arXiv:2512.16018v1 [physics.atom-ph] 17 Dec 2025

正电子素中 $1^3S_1 \to 2^3S_1$ 区间的连续波激光精密测量

Lucas de Sousa Borges,[1], * Edward Thorpe-Woods,[1], † Evans Javary,[1], ‡ 和 Paolo Crivelli[1], §
[1] *Institute for Particle Physics and Astrophysics, ETH Zürich, CH-8093 Zürich, Switzerland*
（日期：2025年12月19日）

我们利用连续波双光子激光光谱学，对正电子素的 $1^3S_1 \to 2^3S_1$ 区间进行了4.9 ppb的测量。通过同一台激发激光引起的光电离来探测该跃迁。由此产生的正电子被引导至微通道板探测器；探测器周围设置了闪烁体，用于符合探测湮灭光子，从而降低背景。通过蒙特卡洛线形模拟，计及二阶多普勒频移和交流斯塔克位移等效应，提取出跃迁频率1 233 607 224.1(6.0) 兆赫。这一结果与此前对该跃迁进行的2.6 ppb测定以及最新的量子电动力学计算一致；后者在 $\mathcal{O}(\alpha^7 \ln^2(1/\alpha))$阶预测频率为1 233 607 222.12(58) 兆赫。结合两次测量得到1 233 607 218.1(2.8) 兆赫，将与量子电动力学之间的张力降低至约 $1.4\,\sigma$。我们还给出了正电子素 $1^3S_1 \to 2^3S_1$ 的半解析线型模型，该模型与详细模拟高度吻合，并得到实验数据的验证。这项工作拓展了此前针对稳定原子的研究，纳入了原子有限寿命、光电离和交流斯塔克位移等效应。该线形建模同样适用于其他不稳定系统，例如μ子素。这为优化实验参数以及在无需计算密集型模拟的情况下获得更深入的认识提供了有力工具。

I. 引言

正电子素（Ps）是电子与正电子的束缚态，为检验束缚态量子电动力学（QED）和探索新物理提供了独特的平台（关于该领域的最新全面综述，见 [1] 及其中的参考文献）。由于不存在核结构，正电子素使能级间隔的精密测量能够与达到亚 ppb 精度的高阶理论预测值直接比较 [2–16]。

过去几十年来，人们对正电子素的若干性质进行了精密测量。长期悬而未决的正电子素正态寿命疑难已得到解决，实验结果与量子电动力学的预测值高度吻合 [17, 18]。然而，实验精度仍比理论测定值 [1] 低约两个数量级，因此有必要进一步提高精度。

基态超精细分裂已在东京通过测量得到确定，且系统误差有所降低 [19], ；而$n = 2$ 精细结构间隔则通过微波光谱学 [20]以高精度测定。

首次演示正电子素激光冷却，展现出巨大的潜力，有望制备更冷的样品，以用于新一代高精度光谱学 [21, 22]。

正电子素也是探测基本对称性的灵敏探针，可用于寻找 CP 和 CPT破坏 [23, 24] ，以及标准模型之外的新物理，例如暗扇区粒子或新的轻玻色子 [25, 26]。

目前，人们正重新致力于测量 $1^3S_1 \to 2^3S_1$间隔 [27], ，并以 Fee等人 [28]的开创性工作为基础。在这项工作中，我们报告了一项新的精密测量，其精度与目前对该间隔的最佳实验测定相当。

II. 实验方法

来自氖气慢化的 ^{22}Na 放射性源 [29] 的正电子（e^+）被积累在缓冲气体阱 [30]中，随后以脉冲形式射向多孔二氧化硅转换器，在无磁场区域 [33]提取后生成正电子素原子 [31, 32] 。正电子素中的 $1^3S_1 \to 2^3S_1$ 跃迁是电偶极禁戒跃迁，但可以通过吸收两个反向传播的 486 nm 光子来激发，从而抵消一阶多普勒频移。我们使用 Fabry–Perot 光学腔增强的连续波（CW）激光进行激发，确保较高的腔内循环功率；尽管该过程的截面较小，且原子与激光的相互作用时间有限，这种方式仍能实现高效的双光子激发。通过激发态原子吸收来自同一激光的另一个 486 纳米光子而发生光电离，实现对原子的探测。随后，光电离正电子经静电引导进入低背景探测区域；该区域由铅墙屏蔽，以隔绝靶中正电子湮灭产生的 γ 射线（见图 1）。这种屏蔽使我们能够在微通道板（MCP）上探测单个光电离正电子，并同时重建正电子湮灭产生的两个背对背 511 keV γ 射线；这些射线由围绕 MCP 放置的十个 BGO 闪烁体阵列记录（见图 2）。

* lucas.borges@phys.ethz.ch
† ethorpe@苏黎世联邦理工学院z.ch
‡ ejavary@ethz.ch§
crivelli@phys.ethz.ch

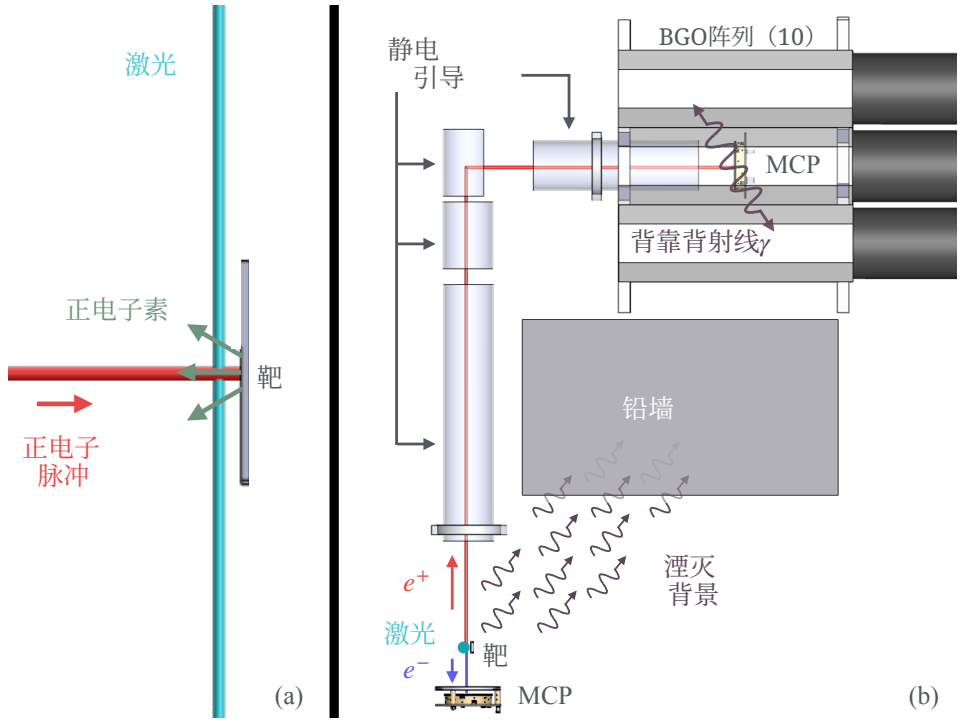

图 1. 正电子素 $1^3S_1 \rightarrow 2^3S_1$ 光谱实验方案示意图。(a) 正电子脉冲轰击多孔靶并形成正电子素。随后，原子在真空中发射出来，并穿过波长为 486 nm 的连续波激光器。激光将原子激发至 2S态，原子再通过吸收另一个光子发生电离。(b) 原子中光电离产生的组分（e^+、e^-）由靶、底部微通道板栅极和静电透镜上精心选定的电压分离。光电离正电子被引导至探测区域，与形成区域在空间上分开，以避免初始正电子脉冲产生的湮灭背景。形成区域和探测区域之间的铅屏蔽进一步抑制了这一背景。被引导的正电子最终撞击微通道板探测器并发生湮灭，产生两条背靠背的 511 keV γ射线，由一组经过校准的十个 BGO闪烁体探测。

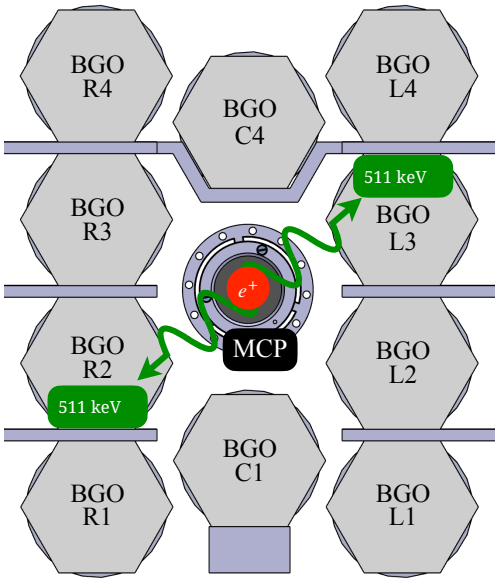

图 2. 用于三重符合探测方法的 BGO 闪烁体环绕的微通道板（详见正文）。

A. 正电子素形成

用于产生正电子素的脉冲正电子束已在文献 [33–35]中详细介绍。正电子源活度为 53(1) MBq 时，每秒约有 8000 个正电子以 4.7 keV 的能量、成簇时间为 5ns 的形式撞击多孔二氧化硅靶，生成三重态自旋状态（正电子素仲态）的正电子素，转换效率为 20(5)% [31, 32]。此前的研究表明，这种正电子素产生方法会使原子以真空中的速度分布逸出；对于给定的正电子注入能量 [34, 36]，该速度分布可用 600K 下的麦克斯韦-玻尔兹曼分布参数化。

B. 激光系统

图 3 展示了测量所用激光系统的概况。灰色阴影区域对应一台商用 Toptica DL pro，其 486 纳米倍频输出的线宽为 100 kHz。激光输出在增强腔中放大，该腔由两个相同的凹面（$R = 2$m）介质镜组成，透

