

量子真空计量标准中的非极性稀薄气体折射率测量研究

范栋 习振华 贾文杰 成永军 李得天

Refractive index measurement of nonpolar rarefied gas in quantum vacuum metrology standard

Fan Dong Xi Zhen-Hua Jia Wen-Jie Cheng Yong-Jun Li De-Tian

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 040602 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20201442

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201442>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于气体折射率方法的真空计量

Vacuum metrology based on refractive index of gas

物理学报. 2020, 69(15): 150601 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200706>

基于十字连通形环形谐振腔金属-介质-金属波导的折射率传感器和滤波器

Refractive index sensor and filter of metal-insulator-metal waveguide based on ring resonator embedded by cross structure

物理学报. 2018, 67(19): 197301 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180758>

Fabry-Perot腔与光学参量放大复合系统中实现可调谐的非常规光子阻塞

Tunable unconventional phonon blockade in Fabry-Perot cavity and optical parametric amplifier composite system

物理学报. 2019, 68(12): 124203 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190154>

具有内参考热补偿功能的三层膜结构微球腔折射率传感器

Triple-layer-coated microspheres for refractive index sensor with internally referenced self-compensated thermal effect

物理学报. 2020, 69(1): 014203 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191265>

基于向日葵型圆形光子晶体的高灵敏度太赫兹折射率传感器

High sensitivity terahertz refractive index sensor based on sunflower-shaped circular photonic crystal

物理学报. 2019, 68(20): 207801 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191024>

等效零折射率材料微腔中均匀化腔场作用下的简正模劈裂现象

Normal-mode splitting induced by homogeneous electromagnetic fields in cavities filled with effective zero-index metamaterials

物理学报. 2018, 67(2): 024210 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20171880>

量子真空计量标准中的非极性稀薄 气体折射率测量研究^{*}

范栋 习振华 贾文杰 成永军 李得天[†]

(兰州空间技术物理研究所真空技术与物理重点实验室, 兰州 730000)

(2020 年 8 月 31 日收到; 2020 年 10 月 20 日收到修改稿)

为进一步提高真空量值的复现性和准确性, 最新研究采用量子技术实现对真空量值的测量与表征. 该方法利用 Fabry-Perot 谐振腔实现腔内气体折射率的精密测量, 并反演出气体密度, 进而获得对应的真空量值, 其中气体折射率的测量是影响真空量值准确性的关键. 本文基于第一性原理, 利用从头计算理论计算了在已知压力和温度条件下的氦气折射率, 给出腔内气体压力与折射率关系的表达式, 并利用基于 Fabry-Perot 激光谐振腔的真空测量装置, 通过双腔谐振激光拍频精确测量了充气前后谐振激光频率的变化, 测出了氦气折射率, 并分析了测量不确定度. 将理论计算值与实验测量值进行了对比分析, 得出了制约准确度提高的主要因素, 并提出了修正方法.

关键词: 真空计量, Fabry-Perot 谐振腔, 气体折射率, 氦气渗透率

PACS: 06.20.-f, 42.62.-b, 31.15.A-

DOI: 10.7498/aps.70.20201442

1 引言

2018 年, 国际单位制 (International System of Units, SI) 中 7 个基本量全部由物理常数定义^[1]. 面对国际计量体系的历史性变革, 诸多计量参数对应的基于经典物理学的实物标准向“自然标准”即量子标准发展, 利用量子跃迁等现象复现计量单位, 用相同装置实现任何时间、任何地点量值复现, 消除宏观参数不稳定产生的影响, 将准确度提高数个量级. 目前, 时间、长度、电学等方面的量子基准已逐步建立. 与此同时, 采用光学干涉、冷原子碰撞损失、吸收光谱等基于物质本征物理性质复现真空量值的新方法、新概念具备突破传统技术性能极限的应用潜力, 可在多个地点及不同时间复现真空量值, 已成为国际上新的研究热点^[2]. 其中, 基于 Fabry-Perot (F-P) 激光谐振腔测量非极性稀薄气

体折射率, 进而反演真空度的测量方法为替代水银压力计——真空量值基准提供了可能. 该方法在减小测量不确定度的同时, 可实现真空量值的扁平化传递, 为真空量值提供了新的溯源途径^[3-5]. 近年来, 美国国家标准与技术研究院 (NIST)、瑞典于默奥大学 (Umeå universitet) 和日本国家先进工业与技术研究 (AIST) 等对基于 F-P 激光谐振腔测量折射率反演真空度的真空测量技术进行了研究^[6-9], 该技术主要面临的挑战是由于温度和充气导致谐振腔腔长变化, 从而影响折射率的测量准确度^[10]. 国内此类研究尚属起步阶段^[11,12].

量子动力学将非极性气体宏观介电常数与原子微观极化参数相联系. 近年来, 量子力学关于单原子分子 (氦气、氩气等) 电磁学性质和热力学性质从头计算 (ab initio) 理论及方法的迅速发展, 相关参数的计算精度不断提高 (例如, He 的摩尔极化率理论计算相对不确定度达到 2×10^{-7}), 可进

^{*} 国家自然科学基金 (批准号: 62071209) 资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: lidetian@hotmail.com

一步减小上述方法的测量不确定度^[13–20].

本文采用基于 F-P 激光谐振腔的真空测量装置开展非极性稀薄氦气折射率反演真空量值研究, 对比理论计算折射率与测量折射率, 并评定各不确定度分量及权重系数, 分析制约准确度提高的主要因素并提出修正方法.

