm{B}} T_{\mathrm{N}}}{m_{\mathrm{H}}}}, \tag{4.26}$$

分别对应于室温和 $T_{\mathrm{N}} = 4.8$K 下的 2924m/s 和 374m/s。为区分这两种分布，公式 (4.23) 和公式 (4.25) 有时分别称为体积或数密度分布以及通量分布。

此处使用的喷嘴与理想的逸出束情形仅有些许相似。热化和束流形成依赖于来自解离器的室温原子与喷嘴冷壁以及其他原子和分子之间的碰撞。大多数原子只经过几次碰撞便离开喷嘴；在喷嘴设计使原子仅与冷壁发生几次碰撞时，观测到了符合公式 (4.25) 所描述速度分布的氢低温原子束 [114, 120]。然而， [120] 也发现了偏离公式 (4.25) 的证据，这表明喷嘴内粒子之间的碰撞可能发挥了重要作用。具体而言，他们发现，如果

[1]这里采用速度 v 作为速度矢量 $\boldsymbol{v}$ 大小的通常定义。不过，在指称 v的概率分布时，常常使用“速度分布”而非“速率分布”这一术语。

源孔实际上是通孔的一部分（如同此处的情况），那么相对于光束轴以小角度射出的原子，其速度分布中慢原子的数量少于公式 (4.25) 所预测的数量。这些原子轨迹只能由与其他粒子的碰撞造成，因为它们与壁面之间没有直接视线。室温原子氢束中也观测到了类似的速度分布偏差 [27, 94,121]。

这种由束内粒子之间发生碰撞而造成的较慢原子耗减，有时称为扎卡里亚斯效应；这一名称源于首次尝试建造铯喷泉钟时未能成功，该钟依赖热束中存在这类原子 [122, 123]。在钾和铯的热束中清楚地观察到了这种耗减，并且已证实它是源孔后方紧邻处束内碰撞的结果 [124]。这些碰撞与封闭容器内导致热化的碰撞之间的区别在于，前者可能使原子偏离光束，离开粒子密度较高的区域，因此原子再度碰撞并返回光束的可能性很小。这些原子实际上就从光束中移除了。在此实验中，只探测与光束轴夹角小于 ≈10毫弧度的原子，因此即使很小的偏转也足以使其被移除。碰撞粒子的相对速度越慢，相互作用时间就越长，因而偏转角也越大，导致慢原子更容易被移除 [124, 125]。在喷嘴内部，发生偏转的原子可通过壁面碰撞返回光束。然而，与光束轴夹角较小的快速原子比慢原子更有可能逃出喷嘴，这同样会导致光束低发散度部分的慢原子耗减 [126]。人们曾尝试建立解析描述，以说明这些碰撞对最终速度分布的影响，研究重点包括喷嘴内的碰撞 [126],、源孔后方紧邻处的碰撞 [124], ，以及原子在装置中传播时与残余背景气体粒子的碰撞 [125]。这些模型通常依赖一些在此并非完全合理的简化假设，而且此处的输入参数（例如发生碰撞的粒子组成）也不甚明确。此外，这三种效应很可能都会产生影响。

为了估算碰撞在喷嘴内部及喷嘴出口附近所起作用的重要性，可以将原子的平均自由程 λ_{mfp} 与喷嘴的尺寸进行比较。这里的情况较为复杂，因为氢原子之间的碰撞，以及氢原子与分子之间的碰撞，都被认为十分重要（见下文）。若已知发生碰撞的粒子的碰撞截面 σ ，则可通过关系式$\lambda_{\mathrm{mfp}} = 1/(\sqrt{2}\sigma n)$计算 λ_{mfp} ，其中 n 是碰撞伙伴的数密度 [119]。对于热气体，通常给出的是黏度 η ，而非 σ ；二者通过 $\sigma = (1/\eta)\sqrt{m k_{\mathrm{B}} T/\pi}$相关，其中 m 和 T 分别是气体的粒子质量和温度 [127]。文献 [128],计算了温度为 $T = 5\,\mathrm{K}$时氢原子气体的黏度，结果为 $0.365\ \mathrm{Pa\,s}$，对应[1] $\sigma = 5.2 \times 10^{-19}\,\mathrm{m}^2$。作者尚未发现关于低温下 H 和 $\mathrm{H_2}$ 混合物的 η 计算，但 [129] 发现，在 100 K 至室温范围内，这种混合物的 η 比 H 气体的 η 最多高出 50%。作为估算，此处也将 H 的碰撞截面用于 H–$\mathrm{H_2}$ 碰撞。对于实验中喷嘴内的典型压力 $3.6 \times 10^{-5}\,\mathrm{mbar}$（见下文），粒子密度为$n = 5.4 \times 10^{19}/\mathrm{m}^3$,，平均自由程为 $\lambda_{\mathrm{mfp}} = 25\ \mathrm{mm}$。因此， λ_{mfp}约为三倍

[1]因此，该截面比有时采用的粗略估算值 $\sigma \approx \pi a_0^2 = 8.8 \times 10^{-21}\,\mathrm{m}^2$，大近两个数量级，其中 a_0 是玻尔半径。

喷嘴通道长度 $l = 8\text{mm}$，二者之比称为克努森数 $Kn = \lambda_{\text{mfp}}/l \approx 3.1$ [126]。在 [126], 的模型中，发现当 Kn 低于 10 时，速度分布开始发生变化。作为比较，估计上述室温氢束 [94] 在喷嘴内部的 Kn 为 0.01。

无论如何，在此讨论的实验中可以清楚地观察到慢原子耗减：随着延迟时间 τ 增加、原子平均速度 $\bar{v}$ 降低，2S-6P共振的振幅下降速度比逸出束情况下的预期更快。此外，随着进入系统的氢流量增大，耗减也会加剧；由于气体负载更高，喷嘴内、光束内以及真空室内的粒子密度都会增大（见第4.5.2.4节）。由于粒子密度大致随喷嘴距离的平方反比而下降，因此，相较于原子传播至2S-6P光谱区的过程中，碰撞更可能发生在喷嘴内部或刚离开喷嘴之后。值得注意的是，在冻结周期中，随着冻结导致喷嘴内的体积缩小，耗减程度通常会增大，这表明该区域内的碰撞是造成耗减的主要原因。然而，在远离喷嘴处探测到的荧光信号背景计数也会随着流量增大而显著增加，而且只有在产生2S原子时才会出现。这表明，束内碰撞以及与真空室内残余气体的碰撞会将2S原子撞出光束，从而形成背景。因此，在描述该实验时，必须认为喷嘴附近以及原子传播至光谱区过程中发生的碰撞都十分重要。

此处采用慢原子耗减的唯象模型。为此，将公式 (4.25)乘以一个指数抑制项，得到

$$p(v)\,\mathrm{d}v \propto v^3 e^{-\frac{m_{\mathrm{H}} v^2}{2k_{\mathrm{B}} T_{\mathrm{N}}}} e^{-\frac{v_{\text{cutoff}}}{v}}\,\mathrm{d}v. \tag{4.27}$$

截止速度 v_{cutoff} 是低于该特征速度的原子会从光束中移除的速度，并将其作为可调参数处理。这种方法的依据是 [124], 的解析结果，其中发现，束内碰撞导致的慢原子耗减大致具有这种函数形式（见 [124] 的公式 (8) 和图13）。通过将共振振幅随延迟时间 τ 的观测行为与使用公式 (4.27)进行模拟所得的预测相匹配，可根据光谱数据确定该参数。对于2S-6P测量，v_{cutoff} 的范围为 $-3\,\mathrm{m/s}$ 至 $112\,\mathrm{m/s}$（见图6.1）。 [27, 121] 也采用了类似的方法。

为了对原子束以及实验进行建模，需要的不是速度分布，而是从喷嘴中逸出的原子的联合空间、角度和速度分布，本文将其称为原子轨迹分布。对于通过源孔逸出的逸出束，如果原子离开容器时不发生碰撞，则光束中原子的角度 θ （相对于孔口所在平面的法线测量）的分布 $p(\theta)\mathrm{d}\Omega$ 为 [119]

$$p(\theta)\,\mathrm{d}\Omega \propto \cos\theta\,\mathrm{d}\Omega, \tag{4.28}$$

其中，Ω 为立体角，$\mathrm{d}\Omega = 2\pi \sin\theta\,\mathrm{d}\theta$ 是球坐标系中单位球面的面积元。公式（4.28）通常称为余弦定律，在光学中也称为朗伯余弦定律；其中的 $\cos\theta$ 因子会使原本各向同性的发射在法线方向上出现峰化

孔口[1]。原子穿过孔口时若发生碰撞，这种分布会发生变化；对于喷嘴通道，预计光束会出现峰化 [114]。然而，这些描述仍依赖于尚未充分确定的参数，而且此处并不适用最常用的长通道近似，即通道长度远大于其半径的情况。无论如何，由于几何约束，只有以 $\theta \leq 10.4$ mrad 角度飞行的原子才能到达光谱区（可变光阑的典型宽度为 1.2 mm）。在这一尺度下，喷嘴通道造成的束流峰化不会以显著方式改变角分布的形状[2]。

然而，对原子轨迹分布可能有大得多的影响的是：角度小于 $\theta = 2.5$毫弧度的轨迹只能由与其他粒子的碰撞产生，因为从这些轨迹上看不到喷嘴壁面。因此，如果这类碰撞产生的轨迹远少于壁面碰撞产生的轨迹，那么光谱区的原子束实际上或许最适合描述为空心管[3]。因此，准确模拟喷嘴内部及光束中的条件和碰撞具有重要意义。虽然已经开展了一些初步研究，但这超出了本学位论文的范围，之后将在2S-6P测量的最终分析中重新探讨。对于此处给出的分析，假设发射与空间无关，其角度分布和速率分布分别由公式（4.28）和公式（4.27）给出。

到目前为止，讨论尚未涉及从喷嘴射出的基态（1S态）原子向亚稳态2S能级的激发。然而，在对实验的描述中，最终需要知道2S原子的分布，因为只有这些原子会在2S-nP跃迁的光谱学测量中受到探测。原子飞过1S-2S制备激光器的激光束时会发生激发，此时原子处于2S能级的概率本身取决于其具体轨迹，例如，有些原子大部分时间都处于激光束内，而另一些原子只是短暂地穿过光束。我们使用蒙特卡罗模拟来模拟2S原子的轨迹分布，具体内容详见第5.2节。

4.5.2.3 氢的复合、冻结与离解度

在形成原子束之前，原子只会与低温喷嘴壁发生少数几次碰撞。然而，对于包括聚四氟乙烯、铜和铝在内的大多数材料，低于 60K 后，复合概率会显著增加，并且每次碰撞最高可达 20% [117]。

[1]余弦定律的出现可以这样解释：容器内没有优先方向，而且每一种位置与方向的组合出现的可能性都相同。对于每一种能够穿过孔口的位置和方向（即与壁面或其他粒子最后一次碰撞后形成的轨迹），逸出的概率正比于 v。然而，孔口的有效尺寸正比于 $\cos\theta$，其中 θ 是方向与孔口法线之间的角度。因此，在孔口外找到角度为 θ 的轨迹的概率正比于 $\cos\theta$。[2]不过，到达光谱区的原子比例会受到角分布的显著影响。例如，与各向同性发射相比，余弦定律会使轴向原子通量增加一倍。因此，尝试估算光谱区内被探测的原子数量时，会产生很大的不确定度。[3]请注意，这并不意味着没有原子以小于 $\delta\alpha = 2.5$ 毫弧度的角度穿过 2S-6P 光谱激光束与光束轴之间的区域，因为 $\delta\alpha$ 是原子束轴上的角度 θ 在激光束轴上的投影。对于典型原子速度 $v_{\mathrm{typ}} = 200\,\mathrm{m/s}$，一条以 $\delta\alpha = 2.5$ 毫弧度角度穿过 2S-6P 光谱激光束的轨迹会产生 $\Delta\nu_{\mathrm{D}} \approx 1.2$ 兆赫兹的多普勒频移（见第 2.2.3 节）。这相当于2S-6P跃迁自然线宽的 $\approx 30\,\%$。因此，这种空心原子束形成的线型可能不会与均匀束流的情况明显不同。

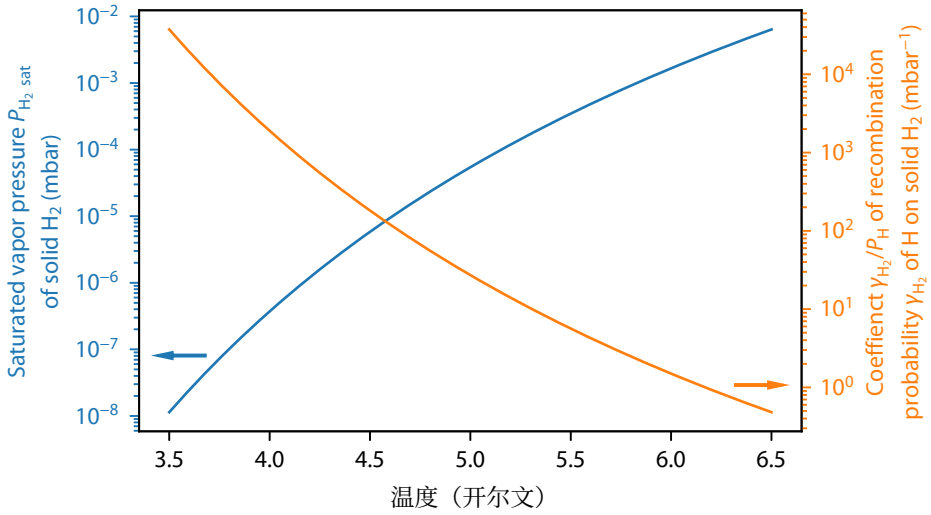


图4.27：固态氢的饱和蒸气压$P_{H_2,\ sat}$（蓝线，左侧刻度）以及每次氢原子与固态氢$_2$碰撞时的复合概率γ_{H_2}随温度的变化。γ_{H_2}通过将γ_{H_2}/P_H（橙色曲线，右侧刻度）与氢的分压相乘得到，P_H；根据此处讨论的实验条件，估计喷嘴内该分压为 4.8×10^{-6}毫巴。在这一分压和4.8开尔文的温度下，$P_{H_2,\ sat} = 2.3 \times 10^{-5}$毫巴，$\gamma_{H_2}/P_H = 56$毫巴$^{-1}$，以及 $\gamma_{H_2} = 2.7 \times 10^{-4}$。相关测量取自 [114, 130, 131]，详情见正文。

因此，即使只有少数几次碰撞，也会导致解离度大幅降低 α_{dis}。另一方面，与固态 H_2，发生碰撞时的复合概率虽然也会随着温度降低而显著增加，但在该温度范围内可能低得多（见图4.27中的橙色曲线）。因此，用固态 H_2，覆盖喷嘴内部是有利的，这意味着喷嘴内 H_2 的分压不得低于固态 H_2的饱和蒸气压。由于蒸气压会随温度显著升高（见图4.27中的蓝色曲线），如果要使喷嘴内和真空系统中的压力保持在合理范围内，温度范围就受到限制，必须低于约 6 K。温度更低则更有利，因为如上文所述，喷嘴内较高的压力也会扰乱原子束的速度分布。以这种方式在喷嘴上冻结的 H_2 也基本上会从原子束和真空室中被移除；否则，它可能导致碰撞，使原子从束流中脱离，并造成观测到的共振发生压力频移。然而，这种冻结也会导致喷嘴随着时间推移而堵塞，因为越来越多的固态 H_2 不断积累。因此，必须在喷嘴壁上实现足够的 H_2，覆盖、喷嘴冻结所需的时间[1]，以及复合概率之间找到平衡。在此处，我们通过实验确定氢气进入系统的合适喷嘴温度 T_N 和流量 Q_{H_2} 组合来实现这一点，其中α_{dis} 在喷嘴处由聚四氟乙烯管的特性决定。对于 2S-6P测量，采用了 $T_N = 4.8$K 和 $Q_{H_2} = 0.35$ ml/min 的组合。

氢原子吸附在覆有 H_2 的表面上，吸附能为 38K [131]。人们认为，吸附的原子可在表面上移动，并能与其他吸附原子复合成 H_2。由于吸附原子的数量与原子的体积密度成正比 n_H，

[1]如果喷嘴处的 α_{dis} 足够高，以致几乎没有氢$_2$ 能够冻结沉积，也可以先关闭放电，再用氢$_2$ 覆盖喷嘴壁。随后启动放电，复合概率和氢$_2$ 的增长都会降低。

与覆有 H_2 的壁面碰撞时的复合概率γ_{H_2} 与 n_H 成正比，即 $\gamma_{H_2} = (4/v_{th})K_{S2}n_H$ [114]，其中 v_{th} 是原子的热速度，如式（4.24）所示。对 [131] 的测量 $K_{S2} = 8.5 \times 10^{-28}$ 得到 $m^4K^{1/2}s^{-1}$，从而在温度为 4.8 K 时，$\gamma_{H_2} = n_H \times (3.7 \times 10^{-23}\,m^3)$ 为 $= P_H \times$ （$56\,mbar^{-1}$），其中 P_H 是氢的分压。由此得到的 γ_{H_2}/P_H 随温度的变化如图4.27中的橙色曲线所示。

固态 H 的饱和蒸气压$P_{H_2,\,sat}$ 在 3.5 K 到 6.5 K 之间从 1×10^{-8}mbar 增加到 6×10^{-3} mbar [130]（见图 4.27 中的蓝线）。在温度为 T_N =4.8 K 时，$P_{H_2,\,sat} = 2.3 \times 10^{-5}$ mbar，高于外部真空区域中的典型压力 $P_{OV} = 5.5 \times 10^{-6}$ mbar（见第4.2.10节），喷嘴就位于该区域中。然而，由于氢持续流入，喷嘴内部的压力更高。事实上，实验中观察到了喷嘴内氢气冻结的现象，这成为测量时间的主要限制因素，因为冻结的氢会阻挡 1S-2S 制备激光束。

喷嘴内部的气体动力学相当复杂，因为 H_2 会在喷嘴壁面上冻结并升华，而氢原子吸附于 H_2-涂层壁面并发生复合，这取决于局部 H 和 H_2的密度，同时也会改变该密度。此外，在聚四氟乙烯管道之后或喷嘴之后，都无法直接测量 α_{dis} 解离度。然而，仍可对气体动力学进行一些粗略估算。氢分子以典型流量 $Q_{H_2} = 0.35$ml/min 流入解离器，相当于每秒 1.57×10^{17}个分子，详见第4.5.1节。使用有限元模拟[1]，并忽略 H_2 在壁面上的吸附以及 H 的复合，可以得到喷嘴入口处不同解离度 α_{dis} 下喷嘴内部 H 和 H_2 的分压。请注意，在模拟中，H_2 的分压可能高于固相蒸气压，而平衡态下并不会出现这种情况。这里将其解释为 H_2 将发生冻结的迹象。对于 $T_N = 4.8$ K 以及 $\alpha_{dis} = 50$%、25 %、10 %，喷嘴中心处 H 和 H_2, 的分压分别为 $P_H = 2.4 \times 10^{-5}$ mbar、 1.2×10^{-5}mbar、 4.8×10^{-6} mbar 和 $P_{H_2} = 1.7 \times 10^{-5}$ mbar、 2.6×10^{-5} mbar、 3.1×10^{-5}mbar。对于这些 H 分压，相应的每次碰撞复合概率为$\gamma_{H_2} = 1.3 \times 10^{-3}$、 6.7×10^{-4}、 2.7×10^{-4}，至少比同温度下聚四氟乙烯、铜或铝的复合概率低一个数量级 [117]。然而，在较低温度下，γ_{H_2} 会迅速增加，在 $T_N = 3.7$K 和 $P_H = 4.8 \times 10^{-6}$ mbar 时达到 5×10^{-2}。在 $T_N = 4.8$K、$Q_{H_2} = 0.35$ ml/min 和 $\alpha_{dis} \lesssim 25$% 条件下， P_{H_2}因此略高于 $P_{H_2sat} = 2.3 \times 10^{-5}$ mbar，从而允许形成固态 H_2。然而，由于 P_{H_2}、 P_{H_2}、$_{sat}$和 P_H 的量级都相近，原子束至少部分不仅由 H 组成，还包含 H_2。

通过粒子追踪模拟[2], 估算离开喷嘴的粒子的冷壁碰撞次数：假设粒子从喷嘴入口下方28毫米处、聚四氟乙烯管道内部释放，且该处温度足够高，不会形成固态H_2。忽略粒子之间的碰撞。由此得到两种分布：第一种是冷壁碰撞总次数 N_{recomb}，与复合动力学相关；第二种是最后一次聚四氟乙烯（热）壁面碰撞之后的冷壁碰撞次数 N_{th}，与热化动力学相关。两种分布都呈现陡峭的初始上升，并带有较长的指数尾部。 N_{recomb} 的模式为7，平均值为26次碰撞；95%的粒子在碰撞次数少于75次时离开喷嘴。 N_{th} 的模式为3，平均值为7次碰撞，

[1]有限元法，使用商业模拟软件 COMSOL 的自由分子流模块实现。[2]使用 COMSOL 的数学粒子追踪模块实现。在粒子之间添加碰撞不会显著改变结果。

其中95%的粒子经历的碰撞次数少于19次，91%的粒子经历的碰撞次数多于1次。由于H会吸附到H_2, 上，因此可以合理地认为，单次冷壁碰撞就足以使H热化至壁温；粒子离开T形喷嘴则至少需要发生一次碰撞。

采用 26 次低温碰撞的平均值以及上文给出的数值，解离度仅略微降低至喷嘴入口处水平的 97 % ... 99 %。因此，与氢在聚四氟乙烯管道中输运期间发生的复合相比，氢在喷嘴内壁（覆有氢$_2$）上的复合作用很小。由此，第4.2.10节中发现的结果——在 $T_{\mathrm{N}} = 4.8$K 时，流入外部真空区域的氢气流量仅为其在 $T_{\mathrm{N}} = 30$K 时数值的$Q_{\mathrm{cold}}/Q_{\mathrm{warm}} = 1/3$ ——可解释为喷嘴入口处 α_{dis} 的上限。这是因为，在良好近似下，喷嘴内不会形成新的氢$_2$ ，所有未离开喷嘴的氢都必须以氢$_2$的形式冻结沉积在其壁面上。如上文所述，由于仍有部分氢$_2$ 离开喷嘴，α_{dis} 的实际值可能低得多。

根据这些粗略估算（包括第4.5.1节中的估算），假设喷嘴入口处的解离度仅约为 $\alpha_{\mathrm{dis}} =$ 10 % 并非不合理。结合观测到的流量减少 $Q_{\mathrm{cold}}/Q_{\mathrm{warm}}$，冷喷嘴（$T_{\mathrm{N}} = 4.8$K）之后的结果为[1] $\alpha_{\mathrm{dis}} = 30$%。换言之，每个离开喷嘴的氢原子，平均还会同时释放 1.17 个氢$_2$ 分子；只有 3.13×10^{16}个原子/s 离开喷嘴，而 1.57×10^{17}个分子/s 则流入解离器。请注意，喷嘴有两个孔口，离开喷嘴的粒子中只有一半朝向 2S-6P 光谱区，因此与这里的实验有关；另一半则撞击 243 nm增强腔的输入耦合镜。也就是说，估计每秒沿光谱区方向离开喷嘴的原子和分子数量分别为$N'_{1\,\mathrm{S}} = 1.6 \times 10^{16}$ 个原子/s 和 $N'_{\mathrm{H_2}} = 1.8 \times 10^{16}$ 个分子/s。

与此同时， 1.04×10^{17}分子/在喷嘴上冻结沉积，对应固态氢[2] 的生长速率为 14.1 mm^3/h。这个体积足以在两小时后用一层约 0.3 mm 厚的固态氢覆盖喷嘴整个内部，使喷嘴通道的直径缩小至 1.4 mm。两小时是指 1S-2S 制备激光束穿过喷嘴时的损耗变得过大、实验无法继续，且需要通过加热喷嘴移除固态氢所需的时间。然而，要产生这些损耗，直径需要缩小 ≈ 1.0mm（见第4.3.3.7节）。事实上，这一缩小幅度与图4.33所示喷嘴成像中观察到的实际值接近；朴素预期与观测到的缩小幅度之间的差异，归因于喷嘴内部的不均匀冻结，详见第4.5.2.5节。

4.5.2.4 喷嘴温度和氢气流量对原子束的影响 m

为研究喷嘴温度 T_{N} 和氢气流量 $Q_{\mathrm{H_2}}$ 对原子束特性的影响，我们进行了测试测量：改变这两个参数，同时记录 2S-6P跃迁的线扫描。将顶部探测器的时间分辨计数率组合起来，其中 $N_{\text{on-res}}$对应光谱激光器处于共振时的情况， $N_{\text{off-res}}$对应激光相对于共振失谐 50 兆赫兹、几乎不发生激发时的情况，从而得到

[1]当喷嘴入口处的解离度为 α_{dis} ，且冷喷嘴（部分 H_2 会冻结析出，但 H 的复合可忽略）与暖喷嘴（没有 H_2 冻结析出）的流量之比为 $Q_{\mathrm{cold}}/Q_{\mathrm{warm}}$ 时，喷嘴后的解离度为 $\alpha_{\mathrm{dis}}/(Q_{\mathrm{cold}}/Q_{\mathrm{warm}})$ 。[2]在 4.8 K 温度下，固态氢的密度为 0.089 g/cm^3 [130]。

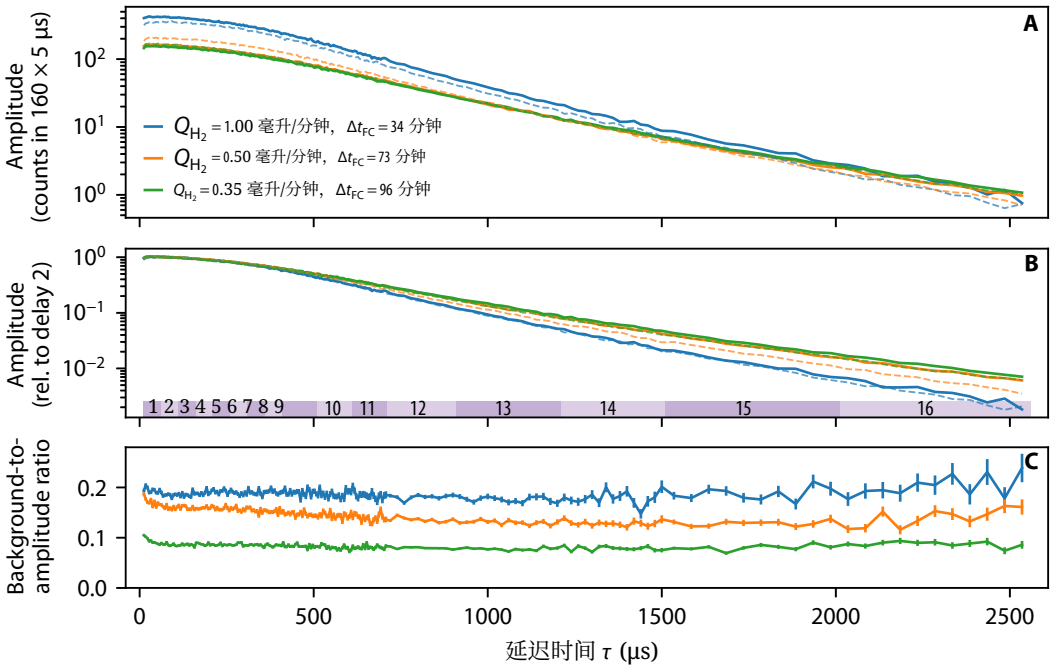


图 4.28：在氢解离器中通入不同流量 Q_{H_2} 的 H_2 时，顶部探测器检测到的时间分辨荧光计数平均值。喷嘴温度保持在$T_N = 4.6$ K，略低于典型的 4.8 K；与精密测量中采用的设计不同，聚四氟乙烯进气管直接连接到喷嘴上，中间没有间隔件。每种流量下，数据记录一个冻结周期（FC），该周期在 Δt_{FC} 后因喷嘴冻结而结束。**(A)** 2S-6P 振幅 $N_{on\text{-}res} - N_{off\text{-}res}$，其中 $N_{on\text{-}res}$ 和 $N_{off\text{-}res}$ 分别为光谱激光器共振和失谐时的计数。计数按延迟时间 τ分入时长为 5 μs 的分箱，对 160个斩波器周期求和，并分别对 FC 前半段（实线）和后半段（虚线）取平均。**(B)** 与 (A) 相同的数据，但振幅归一化为延迟 2 的平均值。紫色阴影区域表示分析中使用的延迟 1–16 的持续时间（见表 5.1）。**(C)** 在整个 FC 内取平均的背景与幅度之比 $N_{off\text{-}res}/(N_{on\text{-}res} - N_{off\text{-}res})$。此外，为降低噪声水平，对延迟 13 至 15 的数据按 4 个分箱取平均，对延迟 16 的数据按 10 个分箱取平均。2S-6P 光谱激光器和 1S-2S 制备激光器的功率分别为 $P_{2S\text{-}6P} = 30$微瓦和 $P_{1S\text{-}2S} = 0.85$ 瓦。

振幅 $N_{on\text{-}res} - N_{off\text{-}res}$和背景与幅度之比（BAR） $N_{off\text{-}res}/(N_{on\text{-}res} - N_{off\text{-}res})$。这一过程模拟了通过拟合线型来分析 2S-6P共振的做法（见图 5.1），但时间分辨率更高。图4.28展示了首次测试测量的结果：一天内依次采集了三个冻结周期（FC），其中 Q_{H_2} 分别设为 1.00 毫升/分钟、0.50 毫升/分钟和 0.35 毫升/分钟，同时将 $T_N = 4.6$ 开尔文保持恒定。与 2S-6P 测量时的做法相同，在第二个和第三个冻结周期之间，将喷嘴加热至室温，以去除冻结的痕量气体。不过，在第一个和第二个冻结周期之间，喷嘴仅加热至 ≈35开尔文，与此前 2S-4P测量中的做法相同（见附录A）；这种做法可以去除冻结的氢，但不一定能去除真空系统中存在的其他痕量气体。冻结周期期间，外部真空区域的残余压力主要由 H_2 决定；当 Q_{H_2}取三个不同值时，测得的压力分别为 P_{OV} =1.1×10^{-5} 毫巴 6.2×10^{-6} 毫巴 4.8×10^{-6}。

Ass再次假设喷嘴入口处为 $\alpha_{dis} = 10\%$，并使用有限元模拟 n

如上所述，发现三种氢气流量分别对应 $P_{\mathrm{H}} = 1.3 \times 10^{-5}$ 毫巴 6.6×10^{-6} 毫巴 4.7×10^{-6} 毫巴（$P_{\mathrm{H_2}} = 8.5 \times 10^{-5}$ 毫巴、 4.3×10^{-5} 毫巴、 3.0×10^{-5}毫巴）以及 $\gamma_{\mathrm{H_2}} = 1.6 \times 10^{-3}$、 7.9×10^{-4}、 5.7×10^{-4}。对于喷嘴内部与 $\mathrm{H_2}$ 涂层壁面的 26 次碰撞，结果是相较于入口处的数值，最大降低至其 96 %。三个 FC 的持续时间 Δt_{FC} ，即固态 $\mathrm{H_2}$ 逐渐形成的层干扰1S-2S光谱激光器所需的时间，测得分别为 34 分钟、73 分钟和 93 分钟。因此， Δt_{FC} 与 $Q_{\mathrm{H_2}}$ 成反比，这意味着 $\mathrm{H_2}$ 的生长速率与 $Q_{\mathrm{H_2}}$ 无关，因而也与 P_{H} 无关。这与上述估算一致：喷嘴内部的复合确实可忽略不计，相较之下，聚四氟乙烯管道上的复合更为显著，且不受 P_{H} 影响。同样，对于 FC 的前半段和后半段（分别以图 4.28 中的实线和虚线表示），当流量从 0.35 毫升/分钟增加到 1.00 毫升/分钟时，即时振幅（延迟时间 $\tau \lesssim 500$ 微秒）近似线性增加。对于 0.50 毫升/分钟，FC 后半段观察到的振幅仅为按此比例关系预期的值，这可能与用于解冻喷嘴的低温有关。这种线性行为也表明，$\mathrm{H_2}$ 层的形成以类似的方式推进，这与有限元模拟的结果相符：$\mathrm{H_2}$ 的分压始终远高于固态 $\mathrm{H_2}$ 的饱和蒸气压，即 $P_{\mathrm{H_2,sat}} = 9.5 \times 10^{-6}$ 毫巴。请注意，在 2S-6P测量中使用的 $T_{\mathrm{N}} = 4.8$ 开尔文和 $Q_{\mathrm{H_2}} = 0.35$ 毫升/分钟条件下，FC 持续时间的模式为 120 分钟，比此处在 $T_{\mathrm{N}} = 4.6$ 开尔文下进行的测试测量长约 30 %。如果这一差异确实显著，可能是因为测试测量中聚四氟乙烯管道与喷嘴之间没有隔热垫片，正如第 4.5.2.1 节所述。

值得注意的是，对于较大的 τ，与即时振幅的情况相比，振幅随 $Q_{\mathrm{H_2}}$ 的变化幅度减小；当 $Q_{\mathrm{H_2}}$ 取三个不同值时，在最大延迟时间下得到的计数数量相同。这表明，随着流量增加，较慢原子的相对数量减少，而这些原子在较大的 τ 下主导振幅。图4.28 (B) 突显了这一行为，该图显示了相同的振幅，但将其归一化为延迟 2 中的平均计数数量（$\tau = 60\,\mu\mathrm{s} \ldots 110\,\mu\mathrm{s}$），以展示其随 τ 的相对变化。如第4.5.2.2节所述，随着喷嘴内部压力和原子束压力升高，碰撞会增多，主要将慢原子从光束中移除，因此这种行为符合预期。在最大延迟时间 $\tau = 2.5$ ms 下，与氢气流量低三倍的 $Q_{\mathrm{H_2}} = 0.35\mathrm{ml/min}$ 相比， $Q_{\mathrm{H_2}} = 1.00\,\mathrm{ml/min}$ 对应的原子数量少了 3.5 倍。

图4.28 (C)显示了背景与幅度之比。已知背景与2S原子的存在有关，因为只有在制备激光器与1S-2S跃迁同时共振、向系统中通入氢气且原子束与制备激光器重叠时，才会观测到背景。随着氢气流量增加，背景与幅度之比也随之增加；也就是说，背景计数的增加幅度大于图4.28 (A, B)所示的共振计数。如果背景计数是由2S原子与其他原子和分子发生束内碰撞而被猝灭或踢出光束，以及与腔体内残余氢分子发生碰撞所致，那么这种现象是可以预料的，因为随着氢气流量增加，

[1]因喷嘴冻结以外的原因而停止的 FC 未计入此统计数据。所考察的 56 个 FC 的 Δt_{FC} 变异系数为 10%。

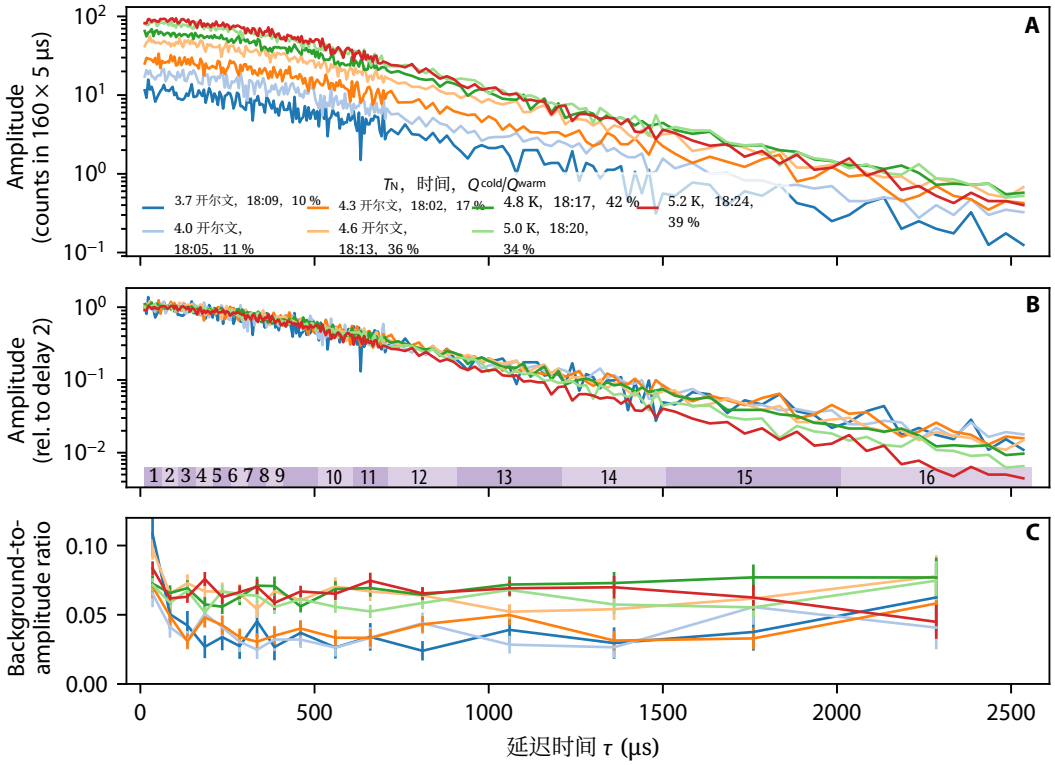


图 4.29：顶部探测器检测到的时间分辨荧光计数平均值，与图4.28类似，但对应不同的喷嘴温度 $T_N = 3.7\,\mathrm{K} \ldots 5.2\,\mathrm{K}$，且通入解离器的氢流量保持恒定，为 Q_{H_2} =0.35 ml/min H_2 。每种温度下，数据均记录数分钟；温度、测量时间以及未在喷嘴上冻结的氢所占比例 Q_{cold}/Q_{warm} 显示在 (A) 的图例中。对于 (A、B)，延迟 13 至 15 的数据分别按 4 个和 10 个分箱取平均，延迟 16 的数据则按 10 个分箱取平均；对于 (C)，每个延迟内的所有分箱均取平均。2S-6P 光谱和 1S-2S 制备激光器的功率分别为 $P_{2S\text{-}6P} = 30\mu W$ 和 $P_{1S\text{-}2S} = 0.65W$。

vacu两者的数密度都会增加[1].

在第二次测试测量中（如图4.29和图4.30所示），氢气流量保持恒定，为 $Q_{H_2} = 0.35$ ml/min，同时将喷嘴温度 T_N 在 3.7 K 至 6.0 K 之间调节。此次测量由一次 FC 组成，每隔几分钟改变一次温度，并在每个温度下记录数次线扫描。随着温度从初始的 3.7 K（18:09）升高，即时振幅（见图4.29 (A)）也随之增大，并在约 5.2 K（18:24）时达到最大值。与此同时，在喷嘴上冻结析出的氢所占比例 Q_{cold}/Q_{warm} 从 10 % 上升至

[1]束内碰撞与残余氢分子的碰撞，可能可以通过它们不同的延迟依赖性加以区分。这是因为，导致2S原子淬灭或从光束中移除的碰撞概率，预计取决于碰撞伙伴的相对速度。随着 τ增加，2S原子的速度会降低，而光束中以及残余气体中的其他1S原子和分子的速度则不受 τ影响，因为只有一小部分原子被激发到2S能级。不过，由于残余气体处于室温，与这些残余粒子发生碰撞时的相对速度主要由室温粒子的速度决定。因此，与束内碰撞相比，这种相对速度随 τ 的变化较小。情况之所以更为复杂，是因为决定振幅的6P激发概率也会随着2S原子速度降低而增加。

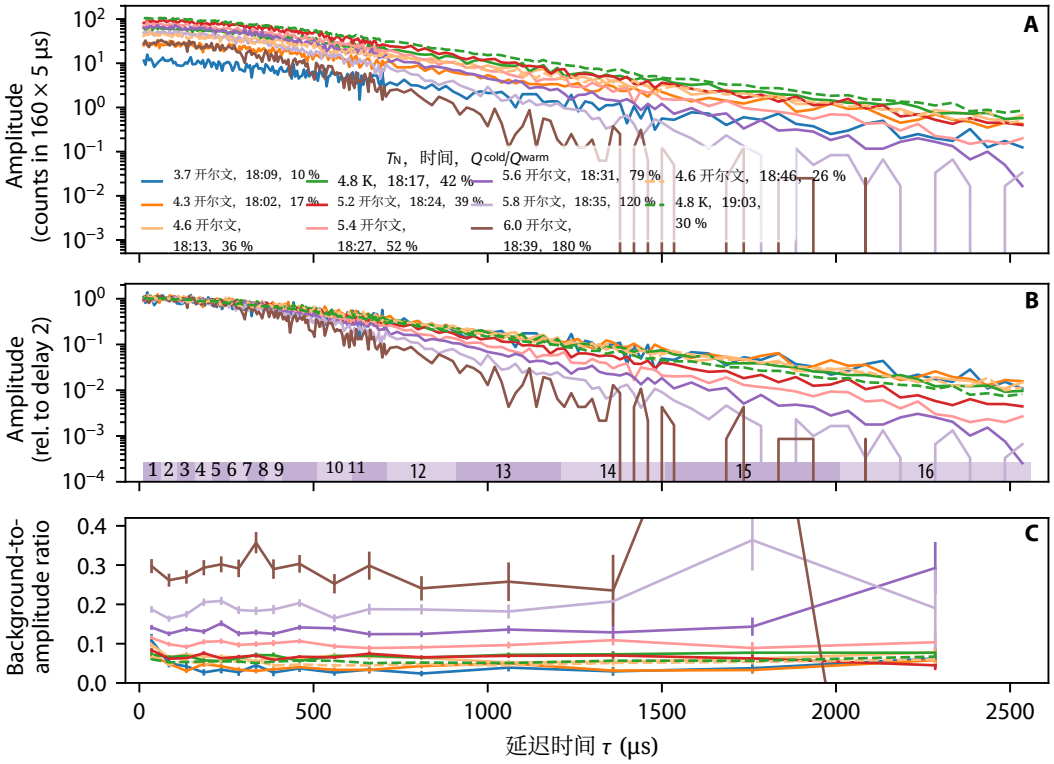


图4.30：与图4.29类似，但还包括更大喷嘴温度范围的数据T_N = 3.7 K .....6。0 K（实线），以及温度循环后采集的数据，用于检查观测到的信号的重复性（虚线）。

39 %。这些观察结果与以下情况一致：温度降低时，喷嘴内固态 H_2 上的氢 H 复合增加；这符合单次碰撞复合概率 γ_{H_2} 迅速上升的预期（见图4.27）。对于 $T_N = 3.7$K，估计 γ_{H_2} 为 4.3 %，因此 α_{dis} 降至其在喷嘴入口处数值的 42 %。

对于高于 5.2 K 的温度，如图 4.30 所示，即时振幅再次下降，而 Q_{cold}/Q_{warm} 仍持续增加。在 5.8 K 时，Q_{cold}/Q_{warm} 甚至超过了 100 %，这意味着离开喷嘴的氢比进入喷嘴的氢更多。这可能是一种瞬态效应：低温时冻结在喷嘴壁上的氢，在较高温度下重新升华进入气相。事实上，对于迄今采用的参数，预计固态 H_2 的饱和蒸气压会在约 4.9 K 时超过喷嘴内 H_2 的分压（见图4.27）。此时，H_2 将不再冻结在喷嘴上，喷嘴内部、光束以及真空系统中的压力都会升高。后一处的压力从 5.2 K 时的 4.8×10^{-6}mbar 增至 6.0 K 时的 2.2×10^{-5} mbar，增幅超过四倍。FC 过程中某些时刻冻结的 H_2 被清除，也得到这次 FC 异常长的持续时间 $\Delta t_{FC} \approx 160$min 的佐证。由于这次测试测量具有瞬态性质，喷嘴内部始终至少部分被固态 H_2 覆盖，这一点已由喷嘴成像证实。因此，振幅下降可能既是由裸露的铜壁上发生复合所致（单次碰撞复合概率可能高达 20 % [117], ），也可能是压力升高干扰了原子束的形成所致。然而，在 6.0 K 达到最高温度后，

温度随后在 18:46 降至 4.6 K（图 4.30 中的橙色虚线），测得的振幅与 18:13 时非常相似，这表明要么高温期间没有壁面裸露，要么裸露区域很快又被固态 H_2 覆盖。温度循环结束后，温度返回 4.8 K 时，≈ 45min 后测得的振幅也具有可重复性；首次在该温度测量是在此前 ≈ 45min（图 4.30 中的深绿色虚线）。

图4.29 (B) 和图4.30 (B) 再次显示了相同的振幅，但已按延迟 2 中的平均计数数量进行了归一化。温度不超过 4.6 K 时，未观察到归一化振幅发生变化。从 4.8 K 开始，再次可见慢原子耗减；从 4.6 K 升至 6.0 K 时，最大延迟时间处的振幅下降了近两个数量级，而中间延迟时间$\tau \approx 1000$μs处的振幅下降了一个数量级，分别对应原子平均速度 $\bar{v} \approx 60\,\mathrm{m/s}$ 和 $\bar{v} \approx 120\,\mathrm{m/s}$（见表 5.1）。这种耗减归因于系统内压力升高，如第4.5.2.2节所述，压力升高会使较慢原子从光束中移除。

图 4.29 (C) 和图 4.30 (C) 所示的背景与幅度之比（BAR）在 5.4K 时开始显著增加；从 4.8K 到 6.0K 之间，观测到其增加了五倍。这进一步支持了这一假设：束内碰撞以及与残余氢分子的碰撞造成了背景，因为随着温度升高，更多分子氢从喷嘴逸出，这两种碰撞都会增加。

在所有温度下，背景与幅度之比都会随 τ 增大而略微上升。如前所述，这是可以预料的，因为 2S原子的平均速度会随 τ 降低，而光束中 1S原子和分子的速度分布，以及背景气体中的残余粒子速度分布，则保持不变。不过，在 $T_{\mathrm{N}} \lesssim 4.8\,\mathrm{K}$ 时，观测到最初 ≈ 50μs 内的瞬时背景与共振信号比高于随后约 1 ms 内的数值，达到 ≈ 10%。对于 3.7 K，这一效应最为明显，瞬时背景与共振信号比先升至 $\approx 11\,\%$，随后降至 ≈ 3%。随着喷嘴温度升高，整体背景与幅度之比也随之增大，这一效应则越来越不明显。首次测量的背景与幅度之比中也能看到这一效应（见图4.28 (C)）。一种可能的机制是，与前文所述的情况相反，离开喷嘴的部分原子并未与喷嘴温度达到热适应，例如，它们在喷嘴内只经历了一次或数次弹性碰撞。这些原子随后也可能被激发至亚稳态2S能级，因此同时对背景信号和共振信号作出贡献。由于短相互作用时间下的 2S-6P激发概率按 $1/v$ 标度变化，室温原子对后者的贡献会受到强烈抑制。另一方面，与残余氢分子碰撞对背景的贡献预计仅比冷原子低 $\approx \sqrt{2}$ 倍。因此，室温原子的存在可能导致背景与幅度之比增大。室温下氢原子的热速度为 2924 m/s，此时 2S激发的最大可能延迟时间为 70 μs，与观测到的时间尺度相符。另一方面，随着温度升高，这一效应消失，这可能与喷嘴内压力升高有关；压力升高会导致粒子间发生热化碰撞，并改变喷嘴壁的温度适应特性。

将测得的振幅与速度分布符合式（4.27）所描述形式的原子束的预期行为进行比较很有启发性。该分布通过一个由截止速度 v_{cutoff} 表征的指数抑制项，考虑了慢原子的耗减。预期行为是通过蒙特卡罗模拟提取的，具体方法见第5.2节；模拟采用了相应的喷嘴温度和激光功率。首次测量中，在不同氢气

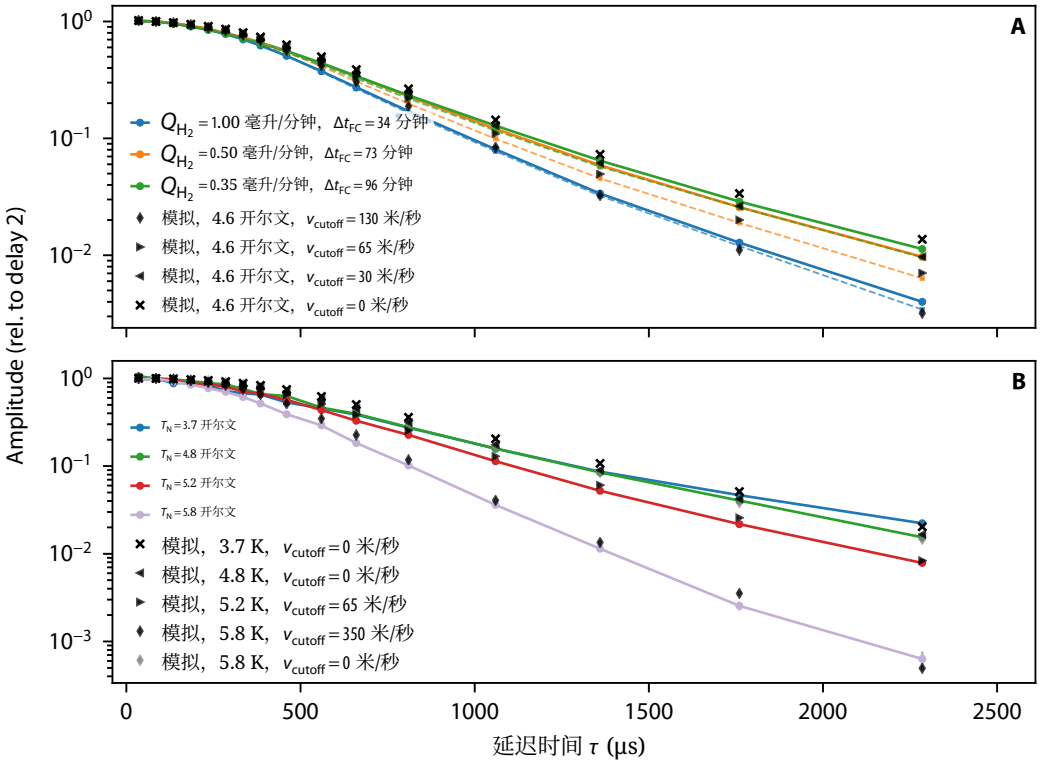


图4.31：将实验测得的时间分辨荧光计数率与模拟结果进行比较：（**安培**）图4.28中不同氢气流量 Q_{H_2}、喷嘴温度为 $T_N = 4.6$开尔文时的情况；以及（**B**）图4.30中不同喷嘴温度 T_N、氢气流量为 $Q_{H_2} = 0.35$ml/min时的情况。模拟所依据的速度分布由式（4.27）给出。对每个延迟内的分箱取平均，以便与模拟结果相匹配。

流量 Q_{H_2} 下实验观测到的振幅和模拟振幅如图 4.31 (A) 所示。对于所有流量，较大延迟时间 τ（对应较慢原子）下的振幅都低于未假设存在指数抑制时的模拟振幅（叉号），即 $v_{cutoff} = 0$m/s。然而，假设 $Q_{H_2} = 1.00$ml/min、0.50 ml/min 和 0.35 ml/min 时，观测到的振幅（此处采用 FC的后半段的数据，以虚线表示）可由模拟描述；对应的截止速度分别为 130 m/s（菱形）、65 m/s（向右三角形）和 30 m/s（向左三角形）。

图 4.31（B）展示了第二次测量中对应的情况，测量时采用了四种喷嘴温度 T_N。在实验不确定度范围内，$T_N = 3.7$开尔文（蓝色曲线）和 $T_N = 4.8$开尔文（绿色曲线）的实验数据可由未抑制速度分布近似描述（叉号和向左三角形）。然而，随着温度升高，需要采用非零截止速度 v_{cutoff} 来描述数据；对于 $T_N = 5.2$开尔文（红色曲线和向右三角形）和 5.8 开尔文（紫色曲线和菱形），该速度分别为 65 m/s 和 350 m/s。作为参考，图中还显示了温度为 $T_N = 5.8$ 开尔文时 $v_{cutoff} = 0$m/s 的预期行为（灰色菱形），这表明观测到的慢原子抑制程度远大于仅由喷嘴温度升高所预期的程度。

因此，采集光谱数据时的喷嘴温度和氢气流量需要在即时振幅大小、慢原子耗减、背景与幅度之比、压力频移以及喷嘴冻结所需的时间之间进行权衡。对于 2S-6P测量，选择的温度为 $T_N = 4.8$K，流量为 $Q_{H_2} = 0.35$ ml/min

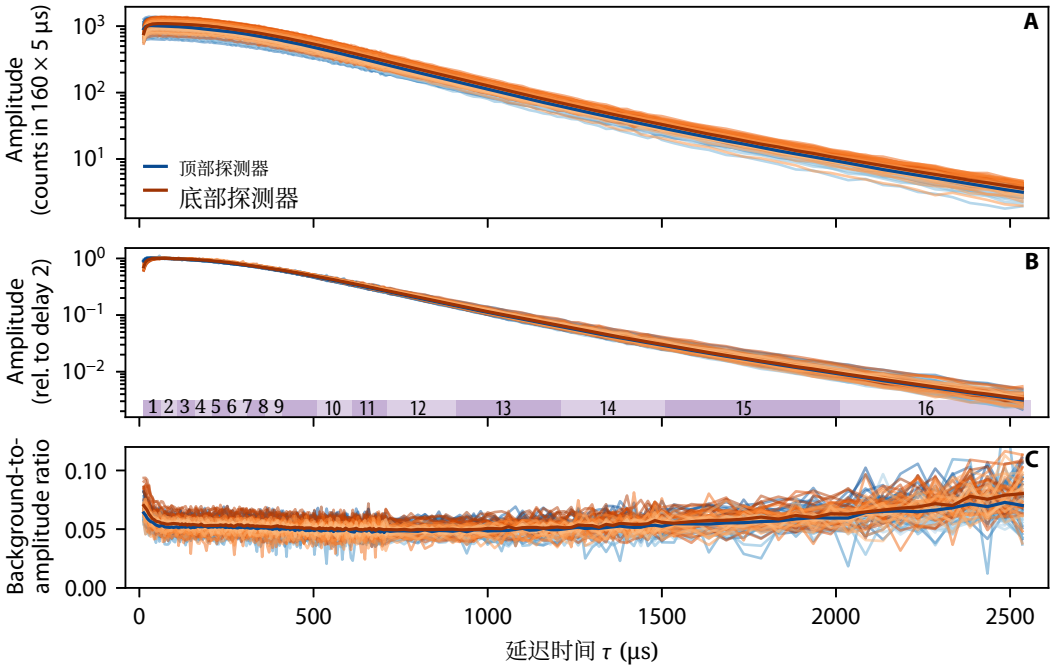


图4.32：在 2S-6P测量的 B次运行期间，全部 41 个冻结周期（FC）中顶部探测器（蓝色曲线）和底部探测器（橙色曲线）的时间分辨荧光计数率（见表6.1）。图中仅显示对测量 2S-6P$_{1/2}$ (2S-6P$_{3/2}$) 跃迁有贡献的数据，其光谱激光功率为 $P_{\text{2S-6P}} = 30$微瓦（$P_{\text{2S-6P}} = 15$微瓦）（数据组 G1B、G2–3 和 G7B、G8–9，见表6.2）。喷嘴温度为 $T_{\text{N}} = 4.8$K，氢气流量为 $Q_{\text{H}_2} = 0.35$ml/min；但其中一个和两个冻结周期的流量分别为 $Q_{\text{H}_2} = 0.25$ml/min 和 0.30 ml/min。如图 4.28 所示，图中展示了（**A**）2S-6P 振幅、（**B**）相对于延迟 2 平均值归一化后的振幅，以及（**C**）背景与幅度之比。每条曲线对应单个冻结周期的平均值，粗线则表示所有冻结周期的平均值。此外，对延迟 13 至 15 的数据取 4 个延迟时间分箱的平均值，对延迟 16 的数据取 10 个延迟时间分箱的平均值，以降低噪声水平。

。在此温度下，即时振幅接近最大值，而慢原子耗减仅刚刚可见，背景与幅度之比也仍相当低。同时， ≈2h 的 FC 时长足够长，可以在每个 FC 中进行对准程序和辅助测量，而不会过多减少采集的线扫描数量。

图4.32显示了2S-6P测量的B次运行中全部41次FC运行期间，顶部和底部探测器的荧光计数率（见表6.1）。除两次FC运行外，其余运行均使用选定的喷嘴参数；这两次运行中，Q_{H_2} 分别略低，为0.25 ml/min和0.30 ml/min。

4.5.2.5 喷嘴成像与对准

实验中，使用成像传感器观测低温喷嘴。为此，如第 4.3.3.6 节所述并如图4.6所示，检测对准激光穿过真空室（包括可变光阑和喷嘴通道）后的透射率。图4.33展示了部分喷嘴图像，其中可见相干照明所产生的干涉条纹。视角沿原子束方向，朝向光谱区。

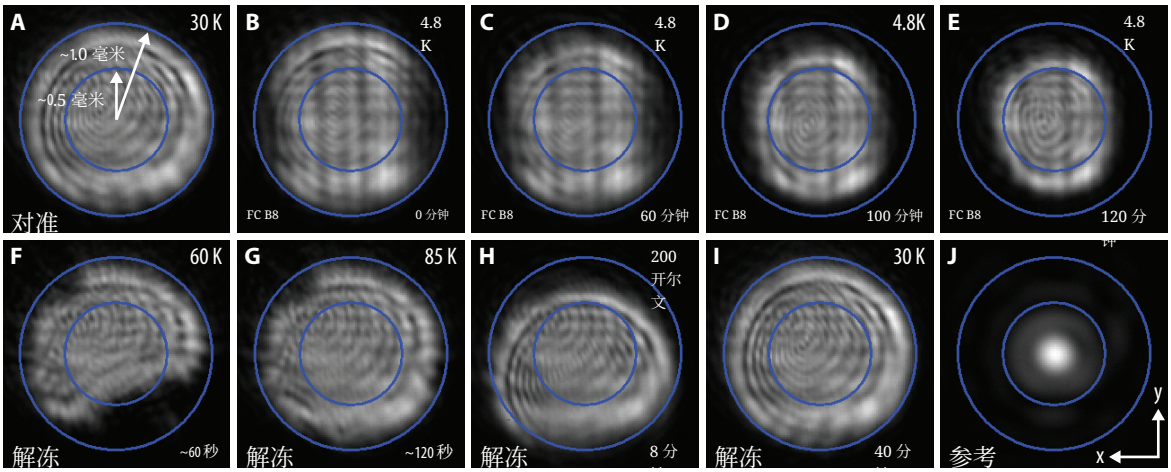


图 4.33：低温氢喷嘴的成像与对准。喷嘴温度 T_{N} 显示在右上角。（**A–E**）典型冻结周期（FC；图示为 FC B8）中，固态氢$_2$ 在喷嘴内积聚导致喷嘴堵塞。图像拍摄于冻结周期开始前，以及冻结周期开始后的 0 分钟、60 分钟、100 分钟和 120 分钟。冻结周期开始后的时间显示在右下角。从（**A**）到（**B**），可变光阑的宽度逐渐减小，遮挡了部分用于照明的透射激光。（**F–H**）冻结周期结束后喷嘴解冻的过程，喷嘴加热至室温开始后的经过时间显示在右下角。（**I**）解冻后的结果，喷嘴已准备好进入下一个冻结周期。（**J**）以对准激光为中心的参考圆，此时喷嘴已移出激光束，前置光阑几乎完全闭合。所有图像中均显示相同的参考圆，其半径分别为 $\approx$1.0 毫米和$\approx$0.5 毫米。

为确保原子束的对称性，喷嘴通道需要与束流装置的孔径以及 243 nm增强腔的光轴同心。如第4.3.3.7节所述，腔的光轴本身与孔径同心，因此只需使喷嘴通道与腔的光轴同心即可。由于对准激光也与腔的光轴重合，因此问题便简化为使喷嘴通道与对准激光的光束轴同心。通过相对于真空室移动低温恒温器，可以在三个维度上移动喷嘴（见第 4.2.6 节）。喷嘴对准步骤如下：首先，将喷嘴移出对准激光的光束路径，并将可变光阑完全打开。接着，将以对准激光为中心的前置光阑（见图 4.6）几乎完全闭合，并用参考圆标记成像传感器上的衍射光斑（见图4.33 (J)）。然后，将喷嘴移回对准激光的光束中，使喷嘴通道的图像位于参考圆中心（见图4.33 (A)）。最后，将可变光阑的孔径宽度调至测量设置，遮挡部分对准激光，从而也遮挡部分穿过喷嘴通道的透射光（见图4.33 (B)，其中孔径宽度设为 1.2 毫米）。每个测量日，在第一个冻结周期 (FC) 之前至少执行一次此步骤；之后的 FC 则根据图像判断是否有必要时再执行。

喷嘴成像也有助于监测和研究在一次 FC 过程中，固态氢$_2$ 堵塞喷嘴的情况。图4.33（A-E）展示了喷嘴在冷却至 $T_{\mathrm{N}} = 4.8$K（从 30 开尔文降温）之前，以及冷却后 0 分钟、60 分钟、100 分钟和 120 分钟的状态，对应于 FC 的开始。对于图中所示的 FC，即 FC B8，喷嘴及其

PTFE 管道与喷嘴入口之间的聚四氟乙烯间隔件均已使用（见第 4.5.2.1 节）。喷嘴在当天进行了清洁，并在 FC 8B 之前进行了一个测试 FC，以去除清洁流程留下的残留物。喷嘴通道的半径从最初的 1 mm 减小到 $\approx 0.5\text{mm}$，这一点清晰可见。通道并未对称冻结（请注意，图4.33（B）中左右边缘已可见的截切部分来自可变光阑，而非冻结），入口附近底部积聚的氢$_2$ 较少。尽管如此，底部确实发生了一些冻结。这种冻结模式可能对应于这样一种情况：材料主要积聚在喷嘴内部区域的顶部和侧面，即输入（半径为 2 mm）与喷嘴通道交汇处，而喷嘴通道本身则均匀覆盖着一层相对较薄的氢$_2$。这也与上文所述粒子追踪模拟的观察结果一致，即大多数壁面碰撞发生在该内部区域。

FC 结束后，通过停止向低温恒温器输送液氦，并将其中的加热丝调至最大功率，使喷嘴升温至室温，以去除积聚的固态 H_2 及其他冻结的痕量气体。图 4.33（F–H）展示了解冻过程中喷嘴的状态；喷嘴温度分别在 60 秒、120 秒和 8 分钟内达到 60 开尔文、85 开尔文和 200 开尔文。拍摄这些图像时，可变光阑已再次完全打开；在 200 开尔文时，低温恒温器的热膨胀使喷嘴明显向下移位。60 开尔文和 85 开尔文时仍存在的冻结材料，据信主要是残留的固态 H_2, ；通常观察到解冻过程会持续几分钟。有时还会观察到，某些材料碎片从视场中消失，几秒后又重新出现；这可能是因为这些碎片在喷嘴内部区域移动，而较小的喷嘴通道遮挡了视线。到了 200 开尔文时，已看不到较大的材料碎片。不过，与测量开始时相比，喷嘴通道的轮廓常常显得模糊，直到接近室温时这种模糊才消失。这可能是由熔点较高的痕量气体（例如水）造成的。如图 4.33（I）所示，40 分钟后，喷嘴升至室温再降至 30 开尔文的循环完成，随后便可开始下一次 FC。在本例中，喷嘴已回到初始位置，因此无需对准其位置。

4.5.3 可变束流光阑

可变光束孔径用于限制原子束的发散度。沿 2S-6P 光谱激光器传播方向（x轴）的发散度尤为重要，因为它会通过多普勒展宽限制 2S-6P共振的观测线宽（见第 2.2.5 节）。然而，孔径的最小尺寸受 1S-2S 制备激光器的光束尺寸限制，因为其光束路径穿过该孔径，而孔径尺寸过小会导致过大的透射损耗（见第4.3.3.7节）。为使沿 x轴的孔径宽度 d_2 尽可能小，该孔径由两片垂直刀片构成，可通过远程控制致动器[1]沿 x轴移动。与 2S-4P测量期间使用固定宽度孔径的做法（见附录A）相比，这种调整能力是必要的，可用于补偿装置对准的漂移（另见第4.3.3.7节）。宽度可在 0 mm. . . 8 mm 范围内调节，2S-6P测量期间使用的宽度为 $d_2 = 1.2\text{mm}$。孔径的高度（即沿

[1]Thorlabs Z806V 直流伺服电机执行器，配有旋转编码器。绝对轴向精度标称为 42 µm。

另一方面，沿 y轴的高度固定为 $d_{2,\ y} = 2.0\text{mm}$。可变光阑（**VA**）及其致动器（**AM**）如图 4.1 所示。

为校准孔径宽度并使其对准 1S-2S 制备激光器，使用与制备激光器重合的对准激光（见第 4.3.3.6 节）。为此，首先对每个刀片进行刀口测量，由此可以确定刀片边缘相对于对准激光的位置，该位置由致动器的旋转编码器给出。随后，再次使用旋转编码器将刀片移至对应所需孔径宽度的位置。为此，需要考虑致动器与刀片之间的运动转换系数，因为刀片由 90° 摇臂驱动。该系数根据孔径的技术图纸确定，并通过测试测量加以确认。最后，在保持孔径宽度不变的同时移动孔径的位置，并观察 243 nm增强腔的透射率，以检查其是否对准 1S-2S 制备激光器。通常会发现一个约为 100 微米的小偏移量，并予以校正；这被归因于对准激光与制备激光器之间未能完全重合。每个测量日都会重复这一流程。Clarissa Kroll 在其学士论文 [132] 中，使用早期版本的孔径对该校准方案进行了原理验证测试。

4.6 荧光探测器组件

荧光探测器组件的目的有两个：首先，应尽可能多地探测由6P能级衰变发射的荧光光子。其次，应提供一个无电场和磁场的光谱区，并且本底压力足够低。

第一个要求通过基于探测莱曼-ϵ 光子进行设计来满足，这些光子占荧光的80%以上（见表2.2和2.3）。这些波长为94纳米的光子会被常见的光学材料迅速吸收，因此，使用折射或反射光学元件实现高效探测并覆盖较大立体角颇具挑战性。然而，它们的能量足够高（$h\nu = 13.22$电子伏特），能够从许多材料中逸出光电子，包括此处使用的石墨和铝；这两种材料的功函数分别为 $\approx$4.6电子伏特和 $\approx$4.0电子伏特 [133]。因此，基本设计思路是使用这些材料尽可能覆盖大的立体角，同时高效收集和探测光电子。光电子的收集通过外加电场实现，电场将电子引导至两个通道式电子倍增器（CEM）。最后，这些通道电子倍增器将每个电子转换为电脉冲，随后以时间分辨方式进行计数。

为满足第二项要求，2S-6P激发和衰变均发生在探测器组件内部一个受屏蔽的内部区域中，该区域构成2S-6P光谱区。在此处，原子束与2S-6P 光谱激光束相交。接地电极包围该区域，并将其与杂散电场隔离。内部真空区域周围的磁屏蔽罩与真空室外部的线圈共同将光谱区内的磁场降低至可接受水平。通过将该区域直接连接到低温泵，使区域内保持较低的本底压力。

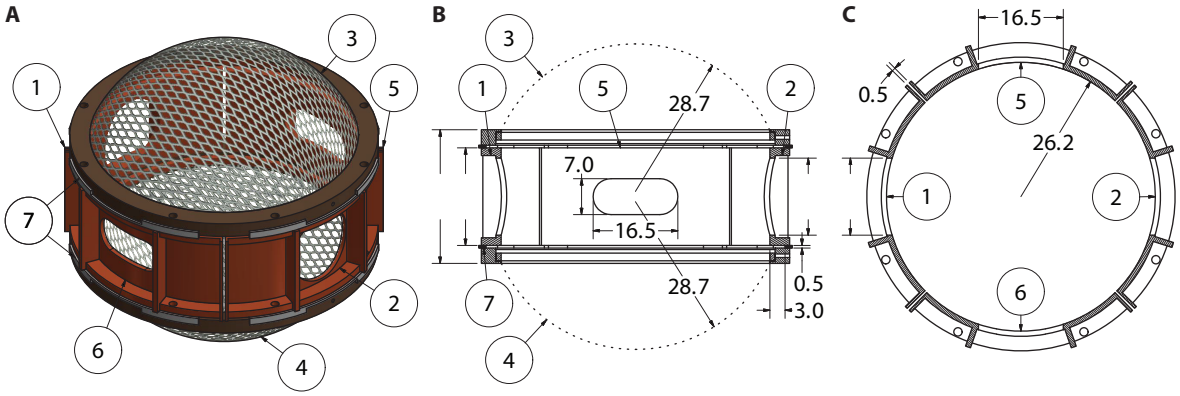


图 4.34：荧光探测器组件内部区域示意图，该组件围住 2S- 6P 光谱区：（**A**）正投影，以及沿中心处（**B**）竖直平面和（**C**）水平平面的剖视图。所有尺寸均以 mm 为单位。共有四个环形电极，它们是环的四分之一段：两个带圆形孔径（直径为 15.0 mm）的电极，用于 2S- 6P 光谱激光束，（1）朝向高反射镜（$+x$），以及（2）朝向光纤准直器（$-x$）；两个带矩形孔径（$16.5 \times 7.0\text{mm}^2$）的电极，用于原子束和 1S-2S 制备激光束，（5）下游（$+z$），以及（6）上游（$-z$）。其余两个电极为球形金属丝网片，（3）顶部（$+y$），以及（4）底部（$-y$）；它们通过（7）聚酰亚胺间隔件与（1-2, 5-6）电气隔离。

4.6.1 探测器设计

探测器组件的剖视图及其在束流装置中的安装位置如[1] 图 4.1所示。该组件以探测器圆筒（图 4.1 中的 **DC**）为主体，其内半径为 28 毫米，长度为 174.5 毫米，并沿竖直 y 轴定向。原子束（**PB**）和2S-6P光谱激光束（**SB**）沿水平（x-z-）平面传播，穿过圆筒中心，并通过圆筒壁上的孔径进出。两束光在圆筒中心相交，即相互作用点；荧光便从该点产生。圆筒沿长度方向分为三段：顶部和底部两段容纳通道式电子倍增器（CEM），由铝制成；中央部分包含相互作用点，由铜制成。两个CEM分别位于圆筒上下两端的中心位置，即顶部（**TD**）和底部探测器（**BD**）。CEM分别略微伸入圆筒内2.3毫米和2.8毫米，使其两个输入表面均与相互作用点相距84.7毫米。圆筒顶部由铝盖封闭，而圆筒底部仅由一层细密的石墨涂层金属丝网与正下方的低温泵隔开；底部探测器由石墨涂层铜框架固定。在通常运行时，探测器组件的所有部件均保持在相同电势，但CEM除外；其输入表面保持在270 V，以产生电场，收集从壁面发射的光电子。探测器圆筒与可旋转底座圆筒（**RC**）同轴安装，后者的内半径为36毫米。可旋转底座圆筒由黄铜制成，并通过滚珠轴承与高真空外壳（**HV**）连接，从而能够与探测器圆筒一起绕其轴线旋转。

圆筒中长 26 mm 的中央部分构成探测器

[1]请注意，图 4.1 和图 4.34 均未显示涂覆在部分零件上的石墨涂层，以便显露这些零件的材料。

组件的内部区域，光谱区位于其中，其中心即为相互作用点。图 4.34 对其进行了详细展示。该部分的内半径为 26.2 mm，略小于圆筒其余部分的内半径。该部分的侧壁分成四个彼此电气隔离的环形电极，每个电极构成环形的四分之一，并带有孔径[1]：其中两个电极设有直径为 15.0 mm 的圆形孔径，供 2S-6P 光谱激光束通过（图 4.34 中的 (1, 2) ）；另外两个电极设有宽 16.5 mm、高 7.0 mm 的矩形孔径，供原子束和 1S-2S 制备激光束通过（图 4.34 中的 (3, 4)）。电极由铜制成，彼此之间以 ≈ 0.5mm 的小间隙隔开。为使电极完全包围内部区域，在环形电极的上方和下方各安装一片球形金属丝网片（图 4.34 中的 (5, 6)）。这些球形分段并非完全呈半球形，因为其半径为 28.7 mm，略大于环形电极的内半径。金属丝网[2] 由直径为 30.5 µm、间距为 0.508 mm 的不锈钢丝制成，开口面积占 88%。金属丝网最初为平面，弯折成所需形状后，在张紧状态下将其边缘夹紧在铜环中，以保持形状。探测器圆筒底部也使用相同的金属丝网。环形电极与球形电极之间，以及球形电极与探测器组件其余部分之间，均用从聚酰亚胺块材中加工出的 0.5 mm 厚间隔件进行电气隔离[3] （图 4.34 中的 (7)）。这些间隔件向内凹入 3.0 mm，因而从内部区域看不到（见图 4.34 (B) 中的 (7)）。电极组件由钛螺钉固定在位并连接到圆筒外侧部分；钛螺钉外套有聚酰亚胺套管，以防电极短路。

六个电极构成一个法拉第笼，将光谱区与杂散电场以及用于在通道电子倍增器处收集光电子的电场隔离开来。包括金属丝网在内的电极均涂有胶体石墨，具有多重作用。首先，所使用的金属可能形成绝缘氧化层，进而积累电荷（例如来自光电子的电荷），并因此产生杂散电场。其次，同时使用铜电极和不锈钢电极会在不同材质的电极之间产生接触电势[4]，从而形成电场，因为这两种材料的功函数不同，差异约为 0.1 eV [133, 134]。第三，表面污染（例如用于清洁的溶剂残留物）、氧化以及金属的晶体结构都会影响局部功函数 [133–135], ，同样会导致接触电势和杂散电场。用胶体石墨覆盖电极后，由于胶体石墨不会形成氧化层，并且会在部件安装到真空室之前立即涂覆，因此可形成具有均匀功函数的均匀导电层，从而抑制这些效应。在先前使用与本实验相同装置的实验 [136], 以及其他氢原子束实验 [33, 137] 中，这种涂层也已成功用于抑制杂散电场。研究还发现，它能够

[1]旋转安装架中的对应孔径略大：圆形孔径的直径为 17.0 mm，矩形孔径的宽度为 27.0 mm，高度为 7.0 mm。[2]TWP，零件编号 050X050T0012。[3]所用材料为杜邦 Vespel，这是一种聚酰亚胺基塑料。[4]可以用以下方式直观地理解接触电势产生的电场：当电极以可忽略不计的电阻相互电连接时（如本例中接地的情况），所有电极的费米能级都相同。功函数是将电子从金属移至周围真空所需的能量。如果不存在电极间的电场，将电子从一个电极移至另一个不同的电极，就会因功函数之差而产生能量增益或损失。然而，由于费米能级相同，这将违反能量守恒；因此，电极间必须存在电场，使电子在其中损失或获得相当于功函数之差的能量。

