

第一章 簡介

1-1 研究動機

近年來電子電偶極 (electron dipole moment, EDM) 和宇稱不守恆 (Parity Nonconservation, PNC) 已經有相當多的進展 [1, 2], 而 EDM 與 PNC 的研究可以更進一步測試 Standard model 的正確與否。在相關研究中鉈原子 (thallium) 理論是這方面研究的重要一支 [3], 鉈原子光譜的精確量測與其原子結構的瞭解可以測試理論計算的正確與否, 也提供了 EDM 與 PNC 研究許多重要資訊。

對電子電偶極的研究而言, 冷的鉈原子是一個很好的研究工具, 在實驗中可以避免羅倫茲力 (Lorentz force) 造成的誤差。雷射冷卻的技術可以使原子冷卻到幾個 μK 的低溫, 本實驗量測的光譜是鉈原子在 $6P_{3/2} \rightarrow 6D_{5/2, 3/2}$ 的螢光光譜, 其中 $6P_{3/2}, F=2 \rightarrow 6D_{5/2}, F=3$ 的能階躍遷是封閉躍遷 (close transition), 可以作為雷射冷卻的能階躍遷並進一步為量測 EDM 鋪路。

就宇稱不守恆來說, PNC 的來源主要來自原子的電子與原子核的交互作用—電弱作用力。在重的原子中 PNC 主要來自原子弱電荷 (nucleus weak charge) Q_w , 但是要瞭解原子弱電荷則必須對原子結構有所瞭解, 因此原子的超精細能階結構 (hyperfine structure)、電偶極能階躍遷強度 (electric dipole transition amplitudes), 同位素平移 (isotope shift) 等的精確量測與研究就變的相當重要。此外 M1 與 E2 forbidden transition 的量測是驗證 PNC 的重要參數, 目前鉈原子 $6P_{1/2} \rightarrow 6D_{3/2}$ 的光譜已經有人發表 [4], 但是對 $6D_{5/2, 3/2}$ 的 hyperfine structure 的精確量測還沒有人發表。若將其與本實驗躍遷譜線 $6P_{3/2} \rightarrow 6D_{3/2}$ 與 $6P_{1/2} \rightarrow 6D_{3/2}$ 的譜線做比較, 則可得到 $6P_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ forbidden transition 的雷射光譜資訊, 提供研究 PNC 的另一項參考。

1-2 鉈原子能階與基本性質

鉈原子的原子序為 81，自然界中穩定的鉈原子同位素為 ^{205}Tl (佔 70.48 %) 與 ^{203}Tl (佔 29.52 %)，兩個同位素的原子核自旋量 (I) 皆為 $I = 1/2$ 。圖 1.1 為鉈原子的能階躍遷圖，基態的鉈原子電子是位在 $6\text{P}_{1/2}$ 能階上。本實驗是先用 377nm 的紫光把鉈原子激發到 $7\text{S}_{1/2}$ 能階，其中有部分的鉈原子會放出 535nm 的綠光掉到 $6\text{P}_{3/2}$ 的準穩態上，此時再用 352 nm 與 353 nm 的紫光把位於準穩態的鉈原子打到 $6\text{D}_{5/2}$ 與 $6\text{D}_{3/2}$ 能階上，再觀察兩能階的螢光訊號量得光譜。

下面將鉈原子的能階與基本性質做個整理：

同位素	原子質量 (m_a/u)	同位素含量分佈 (原子)	原子核自旋值 (I)	磁偶極 (μ/μ_N)
^{203}Tl	202.972320 (5)	29.524 (14)	$1/2$	1.622257
^{205}Tl	204.974401 (5)	70.476 (14)	$1/2$	1.6382135

表 1-1 鉈原子同位素基本性質 [5]

熔點 [K]： 577 [304 °C (579 °F)]
沸點 [K]： 1746 [1473 °C (2683 °F)] (流體範圍：1169 K)
超導態溫度 [K]： 2.38 [-270.77 °C (-455.39 °F)]

表 1-2 鉈原子之熱性質 [5]

	鉈原子溫度 (K) 對蒸氣壓 (TORR)								
蒸氣 壓	10^{-11}	10^{-10}	10^{-9}	10^{-8}	10^{-7}	10^{-6}	10^{-5}	10^{-4}	10^{-3}
溫度	473	499	527	556	592	632	680	736	803

