文章

利用原子氢对标准模型进行亚万亿分之一水平的检验

https://doi.org/10.1038/s41586-026-10124-3

收稿日期：2025年7月13日

录用日期：2026年1月12日

Published online: 11 February 2026

开放获取

检查更新

Lothar Maisenbacher[1,4]✉, Vitaly Wirthl[1], Arthur Matveev[1], Alexey Grinin[1,5], Randolf Pohl[2], Theodor W. Hänsch[1,3] & Thomas Udem[1,3]

量子电动力学（QED）是首个相对论量子场论，在基本层面上描述光与物质相互作用，是标准模型（SM）的支柱之一。凭借量子电动力学的极高精度，标准模型对氢原子等简单系统能级的预测可达13位有效数字[1]，使氢光谱学成为理想的检验平台。利用量子电动力学从氢的不同跃迁中提取的物理常数（如质子电荷半径r_p）的一致性，构成对该理论的检验。然而，r_p来自近期测量[2–7]的原子氢数值彼此部分不一致，也与μ子氢光谱学给出的更精确值部分不一致[8,9]。这使得无法在实验不确定度水平上检验量子电动力学。本文给出原子氢中2S–6P跃迁的测量，其精度足以区分相互矛盾的r_p值，从而能够对量子电动力学及标准模型整体进行严格检验。我们的结果ν_{2S-6P} = 730,690,248,610.79(48)千赫兹给出r_p = 0的值为.8406(15) fm，精度至少比其他原子氢测定高2.5倍，并与μ子值高度一致。跃迁频率的标准模型预测（730,690,248,610.79(23)千赫兹）与我们的结果高度一致，在0.7万亿分之一（ppt）的水平上检验了标准模型，具体而言，在0.5百万分之一（ppm）的水平上检验了束缚态QED修正，这是迄今最精确的检验。

原子氢的结合能可表示为[1]

$$E_{nlj} = chR_\infty\left(f_{nj}^{\mathrm{Dirac}}\left(\alpha, \frac{m_p}{m_e}\right) + f_{nlj}^{\mathrm{QED}}\left(\alpha, \frac{m_p}{m_e}, \ldots\right) + \delta_{l0}\frac{C_{NS}}{n^3}r_p^2\right), \quad (1)$$

其中，n、l 和 J 分别是相关能级的主量子数、轨道角动量量子数和总电子角动量量子数。f_{nj}^{Dirac}是狄拉克本征值（最低阶为$\propto 1/n^2$），而第二项f_{nlj}^{QED}（最低阶为$\propto 1/n^3$）包含束缚态量子电动力学修正，例如自能和真空极化修正，包括μ子和强子贡献[1]。这两项都取决于精细结构常数α以及电子与质子质量比 m_p/m_e；通过其他不需要束缚态量子电动力学的实验，这两个量已得到足够精确的测定（参考文献1、10–14）。第三项是 S态（l = 0）的最低阶核尺寸修正，用于计入质子的有限均方根（rms）电荷半径 r_p。第二项和第三项构成兰姆位移，分别对 2S–6P跃迁频率贡献约 1 ppm 和 100 ppt（扩展数据表1）。无量纲项使用里德伯常数 R_∞转换为国际单位制（国际单位制）单位。

为了将测得的能级或跃迁频率与方程（1）进行比较，r_p和R_∞必须已知（真空光速c和普朗克常数h均为定义值）。实际上，r_p和R_∞主要由这些测量本身确定，因此需要对不同跃迁进行两次以上测量，才能检验方程（1）。

一种特殊情形是利用μ子氢的激光光谱学测定r_p。[8,9,15]在这种奇异原子中，电子被负缪子取代；负缪子的质量更大，使方程（C_{NS}）中的1增大四个数量级，从而无需其他高精度输入即可精确测定r_p。由于核尺寸修正与其他量子电动力学修正一样，按 $1/n^3$ 的比例缩放，原子氢与μ子氢中r_p值不一致，可能表明量子电动力学项存在遗漏或不完整（方法）。值得注意的是，缪子测量得到的r_p值显著更小（$>5\sigma$），低于当时已确立的数值（CODATA 2014（参考文献16））。

这一质子半径之谜引发了广泛的研究工作[2–7, 17]。我们首先通过对原子氢中2S能级–4P跃迁的精密测量来应对这一问题[2]，该测量支持μ子结果，但无法确凿地（$>5\sigma$）排除先前的数值。随后对原子氢的测量相继开展[3–7]但它们与μ子值以及彼此之间部分存在差异，且无一足够精确，无法对μ子值进行确凿检验，如图1所示。迄今为止，这阻碍了在实验不确定度水平上对量子电动力学的验证。

本文报告了原子氢中2S–6P跃迁的激光光谱学研究，其精度足以区分 r_p 的不同测定值。该精度意味着跃迁频率的测定精确到实验线宽的十五分之一万；据我们所知，这在激光光谱学中前所未有。要达到这一精度，需要充分了解谱线的任何不对称畸变

[1]德国加兴马克斯·普朗克量子光学研究所。[2]德国美因茨约翰内斯·古腾堡美因茨大学。[3]德国慕尼黑慕尼黑路德维希-马克西米利安大学。[4]现地址：美国加利福尼亚州伯克利加利福尼亚大学伯克利分校。[5]现地址：美国伊利诺伊州埃文斯顿西北大学。✉电子邮箱：lothar.maisenbacher@mpq.mpg.de

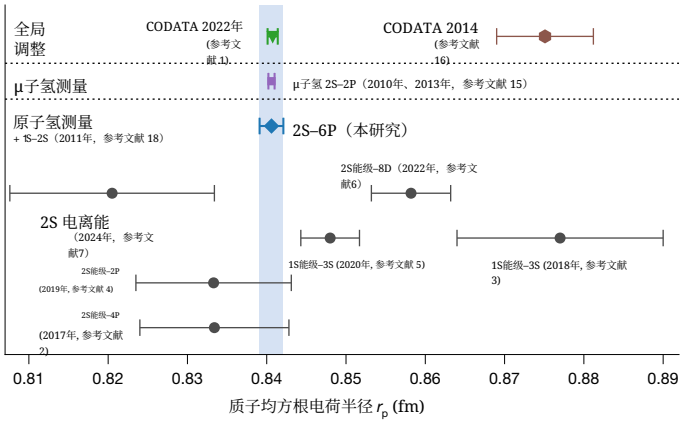


图 **1**| 质子均方根电荷半径 r_p。此前通过原子氢光谱学测得的 r_p（参考文献 2–7；黑色圆点）彼此之间存在一定差异，与通过 μ子氢光谱学测得的 r_p 值（参考文献 8、9、15；紫色方块）也不完全一致，因此无法明确解决 2010 年 μ子值与当时已确立的较大数值之间最初的 5.6σ 差异（如 CODATA 2014 基本物理常数全球调整[16]所总结；棕色六边形）。本研究通过原子氢的 2S–6P跃迁光谱学测得的 r_p 值（蓝色线段和菱形）至少比其他原子氢测量结果精确 2.5 倍，并与 μ子值高度一致。该值与精度低四倍的 CODATA 2014 数值相差 5.5σ。r_p 值由各项测量结果结合 1S–2S 跃迁频率[18] 和方程（1）确定（r< 0值之间的皮尔逊相关系数为 0.05）。最新的 CODATA 2022 全球调整（参考文献 1；绿色三角形）实质上对应 μ子值，这是因为后者的不确定度极低。误差棒表示一个标准差不确定度。此处未显示电子–质子散射数据，因为不同分析得出的 r_p 值差异显著（参考文献 1、48）。格点量子色动力学对 r_p 的计算前景可期，但目前尚不具竞争力[49]。结合 μ子值的原子氢里德伯常数 R_∞ 见扩展数据图2，r_p亦见其中。

形状，并获得较高的实验信噪比。将我们的测量结果与已精确测定的 1S–2S跃迁频率[18]，结合后，我们确定了r_p 其精度比此前原子氢测定的最佳结果高出2.5倍[5]（图1）。我们的r_p 测定值与μ子值高度一致，但精度高出四倍，且与CODATA 2014 数值存在显著差异（5.5σ）[16]因此，我们将μ子值r_p 作为方程（1）的输入（同时输入1S–2S跃迁频率），从而能够比较标准模型对2S–6P跃迁频率的预测与我们的测量结果。这构成了对标准模型精度达0.7万亿分之一的检验，以及对束缚态QED修正精度达0.5 ppm的检验。

测量原理

2S–6P跃迁

我们利用无多普勒单光子激光光谱，在低温氢原子束中研究2S–6P跃迁。尽管此前已通过激光光谱学观测到该跃迁[19,20]，本研究取得了显著改进。我们使用线偏振的410 nm光谱激光，交替考察亚稳态初始m2S，$^{F=0}_{1\ 2}$ = 0 $_F$/能级的两个偶极允许跃迁：2S–6$P_{1/2}$ 跃迁至m6P，$^{F=1}_{1\ 2}$ = 0 $_F$/能级，以及2S–6$P_{3/2}$ 跃迁至m6P，$^{F=1}_{3\ 2}$ = 0 $_F$/能级，如图2a（F为总角动量量子数；m_F为磁量子数）。激发态6P能级迅速衰变，直接或通过级联衰变至1S和2S能级流形，产生Γ = 3.90兆赫的自然跃迁线宽。这些衰变主要是直接的莱曼-ε 衰变至1S能级流形，它们构成实验信号；通过在线扫描中记录不同光谱学激光失谐量下的信号，观测荧光线形。从激发态能级衰变回初始2S能级的比例，对于2S–6Pγ_{ei}/Γ = 3跃迁或2S–6P跃迁分别为.9%或7.9%。值得注意的是，经过不同激发态能级、但最终到达同一末态的激发-衰变路径之间的量子干涉（QI），会显著扭曲荧光线形。相关谱线位移约为$\Gamma^2/\Delta\nu_{FS}$（6P）≈Γ/100（参考文献2、21、22），其中$\Delta\nu_{FS}$（6P）≈405 兆赫为激发态能级之间的6P精细结构分裂。由于畸变的大小和符号取决于探测方向（相对于激光偏振的方向），我们在此采用较大的探测立体角和魔偏振角，以大幅抑制频移[22]。

实验装置

实验装置的关键真空内组件（详见参考文献 23）如图 2b 所示。简而言之，铜喷嘴（圆形孔径，半径为 r_1 = 1 毫米）在温度 T_N = 4.8 K 下形成一束低温氢原子束。氢原子通过制备激光器（波长 243 nm；图 m2S $^{F=0}_{1\ 2}$ = 0 $_F$/）与原子束共线，从 1S基态经多普勒无关的双光子激发，制备于初始 2a,b能级。准直孔径（宽 1.2 mm，位于喷嘴下游 154 mm 处）将原子束在横向（x）方向上的发散角限制在约 10 毫弧度。

原子束进入圆柱形探测器组件内的 2S–6P 光谱区，在距喷嘴 L = 204 mm 处，以可调原子束偏移角 $|\alpha_0|$ = 0–12 mrad 偏离正交方向，与沿 x 方向反向传播的光谱激光束相交。在激光束具有相同波前曲率和功率的理想情况下，这种激发方案产生的线型质心不受一阶多普勒频移影响（但不一定没有多普勒展宽），因为原子与相应光束的相互作用会产生大小相等、符号相反的多普勒频移。此处，主动式光纤回射器（AFR）[24–26]由保偏光纤、准直器和高反射率反射镜组成，可生成所需的高质量波前回溯光束（2.2 mm 1/e^2 强度半径；P_{2S-6P} = 5–30 μW 为每束光的功率）。AFR 安装在可旋转探测器圆筒上，可在原位调节 α_0（精度为 1 mrad）。我们将 α_0 调至接近零，以避免反向传播光束产生的两个多普勒分量使线型分裂；但在表征光力频移（LFS；见下文）时除外。相对于圆筒轴（沿 y 方向），光谱激光束的偏振角 θ_L 设为 56.5°，即能够抑制量子干涉畸变的魔角；或者设为与其正交的 146.5°。

6P 衰变发出的光子会从圆筒壁上打出光电子，这些光电子被吸引至圆筒顶部和底部的通道式电子倍增器并由其计数（顶部和底部探测器）。每个探测器覆盖总立体角的 >20%，从而进一步抑制量子干涉畸变。分段式法拉第笼包围光谱区，可屏蔽外部电场，并允许施加偏置电场，以表征杂散电场及其导致的直流斯塔克位移（方法）。

无多普勒单光子光谱

我们研究不同的原子速度组 τ_i (i = 1–16；扩展数据表2），具体做法是定期遮挡1S–2S制备激光，从而间歇性停止产生2S 原子，并记录信号随延迟时间的变化 τ = 10–2，560 μs。延迟时间 τ越长，对信号有贡献的 2S 原子速度越慢。对信号有贡献的原子的速度分布可用麦克斯韦–玻尔兹曼通量分布乘以一个额外因子 $\exp(-v_{cut\text{-}off}/v)$ 来很好地描述，其中特征截止速度为$v_{cut\text{-}off}$ ≈ 50 m s^{-1}；该因子反映了较慢原子因碰撞而损失的情况（方法）。各速度组的平均速度 $\bar{v}$ 范围很广（253(5) 至 65(1) m s^{-1}；总体平均速度 $\langle v\rangle$ = 195(6) ms^{-1}）

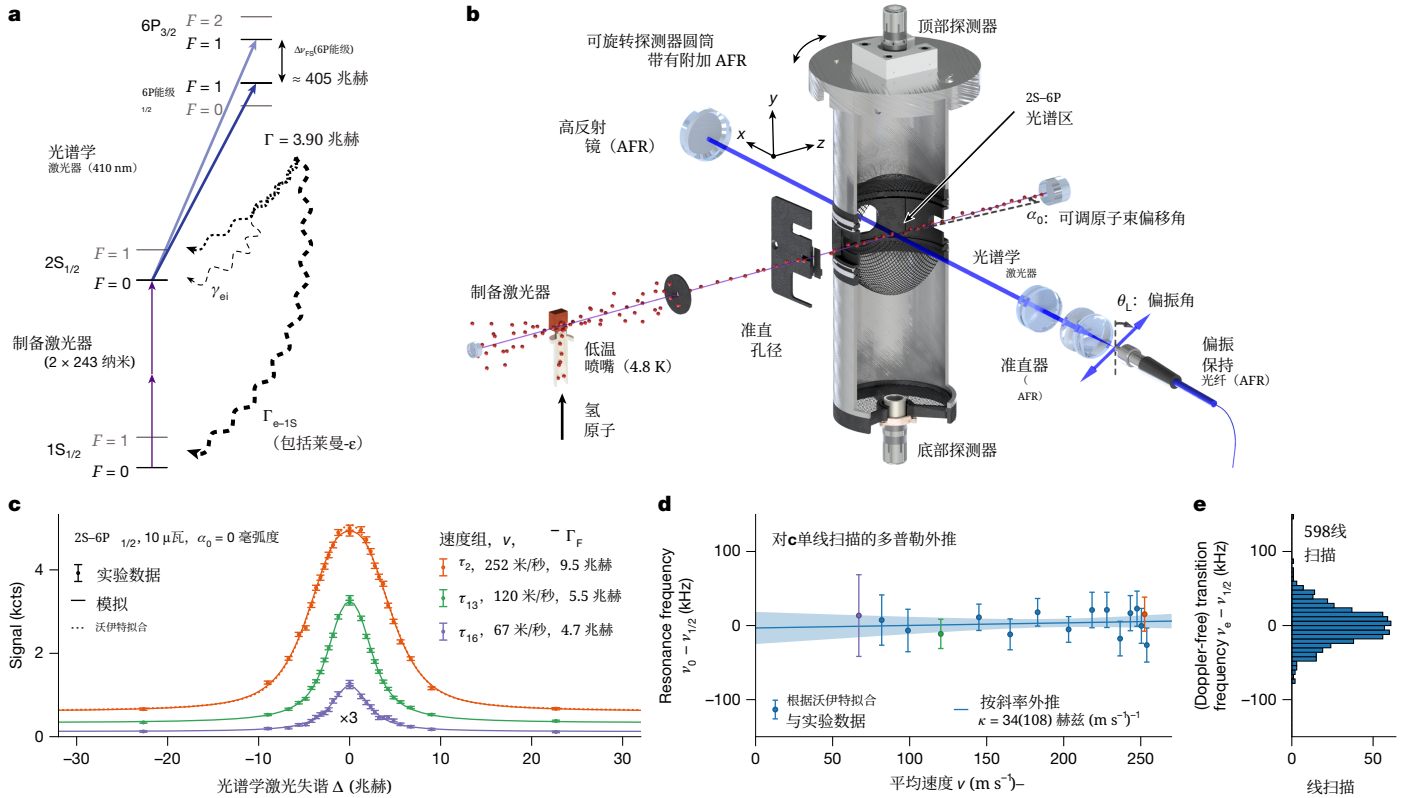


图 2 | 2S–6P跃迁的无多普勒单光子光谱。a，原子氢的相关能级图（未按比例绘制）。实线箭头表示激光驱动跃迁，虚线箭头表示自发衰变。光谱激光与2S–$6P_{1/2}$（深蓝色）或2S–$6P_{3/2}$（浅蓝色）跃迁共振。灰色所示能级未与激光共振耦合。**b**，实验装置的主要部件（按比例绘制，剖视图）。黑色虚线（与光谱激光正交）示意原子束偏移角α_0（图中夸大显示）和激光偏振角θ_L。**c**，2S–$6P_{1/2}$跃迁的典型线扫描（在40秒内采集；完整失谐范围为±50 兆赫；见方法）。记录不同速度组τ_i的荧光信号（顶部探测器；kcts，千计数），其平均速度为$\bar{v}$；此处显示其中三组（橙色、绿色和紫色圆点；为便于观察，已按比例缩放τ_{16}（×3））。误差棒表示预期的单标准差（σ）散粒噪声。半高全宽线宽Γ_F随着多普勒展宽减小，较慢速度组的信号也随之减弱。实线表示模拟线型（经过缩放和偏移以匹配信号），橙色虚线表示对τ_2进行的沃伊特线型拟合（拟合残差见扩展数据图1）。P_{2S-6P} = 10 μW光谱激光功率和α_0 = 0 毫弧度用于实验。**d**，通过对面板**c**中扫描所得的各速度组进行沃伊特线型拟合，得到共振频率ν_0（圆圈），并将其绘制为$\bar{v}$的函数。误差棒表示1σ拟合不确定度。外推至零速度（蓝线；蓝色阴影表示1σ置信区间）得到无多普勒跃迁频率ν_e和多普勒斜率κ。ν_0已针对光力、量子干涉和二阶多普勒频移以及所有其他修正进行了修正。**e**，598个探测器平均后的无多普勒跃迁频率ν_e的直方图（扩展数据表3中的数据组G3），这些频率采用与面板**c**和**d**线扫描相同的实验参数测得。

其横向速度近似服从高斯分布，半高全宽（FWHM）为 3.4 至 0.6 m s^{-1}（括号内为扩展数据表3中各数据组的标准差）。

图 2c展示了典型 2S–$6P_{1/2}$ 跃迁线扫描中三个速度组（圆圈）的顶部探测器信号。快速速度组（例如τ_2 橙色圆圈）的半高全宽线宽Γ_F 远大于自然线宽Γ，这是由于其较大的横向速度宽度导致多普勒展宽。相反，对于较慢的速度组（绿色和紫色圆圈），随着横向速度宽度减小，Γ_F 趋近于Γ。总体而言，Γ_F 的范围为 9.6(4) 至 5.5(6) 兆赫（扩展数据表2）。

我们的线形模拟（实线；此处展示的是量子干涉模型；方法）与实验数据高度吻合，重现了多普勒展宽，其中$\nu_{cut\text{-}off}$是唯一的自由参数。每个速度组的共振频率ν_0通过将简单的沃伊特或沃伊特双峰线形（虚线；方法）拟合到数据来确定。这不同于我们此前进行的2S–4P测量[2]，，在那次测量中，我们使用了有理论依据的非对称线型模型来解释量子干涉畸变。这里的量子干涉畸变小得多，这归功于魔偏振角和较大的探测立体角；光力频移造成的畸变则占主导地位（扩展数据图1），但据我们所知，目前尚无等效的线型模型。因此，我们将同一简单线型模型拟合到模拟结果，并利用光力频移和量子干涉模拟校正实验共振频率。

为消除任何残余的一阶多普勒频移，我们使用线性模型 $\nu_0 = \nu + \kappa \bar{\nu}_e$ 将每次线扫描的共振频率ν_0外推至零速度（图2d）。由此得到无多普勒跃迁频率ν_e、多普勒斜率κ以及相应的有效频率修正$\Delta\nu = -\kappa \bar{\nu}_e$（方法）。图2e展示了$\nu_e$在与图2c,d相同实验参数下记录的全部 598 次线扫描。本文所呈现的数据集共包含 3,155 次线扫描，这些扫描在三轮测量（A、B 和 C）中采集，并归入 17 种实验参数组合（数据组；扩展数据表3）。

光力频移

正如光波会在周期结构上发生衍射，物质波也会在由光驻波形成的周期结构上发生衍射；Kapitza和Dirac最初便预测了电子会出现这一现象[27]。在这里，原子可视为物质波，它们穿过用于抑制一阶多普勒频移的反向传播光谱激光束所形成的驻波强度场时，也可能发生类似的衍射（图2b）。这种效应与驻波上的散射共同作用，会导致荧光线形发生畸变，并产生

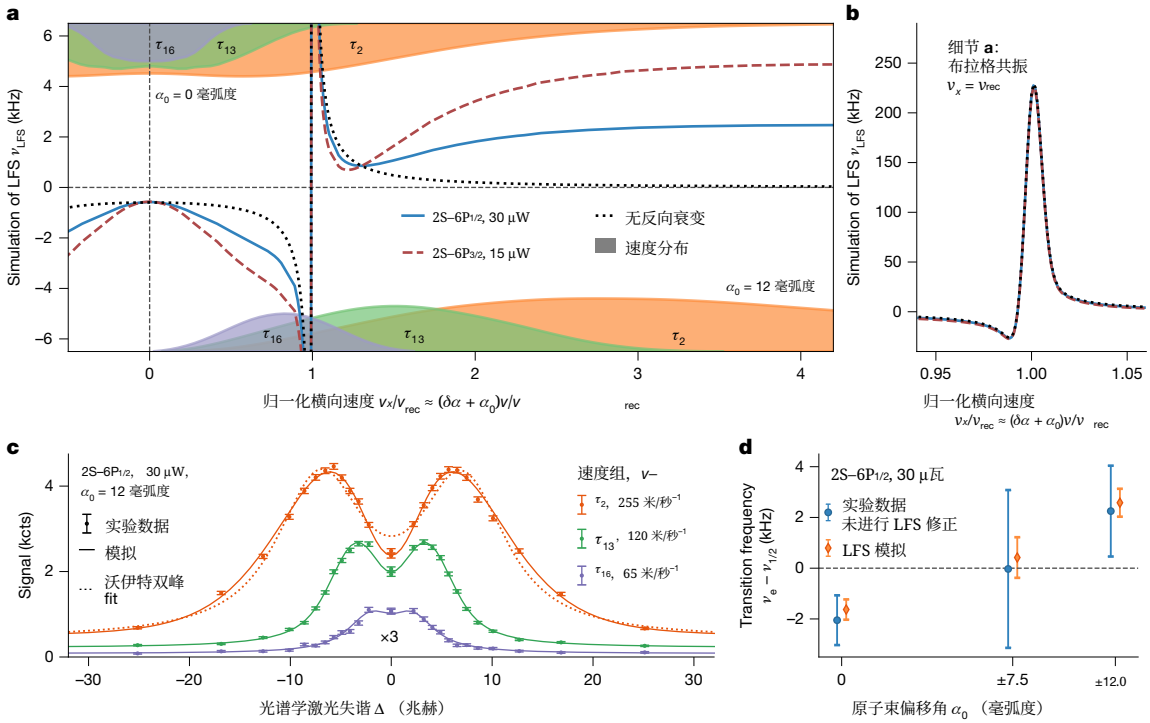


图3 | LFS 的模拟与测量。a，LFS 的模拟ν_{LFS}，它源于原子与驻波强度场的相互作用；该驻波强度场由反向传播的光谱激光束形成（周期为$\lambda/2 = 205$ 纳米）。模拟将原子视为在波节与波腹间离域分布，以速度 v = 200 米/秒$^{-1}$穿过驻波，且相对于正交方向的夹角为$\delta\alpha + \alpha_0$（横向速度为 $v_x \approx v(\delta\alpha + \alpha_0)$；图2b）。图中显示了 2S–6P$_{1/2}$（蓝色实线）和 2S–6P$_{3/2}$（红色虚线）跃迁（拉比频率相同）的结果；对于这两种跃迁，分别有 3.9% 和 7.9% 的 6P能级衰变回到 2S能级（图2a）。图中还显示了假设不存在反向衰变的情形（黑色点线）。当 $v_x = v_{rec} \approx 0.97$ 米/秒（反冲速度）时，会发生布拉格共振，从而产生较大的频移。频移关于 v_x 对称，并对于 $|v_x| \lesssim v_{rec}$（$|v_x| \gtrsim v_{rec}$），分别为负（正）。顶部（底部）显示原子束偏移角 α_0 为 0 毫弧度（ 12 毫弧度）时 v_x 的模拟分布（经平滑处理并缩放以便观察），对应速度组 τ_2、τ_{13} 和 τ_{16}（纵向单位任意）。b，布拉格共振细节。c，与图2c相似，但对应于 $\alpha_0 = 12$ 毫弧度的线扫描，该扫描将线型分裂为两个多普勒分量。使用沃伊特双峰线型对该线进行拟合（方法）。d，对于在 $P_{2S-6P} = 30$ μW 和 $|\alpha_0| = 0$、7.5 和 12 毫弧度下采集的数据，并经所有系统效应（光力频移除外）校正后，2S–6P$_{1/2}$ 跃迁的无多普勒跃迁频率 ν_e（蓝色圆圈）。光力频移的模拟结果（橙色圆圈）与实验数据高度吻合。误差棒表示统计不确定度与系统不确定度的合成值（实验数据），或输入参数带来的不确定度（模拟）。

