

基于气体折射率方法的真空计量*

许玉蓉¹⁾ 刘洋洋¹⁾ 王进^{1)2)†} 孙羽¹⁾²⁾
习振华³⁾ 李得天³⁾ 胡水明¹⁾²⁾

1) (中国科学技术大学合肥微尺度物质科学国家研究中心, 合肥 230026)

2) (中国科学技术大学中国科学院量子信息与量子科技创新研究院, 合肥 230026)

3) (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5月12日收到; 2020年6月12日收到修改稿)

为保证测量系统的长期稳定性和复现性, 真空计量将使用气体密度来表征. 利用法布里-珀罗腔可实现对气体折射率的精密测量, 并反演得出气体密度. 这种基于光学方法的真空计量方法是将气体宏观介电常数与原子微观极化参数联系在一起, 由量子标准取代目前基于水银压力计的实物标准. 本文讨论了气体折射率至气体压力的反演过程, 并采用激光锁定法布里-珀罗腔的方法测定稀薄氩气的折射率, 讨论了相关参数对所测得气体压力不确定度的贡献. 在1个大气压范围内, 对氩气压力测量的标准不确定度为 $u = \sqrt{(6 \text{ mPa})^2 + (73 \times 10^{-6} p)^2}$.

关键词: 真空计量, 气体压力, 维里状态方程, 气体折射率

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

DOI: 10.7498/aps.69.20200706

1 引言

2018年, 国际计量大会对国际单位制(SI)中千克、开尔文、摩尔、安培等4个基本单位以将计量单位与基本常数相联系的基本原则进行了重新定义, 即基于自然基准而非依赖于实物基准对物理量进行度量. 2019年5月20日起, 国际单位制中除了时间单位秒以外的6个基本单位已经全部由基本物理常数定义, 以确保基本单位和测量系统的长期稳定性^[1].

在真空计量领域, 自1643年意大利物理学家Torricelli利用汞柱发现真空至今已有300多年的历史. 在真空的环境下, 基于压力测量的主要标准器有补偿式液体压力计和强制平衡气体活塞压力计

等. 我国最早的一台补偿式U形管液体压力计, 最大量程为2500 Pa, 标准不确定度为0.05—0.07 Pa^[2]. 近年来采用激光干涉测长仪和超声波测量技术对液面高度进行精密测量, 得到了压力测量的标准不确定度为0.04 Pa^[2]. 在世界范围内, 美国国家标准与技术研究院(NIST)研发的160 kPa超声干涉水银压力计目前精度最高^[3,4], 其标准不确定度为 $u = \sqrt{(3 \text{ mPa})^2 + (2.6 \times 10^{-6} p)^2}$, 然而高3 m, 重达250 kg的水银不仅移动不方便, 而且会对环境造成潜在危害, 因此正逐渐被世界各国弃用. 目前, 活塞压力计的测量不确定度接近水银压力计, 以强制平衡活塞压力计为例, 其量程为0—15 kPa, 测量不确定度为0.003%^[2], 然而其稳定性等指标仍有待提高.

随着真空技术的发展, 在实际真空系统中受定

* 中国科学院战略性先导科技专项(B类)(批准号: XDB21020100)和中国科学院战略性先导科技专项(C类)(批准号: XDC07010000)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: jinwang@ustc.edu.cn

向流动和温度不均匀等因素的影响,热力学平衡态遭到破坏,在此情况下压力基准已不适用于表征真空状态^[5].因此国内外众多学者提出以气体密度 ρ 取代压力 Pa 作为真空态的计量方式.近年来 NIST 等计量机构提出基于光学干涉法测量气体折射率反演密度从而得到真空量值的方法^[6-8].它利用从头计算法将宏观介电常数与原子分子微观极化参数联系起来,由量子标准取代水银压力计的实物标准,保证测量的复现度与稳定性,对真空计量技术具有深远影响.

