



UNIVERSIDAD NACIONAL AUTÓNOMA DE MEXICO
POSGRADO EN CIENCIAS FÍSICAS

**ESTUDIO DE LAS TRANSICIONES PROHIBIDAS $5P_{3/2} \rightarrow 6P_J$ POR MEDIO DE
ESPECTROSCOPIA ÓPTICA DE DOBLE RESONANCIA EN ÁTOMOS DE
RUBIDIO**

TESIS

QUE PARA OPTAR POR EL GRADO DE:

MAESTRO EN CIENCIAS (FÍSICA)

PRESENTA:

FRANCISCO SEBASTIÁN PONCIANO OJEDA

TUTOR PRINCIPAL:

DR. JOSÉ IGNACIO JIMÉNEZ MIER Y TERÁN
INSTITUTO DE CIENCIAS NUCLEARES, UNAM

MIEMBROS DEL COMITÉ TUTOR:

DR. FERNANDO RAMÍREZ MARTÍNEZ
INSTITUTO DE CIENCIAS NUCLEARES, UNAM

DRA. ROCÍO JÁUREGUI RENAUD
INSTITUTO DE FÍSICA, UNAM

CIUDAD DE MÉXICO, JUNIO 2017



Universidad Nacional
Autónoma de México

Dirección General de Bibliotecas de la UNAM

Biblioteca Central



UNAM – Dirección General de Bibliotecas
Tesis Digitales
Restricciones de uso

DERECHOS RESERVADOS ©
PROHIBIDA SU REPRODUCCIÓN TOTAL O PARCIAL

Todo el material contenido en esta tesis esta protegido por la Ley Federal del Derecho de Autor (LFDA) de los Estados Unidos Mexicanos (México).

El uso de imágenes, fragmentos de videos, y demás material que sea objeto de protección de los derechos de autor, será exclusivamente para fines educativos e informativos y deberá citar la fuente donde la obtuvo mencionando el autor o autores. Cualquier uso distinto como el lucro, reproducción, edición o modificación, será perseguido y sancionado por el respectivo titular de los Derechos de Autor.

Agradecimientos

A mi familia, por todo su apoyo durante todos estos años de formación y aprendizaje. En los momentos altos y bajos su compañía me ha ayudado a enfrentarme a obstáculos y grandes decisiones con nuevas perspectivas y objetivos claros que alcanzar. Gracias por enseñar con el ejemplo como llevar una vida llena de valores, y por todo su cariño y amistad.

A mi abuelo, que compartió innumerables historias y la sabiduría de todas las experiencias que vivió conmigo. El haber conversado y convivido con él es uno de los grandes orgullos de mi vida.

A mi gran amor y musa, Arodi. Has sido sin duda la razón para que siga buscando crecer y salir adelante en todo momento. Gracias por siempre interesarte y dejarme compartir mi mundo contigo, y por dejarme ser parte del tuyo. Has llenado mi vida de alegría y cariño, y por eso te agradezco infinitamente.

A mi tutor, el Dr. José Ignacio Jiménez Mier y Terán, y los miembros de mi comité tutor, el Dr. Fernando Ramírez Martínez y la Dra. Rocío Jáuregui, por todo el apoyo y los consejos a lo largo de la maestría y por hacer posible este trabajo.

A todo el grupo de trabajo del Laboratorio de Átomos Fríos, en particular al Dr. Jesús Flores Mijangos por su ayuda y comentarios en el laboratorio y a Ricardo, Cristian, Ricardo, Oscar, Santiago y Oscar por toda su ayuda en resolver los problemas que surgían al realizar los experimentos.

A mis sinodales, el Dr. Daniel Sahagún, el Dr. José Mauricio López Romero y el Dr. José Luis Hernández Pozos. Por su tiempo y apoyo en la revisión de este trabajo.

Al CONACYT, por la beca de maestría del Programa Nacional de Posgrados de Calidad otorgada y el apoyo del proyecto SEP-CONACYT 168451-11 “Medición de la transición cuadrupolar eléctrica $5p2P3/2 \rightarrow 6p2P1/2$ en rubidio en una trampa magneto-óptica”.

A la DGAPA-UNAM por el apoyo de los proyectos PAPIIT IN110812 “Medición de la transición cuadrupolar eléctrica $5p2P3/2 \rightarrow 6p2P1/2$ en átomos fríos de rubidio”, IN112516 “Estudio teórico y experimental de la interacción entre dos campos de radiación y átomos multinivel” e IN107317 “Espectroscopia de precisión en átomos fríos”.

Al Laboratorio Nacional de Materia Cuántica: Materia Ultrafría e Información Cuántica (LANMAC) No. 232652.

Resumen

Este trabajo presenta algunos de los resultados obtenidos de la línea de investigación de transiciones prohibidas en átomos de rubidio que se tiene en el Laboratorio de Átomos Fríos del Instituto de Ciencias Nucleares (ICN) de la Universidad Nacional Autónoma de México (UNAM). El enfoque de esta investigación son las transiciones cuadrupolares eléctricas $5P_{3/2} \rightarrow 6P_J$, $J = 3/2, 1/2$, las cuales se estudian por medio de una espectroscopia óptica de doble resonancia usando láseres de onda continua. Hasta donde este grupo sabe, este trabajo ha dado lugar a la primera observación reportada de estas transiciones ópticas en átomos de rubidio a temperatura ambiente.

En esta tesis se da un panorama general de la teoría y del sistema experimental utilizado para la detección de las transiciones cuadrupolares eléctricas $5P_{3/2} \rightarrow 6P_J$, $J = 3/2, 1/2$ en átomos de rubidio a temperatura ambiente. En la parte teórica del texto se presenta una comparación entre transiciones dipolares y cuadrupolares eléctricas. Se procede así a discutir sobre como las diferencias entre estas permiten establecer un modelo sencillo para determinar las probabilidades de observar el decaimiento de la transición cuadrupolar en el esquema de excitación $5S_{1/2}, F \rightarrow 5P_{3/2}, F + 1 \rightarrow 6P_J, F'$. En cuanto al aspecto experimento, se dan detalles acerca de las fuentes de luz y el sistema de detección utilizadas en distintos experimentos involucrando a las transiciones cuadrupolares.

Se muestran como resultados de este proyecto algunos espectros, obtenidos para ambas transiciones, en los que se observan picos cuyas separaciones corresponden a la estructura hiperfina del nivel $6P_J$. También se explica la aparición de picos además de los esperados como una consecuencia de una espectroscopia por selección de velocidades en el medio atómico. Aunado a lo anterior se muestra que las intensidades relativas de las líneas de los espectros tienen una dependencia en la polarización de la luz, hecho que se explica a través de la teoría como un efecto de el uso de reglas de selección particulares para los subniveles magnéticos M_F . Se muestra también que el esquema de excitación utilizado permite ver el efecto Autler-Townes solo modificando la potencia de un láser.

Dados los resultados de los distintos experimentos se concluye que se pueden excitar transiciones cuadrupolares en átomos de rubidio a temperatura ambiente mediante el uso de láseres de diodo. Estos resultados tienen muy buen acuerdo con lo esperado a partir de un modelo teórico en el que se pueden tratar de manera independiente los distintos pasos en el esquema de excitación. Se propone también el uso de estas transiciones cuadrupolares como una herramienta en el laboratorio que permite obtener información sobre el sistema atómico, en particular del primer paso de excitación $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2}$, de manera no perturbativa y en tiempo real.

Abstract

This work presents some of the results obtained from the research on forbidden transitions in rubidium atoms being done at the Cold Atoms Laboratory of the Institute of Nuclear Sciences (ICN), at the National Autonomous University of Mexico (UNAM). The focus of said research are the $5P_{3/2} \rightarrow 6P_J$, $J = 3/2, 1/2$ electric quadrupole transitions, which are studied by means of an optical double-resonance spectroscopy. As far as this research group knows, this work is the first reported observation of these optical transitions in thermal rubidium atoms.

In this thesis a broad overview of the theory and experimental setup used in the detection of the $5P_{3/2} \rightarrow 6P_J$, $J = 3/2, 1/2$ electric quadrupole transitions in thermal rubidium atoms is given. In the theoretical parts of the text a comparison between electric dipole and electric quadrupole transitions is presented. Further discussion proceeds to examine how the differences between these allow for a simple model to determine the probability of observing the decay of the quadrupole transition in the excitation scheme $5S_{1/2}, F \rightarrow 5P_{3/2}, F + 1 \rightarrow 6P_J, F'$ to be established. In terms of the experimental aspects, details are given on the light sources and the detection system for the different experiments involving the quadrupole transitions.

Spectra containing peaks whose separation corresponds to the hyperfine structure of the $6P_J$ levels for both transitions are shown in the results. The appearance of extra peaks to those expected is explained as a consequence of a velocity-selective spectroscopy in the atomic medium. In addition to this, our results show that the relative intensities of the peaks in our spectra have a dependency on the polarization of the light used, a fact that can be explained in theory as an effect of particular selection rules for the magnetic sublevels M_F . We also show that our excitation scheme allows for the Autler-Townes effect to be observed by simply changing the power of one of the lasers.

Given these results from the different experiments realized one can conclude that electric quadrupole transitions in room temperature rubidium atoms can be excited by use of continuous wave lasers. The experimental results are in very good agreement with what is expected from a theoretical model in which the steps in the excitation scheme are treated independently of one another. The use of these transitions is proposed as a laboratory tool that allows information on the atomic system, in particular of the first $5S_{1/2} \rightarrow 5p_{3/2}$ excitation step, to be obtained in a non-perturbative way in real time.

Contenidos

Resumen	iii
Abstract	v
1 Introducción	1
2 Teoría de las transiciones prohibidas	3
2.1 Conceptos básicos	3
2.2 Interacción radiación-materia	4
2.2.1 Transiciones atómicas	5
2.2.2 Aproximación dipolar eléctrica	6
2.2.3 Aproximación cuadrupolar eléctrica	6
2.2.4 Reglas de selección para la aproximación dipolar	7
2.2.5 Reglas de selección para la aproximación cuadrupolar	8
2.2.6 Efecto Autler-Townes	9
2.3 Estructura energética del átomo de rubidio	11
2.3.1 Estructura atómica	11
3 Modelo de tres pasos	15
3.1 Primer paso: preparación $5s_{1/2} \rightarrow 5p_{3/2}$	15
3.2 Segundo paso: excitación cuadrupolar $5p_{3/2} \rightarrow 6p_J$	17
3.3 Tercer paso: decaimiento $6p_{3/2} \rightarrow 5s_{1/2}$	18
4 Montaje experimental	19
4.1 Sistema de láseres	20
4.1.1 Láser de preparación	20
4.1.2 Láser de excitación cuadrupolar	21
Láser de diodo (ECDL)	21
Láser de titanio-zafiro (TiS)	23
4.2 Sistema de detección	23
4.2.1 Celda de rubidio	23
4.2.2 Tubo fotomultiplicador	23
4.2.3 Detección en fase	24
4.2.4 Programa de adquisición de datos	25
5 Resultados	27

5.1	Dependencia en polarización	27
5.2	Selección de velocidades	28
5.3	Efecto Autler-Townes	28
6	Conclusiones	37
6.1	Trabajo a futuro	38
6.1.1	Haces estructurados	38
6.1.2	Átomos Fríos	39
6.1.3	Suma de frecuencias	39
A	Publicaciones	41
B	Diagrama de programa	59
	Bibliografía	63

Capítulo 1

Introducción

En la espectroscopia atómica la mayor parte de las líneas en los espectros de absorción y emisión que se obtienen para los distintos elementos corresponden a transiciones que se realizan bajo la aproximación dipolar eléctrica. Sin embargo, existen también líneas espectrales que corresponden a transiciones hechas más allá de esta aproximación que comúnmente se conocen como transiciones prohibidas. Estas últimas son de interés ya que permiten observar y estudiar otros tipos de efectos, incluso con distintas condiciones iniciales y configuraciones experimentales, a los normalmente vistos con transiciones dipolares.

Las transiciones prohibidas se pueden ver desde un contexto teórico de la electrodinámica clásica por medio de un desarrollo multipolar [23] de los campos externos (eléctricos y magnéticos) que interactúan con los átomos. De esta manera en principio se pueden tener interacciones correspondientes a todos los términos de este desarrollo salvo que cada vez con menor probabilidad. Es por esto que, después de las transiciones dipolares eléctricas, las transiciones prohibidas más comunes corresponden a términos de interacción cuadrupolar eléctrica y/o dipolar magnética.

En la naturaleza este tipo de transiciones se observa solo bajo condiciones de altas densidades atómicas y altas energías para los campos electromagnéticos como aquellas encontradas, por ejemplo, en procesos astrofísicos y sistemas de plasmas [8]. Sin embargo, el uso del láser como fuente de excitación en procesos atómicos ha dado lugar al estudio de estas transiciones prohibidas de manera más controlada en un laboratorio. En la actualidad estas transiciones prohibidas se usan en distintas áreas tales como la física atómica, como herramientas en el estudio de sistemas de átomos fríos [7, 47], la metrología, para relojes atómicos [6, 46], e incluso en experimentos de física fundamental [9].

La motivación detrás de este proyecto de investigación es el estudio de la interacción radiación-materia más allá de la transición dipolar en átomos de rubidio a temperatura ambiente y en una trampa magneto-óptica en el Laboratorio de Átomos Fríos del ICN, UNAM. La propuesta para esta línea de investigación surgió como la contraparte experimental a una propuesta teórica de la Dra. Rocío Jáuregui, del Instituto de Física, UNAM, sobre el uso de haces de luz estructurados para modificar probabilidades de transición en sistemas atómicos [24]. En ese trabajo se comenta sobre la posibilidad de observar estos cambios de probabilidades de transición con mayor facilidad en transiciones cuadrupolares eléctricas y sistemas confinados. Asimismo, esta tesis se presenta a manera de resumen de algunos de los resultados más importantes obtenidos en la excitación de las transiciones cuadrupolares eléctricas $5P_{3/2} \rightarrow 6P_J$ en celdas de vapor de rubidio a temperatura ambiente.

La estructura de esta tesis es la siguiente. En el primer capítulo se discutirán algunos aspectos básicos de la teoría que da lugar a las transiciones cuadrupolares eléctricas. Se plantean las reglas de selección para

transiciones dipolares y cuadrupolares eléctricas, haciendo particular énfasis en las diferencias entre ellas. Se procede después a presentar la estructura energética del átomo de rubidio, en particular aquella de los estados utilizados en el esquema de excitación para los experimentos de este trabajo. También se da una discusión breve de uno de los efectos cuánticos que el sistema experimental presenta, conocido como el efecto Autler-Townes.

El segundo capítulo discutirá brevemente la aplicación de los elementos teóricos al desarrollo de un modelo para calcular las intensidades relativas de las líneas de fluorescencia. En este se hace uso de la diferencia en las probabilidades para transiciones dipolares y cuadrupolares eléctricas para considerar los distintos pasos de excitación y decaimiento de manera independiente. Se consideran también efectos sobre las intensidades relativas debidas a la polarización de los haces de excitación.

El tercer capítulo se dedica a dar una descripción detallada del montaje y del procedimiento experimental para observar estas transiciones prohibidas. Entre los elementos más importantes del sistema experimental se encuentran un láser de diodo a 911nm, del cual se describe la construcción, para generar una transición cuadrupolar eléctrico y el sistema de detección, el cual permite obtener espectros con razones de señal a ruido altas y con resolución de la estructura hiperfina del segundo estado excitado.

En el cuarto capítulo se presentarán algunos de los espectros característicos de las transiciones prohibidas $5P_{3/2} \rightarrow 6P_J$ en ambos isótopos del rubidio, y se entrará en detalle sobre algunas de las pruebas espectroscópicas que se han realizado. A través de estos espectros se verifica que las transiciones realizadas son por medio de una interacción cuadrupolar eléctrica ya que se observa la estructura hiperfina del estado $6P_J$. Se presentan también espectros que muestran claramente dobletes debidos al efecto Autler-Townes.

Finalmente, se concluye con algunos comentarios sobre este proyecto de investigación y se dan a conocer algunas de las propuestas para seguir desarrollando esta línea de investigación. Se incluyen también apéndices en los que se incluyen los trabajos más importantes que se han publicado a partir de este proyecto y un diagrama de las secuencias utilizadas para la adquisición de datos.

Capítulo 2

Teoría de las transiciones prohibidas

En este capítulo se da una breve introducción a los conceptos teóricos utilizados en el estudio de transiciones atómicas, con particular interés en aquellas prohibidas bajo la aproximación dipolar eléctrica. Para esto se hará uso del formalismo de la mecánica cuántica y su descripción de la interacción radiación-materia con lo cual se examinará el caso general de un átomo de dos niveles interactuando con un campo externo. Se dará también el tratamiento análogo para el caso de transiciones cuadrupolares eléctricas. Se procede luego a considerar el caso de un sistema de tres niveles en el cual se tienen las condiciones necesarias para observar el desdoblamiento de niveles degenerados por el efecto Autler-Townes. Posteriormente se presentará la estructura de los niveles de energía finos e hiperfinos del rubidio para los estados de interés de este trabajo: $5s_{1/2}$, $5p_{3/2}$, $6p_{1/2}$ y $6p_{3/2}$.

En todo el desarrollo de este capítulo se utilizará la notación de Dirac, por lo que las cantidades observables del sistema se representarán con operadores hermíticos $\hat{O} = \hat{O}^\dagger$ y los estados se representarán en términos de sus números cuánticos $\Psi_{n_1 n_2 n_3 \dots}(\vec{r}, t) \equiv |n_1 n_2 n_3 \dots\rangle$. Cabe mencionar también que se usará el sistema CGS para expresar las ecuaciones provenientes de la teoría de la electrodinámica clásica.