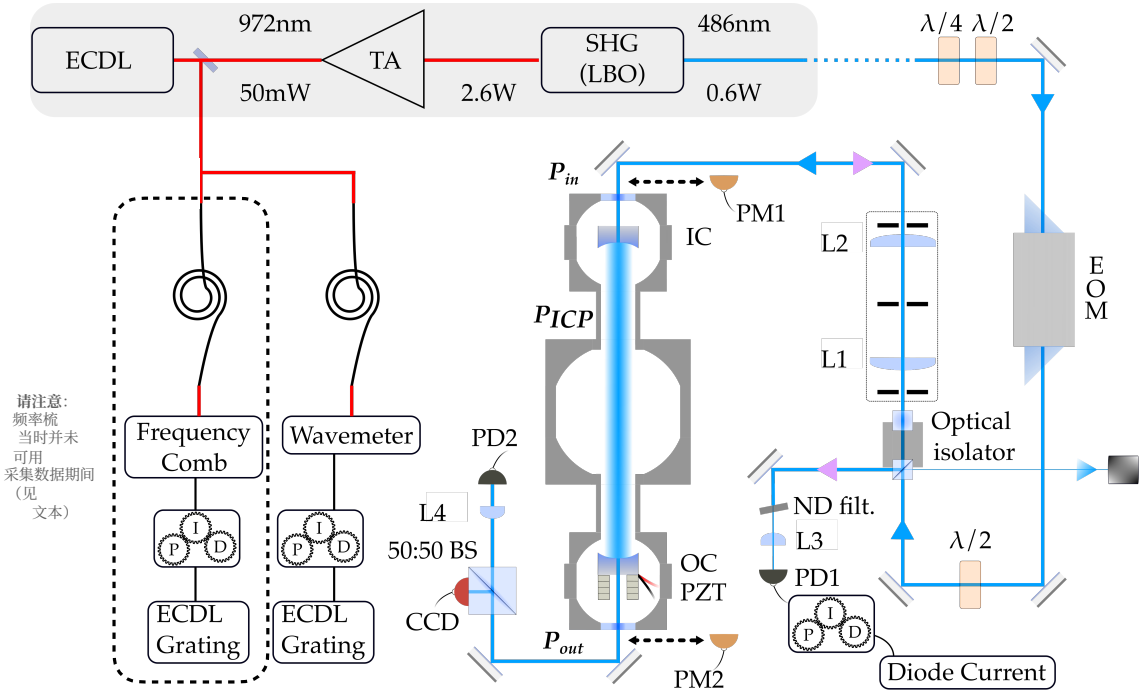

图3. 激光系统示意图。扩展腔二极管激光器（ECDL）、锥形放大器（TA）、二次谐波产生（SHG）、三硼酸锂（LBO）、分束器（BS）、电光调制器（EOM）、模式匹配透镜（L1-L2）、光电二极管（PD）、功率监测器（PM）、输入耦合器（IC）、输出耦合器（OC）、压电换能器堆栈（PZT）、中性密度滤光片（ND 滤光片）、超低膨胀腔（ULE）。

射率为 7.0(1) ppm，并通过 Pound-Drever-Hall（PDH）方法锁定 [37]。EOM 产生锁定方案所需的 17.8 兆赫边带；激光通过透镜 L1 和 L2 与腔模匹配；通过光隔离器前方的 $\lambda/2$ 波片控制腔内输入功率。反射功率被引导至 PDH 光电二极管，以产生误差信号。耦合效率达到 30%，但受腔镜阻抗失配限制；增强因子在 20 000–25 000 范围内，这意味着 60 mW 至 75 mW 的输入功率足以维持 400 W 至 500 W 的循环功率。功率最高可达 3.5 kW，但介质镜会在数分钟内退化，而腔在 500 W 下可持续数周保持性能。借助波长计（High Finesse WS7-60），激光频率在 486 nm 处稳定在 1 MHz 水平。频率梳当时正在升级，因此在这一数据采集期无法使用。该设备的 PID输出作用于激光二极管光栅的压电元件电压，以稳定频率。频率计量流程详见附录B，激光频率总不确定度为 5.4 兆赫。腔的焦点位于靶前方，束腰尺寸为 $w_0 = 310(2)\,\mu\text{m}$，距靶 3.5(5) mm。通过蒙特卡罗模拟估算，共振时的光电离概率为 $6(2)\cdot 10^{-6}$。

C. 信号探测

引导系统由一组电极以及施加到靶和微通道板上的电压构成。原子受激时所处的电场为 340(10) V m^{-1}。使用 SIMION [38] 进行的模拟表明，引导效率为 95(1) %。模拟估算，BGO闪烁体探测成对背向飞行的 511 keV 湮灭光子的效率为 65%。表 I 汇总了所述各过程的不同效率。速度分布、激光功率和激光位置等物理参数的不确定度会导致光电离概率存在不确定度。考虑到正电子脉冲为 4100(900) e^+，预期事件率为每脉冲 0.0015(8) 个事件。

	效率
正电子素形成	0.20(5)
激发与光电离	$6(2)\cdot 10^{-6}$
光电离正电子引导	0.95(1)
微通道板中的正电子探测	0.5(1)
湮灭 γ 重建（使用锗酸铋闪烁体）	0.65(5)
总计	$4(2)\cdot 10^{-7}$

表 I. 不同效率的汇总，给出了每个入射正电子探测到信号事件的总概率。

参数	Unit	数值
靶上光束形成	mm	2.0(2)
激光器与靶的距离	mm	3.5(5)
激光束腰	μm	310(2)
激光功率	W	460(50)
平均温度	K	600(30)

表 II. 用作模拟输入的实验参数及其不确定度。

D. 数据采集与分析

使用 WaveDREAM2 Rev. E [39], 采集数据，记录时长为 1 µs，采样率为 1 GS/s（分辨率为 1 ns）。记录 MCP、每个 BGO、钨酸铅（$PbWO_4$）晶体（见下一段）以及腔体光电二极管的波形，并在后处理中进行分析。

激光频率每 20 分钟改变一次。分析以逐事件为基础进行。正电子慢化体每 8 小时发生的性能退化与恢复，会导致实验腔室中的正电子素原子数量发生变化。通过钨酸铅闪烁体记录撞击靶的正电子总量，可校正这一影响。光电二极管监测激光腔的输出，从而正确统计激光腔锁定且激光功率处于 400 W 至 500 W 范围内的事件数量。

为抑制背景，采用三重符合探测方案。以钨酸铅闪烁体探测到正电子脉冲作为初始时间 t_0，预计光电离正电子会在 85ns 至 135 ns 的飞行时间窗口内到达微通道板。在此时间范围内，如果微通道板记录到一次击中，且同时探测到两个背对背的 511 keV γ 射线（如图 2 所示），则将该事件计为信号事件。

III. 线形建模

A. 用于线形拟合的蒙特卡洛模拟

为拟合数据，线形由详细的蒙特卡洛模型获得，该模型描述了 $1^3S_1 \rightarrow 2^3S_1$ 跃迁，并通过先前测量 [34, 40] 进行了验证。模拟再现了实验条件，包括正电子素原子的速度和空间分布，以及激光参数，并纳入了二阶多普勒效应和交流斯塔克位移等影响。初始正电子素空间分布建模为二维高斯分布，测得的标准差为 2.0(2)mm，这对应于正电子束在靶上的尺寸。4.7 keV SiO_2的平均注入深度仅为几百纳米，与束流直径相比可以忽略不计。因此，我们认为初始正电子素位置遵循束流轮廓，而不是因多孔层中的扩散而变宽。速度
在给定的正电子注入能量下，原子可用麦克斯韦–玻尔兹曼分布进行参数化，其典型温度为 600(30) K；原子的发射方向按照 $cos(\theta)$ 分布抽取，其中 θ 是相对于靶面法线的角度 [34, 35]。模拟的其他输入参数包括 3.5(5) mm 的激光器与靶的距离，以及 460(50)W 的激光功率。

对于每个此类参数，均在其给定的实验不确定度范围内改变输入值并重复模拟，所得谱线中心的相应变化被视为系统不确定度（见第 IV D 节）。

每个原子最初均处于 1S 基态。原子与波长为 486 nm 的连续波（CW）激光场之间的相互作用，采用光学布洛赫方程描述，并通过四阶龙格–库塔方法进行数值积分（详情见[34] 的附录B）。根据原子轨迹、激光位置和束腰，使用射线与圆柱相交法计算原子与激光场的交点（见图 4）。这样便能精确追踪原子态在与激光场相互作用期间的时间演化，包括激发至 2S态，以及吸收同一激光场中的另一个光子后可能发生的光电离。

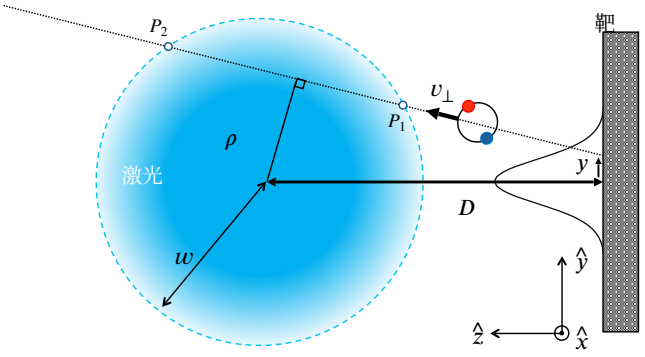

图 4. 正电子素穿过激光束时的轨迹。随着正电子素向激光束移动，光场逐渐增强；它经过距束轴最近的位置，距离为 ρ。

B. 半解析线型

上述蒙特卡罗模拟完整地模拟了实验条件。然而，这些模拟的计算量很大，尤其是在需要大量模拟光谱来拟合实验数据时。为了减少对模拟的依赖

为更清晰地描述$1^3S_1 \rightarrow 2^3S_1$ 正电子素光谱的数学形式，我们开发了一种基于二阶微扰理论的半解析线型模型。

线型的数学细节详见附录 A。2S 和电离线型的函数分别见方程 1 和 2，

$$\mathbf{L_{2S}} = \int_{-\infty}^{\infty} \mathcal{N}\left(\mu, \sigma^2\right) dy \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\frac{\pi}{2}} \sin 2\theta \times \int_0^{\infty} (1-\lambda_{2S}) \frac{4v^2\pi^2\beta_{ge}^2 I_0^2 w^2}{\sqrt{\pi} u^3 v_\perp^2} \exp\left\{ -\left(\frac{2\pi(\delta f + \Delta f_{AC} - \frac{v^2}{2c^2} f_0) w}{v_\perp} \right)^2 - \frac{D}{v_\perp \tau} - \frac{v^2}{u^2} - \frac{4\rho^2}{w^2} \right\} dv, \tag{1}$$

$$\mathbf{L_{ion}} = \int_{-\infty}^{\infty} \mathcal{N}\left(\mu, \sigma^2\right) dy \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\frac{\pi}{2}} \sin 2\theta \times \int_0^{\infty} (1-\lambda_i) \frac{1.4132\pi^3\beta_i\beta_{ge}^2 I_0^3 v^2 w^2}{\sqrt{\pi} u^3 v_\perp^2} \exp\left\{ -\frac{6\rho^2}{w^2} - \frac{D}{\tau v_\perp} - \frac{v^2}{u^2} \right\} V\left(\delta f + \Delta f_{AC} - \frac{v^2}{2c^2} f_0; 1.1132\eta; 0.4535\eta \right) dv. \tag{2}$$

$\mathcal{N}\left(\mu,\ \sigma^2\right)$ 是正电子束在 y 方向上的高斯分布，如图 4 所示，其中心点为 μ ，标准差为 σ。参数 φ 和θ 分别是相对于 z 轴的极角和方位角，该轴从靶面向外延伸。[41] 中计算得到的电离和双光子跃迁矩阵元分别为 β_i 和 β_{ge} 。变量 D 表示靶到激光器的距离，而 ρ和 $v_\perp$ 分别表示碰撞参数和垂直于激光的速度分量；后者隐含地依赖于 θ、 φ和 y （见图 4）。

