

Medida de la sección eficaz de absorción de dos fotones en átomos de Cesio

Michael Stiven Caracas Núñez

Director: Mayerlin Núñez Portela Ph.D.

Revisor: Dr. José Alejandro García Varela



Proyecto Experimental
Departamento de Física
Bogotá, Colombia

29 de julio de 2022

Índice general

1. Introducción	1
1.1. Estado del Arte	1
1.1.1. Absorción de dos Fotones	1
1.1.2. Sección Eficaz	2
1.2. Problema de Investigación	6
1.3. Justificación	6
1.4. Consideraciones Éticas	7
1.5. Objetivos	7
2. Metodología Experimental	9
2.1. Montaje Experimental	9
2.2. Caracaterización del Montaje Experimental	10
2.3. Caracterización del Láser	11
2.4. Señal de Fluorescencia	12
2.4.1. Ensanchamiento por Efecto Doppler	14
3. Resultados y Discusión	15
3.1. Señal Fluorescencia en Tiempo y en Longitud de Onda	15
3.2. Discusión de Resultados	17
3.3. Conclusiones y Perspectivas	18

Capítulo 1

Introducción

1.1 Estado del Arte

1.1.1 Absorción de dos Fotones

La absorción de dos fotones, 2PA por sus siglas en inglés (Two-photon Absorption), es el proceso por el cual una molécula absorbe un par de fotones tal que la energía de estos induce una transición del estado base de energía de la molécula a un estado excitado [1]. Este proceso de absorción simultánea fue analizado teóricamente por primera vez en la década de 1930 por Göppert-Mayer, quien a partir de la teoría de dispersión de Dirac, calculó la probabilidad de que un átomo emitiera simultáneamente dos fotones y posteriormente consideró el proceso inverso, la absorción de dos fotones [2].

Los cálculos teóricos de Mayer se demostraron experimentalmente por primera vez en 1961 poco después de la invención del láser [3]. W. Kaiser y C.G. Garrett, quienes realizaron este primer experimento, investigaron la generación de luz fluorescente azul, de alrededor de $\lambda = 425$ nm, mediante la iluminación cristales de $CaF_2 : Eu^{2+}$ con luz roja ($\lambda = 694,3$ nm) utilizando un maser óptico de rubi [4]. Posteriormente, en 1962 I.D Abella estudio el proceso de 2PA en átomos de Cesio, observando la transición entre los estados $6S_{1/2}$ y $9D_{3/2}$, también por medio un máser de rubi [5].

La invención de la microscopía de fluorescencia de dos fotones a manos de Webb y su equipo de trabajo en 1990 llevó a un alto interés en el estudio de todo tipo de procesos multifotónicos, y desde entonces se han desarrollado aplicaciones del 2PA en microscopía, microfabricación, almacenamiento tridimensional de datos, limitación de potencia óptica, terapia fotodinámica y en la liberación localizada de especies bioactivas [3].

La investigación de las propiedades del 2PA en materiales orgánicos también ha crecido de forma significativa desde la decada de 1990 debido a que cada material necesita ser identificado en cada aplicación del 2PA, caracterizando los requerimientos que estos necesitan para exhibir este proceso. Estos requerimientos suelen ser una combinación de la probabilidad de que se presente el 2PA a una determinada longitud de onda (cuantificada por la sección eficaz del 2PA), y una alta sensibilidad para que se produzca un efecto secundario debido a la absorción de dos fotones. Dicho efecto secundario

puede ser la emisión de fluorescencia, una reacción fotoquímica, o una sensibilización de otro material [1].

Desde la comprobación experimental de la absorción de dos fotones, se han desarrollado diversas técnicas para determinar el espectro del 2PA de diversos materiales y medir sus secciones eficaces, en particular para moléculas [6, 7, 8] y átomos de Rubidio [9]. En la actualidad podemos clasificar estas técnicas en dos grandes categorías: métodos directos, en los que se mide la atenuación del láser usado en la excitación del material; y métodos indirectos, en los que se miden los efectos secundarios producidos por el 2PA (fluorescencia inducida, cambio en la temperatura del material, etc) [1].

El proceso de absorción de dos fotones se puede dividir a su vez en dos casos, el caso degenerado, en el que los dos fotones tienen la misma energía, y el caso no degenerado, en el que la energía de los fotones es distinta (ver Figura 1.1).

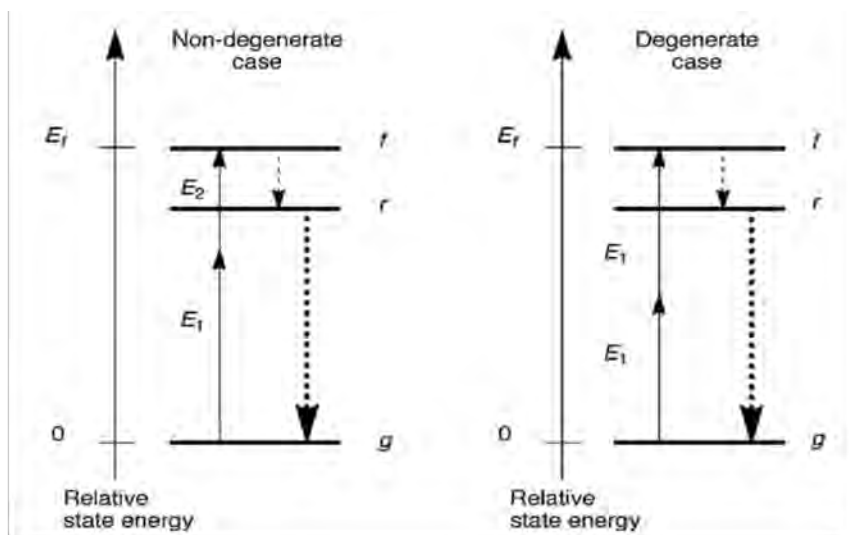


Figura 1.1: Esquema del diagrama de energía que muestra la excitación de una molécula del estado base g , a un estado excitado f , localizado a una energía E_f sobre el estado base. Imagen tomada de [1].

La gran mayoría de los resultados en la medida de la sección eficaz del 2PA corresponden al caso degenerado, y algunas aplicaciones del uso de rayos de luz no degenerados han sido descritas para casos particulares, como el del Rubidio, y pueden volverse más conocidas una vez que se entiendan mejor las propiedades de los materiales bajo este tipo de absorción [1]. Para átomos alcalinos existen pocos trabajos que reporten medidas experimentales, más allá de los cálculos, sobre la sección eficaz del 2PA, por lo que el objetivo del presente trabajo es extender el conocimiento en este campo realizando estas medidas para el átomo de Cesio en particular.