防止不同材料的接触电势产生杂散电场 [138]。胶体石墨还涂覆在所有靠近原子束的部件上，包括高真空入口光阑（图 4.1 中的**EA** ）、1S-2S法拉第笼（**FC**），其采用与电极相同的金属丝网制成；可变光阑（**VA**）；可旋转底座圆筒（**RC**）；以及高真空出口光阑（**OA**）。

已知胶体石墨由直径为 1 µm 的薄片组成 [139, 140], ，市面上有多种以水或有机溶剂为介质的悬浮液可供选择[1]。本文使用悬浮于异丙醇中的胶体石墨[2] ，并将其喷涂到表面上。随着石墨在金属丝网上不断积累，网格的开放面积，即其透射率会逐渐降低。通过评估相机和光学显微镜拍摄的图像，发现其透射率在 72 % 至 81 % 之间变化；而未涂覆时，测得的开放面积符合预期，为 88 %。这相当于覆盖在金属丝网上的石墨层厚度为 23 µm 至 10 µm。为了在覆盖整个网格各侧的同时获得较薄的石墨层，必须反复喷涂，并在光学显微镜下检查石墨覆盖情况，采用迭代方法进行处理。由于在 2S-6P测量过程中不断改进这一工艺，因此估计测量轮次A期间的网格透光率为 70 %，轮次B和C期间为 80 %（见表6.1）。

此外，在运行 A 期间，探测器组件中安装了额外的屏蔽网。这些屏蔽网与球形金属丝网电极完全相同，分别放置在顶部和底部电极上方和下方 5 mm 处。它们与顶部和底部部分以及顶部和底部电极之间均采用与后者和环形电极之间相同的间隔件进行电气隔离。屏蔽网最初的用途是通过施加适当的电压，防止带电粒子进入顶部和底部部分。最终并未实施这一措施，屏蔽网保持接地状态。然而，额外的金属丝网导致金属丝网电极与屏蔽网组合的有效透射率降低至 $0.7^2 \approx 50\%$。

与内部区域不同，探测器圆筒的顶部和底部部分并未涂覆石墨，而是让铝裸露在外。这是因为，正如第4.6.5节所述，铝的光电子产额显著高于石墨。同时，这些部分无需抑制杂散电场，因为预计其中的杂散电场远小于外加电场。值得注意的是，铝并未采取防氧化保护措施，而是在机械加工后用工业皂和有机溶剂清洁，再安装到真空室中；在此过程中，铝至少有几天暴露于周围空气中。因此，预计铝表面会覆盖一层氧化铝层 [141]。此外，铝部件在机械加工后保持原样，未进行抛光，因此表面光学性能较差，即使在可见光范围内也是如此。圆筒底部的不锈钢丝网涂有石墨，以便在探测器模拟中将需要考虑的材料种类限制为两种。请注意，对于此处相关的光子能量，胶体石墨的光电子产额高于铜，但低于不锈钢；不锈钢的光电子产额与铝相当 [133, 134]。

[1]常用且经过实验研究的材料是 Aquadag 和 DAG 580，这两种材料由 Agar Scientific 提供，分别是胶体石墨在蒸馏水和乙醇中的悬浮液。[2]Kontakt Chemie Graphit 33（制造商编号 76009-AC），喷雾罐装。它并非科学研究产品，且观察到不同批次所得涂层之间存在差异。对于未来的实验，建议使用质量控制更好的科学研究产品。

4.6.2 通道电子倍增器

通道式电子倍增器（CEM）可用于探测单个电子和光子。为此，在几何结构适当、由经过适当处理的玻璃制成的通道上施加偏置电压 V_{bias} ，使进入通道的电子撞击通道壁时释放出二次电子；这些二次电子又会释放出更多二次电子，最终产生由数百万个电子组成、易于探测的电脉冲 [142, 143]。此处的探测器工作在脉冲计数模式下，在这种模式中，输出脉冲的振幅与电子倍增早期阶段的具体条件无关。实现这一点的方法是施加足够高的偏置电压，使每个脉冲中的电子数量乃至增益最终在倍增过程中因空间电荷效应而达到饱和。在这种模式下，随后可通过固定阈值鉴别器将输出脉冲转换为逻辑脉冲，再使用多道定标器对其计数。

离开通道的电子脉冲对应的电流为 $I_{\mathrm{cts}} = NeG_{\mathrm{CEM}}$，其中 N 是每秒脉冲数，即计数率，e 是元电荷，G_{CEM} 是通道电子倍增器的增益。偏置电流 $I_{\mathrm{bias}} = V_{\mathrm{bias}}/R_{\mathrm{chan}}$，其中 R_{chan} 是通道电阻，与 I_{cts} 沿相同方向流动，并为通道壁面补充电子。这对计数率给出了上限，因为 I_{cts} 不能超过 I_{bias}。然而，增益在约 $I_{\mathrm{cts}} \gtrsim 0.1\, I_{\mathrm{bias}}$ [143]时开始下降；在计数率动态范围较大的应用中，这会进一步限制最大计数率。这是因为必须调整增益，使探测器在整个动态范围内都以脉冲计数模式运行；如果增益本身随计数率变化过大，就无法做到这一点。这里讨论的实验也有同样的情况，因此最大计数率不应远高于 $N \sim 0.1 I_{\mathrm{bias}}/eG_{\mathrm{CEM}}$。

要探测电子，CEM 的输入端必须处于比周围环境更高的电势 V_{in} 。反过来，通道输出端必须处于更高的电势V_{out}，使得 $V_{\mathrm{out}} - V_{\mathrm{in}} = V_{\mathrm{bias}}$。从通道射出的脉冲由一个电绝缘收集极收集，该收集极必须置于更高的电势 V_{coll}。为从 CEM 提取并计数脉冲，收集极通过电容与信号电缆耦合。

此处使用的通道电子倍增器[1] 具有六个螺旋通道，围绕一个实心中心扭绕而成，其输入端和输出端分别处于相同电势。通道电子倍增器的输入表面呈锥形收缩，直径从 10.2 mm 减小至直径为 3.0 mm 的平面，该平面上设有通道开口。一个外径为 11.1 mm、孔径为 8.5 mm 的钛帽套在输入端上，兼作固定件和电接触，电势为[2] $V_{\mathrm{in}} = 270\mathrm{V}$。该钛帽取代了制造商安装的不锈钢帽，后者用于保护输入表面的边缘，避免崩裂。钛帽的外缘夹在两个聚四氟乙烯环之间，这两个环使钛帽与探测器组件电绝缘。为防止电荷在绝缘环上积聚，绝缘环从探测器圆筒内部被接地导体遮挡。

[1] Photonis MAGNUM 电子倍增器 5901 EDR（规格编号 PS36892）。规定的总电阻为 $R_{\mathrm{CEM}} = 10.8\,\mathrm{M\Omega} \ldots 16。9\ \mathrm{M\Omega}$，最大工作电压为 3 kV。规格参数见 [144]。[2] 测试过的各种高压源都无法在通道输出端施加高电压时，维持通道输入端的任意电压。可在电源输出端并联一个 500 千欧 $\ll R_{\mathrm{CEM}}$ 接地电阻，以解决这一问题。这实际上将（常规）电流方向从流入电压电源反转为流出电压电源。FUG MCN 35-350 和 FUG MCN 140-1250 分别用作顶部和底部探测器输入端的电压电源。

通道电子倍增器内置一个偏置电阻，其电阻值为 R_{bias} ，连接在通道输出端与一个极板之间，并在该极板上施加电压 V_{flap} 。因此，极板与输入端之间的总电阻为 $R_{\mathrm{CEM}} = R_{\mathrm{chan}} + R_{\mathrm{bias}}$，其中 R_{bias} 的规定范围为 R_{CEM}的 10 % . . . 20 %。下文假定 $R_{\mathrm{bias}} = 0.15R_{\mathrm{CEM}}$。这些通道电子倍增器是特殊的扩展动态范围（EDR）版本；测得其在室温下的平均总电阻为 $R_{\mathrm{CEM}} \approx 15\mathrm{M\Omega}$，因此通道电阻为 $R_{\mathrm{chan}} \approx 13\mathrm{M\Omega}$。与此前使用的标准版本相比，其电阻约低一半，使典型偏置电流增至 $I_{\mathrm{bias}} \approx 120\mu\mathrm{A}$。这相应于在典型增益 $G_{\mathrm{CEM}} =5 \times 10^7$下，最大计数率为每/s $N = 1.5 \times 10^6$ 个计数。低电阻通道电子倍增器对于底部探测器尤为必要，因为它位于低温泵正上方，温度远低于室温。由于通道电子倍增器电阻的温度系数为负，冷却会使R_{CEM} 增加 50 % . . . 70 %，并相应降低最大计数率。根据 [145], 中测得的温度系数，这一增幅对应于底部探测器冷却至 ≈220K。2S-6P测量期间使用了同样的两个通道电子倍增器；真空室未冷却时，顶部和底部探测器的电阻分别为 $R_{\mathrm{CEM}} =$ 17.6 MΩ 和 $R_{\mathrm{CEM}} = 18.0\mathrm{M\Omega}$。通过低温泵冷却真空室后，两者的平均电阻分别增至 $R_{\mathrm{CEM}} = 18.3\mathrm{M\Omega}$ 和 $R_{\mathrm{CEM}} = 27.2\mathrm{M\Omega}$。

通道输出端的电压为 $V_{\mathrm{out}} = (V_{\mathrm{flap}} - V_{\mathrm{in}})R_{\mathrm{bias}}/R_{\mathrm{CEM}} + V_{\mathrm{in}} = 0.85V_{\mathrm{flap}} + 0.15V_{\mathrm{in}} \approx 0.85V_{\mathrm{flap}}$，偏置电压为 $V_{\mathrm{bias}} = 0.85(V_{\mathrm{flap}} - V_{\mathrm{in}})$。设置该偏置电阻的目的是让通道输出端和收集极共用同一高压电源。此处，通道输出端和收集极分别使用独立的高压电源[1] ，以便调节通道输出端与收集极之间间隙两端的电压。为此，将一个由标准高压兼容元件制成、并封装在真空兼容环氧树脂中的小型电路，直接连接到收集极的输出引脚上。通过一个 470 pF 电容器分离出高频脉冲，再经由一个 50 Ω 电阻传输至同轴信号电缆，该电阻决定输出阻抗。高压 V_{coll} 通过一个 270 kΩ 限流电阻施加到收集极。最后，为避免电容器漏电流导致电压升高，电容器的输出端通过一个 1 MΩ 电阻连接到高压同轴电缆的接地屏蔽层。此处， V_{coll} 保持在 $V_{\mathrm{flap}} + 200\mathrm{V}$，使通道输出端—收集极间隙两端的电压约为 $0.15V_{\mathrm{flap}} + 200$ V $\approx 500\mathrm{V}$。

真空室外的前置放大器[2] 具有 10 倍电压增益，可进一步增大脉冲幅度。如有必要，会在脉冲进入前置放大器之前对其进行衰减。使用电阻式直流耦合 1:2 分配器，将相等的功率分别传送至甄别器和示波器，以监视脉冲。除前置放大器的低阻抗输出外，所有相关电气元件的阻抗均为 50 立体角，以避免反射和振铃。甄别器[3]在脉冲超过给定电压阈值时将其转换为逻辑脉冲；此处的阈值通常设为 $-100\mathrm{mV}$。随后，数据采集系统会对这些逻辑脉冲进行计数，具体说明见第4.7.3节。

通道电子倍增器产生的脉冲半高全宽（FWHM）约为≈5ns，未见振铃或反射。其（绝对值）

[1]Heinzinger LNC3000-20 正极性高压电源，最高电压 3 kV。[2]FAST ComTec TA1000B-10，直流耦合，3 dB 带宽为 710 MHz，最大输出电压为 ±1.3 V。[3]Phillips Scientific 704，具有四个通道，最高连续重复频率为 300 MHz。

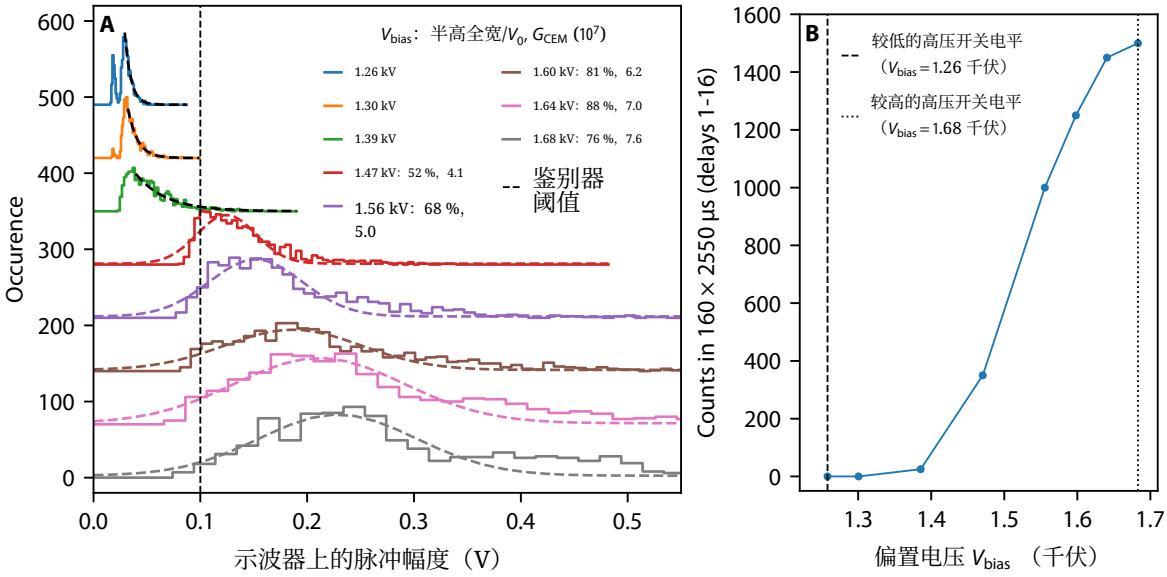


图 4.35：（**A**）2S-6P测量期间用作底部探测器的通道电子倍增器（CEM）在不同偏置电压下的脉冲高度分布（实线）。当 $V_{\mathrm{bias}} \lesssim$1.4kV时，分布近似呈指数形式（黑色虚线）。随着 V_{bias}增大，高斯分布（虚线）能更好地描述该分布，其特征参数为半高全宽/V_0；其中，半高全宽是指半高处的全宽，V_0 为分布的平均值。（**B**）延迟1-16内的计数随 V_{bias}的变化。电离压力计产生的带电粒子用作输入粒子。CEM输出端的脉冲高度只有示波器检测到的脉冲高度的一半。详情见正文。

脉冲振幅分布称为脉冲高度分布（PHD），由示波器记录。图 4.35 (A) 显示了在 2S-6P测量期间，将通道电子倍增器用作底部探测器时，不同偏置电压下的PHD V_{bias}。当 V_{bias} 较低时（图 4.35 中为$\lesssim$ 1.4kV），通道电子倍增器的增益尚未饱和，PHD近似呈指数分布（图 4.35 (A) 中的黑色虚线）。随着 V_{bias} 升高，增益随之增加；当增益开始饱和时（图 4.35 中为$\approx$ 1.6kV），分布开始呈现高斯分布的形状（图 4.35 (A) 中的虚线）。这标志着脉冲计数模式的开始 [143]。所得分布通常用其半高全宽除以平均值来表征，即 FWHM/V_0；本文使用的通道电子倍增器该值介于 40 % 至 110 % 之间，图 4.35 中通道电子倍增器的该值为 $\approx$80 %。图 4.35 (B) 所示的计数率随 V_{bias}的变化，也是判断偏置电压与鉴别器阈值的组合是否合适的重要指标，因为在该点附近，计数率应不受这两个参数具体取值的影响 V_{bias} [1]。超过该点后继续增大 V_{bias}，最终会导致计数率大幅上升，因为离子反馈会扰乱增益机制 [143]。在实验中，利用PHD和计数率的变化来确定通道电子倍增器处于脉冲计数模式时的 V_{bias} 值；对于图 4.35 的数据，该值确定为 $V_{\mathrm{bias}} = 1.68$kV。此处以及图 4.35 中的这一过程，通常使用来自电离压力计的带电粒子作为输入粒子（见第 4.2.4 节）。通常，使用

[1]此处，为避免损坏通道电子倍增器，将 V_{bias} 的增幅控制在远低于脉冲计数模式起始点的范围内。

转而测量2S-6P跃迁的荧光，当然，整个实验都需要在此模式下运行。然而，由于荧光的计数率高得多，这可能会降低CEM的增益，如上文所述， V_{bias} 有时需要进一步提高40 V..... 80 V。还可以根据图 4.35 (A) 的数据，通过由 V_0 和脉冲长度推导脉冲中的平均电荷，来估算CEM的增益 G_{CEM}。考虑到前置放大器、衰减器和分配器组合所带来的额外2倍电压增益，该估算得出 $G_{\mathrm{CEM}} = 7.6 \times 10^7$ 在 $V_{\mathrm{bias}} = 1.68\,\mathrm{kV}$时的值。实验中以此配置使用的通道电子倍增器的暗计数率通常低于10 cts/s。

从通道电子倍增器中提取的电荷越多，在给定偏置电压下，其增益往往越低。这种老化被认为源于输出 [143, 146]附近通道表面的劣化。因此，需要定期检查通道电子倍增器在脉冲计数模式下运行时所需的偏置电压 V_{bias} ；在2S-6P测量期间，每个测量日都按照上文详述的方法进行了检查。由于老化，在此次测量过程中， V_{bias} 顶部探测器的电压需要从1.51 kV提高到1.64 kV，底部探测器的电压则需要从1.64 kV提高到1.9 kV。

4.6.3 通过光电离2S原子使通道电子倍增器饱和

如上一节所述，若要保持脉冲高度分布不变，通道电子倍增器只能承受一定的最大计数率；同时，高计数率运行会缩短通道电子倍增器的寿命。遗憾的是，1S-2S制备激光器会使亚稳态2S原子发生光电离（见第2.2.6节），导致光学斩波器亮相位期间探测器内产生大量光电子（如下文所述，散射光子只起次要作用）。通道电子倍增器很容易探测到这些电子，计数率可超过 1×10^7计数/秒，其上限仅受可用偏置电流限制，因此远高于脉冲计数模式下可持续的计数率。通道电子倍增器过载还会影响暗阶段的运行，此时制备激光器已被遮挡，同时其寿命也会大幅缩短。

图4.36展示了在这些条件下对通道电子倍增器性能进行测试测量的结果，涵盖亮相位和暗阶段。数据使用较早设计的氢喷嘴采集（与2S-4P测量期间使用的是同一个喷嘴）。该喷嘴的工作特性与此处使用的喷嘴不同，后者已在上文介绍；前者的工作温度略高，为 $T_{\mathrm{N}} = 5.8\mathrm{K}$，氢气流量则远高于后者，为$Q_{\mathrm{H_2}} = 1.95\mathrm{ml/min}$。此外，探测器的所有有效表面均涂覆了石墨，且可变孔径宽度设为 $d_2 = 2\mathrm{mm}$。测试测量使用了顶部探测器；与2S-6P测量期间安装的通道电子倍增器类型相同，但并非同一个，阻值为$R_{\mathrm{CEM}} = 13.5\mathrm{M\Omega}$。图4.36 (A)显示了顶部探测器的计数率随延迟时间 τ的变化，数据取约 8 分钟的平均值；其中 $\tau < 3125\,\mu\mathrm{s}$和 $\tau \geq 3125\,\mu\mathrm{s}$分别对应暗阶段和亮相位。请注意，图中未涵盖完整的亮相位，该相位会持续至 $\tau = 6250\mu\mathrm{s}$。光谱激光器始终与2S-6P跃迁共振。亮相位期间的计数率遵循前文所述的典型模式，且低于1 Mcts/s；而在亮相位期间，计数率会饱和于 $\approx 18\mathrm{Mcts/s}$，接近偏置电流所允许的最大上限。增强腔稳频的瞬态振荡（此处未显示，见第 4.3.3.5 节）

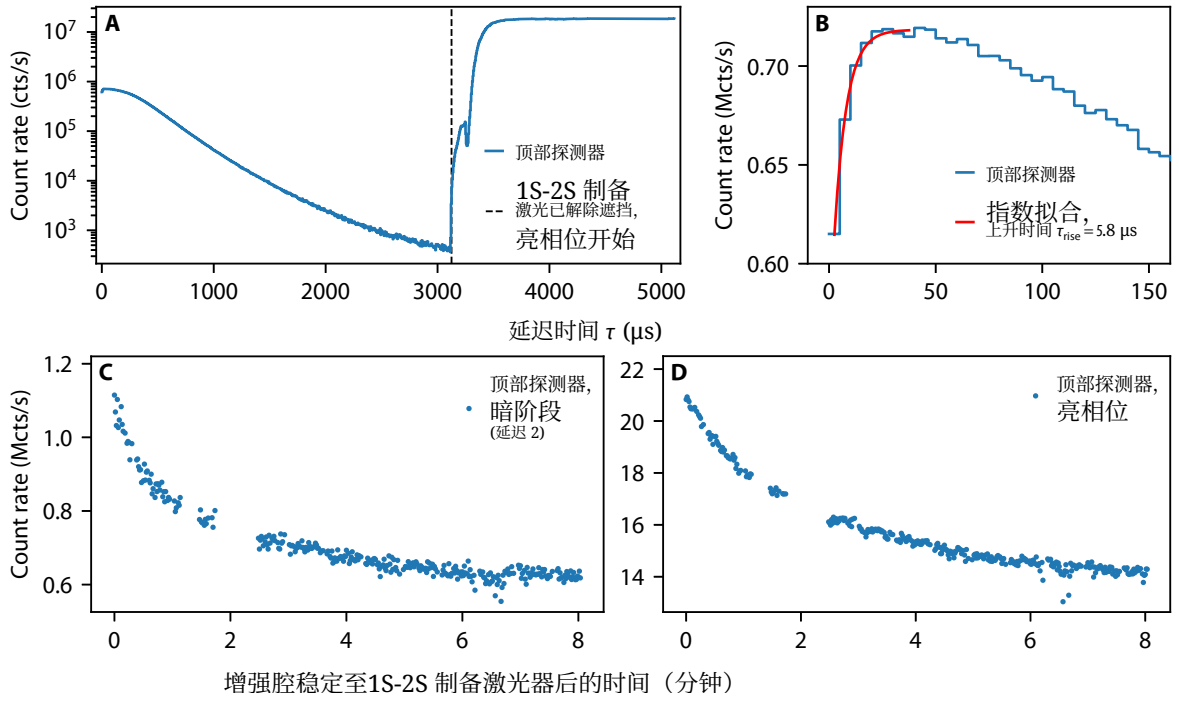


图 4.36：暗相位和亮相位期间顶部探测器的计数率（蓝色线条和圆圈），即光学斩波器分别阻断和放行1S-2S 制备激光器时的计数率。（**A**、**B**）计数率随延迟时间的变化，以及（**C**）暗相位和（**D**）亮相位下计数率随测量时间的变化。采用形式为 $a(1-b\exp((t-t_0)/\tau_{\mathrm{rise}}))$的指数拟合（红线）拟合计数率的初始上升段（$\tau < 40$微秒），其中 a、 b、t_0和 τ_{rise} 为自由参数，得到的上升时间为 $\tau_{\mathrm{rise}} = 5.8$微秒。数据使用早期设计的氢喷嘴采集，该喷嘴的行为与本文使用的喷嘴不同；其工作温度为 $T_{\mathrm{N}} = 5.8$开尔文，氢气流量为 $Q_{\mathrm{H_2}} = 1.95$毫升/分钟。探测器的所有活性表面均涂覆了石墨。2S-6P 光谱激光器和1S-2S 制备激光器的功率分别为 $P_{\mathrm{2S\text{-}6P}} = 30$微瓦和 $P_{\mathrm{1S\text{-}2S}}$ =0.95瓦，可变光阑的宽度设为 $d_2 = 2$毫米。详情见正文。

体现在亮相位开始时的计数率中。有趣的是，暗阶段开始时，也就是制备激光器被遮挡后，计数率会在最初几微秒内上升，如图4.36 (B)的细节所示。荧光本身不会产生这种现象，因为2S-6P光谱激光器始终开启，而且2S原子的通量在初始上升所经历的时间尺度内不会变化。这里将这一现象归因于通道电子倍增器本身：它在计数率骤降后进行调节，其时间尺度由通道电子倍增器和高压电源的有效RC时间常数 τ_{rise} 决定。指数拟合（红线）得出 $\tau_{\mathrm{rise}} = 5.8$ µs。

测试测量开始后数分钟内，计数率也会下降，如图 4.36 (C) 和 (D) 所示，这分别影响暗阶段和亮相位。在此期间，制备激光器和光谱激光器的功率均保持恒定，氢气流量和喷嘴温度也保持不变。此外，在增强腔稳定到制备激光器之前 15 min，氢放电便已启动，喷嘴也已冷却；这对应于测试测量的开始。同时，通道电子倍增器（CEM）的脉冲高度分布（PHD）从高斯分布变为指数分布；此前，在低计数率下运行两小时期间，该分布一直保持稳定

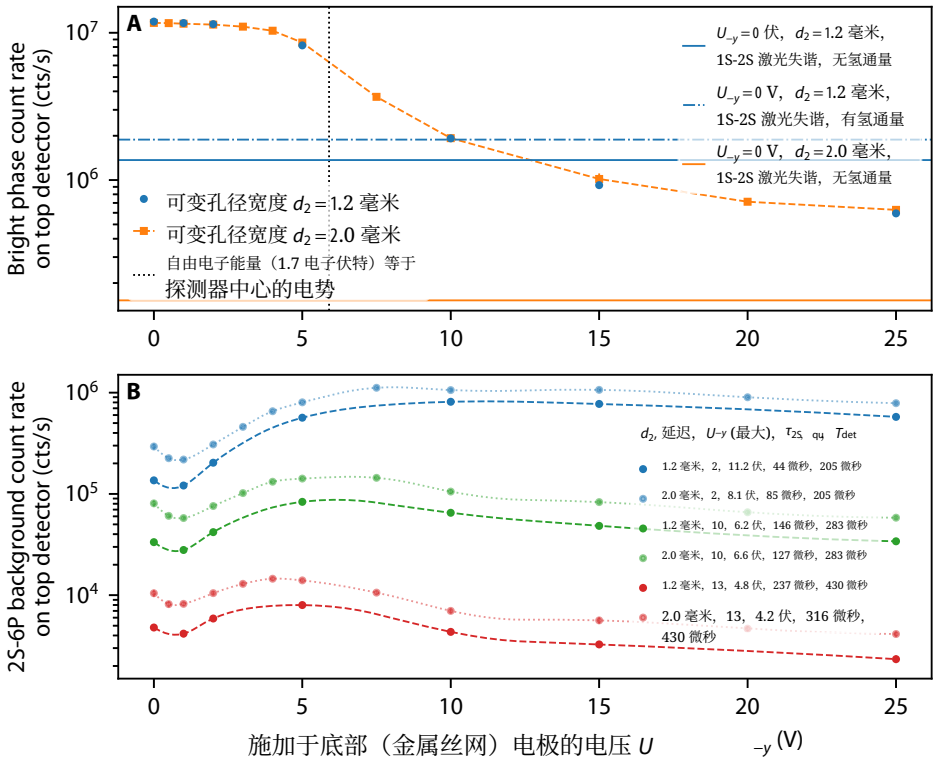


图4.37：顶部探测器在（**安培**）亮相位和（**B**）暗阶段的计数率，随施加于底部电极的正电压 U_{-y} 变化。实验条件与图 4.36 相同，但 2S-6P制备激光器保持失谐。详情见正文。

，而施加到通道电子倍增器（CEM）的高电压始终保持恒定。因此，高计数率似乎会降低通道电子倍增器（CEM）的增益，进而使其不再以脉冲计数模式运行，导致暗阶段统计到的脉冲数量也减少。与脉冲高度分布（PHD）在几分钟内发生变化类似，停止测试测量后，分布也不会立即恢复到先前状态。不过，关闭通道电子倍增器（CEM）几分钟后，脉冲高度分布（PHD）便会恢复到原始状态。

第一次测试测量两周后，又进行了第二次测试测量，以确定亮相位期间计数的来源。除以下情况外，参数均与第一次测量相同：2S-6P光谱激光器保持失谐，且可变孔径宽度初始设为 $d_2 = 1.2$毫米。图 4.37（A）显示了亮相位期间顶部探测器的计数率与施加于探测器组件内部区域底部电极的电压 U_{-y} 之间的关系。在 $U_{-y} = 0$伏时，系统中没有氢气流入，且制备激光器相对于 1S-2S跃迁失谐 $\Delta\nu_{1S\text{-}2S} = 200$千赫兹，但在增强腔内以 $P_{1S\text{-}2S} = 0.95$ 瓦循环运行，可观察到 1.4 Mcts/s 的计数率（蓝色实线）。这些计数归因于沿光束路径从孔径处散射出增强腔的光子。开始向腔体通入原子氢流量后，尽管制备激光器仍处于失谐状态，计数率仍增至 1.9 Mcts/s（蓝色点划线）。这一增加可能源于对 2S原子的多普勒展宽激发。

Sett将制备激光器的频率调至与无多普勒1S -

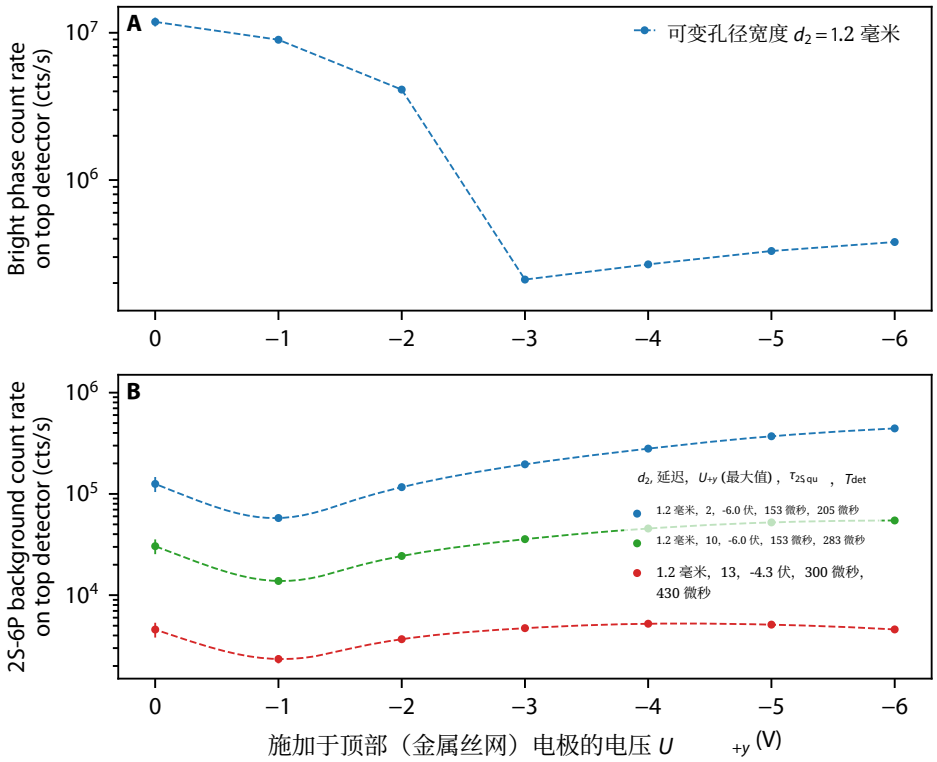


图4.38：与图 4.37 类似，但对上电极施加负电压 U_{+y}，而非底部电极。详情请见正文。

2S跃迁共振，可使计数率提高近一个数量级，达到11.9 Mcts/s（蓝色圆点）。如果这些额外计数源自2S原子光电离产生的电子，那么可以通过电场将电子拉向底部探测器，从而减少计数数量。为此，U_{-y} 增大，同时其他所有电极均保持接地。这使探测器中心处产生了分别为 $F_0 = U_{-y} \times (21.7\,1/\mathrm{m})$和 $U_0 = 0.288\,U_{-y}$的电场与电势，该结果由模拟确定（见第4.6.7节）。由于光电子的能量为1.70电子伏特（见第2.2.6节），当电压为 $U_{-y} = 1.70/0.288 = 5.9$V时（黑色虚线），它们应无法逃逸至顶部探测器。实际上，这一条件并不那么严格，因为2S原子会在原子束经过的所有位置发生光电离，而电势朝电极中的孔径方向逐渐降低（在孔径处仅为 $U \approx 0.03\,U_{-y}$）。随着 U_{-y} 增大，确实观察到了预期行为：计数率在约 $U_{-y} = 5$V时开始下降，并在 $U_{-y} = 10$ V时达到1.9 Mcts/s。电压进一步升高时，计数率会低于制备激光器失谐时的数值。这是因为散射光子预计主要通过探测器壁发射光电子的方式被探测到，而从内部区域内发射的光电子同样会被拉向底部探测器。

将可变孔径宽度增至 $d_2 = 2.0$mm 后重复测量（橙色点和虚线）。孔径宽度增大并未明显改变计数率。如果大多数计数来自 2S原子 的光电离，那么这种现象是可以预期的，因为原本会被较窄孔径挡住的大多数原子

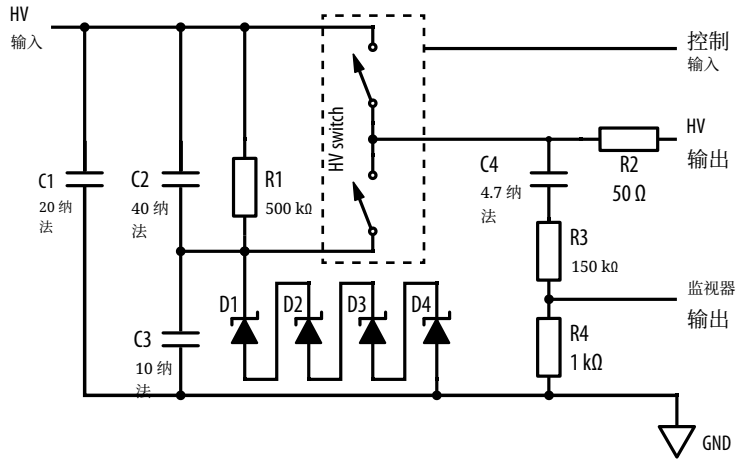


图 4.39：高压开关的电路图。图中所示电路集成了用于顶部探测器的 Behlke HTS 41-03-GSM 开关（虚线框）。用于底部探测器的电路集成了 HTS 31-01-GSM 开关，除此之外与前者相同，R1 的电阻为 1 MΩ。齐纳二极管的数量及击穿电压（此处显示了四个二极管 D1–4）会根据需要进行调整。详情请参阅正文。

不会再次穿过制备激光器的光束。随着 U_{-y} 增大，观察到的现象与前一种情况非常相似。另一方面，不含氢时的计数数量大幅降至 0。15 Mcts/s（橙色实线），因为散射到孔径上的光子减少了。

一种互补测量方法不是向下电极施加正电压，而是向上电极施加负电压 U_{+y}。当 U_{+y} 足够大时，这同样可以防止光电子到达顶部探测器。测量结果（此时仍为 $d_2 = 1.2\,\mathrm{mm}$）如图 4.38 所示。这里同样观察到了计数率受到抑制，但所需电压约低一半。这可能是因为顶部区域内将电子引导至通道电子倍增器的电场也受到了扰动。事实上，上电极正上方的场线指向探测器圆筒的壁面，因为通道电子倍增器产生的电场在该区域较弱。

4.6.4 通道电子倍增器的增益切换

如上一节所述，亮相位期间 CEM 的计数率很高，远超可持续范围，这会改变脉冲高度分布（PHD），导致暗阶段开始时出现瞬态非线性探测器响应，并缩短 CEM 的寿命。原则上，增益下降可以通过提高偏置电压来补偿，但 CEM 在暗相位和亮相位计数率差异极大的情况下会如何表现，尚不明确[1]。例如，这可能会缩小暗相位的动态范围，从而使 2S-6P 共振的线型发生畸变。

解决这一问题的一种方法是在亮相位期间大幅降低增益，使通道电子倍增器实际上被关闭，几乎没有电流从放大

[1]原则上，可以使用射频开关分别观测暗相位和亮相位的 PHD，以对此进行研究。

后的脉冲中流过[1]。这里通过使用高压（HV）开关降低偏置电压 V_{bias} 来实现这一点。为避免干扰暗阶段开始时的荧光计数率，这种增益切换需要在几微秒内完成。为此，使用推挽晶体管开关[2] 改变施加于通道电子倍增器极板的电压 V_{flap} ，从而通过 $V_{\mathrm{bias}} = 0.85\,(V_{\mathrm{flap}} - V_{\mathrm{in}})$ 获得较低的增益电压。在暗阶段，开关将V_{flap} 设为$V_{\mathrm{flap,\ high}}$，此时通道电子倍增器处于脉冲计数模式；而在亮相位期间， V_{flap} 设为$V_{\mathrm{flap,\ low}} < V_{\mathrm{flap,\ high}}$，因此几乎检测不到输出脉冲（见图 4.35（B））。$V_{\mathrm{flap,\ high}}$ 直接取自高压电源，而$V_{\mathrm{flap,\ low}}$ 则取自$V_{\mathrm{flap,\ high}}$ ，并通过接地的齐纳二极管构成类似稳压器的电路[3]。相应的电路图如图 4.39 所示，其中$V_{\mathrm{flap,\ high}}$ 施加于高压输入端，通道电子倍增器极板连接至高压输出端。通过选择并串联具有不同击穿电压的齐纳二极管，可以几乎任意地选取$V_{\mathrm{flap,\ low}}$ ，从而使其与通道电子倍增器的增益特性相匹配。需要注意的是，将$V_{\mathrm{flap,\ low}}$设为接地会导致通道输出端—收集极间隙两端产生很大的电势差，并由于输入端仍保持正电压而使通道内部的场反向，这两种情况都应避免。在2S-6P测量期间，$V_{\mathrm{flap,\ low}}$ 对于顶部和底部探测器分别设为1。76千伏和1。85千伏。

将函数发生器在斩波器触发信号触发下产生的 TTL 信号施加到高压开关的控制输入端，其中高电平对应于开关的高压输出设为高电平。TTL 信号的上升沿相对于斩波器触发信号的下降沿延迟 2 µs，标志着暗阶段的开始；该信号保持高电平 2。6 ms。因此，覆盖了完整的延迟时间$\tau = 10\,\mu\mathrm{s}$ .....2560 µs，在此期间对 2S-6P 荧光进行计数。根据交流耦合监视输出端（见图 4.39）测得，高压输出的上升和下降时间为 ≈200ns；TTL 信号与高压输出之间的延迟同样为 ≈200ns，完全满足上述要求。然而，高压开关的内部功率驱动器会每隔数百 µs 在高压输出端产生脉冲。这些脉冲与通道电子倍增器的输出脉冲相似，会被数据采集系统计数。在高压输出端与通道电子倍增器之间接入一个 RC 时间常数为 680 ns 的低通滤波器，足以将这些脉冲的振幅降至可忽略的程度，同时使上升和下降时间保持在可接受范围内。切换过程中，高压输出端也会出现振幅更大的脉冲，无法被完全抑制。不过，由于切换发生在荧光计数之前和之后，因此会排除由此产生的杂散计数。由于这些杂散计数也会干扰 PHD 的测量，在用于该测量的示波器前安装的射频开关（见第4.6.2节）会在增益切换期间阻断来自通道电子倍增器的所有信号。

首先使用来自电离压力计的带电粒子测试通道电子倍增器的增益切换，这与第4.6.2节中测量脉冲高度分布时所采用的方法相同，因为这些粒子产生的计数率恒定且不随时间变化，约为 10 千计数每秒 /s。测试使用的顶部探测器与第4.6.3节所述测试测量中使用的相同。在切换 V_{flap} 从$V_{\mathrm{flap,\ low}}$

[1]在 2S-4P测量期间，使用射频开关阻止通道电子倍增器的计数在亮相位到达鉴别器。然而，这并不能避免对通道电子倍增器本身造成不利影响。[2]Behlke HTS 31-01-GSM 和 HTS 41-03-GSM 的最大工作电压分别为 3 kV 和 4 kV。[3]最初，$V_{\mathrm{flap,\ high}}$ 和 $V_{\mathrm{flap,\ low}}$ 均由独立的高压电源供电。但后来发现，这会限制开关速度，因为切换时，存储在通道电子倍增器中的电荷必须流经电源。相比之下，使用齐纳二极管可使电荷通过低得多的电阻流向地。

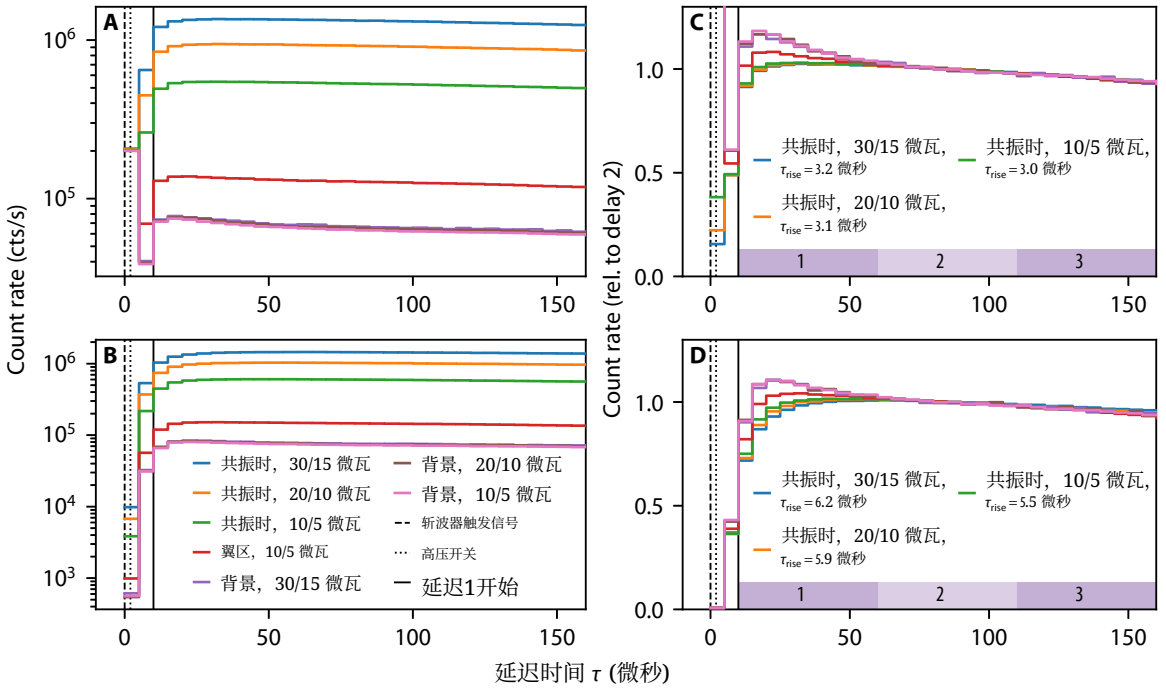


图4.40：在2S-6P测量的B次运行期间，**(安培，摄氏度)**顶部探测器和(B，D)底部探测器的时间分辨荧光计数率（见表6.1）。这里只显示 $\tau < 160$微秒的数据（完整数据见图4.32）。(C, D)显示与(A, B)相同的数据，但归一化至延迟 2期间的平均计数率。(B)中的图例适用于所有图，其中共振时、翼区和背景分别对应2S-6P光谱激光器相对于共振的失谐为 $|\Delta\nu_{\text{2S-6P}}| = 0$兆赫兹、8兆赫兹.....10兆赫兹和50兆赫兹。数据还按2S-6P$^{1/2}$/2S-6P$^{3/2}$ 跃迁的光谱激光功率 $P_{\text{2S-6P}} = 30/15$微瓦、 $20/10$微瓦和 $10/5$ 微瓦分组（数据组G1B/G7B、G2/G8、G3/G9，见表6.2）。标出了斩波器下降沿触发（$\tau = 0$ 微秒，黑色虚线）、高压开关上升沿（$\tau = 2$ 微秒，黑色点线）和延迟1开始（$\tau = 10$微秒，黑色实线）对应的延迟时间。(C)和(D)中的图例显示了共振时荧光计数率的上升时间 τ_{rise}，该值通过在5微秒 $\leq \tau < 40$微秒内进行指数拟合确定，方法与图4.36类似。

至$V_{\text{flap, high}}$时，计数率以 $\tau_{\text{rise}} = 2\,\mu\text{s} \ldots 3\,\mu\text{s}$的时间常数趋于稳定；这被认为受通道电子倍增器自身电容的限制，与未使用高压开关时因饱和而观察到的行为相似（参见第4.6.3节和图4.36 (B)）。初始上升后，计数率还会以长得多的 ≈300μs 时间常数继续增加，增幅约为 1.7 %，在高压输出电压上也观察到了这一现象。两个高压开关的行为完全相同。当高压输出处于低电平时，即$V_{\text{flap, low}}$，计数率为零。

整个 2S-6P测量过程中都使用了高压开关。图 4.40 显示了测量的 B次运行期间（见表6.1），延迟时间为 $\tau < 160$微秒时的荧光计数率。数据分为共振时、翼区和背景，分别对应 2S-6P光谱激光器相对于共振的失谐为 $|\Delta\nu_{\text{2S-6P}}| = 0$兆赫兹、8 兆赫兹.....10 兆赫兹和 50 兆赫兹；此外，还按 2S-6P$^{1/2}$/2S-6P$^{3/2}$ 跃迁的光谱激光功率 $P_{\text{2S-6P}}$ =$30/15$ 微瓦、 $20/10$ 微瓦和 $10/5$微瓦分组。激光功率为 $P_{\text{2S-6P}} = 30/15$ 微瓦时，最大共振计数率达到 ≈1.4 Mcts/s。可以看到高压输出切换至高电平时产生的杂散计数（黑色虚线），其中顶部探测器受影响更明显

受到的影响更大。图 4.40 (C) 和 (D) 所示的归一化计数率中，可以清楚地看到增益切换导致荧光计数率最初的上升。对共振计数率在 5 微秒 $\leq \tau < 40$微秒范围内进行指数拟合（未显示），得到顶部和底部探测器的上升时间分别为 3.0 微秒.....3.2 微秒和 5.5 微秒.....6.2 微秒。探测器之间的差异归因于其电阻 R_{CEM} 不同，这是由底部探测器处于低温所致（见第4.6.2节）。随着激光功率降低，上升时间略有下降，且这一变化具有统计显著性；这表明上升时间可能略微依赖于计数率，而计数率与激光功率呈线性关系。

如预期，本底计数率对于所有激光功率几乎完全相同，即背景与幅度之比会随着激光功率降低而增大。然而，在最初的50 μs内，相较于共振计数率，本底计数显示出明显的额外计数，并叠加在增益切换带来的上升沿上。由于共振计数率至少是本底计数率的7倍，因此预计在后者中无法观察到这一额外计数。不过，目前尚不清楚当激光与2S-6P跃迁共振时是否也存在这一额外计数，因为来自2S原子的背景信号无法轻易与6P能级衰变产生的强得多的荧光区分开来。然而，如果将激光调至非共振状态，而是调到共振线翼部，使6P荧光产生的计数率与背景相同（红线），那么如果该额外计数确实仅存在于背景信号中，其强度应减半。实际情况确实如此，且这一点十分明显。如第4.5.2.4节所述，这一额外计数可能是由尚未热化或仅部分热化至喷嘴温度的原子造成的，但仍需开展进一步实验（例如使用不同的喷嘴设计）来研究这一假设。

在亮相位期间，顶部探测器平均检测到的计数少于 0.03 cts/s。另一方面，底部探测器的增益降低幅度没有那么大，在亮相位期间平均仍能检测到 51 cts/s。利用激光处于共振和失谐状态时残余亮相位计数率之比，以及暗阶段开始时相应的计数率，可以估算出若不进行增益切换，探测器在亮相位期间承受的计数率将接近 10 Mcts/s。该计数率远远超过脉冲计数模式下可持续的计数率，并会导致脉冲高度分布发生改变，如第4.6.3节所示。此外，这一亮相位计数率是暗阶段平均计数率的 30 倍，因此，预计增益切换可使通道电子倍增器的寿命（以累积电荷衡量）延长 30 倍以上。

4.6.5 与探测效率相关的探测器特性

在 [143, 147] 中发现，对于动能在 200 eV 至 700 eV 范围内的电子，通道电子倍增器的探测效率高于 90 %。这里，通道电子倍增器的输入表面比其余接地探测器表面高 $V_{\mathrm{in}} = 270$V，因此，从这些表面发射或反射的光电子能量接近 270 eV，因为与从电场获得的能量相比，它们的初始动能可以忽略不计（见下文）。因此，此处假设光电子的探测效率为 $\approx$90%。在 [148] 中测得，光子探测的量子效率对于 Ly-ϵ 光子（$h\nu = 13.22$eV）为 $\approx$10%，对于 Ly-α 光子（$h\nu = 10.20\,$eV）为 $\approx$2%。另一方面，根据 [149]，1S-2S 制备激光器发出的光子（$h\nu = 5.10$eV）仅以 $\sim 1 \times 10^{-8}$ 的量子效率被探测到。覆盖通道电子倍增器输入锥边缘的小型钛帽与输入表面本身处于相同电势。钛的二次电子产额

表 4.1：探测器中与探测效率建模相关的材料特性。详情见第4.6.5节；提取这些特性所依据的测量结果见图B.1。这里只列出与2S-6P和2S-4P测量建模相关的光子能量。

材料	光子	$h\nu$ (电子伏特)	Y_{el} (%)	P_{ph} (%)	n_{r}	$E_{\mathrm{el},\ 0}$ (电子伏特)	Γ_{el} (电子伏特)	P_{el} (%)
胶体石墨 (gr)	1S-2S	5.10	0.0006	—	—	—	—	—
	Ly-α	10.20	0.7	≈7	1.7	—	—	—
	Ly-γ	12.75	4.1	≈15	2.2	2.4	2.5	≈60
	Ly-ϵ	13.22	4.8	≈15	2.2	2.5	2.8	≈60
氧化的铝 (Al)	1S-2S	5.10	0.0009	—	—	—	—	—
	Ly-α	10.20	3.9	≈40	4.4	—	—	—
	Ly-γ	12.75	18	≈15	2.2	1.9	2.4	≈10
	Ly-ϵ	13.22	20	≈15	2.2	1.9	2.4	≈10

对于 270eV 电子，钛的二次电子产额为 ~ 2 [150] ，因此此处假设任何撞击小型盖帽的电子都等同于撞击通道电子倍增器的输入表面，即$P_{\mathrm{det,\ Ti}} = 100\%$。

探测器的活性表面要么涂有胶体石墨，要么由氧化铝构成。这些材料的功函数分别为 4.6 电子伏特和 4.0 电子伏特 [133],因此，只有莱曼衰变产生的光子才具有足够的能量来逸出光电子，其中 $h\nu \geq 10.20$电子伏特。如表 2.2 和 2.3 所示，对于 2S-6P 跃迁，这些衰变中有 91 % 是 Ly-ϵ ($h\nu = 13.22$ 电子伏特)，7 % 是 Ly-α ($h\nu = 10.20$ 电子伏特)，而 Ly-β ($h\nu = 12.09$电子伏特)和 Ly-γ ($h\nu = 12.75$ 电子伏特)仅分别占莱曼光子的 1.3 % 和 0.3 %。与荧光探测的空间探测效率和光谱灵敏度建模相关的两种材料的特性列于表 4.1，并将在下文讨论。

对两种材料[1] 在 [133] 以近法向入射、角度为 $\alpha = 7.5°$时，测量了光电子产额 Y_{el}、光子反射率 P_{ph}和光电子能量分布。测量结果见图B.1（A–C），以供参考。值得注意的是， [133] 中使用的铝样品暴露在大气中至少数天，因此应该与此处使用的铝部件一样覆盖有氧化层。请注意，此处将 Y_{el} 定义为每个入射光子逸出的光电子数量，而非每个吸收光子逸出的数量；后者由 $Y_{\mathrm{el}}/（1-P_{\mathrm{ph}}）$给出。利用菲涅耳方程，可以根据 P_{ph}计算材料的折射率n_{r} ，因为在近法向入射时，s偏振光和p偏振光的反射率足够相近。胶体形式的石墨未测量光电子能量分布，而是在原子级洁净样品上进行了测量；此处假设两者的分布相同。如表 4.1所示，这两种材料的分布均可用以能量E_{el}为中心、半高全宽（*FWHM*）为的正态分布描述*0* 。

测量了胶体石墨的电子反射率 P_{el} [2] [140], ，以及非

[1]在 [133], 中，测量了使用 Aquadag 制成的涂层的胶体石墨性质。Aquadag 是胶体石墨在蒸馏水中的悬浮液。这里使用的是悬浮于异丙醇中的胶体石墨。假设干燥后涂层的性质相当。[2]在 [140], 中，使用 DAG 580 涂覆石墨涂层。DAG 580 是胶体石墨在乙醇中的悬浮液，假设其性质与此处制备的涂层相似。

氧化铝在 [151]中的电子反射率，结果如 [152]所示。两组测量结果均作为参考列于图B.1 (D) 中。对于表 4.1 中给出的 P_{el} 值，假定入射电子能量对应于$E_{\mathrm{el},\ 0}$。此处二次电子的发射可以忽略，因为只有能量最高的光电子，其能量略高于所考虑材料的功函数。假定电子和光子的散射均为漫散射，因为表面不规则性被认为远大于粒子的波长（能量为 1 电子伏特的电子，其德布罗意波长为 1.2 纳米）。

由于 Ly-α 光子的光电子产额仅为 Ly-ϵ光子产额的 15 % .. 20 %，Ly-α 光子仅占探测信号的 $\approx$1%，与 Ly-β 和 Ly-γ 衰变的贡献相近。因此，为了以足够的准确度建立探测器模型，只需考虑 Ly-ϵ 光子。此外，Ly-ϵ 光子在氧化铝上的光电子产额是其在胶体石墨上的 4.2 倍。将探测器材料从石墨涂层铜更换为铝后，确实观察到了相应的信号增强。

4.6.6 空间探测效率的模拟

为估算空间探测效率，采用蒙特卡罗粒子追踪模拟[1]对 Ly-ϵ 光子的探测过程进行建模。为此，对探测器圆筒的几何结构进行近似，其表面分别设为胶体石墨或铝。电极孔径建模为石墨涂层管，远端封闭，长度为 $\approx$23mm，截面适当。电极金属丝网和探测器圆筒底部建模为石墨涂层表面；对于光子和电子，两者的透射率分别为T_{WM} 和 $T_{\mathrm{WM,\ BD}}$。对于电极，穿过电极的粒子会进入探测器圆筒的顶部或底部区域，而穿过探测器圆筒底部的粒子则从模拟中消失。每种表面类型均赋予光电子产额 Y_{el}、光子反射率 P_{ph}、电子反射率 P_{el}，以及中心位于 $E_{\mathrm{el},\ 0}$ 、半高全宽为 Γ_{el} 的高斯光电子能量分布；相应数值取自表 4.1。

所有表面均接地，只有 CEM 输入表面保持在 270 V。通过有限差分法求解拉普拉斯方程，得到顶部和底部区域内部的电场。计算步长设为 0.2 mm，并进行 2×10^5 次迭代。假设中央部分（即光谱区）不存在电场。

荧光光子从相互作用点发射出来。采用球坐标，其中极角 $\theta = -90° \ldots 90°$ 相对于垂直的 y-轴测量，即探测器圆筒的轴线；方位角 $\phi = -180° \ldots 180°$ 相对于原子束（z-）轴测量。对于模拟的每次运行，随机选取 M 个发射方向，此处采用 $M = 2 \times 10^5$ 。对于每个发射出的光子，或每条轨迹，都会随机选取一个发射方向，光子随后穿过真空，直至遇到表面。根据表面的性质，光子可能被反射、被吸收并发射出一个光电子，或被吸收（或进入低温泵），轨迹随之终止。计算中不考虑光子的偏振和入射角，即假设 Y_{el}、 P_{ph} 和 P_{el} 彼此独立

[1]该模拟使用 Object Pascal 编程语言编写，并使用 Embarcadero Delphi10.3。原始版本由 Arthur Matveev 创建，随后由作者进行了改编和修改。

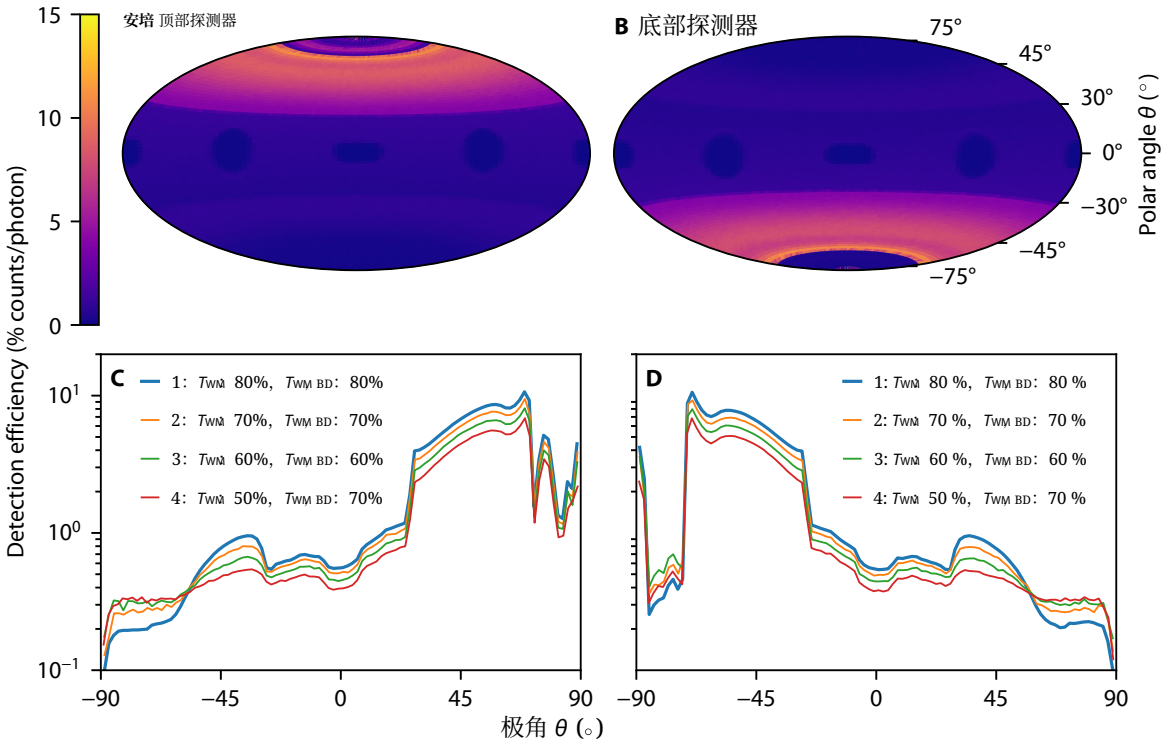


图 4.41：在采用表 4.1 中给出的材料属性和 $T_{\mathrm{WM}} = T_{\mathrm{WM,BD}} = 80\,\%$ 的金属丝网透射率时，**(A)** 顶部和 **(B)** 底部探测器的空间探测效率随荧光发射方向的变化。采用球坐标，极角 $\theta = -90° \ldots 90°$相对于竖直的 y轴（即探测器圆筒的轴）测量，方位角$\phi = -180° \ldots 180°$ 相对于原子束（z-）轴测量。将所得球面投影到二维平面时采用等面积哈默投影。**(C、D)** 对于不同的模拟参数，**(C)** 顶部和 **(D)** 底部探测器的探测效率随极角 θ的变化，其中对方位角 ϕ取平均值。**(A、B)** 中的数据分别对应 **(C、D)** 中的粗蓝线。

且均独立于两者[1]。这一假设部分源于表面存在较大的不规则度，这应该会减弱其对入射角的依赖。

光子和电子的漫反射，以及光电子的发射，其角分布均假定服从（朗伯）余弦定律（见公式（4.28））， 即发射角是随机确定的。若发射出光电子，则从发射表面的高斯分布中随机抽取其能量。电子轨迹受洛伦兹力作用下的局部电场影响；电子撞击表面时，同样会被反射或吸收。该过程持续进行，直到光子或电子被吸收，或撞击某个通道电子倍增器的输入表面。后一种情况下，计数信号将被记录在相应的探测器上，电子和光子的记录概率分别为 90 %

[1]将这些效应纳入模拟的工作超出了本文的范围，尤其是因为在此所需的参数区域内，关于光电发射偏振依赖性的实验数据十分有限。不过，未来的工作应评估是否需要仅凭模拟数据校正量子干涉等偏振依赖效应。对于 2S-6P测量，采用精细结构质心可将量子干涉效应降低至可忽略的程度，而无需在很大程度上依赖探测效率模拟的准确度。

表4.2：图 4.41 所示探测效率模拟的参数与结果概览。详情请参阅正文。

Set	T_{WM} (%)	$T_{\mathrm{WM,BD}}$ (%)	P_{ph} (%) gr	Al	P_{el} (%) gr	Al	$P_{\mathrm{det,Ti}}$ (%)	$P_{\mathrm{DE,TD}}$ (%)	$P_{\mathrm{DE,BD}}$ (%)	$\eta_{\mathrm{DE,TD}}$ (%)	$\eta_{\mathrm{DE,BD}}$ (%)
1	80	80	15	15	60	10	100	2.22	2.09	30.5	26.1
2	70	70	15	15	60	10	100	1.99	1.86	30.2	25.8
3	60	60	15	15	60	10	100	1.75	1.63	30.1	26.1
4	50	70	15	15	60	10	100	1.47	1.38	30.1	26.0

和 10 %。通过这种方式总共计算 $N_{\mathrm{traj,\ ph}}$ 条轨迹，其中 $N_{\mathrm{traj,\ ph}}$ 通常约为 1×10^8。

两个探测器的空间探测效率随荧光发射方向变化的结果如图 4.41 (A, B) 所示，采用表 4.1 中给出的材料属性以及$T_{\mathrm{WM}} = T_{\mathrm{WM,\ BD}} = 80\%$ 的金属丝网透射率。使用球坐标，极角 $\theta = -90° \ldots 90°$ 相对于垂直的 y 轴测量，即探测器圆筒的轴线；方位角 $\phi = -180° \ldots 180°$ 相对于原子束（z）轴测量。同一组数据对 ϕ取平均后，分别以粗蓝线显示在图 4.41 (C) 和 (D) 中，对应顶部和底部探测器。在各自的半球内，探测效率最高；当荧光光子击中靠近顶部或底部（$\theta \approx \pm 70°$）的探测器圆筒壁面时，探测效率达到 $\approx 13\%$。随后，随着位置朝圆筒中心移动，探测效率逐渐降低；在 $\theta \approx \pm 28°$ 处出现的骤降对应顶部/底部区段与内部区域之间的边界。此处的材料由铝变为胶体石墨。在对侧半球中，材料边界重新变为铝，这一变化在 $\theta \approx \mp 28°$处同样可见。对于顶部探测器，光子击中圆筒铝制顶部时，会在 $\theta \approx 77°$附近形成峰值；但其探测效率低于光子击中壁面的情况，因为光电子需要偏转 $180°$ 才能击中通道电子倍增器。另一方面，对于底部探测器，大多数 $\theta \gtrsim 70°$ 的光子会逃逸至低温泵，只有少量光电子从石墨涂层金属丝网中逸出。直接击中通道电子倍增器的光子会在 $\theta \approx \pm 90°$处形成峰值。电极上的孔径在赤道附近表现为探测效率降低的区域，隐约可见。顶部和底部探测器的总探测效率分别为 $P_{\mathrm{DE,\ TD}} = 2.2\%$ 和 $P_{\mathrm{DE,\ BD}} = 2.1\%$。请注意，$P_{\mathrm{DE,\ TD}} + P_{\mathrm{DE,\ BD}} \leq 100\%$，因为每个荧光光子只能被其中一个通道电子倍增器探测到；这意味着原子发射的所有光子中有 4.3 % 被收集。估算探测器覆盖的立体角也很有意义。由于探测效率并非阶跃函数，一种估算方法是选取一个探测效率阈值，并将高于该阈值的立体角视为有效贡献。在这里，选取峰值探测效率的 20% 作为阈值，结果顶部和底部探测器分别覆盖总立体角的$\eta_{\mathrm{DE,\ TD}} = 31\%$ 和 $\eta_{\mathrm{DE,\ BD}} = 26\%$.