2 折射率理论计算

氦气是除氢气以外最简单的气体原子, 因此其微观物理参量可以达到最高精度的计算. 在折射率理论值的计算过程中, 首先对氦原子的摩尔极化率、摩尔磁化率、第二维里系数和第二介电维里系数进行计算. 原子极化率可以写为波长的展开式:

$$\alpha(\lambda) = A_0 + A_2\lambda^{-2} + A_4\lambda^{-4} + A_6\lambda^{-6} + O(\lambda)^{-8}, \quad (1)$$

式中, λ 为激光波长 (单位为 Å), α 为原子极化率 (原子单位制), A_0 为静极化率, A_k ($k = 2, 4, 6$) 为极化率色散系数, 其值如表 1 所示.

表 1 He 极化率的展开系数 (原子单位制)^[17]

Table 1. Coefficients in the expansion of the polarizability of Helium.

系数	值
A_0	1.3837295330(1)
A_2	$3.2036661813(3) \times 10^5$
A_4	$8.803569264(2) \times 10^{10}$
A_6	$2.6219915496(7) \times 10^{16}$

在激光波长 $\lambda = 780 \text{ nm}$ 时, 计算得出 He 极化率 $\alpha(780 \text{ nm}) = 2.0583140283 \times 10^{-25} \text{ cm}^3$. 由于原子磁化率 χ 比原子极化率 α 小 5 个数量级, 因此可忽略 χ 的色散修正, 只需考虑其静态成分, 静态磁化率 $\chi = -3.14062677086 \times 10^{-30} \text{ cm}^3$ ^[21]. 为使气体密度以 mol/cm^3 为单位, 需将 α 和 χ 转化为摩尔极化率 $A_\epsilon = 4\pi N_A \alpha / 3$ 和摩尔磁化率 $A_\mu = 4\pi N_A \chi / 3$, 其中, N_A 为阿伏伽德罗常数. 经计算, $A_\epsilon = 0.5192196805 \text{ cm}^3/\text{mol}$, $A_\mu = -0.0000079224 \text{ cm}^3/\text{mol}$.

根据 Bich^[19] 和 Rizzo^[20] 公布的各温度点下第二维里系数和第二介电维里系数的值, 对其进行拟合, 在 250—350 K 温度范围内, 得出第二维里系数 $B(T)$ 和第二介电维里系数 $B_\epsilon(T)$ 关于温度的线性表达式:

$$B(T) = 13.03972 - 0.00408T, \quad (2)$$

$$B_\epsilon(T) = 1.93 \times 10^{-2} - 1.145 \times 10^{-4}T, \quad (3)$$

式中 T 为温度. 在温度 $T = 299.1485 \text{ K}$ 时, 可得 $B(T) = 11.818 \text{ cm}^3/\text{mol}$, $B_\epsilon(T) = -0.053 \text{ cm}^6/\text{mol}^2$.

气体压力 (单位为 Pa) 和密度 (单位为 mol/m^3) 的关系可通过维里状态方程来表示:

$$p = N_A k_B T [\rho + B(T) \rho^2 + O(\rho)^3], \quad (4)$$

式中, p 为气体压力, N_A 为阿伏伽德罗常数, k_B 为玻尔兹曼常数, T 为温度, ρ 为气体密度, $B(T)$ 为第二维里系数.

可通过 Lorentz-Lorenz 方程建立气体密度与折射率的联系, 用摩尔极化率、摩尔磁化率 (以 cm^3/mol 为单位) 及第二介电维里系数表示气体密度 (以 mol/cm^3 为单位), 有:

$$\rho = \frac{2(n-1)}{3(A_\epsilon + A)} - \frac{4B_\epsilon(T) + A_\epsilon^2 + A_\mu^2 + 6A_\epsilon A_\mu}{9(A_\epsilon + A_\mu)^3} (n-1)^2, \quad (5)$$

式中, ρ 为气体密度, n 为气体折射率, A_ϵ 为摩尔极化率, A_μ 为摩尔磁化率, $B_\epsilon(T)$ 为第二介电维里系数.

结合 (4) 式和 (5) 式, 可得到压力与折射率的关系:

$$p = c_1 \cdot (n-1) + c_2 \cdot (n-1)^2 + c_3 \cdot (n-1)^3 + c_4 \cdot (n-1)^4 + O((n-1)^5). \quad (6)$$

(6) 式中, 各项系数表达式分别为:

$$c_1 = \frac{2 \times 10^6 N_A k_B T}{3(A_\epsilon + A_\mu)}, \quad (7)$$

$$c_2 = \frac{10^6 N_A k_B T}{9(A_\epsilon + A_\mu)^3} \left(-A_\epsilon^2 - A_\mu^2 - 4B_\epsilon(T) - 6A_\epsilon A_\mu + 4B(T) A_\epsilon + 4B(T) A_\mu \right), \quad (8)$$

$$c_3 = \frac{4 \times 10^6 N_A k_B T B(T)}{27(A_\epsilon + A_\mu)^4} \left(-A_\epsilon^2 - A_\mu^2 - 4B_\epsilon(T) - 6A_\epsilon A_\mu \right), \quad (9)$$

$$c_4 = \frac{10^6 N_A k_B T B(T)}{81(A_\epsilon + A_\mu)^6} \left(A_\epsilon^2 + A_\mu^2 + 4B_\epsilon(T) + 6A_\epsilon A_\mu \right)^2, \quad (10)$$