表 1-3 鉈原子蒸氣壓與溫度關係 [6]

基態之電子組態： $[\text{Xe}].4f^{14}.5d^{10}.6s^2.6p^1$

第一游離能： $589.4 \text{ kJ mol}^{-1}$ [5]

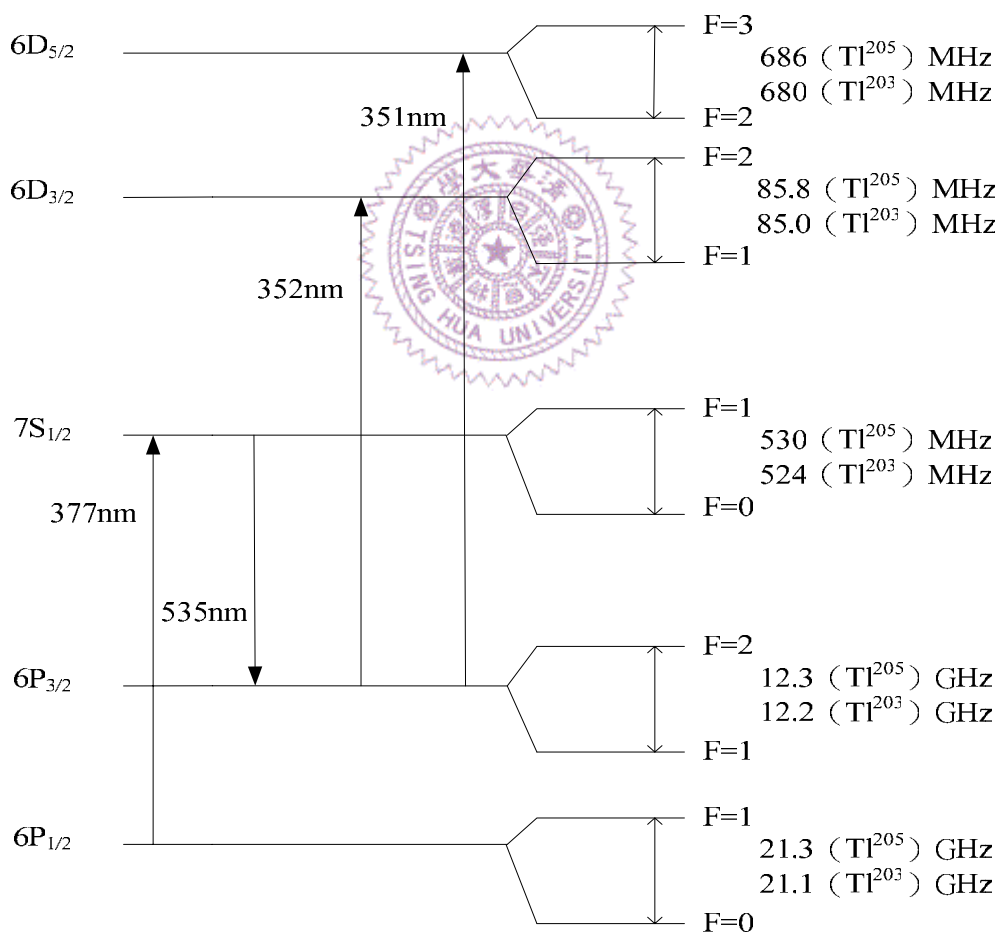


圖1.1 鉈原子能階躍遷圖

Hyperfine splitting 參考 Ref [7] [8] [9]

1-3 光學幫浦 (optical pumping)

因爲本實驗所量測的光譜是準穩態 $6P_{3/2}$ 躍遷到 $6D_{5/2, 3/2}$ 能階的螢光光譜，因此我們必須考慮經過 377 nm 紫光的激發下 ($6P_{1/2}, F=1 \rightarrow 7S_{1/2}, F=1$)，鉈原子在各能階的分佈爲何，有多少原子落在 $6P_{3/2}$ 的準穩態上。