这些线型函数涵盖了实验装置中存在的所有关键物理效应。具体而言，$\mathbf{L_{ion}}$ 是我们实验预期得到的线形，因为我们的探测技术依赖于同一激光中的额外一个 486 nm光子将2S态光电离。图 5 展示了在腔内功率为 46W 和 460 W 时，$\mathbf{L_{ion}}$ 与完整实验的蒙特卡罗模拟之间的比较。

由于$\mathbf{L_{ion}}$ 是通过微扰理论推导得出的，因此当激发至2S态或发生光电离的概率变得显著时，其准确性预计会降低，例如激光频率接近共振时运动缓慢的原子便是如此。460 W 的情况（见图 5）在线形峰值附近清楚地体现了这一点：与精确处理相比，$\mathbf{L_{ion}}$ 略微高估了光电离概率；对于 46 W 的光谱，这种差异则不那么显著。

为确定$\mathbf{L_{ion}}$ 在提取跃迁频率方面的有效性，我们将其与不同跃迁频率 f_0数值下的模拟结果进行比较。通过绘制 χ^2 随 f_0 的函数关系（见图 6），最小值—

值提供了最佳拟合值，而比最小值高一个单位的数值对应于不确定度。对于 46 W 和 460 W， $2\times f_0 - f_{1S-2S}$ 的数值与零一致，分别为 0.04±0.28 兆赫和 0.17±0.25 兆赫。这表明线型函数与模拟结果一致，可用于在给定实验条件下提取跃迁频率，其不确定度约为 0.3 兆赫。

IV. 结果与分析

A. 信号事件与背景抑制

在经过 ∼12 天的数据采集和分析后，共有1124个事件满足第二节D部分的选择标准。图7展示了一个满足三重符合探测方案的此类事件。能够重建背对背湮灭的BGO组合为R1-L4、R2-L3、R3-L2、R4-L1和C1-C4。根据测得的线形（见图8），信噪比（峰值相对于基线）超过20，表明该探测方案在抑制背景方面是有效的。

B. 模拟线形拟合

通过受限参数空间的高统计量模拟（更多详情见第 III B 节）生成数据拟合所需的模拟数据。随后对模拟数据进行分箱，并针对不同的跃迁频率拟合数据

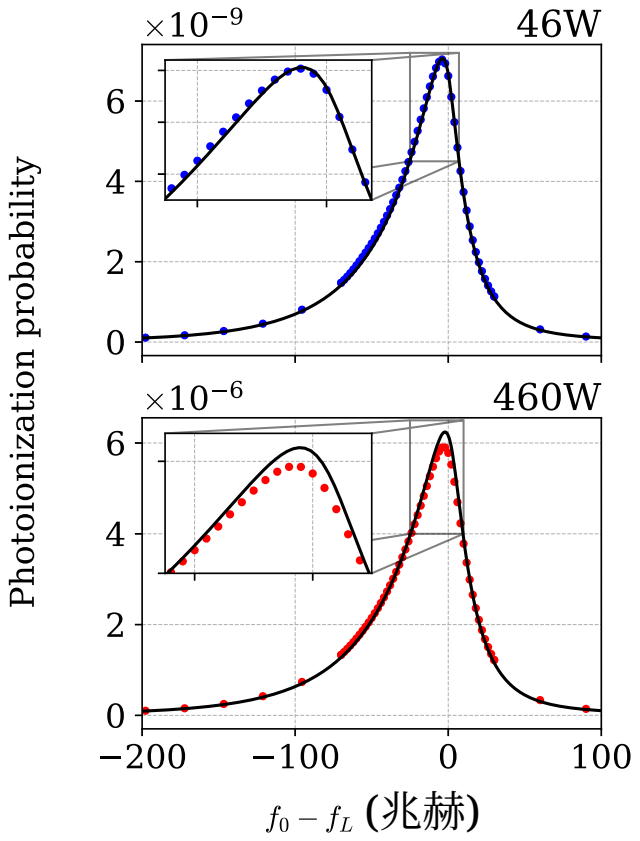

图 5. 数据点显示了在给定实验条件下（见表 II）模拟得到的正电子素光电离光谱，而实线绘出了对应于两种标示功率（46 W 和 460 W）的$\mathbf{L_{ion}}$；后者是采集实验数据时使用的标称功率。插图显示了峰值附近的光谱，突出了微扰理论导致的轻微高估。

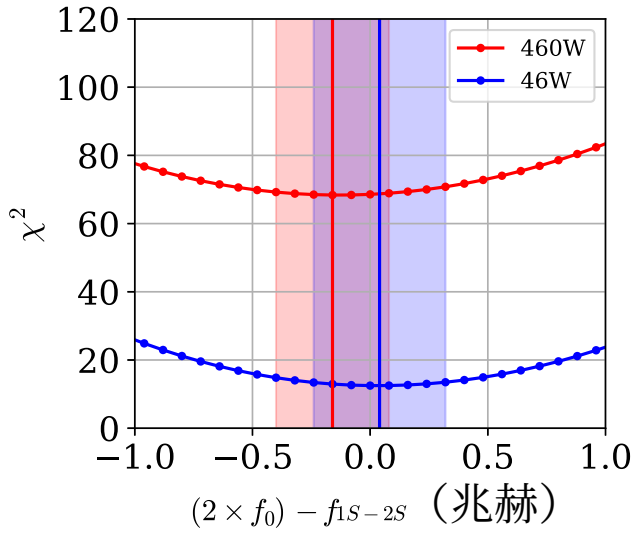

图 6. 获得的 χ^2 随 f_0 的变化（更多详情见正文）。

f_0，并进行 a χ^2 检验。拟合中使用两个自由参数：一个全局振幅，用于根据不同实验过程的效率（正电子到正电子素的转换、引导系统效率、微通道板量子效率、背靠背探测效率以及每脉冲正电子数）缩放模拟结果；另一个是全局偏移量，用于补偿背景。分析过程中引入了一个人为的频率偏移，并且仅在分析完成后才将其移除，以便揭盲结果。所得 χ^2 分布随 f_0 变化时的最小值，对应于实验值相对于理论预测值的最佳拟合位移。通过这一拟合过程，我们得到共振频率位移为 -54.9 ± 2.4 兆赫；相应的谱线拟合结果见图8。

最佳拟合得到的背景水平为每个正电子脉冲 2(1) $\cdot 10^{-5}$，振幅为 146(10)；相比之下，表 I 给出的预期振幅为 253(100)。

C. 解析线形拟合

$\mathbf{L_{ion}}$ 也可以拟合数据以提取跃迁频率。与拟合模拟结果一样，正电子脉冲大小、正电子平均温度、激光与靶之间的距离以及激光功率均固定为第 IV B 节给出的标称值。我们采用与第 IV B 节相同的盲化拟合过程；随后将线形分箱至与实验数据相同的数值，并针对不同的跃迁频率 f_0 拟合数据。随后可以用函数

$$A \times \mathbf{L_{ion}}(f_0) + c \tag{3}$$

其中，A 是一个通用缩放参数，c 是用于补偿背景的偏移量。通过这一拟合过程，我们得到的频移为 -54.4 ± 2.8 兆赫（见图8），与采用完整蒙特卡罗模拟得到的数值高度一致。

D. 系统不确定度

正如第 IIIA 节所预期的，与实验参数相关的系统不确定度通过专门的模拟进行评估。

用于驱动双光子 1S–2S 跃迁的强腔内激光场会通过交流斯塔克效应引起正电子素原子能级位移。该位移与电场强度成正比，因此随腔内功率线性变化。为量化这一效应，我们在多个腔内功率下进行了蒙特卡罗模拟。该修正的不确定度源于功率校准的精度，以及数据采集期间的逐次功率波动。保守估计得出的总不确定度为 0.4 兆赫。

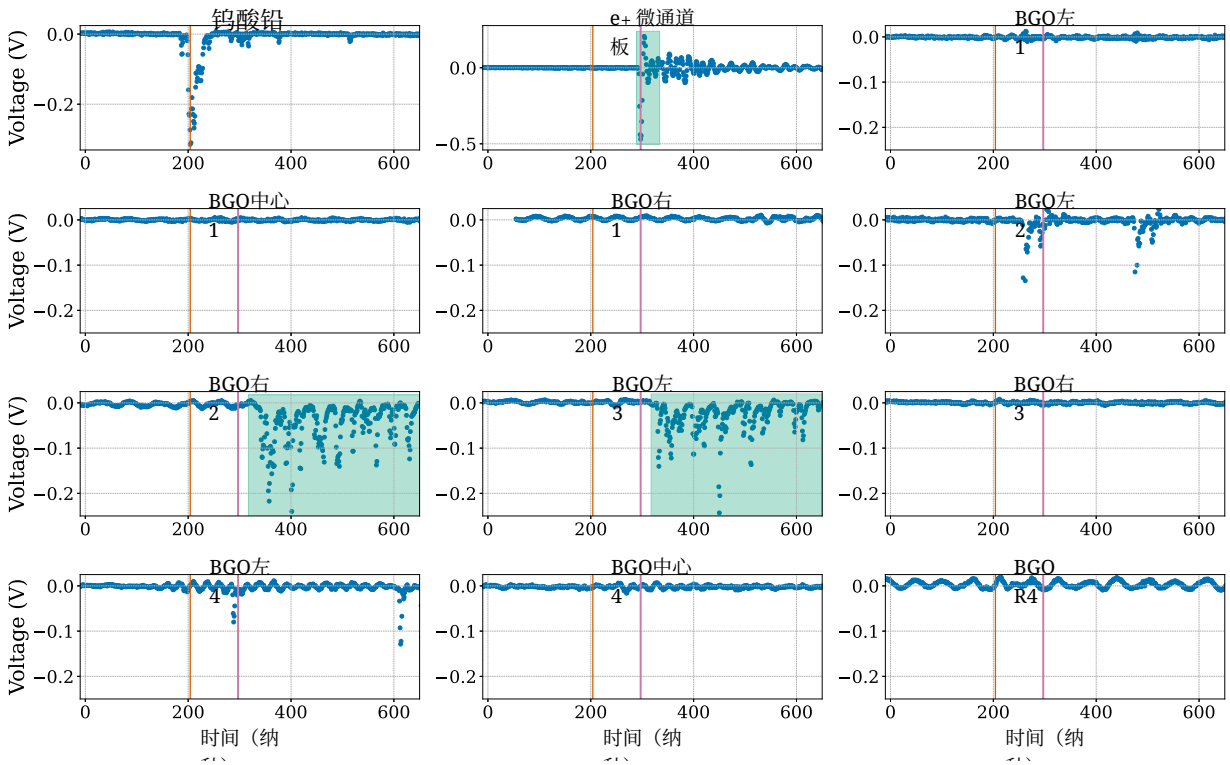

图7. 信号事件的探测：钨酸铅闪烁体标记正电子脉冲，其信号峰以橙色竖线表示。在微通道板通道中，蓝绿色阴影区域内记录到一次计数，该区域对应于钨酸铅闪烁体信号峰之后85 ns至135 ns的时间窗。其时间由紫色竖线标出。随后不久，BGO R2和L3中符合探测到两束511 keV γ射线，并呈现其特征信号（蓝绿色阴影区域）。BGO L2和L4分别位于L3的上方和下方；如图所示，它们也有非零信号，这可以用光串扰来解释。