式中, $N_A = 6.02214076 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$, $k_B = 1.380649 \times 10^{-23} \text{ J/K}$, $T = 299.1485 \text{ K}$. 计算得出, $c_1 = 3.19363 \times 10^9$; $c_2 = 4.83514 \times 10^{10}$; $c_3 = -3.32951 \times$

10^9 ; $c_4 = 5.71882 \times 10^7$. 在 $p = 100166$ Pa 时, 第二项分别比第三项和第四项高 5 和 7 个数量级, 因此在计算折射率时, 可忽略第三项和第四项. 则反写 (6) 式可得出折射率关于压力的简化表达式:

$$n - 1 = \frac{\sqrt{c_1^2 + 4c_2p} - c_1}{2c_2}, \quad (11)$$

根据 (11) 式, 即可通过 A_ϵ 、 A_μ 、 $B_\epsilon(T)$ 、 $B(T)$ 以及压力和温度计算出氦气折射率, 其结果如表 2 所示.

根据表 2 所示的结果, 对折射率计算不确定度进行分析. (6) 式中, 由于摩尔极化率比摩尔磁化率高 5 个数量级, 且在 $p = 100166$ Pa 时, 第一项比第二项高 4 个数量级, 因此可忽略折射率非线性高阶项和摩尔磁化率对折射率计算不确定度的影响. 则 (6) 式可简化为折射率 n 的计算表达式:

$$n = 1 + \frac{3pA_\epsilon}{2 \times 10^6 N_A k_B T}, \quad (12)$$

式中, p 为已知气压值.

(12) 式中, A_ϵ 的相对不确定度 $u_{r, A_\epsilon} = 2 \times 10^{-7}$, 修正后的 SI 中, k_B 和 N_A 没有不确定度 [22], 折射率计算的相对不确定度为 u_{r, n_1} . 经分析可知, 当压力点为 10^5 Pa 时, 其折射率计算不确定度最大, 随着气压降低, 不确定度逐渐减小, 因此选取不确定度最大的点作为不确定度评定点. 真空度 $p = 100166$ Pa 时, 利用 (13) 式进行折射率计算不确定度分析:

$$u_{c, n_1} = \frac{\partial n}{\partial A_\epsilon} u_{c, A_\epsilon}, \quad (13)$$

式中, u_{c, n_1} 为折射率理论值 n 的标准不确定度, u_{c, A_ϵ} 为摩尔极化率的标准不确定度.

分析得出, 折射率理论值 n 的相对不确定度 $u_{r, n_1} = 6.27 \times 10^{-12}$.

3 实验原理与方法

3.1 实验装置与原理

本文所用实验装置结构如图 1 所示, 探测激光器为两个中心波长为 780 nm 的外腔室式半导体激光器 (ECDL, TOPTICA, DL pro). 腔体材料为超低热膨胀玻璃 (ULE), 采用双腔结构. 通过调节透镜组进行模式匹配, 之后使用信号发生器 (RIGOL, DG4102) 发出的正弦同步信号对电光调制器 (EOM, THORLIBS, CRDS) 进行相位调制, 使透射信号出现边带. 然后利用信号发生器产生的同频信号和腔内反射信号混频产生误差信号, 通过误差信号利用 PDH (Pound Drever Hall) 锁频装置将激光锁定在腔纵模上, 并利用频率计 (KEYSIGHT, 53220A) 测量两组激光的拍频. 真空泵组包括机械泵 (Leybold, SCROLLVAC)、分子泵 (Leybold, TURBOVAC) 和离子泵 (Gamma Vacuum, TiTan Ion Pump), 先用机械泵抽气实现粗真空, 再同时打开分子泵进一步抽气提高真空度, 当抽气至所需真空度时, 打开离子泵进行真空度维持. 气瓶后连接一个液氮冷阱, 可去除杂气, 气体通过微漏阀控制流速进入腔体, 腔体外部连接电容薄膜真空计 (INFICON Cube CDGSci) 以检测充气压力.

表 2 折射率计算结果
Table 2. Calculation results of refractive index.

序号	真空度 p /Pa	折射率 $n - 1$	序号	真空度 p /Pa	折射率 $n - 1$
1	101	3.17726×10^{-8}	13	4015	1.25716×10^{-6}
2	201	6.29408×10^{-8}	14	7031	2.20149×10^{-6}
3	301	9.42498×10^{-8}	15	10036	3.14235×10^{-6}
4	402	1.25916×10^{-7}	16	20086	6.28879×10^{-6}
5	500	1.56736×10^{-7}	17	30252	9.47123×10^{-6}
6	601	1.88312×10^{-7}	18	40070	1.25445×10^{-5}
7	701	2.19523×10^{-7}	19	50035	1.56690×10^{-5}
8	804	2.51819×10^{-7}	20	60098	1.88127×10^{-5}
9	901	2.82417×10^{-7}	21	70122	2.19495×10^{-5}
10	1075	3.36856×10^{-7}	22	80111	2.50751×10^{-5}
11	2020	6.32721×10^{-7}	23	90131	2.82100×10^{-5}
12	3012	9.43113×10^{-7}	24	100166	3.13494×10^{-5}