目前国际上已开展的基于光学方法的量子真空标准研究方向主要有折射率法、吸收光谱法、冷原子法等^[5].折射率法是利用激光穿过气体介质时发生的色散现象导致的频率变化体现气体折射率的变化,利用洛伦兹-洛伦茨 (Lorentz-Lorenz) 方程建立起气体密度与折射率的关系.目前 NIST 已采用固定长度和可变长度的法布里-珀罗腔实现了气体折射率的精密测量,使用长腔测量折射率的标准不确定度为 4.5×10^{-9} ,短腔为 5×10^{-9} ,反演气体密度的不确定度可达 10^{-6} 的量级^[9].吸收光谱法是基于比尔-朗伯 (Beer-Lambert) 定律利用密度与吸收谱线强度的关系进行的测量,德国德国联邦物理技术研究院 (PTB) 基于可调谐二极管激光吸收光谱技术,采用波长调制法建立了分压力校准装置,实现了 CO 和 CO₂ 在 10^{-5} — 10^4 Pa 范围内的校准,标准不确定度达 0.75%^[10,11].冷原子法将囚禁的冷原子与气体分子碰撞,根据冷原子在阱中的寿命 (数目的损失率) 反演出气体密度, NIST 在 2016 年启动了基于冷原子技术的真空计量项目的研究,装置可覆盖 1×10^{-6} — 1×10^{-10} Pa 的真空范围^[5].

本文将介绍基于超稳定法布里-珀罗光学干涉腔的气体折射率测量技术及相应光学系统设计,并讨论从气体折射率到气体密度的反演方法,分析气体摩尔极化率、摩尔磁化率、介电第二维里系数、温度等物质参数和实验参数对气体压力精度的影响.基于所搭建系统,对氩气的折射率和压力开展了实验测量和分析.

2 原理

2.1 法布里-珀罗腔测定气体折射率

当一束激光穿过气体介质时,电磁波波长随气

体折射率的变化而变化,利用法布里-珀罗腔即可实现激光波长的监测.法布里-珀罗腔具有这样一个光学性质:当激光半波长 $\lambda/2$ 的 m 个整数倍等于腔长 L 时,激光会与法布里-珀罗光腔发生共振,其共振频率即为 $\nu \approx mc/(2nL)$,这里 c 为真空中的光速, n 为腔内介质的折射率^[9].当一束激光锁定在光腔纵模上时,由于气体折射率的变化,导致了激光共振频率发生了变化,即: $\delta\nu/\nu \approx -\delta n/n$,这里 $\delta\nu$ 表示激光频率的变化, δn 表示气体折射率的变化.利用此方法,先测量光腔处于高真空 ($n = 1$) 时激光的共振频率,再测量当光腔充满一定压力的气体时的共振频率,可计算得到气体的折射率,再结合洛伦兹-洛伦茨方程和维里状态方程,即可得到气体压力,实现真空度的表征.

实验中,绝对气体折射率 $n - 1$ 可以用真空下激光初始共振频率 ν_i 和充满气体时的最终激光共振频率 ν_f 表示^[9] (本文中,定义 $\Delta\nu = \nu_i - \nu_f + \Delta m \times \text{FSR}$):

$$n - 1 = [(\nu_i - \nu_f)(1 + \varepsilon_\alpha) + \Delta m \times \text{FSR} + \varepsilon_d]/\nu_f + n(L_i - L_f)/L_i, \quad (1)$$

式中, Δm 是模数的改变量; FSR 是自由光谱范围; L_i 与 L_f 分别为真空下腔长与充气状态下腔长; ε_d 是由腔体从真空到最终压力下引起的衍射相移的改变,对于凹面反射镜曲率半径为 R 的平-凹腔体,衍射相移 $\Phi = \arcsin[(L/R)^{1/2}]$,由于其长度与曲率半径的比值不变,所以这一项没有实际的影响可以忽略; ε_α 是镜面反射相移变化的线性色散,是激光频率的函数,由于这一项对折射率测量值的贡献小于 10^{-11} ,可以忽略.

(1) 式中后一项 L_i 和 L_f 长度变化因子主要是由于腔体在经历 Δp (即从真空到特定压力) 的压力变化下导致的腔体长度的变化,与腔体材料的体积模量 K 相关:

$$n \frac{L_i - L_f}{L_i} \approx \frac{\Delta L}{L} = -\frac{\Delta p}{3K}. \quad (2)$$

例如对于超低膨胀系数玻璃 (ULE) 材料,其体积模量 $K = 34.1$ GPa.