2.1 Conceptos básicos

La ecuación fundamental de la mecánica cuántica que permite describir la evolución e interacción entre distintos sistemas es la ecuación de Schrödinger,

$$\hat{H}|n_1 n_2 n_3 \dots\rangle = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |n_1 n_2 n_3 \dots\rangle, \quad (2.1)$$

donde el hamiltoniano, en tres dimensiones espaciales y una temporal, está dado por $\hat{H} = \frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V(\vec{r}, t)$ y $|n_1 n_2 n_3 \dots\rangle$ es un vector en el espacio de Hilbert. En el caso particular de que no se tenga una dependencia temporal explícita en el Hamiltoniano, la ecuación de Schrödinger se puede reescribir haciendo la sustitución $i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \rightarrow E_{n_1 n_2 n_3 \dots}$. Podemos ver que la ecuación 2.1 es una ecuación de eigenvalores, por lo que $|n_1 n_2 n_3 \dots\rangle$ son los eigenestados del sistema asociados a un eigenvalor $E_{n_1 n_2 n_3 \dots}$, el cual se asocia a una energía del sistema que toma valores discretos dados por los números cuánticos n_1, n_2, n_3, \dots

Consideramos ahora el caso del átomo neutro más simple formado por un núcleo y un electrón (*i.e.* un átomo hidrogenoide). Sabemos que en este caso la interacción Coulombiana entre el núcleo y el electrón

se debe tomar en cuenta, de modo que el hamiltoniano para el átomo es de la forma

$$\hat{H} = \frac{-\hbar^2}{2\mu} \nabla^2 - \frac{Ze^2}{r}, \quad (2.2)$$

con $\mu = m_e M / (m_e + M)$ es la masa reducida, m_e es la masa del electrón, M es la masa del núcleo y Z es la magnitud de la carga nuclear. Notamos que la ecuación 2.2 no tiene una dependencia explícita en el tiempo y que el caso del potencial Coulombiano es uno de simetría central en coordenadas esféricas. De esta manera, se puede reescribir la ecuación de Schrödinger, tomando en cuenta el hamiltoniano anterior, como [30, 43]

$$\hat{H}|nlm\rangle = \left(\frac{-\hbar^2}{2\mu} \nabla^2 - \frac{Ze^2}{r} \right) |nlm\rangle = E_n |nlm\rangle, \quad E_n = \frac{-Z\mu e^4}{2\hbar^2 n^2}. \quad (2.3)$$

Los eigenestados del sistema, $|nlm\rangle$, representan funciones de onda $\Psi_{nlm}(\vec{r}) = R_{nl}(r)Y_{ml}(\theta, \phi)$ que son soluciones de la ecuación de Schrödinger que se obtienen gracias a la posibilidad de separar las variables del hamiltoniano. Para estos eigenestados los números cuánticos relevantes son n, l, m : n es el número cuántico principal ($n \geq 1$), l es el eigenvalor del operador \hat{L}^2 ($0 \leq l \leq n$) y m es el eigenvalor del operador \hat{L}_z ($-l \leq m \leq l$).

2.2 Interacción radiación-materia

Dada la forma general de la ecuación de Schrödinger (ecuación 2.1) procedemos a considerar ahora las interacciones de un átomo con campos electromagnéticos externos, es decir con radiación electromagnética. De la electrodinámica clásica sabemos que el hamiltoniano para una partícula cargada q en presencia de un campo electromagnético está dado en términos de los potenciales $\Phi(\vec{r}, t)$, $\vec{A}(\vec{r}, t)$ por [30, 23]

$$H = \frac{1}{2m} \left(\vec{p} - \frac{q}{c} \vec{A}(\vec{r}, t) \right)^2 - q\Phi(\vec{r}, t) \quad (2.4)$$

Vamos a considerar que el siguiente desarrollo se hace para el caso de un átomo hidrogenoide ($V(\vec{r}, t) = -Ze^2/r$). Al hacer la expansión del término en paréntesis en la ecuación anterior y sustituyendo en la ecuación 2.1 tenemos ahora:

$$\begin{aligned} \hat{H}|n_1 n_2 n_3 \dots\rangle &= \left(\frac{1}{2m} \left(\vec{p} + \frac{e}{c} \vec{A}(\vec{r}, t) \right)^2 + e\Phi(\vec{r}, t) - \frac{Ze^2}{r} \right) |n_1 n_2 n_3 \dots\rangle \\ &= \left(\frac{\vec{p}^2}{2m} + \frac{e}{2mc} \vec{p} \cdot \vec{A}(\vec{r}, t) + \frac{e}{2mc} \vec{A}(\vec{r}, t) \cdot \vec{p} + \frac{e^2}{2mc^2} \vec{A}^2(\vec{r}, t) + e\Phi(\vec{r}, t) - \frac{Ze^2}{r} \right) |n_1 n_2 n_3 \dots\rangle \\ &= i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |n_1 n_2 n_3 \dots\rangle \end{aligned} \quad (2.5)$$

La ecuación 2.5 se puede simplificar al suponer que estamos trabajando en la norma de radiación ($\nabla \cdot \vec{A}(\vec{r}, t) = 0$, $\Phi(\vec{r}, t) = 0$) [42], de modo que $[\vec{p}, \vec{A}] = 0$, y considerar el hamiltoniano como la suma de dos términos, $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{int}$ (con la sustitución $\vec{p} \rightarrow -i\hbar\nabla$),

$$\hat{H}_0 = \frac{-\hbar^2}{2m} \nabla^2 - \frac{Ze^2}{r}, \quad (2.6)$$

$$\hat{H}_{int} = \frac{-i\hbar e}{mc} \nabla \cdot \vec{A}(\vec{r}, t) + \frac{e^2}{2mc^2} \vec{A}^2(\vec{r}, t) \quad (2.7)$$

A \hat{H}_0 se le conoce como el hamiltoniano atómico y es igual a la ecuación 2.2 mientras que a \hat{H}_{int} se le conoce como el hamiltoniano de interacción. La ecuación 2.5 se puede resolver entonces considerando el término \hat{H}_{int} como una perturbación al sistema resuelto en la ecuación 2.3 por medio de la teoría de perturbaciones dependientes del tiempo (ver ref. [30]).

Vemos el caso particular de ondas planas monocromáticas $\exp[i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)]$ interactuando con el átomo. Usando las relaciones resultantes de las ecuaciones de Maxwell para los potenciales y los campos tenemos que $\vec{E}(\vec{r}, t) = -\frac{\partial}{\partial t}\vec{A}(\vec{r}, t)$, $\vec{B}(\vec{r}, t) = \nabla \times \vec{A}(\vec{r}, t)$ [23] de modo que el hamiltoniano de interacción lo podemos escribir como

$$\begin{aligned}\hat{H}_{int} &= \frac{-i\hbar e}{mc} \nabla \cdot (A_0 \hat{e} \exp[i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)]) + \frac{e^2}{2mc^2} (A_0 \hat{e} \exp[i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)])^2 \\ &= \frac{-i\hbar ec}{i\omega mc} \nabla \cdot \left(\frac{i\omega}{c} A_0 \hat{e} \exp[i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)] \right) + \frac{-e^2 c^2}{2mc^2 \omega^2} \left(\frac{i\omega}{c} A_0 \hat{e} \exp[i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)] \right)^2 \\ &= \frac{-\hbar e}{\omega m} \nabla \cdot (E_0 \hat{e} \exp[i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)]) + \frac{-e^2}{2m\omega^2} (E_0 \hat{e} \exp[i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)])^2,\end{aligned}\quad (2.8)$$

donde usamos que $E_0 = \frac{i\omega}{c} A_0$. Podemos simplificar esta expresión un paso más si consideramos que el campo externo es débil en comparación a las interacciones que ocurren dentro del átomo. Esto nos permite descartar términos a segundo orden en los potenciales, de modo que solo tomamos el primer término de la suma en la expresión 2.8 [33].

2.2.1 Transiciones atómicas

Supongamos ahora que queremos ver una transición entre los estados de un átomo de dos niveles debida a la interacción con un campo electromagnético externo compuesto de ondas planas monocromáticas. Queremos calcular entonces la amplitud de probabilidad de la transición $|g\rangle \rightarrow |e\rangle$, dada por el elemento de matriz $\langle g|\hat{H}|e\rangle$, con \hat{H} la suma de los términos en las ecuaciones 2.6 y 2.8. Usando la linealidad del hamiltoniano vemos que esto da dos términos a calcular, pero la ortonormalidad de los eigenestados del sistema hace que uno de ellos ($\langle g|\hat{H}_0|e\rangle$) sea igual a cero. Así,

$$\begin{aligned}\langle g|\hat{H}|e\rangle &= \langle g|\hat{H}_{int}|e\rangle = \left\langle g \left| \frac{-\hbar e}{\omega m} \nabla \cdot (E_0 \hat{e} \exp[i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)]) \right| e \right\rangle \\ &= \frac{-\hbar e E_0}{\omega m} \langle g|\nabla \cdot (\hat{e} \exp[i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)])|e\rangle.\end{aligned}\quad (2.9)$$

Podemos ahora usar la relación de conmutación $\hat{p} = im/\hbar [\hat{H}, \hat{r}]$ [30] junto con la definición del operador

\hat{p} y el hamiltoniano atómico ($\hat{H} \rightarrow \hat{H}_0$) para reescribir la ecuación anterior como:

$$\begin{aligned}
\langle g | \hat{H}_{int} | e \rangle &= \frac{-\hbar e E_0}{\omega m} \langle g | \nabla \cdot (\hat{\epsilon} \exp[i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)]) | e \rangle \\
&= \frac{-\hbar e E_0}{\omega m} \frac{-m}{\hbar^2} \langle g | [\hat{H}_0, \hat{r}] \cdot \hat{\epsilon} \exp[i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)] | e \rangle \\
&= \frac{e E_0}{\hbar \omega} \langle g | \left(\hat{H}_0 \hat{r} \cdot \hat{\epsilon} \exp[i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)] - \hat{r} \cdot \hat{H}_0 \hat{\epsilon} \exp[i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)] \right) | e \rangle \\
&= \frac{e E_0}{\hbar \omega} \langle g | \left(\hat{H}_0 \hat{r} \cdot \hat{\epsilon} - \hat{r} \cdot \hat{\epsilon} \hat{H}_0 - \hat{r} \cdot [\hat{H}_0, \hat{\epsilon}] \right) \exp[i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)] | e \rangle \\
&= \frac{e E_0}{\hbar \omega} (\langle g | \hat{H}_0 \hat{r} \cdot \hat{\epsilon} \exp[i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)] | e \rangle - \langle g | \hat{r} \cdot \hat{\epsilon} \exp[i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)] \hat{H}_0 | e \rangle \\
&\quad - \langle g | \hat{r} \cdot [\hat{H}_0, \hat{\epsilon} \exp[i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)]] | e \rangle) \\
&= \frac{e E_0}{\hbar \omega} (E_g - E_e) \langle g | \hat{r} \cdot \hat{\epsilon} \exp[i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)] | e \rangle \\
&= \frac{e E_0 \omega_{ge}}{\omega} \langle g | \hat{r} \cdot \hat{\epsilon} \exp[i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)] | e \rangle
\end{aligned} \tag{2.10}$$

2.2.2 Aproximación dipolar eléctrica

Se puede tomar una aproximación para hacer la evaluación de la ecuación (2.10) más sencilla. Notamos que en el argumento de la exponencial para la onda plana tenemos el producto escalar $\vec{k} \cdot \vec{r}$ que da el comportamiento espacial de la onda. Sabemos por un lado que la magnitud del vector de propagación \vec{k} está dada en términos de la longitud de onda λ de la radiación, $|\vec{k}| = k = 2\pi/\lambda$. Por otro lado, notamos que en el contexto atómico la magnitud del vector de posición \vec{r} es del orden del tamaño del átomo, $|\vec{r}| = r \approx a_0$, donde $a_0 \approx 10^{-10}$ m es el radio de Bohr.

Para transiciones ópticas ($\lambda \approx 10^{-7}$ m) se puede ver que la magnitud del producto $\vec{k} \cdot \vec{r}$ es pequeña ($|\vec{k} \cdot \vec{r}| \approx 10^{-3}$). Así, consideramos un desarrollo en series de la parte espacial de la exponencial que aparece en 2.10 y nos quedamos con el primer término de esta:

$$\begin{aligned}
\frac{e E_0 \omega_{ge}}{\omega} \langle g | \hat{r} \cdot \hat{\epsilon} \exp[i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)] | e \rangle &= \frac{e E_0 \omega_{ge}}{\omega} \langle g | \hat{r} \cdot \hat{\epsilon} (1 + i\vec{k} \cdot \vec{r} + \dots) \exp[-i\omega t] | e \rangle \\
&\approx \frac{e E_0 \omega_{ge}}{\omega} \langle g | \hat{r} \cdot \hat{\epsilon} | e \rangle
\end{aligned} \tag{2.11}$$

A la aproximación anterior se le conoce en la literatura como la aproximación dipolar eléctrica [5, 43]. De la expresión 2.11 podemos ver que esta aproximación corresponde a tomar un hamiltoniano de interacción, a primer orden, de la forma $\hat{H}_{int}^{(1)} = \hat{d} \cdot \vec{E}$, donde $\hat{d} = e\hat{r}$ es el operador de momento dipolar eléctrico y $\vec{E} = E_0 \hat{\epsilon}$. Notamos en particular que este hamiltoniano se puede escribir en términos de una de las componentes de \vec{r} , las cuales a su vez se pueden expresar en términos de combinaciones lineales de armónicos esféricos Y_{1m} (i.e. tensores esféricos de rango 1). [16, 43]

2.2.3 Aproximación cuadrupolar eléctrica

Podemos considerar transiciones más allá de la aproximación dipolar eléctrica simplemente tomando términos adicionales en la expansión de la parte espacial de la onda plana. En particular, tomamos ahora

el segundo término en la expansión, $(i\vec{k} \cdot \vec{r})$, de forma que de la ecuación 2.10 se sigue que

$$\begin{aligned} \frac{eE_0\omega_{ge}}{\omega} \langle g | \hat{r} \cdot \hat{\epsilon} \exp[i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)] | e \rangle &= \frac{eE_0\omega_{ge}}{\omega} \langle g | \hat{r} \cdot \hat{\epsilon} (1 + i\vec{k} \cdot \vec{r} + \dots) \exp[-i\omega t] | e \rangle \\ &\approx \frac{ieE_0\omega_{ge}}{\omega} \langle g | (\hat{r} \cdot \hat{\epsilon})(\hat{k} \cdot \hat{r}) | e \rangle \end{aligned} \quad (2.12)$$

A partir de esta aproximación salen los términos correspondientes a las interacciones dipolar magnética y cuadrupolar eléctrica. Para este trabajo el enfoque será sobre la interacción cuadrupolar eléctrica, por lo que solo se utilizarán esos términos en el siguiente desarrollo. La parte de la teoría que corresponde a considerar el término dipolar magnético se puede ver en las referencias [5, 33] y [43].

Podemos ver que de la condición de ondas planas $\vec{k} \cdot \vec{e} = 0$ de modo que los operadores asociados conmutan. Esto nos permite cambiar el orden de los paréntesis en la ecuación 2.12, de forma que tenemos ahora un operador de la forma $(\hat{k} \cdot \hat{r})(\hat{r} \cdot \hat{\epsilon})$. De manera análoga al caso dipolar (sección 2.2.2) vemos que esto se puede considerar como un hamiltoniano de interacción de segundo orden $\hat{H}_{int}^{(2)} = ieE_0 \frac{\omega_{ge}}{\omega} (\hat{k} \cdot \hat{r})(\hat{r} \cdot \hat{\epsilon})$.

Dado que este hamiltoniano es cuadrático en r , podemos reescribirlo en términos del tensor de momento cuadrupolar eléctrico \hat{Q} definido por [5, 23, 43]

$$Q_{ij} = \int \rho(\vec{r})(3r_i r_j - r^2 \delta_{ij}) d^3 \vec{r} \quad (2.13)$$

donde $\rho(\vec{r})$ es la densidad espacial de carga del sistema. Recordamos que productos de componentes cartesianas x, y, z se pueden escribir en términos de combinaciones de armónicos esféricos Y_{2m} . Se puede entonces demostrar [43] que la ecuación 2.13 se reescribe en forma de un tensor de segundo rango

$$Q_q^{(2)} = r^2 C_q^2; \quad C_q^2 = \sqrt{\frac{4\pi}{2l+1}} Y_{2m}(\theta, \phi). \quad (2.14)$$

Asimismo, se puede demostrar que el hamiltoniano $\hat{H}_{int}^{(2)}$ se puede escribir como el producto de tensores esféricos

$$\hat{H}_{int}^{(2)} = \frac{\omega_{ge}}{\omega} (\hat{\nabla} \cdot \hat{r})(e\hat{r} \cdot \vec{E}) = \frac{\omega_{ge}}{\omega} \sum_{q=-2}^2 (-1)^q K_q^{(2)} Q_{-q}^{(2)} \quad (2.15)$$

2.2.4 Reglas de selección para la aproximación dipolar

Queremos ahora determinar las reglas de selección para una transición dipolar eléctrica, descrita por el elemento de matriz $\langle g | H_{int}^{(1)} | e \rangle$ (ver sección 2.2.2). Supongamos ahora que los estados del átomo incluyen estructura fina (*i.e.* términos de interacción espín-órbita, $\vec{L} \cdot \vec{S}$) y estructura hiperfina (*i.e.* términos de interacción núcleo-electrón, $\vec{I} \cdot \vec{J}$), de modo que $|i\rangle \equiv |nLSJIFM_F\rangle$, con $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$, $\vec{F} = \vec{I} + \vec{J}$, y que S, I no cambian.

Tomando en cuenta que el hamiltoniano se puede expresar en términos de tensores esféricos de rango 1, usamos el teorema de Wigner-Eckart para escribir el elemento de matriz [5, 16, 30, 43]

$$\begin{aligned} \langle nLSJIFM_F | T_q^{(1)} | n'L'S'J'I'F'M'_F \rangle &= (-1)^\gamma \sqrt{(2F+1)(2F'+1)(2J+1)(2J'+1)} \\ &\quad \begin{pmatrix} F & 1 & F' \\ -M_F & q & M'_F \end{pmatrix} \begin{Bmatrix} J & F & I \\ F' & J' & 1 \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} L & J & S \\ J' & L' & 1 \end{Bmatrix} \\ &\quad \langle nL || T^{(1)} || n'L' \rangle \end{aligned} \quad (2.16)$$

con $\gamma = F - M_F + J + I + 1 + F' + L + S + J' + 1$.

Una primera regla de selección surge simplemente de considerar las propiedades del operador \hat{d} en $H_{int}^{(1)}$. Por definición vemos que las componentes de este operador cambian de signo bajo la transformación $\hat{r} \rightarrow -\hat{r}$. Por lo tanto, el elemento de matriz es distinto de cero para transiciones entre estados de paridad opuesta,

$$\Delta l = l_g - l_e = \pm 1. \quad (2.17)$$

Otras reglas de selección se obtienen directamente de las propiedades de los símbolos 3-j y 6-j [16, 39, 43] en la expresión 2.16. De las propiedades del símbolo 3-j se obtiene que para que este sea distinto de cero se debe satisfacer

$$\begin{aligned} \Delta F &= 0, \pm 1 \\ \Delta M_F &= 0, \pm 1 \\ F + F' &\geq 1 \end{aligned} \quad (2.18)$$

De las propiedades del primer símbolo 6-j se obtiene que este es distinto de cero si se cumple

$$\begin{aligned} \Delta J &= 0, \pm 1 \\ J + J' &\geq 1 \end{aligned} \quad (2.19)$$

mientras que del segundo símbolo 6-j se tiene que se debe cumplir

$$\begin{aligned} \Delta L &= 0, \pm 1 \\ L + L' &\geq 1 \end{aligned} \quad (2.20)$$

2.2.5 Reglas de selección para la aproximación cuadrupolar

Al igual que en la sección anterior, queremos determinar las reglas de selección para una transición cuadrupolar eléctrica dada por un elemento de matriz $\langle g | H_{int}^{(2)} | e \rangle$ (ver sección 2.2.3). Nuevamente consideramos estados del átomo que incluyen estructura fina e hiperfina, $|i\rangle \equiv |nLSJIFM_F\rangle$, en los cuales S, I son constantes.