以愛因斯坦的 AB coefficient 理論爲依據，則可列出下面的 rate equation：

$$\begin{aligned} N_2'[t] &= -B_{24} \times N_2[t] \times \rho + B_{42} \times N_4[t] \times \rho + A_{42} \times N_4[t] \\ N_4'[t] &= B_{24} \times N_2 \times \rho - B_{42} N_4 \times \rho - A_{42} \times N_4 - A_{46} \times N_4 - A_{45} \times N_4 - A_{41} \times N_4 \\ N_6'[t] &= A_{46} \times N_4 \\ N_5'[t] &= A_{45} \times N_4 \\ N_1'[t] &= A_{41} \times N_4 \end{aligned}$$

(1-1 式)

(1-1 式)中 $N_1[t] \sim N_6[t]$ 爲各能階的 population 量，其中的 A 與 B 爲 Einstein AB coefficients， ρ 爲 energy density (J/m^3)，各能階代號與能階躍遷如 圖 1.2 所示。

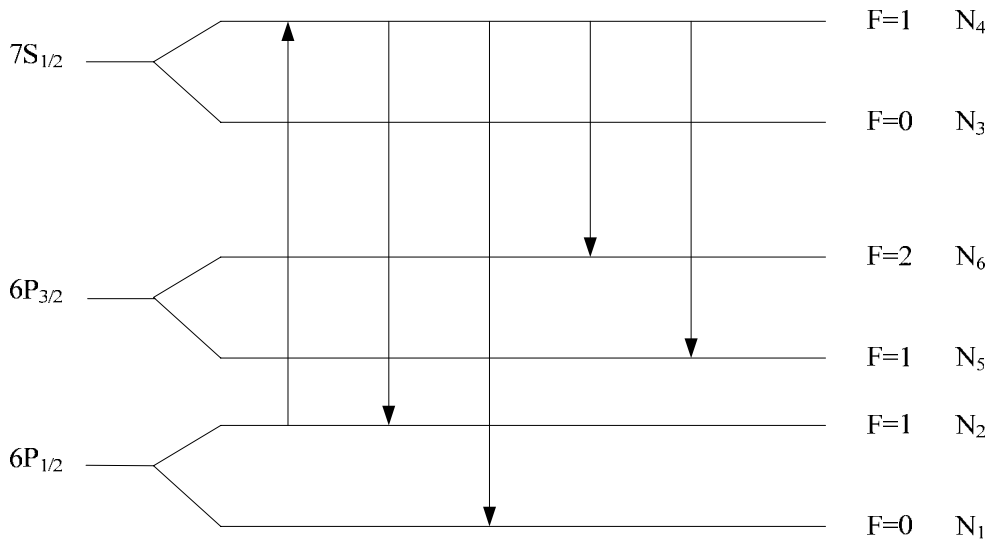


圖1.2 rate equation 示意圖

377nm 的 pumping light 即爲圖 1.2 中觸發 N_2 到 N_4 能階躍遷的光，rate equation 中的 Einstein A B coefficient 如下所列 [10]：

$$\begin{aligned}
A_{42} &= 3.125 \times 10^7 \quad (1/S) \\
A_{41} &= 1.5625 \times 10^7 \quad (1/S) \\
A_{46} &= 4.40625 \times 10^7 \quad (1/S) \\
A_{45} &= 0.88125 \times 10^7 \quad (1/S) \\
B_{42} &= 4.0736 \times 10^{22} \quad (m^3/J \cdot S) \\
B_{24} &= 4.0736 \times 10^{22} \quad (m^3/J \cdot S)
\end{aligned}$$

將 Einstein A B coefficient 代入 rate equation 中計算可得各能階隨時間的變化，本實驗的鉍原子加熱到 460°C，鉍原子在此溫度的飛行速度約為 300 m/s，377 nm 紫光的寬度約為 10 mm，即鉍原子與紫光作用時間約為 3.333×10^{-5} 秒，如果 377 nm 紫光功率以 0.1 mW 估計，將上述參數代入 rate equation (1-1 式)，以軟體 Mathematica 利用數值連續疊代求出照射紫光 3.333×10^{-5} 秒後各能階分佈量的百分比：

$$N_1[t_f] = 0.421077$$

$$N_2[t_f] = 0$$

$$N_4[t_f] = 0$$

$$N_5[t_f] = 0.0964872$$

$$N_6[t_f] = 0.482436$$

$$t_f = 3.333 \times 10^{-5} \text{ 秒}$$



從以上結果可以得知鉍原子在 $6P_{1/2}, F=1$ 與 $7S_{1/2}, F=1$ 能階上的分量已趨近為零，有約 58%的鉍原子位在 $6P_{3/2}$ 準穩態上，達到 optical pumping 的效果。