2.2 折射率反演气体压力

当一束单色相干平面电磁波在一种无序可极化的粒子介质中传播时 (光波长远大于原子尺寸),会由于光子的多重散射导致波长的改变,其介质中

波长与真空中波长的比值就是折射率^[12]. 由于电磁波以麦克斯韦方程组描述, 折射率也因此与介质的介电常数和磁导率常数相联系. 相对介电常数 ϵ_r 和相对磁导率 μ_r 与气体密度 ρ (原子单位制)的关系可表述为

$$\frac{\epsilon_r - 1}{\epsilon_r + 2} = \frac{4\pi}{3}\alpha [\rho + b_\epsilon(T)\rho^2 + c_\epsilon(T)\rho^3], \quad (3)$$

$$\frac{\mu_r - 1}{\mu_r + 2} = \frac{4\pi}{3}\chi [\rho + b_\mu(T)\rho^2 + c_\mu(T)\rho^3], \quad (4)$$

式中, α 和 χ 分别为原子极化率和抗磁磁化率, $b_\epsilon(T)$ 和 $c_\epsilon(T)$ 分别是第二、第三介电维里系数, $b_\mu(T)$ 和 $c_\mu(T)$ 分别是第二、第三磁导率维里系数. 由于折射率定义为 $n^2 = \epsilon_r\mu_r$, 结合上述方程(3)和方程(4), 可将折射率写为密度的多项展开式:

$$n = 1 + a_n\rho + b_n\rho^2 + c_n\rho^3 + \dots, \quad (5)$$

式中 a_n , b_n , c_n 为展开系数. 反写(5)式, 就可以通过实验中测出的折射率转化为气体密度:

$$\rho = \frac{1}{a_n}(n - 1) - \frac{b_n}{a_n^3}(n - 1)^2 + O((n - 1)^3), \quad (6)$$

其中, 展开系数分别为

$$a_n = 2\pi(\alpha + \chi), \quad (7)$$

$$b_n = 2\pi \left(\alpha b_\epsilon + \frac{1}{3}\pi\alpha^2 + \chi b_\mu + \frac{1}{3}\pi\chi^2 + 2\pi\alpha\chi \right). \quad (8)$$

(7)式中, α 为原子极化率, χ 为原子磁化率, 它们都是入射激光频率的函数. 但由于 χ 比 α 小5个数量级, 因此可忽略其色散修正^[13], 只需考虑其静态成分. 一般将原子极化率 α 和原子磁化率 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, 气体密度单位为 mol/cm^3 .

(8)式中, b_ϵ 为第二介电维里系数, b_μ 为磁导率维里系数. 由于 χ 比 α 小5个数量级, 且 b_μ 也远小于 b_ϵ , 可忽略(8)式中的 χb_μ , χ^2 项. 一般计算中定义的第二介电维里系数为 $B_\epsilon = A_\epsilon b'_\epsilon$, 这里 b'_ϵ 为摩尔磁化率($b'_\epsilon = N_A b_\epsilon$), 第二介电维里系数是温度的函数.

用摩尔极化率、摩尔磁化率(单位为 cm^3/mol)及介电维里系数表示气体密度(单位为 mol/cm^3),

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

气体密度(单位为 mol/m^3)可通过维里状态

方程与气体压力联系起来:

$$P = RT[\rho + B(T)\rho^2 + O(\rho^3)], \quad (10)$$

式中 P 为压力; R 为气体常数; T 为温度; $B(T)$ 是第二维里系数, 代表最低阶偏离理想气体的行为, 它仅仅是分子对间相互作用的函数. 结合(9)式与(10)式, 可以得到气体压力与气体折射率的关系:

$$P = \frac{2 \times 10^6 k_B T N_A}{3(A_\epsilon + A_\mu)}(n - 1) + \left[\frac{4 \times 10^{12} B(T)}{9(A_\epsilon + A_\mu)^2} - \frac{(4B_\epsilon + A_\epsilon^2 + 6A_\mu A_\epsilon) \times 10^6}{9(A_\epsilon + A_\mu)^3} \right] N_A k_B T (n - 1)^2. \quad (11)$$

3 实验

3.1 实验装置

实验装置如图1所示, 由两个腔体组成, 一个是维持真空的参考腔, 一个是充气的测量腔. 780 nm 波长的外腔式半导体激光器通过 Pound-Drever-Hall 锁频方法锁定在光腔的纵模上, 利用频率计测量两组激光的拍频. 腔体由 ULE 制造, 腔长为 10 cm, 反射率约为 99.9%. 从 ULE 腔体由内而外, 分别为铝合金材料制成的屏蔽层与控温层, 屏蔽层上置有中国计量院校准过的精密铂电阻对温度进行采集和反馈, 控温层表面缠绕 10 Ω 电阻丝, 温度由温度控制器设置, 控温精度可达 1 mK. 最外层腔体为不锈钢材料加工而成, 外层缠绕加热片进行外层控温. 真空腔体连接 INFICON Cube CDGSci 真空计以测量充气压力, 其精度为读数的 0.025%.