Aplicando de nueva cuenta el teorema de Wigner-Eckart, en este caso para un tensor esférico de rango 2, tenemos que el elemento de matriz se descompone como:

$$\begin{aligned} \langle nLSJIFM_F|T_q^{(2)}|n'L'SJ'IF'M'_F\rangle &= (-1)^\varphi \sqrt{(2F+1)(2F'+1)(2J+1)(2J'+1)} \\ &\begin{pmatrix} F & 2 & F' \\ -M_F & q & M'_F \end{pmatrix} \begin{Bmatrix} J & F & I \\ F' & J' & 2 \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} L & J & S \\ J' & L' & 2 \end{Bmatrix} \\ &\langle nL||T^{(2)}||n'L'\rangle \end{aligned} \quad (2.21)$$

con $\varphi = F - M_F + J + I + 2 + F' + L + S + J' + 2$.

La primera regla de selección que notamos se obtiene de manera análoga a la regla 2.17. Dado que el hamiltoniano ahora es cuadrático en las componentes de \hat{r} podemos ver que este es invariante ante la transformación $\hat{r} \rightarrow -\hat{r}$. Esto da lugar a que para el caso cuadrupolar eléctrico el elemento de matriz sea distinto de cero solo cuando la transición es entre estados de la misma paridad

$$\Delta l = l_g - l_e = 0, \pm 2. \quad (2.22)$$

Las demás reglas de selección se obtienen nuevamente de los símbolos 3-j, 6-j en la ecuación 2.21. Del símbolo 3-j se obtiene que ser distinto de cero se debe cumplir

$$\begin{aligned} \Delta F &= 0, \pm 1, \pm 2 \\ \Delta M_F &= 0, \pm 1, \pm 2 \\ F + F' &\geq 2 \end{aligned} \quad (2.23)$$

De las propiedades del primer símbolo 6-j se obtiene que este es distinto de cero si se cumple

$$\begin{aligned} \Delta J &= 0, \pm 1, \pm 2 \\ J + J' &\geq 2 \end{aligned} \quad (2.24)$$

mientras que del segundo símbolo 6-j se tiene que se debe cumplir

$$\begin{aligned} \Delta L &= 0, \pm 1, \pm 2 \\ L + L' &\geq 2 \end{aligned} \quad (2.25)$$

2.2.6 Efecto Autler-Townes

La interacción entre la radiación electromagnética y la materia da lugar no solo a las transiciones atómicas y los correspondientes procesos de absorción y emisión estimulada y espontánea, sino que también a otros efectos cuya naturaleza reside en la descripción realizada por la mecánica cuántica. Estos efectos son de especial interés en procesos de excitación multifotónicos (*i.e.* con más de un campo externo presente) en sistemas de varios niveles ya que permiten modificar la dinámica de estos por medio de los parámetros de los campos utilizados.

Supongamos que se tiene un átomo de tres niveles en presencia ahora de dos campos electromagnéticos distintos, \vec{E}_c, \vec{E}_p . El campo \vec{E}_c acopla los primeros dos niveles del átomo, $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$, con una frecuencia

casi resonante con ω_{12} dada por una desintonía δ_c , $\omega_c = \omega_{12} - \delta_c$. Por otro lado, el campo \vec{E}_p acopla los últimos dos niveles del átomo, $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$, con una frecuencia desintonizada de la resonancia con ω_{23} por δ_p , $\omega_p = \omega_{23} - \delta_p$. Consideramos también que los niveles $|2\rangle$ y $|3\rangle$ decaen con tazas dadas por los anchos Γ_2 y Γ_3 , respectivamente.

Utilizando el formalismo de la matriz densidad, $\rho = \sum_i c_i |i\rangle\langle i|$ [30], podemos describir la dinámica de este sistema de tres niveles usando la ecuación maestra

$$i\hbar\dot{\hat{\rho}} = i\hbar\frac{d\hat{\rho}}{dt} = [\hat{H}, \hat{\rho}] - i\hbar\frac{1}{2}\{\Gamma, \hat{\rho}\}, \quad (2.26)$$

$$\hat{H} = \begin{pmatrix} -\delta_c & \Omega_c & 0 \\ \Omega_c & 0 & \Omega_p \\ 0 & \Omega_p & \delta_p \end{pmatrix}, \quad \Gamma = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & \Gamma_2 & 0 \\ 0 & 0 & \Gamma_3 \end{pmatrix}$$

donde $[\cdot, \cdot]$ representa el conmutador y $\{\cdot, \cdot\}$ representa el anticonmutador (paréntesis de Poisson) de la mecánica cuántica, \hat{H} es la matriz hamiltoniana para las interacciones con los campos y Γ es la matriz de los decaimientos del sistema [5, 42]. Al resolver la ecuación 2.26 para el caso de un estado estacionario ($\dot{\hat{\rho}} = 0$), con la condición adicional $Tr(\rho) = 1$ y $\hbar = 1$, se obtienen las siguientes expresiones para los elementos de matriz ρ_{ij} , que representan las poblaciones ($i = j$) y las coherencias ($i \neq j$), del sistema.

$$\begin{aligned} \rho_{11} + \rho_{22} + \rho_{33} &= 1 \\ -\frac{\Gamma_2\rho_{12}}{2} + i(\rho_{12}\delta_c + \rho_{11}\Omega_c - \rho_{22}\Omega_c + \rho_{13}\Omega_p) &= 0 \\ -\frac{\Gamma_3\rho_{13}}{2} + i(\rho_{13}\delta_c - \rho_{23}\Omega_c + \rho_{13}\delta_p + \rho_{12}\Omega_p) &= 0 \\ -\frac{\Gamma_2\rho_{21}}{2} - i(\rho_{21}\delta_c + \rho_{11}\Omega_c - \rho_{22}\Omega_c + \rho_{31}\Omega_p) &= 0 \\ -\Gamma_2\rho_{22} - i(\rho_{12}\Omega_c - \rho_{21}\Omega_c + (\rho_{32} - \rho_{23})\Omega_p) &= 0 \\ -\frac{1}{2}\rho_{23}(\Gamma_2 + \Gamma_3) + i(-\rho_{13}\Omega_c + \rho_{23}\delta_p + (\rho_{22} - \rho_{33})\Omega_p) &= 0 \\ -\frac{\Gamma_3\rho_{31}}{2} - i(\rho_{31}\delta_c - \rho_{32}\Omega_c + \rho_{31}\delta_p + \rho_{21}\Omega_p) &= 0 \\ -\frac{1}{2}\rho_{32}(\Gamma_2 + \Gamma_3) - i(-\rho_{31}\Omega_c + \rho_{32}\delta_p + (\rho_{22} - \rho_{33})\Omega_p) &= 0 \\ -\Gamma_3\rho_{33} - i(\rho_{23} - \rho_{32})\Omega_p &= 0 \end{aligned} \quad (2.27)$$

En el caso más común, correspondiente a acoplamientos por medio de transiciones dipolares eléctricas, al tener un acoplamiento intenso entre los primeros dos niveles ($\Omega_c/\Gamma_2 > 1$) y un acoplamiento débil ($\Omega_p/\Gamma_3 \ll 1$) se puede ver el efecto Autler-Townes: en la absorción del segundo paso, proporcional a la parte imaginaria de ρ_{23} , se obtiene un perfil de línea compuesto de la suma de dos Lorentzianas que corresponde al desdoblamiento de niveles por un efecto Stark dinámico. Otra manera de abordar este efecto es usando el esquema de “átomos vestidos” presentado, por ejemplo, en las referencias [12, 22].

Para el caso particular del sistema de tres niveles formado por el esquema de excitación de este trabajo ($5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 6P_J$) tenemos que los términos fuera de la diagonal de la matriz \hat{H} corresponden a las transiciones realizadas por los láseres, con sus desintonías respectivas, entre los niveles correspondientes.

Para la transición dipolar $\Omega_c = \mathcal{D}_{5S5P}E_c/\hbar$ y para la transición cuadrupolar $\Omega_p \propto \mathcal{Q}_{5P6P}E_p$, con \mathcal{D}_{5S5P} el elemento de matriz para la transición dipolar y \mathcal{Q}_{5P6P} el elemento de matriz para la transición cuadrupolar. Dada la diferencia en las ordenes de magnitud de las probabilidades de transición para estas, se puede suponer desde un principio que se tienen las condiciones necesarias para observar el efecto Autler-Townes.

En este caso el término que nos interesa ver no es $\text{Im}[\rho_{23}]$ ya que no esperamos obtener una señal de absorción del segundo campo muy intensa debido a las bajas probabilidades de la transición cuadrupolar. En vez de esto, veremos ahora la población que se genera en el estado $6P_J$, *i.e.* ρ_{33} , y la fluorescencia producida por el decaimiento $6P_J \rightarrow 5S_{1/2}$ proporcional a esta población. En particular, veremos que para la solución del estado estacionario se puede expandir ρ_{33} en una serie de potencias en término de Ω_p , dando así

$$\rho_{33} \approx \frac{1}{\Gamma_3(4\delta_c^2 + \Gamma_2^2 + 8\Omega_c^2)} \times \frac{16\Omega_c^2\Omega_p^2(4\delta_p^2\Gamma_3 + (\Gamma_2 + \Gamma_3)(\Gamma_3(\Gamma_2 + \Gamma_3) + 4\Omega_c^2))}{(4(\delta_c + \delta_p)^2 + \Gamma_3^2)(4\delta_p^2 + (\Gamma_2 + \Gamma_3)^2) + 8\Omega_c^2(\Gamma_3(\Gamma_2 + \Gamma_3) - 4\delta_p(\delta_c + \delta_p)) + 16\Omega_c^4} \quad (2.28)$$

Cabe mencionar que la expresión 2.28 para ρ_{33} en este desarrollo en series es simplemente $\frac{2\Omega_p}{\Gamma_3}\text{Im}[\rho_{23}]$. Así, tenemos reafirmamos que podemos ver un efecto Autler-Townes mediante la señal de fluorescencia producida. Este resultado se puede utilizar entonces como una expresión para el perfil de línea de la fluorescencia que se observa en los experimentos.

2.3 Estructura energética del átomo de rubidio

El rubidio (Rb) es un elemento comúnmente utilizado en espectroscopia láser debido a dos factores importantes: es un metal alcalino y tiene líneas de absorción/emisión en el infrarrojo cercano (NIR, $\sim 700-1000$ nm). El primer factor facilita hacer un desarrollo teórico para este átomo ya que se tiene un sistema hidrogenoide en el cual solo el electrón de valencia en el orbital s es responsable de la interacción con campos externos. De manera similar el segundo factor facilita el diseño y construcción de dispositivos experimentales para llevar a cabo procesos de excitación en este átomo ya que existen diodos láser comerciales que pueden emitir a longitudes de onda en este rango del espectro electromagnético y son de bajo costo.

En la naturaleza el rubidio aparece en dos isótopos principales, uno estable, ^{85}Rb , y otro radiactivo, ^{87}Rb , el cual decae por medio de un proceso β^- con una vida media de 48.8×10^9 años. De estos el ^{85}Rb es el isótopo más abundante (72.17%) [44] y por lo tanto da una señal aproximadamente tres veces más intensa que el ^{87}Rb al realizar observaciones espectroscópicas.

2.3.1 Estructura atómica

Rubidio es un metal alcalino con número atómico $Z = 37$, con una configuración electrónica del estado base $[\text{Kr}]5s$ y término $2S_{1/2}$. En este trabajo se estudia un proceso de excitación de dos fotones (*i.e.* tres niveles energéticos) en Rb dado por las transiciones $5s_{1/2} \rightarrow 5p_{3/2} \rightarrow 6p_J$. La transición dipolar $5s_{1/2} \rightarrow 5p_{3/2}$ (línea $D2$), ha sido estudiada con detalle: se sabe bien que la dicha transición tiene una longitud de onda de 780.24 nm [26, 44, 45] y que se puede resolver la estructura hiperfina del estado $5p_{3/2}$ por técnicas de espectroscopia tales como las presentadas en las referencias [15, 18, 21, 35].

El objetivo principal de este proyecto era observar la transición prohibida $5p_{3/2} \rightarrow 6p_J$. De la discusión anterior se nota que dicha transición está prohibida bajo las reglas de selección dipolares eléctricas (ver sección 2.2.4) pero es posible bajo una interacción del tipo cuadrupolar eléctrica o dipolar magnética. En principio el desarrollo del hamiltoniano de interacción átomo-radiación nos indica que ambas contribuyen a la transición prohibida $5p_{3/2} \rightarrow 6p_J$. Sin embargo, el estudio de una transición similar en átomos de Rb fríos [7, 36] da pauta a considerar que la interacción es solo del tipo cuadrupolar eléctrica.

El rubidio, al ser un átomo hidrogenoide, permite aplicar de manera sencilla la teoría de momento angular [16, 39] para ver los acoplamientos entre los distintos momentos angulares del átomo, los cuales dan lugar a las estructuras finas e hiperfinas de los niveles energéticos. En el caso de la estructura fina, la teoría indica que el desdoblamiento de los niveles finos se debe a la interacción espín-órbita, en la cual se acoplan los momentos angulares correspondientes, \mathbf{S} y \mathbf{L} , para formar el momento angular total $\mathbf{J} = \mathbf{S} + \mathbf{L}$ del electrón. Los valores que toma este nuevo número cuántico del sistema se encuentran acotados por $|L - S| \leq J \leq L + S$, y sus proyecciones están dadas por $-J \leq M_J \leq J$.

La estructura hiperfina del Rb se debe al acoplamiento del momento angular total del electrón \mathbf{J} y del momento angular nuclear \mathbf{I} , resultando en el momento angular total $\mathbf{F} = \mathbf{J} + \mathbf{I}$ del átomo. Al igual que en el acoplamiento espín-órbita, la teoría de momento angular indica que \mathbf{F} toma valores dados por $|J - I| \leq F \leq J + I$ y cuyas proyecciones M_F pueden tener valores $-F \leq M_F \leq F$.

En el marco de este trabajo se propone trabajar con los estados $5s$, $5p$, y $6p$. En todos se tiene que $S = s = 1/2$ y $L = l$ por lo que de acuerdo a lo anterior se tiene el siguiente desdoblamiento de los niveles finos e hiperfinos:

				$^{85}\text{Rb}; I = 5/2$		$^{87}\text{Rb}; I = 3/2$	
Estado	n	L	J	F	M_F	F	M_F
5s	5	0	1/2	2	0, ± 1 , ± 2	1	0, ± 1
				3	0, ± 1 , ± 2 , ± 3	2	0, ± 1 , ± 2
5p	5	1	1/2	2	0, ± 1 , ± 2	1	0, ± 1
				3	0, ± 1 , ± 2 , ± 3	2	0, ± 1 , ± 2
			3/2	1	0, ± 1	0	0
				2	0, ± 1 , ± 2	1	0, ± 1
				3	0, ± 1 , ± 2 , ± 3	2	0, ± 1 , ± 2
				4	0, ± 1 , ± 2 , ± 3 , ± 4	3	0, ± 1 , ± 2 , ± 3
6p	6	1	1/2	2	0, ± 1 , ± 2	1	0, ± 1
				3	0, ± 1 , ± 2 , ± 3	2	0, ± 1 , ± 2
			3/2	1	0, ± 1	0	0
				2	0, ± 1 , ± 2	1	0, ± 1
				3	0, ± 1 , ± 2 , ± 3	2	0, ± 1 , ± 2
				4	0, ± 1 , ± 2 , ± 3 , ± 4	3	0, ± 1 , ± 2 , ± 3

Tabla 2.1: Desdoblamiento de niveles finos, hiperfinos y proyecciones de momento angular total para los estados involucrados en el proceso de excitación $5s_{1/2} \rightarrow 5p_{3/2} \rightarrow 6p_J$ en rubidio.

Los valores para las energías con los cuales se pueden calcular las longitudes de onda de las dos transiciones de estos estados se pueden encontrar en [26, 40]. Para calcular la separación entre distintos estados hiperfinos se utiliza la fórmula que resulta de considerar la interacción hiperfina en el hamiltoniano, dando

un corrimiento de las energías respecto al centro de gravedad del multiplete[3, 44]

$$\Delta E_{HFS}(F) = \frac{AK}{2} + B \frac{\frac{3}{2}K(K+1) - 2I(I+1)J(J+1)}{2I(2I-1)2J(2J-1)} \quad (2.29)$$

donde $K = F(F+1) - I(I+1) - J(J+1)$, para dos valores de F distintos. Las constantes A y B se conocen como las constantes hiperfinas dipolares magnéticas y cuadrupolares eléctricas, respectivamente, y se pueden encontrar para los estados $5s$, $5p$ y $6p$ en las referencias [3, 17, 40]. Cabe mencionar que en la expresión (2.29) para ΔE_{HFS} se desprecia un término, correspondiente a una constante C octupolar magnética, debido a que no se han realizado mediciones suficientemente precisas para asignar un valor distinto de cero a dicha constante.[44]

Los resultados de las separaciones hiperfinas calculadas para los estados $6p_J$ usando la ecuación 2.29 se presentan en las tabla a continuación (ver tablas 2.2 y 2.3). De manera análoga, un diagrama de los niveles energéticos involucrados en el proceso de excitación de dos fotones de este experimento se encuentra en la Fig. 2.1.