1.1.2 Sección Eficaz

Ecuación de Propagación y Sección Eficaz

Consideremos un haz de luz de longitud de onda λ y frecuencia angular ω que incide sobre un material capaz de exhibir el proceso de absorción de dos fotones. Si el

haz en cuestión se propaga a lo largo del eje z , la sección eficaz $\sigma^{(2)}$ se puede relacionar con el flujo de fotones ϕ y la densidad de moléculas en el estado base N del material 2PA mediante la ecuación de propagación [1] (Ver Figura 1.2)

$$\frac{d\phi}{dz} = -N\sigma^{(2)}\phi^2. \quad (1.1)$$

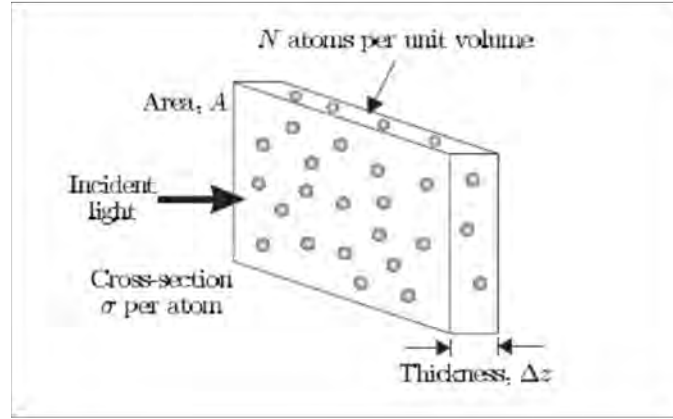


Figura 1.2: Representación gráfica de un haz que incide sobre un bloque de espesor Δz , área A , densidad de átomos N y sección eficaz por átomo σ . El cambio en la intensidad de la luz en función de la distancia de propagación a lo largo del material (atenuación) es proporcional a σ . Imagen tomada de [10]

El flujo de fotones se relaciona con la intensidad del haz incidente I mediante la energía del fotón $E_\nu = hc/\lambda = \hbar\omega$:

$$\phi = \frac{I}{E_\nu}, \quad (1.2)$$

de forma que la ecuación (1.1) se puede reescribir en términos de la intensidad como

$$\frac{dI}{dz} = -N\sigma^{(2)}\frac{I^2}{E_\nu}. \quad (1.3)$$

Si queremos relacionar la sección eficaz con la tasa de fotones (fotones por unidad de tiempo), lo que debemos hacer es integrar esta cantidad con respecto al volumen del haz a lo largo del material 2PA:

$$Rate = \int \frac{dI}{dz} dV = \int -N\sigma^{(2)}\frac{I^2}{E_\nu} dV. \quad (1.4)$$

Esta integral es equivalente a multiplicar por el volumen V del haz a lo largo del material:

$$Rate = -N\sigma^{(2)}\frac{I^2}{E_\nu}V. \quad (1.5)$$

y si asumimos que el haz está colimado a lo largo del material, podemos escribir el volumen como $V = Az_R$, donde $A = \pi w_0^2$ es el área del perfil transversal del haz, w_0

es la cintura del láser, y z_R es el rango de Rayleigh del haz. Usando esto y la ecuación (1.4) podemos reescribir la tasa de fotones (1.3) como

$$Rate = -N\sigma^{(2)} \left(\frac{I^2}{E_V} \right) A z_R, \quad (1.6)$$

si usamos ahora el hecho de que la intensidad es potencia P sobre área A , la expresión del $Rate$ se convierte en

$$Rate = -N\sigma^{(2)} \frac{P^2}{AE_V} z_R, \quad (1.7)$$

finalmente, como $z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$, se obtiene una expresión final para el $Rate$ en función de la sección eficaz del 2PA y la potencia del láser:

$$Rate = -N\sigma^{(2)} \frac{P^2}{hc}. \quad (1.8)$$

Esta ecuación nos indica que, si experimentalmente se obtienen medidas para la tasa de fotones en función de la potencia del láser, se podrá encontrar una relación lineal entre el $Rate$ y el cuadrado de la potencia P , cuya pendiente estará relacionada con la sección eficaz del 2PA $\sigma^{(2)}$. En este experimento esta tasa de fotones corresponde a la señal de fluorescencia inducida en los átomos de Cesio mediante 2PA que se puede medir cuando los átomos decaen del estado final de energía excitado al estado base.

Tasa de Transición y Sección Eficaz

En lugar de relacionar la sección eficaz del 2PA con la tasa de fotones, podemos relacionarla con la tasa de transición de dos fotones (probabilidad de transición por unidad de tiempo) $\Gamma_{i \rightarrow n}$ desde un estado inicial i a un estado excitado n . Para lograr esto, se aplica la teoría de perturbaciones dependiente del tiempo para realizar el cálculo explícito de la tasa de transición, y así se encuentra que [11]

$$\Gamma_{i \rightarrow f} = \left(\frac{2\pi}{\hbar^3} \right) \left(\frac{e|E_0|}{2} \right)^4 \left(\sum_{m,j} \frac{\mu_{ij}\mu_{jf}\mu_{fm}\mu_{mi}}{(\omega_{mi} - \omega)(\omega_{ji} - \omega_{int})} \right) \delta(E_f - E_i - 2\hbar\omega), \quad (1.9)$$

donde e es la carga del electrón, E_0 es la amplitud de intensidad del láser, m, j son estados virtuales entre los estados inicial i y excitado f , ω_{mi}, ω_{ji} son las frecuencias angulares de transición entre los estados $m \rightarrow i$, y $j \rightarrow i$, respectivamente, ω es la frecuencia angular del haz incidente, ω_{int} es un valor fijo de frecuencia angular correspondiente a un nivel intermedio entre los niveles j , y $\mu_{ij}, \mu_{jf}, \mu_{fm}, \mu_{mi}$ son los elementos matriciales del operador de dipolo eléctrico definidos como

$$\begin{aligned} \mu_{ij} &= \langle i | \hat{\mathbf{e}} \cdot \hat{\mathbf{r}} | j \rangle, \\ \mu_{if} &= \langle i | \hat{\mathbf{e}} \cdot \hat{\mathbf{r}} | f \rangle, \\ \mu_{fm} &= \langle f | \hat{\mathbf{e}} \cdot \hat{\mathbf{r}} | m \rangle, \\ \mu_{mi} &= \langle m | \hat{\mathbf{e}} \cdot \hat{\mathbf{r}} | i \rangle, \end{aligned}$$

donde $\hat{\epsilon}$ es la dirección de polarización del láser. Si se multiplica la tasa de transición (1.8) por la densidad de fotones en el estado base N , se puede obtener la tasa de transición por unidad de volumen

$$\Gamma_{i \rightarrow f}^{(2)} = \left(\frac{2\pi N}{\hbar^3} \right) \left(\frac{e|E_0|}{2} \right)^4 \left(\sum_{m,j} \frac{\mu_{ij}\mu_{jf}\mu_{fm}\mu_{mi}}{(\omega_{mi} - \omega)(\omega_{ji} - \omega_{int})} \right) \delta(E_f - E_i - 2\hbar\omega). \quad (1.10)$$