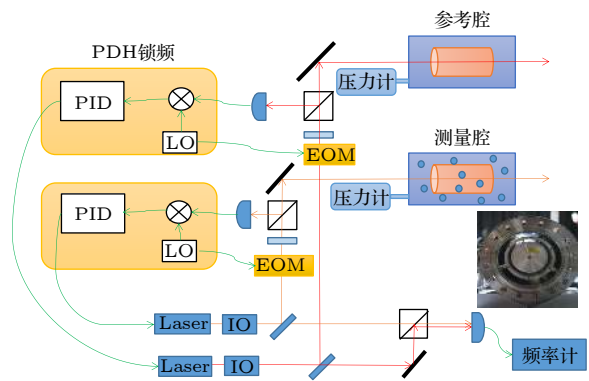


图1 实验装置图(LO, 本地振荡器; EOM, 电光调制器; IO, 隔离器)

Fig. 1. Experimental setup (LO, local oscillator; EOM, electro-optic modulator; IO, isolator).

在腔体真空状态下测量激光频率 ν_i , 往腔体中充入氩气至某一压力点时, 测量激光频率 ν_f , 即可得到每个充气压力点下的相对频率差 $\Delta\nu/\nu_f$, 最后代入 (1) 式和 (11) 式计算出每个相对频率差对应的气体压力.

3.2 测量不确定度分析

将实验中测得的不同压力点下的相对频率差 $\Delta\nu/\nu_f$ 利用 (1) 式和 (11) 式即可计算出气体压力, 其不确定度受到了理论参数和实验测量不确定度的限制. 主要误差来源于以下几项.

1) 摩尔极化率: 在常压范围内, 摩尔极化率与压力基本成线性关系, 因此测量压力的精度与摩尔极化率的计算精度密切相关. 摩尔极化率包括了静极化率和与波长相关的动态极化率:

$$A_\epsilon = A_0 + \frac{4}{3}\pi N_A a_0^3 \left(1 + \frac{m_e}{m_n}\right)^3 [S(-4)\omega^2 + S(-6)\omega^4 + S(-8)\omega^6], \quad (12)$$

式中, A_0 为静态摩尔极化率, Gaiser 对氩气的静摩尔极化率测量为 $A_0 = 4.140686(10) \text{ cm}^3/\text{mol}$ ^[14]; $S(-4)$, $S(-6)$, $S(-8)$ 为偶极子和; a_0 为玻尔半径; m_e , m_n 分别为电子质量和核质量; ω 为激光频率 (原子单位制), $\omega(\text{a.u.}) = 45.56397823/\lambda(\text{nm})$, λ 是以纳米为单位的真空波长^[15].

在 780 nm 的波长下, 静摩尔极化率的相对不确定度对总摩尔极化率的贡献约为 2.4 ppm ($1 \text{ ppm} = 1 \times 10^{-6}$), 动态极化率第 1 项对总摩尔极化率的贡献约为 3.2 ppm, 第 2 项为 0.004 ppm,

因此, 在我们的测量精度条件下, 只需考虑动态极化率前两项. 不同计算方法得出的 $S(-4)$, $S(-6)$ 数值存在差异, 由从头计算法得出的氩气偶极子和 $S(-4) = 25.27(1) \text{ (a.u.)}$, $S(-6) = 78.84(1) \text{ (a.u.)}$ ^[15], 其相对不确定为 4.0 ppm. 由微分振子强度分布 (DOSD) 计算得出 $S(-4) = 27.91(1) \text{ (a.u.)}$, $S(-6) = 95.06 \text{ (a.u.)}$ ^[16].