Isótopo	Niveles hiperfinos (F'' , F')	$\Delta\nu_{F''F'}$ (MHz)
^{85}Rb	(4, 3)	39.268
	(3, 2)	20.851
	(2, 1)	9.806
^{87}Rb	(3, 2)	86.967
	(2, 1)	51.403
	(1, 0)	23.729

Tabla 2.2: Separación entre los estados hiperfinos del nivel $6p_{3/2}$. Los valores de las constantes hiperfinas utilizados fueron $A = 8.179$ MHz y $B = 8.190$ MHz para ^{85}Rb y $A = 27.674$ MHz y $B = 3.945$ MHz para ^{87}Rb . [3, 40]

Isótopo	Niveles hiperfinos (F'' , F')	$\Delta\nu_{F''F'}$ (MHz)
^{85}Rb	(3, 2)	117.33
^{87}Rb	(2, 1)	265.12

Tabla 2.3: Separación entre los estados hiperfinos del nivel $6p_{1/2}$. Los valores de las constantes hiperfinas utilizados fueron $A = 39.11$ MHz para ^{85}Rb y $A = 132.56$ MHz para ^{87}Rb . [17]

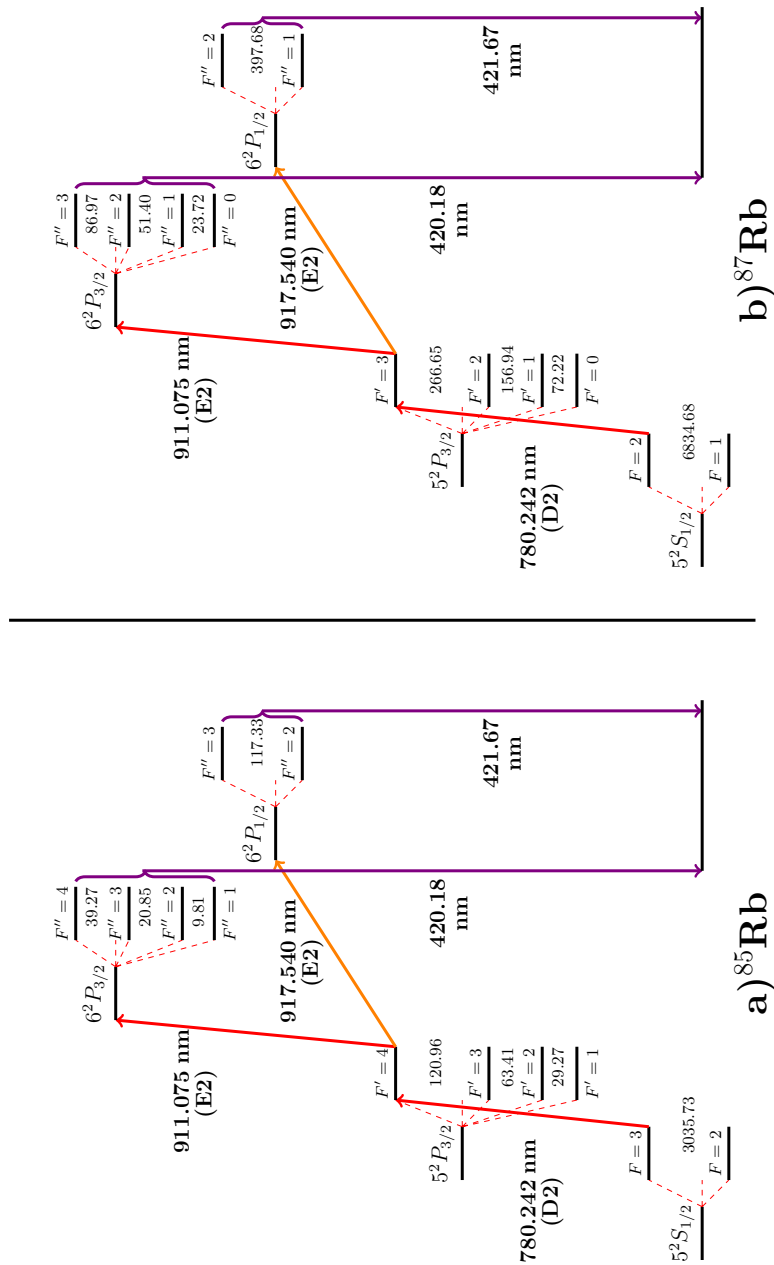


Figura 2.1: Diagrama de niveles de energía para a) ^{85}Rb y b) ^{87}Rb , incluyendo estructura fina e hiperfina, involucrados en el proceso de dos fotones $5s_{1/2} \rightarrow 5p_{3/2} \rightarrow 6p_J$. Se marca la longitud de onda necesaria para realizar cada transición prohibida (E2), al igual que las separaciones en MHz entre los niveles hiperfinos y el decaimiento del estado $6p_J$ al estado base.

Capítulo 3

Modelo de tres pasos

En esta sección se da una breve descripción del modelo teórico utilizado para el estudio de las transiciones cuadrupolares eléctricas $5p_{3/2} \rightarrow 6p_J$. Dicho modelo utiliza la naturaleza de las transiciones involucradas para calcular, por medio de tres pasos consecutivos e independientes, las intensidades relativas de las líneas de emisión. En particular se hace uso de que las transiciones cuadrupolares eléctricas son más débiles que una transición dipolar (por alrededor de 5 órdenes de magnitud) [5, 43] y que la dinámica de las poblaciones en el primer estado excitado puede ser aproximada por medio de las ecuaciones de Einstein.

La geometría utilizada en el experimento también es un factor importante al momento de desarrollar un modelo teórico. Como se verá más adelante (ver sección 4.1 y 4.2), la geometría del sistema experimental se puede resumir de acuerdo a la figura 3.1. Bajo estas consideraciones, se puede ver que el modelo da una expresión para calcular la probabilidad de observar un fotón a ~ 420 nm con tres términos (uno para cada paso):

$$P(F_3) = \sum_{M_2, M_3, F'_1, M'_1, \lambda} \sigma(F_2, M_2) \times |\langle 5p_{3/2} F_2 M_2 | T_q | 6p_J F_3 M_3 \rangle|^2 \times |\langle 6p_J F_3 M_3 | D_\lambda | 5s_{1/2} F'_1 M'_1 \rangle|^2 \quad (3.1)$$

Cada uno de los tres términos se discute brevemente a continuación. Más detalles sobre el desarrollo de este modelo y los cálculos realizados en cada paso se pueden encontrar en la referencia [33].

3.1 Primer paso: preparación $5s_{1/2} \rightarrow 5p_{3/2}$

El primer paso del modelo desarrollado corresponde a la primera excitación necesaria para observar las transiciones cuadrupolares, *i.e.* la transición dipolar eléctrica $5s_{1/2} \rightarrow 5p_{3/2}$. En particular nos interesa ver la distribución de las poblaciones entre los niveles hiperfinos F y subniveles magnéticos M_F de los átomos excitados al estado $5p_{3/2}$, que corresponde al término $\sigma(F_2, M_2)$ de la ec. 3.1. En este caso aproximamos este paso como un sistema de dos niveles, utilizando el hecho de los pasos siguientes no modifican de manera significativa estas poblaciones.

Para esto se hace uso, como se mencionó anteriormente, de las ecuaciones de evolución poblacional de Einstein. En estas ecuaciones se modela el cambio de poblaciones en un sistema atómico por tres fenómenos distintos: emisión espontánea, absorción estimulada y emisión estimulada. Así, considerando un sistema atómico de dos niveles, $\alpha = 5s_{1/2}, F_1$ y $\beta = 5p_{3/2}, F_2$, incluyendo todos los subniveles magnéticos

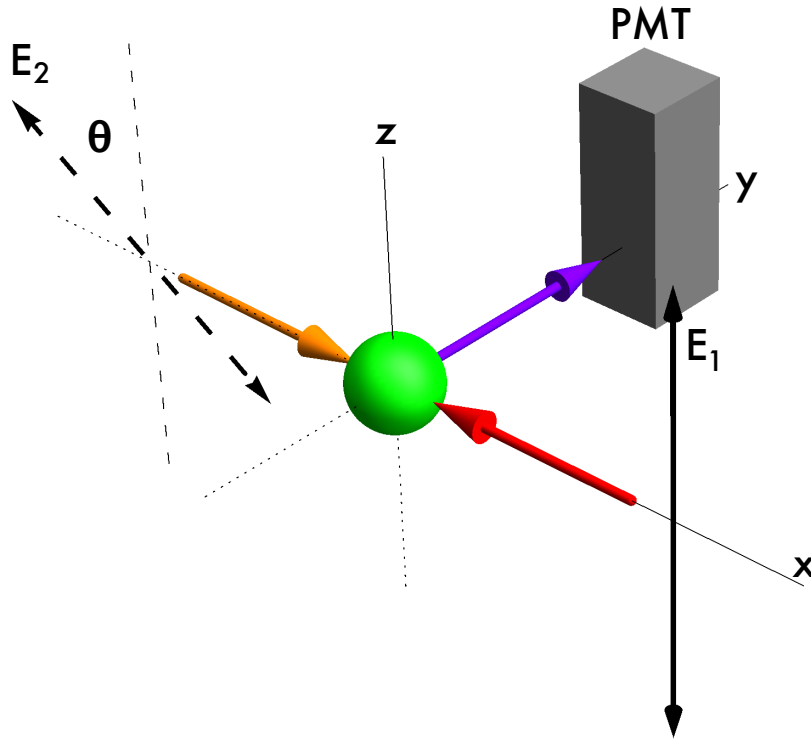


Figura 3.1: Esquema de la geometría utilizada para el desarrollo del modelo teórico. La dirección de polarización del haz de preparación dipolar (E_1) fija el eje z en este sistema. La polarización del haz de la excitación cuadrupolar (E_2) se encuentra a un ángulo θ con respecto a la dirección del eje z . Los haces de ambos láseres son contrapropagantes sobre el eje x , y la detección de la fluorescencia, debida al decaimiento dipolar, se hace con un fotomultiplicador (PMT) sobre el eje y .

M_1, M_2 , las ecuaciones de Einstein se pueden escribir como:

$$\frac{dN_{M_\alpha}}{dt} = \rho B_{M_\alpha}^{M_\beta} (N_{M_\beta} - N_{M_\alpha}) + \sum_{M_\beta} A_{M_\alpha}^{M_\beta} N_{M_\beta}, \quad (3.2)$$

$$\frac{dN_{M_\beta}}{dt} = -\rho B_{M_\alpha}^{M_\beta} (N_{M_\beta} - N_{M_\alpha}) - \sum_{M_\beta} A_{M_\alpha}^{M_\beta} N_{M_\beta}. \quad (3.3)$$

donde N_{M_α} y N_{M_β} son las poblaciones de los subniveles magnéticos de los niveles α y β , respectivamente, ρ es la densidad de energía de la radiación incidente y $A_{M_\alpha}^{M_\beta}, B_{M_\alpha}^{M_\beta}$ son los coeficientes de Einstein para procesos espontáneos y estimulados, respectivamente.

Asumiendo inicialmente una distribución uniforme de la población entre los subniveles magnéticos M_α ($N_{M_\alpha}(t=0) = 1/\sum_\alpha M_\alpha$) y $F_2 = F_1 + 1$ (i.e. la transición cíclica de la línea D_2) se pueden resolver las ecuaciones 3.2 y 3.3 de forma numérica. Para el modelo de este trabajo se consideraron valores de ρ menores al valor de la intensidad de saturación I_0 de la línea D_2 [31, 44, 45] ($0 \leq \rho \leq I_0$) y tiempos de evolución menores al tiempo de tránsito T_{trans} [18] a través del haz de los átomos ($0 \leq t \leq T_{trans}$).

De esta manera, consideramos que cada valor de $\sigma(F_2, M_2)$ está dado por el promedio temporal de la población de cada subnivel M_2 por

$$\sigma(F_2, M_2) = \frac{1}{T_{trans}} \int_0^{T_{trans}} N_{M_2}(t) dt. \quad (3.4)$$

3.2 Segundo paso: excitación cuadrupolar $5p_{3/2} \rightarrow 6p_J$

El segundo paso para nuestro modelo consiste en tomar en cuenta la excitación cuadrupolar $5p_{3/2} \rightarrow 6p_J$, cuya probabilidad da lugar al segundo término en la ecuación 3.1, $|\langle 5p_{3/2} F_2 M_2 | T_q | 6p_J F_3 M_3 \rangle|^2$. Como se discutió anteriormente (ver sección 2.3), se trabaja bajo la suposición de que esta transición sucede debido a términos de interacción cuadrupolares eléctricos, por lo que T_q representa el operador cuadrupolar eléctrico dado por $T_q = -e(\vec{k}_2 \cdot \vec{r})(\vec{r} \cdot \vec{E}_2)$.

De acuerdo con la geometría presentada en la figura 3.1 suponemos que el campo eléctrico del láser de excitación cuadrupolar (\vec{E}_2) forma un ángulo θ respecto al campo eléctrico del láser de preparación (\vec{E}_1). Esto nos permite considerar a \vec{E}_2 en términos de una componente paralela de amplitud $E_{||} = E_2 \cos \theta$ y una componente perpendicular con amplitud $E_{\perp} = E_2 \sin \theta$, que a su vez dan dos operadores cuadrupolares $T_{q,||}$ y $T_{q,\perp}$:

$$T_{q,||} = -e(\vec{k}_2 \cdot \vec{r})(\vec{r} \cdot \vec{E}_{||}) \equiv -e(ik_2 x)(E_2 z) \cos \theta, \quad (3.5)$$

$$T_{q,\perp} = -e(\vec{k}_2 \cdot \vec{r})(\vec{r} \cdot \vec{E}_{\perp}) \equiv -e(ik_2 x)(E_2 y) \sin \theta. \quad (3.6)$$

Podemos simplificar el cálculo de la probabilidad de la transición tomando en cuenta ahora que las ecuaciones 3.5 y 3.6 las podemos reescribir en términos de tensores esféricos irreducibles. En este caso, vemos que en términos de los esféricos armónicos $Y_{l,m}$ [16, 43] se pueden escribir

$$xz = \sqrt{\frac{2\pi}{15}} r^2 (Y_{2,-1} - Y_{2,1}), \quad xy = \sqrt{\frac{2\pi}{15}} i r^2 (Y_{2,-2} - Y_{2,2}) \quad (3.7)$$

Ahora, aplicando el teorema de Wigner-Eckart al elemento de matriz de la transición $5p_{3/2} \rightarrow 6p_J$, tenemos entonces que sustituyendo $T_{q,||}$ y $T_{q,\perp}$ en este se obtienen las expresiones

$$\begin{aligned} \langle 5p_{3/2} F_2 M_2 | T_{q,||} | 6p_J F_3 M_3 \rangle &= (-1)^{F_2 - M_2 + 3/2 + I + F_3} \sqrt{(2F_2 + 1)(2F_3 + 1)} (-e E_2 k_2) \sqrt{\frac{2\pi}{15}} \cos \theta \\ &\quad \left[\begin{pmatrix} F_2 & 2 & F_3 \\ -M_2 & -1 & M_3 \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} F_2 & 2 & F_3 \\ -M_2 & 1 & M_3 \end{pmatrix} \right] \begin{Bmatrix} 3/2 & F_2 & I \\ F_3 & J & 2 \end{Bmatrix} \\ &\quad \langle 5p_{3/2} || r^2 || 6p_J \rangle, \end{aligned} \quad (3.8)$$

$$\begin{aligned} \langle 5p_{3/2} F_2 M_2 | T_{q,\perp} | 6p_J F_3 M_3 \rangle &= (-1)^{F_2 - M_2 + 3/2 + I + F_3} \sqrt{(2F_2 + 1)(2F_3 + 1)} (-ie E_2 k_2) \sqrt{\frac{2\pi}{15}} \sin \theta \\ &\quad \left[\begin{pmatrix} F_2 & 2 & F_3 \\ -M_2 & -2 & M_3 \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} F_2 & 2 & F_3 \\ -M_2 & 2 & M_3 \end{pmatrix} \right] \begin{Bmatrix} 3/2 & F_2 & I \\ F_3 & J & 2 \end{Bmatrix} \\ &\quad \langle 5p_{3/2} || r^2 || 6p_J \rangle. \end{aligned} \quad (3.9)$$

De las ecuaciones 3.8 y 3.9 podemos ver entonces que en función de la dirección de polarización de \vec{E}_2 se pueden utilizar dos reglas de selección cuadrupolares distintas para las proyecciones de F_3 : para $\vec{E}_2 \parallel \vec{E}_1$ ($\theta = 0$) la regla de selección es $\Delta M = \pm 1$ mientras que para $\vec{E}_2 \perp \vec{E}_1$ ($\theta = \pi/2$) la regla de selección es $\Delta M = \pm 2$. En general, para $\theta \neq 0, \pi/2$ se tiene una contribución de ambas reglas de selección en la probabilidad de transición,

$$P(F_3, \theta) = P(F_3, \parallel) \cos^2 \theta + P(F_3, \perp) \sin^2 \theta \quad (3.10)$$

donde $P(F_3, \parallel) \cos^2 \theta$ y $P(F_3, \perp) \sin^2 \theta$ son las expresiones que resultan de sustituir los elementos de matriz de las expresiones 3.8 y 3.9 en la expresión 3.1.

3.3 Tercer paso: decaimiento $6p_{3/2} \rightarrow 5s_{1/2}$

Para el tercer paso del modelo tomamos en cuenta que los átomos excitados hasta el estado $6p_{3/2}, F_3, M_3$ decaen por medio de procesos espontáneos a varios estados de menor energía. En particular, hay una probabilidad distinta de cero de que estos átomos decaigan al estado base $5s_{1/2}, F'_1, M'_1$ por medio de una transición dipolar eléctrica. De acuerdo con la teoría vista en la sección 2.2, esto se puede expresar por medio del tercer término en la ecuación 3.1, $|\langle 6p_J F_3 M_3 | D_\lambda | 5s_{1/2} F'_1 M'_1 \rangle|^2$, donde D_λ es el operador dipolar eléctrico para un estado de polarización λ .

En este caso, la geometría del experimento (ver Fig. 3.1) es de tal forma que la detección de este decaimiento se hace en una dirección ortogonal (y) a la propagación de los haces (x). Sin embargo, la detección no distingue estados de polarización $\lambda = z, x$ de la fluorescencia, por lo que se deben de tomar en cuenta las dos posibilidades. Esto se hace tomando sumas incoherentes de los estados de polarización, $D_\lambda \rightarrow D_z + D_x$, de modo que la probabilidad del decaimiento es

$$|\langle 6p_J F_3 M_3 | D_\lambda | 5s_{1/2} F'_1 M'_1 \rangle|^2 = |\langle 6p_{1/2} F_3 M_3 | D_x | 5s_{1/2} F'_1 M'_1 \rangle|^2 + |\langle 6p_J F_3 M_3 | D_z | 5s_{1/2} F'_1 M'_1 \rangle|^2 \quad (3.11)$$

Capítulo 4

Montaje experimental

Para estudiar las transiciones cuadrupolares eléctricas $5p_{3/2} \rightarrow 6p_J$ en rubidio atómico a temperatura ambiente se utilizó un montaje similar a aquellos usados en otros experimentos involucrando excitaciones de dos fotones [15, 13, 28, 11, 34]. En estos los haces de dos láseres se hacen incidir de manera contrapropagante en un sistema atómico para tomar espectros libres de ensanchamiento por efecto Doppler. Para el caso particular de este experimento (ver Fig. 4.1) los elementos de importancia son los láseres de excitación, en particular aquellos a 911 y 917 nm, y el sistema de detección formado por un tubo fotomultiplicador (PMT) y un amplificador de fase (Lock-in amplifier).