图 4.41 (C, D) 还展示了金属丝网透射率为$T_{\mathrm{WM}} = T_{\mathrm{WM,\ BD}}$ 70 %（橙色曲线）和 60 %（绿色曲线）时的探测效率。在 $\theta \approx -50° \ldots 90°$ 和$\theta \approx -50° \ldots 70°$之间，顶部和底部探测器的探测效率分别随 T_{WM}线性变化，因为所有粒子、光子或光电子都需要穿过金属丝网电极，才能从内部区域到达通道电子倍增器。另一方面，对于 $\theta \lesssim -50°$ 和 $\theta \gtrsim 50°$，观察到探测效率与 T_{WM} 成反比，因为撞击金属丝网电极的光子

在一个半球内的光子主要由对侧半球中的通道电子倍增器探测。底部探测器的 $\theta \lesssim 70^\circ$ 也呈现相同的行为，因为圆筒底部金属丝网的 T_{WM} 较低，也意味着逃逸到低温泵中的粒子较少。

为了模拟运行 A 期间的探测效率（当时探测器组件中已安装额外的屏蔽网），假设 T_{WM} 和 $T_{\mathrm{WM,\ BD}}$ 分别为 50% 和 70%（图 4.41 (C, D) 中的红线）。探测效率的变化趋势与 $T_{\mathrm{WM}} = T_{\mathrm{WM,\ BD}} = 70\%$ 相似，但总体探测效率仅为后者的 $\approx 66\,\%$。这与运行 A 和运行 B、C 之间荧光信号的差异大致吻合。

模拟得出的总探测效率和立体角覆盖范围见表4.2。

4.6.7 探测器电极和偏置电场

探测器组件内部区域中的杂散静电场可能通过直流斯塔克位移，导致测得的 2S-6P 跃迁频率出现系统性偏移。这些杂散场可能来自多个方面。首先，存在于内部区域之外的场，例如用于在电子倍增器处收集电子的电场、在导电性较差的表面累积的电荷所产生的场，或由接触电势产生的场，可能通过金属丝网或孔径延伸至内部区域。其次，不完善的石墨涂层或电极上的异物粒子可能导致电荷在电极本身累积。第三，电极之间电绝缘隔离垫片上的电荷所产生的场可能未得到充分屏蔽。第四，电极之间的温差可能通过塞贝克效应产生热电压差，或因功函数随温度变化而造成接触电势。第五，内部区域自身[1] 带电粒子分布不均匀，也可能产生电场。

除最后一种可能性外，随后可以利用环绕内部区域的六个电极以及原子本身作为场传感器，测量杂散电场。为此，在相对电极上施加偏置电压，以沿给定方向产生偏置电场；该电场会叠加到现有杂散电场上，或与之抵消。通过确定使杂散电场在三个方向上引起的 2S-6P跃迁直流斯塔克位移均被抵消时所对应的电压，即可推断杂散电场的场强和方向。

根据图 4.34 所示的内部区域几何结构，通过有限元模拟[2] 确定施加于三对电极上的偏置电压所产生的电场。这里只考虑原子受到 2S-

[1]这里的光电子能量为 ≈ 2 电子伏特，对应的速度为 $8.4 \times 10^5\,\mathrm{m/s}$。因此，它们会在 60 ns 内穿过探测器内部区域的整个直径。在短延迟且功率为 $P_{\mathrm{2S\text{-}6P}} = 30$ 微瓦时，计数率达到 $1 \times 10^6\,\mathrm{cts/s}$；若每个探测器的探测效率为 2%，则预计内部区域内任意时刻都有 ~ 3 个光电子。由制备激光器光电离 2S原子产生的电子（见第2.2.6节）预计会在暗阶段探测 2S-6P跃迁之前离开内部区域。另一方面，光电离产生的质子在初始原子–光子系统的静止系中的速度为 421 m/s。因此，无法确定它们是否会在探测跃迁之前离开内部区域。不过，预计内部区域内始终存在的杂散电场会在数十微秒内清除这些粒子。[2]采用商用模拟软件包 COMSOL 的 AC/DC 模块实现的有限元法。

表4.3：在探测器组件内部区域中心、半径为 5 mm 的球体内，沿轴 i 在相对电极上施加 ± 1V 电压时的电场强度 F。这些数值通过有限元模拟获得，模拟采用了图 4.34 所示的探测器组件内部区域几何结构。从中心 ($x,\ y,\ z$) = ($x_1,\ x_2,\ x_3$) = (0, 0, 0)) 沿 j 轴移动时，沿方向 i 的场分量 F_i 可近似表示为 $F_i = F_{i,\,0}(1 + b_{i,\,j}x_j^2)$。详情请参阅正文。

Axis	$F_{i,0}$ (V/m)	$b_{i,1}$	$b_{i,2}$ (10^{-3}/mm^2)	$b_{i,3}$	最大值 $\lvert(F_i - F)/F\rvert$	最大值 $\left\lvert(F_i - \bar{F}_i)/\bar{F}_i\right\rvert$
x ($i=1$)	18.99	4.04	−3.09	−0.95	3.02×10^{-3}	9.33×10^{-2}
y ($i=2$)	43.47	0.23	−0.54	0.22	2.21×10^{-5}	1.25×10^{-2}
z ($i=3$)	19.65	−1.06	−3.11	4.20	3.05×10^{-3}	9.70×10^{-2}

这里关注的是6P光谱激光束所在区域，取为位于内部区域中心、半径为5 mm的球体。为提高电场的均匀性，沿 i方向在相对电极上施加极性相反的电压，其中 $i = 1$、2、3分别取为沿 x轴、y轴和z轴。根据对称性，在球心（(x, y, z) = (x_1, x_2, x_3) =(0, 0, 0)）处，电场沿 i轴方向，强度为F_i,0。从球心沿 j轴移动时，沿 i 方向的电场分量可由抛物线关系很好地描述：$F_i = F_i$,0$(1 + b_{i,j}x_j^2)$。表4.3列出了沿 i轴的相对电极上施加 ± 1V电压时的F_i,0和$b_{i,j}$。此处用max $\lvert(F_i - F)/F\rvert$和max $\left\lvert(F_i - \bar{F}_i)/\bar{F}_i\right\rvert$来表征球体内的非均匀性，这些数值也列于表4.3，分别最高可达0.3%和9.7%。

4.7 数据采集

光谱仪的数据采集系统（DAQ）由软件和硬件组件组成，负责控制和读取各种测量设备，并保存和显示采集数据。DAQ 的设计遵循实验的周期性特征：实验循环重复产生亚稳态2S原子，随后激发这些原子至6P能级，并以时间分辨的方式观测其从该能级衰变的过程。这要求采集设备与每个周期同步，具体通过对相关硬件进行直接触发来实现。此外，还需要快速处理和存储大量数据，以尽可能提高实验占空比。下面首先介绍实验数据的结构，然后描述数据采集系统中涉及的软件和硬件。最后，将更详细地讨论模拟信号的时间分辨采样以及原子荧光的计数。本节所述的数据采集系统是在本学位论文研究期间搭建的，取代了此前的全部软硬件系统。

4.7.1 数据结构

实验数据按斩波器周期、数据点和线扫描进行组织，如图4.42所示。每个斩波器周期长 6.25 ms，是基本的数据块，由时长均为 3.125 ms 的亮相位和暗阶段组成。在亮相位期间，1S-

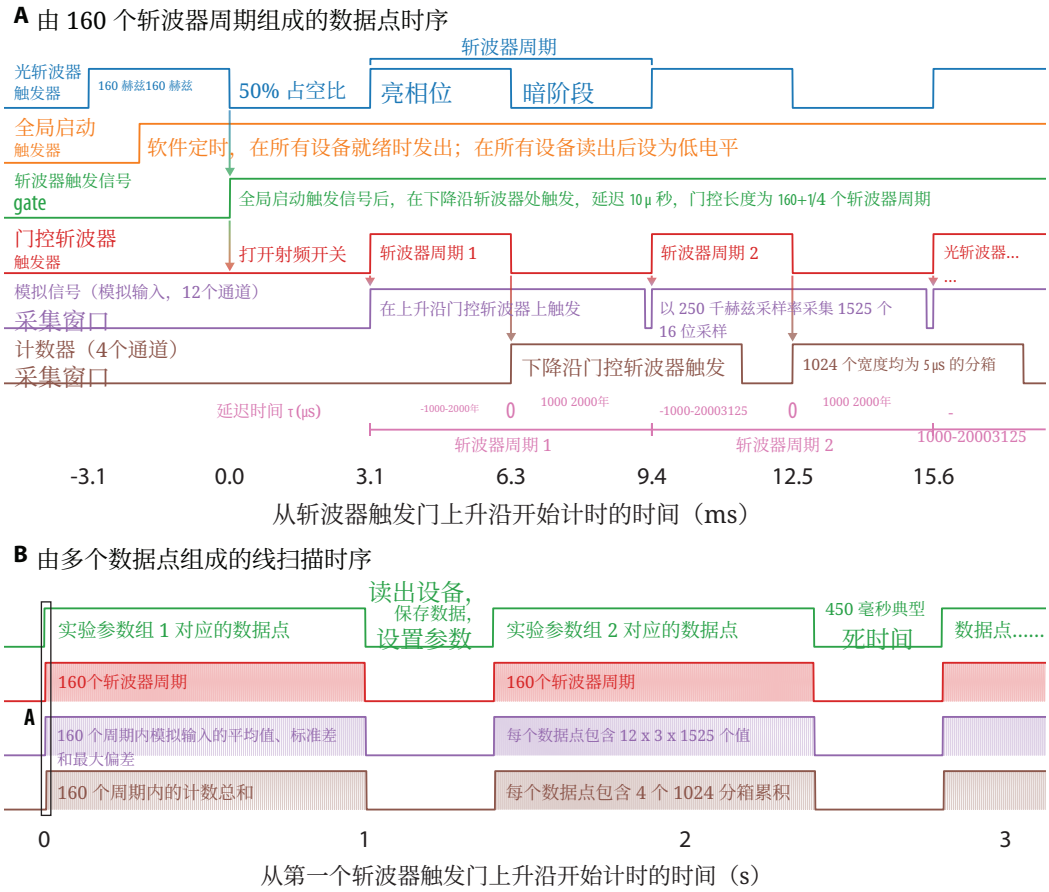


图4.42：(A) 单个数据点的采集时序（由160个斩波器周期组成）和(B) 线扫描的时序（由多个数据点组成）。(B)中显示的信号与(A)中相同颜色的信号相对应。详情请参阅正文。SD：标准差；最大偏差：与平均值的最大绝对偏差。

2S制备激光器允许进入束流装置，使部分原子跃迁至亚稳态2S能级。随后，光学斩波器挡住制备激光器，在延迟时间 $\tau = 0\mu s$ 时标志着暗阶段的开始；在此期间，2S原子受2S-6P光谱激光器激发至6P能级，随后发生衰变。探测器会探测这些衰变产生的荧光，并以时间分辨方式对各次探测器计数进行计数。同样，模拟信号样本也会按延迟时间记录。光学斩波器再次放开制备激光器后，周期便重新开始。

总共按顺序重复160个斩波器周期，并保持实验参数不变，从而构成一个数据点，其中包含1秒的数据。模拟样本在各周期内取平均，但不对延迟时间取平均；荧光计数则在各周期内累积到延迟时间分箱中。其他数据，例如各种合成器频率、喷嘴温度等，每个数据点读取一次。

最后，谱线扫描由多个数据点构成；在数据点之间，会改变或扫描2S-6P光谱激光器的频率（对于2S-6P共振的谱线扫描）或1S-2S制备激光器的频率（对于1S-2S共振的谱线扫描）。每次谱线扫描所用的线采样方法等扫描参数都会保存。

4.7.2 软件和硬件概述及线扫描

数据采集系统的软件称为 Pythonic hydrogen（pyh），使用 Python 编程语言编写[1]，并可通过图形用户界面控制光谱仪。它控制并读取各种设备的数据；这些设备通过多种接口连接到运行 pyh 的控制计算机。该软件还会保存并显示采集数据，并使用各种线形模型拟合谱线扫描。pyh 采用模块化方式编写，因此，例如，在数据后期分析期间，可以使用只负责读取和分析数据、而不负责采集数据的模块。该软件总共控制12个模拟输入通道（每个斩波器周期均进行采样）、两个仅在需要时才读取的模拟输入通道、四个计数器通道、六个模拟输出通道、10个数字输出通道、六个频率合成器、三台机械致动器、两个电压源，以及一个低温温度控制器。为获得不受控制计算机状态影响的精确定时信号，使用了一台可编程多功能数据采集设备[2]。

数据分为两类：第一类是纯数值数据，包括通过模拟信号采样每秒获取的大量数据（16 位浮点值）以及原子荧光计数（32 位整数）。第二类是分类数据与数值数据的混合数据，每隔一秒或更长时间仅获取一组数据，即附加到一个数据点或线扫描上。第一类数据存储在适当数据类型的数组[3] 中。第二类数据类型存储在类似表格的数据框[4] 中，其中可以包含多种数据类型。每个数据点和每次线扫描均分配一个 128 位长的通用唯一标识符（UUID），用于交叉引用数据，并分配一个协调世界时（UTC）时间戳。对线扫描的拟合结果也保存在数据框中。

为获取数据，软件首先设置各种设备的控制参数。对于某些设备，在参数发生变化后会强制等待稳定时间，例如修改 2S-6P 光谱激光器的频率时，以便在获取数据前让各个反馈回路稳定下来。当所有设备均准备就绪且稳定时间已过后，软件定时的全局启动触发信号将被发出。随后，从光斩波器模拟信号的下一个亮相位开始进行采样，并在 160个斩波器周期内累积荧光计数。该序列由硬件定时，具体说明见下一节。在这些斩波器周期结束后，从设备中读出数据，并将其存储到相应的数组和数据框中，同时为该数据点分配一个新的 UUID。接着设置新参数，并获取下一个数据点。对于 2S-6P测量，包括稳定时间在内的相邻数据点之间的死时间平均为 450 毫秒，即两个数据点之间的时间为 1.45 秒。如果这些数据点属于一次线扫描，则在扫描完成后向扫描数据框中添加一条新记录，并将分配给该线扫描的 UUID 也添加到所有相关数据点的记录中。每次线扫描结束后，或在获取固定数量的数据点后，数据将使用 HDF5[5] 文件格式写入控制计算机的硬盘。这样，每个数据点约写入 250 kB 的数据，并使用 HDF5 框架中实现的无损压缩。

对于线扫描，相邻数据点之间唯一变化的参数是激光

[1]Python 软件基金会，3.6 版。网址：https://www.python.org。[2]美国国家仪器 PCIe-6353。[3]使用 NumPy 的 ndarray 对象实现。NumPy 是一个用于科学计算的 Python 软件包。网址：https://www.numpy.org。参见，例如，[153]。[4]使用 pandas 的 DataFrame 对象实现。pandas 是一个用于数据分析的 Python 软件包。网址：https://pandas.pydata.org。参见，例如，[154]。[5]分层数据格式，版本 5 [155]。

频率。此外，还可以进行双重（线）扫描。其做法是，在几乎相同的时间内进行两次线扫描，并在两次扫描之间改变一个或多个辅助实验参数。为此，先采集两次扫描中第一次扫描的一个数据点。随后，改变选定的辅助参数，但不改变扫描激光器的频率，再采集第二次扫描的一个数据点。这样，两次线扫描实际上是在相隔数秒内完成记录；相比之下，依次进行的两次线扫描之间几乎相隔一分钟。在2S-6P测量的B次运行中，采用双重扫描，以不同的2S-6P光谱激光器功率采集线扫描（见表6.2），尝试进一步区分实验装置中的漂移与激光功率变化所导致的谱线位移。在这种情况下，双重扫描中数据点之间的死时间为370毫秒，略短于非双重扫描；而双重扫描中两条线扫描各自的数据点间隔则增加至2.7秒。对于2S-6P测量中非双重扫描和双重扫描的组合，数据点之间的平均时间间隔为2.3秒。

4.7.3 时间分辨探测

图4.42显示了采集一个数据点和进行线扫描时的时序。该实验方案的关键在于精确确定相对于每个斩波器周期暗阶段起点的延迟时间 τ。因此，数据采集以斩波器触发信号（图4.42中以蓝色显示）为参考，该信号由光学斩波器本身产生，详见第 4.3.2 节。由于光学斩波器始终运行，斩波器触发信号经过门控，使每个数据点恰好覆盖160个斩波器周期。每个数据点的起始由软件通过全局启动触发信号（以橙色显示）指示，该信号相对于光学斩波器周期随机到达。多功能数据采集设备根据该触发信号生成斩波器触发门（以绿色显示）。该门在斩波器触发信号的下降沿后延迟10 μs触发，从而使作为触发依据的下降沿不再包含在门内。门的长度设定为与 $160 + 1/4$ 个斩波器周期的持续时间相匹配。这样，门覆盖斩波器触发信号的160个上升沿和160个下降沿，并留出 $\pm 1/4$ 个斩波器周期的安全裕度，以应对各个斩波器周期实际长度的变化。该门用于打开射频开关[1], ，以传输斩波器触发信号，从而产生门控斩波器触发信号（以红色显示）。使用更先进的硬件（例如定制编程的现场可编程门阵列）可以取代射频开关并提高灵活性，但本研究未采用这一方案。

模拟信号（紫色所示）的采样和荧光信号（棕色所示）的计数，分别以门控斩波器触发信号的上升沿和下降沿为基准。采用这种触发方案，是因为采集必须与每个独立的斩波器周期同步，而光学斩波轮的不完善会导致一定的定时抖动（见第 4.3.2 节）。此外，采集硬件在采集过程中无法再次触发，因此

[1]Mini-Circuits ZX80-DR230+的频率范围为直流至 3 GHz，输入电压绝对最大值为 5 V。因此，TTL 真态电压对该开关来说过高，故采用 NIM（核仪器模块）逻辑电平，其中假态和真态的电压分别为 0 V 和 -0.8V。为此，需要将斩波器触发信号从 TTL 转换为 NIM，并在需要时将门控斩波器触发信号从 NIM 转换为 TTL。

斩波器周期之间必须留出一小段死时间。由于实验方案的关键在于精确确定荧光计数相对于暗阶段起始时刻的延迟时间，且探测器在亮相位期间处于关闭状态，因此计数在暗阶段开始时触发。另一方面，模拟信号应覆盖荧光计数器所覆盖的暗阶段之前紧邻的亮相位，以及暗阶段本身的主要部分。这样，例如就能捕捉到 1S-2S 制备激光器在亮相位期间的强度变化。由于暗阶段结束时已不再观测到荧光计数，因此将重新触发所需的死时间安排在此处，并将触发设定在亮相位开始时。这样，荧光信号的采集窗口便覆盖连续两个斩波器周期，如图 4.42（A）底部所示（粉色刻度）。

多道计数器[1] 根据相对于门控斩波器触发信号下降沿的延迟时间 τ，统计两个探测器发出的荧光计数脉冲数。计数被分入 1024 个时间分箱，每个分箱宽度为 5 µs。这些分箱覆盖完整的暗阶段，其延迟时间范围为 $\tau = 0\,\mu s \ldots 3125\,\mu s$；同时也覆盖下一斩波器周期亮相位的一部分，对应于大约 $\tau = -3125\,\mu s \ldots -1130\,\mu s$。后面的这些分箱用于检查探测器的增益是否确实降低到足够低，从而不会检测到任何计数信号。多道定标器会在内部累积这 160个斩波器周期内这些分箱中的计数，然后再将数据发送至控制计算机。

模数转换器[2] （ADCs）以 250 kHz 的采样率，对模拟信号进行 1525 次 16 位采样，采样从斩波器触发信号的上升沿开始。覆盖的延迟时间约为 $\tau = -3125\,\mu s \ldots 2975\,\mu s$。采样时间由多功能数据采集设备生成并分发给模数转换器的触发信号确定。采集 160个斩波器周期的数据后，模数转换器会将每个通道的 160×1525 个采样发送至控制计算机。在那里，计算并保存各延迟时间下斩波器周期的平均值（但不对延迟时间取平均），以及每个延迟时间下相对于平均值的标准差和最大偏差。斩波器触发信号本身也会被采样。这样便能确定其下降沿的精确时刻（该时刻位于采样区域内），并为各采样点指定相对于该下降沿的延迟时间。因此，模拟信号和荧光信号共用同一延迟时间基准。

此外，对于每个通道，还会计算斩波器周期内以及给定延迟时间窗口内的平均值、均值标准误和相对于平均值的最大偏差。该窗口相对于斩波器触发信号的上升沿或下降沿定义。这样，例如，每个数据点的 1S-2S 制备激光器的平均强度，是通过设置一个窗口来确定的：窗口起点和终点分别位于上升沿之后 500 µs 和 3000 µs 处（见图4.11）。

在线扫描过程中，处理完 160个斩波器周期内采集的数据后，会向设备发送一组新的实验参数，并采集下一个160个斩波器周期的数据，如图4.42 (B) 所示。重复这一过程，直到记录完构成该线扫描的所有数据点；随后开始下一次线扫描，以此类推。

[1]两台 FAST ComTec MCS4 多道定标器，每台配有两个停止通道，最大计数率为 400 兆赫兹，最小分箱长度为 50 纳秒。其中两个通道用于探测器，第三个通道则记录发生器发出的脉冲；该发生器也由光学斩波器触发，用于调试。[2]安装在 PXIe-1073机箱中的 National Instruments PCI-6143 和 PXI-6143，每台均提供八个模拟输入通道，最大采样率为 250 千赫兹，最大垂直分辨率为 16 位。

4.7.4 附加参数的记录

一些附加参数，例如真空系统内部的压力、实验室温度和湿度、各种监测光电探测器的信号等，会以 30 s .. 60 s 的间隔持续记录。相关软件称为 Pythonic 氢记录器（pyhl）。记录的数据连同 UTC 时间戳存储在单独的数据库中，可通过匹配时间戳与使用 pyh 采集的数据合并。

4.8 激光频率的测定

使用光学频率梳[1] [156] 将1S-2S制备激光器和2S-6P光谱激光器的光学频率与被动式氢脉泽[2]的微波频率进行比较。用于在与原子相互作用前调整激光光学频率的所有频率合成器，也都以氢脉泽为参考。反过来，氢脉泽的频率通过全球导航卫星系统（GNSS）接收器与铯标准进行连续比较；铯标准是国际单位制（SI）中赫兹单位的基准。通过手动调整，氢脉泽与铯标准之间的分数频率偏差保持在 1×10^{-13}以下，通常每隔几个月就需要调整一次。这一分数偏差对应于2S-6P跃迁的73赫兹绝对偏差和1S-2S跃迁的247赫兹绝对偏差。利用GNSS校正，并在足够长的门控时间窗内对频率比较结果取平均（此处通常为30分钟），数据分析期间还可进一步减小这一偏差。

不过，只有在数天后卫星星历数据公布时，才能应用完整的 GNSS 校正。对于 2S-6P 跃迁的测量，这并不构成问题，因为测量时，只需将其谱线中心确定到约 10 千赫兹的精度，即可确保对共振进行正确采样。另一方面，典型的偏移量限制了测量期间对 1S-2S 制备激光器最佳频率的预测准确度。因此，每个冻结周期的最佳频率——即在给定延迟下产生最多 2S原子的频率——都是通过实验确定的。由于各自的高精细度法布里-珀罗腔长度发生漂移，制备激光器和光谱激光器的基频（红外）分别以约 2.7(2.6) 千赫兹/天和 5.4(2.9) 千赫兹/天的线性速率漂移（括号内为测量日间的标准差）。记录一次单次线扫描需要 $\approx$1分钟，在此期间，原子跃迁频率分别漂移 $\approx$15赫兹和 $\approx$8赫兹，远低于此处所需的水平。测量期间，每个冻结周期内都会多次补偿制备激光器的频率漂移，而 2S-6P 共振的谱线采样则会在每个冻结周期开始前进行调整。

频率梳中任一模式的频率 ν 均可通过其模式序数 N、重复频率 f_{rep}和载波包络偏移（CEO）频率 f_{CEO}，根据关系式 $\nu = N \times f_{\mathrm{rep}} + f_{\mathrm{CEO}}$完全确定。 f_{rep} 和 f_{CEO} 都是射频，易于通过电子方式合成和计数。基频梳的

[1] Menlo Systems FC1500-250-ULN 超低噪声光频梳。用于产生频率梳的一体化飞秒激光系统采用保偏掺铒光纤。[2] T4Science pH Maser 1008，阿伦偏差分别指定为 5×10^{-13} 和 9×10^{-15}，对应 1 秒和 1 小时。

频谱中心波长为 $\approx 1.5\mu m$，经倍频后进入可见光谱范围。倍频不会改变重复频率，但会使 CEO 频率加倍，因此倍频频率梳中某一模式的频率由 $\nu = N \times f_{\mathrm{rep}} + 2f_{\mathrm{CEO}}$给出。这里不再稳定 f_{rep} 和 f_{CEO}，而是将倍频频率梳中模式序数为 $N_{\mathrm{FP3}} = 1\,461\,379$的一个模式，以 $f_{\mathrm{FP3,\,FC}} \approx 47\mathrm{MHz}$ 的偏移频率，与频率为$\nu_{\mathrm{FP3,\,ECDL}} \approx 365.344\,708\mathrm{THz}$ 的 2S-6P 光谱激光器基频进行相位相干稳定（见图 4.14）。为此，使用光电探测器探测频率梳模式与光谱激光器之间的光学拍频。利用 f-to-2f干涉仪，将频率梳的 CEO 频率相位相干稳定在 $f_{\mathrm{CEO}} = -45$ MHz。这样便完全确定了频率梳各模式的频率，而光谱激光器的频率为

$$\nu_{\mathrm{FP3,ECDL}} = N_{\mathrm{FP3}} \times f_{\mathrm{rep}} + 2f_{\mathrm{CEO}} + f_{\mathrm{FP3,FC}}. \tag{4.29}$$

偏移频率 $f_{\mathrm{FP3,\,FC}}$ 的选择应使频率梳的重复频率约为 $f_{\mathrm{rep}} = 250$兆赫兹。

同样，制备激光器的频率（见图 4.5）为

$$\nu_{\mathrm{FP1,ECDL}} = N_{\mathrm{FP1}} \times f_{\mathrm{rep}} + 2f_{\mathrm{CEO}} + f_{\mathrm{FP1,FC}} + 2f_{\mathrm{FP1,Scan}}, \tag{4.30}$$

其中，$f_{\mathrm{FP1,\,FC}} \approx 40$兆赫兹是制备激光器与倍频频率梳中模式序数为 $N_{\mathrm{FP1}} = 1\,233\,028$ 的模式之间的拍频。$f_{\mathrm{FP1,\,Scan}}$ 是以氢脉泽为参考、发送至声光调制器（AOM）的射频，用于相对于高精细度腔的共振频率（见第 4.3.1 节）移动激光频率。

频率 f_{rep}、f_{CEO}、$f_{\mathrm{FP1,\,FC}}$和 $f_{\mathrm{FP3,\,FC}}$ 通过以氢脉泽为参考的 Λ 型计数器[1] [157, 158], 持续测定。$f_{\mathrm{FP1,\,FC}}$ 和 $f_{\mathrm{FP3,\,FC}}$ 还使用独立的冗余计数器进行额外计数，用于诊断计数问题。

随后，考虑声光调制器造成的频移，以及在非线性晶体中的倍频或四倍频，即可求得与原子相互作用的激光频率。对于 1S-2S 制备激光器，实验室参考系中 243纳米增强腔内的频率为（见第 4.3.1 节和图 4.5）

$$\nu_{\mathrm{FP1,Exp}} = 4\nu_{\mathrm{FP1,ECDL}}. \tag{4.31}$$

对于 2S-6P 光谱激光器，耦合进入主动式光纤回射器的光在实验室参考系中的频率同样为（见第 4.4.1 节和图 4.14）

$$\nu_{\mathrm{FP3,Exp}} = 2\nu_{\mathrm{FP3,ECDL}} + 2f_{\mathrm{FP3,Scan}} + \delta_{\mathrm{J},3/2} f_{\mathrm{FP3,FS}}. \tag{4.32}$$

$f_{\mathrm{FP3,\,Scan}}$ 和 $f_{\mathrm{FP3,\,FS}}$ 是以氢脉泽为参考的射频，而在探测 2S-6P$_{1/2}$ (2S-6P$_{3/2}$)跃迁时，$\delta_{\mathrm{J},\,3/2}$ 取值为 0 (1)。$f_{\mathrm{FP3,\,FS}}$ 设定为与 6P精细结构分裂 $\Delta\nu^{\mathrm{pred}}{}_{\text{精细结构}}$(6P) 匹配（见第6.2.4.6节和公式 (6.23)）。在对 2S-6P 跃迁频率进行盲法数据分析期间，会将随机生成且作者未知的偏移量[2] 加到 $\nu_{\mathrm{FP3,\,Exp}}$上，而不修改原始数据；

[1] K+K Messtechnik FX80。[2] 随机偏移量取自一个正态分布，该分布以预期的 2S-6P跃迁频率为中心；此频率取自 [40], , 即采用 [22], 的缪子氢质子半径，标准差为 12千赫兹。实验共振频率采样的中心也由同一分布确定。

对 2S-6P跃迁频率进行盲法数据分析。分析 2S-6$P_{1/2}$ 跃迁和 2S-6$P_{3/2}$ 跃迁时，分别使用两个独立的偏移量。

由于频率梳本身噪声低且反馈带宽高，当频率梳锁定到 2S-6P 光谱激光器时，它与 1S-2S 制备激光器之间的拍频信号反映了制备激光器和光谱激光器的合成频谱。两套激光系统均采用与 [82] 中所述类似的外腔二极管激光器（ECDL）作为主激光器，其合成频谱与根据其中所示光谱预期的结果相当。

第5章

数据分析与数值建模

5.1 数据分析流程

本研究所述实验的目标是确定原子氢中 2S-6P跃迁的共振频率。为此，我们分析这些共振的线扫描，以提取共振频率 ν_0。每次线扫描都由探测到的荧光光子数（即计数）构成，这些计数是延迟时间 τ 和 2S-6P光谱激光的频率失谐 $\Delta\nu_{\text{2S-6P}}$ 的函数；后者以 30 个点进行采样。图 5.1 展示了一次典型的线扫描，此处对应 2S-6P$^{1/2}$ 跃迁，光谱激光功率为 $P_{\text{2S-6P}} = 10$ 微瓦。每次线扫描的时间分辨计数被分箱为 16 个延迟（$N_{\text{dlys}} = 16$），定义见表 5.1。由此得到的 16 个信号分别包含来自不同原子速度组的贡献；对于延迟 1 和延迟 16，原子平均速度 $\bar{v}$ 分别从 256 米/秒降至 66 米/秒。

通过对数据拟合线型函数，可按第5.1.1节所述对每个延迟分别进行分析。由此可得到每个延迟对应的共振频率 ν_0，如图 5.3 所示；该图展示的线扫描与图 5.1 相同。由于每个延迟对应不同的原子平均速度 $\bar{v}$，任何速度相关频移都会表现为 ν_0 随 $\bar{v}$ 变化的调制。本实验中的主要频移是一阶多普勒频移，它与 $\bar{v}$ 成线性关系。通过将 ν_0 线性外推至零速度，可消除此频移，从而得到不受一阶多普勒频移影响的共振频率 $\nu_{0,\,\mathrm{e}}$，如第5.1.2节所述。外推得到的频率 $\nu_{0,\,\mathrm{e}}$ 是确定 2S-6P 跃迁频率的基础。因此，频率采样，即对共振进行采样的 30 个点（$N_\Delta = 30$）的频率失谐，经过选择后可使 $\nu_{0,\,\mathrm{e}}$ 的统计不确定度尽可能低，详见第5.1.3节。

5.1.1 线型函数

理想情况下，用于拟合数据的线型函数应与实验观测到的线型完全一致。然而，这种精确的函数通常并不为人所知；本例也是如此，例如，原子束的性质只能在一定程度上确定，却会显著影响线型。因此，我们使用线型函数 LS($\Delta\nu_{\mathrm{L}}$, $\boldsymbol{p}$)，当自由参数 $\boldsymbol{p}$ 取适当值时，该函数可近似表示在频率

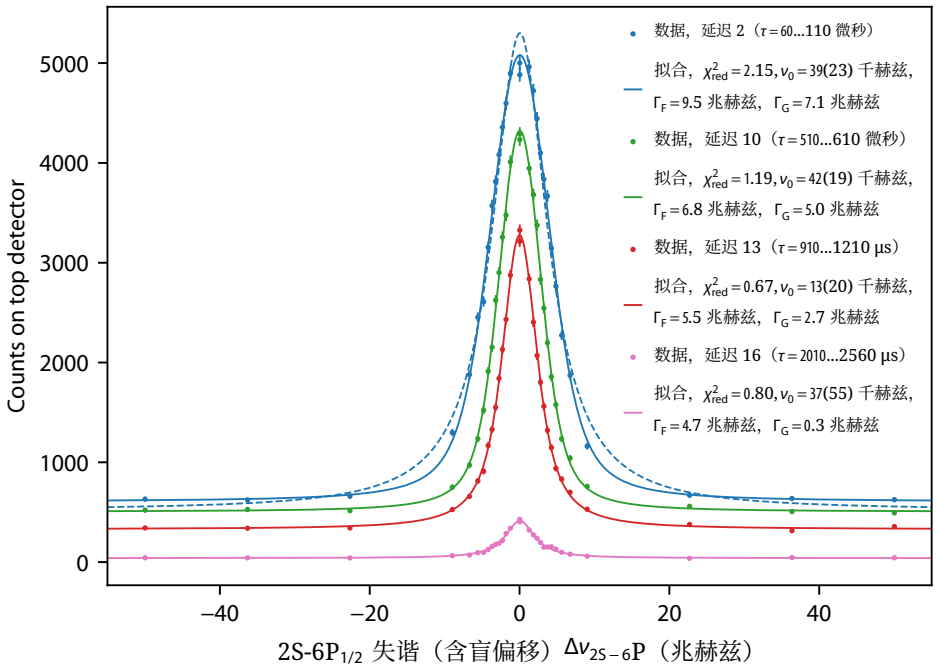


图5.1：2S-6P$^{1/2}$ 跃迁的典型线扫描，包含顶部探测器上计数随2S-6P光谱激光器的频率失谐 $\Delta\nu_{\text{2S-6P}}$ 变化的30个数据点。计数被分入16个延迟档，覆盖一系列延迟时间 τ （见表 5.1）；此处展示了延迟 2 、 10 、 13 和 16 对应的四个信号（数据点）。假定每个数据点的不确定度仅来自散粒噪声，即计数的平方根。对每个延迟分别采用Voigt线型进行拟合（实线），以提取共振频率 ν_0。随着 τ增大，探测到的原子速度变慢，多普勒展宽 Γ_{G} 减小，因此线宽Γ_{F} 随之减小；延迟16时， Γ_{F} 仅比 $\Gamma = 3.90$ 兆赫兹的自然线宽高出20%。随着 τ增大，计数减少，散粒噪声相对于原子束涨落等其他噪声源的影响逐渐占据主导地位，这通常会改善拟合的约化卡方 χ^2_{red} 。延迟 2对应的洛伦兹拟合（蓝色虚线）无法准确描述短τ时的多普勒展宽；而在延迟16时，Voigt拟合与洛伦兹拟合无法区分。底部探测器上的计数与之相当，但为使图示清晰，此处未予显示。2S-6P光谱激光器和1S-2S 制备激光器的功率分别为 $P_{\text{2S-6P}} = 10$微瓦和 $P_{\text{1S-2S}} = 1.1$ 瓦；该线扫描属于数据组G3（见表6.2）。

失谐 $\Delta\nu_{\text{L}}$处采样得到的实验线型。

5.1.1.1 洛伦兹线型

单个原子共振产生的荧光信号具有洛伦兹线型 [51], ，可表示为

$$\text{L}(\Delta\nu_{\text{L}}, \nu_0, A, \Gamma_{\text{L}}, y_0) = A\frac{(\Gamma_{\text{L}}/2)^2}{(\Delta\nu_{\text{L}} - \nu_0)^2 + (\Gamma_{\text{L}}/2)^2} + y_0. \tag{5.1}$$

$\Delta\nu_{\text{L}}$ 是频率失谐，即相对于某个参考频率的频率差； ν_0是共振频率或谱线中心； A 是谱线振幅； Γ_{L} 是半高全宽（FWHM）线宽； y_0 是信号中与失谐无关的偏置量。后四者在数据分析中作为自由拟合参数使用。总半高全宽线宽

表 5.1：概述了时间分辨荧光计数分析时所划分的 $N_{\mathrm{dlys}} = 16$ 个延迟区间。每个延迟区间涵盖相对于 $\tau = 0\,\mu\mathrm{s}$时阻断1S- 2S制备激光器而言的延迟时间范围 τ，总延迟时间跨度为 $\Delta\tau$。利用原子轨迹的蒙特卡罗模拟（见第5.2节）和2S-6P荧光信号模型（见第5.3节），确定每个延迟区间内所探测原子的速度分布。由此可确定平均速度 $\bar{v}$，以及对荧光信号有贡献的原子的6P 速度分布的半高全宽 Δv。A_i 是延迟区间 i的预期谱线振幅，相对于 A_2给出。$p_{6\mathrm{P},\ \mathrm{sig}}$ 是在光谱激光器处于共振时，一个2S原子对荧光信号作出贡献的平均概率；该值分别对应2S-6P测量中使用的三种光谱激光功率 $P_{2\mathrm{S\text{-}6P}}$。此处 $P_{2\mathrm{S\text{-}6P}}$ 以2S-6P$_{1/2}$ 跃迁为基准，即实际用于2S-6P$_{3/2}$ 跃迁的功率低一半。括号中的数字是多次模拟所得的标准差；这些模拟涵盖表 5.3中给出的参数，以及表6.2中所列2S-6P测量数据组G1–G12的参数。

延迟 i	τ (μs)	$\Delta\tau$ (μs)	$\bar{v}$ (m/s)	Δv (m/s)	Δv_x(2S态) (m/s)	$\frac{A_i}{A_2}$	$p_{6\mathrm{P},\ \text{信号}}$ (%) $P_{2\mathrm{S\text{-}6P}}$ (微瓦) 10	20	30
1	10…60	50	256.4(6.5)	217(5)	3.36(11)	1.022(2)	6	12	17
2	60…110	50	255.0(6.4)	215(5)	3.36(11)	1.000(0)	6	12	17
3	110…160	50	253.0(6.3)	213(5)	3.33(11)	0.970(2)	6	12	17
4	160…210	50	250.0(6.1)	210(5)	3.27(11)	0.932(3)	6	12	17
5	210…260	50	245.5(5.8)	206(4)	3.17(10)	0.882(6)	6	12	18
6	260…310	50	238.6(5.4)	198(4)	3.02(8)	0.818(8)	7	13	19
7	310…360	50	229.8(5.0)	190(3)	2.82(7)	0.743(11)	7	14	20
8	360…410	50	219.8(4.5)	180(3)	2.61(6)	0.663(13)	8	15	22
9	410…510	100	204.4(3.9)	167(3)	2.33(4)	1.090(29)	9	17	24
10	510…610	100	184.3(3.3)	150(4)	2.01(3)	0.811(29)	11	20	28
11	610…710	100	166.5(2.7)	136(5)	1.76(3)	0.595(27)	13	23	32
12	710…910	200	146.1(2.3)	114(5)	1.50(2)	0.758(45)	15	27	37
13	910…1210	300	120.8(1.8)	89(4)	1.20(2)	0.558(44)	19	34	45
14	1210…1510	300	99.0(1.3)	71(4)	0.94(2)	0.252(26)	24	41	54
15	1510…2010年	500	81.2(1.2)	54(6)	0.76(2)	0.175(22)	29	48	62
16	2010年…2560	550	65.5(0.9)	34(7)	0.60(2)	0.068(12)	35	56	70

Γ_{F} 按定义与 Γ_{L}完全相同。洛伦兹线型关于 $\Delta\nu_{\mathrm{L}} = \nu_0$对称，在 $\Delta\nu_{\mathrm{L}} = \nu_0$ 和 $\Delta\nu_{\mathrm{L}} = \nu_0 \pm \Gamma_{\mathrm{L}}/2$ 处的信号分别为 $A + y_0$ 和 $A/2 + y_0$。然而，除延迟时间最长、因而原子速度最慢的情况外，洛伦兹线型无法很好地拟合实验数据，因为其形状与观测到的多普勒展宽不符（见图 5.1 中的蓝色虚线）。

5.1.1.2 沃伊特线型

如图 5.4 (A) 所示的模拟结果表明，造成多普勒展宽的原子束横向速度分布可近似为半高全宽线宽为 Γ_{G} 的高斯函数。由此产生的线型可近似为 Voigt函数 [51], ，其定义为洛伦兹线型与高斯函数的卷积。

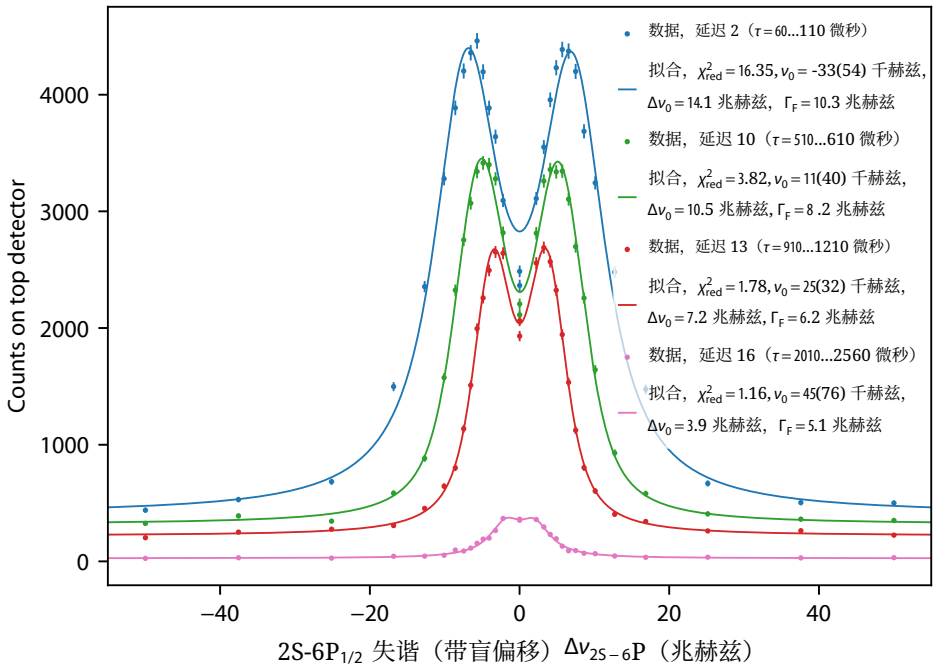


图 5.2：2S-6P1/2 跃迁的线扫描与正交方向偏离 $\alpha_0 = 12.0$毫弧度的偏移角，该偏移导致信号分裂为两个频率间隔为 $\Delta\nu_0$的共振双峰。与图 5.1 一样，此处展示了延迟为 2、10、13 和 16 时得到的四个信号（数据点）。每个延迟均采用 Voigt 双峰线型进行拟合（实线），得到两个共振的共振频率 ν_1 和 ν_2，再根据其振幅进行加权，以求得共振频率 ν_0。Voigt双峰未包含饱和效应；对于同时与两束激光束相互作用的原子而言，与不存在饱和的情况相比，饱和效应会导致信号低于预期值（$\Delta\nu_{2S\text{-}6P} \lesssim \Gamma_F$）。拟合使数据的总偏差最小，因此，对于仅与单束激光束相互作用的原子，拟合线型低于信号（$\Delta\nu_{2S\text{-}6P} \gtrsim \Gamma_F$）。这会导致较大的 χ^2_{red}，尤其是在较短的 τ 情况下，其中 $\Delta\nu_0 > \Gamma_F$。2S-6P 光谱和 1S-2S 制备激光器的功率分别为 $P_{2S\text{-}6P} = 30$微瓦和 $P_{1S\text{-}2S} = 1.0$ 瓦，该线扫描属于数据组G14（见表6.2）。

Voigt线型表示为

$$\mathrm{V}(\Delta\nu_L, \nu_0, A, \Gamma_L, \Gamma_G, y_0) = \frac{A}{\mathrm{Re}[w(ib)]}\,\mathrm{Re}[w(z)] + y_0, \tag{5.2}$$

$$\text{with} \quad z = a + ib = \frac{2\sqrt{\ln 2}}{\Gamma_G}\left((\Delta\nu_L - \nu_0) + i\Gamma_L/2\right). \tag{5.3}$$

$w(z)$: $= e^{-z^2}\mathrm{erfc}(-iz)$ 是 Faddeeva 函数，它通过复互补误差函数 erfc 定义。 Γ_L 和 Γ_G 分别为洛伦兹型和高斯线宽。数据分析中将 Γ_G视为自由拟合参数，使自由拟合参数总数增至五个。总半高全宽线宽 Γ_F 由公式（2.13）给出，其不确定度通过传播 Γ_L 和 Γ_G的不确定度（包括二者的相关性）得出。归一化方式与之前相同，即共振时（$\Delta\nu_L = \nu_0$）的信号为 $A + y_0$。对于所有延迟，Voigt线型都能很好地描述实验线型；不同延迟下的 Γ_F 变化超过两倍（见图 5.1中的实线）。

5.1.1.3 Voigt双峰线型

在实验中设定原子束与2S-6P光谱激光束之间的偏移角 α_0 时，观测到的信号会分裂为两个多普勒展宽共振组成的双峰（见第 2.2.5 节）。图 5.2展示了这种配置下的一次线扫描。在这种情况下，可以用两个 Voigt 函数之和来近似得到的线型。这个Voigt双峰定义为

$$\begin{aligned}\mathrm{VD}(\Delta\nu_\mathrm{L},\nu_1,\nu_2,A_1,A_2,\Gamma_\mathrm{L},\Gamma_\mathrm{G},y_0) = \mathrm{V}(\Delta\nu_\mathrm{L},\nu_1,A_1,\Gamma_\mathrm{L},\Gamma_\mathrm{G},y_0/2) \\ + \mathrm{V}(\Delta\nu_\mathrm{L},\nu_2,A_2,\Gamma_\mathrm{L},\Gamma_\mathrm{G},y_0/2),\end{aligned} \tag{5.4}$$

其中， ν_1 和 ν_2 是两个共振的共振频率， A_1 和 A_2 是它们的振幅。底层的Voigt线型具有相同的洛伦兹型线宽、高斯函数线宽和总线宽，因为它们的自然线宽和展宽机制相同；此外，与失谐无关的偏置量 y_0 也加到了总线型中。因此，与Voigt线型相比，多出了两个自由拟合参数，总数达到七个。数据分析关注的是总线型的共振频率 ν_0 ，此处将其定义为 ν_1 和 ν_2按振幅加权后的平均值，得到

$$\nu_0 = \frac{A_1\nu_1 + A_2\nu_2}{A_1 + A_2}. \tag{5.5}$$

ν_0 因此对应于两个共振的质心。

进一步来说，考虑拟合参数的其他组合也很有用：双峰的频率分裂为 $\Delta\nu_0 = |\nu_2 - \nu_1|$，振幅比为$A_1/A_2$ ，其中 $\nu_2 \geq \nu_1$，即 A_1/A_2 始终是低频共振的振幅与高频共振的振幅之比。所有这些组合的不确定度均通过相关拟合参数的不确定度传播求得，其中也包括拟合所确定的参数间相关性。

Voigt双峰对实验数据的描述仅算合理（见图 5.2中的实线），这主要是因为与Voigt线型一样，它没有考虑饱和效应。与无饱和的情况相比，这些饱和效应会使同时与两束激光束相互作用的原子产生低于预期的信号（$\Delta\nu_{\mathrm{2S\text{-}6P}} \lesssim \Gamma_\mathrm{F}$）；而仅与单束激光束相互作用的原子（$\Delta\nu_{\mathrm{2S\text{-}6P}} \gtrsim \Gamma_\mathrm{F}$）受饱和效应的影响较小。详情见图 5.2。

5.1.1.4 不对称线型

目前讨论的所有线型都关于谱线中心对称。另一方面，由于量子干涉效应和光力频移都会引入不对称性，实验线型预计并不对称。使用通过额外参数考虑这种不对称性的线型，可以确定不对称性，并从实验数据中去除其相关的谱线位移。2S-4P测量的分析（见附录A）采用了这种线型，即 Fano-Voigt线型，以考虑量子干涉导致的谱线位移。然而，额外不对称参数与所确定的共振频率之间通常存在的相关性，可能会增加后者的不确定度。因此，鉴于不对称性总体上也远小于2S-4P测量中的不对称性，本文所述的数据分析采用对称线型，并通过模拟修正来处理剩余不对称性导致的谱线位移。

5.1.1.5 将线形函数拟合到数据

线型函数 LS($\Delta\nu_{\mathrm{L}}, \boldsymbol{p}$) 通过最小二乘优化拟合数据。数据由 N_Δ 对频率失谐$^{\Delta}\nu_{\mathrm{L},i}$ 以及每个延迟对应的探测计数数量 y_i 组成。计数数量 y_i 的平方根被用作计数数量$\sigma_i = \sqrt{y_i}$不确定度的估计值。这相当于假设不确定度仅由所探测光子的散粒噪声[1]决定。最小二乘优化通过以不确定度为权重，最小化数据相对于模型的总平方偏差，即最小化下式所表示的量

$$\chi^2 = \sum_i \frac{\Big(y_i - L(\Delta\nu_{\mathrm{L},i}, \boldsymbol{p})\Big)^2}{\sigma_i^2}. \tag{5.6}$$

对于每个拟合参数 $\boldsymbol{p}$，优化都会给出其最可能值的估计，以及该值的一个标准差不确定度（1σ）估计。参数的 1σ 不确定度定义为该参数值的变化量，该变化会使 χ^2 增加 1，同时优化所有其他参数的值，以达到最低的 χ^2。此外，优化还会返回所有拟合参数之间的估计相关性。对于此处采用的高斯不确定度假设，并进一步假设数据点的测量误差彼此不相关，最小二乘优化对应于最大似然估计 [159, 160]。在这种情况下，χ^2 的分布服从具有 k 自由度的卡方分布 [159], ，其中此处的 k 取为 $N_\Delta - M$， M 为拟合参数的数量。

在此情境下，一个有用的量是约化卡方统计量，其定义为

$$\chi^2_{\mathrm{red}} = \frac{\chi^2}{k}. \tag{5.7}$$

这是因为，对于不相关的高斯不确定度且 k较大的情况， χ^2_{red} 近似服从平均值为 1、标准差为 $\sqrt{2/k}$的正态分布。在本研究中，拟合结果和加权平均值通常会给出 χ^2_{red} ，其数值后面通常以括号标注对应 k数值预期的标准差。

当 k 不大时，计算 p值很有启发性；它表示在假设卡方分布（自由度为 k）能够描述数据的前提下，得到至少与观测到的 χ^2一样大的 χ^2 的概率（见 [160]的式（39.71））。此外，有时将该 p值转换为单侧显著性 Z 也很有帮助（见 [160]的式（39.46））。 Z的定义是：高斯随机变量向上波动 Z 个标准差时，其上尾面积等于 p [160]。在第6章中，使用 p值讨论 2S-6P测量的结果；若 $p < 0.5$，则将显著性表示为 $Z\sigma$ 。

5.1.2 延迟分析和多普勒外推

对每条线扫描结果进行线型函数拟合后，可得到对应 16 个延迟的拟合参数估计值。例如，图 5.1 中线扫描对应的 16 个共振频率 ν_0 和

[1]严格来说，计数的概率分布服从泊松分布；不过，当 $y_i \gtrsim 10$ [159]时，该分布可以很好地近似为以预期计数数目 y_i 为中心、标准差为$\sqrt{y_i}$ 的高斯分布。所有 2S-6P 跃迁的实验数据均满足这一条件。在这种情况下，预期计数数目 y_i 也可以用观测到的计数数目替代，本研究采用的正是这一做法。

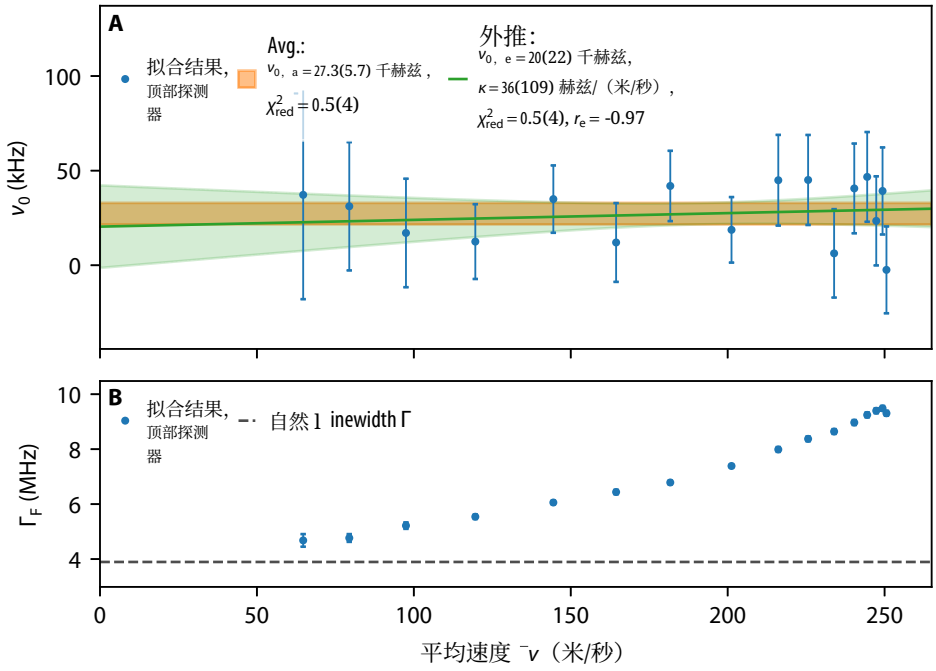


图 5.3：图 5.1 所示线扫描中各个延迟的（**安培**）共振频率 ν_0 和（**B**）半高全宽线宽 Γ_F 随延迟对应的原子平均速度 $\bar{v}$ 的变化（见表 5.1）。拟合结果及其不确定度（蓝色点和误差棒）由对各个延迟进行 Voigt线型拟合得出。（**安培**）线性拟合（绿色曲线），即多普勒外推，得出无多普勒共振频率 $\nu_{0,\,e}$ 和多普勒斜率 κ。线性模型的不确定度（绿色阴影）通过 r_e （此处为 -0.97）随 $\bar{v}$ 变化，其中 $\nu_{0,\,e}$ 与 κ之间的线性相关系数为 r_e 。加权平均得到多普勒平均共振频率 $\nu_{0,\,a}$ （橙色阴影，表示 $\nu_{0,\,a} \pm 1\sigma$范围内的区域）。此处，多普勒斜率与零值吻合良好，$\nu_{0,\,a}$ 的 $\nu_{0,\,e}$ 在其 1σ 不确定度范围内一致。（**B**）半高全宽线宽 Γ_F 随 $\bar{v}$减小而减小，因为多普勒展宽越来越小。对于最慢的延迟， Γ_F 接近自然线宽 Γ （虚线）。

以及 16 个半高全宽线宽 Γ_F 如图 5.3 所示。 ν_0 的延迟依赖性对本实验尤为重要，因为它对应于不同延迟的平均速度 $\bar{v}$ 所体现的速度依赖性（见表 5.1）。如第 2.2.3 节和第 2.2.4 节所述，任何残余的一阶多普勒频移（即未被多普勒抑制方案消除的频移）都会表现为 ν_0 对 $\bar{v}$ 的线性依赖。也就是说， ν_0 的速度依赖性可以建模为

$$\nu_0(\bar{v}) = \nu_{0,\mathrm{e}} + \kappa\bar{v}, \tag{5.8}$$

其中 $\nu_{0,\,e}$ 是无多普勒共振频率，即将 ν_0 外推至零速度所得的值，而 κ 是（残余）多普勒斜率。将式（5.8）拟合到数据上（此过程称为多普勒外推，等同于线性回归 [159], ），可估算出$\nu_{0,\,e}$ 和 κ，以及由 ν_0 中的不确定度 σ_{ν_0} 传播得到的相应不确定度，还有 $\nu_{0,\,e}$ 与 κ之间的线性相关系数 r_e 。注意，假定由模拟得出的 $\bar{v}$ 数值没有不确定度[1] 。相反，会改变底层模拟参数

[1]对两个坐标均存在不确定度的直线进行拟合，出乎意料地是一个相当复杂的统计和数值问题，参见例如 [159] 的第15.3节。

从而得到不同的 $\bar{v}$ 数值，并重复进行多普勒外推。图 5.3 (A) 展示了此类多普勒外推的结果（绿色曲线及阴影区域）。相关系数 r_{e} 完全由延迟范围内不确定度 σ_{ν_0} 的变化以及 $\bar{v}$ 的数值决定，与 ν_0 和 σ_{ν_0} 的绝对值无关。对于 2S-6P测量，$r_{\mathrm{e}} = -0.95\ldots-0.97$，因此随机噪声很可能导致 $\nu_{0,\,\mathrm{e}}$ 高于平均值，同时使 κ低于平均值。

通过对 ν_0进行加权平均（权重为 σ_{ν_0}），还可以获得一些有价值的信息，从而得到多普勒平均共振频率$\nu_{0,\,\mathrm{a}}$。$\nu_{0,\,\mathrm{a}}$ 的统计不确定度比$\nu_{0,\,\mathrm{e}}$低三到四倍，但并非不受多普勒频移影响。然而，$\nu_{0,\,\mathrm{a}}$ 因此不能用于确定跃迁频率，却可以用于比较不同实验配置下的共振频率；对于这些配置，可以假定多普勒频移相同，或已平均到足够低的水平。在2S-4P测量中（见附录 A），正是利用这一点展示了量子干涉效应对$\nu_{0,\,\mathrm{a}}$的影响；否则，由于$\nu_{0,\,\mathrm{e}}$具有更大的不确定度，这种影响将无法显现。图5.3（A）中也以橙色阴影表示了多普勒平均值。

在2S-6P测量的分析中，利用多普勒无关的共振频率$\nu_{0,\,\mathrm{e}}$来确定跃迁频率。然而，还需要考虑后续章节所述的小幅模拟修正。这些修正也会随 $\bar{v}$而变化，例如，原子与激光束相互作用的时间可能变长或变短。为避免修正模拟出一阶多普勒频移，从而影响多普勒外推，在进行外推和平均之前，将模拟修正应用于每个延迟的 ν_0 。对每次 M 线扫描分别进行外推和平均，因此得到 M 个$\nu_{0,\,\mathrm{e}}$、 κ和$\nu_{0,\,\mathrm{a}}$的值。通常预计残余多普勒斜率在测量过程中并不恒定，因为装置会反复重新校准。因此，可以预期 κ和$\nu_{0,\,\mathrm{a}}$ 的数值会表现出超出其不确定度所能解释范围的额外散布，而$\nu_{0,\,\mathrm{e}}$ 的多普勒无关值则应不受这种散布影响。在实验数据中， κ 和$\nu_{0,\,\mathrm{a}}$确实观察到了显著的额外散布。然而，$\nu_{0,\,\mathrm{e}}$也表现出一定程度的、虽较低但仍显著的额外散布。这归因于以下事实：目前的不确定度都基于所观测信号中仅存在纯散粒噪声这一假设，而忽略了技术噪声。因此，该假设并不完全合理，需要将额外散布纳入考虑；本文通过对不确定度进行适当缩放来实现这一点。

还应注意到，在多普勒外推的 χ^2_{red} 分布中，并未明显观察到这种额外散布。蒙特卡罗模拟探讨的一种可能解释是，技术噪声（例如喷嘴温度波动）在各延迟之间具有很强的相关性，从而导致所有延迟都出现符号相同、大小相近的额外偏移 ν_0 。因此，这种偏移不会表现为单次多普勒外推中的额外散布，却会表现为不同多普勒外推之间的额外散布。各延迟之间之所以具有相关性，是因为延迟间隔最多只有数百 µs，而每个频率点的信号累积时间为 1 s。因此，时间尺度长于数百 µs 的技术噪声会以相似的方式影响所有延迟；例如，温度和原子通量波动的时间尺度便符合这一范围。目前正在进一步研究此类波动的影响，但这超出了本研究的范围。

除 ν_0 （振幅 A、线宽 Γ_{L}、 Γ_{G}、 Γ_{F}、偏移量 y_0、双线频率分裂 $\Delta\nu_0$）之外，其他拟合参数随延迟变化显著，因此对延迟取平均或进行外推都没有参考意义。半高全宽线宽 Γ_{F} 的变化

如图 5.3 (B) 所示。因而，分析必须考虑范围很大的拟合参数，这使数据的解读和可视化变得复杂。另一方面，对于某些拟合参数组合，其随延迟的变化并不显著；在此，这些参数为相对偏移或背景与幅度之比、 y_0/A，而对于 Voigt双峰，还包括振幅比 A_1/A_2。

5.1.3 共振频率采样

表5.2：在线扫描期间用于采样 2S态- 6P 共振的 15 个不同频率失谐 $\Delta\nu_{\text{2S-6P}}$ 绝对值。围绕零失谐对共振进行对称采样，其中零失谐处采样两次，因此总计得到 30 个频率失谐点。根据偏移角 α_0 的不同，采用不同的频率失谐，以适应不同的线型。详情请参见第5.1.3节。

	$\lvert\Delta\nu_{\text{2S-6P}}\rvert$ (兆赫兹)		
α_0(毫弧度)	0…6	6…10	>10
	0.0000	0.0000	0.0000
	1.2546	1.0702	2.2173
	1.8268	2.1403	3.2279
	2.3104	3.1276	4.0820
	2.7650	3.9738	4.8856
	3.2190	4.7845	5.6899
	3.6946	5.6168	6.5368
	4.2171	6.5261	7.4773
	4.8251	7.5970	8.5973
	5.5937	9.0174	10.0931
	6.7157	11.4855	12.6965
	8.9994	15.7649	16.8413
	22.6662	24.3237	25.1310
	36.3331	37.1618	37.5655
	50.0000	50.0000	50.0000

为了收集足够的统计数据以准确确定 2S-6P跃迁频率，需要对共振进行多次线扫描。因此，关键在于选择在 N_Δ 个点处采样共振时的频率失谐 $\Delta\nu_{\text{2S-6P}}$ ，使统计不确定度尽可能低，同时也覆盖实验线型的所有部分。换言之，应选择合适的频率采样，使线型函数拟合数据后得到的真实共振频率估计值具有一致性、不存在偏差、效率高且稳健 [160]。对于单个共振，若将大多数点放在共振斜率处，同时在较大失谐处放置少数外侧点，并在零失谐处放置 L 个点，则大致可以满足这些要求。频率采样始终关于零对称，因此需要确定 $(N_\Delta - L)/2$ 个频率失谐非零的唯一点。为了找到斜率处的点，可以将预期线型对频率的导数作为局部点密度的参考。然而，选择这些点的问题较为复杂，因为所有延迟都必须采用相同的频率采样，而线宽和线型会发生很大变化，如图 5.1 所示。此外，最终需要最小化的是

上一章所述的多普勒外推所确定的无多普勒共振频率的统计不确定度$\nu_{0,\ e}$。因此，为补偿信号的减弱，可以考虑选择这些点，使较慢延迟的频率采样得到优化，而牺牲较快延迟的采样效果。

为找到合适的频率采样，使用实验中不同延迟下观测到的近似线型和振幅进行了蒙特卡罗模拟。采用具有可变线宽的 Voigt 或 Voigt 双峰线型作为模板，以确定频率失谐点。随后，通过改变模板线宽以及额外外侧点的位置，使 $\nu_{0,\mathrm{e}}$ 的统计不确定度最小化。零失谐处的点数选择为两个，以确定线扫描期间的振幅漂移。点的总数为 30，每个点的积分时间为 1 秒；这在以下两方面之间取得了折中：一方面，对线型进行全面采样，并确保计数数量足够高，从而可用高斯分布近似计数的散粒噪声；另一方面，每次线扫描的测量时间足够短，以便在一个冻结周期内进行多次线扫描。后者有助于估计实验中观察到的额外散布，这种散布主要通过比较不同的线扫描来体现。

按此方法得到的 15 个不同频率失谐点的绝对值（包括零失谐）列于表5.2。为兼顾使用不同偏移角 α_0 时观察到的不同线型（见图 5.1 和图 5.2），在 α_0 接近 0 毫弧度、8 毫弧度和 12 毫弧度时，分别采用三组 $|\Delta\nu_{\mathrm{2S\text{-}6P}}|$。除数据组 G1A、G7A 和 G14 中的部分线扫描最初使用了略有不同的失谐值外，所有光谱数据均使用表中所列的失谐值采集。

为抑制线扫描期间信号漂移的影响（例如由原子通量漂移导致的信号漂移），共振的采样顺序采用随机方式确定。具体做法是以对称方式进行：选取一个失谐值及一个随机符号并采集数据；然后将该失谐值的符号反转，再次采集数据，之后再进行下一个随机确定的失谐值。每次线扫描都会重新进行随机化。零失谐点不采用此程序，而是在一次线扫描开始和结束时采集零失谐处的数据。这样便可确定线扫描期间振幅的变化，并在假设漂移为线性的情况下进行校正。本学位论文所呈现的数据尚未进行此项处理，但将在最终分析中纳入。

根据对称性，对于完全对称的线型，以及关于通常事先未知的谱线中心对称的采样，通过采样确定的共振频率与频率失谐的选择无关。然而，实验线型既不完全对称，采样也不关于谱线中心对称；此外，对于不对称线型，谱线中心本身也没有唯一的定义。此时，频率失谐的选择可能会影响所确定的共振频率。这里通过在与实验数据相同的失谐处对模拟线型进行采样，部分考虑了由此产生的采样偏差；在模拟中，使用已知的真实共振频率作为零失谐。通过利用模拟结果校正实验数据，也就部分修正了采样偏差。为了进一步考虑实验中的零失谐可能与模拟中的零失谐不对应，可以将每次线扫描所使用的零失谐频率与测量中确定的跃迁频率进行比较，从而估计这一偏移量。随后，可以利用该偏移量，分别对每次线扫描的模拟结果进行分析。对于2S-4P测量，采用了这一方法（见

表 5.3：用于蒙特卡罗模拟亚稳态2S原子轨迹的参数范围。每个轨迹集中的每个参数均取单一数值，并根据该轨迹集所描述的实验条件进行调整。

参数	数值
几何结构	
喷嘴孔口半径 r_1	1.0 毫米
喷嘴孔口到可变光阑的距离 L_1	153.6 毫米
可变光阑沿 x 轴的宽度 $d_2 = 2r_2$	1.2 毫米
可变光阑沿 y 轴的高度 $_y = 2r_2$，$_y$	2.0 毫米
喷嘴孔口至 2S-6P 光谱激光器的距离 L	204.0 毫米
基态（1S态）原子的速度分布	
速度分布 $p(v)\,\mathrm{d}v$	$\propto v^3 e^{-\frac{m_{\mathrm{H}} v^2}{2k_{\mathrm{B}}T_{\mathrm{N}}}} e^{-\frac{v_{\mathrm{cutoff}}}{v}} \mathrm{d}v$
角分布 $p(\theta)\,\mathrm{d}\Omega$	$\propto \cos(\theta)\,\mathrm{d}$立体角
喷嘴温度 T_{N}	4.8 开尔文
截止速度 $v_{\text{截止}}$	30 m/秒.....65 m/秒
1S-2S 制备激光器	
束腰半径 $w_{\text{1S-2S}}$（$1/e^2$ 强度半径）	297 µm
束腰到喷嘴孔口的距离	56。2 毫米
腔内功率 $P_{\text{1S-2S}}$（每个方向）	1.00 瓦.....1.50 瓦
相对于 $1S_{1/2}^{F=0} - 2S_{1/2}^{F=0}$共振的（原子）失谐 $\Delta\nu_{\text{1S-2S}}$	740 赫兹.....1380 赫兹
斩波器频率 f_{chop}（狭缝宽度相同）	160 赫兹

附录A），发现较大的采样偏差，其量级与最终不确定度相当。对于2S-6P测量，特意将偏移量控制在约10千赫兹的量级，这应能将采样偏差降低到远低于2S-4P测量中所见水平。然而，对于最终分析，仍需通过上述程序加以确认。

5.2 亚稳态氢原子束的建模

原子穿过 2S-6P 光谱激光器时所经过的轨迹，会显著影响观测到的线型和谱线中心的系统偏移，尤其是光力频移。因此，需要准确模拟亚稳态（2S态）原子的轨迹。这里采用的模型基于蒙特卡罗方法：首先，随机选取一条几何轨迹，其中包含一个基态（1S态）原子从喷嘴进入真空时的位置和速度。其次，确定在给定延迟时间 τ 下，在光谱区找到该原子处于 2S能级的概率。为此，通过数值求解相应的光学布洛赫方程（OBE），模拟原子从喷嘴飞往光谱区时与 1S-2S 制备激光束的相互作用。随后对 N_{traj} 条轨迹重复这一过程。表 5.3列出了此次蒙特卡罗模拟的参数范围。对于给定的一组参数，这里将一组 N_{traj} 称为一个轨迹集。

5.2.1 2S轨迹的蒙特卡洛模拟

从喷嘴逸出的原子的速度分布 $p(v)\,\mathrm{d}v$和角分布 $p(\theta)\,\mathrm{d}\Omega$已在第4.5.2.2节讨论。假设原子来自半径为 r_1的喷嘴孔口，且孔口各处的速度分布和角分布相同。对于每条轨迹，随机选取孔口内的一个位置、根据 $p(v)\,\mathrm{d}v$选取一个随机速度 v，并根据 $p(\theta)\,\mathrm{d}\Omega$随机选取 θ和 ϕ。 θ和ϕ 分别是相对于穿过孔口中心且平行于 z轴的法线的极角和方位角，而 $\mathrm{d}\Omega = 2\pi \sin\theta\,\mathrm{d}\theta$是相应的面积元。如果生成的轨迹穿过沿 x轴（y轴）设置、宽度（高度）为 $d_2 = 2r_2$（$d_{2,y} = 2r_{2,y}$）、且距孔口沿 z轴 L_1 处的可变光阑，则保留该轨迹。否则，重新抽取轨迹，直到满足这一条件。对于表 5.3中的参数，从喷嘴朝向 2S-6P 光谱区逸出的轨迹中，有 $P_{\mathrm{geo}} = 3.2 \times 10^{-5}$ 的比例穿过可变光阑进入该区域[1]。

通过双光子吸收实现 1S-2S 激发的动力学见第 2.2.6 节。为模拟每条轨迹的激发过程，这里采用 [58] 中的公式 (10a–c) 给出的光学布洛赫方程，并考虑二阶多普勒频移、交流斯塔克频移以及 2S能级的光电离。对光学布洛赫方程进行数值积分时，采用长度恒定的积分延迟 $\Delta\tau_{\mathrm{int}} < \min \Delta\tau_i$，使得每个长度为 $\Delta\tau_i$ 的（实验）延迟 i 都包含整数个积分延迟 $M_{\mathrm{int},i}$。这里取 $\Delta\tau_{\mathrm{int}} = 10\mu\mathrm{s}$，因此 $M_{\mathrm{int},1} = 5$ 且 $M_{\mathrm{int},16} = 55$。这些积分延迟的最小和最大延迟时间 τ 覆盖了实验延迟的完整范围，因此这里共得到 255 个积分延迟。对每条轨迹 k，在每个积分延迟内随机选取一个延迟时间τ_j。随后将该轨迹视为在某一时刻离开喷嘴孔口，使其到达 2S-6P光谱激光束中心的时间比 1S-2S 制备激光器关闭晚 τ_j。因此，$L/v_{z,k} - \tau_j$，其中 $v_{z,k}$ 为轨迹的纵向速度， L 为喷嘴孔口到光谱激光束的距离；这些参数决定了轨迹是否以及能够与制备激光器相互作用多久。如果 $L/v_{z,k} - \tau_j \leq 0$，则不会与激光发生相互作用，即相互作用时间为$T_{\text{1S-2S},j,k} = 0$。对于 $0 < L/v_{z,k} - \tau_j \leq (1/f_{\mathrm{chop}})/2$，轨迹离开喷嘴时便开始与激光相互作用，总相互作用时间为 $T_{\text{1S-2S},j,k} = L/v_{z,k} - \tau_j$。对于 $(1/f_{\mathrm{chop}})/2 < L/v_{z,k} - \tau_j \leq 1/f_{\mathrm{chop}}$，相互作用时间相同，因为制备激光器在 $\tau_j - (1/f_{\mathrm{chop}}) \cdots \tau_j - (1/f_{\mathrm{chop}})/2$期间被光学斩波器关闭；但轨迹开始与激光相互作用的位置会从喷嘴向光谱区移动。最后，对于 $L/v_{z,k} - \tau_j > 1/f_{\mathrm{chop}}$，轨迹会与多个斩波器周期相互作用。对于这里采用的参数，这种情况只可能出现在 $v_{z,k} < 56\,\mathrm{m/s}$ 的轨迹中；作为近似，只考虑第一个斩波器周期。此外，这里假设原子所感受到的制备激光器腔内功率，在光学斩波器开启激光时会持续 $1/2f_{\mathrm{chop}}$，且在此期间为 $P_{\text{1S-2S}}$，除此之外则为零。如第 4.3.3.5 节所述，由于腔稳定的瞬态行为，实验中并非完全如此，因此这又构成了一项近似。虽然超出了本学位论文的讨论范围，但原则上可以在模拟中使用测得的腔内功率时间分辨行为，而不是采用这种近似。

[1]在 3×10^{-4}的轨迹中，有一部分通过上游高真空入口孔径。请注意，喷嘴有两个孔口，离开喷嘴的粒子中只有一半朝向2S-6P光谱区发射，另一半会撞击243 nm增强腔的输入耦合镜。

表5.4：根据表 5.1 中定义的实验延迟和表 5.3 中给出的模拟参数，通过蒙特卡罗模拟 2S轨迹确定的平均 2S 激发概率及相关量。详情请参阅正文。

延迟 i	$P_{2\mathrm{S},\,i}$	$\eta_{2\mathrm{S},\,i}$	$\tilde{P}_{2\mathrm{S},\,i}$	$\bar{T}_{1\mathrm{S}\text{-}2\mathrm{S},i}$ (µs)	$N_{2\mathrm{S}\,i}/N'_{1\mathrm{S}}$ (s)	$P_{2\mathrm{S,dcy}}$
1	2.2×10^{-2}	1	2.2×10^{-2}	580	5.8×10^{-9}	1.6×10^{-3}
2	2.2×10^{-2}	1	2.2×10^{-2}	530	5.7×10^{-9}	1.6×10^{-3}
3	2.1×10^{-2}	1	2.1×10^{-2}	480	5.5×10^{-9}	1.6×10^{-3}
4	2.0×10^{-2}	1	2.0×10^{-2}	430	5.2×10^{-9}	1.6×10^{-3}
5	1.8×10^{-2}	1.0	1.8×10^{-2}	381	4.7×10^{-9}	1.7×10^{-3}
6	1.6×10^{-2}	9.9×10^{-1}	1.6×10^{-2}	335	4.2×10^{-9}	1.7×10^{-3}
7	1.4×10^{-2}	9.7×10^{-1}	1.4×10^{-2}	300	3.5×10^{-9}	1.8×10^{-3}
8	1.3×10^{-2}	9.0×10^{-1}	1.1×10^{-2}	277	2.9×10^{-9}	1.9×10^{-3}
9	1.0×10^{-2}	7.9×10^{-1}	8.2×10^{-3}	260	4.2×10^{-9}	2.1×10^{-3}
10	9.2×10^{-3}	5.6×10^{-1}	5.2×10^{-3}	258	2.7×10^{-9}	2.3×10^{-3}
11	8.9×10^{-3}	3.8×10^{-1}	3.3×10^{-3}	267	1.7×10^{-9}	2.6×10^{-3}
12	7.3×10^{-3}	2.5×10^{-1}	1.8×10^{-3}	289	1.9×10^{-9}	3.0×10^{-3}
13	6.5×10^{-3}	1.1×10^{-1}	7.2×10^{-4}	336	1.1×10^{-9}	3.6×10^{-3}
14	7.1×10^{-3}	3.8×10^{-2}	2.7×10^{-4}	396	4.2×10^{-10}	4.4×10^{-3}
15	6.1×10^{-3}	1.5×10^{-2}	9.5×10^{-5}	473	2.5×10^{-10}	5.4×10^{-3}
16	6.6×10^{-3}	4.4×10^{-3}	2.9×10^{-5}	569	8.4×10^{-11}	6.7×10^{-3}

。

对于每条轨迹和每个积分延迟，均针对给定的相互作用时间$T_{1\mathrm{S}\text{-}2\mathrm{S},j,k}$ 以及相互作用开始时的给定位置[1]，对光学布洛赫方程进行数值积分。还考虑了制备激光器关闭后、轨迹到达光谱激光束之前这段时间τ_j 内2S布居数的自然衰减。随后，该计算得出轨迹的2S激发概率$P_{2\mathrm{S},\mathrm{int},j,l}$ ，即对于由该轨迹描述的原子，在延迟时间τ_j 后处于光谱激光束处的亚稳态2S能级的概率。$\tilde{P_{2\mathrm{S},\mathrm{int},j,l}}$对于$T_{1\mathrm{S}\text{-}2\mathrm{S},j,k}=0$设为零。实验延迟 i 对应的平均有效2S激发概率$P_{2\mathrm{S},i}$ ，则通过对 N_{traj} 条轨迹和$M_{\mathrm{int},i}$ 个积分延迟下的$P_{2\mathrm{S},\mathrm{int},j,k}$ 取平均得到，

$$\tilde{P}_{2\mathrm{S},i}=\frac{1}{N_{\mathrm{traj}}M_{\mathrm{int},i}}\sum_{j,k}P_{2\mathrm{S},\mathrm{int},j,k}. \tag{5.9}$$

重要的是，该过程意味着模拟的每次运行都会对所有实验延迟使用同一组轨迹。另一个值得考察的量是仅针对与激光发生相互作用的轨迹，求得平均 2S 激发概率 $P_{2\mathrm{S},\,i}$ 以及平均相互作用时间 $T_{1\mathrm{S}\text{-}2\mathrm{S},\,i}$；也就是说，这些轨迹满足 $T_{1\mathrm{S}\text{-}2\mathrm{S},\,j,\,k}>0$，因为 $P_{2\mathrm{S},\,i}$ 是激发动力学的衡量指标。同样，与激光发生相互作用的轨迹所占比例 $\eta_{2\mathrm{S},\,i}$ 也值得关注，其中 $P_{2\mathrm{S},\,i}=\eta_{2\mathrm{S},\,i}P_{2\mathrm{S},\,i}$。2S-6P测量初步分析中 $P_{2\mathrm{S},\,i}$、 $\eta_{2\mathrm{S},\,i}$、 $P_{2\mathrm{S},\,i}$和 $T_{1\mathrm{S}\text{-}2\mathrm{S},\,i}$ 的数值列于表5.4。

[1]如果存在多个积分延迟，使得相互作用从喷嘴处开始，那么可以将计算简化为起始位置单一、终止位置多个的数值积分，或者等价地，简化为多个相互作用时间。由于许多轨迹都属于这种情况，这能大幅加快计算速度。

表5.5：表 5.1 所列延迟对应的速度分布。能够对信号作出贡献的原子的最大速度 $v_{\max}$ 由延迟时间 τ 决定，关系为 $v_{\max} \approx L/\tau$，其中 L 为喷嘴孔口到 2S-6P 光谱激光束的距离。若不考虑激发，所得原子的平均速度不同，对应平均速度为$\bar{v}$的 1S分布（1S）；若考虑 1S-2S激发的权重，或同时考虑 1S-2S 与 2S-6P 激发的权重，则分别得到平均速度为 $\bar{v}$的 2S 分布（2S）和平均速度为$\bar{v}$的信号分布。后者与多普勒频移等系统效应的评估相关，其 $\bar{v}$ 也列于表 5.1。同样，给出了沿 x-轴（Δv_x）和 y-轴（Δv_y）的 1S 和 2S 分布的半高全宽。括号中的数值是在多次模拟中得到的标准差；这些模拟涵盖表 5.3 所列参数以及表6.2所列数据组G1–G12的参数。

延迟	$v_{\max}$ (m/s)	$\bar{v}$(1S态) (m/s)	$\bar{v}$(2S态) (毫秒)	$\bar{v}$ (毫秒)	Δv_x(1S态) (毫秒)	Δv_x(2S态) (毫秒)	Δv_y(1S态) (m/s)	Δv_y(2S态) (m/s)
1	>1000	383.7(2.3)	313.3(6.2)	256.4(6.4)	3.25(3)	3.36(11)	3.98(4)	4.56(20)
2	>1000	383.7(2.3)	312.4(6.2)	255.0(6.3)	3.25(3)	3.36(11)	3.98(4)	4.60(20)
3	>1000	383.7(2.3)	310.2(6.0)	253.0(6.2)	3.25(3)	3.33(11)	3.98(4)	4.62(20)
4	>1000	383.7(2.3)	305.2(5.8)	250.0(6.1)	3.25(3)	3.27(10)	3.98(4)	4.61(20)
5	971	383.7(2.3)	296.3(5.3)	245.5(5.8)	3.25(3)	3.17(10)	3.98(4)	4.55(20)
6	785	381.4(2.3)	283.5(4.9)	238.6(5.4)	3.25(3)	3.02(8)	3.97(4)	4.44(18)
7	658	371.9(2.1)	268.2(4.4)	229.8(4.9)	3.23(3)	2.82(7)	3.95(4)	4.25(16)
8	567	354.4(1.9)	252.1(4.0)	219.8(4.5)	3.16(3)	2.61(6)	3.89(4)	4.01(14)
9	498	332.6(1.7)	229.9(3.5)	204.4(3.9)	3.05(2)	2.33(4)	3.76(3)	3.65(11)
10	400	288.5(1.3)	203.0(2.9)	184.3(3.2)	2.73(2)	2.01(3)	3.39(3)	3.21(8)
11	334	251.0(1.2)	180.6(2.5)	166.5(2.7)	2.41(2)	1.76(3)	3.00(2)	2.84(6)
12	287	220.7(1.1)	156.5(2.0)	146.1(2.2)	2.14(2)	1.50(2)	2.66(2)	2.43(4)
13	224	176.8(0.9)	127.5(1.6)	120.8(1.8)	1.72(1)	1.20(2)	2.15(2)	1.96(3)
14	169	135.5(0.8)	103.0(1.1)	99.0(1.3)	1.33(1)	0.94(2)	1.66(2)	1.56(2)
15	135	109.8(0.7)	83.8(1.1)	81.2(1.2)	1.08(1)	0.76(2)	1.35(2)	1.26(2)
16	101	83.5(0.7)	66.8(0.9)	65.5(0.9)	0.82(1)	0.60(2)	1.03(2)	1.00(3)

在实验中，每个数据点采集160个斩波器周期。因此，对于每个延迟 i，数据采集总时间为 $160 \times \tau_i$。在此期间飞过2S-6P光谱激光器光束的2S原子数量 $N_{2S,\ i}$ 随后为

$$N_{2S,i} = \tilde{P}_{2S,i} \times 160 \times \Delta\tau_i \times P_{\text{geo}} \times N'_{1S}, \tag{5.10}$$

其中，N'_{1S} 表示每秒沿2S-6P光谱区方向离开喷嘴的1S原子数量（见第4.5.2.3节）。$N_{2S,\ i}/N'_{1S}$ 也列于表5.4中。为了以突出所使用的蒙特卡罗过程局限性的方式展示模拟结果，由下式定义的模拟2S原子数量

$$N_{2S,\text{sim,i}} = \tilde{P}_{2S,i} \times \frac{\Delta\tau_i}{50\,\mu\text{s}} \times N_{\text{traj}} \tag{5.11}$$

使用该数量，其与 $N_{2S,\ i}$ 成正比。

5.2.2 2S轨迹的速度分布

图 5.4 展示了使用 $N_{\text{traj}} = 1 \times 10^7$ 条轨迹进行的 2S轨迹蒙特卡罗模拟结果，以及 1S-2S 制备激光器典型参数下的结果。典型的