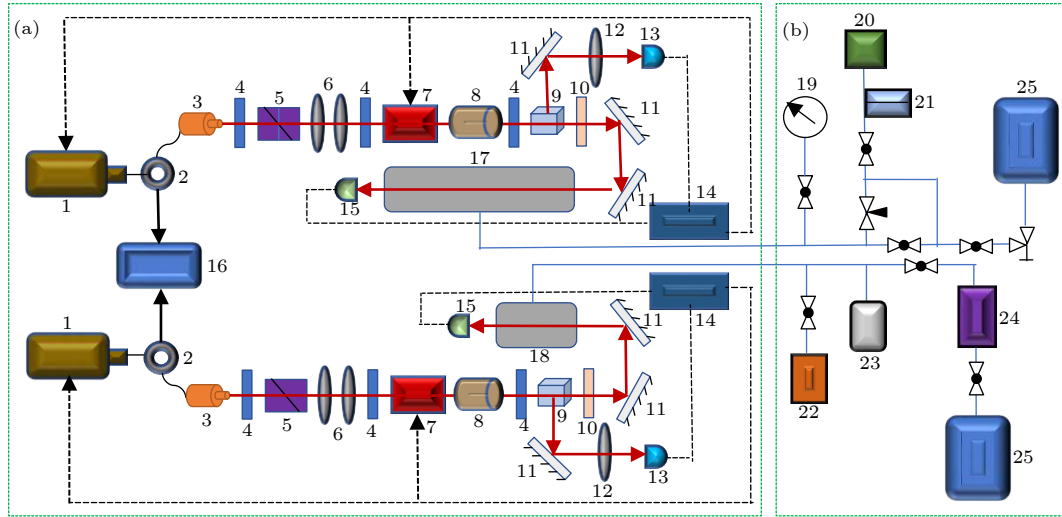


图 1 基于 F-P 激光谐振腔的真空测量装置结构图 (a) 部分为光路图; (b) 部分为气路图 (1. 激光器; 2. 分束光纤; 3. 激光准直器; 4. $1/2$ 波片; 5. 格兰棱镜; 6. 透镜组; 7. 电光调制器; 8. 光隔离器; 9. 偏振分光棱镜; 10. $1/4$ 波片; 11. 高反镜; 12. 透镜; 13. 光电放大探测器; 14. PDH 锁频装置; 15. 光电探测器; 16. 频率计; 17. 检测腔; 18. 参考腔; 19. 电容薄膜真空计; 20. 气瓶; 21. 冷阱; 22. 离子泵; 23. 电离规; 24. 分子泵; 25. 机械泵. 红色实线为光路; 黑色实线为光纤; 黑色虚线表示反馈作用; 蓝色实线为气路.)

Fig. 1. Structure diagram of vacuum measuring device based on F-P cavity.

激光锁定在 F-P 腔纵模上时, 腔内激光谐振频率可表示为

$$\nu = \frac{qc}{2nL_0}, \quad (14)$$

式中, q 为整数, c 为真空中的光速, n 为气体折射率, L_0 为谐振腔长度.

将充气前后的谐振腔内频率值代入 (14) 式求差, 即可推导出绝对气体折射率 n 的表达式:

$$n - 1 = \frac{\Delta\nu_{\text{cm}}}{\nu_f}, \quad (15)$$

式中, $\Delta\nu_{\text{cm}}$ 为腔内谐振激光频率的变化, ν_f 为检测腔内谐振激光末态频率.

考虑到充气过程中激光纵模模数变化和气体压力对腔体长度的影响, (15) 式可写为

$$n - 1 = \frac{\nu_i - \nu_f + \Delta m \cdot \nu_{\text{FSR}}}{\nu_f} - n \frac{L_f(p) - L_i}{L_i}, \quad (16)$$

式中, ν_i 为检测腔谐振激光初态频率, ν_f 为检测腔谐振激光末态频率, Δm 为检测腔内谐振激光纵模模数变化量, ν_{FSR} 是自由光谱范围, $L_f(p)$ 为充气后腔体实际物理长度, L_i 为充气前腔体物理长度.

(16) 式中第二项长度变化因子 $L_f(p)$ 和 L_i 主要是由于充气后气体压力导致的腔长变化:

$$n \frac{L_f(p) - L_i}{L_i} \approx \frac{\Delta L}{L} = \frac{\Delta p}{3K}, \quad (17)$$

式中, Δp 为腔内气压变化量, K 为 ULE 材料的体

积模量.

在腔体高真空 ($n = 1$) 状态下测量谐振激光初态频率 ν_i , 腔体中充入一定压力的氦气时测量谐振激光末态频率 ν_f , 即可得到充气压力点下的频率差 $\Delta\nu_{\text{cm}}$, 最后代入 (16) 式计算出每个频率差对应的气体压力.

3.2 折射率测量方法

为准确测量谐振腔内气体折射率, 利用 PDH 锁频模块将激光频率锁定在谐振腔内, 并通过 SRS 温度监测模块及 Pt100 铂电阻将谐振腔内温度控制在 ULE 材料的零膨胀温度点 299.1485 K. 首先将检测腔和参考腔分别抽气至 10^{-5} Pa, 并测量初态拍频和检测腔内谐振激光初态频率; 其后将检测腔充气至各压力点, 并测量末态拍频和检测腔内谐振激光末态频率. 则结合 (16) 式和 (17) 式可得出折射率计算表达式:

$$n - 1 = \frac{\nu_{\text{beatf}} - \nu_{\text{beatf}} + \Delta m \cdot \nu_{\text{FSR}}}{\nu_f + \nu_{\text{beatf}}} - \frac{\Delta p}{3K}, \quad (18)$$

式中, ν_f 为参考激光频率, ν_{beatf} 为充气前两束激光拍频, ν_{beatf} 为充气后两束激光拍频.

利用 (18) 式得到折射率测量结果如表 3 所示.