Esta tasa de transición por unidad de volumen es la que se puede usar para realizar el cálculo de la sección eficaz $\sigma^{(2)}$. La ecuación (1.3) indica que

$$\frac{dI}{dz} = -N\sigma^{(2)} \left(\frac{I^2}{E_v} \right) = -\frac{\beta}{E_v} I^2, \quad (1.11)$$

donde β es el coeficiente de absorción de 2PA. Este coeficiente se puede definir en función de la frecuencia del haz incidente como [12]

$$\beta(\omega) = \frac{2\hbar\omega}{I^2} \Gamma_{i \rightarrow f}^{(2)} = N\sigma^{(2)}, \quad (1.12)$$

y con base en esto podemos dar otra definición para la sección eficaz, esta vez en función de la tasa de transición por unidad de volumen, como

$$\sigma^{(2)} = \left(\frac{2\hbar\omega}{NI^2} \right) \left(\frac{2\pi N}{\hbar^3} \right) \left(\frac{e|E_0|}{2} \right)^4 \left(\sum_{m,j} \frac{\mu_{ij}\mu_{jf}\mu_{fm}\mu_{mi}}{(\omega_{mi} - \omega)(\omega_{ji} - \omega_{int})} \right) \delta(E_f - E_i - 2\hbar\omega). \quad (1.13)$$

La función delta que aparece en la tasa de transición indica un ensanchamiento de la línea espectral por medio de la lorentziana

$$\delta(E_f - E_i - 2\hbar\omega) = \frac{1}{\hbar} \left(\frac{\gamma_{fi}}{(\omega_{fi} - 2\omega)^2 + \gamma_{fi}^2\pi^2} \right), \quad (1.14)$$

donde γ_{fi} corresponde al ancho de línea natural de la transición. Con esto, y usando el hecho de que $\omega = 2\pi\nu$, podemos reescribir la sección eficaz (1.12) como

$$\sigma^{(2)} = \left(\frac{(e|E_0|)^4 \nu}{I^2} \right) \left(\frac{\pi}{4h^3} \right) \left(\sum_{m,j} \frac{\mu_{ij}\mu_{jf}\mu_{fm}\mu_{mi}}{(\nu_{mi} - \nu)(\nu_{ji} - \nu_{int})} \right) \left(\frac{\gamma_{fi}}{(\nu_{fi} - 2\nu)^2 + \gamma_{fi}^2/4} \right). \quad (1.15)$$

Considerando que a lo largo del material 2PA, la onda se puede considerar plana y monocromática, la intensidad la podemos escribir como

$$I = \frac{c\epsilon_0}{2} |E_0|^2, \quad (1.16)$$

donde ϵ_0 es la permitividad eléctrica del vacío. Con esto, la ecuación (1.14) se convierte en

$$\sigma^{(2)} = \left(\frac{\nu e^4 \mu_0}{\epsilon_0 h^3} \right) \left(\sum_{m,j} \frac{\mu_{ij}\mu_{jf}\mu_{fm}\mu_{mi}}{(\nu_{mi} - \nu)(\nu_{ji} - \nu_{int})} \right) \left(\frac{\gamma_{fi}}{(\nu_{fi} - 2\nu)^2 + \gamma_{fi}^2/4} \right), \quad (1.17)$$

donde μ_0 es la permeabilidad del vacío.

Para el caso del átomo de Cesio, las frecuencias de transición vienen dadas, a partir de las reglas de selección para la absorción de dos fotones, por las transiciones $6S_{1/2} \rightarrow 8S_{1/2}$, $6S_{1/2} \rightarrow 7D_{3/2}$ y $6S_{1/2} \rightarrow 7D_{5/2}$, como se ve en la Figura 1.3:

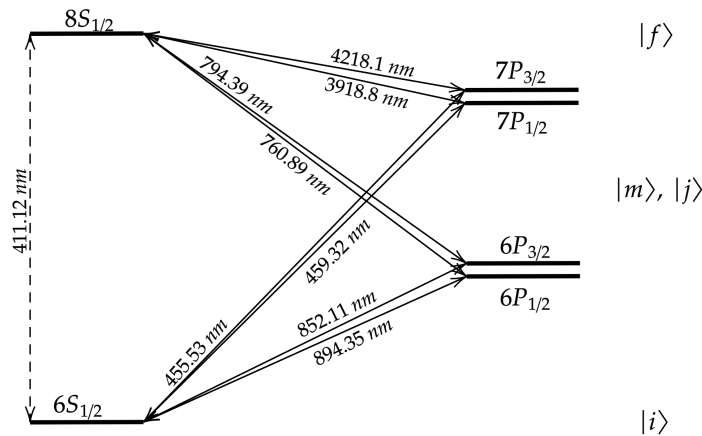


Figura 1.3: Esquema de las transiciones del átomo de Cesio a partir de las reglas de selección para absorción de uno y dos fotones. Las de un fotón están denotadas por líneas sólidas, mientras que las de dos fotones se indican mediante las líneas punteadas. Cada línea representa los posibles caminos de transición (excitación a un nivel de energía superior o decaimiento a uno inferior). En este experimento la fluorescencia se observa en la transición $8S_{1/2} - 6S_{1/2}$, que es el decaimiento del estado excitado final al estado base. El valor de las longitudes de onda correspondientes a cada transición fueron tomados de [13, 14, 15, 16, 17, 18]. Imagen tomada de [11].

1.2 Problema de Investigación

El presente trabajo consiste en estudiar el proceso de absorción de dos fotones en una celda de Cesio mediante la técnica de fluorescencia inducida, que consiste en medir la tasa de fotones emitidos por fluorescencia en función de la longitud de onda del láser, y a partir de la potencia de este y la señal de fluorescencia calcular la sección eficaz del 2PA degenerado para el átomo de Cesio por medio de la ecuación (1.8).

1.3 Justificación

Como ya se observó, el 2PA tiene una amplia serie de aplicaciones en diferentes áreas de desarrollo tecnológico y de conocimiento, los ejemplos mencionados en la sección anterior fueron la espectroscopía de materiales, microscopía, microfabricación, almacenamiento de datos, terapia fotodinámica, etc. Esto demuestra la importancia en la actualidad que tiene la investigación de este proceso de absorción de fotones. La razón por la que se escoge el Cesio es porque es un átomo hidrogenoide, lo que aporta la gran ventaja de aplicar un análisis teórico, previo al experimento, muy similar al del átomo de hidrógeno. Además, el Cesio (específicamente sus frecuencias de transición) es muy utilizado en medidas de tiempo (relojes), sistemas de posicionamiento global satelital (GPS), redes de telecomunicación, y varias aplicaciones más.

Medir la sección eficaz $\sigma^{(2)}$ del 2PA es en general, el punto de partida para realizar experimentos que buscan producir transiciones que provoca esta interacción multifotónica usando otros tipos de fuentes de luz, como por ejemplo, fuentes de pares de fotones enredados. Por esto el objetivo principal del presente proyecto se centra en la obtención

de este $\sigma^{(2)}$.

1.4 Consideraciones Éticas

El presente proyecto sobre la medida de la sección eficaz de la absorción de dos fotones tiene dos facetas, una de carácter teórico y la otra experimental. En la parte teórica se referenciarán adecuadamente todas las fuentes consultadas en el estudio de los temas involucrados. En la parte experimental, la medición de datos y subsecuente reporte se realizarán de forma adecuada sin hacer alteraciones a los valores. Adicionalmente, el desarrollo del proyecto no supone ningún conflicto de intereses y no está relacionado con actividades ni poblaciones humanas. En este sentido, no se considera necesario que el proyecto pase a estudio del comité de ética de la Facultad de Ciencias.