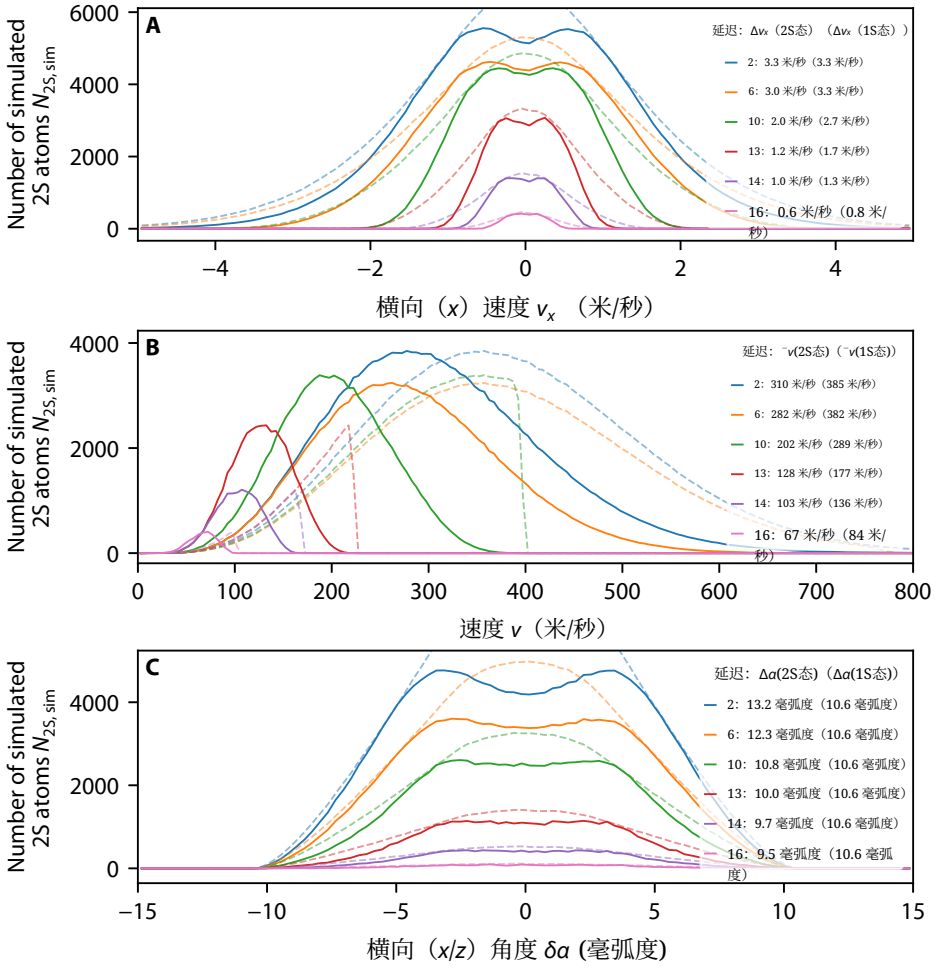


图 5.4：蒙特卡罗模拟亚稳态2S原子在2S-6P光谱激光束处的轨迹。1S-2S制备激光器的腔内功率和原子失谐分别设为 $P_{\text{1S-2S}} = 1.1\,\text{W}$ 和 $\Delta\nu_{\text{1S-2S}} = 970\text{Hz}$，速度分布的截止速度为 $v_{\text{cutoff}} = 65\text{m/s}$。（**A**）模拟的 2S 原子数量 $N_{\text{2S, sim}}$ 随沿2S-6P光谱激光束方向的横向速度 v_x 变化的关系（实线），对应不同的延迟。作为参考，图中还显示了1S原子的分布（虚线），其缩放后包络2S分布。图例给出了2S和1S分布的半高全宽 Δv_x。（**B**）模拟的 2S 原子数量 $N_{\text{2S, sim}}$ 随速度 v变化的关系。与1S分布（虚线）相比，较慢原子具有更长的相互作用时间，因此分布向较低速度偏移；此处1S分布已归一化至2S分布。图例给出了2S和1S分布的平均速度 $\bar{v}$。（**C**）模拟的 2S 原子数量 $N_{\text{2S, sim}}$ 随从 $z-$ 朝向 x-轴的横向角 $\delta\alpha$ 变化的关系（实线）。1S分布（虚线）的宽度由几何结构决定，缩放后包络2S分布，且对所有延迟都相同。图例再次给出了2S和1S分布的半高全宽 $\Delta\alpha$。此处展示的模拟包含 $N_{\text{traj}} = 1 \times 10^7$ 条随机原子轨迹。模拟的其余参数列于表 5.3。详情请参阅正文。

截止速度为 $v_{\text{cutoff}} = 65\text{m/s}$，用于模拟初始速度分布，其余输入参数的取值见表 5.3。沿 2S-6P 光谱激光束（或 x轴）方向的 2S原子的横向速度 v_x 分布对实验尤为重要，因为它决定了多普勒展宽，并且显著

会影响光力频移。图 5.4 (A) 显示了不同延迟下模拟的 2S 原子数量 $N_{2\mathrm{S},\ \mathrm{sim}}$随 v_x 的变化（实线）。图中还给出了相同轨迹的基础分布，即与制备激光相互作用、但未按 2S激发概率加权的轨迹，供参考（虚线）。为简便起见，本文始终将此分布称为 1S分布。请注意，所有飞过光谱区的原子分布（即包括未与激光相互作用的轨迹）在时间上保持不变，只有这些原子的 2S激发概率随斩波器周期调制。由于延迟 4 之前的所有原子都会与制备激光相互作用，即 $P_{2\mathrm{S}} = 1$，因此图 5.4 中延迟 2 对应的 1S分布就是所有原子的未加权分布。1S分布经过缩放，使其包络 2S分布；由此可见，后者相较于 1S原子最初近似呈高斯分布的状态，变得更平坦且更窄。这可归因于以下机制：横向速度较低的原子，其初始位置不同，可能未能被激发至 2S能级，因为它们错过了制备激光束；也可能由于大部分时间都处于激光束内而已开始电离。因此，与那些穿过激光束、且电离尚未造成限制的原子相比，这些原子的激发概率实际上更低。这使得 2S分布的半高全宽 Δv_x(2S) 小于 1S分布的半高全宽 Δv_x(1S)，这些数值也列于表5.5中。

沿 y 轴的横向速度 v_y 分布（该轴与光谱激光束和原子束轴均正交）未在图 5.4 中显示，但该方向上的半高全宽列于表5.5中。从几何上看，由于可变光阑沿 y 轴的尺寸较大，预计该方向上的发散度会增大 $(r_1 + r_{2,y})/(r_1 + r_2) = 1.25$ 倍。比值 Δv_y(1S态)/Δv_x(1S态) 确实与这一预期非常接近，而比值 Δv_y(2S态)/Δv_x(2S态) 在延迟较短时稍大一些，并且由于 2S态激发动力学的影响，在延迟较长时上升至接近 1.7。这是几何约束与 2S态激发之间复杂相互作用的一个例子，因此若不进行轨迹模拟，要预测光束特性相当困难[1]。

2S原子（实线）和1S原子（虚线）的速度分布 v 如图 5.4 (B) 所示，其中后者已按2S分布归一化。由于原子束准直良好，v_x, $v_y \ll v$，因此有 $v_z \approx v$，其中 v_z 是沿原子束（z-）轴方向的纵向速度。值得注意的是，v 决定了一阶和二阶多普勒频移的大小。与制备激光器相互作用的原子的最大纵向速度，也就是最大速度，受延迟时间 τ 限制为 $v_{\max} = L/\tau$；从约为6的延迟开始，分布受到显著影响，并在1S分布中表现为明显的截断。与1S分布相比，2S原子的分布向较低速度偏移，因为较慢的原子相互作用时间更长，因此激发概率高于较快的原子。相应地，2S原子的平均速度 $\bar{v}$(2S)低于1S原子的平均速度 $\bar{v}$(1S)。$v_{\max}$、$\bar{v}$(1S)和$\bar{v}$(2S)的数值也列于表5.5。请注意，延迟时间为1…6时的 $\bar{v}$(1S)略高于逸出束的预期平均速度（见式(4.26)），这是截止速度对速度分布产生影响所致。

[1]另一个例子是，为了降低光束发散角，人们可能会想减小制备激光器的束腰半径，从而可以缩小可变光阑的宽度。然而，模拟结果表明，这不一定会降低发散度，因为大多数低发散轨迹都会在激光束此时更高的峰值强度下电离。另一方面，降低激光功率会降低 2S激发概率，等等。

最后，图 5.4 (C) 显示了从 $z-$ 朝 x-轴方向的横向角 $\delta\alpha$ 对应的 $N_{\mathrm{2S,\ sim}}$ （实线）。1S分布的宽度（虚线；此处按包络2S分布的方式缩放）由几何结构决定，所有延迟时间下均相同，半高全宽为 $\Delta\alpha(1S) = 10.6$毫弧度。然而，2S 分布会受到上述激发动力学的影响，因此其半高全宽 $\Delta\alpha$(2S)更窄（见图例）。

5.3 2S-6P 荧光信号建模

到目前为止，第5.2节已讨论将亚稳态原子原子束建模为一组轨迹。为完整描述该实验，还必须对2S光谱激光束激发这些2S原子至6P 能级的过程，以及随后的衰变所产生的荧光信号进行建模。这里采用两种模型：首先是第 2.3.2 节介绍的大模型，它考虑了通过光谱激光或偶极允许衰变相耦合的所有原子能级，但不包括原子与激光束之间的动量交换。其次是第 3.4 节介绍的光力频移（LFS）模型，它采用简化的三能级系统，但明确考虑了原子的动量及动量交换。

5.3.1 评估原子束的大模型和光力频移模型

两个模型均由两组光学布洛赫方程（OBE）构成，分别对应两个 2S-6P 跃迁。光谱激光器的频率失谐 $\Delta\nu_{\mathrm{2S\text{-}6P}}$ 是其频率与相应未受扰动跃迁频率之间的差值。

每次针对原子束模型中的一条轨迹求解光学布洛赫方程。每条轨迹由一个初始位置 $\boldsymbol{x_0}$、一个速度 $\boldsymbol{v}$以及一组激发概率$P_{\mathrm{2S},\ i}$构成，其中 $i = 1 \ldots 16$对应实验中使用的延迟。暂且忽略与激光束之间的动量交换，原子穿过装置和激光束的路径随时间变化 t 为一条直线，由 $\boldsymbol{x}(t) = \boldsymbol{x_0} + \boldsymbol{v}t$给出。

假设激光束具有高斯横向强度分布 $I(y,\ z)$，其 $1/e^2$ 强度半径为 W_0，并调整峰值强度，使每束光的功率为 $P_{\mathrm{2S\text{-}6P}}$。由于相关区域内强度半径的相对变化小于$1 \times 10^{-7}$，因此不考虑激光束沿 x轴的发散。对于 2S-6P 测量，采用 $W_0 = 2.2\mathrm{mm}$。由此可得原子所见的时变强度包络 $I(t) = I(y(t)\ z(t))$，即不考虑沿 x轴的强度驻波图样。$I(t)$又对应于 2S-6P 激发的时变拉比频率 $\Omega_0(t) \propto \sqrt{I(t)}$（见式（2.30）和（2.31））。选择 t 的积分边界，使积分开始时和结束时原子分别位于 $z - z' = -7.5\mathrm{mm}$和 $z - z' = 7.5\mathrm{mm}$处，其中 z 是沿原子束轴的坐标，z' 是光谱激光束中心的位置。

对于某些实验设置，原子束与光谱激光束之间会施加一个偏移角 α_0。通过将 $\boldsymbol{v}$ 绕y轴旋转 α_0来考虑该角度，同时 $\boldsymbol{x}(t)$相应发生变化。

大模型不显式依赖于 $\boldsymbol{x}(t)$，其初始态设定为所有布居数都处于初始能级 $|\mathrm{i}\rangle$ ($2\mathrm{S}_{1/2}^{F=0}$, $m_F = 0$)。一阶多普勒频移通过两个

反向传播光束的（复数）拉比频率 Ω对原子沿光束方向的位置 $x(t)$ 的依赖关系隐式地考虑在内（见公式 (2.32) 至 (2.34)）。请注意，这样便纳入了光束形成的驻波图样，但未纳入该图样上的衍射。

光力频移模型显式考虑了原子沿激光束轴向的动量 $p = m_{\mathrm{H}} v_x$ ，因此将初始态设为 $|\mathrm{i}\rangle |p\rangle_x$。该状态对应于完全离域的原子，因此沿 x轴的初始位置无关紧要。同样，反向传播光束的反平行波矢也显式体现了多普勒频移和驻波图样。 y, z轴向的动量和位置则仅通过强度包络 $I(t)$ 隐式纳入，处理方式与大模型相同。

两个模型的光学布洛赫方程都包含信号方程，其中纳入了每个原子预期产生的荧光信号，即信号方程所涵盖的衰变所发射的预期光子数。对于大模型，每个球分量q 对应的所有莱曼衰变均以相等权重[1]，求和，从而针对$q = -1, 0, 1$的可能取值获得三个信号。这三个信号再根据其探测效率加权；探测效率由两个探测器的空间探测效率模拟结果（见第4.6.6节）、发射光子的角分布（取决于 q ，见式（2.40）和（2.41））以及线性激光偏振角 θ_{L}共同确定。 θ_{L} 是2S-6P光谱激光束的偏振矢量与探测器圆筒轴线之间的夹角；该偏振矢量位于 y-z平面内，而探测器圆筒沿 y轴定向。由于光子角分布是相对于偏振方向给出的，而空间探测效率是相对于探测器圆筒轴线给出的，因此该角度会影响信号的探测效率。以这种方式对三个信号加权后，再将它们相加，最终得到每个探测器在 θ_{L}各取值下对应的一个信号。

对于光力频移模型，仅将带有 $q = 0$ 的莱曼-ϵ 衰变用作信号，因为该模型中没有其他莱曼衰变。因此无需纳入探测效率，两个探测器的信号相同，且与 θ_{L} 无关。

两个模型的光学布洛赫方程均采用龙格-库塔方法[2]进行数值积分。根据所模拟的实验情形，对表5.2中给出的频率失谐 $\Delta\nu_{\text{2S-6P}}$ 的 N_Δ 个取值分别重复进行积分。为考虑与˜延迟相关的1S-2S激发，信号按激发概率 $P_{2\mathrm{S},\ i}$ 进行缩放。由此得到单条2S轨迹在 $N_{\mathrm{dlys}} = 16$ 种实验延迟下、以 N_Δ 个失谐值采样的荧光信号。

对给定轨迹集中的所有 N_{traj} 条轨迹重复这一过程。每种延迟和失谐下的信号要么对所有轨迹求和，要么如以下所采用的方式，按速度 $v = |\boldsymbol{v}|$ 将轨迹分组后，对各子集分别求和。由此得到模拟线扫描，以再现实验情况。线扫描按照第5.1节所述方式，与对应的实验线扫描同样处理。为清晰起见，通过拟合延迟确定的共振频率分别用 ν_0, $\nu_{0,\ \mathrm{BM}}$ 和 $\nu_{0,\ \mathrm{LFS}}$ 标识，依次对应实验线扫描、大模型的模拟线扫描以及光力频移模型的模拟线扫描。

All 总之，向一组给定的2S轨迹中加入2S-6P激发，会增加以下参数 l-

[1]这忽略了探测的光谱灵敏度，并高估了莱曼-α 衰变相对于莱曼-ϵ 衰变的贡献（见表 4.1；其他衰变的贡献可以忽略不计），进而可能导致低估量子干涉效应（见第2.3.2.3节）。在分析的最终版本中，将根据荧光探测的光谱灵敏度对莱曼衰变进行加权。[2]使用了 [159] 的 Dopr853 方法，这是一种八阶 Dormand-Prince方法。绝对公差和相对公差分别设为 1×10^{-10} 和 5×10^{-11}。

，这些参数应与实验值相匹配：探测跃迁（2S-6P$_{1/2}$ 或2S-6P$_{3/2}$）、光谱激光功率 $P_{\text{2S-6P}}$、光谱激光束的半径 W_0 、偏移角 α_0；对于大模型，还包括特定的探测效率模拟以及线性激光偏振角 θ_{L}。

5.3.2 对荧光信号有贡献的原子的速度分布

大模型用于确定对6P荧光信号有贡献的原子的速度分布。该6P 速度分布不同于底层2S轨迹集合的速度分布，即2S速度分布，因为激发至6P能级的激发概率（也就是发射荧光光子的概率）取决于原子的轨迹。忽略饱和效应时，该概率近似正比于原子与光谱激光器的相互作用时间 T， $T \approx 2W_0/v$。因此，与2S速度分布相比，6P 速度分布向较低速度偏移。

为确定给定轨迹集的6P 速度分布，首先按速度 v 将轨迹分为200个分箱，每个分箱宽度为5 m/s，范围为 $v = 0\text{m/s} \ldots 1000\ \text{m/s}$。然后，如上所述，使用大模型为每个速度分箱计算模拟线扫描，并用相应的线型函数进行拟合。于是，6P 速度分布由 (v_j, $A_{i,j}$) 给出，其中 v_j 是 j^{th} 速度分箱的平均速度，$A_{i,j}$ 是在延迟 $i = 1 \ldots 16$ 时对该分箱进行拟合得到的谱线振幅。

延迟 i 的平均速度 $\bar{v}_i$ 由加权平均得到

$$\bar{v}_i = \frac{\sum_j A_{i,j} v_j}{\sum_j A_{i,j}}. \tag{5.12}$$

同样，均方根（RMS）速度$\bar{v}_{\text{RMS},\ i}$ 由以下方式得到

$$\bar{v}_{\text{RMS},i} = \sqrt{\frac{\sum_j A_{i,j} v_j^2}{\sum_j A_{i,j}}}. \tag{5.13}$$

速度分布的半高全宽（FWHM） Δv通过对每个延迟下的（v_j， $A_{i,\ j}$）进行高斯拟合确定。2S-6P测量的实验参数对应的 $\bar{v}$ 和 Δv 值见表 5.1。

随后，将针对各速度区间计算得到的线扫描相加，从而得到对应于所有原子预期荧光信号的线扫描。对这些线扫描进行拟合，即可得出每个延迟 i对应的预期谱线振幅 A_i 。由于存在较大的不确定度，例如原子束的解离度难以准确确定，因此模拟得到的谱线振幅无法与实验中观测到的值直接比较。不过，可以比较谱线振幅对延迟的依赖性，即相对于选定参考延迟 k的 A_i/A_k ；因为各延迟共有的因素会相互抵消。这里采用 $k = 2$ ，实验模拟得到的 A_i/A_2 见表 5.1。模拟中 A_i/A_2 与实验中 A_i/A_2 的比值，即（A_i/A_2）$_{\text{exp}}$/（A_i/A_2）$_{\text{sim}}$，就是实验与模拟振幅比。通过使实验与模拟振幅比最小，求得基础1S速度分布的截止速度 v_{cutoff} 。这相当于调整v_{cutoff} ，使模拟尽可能重现实验中观测到的谱线振幅对延迟的依赖性。

最后，计算 A_i 与模拟的、对延迟 i 有贡献的 2S 原子数量 $N_{\text{2S,sim,i}}$ 之比。该比值对应于一个 2S 原子产生荧光信号的平均概率 $p_{\text{6P,sig}}$

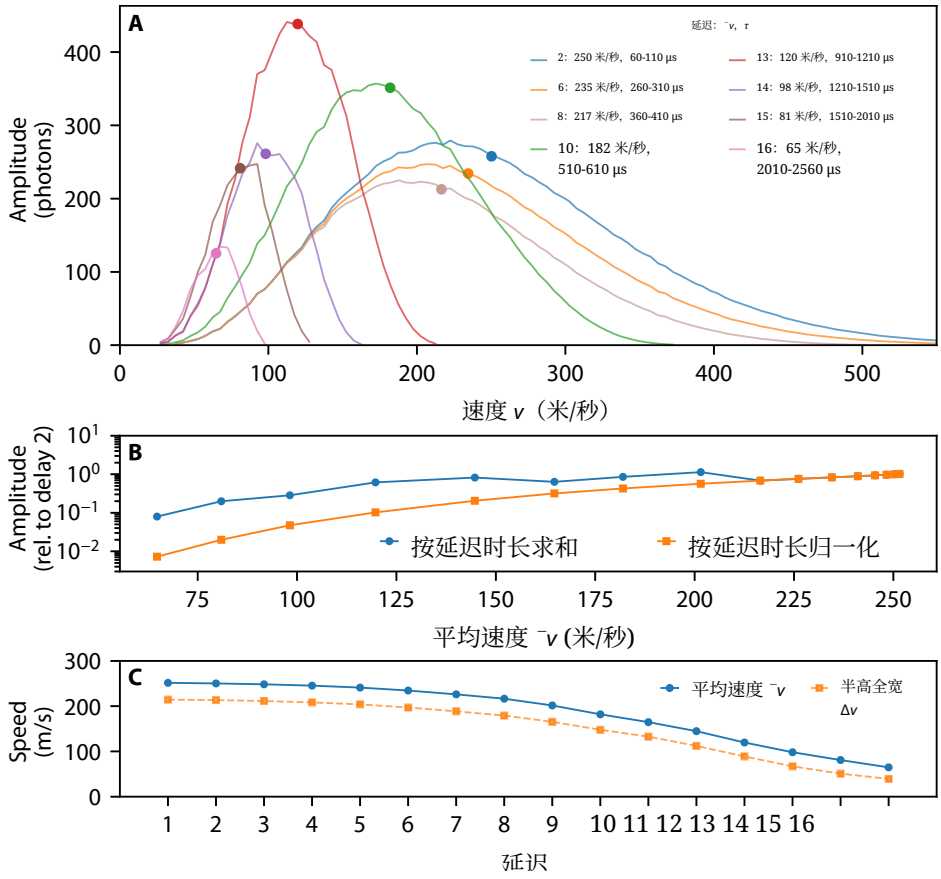


图 5.5：6P 速度分布的模拟，即对 6P荧光信号有贡献的原子的速度分布。该分布基于图 5.4 所示、由蒙特卡罗模拟获得的 2S 轨迹集。使用大模型将轨迹传播通过 2S-6P 光谱激光器，以求得荧光信号；该信号由莱曼衰变发射的光子预期数量随失谐的变化给出。光谱激光功率为 $P_{\text{2S-6P}} = 10$微瓦，且未施加偏移角 α_0 。按照轨迹速度 v 对轨迹进行排序，分为 200 个分箱，每箱宽度为 5 m/s；然后对每个分箱和延迟的线扫描进行 Voigt线型拟合。（**A**）激光处于 2S-6P共振时的预期荧光光子数量，对应于拟合得到的谱线振幅 A ，随速度 v的变化。图中显示了选定的延迟（彩色线）。对于每个延迟，通过对分箱速度取平均值来确定平均原子速度 $\bar{v}$ （圆圈），并以振幅 A 作为权重。（**B**）谱线振幅的延迟依赖性，即相对于延迟 2 的谱线振幅随 $\bar{v}$ 的变化（蓝色圆圈）。较长延迟时间对应的延迟持续时间增加，部分补偿了单位时间内发射光子数量的下降（橙色方块）。（**C**）16 个不同延迟下，6P 速度分布的平均速度 $\bar{v}$（蓝色圆圈）和半高全宽 Δv （橙色方块）。

其途径是先激发至 6P能级，随后发射一个莱曼光子。表 5.1 分别列出了用于 2S-6P测量的三种光谱激光功率 $P_{\text{2S-6P}}$ 下的 $p_{\text{6P,sig}}$ 。正如预期，随着 $\bar{v}$ 降低、相互作用时间 T增加，$p_{\text{6P,sig}}$ 也随之增加。除延迟最短的情况外（此时饱和效应开始发挥显著作用），它还大致随 $P_{\text{2S-6P}}$线性变化。

Fig. 图 5.5展示了此类分析的一个示例，使用的是图 5.4中的2S 轨迹集 .

光谱激光功率设为 $P_{\text{2S-6P}} = 10$微瓦，且未施加偏移角 α_0 ，因此采用 Voigt线型。对于选定的延迟时间（彩色线），图 5.5（A）显示了谱线振幅 $A_{i,\ j}$ 随速度 v_j 的变化，并标出了所得的平均速度 $\bar{v}_i$（圆圈）。图 5.5（B）显示了谱线振幅的延迟依赖性 A_i/A_2随 $\bar{v}_i$ 的变化（蓝色圆圈）。相同的数据经延迟时间的持续时长 $\Delta\tau$ 归一化后（橙色方块）表明，较长延迟时间对应的延迟持续时长增加，在一定程度上补偿了单位时间内发射光子数量的下降。最后，图 5.5（C）显示了16种不同延迟时间下6P 速度分布的平均速度 $\bar{v}$ （蓝色圆圈）和半高全宽 Δv （橙色方块）。

5.3.3 预期荧光信号与实验观测值的比较

已知 $p_{\text{6P,\ sig}}$，即可估算实验中预期的荧光信号振幅，即在光谱激光器与2S-6P跃迁共振时，每个探测器在160个斩波器周期内累积的计数数目。对于延迟 i，计数数目为

$$N_{\text{6P},i} = N_{\text{2S},i} \times p_{\text{6P,sig},i} \times P_{\text{DE}}. \tag{5.14}$$

$N_{\text{2S,\ }i}$ 是对信号有贡献的2S原子总数，如式（5.10）所示。对于2S-6P测量的实验参数，比例 $N_{\text{2S,\ }i}/N'_{1\,\text{S}}$ 列于表 5.4，其中 $N'_{1\,\text{S}}$ 是每秒沿着 2S-6P 光谱区方向离开喷嘴的 1S 原子数。 P_{DE} 是荧光光子的探测效率，根据第4.6.6节讨论的模拟得出。表4.2给出了顶部（$P_{\text{DE,\ TD}}$）和底部（$P_{\text{DE,\ BD}}$）探测器对莱曼-ϵ 光子的探测效率 P_{DE} 。

取用表4.2、5.1和5.4中的相应数值，并采用第4.5.2.3节对$N'_{1\,\text{S}} = 1.6 \times 10^{16}$ 个原子/的估算，对于 $P_{\text{2S-6P}} = 10$微瓦的光谱激光功率，预计延迟 13 的荧光信号振幅为 ≈ 74 千计数每秒。然而，在2S-6P测量中，观测到的最大振幅仅为 ≈ 4千计数每秒，即比预期低近20倍。

另一方面，对于不同的延迟和光谱激光功率，模拟所得的观测线宽与实验观测值相差仅几个百分点。由于 Γ_{F} 受多普勒展宽的影响很大，因此高度依赖于2S轨迹的分布，这对2S轨迹和2S-6P荧光信号的建模都是一项严格的检验。模拟也很好地再现了实验观测到的信号随 $P_{\text{2S-6P}}$ 的变化关系。

对于预期信号与观测信号之间的差异，更可能的解释是解离度 α_{dis} 被高估了，也就是说，光束中氢原子相对于氢分子的比例被高估了。如第4.5.1节所述，这一数值并不确定，而且在此处估算中，复合损失可能被低估了，尤其是在将原子从解离器输运至喷嘴的过程中。需要开展进一步的实验研究，或许包括对 α_{dis} 的直接测量，才能解释这一差异。

第6章

2S-6P跃迁频率测量

本章概述了2019年2S-6P跃迁频率测量的初步结果。由于撰写本文时数据分析仍在进行，文中给出的所有频率结果都通过添加作者未知的随机偏移量进行了盲化。此外，由于时间有限，且随着分析推进，结果可能发生变化，因此本文仅作简要描述，主要作为数据集的概述。

6.1 采集数据概述与分析流程

6.1.1 2019年测量批次

如引言（见第1章）所述，2019年开展了三轮测量（A–C），以确定2S-6P跃迁频率。表6.1列出了这些测量轮次及相应的实验配置，下面将对此作简要讨论。每轮测量包含多个测量日，而每个测量日又分为多个冻结循环（FC）。总共在73个FC中采集了3155次线扫描。

对于运行 A 和 B，原子束与 2S-6P 光谱激光束被调校为以直角相交，即 $\alpha_0 = 0$毫弧度，以尽量减小观测线宽、残余多普勒频移和光力频移。另一方面，在运行 C 期间，原子束与激光束被刻意设置为以偏离正交方向的小角度 α_0 相交。这样做的主要目的是增大光力频移，以检验其理论建模。运行 C 中的大部分数据是在 $\alpha_0 = \pm 12.0$毫弧度下采集的，但部分数据使用了 $\alpha_0 = \pm 7.5$ 毫弧度和 $\alpha_0 = 0$毫弧度。

运行 A 和 B 中均探测了 2S-6P$_{1/2}$ 和 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁，即分别跃迁至两个精细结构（FS）分量 6P$_{1/2}$ 和 6P$_{3/2}$。这使得相应的两个跃迁频率 $\nu_{1/2}$ 和 $\nu_{3/2}$ 可以组合起来形成 2S-6P 质心 $\nu_{\text{2S-6P}}$，其精细结构分量的量子干涉（QI）造成的谱线位移会大幅减小（见第6.2.4.6节）。另一方面，运行 C 仅包含有关 2S-6P$_{1/2}$ 跃迁的数据。对于每个 FC，仅探测了其中一个跃迁；各次运行中每种跃迁对应的 FC 数量和有效线扫描次数见表6.1。

The 2S-6P光谱激光器的功率分别设为 $P_{\text{2S-6P}}$ 30 微瓦和 d

表6.1：2019年进行的三轮测量运行 A、B 和 C 概览，这些运行期间采集了 2S-6P 跃迁频率测量的数据。 α_0：原子束与激光束夹角的偏移量，θ_{L}：线性激光偏振角， $P_{\text{1S-2S}}$：1S-2S 制备激光器的腔内功率，探测器阻挡网：探测器组件中是否安装了额外的屏蔽网，FS：探测的精细结构分量， $P_{\text{2S-6P}}$：2S-6P光谱激光器的功率，FC：运行中包含的冻结循环数量，有效线扫描：运行中包含的有效线扫描数量。

测量 run	Time 周期 （2019年）	α_0 （毫弧度）	θ_{L} (°)	$P_{\text{1S-2S}}$ (W)	探测器阻塞网	FS	$P_{\text{2S-6P}}$ (μW)	FCs	有效 line 扫描
A	24.3.–3.4. （6天）	0	56.5	1.0 – 1.7	已安装	$6\mathrm{P}_{1/2}$	30	13	285
						$6\mathrm{P}_{3/2}$	15	3	162
B	23.5.–9.6. （14天）	0	56.5, 146.5	1.0 – 1.3	已移除	$6\mathrm{P}_{1/2}$	10, 20, 30	21	1093
						$6\mathrm{P}_{3/2}$	5, 10, 15	20	992
C	29.7.–7.8. （5天）	$0, \pm 7.5, \pm 12.0$	56.5	1.0 – 1.1	已移除	$6\mathrm{P}_{1/2}$	30	16	623
总计								73	3155

运行 A期间，2S-6P$^{1/2}$ 和2S-6P$^{3/2}$ 跃迁的激光功率为15微瓦。B次运行中，数据是在激光功率降低至原来的二分之一和三分之一时采集的，其中大部分数据是在后一种功率下采集的。这样做是因为降低激光功率可以减小光力频移，并在一定程度上减小量子干涉（QI）引起的谱线位移。

大部分数据是在 2S-6P 光谱激光器的线性激光偏振方向经过调整、使 QI 谱线位移近乎最小化的情况下采集的（见图 6.8）。为此， θ_{L} 被设为 $56.5°$，其中 θ_{L} 是偏振矢量与探测器圆筒轴线之间的角度。为验证对观测到的 QI 谱线位移所进行的理论建模（而这又关键取决于对探测效率的建模），在 B 次运行期间还在 $\theta_{\mathrm{L}} = 146.5°$条件下采集了部分数据，此时 QI 谱线位移较大。

在轮次B和C期间，1S-2S 制备激光器的腔内功率 $P_{\text{1S-2S}}$ 保持在 1.0 W 至 1.3 W 之间。运行 A 的第一个 FC 中，功率达到 1.7 W，最后一个 FC 中则降至 1.0 W。在运行 B 的大部分时间以及运行 C 的全过程中，腔内功率都保持稳定（见第 4.3.3.5 节），但运行 A 期间并未如此。

最后，在运行 A 期间，探测器组件内安装了额外的屏蔽网，详见第 4.6.1 节。B 次运行前，屏蔽网已移除。

6.1.2 数据组及其分析

为进行数据分析，数据还根据测量运行、探测跃迁以及 α_0、 θ_{L}和 $P_{\text{2S-6P}}$的取值进一步分组。最终得到的17个数据组列于表6.2中。

表6.2：数据组G1–G14概述。每个数据组中的线扫描均在同一次测量运行中采集，且对应相同的精细结构（FS）分量、原子束与激光束夹角偏移量 α_0、线性激光偏振角 θ_{L} 以及 2S-6P 光谱激光的功率 $P_{\text{2S-6P}}$。FC：组内包含的冻结循环数量；每个探测器的有效线扫描：组内顶部和底部探测器所包含的有效线扫描数量；线型函数：分析所用的线型函数；双重扫描：线扫描是否以双重扫描方式采集，以及改变的参数。

Data 组	测量 run	FS	α_0 （毫弧度）	θ_{L} (°)	$P_{\text{2S-6P}}$ (μW)	FCs	有效线扫描每个探测器 Top	有效线扫描每个探测器 底部	Line 形状函数	Dual scan
G1A	A	$6\mathrm{P}_{1/2}$	0	56.5	30	13	285	285	Voigt	—
G1B	B				30	18	148	141		$P_{\text{2S-6P}}$
G1C	C				30	16	77	68		—
G2	B				20	18	147	138		$P_{\text{2S-6P}}$
G3	B				10	18	598	564		
G4	B	$6\mathrm{P}_{1/2}$	0	146.5	30	3	34	31	Voigt	$P_{\text{2S-6P}}$
G5	B				20	3	34	31		
G6	B				10	3	132	119		
G7A	A	$6\mathrm{P}_{3/2}$	0	56.5	15	3	162	162	Voigt	—
G7B	B				15	17	143	116		
G8	B				10	18	151	124		$P_{\text{2S-6P}}$
G9	B				5	18	568	461		
G10	B	$6\mathrm{P}_{3/2}$	0	146.5	15	2	21	20	Voigt	$P_{\text{2S-6P}}$
G11	B				10	2	22	21		
G12	B				5	2	87	80		
G13	C	$6\mathrm{P}_{1/2}$	7.5	56.5	30	3	106	106	Voigt	—
G14	C		12.0		30	11	440	394	双峰	

6.1.2.1 模拟修正

对于每个数据组，按照第5.2节所述，使用蒙特卡罗模拟生成最多三组2S轨迹。对于每组轨迹，调整1S-2S光谱激光器的功率 $P_{\text{1S-2S}}$ 和失谐 $\Delta\nu_{\text{1S-2S}}$，使其与实验值相匹配。对于 $P_{\text{1S-2S}}$ 或 $\Delta\nu_{\text{1S-2S}}$分散较大的数据组，则使用多组轨迹。随后，将每次线扫描分配给最符合该次扫描期间 $P_{\text{1S-2S}}$ 和 $\Delta\nu_{\text{1S-2S}}$ 的一组轨迹。速度分布的截止速度 v_{cutoff} 设为[1]，使其大致匹配图6.1所示该数据组线扫描的平均 v_{cutoff}。对于运行 A 的所有数据组（运行 B 和 C 的所有数据组），分别采用 $v_{\text{cutoff}} = 30\,\mathrm{m/s}$（$v_{\text{cutoff}} = 65\,\mathrm{m/s}$）。数据组G1–G12和G13–14分别使用总计 $N_{\text{traj}} = 1 \times 10^6$ 和 $N_{\text{traj}} = 4 \times 10^6$ 条轨迹。后面的数据组需要更多轨迹，以便在光力频移模拟中达到足够的准确度。

[1] v_{cutoff} 通过比较实验与模拟线幅度的延迟依赖关系来确定，相关讨论见第5.3.2节。

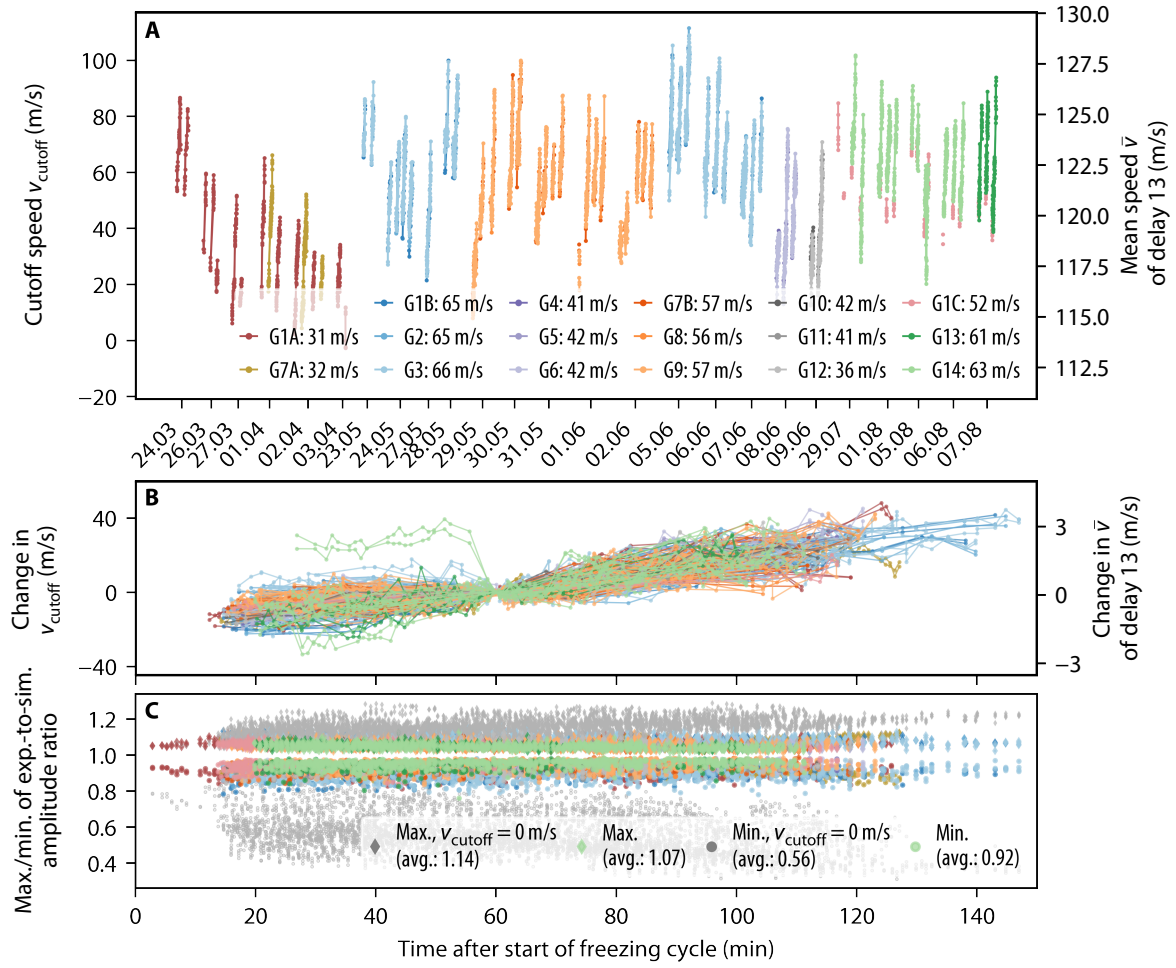


图 6.1：2S-6P测量期间截止速度 v_{cutoff} 的变化。 v_{cutoff} 通过对所有延迟下的实验振幅与模拟振幅之比进行最小化，为每次有效扫描和每个探测器确定。**(A)** v_{cutoff} 随测量时间的变化，不同数据组以不同颜色表示。每条近乎垂直的条纹（彩色线条和点）对应一个冻结周期（FC）。**(B)** 与 (A) 中的数据相同，但显示的是每个 FC 期间 v_{cutoff} 的变化（彩色线条和点），相对于 FC 开始后 60 分钟时的 v_{cutoff} 值。**(C)** (B) 中数据对应的实验与模拟振幅比的最大值和最小值（分别以彩色菱形和圆形表示）；另给出将v_{cutoff} 设为零时的参考值（灰色符号）。

所有数据组的蒙特卡罗模拟其余参数均相同，参数值见表 5.3。

生成的轨迹集作为大模型和光力频移模型的输入，如第5.3节所述。对于每个轨迹集，使用相应数据组的 α_0、 θ_{L} 和 $P_{\mathrm{2S\text{-}6P}}$ 值，计算两个模型的线扫描。对于这项初步分析，所有数据组均采用相同的网格透射率为$T_{\mathrm{WM}} = T_{\mathrm{WM,\ BD}} = 80\%$的探测效率模拟（见第4.6.6节），也就是说，忽略运行 A 期间的屏蔽网。按照第5.3.2节所述，确定每个轨迹集在每个延迟下的平均速度 $\bar{v}$ 和均方根速度 $\bar{v}_{\mathrm{RMS}}$ 。

实验线扫描和模拟线扫描均使用相同的线型函数进行拟合。对于 $\alpha_0 = 0$毫弧度的数据组，使用 Voigt线型（见第5.1.1.2节和图 5.1），

而对于数据组G13和G14（其分别为 $\alpha_0 = 7.5$毫弧度和 $\alpha_0 = 12.0$毫弧度），则使用 Voigt 双峰线型（见第5.1.1.3节和图 5.2）。模拟线扫描采用与实验线扫描相同的光谱激光失谐频率采样 $\Delta\nu_{\text{2S-6P}}$ （见表5.2）。

这样，每条实验线扫描的每个延迟都会获得一个来自大模型的拟合结果（共振频率为 $\nu_{0,\,\text{BM}}$）、一个来自光力频移模型的拟合结果（共振频率为 $\nu_{0,\,\text{LFS}}$），以及 $\bar{v}$ 和 $\bar{v}_{\text{RMS}}$的数值。根据后者，可以计算二阶多普勒频移 $\Delta\nu_{\text{SOD}}$ （见第6.2.4.1节）。随后，对每条实验线扫描中每个延迟的共振频率 ν_0 进行修正，扣除二阶多普勒频移、主要由量子干涉（QI）导致的频移以及光力频移，即减去 $\Delta\nu_{\text{SOD}} + \nu_{0,\,\text{BM}} + \nu_{0,\,\text{LFS}}$，也就是 $\nu_0 \to \nu_0 - (\Delta\nu_{\text{SOD}} + \nu_{0,\,\text{BM}} + \nu_{0,\,\text{LFS}})$。此外，还会在省略部分或全部模拟修正的情况下重复完整的分析，以确定这些修正对测得的 2S-6P跃迁共振频率的影响（见图6.4）。需要注意的是，由于 $\nu_{0,\,\text{BM}}$ 和 $\nu_{0,\,\text{LFS}}$ 都是通过拟合线扫描得出的，因此，诸如所选频率采样所导致的系统偏移可能会被重复计入。这个问题仍有待今后详细研究。不过，在计算 2S-6P质心时（见第6.2.4.6节），来自 $\nu_{0,\,\text{BM}}$ 的修正几乎完全抵消，只留下来自 $\nu_{0,\,\text{LFS}}$的修正，从而避免了这一特定问题。

使用平均速度 $\bar{v}$，按照第 5.1.2 节所述，对实验和模拟线扫描均进行多普勒外推（并取平均）。由此得到每条线扫描和每个探测器对应的无多普勒共振频率 $\nu_{0,\,\text{e}}$、多普勒斜率 κ 和多普勒平均共振频率 $\nu_{0,\,\text{a}}$。需要注意的是，由于模拟修正已应用于各个实验延迟对应的共振频率，因此会影响所确定的 κ 值，并且通常会使 $\nu_{0,\,\text{e}}$ 和 $\nu_{0,\,\text{a}}$ 产生大小不同、甚至符号相反的修正。模拟所得的 $\nu_{0,\,\text{e}}$、κ 和 $\nu_{0,\,\text{a}}$ 不会直接用于分析，而仅用于直观展示模拟修正，例如图 6.8。因此，除非另有说明，下文中的 $\nu_{0,\,\text{e}}$、κ 和 $\nu_{0,\,\text{a}}$ 均指根据实验数据得出的值。

6.1.2.2 探测器相关性

每次线扫描中$\nu_{0,\,\text{e}}$、κ和$\nu_{0,\,\text{a}}$ 的数值在两个探测器之间存在相关性，这是由于两个探测器共有的荧光信号噪声所致，即并非来自散粒噪声或探测器本身的噪声。针对每个数据组确定线性相关系数 r。对于这三个量，线性相关系数的范围分别为0.29 ... 0.49、0.48 ... 0.70和0.70 ... 0.80；所使用的激光功率 $P_{\text{2S-6P}}$ 越大，数据组中观察到的相关性越强。这是预期结果，因为较大的 $P_{\text{2S-6P}}$ 会产生更高的荧光信号，从而降低散粒噪声的相对贡献。在对两个探测器的结果进行平均时会考虑相关系数，本章所示的所有数据均对应于该探测器平均值[1]。

6.1.2.3 额外散布

最后，$\nu_{0,\,\text{e}}$、κ和$\nu_{0,\,\text{a}}$ 使用相应的统计不确定度作为权重，分别对每个数据组中包含的各个冻结周期（FC）进行平均。这些加权平均值的约化卡方 $\chi^2_{\text{red,FC}}$ 通常被发现大于 1，表明

[1]对于某些线扫描，只能获得来自顶部探测器的数据（见表6.2），这是由于底部探测器上出现了瞬态过量散布和尖峰。在这种情况下，仅使用顶部探测器的数据，而不使用探测器平均值。

每次线扫描所得结果存在额外散布。对于 2S-6P测量，三个量的平均值$\chi^2{}_{\mathrm{red,FC}}$ 分别为 $\bar{\chi}^2{}_{\mathrm{red,FC}} = 1.7$、2.6 和 6.7（见图 6.2 和图 6.3），每个 FC 平均包含 18.8 次扫描。如第 5.1.2 节所详述，如果多普勒频移随时间变化，例如由于实验对准发生漂移，那么对 κ 和 $\nu_{0,\,\mathrm{a}}$ 进行平均时出现这种情况是预期之中的。多普勒外推应当消除这些频移，而$\nu_{0,\,\mathrm{e}}$理想情况下不应表现出额外散布。尽管$\nu_{0,\,\mathrm{e}}$的额外散布显著低于 κ 和 $\nu_{0,\,\mathrm{a}}$，但其数值仍显著大于 1。这归因于荧光信号中存在额外噪声，例如喷嘴温度波动导致原子通量发生变化[1]，而这也会导致前述的探测器相关性。

为解释这种额外散布，按相应的 $\sqrt{\chi^2_{\mathrm{red},\,\mathrm{FC}}}$ 对 $\nu_{0,\,\mathrm{e}}$、κ 和 $\nu_{0,\,\mathrm{a}}$ 的 FC 平均值的不确定度进行缩放（对于 $\chi^2{}_{\mathrm{red,FC}} \leq 1$，不进行缩放，即不确定度绝不会减小）。是否进行这种缩放以及在何时进行，在一定程度上是任意的选择；此处，缩放对 2S-6P$^{1/2}$ 和 2S-6P$^{3/2}$ 跃迁所得 $\nu_{0,\,\mathrm{e}}$ 数值的影响小于 30 赫兹。这里的思路如下：首先，每次 FC 之前，将喷嘴加热至室温，再冷却，并使其居中对准制备激光束。在此过程中停止运行的氢解离器随后重新启动。每次 FC 开始时，通过对 1S-2S 激光进行光谱测量，确定制备激光器的最佳失谐，并根据观测到的 2S-6P 跃迁 [28] 多普勒频移设置偏移角 α_0。其次，假设荧光信号上存在额外噪声，且每次 FC 的噪声近似相同。第三，不同 FC 之间的残余多普勒频移可能会有所变化，因为它在一定程度上取决于对准情况。随后，按 $\sqrt{\chi^2_{\mathrm{red},\,\mathrm{FC}}}$ 对每次 FC 的平均值进行缩放，即可消除这种噪声。但这并不能消除各 FC 之间以及各天之间因制备和对准程序而产生的潜在散布；这种散布表现为对缩放后的 FC 平均值 $\nu_{0,\,\mathrm{e}}$ 求加权平均时，χ^2_{red} 大于 1。下一节将介绍采用此程序进行 2S-6P测量所得的结果。

6.2 初步结果：2S-6P测量

6.2.1 盲化跃迁频率

6.2.1.1 2S-6P$^{1/2}$ 跃迁

图6.2展示了2S-6P$^{1/2}$ 跃迁测量所得的盲化结果。该跃迁的2S-6P测量涵盖了所有数据，包括非零 α_0的情况，即数据组G1–G6、G13和G14（彩色菱形）。每个数据组中的数据均按照第6.1.2节所述进行分析，并已纳入光力频移、量子干涉谱线位移和二阶多普勒频移的修正。由此得到106个冻结周期（FC）各自的无多普勒共振频率$\nu_{0,\,\mathrm{e}}$、多普勒斜率 κ和多普勒平均共振频率$\nu_{0,\,\mathrm{a}}$ 的数值及不确定度，分别如图6.2中的(A)、(C)和(E)所示。每个FC内所有线扫描的加权平均值所对应的$\chi^2{}_{\mathrm{red,FC}}$ 分别见(B)、(D)和(F)，而(G)显示了各FC中的线扫描数量。$\nu_{0,\,\mathrm{e}}$、κ和$\nu_{0,\,\mathrm{a}}$ 的不确定度已

[1]在线扫描期间，喷嘴温度 T_{N} 的标准差与线扫描拟合的 χ^2_{red} 被发现存在显著的正相关。目前，正与其他噪声源一起对此进行进一步研究。

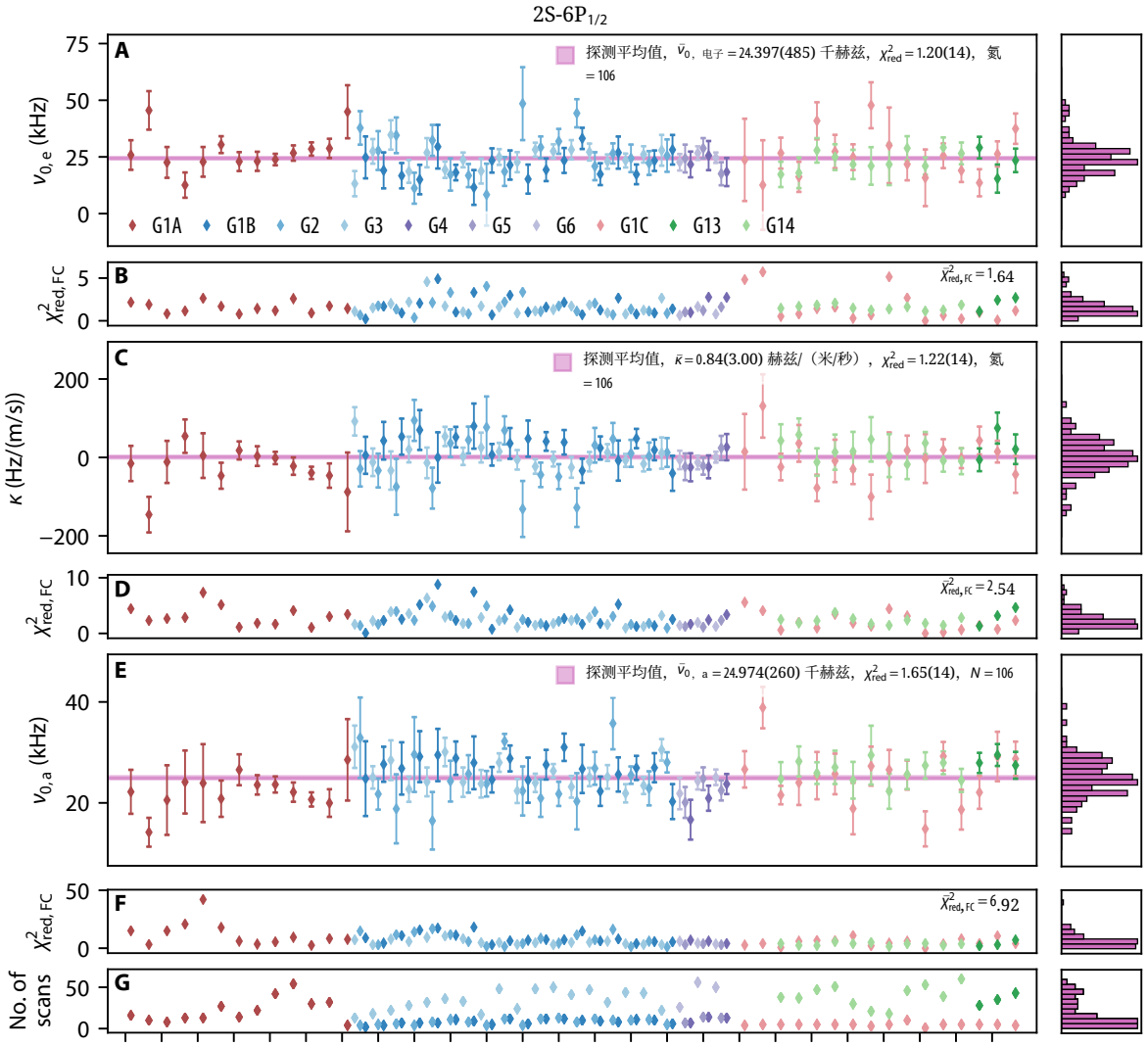


图 6.2：针对不同数据组和冻结周期（FC）的 2S-6P1/2 跃迁测量盲化结果。统计了所有数据，包括 α_0 非零的情况（数据组 G1–G6、G13、G14）。图中显示了冻结周期平均的（**安培**）无多普勒共振频率 $\nu_{0,\,e}$、（**摄氏度**）多普勒斜率 κ，以及（**E**）多普勒平均共振频率 $\nu_{0,\,a}$。各冻结周期内所有线扫描的加权平均所对应的 $\chi^2_{red,FC}$ 分别见（**B**）、（**D**）和（**F**）；$\nu_{0,\,e}$、κ和 $\nu_{0,\,a}$ 的不确定度已按 $\sqrt{\chi^2_{red,FC}}$缩放。紫色带表示对全部 106 个冻结周期进行加权平均所得的不确定度区域。结果已纳入光力频移、量子干涉谱线位移和二阶多普勒频移的修正。仅计入统计不确定度（包括探测器相关性），未计入修正的不确定度。（**G**）各冻结周期内的线扫描数量。每幅图右侧显示了相应数据的直方图。

按 $\sqrt{\chi^2_{red,\,FC}}$进行了缩放，因此其平均增幅分别为 $\sqrt{\bar{\chi}^2_{red,\,FC}} = 1.30$、1.63和2.66。

The 所有 106 个 FC 的无多普勒共振频率加权平均值 $\nu_{0,\,e}$ 给出 s

2S-6P$_{1/2}$ 跃迁的盲化跃迁频率 $\tilde{\nu}_{1/2}$（图6.2 (A) 中的紫色带），

$$\tilde{\nu}_{1/2} \equiv \bar{\nu}_{0,\mathrm{e}} = 24.397(485)\,\mathrm{kHz} \qquad \text{with} \quad \chi^2_{\mathrm{red}} = 1.20(14). \tag{6.1}$$

$\tilde{\nu}_{1/2}$ 目前仅包含统计不确定度，不包括修正的不确定度或其他系统不确定度。总计，$\tilde{\nu}_{1/2}$ 已修正760赫兹，其中分别对光力频移（LFS）、量子干涉（QI）谱线位移和二阶多普勒频移（SOD）进行了696赫兹、210赫兹和 -145赫兹的修正（见图6.4）。

加权平均值的χ^2_{red} 与FC之间不存在额外散布的假设基本一致。如果不对各FC的不确定度进行放大以考虑各FC内部的额外散布，$\tilde{\nu}_{1/2}$ 仅移动17赫兹，但不确定度会降至401赫兹，而 χ^2_{red} 则会增至 $1.82 \approx (485\text{赫兹}/401\text{赫兹})^2 \times 1.20$。$\tilde{\nu}_{1/2}$ 的统计不确定度比附录A中2S-4P$_{1/2}$ 跃迁频率的相应不确定度[1] 低6.0倍。

同样，所有 FC 的多普勒斜率 κ 的加权平均值为（图6.2 (C)中的紫色带）

$$\bar{\kappa} = 0.84(3.00)\,\mathrm{Hz/(m/s)} \qquad \text{with} \quad \chi^2_{\mathrm{red}} = 1.22(14), \tag{6.2}$$

$\bar{\kappa}$ 与零符合良好；对于速度为 $v_{\mathrm{typ}} = 200\mathrm{m/s}$ 的原子，它对应的多普勒频移为 168(600)赫兹。对每次线扫描的共振频率进行修正后，$\bar{\kappa}$ 修正了 -5.4赫兹/(m/s)，其中包括分别针对光力频移、QI谱线位移和二阶多普勒频移的 -4.7赫兹/(m/s)、-2.4赫兹/(m/s) 和 1.7 赫兹/(m/s) 修正（见图6.4）。因此，若不进行这些修正，$\bar{\kappa}$ 与零的相容程度仅为 2σ。χ^2_{red} 与 $\tilde{\nu}_{1/2}$相似，这表明 FC 之间以及测量日之间的额外散布并不显著大于各 FC 内部的散布。这说明，对各 FC 执行的对准程序所导致的残余多普勒频移可以忽略，或至少具有可重复性；与测量的不确定度以及 FC 期间残余多普勒频移的变化相比，情况如此。2S-4P测量并非如此（见附录A），该测量中观察到了额外的日间散布。

最后，对所有 FC 的多普勒平均共振频率 $\nu_{0,\,\mathrm{a}}$ 取加权平均，结果为（图6.2 (E)中的紫色带）

$$\bar{\nu}_{0,\mathrm{a}} = 24.974(260)\,\mathrm{kHz} \qquad \text{with} \quad \chi^2_{\mathrm{red}} = 1.65(14). \tag{6.3}$$

$\bar{\nu}_{0,\,\mathrm{a}}$ 已修正 -274赫兹，其中分别对光力频移、QI谱线位移和二阶多普勒频移进行了 -253 赫兹、-208赫兹和 187 赫兹的修正（见图6.4）。计入这些修正后，$\tilde{\nu}_{1/2}$ 与 $\bar{\nu}_{0,\,\mathrm{a}}$ 在合成不确定度的 1σ 范围内一致。然而，不进行这些修正时，$\tilde{\nu}_{1/2}$ 与 $\bar{\nu}_{0,\,\mathrm{a}}$之间存在 3σ 的张力。

χ^2_{red} 的值表明，FC之间的$\bar{\nu}_{0,\,\mathrm{a}}$ 存在显著的额外散布，而 $\tilde{\nu}_{1/2}$ 和 $\bar{\kappa}$则没有。这并不令人意外，因为$\nu_{0,\,\mathrm{a}}$ 对残余多普勒频移和荧光信号中的额外噪声更为敏感；与$\nu_{0,\,\mathrm{e}}$ 和 κ相比，FC内部的额外散布大得多，便证明了这一点。因此，FC之间的额外散布虽然仅表现为 $\tilde{\nu}_{1/2}$ 和 $\bar{\kappa}$ 的 χ^2_{red} 略大，却可能导致$\nu_{0,\,\mathrm{a}}$的 χ^2_{red} 明显过大。

[1]对于 2S-4P测量，一阶多普勒频移的处理方式与此处不同，因此 $\bar{\nu}_{0,\,\mathrm{e}}$ 的统计不确定度应与附录A表 S2 中给出的一阶多普勒频移不确定度进行比较。

然而，如果人们关注的不是绝对频率，而只是数据子集之间的频率差，仍可使用$\bar{\nu}_{0,\,\mathrm{a}}$，但需将额外散布考虑在内。为此，$\bar{\nu}_{0,\,\mathrm{a}}$再次按$\sqrt{\chi^2_{\mathrm{red}}}$进行缩放，但这次使用的是相关数据子集中FC加权平均值的χ^2_{red}。由此得到缩放后的多普勒平均共振频率$\hat{\nu}_{0,\,\mathrm{a}} = \sqrt{\chi^2_{\mathrm{red}}}\bar{\nu}_{0,\,\mathrm{a}} \approx 1.28\,\bar{\nu}_{0,\,\mathrm{a}}$。$\hat{\nu}_{0,\,\mathrm{a}}$用于检验光力频移模型和用于计算QI谱线位移的大模型。观测2S-4P测量中的QI谱线位移时，也采用了类似的方法（见附录A）。

其中一项测试是考察图 6.5（A–C）所示的 2S-6P$^{1/2}$ 跃迁测量结果随光谱激光功率 $P_{\text{2S-6P}}$ 的变化。这里只考虑满足 $\alpha_0 = 0$ 毫弧度的数据，因为非零 α_0 的数据仅在 $P_{\text{2S-6P}} = 30$ 微瓦下采集，因此会使测试结果的解释复杂化。考虑到光力频移和 QI谱线位移随功率变化的修正后，发现不同 $P_{\text{2S-6P}}$下的 $\bar{\nu}_{0,\,\mathrm{e}}$ 和 $\hat{\nu}_{0,\,\mathrm{a}}$ 均高度相容。

6.2.1.2 2S-6P$^{3/2}$ 跃迁

同样，2S-6P$^{3/2}$ 跃迁测量的盲化结果如图 6.3 所示。该跃迁在 2S-6P测量中获得的全部 62 个 FC 数据均纳入考虑，即数据组 G7–G12（彩色菱形）。与 2S-6P$^{1/2}$ 跃迁不同，没有采集非零 α_0 的数据。所有 FC 的加权平均值为

$$\tilde{\nu}_{3/2} \equiv \bar{\nu}_{0,\mathrm{e}} = -3.315(601)\,\mathrm{kHz} \qquad \text{with} \quad \chi^2_{\mathrm{red}} = 1.23(18), \tag{6.4}$$

$$\bar{\kappa} = -3.14(3.75)\,\mathrm{Hz/(m/s)} \qquad \text{with} \quad \chi^2_{\mathrm{red}} = 1.22(18), \tag{6.5}$$

$$\bar{\nu}_{0,\mathrm{a}} = -3.695(312)\text{ 千赫兹} \qquad \text{with} \quad \chi^2_{\mathrm{red}} = 1.40(18). \tag{6.6}$$

$\tilde{\nu}_{3/2}$($\bar{\nu}_{0,\,\mathrm{a}}$)已修正1149赫兹（729赫兹），分别包括针对光力频移、QI谱线位移和二阶多普勒频移的1313赫兹（381赫兹）、 -22 赫兹（163赫兹）和 -142赫兹（186赫兹）修正（见图6.4）。与2S-6P$^{1/2}$ 跃迁一样，光力频移修正对总修正的贡献占主导。不过，对于 $\tilde{\nu}_{3/2}$，该修正约为 $\tilde{\nu}_{1/2}$的两倍，这主要是因为后者在零 α_0和 $\alpha_0 = 12.0$毫弧度处采集的数据中，光力频移存在一定程度的抵消。

$\tilde{\nu}_{3/2}$ 和 $\bar{\kappa}$ 的 χ^2_{red} 与2S-6P$^{1/2}$ 跃迁的相应数值相似，同样与FC之间不存在显著额外散布的假设相当吻合。如果不放大各FC的不确定度以计入各FC内部的额外散布， $\tilde{\nu}_{3/2}$ 仅移动 -24 赫兹，但不确定度降至479赫兹，而 χ^2_{red} 则增至$1.89 \approx$（601赫兹/479赫兹）$^2 \times 1.23$。无论是否计入修正， $\tilde{\nu}_{1/2}$ 和$\bar{\nu}_{0,\,\mathrm{a}}$ 在其合成不确定度范围内一致。 $\tilde{\nu}_{3/2}$ 的统计不确定度比附录A中2S-4P$^{3/2}$ 跃迁频率的相应不确定度低4.7倍。

χ^2_{red} 对于$\bar{\nu}_{0,\,\mathrm{a}}$ 如预期所示，FC 之间存在显著的额外散布，尽管其程度低于 2S-6P$^{1/2}$ 跃迁中观察到的水平。与该跃迁类似，定义了缩放后的多普勒平均共振频率 $\hat{\nu}_{0,\,\mathrm{a}} = \sqrt{\chi^2_{\mathrm{red}}}\bar{\nu}_{0,\,\mathrm{a}} \approx 1.18\,\bar{\nu}_{0,\,\mathrm{a}}$，用于检验数据集中的频率差。

至于 2S-6P$^{1/2}$ 跃迁， $\bar{\kappa}$ 与零值符合良好，不确定度也相近。$\bar{\kappa}$ 包括 -1.8赫兹/(m/s)的修正，该修正分别由 LFS、QI谱线位移和 SOD 的 -4.8赫兹/(m/s)、1.3赫兹/(m/s)和 1.7 赫兹/(m/s)修正组成（见图6.4）。相应地，即使不包括这些修正， $\bar{\kappa}$ 也与零值相容。

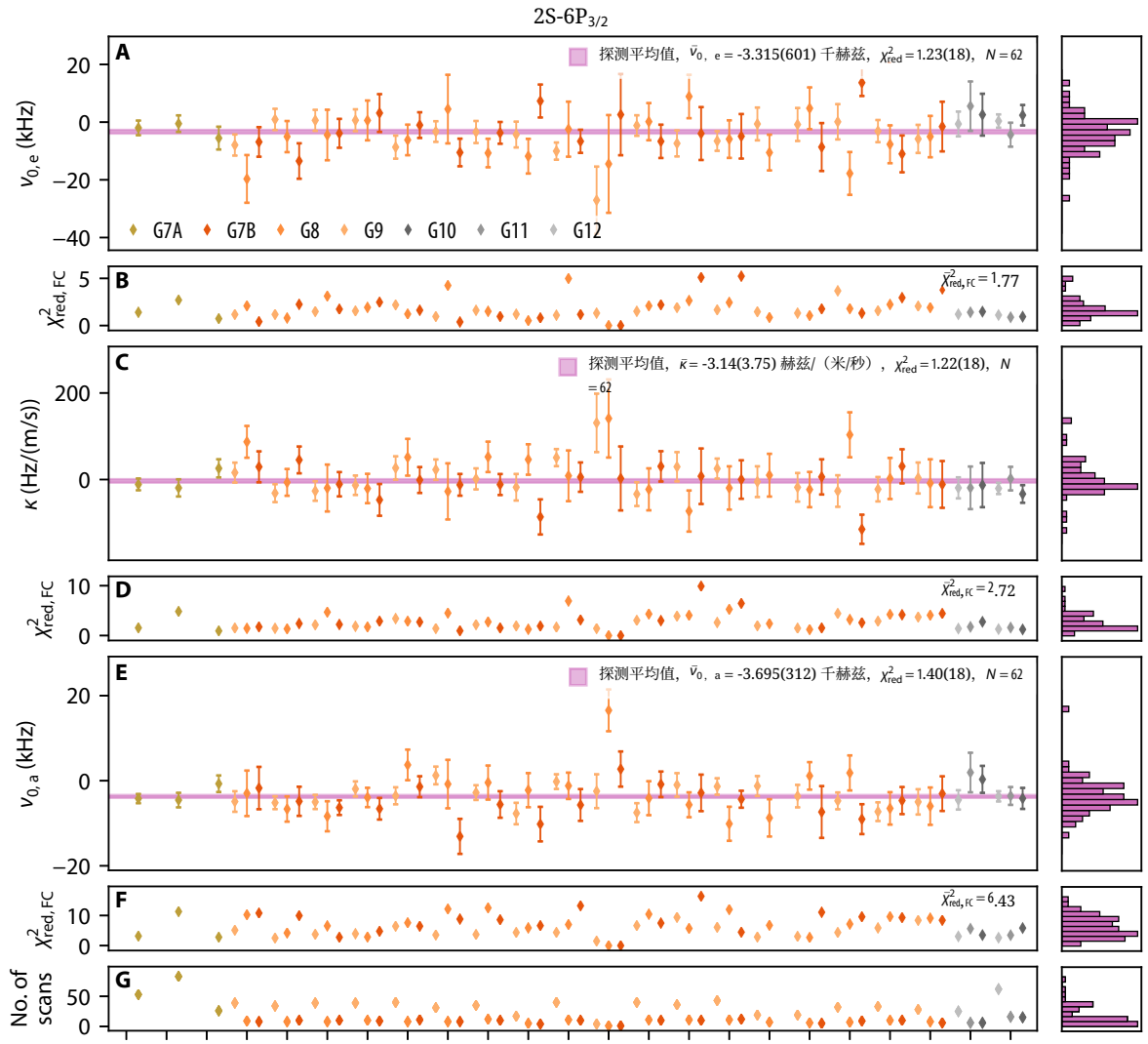


图6.3：与图6.2类似，但展示了不同数据组（数据组 G7–G12）和冻结周期（FC）对 2S-6P3/2 跃迁测量的盲化结果。

2S-6P3/2 跃迁的测量结果随光谱激光功率 $P_{\text{2S-6P}}$ 的变化如图6.5（D–E）所示。对于不同的 $P_{\text{2S-6P}}$，$\bar{\nu}_{0,\,\text{e}}$ 和 $\hat{\nu}_{0,\,\text{a}}$ 均被发现是相容的，无论是否考虑光力频移和 QI谱线位移的功率相关修正。

6.2.1.3 合并 2S-6P1/2 和 2S-6P3/2 跃迁

盲化的 2S-6P质心见第6.2.4.6节和式（6.21）。

$$\tilde{\nu}_{\text{2S-6P}} = \frac{1}{3}\tilde{\nu}_{1/2} + \frac{2}{3}\tilde{\nu}_{3/2} = 5.922(432)\,\text{kHz}, \tag{6.7}$$

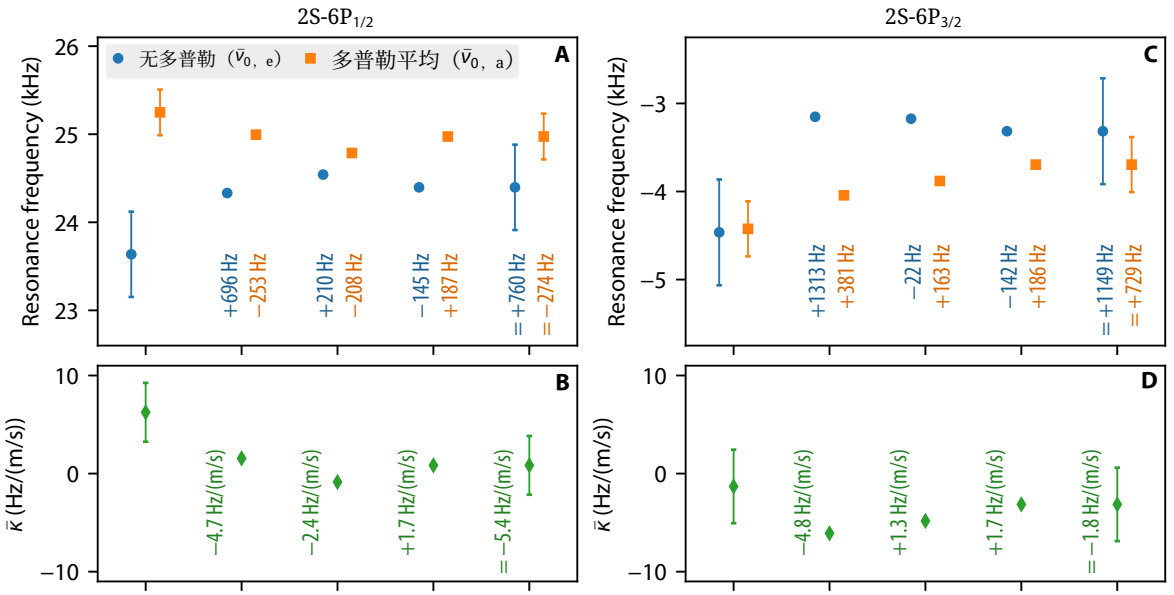


图 6.4：在测量（**安培**，**B**）2S-6P$_{1/2}$ 和（**摄氏度**，**D**）2S-6P$_{3/2}$ 跃迁时纳入的模拟修正。所有数据，包括非零 α_0的数据，均予以考虑（数据组 G1– G14）。图中显示了探测器循环和冻结循环平均后的（**安培**，**摄氏度**）无多普勒共振频率$\bar{\nu}_{0,\,e}$（蓝色圆点）、多普勒平均共振频率$\bar{\nu}_{0,\,a}$（橙色方块），以及（**B**，**D**）多普勒斜率 $\bar{\kappa}$（绿色菱形）。依次应用三项修正：光力频移（LFS）、量子干涉（QI）谱线频移和二阶多普勒频移（SOD）修正。误差棒表示实验数据的 1σ 统计不确定度，但不包括这些修正的不确定度。

这里假设统计不确定度 $\tilde{\nu}_{1/2}$ 和 $\tilde{\nu}_{3/2}$ 彼此不相关，并且式（6.21）中的额外偏移量已计入 $\tilde{\nu}_{\text{2S-6P}}$的盲偏移量。假设对 $\tilde{\nu}_{1/2}$和 $\tilde{\nu}_{3/2}$施加的修正完全相关，因此对 $\tilde{\nu}_{\text{2S-6P}}$ 的修正为 1019 赫兹，其中光力频移、QI谱线位移和二阶多普勒频移分别贡献 1107 赫兹、55 赫兹和 -144赫兹。因此，修正主要由光力频移决定，这也说明了为推导和验证光力频移模型所付出的巨大努力是合理的。 $\tilde{\nu}_{\text{2S-6P}}$ 的统计不确定度比附录A中 4P质心跃迁频率的相应不确定度低 4.9 倍。

可以对两个跃迁的多普勒斜率 $\bar{\kappa}$ 的数值取平均，假设它们不相关，从而得到多普勒抑制的性能极限-0.71（2.34）赫兹/（米/秒）。这对应于原子速度为 $v_{\text{typ}} = 200$ 米/秒时的多普勒频移 -142（468）赫兹。

