光学悬浮系统中纳米颗粒净电荷的快速测量

Jin-Chuan Wang[1], Cui-Hong Li[1*]、Shao-Chong Zhu[1], Chao-Xiong He[1], Zhi-Ming Chen[1], Zhen-Hai Fu[1], 和Hui-Zhu Hu[1,2*]

[1] 量子传感研究中心，智能感知研究院，之江实验室，中国杭州 310000[2] 现代光学仪器国家重点实验室，浙江大学光学科学与工程学院，中国杭州 310027（电子邮件：licuihong@zhejianglab.com，huhuizhu2000@zju.edu.cn）

对纳米颗粒净电荷的精确测量对于纳米颗粒的研究和应用都至关重要。特别是在基于光学悬浮纳米颗粒的精密传感领域，在电控过程之前，精确测量纳米颗粒的净电荷是实现稳定悬浮以及探测电场等物理量的前提。然而，对悬浮纳米颗粒净电荷的精确测量仍面临挑战。本文提出了一种通过其热驱动和谐波驱动运动信号精确测量净电荷的方法。通过对光学悬浮纳米颗粒动态温度的数值计算，可以追踪纳米颗粒的长期动态净电荷。在热平衡压力高于 10 毫巴以及低至 3 毫巴时，该方法的测量精度分别优于 5% 和 ~20%，此时净电荷几乎不会自发变化，且悬浮振子的非线性相对较小。由于净电荷是整数离散的，该方法可对带有少量电荷的纳米颗粒实现近乎完全准确的测量。该结果可通过迭代提高质量和密度的测量精度，并为气象学、太空尘埃等的非接触表征提供了一种途径。

净电荷是粒子最重要的特征参数之一，对于研究大气颗粒的化学反应[1,2],尘埃颗粒的动力学[3], 以及微尺度物理化学反应[4]具有重要意义。在基于光学阱的精密测量领域，净电荷的精确测量会影响力相关参数的灵敏度[5,6], 采用电场反馈控制方法时的最终冷却温度[7] 以及粒子的悬浮稳定性。

传统的净电荷测量大多采用接触式测量，例如使用 Zata[8-10] 势能的测量方法以及静电力显微镜（ EFM ）[11]。前者通常用于液体环境，后者则需要基底材料[12,13]。目前，光学悬浮系统中测量净电荷的方法依赖于通过动态控制净电荷数值来获得纳米颗粒的统计离散电响应[14,15]。通常采用紫外放电或高压电离方法来控制粒子上的净电荷[16]。前一种方法适用于对初始带负电荷的粒子进行放电[15] ，而后一种方法则可通过电离真空腔内的气体分子，在两个方向上控制粒子上的净电荷[17]。然而，这两种需要频繁调节粒子电荷的方法都可能导致悬浮不稳定。此外，高压放电过程通常需要在特定的压力范围内进行[16,18,19]。在高真空条件下，腔室内少量的气体会使其难以

高压放电产生自由电荷[20]。此外，在高真空条件下，粒子的运动会变得更加剧烈，此时粒子面临被库仑力推出光学阱的风险。在低真空条件下，腔室内较高的气体浓度会使电离产生的自由电荷迅速被气体分子中和，从而给电荷调节带来困难。此外，对于某些化学相关研究领域而言，改变初始净电荷的方法可能并不理想。

本文提出并通过实验验证了一种直接电荷校准方法，可根据特定材料粒子的惯性质量参数快速测量粒子的净电荷。对于被电场驱动的光学阱所俘获的粒子$E = E_0\cos(\omega_{dr}t)$，其电荷数$n_q$可根据电驱动运动所受的力$F_{dr} = n_q q_e E_0 \cos(\omega_{dr}t)$及其惯性质量$m$推导得出。主要测量误差来自质量$m$，该质量可通过粒子的空气动力学特性进行校准，误差通常在 10% 以内[17,21]。由于净电荷数为离散整数，对于电荷数较少的粒子，通过就近取整即可无误差地估算其电荷数。通过计算光学阱中粒子的温度变化，我们实现了在 100–0.5 毫巴压力范围内测量光学阱中粒子的动态净电荷。此外，通过与传统离散电荷校准方法的测量结果比较，我们证明了所提出的方法在压力 P > 3毫巴时性能良好。具体而言，当压力 P > 10 毫巴时，误差小于 5%。当压力降至 3 毫巴、系统处于热非平衡状态时，误差小于 20%。在更低压力下，由于悬浮粒子的振荡呈现非线性，误差显著增大。本文提出的电荷测量方法有助于通过迭代提高粒子质量、密度及其他参数的校准精度。此外，基于悬浮的单纳米颗粒表征方法可用于研究月尘和纳米气溶胶；对这些物质的物理参数进行精确测量和监测的需求正日益增长[22,23]。