1.5 Objetivos

Objetivo General:

Medir la sección eficaz de absorción de dos fotones degenerados para átomos de Cesio.

Objetivos Específicos:

- Caracterizar totalmente el montaje experimental para la absorción de dos fotones degenerados en la frecuencia de resonancia del 2PA en átomos de Cesio para las líneas de transición $6S_{1/2} - - > 6P_{1/2}/6P_{3/2} - - > 8S_{1/2}$.
- Determinar si la absorción de dos fotones del átomo de Cesio permite observar fluorescencia en el mismo.
- Obtener una curva del número de fotones en función de la longitud de onda mediante la técnica de fluorescencia inducida por 2PA, en el régimen de absorción saturada libre de efecto Doppler.

Capítulo 2

Metodología Experimental

2.1 Montaje Experimental

En el experimento de la fluorescencia inducida en el átomo de Cesio mediante la absorción de dos fotones se utilizarán los siguientes materiales:

- Acoplador a fibra óptica CFC-2X-B.
- Diodo láser de 822 nm (LDM56/M).
- Tubo fotomultiplicador (PMT).
- Espejos (E03).
- Celda de Cesio.
- Rejilla de difracción (RD, 1200 líneas por milímetro).
- Medidor de longitud de onda (Wavelength-meter).
- Lente Convergente de foco $f = 50$ mm (LC).
- Filtro Pasa-Altas.
- Divisor de haz de reflexión débil (BS).

El montaje experimental a utilizar es el mostrado en la Figura 2.1

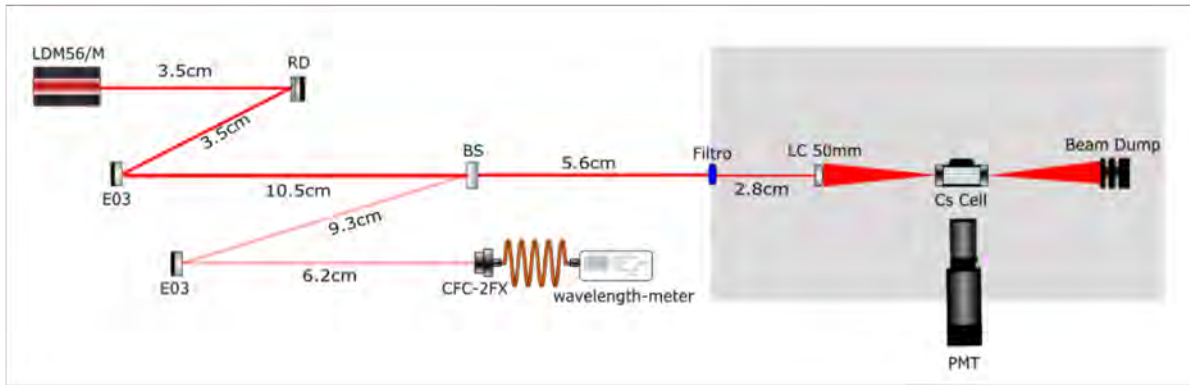


Figura 2.1: Esquema del montaje experimental para la medición de la fluorescencia inducida mediante la absorción de dos fotones.

En el laboratorio el montaje se contruye como se muestra en la Figura 2.2:

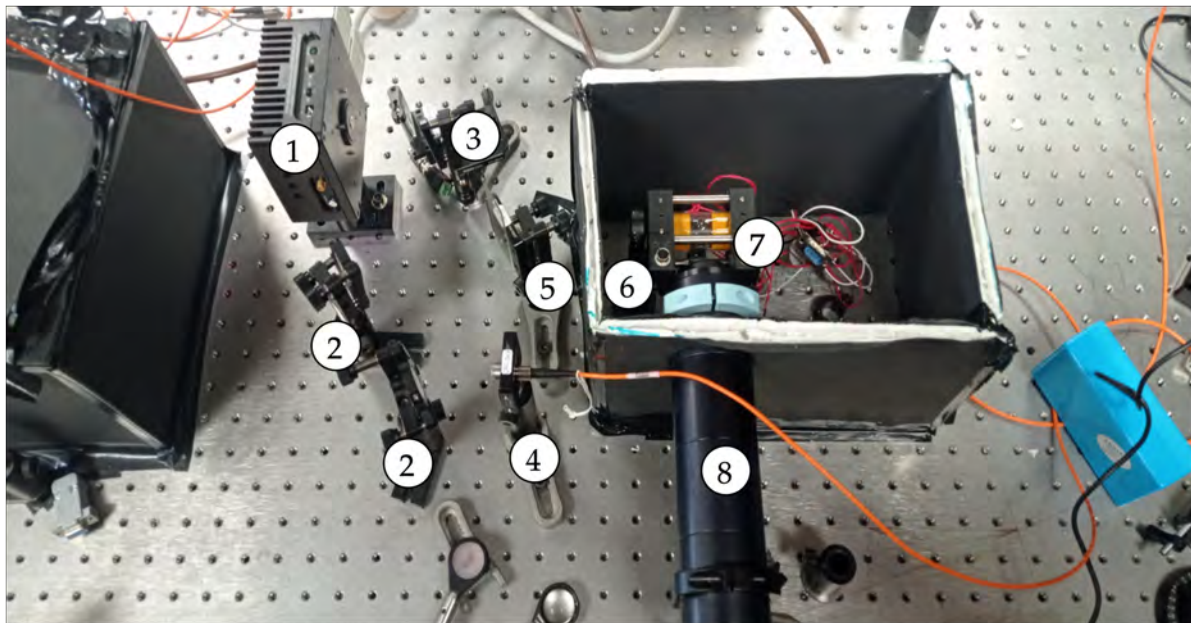


Figura 2.2: Foto del montaje experimental para medir la fluorescencia del 2PA en átomos de Cesio en el laboratorio. Los elementos señalados son: 1) Diodo láser, 2) Espejos E03, 3) Rejilla de difracción, 4) Divisor de haz, 5) Acoplador a fibra óptica, 6) Lente convergente, 7) Celda de Cesio y 8) Tubo fotomultiplicador. En la pared de la caja frente al divisor de haz se encuentra el filtro pasa-alta.

2.2 Caracterización del Montaje Experimental

Se utiliza el diodo LDM56/M para generar un láser gaussiano, manipulando un controlador de temperatura y uno de corriente para modificar la frecuencia del haz. Como este rayo de luz no es 100% monocromático, se hace incidir el haz sobre una rejilla de difracción que devuelve al diodo los modos que no se necesitan y deja pasar únicamen-

te el modo que se quiere usar para el experimento.

Posteriormente se hace incidir el láser sobre un divisor de haz (beam-splitter BS). La luz reflejada (reflexión débil) se acopla a una fibra óptica conectada a un medidor de longitud de onda (wavelength-meter) que, como su nombre indica, permite medir la longitud de onda del haz. Dicha medida se obtiene mediante un software propio del wavelength-meter.