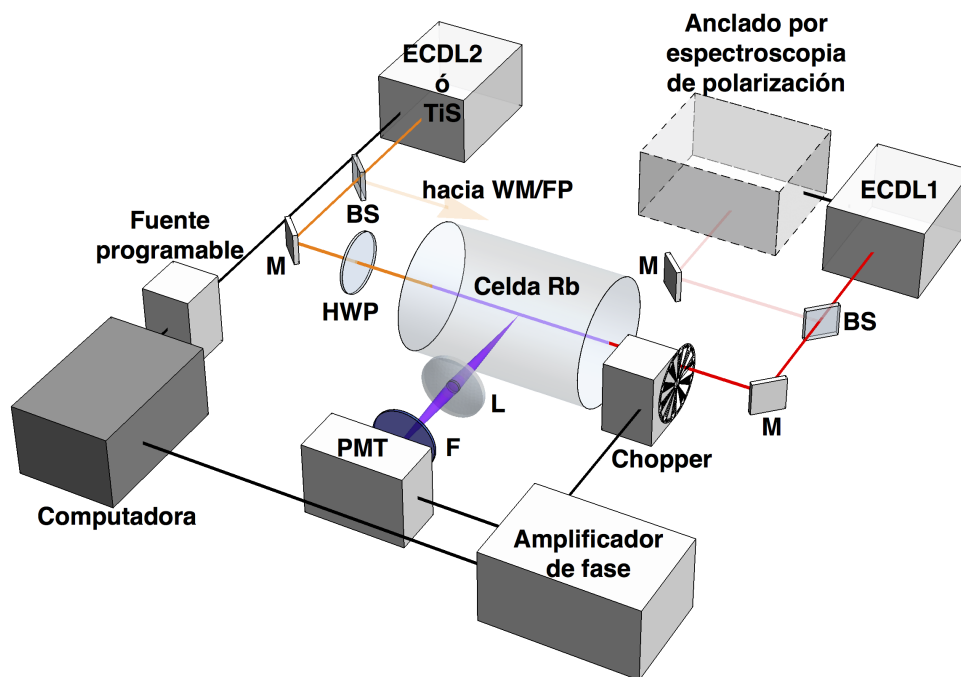


Figura 4.1: Esquema general para un experimento de excitación de una transición cuadrupolar eléctrica $5p_{3/2} \rightarrow 6p_J$. M: espejo, BS: divisor de haz, L: lente, F: filtro, HWP: placa retardadora de media longitud de onda, WM: medidor de longitud de onda, FP: interferómetro Fabry-Peròt, ECDL1: láser de diodo de cavidad externa (@780 nm), ECDL2: láser de diodo de cavidad externa (@911 nm), TiS: láser comercial de titanio-zafiro.

4.1 Sistema de láseres

En este experimento se utilizaron láseres de diodo de cavidad externa (ECDL, por sus siglas en inglés) para realizar los pasos de excitación dipolar de la línea D2 y de la excitación prohibida $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$, mientras que la excitación prohibida para la transición $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{1/2}$ se realizó con un láser comercial de titanio zafiro.

Los láseres de diodo utilizados se construyeron en el Laboratorio de Átomos Fríos del ICN siguiendo los diseños de las referencias [4, 19]. En dicho diseño la cavidad externa se forma al introducir una rejilla de difracción holográfica que permite regresar una de las órdenes de difracción ($m = -1$) hacia el diodo. De esta manera se puede controlar tanto el modo como la longitud de onda de emisión ajustando la distancia del diodo a la rejilla y el ángulo de la rejilla, respectivamente. Esta configuración en particular se conoce como la configuración Littrow y permite reducir el ancho de banda de emisión ya que se estimula que la radiación emitida por el diodo sea casi monocromática.

En el caso de estos láseres la longitud de onda de emisión depende no solo de la longitud de la cavidad, sino también de parámetros de operación como la corriente de inyección del diodo y la temperatura de operación del mismo. Para garantizar emisión a un solo modo de la cavidad se controlaron estos dos parámetros usando un controlador comercial (LDC-3916370 & LDC-3908; ILX-Lightwave). Adicionalmente, el diseño incluye un elemento piezoeléctrico que permite variar de manera fina la longitud de la cavidad, y por lo tanto, la longitud de onda de emisión.

4.1.1 Láser de preparación

El Laboratorio de Átomos Fríos del ICN contaba con varios láseres de cavidad externa para excitar la transición $5s_{1/2} \rightarrow 5p_{3/2}$ debido al uso de esta transición en varios sistemas de espectroscopia [27, 38] y en la generación y caracterización de una trampa magneto-óptica [10, 41].

Se aprovechó esta infraestructura en el desarrollo de este proyecto, usando uno de los láseres con un ancho de banda de emisión por debajo de los 6 MHz y varias decenas de mW de potencia. El perfil de su haz es elíptico con un eje mayor de ~ 5 mm y un eje menor de ~ 2.5 mm. De los datos anteriores se puede ver que para la potencia usada en este experimento ($\approx 100 \mu W$) se tiene una intensidad menor a la intensidad de saturación de la línea D2 [44, 31].

Un paso importante en los experimentos para ver las transiciones prohibidas es el anclado de la frecuencia del láser de preparación dentro del pozo Doppler de la línea D2 del rubidio. Para esto se utilizó una espectroscopia de polarización [18, 35], la cual permite tener una señal tipo dispersión con resolución de la estructura hiperfina del estado $5p_{3/2}$, y un circuito PID comercial (High-Speed Servo Controller LB1005; Newport). Con esta técnica de anclado es posible estabilizar la frecuencia del láser de preparación para que esta sea resonante con un estado hiperfino en particular.

En nuestro caso, el láser se ancló a la transición entre estados hiperfinos $5s_{1/2}, F_1 = 3 \rightarrow 5p_{3/2}, F_2 = 4$. A esta se le conoce como la transición cíclica ya que por las reglas de selección dipolares eléctricas el decaimiento del estado excitado $5p_{3/2}, F_2 = 4$ solo puede realizarse al estado $5s_{1/2}, F_1 = 3$. Asimismo, la evolución de las poblaciones del estado base y estado excitado muestran evidencias de un efecto de bombeo hiperfino por medio del cual los átomos excitados poblarán de manera preferente ciertos niveles hiperfinos del estado base y del estado excitado ($F_1 = 3$ y $F_2 = 4$, respectivamente).

4.1.2 Láser de excitación cuadrupolar

La transición prohibida $5p_{3/2} \rightarrow 6p_J$ tiene una longitud de onda ligeramente distinta para cada uno de los valores de J . Se hizo un diseño original para un ECDL con un diodo cuya longitud de onda de emisión especificada era de 915 nm (M9-915-0200-S50; Axcel Photonics), con una potencia de salida máxima de 200mW, con la esperanza de que sería posible seleccionar un modo de emisión de la cavidad a 917 nm y otro a 911 nm para así excitar ambas transiciones cuadrupolares eléctricas.

Ambos modos se encontraron en las primeras pruebas del láser, pero el modo a 911 nm presentaba mayor estabilidad al variar los distintos parámetros. Por lo tanto, la transición $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ (911.07 nm) se realizó con el ECDL mientras que la transición $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{1/2}$ (917.54 nm) se realizó con un láser de titanio-zafiro comercial (SolsTiS-1600-SRX-F; MSquared Lasers) sintonizable en un rango de emisión de 725 nm a 975 nm.

Láser de diodo (ECDL)

Para el ECDL, el diodo se montó en un tubo colimador comercial (LT110P-B; Thorlabs, Inc.) que contiene una lente colimadora esférica de $f = 6.24$ mm y apertura numérica $N.A. = 0.4$. El tubo a su vez se montó sobre una montura para óptica modificada de acuerdo al diseño de Arnold *et al.*[4]. Se ajustó la posición de dicha lente para tener un haz colimado con una distribución de intensidad gaussiana y un perfil elíptico de 4.5 mm \times 2.3 mm.

Cabe mencionar que el tubo colimador se giró de modo que la dirección de polarización del haz emitido fuese paralela a la dirección de las líneas de la rejilla; estas a su vez se colocaron de manera perpendicular a la superficie de la mesa óptica (*i.e.* en la dirección vertical). Para evitar el regreso de luz no deseada al diodo se usó un aislante óptico (M713B; ConOptics Inc.) y se colocó una caja para cubrir el láser completamente, salvo por las aperturas para la salida del haz y la salida de los cables.

Se colocaron un termistor de 10 k Ω en el tubo colimador y una placa de cobre con un elemento termoeléctrico Peltier (DT-3-2.5; Marlow Industries, Inc.) en la base de la montura óptica con la finalidad de poder monitorear y controlar la temperatura del láser. En todos los experimentos la temperatura de operación del diodo se mantuvo a $17.1 \pm 0.05^\circ\text{C}$.

Una modificación importante al diseño de Arnold fue la construcción de la cavidad externa. El diseño original se hizo para una longitud de onda de emisión de ≈ 780 nm, de modo que la rejilla se coloca para formar un ángulo de $\sim 45^\circ$ respecto a la dirección de emisión del diodo. En este caso, la longitud de onda de emisión es de ≈ 911 nm, por lo que tanto las especificaciones de la rejilla como su posición se modificaron.

La rejilla utilizada fue una rejilla de difracción holográfica de 1800 líneas/mm (NT43-775; Edmund Optics) de $12.7 \times 12.7 \times 6$ mm³ la cual se fijó a una cuña de aluminio. Usando la ecuación de difracción para una rejilla, $2d \sin \theta = m\lambda$, se calculó que la cuña debería tener un ángulo de $\approx 56^\circ$ para asegurar que el orden $m = -1$ se regresara al diodo y el orden $m = 0$ fuese el haz de salida. Este proceso de retroalimentación del diodo permitió asegurar que la radiación emitida por el diodo tuviese un ancho de banda del orden de MHz y una potencia alrededor de 100 mW.

Se aseguró que la dirección de salida del haz se mantuviese constante incluyendo una cuña adicional, con el mismo ángulo que la de la rejilla, sobre la cual se montó un espejo (05D20BD.2; Newport) como se menciona en la ref. [19]. Un esquema del ECDL a 911 nm utilizado se puede ver en la figura 4.2.

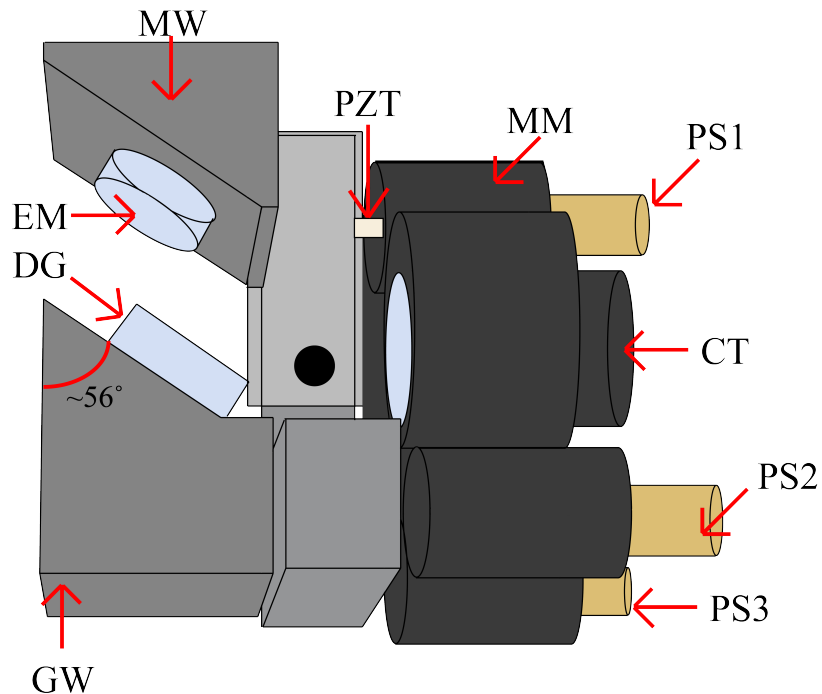


Figura 4.2: Esquema del láser de cavidad extendida. En la imagen se pueden observar las cuñas con la rejilla (DG) y el espejo de salida (EM), los tornillos de ajuste utilizados para variar la posición de la rejilla y la longitud de la cavidad del láser (PS2/PS3 y PS1, respectivamente), el tubo colimador (CT) y la montura óptica (MM). Se incluye también la posición aproximada del elemento piezoeléctrico (PZT) utilizado para hacer cambios finos en la longitud de la cavidad.

Como se mencionó anteriormente, la longitud de onda de emisión del ECDL depende del modo de emisión del diodo y de la longitud de la cavidad. El modo de emisión del diodo se controla mediante la corriente de inyección y la temperatura de operación. Una vez fijos estos parámetros, la sintonización depende del modo en la cavidad externa. Los tornillos de precisión de la montura (ver PS1, PS2, PS3 en la Fig. 4.2) permiten modificar de manera burda la cavidad. Para realizar un desplazamiento fino de la longitud de la cavidad se colocó un piezoeléctrico en forma de barra (AE0203D04F; Thorlabs, Inc.) en uno de los tornillos de la montura óptica.

El tornillo PS1 desplaza la cuña sobre el eje de salida del haz, cambiando la longitud de la cavidad al alejar o acercar la rejilla. Los tornillos PS2 y PS3 cambian el ángulo de incidencia del haz sobre la rejilla de modo que se modifica la longitud de onda retroalimentada al diodo. El movimiento combinado de los tres tornillos permite seleccionar un modo de emisión de la cavidad que sea estable al mismo tiempo en el diodo.

Para encontrar la sintonía con la transición $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ se utilizaron un espectrómetro comercial (SP 2150i; Princeton Instruments), con precisión de 0.4 nm, y un medidor de longitud de onda comercial (521; Bristol Instruments), con precisión de 0.01 nm, para monitorear los cambios en la longitud de onda de emisión al mover los tornillos de precisión. Se observó la calidad y estabilidad del modo de emisión utilizando un interferómetro Fabry-Perot comercial (SA200-8B; Thorlabs, Inc.) con un rango espectral libre de 1.5 GHz. Este último equipo también permitió determinar que el ancho de banda de emisión del láser es menor a 7.5 MHz (la resolución del interferómetro).

Una vez sintonizado el láser a la transición prohibida se usó una fuente programable de corriente continua para alimentar al piezoeléctrico y así poder sintonizar los distintos niveles hiperfinos del estado $6p_{3/2}$.

Láser de titanio-zafiro (TiS)

En el Laboratorio de Átomos Fríos se contaba con un láser de titanio-zafiro (TiS, por sus siglas en inglés) sintonizable entre 725 y 925nm, lo cual permitió poder hacer la detección de la transición cuadrupolar eléctrica $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{1/2}$. Se contaban con cientos de mW de potencia a la longitud de onda deseada (917.5 nm; ver figura 2.1) y un ancho de banda emisión especificado por el fabricante menor a los 50 kHz.

La longitud de onda de este láser se selecciona por medio del software de control proporcionado por el fabricante. Dicha se verificó utilizando el medidor de longitud de onda para asegurar tener la sintonía con la transición deseada. Los barridos de frecuencia en este láser se realizaron con tanto con un generador de funciones comercial, con una señal triangular de baja frecuencia ($< 1\text{Hz}$), como con una fuente programable de corriente continua.

4.2 Sistema de detección

4.2.1 Celda de rubidio

La detección de la fluorescencia resultante de la transición cuadrupolar $5p_{3/2} \rightarrow 6p_J$ se hizo en una celda de rubidio de 25 mm de diámetro y 75 mm de largo (TT-RB-75-V-P; Triad) con recubrimiento antirreflejante para 780 nm. Esta se montó en tubería de PVC, con un tubo de óptica (SM1V10; Thorlabs, Inc.) perpendicular al eje de propagación de ambos haces para colocar un sistema óptico y acoplar a un tubo fotomultiplicador, la cual se cubrió con metal μ para aislar al sistema atómico de campos magnéticos externos. Los extremos del tubo de PVC se taparon, dejando un pequeño acceso óptico a la celda (ver figura 4.3). Los haces de los láseres se hacían incidir de manera contra-propagante por el acceso óptico hacia el centro de la celda.

4.2.2 Tubo fotomultiplicador

Se usaron dos tubos fotomultiplicadores (PMT; por sus siglas en inglés) de la marca Hamamatsu (1P28 & H7827-001) para detectar el decaimiento a ~ 420 nm del estado $6p_J$. Dichos se escogieron ya que el fabricante especifica que la respuesta óptima está alrededor de los 400 y 420 nm, respectivamente. Para reducir el ruido en la señal de cada PMT debida a luz de ambiente se fabricaron placas de aluminio para colocar un filtro pasa-banda centrado a 420 ± 2 nm (FB420-10; Thorlabs, Inc.) frente a la apertura de cada PMT, sirviendo también para acoplar a tubos de $\text{Ø}1$ pulgada.

Para el PMT modelo 1P28 fue necesario usar una montura modificada (DA-780; Acton Research Corporation) para poder acoplarlo al montaje de la celda. Adicionalmente, la alimentación de alto voltaje para el PMT se realizó mediante una fuente comercial (Laboratory Photometer 110; Pacific Instruments) y la señal de salida se amplificó y acondicionó para su captura (*i.e.* se convirtió de una corriente a un voltaje) usando un amplificador con ganancia ajustable (428-PROG; Keithley). Más detalles sobre la caracterización del PMT y sus parámetros de operación se pueden encontrar en [27, 37].