根据表 3 所示的结果, 对折射率测量不确定度进行评定分析. 由于 (18) 式中, 分量 $-\frac{\Delta p}{3K}$ 的不确定度量级为 10^{-15} , 故可以忽略不计. 经分析后发现

表 3 折射率测量结果
Table 3. Text results of refractive index.

序号	真空度 p/Pa	折射率 $n-1$	序号	真空度 p/Pa	折射率 $n-1$
1	101	3.93406×10^{-8}	13	4015	1.23185×10^{-6}
2	201	7.02328×10^{-8}	14	7031	1.69882×10^{-6}
3	301	1.01155×10^{-7}	15	10036	2.53943×10^{-6}
4	402	1.32115×10^{-7}	16	20086	5.48760×10^{-6}
5	500	1.61436×10^{-7}	17	30252	8.46879×10^{-6}
6	601	1.92653×10^{-7}	18	40070	1.13490×10^{-5}
7	701	2.24327×10^{-7}	19	50035	1.42741×10^{-5}
8	804	2.56659×10^{-7}	20	60098	1.72200×10^{-5}
9	901	2.87352×10^{-7}	21	70122	2.01575×10^{-5}
10	1075	3.32603×10^{-7}	22	80111	2.30841×10^{-5}
11	2020	6.27737×10^{-7}	23	90131	2.61473×10^{-5}
12	3012	9.38649×10^{-7}	24	100166	2.89609×10^{-5}

当测量压力点为 101.5 Pa 时, 气体折射率 $n-1 = 3.93406 \times 10^{-8}$, 其测量不确定度最大, 随着腔内气体压力增大, 其测量不确定度逐渐降低, 因此选取该点作为气体折射率测量不确定度评定点. 在折射率测量不确定度评定过程中, (18) 式可写为

$$n-1 = \frac{\Delta\nu_{\text{cm}}}{\nu_{\text{f}}} = \frac{\nu_{\text{beati}} - \nu_{\text{beatf}} + \Delta m \cdot \nu_{\text{FSR}}}{\nu_{\text{r}} + \nu_{\text{beatf}}}. \quad (19)$$

(19) 式中, 分子部分为充气前后检测腔谐振激

光频率变化量, 其相对不确定度为 $u_{\text{r},1}$, 分母部分为检测腔末态谐振激光频率, 其相对不确定度为 $u_{\text{r},2}$, 折射率测量不确定度为 u_{r,n_2} . 实验中, 参考激光频率 ν_{r} 和自由光谱范围 ν_{FSR} 用波长计测量, 其装置测量不确定度 $u_{\text{c,r}}$ 和 $u_{\text{c,FSR}}$ 均为 10^{-6} ; 初态拍频 ν_{beati} 和末态拍频 ν_{beatf} 用频率计测量, 其装置测量不确定度 $u_{\text{c,beati}}$ 和 $u_{\text{c,beatf}}$ 均为 10^{-6} ; 不确定度评定方法如下:

$$u_{\text{r},1} = \frac{\sqrt{\left(\frac{\partial \Delta\nu_{\text{cm}}}{\partial \nu_{\text{beati}}}\right)^2 (u_{\text{c,beati}})^2 + \left(\frac{\partial \Delta\nu_{\text{cm}}}{\partial \nu_{\text{beatf}}}\right)^2 (u_{\text{c,beatf}})^2 + \left(\frac{\partial \Delta\nu_{\text{cm}}}{\partial \nu_{\text{FSR}}}\right)^2 (u_{\text{c,FSR}})^2}}{\nu_{\text{beati}} - \nu_{\text{beatf}} + \Delta m \cdot \nu_{\text{FSR}}}, \quad (20)$$

$$u_{\text{r},2} = \frac{\sqrt{\left(\frac{\partial \nu_{\text{r}}}{\partial \nu_{\text{r}}}\right)^2 (u_{\text{c,r}})^2 + \left(\frac{\partial \nu_{\text{r}}}{\partial \nu_{\text{beatf}}}\right)^2 (u_{\text{c,beatf}})^2}}{\nu_{\text{r}} + \nu_{\text{beatf}}}. \quad (21)$$

(19) 式中各项参数的数值分别为: $\nu_{\text{FSR}} = 1497.9916 \text{ MHz}$; $\Delta m = 0$; $\nu_{\text{r}} = 384366590 \text{ MHz}$; $\nu_{\text{beati}} = 1420 \text{ MHz}$; $\nu_{\text{beatf}} = 1434, 74 \text{ MHz}$. 经评定, 分子部分的测量不确定度 $u_{\text{r},1} = 9.59 \times 10^{-8}$, 分母部分的测量不确定度 $u_{\text{r},2} = 3.68 \times 10^{-15}$, 各分量相互独立且不相关, 由 (22) 式:

$$u_{\text{r},n_2} = \sqrt{(u_{\text{r},1})^2 + (u_{\text{r},2})^2} \quad (22)$$

可计算出当气体压强为 101.5 Pa 时, 其折射率测量不确定度 $u_{\text{r},n_2} = 9.59 \times 10^{-8}$.

4 分析与讨论

结合第 2 节和第 3 节得到的折射率理论和测量结果, 对折射率与检测腔内真空度之间关系进行对比分析, 其结果如图 2 所示.