6.2.2 光力频移模型的实验检验与不确定度

到目前为止讨论的数据，均已使用第3章提出的模型校正光力频移（LFS）。该模型预测，对于沿激光束飞行且（横向）速度超过

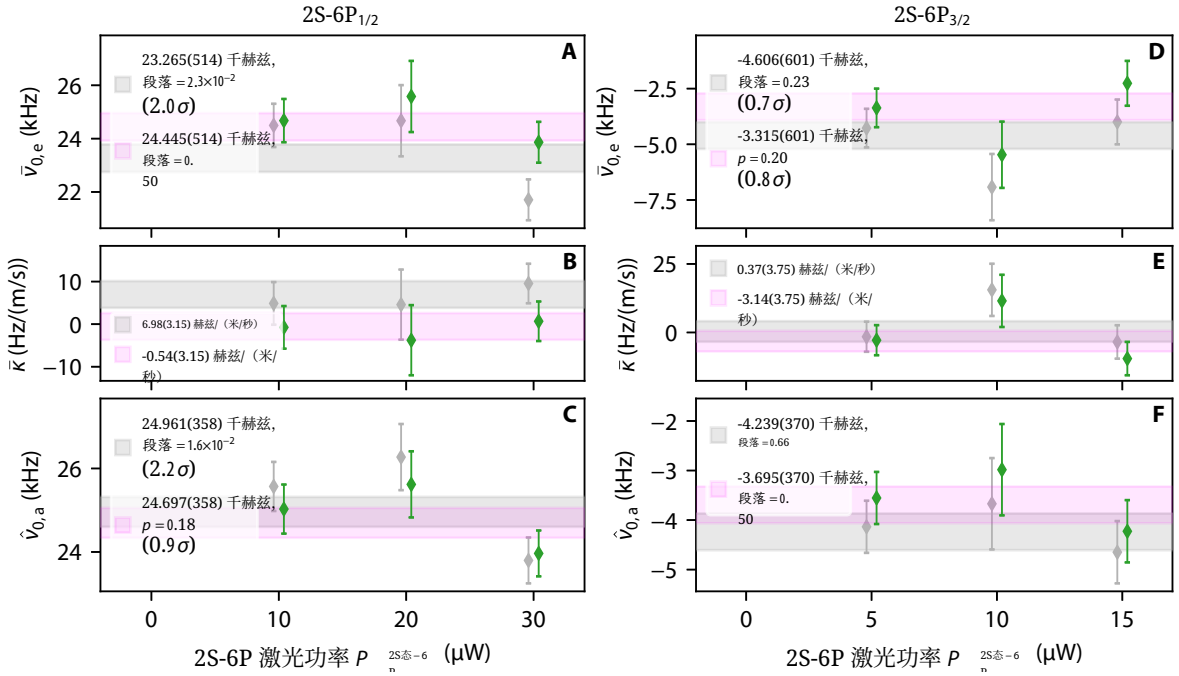


图 6.5：测量（**A–C**）2S-6P1/2 和（**D–F**）2S-6P3/2 跃迁随 2S-6P 光谱激光器功率 $P_{\text{2S-6P}}$ 变化的盲化结果。仅考虑满足 $\alpha_0 = 0$ 毫弧度的数据（数据组G1–G12）。图中显示了探测器平均且经冻结周期平均的（**A, D**）无多普勒共振频率 $\bar{\nu}_{0,\text{e}}$、（**B, E**）多普勒斜率 $\bar{\kappa}$，以及（**C, F**）缩放后的多普勒平均共振频率 $\hat{\nu}_{0,\text{a}}$；分别以灰色菱形和绿色菱形表示未修正以及经量子干涉谱线位移和光力频移修正的结果。灰色和紫色带分别表示未修正和经修正的加权平均值的不确定度区域，图例中给出了 p 值和显著性 $Z\sigma$。仅计入统计不确定度，不计入修正的不确定度。为便于观察，沿 x 轴添加了一个小偏移量。

反冲速度 $v_{\text{rec}} \approx 0.97\text{m/s}$的原子，LFS会从负频移变为正频移。在 $v_x \approx v_{\text{rec}}$这一特殊情况下，会出现类共振行为，产生约为200千赫兹的大幅LFS（见图 3.3），但这只影响一小部分原子。实验中，如图 5.4所示，大多数原子的横向速度低于反冲速度，因此无多普勒频率及其平均频率的整体LFS为负。不过，如果原子束与光谱激光束并非以直角相交，而是相对于正交方向存在偏移角 α_0，横向速度就会增大；部分原子所受的负LFS可以被其他原子所受的正频移抵消，最终总频移会变为正值。

为验证这一预测，我们在 $\alpha_0 = 7.5$毫弧度和 12.0 毫弧度下测量了 2S-6P1/2 跃迁[1] 的数据（分别对应数据组G13和G14），并使用了功率为 $P_{\text{2S-6P}} = 30$微瓦、线性激光偏振角为 $\theta_{\text{L}} = 56.5°$的光谱激光器。随后，可以将这些数据与在 $\alpha_0 = 0$毫弧度下、 $P_{\text{2S-6P}}$ 和 θ_{L}取相同值时测得的数据进行比较，即数据组G1A–G1C。图 6.6 (A) 展示了根据这些数据组计算得到的光力频移（LFS）模型预测值随延迟的平均速度 $\bar{v}$ 的变化。只有速度最快的延迟

[1]读者可能会想知道，为何此处采用 2S-6P1/2 跃迁，而不是 2S-6P3/2 跃迁，因为后者的光力频移最高可大一倍（见图 3.3）。原因在于，进行测量时，人们尚未完全理解反向衰变至初始2S能级所产生的影响，而这种影响正是造成差异的原因。

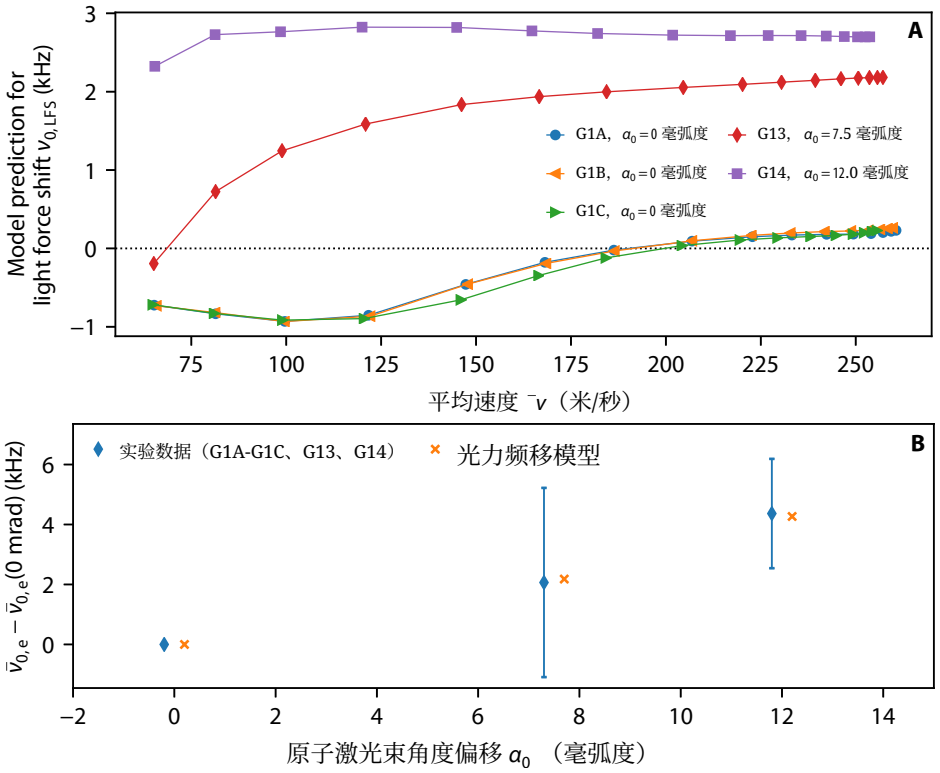


图 6.6：（**A**）LFS模型对延迟的平均速度 $\bar{v}$ 的预测 $\nu_{0,\ \mathrm{LFS}}$，展示了数据组G1A–G1C、G13和G14的结果。对于角度为零的情况，LFS主要为负（G1A–G1C，蓝色、橙色和绿色曲线）；而在 $\alpha_0 = 7.5$ 毫弧度（G13，红色曲线）和 $\alpha_0 = 12.0$ 毫弧度（G14，紫色曲线）时则为正。这是因为当横向速度超过反冲速度 $v_{\mathrm{rec}} \approx 0.97$米/秒时，LFS会从负频移变为正频移；随着 α_0 增大，横向速度也会增加。G1A–G1C之间的细微差异主要是由这些数据组所用1S-2S 制备激光器的功率不同造成的。（**B**）2S-6P$_{1/2}$ 跃迁的光力频移（LFS）测量结果随原子束与激光束夹角偏移量 α_0 的变化。图中给出了实验测得的无多普勒共振频率 $\bar{\nu}_{0,\ \mathrm{e}}$（蓝色菱形）以及LFS模型预测的谱线位移（橙色叉号），它们均相对于 $\alpha_0 = 0$ 毫弧度时的值表示；此时预测的频移为 -1.49 千赫兹。实验数据已针对量子干涉谱线位移和二阶多普勒频移进行修正；与此处观测到的LFS相比，这两项都小得多。$\alpha_0 = 0$ 毫弧度时实验数据的不确定度已计入 $\alpha_0 \neq 0$ 毫弧度时的不确定度，因此未单独显示。此处仅考虑统计不确定度，未计入修正的不确定度。模型与实验数据高度吻合。所有所示数据（数据组G1A–G1C、G13、G14）的光谱激光功率为 $P_{\mathrm{2S\text{-}6P}} = 30$ 微瓦，线性激光偏振角为 $\theta_{\mathrm{L}} = 56.5$ 毫弧度。为便于观察，沿 x 轴添加了一个小偏移量。

当 α_0 为零时，光束发散角足够大，使这些原子在横向上的速度超过反冲速度，因此它们经历正的光力频移；而速度较慢的延迟则经历幅度更大的负光力频移。通过将多普勒外推至零速度，得到的光力频移预测对应的无多普勒共振频率$\nu_{0,\ \mathrm{e}}$ 为负值。对于具有 $\alpha_0 > 0$的数据组，光力频移始终为正，因为大多数原子的横向速度都超过了反冲速度；不过，$\alpha_0 = 7.5$毫弧度下的最后一个延迟除外，但其统计权重很小。因此，光力频移预测对应的$\nu_{0,\ \mathrm{e}}$ 在 $\alpha_0 > 0$ 时为正。

The 根据这些数据组实验确定的无多普勒共振频率 $\bar{\nu}_{0,\ \mathrm{e}}$ a

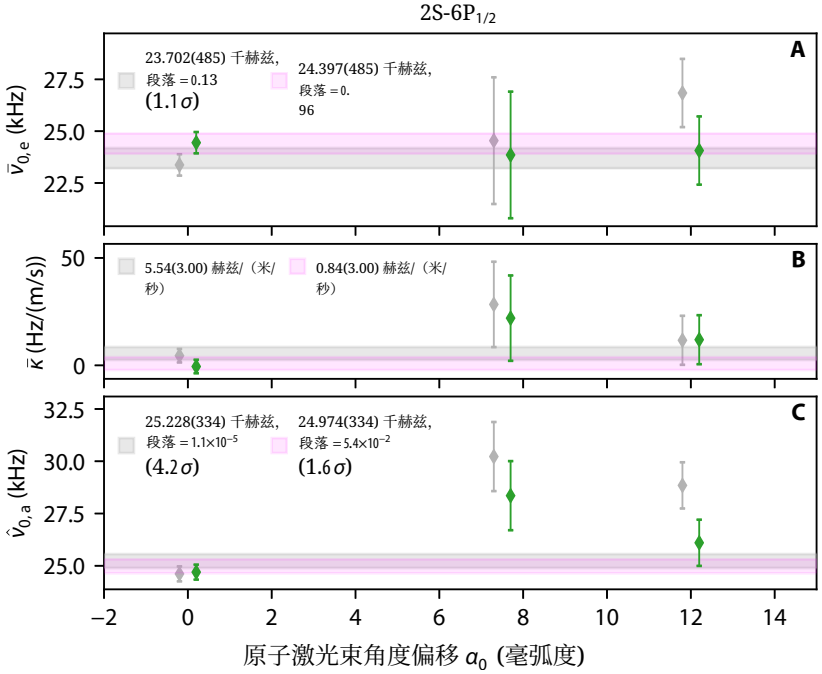


图 6.7：2S-6P1/2 跃迁的盲化测量结果与原子束与激光束夹角偏移量的关系，α_0（数据组 G1–G6、G13、G14）。图中展示了探测器和冻结周期平均后的（**A**）无多普勒共振频率 $\bar{\nu}_{0,\mathrm{e}}$、（**B**）多普勒斜率 $\bar{\kappa}$，以及（**C**）缩放后的多普勒平均共振频率 $\hat{\nu}_{0,\mathrm{a}}$；其中灰色菱形表示未考虑光力频移（LFS）修正的结果，绿色菱形表示考虑了该修正的结果。两者均包含量子干涉谱线位移和二阶多普勒频移的修正。灰色和紫色带分别表示未修正和经修正加权平均值的 1σ 不确定度区域，p值和显著性 $Z\sigma$标注于图例中。仅考虑统计不确定度，未考虑修正的不确定度。为便于观察，沿 x轴添加了一个小偏移量。

如图 6.6 (B) 所示（蓝色菱形），同时还显示了 LFS 模型预测的谱线位移（橙色叉号）与 α_0 的关系。实验数据和预测值均以其在 $\alpha_0 = 0$ 毫弧度时的数值为基准表示，此时预测的位移为 -1.49 千赫兹。实验数据已针对量子干涉谱线位移和二阶多普勒频移进行了修正；与此处观测到的 LFS 相比，这两者要小得多，但未像本文其他地方那样针对 LFS 进行修正。$\alpha_0 = 0$ 毫弧度时实验数据的不确定度已计入 $\alpha_0 \neq 0$ 毫弧度时的不确定度中。由于 $\alpha_0 = 7.5$ 毫弧度仅有一个测量日的数据，因此该数值的不确定度较大，对这一检验没有显著贡献。

如图 6.6 (B) 所示，光力频移模型与实验数据高度吻合。发现 $\alpha_0 = 0$mrad 和 $\alpha_0 = 12$mrad 两组数据之间的频率差为

$$\bar{\nu}_{0,\mathrm{e}}(12.0\,\mathrm{mrad}) - \bar{\nu}_{0,\mathrm{e}}(0\,\mathrm{mrad}) = 4.37(1.82)\,\mathrm{kHz}, \tag{6.8}$$

其中仅包含可忽略的修正：QI谱线位移为173赫兹，SOD为25赫兹。光力频移模型的相应预测为

$$\nu_{0,\mathrm{e}}(12.0\,\mathrm{mrad}) - \nu_{0,\mathrm{e}}(0\,\mathrm{mrad}) = 4.27\,\mathrm{kHz}. \tag{6.9}$$

该预测的不确定度应通过在原子束建模的实验约束范围内改变相关参数来确定，目前尚未进行详细评估，但根据初步评估，估计低于20%。请注意，此处给出的预测所用参数并非为了尽可能复现光力频移而选取，而是由几何结构、实测激光参数给出，或依据第6.1.2节所述，通过大模型而非光力频移模型从数据中确定。

图 6.7 (A)、(B) 和 (C) 分别显示了对于所有 2S-6P$^{3/2}$ 跃迁数据，LFS 修正对无多普勒共振频率 $\bar{\nu}_{0,\,\mathrm{e}}$、多普勒斜率 $\bar{\kappa}$ 和缩放后的多普勒平均共振频率 $\hat{\nu}_{0,\,\mathrm{a}}$ 的影响，以上各量均以 α_0 为横坐标。与仅包含量子干涉谱线位移和二阶多普勒频移修正的情况（灰色菱形和色带）相比，加入 LFS 修正（绿色菱形和紫色色带）提高了 $\bar{\nu}_{0,\,\mathrm{e}}$, $\bar{\kappa}$、$\hat{\nu}_{0,\,\mathrm{a}}$ 的一致性。

6.2.3 量子干涉谱线位移修正

荧光探测的大立体角和线性激光偏振角 θ_{L} 的选择会大幅抑制量子干涉（QI）谱线位移。图 6.8 展示了无多普勒共振频率 $\nu_{0,\,\mathrm{e}}$ 的 QI 谱线位移随线性激光偏振角 θ_{L} 的变化模拟结果，其中实线对应 2S-6P$^{1/2}$，虚线对应 2S-6P$^{3/2}$ 跃迁。该模拟采用大模型（见第 2.3.2 节），并结合空间探测效率模拟（表4.2）。图 4.41 中四种不同探测效率模拟对应的 QI 谱线位移，分别对应荧光探测器组件内金属丝网的不同透射率；顶部探测器的数据以彩色线表示，底部探测器的数据以浅色线表示。光谱激光功率设为 $P_{\text{2S-6P}} = 30$微瓦和 $P_{\text{2S-6P}} = 15$ 微瓦，其余实验参数分别对应 2S-6P$^{1/2}$ 和 2S-6P$^{3/2}$ 跃迁的 G1B 和 G10 数据组。对于 $P_{\text{2S-6P}} = 10$ 微瓦和 $P_{\text{2S-6P}} = 5$微瓦，谱线位移约小三分之一。

正如对 2S-nP 跃迁的微扰分析所预期的那样，[29], 谱线位移随 θ_{L} 近似呈正弦变化；对于 2S-6P$^{1/2}$ 和 2S-6P$^{3/2}$ 跃迁，位移符号相反；而 2S-6P$^{1/2}$ 跃迁的位移幅度约为前者的两倍。值得注意的是，正弦变化并非以零谱线位移为对称中心，也就是说，简单地对 θ_{L} 求平均会在 $\nu_{0,\,\mathrm{e}}$中引入系统偏移量。不同的探测效率模拟以及两个探测器所得的谱线位移非常相似；2S-6P$^{1/2}$ 和 2S-6P$^{3/2}$ 跃迁的振幅分别约为 5。1 千赫兹和 2。6 千赫兹。QI 谱线位移约为 2S-4P测量中位移的八分之一（见附录A的图 4（A、B）），这是由于 2S-6P测量的线宽更低且探测立体角更大。

大部分实验数据是在 $\theta_{\mathrm{L}} = 56.5^\circ$（浅蓝色条）下采集的，此时 QI谱线位移约为最小值，即接近魔角。对于 $\pm 3^\circ$ 为 θ_{L}的估计对准不确定度，2S-6P$^{1/2}$ 跃迁的谱线位移在 -250赫兹和 -1.4千赫兹以内，而 2S-6P$^{3/2}$ 跃迁的谱线位移在 125赫兹和 0.7 千赫兹以内。部分数据也采集于 $\theta_{\mathrm{L}} = 146.5^\circ$（浅蓝色条）下，此时谱线位移较大，两个跃迁的位移分别最大可达 3.8 千赫兹和 2.0 千赫兹。与 $\theta_{\mathrm{L}} = 56.5^\circ$相比，$\theta_{\mathrm{L}} = 146.5^\circ$ 下的谱线位移符号也相反；因此，若像本文为求得跃迁频率时所采用的方式对所有数据取平均，QI谱线位移会发生部分抵消。

与 2S-4P测量中的做法相同，可以利用两个跃迁的谱线位移符号相反这一事实，并对它们的跃迁频率进行适当加权组合。

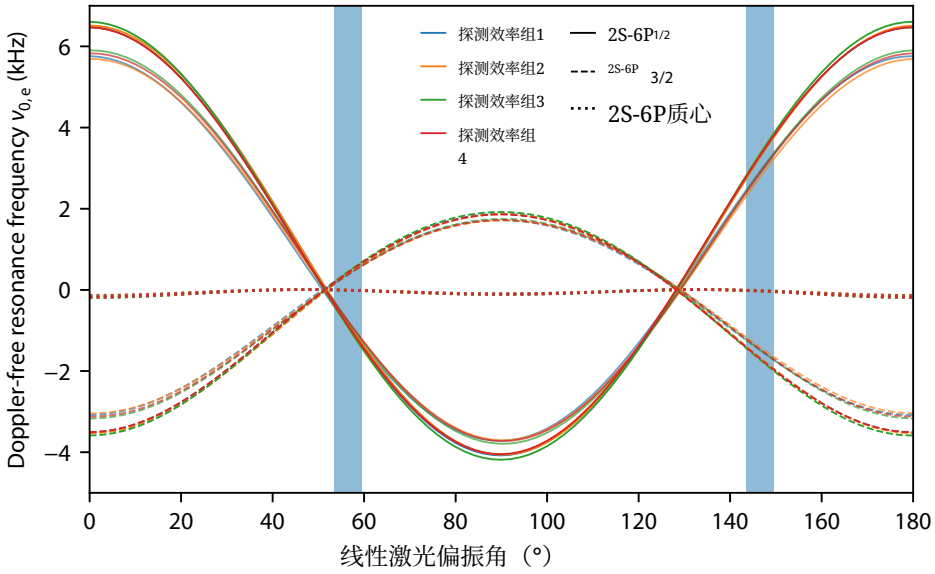


图 6.8：使用大模型模拟量子干涉（QI）引起的无多普勒共振频率位移随线性激光偏振角 θ_L的变化，其中 2S-6P$^{1/2}$ 跃迁（实线）和 2S-6P$^{3/2}$ 跃迁（虚线）分别以不同线型表示。$\nu_{0,\,e}$ 通过对各个延迟拟合沃伊特线型并外推至零速度得到，实验数据也采用了同样的方法。观测到的位移取决于探测效率，该效率由模拟确定；此处展示了针对顶部探测器（彩色线）和底部探测器（淡色线）的四种不同参数模拟结果（见图 4.41 和表4.2）。将 2S-6P$^{1/2}$ 和 2S-6P$^{3/2}$ 跃迁合并为 2S-6P质心（见式（6.21）），可将观测到的位移降至 200 赫兹以下（点线）。实验中使用的 θ_L 值 $\theta_L = 56.5°$ （$146.5°$）（浅蓝色条）经过选择，以使质心的 QI谱线位移最小，分别低于 20 赫兹（50 赫兹）。光谱激光功率设为 $P_{2S\text{-}6P} = 30$微瓦和 $P_{2S\text{-}6P} = 15$微瓦，实验参数分别对应于 2S-6P$^{1/2}$ 跃迁和 2S-6P$^{3/2}$ 跃迁的数据组 G1B 和 G10。QI谱线位移约为 2S-4P测量的八分之一（见附录A中的图 4（A、B））。

将其组合为式（6.21）所定义的 2S-6P质心。这样，对于所有 θ_L，观测到的位移都会降至 200 赫兹以下（虚线）。对于 $\theta_L = 56.5°$ （$146.5°$），质心的 QI谱线位移低于 20 赫兹（50 赫兹）。

图 6.9（A–C）和（D–E）分别展示了将 QI 谱线位移修正应用于 2S-6P$^{1/2}$ 和 2S-6P$^{3/2}$ 跃迁测量后，相对于 θ_L的修正。非零α_0 的数据未纳入，因为 $\theta_L = 146.5°$没有此类数据。纳入量子干涉修正后，数据整体上更加一致，但 2S-6P$^{3/2}$ 跃迁的 $\bar{\nu}_{0,e}$ 除外；这些修正使数据略微产生了应变。

QI 修正的不确定度还有待通过改变更多影响探测效率模拟的参数来进行更详细的评估。不过，计算 2S-6P质心（见第 6.2.1.3 节）可将 QI 修正降至 100赫兹以下，远低于统计不确定度。

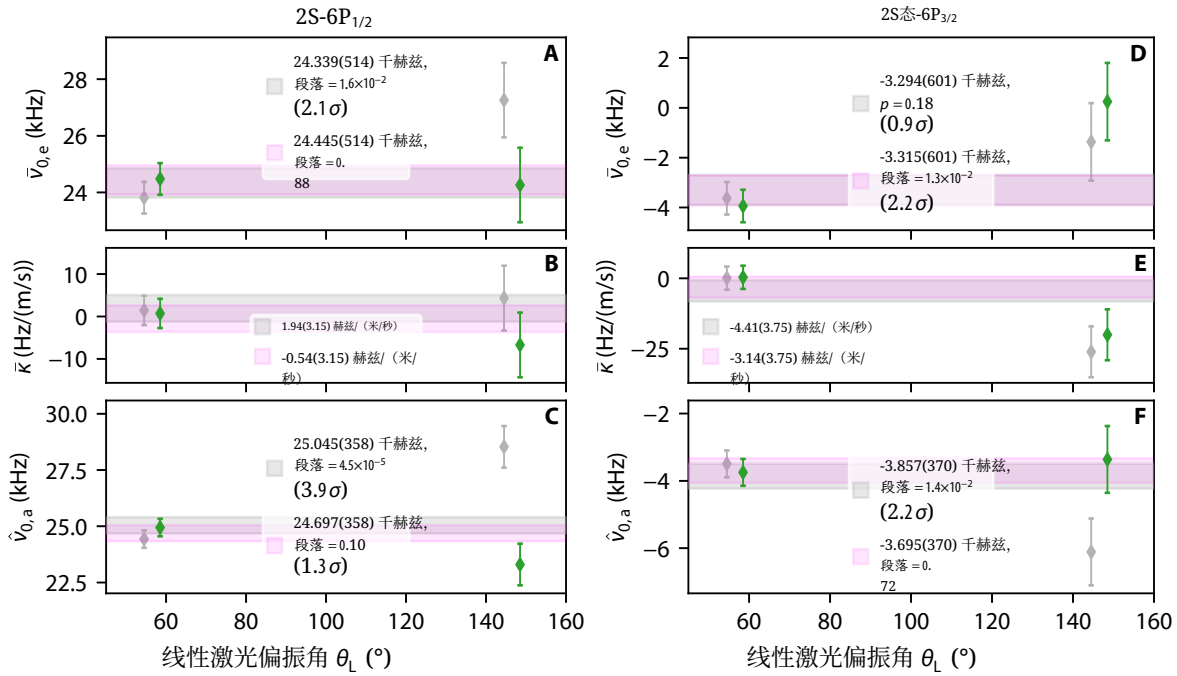


图6.9：测量结果的盲化结果：（**A–C**）2S-6P$^{1/2}$ 跃迁和（**D–F**）2S-6P$^{3/2}$ 跃迁随2S-6P光谱激光器的线性激光偏振角 θ_L的变化。仅考虑 α_0 =0毫弧度的数据（数据组G1–G12）。图中显示了探测器和冻结周期平均后的（**A, D**）无多普勒共振频率$\bar{\nu}_{0,\,e}$、（**B, E**）多普勒斜率 $\bar{\kappa}$以及（**C, F**）缩放后的多普勒平均共振频率$\hat{\nu}_{0,\,a}$，其中分别展示了未进行（灰色菱形）和进行量子干涉谱线位移修正（绿色菱形）的结果，同时始终包含光力频移修正。灰色带和紫色带分别表示未进行和进行修正时加权平均值的 1σ 不确定度区域， p-值和显著性 $Z\sigma$ 标注于图例中。仅计入统计不确定度，不计入修正项的不确定度。为清晰起见，沿 x-轴添加了一个小偏移量。

6.2.4 额外修正和不确定度

6.2.4.1 二阶多普勒频移

第 2.2.3 节讨论了二阶多普勒频移（SOD）。对于以速度 v 飞过光谱激光束的原子，公式（2.8）给出了该频移在实验室参考系中导致的跃迁频率偏移 $\Delta\nu_{\mathrm{SOD}}$。为描述给定延迟下的平均 SOD（此时速度呈一定分布），将 v 替换为均方根速度 $\bar{v}_{\mathrm{RMS}}$。由此得到

$$\Delta\nu_{\mathrm{SOD}} = -\frac{\nu_{\mathrm{A},0}}{2}\left(\frac{\bar{v}_{\mathrm{RMS}}}{c}\right)^2. \tag{6.10}$$

$\bar{v}_{\mathrm{RMS}}$和 $\Delta\nu_{\mathrm{SOD}}$的范围平均在 274 m/s. .. 67 m/s 和 -304 Hz. .. -18 Hz 之间，适用于延迟 1. . . 16。

每条线扫描中各个延迟对应的共振频率 ν_0 通过减去与 $\bar{v}_{\mathrm{RMS}}$相应的 $\Delta\nu_{\mathrm{SOD}}$ 来修正二阶多普勒频移，即该修正会使共振频率升高。因此，2S-6P$^{1/2}$ （2S-6P$^{3/2}$）跃迁的多普勒平均共振频率 $\nu_{0,\,a}$ 向上修正了 187 赫兹（186 赫兹）。然而，

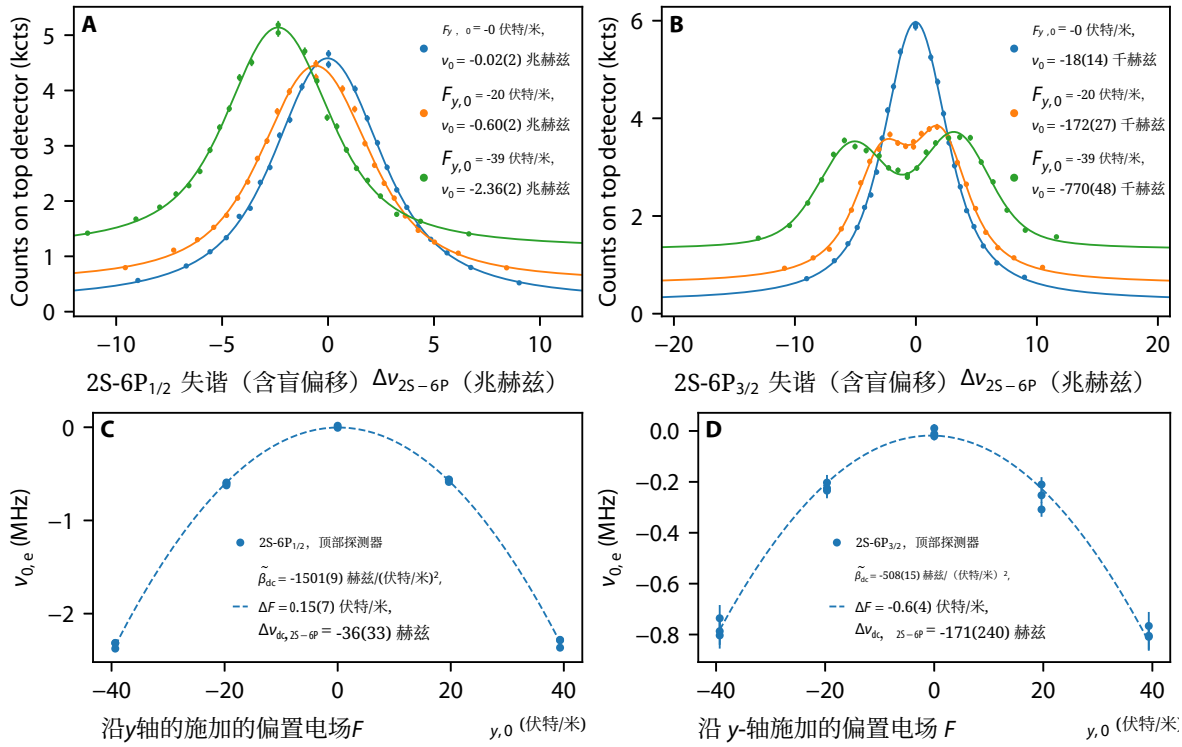


图6.10：沿 y 轴的杂散电场及其对应的直流斯塔克位移的原位测定，分别针对 (A, C) 2S-6P1/2 跃迁和 (B, D) 2S-6P3/2 跃迁。在探测器组件内部区域的顶部和底部电极上分别施加电压 U_{+y} 和 $U_{-y} = -U_{+y}$，从而沿 y 轴产生偏置电场，其在内部区域中心处的场强为 $F_{y,0} \propto U_{+y}$（见表4.3）。(A, B) 不同 $F_{y,0}$ 值（彩色圆圈）下的延迟 13 线扫描，以及 Voigt线型或 Voigt 双峰线型的拟合（彩色线条）（对于 2S-6P3/2 跃迁及非零 $F_{y,0}$）。若施加的电场足够强，2S-6P3/2 跃迁的共振会分裂为两个分量，这是由于与 6D能级发生耦合；这些能级之间的频率间隔远小于线宽（见第 2.4 节）。Voigt 双峰拟合给出的质心 ν_0 的直流斯塔克位移远小于各个单独共振的位移。图中显示的是顶部探测器上的信号；当 $F_{y,0}$ 为负值时，信号增强，因为电子从内部区域被拉向探测器组件的顶部。(C, D) 无多普勒共振频率 $\nu_{0,e}$ 随场强 $F_{y,0}$ 的变化。对这些数据进行抛物线拟合（见公式 (2.48)）˜，以确定有效二次直流斯塔克位移系数 β_{dc} 以及沿偏置电场方向的杂散电场强度 ΔF。杂散电场引起的直流斯塔克位移由此为 $\Delta\nu_{dc,2S\text{-}6P} = \tilde{\beta}_{dc}\Delta F^2$。2S-6P 光谱激光器的功率在 2S-6P1/2 （2S-6P3/2）跃迁测量中分别为 $P_{2S\text{-}6P} = 30$ 微瓦（15 微瓦）。

始终为负的二阶多普勒频移，其绝对值随速度增大而（二次方地）增大；在线性多普勒外推中，这会使两种跃迁的多普勒斜率额外减小 -1.7赫兹/(m/s)。这一多普勒斜率的影响超过了各个延迟的频移，因此，2S-6P1/2 （2S-6P3/2）跃迁的无多普勒共振频率 $\nu_{0,\,e}$ 向下修正了 -145 赫兹（ -142 赫兹），即修正方向与 $\nu_{0,\,a}$ 相反。二阶多普勒频移的修正也显示在图 6.4中。

6.2.4.2 直流斯塔克位移

探测器组件内部的杂散电场会导致所观测跃迁频率发生直流斯塔克位移（见第 2.4 节）。在2S-6P测量过程中，通过沿不同方向施加偏置电场（见第4.6.7节）并测定由此产生的2S-6P跃迁直流斯塔克位移，原位确定了杂散电场 ΔF。该过程还给出了有效的直流斯塔克位移系数 β_{dc}，即荧光中观测到的共振位移，而非原子能级的位移（见第 2.4 节）；根据该系数，可以确定杂散电场引起的直流斯塔克位移，表示为 $\Delta\nu_{\mathrm{dc,\ 2S\text{-}6P}} = \tilde{\beta}_{\mathrm{dc}} \Delta F^2$。图6.10展示了此类确定的一个示例。

在 2S-6P 测量的大多数测量日中，每个方向至少进行过一次此类测定。总共进行了 269 次测定，其中 223 次和 46 次分别使用了 2S-6P$_{1/2}$ 和 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁。对于一些专门用于测量 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁的冷却循环，杂散电场测定仍使用了 2S-6P$_{1/2}$ 跃迁，因为由此得到的线扫描更易于分析，且有效直流斯塔克位移更大，从而提高了测定精度。目前，这些测定仅经过初步评估；结果发现，沿 x-轴和 z-轴（y-轴）的杂散电场通常低于 0.1 V/m（0.3 V/m），对应的观测总位移低于 500 Hz。目前正在评估修正该位移时的不确定度。此处所示数据尚未针对直流斯塔克位移进行修正。

6.2.4.3 塞曼频移

束流装置内的地球磁场由真空室外的三对正交亥姆霍兹线圈进行补偿（见图 4.2）。此外，2S-6P光谱区由包围高真空外壳的单层高磁导率金属（坡莫合金）屏蔽层屏蔽，以隔绝剩余磁场（见图 4.1）。该外壳内的所有组件以及外壳本身均由非磁性材料制成。在以2S-6P光谱区为中心、半径为5mm的球体内，测得磁通密度 $\boldsymbol{B}$ 的最大幅值 $|\boldsymbol{B}|$ 为7mG，沿 x-轴的场分量B_x 低于1mG。

对于沿量子化轴方向给定的磁通密度 B，线性塞曼效应使6P$^{F=1}_{1/2}$流形中具有 $m_F = \pm 1$ 的磁子能级的能量发生偏移，偏移量为

$$\Delta\nu = m_F g_F \mu_{\mathrm{B}} B/h = m_F\, B \times (0.467\,\mathrm{kHz/mG}). \tag{6.11}$$

同样，6P$^{F=1}_{3/2}$流形的子能级偏移量为

$$\Delta\nu = m_F g_F \mu_{\mathrm{B}} B/h = m_F\, B \times (2.33\,\mathrm{kHz/mG}). \tag{6.12}$$

g_F 是相应的 g 因子， μ_{B} 是玻尔磁子。请注意， g_F 与主量子数 n无关。

为分析此处所讨论实验中的塞曼频移，我们首先假设磁场沿光谱激光束的传播方向，即沿装置的 x 轴；该轴被选作原子的量子化轴。在此参考系中，激光场由两个球分量组合而成，分别对应激光束的右旋和左旋圆偏振分量，其振幅为 E_{σ^+} 和 E_{σ^-}，驱动跃迁至 $m_F = 1$ 和 $m_F = -1$ 磁

子能级。来自 $m_F = 1$ （$m_F = -1$）子能级的荧光信号，其振幅近似正比于 $|E_{\sigma^+}|^2$ （$|E_{\sigma^-}|^2$），频率偏移为 $g_F \mu_\mathrm{B} B_x/h$ （$-g_F \mu_\mathrm{B} B_x/h$），其中 B_x 是沿 x 轴的磁通密度。荧光信号的重心，因此也是观测到的跃迁频率，偏移量为

$$\Delta\nu_{\mathrm{Zeeman}} = \frac{|E_{\sigma^+}|^2 - |E_{\sigma^-}|^2}{|E_{\sigma^+}|^2 + |E_{\sigma^-}|^2} \frac{g_F \mu_\mathrm{B} B_x}{h} = \frac{S_3}{S_0} \frac{g_F \mu_\mathrm{B} B_x}{h}, \tag{6.13}$$

其中， S_3/S_0 是第 4.4.6 节所定义的残余圆偏振光比例。

为分析激光束传播方向与磁场不共线的情况，原子的量子化轴仍沿磁场方向，并在此参考系中再次分解激光场。一般来说，这会得到三个球面分量， E_{σ^+}、 E_{σ^-}和 E_π，其中 E_π 驱动跃迁至未发生位移的 $m_F = 0$ 子能级。请注意， E_{σ^+} 和 E_{σ^-} 现在与激光束的左、右旋分量并不相同。不失一般性地，设磁通量密度为B 的磁场与激光传播方向之间的夹角为 θ ，则分解结果为$\Delta\nu_{\mathrm{Zeeman}} =$ （S_3/S_0）$g_F \mu_\mathrm{B} B \cos\theta/h$。这与式（6.13）等价，因为 $B \cos\theta \equiv B_x$，因此只需考虑沿激光束方向的磁场分量。

原子所在位置的剩余圆偏振光比例 $|(S_3/S_0)_{\mathrm{atom}}|$，在大多数线扫描期间按照第 4.4.6 节所述进行了原位测量。测得其低于 10 %（见图 4.24）。采用该数值以及上述 B_x 的最大值，可得塞曼位移的上限：对于 2S-6P$_{1/2}$ 跃迁和 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁，分别为 $|\Delta\nu_{\mathrm{Zeeman}}| = 47$赫兹和 $|\Delta\nu_{\mathrm{Zeeman}}| = 233$ 赫兹。这里所示的初步分析未纳入塞曼频移及其相关不确定度。

在 2S-6P测量接近尾声时，采集了一些施加 $B_x \approx 50$mG 偏置磁场条件下的 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁线扫描，作为对塞曼频移估算的额外检验。这些数据仍需详细研究，但初步分析未发现观测到的跃迁频率发生偏移，偏移量在 3kHz 的不确定度范围内。

6.2.4.4 压力频移

光束中的氢原子与附近其他粒子的相互作用或碰撞，可能导致观测到的跃迁频率发生压力频移 [161]。这里区分两类碰撞：与光束中其他原子或氢分子发生的束内碰撞，以及与背景气体粒子发生的碰撞。假设原子束中的粒子处于喷嘴温度 T_N，而背景气体的温度则视为室温。此外，假设背景气体仅由氢分子组成。

在 2S-6P测量中，向解离器通入的氢分子流量最高为$Q_{\mathrm{H_2}} = 0.35$毫升/分钟。根据第 4.5.2.3节的估算，每秒沿光谱区方向离开喷嘴的原子和分子数量分别为$N'_{1S态} = 1.6 \times 10^{16}$ 原子/秒和 $N'_{氢_2} = 1.8 \times 10^{16}$分子/秒。光谱区的本底压力，以及室温氢分子的压力，据估算为 $P_{\mathrm{HV1}} = 1 \times 10^{-7}$毫巴（见第4.2.4节和第4.2.10节）。

Arthur Matveev及其同事对由束内碰撞引起的2S-6P$_{1/2}$ 和2S-6P$_{3/2}$ 跃迁预期压力频移进行了蒙特卡罗模拟，该碰撞发生在氢原子与其他

氢原子 [162]之间。模拟采用了2S-6P测量的大致参数和几何结构，包括1S-2S激发和时间分辨探测。结果显示，所有延迟下的压力频移均低于10赫兹。根据实际采用的参数和几何结构（尤其是氢原子通量降低至十分之一）对这些结果进行缩放后，这一上限进一步降至1赫兹。

A. M. 还估算了氢分子引起的压力频移，包括束内碰撞和背景碰撞造成的频移。相关出版物正在准备中，此处列出的数值为初步结果。估算结果给出：氢分子束内碰撞造成的压力频移上限为 0.2 赫兹，背景气体中的氢分子碰撞造成的压力频移上限为 5 赫兹。

6.2.4.5 反冲频移

如第 2.2.3 节所述，为确定原子的共振频率 $\nu_{\mathrm{A},\,0}$，必须对测得的激光频率 $\nu_{\mathrm{L},\,0}$ 进行反冲频移修正 $\Delta\nu_{\mathrm{rec}}$ （见式（2.6））。使用表 2.1 中给出的 $\Delta\nu_{\mathrm{rec}}$ 值，2S-6P$_{1/2}$ 和 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁的无多普勒共振频率和多普勒平均共振频率需要进行以下反冲频移修正

$$\Delta\nu_{\mathrm{rec}} = 1176.03\,\mathrm{kHz}. \tag{6.14}$$

由于这一修正对所有数据组都相同，因此对这里给出的盲化结果没有影响。

6.2.4.6 精细结构与超精细结构修正

在此处介绍的测量中，测定了从超精细能级 2S$_{1/2}^{F=0}$跃迁至 6P$_{1/2}^{F=1}$和 6P$_{3/2}^{F=1}$两个超精细能级之一的两个跃迁频率$\nu_{1/2}$ 和$\nu_{3/2}$ 。然而，将这些测得的频率合并为本文所称的 2S- 6P 质心 $\nu_{\text{2S-6P}}$时，某些系统效应，尤其是量子干涉频移，在很大程度上会相互抵消。$\nu_{\text{2S-6P}}$ 是从 2S 超精细质心（即核自旋为零时的能级能量）到 6P 线强平均精细结构质心的跃迁频率。相关能级和跃迁频率，以及下文讨论的修正，均如图6.11所示。

首先，考虑超精细结构对测得的跃迁频率$\nu_{1/2}$ 和 $\nu_{3/2}$ 的贡献。超精细相互作用会使精细结构能级分裂成双重态 [39, 40]，其中这里关注的是 2S态$_{1/2}$、6P$_{1/2}$和 6P$_{3/2}$ 。这里探测的是由此产生的 2S态$_{1/2}^{F=0}$、6P$_{1/2}^{F=1}$和 6P$_{3/2}^{F=1}$超精细能级，它们相对于精细结构能级的位移分别为超精细能量 $\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}$(2S态$_{1/2}^{F=0}$)、 $\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}$(6P$_{1/2}^{F=1}$)和 $\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}$(6P$_{3/2}^{F=1}$)。

数值 $\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}$(2S态$_{1/2}^{F=0}$)及其不确定度可通过测量 2S超精细分裂 $\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}$(2S态$_{1/2}$) [57] 获得，方法如下

$$\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}(2\mathrm{S}_{1/2}^{F=0}) = -(3/4)\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}(2\mathrm{S}_{1/2}). \tag{6.15}$$

$\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}$(6P$_{1/2}^{F=1}$) 和 $\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}$(6P$_{3/2}^{F=1}$) 可根据氢理论得出，详见 [39, 40]。其中包括超精细哈密顿量非对角元带来的一项微小修正，该修正会使具有相同 F、但 J [163, 164] 值不同的超精细能级发生能量位移。这些能级能量的修正为$\Delta\nu^{\text{o.d.}}{}_{\text{超精细结构}}$(6P$_{1/2}^{F=1}$) $= -\Delta\nu^{\text{o.d.}}{}_{\text{超精细结构}}$(6P$_{3/2}^{F=1}$) $= -92$(1) 赫兹 [40]。

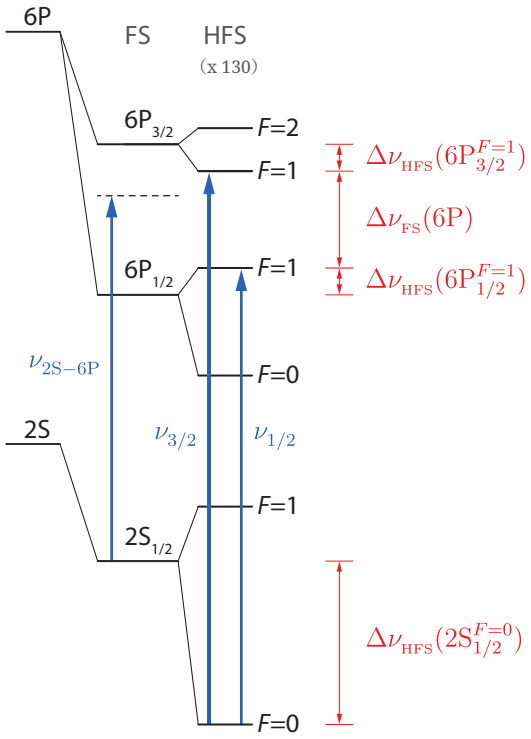


图6.11：包含精细结构（FS）和超精细结构（HFS）的2S-6P跃迁能级图（未按比例绘制）。通过实验确定$2S_{1/2}^{F=0}-6P_{1/2}^{F=1}(\nu_{1/2})$和$2S_{1/2}^{F=0}-6P_{3/2}^{F=1}(\nu_{3/2})$跃迁的跃迁频率（线强比为1:2）。从2S超精细结构质心到按线强加权的6P精细结构质心的跃迁频率，即2S-6P质心 $\nu_{2S\text{-}6P}$，通过结合$\nu_{1/2}$和$\nu_{3/2}$，并校正超精细位移 $\Delta\nu_{HFS}(2S_{1/2}^{F=0})$、$\Delta\nu_{HFS}(6P_{1/2}^{F=1})$和$\Delta\nu_{HFS}(6P_{3/2}^{F=1})$来确定。这里的6P精细结构分裂 $\Delta\nu_{FS}(6P)$对应于$6P_{1/2}^{F=1}$和$6P_{3/2}^{F=1}$能级之间的能量差。在此图中，超精细结构的比例尺是精细结构的130倍，而6P能级的比例尺是2S能级的40倍。

由于每个超精细双重态中只有一个能级会受到这一效应的影响，与忽略非对角元的情况相比，超精细双重态的重心也会发生位移，分别为 $\Delta\nu^{o.d.}{}_{超精细结构}(6P_{1/2}) = (3/4)\Delta\nu^{o.d.}{}_{超精细结构}(6P_{1/2}^{F=1})$ 和 $\Delta\nu^{o.d.}{}_{超精细结构}(6P_{3/2}) = (3/8)\Delta\nu^{o.d.}{}_{超精细结构}(6P_{3/2}^{F=1})$。根据 [39]，的表1，其中给出了6P超精细结构分裂 $\Delta\nu_{HFS}(6P_{1/2})$ 和 $\Delta\nu_{HFS}(6P_{3/2})$，以及重心位移 $\Delta\nu^{o.d.}{}_{超精细结构}(6P_{1/2})$ 和 $\Delta\nu^{o.d.}{}_{超精细结构}(6P_{3/2})$，可通过以下关系推导出6P超精细能量的数值及其不确定度

$$\Delta\nu_{HFS}(6P_{1/2}^{F=1}) = \quad (1/4)\Delta\nu_{HFS}(6P_{1/2}) + \Delta\nu_{HFS}^{o.d.}(6P_{1/2}), \tag{6.16}$$

$$\Delta\nu_{HFS}(6P_{3/2}^{F=1}) = -(5/8)\Delta\nu_{HFS}(6P_{3/2}) + \Delta\nu_{HFS}^{o.d.}(6P_{3/2}). \tag{6.17}$$

最后，超精细能量的数值表示为

$$\Delta\nu_{HFS}(2S_{1/2}^{F=0}) = -133\,167\,625.7(5.0)\,\text{Hz}, \tag{6.18}$$

$$\Delta\nu_{HFS}(6P_{1/2}^{F=1}) = \quad 547\,798(6)\,\text{Hz}, \tag{6.19}$$

$$\Delta\nu_{HFS}(6P_{3/2}^{F=1}) = -547\,460(6)\,\text{Hz}. \tag{6.20}$$

超精细质心定义为能级能量扣除或校正超精细结构贡献后的结果，对应于核自旋设为零的假想情况。

为确定 2S-6P质心 $\nu_{\text{2S-6P}}$，将两个经超精细结构修正的跃迁频率按其谱线强度加权平均，谱线强度由偶极矩的平方给出μ。对于 $2\mathrm{S}_{1/2}^{F=0}-6\mathrm{P}_{1/2}^{F=1}$和 $2\mathrm{S}_{1/2}^{F=0}-6\mathrm{P}_{3/2}^{F=1}$，谱线强度比为 1:2（见表 2.1）。由此得到

$$\begin{aligned}\nu_{\text{2S-6P}} &= \frac{1}{3}\left(\nu_{1/2}-\Delta\nu_{\text{HFS}}(6\mathrm{P}_{1/2}^{F=1})\right)+\frac{2}{3}\left(\nu_{3/2}-\Delta\nu_{\text{HFS}}(6\mathrm{P}_{3/2}^{F=1})\right)+\Delta\nu_{\text{HFS}}(2\mathrm{S}_{1/2}^{F=0})\\ &= \frac{1}{3}\nu_{1/2}+\frac{2}{3}\nu_{3/2}-132\,985\,252(7)\,\text{Hz},\end{aligned} \tag{6.21}$$

假设式（6.18）至（6.20）中给出的数值彼此不相关，则所得不确定度为。

另一方面，测得的跃迁频率之差给出了实验值 $\Delta\nu^{\text{exp}}{}_{\text{精细结构}}$ 分裂(6P)，即 $6\mathrm{P}_{1/2}^{F=1}$和 $6\mathrm{P}_{3/2}^{F=1}$能级的 6P精细结构分裂 $\Delta\nu_{\text{FS}}$(6P)：

$$\Delta\nu_{\text{FS}}^{\text{exp}}(6\mathrm{P})=\nu_{3/2}-\nu_{1/2}. \tag{6.22}$$

请注意，此处的 6P精细结构分裂 $\Delta\nu_{\text{FS}}$(6P) 指的是测得的超精细结构能级之间的能量差，而其他作者可能使用相同的表述来指代超精细质心之间的能量差。当然，利用公式 (6.19) 和 (6.20) 中给出的数值，可以方便地在这两种定义之间进行换算。

预测的 $\Delta\nu^{\text{pred}}{}_{\text{精细结构}}$(6P) 值可由 $\Delta\nu_{\text{FS}}$(6P) 的 $6\mathrm{P}_{1/2}^{F=1}$能级和 $6\mathrm{P}_{3/2}^{F=1}$能级的总束缚能之差得到，该差值如 [40], 的表 IV 所示，结果为

$$\Delta\nu_{\text{FS}}^{\text{pred}}(6\mathrm{P})=405\,164.5(1)\,\text{kHz}. \tag{6.23}$$

该数值可作为参考值，在数据揭盲后将实验值 $\Delta\nu^{\text{exp}}{}_{\text{精细结构}}$(6P) 与之进行比较。

鉴于此处所示数据分析尚属初步阶段，目前尚未给出 $\nu_{\text{2S-6P}}$ 或$\Delta\nu^{\text{exp}}{}_{\text{精细结构}}$(6P)。请注意，为了给这两个组合频率赋予不确定度，首先需要研究两个测得频率的不确定度之间的相关性。

第7章

结论与展望

在本学位论文的研究过程中，原子氢中2S-nP跃迁的激光光谱学精度得到了显著提高。通过对2S-4P跃迁和2S-6P跃迁进行测量，证明了这一点。所达到的精度推进了对物理学基本理论之一——量子电动力学（QED）的检验，并为质子半径之谜等差异提供了新的认识。这也使得物理常数能够得到精确测定；通过2S-4P跃迁测量，实现了当时对里德伯常数 R_∞ 和原子氢质子半径 r_p 的最佳测定。近期对更窄的2S-6P跃迁进行的测量有望进一步显著改善这一结果。

2S-4P测量是在本学位论文所述研究的前半阶段完成的（发表于 2017 [24], ，见附录A），除窄得多的1S-2S跃迁外，其频率不确定度至少比其他氢测量提升了三倍。此外，对于偶极允许的2S-nP跃迁所遇到的许多系统效应不同于更常研究的双光子跃迁，因此这些跃迁非常适合用于检验氢光谱学本身的准确度及其中存在的差异。

本实验面临的两大突出挑战是一阶多普勒频移和较大的自然线宽。2S-4P测量及其分析表明，通过复杂的光学装置，以及极高的实验信噪比和对线型的深入理解，分别能够成功解决这两个问题。后者的重要性因线型中存在细微畸变而凸显；这些畸变由相邻原子共振之间的量子干涉引起，若未得到恰当处理，可能导致显著的谱线位移。由于相对于线宽而言分辨率极高，这些谱线位移才变得显著；它们得到了直接观测，并可通过基于微扰计算的线型模型予以消除。由此，2S-4P跃迁频率的相对不确定度确定为 3.7×10^{-12}，相当于绝对值2.3千赫兹，或约为观测线宽的万分之一。结合2S-4P和1S-2S跃迁频率，可将 R_∞ 的相对不确定度确定为 8.7×10^{-12}，使其成为测定精度最高的物理常数之一。同样确定的 r_p 值与缪子结果 [22], 相符，而大多数后续精密测量也支持这一结果 [20, 25, 26]。

为进一步提高精度，研究人员开始研究2S-6P跃迁，并在2S-4P测量接近尾声时正式着手开展工作。束流装置及其

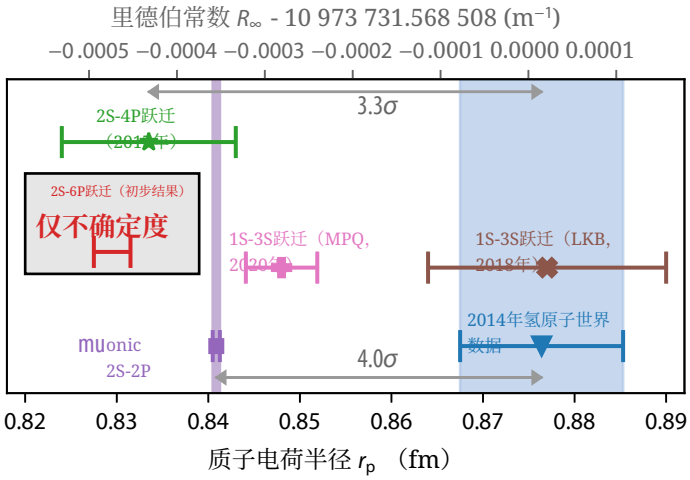


图 7.1：通过氢光谱学测定的里德伯常数 R_∞ （上方坐标轴）和质子电荷半径 r_p（下方坐标轴），与图 1.1 类似，但加入了与 1S-2S测量 [23]结合时 2S-6P测量的预估初步不确定度（红色误差棒）。撰写本文时，2S-6P跃迁频率处于盲测状态，因此无法给出由其推导的 r_p 和 R_∞数值；所示误差棒的位置对应 r_p 和 R_∞的任意取值。

亚稳态原子低温原子束得到了大幅改进，以利用2S-6P跃迁较低的自然线宽。与2S-4P测量相比，观测线宽最多降低了三倍，慢原子的通量则接近提高了一个数量级。要进一步提高精度，还需要更有效地抑制一阶多普勒频移；它是此前测量中的限制因素。为此，针对410纳米的新跃迁波长重新构建了主动式光纤回射器，其中包括新设计的光纤准直器，其光束质量极佳，且仅受光纤本身限制；此外还改进了偏振监测、稳频和对准方案。探测器组件经过重新设计，以容纳电极，并为荧光探测提供更大的立体角和更高的效率。在本学位论文研究期间实施这些改进后，荧光信号相较于2S-4P测量最多提高了16倍（见图1.3）。

然而，只有对荧光线型和实验建模的理解也得到相应改进，才能充分利用提高后的实验分辨率。正因如此，我们投入了大量精力，从理论上理解、通过数值方法建模，并以实验方式测量光力频移（LFS）。对于 2S-6P测量而言，光力频移是最大的系统修正；此前，对于 2S-nP跃迁，人们尚未对其进行详细研究，也未直接观测到它。由此建立了一个光力频移模型，随后在 2S-6P测量中进行了实验检验。结果表明，模型与实验符合得非常好。对低温原子束进行建模，尤其是对其速度分布进行建模，同样至关重要，因为它是光力频移模型、多普勒频移外推以及其他模拟修正的输入。因此，我们建立了一个改进的原子束模型，并通过一系列测量对其进行了检验。

2019年在三次测量运行中对2S-6P跃迁进行了探测。所得数据集的统计不确定度（包括多普勒频移外推所带来的不确定度）为430赫兹，比2S-4P测量低五倍。这也意味着多普勒频移抑制成功扩展了五倍，目前

相当于将完整共线频移抑制了六个数量级 .

撰写本文时，数据分析仍在进行中。由于结果采用盲化处理以避免实验者偏差，这里无法给出初步结果。不过，考虑到预期的系统不确定度， ≈600赫兹的不确定度似乎是可实现的，这约为 [4] 中量子电动力学计算不确定度的两倍以内。结合 1S-2S跃迁，对 R_∞ 和 r_p的测定所对应的相对不确定度分别为 1.6×10^{-12} 和 2.3×10^{-3}。如图7.1所示，这将使 2S-4P 和近期 1S-3S 的测量值分别提高五倍和两倍，并使其不确定度达到 μ子氢中 r_p 测定不确定度的五倍以内。

迈向 2S-6P跃迁频率

要公开结果，还需要完成一些工作：首先，需要通过在实验约束范围内改变各种输入参数，估算模拟修正的不确定度，尤其是光力频移方面的不确定度。其次，需要评估 2S-6P测量期间定期进行的直流斯塔克位移实验测定，并将其与模拟结果进行比较，以推导相应的修正及不确定度。第三，应通过将数据的额外散布与其他实验参数相关联，并进行模拟，更仔细地加以研究。第四，与此密切相关的是，可以尝试通过消除线扫描期间荧光计数率的漂移来减少散布；但必须谨慎，确保此类处理不会无意中引入系统偏移，并应通过蒙特卡罗模拟检验。为约束共振采样所导致的任何系统偏移，也需要进行这些模拟。第五，需要研究用于确定模拟修正的两个模型——大模型和光力频移模型——之间的相互作用。为此，或许可以将两个模型结合起来。

2S-6P测量的数据集还包含其他信息，迄今尚未得到详细研究。在2S-6P测量的B次运行期间，所有线扫描均以交错方式成对采集，因此形成的双重扫描实际上是在彼此相隔数秒内记录的（见第4.7.2节）。记录了三种类型的扫描对，第一条/第二条线扫描所用的光谱激光功率分别为10/30微瓦、10/20微瓦和10/10微瓦[1]。尽管在初步分析中，双重扫描被视为相互独立的扫描，但它们或可用于区分残余多普勒频移与光力频移（LFS）等依赖功率的效应。

此外，在 2S-6P测量期间还采集了 85 次 1S-2S跃迁线扫描，以设定制备激光器的频率失谐。与此前在同一装置中进行的 1S-2S测量不同 [23], ，那些测量中用静电场淬灭 2S原子并探测由此产生的荧光；而在这里，6P能级衰变产生的荧光用作信号。如图 7.2 所示，这使信号增大了几个数量级。然而，这里使用的腔内功率是 [23], 中所用最大功率的三倍，因此，非均匀交流斯塔克频移导致的线形畸变在这里更加明显。加上二阶多普勒频移，不同延迟之间的频移约为 1 千赫兹，而每个延迟对应的统计不确定度约为 10 赫兹。这些线扫描可能有两方面用途：首先，

[1]所列功率适用于2S-6P$_{1/2}$ 跃迁；用于2S-6P$_{3/2}$ 跃迁的等效功率低一半。

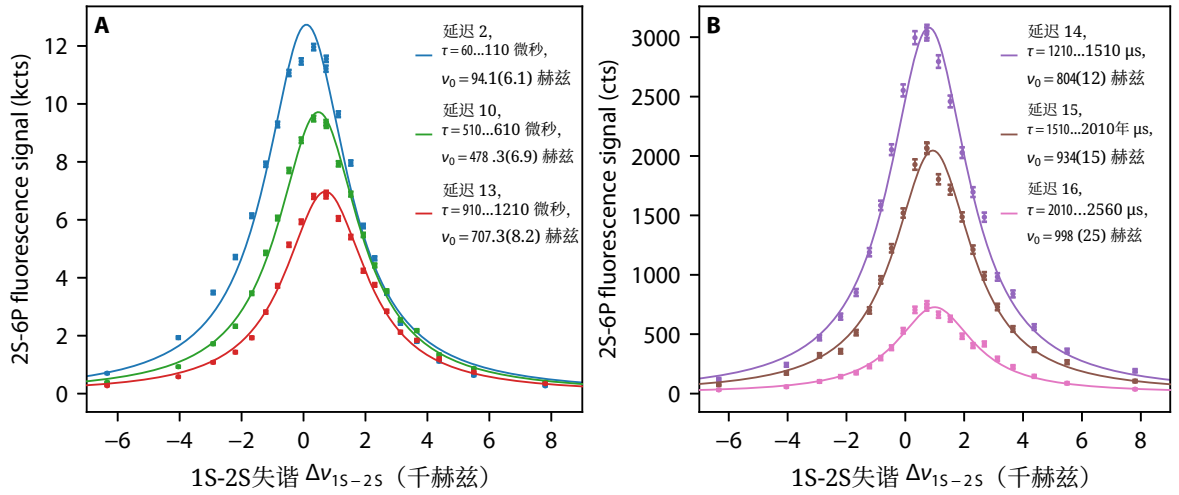


图 7 2 $1\ ^{F=0}_{1/2} - 2\ ^{F=0}_{1/2}$ $P_{1S\text{-}2S} =$: 1.0 1 2 2, 10 13, 14 16 2 S S跃迁的典型线扫描，S-S制备激光器的腔内功率为 W，针对（**A**）延迟和和（**B**）延迟–。功率为 $P_{2S\text{-}6P} = 30\mu$W的S-6P光谱激光器保持在共振状态，同时扫描制备激光器的（原子）失谐$\Delta\nu_{1S\text{-}2S}$ 。6P能级荧光的计数（此处显示的是顶部探测器的计数）构成信号，并按与2S-6P线扫描相同的延迟时间分箱（彩色圆点）（见表 5.1）。对数据进行洛伦兹拟合（彩色线）可得共振频率 ν_0，统计不确定度 σ_{ν_0} 列于括号中。对于较短的延迟时间，非均匀交流斯塔克频移和二阶多普勒频移造成的谱线畸变尤为显著（见第2.2.6节）。线宽为 $\Gamma_F \approx 3.3$千赫兹。与最近一次1S-2S测量中在 $P_{1S\text{-}2S} = 370$毫瓦处观测到的信号（见 [23]的图2）相比，对于平均速度为 $\bar{v} \approx 100$米/秒（$\bar{v} \approx 160$米/秒）的原子，此处的信号分别大45（80）倍。2S-6P测量期间总共记录了85次此类1S-2S线扫描。

可以将不同延迟之间的频移与为 2S-6P测量开发的模拟所作的预测进行比较。这是对实验建模的一项有力检验，因为这些频移远大于统计不确定度。其次，为了从 2S-6P测量中提取 R_∞ 和 r_p ，且不损失其精度，只需将 1S-2S跃迁频率确定到约 500 赫兹以内，对应的相对不确定度为 2×10^{-13}。利用 2S-6P测量的数据，将 1S-2S跃迁频率确定到这一不确定度水平似乎可行，并可在无需任何额外输入的情况下确定 R_∞ 和 r_p 。若要达到低得多的不确定度，激光频率的确定很可能会成为限制因素。

最后，对于 2S-6P测量的每个冻结周期，至少进行了一次偏移角 α_0 的对准；该角度是原子束与激光束相对于正交方向的夹角，总共进行了 76 次此类对准。对于每次对准，都会在 α_0 的不同取值下采集线扫描，并分别在主动式光纤回射器的快门遮挡和未遮挡返回的光谱激光束时进行；迄今为止，这些扫描仅用于在测量期间将 α_0 设定为接近零。其中，160 条线扫描是在 $\alpha_0 > 2.5$ 毫弧度且快门打开时记录的，即多普勒频移抑制处于启用状态；大多数情况下使用的是 $\alpha_0 \approx 5$ 毫弧度。这些线扫描或许也可用于测量光力频移，不过，对于这些相对较低的 α_0，在 $\alpha_0 = 0$ 毫弧度下采集的数据所对应的光力频移差异相当小。

另一方面，快门关闭时采集的线扫描包含有关速度分布的信息，因为此时多普勒频移 [28] 未受到抑制。然而，迄今为止尚未对这些线扫描进行详细研究，因为原子的速度分布近似为麦克斯韦分布，在 $\alpha_0 \neq 0$ 毫弧度下会导致线型畸变，这是由于每个原子的线型都与原子束的速度分布发生卷积。若要从这些线扫描中确定速度分布，且准确度优于约 10%，就必须考虑这些畸变。初步分析发现，从这些线扫描得出的速度分布与本研究采用的速度分布吻合良好；本研究采用的分布基于对低速的指数抑制，并通过观测到的延迟相关线幅度进行了验证。

使用 2S-nP 装置开展的未来实验

在测量了 2S-4P 和 2S-6P 跃迁后，未来实验显然可以选择转向具有更高 n 的 2S-nP 跃迁。事实上，Florian Stehr 已在实验室搭建了一套能够驱动这些跃迁的激光系统[1] ，其 $n = 8$, 9、10作为其硕士论文的一部分 [165]。利用这套激光系统，早期测试测量中已观测到 2S-8P 跃迁。不过，这种策略存在两个主要问题：首先，更高 n 的明显优势在于跃迁的自然线宽更窄。然而，即使对于 2S-6P 跃迁，观测线宽仍受原子束发散度限制，而在当前装置中很难降低发散度。这是因为减小形成光束的孔径宽度会导致 243 nm增强腔出现较大损耗。为此，可以减小腔模的光束尺寸，但这也会增加 2S原子的电离，并降低有效激发概率。另一种做法是利用静电场或激光场构造孔径，有选择地淬灭亚稳态2S原子。其次，直流斯塔克位移会随 n^7 增大（见第 2.4 节），以目前存在的电偏置场而言，这会很快限制精度。因此，需要降低偏置场，最直接的做法或许是扩大光谱区。如下文所述，更换低温泵并消除其造成的热梯度也可能有所帮助。最后，2S-8P$_{1/2}^{F=1}$跃迁还有一个特有的问题：由于 8P 能级的精细结构分裂与 2S能级的精细结构分裂十分接近，由 8P 能级衰变产生的 2S$_{1/2}^{F=1}$能级会与 8P$_{3/2}^{F=1}$能级发生近共振耦合，从而使荧光信号中出现重叠共振。因此，采用下文所述策略改进 2S-6P 跃迁的测量，或许是更好的选择。

另一个有趣的实验是对原子氘中 2S-nP 跃迁进行光谱学研究。之所以尤其如此，是因为已有通过 μ子氘激光光谱学测量氘核电荷半径的结果 [166]。至于相应的r_{p}测量，这一测量比通过电子氘得到的测定结果精确得多；更重要的是，μ子氘核电荷半径同样与这些测定结果存在差异。因此，除了质子半径之谜之外，还存在一个氘核半径

[1]Toptica TA-SHG pro，由一台外腔二极管激光器、一台锥形放大器和一个谐振式二次谐波产生级组成。输出波长可在 380 纳米至 389 纳米之间调谐。与 1S-2S 制备激光器和 2S-6P 光谱激光器类似，该系统通过高精细度法布里-珀罗腔实现频率稳定。系统还可提供与频率梳的拍频信号，以确定激光频率。

之谜 [167]。然而，与前者不同的是，近期没有新的电子氘光谱学结果可用于阐明这一谜题。因此，精确测定原子氘中 2S-nP 跃迁频率将非常有价值。

与氢的对应测量相比，这种测量面临额外的挑战，因为氘核是自旋为 1 的粒子。对于氢，当使用 2S态$^{F=0}_{1/2}$能级作为初始能级时，根据角动量选择定则，在使用2S-6P$_{1/2}$ 或 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁时，无论激光的偏振如何，都只允许一个超精细分量发生跃迁。在氘中情况不再如此，两个超精细组分都是允许的，并且在线宽范围内相互重叠。这会带来以下两个后果：首先，两个组分的质心可能取决于实验条件。然而，初步研究表明，再次采用线性激光偏振并以荧光作为信号时，除非以下三个条件中有任意两个未得到满足，否则质心会固定在某一特定值：激光束不存在残余圆偏振；两个 2S态$^{F=1/2}_{1/2}$ 初始能级具有相等的布居；以及以相等的效率探测 σ^+ 和 σ^- 衰变[1]。在一定不确定度范围内，这些假设是相当合理的。此外，还可以通过比较使用 σ^+-偏振光和 σ^--偏振光进行激发时得到的频率来检验这些条件。为此，我们已对在光谱区内生成并监测任意偏振态进行了初步研究。

其次，量子干涉不仅会像氢原子中那样发生在不同精细结构分量之间，还会发生在超精细组分之间。由于它们的频率差很小，这可能导致线型出现更严重的畸变，正如 [168, 169] 中针对锂所展示的那样。幸运的是，这里也存在一定的抵消效应：只有当初始能级的布居数不平衡，且所需的 $\sigma^\pm$ 衰变具有不同的探测效率时，才会出现线型畸变。总的来说，测量氘似乎可行；事实上，Vitaly Wirthl目前正在筹备这项测量。

图7.2所示的1S-2S跃迁线扫描展示了使用2S-nP装置测量该跃迁的潜力。然而，目前，提高最新1S-2S跃迁测量的相对不确定度 4.2×10^{-15} 并不能带来更精确的量子电动力学检验，因为其他跃迁频率的不确定度要高得多，因而成为限制因素。此外，要实现这样的改进，就意味着必须将速度分布测定到优于1 m/s的精度，这低于2S-6P测量中单个冻结周期内观察到的平均速度变化（见图6.1）。不过，可以改进2S超精细分裂 [57], 的测量；将其与已知精度极高的1S超精细分裂结合后，可获得不确定度远小于当前实验不确定度的量子电动力学理论预测。这项测量依赖于在1S-2S跃迁的两个超精细分量之间快速切换；因此，如果只关注频率差[2]，速度分布的影响就会减小。展望更远的未来，随着反氢中的等效测量不断改进，改进1S-2S跃迁测量或许会变得有必要 [170–172]。

[1]请注意， σ^+ 和 σ^- 衰变具有相同的辐射方向图，但偏振不同；只有沿着与量子化轴正交的方向时，偏振才相同。[2]不过，有趣的是，在最近一次对 [57] 的2S超精细分裂测量中，仍然观察到两个超精细组分的速度分布存在相当大的差异。目前尚不清楚其原因，但可能是由两个组分不同的直流斯塔克频移和塞曼频移造成的。

最后，几十年来，人们一直致力于氢的激光冷却，并提出了各种方案 [95, 173–179], ，但迄今为止，尚未能将其成功应用于光谱测量。一个看起来很有前景且相对容易测试的策略是，对光束中已经较慢的原子进行激光冷却，只需几次反冲即可将它们装载到光学陷阱中。对于1S-2S跃迁 [180], ，该光学陷阱可以设在神奇波长处，也就是说，在这一波长下，1S态和2S态的交流斯塔克位移相互抵消。本学位论文对原子束速度分布的研究有助于推进这一方向。激光光谱学部目前正在开展一个研究此类方案的项目。

氢光谱仪的计划改进与改进建议

尽管在本研究过程中，用于探测 2S态-nP跃迁的氢光谱仪在许多方面都得到了显著改进，但仍有很大的改进空间。尤其是，如果能缩短光谱仪的准备和校准时间，从而提高装置运行期间采集光谱数据的时间比例，将会非常有益。

撰写本学位论文期间，我们发现，氢的解离度 α_{dis} 的限制因素很可能并非喷嘴内部的复合；此前我们一直认为是复合所致，而在喷嘴几何结构受到现有约束的情况下，这一因素很难改善。相反，氢通过聚四氟乙烯（特氟龙）管道输送至喷嘴的过程被认为才是限制因素，喷嘴入口处的 α_{dis} 可能低至 1%（见第 4.5.1、4.5.2.3 和 5.3.3 节）。也就是说，到达喷嘴的粒子大多是氢分子，它们会在喷嘴上冻结，最终将其堵塞，导致实验周期需要以每次持续 2 小时的冻结周期为基础。幸运的是，这也意味着，只要缩短管道长度、增大管道直径，或两者兼施，就能较为轻松地提高 α_{dis} 。提高喷嘴入口处的 α_{dis} 将极大改善实验，因为喷嘴冻结所需的时间会更长，同时光束中的氢原子数量也会增加。后者进而可减少进入系统的氢气流量，进一步延长冻结周期，同时减少粒子间碰撞，从而降低慢原子的损失。每次冻结周期都需要花费大量额外时间来解冻喷嘴并重新校准原子束，因此延长冻结周期将大幅增加测量日所能采集的数据量，更不用说还能减轻实验人员的工作负担。此外，如图6.1所示，原子束的速度分布会随着喷嘴冻结而变化。如果能减缓这一冻结过程，这种影响也可能显著减小。

运行时间的另一个限制因素是243 nm增强腔反射镜的性能退化。为此，目前正在准备升级装置，将反射镜置于氧气氛中以防止其性能退化，并采用多个差分抽气级，使光谱区的氧分压保持在足够低的水平。在2S-6P测量期间，1S-2S光谱激光器的可靠性也成了问题，尤其是其产生243 nm光的二次谐波产生腔。此后，制造商已升级该激光器，如今它能够可靠地输出功率超过100毫瓦的243纳米光。

低温泵会从几个方面限制实验：首先，它会使装置降温，导致温度漂移和梯度，因此需要频繁重新对准，并且可能产生

杂散电场。其次，由于采集数据时无法运行低温泵，因此每个冻结周期都会占用宝贵的测量时间。第三，低温泵开启时产生的振动会干扰主动式光纤回射器和243 nm增强腔。第四，由于体积庞大，低温泵无法安装在光学平台上，只能放置在实验室地面上，从而将环境噪声耦合到真空室中。低温泵具有较高的抽气速率和较大的氢吸附容量，因此迄今为止很难找到合适的替代品。然而，最近一种非蒸发型吸气剂材料[1]已可供使用，其吸附容量足以吸附氢气 [181] ，从而取代低温泵。这项升级应该相对简单，因为只需更换真空室的大型底部法兰。长远来看，随后可以重新设计真空室，不再受目前低温泵所要求的设计约束。

最后，喷嘴温度的波动被认为是荧光信号中噪声的主要来源。自 2S-6P测量以来，所用的低温恒温器已更换为另一种型号[2] ，其温度稳定性更高。低温恒温器所连接的对准台也已升级，以便更轻松、更精确地进行喷嘴对准；如有需要，还可为其安装电动执行器。