2) 其他理论参数: 由实验中测出的氩气折射率转化为压力除了需要摩尔极化率 A_ϵ 之外, 还需要介电维里系数 B_ϵ 、摩尔磁化率 A_μ 、第二维里系数 $B(T)$ 、体积模量 K 等参数, 在波长为 780 nm、温度为 25.98 °C 的条件下有

$$\begin{aligned} B_\epsilon &= 1.711(30) \text{ cm}^6/\text{mol}^2 \text{ [17]}, \\ A_\mu &= -0.0000194(2) \text{ cm}^3/\text{mol} \text{ [18]}, \\ B(T) &= -15.700(250) \text{ cm}^3/\text{mol} \text{ [17]}, \\ K &= 34.1(2) \text{ GPa} \text{ [9]}. \end{aligned}$$

以上各项对所测得压力的不确定度的贡献分别是 0.3 ppm, 0.05 ppm, 10 ppm, 27 ppm.

3) 温度的测量: 实验中利用双层控温将腔体温度控制在 ULE 的零膨胀点 $T = 25.980 \text{ °C}$ 处以减小热膨胀效应导致的腔长变化. 图 2 显示了由铂电阻温度计测量的内层温度波动, 温度稳定性 $\Delta T < 1 \text{ mK}$, 因此内层测量温度 $T = 299.130(1) \text{ K}$. 然而受气体温度的影响, 腔体中心的温度并不等于内层温度, 图 3(a) 是真空腔体示意图, 采用两级温控, 真空外不锈钢腔体上是第一级控温, 控制温度精度约 0.1 K, 真空内共两层, 第 1 层为二级控温层, 温度控制精度约 mK 水平, 第 2 层为铝合金屏

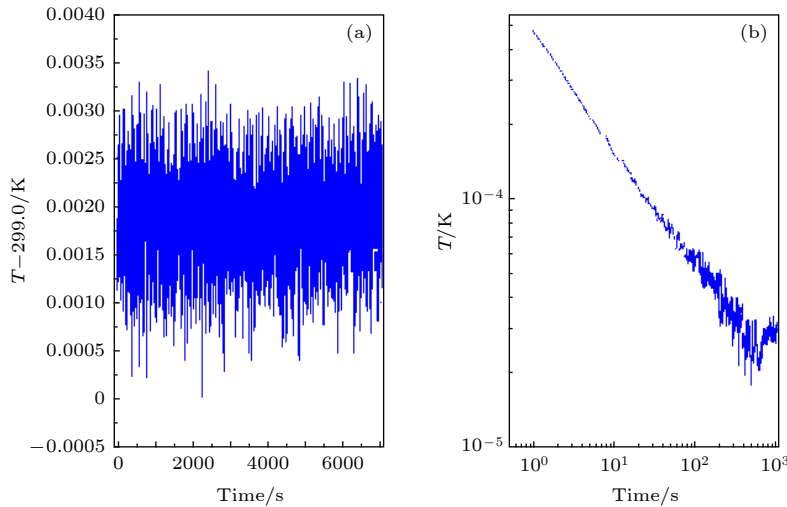


图 2 (a) 读出温度随时间的变化 (b) 及其阿伦偏差

Fig. 2. (a) Temperature readout with time and (b) its Allan deviation.

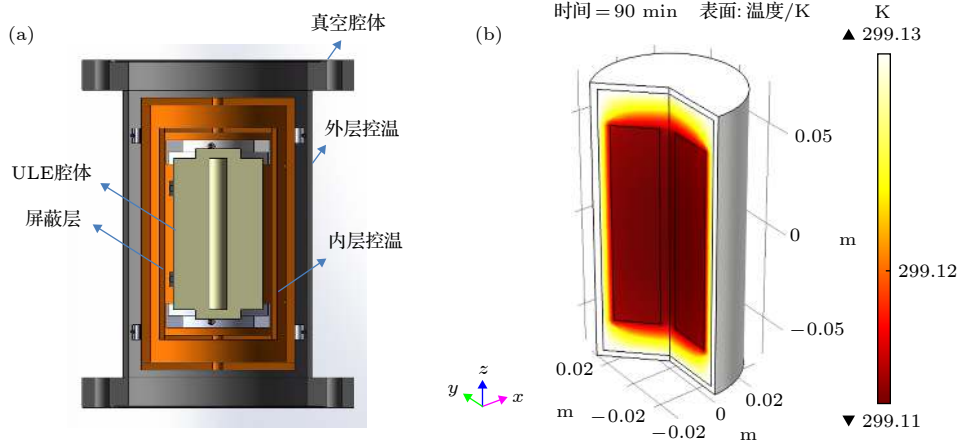


图 3 (a) 腔体示意图; (b) 腔体温度分布

Fig. 3. (a) Cavity diagram; (b) temperature distribution inside the sample cell.