双光子激发概率取决于正电子素空间分布与增强腔内激光模式之间的重叠。激光束腰与原子平均形成点之间的偏移会导致激发轮廓不对称，并使观测到的谱线中心发生位移。我们通过模拟以及研究线形对激光位置偏移的灵敏度，评估了这一系统效应，得出的保守不确定度为 1 兆赫。

速度分布的不确定度通过二阶多普勒频移带来的系统误差贡献为0.3 MHz。

用于将光电离正电子引导至探测区域的电场会引起跃迁的直流斯塔克位移，经评估为66 kHz（推导过程见附录 C）。激发区域电场的不确定度作为单独一项计入系统误差预算，为4 kHz。

我们测量中的主要不确定度来源与频率计量有关，该计量依赖于使用铷标准校准的波长计。详情见附录B。

所有系统不确定度汇总于表 III 中，并与统计不确定度按平方和开方的方式合并，以得到总不确定度。

E. 结果

因此，该跃迁的测量值为 1 233 607 224.1(6.0) 兆赫（4.9 ppb），与 1 233 607 222.12(58) 兆赫的理论预测值以及此前对该跃迁的精密测量结果相符，如图9所示。我们的测量误差主要来自激光频率计量误差，其次是统计量和激光位置的准确度。所有现有测量结果的加权平均值为 1 233 607 218.1(2.7) 兆赫，因此与最新量子电动力学进展 [42]之间的张力有所减小，为 $1.4\,\sigma$ 。

V. 结论与展望

我们展示了使用连续波激光对正电子素的$1^3S_1 \rightarrow 2^3S_1$ 间隔进行的精密测量。

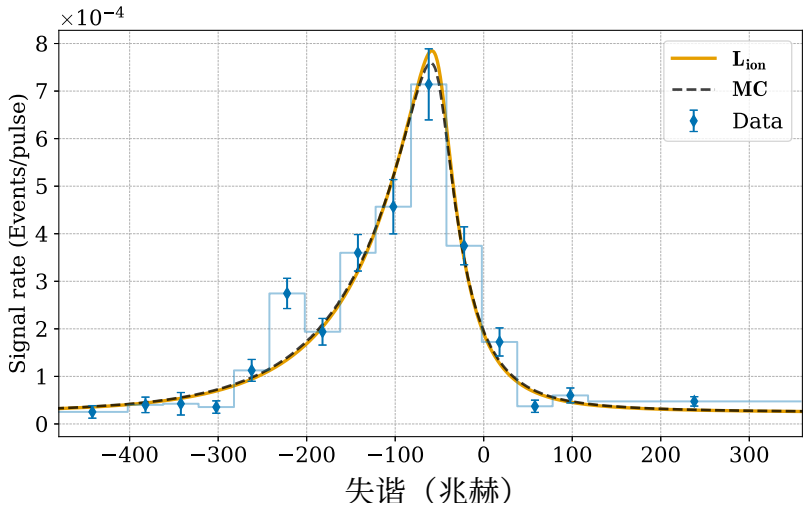

图8。 $1^3S_1 \rightarrow 2^3S_1$ 跃迁的测量光谱，分别采用半解析线型 $\mathbf{L_{ion}}$ 和蒙特卡罗模拟 **MC**进行拟合。

	位移（兆赫）	σ （兆赫）
拟合 蒙特卡罗/$\mathbf{L_{ion}}$	-54.9/-54.4	2.4/2.8
频率修正	–	3.6
波长计系统误差	56.8	2.8
频率测量	–	2.0
铷参考	–	2.0
激光位置	–	1.0
交流斯塔克效应	(-4.9)	0.4
二阶多普勒效应	(9.4)	0.3
直流斯塔克效应	0.066	0.004
与理论值的偏差	2.0	6.0

表 III. 位移和不确定度估计。括号中的位移数值已计入拟合位移。

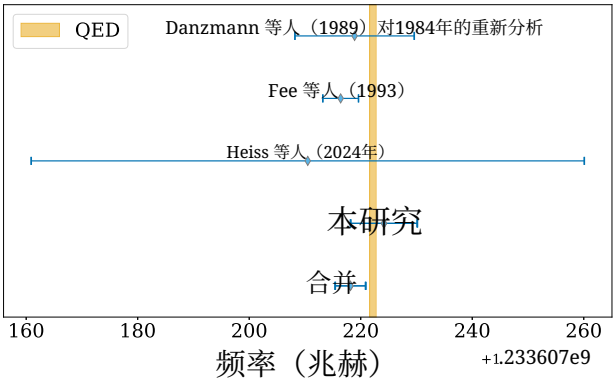

图9. 正电子素 $1^3S_1 \rightarrow 2^3S_1$ 测量结果汇总，以及量子电动力学在$\mathcal{O}(\alpha^7 \ln^2(1/\alpha))$阶的理论预测值。

双光子激光光谱学对{v1}S{v2}S{v3}正电子素能级间隔进行了精密测量。我们的结果与此前的连续波测量结果以及最新的量子电动力学预测一致。该实验还展示了三重符合去探测方案可抑制背景，并实现高于 20 的信噪比。

此外，我们开发并验证了一种半解析线形模型，可捕捉初始空间分布和速度分布、二阶多普勒频移、交流斯塔克位移、有限寿命以及光电离等物理效应。该模型能够准确再现实验数据，并为蒙特卡罗模拟提供了一种高效的替代方案。使用该模型提取的跃迁频率与基于蒙特卡罗的方法所得数值非常一致。

通过使用频率梳改进激光频率计量、在准连续波模式下运行以提高激发效率并增加激光功率而不损害腔体性能 [43]，，以及采用新的正电子源使统计量增加 20 倍，本文提出的方案将实现亚 ppb 精度。达到数 ppt 量级不确定度的一条前景广阔的途径，是实施所谓的拉姆齐–多普勒光谱学方法 [44]，，该方法有望将实验线宽缩小 100 倍，并抑制交流斯塔克位移等系统效应。另一种可能是将激光冷却技术应用于正电子素 [45, 46]，通过降低原子的动能来减小渡越时间展宽和多普勒频移等系统不确定度，从而提供一条独立途径以提升光谱分辨率。这些进展将有助于对束缚态量子电动力学进行严格检验，并为探索标准模型之外的新物理开辟新机遇。

致谢

我们衷心感谢 A. Antognini、K. Kirch 和 F. Merkt 在本项目中给予的持续而关键的支持。感谢 T. Esslinger 和 T. Donner 允许我们使用他们的铷参考。我们感谢 D. Cooke、A. Golovizin、P. Gherardi、M. Heiss 和 G. Wichmann 为装置研发作出的重要贡献，该装置为这些结果奠定了基础。本研究获得了欧洲研究委员会整合者资助 818053-Mu-MASS、瑞士国家科学基金会资助项目 197346 和 219485，以及美国国家标准与技术研究院 PMG 资助项目 60NANB24D321 的支持。

附录 A：半解析线型推导

用于求解光学布洛赫方程（光学布洛赫方程）的蒙特卡罗模拟能够完整地模拟实验条件。然而，这些模拟缺乏直观性，往往会被视为“黑箱”方法，而且计算量很大，尤其是在需要大量模拟光谱来拟合实验数据时。为减少对模拟的依赖，并更清晰地描述$1^3S_1 \rightarrow 2^3S_1$ 正电子素光谱，我们基于二阶微扰理论建立了一个半解析线型模型。

1. 单能束

首先，我们假设正电子素以恒定速度 $v_\perp$垂直于激光轴穿过激光束，并于时间 $t = 0$经过其最近接近点。因此，原子在 $x-y$ 平面内相对于激光轴的径向坐标随t 变化为 $R^2(t) = \rho^2 + v_\perp^2 t^2$，其中 ρ 为原子与激光轴之间的碰撞参数。正电子素穿过激光束时的运动轨迹如图 4 所示。对于沿直线路径穿过宽度为 w 、峰值强度为 I_0的高斯光束的原子，其跃迁振幅 C_{2S} 可近似为 [47]

$$C_{2S}(t) = -i \cdot 2\pi\beta_{ge} I_0 e^{-2\rho^2/w^2} \int_{-\infty}^{t} dt' e^{-2v_\perp^2 t'^2/w^2} e^{i(\omega_0 - 2\omega_L)t'}, \tag{A1}$$

其中， $\omega_0/2\pi$ 是跃迁的共振频率，$\omega_L/2\pi$ 是激光频率，β_{ge} 是与时间无关的双光子跃迁矩阵元。将 [41] 中计算出的氢的 β_{ge}乘以 8，以补偿正电子素不同的约化质量。对（$-\infty$，∞）之间的积分进行计算，即可确定一次激光完整通过期间的状态变化。由此得到

$$C_{2S} = -i \cdot 2\pi\beta_{ge} I_0 e^{-2\rho^2/w^2} \frac{w\sqrt{\pi}}{v\sqrt{2}} e^{-\frac{(\omega_0 - 2\omega_L)^2 w^2}{8v_\perp^2}}. \tag{A2}$$

该振幅的模给出了跃迁至 $2S$ 态的概率，由此得到的高斯线型为

$$P_{2S} = |C_{2S}|^2 = 2\pi^3 \beta_{ge}^2 I_0^2 e^{-4\rho^2/w^2} \frac{w^2}{v_\perp^2} e^{-\left(\frac{2\pi(f_0 - f_L)w}{v_\perp}\right)^2}, \tag{A3}$$

其中，我们定义了双光子共振频率$\omega_0 = 2 \cdot 2\pi f_0$，并将激光 $\omega_L = 2\pi f_L$的频率换算回常规频率。

2. 光谱激光器内的电离

第 II 节所述实验装置的探测机制，依赖于正电子素穿过光谱激光器时，额外吸收一个 486 纳米光子而从 2S态发生光电离。通过光电离探测到的线形不同于方程 A3 中所述单能正电子素束的高斯线型，因为光电离会缩短 2S态的寿命，从而引入额外的展宽。为考虑寿命缩短的影响，我们对方程 A1 中的积分求解至时间 t ，以确定C_{2S}的时间依赖性，

$$C_{2S}^{(2)}(t) = -i\pi\beta_{ge} I_0 e^{-2\rho^2/w^2} \frac{\sqrt{\pi} w}{\sqrt{2} v_\perp} e^{-\frac{(\omega_0 - 2\omega_L)^2 w^2}{8v_\perp^2}} \left[1 + \operatorname{erf}\left(\frac{\sqrt{2} v_\perp t}{w} - i\frac{(\omega_0 - 2\omega_L)w}{2\sqrt{2} v_\perp}\right)\right]. \tag{A4}$$