图 2(a) 显示腔内氦气压力在 10^2 — 10^3 Pa 范围内, 氦气的折射率测量值大于理论值, 其主要原因是腔体材料中有余氦, 在腔内气压较低时, 腔体对氦的吸气速率小于放气速率, 因此由氦气脱附引起腔内氦气量增多, 导致了折射率测量值偏大, 这验证了 ULE 材料存在渗氦现象 [23]. 图 2(b) 显示腔内氦气压力在 10^3 Pa 附近时, 氦气折射率测量值开始小于理论值, 并且随着腔内气压增大, 氦气折射率测量值与理论值偏差也逐渐增大 (偏差值从 4.25267×10^{-9} 到 2.38851×10^{-6}), 其主要原因是

随着氦气压力增大,腔体渗氦量增加,并且渗氦和返氦速率均增大,但腔体对氦的吸气速率大于放气速率,导致折射率偏差逐渐增大.图 2(c) 显示腔内压力在 10^2 — 10^5 Pa 范围内,氦气折射率理论值与测量值偏差随腔内气压的总体变化情况.

分析表明,在利用基于 F-P 激光谐振腔的真空测量装置测量氦气折射率实现新的真空标准中,

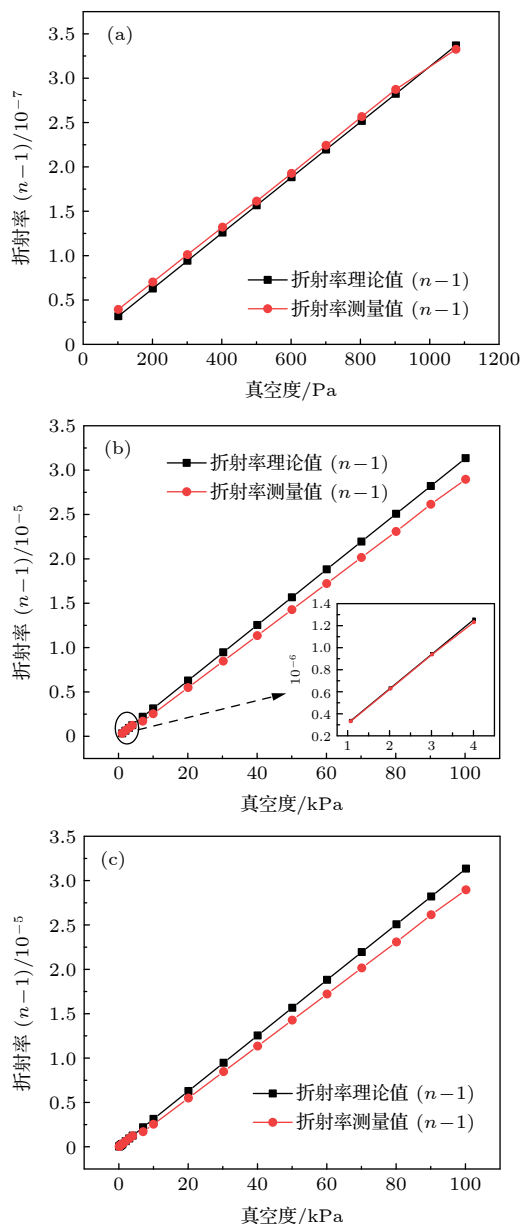


图 2 (a) 10^2 — 10^3 Pa 范围内折射率理论值与测量值对比图; (b) 10^3 — 10^5 Pa 范围内折射率理论值与测量值对比图; (c) 10^2 — 10^5 Pa 范围内折射率理论值与测量值总对比图

Fig. 2. (a) Comparison between theoretical and measured values of refractive index in the range of 10^2 — 10^3 Pa; (b) comparison between theoretical and measured values of refractive index in the range of 10^3 — 10^4 Pa; (c) total comparison between theoretical and measured values of refractive index in the range of 10^2 — 10^5 Pa.

由于 ULE 材料渗氦导致腔体长度变化对折射率测量不确定度的影响较大.为降低此影响,需对测量结果引入必要的腔长修正.由于折射率测量不确定度在 10^{-8} 量级,此量级下无法根据已知的 ULE 材料特性计算出充气前后腔长的变化,所以可利用氦气折射率的理论计算值来量化由渗氦所致腔体形变导致的测量折射率偏差.充气后,谐振腔实际物理长度为

$$L_f(p) = L_i + \Delta L_G(p) + \Delta L_{He}(p), \quad (23)$$

式中, $L_f(p)$ 为充气后腔体实际物理长度, L_i 为充气前腔体物理长度, $\Delta L_G(p)$ 为气体压力导致的腔长变化量, $\Delta L_{He}(p)$ 为腔体渗氦导致的腔长变化量. $L_f(p)$, $\Delta L_G(p)$, $\Delta L_{He}(p)$ 是压力的函数.

将 (23) 式代入 (14) 式和 (16) 式得到加腔长修正后的折射率表达式:

$$n - 1 = \frac{\Delta \nu_{cm}}{\nu_f} - \frac{\Delta p}{3K} + \varphi(p), \quad (24)$$

式中, $\Delta \nu_{cm}$ 为激光谐振频率变化量, $\varphi(p)$ 为与腔体渗氦相关的折射率修正系数:

$$\Delta \nu_{cm} = \nu_i - \nu_f + \Delta m \cdot \nu_{FSR}, \quad (25)$$

$$\varphi(p) = (n - 1) - \frac{\Delta \nu_{cm}}{\nu_f} + \frac{\Delta p}{3K}. \quad (26)$$

根据本文得到的折射率理论值和计算值,即可计算出 10^3 — 10^5 Pa 真空度范围内本实验所用实验装置的折射率修正系数,如表 4 所示.