1-4 鉈原子以 $6P_{3/2}, F=2 \rightarrow 6D_{5/2}, F=3$ 躍遷之雷射冷卻研究

鉈原子 $6P_{3/2}, F=2 \rightarrow 6D_{5/2}, F=3$ 的能階躍遷是一個封閉躍遷 (close transition)，以 352 nm 的紫光把鉈原子從 $6P_{3/2}, F=2$ 打到 $6D_{5/2}, F=3$ 後只會再掉回 $6P_{3/2}, F=2$ 的能階上，因此適合當作進行雷射冷卻之能階躍遷。雷射冷卻的機制很多，本小節討論的機制主要是都卜勒冷卻 (Doppler cooling)。

都卜勒冷卻是利用自發輻射力 (spontaneous force 或 radiation pressure) 去減速原子，自發輻射力主要是源自光子的動量轉移到原子上而產生。如圖 1.3 所示，當一原子吸收某一特定方向的光子後其自發輻射的光子是沒有方向性的，也就等於原子多了原特定方向光子的動量，當光子前進方向與原子前進方向相反時，原子就會因吸收光子動量而減速。

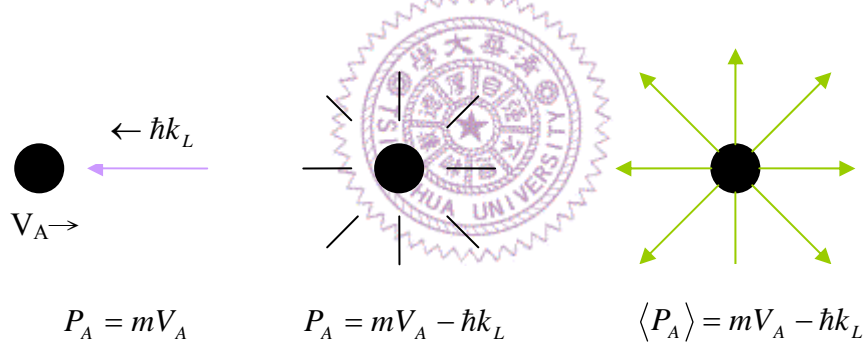


圖 1.3：左圖：質量 m 的原子以速度 V_A 朝右方前進，吸收了一顆方向朝左動量為 $\hbar k_L$ 的光子。中間圖：因吸收光子而在激發態的原子其動量改變為 $P_A = mV_A - \hbar k_L$ 。右圖：光子因自發輻射無方向性地輻射螢光，在吸收與放出光子後原子的平均動量變為 $\langle P_A \rangle = mV_A - \hbar k_L$ 。

原子因吸收光而受到自發輻射力可以用 (1-2 式) 表示：

$$F_{sp} = \hbar k \gamma \rho_{ee} \quad (1-2 \text{ 式})$$

式子中的第一項是每個光子動量 ($\hbar k$)，第二項是這個過程的速率 (γ)，最後一項是原子在激發態的機率。對一個雙能階系統而言，一原子吸收光後自發輻射所受的力可以寫成：

$$F_{sp} = \frac{\hbar k s_0 \gamma / 2}{1 + s_0 + (2\delta / \gamma)^2}, \quad \delta: \text{調離共振頻率的頻率差} \quad (1-3 \text{ 式})$$

$$s_0 \equiv \frac{2|\Omega|^2}{\gamma^2}, \quad \text{共振時的飽和參數 (on-resonance saturation parameter)} \quad (1-4 \text{ 式})$$

$$\Omega \equiv \frac{-eE_0}{\hbar} \langle e|r|g \rangle, \quad \text{Rabi frequency} \quad (1-5 \text{ 式})$$