在 $t \rightarrow \infty$的极限下，方括号中的数值趋近于二，此时可恢复方程 A2。然而，在此极限之外，误差函数中的复数项具有频率依赖性，从而引入展宽。原子在激光的一次完整通过过程中发生光电离的概率可表示为

$$P_i = \int_{-\infty}^{\infty} \gamma_i(t) |C_{2S}(t)|^2 dt, \tag{A5}$$

其中， $\gamma_i(t)$ 表示同一激光下 2S态的电离速率。在上述表达式中，我们采用了微扰假设，即在激光单次通过期间，光电离不会改变 2S态的布居数。光电离速率为

$$\gamma_i(t) = 2\pi\beta_i I_0 \exp\left(-\frac{2\rho^2}{w^2}\right) \exp\left(-\frac{2v_\perp^2 t^2}{w^2}\right), \tag{A6}$$

其中， β_i 表示[41], 中定义的电离系数，并再次乘以8进行缩放，以考虑不同的

约化质量。将方程 A4 和 A6 代入方程 A5，并经过一些简化后，可以得到

$$P_i = \pi^4 \beta_i \beta_{ge}^2 I_0^3 \frac{w^2}{v_\perp^2} e^{-\frac{6\rho^2}{w^2}} e^{-\frac{\delta f^2}{2\eta^2}} \times \int_{-\infty}^{\infty} e^{-(4\pi\eta t)^2} \left| 1 + \mathrm{erf}\left(4\pi\eta t - i\frac{\delta f}{2\eta}\right)\right|^2 dt, \tag{A7}$$

其中 $\delta f = f_0 - f_L = (\omega_0 - 2\omega_L)/4\pi$，并且我们定义 $\eta = \frac{v_\perp}{2\sqrt{2\pi}w}$。尽管该积分内部包含复数值，但由于取了模平方，其总计值为实数且为正。虽然可以对该函数进行数值计算，但计算成本可能很高，尤其是当它嵌套在以下小节所述的其他数值积分中时。为避免这种情况，我们发现方程 A7 可以方便地近似为

$$P_i \approx 0.7066\pi^4 \beta_i \beta_{ge}^2 I_0^3 \frac{w^2}{v_\perp^2} e^{-\frac{6\rho^2}{w^2}} V(\delta f; 1.1132\eta; 0.4535\eta) \tag{A8}$$

其中 $V(\delta f;\, \sigma;\, \gamma)$ 是一个 Voigt 函数，其特征由高斯宽度 σ 和洛伦兹宽度 γ分别决定。我们发现，$\sigma = 1.1132\eta$ 和 $\gamma = 0.4535\eta$ 的取值能够很好地拟合方程 A7 中的积分，并且在很宽的 η范围内保持通用。通过采用这一近似，而非直接计算 A7 中的积分，我们可以利用大多数现代编程语言中现成的高度优化算法来生成 Voigt 函数。

3. 2S态的耗尽

到目前为止，我们一直采用微扰假设，认为激发不会耗尽1S态的布居数，而光电离不会耗尽2S态的布居数。即使在正电子素实验所需的高激光功率下，前一假设仍是很好的近似。然而，后一假设，即2S态不会耗尽，在较高激光功率或较低原子速度下接近共振时，准确性会有所降低。例如，对于我们的标称实验参数（取平均速度为95 km/s），我们发现，式A8给出的光电离概率约为式A3给出的 $1^3S_1 \to 2^3S_1$激发概率的10%。为考虑这些耗尽效应，我们可以在式A3中加入额外的微扰项。

$$P_{2S}^* = P_{2S} - \underbrace{\int_{-\infty}^{\infty} \gamma_i(t) \left|C_{2S}(t)\right|^2 dt}_{\Delta P_{2S}}. \tag{A9}$$

这里 P_{2S}^* 是处于 2S态的概率，并对电离导致的耗尽作了一阶修正，

ΔP_{2S}。由于光电离导致的耗尽是一种微扰修正，在共振附近最为显著，因此我们代入式 A4，并将误差函数中的虚部近似为零。由此得到

$$\Delta P_{2S} \approx 2\pi\, \beta_i\, I_0\, e^{-2\rho^2/w^2}\, \frac{P_{2S}}{4} \times \int_{-\infty}^{\infty} \exp\Big(-\frac{2v_\perp^2 t^2}{w^2}\Big) \Big[1 + \mathrm{erf}\Big(\frac{\sqrt{2}\, v_\perp t}{w}\Big)\Big]^2 dt, \tag{A10}$$

其中，积分可以直接求值得到

$$\Delta P_{2S} = \pi\, \beta_i\, I_0\, e^{-2\rho^2/w^2}\, \frac{w\sqrt{2\pi}}{3v_\perp}\, P_{2S} \equiv \lambda_{2S}\, P_{2S}. \tag{A11}$$

因此，

$$P_{2S}^* = (1 - \lambda_{2S})\, P_{2S}\,. \tag{A12}$$

对电离概率 P_i也可采用等效的方法：加入一阶微扰项，以考虑电离过程中2S态的耗尽，

$$P_i^* \approx P_i - \underbrace{\int_{-\infty}^{\infty} \gamma_i(\tau) \int_{-\infty}^{\tau} \gamma_i(s) \left|C_{2S}(s)\right|^2 ds\, d\tau}_{\Delta P_i}, \tag{A13}$$

其中 $P_i = \int \gamma_i(t) \left|C_{2S}(t)\right|^2 dt$ 是无耗尽电离概率。根据 Tonelli 定理（被积函数非负），我们可以交换 ΔP_i 中的积分次序，

$$\Delta P_i = \int_{-\infty}^{\infty} \Big(\int_{\tau=s}^{\infty} \gamma_i(\tau)\, d\tau \Big) \gamma_i(s) \left|C_{2S}(s)\right|^2 ds, \tag{A14}$$

并取 $\gamma_i(t) = \Gamma\, e^{-\alpha t^2}$ ($\Gamma = 2\pi\beta_i I_0 e^{-2\rho^2/w^2}$, $\alpha = 2v^2/w^2$)，可得

$$\Delta P_i = \frac{\Gamma^2\sqrt{\pi}}{2\sqrt{\alpha}}\, \frac{P_{2S}}{4} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-\alpha s^2}\, \mathrm{erfc}(\sqrt{\alpha}\, s) \times \left|1 + \mathrm{erf}\Big(\sqrt{\alpha}\, s - i\frac{\delta f}{2\eta}\Big)\right|^2 ds. \tag{A15}$$

假设修正主要在共振附近起作用，我们令 $\delta f \approx 0$，并计算剩余积分，得到

$$\Delta P_i = \frac{\pi}{12}\, \frac{\Gamma^2}{\alpha}\, P_{2S}. \tag{A16}$$

在共振条件下，我们可以通过以下关系将 P_{2S} 与 P_i 联系起来：

$$P_i = \int_{-\infty}^{\infty} \gamma_i(t) \left|C_{2S}^{(2)}(t)\right|^2 dt = \frac{\sqrt{\pi}}{3}\, \frac{\Gamma}{\sqrt{\alpha}}\, P_{2S}, \tag{A17}$$

这样，我们就可以方便地将整个修正定义为对 P_i 的缩放。因此，方程 A13 可表示为

$$P_i^* = (1 - \lambda_i) P_i. \tag{A18}$$

其中

$$\Delta P_i = \frac{\Gamma\sqrt{\pi}}{4\sqrt{\alpha}} P_i = \lambda_i P_i. \tag{A19}$$

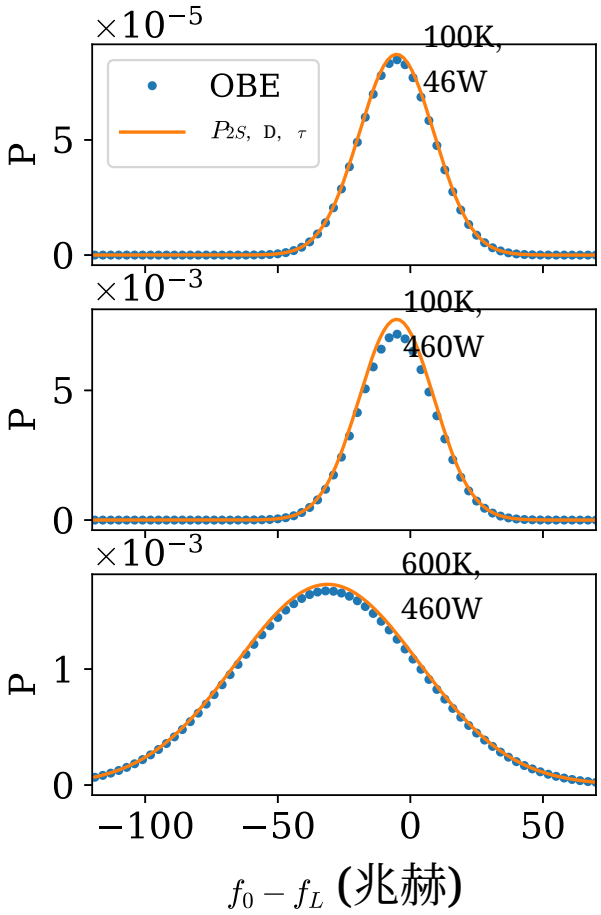

图 10. 不同功率和速度下的模拟光谱，以及 $P_{2S,\ D,\ \tau}$。注意，速度通过换算 $T = \frac{1}{2k_B} mv^2$ 以温度单位表示。其余变量设为 $w_0 = 310\,\mu$m、$D = 2$ mm、$\rho = 0$。