线频移（LFS）。尽管在其他使用驻波的实验中也观察到了此类频移[28–30]，但频移的行为和大小以及所需的理论处理都高度依赖于具体的实验条件。使用行波可以避免LFS[31]，但迄今为止，这种方法尚未实现此处所需的多普勒频移抑制水平。

物质波的衍射与光波一样，需要一定程度的空间相干性；当原子沿驻波方向的横向相干长度$l_{c,t}$与其周期$\lambda/2 = 205$ nm相当时，衍射便变得重要。将低温喷嘴视为原子的热源，我们发现$l_{c,t}$为$\lambda_{dB,th} = 0.8$ nm（文献32），因而远小于$\lambda/2$，其中λ h kT m= /2π dB,th 2 B N H为热德布罗意波长（m_H，氢质量；k_B，玻尔兹曼常数）。然而，正如范西特–泽尼克定理[33]，所熟知的那样，横向相干长度会因传播而增强，这在来自热源的大分子物质波干涉中已有体现[34]。在距喷嘴距离L处，这导致

$$l_{c,t} \approx (L/r_1)\lambda_{dB}/\pi \qquad (2)$$

对于速度为 v、德布罗意波长为 $\lambda_{dB} = h/m_H v$ 的原子$v = 200$ m s^{-1}，这是实验中所研究原子的平均速度，$l_{c,t}$ 在驻波处为 129 nm，因此与其周期相当。由此，我们需要将原子建模为部分相干物质波；也就是说，原子在驻波范围内部分离域，这与[35]适用于不同实验条件的局域化描述[28,29]不同。

我们使用维格纳函数[36]来获得原子束的量子力学描述：对沿驻波方向的运动进行量子化，同时将其他方向按经典方式处理。由此得到的 $l_{c,t}$ 与上述估计值相当[23]。原子与驻波的相互作用可用内部能级和沿驻波方向外部动量的组合基底来描述（补充方法）。原子吸收来自向前传播的（+）或向后传播的（−）光束的光子后，会从 2S能级跃迁至 6P能级，其沿光束方向的动量改变 $\pm\hbar K_L$（波数 $K_L = 2\pi/\lambda$；$\hbar = h/2\pi$）。类似地，向任一光束受激辐射会使原子返回 2S能级，其动量改变$\mp\hbar K_L$。这对应于速度改变一个反冲速度，即 $v_{rec} = \hbar K_L/m_H \approx 097$ m s^{-1}，与原子的典型横向速度 v_x 相当。由于 6P能级主要自发衰变至 1S基态，而在记录信号期间原子不会从该基态再激发，因此这里的最大相关动量变化为 ±4 $\hbar k$。

自发衰变γ_{ei}/Γ回到初始2S能级的小部分衰变，会沿驻波方向产生随机的动量变化，因为发射光子的方向是随机分布的[37]。此类衰变所伴随的多普勒频移（至多为反冲频移的两倍，即$\Delta\nu_{rec} = 1176.03$ 千赫兹）低于自然线宽Γ，因此原子可以再次被激发至6P能级，并最终对信号产生贡献。然而，由于$\gamma_{ei}/\Gamma \ll 1$，此处至多只有一次这样的反向衰变与研究相关。

我们首先模拟原子与驻波的相互作用，其中原子初始处于动量本征态，也就是说，它是一个完全

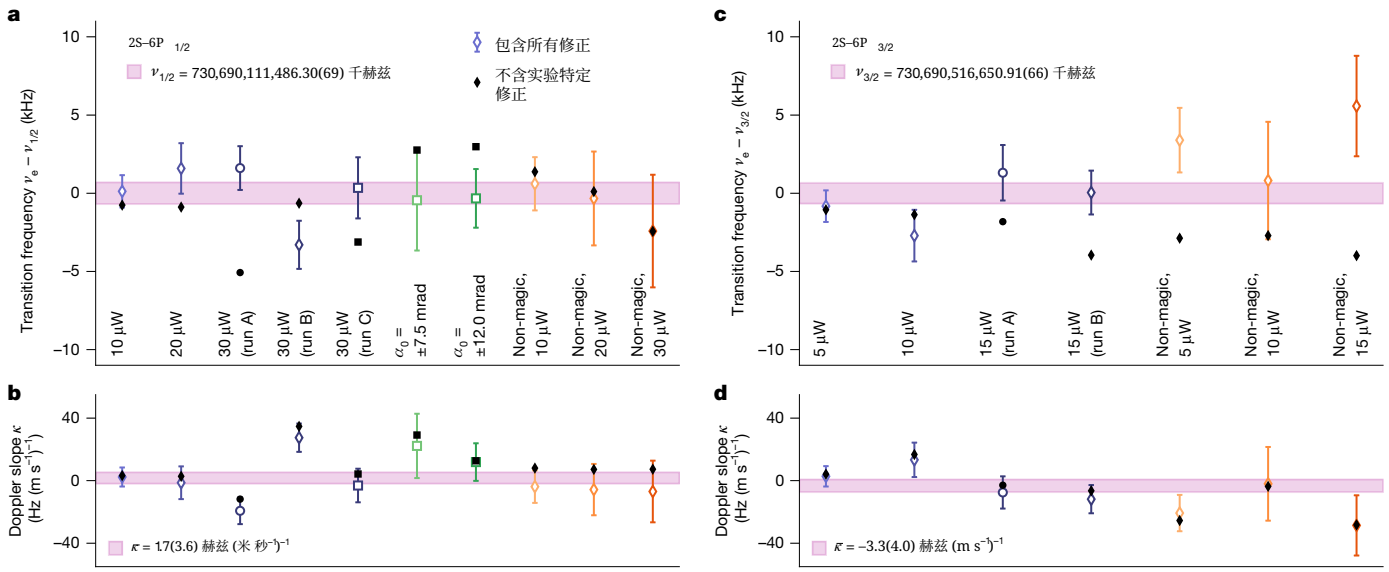


图 4 | 两个受测2S–6P跃迁的跃迁频率和多普勒斜率。 **a**，不同数据组（即实验参数和测量轮次的组合）的2S–6P$_{1/2}$跃迁测得的跃迁频率ν_e，数据组标注于各数据点下方，并列于扩展数据表3中。数据采集自光谱激光功率（10、20和30 μW）、原子束偏移角α_0（除非另有说明，均为$\alpha_0 = 0$毫弧度）和激光偏振角θ_L（默认采用魔角$\theta_L = 56.5°$；非魔角$\theta_L = 146.5°$已作相应标记）的各种组合。数据在数月内分多个为期3周的测量轮次采集：轮次A（圆形）、轮次B（菱形）和轮次C（方形）。误差棒表示统计误差和系统误差合并后的一标准差偏差（σ）不确定度，紫色阴影区域表示所有数据的加权平均值及其1σ不确定度。黑色标记表示未进行实验特定修正（包括光力、量子干涉以及一阶和二阶多普勒频移修正）的结果（扩展数据表4）。**b**，图κa**中各数据组的多普勒斜率**，通过速度分辨探测在原位测定（图2）。原子束的平均速度为$v(\rangle \approx 195\,\mathrm{m\,s^{-1}}$。$\bar{\kappa}$为多普勒斜率的加权平均值。**c**、**d**，与图**a**和**b**相同，但对应于2S–6P$_{3/2}$跃迁。为使拉比频率相同，2S–6P$_{1/2}$和2S–6P$_{3/2}$跃迁的光谱激光功率之比为2:1。所有数据组中，ν_e与κ之间的皮尔逊相关系数为$r = -0.78$。

离域物质波，横向速度为 $v_x \approx v(\delta\alpha + \alpha_0)$。图3a展示了原子速度为 v = 200 m s^{-1} 时的光力频移 ν_{LFS}；该频移通过对模拟线型进行沃伊特线型拟合得出（注意，ν_{LFS}关于 v_x始终是对称的）。假设不存在向2S能级的反向衰变（黑色虚线），则描述的是物质波在驻波上的纯衍射。当 $v_x = v_{rec}$时，满足布拉格条件，原子在两束反向传播光束之间相干散射光子，从而产生一个频移超过200 kHz的窄共振（图 3b）。低于该共振时，频移为负值，在零 v_x附近近似保持恒定；高于该共振时，频移为正值，并随着 v_x 增大而趋近于零。另一方面，若允许反向衰变，原子便可在驻波上发生散射。这主要会导致共振上方出现正频移，其大小近似按 γ_{ei}/Γ 缩放；图中分别展示了2S–6P$_{1/2}$ ($\gamma_{ei}/\Gamma = 3.9\%$；蓝色实线）和2S–6P$_{3/2}$ ($\gamma_{ei}/\Gamma = 7.9\%$；红色虚线）跃迁的情况。

部分相干原子束对应于处于各种动量本征态的原子所作的非相干求和（补充方法）。由于原子束的横向速度展宽约为 v_{rec}（见图 3a 顶部的阴影区域，该区域显示了所选速度组的速度分布，以及扩展数据表2），这使我们无法在实验上分辨布拉格共振，并且在一定程度上平均了频移（对于 2S–6P–0跃迁和 −12S–6P$_{1/2}$ 跃迁，频移最多分别为 .96 千赫兹和 $_{3/2}$ .28 千赫兹；两者均发生在速度组 τ_{13} 中）。

为了检验我们的光力频移（LFS）模型和模拟，我们测量了原子束偏移角为$_{1/2}$的 2S–6P$\alpha_0 = \pm 7$跃迁频率，以及偏移角为$\alpha_0 = \pm 12$ 毫弧度和 $\alpha_0 = 0$ 毫弧度的数据集（图3c,d）。具体而言，对于$\alpha_0 = \pm 12$ 毫弧度和 $\alpha_0 = 0$ 毫弧度（两者的$P_{2S-6P} = 30$ μW 均相同）下采集的数据，在对除 LFS 之外的所有系统效应进行 0.17(28) 千赫兹的修正后，我们发现多普勒无关跃迁频率之差为

$$\nu_e^{(\text{no LFS corr.})}(\pm 12\ \text{mrad}) - \nu_e^{(\text{no LFS corr.})}(0\ \text{mrad}) = 4.32(1.83)\ \text{kHz}. \quad (3)$$

该不确定度主要由±12 毫弧度数据的 1.63 千赫兹统计不确定度决定。此差值与 LFS 模拟高度吻合，模拟预测

$$\nu_{e\,\text{LFS}}\ \pm 12 \qquad -\nu_{e\,\text{LFS}}\ 0 \qquad = ,$$

4 21 61

(毫弧度) , (毫弧度) . ( ) 千赫兹。实验线型的相应畸变在拟合残差的不对称性中清晰可见（扩展数据图1）；对于两个不同的α_0值，该畸变明显不同，且与模拟高度吻合。在$\alpha_0 = \pm 7.5$ 毫弧度处测得的 LFS 也与模拟一致，但统计不确定度相对较大，为 3.04 千赫兹（图3d）。这一比较也有力地检验了多普勒频移抑制方案（方程（3）包含$\Delta\nu_e = -1.$ 92(1.81) 千赫兹的多普勒频移修正），这是因为α_0 差异很大；同时，这也检验了数据分析，因为其中涉及定性上不同的线型。

量子干涉

我们采用参考文献 2中开发并经过广泛测试的量子干涉模拟，以估计剩余的量子干涉频移；我们发现，对于 2S–6P–0跃迁和 2S–6P$_{1/2}$ 跃迁，该频移分别为 .25(36) 千赫兹和 0.05(15) 千赫兹$_{3/2}$（方法）。这些数值包含少量取自偏离魔角方向的数据，在该方向上量子干涉畸变更大，用于检验我们的模拟。此外，我们利用了这样一个事实：对于这两种跃迁，畸变的符号相反（且幅度不同）[22]，并将 2S–6P$_{1/2}$ 和 2S–6P$_{3/2}$ 跃迁频率按 1:2 的比例合成为 2S–6P精细结构重心（方法）。这样可将频移降低至仅 −0.05(2) 千赫兹。

2S–6P跃迁频率

通过对所有可用数据取平均值（图4），我们发现 2S–6P$_{1/2}$ 跃迁（$\nu_{1/2}$）和 2S–6P$_{3/2}$ 跃迁（$\nu_{3/2}$）的跃迁频率为

$$\nu_{1/2} = 730{,}690{,}111{,}486.30(49)_{\text{stat}}(49)_{\text{sys}}\ \text{kHz} = 730{,}690{,}111{,}486.30(69)\ \text{千赫兹}\ [0.94\ \text{万亿分之一}], \quad (4)$$

$$\nu_{3/2} = 730{,}690{,}516{,}650.91(60)_{\text{统计}}(28)_{\text{系统}}\ \text{千赫兹} = 730{,}690{,}516{,}650.91(66)\ \text{千赫兹}\ [0.90\ \text{万亿分之一}]。 \quad (5)$$

最终的一个标准差不确定度（σ）为统计（“stat”）和系统（“sys”）不确定度的合成值，其中前者对应多普勒频移外推不确定度。所有修正和不确定度均列于扩展数据表4；正文中未讨论的贡献详见方法和补充方法。此处取平均值的两个探测器的结果在其不确定度范围内一致。两种跃迁的平均多普勒斜率κ均与零相容。

通过求两个测得的跃迁频率之差，我们得出$6P_{1/2}^{F=1}$和$6P_{3/2}^{F=1}$能级之间的6P精细结构分裂，

$$\Delta\nu_{\text{FS}}(6P) = \nu_{3/2} - \nu_{1/2} = 405{,}164.62(97)\ \text{kHz}. \quad (6)$$

扩展数据表4列出了修正和不确定度。量子电动力学预言$\Delta\nu_{\text{FS, QED}}(6P) = 405{,}164.51(1)$千赫兹（方法），在我们的精度水平下，该预言不依赖于r_p，与测量结果高度吻合（$\Delta\nu_{\text{FS}}(6P) - \Delta\nu_{\text{FS, QED}}(6P) = 0.11(97)$千赫兹）。这一比较检验了（不相关的）多普勒频移外推，以及对光力、量子干涉和直流斯塔克频移的修正；后两项对两个跃迁的符号相反。

最后，我们将两个跃迁频率合并，得到2S–6P精细结构重心，

$$\nu_{2S-6P} = \frac{1}{3}\nu_{1/2} + \frac{2}{3}\nu_{3/2} + \Delta\nu_{\text{HFS}}(\nu_{2S-6P}) \quad (7)$$

$$\nu_{2S-6P} = 730{,}690{,}248{,}610.79(48)\ \text{kHz}\ [0.66\ \text{ppt}], \quad (8)$$

加上超精细结构修正$\Delta\nu_{\text{HFS}}(\nu_{2S-6P}) = -132{,}985.25(1)$千赫兹（方法）。$\nu_{2S-6P}$的修正和不确定度列于表1。不包括已精确确定的反冲频移和超精细结构修正在内，所施加的总修正对应于3。6σ，其中最大的一项修正（光力频移）对应于2。4σ。相对不确定度较我们此前的2S–4P测量提高了六倍[2]。

表1 | 2S–6P精细结构重心测定的修正$\Delta\nu$和不确定度σ的测定ν

贡献	$\Delta\nu$（千赫兹）	σ（千赫兹）
一阶多普勒频移	0.34	0.43
– 外推（统计）	0.34	0.43
– 原子速度模拟	–	0.01
模拟修正	1.05	0.17
– 光力频移	1.15	0.17
– QI频移	0.05	0.02
– 二阶多普勒频移	−0.14	0.01
直流斯塔克位移	0.05	0.07
黑体辐射引起的频移	0.28	0.01
塞曼频移	0.00	0.08
压力频移	0.00	0.02
采样偏差	0.00	0.06
信号背景	0.00	0.03
激光光谱	0.00	0.07
频率标准	0.02	0.01
小计（实验特定贡献）	1.74	0.48
反冲频移	−1,176.03	0.00
超精细结构修正$\Delta\nu_{\text{HFS}}(\nu_{2S-6P})$	−132,985.25	0.01
总计（所有贡献）	−134,159.54	0.48

所有不确定度均对应一个标准差。缩进条目详细列出了对一阶多普勒频移和模拟修正的子贡献。由于四舍五入，子贡献之和可能与给出的总计不同。BBR，黑体辐射。

R_∞与r_p来自原子氢

将2S–6P精细结构重心ν_{2S-6P}（由方程（8）给出）与1S–2S跃迁频率的测量值[18]，相结合，并利用方程（1），我们确定质子均方根电荷半径为

$$r_p = 0.8406(5)_{\text{QED}}(14)_{\text{exp}}\ \text{fm} = 0.8406(15)\ \text{fm}. \quad (9)$$

总不确定度主要来自ν_{2S-6P}（“exp”）的不确定度，方程（1）的量子电动力学不确定度（“QED”）约低三倍（1S–2S跃迁频率及其他物理常数的贡献可忽略不计）。图1展示了方程（9）以及其他相关的r_p测定结果。方程（9）是除缪子测量[9,15]，之外，所有测量中最精确的r_p值，其精度分别是原子氢中次优测定结果[5]和我们的2S–4P测量[2]，的2.5倍和6倍。方程（9）的结果与缪子测量[15]（$r_p = 0.84060(39)$ fm）高度一致，但与CODATA 2014质子半径[16]相差5.5σ。我们也可以不测定r_p，而是测定

1 $\mathcal{L}$ 1 = 8 172 744 13 14 3 56 = 8 172 744 1 3 6

S兰姆位移，其值为（S），，，。（）（。）千赫兹 exp QED exp，，。（。）千赫兹（方法）。

通过结合1S–2S和2S–6P跃迁频率，也可以类似地提取里德伯常数，得到$R_\infty = 10{,}973{,}731.568152(14)\ \text{m}^{-1}$（1.3万亿分之一；皮尔逊相关系数$r = 0.94$，与方程（9）的相关系数）。然而，由于这两个跃迁频率的理论预测都取决于R_∞和r_p，我们无法充分利用ν_{2S-6P}的0.66万亿分之一相对精度。

标准模型预测的检验

在确认r_p的μ子值之后，我们现在明确地将标准模型预测$\nu_{2S-6P,\text{SM}}$（针对2S–6P精细结构重心）与实验测定值ν_{2S-6P}进行比较。将1S–2S跃迁频率[18]与r_p的μ子值（参考文献15）同方程（1）（方法）相结合，我们得到

$$\nu_{2S-6P,\text{SM}} = 730{,}690{,}248{,}610.79(18)_{\text{QED}}(14)_{r_p}\ \text{kHz} = 730{,}690{,}248{,}610.79(23)\ \text{kHz}\ [0.31\ \text{ppt}]. \quad (10)$$

该预测与我们的实验结果高度吻合，差值为$\nu_{2S-6P} - \nu_{2S-6P,\text{SM}} = 0.00(53)$千赫兹，相当于以万亿分之0.7的相对精度对标准模型进行检验。这一精度与对电子磁矩的标准模型预测的检验相当；后者目前限于万亿分之0.7，原因是对α的测量结果不一致（参考文献12）。同样，我们将1S兰姆位移预测$\mathcal{L}$（1S能级） = 8,172,744.1(1.3) (1.0)千赫兹 = 8, 172,744.1(1.7)千赫兹量子电动力学 量子电动力学 r_p 与$\mathcal{L}$（1S能级）exp，据我们所知，这是迄今为止对束缚态QED修正最精确的检验（0.5 ppm）。

扩展数据表1列出了量子电动力学修正及其不确定度。我们的实验不确定度与μ子真空极化修正和强子真空极化修正相当，并达到三光子修正的水平（$\propto\alpha^5$），与电子磁矩预言中的最高阶项相当[12]。尽管实验不确定度比量子电动力学不确定度（主要由双光子修正和辐射反冲修正主导）大2.7倍，但后者部分是根据未计算项的预期大小估计的[1,38]而

非实验检验。事实上，最近对双光子自能的重新计算[39]将使$\mathcal{L}$ （$_{\mathrm{QED}}$1 S）发生频移，其量级与实验σ的$\mathcal{L}$（1S能级）相当^{exp} 。

等价地，我们可以比较 R_∞ 根据以下数据确定的数值：ν_{2S-6P}或 1S–2S跃迁频率，每者均结合 μ子值 r_p 以及方程（1）。对于 ν_{2S-6P}，可得

$$R_\infty = 10{,}973{,}731.5681524(25)_{\mathrm{QED}}(72)_{\mathrm{exp}}(19)_{r_p}\ \mathrm{m}^{-1}$$
$$= 10{,}973{,}731.5681524(79)\ \mathrm{m}^{-1}\ [0.75\ \mathrm{ppt}], \quad (11)$$

其不确定度受 ν_{2S-6P}的精度限制。利用 1S–2S跃迁频率可得相容的 $R_\infty = 10{,}973{,}731.5681523(65)\ \mathrm{m}^{-1}$（$r_{1S-2S} = 0.40$ 与方程（11）的相关性），其不确定度受 $\mathcal{L}$(1S)^{QED} 的限制。方程（11）与 R_∞ 世界平均值[1]相容，且精度高出50%；该世界平均值的不确定度已扩展，以反映输入数据的离散程度。加入 2S–6P测量后，随着精度较低的测量被剔除，未来的调整很可能会减小离散程度。扩展数据图2展示了这一情况。我们的测量还可用于改进对质量处于 keV 范围的弱相互作用玻色子的新物理约束[40,41]。

本文展示的技术可用于原子氢和氘中的任意 2S能级–nP 跃迁[42]，其精度可与标准模型预言相当或更高。结合其他互补方法[43–47]，我们预计这将大幅推进束缚态量子电动力学检验。

在线内容

方法、其他参考文献、《自然》期刊组合的报告摘要、源数据、扩展数据、补充信息、致谢、同行评审信息、作者贡献和竞争利益详情，以及数据和代码可用性声明，均可通过以下网址获取：https://doi.org/10.1038/s41586-026-10124-3。

1. Mohr, P. J.、Newell, D. B.、Taylor, B. N. 与 Tiesinga, E. CODATA基本物理常数推荐值：2022年。*Rev. Mod. Phys.* **97**，025002（2025年）。2. Beyer, A. 等。原子氢中的里德伯常数和质子大小。《科学》**358**，79–85（2017年）。3. Fleurbaey, H. 等。氢的1S–3S跃迁频率的新测量：对质子电荷半径难题的贡献。*Phys. Rev. Lett.* **120**，183001（2018年）。4. Bezginov, N. 等。原子氢兰姆位移和质子电荷半径的测量。《科学》**365**，1007–1012（2019年）。5. Grinin, A. 等。原子氢的双光子频率梳光谱学。《科学》**370**，1061–1065（2020年）。6. Brandt, A. D. 等。氢中$2S_{1/2}$–$8D_{5/2}$ 跃迁的测量。*Phys. Rev. Lett.* **128**，023001（2022年）。7. Scheidegger, S. 与 Merkt, F. 双体量子系统结合能的精密光谱学测定：氢原子与质子大小难题。*Phys. Rev.Lett.* **132**，113001（2024年）。8. Pohl, R. 等。质子的大小。《自然》**466**，213–216（2010年）。9. Antognini, A. 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）。10. Parker, R.、Yu, C.、Weicheng, Z.、Brian, E. 与 Müller, H. 精细结构常数的测量：标准模型的检验。《科学》**360**，191–195（2018年）。11. Morel, L.、Yao, Z.、Cladé, P. 与 Guellati-Khélifa, S. 以81万亿分之一的精度测定精细结构常数。《自然》**588**，61–65（2020年）。12. Fan, X.、Myers, T. G.、Sukra, B. A. D. 与 Gabrielse, G. 电子磁矩的测量。*Phys. Rev. Lett.* **130**，071801（2023年）。13. Heiße, F. 等。质子原子质量的高精度测量。*Phys. Rev. Lett.***119**，033001（2017年）。14. Patra, S. 等。在万亿分之一水平通过HD+ 的激光光谱学测定质子-电子质量比。《科学》**369**，1238–1241（2020年）。15. Pachucki, K. 等。轻缪子原子兰姆位移的综合理论。*Rev.Mod. Phys.* **96**，015001（2024年）。16. Mohr, P. J.、Newell, D. B. 与 Taylor, B. N. CODATA基本物理常数推荐值：2014年。*Rev. Mod. Phys.* **88**，035009（2016年）。17. Antognini, A.、Hagelstein, F. 与 Pascalutsa, V. μ子氢内外的质子结构。*Annu. Rev. Nucl. Part. Sci.* **72**，389–418（2022年）。18. Parthey, C. G. 等。氢1S–2S跃迁频率的改进测量。*Phys. Rev. Lett.* **107**，203001（2011年）。