蔽层, 最内层为 ULE 光腔, 测温温度计放置在屏蔽层外表面, 因此读出的温度与光腔内气体的温度有一定偏差, 我们利用 Comsol 软件模拟腔体内部的温度分布图如图 3(b) 所示, 当内层屏蔽层温度稳定在 $T = 299.130(1)$ K 时, 在充入 1 个大气压的氩气 90 min 后 (测完一组数据所需时间), 腔体中心温度为 299.11 K, 因此腔体中心实际温度与铂电阻测量温度存在 67 ppm 的相对偏差, 以此作为系统中温度测量的误差估计.

4) 气路漏气率: 分别测出腔体真空维持时频率漂移与封腔时频率漂移, 两者斜率差值即为外部气路漏气导致的频率变化. 实验中, 由于气路漏气导致的频率变化约为 3 Hz/s, 实验中充气时间约为 0.5 h, 在这段时间内导致的压力漂移为 6 mPa.

5) 激光频率的测量: 将激光频率锁定在腔体上后用频率计检测其频率波动, 结果显示激光频率在 1 kHz 范围内波动, 因此, 在 1 个大气压下由于激光频率的测量误差将导致 0.01 ppm 的压力误差.

6) 其他误差: 实验中氩气纯度为 99.999%, 假设其中含量 0.001% 的杂质为折射率比氩气偏大的空气, 则在 1 个大气压下对压力测量产生大约 5 ppm 的相对误差; ULE 材料导致的腔体具有较小的压缩滞后效应, 对压力测量产生大约 0.1 ppm 的相对误差 [8]; 由于 1 mK 的温度波动将会导致 ULE 热膨胀系数在 $10^{-9}/\text{K}$ 的不均匀性, 大约导致 0.6 mPa 的压力漂移效应 [8].

综合上述讨论情况, 对于氩气的压力测量, 各参数对其误差贡献如表 1 所列.

因此, 预计利用法布里-珀罗腔测定气体折

射率来反演气体密度的方法在 $p < 100$ kPa 的氩气压力测量下达到的标准不确定度为: $u = \sqrt{(6 \text{ mPa})^2 + (73 \times 10^{-6} p)^2}$.

表 1 各参数对氩气在 1 个大气压下压力测量的相对不确定度贡献

Table 1. Uncertainty budget of determined argon pressures within 1 atm.

参数	不确定度 $u(p)/\text{ppm}$	$\Delta P/\text{mPa}$
温度 T	67	
频率 ν #	0.01	
氩气纯度	5	
压缩滞后	0.1	
A_ϵ	4.0	
B_ϵ	$\leq 0.3^*$	
A_μ	0.05	
$B(T)$	$\leq 10^*$	
体积模量 K	27	
漏气率		6
ULE 热膨胀		0.6
总计	73	6

注: #表示A类不确定度, 其他为B类不确定度; *表示该项不确定度贡献将随压力增大而增大.

3.3 氩气测试

近年来, 通过对氩气压力的测量可得到其折射率、极化率、维里系数等气体参数 [19–21]. NIST 的 Egan 和 Stone 等 [9] 利用在 633 nm 波长下测量了 1 个大气压条件下的氩气折射率, 其测量不确定度为 35 ppm. 德国 PTB 利用介电常数气体计量法测量了氩气的维里系数 [20], 同时他们用该方法测量了氩气的静极化率, 其不确定度达 2 ppm [14].