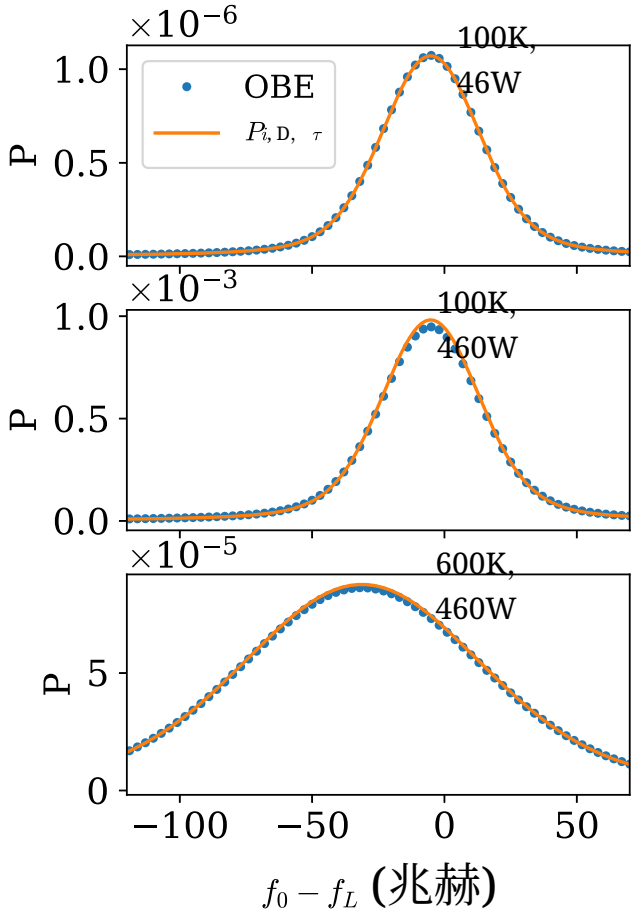

图11. 不同功率和速度下的模拟光谱，以及 $P_{i,\ D,\ \tau}$。请注意，速度通过换算 $T = \frac{1}{2k_B} mv^2$ 以温度单位表示。其余变量设为 $w_0 = 310\,\mu$m、$D = 2$ mm、$\rho = 0$。

4. 二阶多普勒效应与自湮灭

此时，我们可以纳入二阶多普勒效应所导致的修正，以及正电子素基态下因自湮灭而具有的有限寿命。由于正电子素的质量较轻，即使在相对较低的能量下也具有较高的速度——这意味着，与典型原子相比，二阶多普勒效应的影响更为显著。在实验室参考系中，正电子素的单光子跃迁频率会因二阶多普勒效应而发生修正，记为 f_0；该修正取决于其速度的大小，具体关系如下

$$f_0' = f_0\sqrt{1 - \frac{v^2}{c^2}} \approx f_0 - \frac{v^2}{2c^2} f_0, \tag{A20}$$

其中，c 是光速。请注意，由于我们采用的是 A1 节定义的单光子跃迁频率 f_0，因此该表达式与 [41]中的类似表达式相差一个因子 1/2。将 $f_0 \to$ 代入方程 A3 和 A8，即可直接对其积分。

f_0'，得到

$$P_{2S,D} = (1 - \lambda_{2S}) 2\pi^3 \beta_{ge}^2 I_0^2 e^{-4\rho^2/w^2} \times \frac{w^2}{v_\perp^2} \exp\left\{ -\left(\frac{2\pi(f_0 - f_L - \frac{v^2}{2c^2} f_0) w}{v_\perp} \right)^2 \right\}. \tag{A21}$$

$$P_{i,D} = 0.7066(1 - \lambda_i)\pi^4 \beta_i \beta_{ge}^2 I_0^3 \frac{w^2}{v_\perp^2} \exp\left\{ -\frac{6\rho^2}{w^2} \right\} V(\delta f - \frac{v^2}{2c^2} f_0; 1.1132\eta; 0.4535\eta). \tag{A22}$$

正电子素因自湮灭而具有的有限寿命 τ，可以纳入表达式中。图 4 所示的正电子素在靶与激光之间行进距离 D 后仍然存活的概率为 $\exp\left\{(-\frac{D}{v_\perp \tau})\right\}$。这引入了一个直接的乘法因子，

置于 A21 和 A22 前，以得到

$$P_{2S,D,\tau} = (1-\lambda_{2S})2\pi^3\beta_{ge}^2 I_0^2 e^{-4\rho^2/w^2} \frac{w^2}{v_\perp^2}\exp\left\{-\left(\frac{2\pi(f_0 - f_L - \frac{v^2}{2c^2}f_0)w}{v_\perp}\right)^2 - \frac{D}{v_\perp\tau}\right\}, \tag{A23}$$

$$P_{i,D,\tau} = 0.7066(1-\lambda_i)\pi^4\beta_i\beta_{ge}^2 I_0^3\frac{w^2}{v_\perp^2}\exp\left\{-\frac{6\rho^2}{w^2} - \frac{D}{\tau v_\perp}\right\} V(\delta f - \frac{v^2}{2c^2}f_0; 1.1132\eta; 0.4535\eta). \tag{A24}$$

图10和图11对比了方程 A23 和 A24 中的线型函数与蒙特卡罗模拟计算得到的光谱；该模拟针对单向、单能的正电子素束求解光学布洛赫方程。请注意，在这一单向、单能模型中，我们设定 $v = v_\perp$，并且此处的模拟和线型均未纳入交流斯塔克位移；这一问题将在后续章节中讨论。显然，在功率较高、温度较低时，线型所依据的一些微扰假设不再那么有效。因此，当激光接近共振时，线型会高估激发和光电离的概率

5. 热分布

上述线型函数仅针对原子的单能分布推导得出。然而，我们的实验装置并非如此；相反，每个入射到靶上的正电子脉冲都会产生具有一定速度分布的正电子素。已有研究发现，从靶中发射出的正电子素的速度大小可用三维麦克斯韦-玻尔兹曼分布 [34] 建模：

$$g(v) = \frac{4v^2}{\sqrt{\pi}u^3}\exp\left(-\frac{v^2}{u^2}\right), \tag{A25}$$

其中，$u = \sqrt{2k_BT/m}$ 表示热分布的特征速度，取决于粒子质量 m 和分布温度 T，其中k_B 为玻尔兹曼常数。靶的发射方向决定了正电子素各个速度分量的方向，研究发现其可由 $\cos\theta$ 分布 [48]很好地描述。因此，速度主要垂直于发射表面和激光轴。目前，为了简化问题，我们假设正电子素完全垂直于表面发射，从而得到 $v_z \approx v_\perp \approx v$。$\cos\theta$ 分布对线形的影响将在 A 6节中讨论。

为推导热系综中原子所观测到的光谱对应的线形 L，我们将此前推导的固定速度线形对麦克斯韦-玻尔兹曼分布进行积分

$$L = \int_0^\infty g(v)P(v)dv, \tag{A26}$$

其中，$P(v)$ 可以是上述推导出的任意线形。不幸的是，一旦引入有限寿命项 $\exp\left\{\left(-\frac{D}{v_\perp\tau}\right)\right\}$，积分便无法再通过解析方法求解。因此，这些积分必须通过数值方法求解。

6. 角分布、空间分布与交流斯塔克效应位移

在上述表达式中，我们假设原子沿 $\vec{z}$ 方向发射，并垂直于靶表面。然而，实际上，原子的发射会覆盖一系列极角和方位角，即 θ 和 φ，其分布可用余弦分布 [48] 来建模。此外，正电子素并非从靶上的点状位置发射，而是在正电子束照射到靶表面的区域内形成，这一分布可用二维高斯分布来建模。

我们可以定义垂直于激光轴的速度 $v_\perp$，它决定了渡越时间展宽和飞行至激光处所需的时间。若将激光轴定义为沿 y 方向，则

$$v_\perp = \sqrt{v_x^2 + v_y^2} = v\sqrt{\cos^2\theta + \sin^2\theta|\cos^2\varphi|}. \tag{A27}$$

碰撞参数 ρ 可根据发射角、靶面上沿垂直于激光轴方向的正电子素形成点（如图 4 中的 y 所示），以及靶与激光之间的距离来定义，该距离记为 D。

$$\rho = D\sin\left(\tan^{-1}(\tan\theta\cos\varphi) + \frac{y}{D}\right) \tag{A28}$$

此外，采用 [49]，中介绍的缀饰态方法，可以估算 ρ 对 $1^3S_1 \to 2^3S_1$ 跃迁的交流斯塔克效应的影响：

$$\Delta f_{AC}(\rho) = \frac{1}{2}\times\frac{\Delta\omega_{\mathrm{AC}}}{2\pi} = \sqrt{\frac{2\pi}{3}}\beta_{\mathrm{AC}}\pi I_0 e^{-\frac{2\rho^2}{w^2}}, \tag{A29}$$

其中，β_{AC} 是 [41], 中推导出的交流斯塔克系数，缩放因子为 8。交流斯塔克效应的影响可以通过作如下替换，直接纳入线形中：

$$f_0 \to f_0 + \Delta f_{AC}(\rho). \tag{A30}$$

有了这些新定义，我们可以在方程 A23 和 A24 中分别代入 $v_\perp$、ρ 和 f_0。为考虑

发射角的分布以及从靶形成正电子素发射，我们对 θ 和 ϕ 进行数值积分，并以余弦概率分布 [48]，加权，此外还对 y进行积分

按高斯分布加权，

$$\mathbf{L} = \int_{-\infty}^{\infty} \mathcal{N}\left(\mu, \sigma^2\right) dy \int_0^{2\pi} \frac{1}{2\pi} \int_0^{\frac{\pi}{2}} \sin 2\theta \int_0^{\infty} g(v) P(v, \phi, \theta, y) dv, \tag{A31}$$

其中 $\mathcal{N}\left(\mu,\ \sigma^2\right)$ 是一个高斯分布，其均值为μ，标准差为 σ，这些参数由正电子束流轮廓推导得出。为清晰起见，我们在下文的方程 A32 和 A33 中列出了 2S 线形和电离线形的完整表达式，其中 ρ、 $v_\perp$ 和 f_{AC} 对 θ、φ和 y 的依赖关系如上所述，

$$\mathbf{L_{2S}} = \int_{-\infty}^{\infty} \mathcal{N}\left(\mu, \sigma^2\right) dy \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\frac{\pi}{2}} \sin 2\theta \times \int_0^{\infty} (1-\lambda_{2S}) \frac{4v^2\pi^2\beta_{ge}^2 I_0^2 w^2}{\sqrt{\pi} u^3 v_\perp^2} \exp\left\{ -\left(\frac{2\pi(\delta f + \Delta f_{AC} - \frac{v^2}{2c^2} f_0) w}{v_\perp} \right)^2 - \frac{D}{v_\perp \tau} - \frac{v^2}{u^2} - \frac{4\rho^2}{w^2} \right\} dv, \tag{A32}$$

$$\mathbf{L_{ion}} = \int_{-\infty}^{\infty} \mathcal{N}\left(\mu, \sigma^2\right) dy \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\frac{\pi}{2}} \sin 2\theta \times \int_0^{\infty} (1-\lambda_i) \frac{1.4132\pi^3\beta_i\beta_{ge}^2 I_0^3 v^2 w^2}{\sqrt{\pi} u^3 v_\perp^2} \exp\left\{ -\frac{6\rho^2}{w^2} - \frac{D}{\tau v_\perp} - \frac{v^2}{u^2} \right\} V\left(\delta f + \Delta f_{AC} - \frac{v^2}{2c^2} f_0; 1.1132\eta; 0.4535\eta \right) dv. \tag{A33}$$

函数 $\mathbf{L_{2S}}$ 和$\mathbf{L_{ion}}$ 是本附录最终推导出的函数。正文中的图 5 展示了$\mathbf{L_{ion}}$ 的曲线，以及对实验进行的完整蒙特卡罗模拟结果。可以看出，在低功率（46 W）下，两者吻合极佳，此时微扰理论非常可靠；但在高功率（460 W）下，$\mathbf{L_{ion}}$ 在共振附近略微高估了电离概率——这正是这种微扰处理所预期的结果。