总而言之，如果冻结周期更长、增强腔不发生镜面退化、243纳米激光源可靠，且不受低温泵干扰，那么实验应能实现高度自动化，从而连续采集许多小时的数据，而无需实验人员留在实验室。这反过来可能提高 2S-nP跃迁光谱学的精度，因为更长的运行时间能够更详细地研究光力频移等系统效应。此外，还可以进一步降低光谱激光器的功率，从而减小光力频移及其他功率相关系统效应的幅度。

这样一来，2S态-nP跃迁的精度提高一倍似乎是可行的，其不确定度将与量子电动力学计算的不确定度相当。尽管如此，进一步提高精度并无决定性障碍[3], 不过，正如本研究中所进行实验的历史所表明的那样，看似简单的荧光线型也可能充满意外。

[1]ZAO，是一种锆-钒-钛-铝合金，由 SAES Getters 提供。[2]Advanced Research Systems LT3，指定温度稳定性为 $\leq$2mK。[3]铯喷泉钟的精度可达到观测线宽的近 10^6 之一， [182], 几乎比 2S-6P测量所达到的精度高两个数量级。

附录A

2S-4P跃迁频率测量

本附录转载了介绍2S态- 4P跃迁频率测量及其结果的出版物。该出版物最初发表于（本文中简称为 [24] ）：

A.Beyer、L. Maisenbacher、A.Matveev、R.Pohl、K.Khabarova、A.Grinin、T.Lamour、D.C. Yost、T. W. Hänsch、N. Kolachevsky 和 Th. Udem，《原子氢的里德伯常数和质子尺寸》，《科学》**358**，79–85（2017年）。

出版物的补充材料中包含许多关于实验方法和数据分析的细节，并重印于出版物正文之后。

研究论文

原子物理学

利用原子氢测定里德伯常数和质子大小

Axel Beyer,[1] Lothar Maisenbacher,[1*] Arthur Matveev,[1] Randolf Pohl,[1] † Ksenia Khabarova,[2,3] Alexey Grinin,[1] Tobias Lamour,[1] Dylan C. Yost, [1‡] Theodor W. Hänsch,[1,4] Nikolai Kolachevsky,[2,3] ThomasUdem[1,4]

“质子半径之谜”的核心在于，普通氢（H）原子与μ子氢（μp）原子测得的质子均方根电荷半径（r_p）之间存在四个标准差的差异。我们利用低温氢原子束测量了氢原子中的2S-4P跃迁频率，得出里德伯常数R_∞ =为每米10973731.568076(96)，质子半径r_p = 0为.8335(95)飞米。我们的r_p 值比此前的氢世界数据小3.3个合成标准差，但与μ子氢值高度吻合。我们提出了一种非对称拟合函数，可消除邻近原子共振量子干涉造成的谱线位移。

氢原子（H）的研究一直是现代物理学发展的核心。如今，H的精密激光光谱学用于测定里德伯常数R_∞ 和质子电荷半径r_p等基本物理常数，后者定义为其电荷分布的均方根（RMS）。由于H结构简单，理论计算可以达到惊人的准确度，精度可达小数点后第12位。与此同时，高分辨率激光光谱实验能够提供精度更高的测量；以1S-2S跃迁为例（1，2），其跃迁频率是氢原子中测定精度最高的，可达小数点后第15位。

氢原子的能级可表示为

$$E_{nlj} = R_\infty\left(-\frac{1}{n^2} + f_{nlj}\left(\alpha, \frac{m_e}{m_p}, \ldots\right) + \delta_{\ell 0}\frac{C_{NS}}{n^3} r_p^{\,2}\right) \quad (1)$$

其中，n、l 和 j 分别是主量子数、轨道角动量量子数和总角动量量子数。第一项描述了氢原子能级的粗结构随 n 的变化；这一结构最早在可见氢光谱中被观测到，并由里德伯通过经验方法加以解释。后来，玻尔模型提供了更深入的理论理解。在该模型中，电子绕一个点状质子运行；在最简单的近似下，质子的质量被视为无穷大。

里德伯常数 $R_\infty = m_e a^2 c/2h$将原子系统的自然能量尺度与国际单位制联系起来。它与电子质量 m_e、精细结构常数 a、普朗克常数 h 以及真空光速 c 相关。通过方程（1）对氢原子进行精密光谱学测量，可确定 R_∞，相对不确定度为 6/10^?，使其成为迄今测定得最精确的自然常数之一，也是基本物理常数全球调整的基石（3）。

方程（1）中的第二项 $f_{nlj}(a; m\ {}^{e}m_p; \ldots) = X_{20}a^2 + X_{30}a^3 + X_{31}a^3\ln(a) + X_{40}a^4 + \ldots$，计入了相对论修正、束缚态系统与量子电动力学（QED）真空场相互作用所产生的贡献，以及在 QED 框架内计算的其他修正（3）。电子与质子的质量比 m_e/m_p 通过有限质子质量引起的反冲修正，进入系数 X_{20},X_{30},...。

方程（1）中系数为 C_{NS} 的最后一项，是源自质子有限电荷半径 r_p 的最低阶修正（3）。它只影响电子波函数在原点处不为零的原子 S 态（l = 0）。更高阶的核电荷分布贡献包含在 $f_{nlj}(a; m\ {}^{e}m_p; \ldots)$ 中。

质子半径之谜

质子电荷半径 r_p 多年来一直备受争议，因为对奇异μ子氢原子（μp）进行激光光谱学测量所得的极高准确度数值（4，5），比 CODATA 2014年给出的 r_p 值（3）小 4%，相当于 5.6σ [（关于这一问题的综述，参见（6–8））]。CODATA 的数值是综合了氢和氘的 24 项跃迁频率测量结果，以及弹性电子散射的若干结果得出的（9–11）。μ子氢的测量结果之所以能够达到如此高的准确度，是因为 μ子轨道比 ~200 倍氢原子中的电子轨道小，因此质子电荷半径 r_p 对能级的影响大了七个数量级。

我们在这里研究差异中与光谱学相关的部分，尤其是 μ子氢值与在 H 中测得的所有跃迁的全球平均值之间的 4s 差异（12）（氢世界数据，图1）。最近，随着μ子氘激光光谱学的一项新结果（13）的公布，氘核半径也出现了类似的差异。

考虑方程（1），并且鉴于 $f_{nlj}(a; m\ {}^{e}m_p; \ldots)$ 已知且具有足够高的准确度，可以发现 R_∞ 与 r_p 之间存在非常强的相关性。CODATA 给出的相关系数为 0.9891。方程（1）涉及两个参数 R_∞ 和 r_p，需要通过结合至少两项在 H 中进行的测量来同时确定。1S-2S跃迁频率在这一过程中起着基石作用。由于其自然线宽仅为 1.3 赫兹，实验测定结果的准确度比 H 中任何其他跃迁频率高一千倍；对于后者，典型线宽达到 1 兆赫兹或更高。

考察此前对 H 中 $[R_\infty, r_p]$ 的测定结果（图1，底部）可以发现，许多单次测量结果实际上与 μ子氢值并不矛盾。将所有 H 的测量值取平均后，才会出现 4s 的差异（μ子氢值与氢全球数据；图1，顶部）。

测量原理

本文报告了对 H 中 2S-4P跃迁的测量（图2A），得到 $[R_\infty, r_p]$，其不确定度与氢全球数据汇总值相当，且显著小于质子半径差异；该差异对应于 2S-4P跃迁频率上的 8.9 千赫兹。要达到这一不确定度，必须将共振频率测定到接近所观测 20 兆赫兹线宽的万分之一（图2B）。

此前精度最高的测量[参见例如 (14–16) 及其中的参考文献]，受到用于制备亚稳态 2S原子的电子碰撞激发所限。这种激发会产生热原子，其平均热速度达到 3000 米/秒或更高，而且四个 2S塞曼子能级中的布居数混合比例不受控制。因此，由二阶多普勒效应、交流斯塔克位移或多个未分辨超精细组分的激发等效应造成的修正通常达到数十千赫兹。

由于我们使用加兴1S-2S装置 (1, 2)（图3）作为温度受控良好的低温源，产生温度为 5.8 K 的冷2S原子，因此我们的测量基本不受这些系统效应 (17) 的影响。在这里，采用无多普勒双光子激发，几乎只填充2S态$^{F=0}_{1/2}$塞曼子能级，而不会给原子带来额外动量。

我们实验中其余主要系统效应是一阶多普勒频移，以及相邻原子共振之间的量子干涉造成的表观谱线位移，这两种效应

[1]马克斯·普朗克量子光学研究所，85748 加兴，德国。 [2]P.N.列别捷夫物理研究所，119991 莫斯科，俄罗斯。 [3]俄罗斯量子中心，143025 斯科尔科沃，俄罗斯。 [4]慕尼黑大学，80539 慕尼黑，德国。*通讯作者。电子邮件：lothar.maisenbacher@mpq.mpg.de

†现地址：约翰内斯·古腾堡美因茨大学，德国美因茨 55122。‡现地址：科罗拉多州立大学，美国科罗拉多州柯林斯堡 80523。

均通过专为此次测量开发的方法加以抑制，具体方法如下文所述。

量子干涉

远处相邻原子共振引起的量子干涉所导致的线形畸变，近来已成为精密光谱学领域关注的焦点（18）。据我们所知，此效应仅在此前一项氢原子实验的分析中得到考虑，并且发现对于该特定实验方案并不重要（19）。研究发现，该效应是造成从氦的多项精密光谱实验中提取的精细结构常数 a 数值存在差异的原因（续18）。问题的根源在于，当存在失谐跃迁时，原子共振的自然线型可能偏离理想的洛伦兹型。处理这些效应的一种常见方法是进行复杂的数值模拟，以修正实验结果（18、20、22–26）。如果需要以相对于线宽的高准确度确定谱线中心，就必须对实验几何结构进行高度准确的表征；本次测量正是如此——。在这里，我们通过采用合适的线型模型来补偿线形畸变，从而消除了这种必要性，也排除了潜在误差来源。

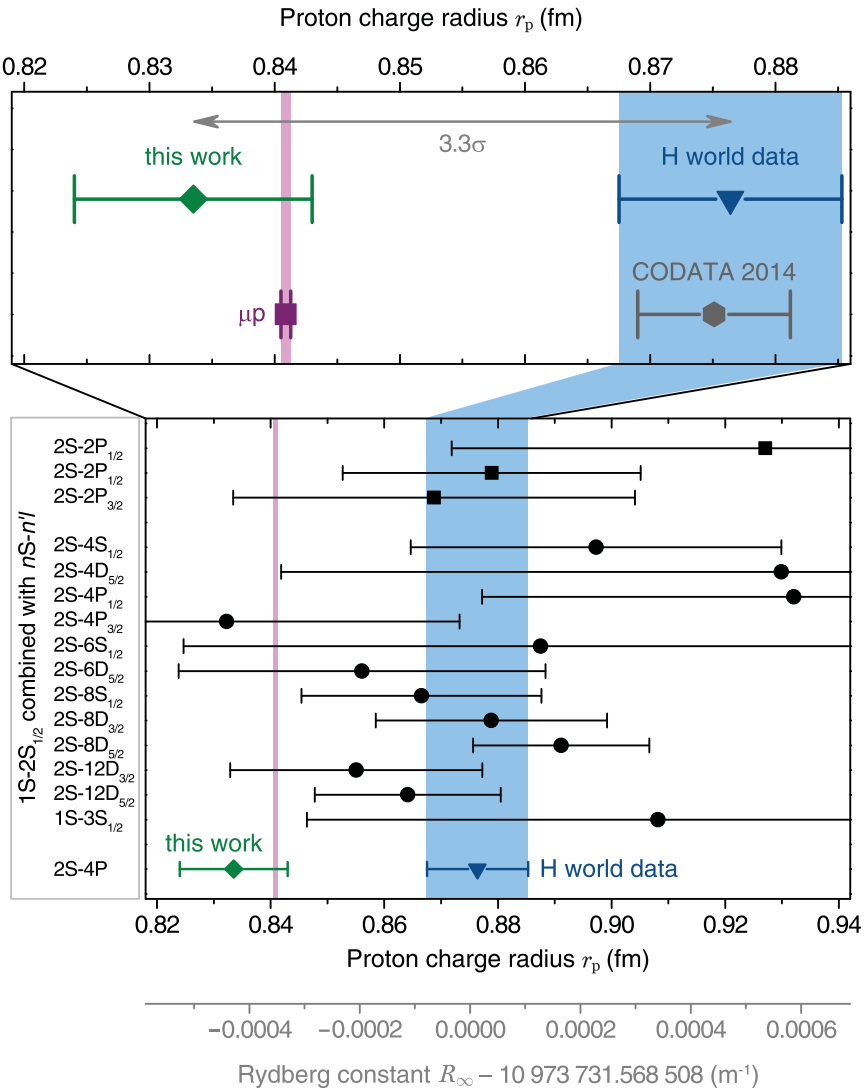


图 1. 里德伯常数 R_∞ 和质子均方根电荷半径 r_p。本研究得出的 r_p 值（绿色菱形）与氢原子光谱学（mp；粉色条和紫色方块）一致。相对于氢光谱学全球数据 (12)（蓝色条和蓝色三角形）以及 CODATA 2014 基本物理常数全球调整 (3)（灰色六边形），我们发现差异分别为 3.3 和 3.7 个合并标准差。氢世界数据由 15 项独立测量组成（黑色圆圈表示光学测量；黑色方块表示微波测量）。除氢数据外，CODATA 调整还纳入了氘数据（9 项测量）和弹性电子散射数据。由于这两个参数高度相关，改为展示 R_∞ 而非 r_p 时，图形几乎完全相同。图底部所示的 R_∞ 轴体现了这一点。

两个受驱振子

在微扰理论框架内，频率为 w 的激光场 E 驱动原子时，其感应偶极矩 D(w) 由克拉默斯–海森堡公式给出（27–29）。对于频率分别为 w_0 和 w_0 + 、阻尼常数 G 相同的两个共振，所得偶极矩为

$$\vec{D}(\omega) \propto \frac{\vec{D}_0}{(\omega_0 - \omega) + i\Gamma/2} + \frac{\vec{D}_1}{(\omega_0 + \Delta - \omega) + i\Gamma/2} \quad (2)$$

这与两个相干受驱的经典偶极子 D_0 和 D_1类似。在量子描述中，每个偶极子都由一个吸收偶极子和一个发射偶极子构成，它们通过激发态（|e⟩；|e′⟩）将初始态（|i⟩）与末态（|f ⟩）连接起来（见图2A）。对于原子偶极矩阵元 d_{jk}（其中 j；k∈i；e；e′；f），贡献的偶极矩为 $\vec{D}_0 o(\vec{E}\cdot\vec{d}ie)\vec{d}ef$ 和 $\vec{D}_1 o(\vec{E}\cdot\vec{d}ie)\vec{d}ef$。感应偶极矩 $\vec{D}(w)$ 在位置 $\vec{r}$ 产生场 $o(\vec{r}\times\vec{D}(w))\times r$ $\vec{}/|\vec{r}^3|$，其功率谱 P(w；$\vec{r}$) 与 D(w)的模平方成正比。它由两个实值洛伦兹型函数和一个非洛伦兹交叉项组成。后者不仅取决于 D_0 和 D_1 的相对取向，还取决于发射辐射的方向相对于偶极子取向的关系。由于偶极子的取向本身是激光偏振的函数，即取决于 E 的取向，因此观测到的交叉项实际上取决于激光偏振的取向相对于探测方向的关系。如果探测并非点状——正如我们的测量情形，其设计目标是尽可能提高收集效率——那么精确的探测几何结构也会影响观测到的交叉项。随着探测立体角增大，交叉项的相对强度趋于减小；当探测所有发射辐射（即覆盖 4π 立体角）时，交叉项将完全消失。

当两个共振的间隔足够大（G/D << 1）时，位于 w_0 + D 的第二个共振可视为对位于 w_0 的共振的微扰，而完整线型 P(w;$\vec{r}$) 可围绕 w_0 处的共振展开 (28)

$$P(\omega,\vec{r}) \approx \frac{C}{(\omega-\omega_0)^2 + (\Gamma/2)^2} + a(\omega-\omega_0) + \frac{b(\omega-\omega_0)}{(\omega-\omega_0)^2 + (\Gamma/2)^2} \quad (3)$$

第一项表示在 w_0,处孤立且未受扰动的共振的洛伦兹线型，其振幅为 C；另外两项则表示由第二个共振存在所引起的微扰。第二项

与 w 呈线性关系、振幅为 a，用于描述关注的共振叠加在扰动共振延伸很远的洛伦兹尾部上的情形。色散形第三项源自非洛伦兹交叉项，描述共振之间的量子干涉；交叉项对探测几何结构的依赖现已并入振幅 b。对于典型的荧光探测几何，色散形第三项导致的谱线位移可能远大于非相干第二项导致的谱线位移。

共振过程与非共振过程之间的干涉会导致非对称线型，这种现象最为人熟知的例子或许是法诺共振（30），其中背景与共振散射过程发生干涉。因此，式 3 与法诺共振的线型非常相似，也就不足为奇了。

若忽略扰动共振的影响，进而忽略共振之间的量子干涉，例如用单个洛伦兹线型拟合谱图 $P(w;\vec{r})$，则会导致所确定的谱线中心出现约为（28）的表观位移

$$\Delta\omega = \frac{b\Gamma^2}{4C} + \frac{a\Gamma^4}{8C} \approx -\frac{\vec{D}_0 \cdot \vec{D}_1}{2D_0^2}\frac{\Gamma^2}{\Delta} + \mathcal{O}\left(\frac{\Gamma^4}{\Delta^3}\right) \quad (4)$$

对于图 1 中列出的氢跃迁，G^2/D 的典型值约为 10^{-2} G。这比质子半径差异大一个数量级；对于图 1 中所有单独的 2S-nl测量，该差异约为 10^{-3}G 或更小。不过，这些测量并不探测发射辐射（而是探测存留的 2S布居数），这会大幅减弱量子干涉的影响，但代价是信噪比降低。式 4 中的第二项源自式 3 中与 a 成正比的项，其数值小得多（约为 10^{-6} G），因此目前可以放心忽略。值得注意的是，交换 D_0 与 D_1 并将 D 替换为 –D 时，位移会改变符号 $\vec{\ }$ $\vec{\ }$；也就是说，两个共振总是朝相反方向移动。因此，通过对两个共振的测量结果赋予适当权重并加以组合，可以大幅减小甚至抵消位移；下文将利用这一点。

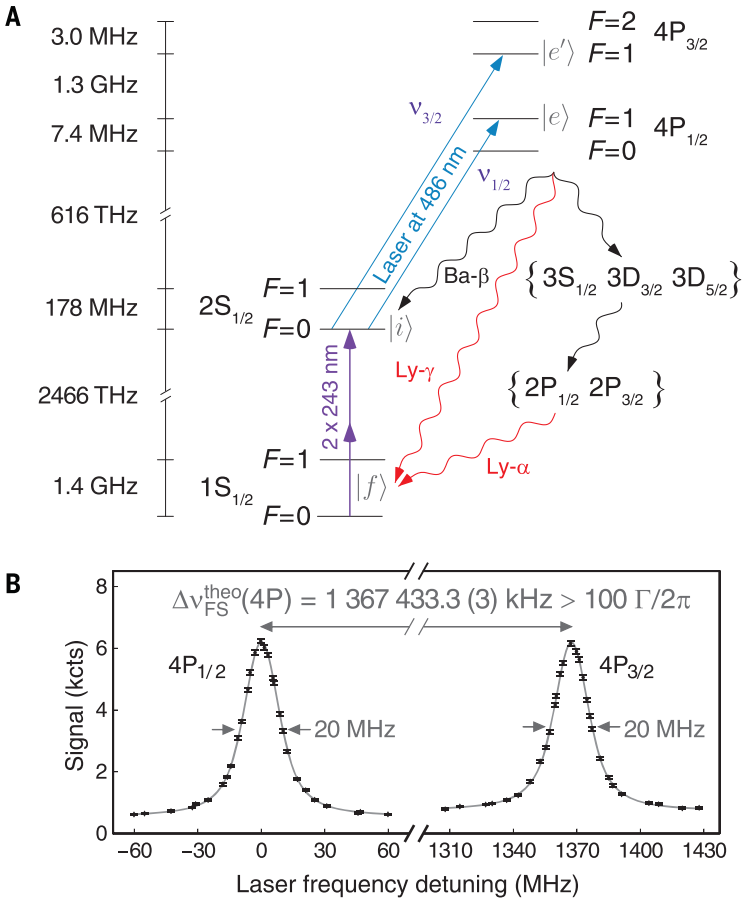


图2。氢-原子2S-4P光谱学。(A) 相关能级氢的2S-4P 光谱学的如图所示（并非按尺度）。该原子被制备在 $2S_{1/2}^{F=0}$ 亚稳态（|i⟩）通过双光子激发，使用一台制备激光器，波长为243纳米。光谱学—复制激光器，波长为486纳米驱动单光子 2S-4P $_{1/2}$ and 2S-4P $_{3/2}$ 跃迁原子氢的 2S-nP 跃迁的精密光谱彩争霸 $4P_{1/2}^{F=1}$ (|e⟩) 和 $4P^{F\ 1}_{\ \ _3/2}$ (|e′⟩) 态以确定跃迁频率 $n_{1/2}$ 以及 $n_{3/2}$，分别。这些态会迅速衰变，主要衰变至 1S基态（|f⟩），途径有两种：直接通过 97 纳米处的莱曼-γ荧光（Ly-g，分支比为 84%），或间接经由 3S、3D 和 2P能级，产生一个 121 纳米的莱曼-α光子（Ly-a，分支比为 4%）。其余 12% 的衰变会通过巴耳末-β衰变（Ba-b）回到 2S态，其中 4% 会衰变回初始的 $2S_{1/2}^{F=0}$ 态。根据角动量守恒，从 $2S_{1/2}^{F=0}$ 跃迁至 $4P_{1/2}^{F=0}$ 和 $4P_{3/2}^{F=2}$ 能级是禁戒的。(B) 单次线扫描 2S-$4P_{1/2}$（左）和 2S-$4P_{3/2}$（右）共振时的典型实验荧光信号（黑色菱形）。观测到的线宽（半高全宽）为 ~2p × 20 兆赫兹，因多普勒展宽和功率展宽而大于自然线宽 G = 2p × 12.9 兆赫兹。我们的测量准确度相当于观测线宽的近万分之一。恒定的背景计数由探测器内 2S原子的衰变引起（17）。kcts，千计数。

原子线型模型

对于 H 中的 2S-4P跃迁，彼此扰动的共振由通向激发态 4P精细结构分量的两个偶极允许跃迁承担，即 2S-4P1/2和 2S-4P3/2 （图2）。与杨氏双缝实验有些类似，原子可以从初始 2S态出发，经由两个 4P精细结构分量中的任一个发生相干演化，最终到达 1S基态。给定两个分量之间的间隔 D =106 × G，以及自然线宽，G = 2p ×12.9 兆赫兹，公式 4 预测出最大可达 ~120 千赫兹、依赖于几何结构的表观谱线位移。使用我们的巨大立体角探测器时，最大位移减小至 45 千赫，对应于质子半径差异的五倍。

对此频移进行建模的一种方法是，通过数值积分光学布洛赫方程（OBE），对整个实验进行复杂的模拟，其中包括所有相关的中间态，尤其是这些态之间常被忽略、会导致量子干涉的交叉阻尼项（18、20、22–26）。随后必须根据实验几何结构评估该模拟的结果，而要以足够的准确度满足这一要求可能并不容易。对于此处研究的 2S→{4P1/2, 4P3/2}→1S 激发频谱，该模拟总共包含 2707 个耦合的复值常微分方程。我们利用马克斯·普朗克计算与数据设施提供的高性能计算资源，对实验进行了这样的光学布洛赫方程模拟，并行了模拟。通过采用精细的模型考虑我们的实验几何结构，包括对探测到的光电子进行粒子追踪，该模拟能够很好地解释测得的数据（见图 4 的 A 和 B 中的虚线）。然而，要可靠地估算探测几何结构建模所带来的不确定度颇具挑战，而这种不确定度是模拟不确定度的主要来源。

认识到 2S→{4P1/2, 4P3/2}→1S 激发频谱的自然线型也可以根据公式 3 进行参数化后，数据分析就可以大大简化。这只需要增加一个自由参数 b/C，用以表征实验几何结构（我们省略了与 a 成正比的可忽略项）。在本实验这类激发率足够低的情况下，量子干涉的影响会使 b/C 非零，但

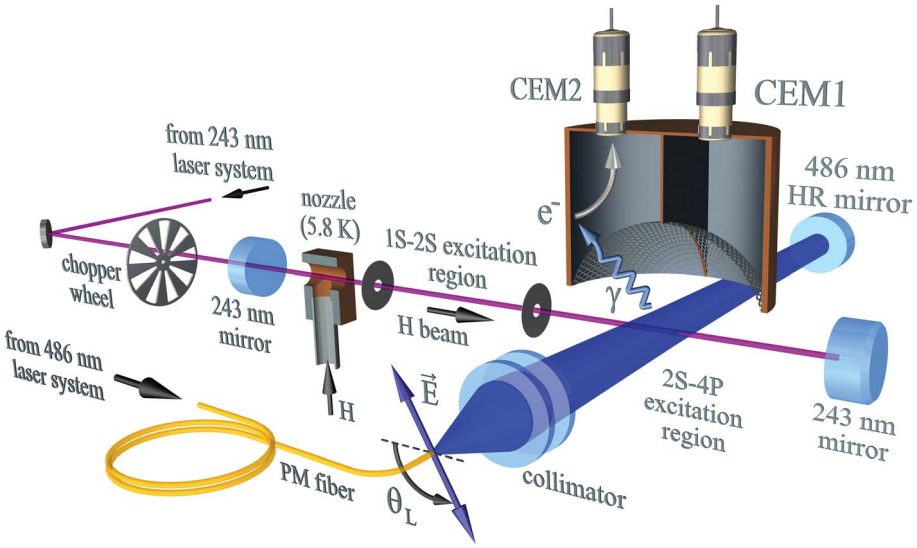


图 3. 实验装置（非按比例绘制）。采用243纳米制备激光器，将从冷铜喷嘴（5.8 K）射出的氢原子从基态激发至2S态。使用486纳米光谱激光器驱动2S-4P跃迁。该激光耦合至主动式光纤回射器 [，其由保偏（PM）光纤、准直器和高反射率（HR）反射镜] 组成，并垂直于原子束取向；此装置可大幅抑制一阶多普勒效应（36）。在斩波轮的暗阶段，4P→1S快速衰变时发射的莱曼-γ荧光光子（γ）通过光电子（e^-）由通道电子倍增器CEM1和CEM2探测。两个探测器沿486纳米光的传播方向由一面垂直壁隔开。2S-4P激发区受到屏蔽，以避免杂散电场（使用专用网格）和磁场（使用磁屏蔽，未示出）影响，因此杂散场分别低于0.6伏特/米和1 mG（17）。标记为→E的蓝色双向箭头表示486纳米光谱激光的电场，其取向q_L相对于水平方向。

提取出的谱线中心 w_0 不会相对于其未受扰动时的值发生偏移。与光学布洛赫方程模拟不同，实验几何结构的影响可以从光谱数据中精确提取，而无需将其作为外部输入。

为同时考虑高斯展宽机制（例如下文详述的实验中的原子束发散），将展开后的线型（式 3）与宽度为 G_G（半高全宽）的高斯函数进行卷积。同样省略与 a 成正比的小线性项后，得到下文所称的 Fano-Voigt线型（17, 31, 32）

$$\mathcal{F}(\omega) = A\{\mathrm{Re}[w(z)] + 2\eta\mathrm{Im}[w(z)]\} \quad (5)$$

其中，w(z) 表示自变量 z = 2 ffiffiffiffiffiffiffiffiffiffiffiffiln√ 2[(w − w_0) + iG/2]/G_G 对应的 Faddeeva函数。与式 3 类似，Fano-Voigt线型由沃伊特线型和色散型微扰组成；前者对应高斯函数与洛伦兹线型的卷积。非对称参数 h = bG/4C 衡量该微扰相对于观测到的线强度 A 的振幅，并直接给出通过纳入该微扰而抵消的谱线位移，其单位为观测线宽。

量子干涉与4P态回落至初始2S态以及该初始态耗尽之间相互作用所导致的额外谱线位移，无法通过Fano-Voigt线型完全计入，但原则上可以通过使用更复杂的线型来消除。不过，这些额外位移要小得多，对几何结构的依赖也远弱于Fano-Voigt线型消除的位移。因此，对于受影响最大的2S-4P跃迁，我们根据将Fano-Voigt线型拟合到光学布洛赫方程模拟所得的结果，对数据施加小幅模型修正 [1.3(2)千赫兹$^{1/2}$]（17）。请注意，对于两个相互扰动的共振，这些额外位移的符号也相反。尽管原子束发散和饱和效应导致的大部分展宽都能由Fano-Voigt线型很好地描述，但谱线中心两侧仍存在微小的对称偏差。若实验中对共振中心两侧的采样不完全对称，这些偏差便可能导致所测谱线中心出现采样偏差。我们通过有选择地移除少量实验数据点来确保采样均匀，从而减小这一采样偏差（17）。剩余的采样偏差通过蒙特卡罗模拟估算，模拟中采用了实验采样方式和信噪比，得出的最大修正为0.8(0.7)千赫兹。

实验装置

为了测量2S-4P跃迁频率并研究量子干涉的影响，我们采用图 3（33–35）所示的专用装置。通过对1S-2S跃迁进行无多普勒双光子激发，获得处于亚稳态2S的低温氢原子束；该原子束与来自486纳米光谱激光器的辐射成直角交叉，从而驱动2S-4P跃迁。1S-2S激发中分辨出了2S态的超精细分裂，因此原子几乎全部被制备在$2S^{F=0}_{1/2}$子能级。从该态出发，只能驱动图2所示的两种偶极允许跃迁：分别跃迁至$4P^{F=1}_{1/2}$态（2S-4P$_{1/2}$ 跃迁）或$4P^{F=1}_{3/2}$态（2S-4P$_{3/2}$跃迁）。光谱激光器的线偏振与水平方向成q_L 角，并由一根保偏（PM）光纤确定（强度偏振消光比为200:1）。可利用光纤的两条正交保偏轴，或旋转光纤本身，使偏振绕激光束轴旋转。

为了更清楚地观察量子干涉的影响，我们沿着光谱激光束用一面垂直壁将大型立体角探测器分隔开，形成两个探测器。它们从不同方向探测4P态的荧光，但立体角相同。短寿命的4P态快速衰变至1S基态时，会发射莱曼γ极紫外光子；这些光子从探测器的石墨涂层内壁释放出光电子，由两个通道电子倍增器CEM1和CEM2计数；这些倍增器的输出就是我们的信号。

多普勒频移

我们低温原子束中原子的平均热速度约为300米/秒，比以往实验低10倍。此外，我们使用专为本实验开发的主动式光纤回射器（36），实现了对一阶多普勒频移的高水平补偿。该跃迁由两束相位回溯的反向平行激光束驱动，因此，分别由两束光激发的原子会产生符号相反、幅度相等的多普勒频移。为验证这一方案，我们探测平均速度从295米/秒逐渐降至85米/秒的原子样品。通过快速关闭243纳米的1S-2S激发光，并在采集数据前让速度最快的2S原子逸出，实现了这些低速度（飞行时间分辨探测方案）。对于每个延迟时间，我们通过提取观测到的跃迁频率随受探测原子平均速度的变化率，来限定任何残余的一阶多普勒频移。我们从用于确定本文所报告跃迁频率的同一组数据中提取多普勒斜率，发现对所有数据取平均后，各跃迁的斜率均与零相容。将多普勒斜率乘以所有受探测原子的平均速度240米/秒，可得相应的频率不确定度：2S-4P$_{1/2}$ 和2S-4P$_{3/2}$跃迁分别为2.9和2.8千赫兹。这两束反向平行激光束会弱耦合2S原子的不同动量本征态，并可驱动它们之间的拉曼

跃迁。由于耦合取决于失谐，它可能导致微小的谱线位移；我们使用一种辅助光学布洛赫方程模拟评估了这种位移，该模拟考虑了原子的反冲。对于我们的原子束几何结构和激发率，两种测得跃迁的光力频移均低于0.5千赫兹（17）。

尽管激光束配置与众所周知的饱和吸收配置相似，但这里并未出现这种配置下预期的线型特征性凹陷，因为原子束的多普勒宽度与2S-4P跃迁的自然线宽非常接近，而且我们工作在低饱和度区间。

量子干涉谱线位移的观测

图4展示了量子干涉造成的谱线畸变对 2S-4$P_{1/2}$ 和 2S-4$P_{3/2}$跃迁的影响。我们在不同的线性激光偏振取向 q_L 下采集数据（见图 3），因此诱导原子偶极矩相对于探测器视场的取向也各不相同。数据集包含 2S-4$P_{1/2}$ 和 2S-4$P_{3/2}$ 跃迁的共振，数量分别为 22,928 个和 25,064 个；每个 q_L设置下记录的共振数量不等。

采用沃伊特近似（公式 5 中的 h = 0 ）作为线型模型时，两种跃迁和两台探测器的提取共振频率均呈现出对 q_L 的依赖性（图 4 的 A 和 B）。2S-4$P_{1/2}$ 和 2S-4$P_{3/2}$ 跃迁的位移振幅分别为 40 千赫兹和 20 千赫兹，远大于 8.9 千赫兹的质子半径差异。尽管对 q_L 取平均会减小位移，但平均后并未归零；根据我们的模拟，两种跃迁分别仍有 6:8 千赫兹和 –3.0 千赫兹的显著位移。正如公式 4 所预期的那样，两个相互扰动的跃迁位移符号相反；根据实验几何结构的对称性，交换两个探测器相当于将激光偏振绕竖直方向（q_L = 90°）镜像翻转。我们的模拟很好地再现了这一现象（图 4 中的虚线），证实已正确考虑探测几何结构。这是在原子共振间隔较大（D/G > 100）的情况下直接观测到的量子干涉谱线位移；对于锂中未分辨的 D2谱线（D/G ≈ 1），此前也观测到了类似效应（29, 37）。

另一方面，使用 Fano-Voigt线型拟合共振，可消除对 q_L 的依赖（图 4，C 和 D）；此时，几何依赖性被吸收到不对称参数 h 中。通过将模拟的参数化版本拟合到数据，确定了可能残留的量子干涉频移的残余振幅（A_{res}，图 4 中的点线），结果发现，除 2S-4$P_{1/2}$ 跃迁的 CEM1 数据存在 3.2(1.2) 千赫兹的效应外，其余结果均与零相符。对 q_L 和两台探测器的数据取平均，以确定 2S-4$P_{1/2}$ 和 2S-4$P_{3/2}$ 跃迁频率时，得到的残余频移分别为 0.3(3) 和 0.0(3) 千赫兹，均不显著（17）。由于约为每个数据点 10 千赫兹的多普勒频移不确定度在两种线型模型之间具有相关性，因此图 4 所示误差棒中未包含该不确定度，以突出模型间的差异。计入多普勒频移和系统不确定度（图 4 中红色阴影区域）后，可以看到数据点仅有轻微散布；值得注意的例外是 2S-4$P_{1/2}$ 跃迁在 0° 和 90° 下的数据点。这些数据是在测量的前两天采集的，当时观测到的线宽较大，表明 2S-4P 激发激光与原子束之间可能存在轻微失准。然而，舍弃这些数据也只会使最终结果（式 9）变化 0.3 千赫兹，这一变化并不显著。

2S-4P绝对跃迁频率

利用Fano-Voigt线型消除了量子干涉的影响后，我们

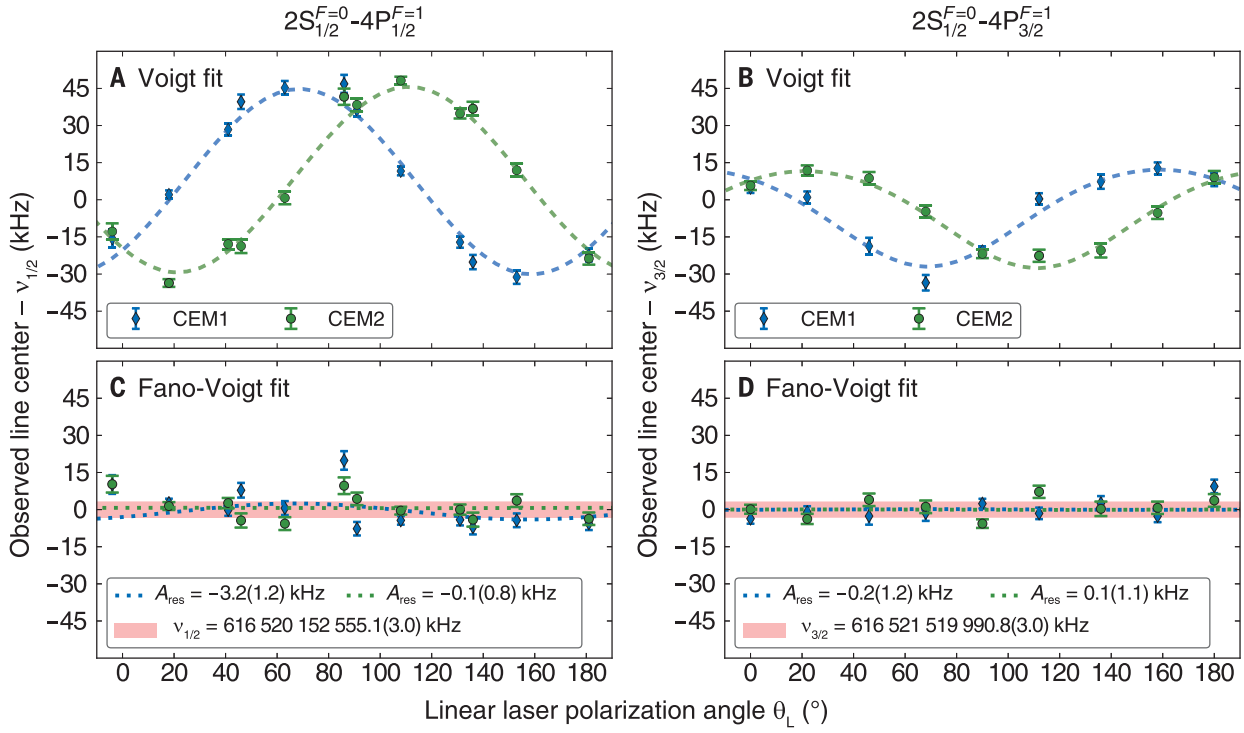


图 4。量子干涉的观测。图中展示了由量子干涉引起的表观谱线位移（A 和 B）及其抑制效果（C 和 D）。通过对2S-4$P_{1/2}$ （A）和2S-4$P_{3/2}$ （B）跃迁进行对称Voigt拟合所确定的观测谱线中心，显示出对线性激光偏振 q_L方向的依赖性；在我们的几何结构中，振幅最高可达 40 千赫兹。我们的数值模拟（虚线）很好地再现了这一行为（17）。使用 Fano-Voigt 线型（式 5）消除了 q_L依赖性（C）和（D）。蓝色和绿色符号分别表示使用 CEM1 和 CEM2 记录的数据（见图 3）。误差棒仅表示统计不确定度。红色阴影区域（17）表示两个探测器的加权平均值，其中包括最终不确定度，该不确定度主要由多普勒频移不确定度决定。点线表示振幅为 A_{res} 时可能存在的剩余谱线位移估计值。

表1。用于确定 2S-4P 精细结构重心 $n_{2S\text{-}4P}$ 的修正 Dv 和不确定度 s 列表。详情请参见（17）。

贡献	Dv（千赫兹）	s（千赫兹）
统计	0.00	0.41
一阶多普勒频移 0.00 2.13 .		
量子干涉频移	0.00	0.21
光力频移 −0.32 0.30 .		
模型修正	0.11	0.06
采样偏差 0.44 0.49 .		
二阶多普勒频移 0.22 0.05 .		
直流斯塔克位移	0.00	0.20
塞曼频移	0.00	0.22
压力频移 0.00 0.02 .		
激光光谱 0.00 0.10 .		
频率标准（氢脉泽） 0.00 0.06 .		
反冲频移 −837.23	0.00	.
超精细结构修正 −132,552.092 0.075 .		
总计 −133,388.92.3		

现在可以通过对不同激光偏振设置和两个探测器的测量结果取平均，得出未受扰动的跃迁频率。激光频率通过与全球定位系统（GPS）参考氢脉泽相连的频率梳测定。对于从 2S态$_{1/2}^{F=0}$到 $4P_{1/2}^{F=1}$ 态（$n_{1/2}$）和 $4P_{3/2}^{F=1}$ 态（$n_{3/2}$）的跃迁频率，我们得到

$$\nu_{1/2} = 616520152555.1(3.0)\,\mathrm{kHz} \qquad (6)$$

$$\nu_{3/2} = 616521519990.8(3.0)\,\mathrm{kHz} \qquad (7)$$

其中，给出的不确定度包括统计不确定度和系统不确定度，且主要由多普勒频移不确定度决定。与此前对 2S-4P$_{1/2}$ 和 2S-4P$_{3/2}$ 跃迁的最佳测量结果（16）相比，这一结果的不确定度分别改善了 4.9 倍和 3.3 倍。公式 6 和 7 中的数值已针对 837.23 kHz 的反冲频移进行了修正。数据分析的详细信息以及修正和不确定度列表见文献（17）（参见表 S2）。

我们用 $\nu_{1/2}$ 减去 $\nu_{3/2}$，得到 $4P_{1/2}^{F=1}$态与 $4P_{3/2}^{F=1}$态之间的 4P精细结构分裂 $\Delta\nu^{\mathrm{exp}}{}_{\text{精细结构}}(4P)$（17）（参见表 S3）

$$\Delta\nu_{\mathrm{FS}}^{\mathrm{exp}}(4P) = 1367435.7(4.3)\,\mathrm{kHz} \qquad (8)$$

精细结构分裂基本不受有限尺寸修正的影响，因此可以非常精确地计算（38），得到 $\mathrm{Dn}_{\mathrm{FS}}^{\mathrm{theo}}(4P)$ =1367433.3(3) 千赫兹。我们的实验结果与理论值非常吻合，差值为 2.4 (4.3) 千赫兹。此外，这是通过光学跃迁频率测量推得的氢原子精细结构分裂中，迄今测定得最精确的一项。

更重要的是，由于量子干涉导致的任何位移在两个共振中符号相反，因此比较 $\mathrm{Dn}^{\mathrm{exp}}{}_{\text{精细结构}}(4P)$ 和 $\mathrm{Dn}_{\mathrm{FS}}^{\mathrm{theo}}(4P)$，可以灵敏地测量残余量子干涉位移，并独立检验数据分析的内部一致性。若不予考虑，当信号对所有偏振角和两个探测器取平均时，量子干涉谱线位移会导致我们的测量中 $\mathrm{Dn}^{\mathrm{exp}}{}_{\text{精细结构}}(4P)$ 与 $\mathrm{Dn}_{\mathrm{FS}}^{\mathrm{theo}}(4P)$ 之间出现约 10 千赫兹的差异。为了进一步提高这项检验的灵敏度，可以比较激光偏振使谱线位移最大的情况下的数据，例如 CEM2 在 $q_L \approx 110°$ 时的数据。此时，采用 Fano-Voigt 线型补偿了一个 ~70-千赫兹的位移后，分裂与理论值的差为 10.0(16.9) 千赫兹。

鉴于量子干涉效应（包括未由 Fano-Voigt线型补偿、而是通过小模型修正加以考虑的效应）会使两个共振朝相反方向移动，因此，利用公式 6 和 7 确定从 2S态超精细质心到 4P精细结构重心 [的跃迁频率颇有优势，也就是说，该频率对应于超精细质心的质心；参见文献（17）中的公式 S16]

$$n_{2S-4P} = 616520931626{:}8(2{:}3)\text{千赫兹} \qquad (9)$$

通过这种组合，模型修正以及量子干涉可能导致的残余谱线位移上限分别降至可忽略的 0.1(1) 和 0.2 千赫兹。最终测量不确定度为 2.3 千赫兹，比 2S-4P跃迁中的质子半径差异小四倍。不确定度主要来自一阶多普勒频移的不确定度，该值为相应非相关不确定度的加权平均

其中相应的非相关不确定度分别对应 2S-4P$_{1/2}$ 和 2S-4P$_{3/2}$ 跃迁。表1列出了所应用的修正以及对总不确定度的贡献。

里德伯常数和质子电荷半径

根据（3），我们将方程（1）与此前测得的 1S-2S跃迁频率（1，2）结合起来，利用方程（1）确定数值对 [R_∞、r_p]

$$R_\infty = 10973731.568076(96)\ \mathrm{m}^{-1} \qquad (10)$$

$$r_p = 0.8335(95)\ \mathrm{fm} \qquad (11)$$

由此，我们得到了氢光谱学中这些数值最精确的测定结果，其不确定度与氢全球数据的合并值相当。我们发现，该结果与μ子氢值（4，5）吻合良好，但与氢全球数据相比，两者均存在3.3个合并标准差的差异（见图1）：R_∞ 和r_p。我们测得的R_∞ 新值也与通过结合μ子氘测量（13）和电子氘中的1S-2S跃迁频率（39）所得的结果一致。

以往的氢原子实验几乎都采用耗尽2S初态布居数的方法，在多种不同的探测几何构型中检测2S-nl激发。通常，这些方案受量子干涉影响的程度小得多。然而，这一优势是以信噪比大幅降低为代价的（与我们的荧光探测方案相比），因此识别和研究微小的系统偏移要困难得多。将来自不同光源（即不同几何构型）的结果取平均，预计也能在一定程度上抵消量子干涉造成的潜在残余偏移，因此这种效应似乎不太可能解释观测结果与氢世界数据之间的差异。

本研究结果与氢世界数据之间的差异，限制了束缚态量子电动力学检验的精度。若量子电动力学计算正确，精度更高的新实验将有助于理解这一差异。目前，已有若干采用不同方法的此类实验正在进行（40–48）。本研究为 2S-4P光谱学开发的工具，如今可应用于其他 2S-nP跃迁，以提供更多实验数据。

参考文献与注释

1. C. G. Parthey 等，《物理评论快报》107, 203001 (2011年)。2. A. Matveev 等，《物理评论快报》110, 230801 (2013年)。3. P. J. Mohr、D. B. Newell、B. N. Taylor，《现代物理评论》88, 035009 (2016年)。4. R. Pohl 等，《自然》466, 213–216 (2010年)。5. A. Antognini 等，《科学》339, 417–420 (2013年)。6. R. Pohl、R. Gilman、G. A. Miller、K. Pachucki，《核与粒子科学年度评论》63, 175–204 (2013年)。7. J. C. Bernauer、R. Pohl，《科学美国人》310, 32–39 (2014年)。8. C. E. Carlson，《粒子与核物理进展》82, 59–77 (2015年)。9. J. C. Bernauer 等，《物理评论快报》105, 242001 (2010年)。10. X. Zhan 等，《物理快报B辑》705, 59–64 (2011年)。

11. J. Arrington、I. Sick，《J. Phys. Chem. Ref. Data》44, 031204 (2015年)。12. 氢世界数据对应第8次调整，即文献 (3) 中的表 XXIX。13. R. Pohl 等，《科学》353, 669–673 (2016年)。14. B. de Beauvoir 等，《欧洲物理学杂志 D》12, 61–93 (2000年)。15. B. de Beauvoir 等，《欧洲物理学杂志 D》14, 398 (2001年)。16. D. J. Berkeland、E. A. Hinds、M. G. Boshier，《物理评论快报》75, 2470–2473 (1995年)。17. 材料与方法详见补充材料。18. M. Horbatsch、E. A. Hessels，《物理评论A》82, 052519 (2010年)。19. D. J. Berkeland，学位论文，耶鲁大学 (1995年)。20. A. Marsman、M. Horbatsch、E. A. Hessels，《J. Phys. Chem. Ref. Data》44, 031207 (2015年)。21. G.-P. Feng、X. Zheng、Y. R. Sun、S.-M. Hu，《物理评论A》91, 030502 (2015年)。22. M. Horbatsch、E. A. Hessels，《物理评论A》84, 032508 (2011年)。23. A. Marsman、M. Horbatsch、E. A. Hessels，《物理评论A》86, 012510 (2012年)。24. A. Marsman、M. Horbatsch、E. A. Hessels，《物理评论A》86, 040501 (2012年)。25. A. Marsman、E. A. Hessels、M. Horbatsch，《物理评论A》89, 043403 (2014年)。26. D. C. Yost 等，《物理评论A》90, 012512 (2014年)。

27. R. Loudon，《光的量子理论》（牛津大学出版社，1983年）。28. U. D. Jentschura、P. J. Mohr，《加拿大物理学杂志》80, 633–644（2002年）。29. R. C. Brown 等人，《物理评论A》87, 032504（2013年）。30. U. Fano，《物理评论》124，1866–1878（1961年）。31. S. Schippers，《原子与分子物理学国际评论》2，151–156（2011年）。32. S. Schippers，Fano 线型与高斯函数卷积的解析表达式。arXiv:1203.4281v2 [物理学·原子与分子物理]（2016年5月13日）。33. A. Beyer 等人，《物理学会议系列》467，012003（2013年）。34. A. Beyer 等人，《物理学报告》T165，014030（2015年）。35. A. Beyer 等人，《Ann. Phys.》525，671–679（2013年）。36. A. Beyer 等人，《Opt. Express》24，17470–17485（2016年）。37. C. J. Sansonetti 等人，《物理评论快报》107，023001（2011年）。38. M. Horbatsch、E. A. Hessels，《物理评论A》93，022513（2016年）。39. R. Pohl 等人，《计量学》54，L1–L10（2017年）。40. A. C. Vutha 等人，《Bull. Am. Phys. Soc.》57，D1.138（2012年）。41. S. Galtier 等人，《J. Phys. Chem. Ref. Data》44，031201（2015年）。42. D. C. Yost 等人，《物理评论A》93，042509（2016年）。43. M. Puchalski、J. Komasa、P. Czachorowski、K. Pachucki，《物理评论快报》117，263002（2016年）。44. J. Liu 等人，《J. Chem. Phys.》130，174306（2009年）。45. D. Sprecher、J. Liu、C. Jungen、W. Ubachs、F. Merkt，《J. Chem. Phys.》133，111102（2010年）。

46. J.-P. Karr, L. Hilico,J. C. J. Koelemeij, V. I. Korobov，《物理评论A》94, 050501（2016年）。47. R. K. Altmann, S. Galtier, L. S. Dreissen, K. S. E. Eikema，《物理评论快报》117, 173201（2016年）。48. U. D. Jentschura, P. J. Mohr, J. N. Tan，《物理学杂志B》43, 074002（2010年）。

致谢

作者感谢 E. A. Hessels 和 U. D. Jentschura 提供的宝贵讨论，并感谢 W. Simon、K. Linner 和 H. Brückner 提供的技术支持。K.K. 和 N.K. 感谢俄罗斯科学基金会（项目编号 16-12-00096）的支持，R.P. 感谢欧洲研究理事会（ERC）第279765号起始基金的支持，T.W.H. 感谢马克斯·普朗克基金会的支持。本研究所依据的数据可向通讯作者提出合理请求获取。

补充材料

www.science mag.org/content/358/6359/79/suppl/DC1 材料与方法 图 S1 表S1至S3 参考文献（49–59）2016年7月28日；2017年8月28日接受 10.1126/science.aah6677

www.sciencemag.org/content/358/6359/79/suppl/DC1

《以下为》补充材料

原子氢的里德伯常数和质子尺寸

Axel Beyer、Lothar Maisenbacher、Arthur Matveev、Randolf Pohl、Ksenia Khabarova、Alexey Grinin、Tobias Lamour、Dylan C. Yost、Theodor W. Hänsch、Nikolai Kolachevsky、Thomas Udem

*通讯作者。电子邮箱：lothar.maisenbacher@mpq.mpg.de

发表于2017年10月6日，《科学》358，79（2017）
DOI：10.1126/science.aah6677

此 PDF 文件包含：

材料与方法 图S1 表
S1至S3 参考文献

材料与方法

1 数据采集与分析

1.1 数据采集

这里简要回顾正文图 3 所示的实验装置。使用 243纳米制备激光器，通过对 $1S_{1/2}^{F=0}$-$2S_{1/2}^{F=0}$跃迁进行无多普勒双光子激发，激发 $2S_{1/2}^{F=0}$态。该激发的线宽为 $\sim$2 千赫兹（半高全宽（FWHM）），受飞行时间展宽限制（*1*）。由于此线宽远小于通过无多普勒双光子激发驱动 $1S_{1/2}^{F=1}$-$2S_{1/2}^{F=1}$跃迁所需的 621 兆赫兹激光失谐，因此 $2S_{1/2}^{F=1}$态仅通过多普勒敏感双光子激发布居。由此，三个 $2S_{1/2}^{F=1}$ 态中的每个态的布居数都可忽略，相对于 $2S_{1/2}^{F=0}$ 态的布居数约为 3×10^{-7}，因为只有少数原子处于与该跃迁共振的速度类别。随后，原子从 1S-2S激发区移动到 2S-4P 激发区，在那里与光谱激光器的两束反向传播光束相互作用，激光波长为 486纳米。只有在时间 $\tau = 0$停止产生 2S原子后，才探测 2S-4P 荧光；也就是说，160赫兹运行的斩波轮已阻断 1S-2S 激发光。光谱激光器每个方向的激发光强度约为 1.4 W/m^2（0.6 W/m^2），束腰为 $w_0 = 1.85$毫米；平均而言，约 30% 的 $2S_{1/2}^{F=0}$态原子被激发至 $4P_{1/2}^{F=1}$（$4P_{3/2}^{F=1}$）态。原子衰变时发出的莱曼-γ（效率较低的莱曼-α）极紫外光子会从探测器的石墨涂层内壁释放出光电子，随后由探测器 CEM1 和 CEM2 计数。探测器组件采用低温泵进行差分抽气，以确保 1S-2S 和 2S-4P 激发区内的背景气体压力低于 1×10^{-7}毫巴。

记录的计数按到达时间 τ划分为 10 个延迟时间区间$[\tau_i, \tau_{i+1}]$，延迟时间范围从 10 μ秒到 2621 μ秒。区间宽度的选择以确保 10 个数据集具有相近的计数统计量，其范围从较早延迟时间对应的 50 μ秒到最长延迟时间对应的 1711 μ秒。由此获得的各个数据子集对受激原子的不同速度组进行采样，可用于约束一阶多普勒频移（见第 2.1 节）。

对于每种测量设置，即线性激光偏振的取向 θ_{L}，在实际数据采集前，会将光谱激光束与原子束之间的角度α 调节至接近 $\alpha = 90^\circ$。具体做法是，先挡住高反射镜前的光谱激光束（否则该反射镜会使其回射），然后将一阶多普勒频移随原子速度变化的斜率降至最小（*36*）。绝对频率数据

随后，在特定的激光偏振角设置 θ_{L} 下，采用主动多普勒补偿采集2S-4P跃迁的绝对频率数据；此时使用反向传播且经过主动稳定（高反射镜倾斜/俯仰）的激光束。

一次共振扫描由29个随机化频率点组成，约需90秒（*35*）。通过在红失谐侧和蓝失谐侧之间交替扫描共振，减少由于到达2S-4P激发区的2S原子数量漂移而导致的荧光计数率缓慢漂移，从而降低其对推导谱线中心可能造成的偏差。在每个频率点，信号在斩波轮运行170个周期内进行积分，随后将偏振旋转90°（*36*），再在另外170个周期内对信号进行积分。通过将来自两条路径的光耦合入用于传输光的光纤的两个正交保偏轴，并依次在两条路径之间切换，实现这种偏振旋转。正文图2B展示了使用CEM2记录的第一个延迟区间内的典型共振。

对于每个测量日，均在固定的 θ_{L} 和 $\theta_{\mathrm{L}}+90^{\circ}$值下采集数据。通常，一次测量日对每个偏振方向进行约100次共振扫描，因此每天共获得约4000个单独共振（2个探测器、2个偏振方向、10个独立速度子集）。

我们观测到背景计数，即光谱激光器调谐至失谐时的计数
，
这些计数是由探测区域内部分亚稳态2S原子的衰变造成的（不存在2S原子时，探测器的暗计数率可以忽略不计）。相对于高于背景的共振振幅 A，非共振背景 y_0在两个探测器之间并不相同。平均而言，CEM1为 $y_0/A\approx 0.21$，CEM2为 $y_0/A\approx 0.10$，尽管CEM1和CEM2的振幅 A 非常接近。该背景远高于未受扰动的2S原子飞过探测器时衰变所产生的最低预期背景；我们估计这一贡献仅为 $y_0/A\approx 0.002$，且预期两个探测器的数值相同。我们认为，背景增加是由于2S原子撞击CEM1附近的下游探测器壁而产生了二次电子发射。这是因为探测器壁上的开口尺寸较小；该开口旨在实现高效差分抽气并获得较大的探测立体角，却无法让所有2S原子离开探测区域，尤其是在不可避免地存在轻微失准的情况下。这一过程也可以解释两个探测器背景水平的差异，因为从下游探测器壁发射的二次电子在两个探测器中的探测效率预计并不相同。我们还考虑了背景气体引起的碰撞猝灭，以及杂散电场引起的2S原子斯塔克猝灭的可能性。我们估计，要解释观测到的背景，真空室中的主要背景气体$\mathrm{H_2}$ 分子的压力需要达到 9×10^{-6}毫巴，远远超过探测器内部压力的实验上限 1×10^{-7} 毫巴。同样，要用斯塔克猝灭解释该背景，需要50 V/m的电场，远大于0.6 V/m的实验上限（见第2.7节）。

尽管两个探测器所观测到的背景相差超过两倍，但使用我们的完整分析方法、仅采用任一探测器的数据所确定的跃迁频率

仍然高度一致。通过数值模拟，我们确认，由2S原子衰变产生的背景不会影响所确定的跃迁频率。此外，我们还重复了下文详述的数据分析，但将背景对激光失谐的线性依赖纳入其中，结果与主要分析的结果一致；主要分析仅假设背景为常数。

1.2 线型模型

受另一远失谐共振的量子干涉所导致的小幅畸变影响时，静止原子的线型可表示为（*28*）：

$$P(\omega,\vec{r}) \approx \frac{C}{(\omega-\omega_0)^2+(\Gamma/2)^2} + a(\omega-\omega_0) + \frac{b(\omega-\omega_0)}{(\omega-\omega_0)^2+(\Gamma/2)^2}, \tag{S1}$$

其中， ω_0 是所关注共振的频率， Γ 是该共振的自然线宽。由 $\vec{r}$ 表示的几何依赖性，以及扰动共振与所关注共振之间的频率间隔 Δ ，都包含在系数 C， a， b中。正如正文所述，我们省略 a 项，因为在我们的2S-4P光谱学中，相应的频移比 b 项导致的频移额外小一个 $\Gamma^2/\Delta^2 < 10^{-4}$ 因子，因此得到

$$P(\omega,\vec{r}) \approx \frac{C}{(\omega-\omega_0)^2+(\Gamma/2)^2} + \frac{b(\omega-\omega_0)}{(\omega-\omega_0)^2+(\Gamma/2)^2}. \tag{S2}$$

为考虑原子束横向发散度导致的有限多普勒宽度，我们将此线型与高斯函数进行卷积:

$$p(\Delta\omega) = \frac{2\sqrt{\ln 2}}{\sqrt{\pi}\Gamma_{\mathrm{G}}}\, e^{-4\ln 2\frac{(\Delta\omega)^2}{\Gamma_{\mathrm{G}}^2}}, \tag{S3}$$

其中， Γ_{G} 给出 p（$\Delta\omega$）的半高全宽，描述原子的共振频率因一阶多普勒频移而偏移 $\Delta\omega$ 的概率。原则上， Γ_{G} 可取自关于一阶多普勒频移的讨论中所述原子束的模拟结果，但它会略微依赖于实验参数，例如原子束与激光束之间的角度。由于线型模型未明确纳入饱和效应及其导致的共振功率展宽，这些效应会隐含地表现为 Γ_{G} 和 Γ 均高于仅由原子束发散所预期的数值。请注意，在延迟时间较短时（$\tau < 400\,\mu\mathrm{s}$），多普勒展宽占主导；延迟时间较长时，饱和效应则是主要的展宽机制。因此，拟合实验数据时，Γ_{G} 和 Γ 均作为自由参数。我们发现，不同延迟时间下（见第 2.1 节）， Γ_{G} （Γ）的范围为 14 兆赫兹（13 兆赫兹）至 6 兆赫兹（16 兆赫兹），总半高全宽线宽在 22 兆赫兹至 17 兆赫兹之间。

方程 S2 和方程 S3 的卷积可写为:

$$F(\omega) = C\frac{4\sqrt{\pi \ln 2}}{\Gamma_{\mathrm{G}}\Gamma}\left\{\mathrm{Re}[w(z)] + \frac{\Gamma}{2}\frac{b}{C}\,\mathrm{Im}[w(z)]\right\}, \tag{S4}$$

其中 $z = 2\sqrt{\ln 2}[(\omega - \omega_0) + i\Gamma/2]/\Gamma_{\mathrm{G}}$ 和 Faddeeva函数 $w(z)$ 定义为（*49*）

$$w(z) \equiv e^{-z^2}\left(1 + \frac{2i}{\sqrt{\pi}}\int_0^z e^{t^2}\mathrm{d}t\right). \tag{S5}$$

将不对称参数定义为 $\eta \equiv b\Gamma/4C$，并用自由拟合参数 $A = C^{4\sqrt{\pi}\ln_{\Gamma_{\mathrm{G}}\Gamma}{}^2}$ 替代常数乘法因子，即可得到正文方程 5 中给出的 Fano-Voigt线型。~~型。~~ 为考虑实验背景（见第 1.1 节），在线型中（即在方程 S2 中，从而也在方程 S4 中）加入一个常数项 y_0，作为自由拟合参数。

我们将 Fano-Voigt线型拟合到正文中所述光学布洛赫方程模拟的结果，以此检验该线型，并发现量子干涉谱线位移受到显著抑制。为检验拟合的稳健性并控制可能的偏差，我们针对共振采用实验频率采样和观测到的信噪比（包括后者的缓慢漂移），对光学布洛赫方程模拟得到的线型进行蒙特卡罗模拟。

1.3 数据分析

每个记录的共振由 N 组激光频率和探测到的荧光光子数量构成，并使用含有六个自由参数的 Fano-Voigt线型进行拟合（谱线中心$\nu_0 = \omega_0/2\pi$、振幅 A、背景 y_0、洛伦兹线宽 Γ、高斯线宽 Γ_{G} 和不对称参数 η）。我们假设，对于每个频率点 i 探测到的荧光光子数量 y_i 的不确定度 $\sigma_{y,\,i}$ 主要由散粒噪声决定，即 $\sigma_{y,\,i} \approx \sqrt{y_i}$（由于$y_i \gg 1$，我们可以用正态分布近似泊松分布）。随后，通过最小化 χ^2求得自由参数的最优值；当数值相对于最优值变化 1 时，χ^2 的增量所对应的参数值不确定度。

我们使用 $\chi^2_{\mathrm{red}} = \chi^2/N_{\mathrm{DOF}}$，其中 $N_{\mathrm{DOF}} = N - 6$，作为拟合优度的度量。各个共振拟合得到的 χ^2_{red} 分布在两方面偏离了基于所假设噪声而预期的分布。首先，观测分布的模式比预期高约 20%，对应的平均值 χ^2_{red} 为 $\sim$1.20。其次，尽管该分布在 $\chi^2_{\mathrm{red}} \lesssim 2$ 时符合预期形状，但具有 $\chi^2_{\mathrm{red}} \gtrsim 2$的共振拟合数量偏多。

前者部分是由这样一个事实造成的：尽管 Fano-Voigt线型能够很好地描述观测到的线型，但两者之间仍存在微小偏差。这些偏差可分解为相对于谱线中心对称的贡献（相对偏差最高达 4%），以及相对于谱线中心不对称的贡献；后者比前者小一个数量级以上。对称贡献由以下两种因素造成：(1) 与初始 $2S_{1/2}^{F=0}$态耗尽相关的饱和效应，以及 (2) 非高斯多普勒展宽；这两者均未纳入 Fano-Voigt线型。该对称贡献可能导致采样

偏差，详见第2.5节。不对称贡献由 Fano-Voigt线型未描述的量子干涉效应造成，相关讨论见第2.4节。这些偏差会使拟合残差高于纯散粒噪声所预期的水平，并将观测到的 χ^2_{red} 分布的模式推向更高值。根据我们用于检验 Fano-Voigt线型的蒙特卡罗模拟（见第1.2节），我们预计这一效应会使模式增加 10%。

此外，系统中还存在其他噪声源。除了散粒噪声之外，我们预计，主要的噪声贡献来自到达 2S-4P 激发区的 2S原子数量的漂移；这种漂移是由低温喷嘴上积聚的氢冰、243 nm 激光功率的漂移，以及产生氢原子的射频放电状态变化所引起的。这种额外噪声还会使观测到的 χ^2_{red} 分布的众数偏移到高于纯散粒噪声情况下的预期值。

这些漂移还会导致带有 $\chi^2_{\mathrm{red}} \gtrsim 2$ 的共振拟合数量多于仅存在散粒噪声的情况；当我们通过对观测到的谱线振幅和背景随时间进行插值，恰当地对漂移进行建模时，便可从蒙特卡罗模拟中推断出这一点。另一种噪声贡献来自系统中短暂但幅度较大的扰动（即只影响一个或两个频率点），例如探测器中的放电会导致计数率短暂尖峰。为在数据分析中剔除这类事件，引入了数值为 3 的 χ^2_{red} 截止值，即在数据分析中忽略带有 $\chi^2_{\mathrm{red}} \geq 3$ 的单个共振拟合。由此剔除的记录共振少于 4%。该截止值对所确定跃迁频率的影响处于最终不确定度范围内。

按照设计，Fano-Voigt线型的自由参数 η 与谱线中心ν_0相关。对于记录的共振的典型信噪比，与拟合 Voigt线型（其中 $\eta = 0$）相比，拟合 Fano-Voigt线型会使谱线中心的不确定度显著增大。为降低这一不确定度， η 不再作为每个共振各自的自由参数，而是作为一组共振共享的单个自由参数，从而有效提高信噪比。每组数据仅包含在特定激光偏振设置 θ_{L} 下、同一延迟时间区间内，并由同一探测器采集的数据，因此这些数据受到量子干涉导致的相同谱线畸变影响，对应于相同的 η 值。采用这一方法，谱线中心的不确定度降低了约一半，达到使用 Voigt线型时的同一水平。由于对于高斯展宽可忽略不计（$\Gamma_{\mathrm{G}} < 0.1$兆赫兹）的共振，Fano-Voigt线型拟合往往在数值上不稳定，因此我们使用 Fano-Lorentzian 拟合，即使用式 S2 所给的不包含 Fano-Voigt线型高斯展宽的线型。采用共享 η 进行拟合，以及在适当情况下使用 Fano-Lorentzian 拟合，这两种做法都不会使测得的跃迁频率超出拟合不确定度范围。

最后，为了确定正文中给出的跃迁频率，我们针对每个记录的共振确定小模型、采样偏差和光力频移修正（见第2.4、2.5和2.3节），并将其应用于提取的谱线中心。跃迁频率通过对所有激光偏振设置 θ_L、所有延迟时间以及两个探测器对应的谱线中心进行加权平均得出，权重为谱线中心的拟合不确定度。这里给出的统计不确定度对应于加权平均的不确定度。该加权平均的 χ^2_{red}

对于2S-4P$_{1/2}$ 和2S-4P$_{3/2}$ 跃迁，该值均为1.16。

2 修正和不确定度

表 S2列出了对两个测得的跃迁 2S-4P$_{1/2}$ 和 2S-4P$_{3/2}$ 所作的修正，以及这些修正对总测量不确定度的贡献（以一个标准差 σ 为单位）。我们假设每个列表中的各项不确定度贡献彼此不相关，并按平方和开方合成。然而，两个跃迁频率的不确定度贡献之间存在相关性，因此我们给出相应的相关系数 r ($r_{X,\ Y}$ = 协方差$(X,\ Y)/\sigma_X\sigma_Y$，对应贡献 X、 Y，其中 cov$(X,\ Y)$ 表示 X 与 Y之间的协方差）。4P精细结构重心 ν_{2S-4P} 和 4P精细结构分裂 $\Delta\nu^{exp}$ 精细结构 (4P)的修正和不确定度分别列于正文中的表1和表 S3。下文将简要讨论列表中的每一项。

2.1 一阶多普勒频移

正文和文献（*36*）中已详细讨论了使用主动式光纤反射器（AFR）抑制一阶多普勒频移，以及对这种抑制的实验约束。与文献（*36*）中使用对称线型确定谱线中心不同，我们在此按照第1.3节所述，使用Fano-Voigt线型分析数据，并根据模拟进行小幅修正。这一点很重要，因为量子干涉导致的谱线畸变取决于原子与光谱学光束的相互作用时间，因而也取决于原子的平均速度（见第2.4节）。若未能正确考虑这些谱线畸变，跃迁频率可能会随延迟时间发生表观偏移，从而造成多普勒频移的假象。

不同探测延迟时间下原子的速度分布，不仅取决于原子离开喷嘴时的初始速度分布以及随后由孔径实现的准直（见正文图3），还受到将基态原子激发至2S$_{1/2}^{F=0}$ 态的243 nm激光器的光束半径、功率和失谐的影响。为对此进行建模，我们对原子轨迹进行蒙特卡罗模拟，同时考虑1S-2S和2S-4P激发。为估计这一方法的不确定度，我们改变输入参数，包括初始速度分布，并将模拟结果与实验可获得的参数进行比较，例如不同延迟时间下的信号幅度和线宽；这两个参数都对速度分布高度敏感。发现，在十个不同的延迟时间区间内，激发至4P能级的原子的平均速度v_i 介于295(40)米/秒和85(10)米/秒之间，对所考虑的所有延迟时间而言，总体平均速度为 $\bar{v}$ = 240(30)米/秒。横向速度分布，即沿486 nm光束方向、与多普勒展宽而非多普勒频移相关的速度分布，近似为高斯函数，其半高全宽从6(1)米/秒降至1.9(2)米/秒。

利用这些平均速度 v_i 以及十个不同延迟时间区间的实测跃迁频率 ν_i，可以针对不同的数据子集提取跃迁频率随平均速度的变化率，即多普勒斜率 m。具体做法是对数据拟合线性模型 $\nu = mv + \delta\nu$，并根据实测跃迁频率的不确定度推导多普勒斜率的不确定度。如果发现 $\chi^2_{\text{red}} = \chi^2/8$ 的确定值大于1，则将多普勒斜率不确定度乘以 $\sqrt{\chi^2_{\text{red}}}$，从而得到多普勒斜率不确定度 σ_m的保守估计。最后，通过将多普勒斜率不确定度乘以所有延迟时间的总体平均速度$\sigma_{\nu,\ \text{D}} = \sigma_m \bar{v}$，得到对延迟时间取平均后的跃迁频率所对应的多普勒不确定度$\sigma_{\nu,\ \text{D}}$。

比较以这种方式提取的不同测量日的多普勒斜率后，我们发现日间散布偏大。我们认为这可能是 AFR 中的轻微失准所致，例如光谱激光束与原子束之间的角度 α，或激光束束腰的位置；理想情况下，束腰应与高反射镜表面重合（*36*）。事实上，有几个测量日观测到的线宽略大于平均值，暗示 α 可能存在轻微失准。这些失准会造成残余多普勒频移，其符号取决于失准的方向。由于大多数测量日都会重新调整 AFR，且我们预计失准方向是随机的，因此在对足够多的测量日进行平均，或等效地进行足够多次重新对准后，多普勒频移应与零相容。

对于每种已测跃迁的完整数据集，我们发现多普勒斜率分别为$m = 0.7$(12.1) 赫兹/（米/秒）和 $m = 9.5$(11.8) 赫兹/（米/秒），对应 2S-4P$^{1/2}$ 和 2S-4P$^{3/2}$ 跃迁，因此与零相容。过大的散布表现为这两种跃迁的 χ^2_{red} 分别增至 1.83 和 1.47；计算不确定度时已通过乘以 $\sqrt{\chi^2_{\text{red}}}$ 将其纳入。由于多普勒斜率与零相容，我们不对跃迁频率进行修正，而仅计入斜率的不确定度。最后，跃迁频率 $\nu_{1/2}$和 $\nu_{3/2}$ 的多普勒不确定度分别为 2.92 千赫兹和 2.84 千赫兹。我们假设这两种跃迁的不确定度互不相关（$r = 0$），因此得到$\nu_{2\text{S}-4\text{P}}$的多普勒不确定度为 2.13 千赫兹。

2.2 量子干涉

虽然我们已通过模拟对采用 Fano-Voigt线型补偿量子干涉引起的谱线位移进行了全面测试（见第 1.2、1.3 和 2.4 节），但在此我们直接根据实验数据估算补偿程度。基本思路是，任何残余谱线位移都应遵循与使用 Voigt线型进行数据分析时观察到的未补偿谱线位移相同的函数行为 $\Delta\nu \equiv \Delta\nu(\theta_{\text{L}})$，其中 θ_{L} 仍为线性激光偏振角（见正文中的图 4 （ A 和 B ））。为此，我们从微扰极限下推导出的解析表达式出发，对 $\Delta\nu(\theta_{\text{L}})$ 进行参数化。对于 2S-4P$^{1/2}$ 跃迁， $\Delta\nu(\theta_{\text{L}})$是一个简单的正弦函数；而对于 2S-4P$^{3/2}$跃迁，$\Delta\nu(\theta_{\text{L}})$则是一个更复杂的函数，可用正弦函数的幂级数近似

（详情将在其他地方说明）。参数化函数 $\Delta\nu(\theta_{\mathrm{L}},\ A_{\mathrm{res}},\ \Delta\nu_0)$有两个自由参数：振幅 A_{res} 和偏移量 $\Delta\nu_0$；相位和周期则分别固定为未补偿谱线位移的相位值和 $180\,^{\circ}$。随后，将 $\Delta\nu(\theta_{\mathrm{L}},\ A_{\mathrm{res}},\ \Delta\nu_0)$拟合到采用 Fano-Voigt线型分析的数据中，且仅考虑统计不确定度。

我们首先分析探测器之间的差异，即观测到的谱线中心之间的差异；与单个探测器的信号相比，这种差异对量子干涉效应稍微更敏感。在这里，我们发现，2S-4P$_{1/2}$ 跃迁的残余振幅为 $A_{\mathrm{res}} = 4.46$(1.36) 千赫兹（而 Voigt线型对应的数值为 54.8(1.3) 千赫兹），2S-4P$_{3/2}$ 跃迁的残余振幅为 $A_{\mathrm{res}} = -1.68$(2.00) 千赫兹（而 Voigt线型对应的数值为 28.6(2.0) 千赫兹）。因此，2S-4P$_{3/2}$ 跃迁的残余振幅与零相容，而 2S-4P$_{1/2}$ 跃迁存在微小的残余效应。