对表 4 中数据进行拟合,得到:在 1075—7031 Pa 压力范围内,折射率修正系数关于腔内气压的表达式为

$$\varphi(p) = 3.515 \times 10^{-10} \cdot e^{\frac{p}{968.05182}} + 1.23971 \times 10^{-9}; \quad (27)$$

在 7031—100166 Pa 压力范围内,折射率修正系数关于腔内气压的表达式为

$$\varphi(p) = 1.95025 \times 10^{-11} \cdot p + 4.03741 \times 10^{-7}. \quad (28)$$

为了进一步量化由气体压力导致的谐振腔腔长变化,可以推导出气体压力所致腔体相对变化量关于折射率的表达式.气体压力所致腔体形变量关于气体压力的表达式为

$$\Delta L_G(p) = \frac{L_i \Delta p}{3K}, \quad (29)$$

式中, L_i 为充气前腔体的物理长度, p 为气体压力, K 为 ULE 材料的体积模量.则气体压力所致腔体相对变化量 $\Delta \bar{L}_G(P)$ 为

表 4 折射率修正系数
Table 4. Refractive index correction coefficient.

序号	真空度 p/Pa	修正系数 $\varphi(p)$	序号	真空度 p/Pa	修正系数 $\varphi(p)$
1	1075	4.25267×10^{-9}	13	40070	1.19548×10^{-6}
2	2020	4.98394×10^{-9}	14	50053	1.39494×10^{-6}
3	3012	4.46381×10^{-9}	15	60098	1.59267×10^{-6}
4	4015	2.53114×10^{-8}	16	70122	1.79205×10^{-6}
5	7031	5.02669×10^{-7}	17	80111	1.99100×10^{-6}
6	10036	6.02924×10^{-7}	18	90131	2.06270×10^{-6}
7	20086	8.01189×10^{-7}	19	100166	2.38851×10^{-6}
8	30252	1.00244×10^{-6}			

$$\Delta \bar{L}_G(p) = \frac{\Delta L_G(p)}{L_i} = \frac{\Delta p}{3K}. \quad (30)$$

将 (30) 式代入 (4) 式和 (5) 式中的压力和密度的一阶线性项, 并忽略密度一阶表达式中摩尔磁化率的影响, 即可得到气体压力所致腔体相对变化量关于折射率的表达式:

$$\Delta \bar{L}_G(n-1) = \frac{2k_B N_A T}{9A_\epsilon K} (n-1). \quad (31)$$

令:

$$\varepsilon = \frac{2k_B N_A T}{9A_\epsilon K}, \quad (32)$$

式中, K 为 ULE 材料的体积模量.

则可得出, 充气后气体压力所致腔体相对变化量关于折射率的表达式为

$$\Delta \bar{L}_G(n-1) = \varepsilon \cdot (n-1), \quad (33)$$

式中, ε 是无量纲腔长修正参数, 在本实验条件下, 其值为 3.12×10^{-2} .

5 结 论

本文首先在压力和温度已知的情况下, 基于第一性原理利用摩尔极化率、摩尔极化率和维里系数等微观物理参量对氦气折射率理论值完成精确计算, 得出腔内气体压力与折射率关系的表达式并分析得出折射率理论值的相对不确定度为 6.27×10^{-12} . 其后利用基于 F-P 激光谐振腔的真空测量装置, 对 10^2 — 10^5 Pa 范围内的氦气折射率进行测量, 评定其测量不确定度为 9.59×10^{-8} . 最后对氦气折射率理论值和测量值对比分析, 得出氦气折射率测量不确定度的主要原因是由渗氦引起的谐振腔腔体形变, 因此解决渗氦问题是建立新的真空标

准的关键. 文中对氦气折射率测量中由腔体渗氦导致的腔长变化进行了修正, 得到 10^3 — 10^5 Pa 真空度范围内各压力点下的折射率修正系数及其关于腔内气压的表达式, 并进一步量化气体压力导致的腔长变化量, 得到气体压力所致腔体相对变化量与折射率的关系, 计算出腔长修正参数 $\varepsilon = 3.12 \times 10^{-2}$. 在以后利用 F-P 谐振腔的氦气折射率测量实验中, 可利用本文所给的各压力点下的折射率修正系数对折射率测量结果进行修正, 消除腔体渗氦对折射率测量的影响, 从而得到高准确度的气体压力. 随着量子力学关于单原子分子电磁学性质和热力学性质从头计算理论及方法的迅速发展, 相关参数计算精度提高, 将来可利用其他非极性气体 (如氖) 实现气体折射率至气体压力的精确反演, 降低由于气体扩散导致的折射率测量不确定度, 实现真空计量新标准.

参考文献

- [1] Gibney E 2017 *Nature* **550** 312
- [2] Li D T, Cheng Y J, Xi Z H 2018 *Journal of Astronautic Metrology and Measurement* **38** 1 (in Chinese) [李得天, 成永军, 习振华 2018 宇航计测技术 **38** 1]
- [3] Egan P F, Stone J A, Scherschligt J K, Harvey A H 2019 *J. Vac. Sci. Technol. A* **37** 031603
- [4] Silander I, Hausmaninger T, Zelan M, Axner O 2018 *J. Vac. Sci. Technol. A* **36** 03E105
- [5] Egan P F, Stone J A 2011 *Appl. Opt.* **50** 3076
- [6] Hendricks J H, Ricker J E, Stone J A, Egan P F, Scace G E, Strouse G F, Olson D A, Gerty D 2015 *XXI IMEKO World Congress "Measurement in Research and Industry"* Prague, Czech Republic, August 30–September 4, 2015 p1636
- [7] Egan P, Stone J, Ricker J, Hendricks J 2016 2016 *Conference on Precision Electromagnetic Measurements* Ottawa, Canada, July 10–15, 2016 p1
- [8] Zelan M, Silander I, Hausmaninger T, Axner O 2017 arXiv: 1704.01185