19. de Beauvoir, B. 等。氢原子和氘原子的计量学：里德伯常数和兰姆位移的测定。Eur. Phys. J. D 12，61–93（2000年）。20. Beyer, A. 等。用于重新测定里德伯常数和质子电荷半径的原子氢2S–nP跃迁精密光谱学。Phys. Scr. 2015，014030（2015年）。21. Horbatsch, M. 与 Hessels, E. A. 远处邻近共振引起的位移。Phys. Rev. A 82，052519（2010年）。22. Udem, T. 等。宽偶极允许跃迁的量子干涉谱线位移。Ann. Phys. 531，1900044（2019年）。23. Maisenbacher, L. 原子氢2S-nP跃迁的精密光谱学。博士论文，慕尼黑路德维希-马克西米利安大学（2020年）。修订版，https:// arxiv.org/abs/2512.20543（2025年）。24. Beyer, A. 等。提供相位回溯反向平行激光束、用于精密光谱学的有源光纤式回射器。Opt. Express 24，17470–17485（2016年）。25. Wirthl, V. 等。改进型有源光纤式回射器：配备强度稳定和近紫外偏振监测器。Opt. Express 29，7024–7048（2021年）。26. Wirthl, V. 等。改进型有源光纤式回射器：配备强度稳定和近紫外偏振监测器：勘误。Opt. Express 30，7340–7341（2022年）。27. Kapitza, P. L. 与 Dirac, P. A. M. 电子在驻波光中的反射。Math. Proc. Camb. Philos. Soc. 29，297–300（1933年）。28. Salomon, C.、Dalibard, J.、Aspect, A.、Metcalf, H. 与 Cohen-Tannoudji, C. 激光驻波中的原子沟道效应。Phys. Rev. Lett. 59，1659–1662（1987年）。29. Minardi, F. 等。光的机械效应诱导的饱和光谱频移。Phys. Rev. A 60，4164–4167（1999年）。30. Zheng, X.、Sun, Y. R.、Chen, J.-J.、Wen, J.-L. 与 Hu, S.-M. 氦原子激光光谱学中的光力诱导位移。Phys. Rev. A 99，032506（2019年）。31. Wen, J.-L. 等。行波场中探测原子束的无多普勒光谱学。Phys. Rev. A 107，042811（2023年）。32. Bloch, I.、Hänsch, T. W. 与 Essilinger, T. 相变处囚禁玻色气体空间相干性的测量。Nature 403，166–170（2000年）。33. Born, M. 等。《光学原理：光传播、干涉与衍射的电磁理论》第7版（剑桥大学出版社，1999年）。34. Arndt, M. 等。C_{60} 分子的波粒二象性。Nature 401，680–682（1999年）。35. Metcalf, H. J. 与 van der Straten, P.《激光冷却与囚禁》（施普林格，1999年）。36. Hillery, M.、O'Connell, R.、Scully, M. 与 Wigner, E. 物理学中的分布函数：基础。Phys. Rep. 106，121–167（1984年）。37. Mølmer, K.、Castin, Y. 与 Dalibard, J. 量子光学中的蒙特卡罗波函数方法。J. Opt. Soc. Am. B 10，524–538（1993年）。38. Karshenboim, S. G.、Ozawa, A.、Shelyuto, V. A.、Szafron, R. 与 Ivanov, V. G. 氢1s态的兰姆位移：两圈和三圈贡献。Phys. Lett. B 795，432–437（2019年）。39. Yerokhin, V. A.、Harman, Z. 与 Keitel, C. H. 低核电荷下的两圈电子自能。Phys. Rev. Lett. 133，251803（2024年）。40. Delaunay, C. 等。对轻新物理的光谱学界限进行自洽提取。Phys. Rev. Lett. 130，121801（2023年）。41. Potvliege, R. M.、Nicolson, A.、Jones, M. P. A. 与 Spannowsky, M. 氘光谱学：增强对标准模型之外物理的界限。Phys. Rev. A 108，052825（2023年）。42. Wirthl, V. 原子氘中2S-6P跃迁的精密光谱学。博士论文，慕尼黑路德维希-马克西米利安大学（2022年）。43. Yzombard, P.、Thomas, S.、Julien, L.、Biraben, F. 与 Nez, F. 氢/氘原子的1S–3S连续波光谱学。Eur. Phys. J. D 77，23（2023年）。44. Bullis, R. G.、Tavis, W. L.、Weiss, M. R. 与 Yost, D. C. 里德伯氢光谱学中的窄共振。Phys. Rev. A 110，052807（2024年）。45. Moreno, J. 等。迈向He^+的1S–2S跃迁极紫外频率梳光谱学。Eur. Phys. J. D 77，67（2023年）。46. Alighanbari, S.、Giri, G. S.、Constantin, F. L.、Korobov, V. I. 与 Schiller, S. 利用HD^+ 离子对量子电动力学和基本常数的精确检验与测定。Nature 581，152–158（2020年）。47. Morgner, J. 等。利用类氢锡对量子电动力学的严格检验。Nature 622，53–57（2023年）。48. Gao, H. 与 Vanderhaeghen, M. 质子电荷半径。Rev. Mod. Phys. 94，015002（2022年）。49. Djukanovic, D. 等。利用格点量子色动力学精密计算质子和中子的电磁半径。Phys. Rev. Lett. 132，211901（2024年）。

出版商说明：施普林格·自然对已发表地图中的管辖权主张和机构隶属关系持中立立场。



开放获取 本文根据知识共享署名 4.0 国际许可协议授权，该协议允许在任何媒介或格式中使用、分享、改编、分发和复制，但须给予适当注明原作者和来源，提供指向知识共享许可协议的链接，并说明是否进行了修改。除非材料的署名说明中另有注明，本文中的图像或其他第三方材料均包含在本文的知识共享许可协议之内。如果材料不包含在本文的知识共享许可协议之内，且您的预期用途不受法律法规允许或超出许可范围，则需要直接向版权所有者申请许可。如需查看该许可协议的副本，请访问 http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/。

© 作者 2026年

方法

数据采集

这里补充介绍实验方案和装置的相关细节（两者均已在参考文献23中详细描述）。低温原子束的运行时间受限于约2 h的冷冻循环，因为喷嘴内部会不断积聚冻结的（分子）氢；加热喷嘴至室温即可将其清除。通过使用低温泵进行差分抽运，维持2S–6P光谱区内的真空（2×10^{-7} mbar，主要成分为分子氢），以尽量减小压力频移[50–52]；每个测量日采集数据前，均允许装置达到温度平衡。

线偏振、243 纳米的1S–2S制备激光[53,54]在真空内驻波腔中得到共振增强，达到$P_{1S-2S}\approx1$每个方向的瓦（297 μ米，$1/e^2$强度束腰半径）。观测到的1S–2S跃迁线宽约为3 千赫兹（半高全宽；原子失谐，而非激光失谐），受限于2S能级的单光子电离[55]。因此，$2S^{F=1}_{1/2}$能级仅通过多普勒敏感双光子激发产生布居，相对于$2S^{F=0}_{1/2}$能级中的布居数，每个子能级中的布居数约为7×10^{-7}。制备激光的失谐在每个冷冻循环期间通过观测1S–2S跃迁进行数次设置。一个等缝宽光学斩波器以160 赫兹的频率运行，周期性地阻挡制备激光（从而设定延迟时间$\tau=0$ μ秒），以实现速度分辨探测。制备激光未被阻挡时，通道电子倍增器由快速高压开关关闭，以防止散射的243 纳米光造成饱和。

使用线偏振的2S–6P光谱激光[53,54]并以$2S^{F=0}_{1/2}$能级作为初始能级时，只有跃迁至$6P^{F=1}_{1/2}$超精细能级（2S–$6P_{1/2}$跃迁）和$6P^{F=1}_{3/2}$超精细能级（2S–$6P_{3/2}$跃迁）是电偶极允许的，而角动量守恒禁止激发$6P^{F=0}_{1/2}$和$6P^{F=2}_{3/2}$能级（图2a）。2S–$6P_{1/2}$和2S–$6P_{3/2}$跃迁的谱线强度（$\propto\mu^2$，其中μ为偶极矩）之比为1:2。对于这两种跃迁，我们采用比值为2:1的光谱激光功率P_{2S-6P}，使其拉比频率$\Omega\propto\mu\sqrt{P_0}$与2S–6P相同（在光谱激光功率达到最高值30和15 μW时，峰值拉比频率为（$2\pi\times126$）krad s^{-1}）。大多数6P衰变（分支比$\Gamma_{e-1S}/\Gamma=88.2\%$）是通向1S能级流形的莱曼衰变，其中能量最高的直接莱曼-ε 衰变（$\Gamma_{det}/\Gamma=80.5\%$）占主导；其余$\gamma_{e-2S}/\Gamma=11.8\%$为通向2S能级流形的巴耳末衰变，而其中又有一部分（γ_{ei}/Γ）会回到初始的$2S^{F=0}_{1/2}$能级（见补充方法第1.2 节）。这里将亚稳2S能级视为稳定态，因为其自然寿命（122 ms）远长于原子在原子束中停留的时间（关于2S衰变对信号背景的贡献，见补充方法第2.6 节）。

通道电子倍增器通过探测由光子撞击探测器圆筒壁而发射的光电子，或在较小程度上直接探测光子，来计数6P 衰变产生的荧光光子。由于光电子产额会随光子能量显著增加（法拉第笼和探测器圆筒的表面材料分别为胶体石墨和氧化铝），莱曼-ε 衰变（光子能量为13.2 eV）产生的荧光约占通道电子倍增器所探测信号的97%。根据延迟时间τ，将计数分入16 个速度组，并选择各区间以覆盖较宽的平均速度范围v，同时保持足够的信噪比（区间宽度为50–550 μs；扩展数据表2）。每次线扫描中，我们在每个光谱学激光失谐下累积160 个斩波器周期的计数。底部探测器偶尔会出现过量散射和尖峰，因此随后舍弃了其信号（占线扫描的≈11%；扩展数据表3）。我们认为，这是由于底部探测器靠近低温泵，温度降至接近、甚至可能低于其最低工作温度限值所致。

每天进行测量时，至少有一次将喷嘴和准直孔对准制备激光器。在每个冷冻循环开始时，原子束偏移角α_0由配备位置传感器的直线电机控制，并以1 毫弧度的对准不确定度调零。具体做法是使用高反射镜前方真空内的快门挡住光谱激光的返回光束（位于AFR[25,26]），针对多个角度测定此时未受抑制的多普勒斜率κ，并移动到κ为零的角度，将其设定为$\alpha_0=0$毫弧度。为在非零角度$\pm\alpha_0$下记录线扫描，我们首先移动到$+\alpha_0$或$-\alpha_0$（随机选择其中一个），然后移动到相反符号的角度；在每个角度通常记录5–10 次扫描，并在每个冷冻循环中重复此过程数次。AFR 的光纤—准直器距离[25,26]至少在每个冷冻循环中优化一次。

我们使用一组固定的30个对称失谐量（其中15个互不相同）Δ 的光谱激光频率来采样2S–6P荧光线形；针对不同的线形，采用不同的失谐量组（见参考文献$\alpha_0=0$、±7.5和±12 毫弧度对应的情况；参考文献第5.1.3节和表5.2）。这些线形均以23为最大失谐量。±50 兆赫。所选失谐量旨在将无多普勒跃迁频率的统计不确定度降至最低ν_e；而失谐量的数量以及每个失谐量处的采集时间（1秒），则是在充分采样谱线、信噪比和每个冷冻循环中的线扫描次数之间取得平衡后确定的。对于每次线扫描，失谐量的顺序均随机排列，以尽量减小信号漂移的影响。每个冷冻循环开始时，中心激光频率（将失谐量加到该频率上）从正态分布中随机选取。该分布以缪子测量所得质子半径对应的预期2S–6P跃迁频率为中心[9]，，标准差为12千赫兹，以涵盖由CODATA 2014质子半径数值所预期的跃迁频率[16]。激光频率通过光学频率梳[56,57]以及以全球导航卫星系统（GNSS）为参考的氢脉泽，溯源至铯频率标准（见补充方法第2.7节）。

测量期间，我们多次交替考察2S–$6P_{1/2}$和2S–$6P_{3/2}$跃迁；测量运行C 期间除外，在该运行中，仅针对α_0的多个取值考察了2S–$6P_{1/2}$跃迁（扩展数据表3）。

沃伊特和沃伊特双峰线形

沃伊特线型[23,58]是洛伦兹线型（半高全宽线宽为Γ_L）与高斯线型（半高全宽线宽为Γ_G）的卷积。其组合半高全宽线宽为$\Gamma_F\approx0.5346\Gamma_L+\sqrt{0.2166\Gamma_L^2+\Gamma_G^2}$（参考文献59），振幅为$A$，中心位于共振频率$\nu_0$。为考虑实验中观测到的信号背景，加入了一个常量偏移y_0，因此共有五个自由参数。

此处将沃伊特双峰线型定义为两个沃伊特线型之和，它们的共振频率通常不同，分别为ν_1和ν_2，振幅分别为A_1和A_2，但洛伦兹线宽和高斯线宽相等[23]（并具有常量偏移y_0），因此共有七个自由参数。其共振频率是组成线形的质心，即$\nu_0=(A_1\nu_1+A_2\nu_2)/(A_1+A_2)$。

数据分析

每条线扫描中每个速度组和探测器的共振频率ν_0通过对信号进行沃伊特线型最小二乘拟合确定（对于$\alpha_0=0$毫弧度的数据，即数据组G1A–G12）。对于$\alpha_0\neq0$毫弧度的数据（数据组G13 和G14），由于谱线可能分裂为两个多普勒分量，因此改用Voigt双峰线型进行拟合。拟合时，我们假设信号y_j的不确定度，即在失谐量j处检测到的荧光光子数，等于光子数的散粒（泊松）噪声，其值为$\sqrt{y_j}$

（由于$y_j \gg 1$，泊松分布可以用正态分布近似。）

我们使用约化卡方 $\chi^2_{\mathrm{red}} = \chi^2 \quad k/$（自由度为 k）作为拟合优度的度量。平均值 χ^2_{red} 在拟合线形与实验线型完全吻合，且信号波动完全由散粒噪声描述时，预期为 1。我们首先讨论沃伊特拟合（$k = 25$），发现除最慢的速度组外，χ^2_{red} 均显著大于 1（在最高光谱激光功率下可达 $\chi^2_{\mathrm{red}} \approx 4\ 6$。仅对于这些速度组，由于其信号和多普勒展宽相对较低，χ^2_{red} 才接近 1（$\chi^2_{\mathrm{red}} \approx 1\ 1$。对于 τ_{16}，所有数据组均如此）。

我们发现，χ^2_{red}增大有两个不同的原因。首先，拟合线形与实验线型之间存在细微的模型偏差，这是由于拟合中未考虑非高斯（及非洛伦兹）展宽和饱和效应所致；这些偏差在拟合残差中清晰可见（偏差最高约为2%；见扩展数据图1b顶部的黑色圆点）。我们的模拟线型（包括LFS和QI模拟）纳入了这些效应，因此与实验线型吻合得更好（见扩展数据图1b中的虚线和实线）。我们通过使用模拟数据而非实验数据重复线型拟合，来确定这些偏差对χ^2_{red}的影响。在这项蒙特卡洛模拟中，将相应的线型模拟进行缩放和平移，使其与每次线扫描的实验数据相匹配，然后向模拟信号中加入散粒噪声。模拟的χ^2_{red}值再现了实验结果，因此这些偏差解释了实验$\chi^2_{\mathrm{red}} - 1$中约70%的超额（即$\chi^2_{\mathrm{red}}$值）。

其次，信号存在涨落，导致出现高于散粒噪声的额外（技术）噪声，我们将其归因于（亚稳态2S原子的）原子通量涨落。具体而言，我们发现，线扫描期间χ^2_{red}与喷嘴温度涨落（皮尔逊相关系数$r = 0.45$）以及制备激光功率（$r = 0.26$）之间存在相关性，这两者都会直接影响到达光谱区的2S 原子数量。与光谱激光功率的相关性要小得多（$r = 0.03$）。我们发现，假设信号在不同失谐之间存在与速度组无关、均方根值为1%的涨落，平均而言即可解释实验χ^2_{red}值中剩余的额外部分。

对于沃伊特双峰拟合（χ^2_{red}，$k = 23$），其$\alpha_0 = \pm 7.5$ 毫弧度数据（数据组 G13）的行为非常相似。对于$\alpha_0 = \pm 12$ 毫弧度数据（数据组 G14），两个多普勒分量开始分离，快速速度组尤为明显（图3c）。这会导致较大的模型偏差（最高达14%；见扩展数据图1b底部），原因是饱和效应：一些原子会与两束光谱激光束相互作用（$|\Delta| \lesssim \Gamma_{2P}$），而另一些原子只与其中一束相互作用（$|\Delta| \gtrsim \Gamma_{2P}$）。因此，$\chi^2_{\mathrm{red}}$ 可能超过20，其中超出部分的90%可由这些偏差解释，这一点同样由蒙特卡洛模拟确定。

由于幅度较小，由 LFS 和 QI 引起的拟合线型与实验线型之间的非对称（相对于线中心）偏离不会显著影响 χ^2_{red}。然而，正如《补充方法》第 2.5 节所述，对称和非对称偏离都会导致采样偏差。

实验共振频率的不确定度ν_0由仅假设存在散粒噪声的线型拟合估计得出，也就是说，此时尚未将技术噪声纳入考量。对于每个线扫描中的每个速度组和探测器，ν_0的数值通过分别减去光力频移和量子干涉频移进行校正，分别为ν_{LFS}和ν_{QI}；这两个频移由相应的模拟线型确定（见补充方法中的第 1.1 节）。每个速度组的平均速度υ和均方根速率υ_{rms}同样由这些模拟线型确定（见补充方法中的第 1.1 节；扩展数据表2给出了每个速度组的υ平均值）。二阶多普勒频移$\Delta\nu_{\mathrm{SOD}}$使用υ_{rms}计算（见补充方法中的第 2.1 节），并同样从 中减去。

接下来，利用模拟得到的速率值$\bar{\upsilon}$，通过多普勒频移外推确定无多普勒跃迁频率 ν_{e}和多普勒斜率 κ。每次线扫描得到的数值 ν_{e}和 κ 天生具有很强的相关性（皮尔逊相关系数$r_{\mathrm{e}} \approx -0.97$），其不确定度通过传播 ν_0的不确定度得到。尽管下述平均过程降低了这种相关性，不同数据组的平均值 ν_{e}和 κ之间仍存在显著相关性（$r = -0.78$）。光力频移、QI频移和二阶多普勒频移均取决于 2S 原子的速率，或是通过相互作用时间间接取决于速率，或是直接取决于速率。因此，若不进行校正，就会产生非零的多普勒斜率。特别是，光力频移平均会导致 $\kappa \approx -5$ 赫兹 $(\mathrm{m\ s^{-1}})^{-1}$；只有将其纳入考量，实验确定的 κ 平均而言才与零相容。

多普勒频移外推的χ^2_{red}（$k = 14$）平均接近 1（$\chi \quad = 1.04_2\ 2()$红；括号内为数据组间的标准差），这表明线性模型能够很好地描述数据，且与散粒噪声相比，技术噪声很小。这与上文讨论的线型拟合中观察到的过量噪声形成对比。我们将此归因于所涉及的时间尺度不同：不同速度组的记录时长约为 100 μ 秒，彼此相隔不到 2,560 μ 秒；而每个失谐量处的信号会累积 1 秒，然后再转到下一个失谐量。也就是说，多普勒频移外推主要易受时间尺度为 100 μ 秒的技术噪声影响，而不同失谐量处的信号则易受时间尺度约为 1 秒的技术噪声影响，例如，喷嘴温度波动的预期时间尺度就是如此。

接下来，我们对每次线扫描中来自两个探测器的ν_{e}求加权平均值（若没有底部探测器的数据，则使用顶部探测器的数据），并考虑实验测得的相关性（平均为 r = 0.36(15)）。我们认为，这些相关性往往随光谱激光功率、进而随信号增强，原因仍是原子通量在不同失谐间的波动；这种波动对两个探测器（以及各速度组）而言是共模的。然后，我们对给定数据组中每个冷冻循环的探测器平均ν_{e}求加权平均值。该平均值的约化卡方$\chi_{\mathrm{red},}{}^2{}_{\mathrm{FC}}$通常大于 1（平均为 $\bar{\chi} \quad = 1.442\ 23()$ r ed,FC），我们仍将其归因于原子通量波动。我们通过将ν_{e}的不确定度按相应的$\chi_{\mathrm{red},}{}^2{}_{\mathrm{FC}}$进行缩放来处理这种额外散布（若$\chi^2_{\mathrm{red\ FC}} > 1$,）。这一处理通过改变数据权重，使测得的跃迁频率偏移不到 20 赫兹，远小于相应的不确定度。我们对每个数据组中经探测器平均且不确定度缩放后的ν_{e}求加权平均值，并应用其余修正（表1和扩展数据表4）。最后，对相关数据组进行（加权）平均，得到 2S–6P$_{1/2}$跃迁和 2S–6P$_{3/2}$跃迁的跃迁频率。在整个分析过程中，平均值的权重仅依据（经缩放的）频率统计不确定度（包括多普勒斜率κ），修正项的（相关）不确定度不计入权重。扩展数据表3列出了确定 2S–6P精细结构重心$\nu_{\mathrm{2S-6P}}$时各数据组的统计权重 $\mathrm{w}_{\mathrm{2S-6P}}$。

数据分析通过向跃迁频率添加随机选取的偏移频率进行了盲化。仅在所有主要系统效应均已研究之后，才去除该偏移频率。在去除偏移频率后发现的进一步小修正，导致所确定跃迁频率的频移可忽略不计，最多为10赫兹。数据分析（由L.M.完成）的结果得到了第二次独立实施的分析（由V.W.完成）的确认。

原子束与荧光谱线线型的建模 **e**

2S–6P跃迁的荧光线形通过蒙特卡洛模拟将原子束建模为一组原子

轨迹、这些轨迹与1S–2S制备及2S–6P光谱激光的相互作用，以及它们对荧光信号的贡献。该流程在补充方法第 1.1 节中有详细描述。两种互补模型描述了与光谱激光的相互作用：量子干涉模型（见下文及补充方法第 1.2 节）和LFS模型（见正文及补充方法第 1.3 节）。

原子束的速度分布

我们利用速度组的信号，将其作为原子束速度分布的飞行时间测量。为此，我们将速度组的谱线振幅 A 的实验值与 A 的值进行比较；后者是利用给定速度分布模拟得到的线形的谱线振幅（详见补充方法第 1.1 节）。我们发现，对于很大范围的实验参数，离开喷嘴并射向 2S–6P光谱区的原子的速度 v 的概率分布都能用修正麦克斯韦–玻尔兹曼通量分布很好地描述（详情见参考文献 23）。通量分布为

$$p_{\mathrm{eff}}(v) = \mathcal{N} v^3 e^{-\frac{m_{\mathrm{H}} v^2}{2k_{\mathrm{B}} T_{\mathrm{N}}}} e^{-\frac{v_{\mathrm{cut-off}}}{v}}, \quad (12)$$

其中 $\mathcal{N}$ 是归一化常数。额外因子 $\exp(-v_{\mathrm{cut\text{-}off}}/v)$考虑了较慢原子在喷嘴内部、束流内部以及与背景气体碰撞时的损耗[60–62]。在我们的 2S–4P测量及其他原子氢束中，也观察到了类似的损耗[3,63]。