從上式可以看出不斷增加光的強度並不會讓自發輻射力不斷變大，因為分母的 s_0 值也會跟著變大，最後導致自發輻射力達到一個飽和值 $\hbar k \gamma / 2$ 。對一個正向前進的原子而言，其受到的平均力為光子動量乘上吸收光子的速率：

$$F_{\pm} = \pm \hbar k \frac{\gamma}{2} \left[\frac{I / I_0}{1 + I / I_0 + [2(\delta \mp kv) / \gamma]^2} \right], \quad I_0: \text{飽和強度}。 \quad (1-6 \text{ 式})$$

(1-6 式) 中的正 (負) 號表示光朝正 (負) 方向前進。如果考慮兩道方向相反但重合的光各自打在原子上時，其平均力為 $F_+ + F_-$ ，在 $I/I_0 \ll 1$ 的限制下可得：

$$F = \frac{\hbar k \gamma}{2} \frac{I}{I_0} \frac{kv}{\gamma} \frac{16\delta / \gamma}{1 + \frac{8}{\gamma^2}(\delta^2 + k^2 v^2) + \frac{16}{\gamma^4}(\delta^2 - k^2 v^2)^2} \quad (1-7 \text{ 式})$$

(1-7 式) 中發現，如果 δ 為負值則自發輻射力的方向會與原子運動方向相反。當 kv 值遠小於 γ 與 δ 時，因自發輻射力所造成的力正比於一參數 α 乘上速度：

$$\alpha = -4\hbar k^2 \frac{I}{I_0} \frac{(2\delta / \gamma)}{[1 + I / I_0 + (2\delta / \gamma)^2]^2} \quad (1-8 \text{ 式})$$

$$F = \alpha V \quad (1-9 \text{ 式})$$

使動能減至原來 $1/e$ 的特徵時間值 τ 為：

$$\tau = \frac{m}{2\alpha} \quad (1-10 \text{ 式})$$

都卜勒冷卻的機制並不會使原子無止境的降溫，降溫到某個程度後冷卻的速率會與光子動量擾動所加熱原子的速率達成平衡。設定降溫與加熱的速率相等，考慮一維運動動能為 $1/2k_B T$ 可得：

$$k_B T = \frac{\hbar \gamma}{4} \frac{1 + (2\delta/\gamma)^2}{2|\delta|/\gamma} \quad (1-11 \text{ 式})$$

從上式可以看出溫度與雷射調離共振頻率的差值 δ 有關。最低溫度是在 $\delta = -\gamma/2$ 發生，此時溫度與 δ 的關係為：

$$k_B T = \hbar \frac{\gamma}{2} \quad (1-12 \text{ 式})$$



上式所得溫度為都卜勒冷卻的極限低溫，約為幾個 μK 。

下面討論鉈原子以 $6P_{3/2}, F=2 \rightarrow 6D_{5/2}, F=3$ 能階進行都卜勒冷卻的情形，所構想的實驗架設如圖 1.4 所示。鉈原子以 $6P_{3/2}, F=2 \rightarrow 6D_{5/2}, F=3$ 能階進行都卜勒冷卻的參數如表 1-4 所示：

	A value (MHz)	鉈原子的質量 (Kg)	橫向飛行速度 (m/s)	通過紫光時間 (sec)	Laser detune δ
^{205}Tl	72.33	3.395×10^{-25}	12.7	6.666667×10^{-5}	$-1/2 \gamma$