为确定残余振幅的来源并估算相关不确定度，我们分析了各个探测器的数据（见正文中的图 4（C 和 D））。对于 2S-4P$_{1/2}$ 跃迁的探测器 CEM2，以及 2S-4P$_{3/2}$ 跃迁的探测器 CEM1 和 CEM2，残余谱线位移的振幅 A_{res} 均与零相容（分别为 $A_{\mathrm{res}} = -0.09$(0.84) 千赫兹，以及 $A_{\mathrm{res}} = -0.16$(1.23) 千赫兹和 $A_{\mathrm{res}} = 0.11$(1.06) 千赫兹）。对于探测器 CEM1 和 2S-4P$_{1/2}$ 跃迁，我们发现残余振幅较小，为$A_{\mathrm{res}} = 3.23$(1.16) 千赫兹，拟合优度为 $\chi^2_{\mathrm{red}} = 6.6$。因此，差值中观察到的残余振幅完全由其中一个探测器 CEM1 的数据造成。我们注意到，除此之外，两个探测器的数据非常相似，包括由量子干涉导致的谱线位移（见正文中的图 4（A 和 B））。为交叉检验 Fano-Voigt线型对不对称性的补偿效果，我们还使用 Voigt线型并结合模拟分析了残余振幅（由此得到数十千赫兹的大幅修正），结果非常相似。判断这一非零残余振幅的显著性时，应考虑到简单的加权平均对数据的描述效果同样好（$\chi^2_{\mathrm{red}} = 6.7$）。此外，正如较大的 χ^2_{red}所表明的，我们迄今忽略了残余多普勒频移；它们带来的不确定度与残余振幅一样大，并且预计会导致此处观察到的日间散布（不同 θ_{L} 值的数据在不同日期记录）（见第 2.1 节）。请注意，舍弃 2S-4P$_{1/2}$ 跃迁中 $\theta_{\mathrm{L}} = 0\,^{\circ}$ 和 $\theta_{\mathrm{L}} = 90\,^{\circ}$ 的数据（如正文所述，该跃迁的散布增大）只会略微降低非零残余振幅的显著性。

正文中给出的跃迁频率是对 θ_{L}取平均后确定的。为估算这些跃迁频率的残余量子干涉谱线位移，我们利用光学布洛赫方程模拟，按照 θ_{L}的实验采样方式，研究振幅 A_{res} 与偏移量 $\Delta\nu_0$ 之间的关系。对于 2S-4P$_{1/2}$和 2S-4P$_{3/2}$ 跃迁，我们得到 $\Delta\nu_0/A_{\mathrm{res}} \approx 0.2$ 和 $\Delta\nu_0/A_{\mathrm{res}} \approx -0.2$ 。据此，并对两个探测器的结果取平均后，2S-4P$_{1/2}$ 和 2S-4P$_{3/2}$跃迁的残余线移分别确定为 0.29(33) kHz 和 0.00(26) kHz，其中已通过将不确定度乘以 $\sqrt{\chi^2_{\mathrm{red}}}$来考虑 $\chi^2_{\mathrm{red}} > 1$。

We h我们曾尝试用模拟重现残余振幅只在其中一个探测器中出现的情况

但未能给出令人满意的解释。探测器之间对称性被打破的一个可能原因是，2S-4P 激发区并非点状，而是对应于激光束尺寸（束腰为 $w_0 = 1.85$mm，探测器半径为 28 mm）。这又会导致两个探测器观测到略有差异的立体角和原子速度；事实上，我们确实观测到两个探测器之间存在微小的差分多普勒频移。

然而，对两个探测器取平均并 θ_{L}后发现，如上所示，由这种残余振幅导致的谱线位移以及残余多普勒频移（见第 2.1 节）均与零相符。因此，我们确信这一残余效应不会影响通过此次平均得到的最终结果。

因此，我们将残余量子干涉谱线位移引入的不确定度分别定为 0.33 kHz 和 0.26 kHz，并赋予测得的跃迁频率 $\nu_{1/2}$ 和$\nu_{3/2}$ 。由于假定这些不确定度受统计因素限制，因此两个跃迁的不确定度不相关（$r = 0$），使得 $\nu_{2\mathrm{S}-4\mathrm{P}}$的不确定度为 0.20 kHz。

2.3 光力频移

沿近共振驻波中的经典轨迹运动的原子，在红失谐或蓝失谐时，可能分别受到指向波节或波腹的力（*50*）。从这种简单的经典观点来看，观测到的共振显然可能受到扭曲，因为这一效应可能增强共振的红翼，同时减弱蓝侧的信号；也可能因轨迹而相反。事实上，可以通过同时求解含位置相关拉比频率的光学布洛赫方程和牛顿运动方程，对这些谱线畸变进行建模（*51,52*）。然而，这种简单的原子运动经典描述有若干适用条件（*52*）。其中之一是，原子必须充分局域，才能为其指定位置相关的力。在我们的情况下，由于两个原因，这一条件并不成立：2S原子的横向温度足够低，使原子物质波的相干长度与光学势的周期相当（$\lambda/2 = 243$纳米）。此外，单个光子反冲就足以使波函数的基态部分与激发态部分相隔数个半波长，而原子穿过 2S-4P 光谱学光束时便会发生这种情况。

因此，在量子力学模型中，除了原子的内部动力学，还必须纳入原子沿 2S-4P 光谱激光束方向的横向动量 p 来描述该系统。与激光束相互作用会使原子的动量改变 $\pm n\hbar k$，这对应于动量为 $\hbar k$的 n 个光子的交换，因此会耦合相应的动量态；而自发衰变会导致随机反冲，其平均值为零。在这一图像中，动量态之间的耦合会改变所探测跃迁的线型，并导致动量态形成相干叠加，对应于类似经典图像的部分局域化。可采用有效哈密顿量方法解析求解这一问题（例如参见（*53*）），并使用维格纳函数描述从喷嘴射出并穿过装置孔径的原子的初始动量态（相关内容即将发表于一篇出版物中）。

由于 4P 激发态向 1S基态快速衰变，原本无限的动量空间可以缩减，结果发现 $n = 4$ 足以描述该系统。这一解析解忽略了激发的 4P态向初始 $2S_{1/2}^{F=0}$ 态的反向衰变；但由于分支比仅为 4%，这一近似是充分的，并且已通过包含这种反向衰变的更复杂模型得到验证。原则上，也可以在这一解析解中纳入影响初始动量态的因素，例如 1S-2S激发；不过，我们也证明，将初始动量态描述为（完全离域的）动量本征态 $|p\rangle$已经足够。随后，我们可以将动量本征态 $|p + n\hbar k\rangle$ 与原子的内态一并纳入光学布洛赫方程模拟，从而在真实的实验条件下描述该系统。以第 2.1 节中讨论的原子轨迹作为光学布洛赫方程模拟的输入，再通过蒙特卡罗模拟估算动量态耦合导致的观测谱线中心偏移。

通过这种方式，我们分别得到 2S-4P$_{1/2}$和 2S-4P$_{3/2}$ 跃迁的光力频移为 -0.43(40) 千赫兹和 -0.26(25) 千赫兹。$\nu_{1/2}$ 和 $\nu_{3/2}$ 跃迁频率已针对该频移进行了修正。不确定度受限于我们对原子速度分布的了解，而该分布在两条跃迁之间具有关联性。因此，两条跃迁的不确定度完全相关（$r = 1$），从而导致 ν_{2S-4P}的修正为 -0.32(30) 千赫兹。

2.4 模型修正

Fano-Voigt线型源自对量子干涉的微扰描述，因此未考虑诸如从激发态4P态反向衰变至初始2S态$_{1/2}^{F=0}$，以及该初始态布居数耗尽等效应，而这些效应会导致观测到的跃迁饱和。在我们的系统中，4P态的衰变有4%会回到初始2S态$_{1/2}^{F=0}$，且我们将约30%的2S原子激发至4P态。在这些条件下，对于探测到的速度最慢的原子（即与光谱激光器相互作用时间最长的原子），量子干涉导致的谱线不对称性相较于微扰区间可增大两倍以上。然而，我们发现，Fano-Voigt线型仍能很好地描述我们的系统，因为它能够匹配增大的谱线不对称性中的大部分，因此可通过对观测到的共振拟合Fano-Voigt线型来加以考虑。仅剩下一小部分与Fano-Voigt线型的不对称性不匹配的残余不对称性。值得注意的是，与Fano-Voigt线型所消除的不对称性相比，这种残余不对称性对探测几何结构的依赖显著较小，因为它主要源于4P态反向衰变至2S态$_{1/2}^{F=0}$所导致的该态布居数微小变化，而这一变化与探测几何结构无关。因此，我们无需准确描述探测几何结构，也能对这种残余不对称性建模。与这种残余不对称性相关的谱线位移取决于光谱激光器的强度及相互作用时间，量级为1千赫兹。与量子干涉引起的所有效应一样，这些位移在两个扰动共振中的符号相反。由于实验中选择的强度使所探测的两个跃迁的拉比频率近似相同，这些位移

在2S-4P$_{1/2}$ 跃迁和2S-4P$_{3/2}$ 跃迁中的比例为2:1。因此，对于4P精细结构重心 ν_{2S-4P} ，它们大体上相互抵消。

除这些与量子干涉相关的效应外，相关原子能级还存在交流斯塔克位移；光抽运使原子进入2S$_{1/2}^{F=1}$态所引起的非共振激发，也会导致谱线位移。这两种贡献都会使观测到的谱线中心产生微小位移，量级约为0.10千赫兹。多普勒敏感的双光子激发在2S$_{1/2}^{F=1}$态中产生的初始布居数，与光抽运使原子累积在这些态中的布居数相比可以忽略不计。

我们系统的光学布洛赫方程模拟纳入了所有这些效应。对于每个记录的共振，均由光学布洛赫方程模拟生成相应的线型。随后加入实验噪声，其中包括散粒噪声以及对信号有贡献的2S原子数量的缓慢漂移，再用Fano-Voigt线型拟合所得共振；这一过程以蒙特卡罗模拟的方式重复多次。然后将这些拟合确定的谱线中心用作记录共振的模型修正。由此，我们发现，$\nu_{1/2}$ 和$\nu_{3/2}$ 跃迁频率的模型修正分别为1.34(23)千赫兹和-0.50(10)千赫兹。不确定度通过在实验约束范围内改变光学布洛赫方程模拟的输入参数来估算。不确定度的部分贡献彼此不相关，例如光谱激光功率；而另一些贡献彼此相关，例如原子速度分布，它们对两项跃迁测量的影响相关。两项测量的总不确定度呈部分反相关（$r = -0.65$），因此 ν_{2S-4P}的模型修正为0.11(6)千赫兹。

2.5 采样偏差

如第1.3节所述，观测到的线型与用于数据分析的 Fano-Voigt线型之间存在关于谱线中心对称的微小偏差（非对称偏差要小得多，已纳入第2.4节讨论的模型修正中）。再加上共振的实验频率采样关于谱线中心并非完全对称，这可能导致通过拟合共振确定的谱线中心产生偏差。我们使用第2.4节讨论的蒙特卡罗模拟来估算这一偏差，发现对于2S-4P$_{3/2}$ 跃迁，偏差最大可达 2.1千赫兹。

为降低这一偏差，我们通过有选择地为每个共振最多移除两个实验频率点，确保对共振进行公平采样。具体步骤如下：首先，使用所有可用的模拟点拟合模拟共振，采用 Fano-Voigt线型，且不添加实验噪声。然后，使用实验频率点进行拟合，提取出的谱线中心之差即为需要降低的偏差。接着，移除实验频率点，再次拟合模拟共振。对移除一个或两个点的所有组合重复这一过程。最后，我们选择移除一个或两个实验点，使偏差达到最低（若完整采样时偏差最低，则不移除任何点）；平均每次移除 1.94 个频率点。该步骤应用于每个记录的共振。随后，使用这些已

移除的点再次拟合实验数据，使统计不确定度略有增加，约为 4%。

应用这一流程后，利用蒙特卡罗模拟再次得出，2S-4P$_{1/2}$和2S-4P$_{3/2}$跃迁的采样偏差分别为0.34 kHz和0.83 kHz。跃迁频率$\nu_{1/2}$ 和$\nu_{3/2}$ 已针对这一偏差进行了修正，并分别为这些修正赋予0.40 kHz和0.70 kHz的不确定度。该不确定度考虑到，光力频移是通过单独的OBE模拟估算的（见第2.3节），且这一模拟显示出非常相似的对称偏离（因为它也包含与量子干涉OBE模拟相同的饱和效应和多普勒展宽），因此会产生非常相似的采样偏差。为避免重复计入这一偏差，我们只修正量子干涉OBE模拟得出的偏差，同时将光力频移OBE模拟的偏差计入不确定度。两个跃迁的不确定度不相关（$r = 0$），因此 $\nu_{2\mathrm{S}-4\mathrm{P}}$ 包含了0.44(49) kHz的修正。

2.6 二阶多普勒频移

利用相位回溯光束激发 2S-4P 跃迁，并不能抵消二阶多普勒效应。不过，由低温源提供的 2S原子信号加权均方速度 v^2 = 255(30) 米/秒（根据上述蒙特卡罗模拟估算）足够小，因此二阶多普勒频移仅为

$$\Delta\nu_{\mathrm{SOD}} = -\frac{1}{2}\frac{\overline{v^2}}{c^2}\nu_{2\mathrm{S}-4\mathrm{P}} = -0.22(5)\,\mathrm{kHz}. \tag{S6}$$

测得的跃迁频率 $\nu_{1/2}$ 和 $\nu_{3/2}$ 通过减去 $\Delta\nu_{\mathrm{SOD}}$进行二阶多普勒频移修正。两个跃迁的修正完全相关（$r = 1$），因此， $\nu_{2\mathrm{S}-4\mathrm{P}}$ 的修正及不确定度与各个频率的相同。

2.7 直流斯塔克位移

我们特别注意抑制 2S-4P 激发区内的杂散电场，以避免直流斯塔克效应导致相关谱线位移。由不锈钢网制成并接地的法拉第笼，每毫米有两根直径为 30 μ米的金属丝，可屏蔽通道式电子倍增器输入表面（+270伏）产生的静电场，使激发区免受其影响（参见正文中的图 3）。法拉第笼及激发区内的所有表面均喷涂胶体石墨，以抑制斑块电荷积聚，并避免接触电势产生的电场。利用尺寸相近且涂层相同的专用装置进行 1S-2S光谱学测量，得到杂散电场场强的上限为 0.6 伏特/米（*1,2, 54*）。我们使用这一场强上限来估算 2S-4P 跃迁的谱线位移。

直流斯塔克效应会使 4P$_{1/2}^{F=1}$和 4P$_{3/2}^{F=1}$能级发生能量位移（在当前准确度范围内，2S态$_{1/2}^{F=0}$能级的位移可以忽略）。在静电场$\vec{F}$作用下，能量位移为 $\Delta\omega = 2\pi \times a_{j,\ m_F} F^2$ 且与场强的平方成正比

$F = |\vec{F}|$。系数 $a_{j,\ m_F}$取决于静电场 $\vec{F}$相对于原子量子化轴的$\vec{}$取向，该轴由线性激光偏振 E确定。通过在静电场作用下对原子哈密顿量进行对角化，并用二次函数拟合所得能级位移，得到系数 $a_{j,\ m_F}$，如表 S1 所示。

对于杂散电场最不利取向下跃迁频率的直流斯塔克位移，其上限分别为 -0.03千赫兹和 -0.49千赫兹，对应于 2S-4P$_{1/2}$ 和 2S-4P$_{3/2}$ 跃迁。然而，我们假设可能存在的杂散电$\vec{}$ $\vec{}$场 F 的取向与光谱激光器线偏振 E 的取向不相关。由于跃迁频率$\nu_{1/2}$ 和$\nu_{3/2}$ 是根据激光偏振不同取向下获得的数据确定的（见正文中的图 4），因此，通过对杂散电场的不同取向进行平均，这些跃迁的直流斯塔克位移上限可进一步降低。据此，我们估计直流斯塔克位移对$\nu_{1/2}$ 和 $\nu_{3/2}$ 跃迁频率引入的不确定度分别为 0.03 千赫兹和 0.30 千赫兹。这两个跃迁的不确定度彼此不相关（$r = 0$），对于 $\nu_{2\mathrm{S}-4\mathrm{P}}$，合成不确定度为 0.20 千赫兹。

此外，我们注意到，通过拟合观测到的共振而提取的谱线中心位移可能小于能级位移，因为电场不仅会改变相关能级的能量，还会使不同原子能级发生混合。这样一来，4S 和 4D 能级的激发（此时它们具有一定的4P能级混合成分）便成为偶极允许跃迁。当这些跃迁位于所记录的激光频率范围内时，它们往往会抵消4P能级的直流斯塔克位移。不过，我们尚未对这种抵消效应进行全面研究；该效应取决于系统的激发动力学。因此，此处将能级位移作为共振位移的上限。

2.8 塞曼频移

真空室外的三对正交方向亥姆霍兹线圈对地球磁场进行预补偿。此外，2S-4P 激发区由双层高磁导率金属（坡莫合金）屏蔽罩保护，以隔绝剩余磁场。因此，在2S-4P 激发区周围约15 cm^3 的范围内，磁场被抑制到低于1mG。

对于给定的磁通密度 B，线性塞曼效应会使 4P$^{F=1}_{1/2}$(4P$^{F=1}_{3/2}$) 态的磁子能级 $m_F = \pm 1$ 能量移动 $\Delta E/\hbar = g_F \mu_B B m_F/\hbar = 2\pi \times$0。467 千赫兹/毫高斯 ($\Delta E/\hbar = 2\pi \times 2.33$ 千赫兹/毫高斯)，计算时采用相应的 g 因子 g_F和玻尔磁子 μ_B。只有当不同磁子能级的信号振幅不同时，观测到的跃迁频率（即来自不同磁子能级的信号的重心）才会发生移动。这种情况要求磁场方向上存在一定的圆偏振光，也就是说，左旋和右旋偏振分量的强度 $|E_L|^2$ 和 $|E_R|^2$ 不匹配，其差异由斯托克斯参数 $v = ($ $|E_L|^2 - |E_R|^2)/(|E_L|^2 + |E_R|^2)$ 给出。假设磁场与光谱激光束平行，可得观测到的跃迁频率移动上限 $\Delta\omega = \Delta E/\hbar \times v$。

我们根据测得的强度偏振消光比 $P_{\mathrm{er}} = 1/200$确定 v；该测量受保偏光纤限制，结果为 $v = 0.14$。因此，我们估计塞曼频移导致的不确定度对于 $\nu_{1/2}$ 和 $\nu_{3/2}$ 跃迁频率分别低于 0.07 千赫兹和 0.33 千赫兹。对于测得的两个跃迁，该频移彼此不相关 ($r = 0$)，并为 $\nu_{2\mathrm{S}-4\mathrm{P}}$ 指定 0.22 千赫兹的合成不确定度。二次塞曼效应也会影响初始 2S态$^{F=0}_{1/2}$、 $m_F = 0$以及 4P$^{F=1}_{1/2}$、 $m_F = 0$和 4P$^{F=1}_{3/2}$、 $m_F = 0$态，但在我们当前的准确度水平下可以忽略不计。

2.9 压力频移

为了估算压力频移，我们采用二体碰撞的冲击近似（*55*）。该理论需要输入受扰原子与扰动原子之间的相互作用能，其形式为近场偶极-偶极相互作用：

$$\hat{V} = \frac{1}{4\pi\varepsilon_0 R^3}\left(\hat{d}_{1x}\hat{d}_{2x} + \hat{d}_{1y}\hat{d}_{2y} - 2\hat{d}_{1z}\hat{d}_{2z}\right), \tag{S7}$$

ˆ 其中， R是原子之间的距离， d_{ij}与 $j = x,\ y,\ z$是扰动原子（$i = 1$）和受扰原子（$i = 2$）的电偶极矩分量。扰动原子与受扰原子的乘积态 $|n\rangle = |n_1\rangle \otimes |n_2\rangle = |n_1,\ n_2\rangle$ 因范德瓦耳斯相互作用产生的能量位移，可用二阶微扰理论计算：

$$E_{\mathrm{VdW}}(n) = \sum_{m, E_n \neq E_m} \frac{|\langle n|\hat{V}|m\rangle|^2}{E_n - E_m} = \frac{C_6}{R^6}, \tag{S8}$$

其中， $|m\rangle$ 是两个原子的所有可能乘积态， E_m 是态 $|m\rangle$的能量。因此，相互作用能为 $\propto 1/R^6$，相互作用强度用系数 C_6表示。对于共振相互作用， $E_n - E_m = 0$，式 S8 不再成立。此外，在我们的情况下，扰动原子与受扰原子可通过偶极允许跃迁相连接（例如，碰撞的 4P 态和 1S 态原子），因此可能发生相互作用强度为 $|n_1,\ n_2\rangle$、具有 $|n_2,\ n_1\rangle$ 且 $\langle n_1,\ n_2|V|n_2,\ n_1\rangle$ 非零的共振相互作用，这对应于原子之间的激发交换。然而，众所周知，这些相互作用只会导致线展宽，不会造成谱线位移（*56*）。因此，我们可以在取最小可能 $E_n - E_m$ 的情况下估算最大贡献，并使用适用于任意态碰撞氢原子的偶极矩阵元解析表达式。此外，我们假设所有扰动粒子均为 1S原子，因为 2S原子的密度仅为 1S原子密度的 $\sim 10^{-3}$，而与背景分子碰撞产生的贡献可以忽略，因为不存在近简并。对处于 2S初态的原子的微扰在当前准确度下只会造成可忽略的谱线位移，因此只需考虑 4P$_J$ 原子与 1S原子碰撞所导致的激发态原子微扰。我们用 $4P_j$ 态的超精细分裂给出的最小内部能量差之和近似式 S8 中的总和（$j = 1/2$ 为 7.39623(7) 兆赫兹， $j = 3/2$为 2.95647(3) 兆赫兹，见正文中的图 2A ），并得到

$$C_6(4\mathrm{P}_{1/2} - 1\mathrm{S}) = 1.9 \times 10^5 hcR_\infty a_0^6, \quad C_6(4\mathrm{P}_{3/2} - 1\mathrm{S}) = 1.9 \times 10^6 hcR_\infty a_0^6, \tag{S9}$$

其中玻尔半径为 a_{0}。在冲击近似下， C_6 范德瓦耳斯相互作用会导致频移（*55*）

$$\Delta\omega \approx 2.9 \left(\frac{C_6}{\hbar}\right)^{2/5} v^{3/5} N, \tag{S10}$$

其中， v 为碰撞原子的速度， N 为微扰原子的密度。根据实验数据，我们估算光束中1S原子的浓度为 N_{beam} ≈2.2×10^{15} 原子/m^3 ，温度为5 K；背景原子的浓度不超过 $N_{\mathrm{bkg}} \approx 2.4 \times 10^{15}$ 原子/m^3 ，温度为300 K。以原子的平均速度估算碰撞速度后，我们得出两个测量跃迁的压力频移贡献分别为 $\Delta\omega$(4$\mathrm{P}_{1/2}$ − 1S，光束-光束) $\approx 2\pi \times 3$ 赫兹，$\Delta\omega$(4P1/2 ¯1S，光束-背景) $\approx 2\pi\times 9$ 赫兹， $\Delta\omega$(4$\mathrm{P}_{3/2}$−1S，光束-光束) $\approx 2\pi\times 8$ 赫兹，以及 $\Delta\omega$(4P3/2 ¯1S，光束-背景) $\approx 2\pi\times 23$ 赫兹。因此，估算2S-4P1/2 跃迁的压力频移小于0.01千赫兹，2S-4P3/2 跃迁的压力频移小于0.03千赫兹。假设两个跃迁的不确定度完全相关（$r = 1$），则 $\nu_{\mathrm{2S-4P}}$的不确定度为0.02千赫兹。

2.10 激光光谱与频率校准

测量中使用的两套激光系统设计相似：一套是用于486纳米处2S-4P激发的光谱激光器，另一套是用于243纳米处1S-2S激发的制备激光器。两套激光系统均由一台工作在972纳米的外腔二极管激光器作为主振荡器（*57*）。激光器的频率锁定到高精细度法布里-珀罗腔（*58*），使激光线宽降至数赫兹。不过，呈δ形的激光线叠加在一个微弱但宽阔的噪声底座上（*58*）。经锥形放大器进行功率放大后，光频率倍增（连续倍频两次），得到用于光谱（激发）激光系统的486纳米（243纳米）光。两套系统在486纳米处产生的拍频信号被用于日常监测激光器的光谱纯度。

由于使用了长腔外腔二极管激光器，噪声底座中可能折叠进观测到的2S-4P线型的不对称性很小（见（*57,58*））。我们通过人为去除测得激光频谱一侧的噪声底座，将其数值折叠进2S-4P线型并拟合结果，得到0.10千赫兹的上限。两次跃迁测量使用了同一台激光器，因此该上限在两次测量中完全相关（$r = 1$）。

两套激光系统均与一台铒掺杂光纤频率梳进行相位相干连接，该频率梳以一台有源氢脉泽为参考。该脉泽为实验提供频率基准，并通过全球定位系统（GPS）进行校准（驯服），由此得到的分数频率不确定度为 10^{13} 分之一。脉泽校准不确定度对应于2S-4P跃迁频率的 0.06 千赫兹不确定度，且对测得的两个跃迁完全相关（$r = 1$）。

通过测量激光系统与频率梳在 972 纳米处的拍频信号，确定激光系统的绝对频率。给定时间 t处 486纳米的 2S-4P光谱光频率 $\nu_{\mathrm{Laser}}^{486}$ 可根据拍频数据推导得出：

$$\nu_{\mathrm{Laser}}^{486} = 2 \times (N \times \nu_{\mathrm{rep}} + 2\nu_{\mathrm{CEO}} - \nu_{\mathrm{LO}}) + 2 \times (\nu_{\mathrm{beat}}(t) - \nu_{\mathrm{AOM}}(t)), \tag{S11}$$

其中， $\nu_{\mathrm{rep}} = 250$MHz 表示频率梳的重复频率， $\nu_{\mathrm{CEO}} = 30$ MHz 表示载波包络偏移频率， ν_{LO} 表示用于将拍频信号的频率下变频至 $\nu_{\mathrm{beat}}(t) \approx 20$MHz 的额外本地振荡器的频率，而 $\nu_{\mathrm{AOM}}(t) \approx 350 \pm 30$MHz 表示用于扫描原子共振的声光调制器（AOM）的频率。测量 2S-4P$_{1/2}$ 和 2S-4P$_{3/2}$ 跃迁时，频率梳模式序号分别为 $N = 1\,233\,042$ 和 $N = 1\,233\,044$。

通过对频率梳拍频信号数据 $\nu_{\mathrm{beat}}(t)$进行线性拟合，并使用式 S11，确定激光频率；每条记录的共振对应的激光频率测定不确定度小于 0.10kHz。因此，所确定跃迁频率的不确定度可以忽略不计。

2.11 反冲频移

能量和动量守恒要求，吸收的光子能量必须比原子共振频率 ν 高出原子吸收光子时的反冲频移。相应的反冲频移可写为

$$\Delta\nu_{\mathrm{recoil}} = \frac{h}{2M_{\mathrm{H}}} \left(\frac{\nu}{c}\right)^2 \approx 837.23\,\mathrm{kHz}, \tag{S12}$$

其中氢原子的质量为 M_{H}。 $\Delta\nu_{\mathrm{recoil}}$ 的不确定度远小于此处所需的精度。 h/M_{H} 可利用普朗克常数 h 与电子质量 m_e之比 h/m_e 的实验值、氢原子的结合能以及质子和电子以原子质量单位表示的质量计算得出（*3*）。正文中给出的跃迁频率 $\nu_{1/2}$、 $\nu_{3/2}$ 和 $\nu_{2\mathrm{S}-4\mathrm{P}}$ 已进行了反冲频移修正。

2.12 超精细修正

为得到从 2S态超精细质心到 4P精细结构重心的跃迁频率（见图S1），测得的跃迁频率 $\nu_{1/2}$ 和 $\nu_{3/2}$必须根据 2S态$^{F=0}_{1/2}$、4P态$^{F=1}_{1/2}$和 4P态$^{F=1}_{3/2}$的超精细频移进行修正（见（*38*）中的表 II）

$$\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}(2\mathrm{S}_{1/2}^{F=0}) = -133\,167.6257(51)\ \mathrm{kHz}, \tag{S13}$$

$$\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}(4\mathrm{P}_{1/2}^{F=1}) = +1848.8(1)\ \mathrm{kHz}, \tag{S14}$$

$$\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}(4\mathrm{P}_{3/2}^{F=1}) = -1847.7(1)\ \mathrm{kHz}. \tag{S15}$$

这些频移通过实验测得（2S态的数据见（*59*）），并通过外推至更高的 n 获得；其中包括4P态中一个较小的非对角项 $\Delta\nu^{\text{o.d.}}{}_{\text{超精细结构}} = \pm 0.313$ 千赫兹。从 2S态超精细质心到 4P精细结构重心的跃迁频率 $\nu_{2\text{S}-4\text{P}}$ （正文中的公式 9）由各超精细质心的加权平均得到

$$\begin{aligned}\nu_{2\text{S}-4\text{P}} &= \frac{1}{3}\left(\nu_{1/2} - \Delta\nu_{\text{HFS}}(4\text{P}_{1/2}^{F=1})\right) + \frac{2}{3}\left(\nu_{3/2} - \Delta\nu_{\text{HFS}}(4\text{P}_{3/2}^{F=1})\right) + \Delta\nu_{\text{HFS}}(2\text{S}_{1/2}^{F=0}) \\ &= \frac{1}{3}\nu_{1/2} + \frac{2}{3}\nu_{3/2} - 132\,552.092(75)\ \text{kHz}. \end{aligned} \tag{S16}$$

4P$\Delta\nu_{\text{FS}}^{\text{theo}}$(4P) 精细结构分裂可直接由文献（*38*）表 IV 中给出的 $4\text{P}_{1/2}^{F=1}$ 态和 $4\text{P}_{3/2}^{F=1}$ 态的总束缚能之差得到。

$$\Delta\nu_{\text{FS}}^{\text{theo}}(4\text{P}) = 1\,367\,433.3\,(3)\,\text{kHz}. \tag{S17}$$

补充图

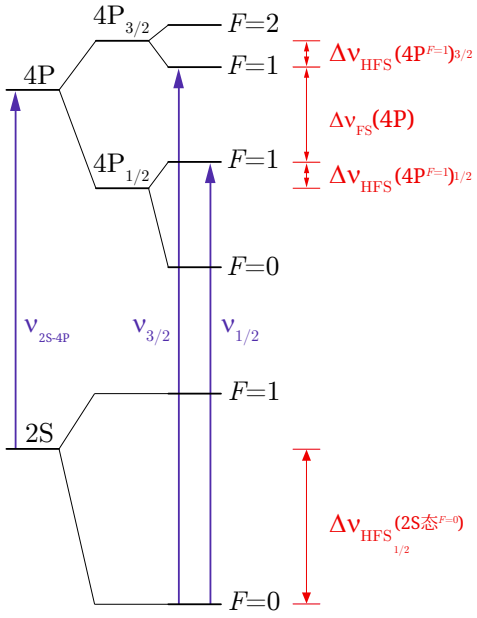


图 S1：**氢原子 2S-4P 能级图（未按比例绘制）**。通过实验确定 $2S_{1/2}^{F=0}$-$4P_{1/2}^{F=1}$($\nu_{1/2}$) 和 $2S_{1/2}^{F=0}$-$4P_{3/2}^{F=1}$($\nu_{3/2}$) 跃迁的跃迁频率。通过结合 $\nu_{1/2}$和$\nu_{3/2}$，并校正超精细位移 $\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}(2S_{1/2}^{F=0})$、$\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}(4P_{1/2}^{F=1})$ 和 $\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}(4P_{3/2}^{F=1})$，确定从 2S 超精细结构重心到 4P 精细结构质心的跃迁频率 ν_{2S-4P}。精细结构分裂 $\Delta\nu_{\mathrm{FS}}(4P)$ 对应于 $4P_{1/2}^{F=1}$ 和 $4P_{3/2}^{F=1}$ 态之间的能量差。

补充表

表 S1：相关原子能级的直流斯塔克效应二次系数列表，以及静电场相对于激光偏振的不同取向$\vec{F}$ $\vec{E}$。

能级	取向 $\vec{F}$	$a_{j,\ m_F}$ (赫兹/(伏特/米)^2)
$4P_{1/2}^{F=1}$	$\vec{F} \parallel \vec{E}$	-97
$4P_{1/2}^{F=1}$	$\vec{F} \perp \vec{E}$	-83
$4P_{3/2}^{F=1}$	$\vec{F} \parallel \vec{E}$	186
$4P_{3/2}^{F=1}$	$\vec{F} \perp \vec{E}$	-1354

表 S2：测定 $2S态_{1/2}^{F=0}$-$4P_{1/2}^{F=1}$($\nu_{1/2}$) 和 $2S态_{1/2}^{F=0}$ -$4P_{3/2}^{F=1}$ ($\nu_{3/2}$) 跃迁频率所用修正 $\Delta\nu$和不确定度 σ的列表，以及这两种跃迁的不确定度相关系数 r 。

贡献	$2S态\ {}_{1/2}^{F=0}$-$4P\ {}_{1/2}^{F=1}$($\nu_{1/2}$)		$2S态\ {}_{1/2}^{F=0}$-$4P\ {}_{3/2}^{F=1}$($\nu_{3/2}$)		相关性系数
	$\Delta\nu$ (千赫兹)	σ (千赫兹)	$\Delta\nu$ (千赫兹)	σ (千赫兹)	r
统计	0.00	0.48	0.00	0.56	0
一阶多普勒频移	0.00	2.92	0.00	2.84	0
量子干涉频移	0.00	0.33	0.00	0.26	0
光力频移	-0.43	0.40	-0.26	0.25	1
模型修正	1.34	0.23	-0.50	0.10	-0.65
采样偏差	-0.34	0.40	0.83	0.70	0
二阶多普勒频移	0.22	0.05	0.22	0.05	1
直流斯塔克位移	0.00	0.03	0.00	0.30	0
塞曼频移	0.00	0.07	0.00	0.33	0
压力频移	0.00	0.01	0.00	0.03	1
激光光谱	0.00	0.10	0.00	0.10	1
频率标准（氢脉泽）	0.00	0.06	0.00	0.06	1
反冲频移	-837.23	0.00	-837.23	0.00	n/a
总计	-836.4	3.0	-836.9	3.0	0.011

表 S3：测定 4P 精细结构分裂 $\Delta\nu$ 和不确定度 σ 所用的修正清单 $\Delta\nu^{\mathrm{exp}}{}_{\mathrm{FS}}$ (4P)。

贡献	$\Delta\nu$ (千赫兹)	σ (千赫兹)
统计	0.00	0.74
一阶多普勒频移	0.00	4.07
量子干涉频移	0.00	0.42
光力频移	0.17	0.15
模型修正	-1.84	0.30
采样偏差	1.17	0.81
二阶多普勒频移	0.00	0.00
直流斯塔克位移	0.00	0.30
塞曼频移	0.00	0.34
压力频移	0.00	0.02
激光光谱	0.00	0.10
频率标准（氢脉泽）	0.00	0.06
反冲频移	0.00	0.00
总计	-0.5	4.3

参考文献和注释

1. C. G. Parthey, A. Matveev, J. Alnis, B. Bernhardt, A. Beyer, R. Holzwarth, A. Maistrou, R. Pohl, K. Predehl, T. Udem, T. Wilken, N. Kolachevsky, M. Abgrall, D. Rovera, C. Salomon, P. Laurent, T. W. Hänsch, 《氢原子1S-2S跃迁频率的改进测量》。《物理评论快报》107，203001（2011）。doi:10.1103/PhysRevLett.107.203001 Medline 2. A. Matveev, C. G. Parthey, K. Predehl, J. Alnis, A. Beyer, R. Holzwarth, T. Udem, T. Wilken, N. Kolachevsky, M. Abgrall, D. Rovera, C. Salomon, P. Laurent, G. Grosche, O. Terra, T. Legero, H. Schnatz, S. Weyers, B. Altschul, T. W. Hänsch, 《通过920公里光纤链路精密测量氢原子的1S-2S频率》。《物理评论快报》110，230801（2013）。doi:10.1103/PhysRevLett.110.230801 Medline 3. P. J. Mohr, D. B. Newell, B. N. Taylor, CODATA推荐的基本物理常数值：2014。《现代物理评论》88，035009（2016）。doi:10.1103/RevModPhys.88.035009 4. R. Pohl, A. Antognini, F. Nez, F. D. Amaro, F. Biraben, J. M. R. Cardoso, D. S. Covita, A. Dax, S. Dhawan, L. M. P. Fernandes, A. Giesen, T. Graf, T. W. Hänsch, P. Indelicato, L. Julien, C.-Y. Kao, P. Knowles, E.-O. Le Bigot, Y.-W. Liu, J. A. M. Lopes, L. Ludhova, C. M. B. Monteiro, F. Mulhauser, T. Nebel, P. Rabinowitz, J. M. F. Dos Santos, L. A. Schaller, K. Schuhmann, C. Schwob, D. Taqqu, J. F. C. A. Veloso, F. Kottmann, 《质子的大小》。《自然》466，213–216（2010）。doi:10.1038/nature09250 Medline 5. A. Antognini, F. Nez, K. Schuhmann, F. D. Amaro, F. Biraben, J. M. R. Cardoso, D. S. Covita, A. Dax, S. Dhawan, M. Diepold, L. M. P. Fernandes, A. Giesen, A. L. Gouvea, T. Graf, T. W. Hänsch, P. Indelicato, L. Julien, C.-Y. Kao, P. Knowles, F. Kottmann, E.-O. Le Bigot, Y.-W. Liu, J. A. M. Lopes, L. Ludhova, C. M. B. Monteiro, F. Mulhauser, T. Nebel, P. Rabinowitz, J. M. F. dos Santos, L. A. Schaller, C. Schwob, D. Taqqu, J. F. C. A. Veloso, J. Vogelsang, R. Pohl, 《通过测量μ子氢的2S-2P跃迁频率研究质子结构》。《科学》339，417–420（2013）。doi:10.1126/science.1230016 Medline 6. R. Pohl, R. Gilman, G. A. Miller, K. Pachucki, μ子氢与质子半径之谜。《核与粒子科学年度评论》63，175–204（2013）。doi:10.1146/annurev-nucl-102212-170627 7. J. C. Bernauer, R. Pohl, 质子半径问题。《科学美国人》310，32–39（2014）。doi:10.1038/scientificamerican0214-32 Medline 8. C. E. Carlson, 质子半径之谜。《粒子与核物理进展》82，59–77（2015）。doi:10.1016/j.ppnp.2015.01.002 9. J. C. Bernauer, P. Achenbach, C. Ayerbe Gayoso, R. Böhm, D. Bosnar, L. Debenjak, M. O. Distler, L. Doria, A. Esser, H. Fonvieille, J. M. Friedrich, J. Friedrich, M. Gómez Rodríguez de la Paz, M. Makek, H. Merkel, D. G. Middleton, U. Müller, L. Nungesser, J. Pochodzalla, M. Potokar, S. Sánchez Majos, B. S. Schlimme, S. Širca, T. Walcher, M. Weinriefer, A1合作组, 精密测定电和磁

质子的形状因子。《物理评论快报》 **105**，242001（2010年）。
doi:10.1103/PhysRevLett.105.242001 Medline

10. X. Zhan, K. Allada, D. S. Armstrong, J. Arrington, W. Bertozzi, W. Boeglin, J.-P. Chen, K. Chirapatpimol, S. Choi, E. Chudakov, E. Cisbani, P. Decowski, C. Dutta, S. Frullani, E. Fuchey, F. Garibaldi, S. Gilad, R. Gilman, J. Glister, K. Hafidi, B. Hahn, J.-O. Hansen, D. W. Higinbotham, T. Holmstrom, R. J. Holt, J. Huang, G. M. Huber, F. Itard, C. W. de Jager, X. Jiang, M. Johnson, J. Katich, R. de Leo, J. J. LeRose, R. Lindgren, E. Long, D. J. Margaziotis, S. May-Tal Beck, D. Meekins, R. Michaels, B. Moffit, B. E. Norum, M. Olson, E. Piasetzky, I. Pomerantz, D. Protopopescu, X. Qian, Y. Qiang, A. Rakhman, R. D. Ransome, P. E. Reimer, J. Reinhold, S. Riordan, G. Ron, A. Saha, A. J. Sarty, B. Sawatzky, E. C. Schulte, M. Shabestari, A. Shahinyan, R. Shneor, S. Širca, P. Solvignon, N. F. Sparveris, S. Strauch, R. Subedi, V. Sulkosky, I. Vilardi, Y. Wang, B. Wojtsekhowski, Z. Ye, Y. Zhang, 《低Q^2下质子弹性形状因子比$\mu_p G_E/G_M$ 的高精度测量》。《物理快报B辑》705，59–64（2011）。doi:10.1016/j.physletb.2011.10.002 11. J. Arrington, I. Sick, 《由电子–质子散射评估质子电荷半径》。《J. Phys. Chem. Ref. Data》44，031204（2015）。doi:10.1063/1.4921430 12. 氢世界数据对应于文献（3）表 XXIX中的第8次调整。 13. R. Pohl, F. Nez, L. M. P. Fernandes, F. D. Amaro, F. Biraben, J. M. R. Cardoso, D. S. Covita, A. Dax, S. Dhawan, M. Diepold, A. Giesen, A. L. Gouvea, T. Graf, T. W. Hänsch, P. Indelicato, L. Julien, P. Knowles, F. Kottmann, E.-O. Le Bigot, Y.-W. Liu, J. A. M. Lopes, L. Ludhova, C. M. B. Monteiro, F. Mulhauser, T. Nebel, P. Rabinowitz, J. M. F. dos Santos, L. A. Schaller, K. Schuhmann, C. Schwob, D. Taqqu, J. F. C. A. Veloso, A. Antognini, CREMA合作组, 《μ子氘的激光光谱学》。《科学》353, 669 673 2016 101126 2468 – ( )。doi: . /science.aaf Medline 14. B. de Beauvoir, C. Schwob, O. Acef, L. Jozefowski, L. Hilico, F. Nez, L. Julien, A. Clairon, F. Biraben, 《氢原子和氘原子的计量学：里德伯常数和兰姆位移的测定》。《欧洲物理学杂志 D》12，61–93（2000）。doi:10.1007/s100530070043 15. B. de Beauvoir, C. Schwob, O. Acef, L. Jozefowski, L. Hilico, F. Nez, L. Julien, A. Clairon, F. Biraben, 勘误：《欧洲物理学杂志 D》12，61–93（2000）。[《欧洲物理学杂志 D》12，61–93（2000）] 《欧洲物理学杂志 D》14，398（2001）。doi:10.1007/s100530170209 16. D. J. Berkeland, E. A. Hinds, M. G. Boshier, 《原子氢兰姆位移的精密光学测量》。《物理评论快报》75，2470–2473（1995）。doi:10.1103/PhysRevLett.75.2470 Medline 17. 材料与方法见补充材料。 18. M. Horbatsch, E. A. Hessels, 《远处邻近共振引起的位移》。《物理评论A》82，052519 2010 10 1103 82 052519 ( )。doi: . /PhysRevA. . 19. D. J. Berkeland，学位论文，耶鲁大学（1995）。 20. A. Marsman, M. Horbatsch, E. A. Hessels, 《量子力学干涉对氦原子n = 2三重态P精细结构精密测量的影响》。《J. Phys. Chem. Ref. Data》44，031207（2015）。doi:10.1063/1.4922796

21. G.-P. Feng, X. Zheng, Y. R. Sun, S.-M. Hu，氦^{4}He的2^3P_1–2^3P_2精细结构分裂的激光光谱测量。《物理评论A》91, 030502 (2015). doi:10.1103/PhysRevA.91.030502 22. M. Horbatsch, E. A. Hessels，四能级原子中远处邻近共振引起的频移。《物理评论A》84, 032508 (2011). doi:10.1103/PhysRevA.84.032508 23. A. Marsman, M. Horbatsch, E. A. Hessels，氦2 3P精细结构微波测量中邻近共振引起的频移。《物理评论A》86, 012510 (2012). doi:10.1103/PhysRevA.86.012510 24. A. Marsman, M. Horbatsch, E. A. Hessels，氦的2 $3S_1$-至2 $3P_J$跃迁激光测量中远处邻近共振引起的频移。《物理评论A》86, 040501 (2012). doi:10.1103/PhysRevA.86.040501 25. A. Marsman, E. A. Hessels, M. Horbatsch，氦2 3S至2 3P能级间隔的饱和荧光光谱学中，远处邻近共振导致的量子力学干涉引起的频移。《物理评论A》89, 043403 (2014). doi:10.1103/PhysRevA.89.043403 26. D. C. Yost, A. Matveev, E. Peters, A. Beyer, T. W. Hänsch, T. Udem，双光子频率梳光谱学中的量子干涉。《物理评论A》90, 012512 (2014). doi:10.1103/PhysRevA.90.012512 27. R. Loudon，《光的量子理论》（牛津大学出版社，1983年）。28. U. D. Jentschura, P. J. Mohr，单光子和双光子跃迁中的非共振效应。《加拿大物理学杂志》80, 633–644 (2002). doi:10.1139/p02-019 29. R. C. Brown, S. Wu, J. V. Porto, C. J. Sansonetti, C. E. Simien, S. M. Brewer, J. N. Tan, J. D. Gillaspy，不可分辨原子谱线中的量子干涉和光偏振效应：应用于对^{6,7}Li D_2谱线的精密测量。《物理评论A》87, 032504 (2013). doi:10.1103/PhysRevA.87.032504 30. U. Fano，组态相互作用对强度和相移的影响。《物理评论》124, 1866 1878 1961 10 1103 1241866 – ( ). doi: . /PhysRev. . 31. S. Schippers，Fano 线型与高斯函数卷积的解析表达式。《原子与分子物理学国际评论》2, 151–156 (2011)。32. S. Schippers，Fano 线型与高斯函数卷积的解析表达式。arXiv:1203.4281v2 [physics.atom-ph]（2016年5月13日）。33. A. Beyer, C. G. Parthey, N. Kolachevsky, J. Alnis, K. Khabarova, R. Pohl, E. Peters, D. C. Yost, A. Matveev, K. Predehl, S. Droste, T. Wilken, R. Holzwarth, T. W. Hänsch, M. Abgrall, D. Rovera, C. Salomon, P. Laurent, T. Udem，原子氢的精密光谱学。《物理学会议系列》467, 012003 (2013). doi:10.1088/1742-6596/467/1/012003 34. A. Beyer, L. Maisenbacher, K. Khabarova, A. Matveev, R. Pohl, T. Udem, T. W. Hänsch, N. Kolachevsky，为重新测定里德伯常数和质子电荷半径而对原子氢中2S–nP跃迁进行的精密光谱学。《物理学报告》T165, 014030 2015 101088 0031 8949 2015 165 014030 ( ). doi: . / - / /T /

35. A. Beyer, J. Alnis, K. Khabarova, A. Matveev, C. G. Parthey, D. C. Yost, R. Pohl, T. Udem, T. W. Hänsch, N. Kolachevsky, 在由光激发2S原子组成的低温原子束中对原子氢的2S-4P跃迁进行精密光谱学测量。《Ann. Phys.》525, 671–679 (2013). doi:10.1002/andp.201300075 36. A. Beyer, L. Maisenbacher, A. Matveev, R. Pohl, K. Khabarova, Y. Chang, A. Grinin, T. Lamour, T. Shi, D. C. Yost, T. Udem, T. W. Hänsch, N. Kolachevsky, 提供用于精密光谱学的相位回溯反平行激光束的主动式光纤回射器。《Opt. Express》24, 17470–17485 (2016). doi:10.1364/OE.24.017470 Medline 37. C. J. Sansonetti, C. E. Simien, J. D. Gillaspy, J. N. Tan, S. M. Brewer, R. C. Brown, S. Wu, J. V. Porto, 基于频率梳的测量中D谱线的绝对跃迁频率与量子干涉。《物理评论快报》107, 023001 (2011). doi:10.1103/PhysRevLett.107.023001 Medline 38. M. Horbatsch, E. A. Hessels, 原子氢束缚态能量表。《物理评论A》93, 022513 (2016). doi:10.1103/PhysRevA.93.022513 39. R. Pohl, F. Nez, T. Udem, A. Antognini, A. Beyer, H. Fleurbaey, A. Grinin, T. W. Hänsch, L. Julien, F. Kott mann, J. J. Krauth, L. Maisenbacher, A. Matveev, F. Biraben, 根据原子氘光谱数据确定氘核电荷半径和里德伯常数。《计量学》54, L1–L10 (2017). doi:10.1088/1681-7575/aa4e59 40. A. C. Vutha N. Bezginov, I. Ferchichi, M. C. George, V. Isaac, C. H. Storry, A. S. Weatherbee, M. Weel, E. A. Hessels, 《Bull. Am. Phys. Soc.》57, D1.138 (2012) 41. S. Galtier, H. Fleurbaey, S. Thomas, L. J ulien, F. Biraben, F. Nez, 氢中1S–3S跃迁光谱研究进展。《J. Phys. Chem. Ref. Data》44, 031201 (2015). doi:10.1063/1.4922255 42. D. C. Yost, A. Matveev, A. Grinin, E. Peters, L. Maisenbacher, A. Beyer, R. Pohl, N. Kolachevsky, K. Khabarova, T. W. Hänsch, T. Udem, 采用啁啾激光脉冲进行氢1S−3S跃迁光谱学测量。《物理评论A》93, 042509 (2016). doi:10.1103/PhysRevA.93.042509 43. M. Puchalski, J. Komasa, P. Czachorowski, K. Pachucki, H_2基态的完整α^6 m修正。《物理评论快报》117, 263002 (2016). doi:10.1103/PhysRevLett.117.263002 Medline 44. J. Liu, E. J. Salumbides, U. Hollenstein, J. C. J. Koelemeij, K. S. E. Eikema, W. Ubachs, F. Merkt, 测定氢分子的电离能和解离能。《J. Chem. Phys.》130, 174306 (2009). doi:10.1063/1.3120443 Medline 45. D. Sprecher, J. Liu, C. Jungen, W. Ubachs, F. Merkt, 通讯：HD的电离能和解离能。《J. Chem. Phys.》133, 111102 (2010). doi:10.1063/1.3483462 Medline 46. J.-P. Karr, L. Hilico, J. C. J. Koelemeij, V. I. Korobov, 用于改进基本常数测定的氢分子离子。《物理评论A》94, 050501 (2016). doi:10.1103/PhysRevA.94.050501

47. R. K. Altmann, S. Galtier, L. S. Dreissen, K. S. E. Eikema，深紫外波长下的高精度拉姆齐梳状光谱学。《物理评论快报》 **117**，173201（2016年）。doi:10.1103/PhysRevLett.117.173201 Medline48. U. D. Jentschura, P. J. Mohr, J. N. Tan，里德伯单电子离子的基本常数与理论检验

rg

态。《物理学杂志*B*》 **43**，074002（2010年）。
doi:10.1088/0953-4075/43/7/07400249. M. Abramowitz, I. A. Stegun，编，《数学函数手册：附公式、图表和数学表格》（Courier Corporation，1964年），第55卷。50. C. Salomon, J. Dalibard, A. Aspect, H. Metcalf, C. Cohen-Tannoudji，原子导引于

a

激光驻波。《物理评论快报》 **59**，1659–1662（1987）。doi:10.1103/PhysRevLett.59.1659 Medline51. F. Minardi, M. Artoni, P. Cancio, M. Inguscio, G. Giusfredi, I. Carusotto，频移 i

n

由光的力学效应引起的饱和光谱学。《物理评论A》60，4164–4167（1999）。
doi:10.1103/PhysRevA.60.4164 52. C. Cohen-Tannoudji，载于《激光光谱学前沿》，莱乌什会议第XXVII届，R. Balian、S. Haroche和S. Liberman编（北荷兰出版公司，阿姆斯特丹，1977年）。53. J. Dalibard、Y. Castin、K. Mølmer，量子光学中耗散过程的波函数方法。《物理评论快报》68，580–583（1992）。
doi:10.1103/PhysRevLett.68.580 Medline 54. C. G. Parthey，学位论文，慕尼黑路德维希-马克西米利安大学（2011年）。55. I. I. Sobel'man，《原子光谱理论导论》，G. K. Woodgate、D. Ter Haar编（培格曼出版社，1972年），第36节。56. A. W. Ali、H. R. Griem，原子间碰撞导致谱线共振展宽的理论。《物理评论》140，A1044–A1049（1965）。doi:10.1103/PhysRev.140.A1044 57. N. Kolachevsky、J. Alnis、C. G. Parthey、A. Matveev、R. Landig、T. W. Hänsch，用于原子氢1 36, 4299 2 4301 2011 10 1364 36004299 S-S光谱的低相位噪声二极管激光振荡器。《光学快报》–（）。doi: . /OL. . Medline 58. J. Alnis、A. Matveev、N. Kolachevsky、T. Udem、T. W. Hänsch，通过稳频至振动和热补偿的超低膨胀玻璃法布里-珀罗腔，实现亚赫兹线宽二极管激光器。《物理评论A》77，053809（2008）。
doi:10.1103/PhysRevA.77.053809 59. N. Kolachevsky、A. Matveev、J. Alnis、C. G. Parthey、S. G. Karshenboim、T. W. Hänsch，原子氢2 102, 213002 2009 101103 102 213002 S超精细间隔的测量。《物理评论快报》（）。doi: . / PhysRevLett. . Medline

附录 B

补充图表

B.1 2S-4P跃迁性质

表 B.1：2S-4P跃迁的原子性质。详情请参阅表 2.1，即对应的 2S-6P跃迁表。

J （激发能级）	1/2 ($\|e_1\rangle$)	3/2 ($\|e_2\rangle$)
跃迁频率 $\nu_{A,0}$ （千赫兹）	616 520 152 558.5	616 521 519 991。8
跃迁波数 K_L （1/米）	12 921 307	12 921 336
偶极矩 μ ($e\,a_0$)	$-\frac{m_e+m_p}{m_p}\frac{512}{2187}\sqrt{\frac{10}{3}}$	$\frac{m_e+m_p}{m_p}\frac{512}{2187}\sqrt{\frac{2}{3}}\frac{10}{}$
偶极矩 μ (10^{-30} 摄氏度 米)	-3.626	5.128
拉比频率 立体角 $_0$ (千弧度/秒 (瓦/米²)$^{-1/2}$)	$2\pi \times 150.2$	$2\pi \times 212.4$
自然线宽 Γ (兆赫兹)	12.93	
衰变率 A (Mdcy/s)		
$\gamma_{e\text{-}2S}$: $\|e_{1/2}\rangle \to$ 2S 流形	$2\pi \times 1.539$	
γ_{ei}: $\|e_{1/2}\rangle \to \|i\rangle$	$2\pi \times 0.5129$	$2\pi \times 1.026$
$\Gamma_{e\text{-}1S}$: $\|e_{1/2}\rangle \to$ 1S 流形	$2\pi \times 11.40$	
Γ_{det}：探测信号（莱曼-γ）[a]	$2\pi \times 10.85$	
非共振交流斯塔克位移系数[b] $\beta_{ac,0}$ （赫兹/（瓦/米²））	3.184×10^{-4}	3.212×10^{-4}
光电离系数[c] β_{ioni} （赫兹/（瓦/米²））	1.053×10^{-4}	1.224×10^{-4}
氢原子质量 m_H (kg)	$1.673\,533 \times 10^{-27}$	
反冲频移 $\Delta\nu_{rec}$ （赫兹）	837 230	837 234
反冲速度 v_{rec} (m/s)	0.814 232	0.814 234

[a]在实验中，只检测莱曼衰变，其中莱曼-γ 光子占信号的 ∼99%（见表 4.1 和 B.2）。[b]该系数由微扰计算得出（见附录C.1），且未包含近共振贡献。[c]见附录 C.2。只有激发能级能够被频率为 $\nu_{A,0}$ 的光电离。

表 B.2：对于最初处于 $4P_{1/2}^{F=1}$, $m_F = 0$ 能级的原子，莱曼（Ly）和巴耳末（Ba）衰变路径的概率 p 和数量 N，即最终衰变分别从 n'P能级跃迁至 nS能级、对应于 $n = 1$ 和 $n = 2$的衰变级联。衰变路径按照最终衰变的球分量 $q = -\Delta m_F = 0, \pm 1$ 进行分组，分别对应于 $\pi, \sigma^{\pm}$ 衰变。p 是所考虑衰变路径的强度与所有通向 1S态和 2S态的偶极允许衰变路径总强度之比。 N 包括通向n'P能级的可能路径数量，最终衰变即从该能级开始。不存在通向 3P能级的衰变路径，因此也不存在 Ly-β或 Ba-α 衰变。

	n	n'	能量	π ($q = 0$)		$\sigma^{\pm}$ ($q = \pm 1$)		总和 ($\sigma^- + \pi + \sigma^+$)	
			(eV)	p (%)	N	p (%)	N	p (%)	N
Ly-α	1	2	10.20	1.268	54	1.466	53	4.199	160
Ly-γ	1	4	12.75	27.968	1	27.968	1	83.904	3
Ly	1			29.236	55	29.434	54	88.103	163
Ba-β	2	4	2.55	3.966	1	3.966	1	11.897	3
Ba	2			3.966	1	3.966	1	11.897	3
Sum				33.201	56	33.399	55	100.000	166

表 B.3：与表 B.2 相同，但适用于初始处于 $4P_{3/2}^{F=1}$, $m_F = 0$ 能级的原子。

	n	n'	能量	π ($q = 0$)		$\sigma^{\pm}$ ($q = \pm 1$)		总和 ($\sigma^- + \pi + \sigma^+$)	
			(eV)	p (%)	N	p (%)	N	p (%)	N
Ly-α	1	2	10.20	1.375	67	1.412	65	4.199	197
Ly-γ	1	4	12.75	55.936	1	13.984	1	83.904	3
Ly	1			57.311	68	15.396	66	88.103	200
Ba-β	2	4	2.55	7.931	1	1.983	1	11.897	3
Ba	2			7.931	1	1.983	1	11.897	3
Sum				65.242	69	17.379	67	100.000	203

表 B.4：莱曼（Ly）和巴耳末（Ba）衰变路径的概率 p 和数量 N；即，对于最初处于 $4\mathrm{P}_{1/2}^{F=1}$，$m_F = 0$ 能级的原子，$n = 1$ 和 $n = 2$分别对应的衰变级联，其最终衰变分别由 n'P能级跃迁至 nS能级。与表 B.2 类似，但衰变路径按最终到达的超精细能级分组。

	n	n'	$n\mathrm{S}_{1/2}^{F=0}, m_F = 0$		$n\mathrm{S}_{1/2}^{F=1}, m_F = 0$		$n\mathrm{S}_{1/2}^{F=1}, m_F = \pm 1$	
			p (%)	N	p (%)	N	p (%)	N
Ly-α	1	2	1.187	36	0.784	38	1.114	43
Ly-γ	1	4	27.968	1	0.000	0	27.968	1
Ly	1		29.155	37	0.784	38	29.082	44
Ba-β	2	4	3.966	1	0.000	0	3.966	1
Ba	2		3.966	1	0.000	0	3.966	1

表 B.5：与表 B.4 相同，但针对初始处于 $4\mathrm{P}_{3/2}^{F=1}$, $m_F = 0$ 能级的原子。

	n	n'	$n\mathrm{S}_{1/2}^{F=0}, m_F = 0$		$n\mathrm{S}_{1/2}^{F=1}, m_F = 0$		$n\mathrm{S}_{1/2}^{F=1}, m_F = \pm 1$	
			p (%)	N	p (%)	N	p (%)	N
Ly-α	1	2	1.823	43	0.681	48	0.848	53
Ly-γ	1	4	55.936	1	0.000	0	13.984	1
Ly	1		57.759	44	0.681	48	14.832	54
Ba-β	2	4	7.931	1	0.000	0	1.983	1
Ba	2		7.931	1	0.000	0	1.983	1

B.2 探测效率

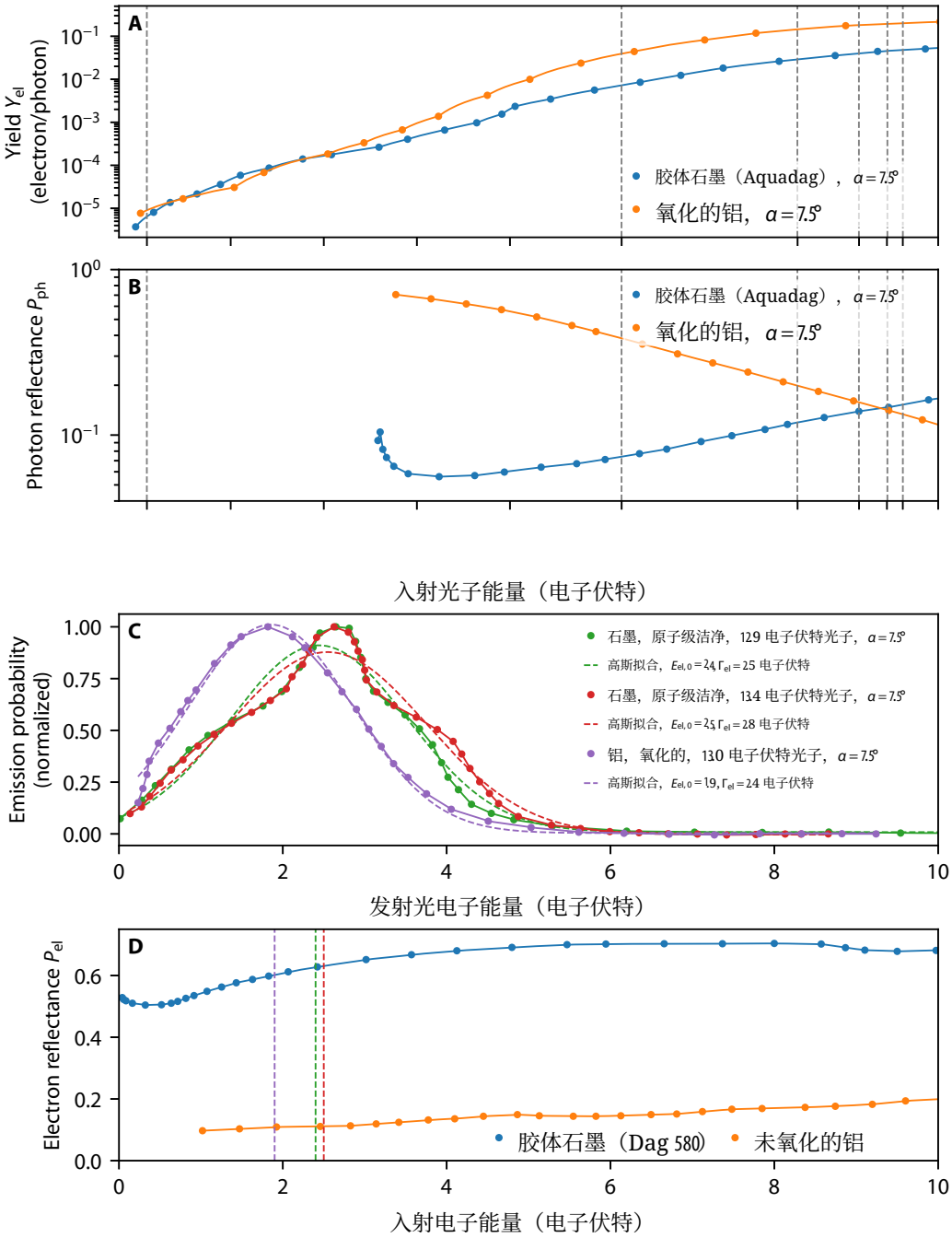


图 B.1：用于探测器的材料属性测量结果，这些属性与探测效率建模相关，汇总见表 4.1。（**A–C**）中所示的测量结果摘自 [133], ，而（**D**）中的测量结果，石墨部分摘自 [140]，铝部分摘自 [152]中转载的[151] 结果。

附录 C

非共振交流斯塔克位移和光电离系数

交流斯塔克位移是由原子与电磁辐射相互作用引起的原子能级能量位移。在实验上，它表现为观测到的跃迁频率随激光强度变化而发生的频移，通常只需考虑强度的一阶效应。跃迁频率的位移是该跃迁的基态能级和激发态能级能量发生位移的共同结果。然而，这种位移可能并且通常确实包含多种贡献，因而往往需要不同的理论描述。其中一种贡献是跃迁的两个能级与其他能级之间的非共振耦合，这里将对此进行讨论，并可采用微扰处理。这通常是双光子跃迁光谱学中的主导贡献，例如本研究所采用的 1S-2S 跃迁。对于单光子跃迁，例如 2S-nP 跃迁，共振贡献则占主导地位。此时，需要采用非微扰处理，例如求解第 2.3.1 节中讨论的光学布洛赫方程。需要注意的是，在这种情况下，导致依赖于强度的频移的光学抽运效应也将包含在以这种方式确定的交流斯塔克频移系数中。

下一节中，我们将讨论非共振耦合对交流斯塔克频移的贡献，因为我们的光学布洛赫方程中未包含这一贡献。与之密切相关的光电离效应将在附录 C.2 中讨论。

C.1 非共振交流斯塔克频移

C.1.1 光移算符

我们按照 [58]的描述定义原子与单频激光场相互作用时的光移算符 Q_q^{LS}，并将其扩展至任意光偏振:

$$Q_q^{\mathrm{LS}} = \sum_{\pm} (-1)^q \, r_{\pm q} \frac{1}{H_0 - E_\phi \pm \hbar\omega_{\mathrm{L}}} r_{\mp q}, \tag{C.1}$$

其中 r_q, $q = -1,0,1$ 是电子位置算符的球分量， $\boldsymbol{r}$, H_0是未微扰原子哈密顿量， ω_{L} 是激光的角频率。E_ϕ 是所考虑原子能级的能量， $|\phi\rangle = |n,l,m\rangle$，由主量子数完全描述

由主量子数 n、轨道角动量量子数 l 和磁量子数 m描述，即目前暂不考虑精细结构和超精细结构。

在电偶极近似下，[38, 64], 电偶极算符表示为$\tilde{\boldsymbol{\mu}} = e\boldsymbol{r}$。原子偶极矩与激光的电场 $\tilde{\boldsymbol{E}}$ 之间的相互作用由算符$V = -\tilde{\boldsymbol{\mu}}\tilde{\boldsymbol{E}} = -e\boldsymbol{r}\tilde{\boldsymbol{E}} = -e\sum_q (-1)^q r_{-q} E_q$描述。因此，光移算符的分量$q = -1$，0，1构成光偏振的完备球基。在本节中，不失一般性，我们取 z轴为原子的量子化轴，即 m表示沿 z轴的角动量投影。于是，分量 $q = 0$ 对应沿 z轴的线偏振，而分量$q = \pm 1$ 对应绕 z轴的圆偏振（$\sigma^{\pm}$），即电场矢量在 x-y平面内旋转。任何偏振态都可以分解为这些球分量来描述。

方程 (C.1) 中算符 $r_{\pm q}$ 各分量的排列顺序可以这样理解："–"项对应于吸收一个偏振为 q 的光子，这一过程由算符 r_{+q}描述，使原子的角动量的 z分量改变 $\Delta m = q$，并激发到一个能量更高的虚能级。随后，原子发射一个光子（$\Delta m = -q$），这一过程由算符 r_{-q}描述，并回到初始能级。另一方面，"+"项对应于发射一个光子（$\Delta m = -q$）并激发到一个能量较低的虚能级，随后吸收一个光子（$\Delta m = q$）并回到初始能级。

方程 (C.1) 中分母与算符 $r_{\pm q}$ 的相对 $\pm$ 符号的选取，可以通过将圆偏振激光的实值电场 $\tilde{\boldsymbol{E}}_{\pm}(t, z)$分解为球分量来说明。按此处的定义，$\boldsymbol{E}_+$ 以频率 ω_{L}绕 z轴逆时针旋转，而 $\tilde{\boldsymbol{E}}_-$ 则绕该轴顺时针旋转，分别对应于 σ^+ 和σ^- 偏振[1], 。将 $\tilde{\boldsymbol{E}}_{\pm}(t, z)$分解后，得到

$$\begin{aligned}\tilde{\boldsymbol{E}}_{\pm}(t, z=0) &= \frac{\tilde{E}_0}{\sqrt{2}}\left(\cos(\omega_{\mathrm{L}}t)\hat{\boldsymbol{x}} \pm \sin(\omega_{\mathrm{L}}t)\hat{\boldsymbol{y}}\right) \\ &= \frac{\tilde{E}_0}{2\sqrt{2}} e^{-i\omega_{\mathrm{L}}t}(\hat{\boldsymbol{x}} \pm i\hat{\boldsymbol{y}}) + \frac{\tilde{E}_0}{2\sqrt{2}} e^{i\omega_{\mathrm{L}}t}(\hat{\boldsymbol{x}} \mp i\hat{\boldsymbol{y}}) \\ &= \mp\frac{\tilde{E}_0}{2} e^{-i\omega_{\mathrm{L}}t}\hat{\boldsymbol{r}}_{\pm} \pm \frac{\tilde{E}_0}{2} e^{i\omega_{\mathrm{L}}t}\hat{\boldsymbol{r}}_{\mp},\end{aligned} \tag{C.2}$$

其中，$\hat{\boldsymbol{x}}, \hat{\boldsymbol{y}}$ 是电场所在平面内的笛卡尔基矢，$\hat{\boldsymbol{r}}_{\pm} = \mp\frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{\boldsymbol{x}} \pm i\hat{\boldsymbol{y}})$ 是球基矢，而 E_0 是电场振幅。因此，实值电场实际上在球基[2]中包含两个反向旋转的分量。认识到 $e^{-i\omega_{\mathrm{L}}t}$ 和 $e^{i\omega_{\mathrm{L}}t}$ 分别对应于光子的虚吸收和发射，

[1]请注意，有些作者采用的惯例是：相对于激光束的传播方向而非本文所用的实验室参考系来定义旋转方向。例如，按照前一种惯例，$\sigma^{\pm}$ 偏振在反向反射后会变为 $\sigma^{\mp}$ 偏振，而按照本文的惯例则不会。[2]当原子跃迁受到共振驱动时，式 (C.2) 的 $e^{-i\omega_{\mathrm{L}}t}$ 部分对跃迁概率有显著贡献，而 $e^{i\omega_{\mathrm{L}}t}$ 部分通常通过旋波近似予以忽略（见第 2.3.1 节）。在此近似下，$\tilde{\boldsymbol{E}}_{\pm}$ 与$\hat{\boldsymbol{r}}_{\pm}$成正比；在这种语境下，$\hat{\boldsymbol{r}}_{\pm}$ 常被用作圆偏振的同义词。然而，对于光移，式 (C.2) 的两个振荡部分通常都对应于失谐虚激发，因此两者都不能忽略。

[65], 结合上一段的结论，便决定了式 (C.1) 的结构。

原子能级 $|\phi\rangle$ 的动态极化率 $P_{\omega_{\mathrm{L}},q}(\phi)$ 由相应的矩阵元 Q_q^{LS} 给出，

$$P_{\omega_{\mathrm{L}},q}(\phi) = \langle\phi|Q_q^{\mathrm{LS}}|\phi\rangle. \tag{C.3}$$

$P_{\omega_{\mathrm{L}},q}(\phi)$ 一般为复数，其实部表示能量位移，虚部则对应于光电离导致的布居损失 [58, 64]。因此，我们将交流斯塔克频移 $\Delta\nu_{\mathrm{ac}}$ 定义为原子处于强度为 I_{loc} 的激光束中时，能级 $|\phi\rangle$ 的能量位移，并以频率单位（赫兹）表示，

$$\Delta\nu_{\mathrm{ac}}(\phi) = -\frac{e^2}{2\epsilon_0 hc} I_{\mathrm{loc}}\,\mathrm{Re}\Big[P_{\omega_{\mathrm{L}},q}(\phi)\Big] = \beta_{\mathrm{ac},q}(\phi) I_{\mathrm{loc}}. \tag{C.4}$$

这里，$\beta_{\mathrm{ac},q}(\phi)$ 是交流斯塔克频移系数（实数），单位为赫兹/(W/m^2)。

为计算 $P_{\omega_{\mathrm{L}},q}(\phi)$，我们插入一组完备的原子能级基底，$\sum_u |u\rangle\langle u| = \mathbf{1}$, $|u\rangle = |n_u, l_u, m_u\rangle$。这里的总和既表示对原子的离散束缚能级求和，也表示对连续态能级积分，即对自由电子和电离原子实积分，

$$P_{\omega_{\mathrm{L}},q}(\phi) = \sum\!\!\!\!\!\!\int_u \sum_{\pm} \frac{\langle\phi|(-1)^q\, r_{\pm q}|u\rangle\langle u|r_{\mp q}|\phi\rangle}{E_u - E_\phi \pm \hbar\omega_{\mathrm{L}}} = \sum\!\!\!\!\!\!\int_u \sum_{\pm} \frac{|\langle u|r_{\mp q}|\phi\rangle|^2}{E_u - E_\phi \pm \hbar\omega_{\mathrm{L}}}, \tag{C.5}$$

其中我们使用了 $H_0|u\rangle = E_u|u\rangle$，其中 $E_u \equiv E_u(n_u, l_u)$是能级 $|u\rangle$的能量。矩阵元$\langle u|r_q|\phi\rangle$ 在探测原子共振时，随着 ω_{L} 变化，在其变化范围内可近似视为常数。

C.1.2 微扰理论与共振贡献

式 (C.5) 中给出的表达式可通过使用二阶含时微扰理论 [58, 64, 183] ，并将上述定义的算符 V 作为微扰推导得到。在推导过程中，会出现以两倍光学频率（$\propto e^{\pm i2\omega_{\mathrm{L}}t}$）振荡的项。然而，这些项对交流斯塔克频移的贡献会在远长于光学频率倒数的时间尺度上平均为零；在光谱实验中，这一条件几乎总是满足的。因此，舍去这些项即可得到式 (C.5)。