根据上述实验数据与模拟结果的比较，$v_{\mathrm{cut\text{-}off}}$ 平均为 50 m s^{-1}。扩展数据表3列出了每个数据组的平均值和变化幅度。变化幅度较大，部分原因是 $v_{\mathrm{cut\text{-}off}}$ 通常会在冷冻循环期间增大（见参考文献 23 的图 6.1）。这是因为冻结氢的积聚会使喷嘴直径减小，导致气体压力升高，从而增加喷嘴内部的碰撞。在确定各速度组的平均速度（及其不确定度）和模拟修正量时，我们将这种变化考虑在内（见补充方法第 1.1 节和扩展数据表 5）。

QI频移

我们通过一种模型模拟受量子干涉影响的线形，该模型将光学布洛赫方程与空间探测效率模拟相结合，并对代表原子束的一组轨迹取平均（见补充方法第 1.1 节和第 1.2 节）。此处将量子干涉频移定义为对模拟线形进行拟合所得线形的中心频率（见补充方法第 1.1 节）。此前对 2S–4P 跃迁[2]，的测量中，观测到的量子干涉频移与模拟结果高度吻合，证明了这种方法的有效性；当时的频移大七倍以上，这是因为探测立体角较小且线宽较大[22]。

模拟得到的 QI 频移随偏振角 θ_{L} 变化。在我们使用的最高光谱激光功率下（此处及下文均用其给出上限），2S–6P$_{1/2}$ 和 2S–6P$_{3/2}$ 跃迁的频移分别至多为 7.1 千赫兹和 −4.1 千赫兹。在魔角 $\theta_{\mathrm{L}} = 56.5°$处，频移降至至多 −0.87(54) 千赫兹和 0.45(27) 千赫兹（包括 ±3° 的对准不确定度；同样是在最高光谱激光功率下）。考虑在 $\theta_{\mathrm{L}} = 146.5°$处（见下文）以及较低激光功率下采集的数据（统计权重见扩展数据表3）后，我们得到正文中给出的总体模拟频移（−0.25(36) 千赫兹和 0.05(15) 千赫兹）。2S–6P精细结构重心固有的抵消效应将频移降至任意偏振角下至多 −0.37 千赫兹，并在约 $\theta_{\mathrm{L}} = 56.5°$处降至 0.01 千赫兹以下（低于原本可忽略不计的交流斯塔克位移；见补充方法第 1.2 节）。计入所有数据后，得到正文中给出的 −0.05(2) 千赫兹频移。

测量中采用的魔角 $\theta_{\mathrm{L}} = 56.5°$是在测量开始前通过模拟确定的；而更精细的空间探测效率模拟（在测量完成后进行，并用于此处给出的所有模拟结果）得出的魔角约为 52°。此外，魔角也会随激光功率略微变化（在此处使用的功率范围内最多变化 2°；见补充方法第 1.2 节）。尽管采用的魔角与最佳值略有不同，QI 频移在该角度下仍受到显著抑制。

为了检验我们的量子干涉模型和模拟，我们在$\theta_{\mathrm{L}} = 146.5°$处采集了少量数据（图4和扩展数据表3），即与魔偏振角正交的方向，并将其与在$\theta_{\mathrm{L}} = 56.5°$处采集的数据进行比较。对于2S–6P$_{1/2}$ 跃迁，经过3.44(92) 千赫兹的差分QI频移和$\nu_{\mathrm{e}}(\theta_{\mathrm{L}} = 146.5°) - \nu_{\mathrm{e}}(\theta_{\mathrm{L}} = 56.5°) = -0.01(1.69)$千赫兹的差分多普勒频移校正后，无多普勒跃迁频率之差为0，且与0高度吻合。我们还可以通过比较实验与模拟拟合残差的不对称性（扩展数据图1），来比较−1.42(1.42)千赫兹。在$\theta_{\mathrm{L}} = 146.5°$处，QI频移的影响超过了光力频移。我们发现两者高度吻合，尤其是在失谐量大于线宽时，此时QI导致的线形畸变最大。

对于 2S–6P$_{3/2}$ 跃迁，我们发现跃迁频率相差 $\nu_{\mathrm{e}}(\theta_{\mathrm{L}} = 146.5°) - \nu_{\mathrm{e}}(\theta_{\mathrm{L}} = 56.5°) = 4.08(1.77)$ 千赫兹，存在中等程度的张力（2.3 个标准差）；此结果已校正差分量子干涉频移 −1.78(47) 千赫兹。移除的差分多普勒频移同样显著非零（−3.66(1.68) 千赫兹）。这种相关性与以下解释相符，但尚不足以构成确凿证据：非零差值是由影响多普勒频移外推的随机误差造成的。速度组平均共振频率不存在张力这一事实也支持了该结论，也就是说，假设多普勒频移为零（见参考文献 23 的图6.9）。此外，我们发现 $\theta_{\mathrm{L}} = 146.5°$ 处的线形畸变与我们的量子干涉模拟相符，但与符号相反且幅度为测得差值所暗示两倍的量子干涉频移不相容（扩展数据图1）。因此，我们认为，这种张力很可能源于共振频率测定中的随机误差。

2S–6P精细结构重心、6P精细结构分裂及超精细结构修正

2S–6P精细结构重心 $\nu_{\mathrm{2S-6P}}$ 是从2S超精细结构重心到6P精细结构重心的跃迁频率。它由两个测得的跃迁频率 $\nu_{1/2}$ 和 $\nu_{3/2}$ 确定，分别对应从2S $_{1/2}^{F=0}$ 能级到6P$_{1/2}^{F=1}$ 能级的跃迁（2S–6P$_{1/2}$ 跃迁）和到6P$_{3/2}^{F=1}$ 能级的跃迁（2S–6P$_{3/2}$ 跃迁）。首先对 $\nu_{1/2}$ 和 $\nu_{3/2}$ 进行2S和6P超精细结构修正，然后按精细结构多重度比1:2对修正后的 $\nu_{1/2}$ 和 $\nu_{3/2}$ 加权平均（该比值等于 2S–6P$_{1/2}$ 和2S–6P$_{3/2}$ 跃迁的谱线强度 $\propto \mu^2$ 之比，其中 μ 为偶极矩），从而得到6P精细结构重心。由此得到方程（7），其中将超精细结构修正计入 $\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}$（$\nu_{\mathrm{2S-6P}}$），详见下文。

超精细相互作用将精细结构能级2S能级$_{1/2}$、6P能级$_{1/2}$ 和6P能级$_{3/2}$ 分裂为双重态[64,65]。相关的超精细结构能级2S能级$_{1/2}^{F=0}$、6P能级$_{1/2}^{F=1}$和6P能级$_{3/2}^{F=1}$ 分别相对于精细结构能级发生频移，其超精细结构能量分别为 $\Delta\nu(_{\mathrm{HFS}}\ 2\ {}^{F}_{1}\mathrm{S}\ )_{2}^{=0}$、$\Delta\nu(_{\mathrm{HFS}}\ 6\ {}^{F}_{1}\mathrm{P}\ )_{2}^{=1}$ 和$\Delta\nu(_{\mathrm{HFS}}\ 6\ {}^{F}_{3}\mathrm{P}\ )_{2}^{=1}$（相关能级图见参考文献23的图6.11）。$\Delta\nu(_{\mathrm{HFS}}\ 2\ {}^{F}_{1}\mathrm{S}\ )_{2}^{=0}$ 的数值及其不确定度由对2S超精细结构分裂$\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}$(2S$_{1/2}$)的测量[66] 得到，具体如下：

$$\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}(2\mathrm{S}_{1/2}^{F=0}) = -(3/4)\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}(2\mathrm{S}_{1/2}) = -133{,}167{,}625.7(5.0)\ \mathrm{Hz}. \quad (13)$$

$\Delta\nu(_{\mathrm{HFS}}\ 6\ {}^{F}_{1}\mathrm{P}\ )_{2}^{=1}$ 和 $\Delta\nu(_{\mathrm{HFS}}\ 6\ {}^{F}_{3}\mathrm{P}\ )_{2}^{=1}$ 可按参考文献 64,65. 中详述的方法计算。这些数值包含超精细结构哈密顿量非对角元所产生的小修正；这些非对角元会使具有相同 F值但 J值不同的超精细结构能级发生混合。由于每个超精细结构双重态中只有 $F=1$能级

会因这一效应发生频移，超精细结构双重态的重心频移分别为 $\Delta\nu(^{\mathrm{o.d.}}_{\mathrm{HFS}}\,6\,{}_1\mathrm{P}\,)/2$ 和 $\Delta\nu(^{\mathrm{o.d.}}_{\mathrm{HFS}}\,6\,{}_3\mathrm{P}\,)/2$。利用表中给出的 6P 能级超精细结构分裂

$$\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}\,6\,{}_{1/2} \quad \Delta\nu_{\mathrm{HFS}}\,6\,{}_{3/2} \qquad \Delta\nu^{\mathrm{o.d.}}_{\mathrm{HFS}}\,6\,{}_{1\,2}\ (\mathrm{P}),(\mathrm{P}),\ \text{以及}\ (\mathrm{P})/,$$

$$\Delta\nu^{\mathrm{o.d.}}_{\mathrm{HFS}}\,6\,{}_{3\,2} \qquad 1 \qquad 64 \qquad 29$$

(P)/和参考文献 中的表 （另见参考文献 65中的方程 ( ) 和 (30) 及其中的说明），我们得到

$$\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}(6\mathrm{P}_{1/2}^{F=1}) = (1/4)\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}(6\mathrm{P}_{1/2}) + \Delta\nu^{\mathrm{o.d.}}_{\mathrm{HFS}}(6\mathrm{P}_{1/2}) = 547{,}798(6)\ \mathrm{Hz}, \quad (14)$$

$$\begin{aligned}\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}(6\mathrm{P}_{3/2}^{F=1}) &= -(5/8)\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}(6\mathrm{P}_{3/2}) + \Delta\nu^{\mathrm{o.d.}}_{\mathrm{HFS}}(6\mathrm{P}_{3/2}) \\ &= -547{,}460(6)\ \mathrm{Hz}.\end{aligned} \quad (15)$$

$\Delta\nu(_{\mathrm{HFS}}\,6\,{}^{F}_{1}\mathrm{P}\,)^{=1}_{/2}$ 和 $\Delta\nu(_{\mathrm{HFS}}\,6\,{}^{F}_{3}\mathrm{P}\,)^{=1}_{/2}$ 假定完全相关。

由此得到的 2S–6P精细结构重心的超精细结构修正 $\nu_{2\mathrm{S}-6\mathrm{P}}$ 为

$$\begin{aligned}\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}(\nu_{2\mathrm{S}-6\mathrm{P}}) &= -(1/3)\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}(6\mathrm{P}_{1/2}^{F=1}) \\ &\quad -(2/3)\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}(6\mathrm{P}_{3/2}^{F=1}) + \Delta\nu_{\mathrm{HFS}}(2\mathrm{S}_{1/2}^{F=0}) \\ &= -132{,}985{,}250(10)\ \mathrm{Hz},\end{aligned} \quad (16)$$

其中我们将数值四舍五入到最接近的10赫兹，所有修正均采用这种处理方式。

跃迁频率的标准模型预言与束缚态量子电动力学检验

我们利用以下方法得出 2S–6P精细结构重心的标准模型预测 $\nu_{2\mathrm{S}-6\mathrm{P},\,\mathrm{SM}}$

$$\begin{aligned}\nu_{2\mathrm{S}-6\mathrm{P},\mathrm{SM}} &= \frac{(1/3)E_{6,1,1/2} + (2/3)E_{6,1,3/2} - E_{2,0,1/2}}{E_{2,0,1/2} - E_{1,0,1/2}}\nu_{1\mathrm{S}-2\mathrm{S}} \\ &= \frac{E(2\mathrm{S}-6\mathrm{P})}{E(1\mathrm{S}-2\mathrm{S})}\nu_{1\mathrm{S}-2\mathrm{S}},\end{aligned} \quad (17)$$

其中，E_{nlJ} 是方程（1）中的精细结构能级能量，而 $\nu_{1\mathrm{S}-2\mathrm{S}}$ 是测得的1S–2S超精细结构质心频率[18]。这种参数化消除了 E_{nlJ} 对的显式依赖。采用 r_{p} 的μ子值（参考文献15），我们得到 $\nu_{2\mathrm{S}-6\mathrm{P}\text{的数值},\ \mathrm{SM}}$ 见方程（10）。

扩展数据表1列出了对 $\nu_{2\mathrm{S}-6\mathrm{P},\mathrm{SM}}$ 的贡献。除了狄拉克本征值（方程（1）中的 cR f∞ $_{nJ}$Dirac；参考文献 1 中的方程（30））外，我们还列出了各项量子电动力学修正（方程（1）中的 cR $\mathrm{f}_{\infty}\,{}^{\mathrm{QED}}_{nlJ}$ 和 cR δ C n r(/) l∞ o NS 3 p2；参考文献 1 中的方程（32）–（64））；这些修正之和对应于兰姆位移$\mathcal{L}$（单个精细结构能级的$\mathcal{L}$ nlJ( )；2S–6P精细结构重心的（$\mathcal{L}$ 2 −6 = 1 3 $\mathcal{L}$ 6,1,1 2 + 2 3 $\mathcal{L}$ 6,1,3 2 − $\mathcal{L}$ 2,0,1 2 S P)（/) (/) (/) (/) (/) (/))。扩展数据表 1 还给出了纯 QED 不确定度，其定义为不包括来自 rP、α、mP/me和 $\nu_{1\mathrm{S}-2\mathrm{S}}$ 的贡献的不确定度。对于S态，所有列出的量子电动力学修正在最低阶均按 cR∞C/n³ 缩放，其中 cR∞C 是相应的1S能级领头阶QED修正。这也包括方程（1）中着重指出的核尺寸修正（领头阶，$\propto\alpha^2\times\alpha^2$，其中首个 α^2 因子并入方程（1）中的 $\mathrm{R}_{\infty} = \alpha^2\mathrm{m_e c}/2\mathrm{h}$），其 C C r= NS p²。因此，不同S态之间的修正彼此相关，这一点已计入 $\nu_{2\mathrm{S}-6\mathrm{P},\mathrm{SM}}$ 的不确定度。非S态的修正通常小得多（例如，分数修正占2S结合能的 1.3×10^{-6}，而占6P结合能的 4.4×10^{-9}）；尤其是，其核尺寸修正目前可以忽略（至多占6P结合能的 7×10^{-16}）。不同量子电动力学修正之间不存在相关性；将各项修正的不确定度按平方和开方合并后，我们得到纯QED总不确定度为179赫兹。总体而言，E(2S–6P)与E(1S–2S)高度相关（仅考虑纯QED不确定度时，r = 0.995）。

另一项导致 $\nu_{2\mathrm{S}-6\mathrm{P},\mathrm{SM}}$ 不确定度的主要来源是 r_{P} 的 μ子值，它使 $\nu_{2\mathrm{S}-6\mathrm{P},\mathrm{SM}}$ 的不确定度增加 138 赫兹。虽然 r_{p} 本身的不确定度部分源于量子电动力学修正[15]，但氢和μ子氢能级的量子电动力学预测在目前的精度下彼此不相关[1]，因此我们将纯量子电动力学不确定度与源自 r_{p} 的不确定度视为不相关。来自 α（1.7 赫兹）、$m_{\mathrm{P}}/m_{\mathrm{e}}$（0.1 毫赫兹）和 $\nu_{1\mathrm{S}-2\mathrm{S}}$（3 赫兹）的不确定度贡献可以忽略不计。总计，$\nu_{2\mathrm{S}-6\mathrm{P},\ \mathrm{SM}}$ 的不确定度为 226 赫兹。

考察预测值对 ν_{SM} 的变化的敏感度很有意义；该预测值的推导方式与 $\nu_{2\mathrm{S}-6\mathrm{P}\text{相同},\ \mathrm{SM}}$ 其对 C 的敏感度如下。利用量子电动力学修正按 $1/n^3$ 缩放这一规律（并采用近似 $E_{nlj}\approx chR_{\infty}(-1/n^2+\delta_{l0}C/n^3)$），也就是说，忽略 f^{Dirac}_{nJ} 的所有非领头阶修正以及除 C 之外的所有量子电动力学修正，我们得到

$$\frac{\partial}{\partial C}\left(\frac{\nu_{\mathrm{SM}}(n,n',\tilde{n},\tilde{n}')}{cR_{\infty}}\right)\approx\left(\frac{\delta_{l0}}{n^3}-\frac{\delta_{l'0}}{n'^3}\right)-\left(\frac{\delta_{\tilde{l}0}}{\tilde{n}^3}-\frac{\delta_{\tilde{l}'0}}{\tilde{n}'^3}\right)\frac{1/n^2-1/n'^2}{1/\tilde{n}^2-1/\tilde{n}'^2}, \quad (18)$$

其中，n′、l′→n、l表示待预测的跃迁（例如，对于 $\nu_{2\mathrm{S}-6\mathrm{P},\mathrm{SM}}$ 而言是2S–6P跃迁），而n l n l′,~ ~→~ ~表示作为输入的实测跃迁（例如，对于 $\nu_{2\mathrm{S}-6\mathrm{P},\mathrm{SM}}$ 而言是1S–2S跃迁）。$\nu_{2\mathrm{S}-6\mathrm{P},\mathrm{SM}}$ 的敏感度为 $\partial(\nu_{2\mathrm{S}-6\mathrm{P},\mathrm{SM}}/\mathrm{cR}_{\infty})/\partial\mathrm{C} = 0.134$。相比之下，采用1S–3S跃迁而非2S–6P跃迁，敏感度会降低1.8倍（$\partial(\nu_{\mathrm{SM}}/\mathrm{cR}_{\infty})/\partial\mathrm{C} = 0.074$），因为C对1S–3S跃迁频率的相对贡献约为其对2S–6P跃迁频率相对贡献的两倍。结合其不确定度小1.5倍这一点，$\nu_{2\mathrm{S}-6\mathrm{P}}$ 因此，对C的检验精度比1S–3S测量高2.7倍[5]。由于核尺寸修正 cR C r n/∞ NS p2 3 与其他束缚态量子电动力学修正 $\mathrm{cR}_{\infty}\mathrm{C}/\mathrm{n}^3$，一样按 $1/\mathrm{n}^3$ 缩放，因此比较从原子氢和μ子氢中得到的 $\mathrm{r_p}$，即可检验束缚态量子电动力学；原子氢中任何遗漏或计算错误的 $\mathrm{cR}_{\infty}\mathrm{C}/\mathrm{n}^3$ 项都会导致差异。此外，从给定的测量组合中提取 $\mathrm{r_p}$ 的精度，因而直接体现了相应量子电动力学检验的精度。请注意，扩展数据表1列出了 $\nu_{2\mathrm{S}-6\mathrm{P},\mathrm{SM}}$ 的修正，其数值约为 $-\mathrm{cR}_{\infty}\mathrm{C}/2^3$，，因此，相对于表中所列修正的敏感度为 $-8\times0.134 = -1.072$。例如，人为去除强子真空极化后，$\nu_{2\mathrm{S}-6\mathrm{P},\mathrm{SM}}$ 会移动 -1.072×425.1 赫兹 $= -0.46$ 千赫兹，约为 $\nu_{2\mathrm{S}-6\mathrm{P}}$ 的一次实验 σ。

我们还可以通过将方程($\mathcal{L}$ 1 S)（1）写成如下形式，提取出1S兰姆位移:

$$E_{nlJ} = chR_{\infty}f^{\mathrm{Dirac}}_{nJ} + \delta_{0l}\frac{h\mathcal{L}(1\mathrm{S})}{n^3} + h\delta\mathcal{L}(nlJ), \quad (19)$$

其中，$\mathcal{L}$ 1 $_3$ ≡$\mathcal{L}$ 1,0,1 2 = $_{\infty}$ 1 0 1 2 + ^{2} $\delta\mathcal{L}$ =$\mathcal{L}$ − cR f C $\delta_{0l}\mathcal{L}$ 1 r (S) (/) ( ) , , /QED NS p 和 nlJ nlJ ( ) ( ) n(S)/ 是态特定兰姆位移。将方程（19）用于2S–6P和1S–2S跃迁，并以 $\nu_{2\mathrm{S}-6\mathrm{P}}$ 和 $\nu_{1\mathrm{S}-2\mathrm{S}}$ $\mathcal{L}$ 1 =8 172 744 13 14 3 56 = 为输入，我们得到 (S) , , . ( ) (.) 千赫兹 exp QED exp , , . (.) 千赫兹。与态特定兰姆位移成正比的项对（$\mathcal{L}_{\mathrm{exp}}$ 1 S）的贡献为224兆赫。其不确定度主要由 $\nu_{2\mathrm{S}-6\mathrm{P}}$（“exp”）的不确定度决定；态特定兰姆位移的量子电动力学不确定度（“QED”）小得多，而 $\nu_{1\mathrm{S}-2\mathrm{S}}$（22赫兹）和物理常数（$\alpha$带来的10赫兹；$\mathrm{m_P}/\mathrm{m_e}$、$\mathrm{r_P}$、$\mathrm{R}_{\infty}$ 带来的不确定度均小于0.1赫兹）的贡献可以忽略。正如上文所述，（$\mathcal{L}_{\mathrm{exp}}$ 1 S）的精度比利用1S–3S测量[5]得到的次优结果高2.7倍。

结合方程（ 1 $_{\mathrm{p}}$ $\mathcal{L}_{\mathrm{QED}}$ 1 =）与μ子 8 172 744 1 1 3 1 0 =8 172 744 1 1 7 值 r，可得1S兰姆位移相应的量子电动力学预言：(S) , , .(.) (.) 千赫兹 , , .(.) 千赫兹 量子电动力学预言 $\mathrm{r_P}$。其不确定度主要来自量子电动力学不确定度和 r_{P} 的不确定度，其他来源则可忽略（来自 α 的3赫兹；$m_{\mathrm{P}}/m_{\mathrm{e}}$、$R_{\infty}$ 小于0.01赫兹）。$\mathcal{L}$ ($_{\mathrm{exp}}$ 1 S)和($\mathcal{L}_{\mathrm{QED}}$ 1 S)彼此不相关，因为它们各自的量子电动力学不确定度互不相关[1]。二者高度吻合，检验了1S兰姆位移，进而将束缚态量子电动力学修正限制在0.5 ppm以内。目前，利用高电荷态离子在强电磁场中对束缚态量子电动力学进行的补充检验，已达到 1×10^{-4} 的相对精度，但对

（$Z\alpha$）（Z为核电荷数；此处其他地方省略该符号，因为$Z=1$对于原子氢）[47,67,68]。

最后，量子电动力学预言$\Delta\nu_{\mathrm{FS,\ QED}}(6\mathrm{P})$给出的$6\mathrm{P}_{1/2}^{F=1}$与$6\mathrm{P}_{3/2}^{F=1}$能级间6P精细结构分裂为（使用方程（14）和（15））

$$\begin{aligned}\Delta\nu_{\mathrm{FS,QED}}(6\mathrm{P}) &= E_{6,1,3/2}/h - E_{6,1,1/2}/h + \Delta\nu_{\mathrm{HFS}}(6\mathrm{P}_{3/2}^{F=1}) \\ &\quad -\Delta\nu_{\mathrm{HFS}}(6\mathrm{P}_{1/2}^{F=1}) \\ &= 405{,}164.51(1)\ \mathrm{kHz}.\end{aligned} \tag{20}$$

在$\Delta\nu_{\mathrm{FS,\ QED}}(6\mathrm{P})$中的核尺寸修正量级为$\alpha^2\times\alpha^4$和$\alpha^2\times\alpha^5$，总计为70毫赫兹，因为方程（$cR\ C\ r_{\infty}\quad\propto\alpha\times\alpha_{\mathrm{NSp2\ 2\ 2}}$）1）的首阶修正项以及量级为$\alpha^2\times\alpha^3$的修正仅适用于S态[1]。

直流斯塔克位移

2S–6P光谱区中的静态杂散电场可能导致观测到的跃迁频率发生直流斯塔克位移。在所有相关实验条件下，直流斯塔克位移$\Delta\nu_{\mathrm{dc}}$都可以很好地描述为随电场强度$E=|\mathbf{E}|$的二次函数，其中电场为$\mathbf{E}$，即，

$$\Delta\nu_{\mathrm{dc}}=\beta_{\mathrm{dc}}E^2, \tag{21}$$

其中β_{dc}是适用的二次直流斯塔克位移系数。我们区分两种与实验相关的电场强度区间：杂散场区（$E<1\ \mathrm{V\ m^{-1}}$），涵盖实验中存在的杂散电场范围；以及偏置场区（$E=10\text{–}45\ \mathrm{V\ m^{-1}}$），涵盖用于确定杂散电场的外加偏置电场范围。值得注意的是，虽然方程（21）在两个区间内均近似成立，但系数β_{dc}可能不同，2S–$6\mathrm{P}_{3/2}$跃迁就是一例（补充方法第1.4节）。二次行为的出现，是因为在这两个区间内，对净频移有贡献的能级与受扰动能级之间的能级间隔都很大。然而，相关能级在不同区间之间的频移可能造成显著不同的能级间隔，进而使β_{dc}的值不同。