本文的主要工作是通过对氩气折射率的测量来反演气体压力,具体做法如下.往腔体中充入氩气并在不同充气压力下测量相对频率差 $\Delta\nu/\nu_f$,并将结果代入(1)式和(11)式反演至气体压力.进行多组重复实验,结果显示折射率测量不确定度在100 ppm之内,这与目前所用压力表的精度相符,表明目前压力测量重复度主要受限于压力计精度.图4显示了在充气压力的各点处,分别利用从头计算法和DOSD得出的相对偏差为100 ppm和920 ppm,可以看出实验结果与从头计算法得出的动态极化率符合程度较高.图4中每个数据点的误差均有两部分组成,一是充气压力的误差,受压力表的限制,其精度为读数的0.025%;二是折射率测量不确定度对压力贡献的100 ppm的相对偏差.对比两种计算方法,从头计算法是基于量子力学基本原理直接薛定谔方程的量子化学计算方法,DOSD则是基于实验中测得的共振吸收光谱下偶极振子强度的微分分布,DOSD方法计算出的每一项偶极子和均大于从头计算法得出的数值,即入射激光频率对摩尔极化率的影响较大,表现出DOSD在每个压力点下的计算压力均大于充气压力,且随着压力的升高偏差呈变大趋势;从头计算法的计算压力与充气压力的偏差则是表现为波动趋势,这可能与压力表的精度有关.

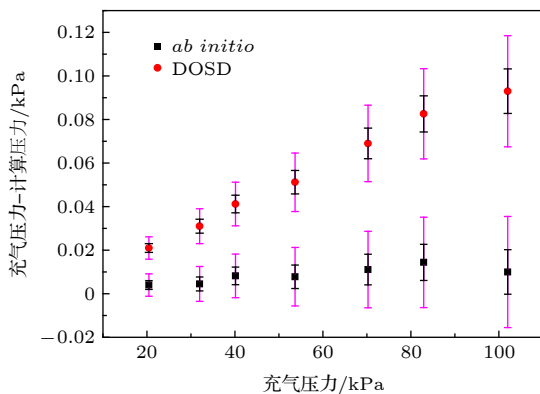


图4 计算压力与充气压力的偏差

Fig. 4. Deviation between calculated and measured pressures.

4 结论

利用法布里-珀罗谐振腔测定气体折射率,并反演得到气体压力,实现了在1个大气压范围内的氩气气体压力测量不确定度为 $u = \sqrt{(6 \text{ mPa})^2 + (73 \times 10^{-6} p)^2}$.目前,该不确定度主要

来源于腔内气体温度的测量偏差.实验中,还分别比较了由从头计算法与DOSD法计算得到的偶极子和对充气压力与计算压力产生的偏差,结果显示,从头计算法得出的动态极化率与实验比较相符,并利用这一方法得到的参数计算得到了各个充气点的压力,与充气压力的相对偏差为100 ppm,该偏差主要来自于实验中测量气体压力的绝压式电容薄膜真空计.该实验结果表明,基于气体折射率测量气体压力的方法具有较高的重复度和准确性,其特点是将宏观物理量气体压力与原子分子的微观参数极化率联系在一起,体现出了该方法的巨大优势和潜力.目前所搭建系统可用于标定目前通用的各式压力计.如果利用标准活塞压力计测量气体压力,温度控制和测量精度进一步提高,该方法还可以用来得到高精度的原子分子的极化率等微观参数.在未来的工作中,我们将着重改进腔体的温度控制及真空设计,减小腔体漏气和放气,有希望将气体压力的测量精度提高到10 ppm水平,与现有标准活塞压力计做比对,成为压力计量新标准.

参考文献

- [1] Gibney E 2017 *Nature* **551** 18
- [2] Gu S J 2004 *Shanghai Measurement and Testing* **31** 10 (in Chinese) [顾世杰 2004 上海计量测试 **31** 10]
- [3] Tilford C R 1994 *Metrologia* **30** 545
- [4] Hendricks J H, Olson D A 2010 *Measurement* **43** 664
- [5] Li D T, Cheng Y J, Xi Z H 2018 *Journal of Astronautic Metrology and Measurement* **38** 1 (in Chinese) [李得天, 戚永军, 习振华 2018 宇航计测技术 **38** 1]
- [6] Egan P, Stone J, Ricker J, Hendricks J 2016 *Conference on Precision Electromagnetic Measurements Ottawa, Canada, July 10–15, 2016* p1
- [7] Egan P F, Stone J A, Ricker J E, Hendricks J H, Strouse G F 2017 *Opt. Lett.* **42** 2944
- [8] Egan P F, Stone J A, Ricker J E, Hendricks J H 2016 *Rev. Sci. Instrum.* **87** 053113
- [9] Egan P F, Stone J A 2011 *Appl. Opt.* **50** 3076
- [10] Lanzinger E, Jousten K, Kuhne M 1998 *Vacuum* **51** 47
- [11] Viquez P, José G 2005 *Ph. D. Dissertation* (Berlin: Technische Universität Berlin)
- [12] Pachucki K, Puchalski M 2019 *Phys. Rev. A* **99** 041803
- [13] Puchalski M, Piszczatowski K, Komasa J, Jeziorski B, Szalewicz K 2016 *Phys. Rev. A* **93** 032515
- [14] Gaiser C, Fellmuth B 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 123203
- [15] Thakkar A J, Hettema H, Wormer P E S 1992 *J. Chem. Phys.* **97** 3252
- [16] Kumar A, Meath W J 1985 *Can. J. Chem.* **63** 1616
- [17] Vogel E, Jager B, Hellmann R, Bich E 2010 *Mol. Phys.* **108** 3335
- [18] Glick R E 1961 *J. Phys. Chem.* **65** 1552
- [19] Egan P F, Stone J A, Scherschligt J K, Harvey A H 2019 *J. Vac. Sci. Technol. A* **37** 031603
- [20] Gaiser C, Fellmuth B 2019 *J. Chem. Phys.* **150** 134303
- [21] Buckley T J, Hamelin J, Moldover M R 2000 *Rev. Sci.*