线形模型考虑了渡越时间展宽、二阶多普勒效应、1S态的有限寿命、光电离、Ps发射分布以及交流斯塔克位移。这些是影响光谱形状的主要物理机制。然而，模型并未纳入2S态的有限寿命，也将束腰视为常数，而未考虑其像高斯光束那样按双曲线变化。在我们的实验装置中，这些遗漏预计对线形的影响极小，因此忽略它们是合理的。

经过一些小幅调整，这些线形函数可以直接应用于其他不稳定的简单原子系统（例如μ子素）的 $1^3S_1 \rightarrow 2^3S_1$光谱学。

附录B：频率计量

用于激发正电子素中 $1^3S_1 \rightarrow 2^3S_1$跃迁的激光频率，使用HighFinesse WS-7波长计进行测量和控制。该设备的PID输出作用于激光外腔二极管激光器光栅的压电元件电压，以稳定频率。波长计的典型日频率漂移约为10兆赫，这归因于实验室环境中的温度和压力变化。为校正这一漂移，该设备定期通过铷 $5^2S_{1/2}(F=2) \rightarrow 5^2P_{1/2}(F=3)$跃迁进行校准，该跃迁位于780.2 nm（384.227 848 THz）处。该跃迁的线宽为6兆赫，可提供亚兆赫准确度的绝对基准。铷标准位于相邻实验室，通过稳频光纤传送至实验装置。将波长计相对于该标准进行校准后，激光频率即可达到1兆赫的相对准确度。在光谱数据采集期间，波长计每8小时定期相对于铷参考进行校准。预计波长计会在两次校准之间发生漂移，因此通过对连续校准测量结果进行线性插值，确定激光实际频率与波长计提供的标称数值之间的偏差。

为对由校准引起的频率稳定度进行建模，-

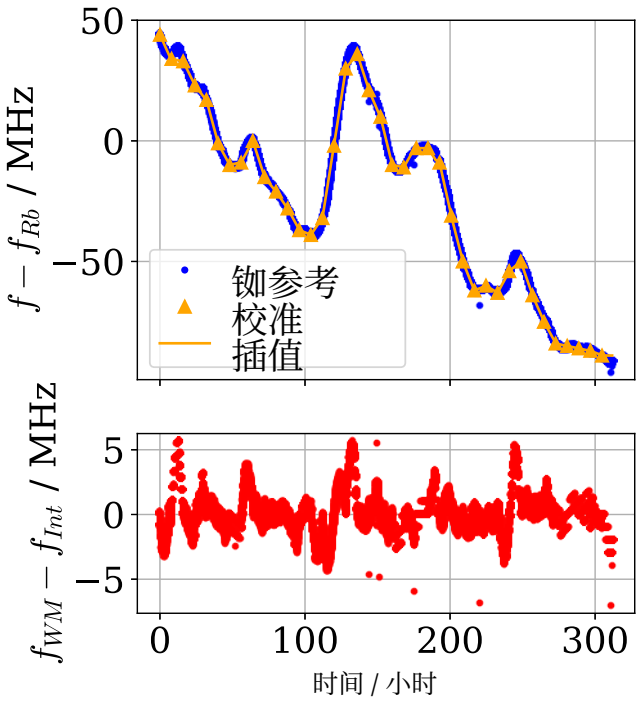

图 12. 测量前的十三天内，波长计对铷参考的连续测量。上图中的零值对应于预期的参考频率。蓝色数据点表示波长计测得的频率。远离趋势线的测量值归因于参考激光器偶尔失锁。橙色数据点表示进行光谱实验时预期的波长计校准值，数据点之间采用线性插值。下图中的红点显示波长计测量值与线性插值之间的残差，表明采用此处所述波长计校准方法时预期的频率误差。

准和线性插值产生的频率稳定度，连续测量了铷参考跃迁 13 天，如图 12 所示。铷标准提供恒定的频率参考，因此图 12 所示的频率漂移源于波长计测量的漂移。为了模拟定期校准和插值的效果，每隔 8 小时从图 12 所示的数据集中选取一次波长计读数作为校准点，并以橙色标出，再对这些点进行线性插值。下方以红色显示的线性插值残差，代表这种方法产生的频率误差。

为估算这种方法引入的频率不确定度，我们根据图 12 中的红色和蓝色频率数据绘制了阿伦偏差图，如图 13 所示。约在 10^2s 后，阿伦偏差开始增大，这表明频率发生了随机游走或漂移。然而，红色数据集的阿伦曲线代表了通过定期校准和插值获得的频率稳定度，其增幅比未校准的蓝色数据集曲线更为平缓。红色阿伦曲线在略低于 8 小时时达到峰值，这反映出频率不确定度在校准前一刻最高。作为校准和插值方法所产生不确定度的保守估计，我们取阿伦偏差的最大值，该值由水平虚线标出，为 2.9×10^{-9}，对应于 243 nm 处的 3.58 兆赫。

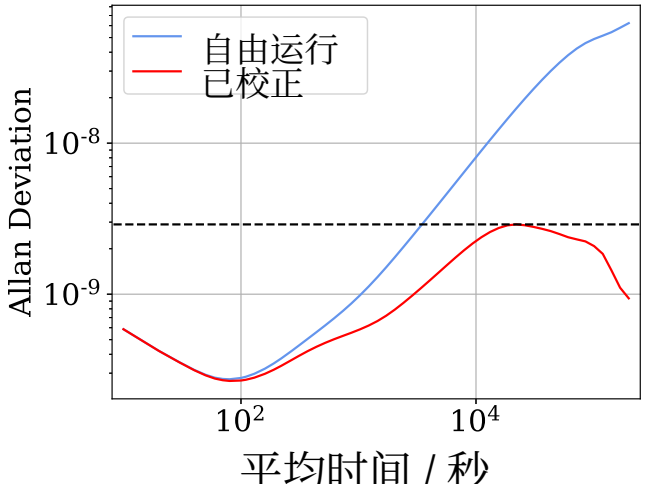

图 13. 根据阿伦偏差计算的波长计漂移不确定度。线性插值能够很好地近似图示时间范围内的变化。

在 780.2 纳米处校准并用于测量 972 纳米处的激光时，测得波长计读数存在额外的系统位移。这一波长偏移导致频率被系统性低估 -14.2(0.7) 兆赫，并已在最终频率测定中予以校正。鉴于 1S–2S 跃迁涉及两个 486 纳米光子，这一系统偏移需要乘以 4，对测得的跃迁频率贡献约 -56.8(2.8) 兆赫的总不确定度。

附录 C：直流斯塔克位移

本附录概述了均匀电场中正电子素 $1S$ 和$2S$ 态的静态偶极极化率及直流斯塔克位移的计算。该处理采用原子单位下标准的非相对论微扰理论，并对与 $1S$–$2S$ 跃迁精密光谱测量相关的能级位移，以及由激发区域电场认知所引起的这一系统位移的不确定度进行定量估算。

计算采用原子单位（a.u.），其定义为 $\hbar = m_e = e = a_0 = 1$。在这些单位中，（静态）偶极极化率 α 的单位为体积（a_0^3）。

当电场为 $\mathcal{E}$（国际单位制）时，

$$E_{\mathrm{a.u.}} = \frac{\mathcal{E}}{E_0}, \qquad E_0 = \frac{E_h}{e a_0} \approx 5.1422067 \times 10^{11}\ \mathrm{V/m}, \tag{C1}$$

其中 E_h 为哈特里能量。所有能量位移最终均通过 $\Delta\nu = \Delta E/h$ 表示为频移。对于正电子素，由于约化质量为 $\mu = m_e/2$，其玻尔半径为 $a_{\mathrm{Ps}} = 2a_0$。原子单位的能量通过 E_h/h 转换为赫兹。

静态均匀电场 $\mathbf{E} = \mathcal{E}\hat{\mathbf{z}}$ 引入的微扰为

$$V = -\mathcal{E}\, z. \tag{C2}$$

对于非简并初态 $|i\rangle$，二阶能量修正为

$$\Delta E^{(2)} = -\frac{1}{2}\,\alpha\,\mathcal{E}^2, \qquad \alpha = 2\sum_{n} \frac{|\langle i|z|n\rangle|^2}{E_n - E_i}, \tag{C3}$$

其中求和遍及所有相反宇称的中间态（对于 S 能级，为 P 态）。

1. 1S 态的极化率

对于正电子素，波函数为类氢波函数，其玻尔长度为 $a_{\mathrm{Ps}} = 2a_0$。nS 态的偶极极化率按 a_{Ps}^3 缩放。$1S$ 态的解析结果为

$$\alpha_{1S} = \frac{9}{2}\, a_{\mathrm{Ps}}^3 = 36\, a_0^3. \tag{C4}$$

相应的斯塔克位移为

$$\Delta E_{1S}^{\mathrm{Stark}} = -\tfrac{1}{2}\,\alpha_{1S}\,\mathcal{E}^2, \qquad \Delta\nu_{1S}^{\mathrm{Stark}} = -\tfrac{1}{2}\,\alpha_{1S}\,E_{\mathrm{au}}^2\,\frac{E_h}{h}. \tag{C5}$$

对于实验中使用的电场 $\mathcal{E} = 340\mathrm{V/m}$,

$$\Delta\nu_{1S}^{\mathrm{Stark}} = -0.05\,\mathrm{Hz}. \tag{C6}$$

与下文讨论的 $2S$ 斯塔克位移相比，这种效应小得可以忽略。

2. 由 2^3P_J 混合导致的 2S 斯塔克位移

2^3S_1 能级通过电偶极相互作用 $-e\mathcal{E}z$ 与附近的 2^3P_J 流形（$J = 0$，1，2）耦合。主要的斯塔克位移源于这种近共振混合。二阶微扰理论给出

$$\Delta E_{2S}^{\mathrm{Stark}} = -\sum_{J} \frac{\left|\langle 2\,^3P_J m_J | e\mathcal{E}z | 2\,^3S_1 m_J\rangle\right|^2}{E_{2\,^3P_J} - E_{2\,^3S_1}}. \tag{C7}$$

谱线强度与 $2J+1$ 成正比，因此归一化权重为

$$w_0 : w_1 : w_2 = 1 : 3 : 5, \qquad w_0 = \tfrac{1}{9},\ w_1 = \tfrac{3}{9},\ w_2 = \tfrac{5}{9}. \tag{C8}$$