围绕光谱区的法拉第笼（图2b）可屏蔽外部电场，包括用于将光电子引向通道电子倍增器的电场（其输入表面维持在 270 V；参见文献23的第4.6.2节）。法拉第笼所有表面上的胶体石墨涂层可抑制表面自身产生的杂散电场（这些电场源自带电氧化物层、不同导体之间的接触电势或局部功函数变化）；理想情况下，该涂层会形成功函数均匀的导电层（参见文献23的第4.6.1节）。然而，外部电场屏蔽不完善、石墨涂层不完整，或温度梯度导致热电电压或功函数梯度等因素，都可能使杂散电场无法被完全抑制。

为解决这一问题，我们通过向构成法拉第笼的六个电极（顶部和底部的网格，以及圆筒壁上四个尺寸相同的区段）施加电压，并将原子本身用作场传感器（参见参考文献23的第4.6.7节），来测量杂散电场；这一方法与参考文献5、69中的方法类似。向相对的电极施加大小相等、极性相反的偏置电压，以在给定方向上产生强度为$|\mathbf{E}_i|=10\text{–}45\ \mathrm{V\ m^{-1}}$的偏置电场 $\mathbf{E}=\hat{E}_i\,\mathrm{i}$（$\mathrm{i}=\mathrm{x}$、y、z，如图2b所定义）。通过拟合若干个线扫描的荧光线形，测得具有相反极性 E_i 的线扫描对应的频移 2S–6P 跃迁频率$\nu_{\mathrm{e}}(E_i)$，并利用其二次依赖关系$\nu_{\mathrm{e}}(E_i)=\beta_{\mathrm{dc},i}(E_i-\Delta E_i)^2+\nu_{\mathrm{e}}(E_i=0\ \mathrm{V\ m^{-1}})$，即可确定给定方向上的杂散电场分量 ΔE_i。这项测量还得出了各跃迁在相应偏置场强下的实验值 $\beta_{\mathrm{dc},i}$。扩展数据图3展示了此类杂散场的示例测量结果，涵盖 2S–$6\mathrm{P}_{1/2}$ 和 2S–$6\mathrm{P}_{3/2}$ 跃迁，并附有模拟结果（参见补充方法第1.4节）。平均而言，每次测量包含八次非零偏置场下的线扫描；2S–$6\mathrm{P}_{1/2}$ 跃迁和 2S–$6\mathrm{P}_{3/2}$ 跃迁分别进行了98次和21次测量。三个测量轮次中测得的杂散电场分量见扩展数据图4；其中仅列出采用 2S–$6\mathrm{P}_{1/2}$ 跃迁的测量结果，因为采用 2S–$6\mathrm{P}_{3/2}$ 跃迁得到的结果虽与之相符，但不确定度ΔE_i大得多。总体而言，杂散电场强度小于$1\ \mathrm{V\ m^{-1}}$，且主要沿探测器圆筒的轴线（y方向）指向。

利用这些杂散电场测量结果，我们估算了跃迁频率的直流斯塔克位移修正及其不确定度。补充方法中的第1.4节介绍了如何利用经实验验证的模拟，在杂散场区确定相关的二次直流斯塔克位移系数。通过 2S–$6\mathrm{P}\Delta E_i$ 杂散场测量结果（如扩展数据图4所示），分别计算了三个测量轮次中各杂散电场分量$_{1/2}$的加权平均值和标准差。为考虑探测器组件的差异（轮次A与轮次B之间更换了探测器圆筒内的网格；参见文献23的第4.6.1节）以及各轮次之间长达一个月的间隔，我们对每个测量轮次分别处理。此外，我们选择用杂散电场分量的标准差来估算直流斯塔克位移不确定度，因为我们认为杂散电场的变化至少部分源于物理因素（而非未计入的额外测量散布），但无法确定由此产生的直流斯塔克位移变化是否会相互平均抵消。据此，我们得到 2S–$6\mathrm{P}\Delta\nu_{\mathrm{dc}}$跃迁的直流斯塔克频移为 0.20(21) 千赫兹，−0跃迁的直流斯塔克频移为 .02(6) 千赫兹；对于 2S–$6\mathrm{P}_{1/2}$ 和 2S–$6\mathrm{P}_{3/2}$ 跃迁，不确定度分别主要由杂散电场和系数决定，而两个跃迁的频移主要由沿y方向的主导杂散电场分量决定。$\nu_{1/2}$和$\nu_{3/2}$已通过减去相应数值，校正了直流斯塔克位移。通过不确定度传播，得到 2S–$6\mathrm{P}_{1/2}$与 2S–$6\mathrm{P}_{3/2}$ 跃迁修正值的皮尔逊相关系数$r=-0$为 .30。

数据可用性

支持本研究结论的实验数据和模拟结果可从 Zenodo 获取[70]。

代码可用性

本研究数据分析和模拟所使用的全部代码均可从通讯作者处获取。

50. Jentschura, U. D. & Adhikari, C. M. 氢的长程相互作用：6P–1S和6P–2S系统。原子 **5**, 48（2017年）。 51. Jentschura, U. D., Adhikari, C. M., Dawes, R., Matveev, A. & Kolachevsky, N. 高精度氢光谱学中的压力频移。I. 长程原子–原子和原子–分子相互作用。*J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **52**, 075005（2019年）。 52. Matveev, A., Kolachevsky, N., Adhikari, C. M. & Jentschura, U. D. 高精度氢光谱学中的压力频移：II. 碰撞近似和蒙特卡洛模拟。*J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **52**, 075006（2019年）。 53. Alnis, J., Matveev, A., Kolachevsky, N., Udem, T. & Hänsch, T. W. 通过将激光器锁定到振动与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。*Phys. Rev. A* **77**, 053809（2008年）。 54. Kolachevsky, N. 等。用于原子氢1S–2S光谱学的低相位噪声二极管激光振荡器。*Opt. Lett.* **36**, 4299–4301（2011年）。 55. Haas, M. 等。束缚双体库仑系统中的双光子激发动力学，包括交流斯塔克位移和电离。*Phys. Rev. A* **73**, 052501（2006年）。 56. Holzwarth, R. 等。用于精密光谱学的光学频率合成器。*Phys. Rev.Lett.* **85**, 2264–2267（2000年）。 57. Giunta, M. 等。在小数点后第20位实现宽带光学频率测量的实时相位跟踪。*Nat. Photon.* **14**, 44–49（2020年）。 58. Loudon, R.《光的量子理论》第3版（牛津大学出版社，2000年）。 59. Olivero, J. J. & Longbothum, R. L. Voigt线宽的经验拟合：简要综述。*J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **17**, 233–236（1977年）。

60. Olander, D. R., Jones, R. H. & Siekhaus, W. J. 由多通道阵列构成的分子束源。IV. 中心线束中的速度分布。J. Appl. Phys. 41, 4388–4391（1970）。 61. Estermann, I., Simpson, O. C. & Stern, O. 原子的自由落体与铯原子分子束中速度分布的测量。Phys. Rev. 71, 238–249（1947）。 62. Manista, E. J. & Center, L. R. 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）。 63. Cooper, S. F., Brandt, A. D., Rasor, C., Burkley, Z. & Yost, D. C. 具有速度表征功能的低温原子氢束装置。Rev. Sci. Instrum. 91, 013201（2020年）。 64. Kramida, A. 关于氢、氘和氚谱线及能级实验数据的批判性汇编。At. Data Nucl. Data Tables 96, 586–644（2010年）。 65. Horbatsch, M. & Hessels, E. A. 原子氢束缚态能量表。Phys. Rev. A 93, 022513（2016年）。 66. Kolachevsky, N. 等。原子氢2S能级超精细间隔的测量。Phys. Rev. Lett. 102, 213002（2009年）。 67. Sturm, S. 等。类氢$^{28}Si^{13+}$的朗德因子测量对量子电动力学计算构成挑战。Phys. Rev. A 87, 030501（2013年）。 68. Morgner, J. 等。检验类锂锡中的电子间相互作用。《科学》388, 945–949（2025年）。 69. Scheidegger, S., Agner, J. A., Schmutz, H. & Merkt, F. 氢原子里德伯态的计量学。Phys. Rev. A 108, 042803（2023年）。 70. Maisenbacher, L. MPQ 氢原子 2S-6P 跃迁测量数据集。Zenodo https://doi.org/10.5281/zenodo.15874385（2026年）。

致谢 感谢 S. G. Karshenboim 提供宝贵的讨论，也感谢 W. Simon、K. Linner 和 H. Brückner 提供技术支持。计算在马克斯·普朗克计算与数据设施的高性能计算系统上进行。本研究获欧洲研究理事会（ERC）H-SPECTR 项目资助（资助协议编号 101141942）。L.M. 感谢亚历山大·冯·洪堡基金会提供的费奥多尔·吕嫩奖学金。V.W. 感谢国际马克斯·普朗克高级光子科学研究生院（IMPRS-APS）的支持。A.M. 和 A.G. 感谢德国研究联合会（DFG）的支持（项目编号分别为 390524307 和 EXC-2111-390814868）。R.P. 感谢由德国卓越战略下德国研究联合会（DFG）资助的 PRISMA+ 卓越集群（EXC 2118/1）的支持（项目编号 39083149）。T.W.H. 感谢卡尔·弗里德里希·冯·西门子基金会和马克斯·普朗克基金会的支持。

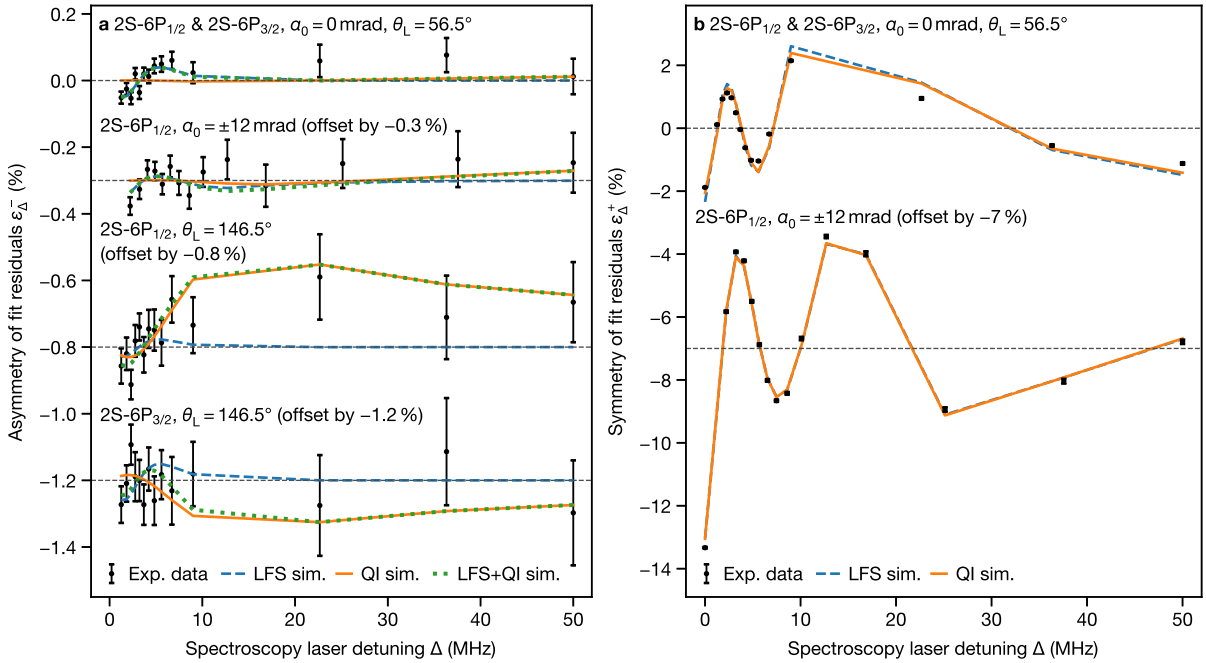
作者贡献 L.M.与V.W.搭建、维护并开展了实验。L.M.编写了软件并搭建了数据采集系统。L.M.进行了数据分析，V.W.独立复现了该分析。A.M.与L.M.进行了建模和模拟。T.U.、L.M.与V.W.评估了量子电动力学预言与检验。L.M.撰写了稿件。所有作者（L.M.、V.W.、A.M.、A.G.、R.P.、T.W.H.与T.U.）参与了系统不确定度的讨论与分析，并修改了稿件。

资助 开放获取资助由马克斯·普朗克学会提供。

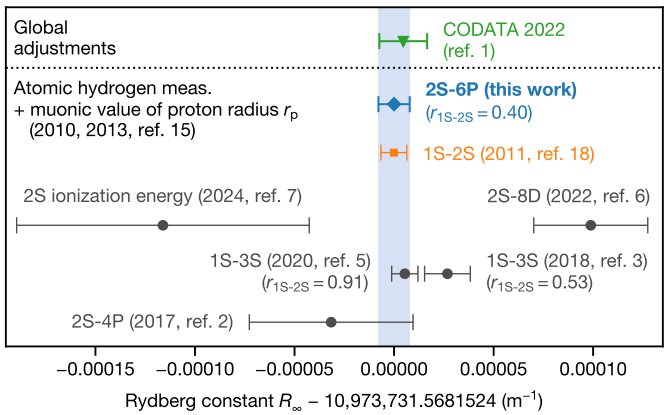
利益冲突 作者声明不存在利益冲突。

其他信息

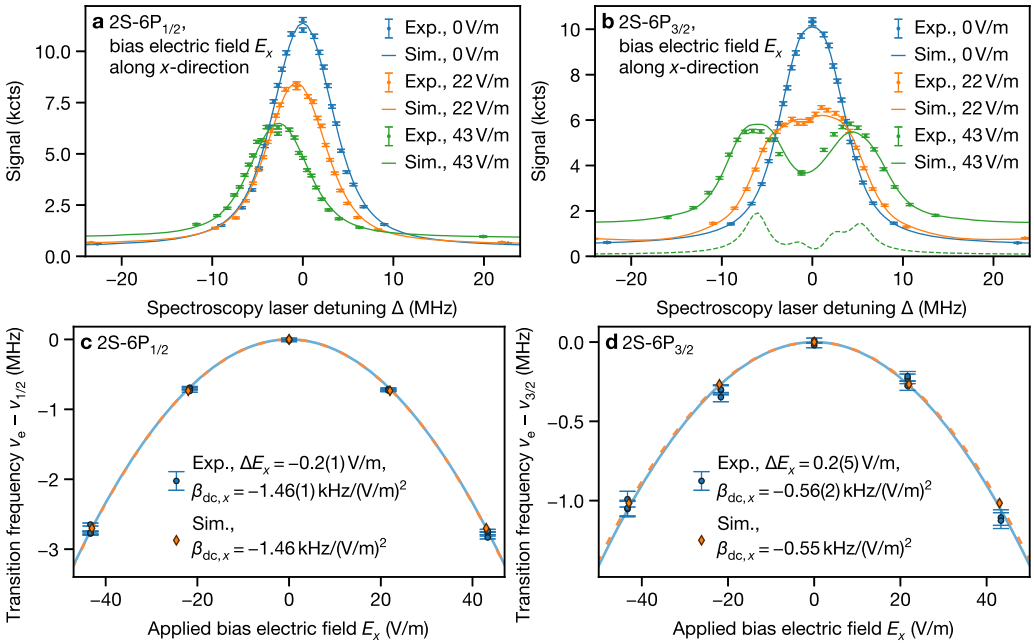
补充信息 在线版本包含补充材料，可访问https://doi.org/10.1038/s41586-026-10124-3。**通信及材料索取事宜**请联系Lothar Maisenbacher。**同行评审信息** 《自然》感谢Saïda Guellati-Khelifa及其他匿名审稿人对本工作同行评审所作的贡献。审稿人报告可供查阅。**抽印本和许可信息** 可于 http://www.nature.com/reprints。



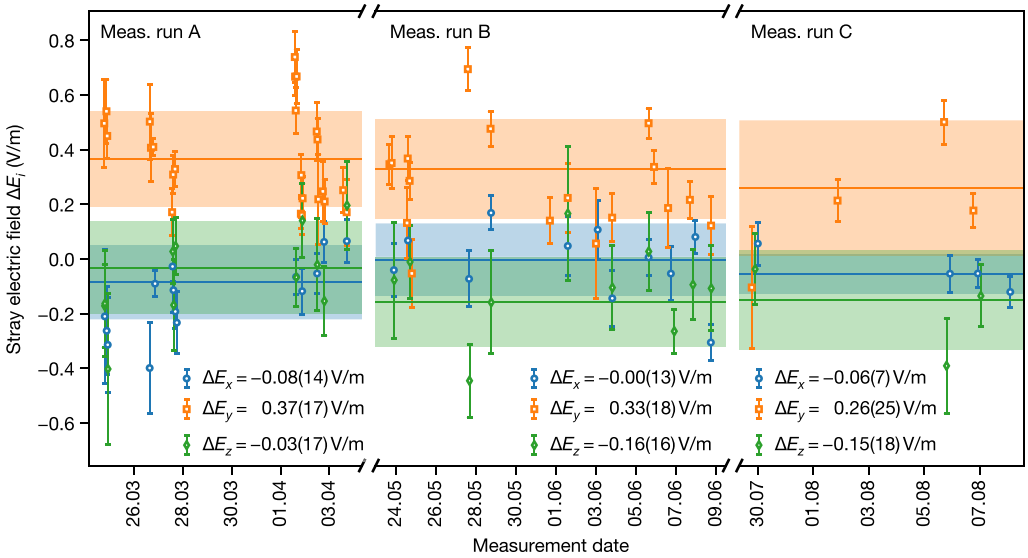
扩展数据图 **1**|线型模型测试。a，在四种不同实验设置下，光谱学激光失谐 **Δ** 处拟合残差的失谐不对称性ε_{Δ}^{-}，其中显示了实验数据（黑色圆圈）、LFS 模拟（蓝色虚线）和QI模拟（橙色实线）。同时还显示了LFS和QI模拟的ε_{Δ}^{-}之和（绿色点线）。归一化拟合残差ε_{Δ}由（$y_{\Delta}-y_{\mathrm{fit},\Delta}$）/$y_{\mathrm{fit},\Delta}$给出，其中$y_{\Delta}$为实验或模拟信号，$y_{\mathrm{fit},\Delta}$为对该信号进行沃伊特或沃伊特双峰线型拟合所得的相应值，其失谐不对称性和对称性分别定义为$\varepsilon_{\Delta}^{-}=\ \varepsilon_{\Delta}-\varepsilon_{-\Delta}\ \ 2(\ )$/和$\varepsilon_{\Delta}^{+}=\ \varepsilon_{\Delta}+\varepsilon_{-\Delta}\ \ 2(\ )$/。注意，曲线已进行了偏移（灰色虚线水平线），以增强可见性。顶部，对于在原子束偏移角α_0为零且偏振角为魔偏振角$\theta_{\mathrm{L}}=56.5°$时获取的数据，由于QI效应受到强烈抑制，实验观测到的不对称性ε_{Δ}^{-}可由LFS 模拟很好地解释。使用了测量运行B中的所有相关数据。示例线型见图2c。顶部第二行，对于$\alpha_0=\pm12$ 毫弧度（以及魔偏振角；示例线型），LFS 模拟预测的不对称性与零α_0相比有所不同，而这再次与实验结果吻合良好。这种不对称性的差异可直接从跃迁频率中观察到，如图 3d所示。从上往下第三幅图中，对于非魔偏振角 $\theta_{\mathrm{L}}=146.5°$，量子干涉效应在大失谐量 $\Delta\gtrsim5$ 兆赫 $\approx\Gamma$ 处导致显著的不对称性，这一现象在实验数据中也有体现（图中展示的是 $2S–6P_{1/2}$ 跃迁；$\alpha_0=0$ 毫弧度）。在较小失谐量下，量子干涉效应和光力频移均会造成不对称性，两者的不对称性之和能够很好地描述实验数据。最下方，对于 $2S–6P_{3/2}$ 跃迁的非魔偏振角，量子干涉效应导致的不对称性符号相反，且约为 $2S–6P_{1/2}$ 跃迁中对应不对称性的二分之一。**b**，前两种情况下拟合残差的失谐对称性见面板 ε_{Δ}^{+}。偏差由非高斯展宽和饱和效应造成；这些因素未纳入拟合线形模型，但已纳入模拟。这里只展示顶部探测器的结果，因为各探测器的信号高度相关。



扩展数据图 **2**|原子氢中的里德伯常数 R_∞。R_∞的数值由各项原子氢测量[2,3,5–7,18]与μ子氢光谱学[8,9,15]测得的质子半径 r_p 结合，并代入方程（1）确定。方程（1）中 S 态的量子电动力学不确定度较大且彼此相关（同时还使用了共同的 r_p 输入），这导致部分 R_∞数值之间存在较强相关性，从而降低了它们作为量子电动力学检验的灵敏度（r_{1S-2S} 为与 1S–2S测量[18]所得 R_∞ 的皮尔逊相关系数；未标出时 $r_{1S-2S} < 0.1$）。特别是，2020年1S–3S测量对应的 $r_{1S-2S} = 0.91$，这是因为 1S能级的量子电动力学不确定度[5]，占主导；而 2S–6P测量对应的 $r_{1S-2S} = 0.40$，这是因为 2S能级的量子电动力学不确定度低了（八倍）。作为参考，我们展示了 CODATA 2022 全球调整[1]，所得数值，其中包含一个不确定度扩展因子，以考虑数据的离散性。加入精度高且相关性相对较低的 2S–6P测量，很可能会大幅降低未来全局调整中的有效离散程度，因为精度较低的测量会从调整中剔除。误差棒表示一个标准差不确定度。



扩展数据图 3 | 杂散电场的原位测定。 **a**，2S–6P$_{1/2}$ 跃迁谱线（圆圈）随所施加的偏置电场E_x（此处沿x方向；图2b）而发生频移。速度组τ_9如图所示，因其平均速度最接近所有速度组的平均速度v( )。实线给出各E_x取值下的模拟线型（已缩放以匹配实验数据）。采用Voigt线型拟合（未示出）来确定共振频率。**b**，2S–6P$_{3/2}$ 跃迁的线型（圆圈）随着E_x增大而分裂为两个明显分量，且6S和6D能级的激发变为允许。模拟线型（实线）很好地再现了这一分裂，并较合理地描述了所得分量的相对振幅。对单条原子轨迹在无多普勒展宽条件下的模拟（绿色虚线；为便于观察已缩放；$E_x = 43\ \mathrm{V\ m^{-1}}$）揭示了更为复杂的底层子结构。采用沃伊特双线线形拟合（未示出）来确定该线型的质心共振频率。**c**，单个杂散使用 2S–6P$_{1/2}$ 跃迁测量电场。通过常规多普勒频移外推得到的无多普勒跃迁频率 ν_e（E_x）（蓝色圆点；误差棒仅表示统计不确定度）随 E_x 呈二次变化。二次拟合（蓝色实线）给出杂散电场分量 ΔE_x（扩展数据图4）和二次直流斯塔克位移系数 β_{dc}。模拟结果（橙色菱形）及其拟合曲线（橙色虚线）与实验结果吻合。电场导致的跃迁频率频移与 2S–6P$_{1/2}$ 跃迁激发态能级的能量位移一致。**d**，与面板**c**类似，但采用 2S–6P$_{3/2}$ 跃迁，同样显示实验与模拟结果吻合良好。质心跃迁频率的频移远小于面板**b**中任一分辨出的线型分量的频移，也远小于 2S–6P$_{3/2}$跃迁激发态能级的能量位移。由于探测器信号高度相关，仅展示顶部探测器的结果。详情请参阅方法和补充方法。



扩展数据图 4 | 测量运行期间的杂散电场 r uns. 2S–6P光谱区中的杂散电场分量ΔE_x（蓝色圆点）、ΔE_y（橙色方块）和ΔE_z（绿色菱形），由施加偏置电场时对 2S–6$P_{1/2}$ 跃迁进行光谱测量确定（扩展数据图3和方法）。坐标系见图2b定义。误差棒表示探测器平均数据的统计不确定度。阴影区域表示每个分量和每次测量运行的标准差；图例中括号内显示加权平均值和标准差。杂散电场主要沿y方向（即探测器圆筒的轴线）指向。