- [9] Takei Y, Arai K, Yoshida H 2020 *Measurement* **151** 107090
- [10] Axner O, Silander I, Hansmaninger T, Zelan M 2017 arXiv: 1704.01187
- [11] Jia W J, Xi Z H, Fan D, Dong M, Wu C Y, Cheng Y J 2020 *Acta Opt. Sin.* **40** 2212005 (in Chinese) [贾文杰, 习振华, 范栋, 董猛, 吴成耀, 成永军 2020 *光学学报* **40** 2212005]
- [12] Xu Y R, Liu Y Y, Wang J, Sun Y, Xi Z H, Li D T, Hu S M 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 15 (in Chinese) [许玉蓉, 刘洋洋, 王进, 孙羽, 习振华, 李得天, 胡水明 2020 *物理学报* **69** 15]
- [13] Bhatia A K, Drachman R J 1998 *Phys. Rev. A* **58** 4470
- [14] Hurly J J, Moldover M R 2000 *Res. Natl. Inst. Stand. Technol.* **105** 667
- [15] Koch H, Hättig C, Larsen H, Olsen J, Jorgensen P, Fernandez B, Rizzo A 1999 *J. Chem. Phys.* **111** 10108
- [16] Lach G, Jeziorski B, Szalewicz K 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 233001
- [17] Puchalski M, Piszczatowski K, Komasa J, Jeziorski B, Szalewicz K 2016 *Phys. Rev. A* **93** 032515
- [18] Cencek W, Drzybytek M, Komasa J, Mehl J B, Jeziorski B 2012 *J. Chem. Phys.* **136** 224303
- [19] Bich E, Hellmann R, Vogel E 2007 *Mol. Phys.* **105** 3035
- [20] Rizzo K A, Hättig C, Fernández B, Koch H 2002 *J. Chem. Phys.* **117** 2609
- [21] Bruch L W, Weinhold F 2002 *J. Chem. Phys.* **117** 3243
- [22] Mohr P J, Newell D B, Taylor B N, Tiesinga E 2018 *Metrologia* **55** 125
- [23] Acdiaj S, Yang Y C, Jousten K, Rubin T 2018 *J. Chem. Phys.* **148** 116101

Refractive index measurement of nonpolar rarefied gas in quantum vacuum metrology standard*

Fan Dong Xi Zhen-Hua Jia Wen-Jie Cheng Yong-Jun Li De-Tian[†]

(*Science and Technology on Vacuum Technology and Physics Laboratory, Lanzhou Institute of Physics, Lanzhou 730000, China*)

(Received 31 August 2020; revised manuscript received 20 October 2020)

Abstract

In the face of the historical change of international measurement system, the classical physics based physical standard corresponding to many measurement parameters develops toward "natural standard", namely quantum standard. In order to further improve the reproducibility and accuracy of vacuum value, the latest research uses quantum technology to realize the measurement and characterization of vacuum value. In this method, Fabry-Perot cavity is used to accurately measure the refractive index of the gas. The density can be calculated by the refractive index and inversed to obtain the corresponding vacuum value. The measurement of the gas refractive index is the key to the accuracy of the vacuum value. The macroscopic permittivity of nonpolar gases is related to the microscopic polarization parameters of atoms through quantum dynamics. In recent years, with the rapid development of ab initio theory and methods on the electromagnetic and thermodynamic properties of monatomic molecules, the calculation accuracy of relevant parameters was constantly improved, which can further reduce the measurement uncertainty of the above methods. In this paper, the theoretical value of helium refractive index is calculated accurately based on the first principle with known pressure and temperature. The relationship between gas pressure and refractive index is obtained, and the relative uncertainty of the theoretical value of refractive index is 6.27×10^{-12} . Then, the refractive index of helium in a range of 10^2 – 10^5 Pa is measured by the vacuum measuring device which is based on Fabry-Perot cavity, and the uncertainty of measurement is 9.59×10^{-8} . Finally, the discrepancy between the theoretical and measured values of helium refractive index is compared and analyzed. It can be concluded that the uncertainty of helium refractive index measurement originates from the deformation of the cavity caused by helium permeation. Therefore, solving the problem of helium permeation is the key to establishing a new vacuum standard. In this paper, the change of cavity length caused by helium penetration in the cavity is corrected. The refractive index coefficient is corrected at various pressure points in a vacuum range of 10^3 – 10^5 Pa, and its pressure-dependent expression is obtained. The variation of cavity length caused by gas pressure is further quantified. The relationship between the change of cavity caused by gas pressure and that caused by the refractive index is obtained. The correction parameter of cavity length is calculated to be 3.12×10^{-2} . In the future experiment of helium refractive index measurement by means of Fabry-Perot cavity, the refractive index correction coefficient at each pressure point given in this paper can be used to correct the refractive index measurement results, thereby eliminating the influence of helium penetration on the refractive index measurement, and obtaining the gas pressure with high accuracy.

Keywords: vacuum metrology, Fabry-Perot cavity, refractive index of gas, helium permeability

PACS: 06.20.-f, 42.62.-b, 31.15.A-

DOI: 10.7498/aps.70.20201442

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 62071209).

[†] Corresponding author. E-mail: lidetian@hotmail.com