La luz que se transmite por el beam-splitter pasa por un filtro pasa-altas y entra a una caja negra, dentro de la cual se encuentra el lente convergente que enfoca el haz en el centro de la celda de Cesio (ubicada en el foco del lente). Es aquí donde ocurre la física que se quiere estudiar en este proyecto.

2.3 Caracterización del Láser

Para inducir fluorescencia en el Cesio mediante el proceso de 2PA, se estudiarán las transiciones indicadas en la Figura 1.3, específicamente la línea de excitación $6S_{1/2} - - > 6P_{1/2}/6P_{3/2} - - > 8S_{1/2}$, las cuales se pueden observar para frecuencias de alrededor de los 869,4689 nm (frecuencia de resonancia), por lo que, mediante el controlador de corriente y de temperatura se genera este modo con $I = 89,05$ mA, y $T = 40^\circ$, como se muestra en la Figura 2.3.

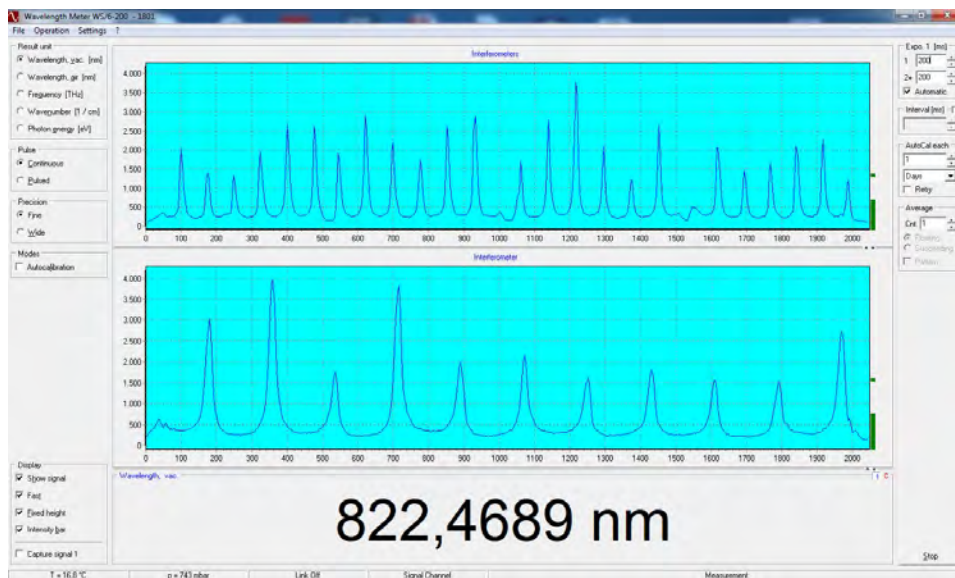


Figura 2.3: Longitud de onda medida con el wavelength-meter, generada con una corriente de $I = 89,05$ mA y una temperatura de $T = 40^\circ$. El valor obtenido en este caso corresponde a $\lambda = 822,4689$ nm que es la longitud de onda de resonancia para el 2PA en átomos de Cesio. Dicho valor se mide en vacío, y el programa registra el patrón de interferencia por medio de un interferómetro interno.

Lo siguiente es caracterizar la cintura del láser dentro de la caja negra en el montaje de la Figura 2.1, midiéndola con la ayuda de un Beam-Master para varias distancias dentro de la caja posteriores al lente convergente. Los resultados de esta medición se

muestran en la Figura 2.4.

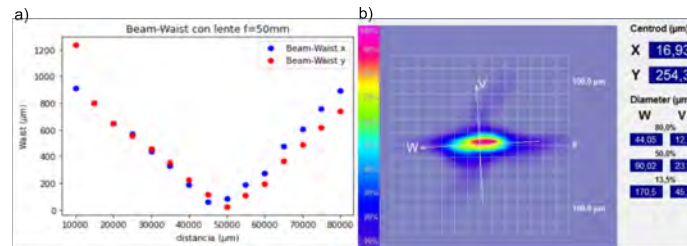


Figura 2.4: Cintura del láser para varias distancias dentro de la caja negra del montaje de la Figura 2.1. a) La gráfica muestra la caracterización del beam-waist para el lente focal de 50 mm, tomando las medidas para distancias entre 1 cm y 8 cm. El hecho de que el valor de la cintura del haz sea distinto para ciertos valores de x y y corresponde a un efecto del lente sobre el haz, el cual provoca que en el foco este no sea exactamente circular, y tome una forma un poco elíptica. b) Valor y forma de la cintura del haz justo en el foco del lente (50mm). Al ser un haz gaussiano, su tamaño se caracteriza con el ancho de su distribución espacial, por lo que la medida (en micrómetros) corresponde a los valores dados en el 13.5% de la intensidad (170,5 μm en W y 45,96 μm en V).

El objetivo de realizar esta caracterización es utilizar esta información para centrar la celda de Cesio en el foco exacto de la lente, de forma que la luz este aproximadamente colimada con el tamaño adecuado a lo largo de la celda de Cesio, con el objetivo de que se pueda garantizar la interacción luz-materia y se puedan observar las transiciones que se quieren estudiar para lograr medir la sección eficaz del 2PA.

2.4 Señal de Fluorescencia

Para medir la señal correspondiente a la fluorescencia inducida por 2PA sobre la celda de Cesio, se utiliza un tubo fotomultiplicador (PMT) que se coloca al frente de la celda dentro de la caja del montaje, y la señal que se produce al detectar los fotones en la fluorescencia se registra en un computador por medio de un quTau, cuyo software genera una gráfica de tasa conteo de fotones (número de fotones por segundo).

Mediante un controlador de frecuencias, se realiza un barrido sobre la longitud de onda del haz cambiando el valor de la corriente del controlador láser por medio de un convertidor de señal digital a analógica (DAC). La señal digital es la del controlador de frecuencia, y la señal analógica la del controlador láser. El barrido se realiza de forma que este centrado en la longitud de onda de resonancia 822,4689 nm, aplicando un voltaje de amplitud y offset de 2300 mV durante un periodo de 8 minutos, como se muestra en la Figura 2.5.

Mientras se realiza el barrido en frecuencias, simultáneamente se toman los datos del conteo de fotones por parte del tubo fotomultiplicador con el software quTau, y la señal que se obtiene se visualiza como se muestra en la Figura 2.6.

Los diferentes picos que acompañan a la curva de fluorescencia (curva con forma de gaussiana) representan cambios abruptos en la longitud de onda del láser durante el

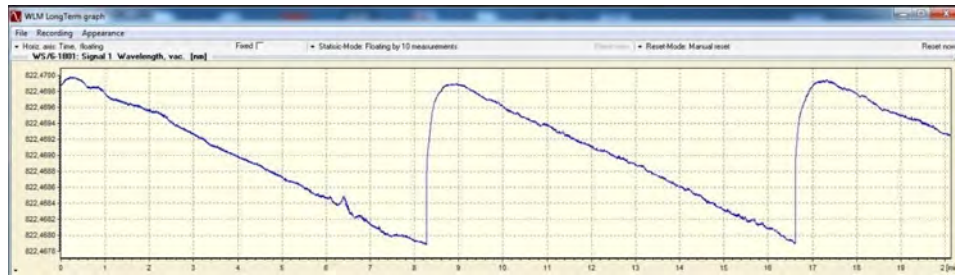


Figura 2.5: Barrido en frecuencia centrado en la longitud de onda de resonancia 822,4689 nm. El eje vertical corresponde a la longitud de onda, el eje horizontal corresponde al tiempo. Como se observa, cada periodo del barrido dura aproximadamente 8 minutos.