扩展数据表 1 | 标准模型预测的贡献$\nu_{2S-6P,\,SM}$ 2S–6P精细结构重心

Contribution	Value (Hz)	QED-only uncertainty (Hz)
Dirac eigenvalue ($cR_\infty f^{\mathrm{Dirac}}$)	730,691,293,379,477.0	—
Lamb shift $\mathcal{L}$(2S-6P)	−1,044,768,691.8	178.6
Relativistic recoil	−340,939.5	0.1
One-photon corrections ($\propto \alpha^2\times\alpha^3$)		
Self-energy	−1,071,052,910.8	0.8
Vacuum polarization	26,853,096.2	0.0
Muonic ($\mu^+\mu^-$) vacuum pol.	633.5	0.0
Hadronic vacuum pol.	425.1	10.2
Two-photon corrections ($\propto \alpha^2\times\alpha^4$)	−91,497.4	126.4
Three-photon corrections ($\propto \alpha^2\times\alpha^5$)	−214.6	45.8
Finite nuclear size and polarizability		
$cR_\infty C_{\mathrm{NS}} r_p^2 \propto \alpha^2\times\alpha^2$	−138,130.9	0.0
$\propto \alpha^2\times\alpha^3$	13.6	1.7
$\propto \alpha^2\times\alpha^4$	−123.5	52.8
$\propto \alpha^2\times\alpha^5$	0.5	0.2
Radiative-recoil corrections	1540.2	102.2
Nucleus self-energy	−584.2	21.6
Total	730,690,248,610,785.2	178.6

各项贡献的命名和分组遵循参考文献1。缩进条目详细列出了兰姆位移的子贡献（即所有量子电动力学修正之和）。这些数值通过将方程（1）与1S–2S跃迁频率的测量值[18]以及μ子值 r_p（参考文献 15）结合计算得出。$\alpha^2\times\alpha^n$ 表示选定贡献在 α 中的最低阶，其中第一个α^2 因子已吸收到方程（1_∞）中的 R中。纯QED不确定度是不包括 r_p、 α、m_p/m_e 和 ν_{1S-2S}所引入贡献的不确定度。详情请参阅“方法”部分。

扩展数据表2 | 原子速度组的定义与性质τ_i

Velocity group	τ (μs)	P_{2S}	$\bar{v}$ (m/s)	Δv_t (m/s)	Γ_F (MHz)
τ_1	10…60	2.1×10^{-2}	253(5)	3.32(6)	9.6(4)
τ_2	60…110	2.1×10^{-2}	252(5)	3.32(6)	9.6(4)
τ_3	110…160	2.0×10^{-2}	250(5)	3.29(6)	9.5(4)
τ_4	160…210	1.9×10^{-2}	247(5)	3.23(5)	9.4(4)
τ_5	210…260	1.7×10^{-2}	242(4)	3.14(5)	9.2(4)
τ_6	260…310	1.5×10^{-2}	236(4)	2.99(4)	8.9(4)
τ_7	310…360	1.3×10^{-2}	227(4)	2.79(4)	8.5(4)
τ_8	360…410	1.2×10^{-2}	217(3)	2.59(3)	8.1(4)
τ_9	410…510	9.9×10^{-3}	202(3)	2.32(2)	7.7(4)
τ_{10}	510…610	8.9×10^{-3}	183(2)	2.01(2)	7.1(4)
τ_{11}	610…710	8.6×10^{-3}	165(2)	1.76(1)	6.7(3)
τ_{12}	710…910	7.1×10^{-3}	145(2)	1.50(1)	6.2(3)
τ_{13}	910…1210	6.4×10^{-3}	120(1)	1.19(1)	5.8(3)
τ_{14}	1210…1510	7.0×10^{-3}	98(1)	0.94(1)	5.5(4)
τ_{15}	1510…2010	6.0×10^{-3}	81(1)	0.76(2)	5.5(5)
τ_{16}	2010…2560	6.4×10^{-3}	65(1)	0.58(2)	5.5(6)

每个速度组在一段延迟时间τ范围内对荧光信号进行积分，其中τ=0 μs由1S–2S制备激光的阻断所设定。部分性质通过对原子束及其与1S–2S制备激光和2S–6P光谱激光相互作用的数值建模获得（见方法以及补充方法中的第 1.1 节）：P_{2S} 为到达亚稳态2S能级的平均激发概率；$\bar{v}$ 为对荧光信号有贡献的原子的平均速度；Δv_t 为2S 原子横向速度分布的半高全宽。该建模已通过与每个速度组信号的比较得到实验验证。Γ_F 为实验观测到的2S–6P跃迁半高全宽线宽。所有数值均为扩展数据表3中所给数据组的加权平均（权重为其中给出的w_{2S-6P}）；括号内的数字为各数据组的加权标准差。

扩展数据表 3 | 数据组的实验参数

Data group	Meas. run	Tran-sition	α_0 (mrad)	θ_L (°)	$P_{2S\text{-}6P}$ (μW)	FCs	Line scans per detector		$v_{cut\text{-}off}$ (m/s)	$P_{1S\text{-}2S}$ (W)	$w_{2S\text{-}6P}$ (%)
							Top	Bot.			
G1A	A	2S-6P$_{1/2}$	0.0	56.5	30	13	285	285	31^{+56}_{-33}	$1.30^{+0.50}_{-0.40}$	5.7
G1B	B				30	18	148	141	65^{+39}_{-44}	$1.15^{+0.15}_{-0.15}$	4.6
G1C	C				30	16	77	68	52^{+32}_{-18}	$1.05^{+0.10}_{-0.10}$	2.4
G2	B				20	18	147	138	65^{+46}_{-41}	$1.15^{+0.15}_{-0.15}$	3.5
G3	B				10	18	598	564	66^{+43}_{-43}	$1.15^{+0.15}_{-0.15}$	8.8
G4	B	2S-6P$_{1/2}$	0.0	146.5	30	3	34	31	41^{+26}_{-23}	$1.10^{+0.05}_{-0.05}$	0.6
G5	B				20	3	34	31	42^{+28}_{-27}	$1.10^{+0.05}_{0.00}$	0.9
G6	B				10	3	132	119	42^{+34}_{-29}	$1.10^{+0.05}_{-0.05}$	3.0
G7A	A	2S-6P$_{3/2}$	0.0	56.5	15	3	162	162	32^{+34}_{-28}	$1.25^{+0.10}_{-0.30}$	8.3
G7B	B				15	17	143	116	57^{+42}_{-43}	$1.05^{+0.15}_{-0.10}$	13.4
G8	B				10	18	151	124	56^{+39}_{-44}	$1.05^{+0.15}_{-0.10}$	9.2
G9	B				5	18	568	461	57^{+43}_{-49}	$1.05^{+0.15}_{-0.10}$	25.7
G10	B	2S-6P$_{3/2}$	0.0	146.5	15	2	21	20	42^{+23}_{-19}	$1.10^{+0.05}_{-0.05}$	2.4
G11	B				10	2	22	21	41^{+26}_{-19}	$1.10^{+0.05}_{-0.05}$	1.7
G12	B				5	2	87	80	36^{+35}_{-23}	$1.10^{+0.05}_{-0.05}$	5.9
G13	C	2S-6P$_{1/2}$	±7.5	56.5	30	3	106	106	61^{+33}_{-22}	$1.10^{+0.05}_{-0.05}$	0.8
G14	C		±12.0		30	11	440	394	63^{+38}_{-43}	$1.05^{+0.10}_{-0.15}$	2.9

在同一次测量运行中，对相同跃迁获取的实验数据，若原子束偏移角为 α_0、激光偏振角为 θ_L且光谱激光功率为 $P_{2S\text{–}6P}$，则归为一组，共形成此处列出的 17 个数据组。列出了截止速度 $v_{cut\text{-}off}$ 和制备激光功率 $P_{1S\text{–}2S}$ 的平均值，以及它们与最大值（上标）和最小值（下标）的差值。请注意，模拟修正（扩展数据表 5）采用了 $v_{cut\text{-}off}$ 的近似值。FCs，组内包含的冷冻循环数；每个探测器的线扫描次数，组内顶部和底部（底）探测器的线扫描数；$w_{2S\text{–}6P}$，2S–6P精细结构重心中的统计权重。详情见方法。

扩展数据表 4 | 修正$\Delta\nu$及不确定度σ：2S–6P$_{1/2}$ ($\nu_{1/2}$)和2S–6P$_{3/2}$ ($\nu_{3/2}$)跃迁频率及6P精细结构分裂$\Delta\nu_{FS}$(6P)的测定

	$\nu_{1/2}$		$\nu_{3/2}$		$\Delta\nu_{FS}$(6P)	
Contribution	$\Delta\nu$ (kHz)	σ (kHz)	$\Delta\nu$ (kHz)	σ (kHz)	$\Delta\nu$ (kHz)	σ (kHz)
First-order Doppler shift	−0.32	0.49	0.67	0.60	1.00	0.77
Extrapolation (statistical)	−0.32	0.49	0.67	0.60	1.00	0.77
Simulation of atom speeds	—	0.02	—	0.01	—	0.02
Simulation corrections	0.88	0.43	1.14	0.22	0.26	0.53
Light force shift	0.78	0.23	1.33	0.16	0.54	0.14
Quantum interference shift	0.25	0.36	−0.05	0.15	−0.29	0.51
Second-order Doppler shift	−0.15	0.01	−0.14	0.01	0.00	0.00
dc-Stark shift	0.20	0.21	−0.02	0.06	−0.22	0.23
BBR-induced shift	0.28	0.01	0.28	0.01	0.00	0.00
Zeeman shift	0.00	0.02	0.00	0.11	0.00	0.09
Pressure shift	0.00	0.02	0.00	0.02	0.00	0.00
Sampling bias	0.00	0.04	0.00	0.08	0.00	0.04
Signal background	0.00	0.03	0.00	0.04	0.00	0.05
Laser spectrum	0.00	0.07	0.00	0.07	0.00	0.00
Frequency standard	0.02	0.01	0.01	0.01	0.00	0.00
Subtotal (experiment-specific contributions)	1.06	0.69	2.08	0.66	1.04	0.97
Recoil shift	−1176.03	0.00	−1176.03	0.00	0.00	0.00
Total (all corrections)	−1174.97	0.69	−1173.95	0.66	1.04	0.97

所有不确定度均对应一个标准差。缩进条目详细列出了一阶多普勒频移和模拟修正的子贡献。子贡献之和可能因四舍五入而与给出的总计不同。BBR，黑体辐射。

扩展数据表 5 | 2S–6P$_{1/2}$ ($\nu_{1/2}$) 和 2S–6P$_{3/2}$ ($\nu_{3/2}$) 跃迁频率，以及 6P精细结构重心 ν_{2S-6P} 和分裂 $\Delta\nu_{FS}$(6P) 的模拟修正不确定度贡献

			$\nu_{1/2}$	$\nu_{3/2}$	$\nu_{2S\text{-}6P}$		$\Delta\nu_{FS}$(6P)	
Contribution	Variation	Sim.	σ (Hz)	σ (Hz)	σ (Hz)	r	σ (Hz)	r
Nozzle temperature T_N	±100 mK	Total	84	25	33	0.01	77	0.42
		LFS	80	28	34	0.08	74	0.38
		QI	3	1	1	−0.18	3	0.26
		SOD	1	1	1	0.78	0	0.97
Nozzle radius r_1	$^{+0.1}_{-0.5}$ mm*	Total	89	34	52	1.00	55	1.00
		LFS	43	42	42	1.00	5	0.99
		QI	34	19	2	−0.99	53	−1.00
		SOD	11	11	11	1.00	0	1.00
Cut-off speed $v_{cut\text{-}off}$	min. −max.*,†	Total	21	23	16	−0.19	31	−0.05
		LFS	23	27	26	1.00	16	0.80
		QI	16	6	3	−0.79	19	−0.40
		SOD	7	7	7	1.00	0	1.00
Atomic beam aperture width	±0.1 mm	Total	133	32	66	1.00	100	1.00
		LFS	138	40	72	1.00	98	1.00
		QI	4	7	6	1.00	7	0.29
		SOD	1	0	0	−1.00	1	−1.00
Atomic beam offset angle α_0	±1 mrad	Total	139	126	123	0.74	41	0.96
		LFS	137	130	123	0.72	35	0.97
		QI	4	3	1	−0.83	7	−1.00
		SOD	0	0	0	0.90	0	0.78
1S-2S preparation laser power $P_{1S\text{-}2S}$ and detuning	min. −max.*,‡	Total	67	33	45	1.00	33	1.00
		LFS	54	34	41	1.00	21	1.00
		QI	8	4	4	0.07	12	−1.00
		SOD	5	4	4	0.84	2	0.89
2S-6P spectroscopy laser power $P_{2S\text{-}6P}$	±10 %*	Total	59	53	55	1.00	7	1.00
		LFS	35	62	53	1.00	28	1.00
		QI	25	9	2	−1.00	34	−1.00
		SOD	0	0	0	0.88	0	0.99
2S-6P spectroscopy laser polarization angle θ_L	±3°	Total	355	152	19	−1.00	507	−1.00
		LFS	0	0	0	−1.00	0	−1.00
		QI	355	152	19	−1.00	507	−1.00
		SOD	0	0	0	−1.00	0	−1.00
Detection efficiency	see §	Total	33	14	2	−0.99	47	−1.00
		LFS	0	0	0	0.33	0	0.33
		QI	33	14	2	−0.99	47	−1.00
		SOD	0	0	0	−1.00	0	−1.00
Monte Carlo uncertainty of trajectory simulation	10 rep.‖	Total	28	16	14	0.00	32	0.00
		LFS	28	16	14	0.00	32	0.00
		QI	2	2	1	0.00	2	0.00
		SOD	0	0	0	0.00	0	0.00
All contributions		Total	434	216	170	−0.31	532	−0.26
		LFS	227	164	169	0.67	137	0.80
		QI	360	155	20	−0.99	514	−1.00
		SOD	14	14	14	0.98	2	0.98

对于每项贡献，均使用相应的输入参数重复进行模拟；这些参数根据给定的变化量相对于其最优值进行调整。所得一个标准差不确定度 σ 对应于光力（LFS）、QI 和二阶多普勒效应（SOD）频移，并给出了它们的合成不确定度。还给出了皮尔逊相关系数 r，表示 $\nu_{1/2}$ 与 $\nu_{3/2}$的不确定度之间的相关性；这些不确定度分别对应于 ν_{2S-6P} 和 $\Delta\nu_{FS}$（6P）所确定的不确定度。表 1和扩展数据表4中给出的模拟修正不确定度，对应于此处所列各项贡献的不确定度按平方和开根后所得的值，如末行所示。此处未计入速度组平均速度及由此导致的跃迁频率的影响，该影响在表 1和扩展数据表4中单独列出。详情见补充方法中的第 1.1 节。*乘以因子1/ 3，将箱形变化的半宽转换为一个标准差不确定度。†$v_{cut\text{-}off}$ 的平均值、最小值和最大值，测量运行 *A* 分别取 *30*、−10 和 *90 m s*$^{-1}$；测量运行 *B* 和 *C* 分别取 *65*、*0* 和 *130 m s*$^{-1}$（各数据组确定的 $v_{cut\text{-}off}$ 值见扩展数据表*3*）。‡P_{1S-2S}的平均值、最小值和最大值列于扩展数据表*3*。每个 P_{1S-2S} 值对应的失谐量，是通过对各数据组中测得的失谐量随 P_{1S-2S} 的变化进行线性回归而得出的。§探测效率不确定度通过改变对探测器圆筒内网格透射率的假设值，并重复进行空间探测效率的蒙特卡罗粒子追踪模拟来估算（见补充方法中的第 1.2 节）。‖采用随机抽取轨迹进行十次重复模拟所得结果的标准差，作为蒙特卡罗轨迹模拟随机性所导致不确定度的估计值。

nature portfolio

https://doi.org/10.1038/s41586-026-10124-3

补充信息

利用原子氢对标准模型进行万亿分之一以下精度的检验

按作者提供的格式，未经编辑

关于利用原子氢对标准模型进行亚万亿分之一精度检验的补充方法

Lothar Maisenbacher[1,4*], Vitaly Wirthl[1], Arthur Matveev[1], Alexey Grinin[1,5], Randolf Pohl[2], Theodor W. Hänsch[1,3], ThomasUdem[1,3]

[1]马克斯·普朗克量子光学研究所，加兴，德国。[2]约翰内斯·古腾堡美因茨大学，美因茨，德国。[3]慕尼黑路德维希-马克西米利安大学，慕尼黑，德国。[4]现地址：加利福尼亚大学伯克利分校，伯克利，加利福尼亚州，美国。[5]现地址：西北大学，埃文斯顿，伊利诺伊州，美国。

*通讯作者。电子邮箱：lothar.maisenbacher@mpq.mpg.de

1 建模

1.1 原子束与荧光线形建模

本节概述了2S-6P跃迁的原子束和荧光线形的建模；相关内容已在 [1], 的第5.2节和第5.3节中详细说明，此处仅作了一些细微修改。

首先，从喷嘴出发的原子轨迹的初始位置、方向和速度 v 分别从喷嘴孔上的均匀分布、余弦定律分布以及给定截止速度 $v_{\text{cut-off}}$ 下的修正麦克斯韦-玻尔兹曼通量分布中随机抽取（见正文）。未到达2S-6P光谱区的轨迹将被舍弃，并重复这一过程，直到获得一组 N_{traj} （对于数据组 G1A–G12 和 G13–G14，分别为 $N_{\text{traj}} = 1 \times 10^6$ 和 4×10^6；见扩展数据表3）。这些轨迹代表处于1S基态的氢原子。

其次，对于16个速度组中的每一个（$i = 1$、.....、16；见扩展数据表2）以及每条轨迹，通过数值积分相应的光学布洛赫方程（OBE） [2]，求得制备激光与轨迹相互作用后跃迁至亚稳态2S能级的激发概率$P_{2S,\,i}$ 。制备激光引起的单光子吸收会使2S能级电离，从而限制激发概率。这一过程也会降低横向速度较低的轨迹的激发概率；这一点可从正文图 3a上方所示的2S 原子的横向速度分布中看出。重要的是，对于那些速度过快、既无法与制备激光相互作用又无法归入给定速度组的轨迹，其激发概率为零。排除这些轨迹后，$P_{2S,\,i}$ 的范围为$P_{2S,\,1} = 2.1 \times 10^{-2}$ 至 $P_{2S,\,16} = 6.4 \times 10^{-3}$ （见扩展数据表2）。

第三，利用反向传播的光谱激光束将原子从 2S能级激发至 6P能级，以及随后的衰变，均采用光学布洛赫方程进行建模。此步骤采用两种不同的模型：量子干涉模型（QI）（见第 1.2 节）和光力频移模型（LFS）（见第 1.3 节），并使用相应的光学布洛赫方程组。每种模型的光学布洛赫方程均包含信号方程，其中包含实验探测到的莱曼衰变所产生的预期荧光信号（对于量子干涉模型，该信号分为三个球分量）。对于每条轨迹、每个速度组和每个光谱激光失谐 Δ ，通过对预先计算的光学布洛赫方程数值解进行插值来求解；这些解定义在由轨迹速度（20 m/s. . . 1200 m/s）、轨迹横向角（量子干涉模型；0.5 毫弧度. . . 31.5 毫弧度）或横向速度（光力频移模型；0 m/s. . . 38 m/s），以及光谱激光功率组成的三维规则网格上（对于量子干涉模型和光力频移模型的 2S-6P$_{1/2}$ 跃迁，功率范围分别为 5 微瓦. . . 50 微瓦和 1 微瓦. . . 35 微瓦；对于 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁，功率减半）。我们利用计算机代数系统 [3]推导光学布洛赫方程，并分别采用八阶显式龙格-库塔方法 [4] 对量子干涉模型进行数值积分，以及采用变阶隐式龙格-库塔方法（Radau IIA） [5] 对光力频移模型进行数值积分。对于每个速度组、失谐和衰变（量子干涉模型中分为球分量），通过对所有轨迹对应的信号方程求和，得到荧光信号；每条轨迹的权重为 $P_{2S,i}$。对于量子干涉模型，三个球分量按其探测效率加权；探测效率由两个探测器模拟得到的空间探测效率、相应分量的辐射方向图，以及线偏振激光偏振角 θ_{L}决定，该角定义了辐射方向图相对于探测器圆筒的方向。另一方面，光力频移模型不依赖空间探测效率或 θ_{L}，因为它不区分球分量。我们仅使用莱曼-ϵ 衰变产生的信号（量子干涉模型中对加权后的球分量求和），以模拟每个探测器、速度组和失谐对应的实验信号。纳入其他莱曼衰变并按其探测效率加权，不会显著影响模拟修正（但纳入静电场时除外，见第1.4节）。

第四，对每个探测器和速度组的模拟荧光线形进行分析，方法与实验线扫描相同（见正文中的方法），即对数据组 G1A–G12 或 G13–G14 分别拟合沃伊特线型或 Voigt双峰线型。为确保各失谐处信号的（相对）权重 j 与实验

数据相符（其中信号 y_j 的权重 $w_j = 1/y_j$ 为信号预期光子数泊松噪声 $\sqrt{y_j}$ 的倒数平方），在模拟线型中加入一个与实验观测到的信号背景相对应的恒定偏置。QI频移 ν_{QI} 和光力频移 ν_{LFS} 分别由拟合 QI 和 LFS 模拟所得线型的共振频率给出。

拟合线形的谱线振幅 A 用于确定各速度组中对荧光信号有贡献的原子的速度分布（见 [1]第5.3.2节）。为此，将 N_{traj} 轨迹按速度分入200个等宽区间，覆盖$v = 0\,\mathrm{m/s} \ldots 1000\,\mathrm{m/s}$的范围；并针对每个区间计算和拟合模拟线型。通过对每个区间的谱线振幅进行适当加权，我们可以计算任意截止速度$v_{\text{cut-off}}$ 下各速度组的谱线振幅。比较每次线扫描中各速度组的模拟谱线振幅与实验谱线振幅后，我们找出最能描述实验数据的$v_{\text{cut-off}}$ 值（见扩展数据表3）。虽然并非严格必要，实际操作中我们先确定 $v_{\text{cut-off}}$ （使用一组基于 $v_{\text{cut-off}}$初始值计算得到的轨迹），然后使用最优 $v_{\text{cut-off}}$ 计算一组新的 N_{traj} 轨迹，用于后续分析。通过对各区间的平均速度进行加权平均（以谱线振幅为权重），得到每个速度组的平均速度 $\bar{v}$ 和均方根速度 $\bar{v}_{\mathrm{RMS}}$。我们使用空间探测效率均匀的量子干涉模型确定 $v_{\text{cut-off}}$、 $\bar{v}$和 $\bar{v}_{\mathrm{RMS}}$；改用LFS模型或采用探测器空间探测效率的量子干涉模型，并不会得到显著不同的结果。

对于每个实验数据组，使用相应的最优实验参数重复上述步骤（见扩展数据表3和5）。这样，对于每个数据组中的每个速度组以及每个探测器（针对 ν_{QI} 和 ν_{LFS}），都会分别得到一个 ν_{QI}、ν_{LFS}、 $\bar{v}$ 和 $\bar{v}_{\mathrm{RMS}}$ 的数值（各速度组的 $\bar{v}$ 平均值见扩展数据表2）。

通过在实验限值范围内改变输入参数，确定模拟修正的不确定度。对每个输入参数分别进行此操作，同时将所有其他输入参数保持在其最优值。所改变的输入参数、变化范围及由此产生的不确定度列于扩展数据表 5。在确定这些不确定度时，我们不计入输入参数变化导致平均速度 $\bar{v}$ 变化对 ν_{e} 的影响。这样便能将给定输入参数变化对光力、量子干涉和二阶多普勒频移的影响，与其对 $\bar{v}$ 数值的共模效应区分开来；如上所述， $\bar{v}$ 对具体的底层模型并不敏感。相反，我们单独计入 $\bar{v}$ 变化所带来的不确定度（见正文表1和扩展数据表4中的“原子速度模拟”条目）。值得注意的是，每项输入参数变化对这一不确定度的贡献最多为 12 赫兹。

1.2 量子干涉（QI）模型

量子干涉模型是本工作所示QI模拟以及正文表1和扩展数据表4中量子干涉频移估算的基础。其详细描述见 [1] 的第2.3.2节（文中称之为“大模型”）。简言之，量子干涉模型包含由2S能级→6P激发及随后辐射的、电偶极允许的（电偶极跃迁）衰变所耦合的全部148个能级。能级能量取自 [6]，其中采用与正文方程(1)等价的公式来列表给出数值。偶极矩按 [7] 所述，采用非相对论波函数计算（包括约化质量修正；偶极矩的相对论修正量级为 α^2 [8] ，在此可安全忽略）。本工作中引用的全部衰变率均由该模型导出。其数值为（至4位有效数字；dcy/s：每秒衰变次数）：$\Gamma = 3.899$ 兆赫 $= (2\pi \times 3.899)$ Mdcy/s， $\Gamma_{\text{e-1S}} = (2\pi \times 3.437)$ Mdcy/s， $\Gamma_{\mathrm{det}} = (2\pi \times 3.140)$ Mdcy/s（对应于莱曼-ϵ 衰变）， $\gamma_{\text{e-2S}} = (2\pi \times 462.0)$ kdcy/s，以及分别针对2S能级-6P能级$^{1/2}$ 或2S能级-6P能级$^{3/2}$ 跃迁的 $\gamma_{\mathrm{ei}} = (2\pi \times 153.6)$ kdcy/s或$\gamma_{\mathrm{ei}} = (2\pi \times 306.4)$ kdcy/s（其中直接巴耳末-δ衰变对 γ_{ei}的贡献为$(2\pi \times 151.6)$ kdcy/s或$(2\pi \times 303.3)$ kdcy/s）。对主量子数不同的能级流形之间每一次衰变的每一个（允许的）球分量(σ^-, π, σ^+)均纳入一个信号方程，共计42个信号方程。由此得到共计732个实值非零耦合光学布洛赫方程。该模型包括