1. 理论原理

质量为 m、电荷数为 n_q 的粒子被捕获在光学阱中，其运动方程可描述为热驱动和谐波驱动的阻尼谐振器[17]：

$$\ddot{x}+\Gamma\dot{x}+\omega_0^2 x = \frac{F_{th}(t)}{m} + \frac{n_q q_e E_0 \cos(\omega_{dr}t)}{m} \tag{1}$$

其中，Γ 为阻尼率，$F_{th}(t)$表示腔室内残余空气分子的随机碰撞。ω_0 为振荡器的机械本征频率。ω_{dr} 为驱动电场的频率。q_e 为元电荷。E_0 为电场的振幅。受外部谐波力作用的热驱动机械谐振器的总功率谱密度（PSD）为[17]：

$$S_x(\omega) = S_{th}(\omega)+S_{dr}(\omega) = \frac{2k_B T\Gamma}{m[(\omega_0^2-\omega^2)+(\Gamma\omega)^2]} + \frac{n_q^2 q_e^2 E_0^2}{2m^2}\frac{\tau sinc[(\omega-\omega_{dr})\tau]}{(\omega_0^2-\omega^2)+(\Gamma\omega)^2} \tag{2}$$

其中，k_B 为玻尔兹曼常数，T为室温。$S_{th}(\omega)$为热驱动的功率谱密度，$S_{dr}(\omega)$为电驱动的功率谱密度，τ 为测量时间。

根据光学阱中悬浮粒子的电驱动理论模型中粒子质量、电力与功率谱密度信号之间的关系，可得粒子质量与粒子净电荷之间的关系[17]：

$$\frac{n_q^2}{m} = \frac{8k_B T\Gamma R_s}{q_e^2 E_0^2 \tau} \tag{3}$$

其中，R_S 为电场驱动部分与热驱动部分的功率谱密度之比，可表示为$R_s = S_{dr}(\omega_{dr})/ S_{th}(\omega_{dr})$。

根据气体动力学理论，在热平衡环境中，粒子的半径可表示为[24]：

$$r = 0.619\frac{9\pi}{\sqrt{2}}\frac{\eta_{air} d^2}{\rho k_B T}\frac{P_{gas}}{\Gamma} \tag{4}$$

其中，$\eta_{air} = 1.86\times10^{-5}$ Pa·s 为空气黏度。$d = 0.36\times10^{-9}$ m 为空气分子的直径。P_{gas} 为环境压力。ρ 为粒子的密度。通过最小二乘法拟合$S(\omega)$可获得Γ。根据半径为

r 的粒子r，可以得到粒子质量$m = 4\pi r^3\rho/3$。最后，基于光学悬浮光学系统快速测量纳米颗粒净电荷的公式为：

$$n_q = \sqrt{\frac{8k_B T \Gamma R_s m}{q_e^2 E_0^2 \tau}} \quad (5)$$

2. 实验装置

实验装置如图 1 所示。λ=1064 nm 激光束（YDFL-064-SF-10-CW）由物镜（NA=0.8）聚焦，在焦点处捕获一个二氧化硅纳米颗粒，该焦点位于真空腔内。悬浮于异丙醇溶液中的纳米颗粒通过雾化器喷入真空腔，光学阱可以捕获附近落下的粒子。我们将光束传播方向定义为 Z 轴，而 X 轴和 Y 轴分别对应于焦平面内平行于和垂直于捕获光偏振方向的方向。粒子沿三个轴的振荡由四象限光电探测器（QPD）监测。一对平行板电极用于在光学阱周围产生均匀电场。腔室侧面的紫色辉光由一根连接高压直流电源的导线发出，并通过使真空腔内的气体分子电离来控制粒子的净电荷[5,14]。