表 1-4 雷射冷卻鉈原子之參數

按照上面的參數，通過紫光後橫向速度約降低至 12.1 m/s。如果想要把鉍原子減速至 1 m/s，則 352 nm 紫光所需功率為 1 mW。

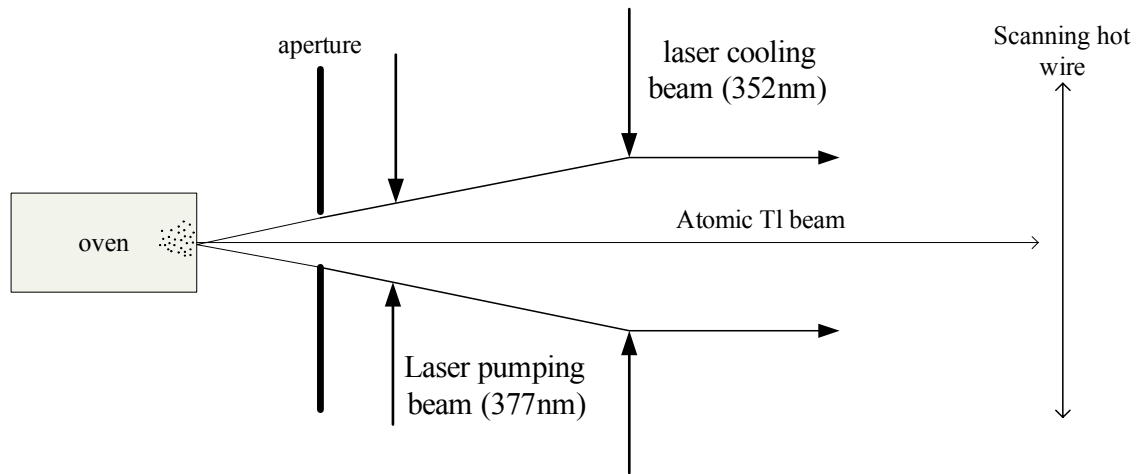


圖 1.4 雷射冷卻示意圖



1-5 飛秒光頻梳量測絕對頻率

本實驗量測 $^{205}\text{Tl } 6P_{3/2}, F=2 \rightarrow 6D_{5/2}, F=3$ 的頻率是用施宙聰老師實驗室所架設的飛秒光頻梳 (Femtosecond Optical Frequency Comb) 量測，其光源為一台鎖模藍寶石雷射 (Mode-locked Ti:Sapphire laser)，此雷射產生超短的脈衝，再經過非线性光纖拉開頻寬而得到極廣的頻譜範圍。這種脈衝光的特色是在頻譜上有許多頻率間距相等的雷射模，這一根一根的雷射模就如同一把尺上的刻度用來量測待測光的頻率值。雷射模的頻率值可表示為：

$$f = n f_{\text{rep}} \pm f_0 \pm f_{\text{beat}} \quad (1-13 \text{式})$$

其中 f_{rep} 為光梳的重複率 (repetition rate)， f_0 為 offset frequency， f_{beat} 為頻差 (beat frequency)。就實驗量測而言 f_{rep} 與 f_0 皆為已知值，當得到待測光與飛秒光頻梳的拍頻信號 f_{beat} 後，再透過上式與適當的參考頻率即可得到待測光的絕對頻率。取得拍頻信號之實驗量測狀況如圖1.5所示。

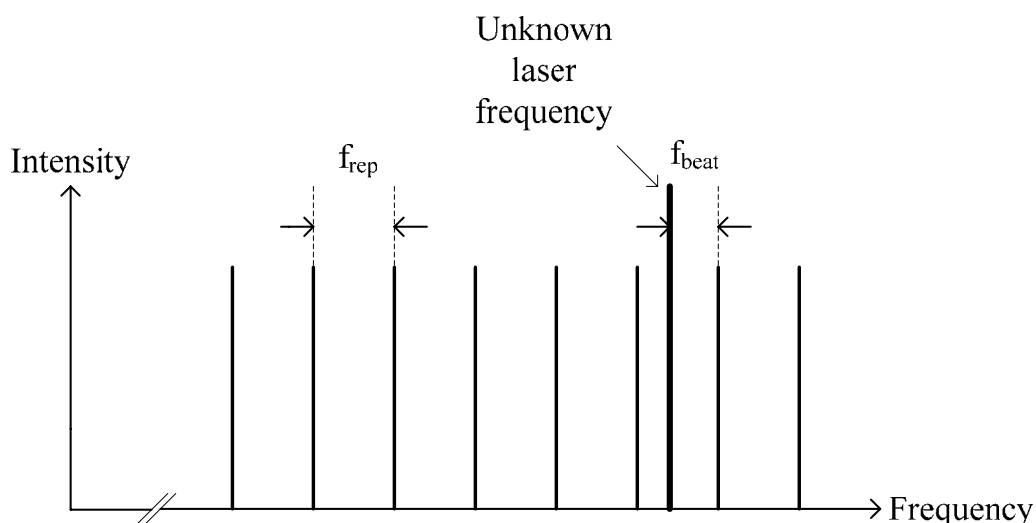


圖1.5 絕對頻率量測示意圖