El PMT modelo H7827-001 incluye un circuito para la alimentación a alto voltaje y el acondicionamiento de la señal de salida. Dichos circuitos trabajan con una entrada de 15 V (CC), de modo que se fabricó una

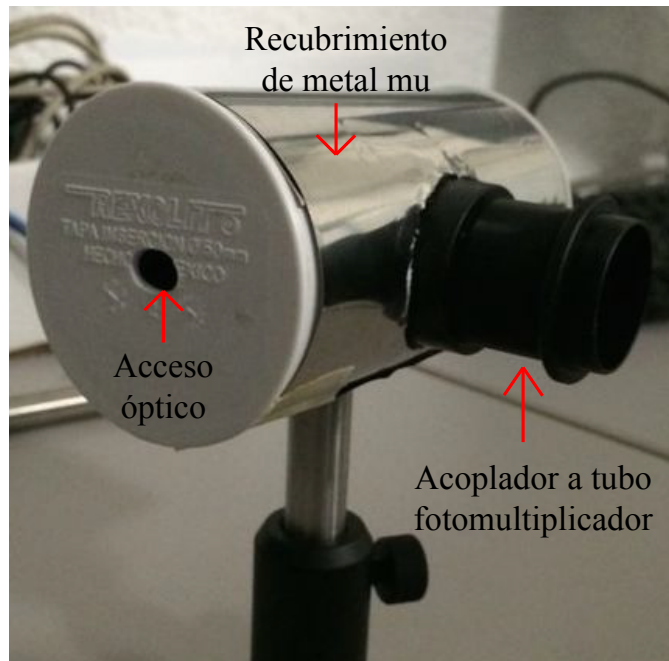


Figura 4.3: Montaje de la celda de rubidio. Se observa la lámina de metal μ , las tapas del tubo de PVC con el acceso óptico y el acoplador al tubo fotomultiplicador. La celda se coloca en el interior y se detiene mediante anillos de hule espuma.

pequeña fuente para alimentarlos. En esta fuente también se incluyó un control de la sensibilidad para el circuito de amplificación, por medio de un voltaje de entre 0.5 y 1.1 V (CC), tal como se especifica en el manual. Este PMT se acopló a la montura de la celda directamente por medio de la placa de aluminio que detiene el filtro.

Para aumentar la captura de fotones a 420 nm producidos en el interior de la celda se armó un sistema óptico formado por dos lentes dentro del tubo acoplando la celda al fotomultiplicador. Se optó por usar una primera lente biconvexa de $f_1 = 25.4$ mm (LB1761-B; Thorlabs, Inc.) colocada a una distancia focal del centro de la celda, y una segunda lente plano-convexa de $f_2 = 35$ mm (LA1027-B; Thorlabs, Inc.) a una distancia $f_1 + f_2$ de la primera lente. La elección de estas lentes fue basada en que la primera daba el mayor ángulo sólido de captura de luz generada dentro de la celda mientras que la segunda permitía enfocar o llenar el área efectiva del PMT (el fotocátodo) con luz a 420 nm.

4.2.3 Detección en fase

Las señales obtenidas de fluorescencia por decaimiento del estado $6p_J$ se esperaba fuesen de muy baja intensidad debido a las bajas probabilidades de la transición $5p_{3/2} \rightarrow 6p_J$. Por lo tanto se decidió utilizar un amplificador de fase (5209 Lock-in Amplifier; Princeton Applied Research) para aumentar la razón señal a ruido de la señal y observar los picos correspondientes a la estructura hiperfina.

Para poder filtrar y amplificar correctamente la señal del PMT el amplificador de fase necesita una frecuencia de referencia. En estos experimentos la referencia venía de un chopper óptico comercial (MC2000 & MC1F10; Thorlabs, Inc.) colocado en el camino óptico del haz del láser de preparación. Se utilizaron frecuencias entre 800 y 1000 Hz ya que éstas daban un mejor filtrado del ruido de la señal. La amplifi-

cación de la señal se hizo optimizando los parámetros para el PMT y para el amplificador de fase (*i.e.* la sensibilidad y la constante de tiempo de integración) para obtener la mejor razón señal a ruido.

4.2.4 Programa de adquisición de datos

La señal de salida del amplificador de fase contiene el espectro de la fluorescencia a ~ 420 nm que resulta de poblar el estado $6p_J$ por medio de la transición cuadrupolar eléctrica $5p_{3/2} \rightarrow 6p_J$. Estos espectros, obtenidos al variar la longitud de onda del láser de excitación cuadrupolar por medio de elementos piezoeléctricos, fueron tomados de manera automática usando un programa desarrollado en LabVIEW y un módulo de adquisición de datos (DAQ) por USB (NI-USB-6009 & NI-USB-6363; National Instruments).

El programa se diseñó con la finalidad de poder sincronizar los barridos del elemento piezoeléctrico del láser de excitación cuadrupolar, usando una fuente de voltaje programable (E3642A; Agilent Technologies) conectada vía GPIB a la computadora, y la toma de varias señales analógicas. Se pueden introducir distintos parámetros del experimento, tales como potencia, polarización y temperatura de operación de los láseres, y los parámetros del sistema de detección para asociarlos a los archivos guardados en formato de texto.

Al iniciar dicho programa el usuario debe introducir los valores mínimos (V_{min}) y máximos (V_{max}), al igual que el paso para avanzar entre estos dV , para la señal triangular que generará la fuente programable. También se indica el número de espectros a tomar, considerando que un barrido completo (*i.e.* $V_{min} \rightarrow V_{max} \rightarrow V_{min}$) capturará dos espectros de fluorescencia. Una vez que se inician los barridos el programa empieza la adquisición de las señales analógicas por medio del módulo DAQ. Los datos se almacenan en memoria de manera temporal mientras se realiza el barrido, y se grafica la señal de salida detector de fase en tiempo real para identificar anomalías en los espectros. Se pueden entonces elegir si se guarda el espectro o se descarta y se toma uno nuevo.

Al finalizar cada barrido de la serie indica los datos se guardan en un archivo de texto estampado con el número de barrido del día, la fecha y la hora. Los parámetros introducidos se guardan simultáneamente en un archivo de texto separado por comas para generar un catálogo de los archivos, por nombre, y sus parámetros. Un diagrama de bloque de este programa se puede encontrar en los apéndices de este texto.

Capítulo 5

Resultados

A continuación se presentan algunos de los espectros que muestran excitación de las transiciones cuadrupolares eléctricas $5p_{3/2} \rightarrow 6p_J$, $J = 3/2, 1/2$ en átomos de rubidio. En particular se presentan espectros para estas transiciones en átomos a temperatura ambiente para los dos isótopos del rubidio. En estos se muestra la dependencia en la orientación de las polarizaciones de los haces (ver figura 3.1) de las intensidades relativas de las distintas líneas de fluorescencia. También se muestran espectros en los que se observan líneas de fluorescencia que corresponden a excitaciones por medio de selección de velocidades. Se muestran también espectros con evidencia clara del efecto Autler-Townes en estas transiciones.

5.1 Dependencia en polarización

Como se discutió en la sección ??, la dirección de la polarización (lineal) del haz de excitación cuadrupolar respecto a la polarización (lineal) del haz de preparación da lugar a una dependencia angular en las probabilidades de observar un fotón azul que decae del estado $6p_J$ (ecuación 3.10). Para poder verificar esta dependencia se tomaron espectros en los que se observaron variaciones en las alturas relativas de los picos observados. Estas variaciones en las alturas relativas se puede ver corresponden a distintas dinámicas para la evolución de las poblaciones de los niveles hiperfinos del estado $6p_J$. Se recomienda consultar la referencia [33] para más detalles.

En el caso de la transición $5p_{3/2}, F_2 \rightarrow 6p_{3/2}, F_3$ se tiene que por reglas de selección se esperan tres picos en cada espectro para $F_3 = F_2, F_2 - 1, F_2 - 2$. De la teoría presentada anteriormente se sabe que para polarizaciones lineales de ambos haces de excitación con un ángulo $\theta = 0, \pi/2$ entre ellos, las reglas de selección entre subniveles magnéticos M_3 son $\Delta M = \pm 1$ y $\Delta M = \pm 2$, respectivamente. Así, se observa que los espectros para cada de estos casos son de la forma mostrada en las figuras 5.1 y 5.2.

En ambas de estas figuras se realizaron ajustes gaussianos para cada pico visible en el espectro. De dichos se obtiene que los picos tienen un ancho ($1/e^2$) de 12.4 ± 2.6 MHz. Se sabe de la literatura [3, 40] se sabe que la vida media del estado $6p_{3/2}$ es de 120.7 ns, lo cual corresponde a un ancho natural de aproximadamente 1.3 MHz. En los espectros presentados se espera entonces que el ensanchamiento de los picos se atribuya a los anchos de emisión de los láseres: ≈ 5 MHz para el haz de preparación y ≤ 7.5 MHz para el haz de excitación cuadrupolar.

En el caso general de un ángulo θ entre las polarizaciones, de la ecuación 3.10 podemos ver que se tiene una dependencia de la forma $\cos^2 \theta$. Dicha se verificó tomando espectros en los que la dirección de la

polarización del haz de excitación cuadrupolar se giraba usando una placa retardadora de media longitud de onda. Para cada ángulo de dicha placa se tomaron las intensidades relativas para los picos de varios espectros: al tener la serie de datos completa se tomaron promedios para los valores de las intensidades relativas para cada línea hiperfina y se ajustó una expresión de la forma $A + B \cos^2 \theta$ de manera simultánea para los tres juegos de datos. El resultado se puede ver en la figura 5.3.

Para la transición $5p_{3/2}, F_2 \rightarrow 6p_{1/2}, F_3$ se obtuvieron resultados similares, considerando ahora que la estructura hiperfina del estado $6p_{1/2}$ solo consiste de los niveles con $F_3 = F_2 - 1, F_2 - 2$. De esta manera, los espectros muestran los dos picos posibles bajo las reglas de selección. De nuevo, se realizaron ajustes gaussianos para cada uno de los picos visibles en cada espectro, dando así un ancho (radio $1/e^2$) de 11 ± 1 MHz. En este caso se sabe que la vida media del estado $6p_{1/2}$ es de 117.8 ns [17], por lo que el ancho natural de este estado es de aproximadamente 1.3 MHz. Se atribuye el ensanchamiento observado principalmente a los anchos de emisión de los láseres utilizados.

5.2 Selección de velocidades

En algunos de los espectros obtenidos se observan picos de intensidad mucho menor que aparecen a frecuencia más alta que la transición $5p_{3/2}, F_2 \rightarrow 6p_{3/2}, F_3 = F_2$ o $5p_{3/2}, F_2 \rightarrow 6p_{1/2}, F_3 = F_2 - 1$. Estos picos son el resultado de una excitación cuadrupolar en átomos con una velocidad distinta de cero debido a la compensación parcial del efecto Doppler entre los haces. Tomando esto en cuenta, el modelo de tres pasos solo da una probabilidad no despreciable a las transiciones por selección de velocidad en el esquema $F_1 \rightarrow F_2 = F_1 \rightarrow F_3 = F_2 + 1$.

Las posiciones esperadas ($\delta\nu$), y la velocidad del grupo de átomos correspondiente, para estas transiciones son:

	Vel. (m/s)	$\delta\nu$ (MHz)
$^{85}\text{Rb}, F_1=3$	94.38	17.37
$^{87}\text{Rb}, F_1=2$	208.05	38.29

Tabla 5.1: Velocidades de los átomos y desplazamiento en frecuencias para las excitaciones por selección de velocidades $F_1 \rightarrow F_2 = F_1 \rightarrow F_3 = F_2 + 1$ para la transición $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$.

	Vel. (m/s)	$\delta\nu$ (MHz)
$^{85}\text{Rb}, F_1=3$	94.38	18.10
$^{87}\text{Rb}, F_1=2$	208.05	39.90

Tabla 5.2: Velocidades de los átomos y desplazamiento en frecuencias para las excitaciones por selección de velocidades $F_1 \rightarrow F_2 = F_1 \rightarrow F_3 = F_2$ para la transición $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{1/2}$.

5.3 Efecto Autler-Townes

Una vez obtenida la señal de fluorescencia correspondiente al decaimiento del estado $6p_{3/2}$ se procedió a variar la potencia del láser de preparación, correspondiente a la transición $5s_{1/2} \rightarrow 5p_{3/2}$, para ver los

efectos sobre los picos. Se observó que al aumentar la potencia de este láser se tenían variaciones en el ancho de las líneas. Una potencia de $\sim 100 \mu W$ se tomó como la máxima antes de ver dichos efectos de ensanchamiento de línea.

Al seguir aumentando la potencia láser de preparación por arriba de este valor se tenía no solo un ensanchamiento de las líneas, sino también un desdoblamiento de cada línea en un doblete. Este efecto, conocido en la literatura como el efecto Autler-Townes (o efecto Stark dinámico), da lugar a un doblete por cada línea al considerar un sistema en el cual los niveles se “visten” de los fotones de un campo de radiación incidente. Se puede ver a partir de los modelos teóricos correspondientes [14] que la separación de los picos de cada doblete aumenta en función del aumento de la potencia del láser de 780 nm (figura 5.7).

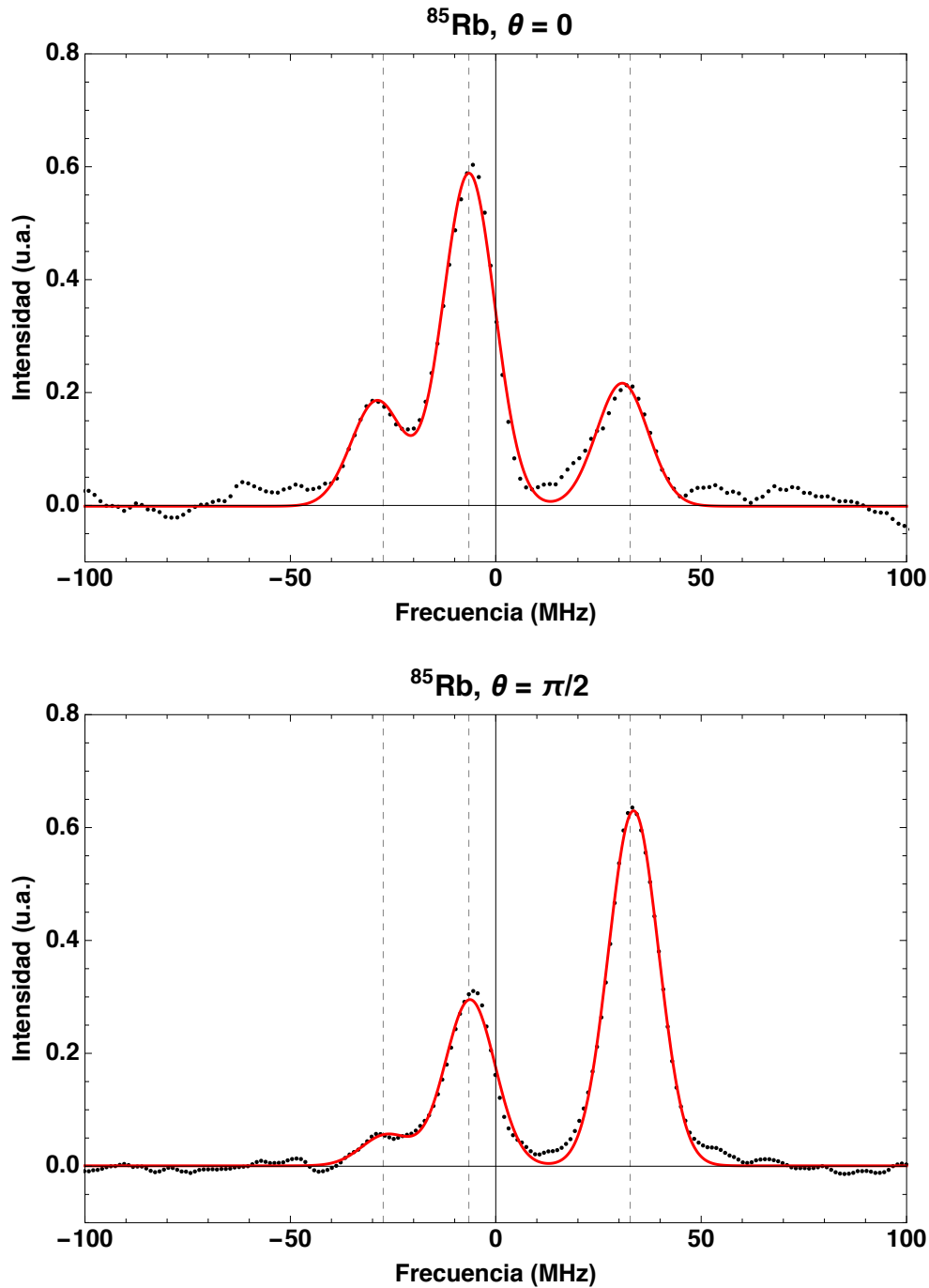


Figura 5.1: Espectros de la fluorescencia del decaimiento $6p_{3/2}, F_3 \rightarrow 5s_{1/2}, F_1 = 3$ en ^{85}Rb . Se observan alturas relativas distintas para los casos de polarizaciones paralelas ($\theta = 0$) o perpendiculares ($\theta = \pi/2$) para las líneas correspondientes a $F_3 = 4, 3, 2$. La suma de los ajustes gaussianos para cada pico se muestra con la línea continua. Las posiciones calculadas de los picos, que corresponden a la separación entre niveles hiperfinos del estado $6p_{3/2}$, se muestran como las líneas quebradas.