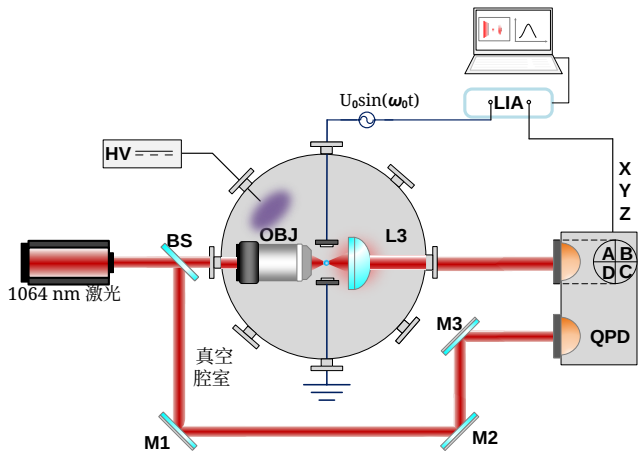

图 1 实验装置。显微物镜（OBJ）将激光束聚焦在真空腔内，单个二氧化硅纳米颗粒被捕获在焦点处。散射光由粒子由非球面透镜（AL）收集，并采用分割式探测方案检测粒子的运动。驱动电容器的函数发生器信号作为锁相放大器（LIA）的参考信号，从而产生驱动带电粒子的电场。腔室侧面的紫色辉光由 一根连接高压（HV）直流电源的导线发出，用于控制粒子的净电荷。所有探测器信号均发送至计算机系统。BS：分束器。 QPD：四象限光电探测器。

3. 结果与讨论

3.1 直接计算结果

为计算粒子携带的电荷数，在初始净电荷为 P= 5 毫巴时，测量粒子沿 X轴方向的热驱动和谐波驱动功率谱密度（PSD）。如图 2 所示，共振频率约为 153 千赫兹。根据功率谱密度（PSD）可推导出阻尼率 Γ、比值 R_s, 以及粒子的半径 r，因此 r = 74 ± 3 纳米， Γ= 4.47 ± 0.01 千赫兹，$R_s = S_d r(\omega_{dr})/S_{th}(\omega) = 53.4 \pm 0.9$。当 τ = 0.015 秒时，粒子携带的净电荷数 $\boldsymbol{n_q}$ 计算为 2.37 ± 0.12。

从理论上讲，我们的计算结果误差并不大，通过计算可以得到粒子所携带的相对准确的净电荷（具体的误差表征请参见补充材料）。因此，通过邻近取整，我们将电荷数取为2。进一步地，为验证直接计算结果的准确性，我们通过传统的离散校准方法对粒子的净电荷进行了校准。

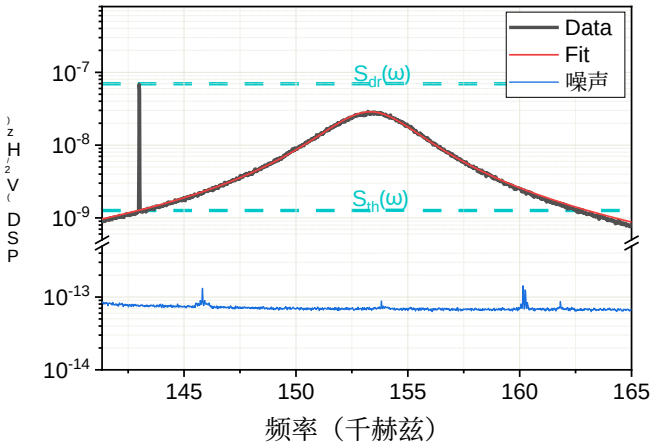

图 2 功率谱密度和洛伦兹拟合。热驱动和谐波驱动振荡器在 P = 5 毫巴时的功率谱密度（黑色）。共振频率约为 153 千赫兹。对平板电极施加了振幅为 22.5 V、频率为 143 千赫兹的驱动信号。我们使用洛伦兹函数（红色）拟合热驱动振荡器。$R_s = S_{dr}(\omega_{dr})/S_{th}(\omega_{dr}) = 53.4$。底部的深蓝色谱线为测量噪声。

3.2 离散校准结果

在图3中，我们展示了使用离散电荷校准方法对置于光学阱中的纳米颗粒净电荷进行测量的结果。在平板电极上施加频率为143千赫兹的交流信号U(t)，以驱动粒子运动。通过在压力为5毫巴的真空腔中使气体分子电离，控制粒子上的净电荷。图3展示了锁相放大器（LIA）从X轴运动信号中解调出的振幅和相位。当接通高压时，振幅以离散阶跃的形式发生变化，这是由于纳米颗粒吸收和释放自由电荷所致。可以直观地观察到，第一个阶跃的振幅为1.4 mV，离散振幅之间的最小差值为0.7 mV，这是由吸收或释放单个元电荷引起的。因此，粒子上的初始电荷数为2。 我们可以发现，直接校准结果与通过离散电荷校准方法测得的结果一致，误差为18.5%。计算结果与校准结果之间的误差大于此前估计的误差

在热平衡条件下为 5.12%（见补充信息）。主要原因是，当压力降至 5 毫巴时，会出现非线性效应，从而增大拟合结果的误差。此外，模拟温度的误差也会影响结果（见补充信息）。图 3(b) 显示了由锁相放大器解调的相位