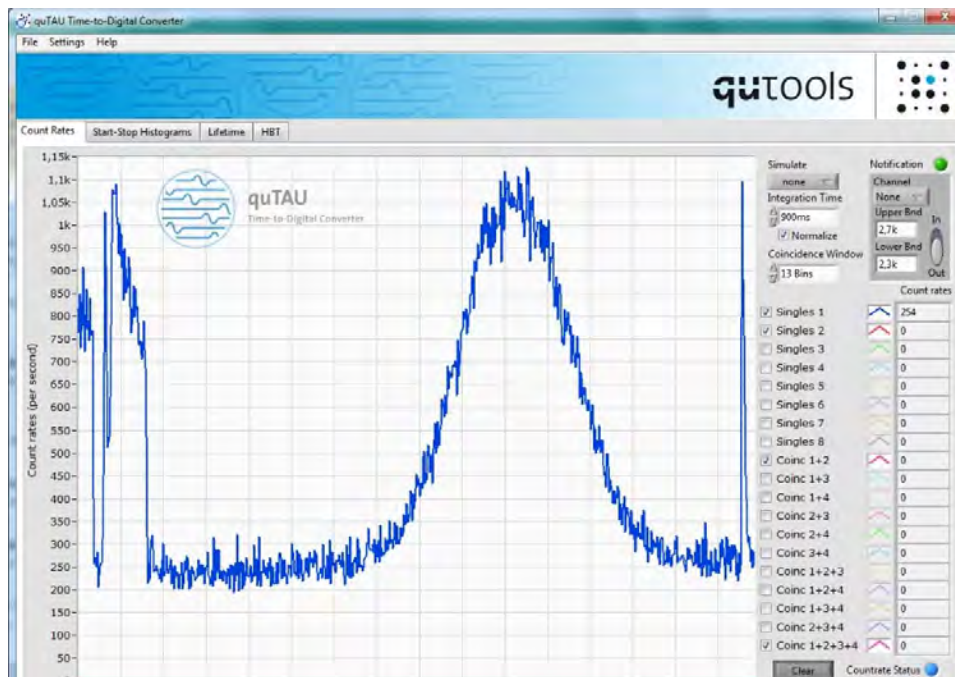


Figura 2.6: Medida de conteo de fotones registrada por el software quTau durante el barrido en frecuencia. El eje horizontal representa el tiempo de medida y el eje vertical el conteo de fotones. Como el programa no especifica el eje x, enseña la gráfica directamente como tasa de conteo de fotones.

barrido que se explicarán con más detalle en el capítulo de resultados y discusión. Estos saltos provocan que al acercarse de forma repentina a la frecuencia de resonancia aparezcan más conteos de fotones, y que al alejarse de esta frecuencia el conteo de fotones decaiga a los valores mínimos (entre los 300 y los 400 fotones).

Como el objetivo principal del proyecto consiste en realizar el cálculo de la sección eficaz del 2PA a partir de la señal de fluorescencia, es necesario sincronizar la medida del conteo de fotones realizado con el PMT y el registro del barrido en frecuencia, de forma que la señal se obtenga en función de la longitud de onda del láser y no en función del tiempo de barrido. Para esto se crea un programa en LabView que permita controlar de forma sincrónica ambas medidas, la medida del barrido en frecuencia y la medida del conteo de fotones. Dicho programa se muestra en la Figura 2.7:



Figura 2.7: Programa en LabView que realiza de forma sincrónica la medida de la longitud de onda y el conteo de fotones durante el periodo del barrido. La gráfica de la izquierda muestra la longitud de onda en función del tiempo de barrido, y la gráfica de la derecha muestra el conteo de fotones en función del tiempo. Luego de la toma de datos, se pueden exportar de forma que se pueda graficar la señal de fluorescencia en función de la longitud de onda. En este caso se enseñan gráficas para ejemplificar el funcionamiento del programa y no muestran nada sobre la física del experimento.

2.4.1 Ensanchamiento por Efecto Doppler

Como la celda de Cesio contiene gas de este elemento, el ensanchamiento por efecto Doppler $\Delta\omega_D$ presente en la señal de fluorescencia medida se puede calcular de la siguiente manera: En la región de resonancia, si asumimos que desde el marco del átomo de Cesio en reposo absorbe la radiación a una frecuencia $\omega_0 = 2\pi c/822,4689\text{nm} = 2,291826 \times 10^{15}\text{rad/s}$, el ancho Doppler se puede calcular usando la temperatura de la Celda, en este caso la temperatura del laboratorio, de la siguiente forma [10]:

$$\Delta\omega_D = 1,7\omega_0 \frac{u}{c}, \quad (2.1)$$

donde u corresponde a la velocidad más probable de los átomos de Cesio

$$u = \sqrt{\frac{2k_B T}{M}}. \quad (2.2)$$

Aquí k_B es la constante de Boltzmann, T es la temperatura del átomo y M su masa.

Capítulo 3

Resultados y Discusión

3.1 Señal Fluorescencia en Tiempo y en Longitud de Onda

Con diferentes barridos de frecuencia (mismo periodo de barrido, 8 min) se lograron obtener varias señales de fluorescencia que se observan en la Figura 3.1.

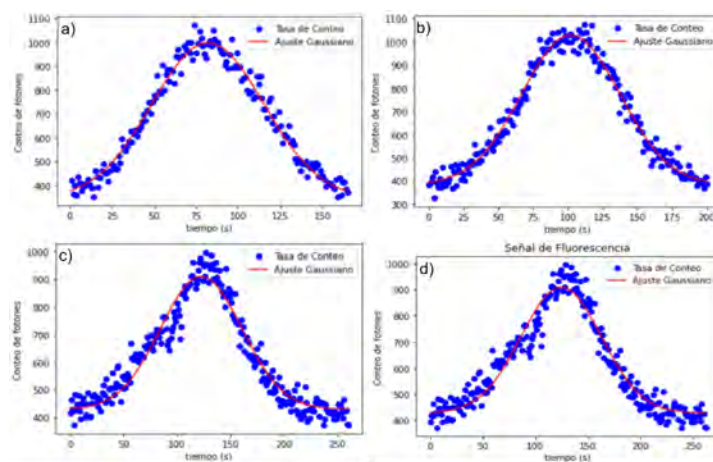


Figura 3.1: Señal de fluorescencia medida con el tubo fotomultiplicador. El eje horizontal corresponde al tiempo de barrido y el eje vertical al conteo de fotones. Los puntos azules son los datos obtenidos con el software quTau, la curva roja corresponde al ajuste gaussiano de dichos datos. Las 4 señales graficadas se obtuvieron para diferentes barridos de frecuencia (de periodo 8 minutos).