Vacuum metrology based on refractive index of gas*

Xu Yu-Rong¹⁾ Liu Yang-Yang¹⁾ Wang Jin^{1)2)†} Sun Yu¹⁾²⁾

Xi Zhen-Hua³⁾ Li De-Tian³⁾ Hu Shui-Ming¹⁾²⁾

1) (*Hefei National Laboratory for Physical Sciences at Microscale, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China*)

2) (*CAS Center for Excellence in Quantum Information and Quantum Physics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China*)

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

(Received 12 May 2020; revised manuscript received 12 June 2020)

Abstract

With the development of vacuum technology, subject to the influence of directional flow and uneven temperature, the thermodynamic equilibrium state is destroyed. In this case, the pressure reference is not suitable for characterizing the vacuum state. To ensure the long-term stability and reproducibility of the measurement system, vacuum metrology will be characterized by gas density. The precise measurement of gas refractive index based on a Fabry-Perot cavity can be used to derive the gas density. This kind of an optical measurement of vacuum links macroscopic dielectric constants of gases with microscopic polarization parameters of atoms and molecules. It replaces the physical standard based on the mercury pressure gauge with the quantum standard. In this paper, we discuss the reverse process from refractive index to gas pressure, and use the laser-locked Fabry-Perot cavity method to measure the refractive index of argon gas. The contribution of related parameters to the uncertainty of determined gas pressure is analyzed. The influences of material parameters and experimental parameters such as gas molar susceptibility, molar susceptibility, dielectric second Virial coefficient and temperature on gas pressure accuracy are analyzed. The result shows that the uncertainty in our measurement of argon within 1 atm is $u = \sqrt{(6 \text{ mPa})^2 + (73 \times 10^{-6} p)^2}$. Currently, the uncertainty mainly comes from the measurement deviation of gas temperature inside the cavity. After repeating the measurement a few times, the results show that the statistical uncertainty of refractive index is within 100 ppm, which is limited by the accuracy of the pressure gauge used here. In addition, we compare the dipole calculated by the *ab initio* method with that by the DOSD method. The results show that the dynamic polarizability obtained by the *ab initio* method is consistent with our experimental results. In conclusion, these experimental results show that the measurement of gas pressure based on the gas refractive index has high repeatability and accuracy. If the temperature control and corresponding measurement accuracy of the gas are further improved, this method can also be used to obtain high-precision microscopic parameters such as the polarizabilities of atoms and molecules. In the future work, we will focus on improving the temperature control and the design of the cavity to reduce cavity leakage and deflation. It is possible that the measurement accuracy of the gas pressure will be increased to 10 ppm level, which is the same level as the current standard pressure gauge and will become a new standard for pressure measurement in the future.

Keywords: vacuum metrology, gas pressure, Virial state equation, Fabry-Perot cavity

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

DOI: 10.7498/aps.69.20200706

* Project supported by the the Strategic Priority Research Program (B) of the Chinese Academy of Sciences (Grant No. XDB21020100) and the Strategic Priority Research Program (C) of the Chinese Academy of Sciences (Grant No. XDC07010000).

† Corresponding author. E-mail: jinwang@ustc.edu.cn