-in 放大器。显然，在控制过程中，粒子的电荷极性保持不变。

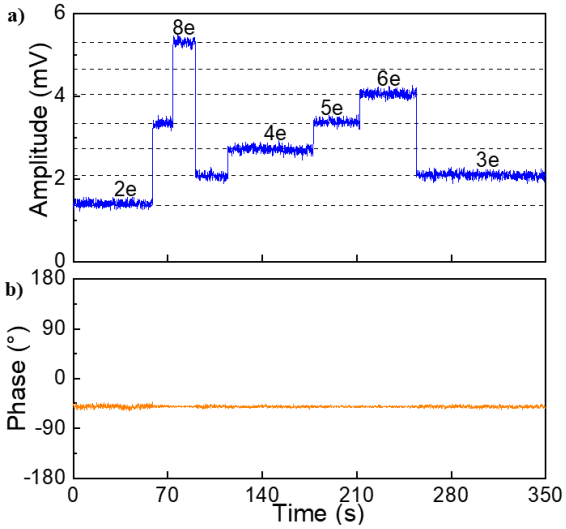

图3. 在5毫巴下控制净电荷。(a) 锁相放大器解调得到的幅度信号。每次放电后，幅度信号都会发生离散阶跃变化。(b) 锁相放大器解调得到的相位信号，反映出测量过程中电荷极性保持不变。

3.3 讨论

为检验该方法的适用性，分别采用两种方法测量粒子在不同压力下的电荷数。气压从100毫巴降至0.5毫巴，分别选取100毫巴、30毫巴、10毫巴、3毫巴、1毫巴和0.5毫巴这六个气压值。首先，进行从100毫巴到0.5毫巴的降压测量。经过高真空后，压力从低压开始回升，并再次从0.5毫巴到100毫巴进行电荷测量。电荷

降压过程和升压过程中的测量结果分别如图4(a)和(b)所示。

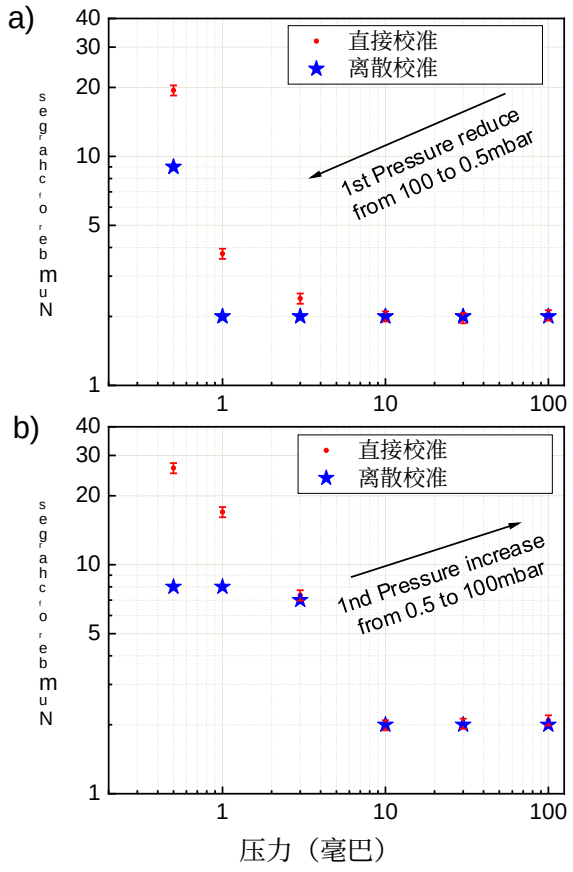

图4 不同压力下电荷计算结果与校准结果的对比图。(a) 压力从100毫巴降至0.5毫巴时，计算结果与校准结果的对比图。(b) 压力从0.5毫巴升至100毫巴时，计算结果与校准结果的对比图。在3毫巴时，误差增大。当压力降至约1毫巴时，误差显著增大。

可以观察到，当压力 P > 3 毫巴时，直接计算结果基本保持恒定，且与离散校准结果一致。在 100、30 和 10 毫巴时，两种结果之间的误差均在 5% 以内。在 3 毫巴时误差增大，而压力低于 1 毫巴时误差显著增大。显然，当压力高于 3 毫巴时，可以根据计算结果无误差地估算囚禁纳米粒子的电荷。