对于 $n = 2$ 类氢态，约化径向矩阵元为

$$\left|\,\langle 2S|ez|2P\rangle\,\right| = 3ea, \tag{C9}$$

对于正电子素，这一结果变为 $|d| = 3ea_{\mathrm{Ps}}$。

定义精细结构劈裂

$$\Delta\nu_J \equiv \frac{E_{2^3S_1} - E_{2^3P_J}}{h} > 0, \tag{C10}$$

$2S$ 能级的总位移为

$$\Delta\nu_{2S}^{\mathrm{Stark}} = -\left(\frac{3ea_{\mathrm{Ps}}\mathcal{E}}{h}\right)^2 \sum_{J=0}^{2} \frac{w_J}{\Delta\nu_J}. \tag{C11}$$

由于 $\Delta\nu_J > 0$，该位移为红移。

3. 数值估算

使用实验测得的 $2S$–2^3P_J 劈裂

$$\Delta\nu_{J=2} = 8.6\,\mathrm{GHz}, \quad \Delta\nu_{J=1} = 13.0\,\mathrm{GHz}, \quad \Delta\nu_{J=0} = 18.5\,\mathrm{GHz},$$

以及场强为 $\mathcal{E} = 340\mathrm{V/m}$ 时，可得

$$E_{\mathrm{au}} = \frac{340}{E_0} \approx 6.61 \times 10^{-10}, \tag{C12}$$

$$\Delta\nu_{1S}^{\mathrm{Stark}} = -5.2 \times 10^{-2}\ \mathrm{Hz}, \tag{C13}$$

$$\Delta\nu_{2S}^{\mathrm{Stark}} = -6.6 \times 10^{4}\ \mathrm{Hz}. \tag{C14}$$

因此，$1S$–$2S$ 跃迁的总计位移为

$$\Delta\nu_{2S-1S}^{\mathrm{Stark}} \approx -66\,\mathrm{kHz}. \tag{C15}$$

假设剩余场的不确定度为 10 V/m，则由此产生的斯塔克修正不确定度约为 4kHz。

[1] G. S. Adkins、D. B. Cassidy 和 J. P´erez-R´ıos, 《物理报告》**975**，1（2022年）。

[2] A. Czarnecki, K. Melnikov, and A. Yelkhovsky, 《物理评论快报》**82**, 311 (1999).

[3] M. Baker, P. Marquard, A. A. Penin, J. Piclum, and M. Steinhauser, 《物理评论快报》112, 120407 (2014). [4] G. S. Adkins and R. N. Fell, 《物理评论A辑》89, 052518 (2014). [5] M. I. Eides and V. A. Shelyuto, 《物理评论D辑》89, 111301 (2014). [6] G. S. Adkins, C. Parsons, M. D. Salinger, R. Wang, and R. N. Fell, 《物理评论A辑》90, 042502 (2014). [7] M. I. Eides and V. A. Shelyuto, 《物理评论D辑》92, 013010 (2015年). [8] G. S. Adkins, C. Parsons, M. D. Salinger, and R. Wang, 《物理快报B辑》747, 551 (2015). [9] G. S. Adkins, M. Kim, C. Parsons, and R. N. Fell, 《物理评论快报》115, 233401 (2015). [10] G. S. Adkins, L. M. Tran, and R. Wang, 《物理评论A辑》93, 052511 (2016). [11] M. I. Eides and V. A. Shelyuto, *International Journal of Modern Physics A* **31**, 1645034 , Int. J. Mod. Phys. A (2016). [12] M. I. Eides and V. A. Shelyuto, 《物理评论D辑》96, 011301 (2017). [13] G. S. Adkins, J. Gomprecht, Y. Li, and E. Shinn, 《物理评论快报》130, 023004 (2023年), arXiv:2210.06420 [hep- ph]. [14] M. I. Eides and V. A. Shelyuto, 《物理评论A辑》105, 012803 (2022年). [15] M. I. Eides and V. A. Shelyuto, 《物理快报B辑》832, 137247 2022( ). [16] M. I. Eides and V. A. Shelyuto, 《物理快报 B 辑》 844, 138087 2023( ). [17] R. S. Vallery, P. W. Zitzewitz, and D. W. Gidley, 《物理评论快报》90, 203402 (2003). [18] O. Jinnouchi, S. Asai, and T. Kobayashi, 《物理快报B辑》572, 117 (2003), arXiv:hep-ex/0308030. [19] A. Ishida, T. Namba, S. Asai, T. Kobayashi, H. Saito, M. Yoshida, K. Tanaka, and A. Yamamoto, 《物理快报B辑》734, 338 (2014), arXiv:1310.6923 [hep-ex]. [20] L. Gurung, T. J. Babij, S. D. Hogan, and D. B. Cassidy, 《物理评论快报》125, 073002 (2020年). [21] L. T. Gl¨ oggler, N. Gusakova, B. Rien¨acker, A. Camper, R. Caravita, S. Huck, M. Volponi, T. Wolz, L. Pe- nasa, V. Krumins, F. P. Gustafsson, D. Comparat, M. Auzins, B. Bergmann, P. Burian, R. S. Brusa, F. Castelli, G. Cerchiari, R. Ciury-lo, G. Consolati, M. Doser, L. Graczykowski, M. Grosbart, F. Guatieri, S. Haider, M. A. Janik, G. Kasprowicz, G. Khatri, L. K-losowski, G. Kornakov, L. Lappo, A. Linek, J. Mala- mant, S. Mariazzi, V. Petracek, M. Piwi´nski, S. Posp´ıˇsil, L. Povolo, F. Prelz, S. A. Rangwala, T. Rauschendor- fer, B. S. Rawat, V. Rodin, O. M. Røhne, H. Sandaker, P. S molyanskiy, T. Sowi´nski, D. Tefelski, T. Vafeiadis, C. P. Welsch, M. Zawada, J. Zielinski, and N. Zurlo (AE¯gIS Collaboration), 《物理评论快报》132, 083402 (2024年). [22] K. Shu, Y. Tajima, R. Uozumi, N. Miyamoto, S. Shi- raishi, T. Kobayashi, A. Ishida, K. Yamada, R. W. Gladen, T. Namba, S. Asai, K. Wada, I. Mochizuki, T. Hyodo, K. Ito, K. Michishio, B. E. O'Rourke, N. Os- hima, and K. Yoshioka, 《自然》633, 793–797 (2024年). [23] T. Yamazaki, T. Namba, S. Asai, and T. Kobayashi, 《物理评论快报》104, 083401 (2010年), [勘误: Phys.Rev.Lett. 120, 239902 2018], 0912 0843 ( ) [ ] arXiv: . hep-ex .

[24] P. Moskal *et al.*, 《自然·通讯》15, 78（2024）, arXiv:2401.12092 [hep-ph]。[25] C. Frugiuele、J. P´erez-R´ıos 和 C. Peset, 《物理评论D辑》100, 10.1103/physrevd.100.015010（2019）。[26] C. Vigo、L. Gerchow、B. Radics、M. Raaijmakers、A. Rub- bia 和 P. Crivelli, 《物理评论快报》124, 101803（2020）, arXiv:1905.09128 [physics.atom-ph]。[27] M. W. Heiss、L. d. S. Borges、A. Golovizin 和 P. Crivelli, 《物理评论A》111, 10.1103/phys- reva.111.012810（2025）。[28] M. S. Fee、A. P. Mills、S. Chu、E. D. Shaw、K. Danzmann、R. J. Chichester 和 D. M. Zuckerman, 《物理评论快报》70, 1397（1993）。[29] A. P. Mills 和 E. M. Gullikson, 《应用物理快报》49, 1121（1986年）。[30] T. J. Murphy 和 C. M. Surko, 《物理评论A辑》46, 5696（1992年）。[31] P. Crivelli、U. Gendotti、A. Rubbia、L. Liszkay、P. Perez 和 C. Corbel, 《物理评论A辑》81, 052703（2010年）。[32] D. B. Cassidy、P. Crivelli、T. H. Hisakado、L. Liszkay、V. E. Meligne、P. Perez、H. W. K. Tom 和 A. P. Mills, 《物理评论A辑》81, 012715（2010年）。[33] D. A. Cooke、G. Barandun、S. Vergani、B. Brown、A. Rubbia 和 P. Crivelli, 《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》49, 014001（2015年）。[34] M. W. Heiss、L. d. S. Borges、A. Golovizin 和 P. Criv- elli, 《物理评论A辑》111, 012810（2025年）。[35] M. W. Heiss, *Precision Spectroscopy of Positronium Using a Pulsed Slow Positron Beam*，博士论文，苏黎世，苏黎世联邦理工学院（2021年）。[36] A. Deller、B. S. Cooper、T. E. Wall 和 D. B. Cassidy, 《新物理学杂志》17, 043059（2015年）。[37] E. D. Black, 《美国物理学杂志》69, 79–87（2001年）。[38] D. A. Dahl, 《国际质谱学杂志》200, 3（2000年）, 第200卷：迈入新千年之际的领域现状。[39] L. Galli、A. Baldini、F. Cei、M. Chiappini、M. Francesconi、M. Grassi、U. Hartmann、M. Meucci、F. Morsani、D. Nicol` o、A. Papa、S. Ritt、E. Schmid 和 G. Signorelli, 《核仪器与方法物理研究A辑：加速器、谱仪、探测器及相关设备》936, 399（2019年）, 前沿探测器与前沿物理：第14届比萨先进探测器会议。[40] L. de Sousa Borges, *Precision continuous-wave laser 1S–2S spectroscopy of leptonic atoms*，博士论文，苏黎世，苏黎世联邦理工学院（2025年）。[41] M. Haas、U. D. Jentschura、C. H. Keitel、N. Ko- lachevsky、M. Herrmann、P. Fendel、M. Fischer、T. Udem、R. Holzwarth、T. W. H¨ansch、M. O. Scully 和 G. S. Agarwal, 《物理评论A辑》73, 052501（2006年）。[42] G. Adkins、D. Cassidy 和 J. P´erez-R´ıos, 《物理学报告》975, 1（2022年）。[43] N. Zhadnov、A. Golovizin、I. Cortinovis、B. Ohayon、L. d. S. Borges、G. Janka 和 P. Crivelli, 《光学快报》31, 28470（2023年）, arXiv:2304.13527 [physics.atom-ph]。[44] E. Javary、E. Thorpe-Woods、I. Cortinovis、M. M¨ahring、L. de Sousa Borges 和 P. Crivelli, 《欧洲物理学杂志D辑》79, 10.1140/epjd/s10053-025-00960- 9（2025年）。[45] K. Shu *et al.*, arXiv电子预印本, arXiv:2310.08761（2023年）, arXiv:2310.08761 [physics.atom-ph]。

[46] L. T. Gl ¨ ¯ **132**, oggler *et al.* （AEgIS）, 083402 2024 2310 《物理评论快报》（）, arXiv: .08760 [physics.atom-ph]。[47] F. Biraben、M. Bassini 和 B. Cagnac, 《法国物理学杂志》**40**, 445（1979年）。[48] J. Greenwood, 《真空》**67**，217（2002）。[49] L. O. A. Azevedo 和 C. L. Cesar, 《物理评论A辑》**111**，012807（2025年）。