两个6P 精细结构多重态，以及描述其衰变之间交叉阻尼的项（对于上下能级主量子数均相同的所有衰变，均包含交叉阻尼项）。因此，它描述了经由任一6P 精细结构多重态、但起止于同一能级的激发-衰变路径之间的量子干涉所引起的线形畸变（2S能级-6P能级$_{1/2}$ 与2S能级-6P能级$_{3/2}$ 跃迁共享同一初态能级，但其激发态能级分别属于 $J = 1/2$ 和 $J = 3/2$ 多重态；见正文）[9, 10]。

由于衰变的不同球分量具有不同的辐射方向图，因此必须模拟顶部和底部探测器的空间探测效率随光子发射方向的变化，才能预测实验中观测到的荧光线形。为此，我们采用蒙特卡罗粒子追踪模拟，追踪莱曼-ϵ 光子及其从探测器圆筒壁上打出的光电子，并考虑法拉第笼和探测器圆筒的胶体石墨涂层壁与氧化铝壁各自不同的性质（见 [1]第 4.6.6 节）。通过改变探测器圆筒内网格的假定透射率来估算粒子追踪模拟的不确定度，因为实验过程中使用了透射率各异的网格，且石墨涂层会影响网格透射率；此外，还通过重复模拟（每次运行使用 $>1 \times 10^8$ 个光子）来考虑模拟的随机性（见扩展数据表 5）。在我们此前对 2S-4P跃迁 [11]的测量中，也使用了类似的粒子追踪模拟来模拟量子干涉频移。

顶部和底部探测器高度对称，只有一处不同：顶部探测器圆筒顶端装有实心铝盖，而底部探测器圆筒底端装有石墨涂层网，以维持圆筒内的真空（见正文图2b）。空间探测效率的差异导致顶部探测器的QI频移比底部探测器约大10%。

在微扰极限下， [10], 量子干涉频移与激光功率无关；若荧光探测覆盖整个（4π）立体角，频移则会消失。然而，若将饱和和光抽运效应考虑在内，情况便不再如此；这两种效应均已纳入我们的量子干涉模型，而且我们发现有两种不同效应尤为重要。

首先，由于饱和效应，非共振耦合与近共振耦合的6P精细结构组分的激发率之比会随光谱激光功率增加。也就是说，扰动跃迁相对于受扰跃迁的强度会增大，进而使QI频移增大。

其次，激发态 6P 能级反向衰变至初始 2S能级，会使初始能级的布居数产生不对称性（相对于受探测跃迁的失谐），因为反向衰变也会受到量子干涉畸变的影响。随后，这种布居不对称可通过再激发映射到激发态 6P 能级的布居数上，并可能在衰变时作为信号被探测到。重要的是，这种光抽运效应引起的 QI频移与探测几何无关。在我们的激光功率范围内，发现其与激光功率成正比，对于 2S-6P$_{1/2}$ 和 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁，斜率分别为 -20赫兹/微瓦和 21赫兹/微瓦。

虽然第二种效应会抵消饱和效应，但总体而言，最大量子干涉频移会随激光功率增大。在我们的激光功率范围和空间探测效率下，这种增幅近似呈线性；对于 2S-6P$_{1/2}$ 和 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁，频移分别以每微瓦/增加 2.7% 和 5.3%，相对于微扰极限下的频移而言。同样，这两种效应会使魔角（量子干涉频移为零时的偏振角 θ_{L}）依赖于激光功率，从零功率极限下的 $\approx 54^\circ$ 移至此处所用最高激光功率下的 $\approx 52^\circ$ 。

除了 QI效应外，模型中纳入两个 6P 精细结构多重态，确保涵盖了 2S-6P跃迁交流斯塔克位移的主要贡献。据估计，在此处使用的最高光谱激光功率下，该贡献对于 2S-6P$_{1/2}$ 跃迁和 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁分别至多为 41 赫兹和−10赫兹。对于任一跃迁 [1]，未纳入量子干涉模型的、来自对具有 $n \neq 6$ 的能级进行非共振激发的交流斯塔克位移贡献，总计预计低于 1 毫赫兹。

1.3 光力频移（LFS）模型

LFS模型是本文所示 LFS模拟以及正文表1和扩展数据表4所列 LFS 修正的基础。正文中对此进行了介绍，并在 [1]的第3.4节中作了详细说明。简而言之，该模型描述了原子的状态，其采用的组合基底由简化的内部能级方案和沿光谱激光束形成的驻波方向的外部动量构成。纵向运动在原子静止系中以时变拉比频率的形式作经典处理，而垂直于纵向方向和驻波方向的运动在此处可以忽略。简化的能级图包括初始的 $2S_{1/2}^{F=0}$, $m_F=0$ 能级、激发态 $6P_{1/2}^{F=1}$, $m_F=0$ 或 $6P_{3/2}^{F=1}$, $m_F=0$ 1 2 $\to 6$ 能级，以及一个 S 基态，同时还包括（近）共振的 S-P 激发以及 6P→2S 和 6P→1S 衰变。从任一光谱激光束中吸收光子或向其中受激辐射光子，都会改变原子的内部能级占据，并使其沿光束方向的动量改变 $\pm\hbar K_{\mathrm{L}}$。

6P→2S 反向衰变的有效速率设为 γ_{ei}，其中包括直接衰变以及所有间接衰变至 $2S_{1/2}^{F=0}$, $m_F=0$ 能级的过程。这是一个很好的近似，因为间接衰变仅占 γ_{ei} 的 $\approx 1\,\%$（见 [1]的表2.4和表2.5）。6P 能级的所有其他衰变均计入有效的 6P→1S 衰变速率（由 $\Gamma-\gamma_{\mathrm{ei}}$ 给出），包括那些原本会导致衰变至 $2S_{1/2}^{F=0}$, $m_F=0$ 能级以外的 2S 能级的衰变。这是一个很好的近似，因为这些 2S 能级并未与 6P 能级共振耦合，任何到达这些能级的布居数实际上都会从系统中损失。

基底分为两个相互耦合的子基底：一个包含动量变化型 6P→2S 反向衰变发生之前的态，另一个包含此类衰变使动量改变了 $\Delta p_{\mathrm{D},\,1}$（从适当的分布中选取，见下文）之后的态。对于第一个子基底，6P→2S 和 6P→1S 衰变的速率分别设为 γ_{ei} 和 $\Gamma-\gamma_{\mathrm{ei}}$；对于第二个子基底，这两个速率分别设为零和 Γ。这样实际上将反向衰变次数限制为一次，否则所需的动量基底会随着每次后续反向衰变而增大。鉴于 $\gamma_{\mathrm{ei}}/\Gamma \ll 1$，这是一个很好的近似，包含多次后续反向衰变的模拟也证实了这一点 [1]。子基底包含动量范围分别为 $p_0-4\hbar K_{\mathrm{L}}$ 至 $p_0+4\hbar K_{\mathrm{L}}$ 和 $p_1-4\hbar K_{\mathrm{L}}$ 至 $p_1+4\hbar K_{\mathrm{L}}$ 的耦合态，其中 p_0 为初始动量，$p_1=p_0+\Delta p_{\mathrm{D},\,1}$。通过改变基底大小，确定了满足此处所需精度时必须考虑的最大动量变化（$\pm 4\hbar K_{\mathrm{L}}$） [1]。由此得到总计27个态（简化示意图见 [1] 的图3.2，其中 $\pm 2\hbar K_{\mathrm{L}}$）以及207个实值非零耦合光学布洛赫方程（OBE），其中包括4个信号方程。

对于每组输入参数，我们对不同的 $\Delta p_{\mathrm{D},1}$ 数值进行光学布洛赫方程的数值积分，并将得到的模拟荧光线形按照驻波中 $\Delta p_{\mathrm{D},1}$ 的分布加权（参见 [12]的式 (74)；请注意量子化轴的选择不同），然后取平均。我们使用含 4 个点的高斯求积法，对 $\Delta p_{\mathrm{D},1}$ 取平均。以与实验数据相同的方式对平均后的线形进行拟合，以确定其共振频率，从而得到正文图 3a、b 所示的光力频移 ν_{LFS}。图 3b 中布拉格共振的线宽主要由功率展宽和飞行时间展宽决定。

作为检验，我们对光学布洛赫方程进行微扰分析 [13]，令 v_x 为零，并取激发态布居数较小的极限；这里的情况近似满足这一条件。由此得到 $\nu_{\mathrm{LFS}} \approx -|\Omega_0/(2\pi)|^2/(16\Delta\nu_{\mathrm{rec}})$，其中 Ω_0 是每束光谱激光束激发 2S能级至 P 能级跃迁的（角）拉比频率。采用有效拉比频率 $\Omega_0=(2\pi\times 109)\ \mathrm{krad/s}$ 来近似原子穿过高斯形光谱激光束的情形；对于 2S能级-6P能级$_{1/2}$ (2S能级-6P能级$_{3/2}$)跃迁，每束光的功率均为 $P_{\text{2S-6P}}=30$微瓦（15 微瓦）。我们发现，这一微扰结果与完整模拟的差异在 60 赫兹以内。

最后，我们通过对一组代表原子束的原子轨迹所对应的线形求和，来模拟实验观测到的荧光线形（见第 1.1 节）。这种非相干求和是有效的，因为入射横向动量态（如维格纳函数所描述的）仅在动量空间中的 $2.6\times 10^{-4}\hbar K_{\mathrm{L}}$ 范围内彼此相干（该尺度不会因传播而增大），远小于耦合态 [1]的动量间隔 $2\hbar K_{\mathrm{L}}$。

1.4 直流斯塔克位移的建模

直流斯塔克频移的机制，是电场 $\boldsymbol{E}$使目标能级与附近相反宇称的扰动能级发生混合。由此产生的新本征态不仅能量相对于其零场对应态发生了频移，而且不再是宇称本征态。特别是，从初始2S能级激发到6S和6D能级（它们现在都混入了一些6P能级成分）的过程变得偶极允许 [1]。我们注意到，能级频移按 n^7 [7]变化。

重要的是，我们并不直接确定目标能级之间的跃迁频率，而是测量并拟合荧光线形以确定跃迁频率。如果对微扰能级的激发也会影响该线型，那么以这种方式确定的跃迁频率的直流斯塔克位移 $\Delta\nu_{\mathrm{dc}}$ 就不能再用目标能级的能量位移来充分描述，而必须通过拟合电场为 $\boldsymbol{E}$时的线型来求得。事实上，根据二阶微扰理论（见 [1] 的第 2.4 节），可以证明混合能级质心的直流斯塔克位移为零。然而，只有当各能级的间隔远大于其线宽时，这种描述才足够准确，而这里的情况并非总是如此。此外，拟合线型并不一定等同于求得混合能级的质心。尽管如此，我们仍可预期会有一定程度的抵消，并且确实在 2S能级-6P能级$_{3/2}$ 跃迁中观察到了这种现象（见下文）。

为开展研究，我们将量子干涉模型（见第 1.2 节）加以扩展，纳入强度为 $E = |\boldsymbol{E}|$、与量子化轴平行或垂直的静电场所产生的混合项（量子化轴由线性光谱激光偏振设定）、混合后的 6S和6D能级及其衰变，以及必要的额外中间能级，从而模拟相应的线形。模拟还包括电场诱导的2S能级与2P能级之间的混合，但初始2S能级产生的频移（我们发现为 0.4 赫兹/(V/m)^2）在此可以忽略。由于我们将电场视为微扰，相关的 6P 能级（对于这些能级， $F = 1$）在电场与量子化轴平行时仅与具有 $F \neq 1$ 的能级混合，而在垂直情况下仅与具有 $F \neq 0$ 的能级混合。因此，对于平行和垂直两种情况，分别得到总计 2070 个和 5880 个实值、非零的耦合光学布洛赫方程（OBE）。由于计算成本较高，我们仅计算单条原子轨迹，并通过将模拟线型与高斯函数进行卷积来加入实验观测到的多普勒展宽；但对于 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁且电场垂直于量子化轴的情况（见下文），我们则对代表原子束的一组轨迹取平均。与量子干涉模拟一样，每种衰变的三个球分量均根据其探测效率加权后求和。由于实验中激光偏振位于 y-z平面内（见正文图2b），沿 x方向的电场完全垂直于量子化轴（即 $\beta_{\mathrm{dc},x} \equiv \beta_{\mathrm{dc},\perp}$），而沿 y方向和z方向的电场则可分解为平行和垂直于量子化轴的分量（即 $\beta_{\mathrm{dc},y} = \cos^2(\theta_{\mathrm{L}})\beta_{\mathrm{dc},\perp} + \sin^2(\theta_{\mathrm{L}})\beta_{\mathrm{dc},\parallel}$ 以及 $\beta_{\mathrm{dc},z} = \sin^2(\theta_{\mathrm{L}})\beta_{\mathrm{dc},\perp} + \cos^2(\theta_{\mathrm{L}})\beta_{\mathrm{dc},\parallel}$ ）。需要注意的是，尽管由于平行电场和垂直电场对应的线形不同，这种分解是一种近似，但我们发现其与实验数据符合良好或更好（见下文）。模拟分别针对杂散场区（$E < 1\,\mathrm{V/m}$）和偏置场区（$E = 10\,\mathrm{V/m} \ldots 45\ \mathrm{V/m}$）进行，具体定义见正文中的方法。

对于2S-6P$_{1/2}$跃迁，其激发态6P$_{1/2}^{F=1}$, $m_F = 0$能级受到的微扰来自与6S$_{1/2}^{F=0}$和6S$_{1/2}^{F=1}$能级的混合；这两个能级的能量分别高出34 MHz和41 MHz。此外，影响较小的微扰来自6D$_{3/2}^{F=1}$和6D$_{3/2}^{F=2}$能级，其能量高出405 MHz，约为6P精细结构分裂 [6]。因此，所有微扰能级都远在自然线宽和实验线宽之外，我们预计2S-6P$_{1/2}$ 跃迁的直流斯塔克位移由6P$_{1/2}^{F=1}$, $m_F = 0$能级的频移（以及初始2S能级小得多的频移）决定。同样，尽管该跃迁的谱线会发生频移，其线型仍可由Voigt线型很好地描述，这与实验观察一致（见扩展数据图3a）。根据二阶微扰理论计算6P$_{1/2}^{F=1}$, $m_F = 0$能级的频移，我们得到$\beta_{\mathrm{dc},\parallel} = -1.75$ 千赫兹/(V/m)^{2}和$\beta_{\mathrm{dc},\perp} = -1.51$千赫兹/(V/m)^2 ，分别对应平行和垂直于量子化轴的静电场

。线型模拟很好地再现了实验线型（见扩展数据图3a中的实线），所得$\beta_{\mathrm{dc},\parallel}$和$\beta_{\mathrm{dc},\perp}$的数值与两种情况下的微扰值相差均在4%以内；其中，模拟改变了光谱激光功率、原子速度和横向速度，且涵盖杂散场区和偏置场区。实验上（对于 $\theta_{\mathrm{L}} = 56.5°$），我们测得$\beta_{\mathrm{dc},x} = -1.469(4)$千赫兹/(V/m)^2, $\beta_{\mathrm{dc},y} = -1.530(3)$千赫兹/(V/m)^2, 和$\beta_{\mathrm{dc},z} = -1.707(7)$ 千赫兹/(V/m)^2（仅包含统计不确定度），这些结果与偏置场区模拟值相差均在4%以内（测量$\beta_{\mathrm{dc},x}$及其模拟结果见扩展数据图3c）。我们选择采用实验测得的 β_{dc}来确定2S-6P$_{1/2}$ 跃迁中杂散电场引起的直流斯塔克位移，并扩大其不确定度范围，以涵盖杂散场区和偏置场区，以及理论和模拟结果（$\beta_{\mathrm{dc},x} = -1.47(4)$千赫兹/(V/m)^2,$\beta_{\mathrm{dc}}$

$_{,y} = -1.53(5)$ 千赫兹/(V/m)^2, 和 $\beta_{\mathrm{dc},z} = -1.71(5)$ 千赫兹/(V/m)^2)。

对于 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁，情况则截然不同。这是因为其激发态 6P$_{3/2}^{F=1}$, $m_F = 0$能级受到 6D$_{3/2}^{F=2}$和 6D$_{3/2}^{F=1}$ 能级的微扰作用占主导，而这两个能级之间的间隔分别仅为 57 千赫兹和 -469 千赫兹 [6]。因此，它们与 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁的自然线宽相比非常接近；根据线型确定的跃迁频率直流斯塔克位移，预计并不对应于 6P$_{3/2}^{F=1}$, $m_F = 0$ 能级的频移。由于能级间隔很小而产生强混合，我们预计线型会受到强烈微扰；事实上，我们在实验中观察到线型分裂为两个明显的分量（见扩展数据图3b）。我们使用沃伊特双峰线型拟合实验和模拟线型。其他微扰能级，即 6S$_{1/2}^{F=0}$和 6S$_{1/2}^{F=1}$（能量分别低 365 兆赫和 371 兆赫），以及 6D$_{5/2}^{F=2}$（能量高 135 兆赫），与线宽相比也相距较远，因此与 6P$_{3/2}^{F=1}$, $m_F = 0$能级的混合程度要弱得多。

我们首先考虑电场垂直于量子化轴的情况，此时 6D$_{3/2}^{F=2}$和 6D$_{3/2}^{F=1}$能级在一个线宽范围内发生混合。我们的模拟（扩展数据图3b中的实线）很好地再现实验线型的分裂，并在 $\approx$20% 的范围内较为合理地描述了各分量的相对振幅。对单条轨迹进行模拟且不考虑多普勒展宽、同时施加较高偏置场（扩展数据图3b中的绿色虚线），则揭示出更复杂的子结构。尽管如此，在偏置场区，模拟仍得到二次直流斯塔克位移 $\beta_{\mathrm{dc},\perp} = -0.55(3)$千赫兹/(V/m)^2（扩展数据图3d中的橙色菱形和虚线）。这一结果与实验值 $\beta_{\mathrm{dc},x} = -0.573(7)$千赫兹/(V/m)^2 在 5% 以内相符（仅计统计不确定度；单次测量见扩展数据图3d中的蓝色圆圈和实线）。这两个数值与二阶微扰理论给出的频移结果 $\beta_{\mathrm{dc},\perp} = -0.50$ 千赫兹/(V/m)^2 相差均不超过 15%；该理论结果对应于 6P$_{3/2}^{F=1}$, $m_F = 0$能级，并忽略其与 6D$_{3/2}^{F=2}$和 6D$_{3/2}^{F=1}$能级的混合，即假设线宽范围内的能级没有净贡献。对此可以这样理解：线型拟合近似找到了（分裂的）线型的质心，从而抵消了造成分裂的微扰能级所引起的频移。我们使用β_{dc}

$_{,\perp} = -0.55(3)$ 千赫兹/(V/m)^2 作为我们对偏置场区的估计。

在杂散场区，分裂尚未分辨出来，模拟显示出更复杂的行为。$\beta_{\mathrm{dc},\perp}$ 对每条轨迹的实验参数有显著依赖，尤其是横向速度；我们认为这是电场导致的谱线分裂与多普勒频移共同作用的结果。正如上文所述，我们通过对代表原子束的多条轨迹取平均来处理这一问题。最显著的是，$\beta_{\mathrm{dc},\perp}$强烈取决于观测到的是哪种莱曼衰变（在杂散场区，每种衰变仍保持直流斯塔克位移的二次行为）。例如，我们发现，莱曼-ϵ 衰变对应 1.39 千赫兹/(V/m)^2，而莱曼-α 衰变对应 -17.7 千赫兹/(V/m)^2（在 $P_{\mathrm{2S\text{-}6P}} = 15$微瓦下）；它们分别约占荧光信号的 97% 和 1.5%。我们通过将各莱曼衰变按其估算的探测效率加权求和来处理这一问题（见 [1] 的图 B1）。总体而言，我们估计杂散场区的$\beta_{\mathrm{dc},\perp}$ 为 0.56(75) 千赫兹/(V/m)^2 （注意其符号与偏置场区的$\beta_{\mathrm{dc},\perp}$ 相反）。

接下来，我们考虑更简单的情况：电场平行于量子化轴，此时线宽范围内只有 $6D_{3/2}^{F=2}$能级发生混合。模拟线型与实验线型的吻合程度与垂直情形相近。然而，与垂直情形不同，模拟得到的 $\beta_{\mathrm{dc},\perp}$ 并不强烈依赖实验参数，也不取决于探测到的是哪种莱曼衰变。值得注意的是，杂散场区与偏置场区的行为并无显著差异；我们认为这是因为线宽范围内只有一个混合能级。总体而言，我们得到 $\beta_{\mathrm{dc},\parallel} = -0.48(5)$ 千赫兹/(V/m)^2。值得注意的是，该模拟值远小于二阶微扰理论给出的 $\beta_{\mathrm{dc},\parallel} = -33.6$ 千赫兹/(V/m)^2，后者是在计入所有微扰能级时 $6P_{3/2}^{F=1}$, $m_F = 0$能级的频移；但它与忽略 $6D_{3/2}^{F=2}$能级混合时得到的结果（$\beta_{\mathrm{dc},\parallel} = -0.48$千赫兹/(V/m)^2）高度吻合。这再次表明，求分裂谱线的质心时，频移会发生强烈抵消。

利用上文给出的偏置场区$\beta_{\mathrm{dc},\perp}$ 值，我们求得偏置场区（针对 $\theta_{\mathrm{L}} = 56.5^\circ$）中$\beta_{\mathrm{dc},y}$ 和$\beta_{\mathrm{dc},z}$ 的模拟值分别为 $-0.53(3)$千赫兹/(V/m)^2 和$-0.50(4)$千赫兹/(V/m)^2, , 与$\beta_{\mathrm{dc},y}$的实验值（$-0.540(5)$千赫兹/(V/m)^2）吻合良好，与$\beta_{\mathrm{dc},z}$（$-0.422(18)$千赫兹/(V/m)^2）也较为吻合。同样，我们求得杂散场区中$\beta_{\mathrm{dc},y}$ 和$\beta_{\mathrm{dc},z}$ 的模拟值分别为$0.24(52)$千赫兹/(V/m)^{2}和 $-0.16(24)$千赫兹/(V/m)^2, 。这两个值连同杂散场区的$\beta_{\mathrm{dc},x} \equiv \beta_{\mathrm{dc},\perp}$值，用于确定2S能级-6P能级$^{3/2}$ 跃迁的直流斯塔克位移。($\beta_{\mathrm{dc},x}$,$\beta_{\mathrm{dc},y}$)、($\beta_{\mathrm{dc},x}$,$\beta_{\mathrm{dc},z}$)与($\beta_{\mathrm{dc},y}$,$\beta_{\mathrm{dc},z}$)之间的皮尔逊相关系数分别为 $r = 0.99$、$r = 0.97$ 和 $r = 0.95$。

2 修正与不确定度

2.1 二阶多普勒频移

二阶多普勒频移（SOD）会导致原子在实验室参考系中的跃迁频率ν 出现表观频移（见 [1]第 2.2.3 节）。均方根速度为 $\bar{v}_{\mathrm{RMS}}$ 的各速度组，其频移平均值为

$$\Delta\nu_{\mathrm{SOD}} = -\frac{\nu}{2}\left(\frac{\bar{v}_{\mathrm{RMS}}}{c}\right)^2. \tag{1}$$

对于此处探测的两种 2S能级-6P能级跃迁，在所需精度范围内，跃迁频率 ν 相同，且其不确定度远低于此处所需水平。不同速度组的 $\bar{v}_{\mathrm{RMS}}$ 和 $\Delta\nu_{\mathrm{SOD}}$分别介于 270 m/s 和 67 m/s 之间，以及 -297 赫兹和 -18 赫兹之间。