图5展示了在驱动电场的频率和振幅保持不变的情况下，压力从 100 毫巴降至 0.5 毫巴时锁相信号幅度的变化。振幅随压力变化可能有两个原因。一方面，压力变化过程中净电荷可能略有变化。另一方面，粒子对驱动电场的响应取决于压力。后者是主要原因，这表明离散校准方法存在不足：每种压力下都需要校准离散幅度步长。此外，在此过程中粒子有很高的风险从光学阱中脱落。除此之外，当压力降至低于 1 毫巴时，锁相信号的振幅似乎随压力不规则变化，这给离散校准方法带来了额外的不确定性。电荷增加的原因

高真空下的测量误差和强烈的振幅跳跃现象可能源于非线性效应的影响；压力降低时，粒子运动变得更加剧烈，且粒子运动的不稳定性增强[25]。

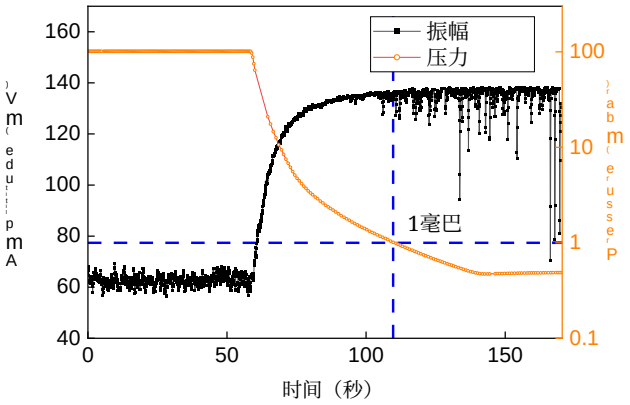

图5 粒子的振荡振幅随驱动电压的变化，以及压力降低时的变化。 随着气压降低，粒子的振荡信号振幅急剧增大。达到1毫巴后，信号出现明显的跳变现象。

对于由高斯光束构成的光学阱，其势能偏离二次形状，从而产生取决于囚禁纳米粒子运动状态的非线性固有频率偏移。光学阱中平衡位置附近的囚禁粒子具有固定的

本征频率 ω_0 ，当振幅远小于光束腰且光学势可以被完美地近似为谐势时。然而，当振荡器的振幅增大[25]时，光学势将变为非谐势。图6显示了粒子在3毫巴、1毫巴和0.05毫巴压力下的热驱动功率谱密度。粒子运动的时间轨迹被分为长时轨迹（蓝色）和短时轨迹（红色和黑色）。在3毫巴压力下，长时轨迹几乎与短时轨迹重合。当压力降至1毫巴时，曲线的频率出现明显波动。当压力达到0.05毫巴时，波动变得更加剧烈。非线性效应引起的频率波动会给阻尼率 Γ 和 $S_{th}(\omega)$ 的拟合计算结果带来误差，进而使该误差传播至粒子半径 r、质量 m 和电荷数 n_q的结果中。此外，在降低压力的过程中，我们还发现，在压力降至3毫巴之前，电荷数 n_q 基本保持不变。电荷数的变化主要发生在低于1毫巴的压力范围内，这可能与光学阱中粒子的化学变化过程有关[26]。

在高真空中抑制粒子运动非线性效应的传统方法，是通过反馈系统冷却纳米颗粒的质心运动[27]。遗憾的是，在测量粒子的净电荷时，驱动粒子运动的电场不可避免地受到冷却控制，从而给净电荷测量带来误差。 尽管对捕获粒子沿两个轴进行双轴冷却，可以在不影响其电驱动部分的情况下，抑制纳米颗粒沿第三轴的非线性波动运动，但这种冷却效果无法支持精确的电荷测量。（见补充材料 II）。

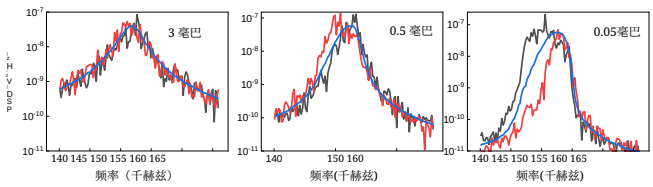

图6 非线性引起的频率波动。红线和黑线是短时轨迹，而蓝线是

长时轨迹。随着压力降低，非线性效应得到显著增强。

4. 结论

总之，我们提出并验证了一种简单的方法，可根据粒子的惯性质量参数以及谐波和热驱动的功率谱密度信号，快速测量粒子的净电荷。该方法能在宽广的压力范围内快速测量粒子的净电荷， 且不会有粒子从光学阱中逸出的风险。此方法不需要操纵净电荷，也不会改变初始电荷量。通过引入温度模拟，可以追踪动态净电荷。在压力为 P > 3 毫巴时，直接 校准结果十分精确：当 P ≥10 毫巴时，误差小于 5%；在 3 毫巴时，误差小于 20%。结合电荷整数特征，我们能够对电荷量较低的粒子实现快速且无误差的估算。压力越低，由于非线性显著增强，便会产生电荷估算误差。此外，该方法还可用于其他悬浮系统的测量，例如保罗阱、磁阱[28,29]，等。通过测量净电荷，可以迭代实现更精确的质量和密度校准[17,30]，；该方法还可用于其他悬浮纳米颗粒（如尘埃和小气溶胶）的原位、非接触表征[31-33]。