Las curvas gaussianas que se observan en la Figura 3.1 exhiben un pico de máxima tasa de conteo de fotones correspondiente a la región de la longitud de onda de resonancia $\lambda = 822,4689$ nm. El comportamiento que se observa es que, a medida que el controlador de frecuencia realiza el barrido en longitud de onda, la tasa de conteo de fotones va incrementando a medida que el laser se acerca a la longitud de onda de resonancia, llegando al máximo de conteo de fotones (entre los 1000 y 1100 fotones) justo cuando la longitud de onda del laser se encuentra en el valor de resonancia.

Los datos de las gráficas a) y b) presentan un ajuste gaussiano más preciso que el de las curvas c) y d). Esto se debe a las diferentes condiciones de iluminación en el laboratorio en las que se realizó el experimento, puesto que este requiere que el conteo de

fotones se realice en un ambiente sin luz de fondo (totalmente a oscuras) y con el láser totalmente estabilizado, pero, como se explicará más adelante en la sección de discusión de resultados, siempre se filtra ruido en la señal debido a la inestabilidad del láser a la hora de realizar el barrido en frecuencia.

Sincronizando las medidas del barrido en frecuencia y el conteo de fotones mediante el programa implementado en LabView nuevamente para un periodo de barrido de 8 minutos, se logró observar la señal de fluorescencia, presentada en la Figura 3.2, en función de la longitud de onda:

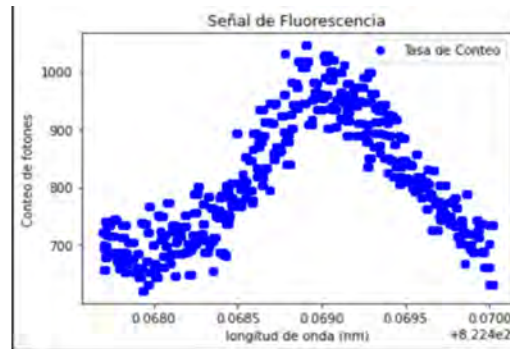


Figura 3.2: Señal de fluorescencia medida con el tubo fotomultiplicador en función de la longitud de onda del láser. El eje horizontal corresponde a la longitud de onda del barrido, mientras que el eje vertical nuevamente representa el conteo de fotones. La escala del eje horizontal enseña únicamente las últimas 3 cifras significativas de la longitud de onda.

En este caso se observa una notable diferencia entre estos datos y los resultados para las señales de la Figura 3.1 obtenidas en función del tiempo de barrido, pues, apesar de lograr un conteo máximo de fotones en el mismo rango para esta nueva señal, se identifica una mayor presencia de ruido en la señal, especialmente por el conteo mínimo de fotones, el cual ahora se encuentra alrededor de los 700 fotones. La curva de fluorescencia nuevamente exhibe su pico sobre la región de la longitud de onda de resonancia $\lambda = 822,4689$ nm.

Para determinar el ensanchamiento por efecto Doppler presente en la señal de fluorescencia, se tiene en cuenta que la temperatura del laboratorio medida es $T = 16^\circ C = 289,15$ K, y la masa de un átomo de Cesio corresponde a $M = 2,206947 \times 10^{-25}$ kg, de forma que el ancho Doppler para las señales de fluorescencia medidas corresponden, según las ecuaciones (2.1) y (2.2), a

$$\Delta\omega_D = 2,470511 \times 10^9 \text{ rad/s.} \quad (3.1)$$

En frecuencia normal este ancho corresponde a

$$\Delta\nu_D = 0,393 \text{ GHz.} \quad (3.2)$$

Considerando que $\nu_0 = \omega_0/2\pi$ es del orden de los GHz, se observa que ν_D comparado con ν_0 es bastante pequeño.

3.2 Discusión de Resultados

Como se pudo observar en la sección anterior, los resultados obtenidos para la señal de fluorescencia debida al 2PA en átomos de Cesio permiten indicar que si es posible observar este fenómeno mediante este proceso, llegando a identificar un espectro gaussiano en función del tiempo de barrido. Sin embargo, la calidad de la señal medida depende en gran medida de la estabilidad del láser con el cual se realiza la excitación, razón por la cual, a la hora de medir el mismo espectro en función de la longitud de onda de barrido, se obtiene una señal mucho más ruidosa, hecho evidenciado al observar el conteo mínimo de fotones en las figuras 3.1 y 3.2.

La razón por la que se presenta esta inestabilidad en la longitud de onda del láser es debida a la disposición de la rejilla de difracción en el montaje experimental, la cual no logra generar la mayor potencia de feedback posible en el diodo. Esto significa que la rejilla no garantiza que la luz que incida sobre la celda de Cesio no sea lo más monocromática posible, dando paso a varios modos con frecuencias distintas que provocan que el la longitud de onda del láser medida sea bastante inestable, y que por causa de esto, a la hora de hacer el barrido en frecuencia para medir la señal de fluorescencia esta exhiba bastante ruido en los datos obtenidos, o directamente sea imposible medirla, debido a los saltos en el valor de la longitud de onda que muchas veces se salen del rango de la frecuencia de resonancia e impiden que se presenten las transiciones que se desean estudiar en el experimento.

Al no tener una estabilidad garantizada de la longitud de onda del láser durante el barrido de frecuencia y la medida de la señal de fluorescencia, es bastante difícil medir buenas señales de fluorescencia en función de la frecuencia que permitan posteriormente implementar el cambio de la potencia del láser para realizar el cálculo de la sección eficaz del 2PA para átomos de Cesio mediante la ecuación (1.8), por lo que es importante mejorar la ubicación y orientación de la rejilla de difracción, con tal de garantizar la mayor potencia de feedback posible, que se traduce en obtener una mayor estabilidad para la longitud de onda del láser.

Sin embargo, es importante mencionar que la ubicación de la rejilla de difracción afecta al tamaño de la cintura del haz en la celda de Cesio, puesto que al intentar mejorar la posición de la rejilla para garantizar el mayor feedback posible, también se ve afectado el tamaño de la cintura del láser, el cual incrementa después del lente convergente dentro de la caja negra, y al no tener el tamaño mínimo adecuado para garantizar la interacción entre los átomos de Cesio y la luz incidente del láser, provoca que al intentar medir la señal de fluorescencia debida al 2PA no se genere ningún conteo de fotones.

Por otro lado, la medida del ensanchamiento Doppler obtenida en la ecuación (3.2) permite observar que existe un ligero cambio apreciable en la señal de fluorescencia debido a este efecto, por lo que, una vez resueltos los problemas de estabilidad del láser y del tamaño del la cintura del haz en la celda de Cesio, se puede mejorar aún más la señal de fluorescencia medida para el 2PA modificando el montaje de forma

que se pueda estudiar este proceso en el régimen de absorción saturada libre de efecto Doppler, y por consiguiente se puedan obtener cálculos más precisos sobre la sección eficaz del 2PA en átomos de Cesio.