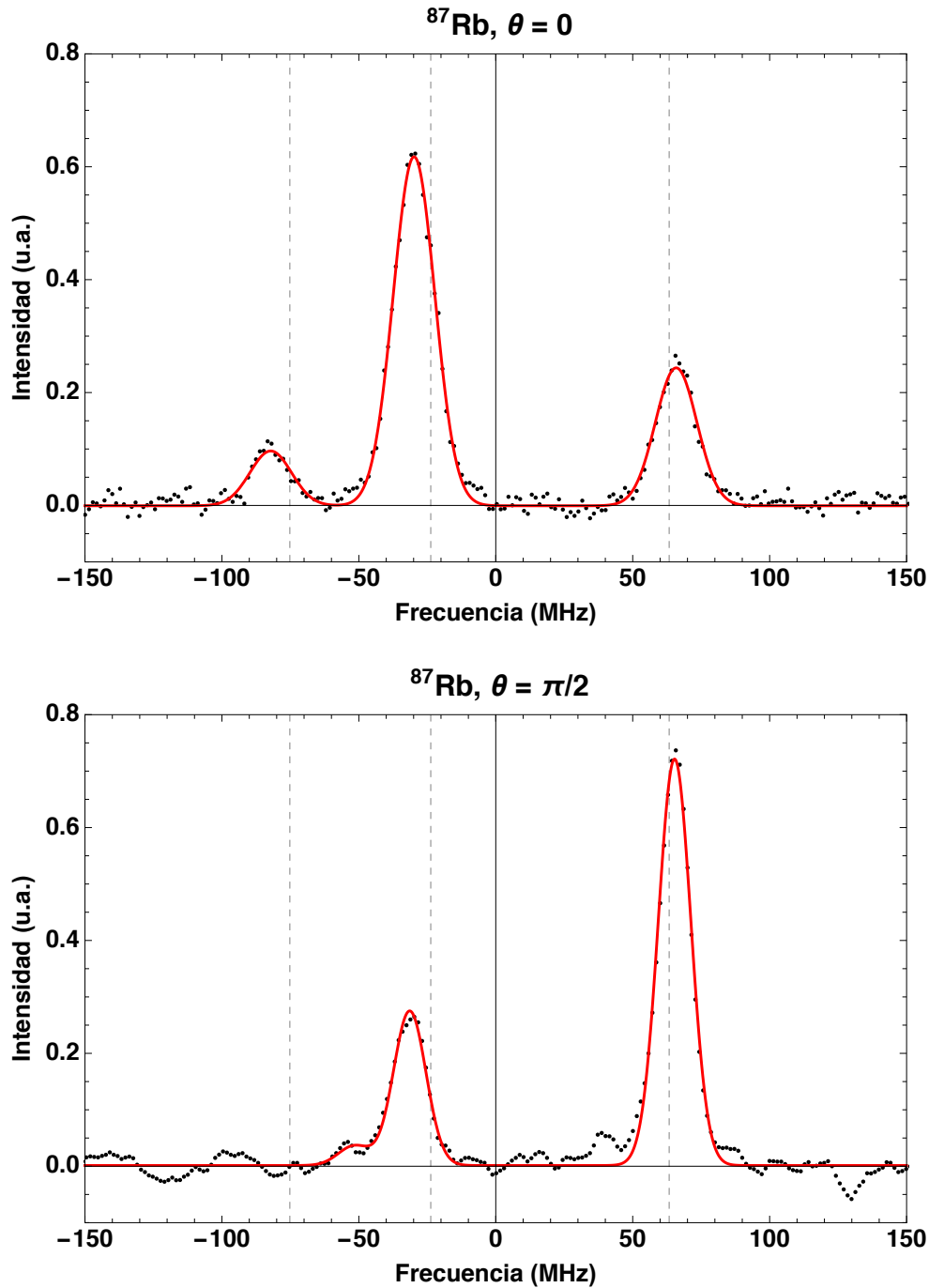


Figura 5.2: Espectros de la fluorescencia del decaimiento $6p_{3/2}, F_3 \rightarrow 5s_{1/2}, F_1 = 2$ en ^{87}Rb . Se observan alturas relativas distintas para los casos de polarizaciones paralelas ($\theta = 0$) o perpendiculares ($\theta = \pi/2$) para las líneas correspondientes a $F_3 = 3, 2, 1$. La suma de los ajustes gaussianos para cada pico se muestra con la línea continua. Las posiciones calculadas de los picos, que corresponden a la separación entre niveles hiperfinos del estado $6p_{3/2}$, se muestran como las líneas quebradas.

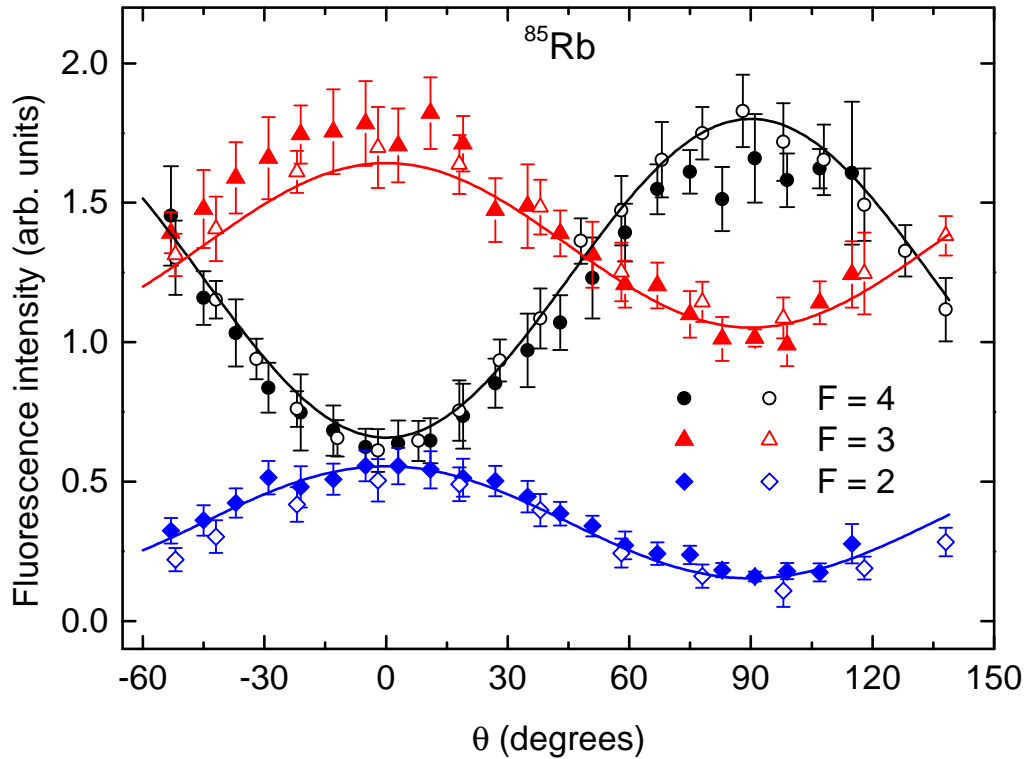


Figura 5.3: Dependencia angular de las intensidades relativas para las transiciones cuadrupolares eléctricas $6p_{3/2}, F_3 \rightarrow 5s_{1/2}, F_1 = 3$ en ^{85}Rb . Los símbolos sólidos representan los valores de las intensidades relativas de los picos para cada uno de los niveles hiperfinos F_3 tomados a partir de un espectro completo (*i.e.* un espectro con los tres picos correspondientes a $F_3 = 4, 3, 2$). Los símbolos huecos representan estos mismos valores tomados a partir de espectros de los niveles hiperfinos F_3 individuales (*i.e.* un espectro con un solo pico).

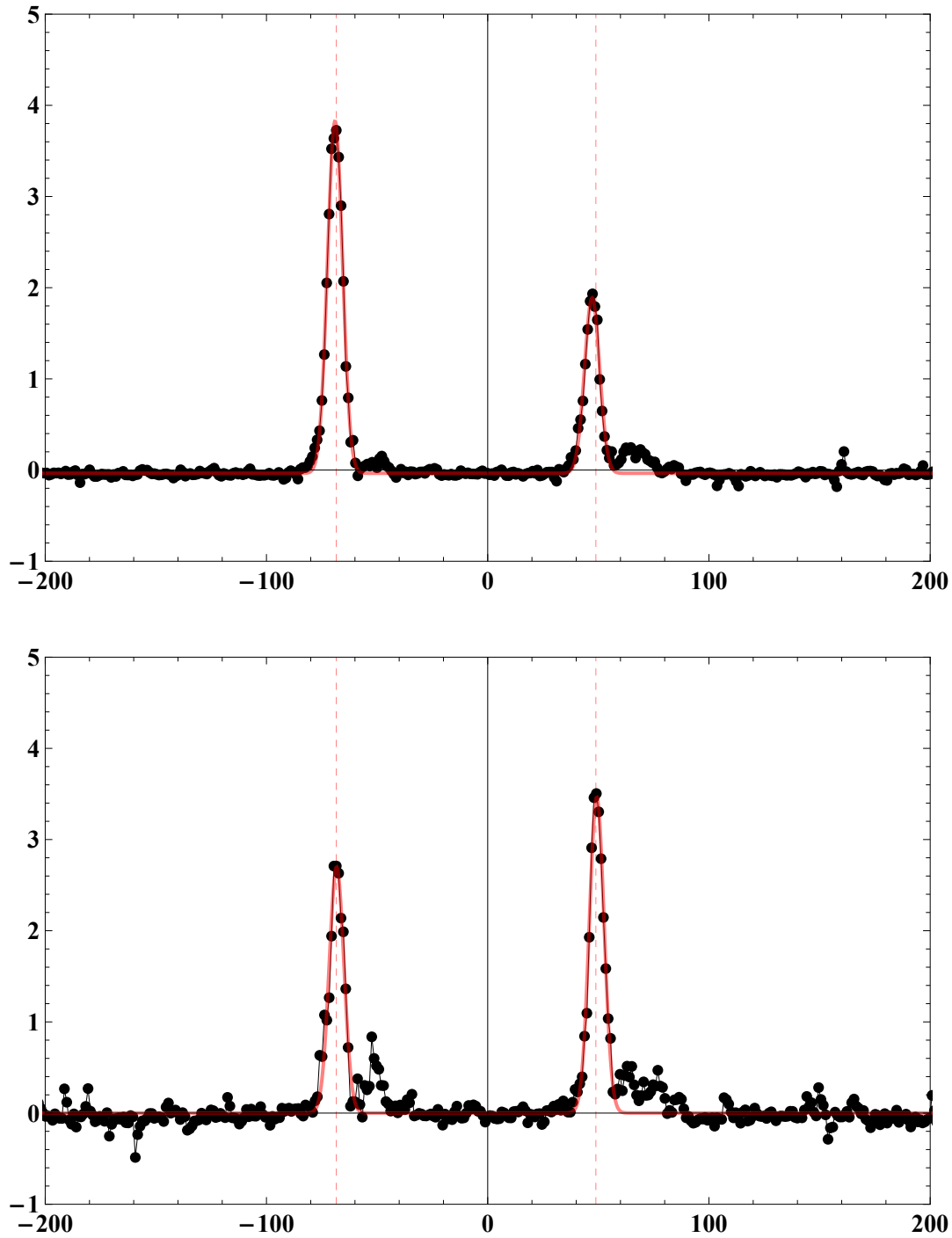


Figura 5.4: Espectros de la fluorescencia del decaimiento $6p_{1/2}, F_3 \rightarrow 5s_{1/2}, F_1 = 3$ en ^{85}Rb . Se observan alturas relativas distintas para los casos de polarizaciones paralelas ($\theta = 0$) o perpendiculares ($\theta = \pi/2$) para las líneas correspondientes a $F_3 = 3, 2$. La suma de los ajustes gaussianos para cada pico se muestra con la línea continua. Las posiciones calculadas de los picos, que corresponden a la separación entre niveles hiperfinos del estado $6p_{1/2}$, se muestran como las líneas quebradas.

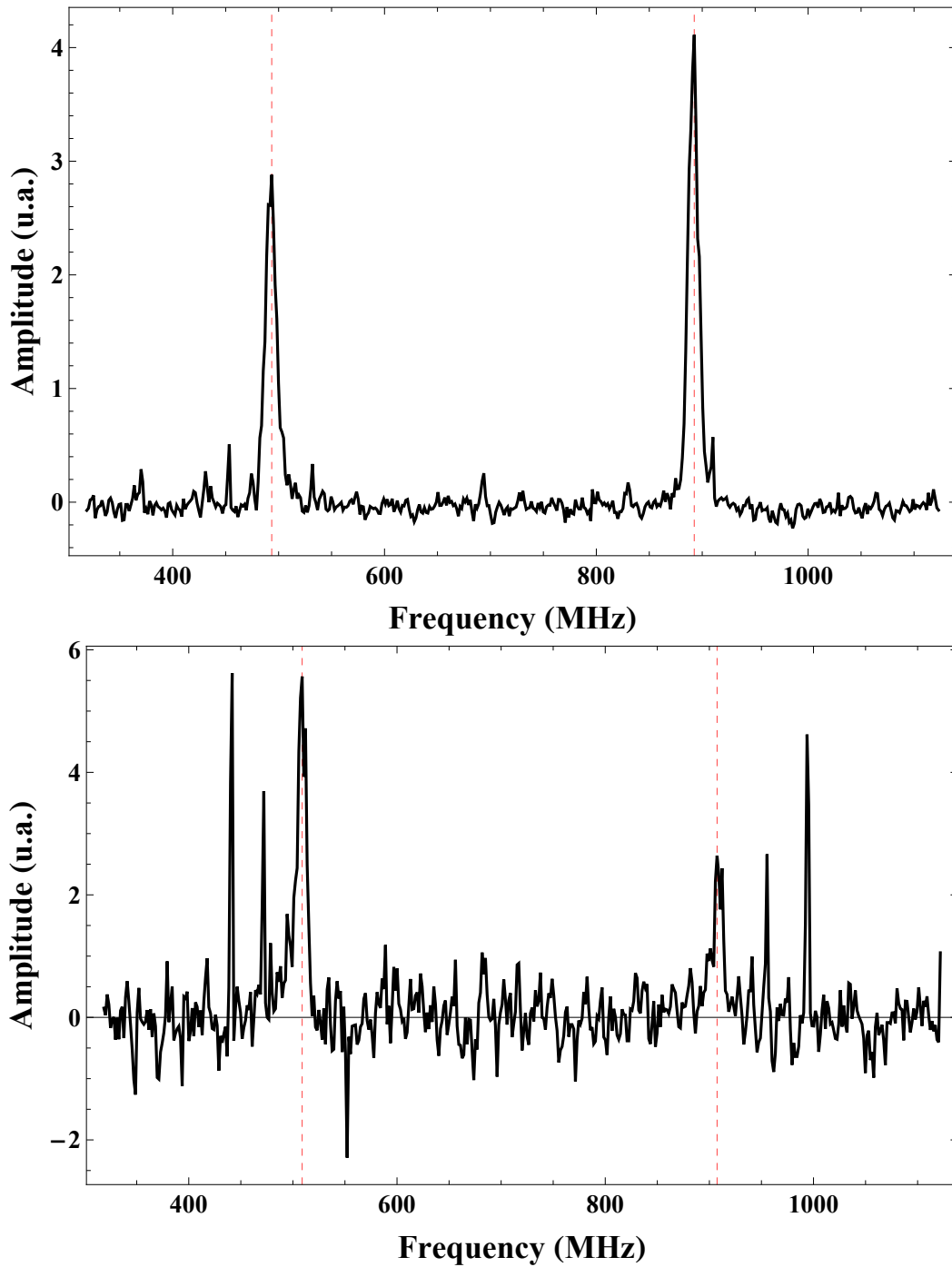


Figura 5.5: Espectros de la fluorescencia del decaimiento $6p_{1/2}, F_3 \rightarrow 5s_{1/2}, F_1 = 2$ en ^{87}Rb . Se observan alturas relativas distintas para los casos de polarizaciones paralelas ($\theta = 0$) o perpendiculares ($\theta = \pi/2$) para las líneas correspondientes a $F_3 = 2, 1$. La suma de los ajustes gaussianos para cada pico se muestra con la línea continua. Las posiciones calculadas de los picos, que corresponden a la separación entre niveles hiperfinos del estado $6p_{1/2}$, se muestran como las líneas quebradas.

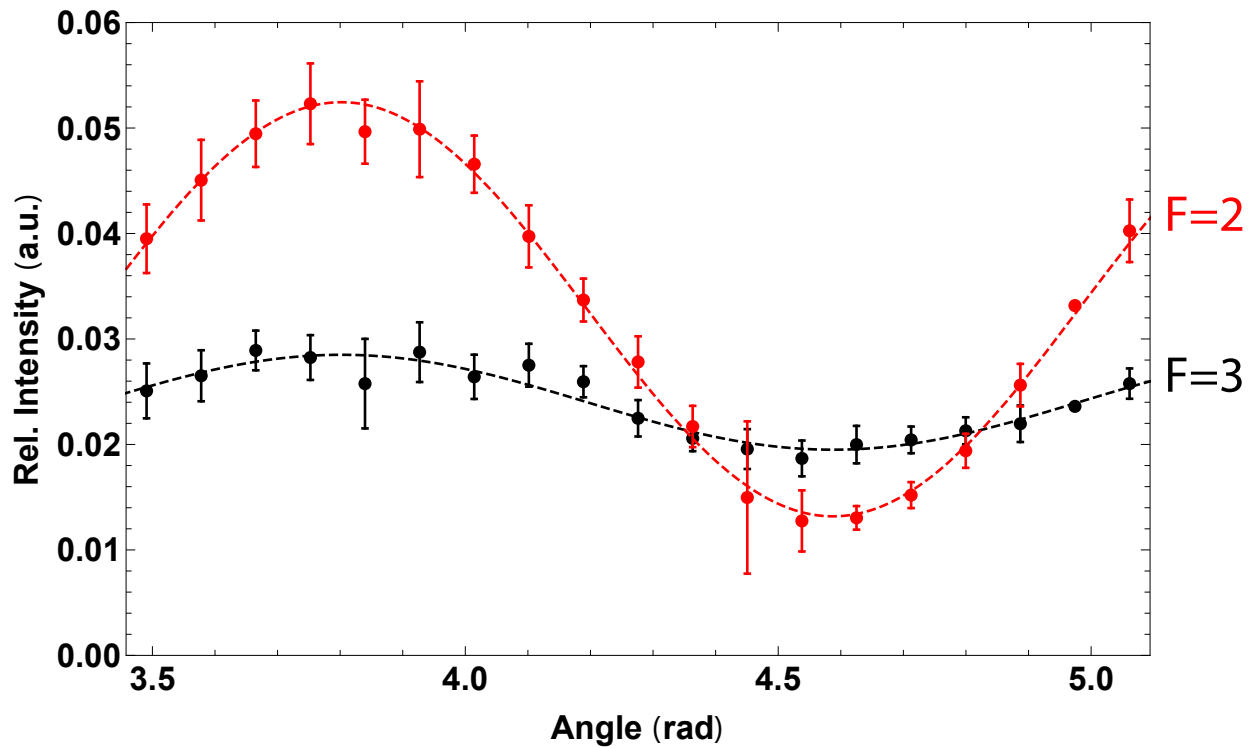


Figura 5.6: Dependencia angular de las intensidades relativas para las transiciones cuadrupolares eléctricas $6p_{1/2}, F_3 \rightarrow 5s_{1/2}, F_1 = 3$ en ^{85}Rb . Los símbolos sólidos representan los valores de las intensidades relativas de los picos para cada uno de los niveles hiperfinos F_3 tomados a partir de un espectro completo (*i.e.* un espectro con los dos picos correspondientes a $F_3 = 3, 2$).