由于二阶多普勒效应的大小（在此几何构型下始终为负）随速度（二次）增加，若不予考虑，它会在线性多普勒频移外推中造成 $\kappa = -1.7$赫兹/(m/s)的表观负多普勒斜率。这里，我们首先通过减去 $\Delta\nu_{\mathrm{SOD}}$来修正每次线扫描中各速度组的共振频率ν_0 ，其中 $\bar{v}_{\mathrm{RMS}}$ 由原子束模拟确定，随后进行多普勒频移外推。去除表观多普勒斜率所产生的影响超过了各个速度组的频移，因此，对无多普勒跃迁频率$\nu_{1/2}$ 和$\nu_{3/2}$ 施加的修正分别为$-0.15(1)$千赫兹和 $-0.14(1)$千赫兹（不确定度估算见扩展数据表 5）。该修正在 2S能级-6P能级$^{1/2}$ 跃迁与 2S能级-6P能级$^{3/2}$跃迁之间高度相关（$r = 0.98$）。

2.2 黑体辐射（BBR）引起的频移

我们按照 [14] 计算了 2S能级和 6P能级的黑体辐射诱导交流斯塔克频移，但对具有 $n \leq 10$ 的能级纳入了精细结构、超精细结构和兰姆位移。然而，由于 2S能级和 6P能级产生的频率分裂（至多 10 GHz）远低于室温附近黑体辐射谱的峰值（$\sim$20 THz），在我们的

精度范围内，纳入这些因素的影响可以忽略；我们发现，这些频移与 [14] 中表1给出的黑体辐射温度为 300 K 时的频移相差不到 1 赫兹。对于我们估计为 2S-6P光谱区黑体辐射温度的 290(10) K，我们计算得到 2S-6P$_{1/2}$ 和 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁的黑体辐射引起的频移为 $-0.28(1)$ 千赫兹。$\nu_{1/2}$ 和 $\nu_{3/2}$ 已通过减去该数值校正了频移，并假设该校正对各跃迁完全相关。 [14], 中给出的跃迁黑体辐射诱导展宽在 300 K 时为 1.3 千赫兹，在此处可以忽略。

2.3 塞曼频移

Th沿着 B_x 的磁通密度方向，观测到的跃迁频率的塞曼频移 he
spe光谱激光束的塞曼频移由下式给出（见 [1]第6.2.4.3节）

$$\Delta\nu_{\mathrm{Zeeman}} = \frac{S_3}{S_0}\frac{g_F\mu_{\mathrm{B}}B_x}{h}. \tag{2}$$

$g_F = 1/3$ ($g_F = 5/3$) 是 6P$^{F=1}_{1/2}$(6P$^{F=1}_{3/2}$) 能级的朗德因子， μ_{B} 是玻尔磁子（注意，2S$^{F=0}_{1/2}$能级的 $g_F = 0$ ）。 S_3/S_0 是光谱激光束的残余圆偏振光比例，其中 S_0 是总强度， S_3 是右旋和左旋圆偏振光 [15, 16]之间的强度差。

2S-6P光谱区的磁场通过真空室外三对正交方向的亥姆霍兹线圈，以及真空室内一层高磁导率金属（μ金属）屏蔽罩来减至最低。该屏蔽罩内的所有部件均由非磁性材料制成。在以光谱区为中心、半径为 5 mm 的球体范围内，测得 B_x 低于 1 mG。通过测量耦合回有源光纤反射器光纤中的光的偏振，对光谱区内 S_3/S_0 的绝对值进行原位监测，详情见 [15, 16]。对于此处展示的数据集， $|S_3/S_0|$ 的平均值为 4.2(1.3) %（括号内为各数据组的标准差）。少量线扫描（约 9 %）没有偏振数据，因此我们改用现有数据中 $|S_3/S_0|$ 为 10% 的上限。

使用每次线扫描的值 $|S_3/S_0|$ （或在必要时使用上限），以及上述给出的 B_x 最大值，可得塞曼频移的上限：2S-6P$_{1/2}$ 和 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁分别为 $|\Delta\nu_{\mathrm{Zeeman}}|$ =0.02 千赫兹和 $|\Delta\nu_{\mathrm{Zeeman}}| = 0.11$ 千赫兹。我们将这些上限作为 $\nu_{1/2}$ 和 $\nu_{3/2}$的不确定度。假设这些不确定度在 2S-6P$_{1/2}$ 和 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁之间完全相关。

2.4 压力频移

在 2S→6P 激发过程中，氢原子与邻近粒子碰撞会导致观测到的跃迁频率发生压力频移。我们区分两类碰撞：一类是原子束内与其他氢原子（处于 1S能级或 2S能级）或氢分子的碰撞；另一类是与背景气体粒子的碰撞。假设原子束中的粒子温度等于喷嘴温度 T_{N}，背景气体温度则取室温。

我们估计，每秒沿2S-6P光谱区方向离开喷嘴的1S 原子和氢分子数量分别为 1.6×10^{16}原子/s和1.8×10^{16}分子/s，后者对应于光谱激光束处 1.4×10^{17}分子/(s/m^2)的通量密度（见 [1]的第4.5.2.3节）。光谱区内的背景气体压力（根据压力测量和流导模拟）估计为 2×10^{-7}mbar，并以分子氢为主。

已在 [17], 中完成一项蒙特卡洛模拟，用于估算2S能级-6P能级$_{1/2}$ 和2S能级-6P能级$_{3/2}$ 跃迁因与其他氢原子发生束内碰撞而产生的预期压力频移；该模拟采用2S能级-6P能级测量的近似参数与几何构型，并基于近期对相关范德瓦尔斯相互作用系数的计算 C_6 [18, 19]。将这些结果按十倍

low此处实际使用的氢原子er通量，我们发现这一贡献的量级 to the 两种跃迁以及所有速度组的压力频移均低于1赫兹。

为估算分子氢引起的压力频移，我们计算了碰撞频移截面，然后利用估算的分子压力和速度分布计算了频移。速度相关的碰撞频移截面采用S矩阵方法 [20], 计算，其中矩阵元通过对描述碰撞过程中原子波函数演化的薛定谔方程进行数值求解得到，随后通过蒙特卡洛积分在碰撞参数空间中取平均。最后，针对实验条件的压力频移由这些截面通过蒙特卡洛模拟计算得到。我们采用氢分子的简化模型，该模型同时考虑了与受扰氢原子的范德瓦耳斯相互作用以及分子的四极电场 [21]。范德瓦耳斯相互作用的评估因氢分子中存在能量接近原子氢6P能级-1S能级跃迁的偶极允许跃迁而变得复杂。为计算非共振范德瓦耳斯相互作用，我们采用 [22],中提出的氢分子简化跃迁集合，对2S能级-6P能级$_{1/2}$ 和2S能级-6P能级$_{3/2}$ 两种跃迁均给出范德瓦耳斯相互作用系数为 $C_6 = 3.08 \times 10^4$au（原子单位）。近共振项因氢分子中相应跃迁的振子强度很小而被发现可忽略。此外，分子中的近共振能级甚至可能通过碰撞过程中从氢原子到分子的激发转移来抑制压力频移。由此得到的与氢分子的束内碰撞压力频移取决于原子速度，但对于此处相关的速度（<1000m/s），至多为 -1赫兹。另一方面，由室温氢分子背景气体引起的压力频移在1000 m/s 以下基本与速度无关，且至多为 -11赫兹（假设背景气体完全由氢分子组成）。在这两种情况下，范德瓦耳斯相互作用的贡献均大于分子四极电场的贡献。

同样（与 [23] 类似），我们估算背景气体中水造成的压力频移，因为水分子的偶极矩会与氢原子产生相对远程且强烈的相互作用。对于光谱区内估算的水分压（7×10^{-8}mbar），我们发现压力频移至多为 -3赫兹。

根据这些结果，我们在 $\nu_{1/2}$ 和 $\nu_{3/2}$ 中纳入 0.02千赫兹的不确定度（假设两个跃迁之间完全相关），以考虑 2S能级-6P能级$_{1/2}$ 和 2S能级-6P能级$_{3/2}$ 跃迁的压力频移。

2.5 采样偏差

采样偏差，即提取出的共振频率取决于所选谱线采样方式的现象，可能在用于拟合实验线型（并据此提取共振频率）的线型模型与实验线型不完全匹配时出现。本研究中正是如此：我们用于拟合的沃伊特和沃伊特双峰线型模型未纳入非高斯（或非洛伦兹）展宽及饱和效应；这些效应关于谱线中心呈对称分布。此外，模型也未纳入光力频移和量子干涉造成的不对称性，而这些因素在实验中均存在。线型拟合与实验数据之间的对称偏离和非对称偏离，在（平均后的）拟合残差中都清晰可见（见扩展数据图1），其中对称偏离比非对称偏离更显著。另一方面，我们的模拟包含了上述所有效应。扩展数据图1显示，模拟与实验线型的吻合度更高：对模拟数据进行线型拟合所得的残差，与对实验数据进行线型拟合所得的残差相似。

因此，为了估算采样偏差，我们使用模拟线型，并以与实验线型相同的方式进行采样和拟合。我们区分两种情况：一种是对称地围绕未扰动谱线中心（即不存在非对称偏离时的谱线中心）采样具有非对称偏离的线型；另一种是对具有通常同时包含非对称和对称偏离的线型进行采样，采样位置并非对称分布，而是偏离其未扰动谱线中心。由于我们将 LFS 和

QI频移的修正定义为对相应模拟进行拟合所得的共振频率，因此第一种情况已内在地包含在这些修正中。对于第二种情况，我们在模拟采样中施加频率偏移。所得偏差与频率偏移成线性关系，但符号相反（偏移为 $\lesssim 20$千赫兹时如此）；对于 LFS 模拟、QI模拟，以及采用简单模型（包含非高斯展宽和饱和，但不包含 LFS 或 QI不对称性）的模拟，偏差在 10 赫兹以内相同。因此，偏差主要由对称偏离导致，我们使用简单模型对其进行估算。我们根据中心激光频率与本研究确定的跃迁频率之差，求得每个数据组的平均频率偏移。平均频率偏移大多为正（这是由光谱激光频率漂移造成的），最大达到 15 千赫兹，而由此产生的偏差最大达到 -0.19千赫兹。总体而言，我们估算 2S能级-6P能级$_{1/2}$ 和 2S能级-6P能级$_{3/2}$ 跃迁的采样偏差分别为 -0.04千赫兹和 -0.08千赫兹。我们将这些估算值作为 $\nu_{1/2}$ 和 $\nu_{3/2}$ 的不确定度，并将其视为两个跃迁之间完全相关。

2.6 信号背景

我们在两个探测器上都观察到了信号背景 y_0，即当2S-6P光谱激光处于失谐状态时仍存在信号。对于不同的数据组，相对信号背景 y_0/A（其中 A 是光谱激光处于共振状态时高于背景的谱线振幅）介于3%至12%之间，并且大致与光谱激光功率成反比。对于不同的速度组，该信号背景大致保持不变；两个探测器的结果相同，并且在不同冷冻循环之间保持一致（因此原子束偏移角对准也一致）。我们认为，信号背景来源于亚稳态2S原子衰变时发射的莱曼-α 光子，因为只有当原子氢流入喷嘴且1S-2S制备激光器处于共振状态时才会出现该背景（不存在2S 原子时，探测器的暗计数率可以忽略不计）。

在直径为52毫米的2S-6P光谱区内，2S 原子通过双光子发射以8.2s^{-1}的速率自发衰变至1S基态，这一过程对观测到的信号背景没有显著贡献。这是因为，尽管衰变的2S 原子与被激发至6P能级的2S 原子之比，最高可达到所观测 y_0/A 值的50%（见 [1]的表5.1和表5.4），但所发射243纳米光子的探测效率比信号中的莱曼-ϵ光子低约四个数量级。

外部电场通过混合 2S 和 2P 能级，可导致 2S 原子发生单光子（Lyman-α）衰变或猝灭（Lyman-α 光子的探测效率比 Lyman-ϵ 光子低五倍）。然而，光谱区内观测到的杂散电场（强度低于 1V/m）所导致的单光子衰变率仅为 $3\times10^{-3}\,\mathrm{s}^{-1}$，远不足以解释信号背景。法拉第笼的孔径处可能存在更强的杂散电场，原子束从此处进入和离开光谱区，但我们尚未对光谱区外的杂散电场进行表征。

与邻近粒子的碰撞同样可能使 2S 原子猝灭，或使其偏转（偏转角为>0.1rad）并撞向光谱区内的表面，从而在撞击时猝灭。第 2.4 节讨论了与压力频移密切相关的碰撞伙伴及相关数值。我们估计，与 1S 原子和分子氢发生的束内碰撞分别只能解释信号背景的 0.4% 和 2%。我们发现，主要过程是室温背景气体中的氢分子所产生的四极电场导致的碰撞猝灭。然而，光谱区内的背景气体密度只能解释观测到的信号背景的 ≈10%。我们推测，信号背景的大部分源于 2S 原子离开光谱区、经由一根长 30 毫米的差分抽气管进入外部真空区时，迅速被分子氢猝灭（见 [1] 第 4.2 节）；外部真空区的背景气体压力是光谱区内的 30 倍，但同样以分子氢为主。

这一假设得到如下发现的支持：相对信号背景与背景气体压力呈线性关系。由于在喷嘴内冻结的分子氢比例强烈依赖温度，我们通过在 3.7 K 至 6 K 范围内改变喷嘴温度，观察到了这种线性关系。这使背景气体压力和相对信号背景改变了一个数量级以上（见 第4.5.2节）。

此外，鉴于水的背景压力预计不会随喷嘴温度发生显著变化，这项测试排除了水分子猝灭是信号背景主要来源的可能性。对于此处展示的数据集，喷嘴温度保持恒定，且背景气体压力变化不到15%（相对标准偏差）；我们发现相对信号背景与压力显著相关（$r = 0.50$ 和 $r = 0.29$ 分别对应光谱区和外部真空区）。相对信号背景与无多普勒跃迁频率 ν_e之间没有显著相关性。

该假说也与相对信号背景在各速度组上保持恒定相一致，因为背景气体粒子的速度始终远大于2S 原子的速度，从而导致相对速度近似恒定。在这种情况下，碰撞概率与原子在背景气体中停留的时间成正比，因而与 $1/v$成正比，其中 v为原子的速度。由于在我们的实验条件下，6P激发概率也近似按 $1/v$ 变化，因此相对信号背景与 v无关，即不同速度组的相对信号背景相同。

不随光谱学激光失谐保持恒定的信号背景可能会导致谱线位移。为约束此类位移，我们根据最大失谐量（$\Delta = \pm 50$兆赫）处的信号差来估计信号背景的线性斜率，其中计入了光力频移或QI频移所预期的任何信号差异。随后，我们从每次线扫描的信号中人为去除该线性斜率，并重新分析数据。总体而言，我们发现2S能级-6P能级$_{1/2}$ 和2S能级-6P能级$_{3/2}$ 跃迁的频移在统计上不显著，分别为 -40赫兹和 -30赫兹。我们将这些估计值作为$\nu_{1/2}$ 和$\nu_{3/2}$的不相关不确定度纳入。

2.7 激光系统与频率标准

测量中使用的两套激光系统——410 nm 的 2S-6P 光谱激光器和 243 nm 的 1S-2S 制备激光器——采用相似的设计。这两套系统都使用外腔二极管激光器（腔长为 $\sim$20cm，详见 [25]）作为种子激光器，分别工作在 820 nm 和 972 nm 的红外波段。激光器锁定到高精细度法布里-珀罗腔，实现相位稳定，从而将线宽降至几赫兹 [26]。这个窄载波上叠加着微弱但宽广（$\sim$1MHz）的噪声底座 [25, 26]。通过使用低噪声的掺铒光纤光学频率梳作为传递振荡器，在两台激光器之间产生拍频信号，以监测激光器的线宽和光谱纯度 [27, 28]。经锥形放大器进行功率放大后，光的频率经过倍频（分别倍频两次），使光谱激光器和制备激光器的波长分别达到 410 nm 和 243 nm。

光谱激光的噪声底座不对称性可能导致谱线位移。我们在测得的噪声底座中人为引入 10% 的不对称性，将其与 2S-6P线型进行数值卷积并拟合结果，从而得到 0.07千赫兹的上限 [25], 。我们将此上限作为完全相关的不确定度，计入 2S-6P$_{1/2}$ 和 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁。

频率梳用于将 2S-6P光谱激光器和 1S-2S制备激光器的光学频率与被动氢脉泽的微波频率进行比较（见 [1]第 4.8 节和 [29]第 3.2.3 节）。为此，使用以脉泽为参考的频率计数器，连续测量频率梳的重复频率和载波包络偏移频率，以及频率梳模式与激光器之间的拍频信号。反过来，使用全球导航卫星系统（GNSS）接收机，连续将氢脉泽的频率与铯频率标准进行比较，并计入引力红移；铯频率标准是国际单位制（SI）中赫兹单位的依据。此比较使 2S-6P$_{1/2}$ 和 2S-6P$_{3/2}$ 跃迁频率分别修正 0.02 千赫兹（2.5×10^{-14}）和 0.01千赫兹（1.9×10^{-14}）。比较（频率梳、氢脉泽与铯标准之间）的总分数频率不确定度估计为 1×10^{-14}，对应于两种跃迁各 7 赫兹（此处四舍五入为 0.01千赫兹，并假设完全相关）。

光谱学激光器和制备激光器的基频（红外）平均漂移分别为 5.4(2.9) 千赫兹/天和 2.6(2.7) 千赫兹/天（括号内为测量日之间的标准差）。记录单线扫描约需 1 分钟

，在此期间，原子跃迁频率处的漂移仅为 8 赫兹和 15赫兹，可以忽略不计。我们通过对频率计数器数据的 1 小时窗口进行线性拟合来确定激光频率，每个窗口的统计不确定度均低于 10 赫兹，因此与线型拟合的统计不确定度相比可以忽略不计。

2.8 反冲频移

能量和动量守恒要求，驱动频率为 ν 的原子跃迁的光子能量必须比相应的跃迁能量 $h\nu$ 大一个反冲频移。2S能级-6P能级$_{1/2}$ 和 2S能级-6P能级$_{3/2}$ 跃迁的反冲频移可写为

$$\Delta\nu_{\mathrm{rec}} = \frac{h}{2m_{\mathrm{H}}}\left(\frac{\nu}{c}\right)^2 \approx 1176.03\,\mathrm{kHz}, \tag{3}$$

跃迁频率 ν 对于这两种跃迁，在所需精度范围内完全相同，且其不确定度远低于此处所需的水平。同样，氢原子的质量可通过 $m_{\mathrm{H}} \approx m_{\mathrm{e}}(m_{\mathrm{p}}/m_{\mathrm{e}} + 1 + \alpha^2/2)$求得，其中 m_{e} 为电子质量，精度足够高。波前曲率和古伊相位 [30]对 $\Delta\nu_{\mathrm{rec}}$ 的修正最多为 0.1 赫兹，因此在此处忽略不计。$\nu_{1/2}$ 和 $\nu_{3/2}$ 已通过减去 $\Delta\nu_{\mathrm{rec}}$进行了反冲频移修正。

参考文献

[1] Maisenbacher, L. 原子氢中 2S-nP 跃迁的精密光谱学。博士论文，慕尼黑路德维希-马克西米利安大学（2020年）。修订版，arXiv:2512.20543，doi:10.48550/arXiv.2512.20543[2] Haas, M. 等。包含交流斯塔克位移和电离的束缚双体库仑系统中的双光子激发动力学。《物理评论A》73，052501（2006年）。doi:10.1103/PhysRevA.73.052501[3] Wolfram Research, Inc. Mathematica，14.2 版。[4] Hairer, E.、Wanner, G. 和 Nørsett, S. P. 求解常微分方程：非刚性问题，第 2 版，施普林格计算数学丛书第 8 卷（施普林格，柏林、海德堡，1993年）。doi:10.1007/978-3-540-78862-1[5] Hairer, E. 和 Wanner, G. 求解常微分方程：刚性问题与微分代数问题，第 2 版，施普林格计算数学丛书第 14 卷（施普林格，柏林、海德堡，1996年）。doi:10.1007/978-3-642-05221-7[6] Horbatsch, M. 和 Hessels, E. A. 原子氢束缚态能量表。《物理评论A》93，022513（2016年）。doi:10.1103/PhysRevA.93.022513[7]Bethe, H. A. 和 Salpeter, E. E.《单电子与双电子原子的量子力学》（施普林格，1957年）。doi:10.1007/978-3-662-12869-5[8] Wiese, W. L. 和 Fuhr, J. R. 氢、氦和锂的高精度原子跃迁概率。《物理与化学参考数据杂志》38，565–720（2009年）。doi:10.1063/1.3077727[9] Horbatsch, M. 和 Hessels, E. A. 远处邻近共振引起的位移。《物理评论A》82，052519（2010年）。doi:10.1103/PhysRevA.82.052519[10] Udem, Th. 等。宽偶极允许跃迁的量子干涉谱线位移。《物理学年鉴》531，1900044（2019年）。doi:10.1002/andp.201900044[11] Beyer, A. 等。由原子氢测得的里德伯常数和质子大小。《科学》358，79–85（2017年）。doi:10.1126/science.aah6677[12]Mølmer, K.、Castin, Y. 和 Dalibard, J. 量子光学中的蒙特卡罗波函数方法。《美国光学学会杂志B》10，524–538（1993年）。doi:10.1364/JOSAB.10.000524[13]Fleischhauer, M. 和 Marangos, J. P. 电磁感应透明：相干介质中的光学。《现代物理评论》77，633–673（2005年）。doi:10.1103/RevModPhys.77.633[14] Farley, J. W. 和 Wing, W. H. 精确计算黑体辐射引起的里德伯能级动态斯塔克位移和布居耗散率：氢、氦和碱金属原子。《物理评论A》23，2397–2424（1981年）。doi:10.1103/PhysRevA.23.2397[15]Wirthl, V. 等。改进型有源光纤式回射器，配有强度稳定和近紫外偏振监测器。《光学快报》29，7024–7048（2021年）。doi:10.1364/OE.417455

[16] Wirthl, V. 等. 具有强度稳定和偏振监测器的近紫外有源光纤式回射器的改进：勘误。《光学快报》30, 7340–7341（2022年）。doi:10.1364/OE.454374[17]Matveev, A., Kolachevsky, N., Adhikari, C. M. & Jentschura, U. D. 高精度氢光谱学中的压力频移：II. 碰撞近似与蒙特卡洛模拟。《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》52, 075006（2019年）。doi:10.1088/1361-6455/ab08e1-1[18] Jentschura, U. D. & Adhikari, C. M. 氢的长程相互作用：6P-1S和6P-2S体系。《Atoms》5, 48（2017年）。doi:10.3390/atoms5040048[19] Jentschura, U. D., Adhikari, C. M., Dawes, R., Matveev, A. & Kolachevsky, N. 高精度氢光谱学中的压力频移：I. 原子-原子和原子-分子的长程相互作用。《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》52, 075005（2019年）。doi:10.1088/1361-6455/ab08cc-1[20] Sobel'man, I. I., Vainshtein, L. A. & Yukov, E. A.《原子激发与谱线展宽》第2版。施普林格原子、光学与等离子体物理丛书（施普林格，柏林、海德堡，1995年）。doi:10.1007/978-3-642-57825-0[21] Poll, J. D. & Wolniewicz, L. H_2 分子的四极矩。《化学物理学杂志》68, 3053–3058（1978年）。doi:10.1063/1.436171[22] Victor, G. A. & Dalgarno, A. 分子氢的偶极性质。《化学物理学杂志》50, 2535–2539（1969年）。doi:10.1063/1.1671412[23] Brandt, A. D. 等. 氢中$2S^{1/2}$-$8D^{5/2}$ 跃迁的测量。《物理评论快报》128, 023001（2022年）。doi:10.1103/PhysRevLett.128.023001[24] Slocomb, C. A., Miller, W. H. & Schaefer, H. F. 亚稳态氢原子的碰撞猝灭。《化学物理学杂志》55, 926–932（1971年）。doi:10.1063/1.1676163[25] Kolachevsky, N. 等. 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, 4299–4301（2011年）。doi:10.1364/OL.36.004299[26] Alnis, J., Matveev, A., Kolachevsky, N., Udem, Th. & Hänsch, T. W. 通过稳定至振动与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年）。doi:10.1103/PhysRevA.77.053809[27] Holzwarth, R. 等. 用于精密光谱学的光学频率合成器。《物理评论快报》85, 2264–2267（2000年）。doi:10.1103/PhysRevLett.85.2264[28] Giunta, M. 等. 在小数点后第20位实现宽带光学频率测量的实时相位跟踪。《自然·光子学》14, 44–49（2020年）。doi:10.1038/s41566-019-0520-5[29] Wirthl, V.《原子氘中2S-6P跃迁的精密光谱学》。博士论文，慕尼黑路德维希-马克西米利安大学（2022年）。doi:10.5282/edoc.31589[30] Bade, S., Lionel Djadaojee, Manuel Andia, Pierre Cladé & Saïda Guellati-Khelifa. 畸变光场中的额外光子反冲观测。《物理评论快报》121（2018年）。doi:10.1103/PhysRevLett.121.073603