3.3 Conclusiones y Perspectivas

A partir de los resultados presentados en el Capítulo 3 para la señal de fluorescencia debida al proceso de 2PA en átomos de Cesio (Figuras 3.1 y 3.2) es posible afirmar que se pudo medir de forma indirecta el proceso de absorción de dos fotones en átomos de Cesio, en este caso por fluorescencia inducida, para la línea de transición $6S_{1/2} - - > 6P_{1/2}/6P_{3/2} - - > 8S_{1/2}$. Sin embargo, para lograr la caracterización de este proceso y la medida de la sección eficaz de 2PA, son necesarias realizar modificaciones importantes en el actual montaje experimental (Figura 2.1) que garanticen una mayor estabilidad en el láser y en la cintura del haz mínima para que se de la interacción entre el átomo de Cesio y el láser y se pueda medir con mayor eficacia el proceso de 2PA en este elemento.

Para lograr la estabilización del controlador láser es necesario garantizar la condición monocromática del láser, por lo que se debe buscar la ubicación y orientación más óptima de la rejilla de difracción, de forma que se logre la mayor potencia de feedback posible y se garantice la estabilidad de la longitud de onda del láser a la hora de realizar el barrido en frecuencia y medir de forma simultánea la señal de fluorescencia del Cesio.

En cuanto al mejoramiento del tamaño del haz en la Celda de Cesio, se puede modificar el montaje experimental actual implementando un sistema telescopio en el que se logre magnificar el haz incidente, y luego enfocarlo en la celda, de forma que se logre que la cintura del haz tenga el menor tamaño posible.

Una vez garantizadas la estabilidad del láser y la cintura mínima del haz para el proceso de 2PA en átomos de Cesio, se puede medir señal de fluorescencia para distintas potencias del haz incidente con el objetivo de medir la sección eficaz a partir de la ecuación (1.8). Para lograrlo es necesario introducir en el montaje diferentes filtros de densidad neutra antes del filtro pasa-altas, de forma que se logre la reducción en la potencia. Para lograr una mayor caracterización de la sección eficaz del 2PA, también se puede estudiar la señal de fluorescencia para distintas temperaturas del Cesio.

Finalmente, según lo discutido en el capítulo anterior para el ensanchamiento por efecto Doppler de la señal de fluorescencia, se puede mejorar la resolución de dicha señal, y por ende la medida de la sección eficaz del 2PA, modificando el montaje experimental de forma que se implementen técnicas de espectroscopía láser libre de efecto Doppler, como por ejemplo el método de los haces cruzados.

Bibliografía

- [1] M. C. Rumi y J. W. Perry. “Two-photon absorption: An overview of measurements and principles”. En: *Advances in Optics and Photonics* 2.4 (2010), pág. 451. DOI: [10.1364/aop.2.000451](https://doi.org/10.1364/aop.2.000451).
- [2] M. Göppert-Mayer. “Elementary processes with two quantum transitions”. En: *Annalen der Physik* 18.7-8 (2009), págs. 466-479. DOI: [10.1002/andp.200910358](https://doi.org/10.1002/andp.200910358).
- [3] M. Pawlicki y col. “Cheminform abstract: Two-photon absorption and the design of two-photon dyes”. En: *ChemInform* 40.30 (2009). DOI: [10.1002/chin.200930240](https://doi.org/10.1002/chin.200930240).
- [4] W. Kaiser y C. G. Garrett. “Two-photon excitation in $\text{CaF}_2:\text{Eu}^{2+}$ ”. En: *Physical Review Letters* 7.6 (1961), págs. 229-231. DOI: [10.1103/physrevlett.7.229](https://doi.org/10.1103/physrevlett.7.229).
- [5] I. D. Abella. “Optical double-photon absorption in cesium vapor”. En: *Physical Review Letters* 9.11 (1962), págs. 453-455. DOI: [10.1103/physrevlett.9.453](https://doi.org/10.1103/physrevlett.9.453).
- [6] C. Xu y W. W. Webb. “Multiphoton excitation of molecular fluorophores and Nonlinear Laser Microscopy”. En: *Topics in Fluorescence Spectroscopy* (2002), págs. 471-540. DOI: [10.1007/0-306-47070-5_11](https://doi.org/10.1007/0-306-47070-5_11).
- [7] J. C. Bedoya. “Medida de sección eficaz de absorción de dos fotones en moléculas orgánicas”. En: *Tesis de Pregrado, Universidad de los Andes* (2021).
- [8] J. Chen, P. Chabera y D. Liu. “Size- and wavelength-dependent two-photon absorption cross-section of CSPBBR3 perovskite quantum dots”. En: *Physical Chemistry Letters* (mayo de 2017). DOI: [10.1021/acs.jpcllett.7b00613.s001](https://doi.org/10.1021/acs.jpcllett.7b00613.s001).
- [9] H. Yu y col. “Theoretical modeling and analysis on the absorption cross section of the two-photon excitation in Rb”. En: *Optics Express* 26.13 (2018), pág. 17254. DOI: [10.1364/oe.26.017254](https://doi.org/10.1364/oe.26.017254).
- [10] C.J Foot. *Atomic physics*. Oxford University Press, 2005.
- [11] M. A. Gonzalez. “Caracterización de absorción de dos fotones en átomos de Cesio”. En: *Tesis de Pregrado, Universidad de los Andes* (2021).
- [12] M. Bass. *Handbook of Optics. fundamentals, techniques, and design, 2nd Edition*. McGraw-Hill, 1995.
- [13] R.C Davila. “Two-Photon Excitation of Cesium Alkali Metal Vapor 72D, 82D Kinetics and Spectroscopy”. En: *Air Force Institute of Technology* (2018).

- [14] V. Gerginov. “Optical Frequency Measurements of $6s^2S_{1/2} - 6p^2P_{1/2}$ (D_1) Transitions in ^{133}Cs and Their Impact on the Fine-Structure Constant”. En: *Phys. Rev. A* 73 (2006).
- [15] V. Gerginov y col. “High resolution spectroscopy with a femtosecond laser frequency comb”. En: (*CLEO*). *Conference on Lasers and Electro-Optics, 2005*. (2005). DOI: [10.1109/cleo.2005.202088](https://doi.org/10.1109/cleo.2005.202088).
- [16] K. Herbert. “Interferometric measurements of cesium I*”. En: *Journal of the Optical Society of America* 52.4 (1962), pág. 441. DOI: [10.1364/josa.52.000441](https://doi.org/10.1364/josa.52.000441).
- [17] Craig J. Sansonetti y Kenneth L. Andrew. “Spectrum and energy levels of singly ionized cesium: I revision and extension of the CS II Energy Levels”. En: *Journal of the Optical Society of America B* 3.3 (1986), pág. 386. DOI: [10.1364/josab.3.000386](https://doi.org/10.1364/josab.3.000386).
- [18] P. Fendel y col. “Two-photon frequency comb spectroscopy of the $6S-8s$ transition in Cesium”. En: *Optics Letters* 32.6 (2007), pág. 701. DOI: [10.1364/ol.32.000701](https://doi.org/10.1364/ol.32.000701).