由此可见，式 (C.5) 仅适用于微扰较小、不会显著改变原子状态的情况。显然，当用共振激光驱动偶极允许跃迁时，情况并非如此，因为初始态会大量耗尽，并通过衰变重新布居；本工作中的 2S-nP 跃迁便是如此。在式 (C.5) 中，这会导致发散：对于与 $|\phi\rangle$ 至 $|\phi'\rangle$跃迁共振的激光，即 $\hbar\omega_{\mathrm{L}} = E_{\phi'} - E_\phi$，$P_{\omega_{\mathrm{L}},q}(\phi)$ 中的“–”项在 $u = \phi'$ 时随 $E_u - E_\phi - \hbar\omega_{\mathrm{L}} = 0$ 发散；同样，$P_{\omega_{\mathrm{L}},q}(\phi')$ 中的“+”项在 $u = \phi$ 时随 $E_u - E_{\phi'} + \hbar\omega_{\mathrm{L}} = 0$ 发散。通过在式 (C.5) 中进行替换[1] $E_u - E_\phi \pm \hbar\omega_{\mathrm{L}} \to E_u - E_\phi \pm \hbar\omega_{\mathrm{L}} + i\Gamma_u/2$，将微扰能级 $|u\rangle$ 的线宽 Γ_u 纳入考虑，即可消除这一发散。此外，当 $|E_u - E_\phi| \approx \hbar\omega_{\mathrm{L}}$ 时，我们便不能再像本文这样忽略精细结构和超精细结构，因为例如，对于 2S-nP 跃迁，存在非零位移

[1]参见 [65], , 其中相关克拉默斯-海森堡方程中的中间能级线宽也以相同方式计入。

当共振驱动从 nP $J=1/2$ 能级到 nP $J=3/2$ 能级的跃迁时， nP $J=1/2$ 能级会产生位移，反之亦然。然而，即使纳入线宽、精细结构和超精细结构，微扰处理仍无法描述光抽运效应；对于 2S-nP 跃迁，光抽运效应是有效交流斯塔克位移的主要贡献。因此，我们必须采用非微扰方法，例如第 2.3.1 节讨论的光学布洛赫方程，来确定交流斯塔克频移的近共振贡献。下文将这些贡献从$P_{\omega_{\mathrm{L}},q}$中排除，因此仅得到非共振交流斯塔克位移。对于 2S-nP 跃迁，以这种方式计算得到的 2S（nP）能级位移包含与所有能级的耦合，但不包括与共振的 nP（2S）能级的耦合。另一方面，对于始于 1S 或 $2l$ 能级的双光子跃迁，不存在发散贡献，因此 $P_{\omega_{\mathrm{L}},q}$ 中包含所有项。

C.1.3 与布洛赫-西格特频移的关系

值得注意的是，回到偏振为 q 且与从 $|\phi\rangle = |n_\phi, l_\phi, m_\phi\rangle$ 到 $|\phi'\rangle = |n_{\phi'}, l_{\phi'}, m_{\phi'} = m_\phi + q\rangle$的跃迁共振的激光情形，对于 $|u\rangle = |n_{\phi'}, l_{\phi'}\rangle$， $P_{\omega_{\mathrm{L}},q}(\phi)$ 中不发散的“+”项，以及对于 $|u\rangle = |n_\phi, l_\phi\rangle$， $P_{\omega_{\mathrm{L}},q}(\phi')$ 中的“–”项，均可求得，并已纳入此处给出的结果中。事实上，这些项共同构成了布洛赫-西格特频移；在采用旋波近似（RWA）时，它是内置于原子-光相互作用主方程中的模型误差。对于光学跃迁，采用旋波近似有充分依据，因此本学位论文也采用了这一近似，详见第 2.3.1 节。显式求解布洛赫-西格特频移的各项后，我们得到

$$\Delta\nu_{\mathrm{ac}}^{\phi'}(\phi) = -\frac{e^2}{2\epsilon_0 hc} I_{\mathrm{loc}} \frac{|\langle n_{\phi'}, l_{\phi'}, m_\phi - q | r_{-q} | \phi\rangle|^2}{E_{\phi'} - E_\phi + \hbar\omega_{\mathrm{L}}}, \tag{C.6}$$

$$\Delta\nu_{\mathrm{ac}}^{\phi}(\phi') = -\frac{e^2}{2\epsilon_0 hc} I_{\mathrm{loc}} \frac{|\langle n_{\phi}, l_{\phi}, m_{\phi'} + q | r_{q} | \phi'\rangle|^2}{E_{\phi} - E'_\phi - \hbar\omega_{\mathrm{L}}}. \tag{C.7}$$

考察 $q = 0$ 的情形很有启发性。注意到 $|\langle n_{\phi'}, l_{\phi'}, m_\phi | r_0 | \phi\rangle|^2 = |\langle n_\phi, l_\phi, m_{\phi'} | r_0 | \phi'\rangle|^2$，并使用公式（2.30）和（2.31）中给出的从 $|\phi\rangle$ 到 $|\phi'\rangle$ 跃迁的拉比频率 $\Omega_{\phi\to\phi'}$ 的定义，可得

$$\Delta\nu_{\mathrm{ac}}^{\phi'}(\phi) = -\Delta\nu_{\mathrm{ac}}^{\phi}(\phi') = -\frac{1}{2\pi}\frac{\Omega_{\phi\to\phi'}^2}{8\omega_{\mathrm{L}}}. \tag{C.8}$$

该跃迁的布洛赫-西格特频移为 $\Delta\nu_{\mathrm{ac}}^{\phi}(\phi') - \Delta\nu^{\phi'}{}_{\text{交流}}(\phi) = (1/2\pi)\,\Omega_{\phi\to\phi'}^2/4\omega_{\mathrm{L}}$，与 [184] 中公式（2.45）给出的表达式一致。对于 2S-4P 和 2S-6P 跃迁，在激光线性偏振时，布洛赫-西格特频移对非共振交流斯塔克位移的贡献分别约为 6% 和 4%。

C.1.4 球张量分解

将 Q_q^{LS}分解为两组秩为 $k \le 2$ 的球张量是很有启发性的，每组包含 $2k+1$个分量，分别为 $Q_{q'}^{(k,\pm)}$、 $q' = -k$、 $-k+1$、……、 k（类似的分解见 [185]，其中讨论了

[1]文献 [29]给出了布洛赫-西格特频移的另一种表达式。然而，其中计算的贡献来自单一场驱动能量分隔的共振跃迁；而这里的情况不同，单一共振由一个共振场和一个失谐场共同驱动。

双光子跃迁算符）。 $Q_{q'}^{(k,\pm)}$ 由两个球矢量（秩为 1 的球张量，即这里的两个位置算符 r_q）与一个标量（秩为 0 的球张量，即这里的 $\frac{1}{H_0-E_\phi\pm\hbar\omega_\mathrm{L}}$）的张量积给出，如下所示（见 [161] 的公式（14.45））

$$Q_{q'}^{(k,\pm)} = \sum_{q_1,q_2} \langle 1\, q_1\, 1\, q_2 | k\, q' \rangle\, r_{q_1} \frac{1}{H_0 - E_\phi \pm \hbar\omega_\mathrm{L}} r_{q_2}. \tag{C.9}$$

对于给定的激光偏振 q，光移算符 Q_q^{LS} 表示为

$$Q_q^{\mathrm{LS}} = \sum_{k,q'} \sum_{\pm} a_{q'}^{(k,\pm)}(q)\, Q_{q'}^{(k,\pm)}, \tag{C.10}$$

$$\begin{aligned} \text{with} \quad a_{q'}^{(k,\pm)}(q) &= (-1)^q \langle 1\ \pm q\, 1\ \mp q | k\, q' \rangle \\ &= \begin{cases} (-1)^q \langle 1\ \pm q\, 1\ \mp q | k\, 0 \rangle & q' = 0 \\ 0 & q' \neq 0. \end{cases} \end{aligned} \tag{C.11}$$

系数 $a_0^{(k,\pm)}(q)$ 的数值为：

k	$a_0^{(k,\pm)}(-1)$	$a_0^{(k,\pm)}(0)$	$a_0^{(k,\pm)}(+1)$
0	$-\sqrt{1/3}$	$-\sqrt{1/3}$	$-\sqrt{1/3}$
1	$\pm\sqrt{1/2}$	0	$\mp\sqrt{1/2}$
2	$-\sqrt{1/6}$	$\sqrt{2/3}$	$-\sqrt{1/6}$

考察 $a_0^{(k,\pm)}(q)$，我们可以进一步将式 (C.10) 化简为

$$Q_q^{\mathrm{LS}} = \sum_k a^{(k)}(q) \sum_{\pm} (\mp 1)^k Q_0^{(k,\pm)} = \sum_k a^{(k)}(q)\, Q^{(k)}, \tag{C.12}$$

$$\text{with} \quad a^{(k)}(q) = a_0^{(k,-)}(q), \tag{C.13}$$

$$Q^{(k)} = \begin{cases} Q_0^{(k,-)} + Q_0^{(k,+)} & k = 0, 2 \\ Q_0^{(1,-)} - Q_0^{(1,+)} & k = 1. \end{cases} \tag{C.14}$$

因此，对于 $q = 0$，即沿 z 轴的线偏振， Q_q^{LS} 只包含秩为 0 和 2 的球张量；而对于 $q = \pm 1$，即绕 z 轴的圆偏振， Q_q^{LS} 还包含秩为 1 的球张量。

因此，动态极化率的计算转而求取 Q_0^k 的矩阵元，因为

$$P_{\omega_\mathrm{L},q}(\phi) = \sum_k a^{(k)}(q) \sum_{\pm} (\mp 1)^k \langle \phi | Q_0^{(k,\pm)} | \phi \rangle. \tag{C.15}$$

利用维格纳-埃卡特定理（见 [161]中的公式 (14.14)）可以进一步简化问题，得到

$$P_{\omega_\mathrm{L},q}(\phi) = \sum_k a^{(k)}(q) \sum_{\pm} (\mp 1)^k (-1)^{l-m} \langle n, l || Q^{(k,\pm)} || n, l \rangle \begin{pmatrix} l & k & l \\ -m & 0 & m \end{pmatrix}, \tag{C.16}$$

表 C.1： $\tilde{\beta}_{\rm ac}^{(k)}$下 2S态-$n$P 跃迁的交流斯塔克频移系数数值，其中激光频率选为使单光子激发处于共振状态。系数包括 2S态（nP）能级与除 nP（2S态）能级以外所有其他能级之间的耦合，详情见正文。给定超精细结构能级的系数 $\beta_{{\rm ac},\ q}(\phi)$ 可通过应用公式 (C.20) 求得；有限原子核质量的影响则可通过乘以公式 (C.22) 中给出的因子纳入。与表 2.1 中给出的数值一样，这里忽略了相对论效应，结果的精度预计仅为 α^2 量级，但为便于与其他地方给出的结果进行比较，仍给出了更高精度的数值。

2S-nP	$\tilde{\beta}_{\rm ac}^{(0)}$(2S)	$\tilde{\beta}_{\rm ac}^{(0)}$($n$P)	$\tilde{\beta}_{\rm ac}^{(1)}$($n$P)	$\tilde{\beta}_{\rm ac}^{(2)}$($n$P)
	(赫兹/(瓦/米^2))	(赫兹/(瓦/米^2))	(赫兹/(瓦/米^2))	(赫兹/(瓦/米^2))
2S-3P	$6.064\,87\times10^{-4}$	$-3.988\,32\times10^{-3}$	$1.784\,63\times10^{-3}$	$-1.499\,42\times10^{-3}$
2S-4P	$-4.710\,19\times10^{-4}$	$-1.769\,53\times10^{-3}$	$2.625\,75\times10^{-4}$	$-1.858\,76\times10^{-4}$
2S-5P	$-5.230\,83\times10^{-4}$	$-1.334\,00\times10^{-3}$	$8.888\,53\times10^{-5}$	$-5.865\,28\times10^{-5}$
2S-6P	$-5.200\,67\times10^{-4}$	$-1.166\,71\times10^{-3}$	$4.168\,79\times10^{-5}$	$-2.651\,68\times10^{-5}$
2S-7P	$-5.128\,16\times10^{-4}$	$-1.082\,56\times10^{-3}$	$2.319\,98\times10^{-5}$	$-1.445\,54\times10^{-5}$
2S-8P	$-5.067\,49\times10^{-4}$	$-1.033\,58\times10^{-3}$	$1.432\,61\times10^{-5}$	$-8.832\,02\times10^{-6}$
2S-9P	$-5.021\,97\times10^{-4}$	$-1.002\,30\times10^{-3}$	$9.471\,67\times10^{-6}$	$-5.825\,90\times10^{-6}$
2S-10P	$-4.988\,37\times10^{-4}$	$-9.810\,11\times10^{-4}$	$6.556\,14\times10^{-6}$	$-4.060\,22\times10^{-6}$

其中最后一项是维格纳 3-j 符号，而$\langle n,l||Q^{(k,\pm)}||n,l\rangle$ 是[1] $Q_{q'}^{(k,\pm)}$ 的约化矩阵元。这个约化矩阵元可以用构造张量 $Q_{q'}^{(k,\pm)}$ 所依据的位置算符 $\boldsymbol{r}$的约化矩阵元表示，如下所示（参见 [186] 中的式（7.1.1））

$$\langle n,l||Q^{(k,\pm)}||n,l\rangle=\sqrt{2k+1}\,(-1)^{k+2l}\sum_{n_u,l_u}\begin{Bmatrix}1&1&k\\ l&l&l_u\end{Bmatrix}\frac{|\langle n_u,l_u||\boldsymbol{r}||n,l\rangle|^2}{E_u(n_u,l_u)-E_\phi(n,l)\pm\hbar\omega_{\rm L}},\quad\text{(C.17)}$$

其中花括号表示维格纳 6-j 符号，而对 n_u 的求和同样包括对束缚态和连续态能级的求和。

C.1.5 精细能级和超精细能级的交流斯塔克频移系数

轨道角动量 $\boldsymbol{L}$ 与电子自旋 $\boldsymbol{S}$ 的耦合产生具有角动量 $\boldsymbol{J}=\boldsymbol{L}+\boldsymbol{S}$的精细结构（FS）子能级。由于 $\boldsymbol{L}$ 与 $\boldsymbol{S}$ 对易，关于 FS 子能级 $|n,\ l,\ J\rangle$ 的 $Q_{q'}^{(k,\pm)}$ 的约化矩阵元由下式给出（见 [161] 的式（14.69））

$$\langle n,l,J||Q^{(k,\pm)}||n,l,J\rangle=(-1)^{l+S+J+k}\langle n,l||Q^{(k,\pm)}||n,l\rangle(2J+1)\begin{Bmatrix}l&J&S\\ J&l&k\end{Bmatrix}.\quad\text{(C.18)}$$

[1]约化矩阵元由维格纳-埃卡特定理定义并确定。不同作者采用的相位和归一化因子各不相同，因此得出的约化矩阵元数值也不同。 [161] 的定义与 [186] 和 [58], 的定义一致，但与 [64]的定义不一致。

表C.2：交流斯塔克频移系数 $\tilde{\beta}_{\rm ac}^{(k)}$如表 C.1 所示，但针对与精密光谱学相关的 1S-nS、1S-nD 和 2S-nD 跃迁，并选择激光频率使双光子激发处于共振状态。这些结果将 [58] 中表 IV、VI 和 VII 给出的数值扩展到了任意激光偏振。

1S态/2S态-nl	$\tilde{\beta}_{\rm ac}^{(0)}$(1S态/2S态) (赫兹/(W/m^2))	$\tilde{\beta}_{\rm ac}^{(0)}(nl)$ (赫兹/(W/m^2))	$\tilde{\beta}_{\rm ac}^{(1)}(nl)$ (赫兹/(W/m^2))	$\tilde{\beta}_{\rm ac}^{(2)}(nl)$ (赫兹/(W/m^2))
1S-2S	$4.638\,90\times10^{-5}$	$-2.423\,61\times10^{-4}$	—	—
1S-3S	$5.232\,59\times10^{-5}$	$-1.698\,88\times10^{-4}$	—	—
1S态-4S	$5.513\,13\times10^{-5}$	$-1.500\,80\times10^{-4}$	—	—
1S态-3D	$5.232\,59\times10^{-5}$	$-3.661\,18\times10^{-4}$	$-4.152\,06\times10^{-6}$	$1.600\,28\times10^{-5}$
1S态-4D	$5.513\,13\times10^{-5}$	$-3.296\,35\times10^{-4}$	$-1.895\,42\times10^{-6}$	$5.766\,42\times10^{-6}$
2S态-3D	$1.244\,99\times10^{-3}$	$2.038\,59\times10^{-2}$	$-2.641\,00\times10^{-2}$	$6.122\,09\times10^{-3}$
2S态-4D	$1.641\,64\times10^{-3}$	$-9.483\,44\times10^{-3}$	$1.561\,98\times10^{-3}$	$-2.009\,10\times10^{-4}$
2S态-5D	$2.024\,50\times10^{-3}$	$-6.778\,24\times10^{-3}$	$1.960\,43\times10^{-4}$	$2.326\,76\times10^{-4}$
2S态-6D	$2.362\,14\times10^{-3}$	$-5.903\,79\times10^{-3}$	$-1.012\,21\times10^{-5}$	$2.009\,71\times10^{-4}$
2S态-7D	$2.647\,76\times10^{-3}$	$-5.494\,76\times10^{-3}$	$-4.724\,59\times10^{-5}$	$1.492\,97\times10^{-4}$
2S态-8D	$2.884\,51\times10^{-3}$	$-5.264\,86\times10^{-3}$	$-4.901\,52\times10^{-5}$	$1.101\,76\times10^{-4}$
2S态-9D	$3.079\,12\times10^{-3}$	$-5.120\,65\times10^{-3}$	$-4.296\,99\times10^{-5}$	$8.259\,88\times10^{-5}$
2S-10D	$3.238\,84\times10^{-3}$	$-5.023\,32\times10^{-3}$	$-3.595\,84\times10^{-5}$	$6.313\,19\times10^{-5}$
2S-11D	$3.370\,27\times10^{-3}$	$-4.954\,10\times10^{-3}$	$-2.971\,58\times10^{-5}$	$4.916\,07\times10^{-5}$
2S-12D	$3.478\,96\times10^{-3}$	$-4.902\,87\times10^{-3}$	$-2.455\,86\times10^{-5}$	$3.893\,73\times10^{-5}$

同样，$\boldsymbol{J}$ 与核自旋 $\boldsymbol{I}$ 耦合形成超精细结构（HFS）能级 $|n,\ l,\ J,\ F\rangle$。$\boldsymbol{J}$和 $\boldsymbol{I}$也对易，因此得到

$$\langle n,l,J,F||Q^{(k,\pm)}||n,l,J,F\rangle=(-1)^{J+I+F+k}\langle n,l,J||Q^{(k,\pm)}||n,l,J\rangle(2F+1)\begin{Bmatrix}J & F & I\\ F & J & k\end{Bmatrix}. \tag{C.19}$$

最后，我们可以给出超精细结构能级$|\phi\rangle=|n,\ l,\ J,\ F,\ m_F\rangle$的交流斯塔克频移系数$\beta_{\rm ac,\ q}(\phi)$，以及激光偏振为 q时的表达式：

$$\begin{aligned}\beta_{{\rm ac},q}(\tilde{\phi})=&\sum_k(-1)^{l+S+2J+I+2F+2k-m_F}(2J+1)(2F+1)\\&\times\begin{pmatrix}F & k & F\\ -m_F & 0 & m_F\end{pmatrix}\begin{Bmatrix}l & J & S\\ J & l & k\end{Bmatrix}\begin{Bmatrix}J & F & I\\ F & J & k\end{Bmatrix}\\&\times a^{(k)}(q)\,\tilde{\beta}_{\rm ac}^{(k)}(nl),\end{aligned} \tag{C.20}$$

其中，我们参照公式 (C.14) 定义了

$$\tilde{\beta}_{\rm ac}^{(k)}(nl)=\begin{cases}\langle n,l||Q^{(k,-)}||n,l\rangle+\langle n,l||Q^{(k,+)}||n,l\rangle & k=0,2\\ \langle n,l||Q^{(k,-)}||n,l\rangle-\langle n,l||Q^{(k,+)}||n,l\rangle & k=1.\end{cases} \tag{C.21}$$

请注意，对于原子 S 能级（$l=0$），$\tilde{\beta}_{\rm ac}^{(k)}$（$nl$）仅在 $k=0$时非零。

为便于将我们的结果与例如 [58], 给出的数值进行比较，此处的 $\tilde{\beta}_{\mathrm{ac}}^{(k)}(n,\ l)$ 对应于无限重原子核的情况。要考虑有限原子核质量m_{N}，系数 $\tilde{\beta}_{\mathrm{ac}}^{(k)}(n,\ l)$ 必须乘以一个因子

$$\left(\frac{m_{\mathrm{N}}+m_{\mathrm{e}}}{m_{\mathrm{N}}}\right)^{3}, \tag{C.22}$$

where m_{e} 是电子质量。对于原子氢 [46], , 该因子等于 1.001 63 .

表 C.1 给出了本文所研究的单光子 2S-nP 跃迁的 $\tilde{\beta}_{\mathrm{ac}}^{(k)}(nl)$ 数值。双光子 1S-nS、1S-nD 和 2S-nD 跃迁的结果也列于表C.2，其中扩展了 [58]针对任意激光偏振的结果。请注意，[58] 中给出的交流斯塔克频移系数 $\beta_{\mathrm{ac}}^{(k)}(nl)$已包含线偏振 ($q=0$) 时的激光偏振因子 $a^{(k)}(q)$，即 $\beta_{\mathrm{ac}}^{(k)}(nl) = a^{(k)}(0)\tilde{\beta}_{\mathrm{ac}}^{(k)}(nl)$。

C.1.6 反向传播激光束的交流斯塔克频移

到目前为止，我们只考虑了与强度恒定的光场 I_{loc} 的相互作用。一个重要的特殊情况是与两个频率相同、反向传播的光束叠加形成的光场相互作用。

C.1.6.1 平行线偏振的反向传播光束

我们首先考虑两个光束均沿同一轴线性偏振的情况，这里取为 z 轴，因此对应于 $q=0$。假设两束光的电场振幅 E_0 相同，则合成电场为

$$\begin{aligned}\tilde{\boldsymbol{E}}_{\mathbf{lin}\|\mathbf{lin}}(t,x) &= \tilde{E}_0\hat{\boldsymbol{z}}\left(\cos(\omega_{\mathrm{L}}t-K_{\mathrm{L}}x)+\cos(\omega_{\mathrm{L}}t+K_{\mathrm{L}}x)\right)\\ &= 2\tilde{E}_0\hat{\boldsymbol{z}}\cos(\omega_{\mathrm{L}}t)\cos(K_{\mathrm{L}}x),\end{aligned} \tag{C.23}$$

其中， K_{L} 是激光束的波数，且假设光束沿 x 轴传播。由此产生的总强度为 $I_{\mathrm{lin}\|\mathrm{lin}}(x) = 4I\cos^2(K_{\mathrm{L}}x)$，其中每束光的强度为 $I=c\epsilon_0\tilde{E}_0^2/2$ 。因此，总强度 $I_{\mathrm{lin}\|\mathrm{lin}}(x)$ 随空间变化，两束光形成强度驻波。在本文所述的实验中，1S态-2S态跃迁和 2S态-nP态跃迁的激发均在这种配置下进行。

~由于电场 $\boldsymbol{E}_{\mathbf{lin}\|\mathbf{lin}}(t,x)$ 的位置和时间依赖性可以分离，且 Q_q^{LS} 不会作用于原子的位置，因此位置 x 处的交流斯塔克频移可通过在式 (C.4) 中使用 $I_{\mathrm{loc}}=I_{\mathrm{lin}\|\mathrm{lin}}(x)$ 和 $q=0$ 来描述。

虽然公式 (C.4) 描述了任意位置和时间处原子能级的交流斯塔克频移，但在实验中，我们获得的是许多原子的积分信号；这些原子以一系列速度 v_x 沿强度驻波运动。我们关注的是从该信号中得到的观测跃迁频率的交流斯塔克频移。在许多情况下，由强度调制引起的交流斯塔克频移调制随后会被平均掉[1], , 例如，原子在信号采集过程中穿过许多个调制周期，或同时探测一系列强度时。为了描述该信号的交流斯塔克频移，采用

[1]请注意，较大空间尺度上的强度调制（例如高斯激光束的强度分布所产生的调制）通常无法通过平均处理，因此在本工作中会明确加以考虑。

原子参考系较为有利；在该参考系中，两束光的频率相对于实验室参考系中的频率分别发生大小相等、方向相反的多普勒频移，即 $\Delta\nu_{\mathrm{D}} = \pm K_{\mathrm{L}} v_x/2\pi$。

对于1S-2S跃迁的激发，文献 [58] 针对与本工作非常相似的实验参数讨论了这种情况。研究发现，在多普勒频移远大于其他任何特征频率（如拉比频率和线宽；见 [58]的式（19））的情况下（本工作符合这一条件），可以将问题视为每束光都产生恒定的交流斯塔克频移。信号的总交流斯塔克频移只需令 $I_{\mathrm{loc}} = 2I$即可得到。换言之，要实现平均效应，强度调制的时间尺度（由 $\pi/v_x K_{\mathrm{L}} = \pi/\Delta\nu_{\mathrm{D}}$给出）必须远短于由拉比频率和线宽决定的激发时间尺度。

另一方面，在本工作中探测2S-nP跃迁时，由于驻波垂直于原子束， 多普勒频移可能远小于这些特征频率。要获得完整的图像，就需要将式（C.4）纳入第2章和第3章推导的光学布洛赫方程中。不过，强度调制仍预计会在很大程度上相互平均，因为我们观测到的是许多原子的信号，它们在驻波光场中采样不同的轨迹[1]。此外，正如第3章所述，原子在驻波中部分离域。最后，非共振交流斯塔克位移比测量不确定度低几个数量级，因此这里可以令 $I_{\mathrm{loc}} = 2I$ 来估算其贡献。

C.1.6.2 正交圆偏振的反向传播光束

另一种值得关注的配置是两束具有正交圆偏振的反向传播光束的叠加，也就是说，它们的场在实验室参考系中沿相反方向旋转。例如，在 [137] 中原子氢 1S- 3S 跃迁的光谱学研究便采用了这种配置。设具有 σ^+ (σ^-) 偏振的光束（对应于 $q = +1$ ($q = -1$)）沿 z 轴正向（负向）传播，其电场振幅为 E_{σ^+} (E_{σ^-})，则合成电场为（见式 (C.2)）

$$\begin{aligned}\tilde{\boldsymbol{E}}_{\boldsymbol{\sigma^+},\boldsymbol{\sigma^-}}(t,z) = \frac{\tilde{E}_{\sigma^+}}{2}\left(-e^{-i\omega_{\mathrm{L}}t+iK_{\mathrm{L}}z}\hat{\boldsymbol{r}}_+ + e^{i\omega_{\mathrm{L}}t-iK_{\mathrm{L}}z}\hat{\boldsymbol{r}}_-\right)\\ + \frac{\tilde{E}_{\sigma^-}}{2}\left(e^{-i\omega_{\mathrm{L}}t-iK_{\mathrm{L}}z}\hat{\boldsymbol{r}}_- - e^{i\omega_{\mathrm{L}}t+iK_{\mathrm{L}}z}\hat{\boldsymbol{r}}_+\right),\end{aligned} \tag{C.24}$$

其中， K_{L} 为激光束的波数。该配置的总强度 $I_{\sigma^+,\,\sigma^-} = I_{\sigma^+} + I_{\sigma^-}$ 只是两束光各自强度 $I_{\sigma^\pm} = c\epsilon_0\tilde{E}^2_{\sigma^\pm}/2$ 之和，因此不像平行线偏振的情况那样存在空间调制。

为计算由此类场产生的交流斯塔克频移，我们在二阶含时微扰理论中评估˜微扰 $V = -e\boldsymbol{r}\boldsymbol{E}_{\boldsymbol{\sigma^+},\,\boldsymbol{\sigma^-}}(t,\ x)$ 的作用。再次忽略以两倍光学频率振荡的项后，剩余项中只有˜ ˜与 $E_{\sigma^+}E_{\sigma^-}$ 成正比的项才包含偶极矩阵元的组合；这些项对应于从一束光中虚吸收一个光子、并向另一束光中虚发射一个光子（反之亦然）。

$$\langle\phi|r_{\pm q}|u\rangle\langle u|r_{\pm q}|\phi\rangle. \tag{C.25}$$

[1]需要注意的是，由于局域强度较高而经历较大交流斯塔克频移的原子，通常对探测信号的贡献也更大，因此平均信号的交流斯塔克频移不一定等于强度加权平均的交流斯塔克频移。

表 C.3：2S-nP 跃迁的光电离系数 $\tilde{\beta}^{(k)}_{\rm ac}$数值，其中激光频率的选择使单光子激发处于共振状态，类似于表 C.1 中给出的交流斯塔克位移系数。

2S-nP	$\tilde{\beta}^{(0)}_{\text{光电离}}$ (nP) （赫兹/（瓦特/米²））	$\tilde{\beta}^{(1)}_{\text{光电离}}$ (nP) （赫兹/（瓦特/米²））	$\tilde{\beta}^{(2)}_{\text{光电离}}$ (nP) （赫兹/（瓦特/米²））
2S-3P	$-2.356\,55\times10^{-3}$	$1.710\,15\times10^{-3}$	$-7.830\,85\times10^{-4}$
2S-4P	$-3.153\,85\times10^{-4}$	$2.159\,28\times10^{-4}$	$-1.148\,32\times10^{-4}$
2S-5P	$-1.039\,75\times10^{-4}$	$6.947\,13\times10^{-5}$	$-3.918\,58\times10^{-5}$
2S-6P	$-4.824\,30\times10^{-5}$	$3.182\,99\times10^{-5}$	$-1.849\,45\times10^{-5}$
2S-7P	$-2.673\,68\times10^{-5}$	$1.751\,05\times10^{-5}$	$-1.035\,06\times10^{-5}$
2S-8P	$-1.652\,02\times10^{-5}$	$1.076\,85\times10^{-5}$	$-6.434\,87\times10^{-6}$
2S-9P	$-1.098\,67\times10^{-5}$	$7.138\,67\times10^{-6}$	$-4.297\,22\times10^{-6}$
2S-10P	$-7.706\,17\times10^{-6}$	$4.995\,77\times10^{-6}$	$-3.022\,91\times10^{-6}$

然而，这些项没有贡献，因为$\langle u|r_{\pm q}|\phi\rangle$ 意味着 $m_u = m_\phi \pm 1$，而$\langle\phi|r_{\pm q}|u\rangle$ 意味着 $m_u = m_\phi \mp 1$，这对应于一种不符合物理实际的情形。因此，交流斯塔克频移的表达式仅包含与 $E_{\sigma^+}E_{\sigma^+}$ 或 $E_{\sigma^-}E_{\sigma^-}$ 成正比的项，而不包含与 $E_{\sigma^+}E_{\sigma^-}$ 成正比的项。

换句话说，当吸收偏振为 $q=\pm1$ 的光子，导致虚能级 $|u\rangle$ 的激发并具有 $m_u = m_\phi \pm 1$ 时，返回初始能级的受激发射必须对应于发射偏振为 $q=\pm1$ 的光子，且满足 $m_\phi = m_u \mp 1$。只有当两个光子来自同一束光时，这才可能发生。

因此，在这种情况下，原子能级 $|\phi\rangle$ 的总交流斯塔克频移 $\Delta\nu_{\rm ac}(\phi)$，等于公式 (C.4) 中给出的各束光束所产生的交流斯塔克频移之和，即

$$\Delta\nu_{\rm ac}(\tilde{\phi}) = \beta_{\rm ac,+1}(\tilde{\phi})I_{\sigma^+} + \beta_{\rm ac,-1}(\tilde{\phi})I_{\sigma^-} \tag{C.26}$$

其中系数$\beta_{\rm ac,\pm}(\phi)$如公式 (C.20) 所示。特别地，当 $|\phi\rangle$ 是原子 S 能级时，$\beta_{\rm ac,-1}(\tilde{\phi}) = \beta_{\rm ac,1}(\tilde{\phi}) = \beta_{\rm ac,0}(\tilde{\phi})$，因为对于 $k\neq0$，$\tilde{\beta}^{(k)}_{\rm ac}(nl) = 0$。

C.2 光电离

光电离是原子吸收能量足够的光子而发生电离的过程，会产生一个自由电子和一个电离原子。这一效应包含在上一节定义的光移算符中（公式 (C.1)），并通过动态极化率的虚部体现出来 $P_{\omega_{\rm L},q}$（公式 (C.3)）[58, 64]。能级 $|\phi\rangle$ 发生电离的速率 $\gamma_{\rm ioni}(\phi)$ 由下式给出

$$\gamma_{\rm ioni}(\phi) = -\frac{e^2}{\hbar\epsilon_0 c} I_{\rm loc}\,\mathrm{Im}\Big[P_{\omega_{\rm L},q}(\phi)\Big] = 2\pi\beta_{\rm ioni}(\phi)I_{\rm loc}. \tag{C.27}$$

类比于交流斯塔克频移系数$\beta_{\rm ac,\ q}(\phi)$，$\beta_{\rm ioni}(\phi)$是（实值）电离系数，单位为赫兹/(W/m^2)。

表 C.4：1S态-nS、1S态-nD 和 2S态-nD 跃迁的光电离系数数值 $\tilde{\beta}_{\mathrm{ac}}^{(k)}$，其中激光频率选定为使双光子激发处于共振状态，与表C.2中给出的交流斯塔克位移系数类似。

1S态/2S态-nl	$\tilde{\beta}^{(0)}{}_{\text{电离}}(nl)$ (赫兹/(瓦/米^2))	$\tilde{\beta}^{(1)}{}_{\text{电离}}(nl)$ (赫兹/(瓦/米^2))	$\tilde{\beta}^{(2)}{}_{\text{电离}}(nl)$ (赫兹/(瓦/米^2))
1S-2S	$-2.082\,06\times10^{-4}$	—	—
1S-3S	$-3.502\,91\times10^{-5}$	—	—
1S-4S	$-1.231\,12\times10^{-5}$	—	—
1S态-3D	$-6.364\,11\times10^{-6}$	$5.874\,56\times10^{-6}$	$-2.590\,44\times10^{-6}$
1S态-4D	$-2.411\,19\times10^{-6}$	$2.193\,84\times10^{-6}$	$-9.934\,92\times10^{-7}$
2S态-4D	$-3.318\,77\times10^{-3}$	$3.056\,57\times10^{-3}$	$-1.353\,48\times10^{-3}$
2S态-5D	$-1.012\,77\times10^{-3}$	$9.129\,92\times10^{-4}$	$-4.205\,07\times10^{-4}$
2S态-6D	$-4.550\,79\times10^{-4}$	$4.057\,29\times10^{-4}$	$-1.906\,56\times10^{-4}$
2S态-7D	$-2.479\,88\times10^{-4}$	$2.196\,75\times10^{-4}$	$-1.044\,32\times10^{-4}$
2S-8D	$-1.516\,84\times10^{-4}$	$1.338\,18\times10^{-4}$	$-6.408\,42\times10^{-5}$
2S-9D	$-1.002\,15\times10^{-4}$	$8.816\,71\times10^{-5}$	$-4.243\,13\times10^{-5}$
2S-10D	$-6.997\,25\times10^{-5}$	$6.144\,02\times10^{-5}$	$-2.967\,20\times10^{-5}$
2S-11D	$-5.093\,60\times10^{-5}$	$4.466\,09\times10^{-5}$	$-2.162\,38\times10^{-5}$
2S-12D	$-3.830\,86\times10^{-5}$	$3.355\,27\times10^{-5}$	$-1.627\,69\times10^{-5}$

计算给出$P_{\omega_{\mathrm{L}},\,q}$虚部的积分并非总是简单直接。相反，我们在此直接使用一阶含时微扰理论[1]，计算光电离系数；可以证明，在这种情况下，该方法在形式上等价于前一种方法 [58, 64]。该方法给出

$$\beta_{\mathrm{ioni}}(\phi)=\frac{\pi e^2}{h\epsilon_0 c}\sum\!\!\!\!\!\!\int_u |\langle u|r_q|\phi\rangle|^2. \tag{C.28}$$

总和遍及所有连续态能级 $|u\rangle=|n_u,\ l_u,\ m_u\rangle$，其能量为 $E_u=E_\phi+\hbar\omega_{\mathrm{L}}$ 且偶极矩阵元 $\langle\phi|r_q|u\rangle$非零，这由偶极选择定则决定（例如，P能级与S和D连续态能级相连）。

由于交流斯塔克频移和~~光电离所对应的算符结构相同，因此任意超精细结构能级 $|\phi\rangle$ 的光电离系数 $\beta_{\mathrm{ioni}}(\phi)$ 也可以表示为系数 $\tilde{\beta}^{(k)}{}_{\mathrm{ioni}}(nl)$ 的组合。随后可通过公式 (C.20)，将 $\tilde{\beta}_{\mathrm{ac}}^{(k)}(nl)$ 替换为 $\tilde{\beta}^{(k)}{}_{\mathrm{ioni}}(nl)$，从而计算 $\beta_{\mathrm{ioni}}(\tilde{\phi})$。请注意，由于公式 (C.1) 中只有“–”对光电离有贡献，因此 $\tilde{\beta}^{(k)}{}_{\mathrm{ioni}}(nl)=\langle n,l||Q^{(k,-)}||n,l\rangle$，这与公式 (C.21) 中 $\tilde{\beta}_{\mathrm{ac}}^{(k)}(nl)$ 的相应定义不同。公式 (C.22) 给出的修正因子以及有关强度调制的讨论同样适用。表 C.3 给出了单光子 2S态-nP 跃迁的 $\tilde{\beta}^{(k)}{}_{\mathrm{ioni}}(nl)$ 数值，表 C.4 则给出了双光子 1S态-nS、1S态-nD 和 2S态-nD 跃迁的数值；这些结果同样将 [58] 的结果扩展至任意激光偏振。

[1]请注意，在一阶微扰理论中，光电离能级 $|u\rangle$ 对原子能级 $|\phi\rangle$ 产生微扰的振幅正比于 $\langle u|r_q|\phi\rangle$，但系统处于 $|u\rangle$ 的概率正比于$|\langle u|r_q|\phi\rangle|^2$。

参考文献

[1] T. W. Hänsch, 《诺贝尔演讲：对精度的热情》, 《现代物理评论》**78**, 1297–1309 (2006年)。[2] E. Schrödinger, 《量子化作为本征值问题》, Annalen der Physik **384**, 361– 376 (1926)。[3] P. A. M. Dirac, 《辐射的发射与吸收的量子理论》, 《伦敦皇家学会会刊》。A辑, 数学与物理学论文集 **114**, 243–265 (1927)。[4] P. J. Mohr、D. B. Newell 和 B. N. Taylor, 《基本物理常数的 CODATA 推荐值：2014》, 《现代物理评论》**88**, 035009 (2016年)。[5] D. Hanneke、S. Fogwell 和 G. Gabrielse, 《电子磁矩和精细结构常数的新测量》, Physical Review Letters **100**, 120801 (2008)。[6] ATLAS 合作组, 《利用大型强子对撞机上的 ATLAS 探测器搜寻标准模型希格斯玻色子时发现一种新粒子》, 《物理学快报》B辑：核物理、基本粒子物理和高能物理**716**, 1–29 (2012年)。[7] CMS 合作组, 《利用大型强子对撞机上的 CMS 实验发现一种质量为 125 GeV 的新玻色子》, 《物理学快报》B辑：核物理、基本粒子物理和高能物理 **716**, 30–61 (2012年)。[8] A. B. McDonald, 《诺贝尔演讲：萨德伯里中微子观测站：太阳中微子的味变观测》, 《现代物理评论》**88**, 030502 (2016年)。[9] T. Kajita, 《诺贝尔演讲：大气中微子振荡的发现》, 《现代物理评论》**88**, 030501 (2016年)。[10] E. Corbelli 和 P. Salucci, 《M33的延展旋转曲线与暗物质晕》, Monthly Notices of the Royal Astronomical Society **311**, 441–447 (2000年)。[11] 普朗克合作组, 《普朗克 2018 年结果——I. 概述与普朗克的宇宙学遗产》, Astronomy & Astrophysics **641**, A1 (2020年)。[12] P. J. E. Peebles 和 B. Ratra, 《宇宙学常数与暗能量》, 《现代物理评论》**75**, 559–606 (2003)。[13] M. S. Safronova、D. Budker、D. DeMille、D. F. J. Kimball、A. Derevianko 和 C. W. Clark, 《利用原子和分子搜寻新物理》, 《现代物理评论》**90**, 025008 (2018年)。[14] P. Hamilton、M. Jaffe、P. Haslinger、Q. Simmons、H. Müller 和 J. Khoury, 《原子干涉测量对暗能量的约束》, 《科学》**349**, 849–851 (2015)。

[15] A. Garcon、D. Aybas、J. W. Blanchard、G. Centers、N. L. Figueroa、P. W. Graham、D. F. J. Kimball、S. Rajendran、M. G. Sendra、A. O. Sushkov、L. Trahms、T. Wang、A. Wickenbrock、T. Wu 和 D. Budker, 《宇宙轴子自旋进动实验（CASPEr）：利用核磁共振搜寻暗物质》, Quantum Science and Technology **3**, 014008 (2017年)。[16] V. Andreev、D. G. Ang、D. DeMille、J. M. Doyle、G. Gabrielse、J. Haefner、N. R. Hutzler、Z. Lasner、C. Meisenhelder、B. R. O'Leary、C. D. Panda、A. D. West、E. P. West 和 X. Wu, 《电子电偶极矩的改进上限》, 《自然》**562**, 355–360 (2018年)。[17] R. Parker、C. Yu、Z. Weicheng、E. Brian 和 H. Müller, 《精细结构常数的测量：对标准模型的检验》, 《科学》**360**, 191–195 (2018年)。[18] L. Morel、Z. Yao、P. Cladé 和 S. Guellati-Khélifa, 《以81万亿分之一的准确度测定精细结构常数》, 《自然》**588**, 61–65 (2020年)。[19] J. C. Bernauer 等, 《质子的电形状因子和磁形状因子的高精度测定》, Physical Review Letters **105**, 242001 (2010年)。[20] W. Xiong 等, 《电子-质子散射实验测得较小的质子电荷半径》, 《自然》**575**, 147–150 (2019年)。[21] R. Pohl 等, 《质子大小》, 《自然》**466**, 213–216 (2010年)。[22] A. Antognini 等, 《通过测量μ子氢的2S-2P跃迁频率研究质子结构》, 《科学》**339**, 417–420 (2013年)。[23] C. G. Parthey 等, 《氢原子1S–2S跃迁频率的改进测量》, Physical Review Letters **107**, 203001 (2011年)。[24] A. Beyer、L. Maisenbacher、A. Matveev、R. Pohl、K. Khabarova、A. Grinin、T. Lamour、D. C. Yost、T. W. Hänsch、N. Kolachevsky 和 Th. Udem, 《原子氢的里德伯常数和质子尺寸》, 《科学》**358**, 79–85 (2017年)。[25] N. Bezginov、T. Valdez、M. Horbatsch、A. Marsman、A. C. Vutha 和 E. A. Hessels, 《原子氢兰姆位移和质子电荷半径的测量》, 《科学》**365**, 1007–1012 (2019年)。[26] A. Grinin、A. Matveev、D. C. Yost、L. Maisenbacher、V. Wirthl、R. Pohl、T. W. Hänsch 和 Th. Udem, 《原子氢的双光子频率梳光谱学》, 《科学》**370**, 1061–1065 (2020年)。[27] H. Fleurbaey、S. Galtier、S. Thomas、M. Bonnaud、L. Julien、F. Biraben、F. Nez、M. Abgrall 和 J. Guéna, 《氢原子1S-3S跃迁频率的新测量：对质子电荷半径之谜的贡献》, Physical Review Letters**114**, 100405 (2018年)。[28] A. Beyer、L. Maisenbacher、A. Matveev、R. Pohl、K. Khabarova、Y. Chang、A. Grinin、T. Lamour、T. Shi、D. C. Yost、Th. Udem、T. W. Hänsch 和 N. Kolachevsky, 《用于精密光谱学的主动式光纤逆向反射器，可提供相位回溯反向平行激光束》, 《光学快报》**24**, 17470–17485 (2016年)。[29] Th. Udem、L. Maisenbacher、A. Matveev、V. Andreev、A. Grinin、A. Beyer、N. Kolachevsky、R. Pohl、D. C. Yost 和 T. W. Hänsch, 《宽偶极允许跃迁的量子干涉线移》, Annalen der Physik **531**, 1900044 (2019年)。

[30] A. Beyer，《原子氢的里德伯常数和质子尺寸》，博士论文（慕尼黑大学，2016年）。[31] M. Weitz、A. Huber 和 F. Schmidt-Kaler，《通过频率比较精密测量原子氢和氘的1S基态兰姆位移》，《物理评论A》**52**，2664–2681（1995年）。[32] D. Berkeland、E. Hinds 和 M. Boshier，《原子氢中兰姆位移的精密光学测量》，Physical Review Letters **75**，2470–2473（1995年）。[33] B. de Beauvoir、C. Schwob、O. Acef、L. Jozefowski、L. Hilico、F. Nez、L. Julien、A. Clairon 和 F. Biraben，《氢原子和氘原子的计量学：里德伯常数和兰姆位移的测定》，《欧洲物理学杂志D：原子、分子、光学与等离子体物理》**12**，61–93（2000年）。[34] O. Arnoult、F. Nez、L. Julien 和 F. Biraben，《氢原子中1S–3S双光子跃迁的光学频率测量》，《欧洲物理学杂志D》**60**，243–256（2010年）。[35] V. Wirthl、L. Maisenbacher、J. Weitenberg、A. Hertlein、A. Grinin、A. Matveev、R. Pohl、T. W. Hänsch 和 Th. Udem，《用于近紫外光的改进型主动式光纤回射器，配备强度稳定和偏振监测器》，《光学快报》**29**，7024–7048（2021年）。[36] V. Wirthl、L. Maisenbacher、J. Weitenberg、A. Hertlein、A. Grinin、A. Matveev、R. Pohl、T. W. Hänsch 和 Th. Udem，《用于近紫外光的改进型主动式光纤回射器，配备强度稳定和偏振监测器：勘误》，《光学快报》**30**，7340–7341（2022年）。[37] N. Kolachevsky、M. Haas、U. D. Jentschura、M. Herrmann、P. Fendel、M. Fischer、R. Holzwarth、Th. Udem、C. H. Keitel 和 T. W. Hänsch，《氢原子束中1S-2S跃迁的光电离展宽》，《物理评论A》**74**，052504（2006年）。[38] H. A. Bethe 和 E. E. Salpeter，《单电子和双电子原子的量子力学》（施普林格，1957年）。[39] A. Kramida，《氢、氘和氚谱线及能级实验数据的批判性汇编》，《原子数据与核数据表》**96**，586–644（2010年）。[40] M. Horbatsch 和 E. A. Hessels，《原子氢束缚态能量表》，《物理评论A》**93**，022513（2016年）。[41] F. Heiße、F. Köhler-Langes、S. Rau、J. Hou、S. Junck、A. Kracke、A. Mooser、W. Quint、S. Ulmer、G. Werth、K. Blaum 和 S. Sturm，《质子原子质量的高精度测量》，Physical Review Letters **119**，033001（2017年）。[42] S. Alighanbari、G. S. Giri、F. L. Constantin、V. I. Korobov 和 S. Schiller，《利用氢氘分子+离子对量子电动力学进行精确检验并测定基本常数》，《自然》**581**，152–158（2020年）。[43] S. Klarsfeld，《亚稳态类氢原子的辐射衰变》，《物理学快报A》**30A**，382–383（1969年）。[44] P. J. Mohr 和 W. D. Phillips，《国际单位制中的无量纲单位》，《计量学》**52**，40–47（2015年）。

[45] M. Horbatsch 和 E. A. Hessels，《远处邻近共振引起的频移》，《物理评论A》**82**，052519（2010年）。[46] E. Tiesinga、P. J. Mohr、D. B. Newell 和 B. N. Taylor，《CODATA推荐的基本物理常数值：2018》，《现代物理评论》**93**，025010（2021年）。[47] W. L. Wiese 和 J. R. Fuhr，《氢、氦和锂的精确原子跃迁概率》，《物理与化学参考数据杂志》**38**，565–720（2009年）。[48] J. L. Hall、C. J. Bordé 和 K. Uehara，《利用饱和吸收光谱学直接光学分辨反冲效应》，Physical Review Letters **37**，1339–1342（1976年）。[49] D. Hasselkamp、E. Mondry 和 A. Scharmann，《横向多普勒频移的直接观测》，《物理学杂志A：原子与原子核》**289**，151–155（1979年）。[50] B. Botermann 等，《利用储存的锂+ 离子作为相对论速度下的时钟检验时间膨胀》，Physical Review Letters **113**，120405（2014年）。[51] R. Loudon，《光的量子理论》，第3版（牛津大学出版社，2000年）。[52] C. J. Foot，《原子物理学》（牛津大学出版社，2005年）。[53] J. J. Olivero 和 R. L. Longbothum，《Voigt线宽的经验拟合：简要综述》，《定量光谱学与辐射传输杂志》**17**，233–236（1977年）。[54] T. W. Hänsch、S. A. Lee、R. Wallenstein 和 C. Wieman，《氢1S-2S的无多普勒双光子光谱学》，Physical Review Letters **34**，307–309（1975年）。[55] M. G. Boshier、P. E. Baird、C. J. Foot、E. A. Hinds、M. D. Plimmer、D. N. Stacey、J. B. Swan、D. A. Tate、D. M. Warrington 和 G. K. Woodgate，《氢和氘中1S-2S跃迁的激光光谱学：1S态兰姆位移和里德伯常数的测定》，《物理评论A》**40**，6169–6184（1989年）。[56] L. Essen、R. W. Donaldson、M. J. Bangham 和 E. G. Hope，《氢脉泽的频率》，《自然》**229**，110–111（1971年）。[57] N. Kolachevsky、A. Matveev、J. Alnis、C. G. Parthey、S. G. Karshenboim 和 T. W. Hänsch，《原子氢2S超精细间隔的测量》，Physical Review Letters **102**，213002（2009年）。[58] M. Haas、U. Jentschura、C. Keitel、N. Kolachevsky、M. Herrmann、P. Fendel、M. Fischer、Th. Udem、R. Holzwarth、T. Hänsch、M. Scully 和 G. Agarwal，《包含交流斯塔克位移和电离效应的束缚双体库仑系统双光子激发动力学》，《物理评论A》**73**，052501（2006年）。[59] W. De mtröder，《激光光谱学1：基本原理》，第5版（施普林格，2014年）。[60] W. L. Fite、R. T. Brackmann、D. G. Hummer 和 R. F. Stebbings，《原子氢2S态的寿命》，《物理评论》**116**，363–367（1959年）。[61] Z. Ficek 和 S. Swain，《量子干涉与相干性：理论与实验》（施普林格，2005年）。[62] H. J. Metcalf 和 P. van der Straten，《激光冷却与囚禁》（施普林格，1999年）。

[63] A. A. Buchheit 和 G. Morigi，“高精度光谱学的主方程”，《物理评论A》**94**，042111（2016年）。[64] J. J. Sakurai 和 J. Napolitano，《现代量子力学》，第2版（Addison-Wesley Publishing，2011年）。[65] J. J. Sakurai，《高级量子力学》（Addison-Wesley Publishing，1967年）。[66] Claude Cohen-Tannoudji、J. Dupont-Roc 和 G. Grynberg，《原子—光子相互作用》（Wiley-VCH，2004年）。[67] C. Salomon、J. Dalibard、A. Aspect、H. Metcalf 和 C. Cohen-Tannoudji，“激光驻波中的原子导引”，Physical Review Letters **59**，1659–1662（1987年）。[68] F. Minardi、M. Artoni、P. Cancio、M. Inguscio、G. Giusfredi 和 I. Carusotto，“光的力学效应诱导的饱和光谱学频移”，《物理评论A》**60**，4164–4167（1999年）。[69] P. L. Kapitza 和 P. A. M. Dirac，“驻波光中的电子反射”，Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society **29**，297–300（1933年）。[70] I. Bloch、T. W. Hänsch 和 T. Essilinger，“相变处囚禁玻色气体空间相干性的测量”，《自然》**403**，166–170（2000年）。[71] M. Born、E. Wolf、A. B. Bhatia、P. C. Clemmow、D. Gabor、A. R. Stokes、A. M. Taylor、P. A. Wayman 和 W. L. Wilcock，《光学原理：传播、干涉和光的衍射的电磁理论》，第7版（Cambridge University Press，1999年）。[72] M. Hillery、R. O’Connell、M. Scully 和 E. Wigner，“物理学中的分布函数：基础”，Physics Reports **106**，121–167（1984年）。[73] Wolfgang. Schleich，《相空间中的量子光学》（Wiley-VCH，2001年）。[74] K. Zalewski，“经典相空间分布与多粒子产生过程中维格纳函数之间的关系”，Acta Physica Polonica B **39**，181–192（2008年）。[75] C. Kurtsiefer、T. Pfau 和 J. Mlynek，“氦原子系综维格纳函数的测量”，《自然》**386**，150–153（1997年）。[76] X. Zheng、Y. R. Sun、J.-J. Chen、J.-L. Wen 和 S.-M. Hu，“原子氦激光光谱学中的光力诱导频移”，《物理评论A》**99**，032506（2019年）。[77] K. Mølmer、Y. Castin 和 J. Dalibard，“量子光学中的蒙特卡罗波函数方法”，Journal of the Optical Society of America B **10**，524–538（1993年）。[78] P. J. Martin、B. G. Oldaker、A. H. Miklich 和 D. E. Pritchard，“驻波光中原子的布拉格散射”，Physical Review Letters **60**，515–518（1988年）。[79] J. Dalibard、Y. Castin 和 K. Mølmer，“量子光学中耗散过程的波函数方法”，Physical Review Letters **68**，580–583（1992年）。[80] P. Zoller、M. Marte 和 D. F. Walls，“原子系统中的量子跃迁”，《物理评论A》**35**，198–207（1987年）。[81] K. Jousten，《Wutz 真空技术手册》，第8版（Vieweg+Teubner Verlag，2004年）。

[82] N. Kolachevsky、J. Alnis、C. G. Parthey、A. Matveev、R. Landig 和 T. W. Hänsch，“用于原子氢1S-2S光谱学的低相位噪声二极管激光振荡器”，《光学快报》**36**，4299–301（2011年）。[83] L.-S. Ma、P. Jungner、J. Ye 和 J. L. Hall，“在两处传输相同的光学频率：精确消除光纤或其他时变路径引入的相位噪声”，《光学快报》**19**，1777–1779（1994年）。[84] J. Alnis、A. Matveev、N. Kolachevsky、Th. Udem 和 T. W. Hänsch，“通过稳频至振动和热补偿的超低膨胀玻璃法布里-珀罗腔获得亚赫兹线宽二极管激光器”，《物理评论A》**77**，053809（2008年）。[85] R. W. P. Drever、J. L. Hall、F. V. Kowalski、J. Hough、G. M. Ford、A. J. Munley 和 H. Ward，“利用光学谐振腔进行激光相位和频率稳频”，《应用物理B：光物理与激光化学》**31**，97–105（1983年）。[86] A. Ashkin、G. Boyd 和 J. Dziedzic，“共振光学二次谐波产生与混频”，《IEEE量子电子学杂志》**2**，109–124（1966年）。[87] R. W. Boyd，《非线性光学》，第4版（学术出版社，2020年）。[88] A. E. Siegman，《激光器》（大学科学图书，1986年）。[89] M. J erman、Z. Qiao 和 D. Mergel，“SiO_2, ZrO_2, 和HfO_2 薄膜的折射率随薄膜质量密度的变化”，《应用光学》**44**，3006–3012（2005年）。[90] I. H. Malitson，“熔融石英折射率的样品间比较”，《美国光学学会杂志》**55**，1205–1209（1965年）。[91] K. Yamada、T. Yamazaki、N. Sei、R. Suzuki、T. Ohdaira、T. Shimizu、M. Kawai、M. Yokoyama、T. Mikado、T. Noguchi、S. Sugiyama 和 H. Ohgaki，“紫外自由电子激光器中腔反射镜退化的饱和”，《核仪器与方法》物理研究A辑：加速器、光谱仪、探测器及相关设备**393**，44–49（1997年）。[92] E. Peters，“直接频率梳光谱学的实验与理论研究”，博士论文（慕尼黑路德维希-马克西米利安大学，2011年）。[93] B. X. R. Alves，“反氢光谱学与基本对称性检验”，博士论文（奥胡斯大学，2016年）。[94] H. Fleurbaey，“氢1S-3S跃迁的频率计量学：对质子电荷半径的贡献”（皮埃尔和玛丽·居里大学，2017年）。[95] S. F. Cooper、Z. Burkley、A. D. Brandt、C. Rasor 和 D. C. Yost，“用于原子氢双光子冷却的腔增强深紫外激光器”，《光学快报》**43**，1375–1378（2018年）。[96] R. R. Kunz、V. Liberman 和 D. K. Downs，“光刻光学元件上有机光污染的实验与建模”，《真空科学与技术杂志B：微电子与纳米结构》**18**，1306–1313（2000年）。[97] D. Gangloff、M. Shi、T. Wu、A. Bylinskii、B. Braverman、M. Gutierrez、R. Nichols、J. Li、K. Aichholz、M. Cetina、L. Karpa、B. Jelenković、I. Chuang 和 V. Vuletić，“防止并逆转高精细度五氧化二钽反射镜涂层中的真空诱导光学损耗”，《光学快报》**23**，18014–18028（2015年）。

[98] W. Nagourney，《原子物理学与电信量子电子学》（牛津大学出版社，2010年）。[99] C. A. Ebbers，“ β-BaB_2O_4中的线性电光效应”，《应用物理快报》**52**，1948–1949（1988）。[100] S. N. Shafrir、H. J. Romanofsky、M. Skarlinski、M. Wang、C. Miao、S. Salzman、T. Chartier、J. Mici、J. C. Lambropoulos、R. Shen、H. Yang和S. D. Jacobs，“用于抛光光学玻璃和陶瓷的氧化锆涂覆羰基铁颗粒基磁流变液”，《应用光学》**48**，6797–6810（2009）。[101] C. Kumari和S. K. Chak，“磁辅助磨料加工及其关键工艺参数综述”，《制造评论》**5**，13–16（2018）。[102] A. E. Siegman，“四次相位像差导致的激光束质量退化分析”，《应用光学》**32**，5893–5901（1993）。[103] 国际标准化组织，《激光器及激光相关设备——激光束宽度、发散角和光束传播比的测试方法》，ISO 11146:2005标准（2005）。[104] N. Hodgson和H. Weber，《激光谐振腔与光束传播：基础、进阶概念及应用》（施普林格，2005）。[105] P. A. Bélanger，“光束传播与ABCD光线矩阵”，《光学快报》**16**，196–198（1991）。[106] S. Amarande、A. Giesen和H. Hügel，“自会聚光束宽度的传播分析及硬边衍射光束的表征”，《应用光学》**39**，3914–3924（2000）。[107] N. Bey，《光谱分辨光束质量测量》，硕士论文（亚琛工业大学，2013年）。[108] E. Brinkmeyer，“单模光纤中的背向散射”，《电子学快报》**16**，329–330（1980）。[109] E. Brinkmeyer，“单模光纤背向散射法分析”，《美国光学学会杂志》**70**，1010–1012（1980）。[110] M. Nakazawa，“单模光纤的瑞利背向散射理论”，《美国光学学会杂志》**73**，1175–1180（1983）。[111] D. H. Goldstein，《偏振光》，第3版（CRC出版社，2017年）。[112] H. Hurwitz和R. C. Jones，“光学系统处理的新演算。II. 三个一般等价定理的证明”，《美国光学学会杂志》**31**，493–499（1941）。[113] S.-Y. Lu和R. A. Chipman，“基于极分解的穆勒矩阵解释”，《美国光学学会杂志A辑》**13**，1106–1113（1996）。[114] J. T. M. Walraven和I. F. Silvera，“氦温原子氢束源”，《科学仪器评论》**53**，1167–1181（1982）。[115] R. G. Livesey，“气体在管道和孔口中的流动”，载于《真空科学与技术基础》（Wiley，1998），第81–105页。

[116] D. N. Mitchell和D. J. LeRoy，“室温下氢原子复合轨道共振理论的实验检验”，《化学物理学杂志》**67**，1042–1050（1977年）。[117] D. Singy、P. Schmelzbach、W. Grüebler和W. Zhang，“低温下致密偏振氢原子束产生过程中的表面复合研究”，《核仪器与方法》B辑：束流与材料及原子相互作用**47**，167–180（1990）。[118] A. Hershcovitch、A. Kponou和T. O. Niinikoski，“冷高强度原子氢束源”，《科学仪器评论》**58**，547–556（1987）。[119] N. F. Ramsey，《分子束》（牛津大学出版社，1956年）。[120] S. F. Cooper、A. D. Brandt、C. Rasor、Z. Burkley和D. C. Yost，“具有速度表征功能的低温原子氢束装置”，《科学仪器评论》**91**，013201（2020年）。[121] S. Galtier、H. Fleurbaey、S. Thomas、L. Julien、F. Biraben和F. Nez，“氢原子1S-3S跃迁光谱研究进展”，《物理与化学参考数据杂志》**44**，031201（2015年）。[122] P. Forman，“Atomichron：从概念到商业产品的原子钟”，《IEEE会刊》，1181–1204（1985）。[123] F. Riehle，《频率标准：基础与应用》（Wiley-VCH，2005年）。[124] I. Estermann、O. C. Simpson和O. Stern，“原子自由落体与铯原子分子束速度分布的测量”，《物理评论》**71**，238–249（1947）。[125] E. J. Manista和L. R. Center，《经典硬球气体散射导致的原子束速度分布畸变》（美国国家航空航天局，1965年）。[126] D. R. Olander、R. H. Jones和W. J. Siekhaus，“由多通道阵列制成的分子束源。IV. 中心线束流中的速度分布”，《应用物理学杂志》**41**，4388–4391（1970）。[127] W.G. Vincenti和C.H.Kruger，《物理气体动力学导论》（Wiley，1965）。[128] R. A. Buckingham和E. Gal，“量子理论在稀薄气体黏度研究中的应用”，载于《原子与分子物理学进展》第4卷，D. R. Bates和I. B. T. Estermann编（学术出版社，1968），第37–61页。[129] J. R. Stallcop、E. Levin和H. Partridge，“氢的输运性质”，《热物理学与传热杂志》**12**，514–519（1998）。[130] P. C. Souers、C. K. Briggs、J. W. Pyper和R. T. Tsugawa，《4开尔文至30 开尔文范围内的氢蒸气压：综述》（劳伦斯利弗莫尔实验室，1977年）。[131] S. B. Crampton，“吸附在冻结氢$_2$ 表面上的氢原子共振研究”，《物理学杂志会议录》**41**，C7-249-C7–255（1980）。[132] C. A. Kroll，“用于2S-nP氢光谱学的低发散原子束”，文学学士论文（慕尼黑路德维希-马克西米利安大学，2016年）。[133] B. Feuerbacher，“卫星表面材料光电发射的实验研究”，《应用物理学杂志》**43**，1563–1572（1972）。

[134] W. F. Krolikowski 和 W. E. Spicer，“贵金属的光电发射研究：I. 铜”，《物理评论》**185**，882–900（1969年）。[135] K. A. Yasakau、A. N. Salak、M.L. Zheludkevich 和 M. G. S. Ferreira，“利用扫描开尔文探针力显微镜研究氧化铝的伏打电势”，《物理化学杂志C》**114**，8474–8484（2010年）。[136] C. G. Parthey，《原子氢的精密光谱学》，博士论文（慕尼黑路德维希-马克西米利安大学，2011年）。[137] D. Yost、A. Matveev、A. Grinin、E. Peters、L. Maisenbacher、A. Beyer、R. Pohl、N. Kolachevsky、K. Khabarova、T. Hänsch 和 Th. Udem，“利用啁啾激光脉冲对氢原子的1S-3S跃迁进行光谱测量”，《物理评论A》**93**，042509（2016年）。[138] M. Weidinger、M. Marrocco、R. T. Sang 和 H. Walther，“利用超高分辨率光谱学表征铌腔中的杂散电场”，Optics Communications **141**，273–278（1997年）。[139] F. D. Stott，“磁场中胶体溶液的光学透射”，Proceed-ings of the Physical Society. Section B **62**，418–430（1949年）。[140] N. L. Martin 和 A. Von Engel，“慢电子在覆炭黑表面上的反射”，《物理学杂志 D：应用物理》**10**，863–866（1977年）。[141] F. P. Fehlner 和 N. F. Mott，“低温氧化”，《金属氧化》**2**，59–99（1970年）。[142] J. Adams 和 B. W. Manley，“通道电子倍增的机制”，《IEEE核科学汇刊》**13**，88–99（1966年）。[143] Burle Industries，质谱应用用通道电子倍增器手册。[144] Photonis，*MAGNUM 5900*系列电子倍增器，2009年。[145] W. G. Wolber，预放大型 *Spiraltron 4219X* 型电子倍增器的低温运行。*Bendix*技术应用说明 *6901*，1969年。[146] L. A. Frank、N. K. Henderson 和 R. L. Swisher，“实验室运行环境中连续通道电子倍增器的性能退化”，《科学仪器评论》**40**，685–689（1969年）。[147] F. Bordoni，“10–1000 eV电子的通道电子倍增器效率”，《核仪器与方法》**97**，405–408（1971年）。[148] J. E. Mack、F. Paresce 和 S. Bowyer，“通道电子倍增器：其在软X射线和真空紫外波长下的量子效率”，《应用光学》**15**，861–862（1976年）。[149] F. Paresce，“通道电子倍增器在远紫外波段的量子效率”，《应用光学》**14**，2823–2824（1975年）。[150] V. Baglin、J. Bojko、O. Gröbner、B. Henrist、N. Hilleret、C. Scheuerlein 和 M. Ta-borelli，工程材料的二次电子产额及其随表面处理的变化（欧洲核子研究中心，2000年9月）。[151] M. Bronshtein 和 B. S. Fraiman，二次电子发射（Atomizdat，1969年）。

[152] J. Roupie、O. Jbara、T. Tondu、M. Belhaj 和 J. Puech，“利用蒙特卡罗模拟研究极低初级能量范围内铝的电子发射”，《物理学杂志 D：应用物理》**46**，125306（2013年）。[153] C. R. Harris 等，“使用 NumPy 进行数组编程”，《自然》**585**，357–362（2020年）。[154] W. McKinney，“用于 Python 统计计算的数据结构”，载于第九届 Python 科学会议论文集（2010年），第56–61页。[155] Q. Koziol 和 D. Robinson，*HDF5*，2018年。[156] R. Holzwarth、Th. Udem、T. W. Hänsch、J. C. Knight、W. J. Wadsworth 和 P. S. J. Russell，“用于精密光谱学的光学频率合成器”，Physical Review Letters **85**，2264–2267（2000年）。[157] G. Kramer 和 W. Klische，“超高精度数字相位记录仪”，载于第18届欧洲频率与时间论坛（EFTF 2004）（2004年4月），第595–602页。[158] E. Rubiola，“高分辨率计数器对频率及其样本方差的测量”，《科学仪器评论》**76**，054703（2005年）。[159] W. H. Press、S. A. Teukolsky、W. T. Vetterling 和 B. P. Flannery，《数值食谱：科学计算的艺术》，第3版（Cambridge University Press，2007年）。[160] 粒子数据组，“粒子物理学评论”，Phyiscal Review D**98**，030001（2018年）。[161] I. I. Sobelman，原子光谱理论导论（培格曼出版社，1972年）。[162] A. Matveev、N. Kolachevsky、C. M. Adhikari 和 U. D. Jentschura，“高精度氢光谱学中的压力频移：II. 冲击近似与蒙特卡罗模拟”，《物理学杂志 B：原子、分子与光学物理》**52**，075006（2019年）。[163] S. J. Brodsky 和 R. G. Parsons，“原子氢和氘的塞曼光谱及兰姆位移的精确理论”，《物理评论》**163**，134–146（1967年）。[164] S. J. Brodsky 和 R. G. Parsons，“勘误：原子氢和氘的塞曼光谱及兰姆位移的精确理论”，《物理评论》**176**，423–423（1968年）。[165] F. Stehr，《原子氢中2S-8P 跃迁光谱测量的激光系统搭建》，硕士论文（慕尼黑路德维希-马克西米利安大学，2016年）。[166] R. Pohl 等，“μ子氘的激光光谱学”，《科学》**353**，669–673（2016年）。[167] R. Pohl、F. Nez、Th. Udem、A. Antognini、A. Beyer、H. Fleurbaey、A. Grinin、T. W. Hänsch、L. Julien、F. Kottmann、J. J. Krauth、L. Maisenbacher、A. Matveev 和 F. Biraben，“从原子氘光谱数据测得的氘核电荷半径和里德伯常数”，《计量学》**54**，L1–L10（2017年）。[168] C. J. Sansonetti、C. E. Simien、J. D. Gillaspy、J. N. Tan、S. M. Brewer、R. C. Brown、S. Wu 和 J. V. Porto，“基于频率梳的测量中锂 D 线的绝对跃迁频率与量子干涉”，Physical Review Letters**107**，023001（2011年）。

[169] R. C. Brown、S. Wu、J. V. Porto、C. J. Sansonetti、C. E. Simien、S. M. Brewer、J. N. Tan 和 J. D. Gillaspy，“不可分辨原子谱线中的量子干涉和光偏振效应：应用于 ^{6,7}Li D_2 谱线的精密测量”，《物理评论A》**87**，032504（2013年）。[170] M. Ahmadi 等，“受困反氢中1S-2S跃迁的观测”，《自然》**541**，506–512（2017年）。[171] M. Ahmadi 等，“反氢中1S-2S跃迁的表征”，《自然》**557**，71–75（2018年）。[172] ALPHA合作组，“反氢精细结构的研究”，《自然》**578**，375–380（2020年）。[173] T. W. Hänsch 和 A. L. Schawlow，“利用激光辐射冷却气体”，Optics Communications **13**，68–69（1975年）。[174] K. Eikema、J. Walz 和 T. Hänsch，“原子氢的连续相干莱曼-α 激发”，Physical Review Letters**86**，5679–5682（2001年）。[175] V. Zehnlé 和 J. C. Garreau，“利用双光子跃迁对氢原子进行连续波多普勒冷却”，《物理评论A》**63**，021402（2001年）。[176] D. Kielpinski，“利用超快脉冲冷却原子和分子”，《物理评论A》**73**，063407（2006年）。[177] S. Wu、R. C. Brown、W. D. Phillips 和 J. V. Porto，“用于原子（反）氢激光冷却的脉冲西西弗斯方案”，Physical Review Letters **106**，213001（2011年）。[178] M. Ahmadi 等，“反氢中1S–2P莱曼-α 跃迁的观测”，《自然》**561**，211–215（2018年）。[179] Z. Burkley、A. D. Brandt、C. Rasor、S. F. Cooper 和 D. C. Yost，“通过倍频Yb光纤激光系统产生高相干、瓦级深紫外光辐射”，《应用光学》**58**，1657–1661（2019年）。[180] C. M. Adhikari、A. Kawasaki 和 U. D. Jentschura，“氢1S-2S跃迁的神奇波长：连续谱和约化质量修正的贡献”，《物理评论A》**94**，032510（2016年）。[181] F. Siviero、L. Caruso、T. Porcelli、M. Mura、E. Maccallini、P. Manini、E. Sartori、M. Siragusa、C. Day 和 P. Sonato，“用于聚变应用的ZAO®烧结吸气剂材料的表征”，Fusion Engineering and Design **146**，1729–1732（2019年）。[182] K. Szymaniec、S. N. Lea、K. Gibble、S. E. Park、K. Liu 和 P. Głowacki，“NPL铯喷泉频率标准与对极限准确度的追求”，Journal of Physics: Conference Series **723**，012003（2016年）。[183] M. Haas、U. D. Jentschura 和 C. H. Keitel，“动态斯塔克位移的经典描述与二次量子化描述的比较”，American Journal of Physics **74**，77–81（2006年）。[184] L. Allen 和 H. E. Joseph，光学共振与两能级原子 （Wiley，1975年）。[185] G. Grynberg、F. Biraben、E. Giacobino 和 B. Cagnac，“氖的无多普勒双光子光谱学。II. 谱线强度”，Journal de Physique **38**，629–640（1977年）。[186] A. R. Edmonds，量子力学中的角动量 （Princeton University Press，1957年）。

本修订版的更改列表

- 表 2.1（以及相关的表 B.1）和多个章节：在偶极矩中加入约化质量修正，并相应更新拉比频率、线宽、衰变率、交流斯塔克频移和光电离系数的数值；更新图注并添加参考文献 [47]；更新全文中的 2S-6P 线宽。

- 表 2.1，脚注 a：修正了莱曼-ϵ 信号贡献，从 $\sim$99% 改为 $\sim$97%。
- 第 2.4 节：补充了模拟的详细信息，并说明直流斯塔克频移系数对光谱探测效率的依赖关系。

- 表 2.6：对微扰直流斯塔克频移系数进行缩放，以计入偶极矩中的约化质量修正；在图注中补充了模拟参数。
- 第 3.3.4 节：阐明了传播距离对横向相干长度的影响。
- 第 3.3.4 节和第 3.4.2 节：更正了使用中间孔径时维格纳函数中的一些数值。

- 第 3.3.5 节：澄清了对完全离域原子产生的信号求和的表述。
- 第 3.4.1 节，公式 (3.44)：更正了 $(\Delta p_{\mathrm{D}}/\hbar K_{\mathrm{K}}) \rightarrow (\Delta p_{\mathrm{D}}/\hbar K_{\mathrm{K}})^2$。
- 图 4.1：补上了遗漏的标签“AB”，并更正了标签“RC”。
- 第 4.3 节：补充了 1S-2S 制备激光器的原子失谐定义 $\Delta\nu_{\text{1S-2S}}$ （并全文统一使用“原子失谐”这一表述）。
- 第 4.4 节和第 4.4.1 节：补充了 2S-6P 光谱激光器失谐的定义 $\Delta\nu_{\text{2S-6P}}$。
- 第 4.4.6 节：新增说明，即使不存在圆双折射（$\phi = 0$），也无法重建线性激光偏振角。

- 第4.6.2节：修正了 CEM偏置电流方程和方向。
- 第4.6.3节：修正了图引用（图 4.37 $\rightarrow$ 图4.36）。
- 第 4.8 节：修正了激光漂移率；已移除关于激光光谱的不完整讨论部分。

- 第 5.1.1.5 节：修正了约化卡方分布标准差的定义。

- 表 5.3：修正了243纳米束腰到喷嘴孔口的距离。
- 第6.2.3节：将2S-6P$_{1/2}$ 和2S-6P$_{3/2}$ 跃迁的量子干涉位移幅度分别修正为5.1千赫兹和2.6千赫兹；明确数据组G1B属于2S-6P$_{1/2}$ 跃迁。

- 第6.2.4.6节：修正了公式引用。
- 表B.3和B.5：修正了巴尔末系-$\gamma \rightarrow$ 巴尔末系-β。
- 参考文献：为参考文献 [35] [36] 添加了勘误；修正了 [27, 35]的作者列表；总共新增了两条参考文献，导致全文中的参考文献编号发生变化。

- 修正了全文中的各种拼写错误和语法问题。