补充材料

有关误差传播和冷却的详细信息，请参阅补充材料《误差传播》《5 毫巴下的误差校正》和《冷却对直接电荷测量的影响》。

致谢

本研究获得了国家自然科学基金委员会（42004154）和浙江实验室重大科研项目（2019MB0AD01、2020MB0AL03）的资助。

[1] Renyi Zhang、Alexei Khalizov、Lin Wang、Min Hu 和 Wen Xu, 《化学评论》**112**（3），1957（2012）。[2] Henrik Svensmark、Martin B Enghoff 和 Jens Olaf Pepke Pedersen, 《物理学快报A辑》**377**（37），2343（2013）。[3] Lei Li、YiTeng Zhang、Bin Zhou 和 YongYong Feng, 《中国科学：地球科学》**59**（10），2053（2016）。[4] Yoram J Kaufman 和 Ilan Koren, 《科学》**313**（5787），655（2006）。[5] Zhenhai Fu、Shaochong Zhu、Ying Dong、Xingfan Chen、Xiaowen Gao 和 Huizhu Hu, Optics and Lasers in Engineering **152**, 106957（2022）。[6] DS Ether、LB Pires、Stefan Umrath、D Martinez、Y Ayala、B Pontes、GR de S Araújo、S Frases、G-L Ingold 和 FSS Rosa, 《欧洲物理学快报》**112**（4），44001（2015）。[7] Bradley R Slezak、Charles W Lewandowski、Jen-Feng Hsu 和 Brian D' Urso, 《新物理学杂志》**20**（6），063028（2018）。[8] Branko Salopek、Dragan Krasic 和 Suzana Filipovic, 《采矿—地质—石油文集》**4**（1），147（1992）。[9] Shardendu Prakash、Raghav Mishra、Rishabha Malviya 和 Pramod Kumar Sharma, 《时间疗法与药物递送杂志》**5**（2），33（2014）。[10] Darby Kozak、Will Anderson、Robert Vogel、Shaun Chen、Fiach Antaw 和 Matt Trau, 《ACS 纳米》**6**（8），6990（2012）。[11] Asha Sharma、Sumit Basu 和 Nandini Gupta, 《IEEE电介质与电气绝缘学报》**27**（3），866（2020）。[12] Tristan Doussineau、Marion Santacreu、Rodolphe Antoine、Philippe Dugourd、Wenjing Zhang、Isabelle Chaduc、Muriel Lansalot、Franck d'Agosto 和 Bernadette Charleux, 《化学物理化学》**14**（3），603（2013）。[13] Asha Sharma、Sumit Basu 和 Nandini Gupta, 《IEEE电介质与电气绝缘学报》**27**（2），433（2020）。[14] Erik Hebestreit、Martin Frimmer、René Reimann、Christoph Dellago、Francesco Ricci 和 Lukas Novotny, 《科学仪器评论》**89**（3），033111（2018）。[15] Martin Frimmer、Karol Luszcz、Sandra Ferreiro、Vijay Jain、Erik Hebestreit 和 Lukas Novotny, 《物理评论A辑》**95**（6），061801（2017）。[16] David C Moore、Alexander D Rider 和 Giorgio Gratta, Physical Review Letters **113** (25), 251801 (2014).[17] Francesco Ricci、Marc T Cuairan、Gerard P Conangla、Andreas W Schell 和 Romain Quidant, 《Nano Letters》**19** (10), 6711 (2019).[18] NP Bullier、A Pontin 和 PF Barker, 《物理学杂志D：应用物理》**53** (17), 175302 (2020).[19] Erik Hebestreit、Martin Frimmer、René Reimann 和 Lukas Novotny, Physical Review Letters **121** (6), 063602 (2018).[20] Ch Schönenberger 和 SF Alvarado, Physical Review Letters**65** (25), 3162 (1990).[21] Yu Zheng、Lei-Ming Zhou、Yang Dong、Cheng-Wei Qiu、Xiang-Dong Chen、Guang-Can Guo 和 Fang-Wen Sun, arXiv 预印本 arXiv:2002.02320 (2020).[22] Hong Gan、Xiaoping Zhang、Xiongyao Li、Hong Jin、Lianghai Xie 和 Yongliao Zou, 《天体物理学杂志》**930** (1), 42 (2022).[23] Mizuki Shoyama、Hironobu Yoshioka 和 Shuji Matsusaka, 《IEEE工业应用汇刊》**58** (1), 776 (2021).[24] Jamie Alexander Vovrosh, 南安普顿大学, 2018.[25] Jan Gieseler、Lukas Novotny 和 Romain Quidant, 《自然·物理》**9** (12), 806 (2013).[26] Francesco Ricci、Marc T Cuairan、Andreas W Schell、Erik Hebestreit、Raúl A Rica、Nadine Meyer 和 Romain Quidant, 《ACS纳米》(2022).[27] Shaocong Zhu、Zhenhai Fu、Xiaowen Gao、Cuihong Li、Zhiming Chen、Yingying Wang、Xingfan Chen 和 Huizhu Hu, 《光子学研究》**11** (2), 279 (2023).[28] Wolfgang Petrich、Michael H Anderson、Jason R Ensher 和 Eric A Cornell, Physical Review Letters **74** (17), 3352 (1995).[29] Jacqueline van Veldhoven、Hendrick L Bethlem 和 Gerard Meijer, Physical Review Letters **94** (8), 083001 (2005).[30] Yu Zheng、Lei-Ming Zhou、Yang Dong、Cheng-Wei Qiu、Xiang-Dong Chen、Guang-Can Guo 和 Fang-Wen Sun, Physical Review Letters **124** (22), 223603 (2020).[31] J Millen、T Deesuwan、P Barker 和 Janet Anders, 《自然·纳米技术》**9** (6), 425 (2014).[32] Fernando Monteiro、Sumita Ghosh、Adam Getzels Fine 和 David C Moore, 《物理评论A辑》**96** (6), 063841 (2017).[33] Gambhir Ranjit、Mark Cunningham、Kirsten Casey 和 Andrew A Geraci, 《物理评论A辑》**93** (5), 053801 (2016).

补充材料

I. 误差传播

为了确定计算中的误差，需要根据现有的参数条件，仔细研究所有误差来源。对于若干变量和常数，我们可以忽略相应的不确定性。q_e、k_B 和 τ. 都是常数，而 R_s 是根据测得的 $S_{dr}(\omega)$ 和 $S_{th}(\omega)$ 计算得出的，这些量仅受统计误差影响。方程（4）和（5）中质量和电荷数的误差（热平衡）为:

$$\frac{\sigma_m}{m} = \sqrt{(2\frac{\sigma_\rho}{\rho})^2+(3\frac{\sigma_T}{T})^3+(3\frac{\sigma_\Gamma}{\Gamma})^3+(3\frac{\sigma_{P_{gas}}}{P_{gas}})^3} \qquad (1)$$

$$\frac{\sigma_{n_q}}{n_q} = \sqrt{(\frac{\sigma_{E_0}}{E_0})^2+(\frac{1}{2}\frac{\sigma_T}{T})^2+(\frac{1}{2}\frac{\sigma_\Gamma}{\Gamma})^2+(\frac{1}{2}\frac{\sigma_{R_s}}{R_s})^2} \qquad (2)$$

实验中导致热平衡误差的各种参数的不确定性如下表所示:

表 I 不确定度表。黑色字体表示不可忽略的误差。灰色字体表示 σ_{z_i}~0。

物理量	数值 z_i	误差 σ_{z_i}/z_i
T	300 K	5‰[a]
$S_{th}(\omega)$	1.29×10^{-8}V²/赫兹	1.4 ‰[c]
秒$_{dr}(\omega)$	6.89×10^{-8} V²/赫兹	1.3%[c]
η_{air}	1.82×10^{-5} 帕·秒	0.03‰[1]
d	0.353×10^{-9} m	–[2]
P_{gas}	100~0.133 毫巴	2‰[d]
E_0	3800 V/m	1.1%[3]
ρ	2010 kg/m³	4.9%[4]
k_B	1.380×10^{-23} J/K^{-1}	5.72×10^{-7}[5]
q_e	1.602×10^{-19} C	6.1×10^{-9}[5]
τ	0.015 s	1 ppm[e]
m	3.406 fg	9.97%
n_q	2.37	5.12%

[a] 此误差来自温度测量误差。[b] 此误差来自拟合带来的误差过程。
[c] 此误差来自数据采集过程中数据波动造成的测量误差。
[d] 此误差来自真空计的测量误差。

[e] 苏黎世仪器 MFLI 锁相放大器数据手册中的标称值。

II. 5 毫巴下的误差 校正

在光学悬浮系统中，低气压下必须考虑热非平衡效应。图7显示了在考虑激光吸收、热传导和黑体辐射的情况下，计算得到的被囚禁二氧化硅纳米颗粒的内部温度随气体压力的变化情况[3]。

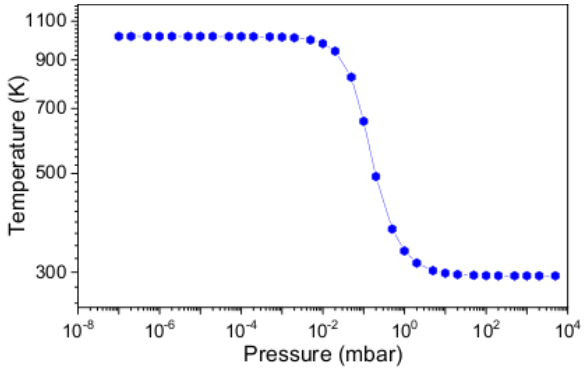

图7 压力范围为 104 毫巴至 10-7 毫巴时，计算得到的囚禁纳米粒子内部温度。

在我们的系统中，计算得到的囚禁粒子在 5 毫巴下的内部温度为 310 K。然而，系统的质心温度不可避免地与计算结果有所不同。此外，囚禁系统中不明显的非线性效应也可能导致与热运动相关的测量误差增加。

III. 冷却对直接电荷测量的影响

为抑制高真空下粒子运动的非线性效应，对囚禁纳米粒子的质心运动进行反馈冷却[6]。我们测试了不同的冷却条件。结果发现，三轴冷却可以抑制漂移并缩窄线宽。然而，测量净电荷时，施加在X轴上的电场不可避免地会受到冷却控制。沿Y轴和Z轴进行双轴冷却只能使X轴冷却达到较小的

程度，不足以满足研究需求。图7比较了在3毫巴、0.5毫巴和0.05毫巴下，未进行反馈冷却以及沿Y轴和Z轴进行反馈冷却时囚禁纳米粒子的运动稳定性。可以观察到，沿两个轴对纳米颗粒进行质心运动冷却，对抑制粒子运动非线性所起的作用并不充分。

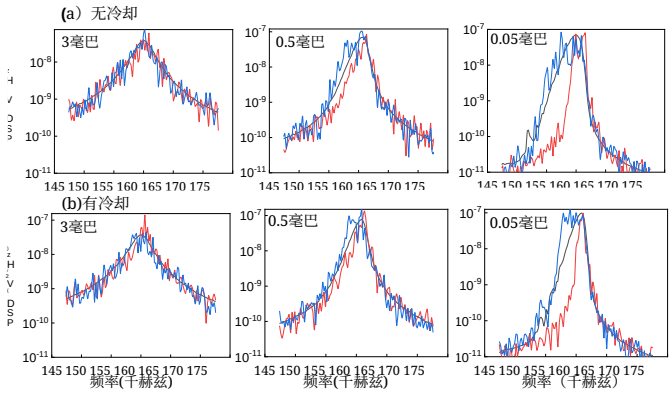

图8 通过反馈冷却抑制X轴方向运动的非线性效应。 红线和黑线表示短时轨迹，蓝线表示长时轨迹。随着压力降低，非线性效应显著增强。(a) 无冷却时X轴上的非线性引起的频率波动。(b) 沿Y轴和Z轴冷却时X轴上的非线性引起的频率波动。

[1] Bearden J A. 空气黏度的精确测定[J]. Physical Review, 1939, 56(10): 1023.[2] Loeb L B. 气体动理论[M]. Courier Corporation, 2004.[3] Fu Z, Zhu S, Dong Y, et al. 使用谐波库仑力校准悬浮纳米机械传感器的力检测灵敏度谱[J]. Optics and Lasers in Engineering, 2022, 152: 106957.[4] Zheng Y, Zhou L M, Dong Y, et al. 纳米颗粒位置和质量的稳健光悬浮计量[J]. Physical review letters, 2020, 124(22): 223603.[5] Ricci F, Cuairan M T, Conangla G P, et al. 用于精密力传感的悬浮纳米机械谐振器的精确质量测量[J]. Nano letters, 2019, 19(10): 6711-6715.[6] Zheng Y, Zhou L M, Dong Y, et al. 纳米颗粒位置和质量的稳健光悬浮计量[J]. Physical review letters, 2020, 124(22): 223603.