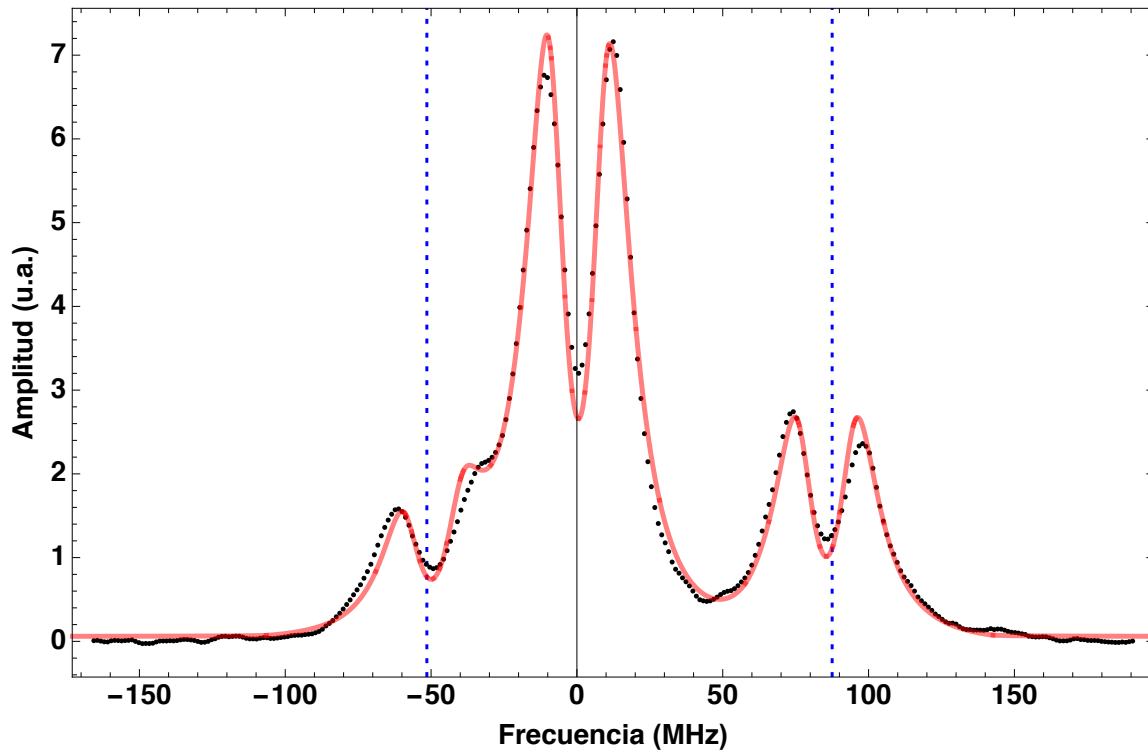


Figura 5.7: Espectro de la transición cuadrupolar eléctrica $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ en ^{87}Rb mostrando el doblete del efecto Autler-Townes para una potencia del haz de preparación de ≈ 4.85 mW. Se observan dobletes bien definidos en las posiciones esperadas para las líneas de la estructura hiperfina del estado $6p_{3/2}$, marcadas por el 0 y las líneas azules quebradas. La línea roja corresponde a un ajuste del espectro tomando en cuenta un modelo simple para un átomo de tres niveles con los acoplamientos correspondientes a un primer paso dipolar y a un segundo paso cuadrupolar (ver ec. 2.28). De dicho ajuste se obtiene un valor para la frecuencia de Rabi Ω_c de 11.71 ± 0.13 MHz

Capítulo 6

Conclusiones

Los resultados obtenidos muestran de manera definitiva que se han producido las transiciones cuadrupolares eléctricas $5p_{3/2} \rightarrow 6p_J$ en átomos de rubidio. En particular se tiene que el sistema experimental construido permite realizar la excitación y detección de las transiciones $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ y $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{1/2}$ por medio de la fluorescencia a 420.18 y 421.67 nm, respectivamente.

Para la transición $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ se utilizaron láseres de diodo de cavidad externa construidos en el laboratorio para excitar a los átomos. El diseño de uno de estos se modificó con la finalidad de sintonizarlo a la longitud de onda deseada (911.075) nm y se observó que se tenía potencia adecuada (≈ 100 mW) para realizar la transición. El haz de este ECDL se hace entrar a la celda de rubidio de manera contrapropagante respecto al haz de preparación (780.242 nm) para obtener espectros libres de ensanchamiento Doppler.

Para la transición $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{1/2}$ se utilizó un ECDL para el paso de preparación y un láser de titanio-zafiro comercial para excitar a los átomos. El láser comercial se sintonizó a 917.54 nm por medio del programa proporcionado por el fabricante, verificando el valor final de la longitud de onda usando un medido de longitud de onda. La potencia de emisión de este láser era de más de 500 mW.

El sistema de detección utilizado permite obtener espectros de la fluorescencia del decaimiento del estado $6p_J$ con un buen nivel de señal a ruido. En dichos espectros se pueden observar claramente los picos correspondientes a los niveles hiperfinos del multiplete cuyos anchos son de ≈ 13 MHz. Este ancho se puede atribuir en gran parte al hecho de que se usaron átomos de rubidio a temperatura ambiente y a los anchos de los láseres utilizados (menor a 7.5 MHz). La cantidad y separación de picos corresponde con la teoría para transiciones cuadrupolares eléctricas. Sin embargo, también se observan picos correspondientes a excitaciones de grupos de átomos con velocidades distintas (debidas a una compensación parcial del efecto Doppler).

La optimización del sistema de detección también permitió realizar pruebas espectroscópicas sobre la transición cuadrupolar. Se ha estudiado la variación de las alturas relativas de los picos en los espectros en función de la polarización de los láseres utilizados. Al girar la polarización de un haz respecto a la del otro se tiene una redistribución de la intensidad en la señal de fluorescencia, indicativo de una redistribución de poblaciones entre los distintos niveles hiperfinos del estado $6p_J$.

Se desarrolló un modelo teórico para calcular las intensidades relativas de las transiciones hiperfinas $5p_{3/2}F_2 \rightarrow 6p_JF_3$; los resultados experimentales tiene muy buen acuerdo con los resultados teóricos. Este modelo aprovecha que la transición cuadrupolar eléctrica es débil para describir el proceso de ex-

citación en término de tres pasos que se puede tratar de manera independiente. En particular, se puede ver que la transición cuadrupolar sirve como una herramienta para caracterizar las poblaciones de los niveles hiperfinos y subniveles magnéticos del estado $5p_{3/2}$, y también se observa que se pueden utilizar reglas de selección entre subniveles magnéticos particulares en base a la polarización relativa de los haces.

6.1 Trabajo a futuro

El desempeño de este sistema, basado en los resultados obtenidos, ha dado lugar a nuevas líneas de investigación en el área de espectroscopia atómica en el Instituto de Ciencias Nucleares (ICN) de la UNAM. A continuación se hace un breve resumen de estas.

6.1.1 Haces estructurados

Se tuvo una propuesta de excitar la transición cuadrupolar eléctrica utilizando haces estructurados. Dicha surgió de una colaboración con la Dra. Rocío Jáuregui del IF-UNAM en la que se considera ver el efecto del momento angular de la luz, controlado en este caso con la carga topológica de haces estructurados, sobre las probabilidades de la transición cuadrupolar. Se han usado haces Bessel de ordenes distintos, generados por medio de un axicón y un modulador espacial de luz, para obtener algunos resultados preliminares. Más detalles de este trabajo se pueden encontrar en la referencia [20].

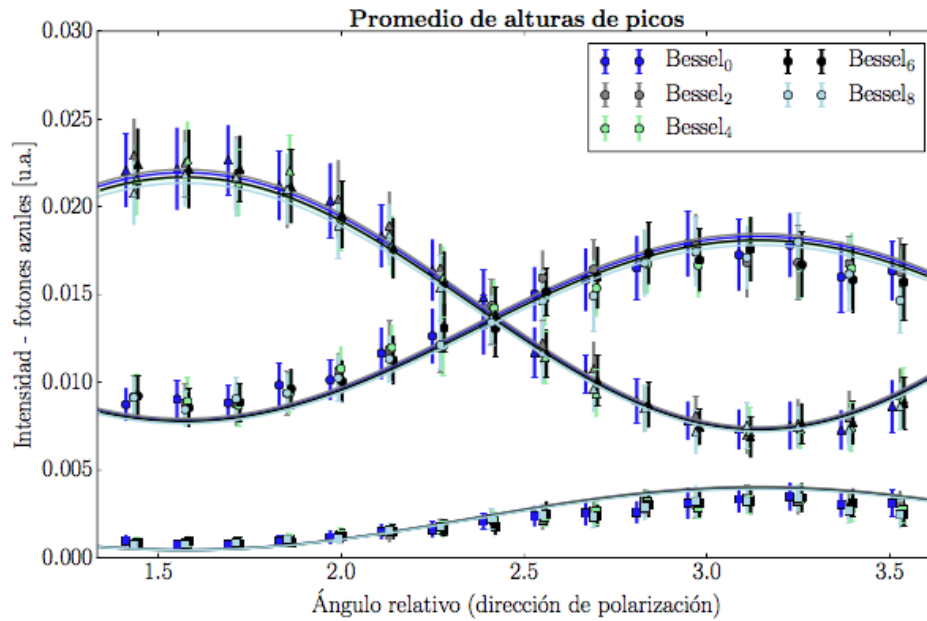


Figura 6.1: Comparación de las intensidades relativas de los líneas hiperfinas en los espectros de fluorescencia usando haces Bessel de distintos ordenes. De los modelos teóricos desarrollados para la transición cuadrupolar $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ se puede ver que la estructura espacial de un haz afecta las coordenadas internas (del núcleo) y externas (del electrón) del átomo. Se espera que cambios en las intensidades relativas de las líneas reflejen los cambios en los elementos de matriz de la transición cuadrupolar debidos a la estructura del haz.

6.1.2 Átomos Fríos

Dadas las bajas probabilidades de excitar la transición cuadrupolar $5p_{3/2} \rightarrow 6p_J$ se propuso realizar esta transición con una mayor cantidad de átomos. Para esto se utilizó la trampa magneto-óptica del Laboratorio de Átomos Fríos del ICN con la idea de poder tener mayor producción de fotones a 420.18 nm, incluso para posiblemente así ver la fluorescencia de la nube de átomos a simple vista. La excitación se realiza con la MOT en operación continua, de modo que siempre se tienen los haces de atrapamiento y rebombado presentes.

En este caso los espectros presentan 6 picos organizados en 3 dobletes característicos del efecto Autler-Townes. En este sistema dicho efecto se debe al hecho de la presencia de los haces de la MOT, los cuales generan un acoplamiento fuerte en la transición cíclica de la línea D2. Se puede hacer un tratamiento del sistema usando una descripción de estados vestidos [14, 29, 32] y así poder ajustar los espectros para obtener parámetros efectivos del sistema.

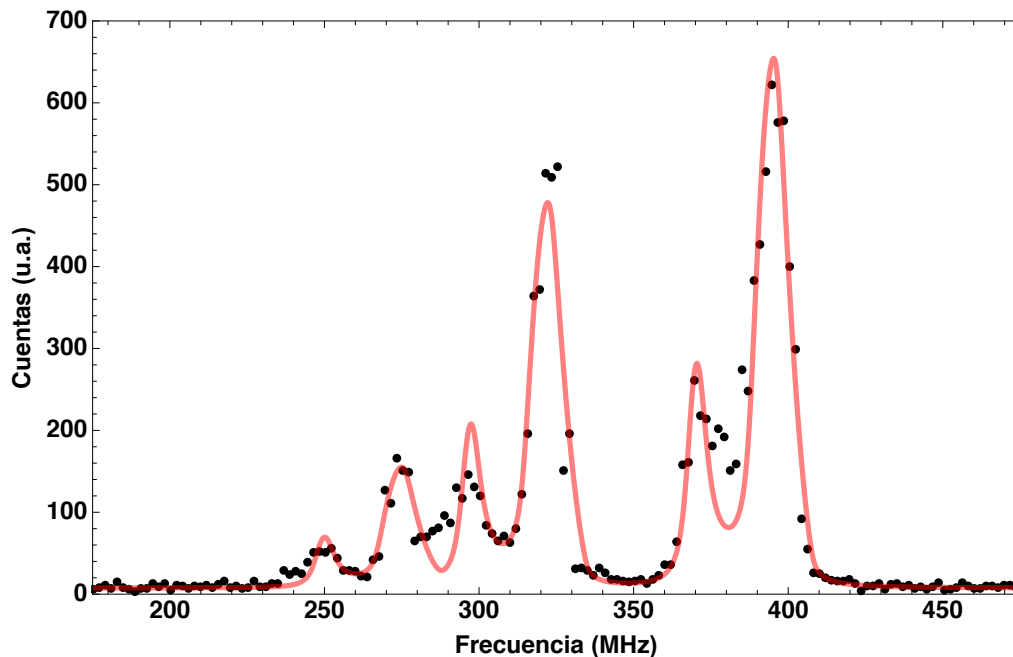


Figura 6.2: Fluorescencia violeta de la nube de átomos de rubidio en la trampa magneto-óptica del ICN por medio de la transición cuadrupolar eléctrica $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$. Se observan tres pares de dobletes, cuyos centros se encuentran separados de acuerdo a los valores de la separación hiperfina del estado $6p_{3/2}$. Los dobletes son indicativos del efecto Autler-Townes, el cual ocurre debido al hecho de que el acoplamiento entre los estados $5s_{1/2}, F = 3$ y $5p_{3/2}, F = 4$ es mucho más intenso que el acoplamiento entre los estados $5p_{3/2}, F = 4$ y $6p_{3/2}, F$ en la MOT. La línea roja representa un ajuste de la expresión 2.28 en convolución con una gaussiana de 8 MHz de ancho.

6.1.3 Suma de frecuencias

Se tiene la propuesta de generar luz azul coherente usando la transición cuadrupolar eléctrica $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ por medio de procesos no-lineales del medio. Para esto se propone hacer una suma de frecuencias de tres ondas, usando haces copropagantes en el esquema de excitación $5s_{1/2} \rightarrow 5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$, a difer-

encia de otros trabajos [1, 2, 25] que hacen este proceso por medio de mezclado de cuatro ondas usando transiciones dipolares.

Se han hecho algunas pruebas preliminares usando los esquemas de mezclado de cuatro ondas para determinar condiciones de operación para el sistema. Sin embargo, esta línea de investigación aún se encuentra en la etapa de planeación.

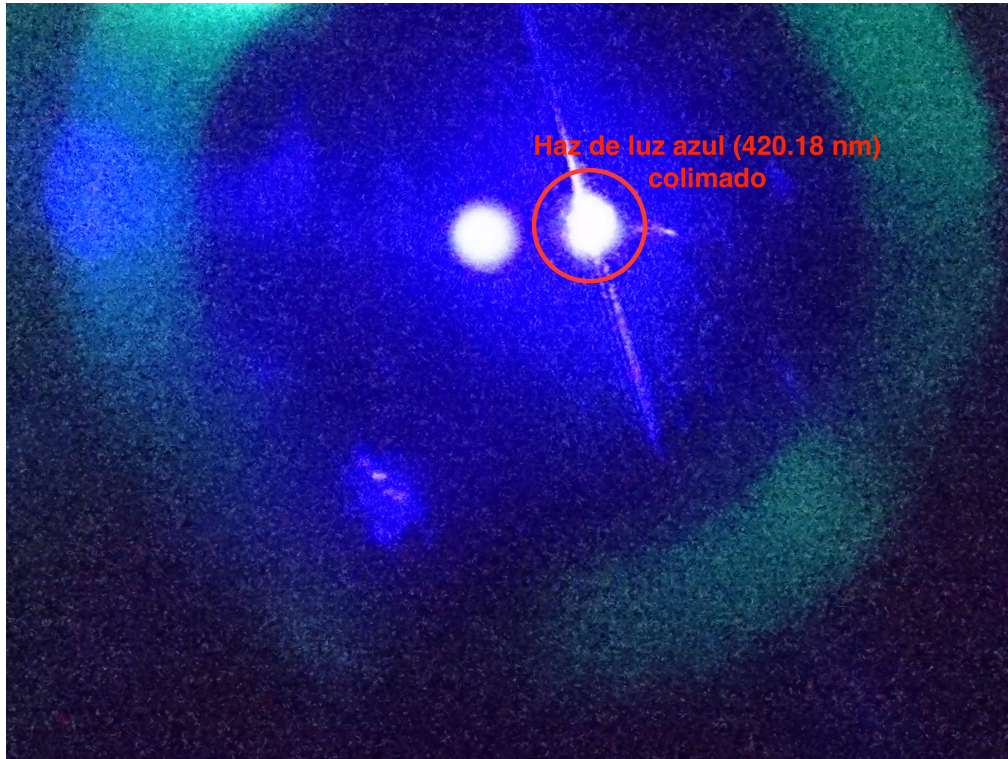


Figura 6.3: Haz de luz azul colimado producida por un mezclado de cuatro ondas $5s_{1/2} \rightarrow 5p_{3/2} \rightarrow 5d_{5/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ dentro de una celda de rubidio. El punto a la izquierda corresponde a los haces reflejados por un filtro (pasa banda a 420 nm) que vuelven a producir fluorescencia azul en el interior de la celda de rubidio.

Apéndice A

Artículos publicados sobre las transiciones cuadrupolares en el ICN

A continuación se presentan las publicaciones en revistas internacionales que han resultado del trabajo de investigación presentado en esta tesis. En ambas publicaciones se presenta información sobre la transición cuadrupolar eléctrica $5P_{3/2} \rightarrow 6P_{3/2}$, en particular de los espectros observados y sobre el modelo teórico de tres pasos desarrollado para calcular las intensidades relativas de las líneas de los espectros. Adicionalmente, se encuentran en elaboración manuscritos para presentar los detalles correspondientes a la transición $5P_{3/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ y la observación de las transiciones prohibidas en un sistema de átomos fríos. También se encuentra en revisión un manuscrito para promover la realización de estas transiciones como espectroscopias más allá de la aproximación dipolar en laboratorios de enseñanza.

Observation of the $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ electric-dipole-forbidden transition in atomic rubidium using optical-optical double-resonance spectroscopy

F. Ponciano-Ojeda,¹ S. Hernández-Gómez,¹ O. López-Hernández,¹ C. Mojica-Casique,¹ R. Colín-Rodríguez,¹ F. Ramírez-Martínez,^{1,*} J. Flores-Mijangos,¹ D. Sahagún,² R. Jáuregui,² and J. Jiménez-Mier^{1,†}

¹*Instituto de Ciencias Nucleares, UNAM, Circuito Exterior, Ciudad Universitaria, 04510 México, D.F., Mexico*

²*Instituto de Física, UNAM, Ciudad Universitaria, 04510 México, D.F., Mexico*

(Received 22 June 2015; published 20 October 2015)

Direct evidence of excitation of the $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ electric-dipole-forbidden transition in atomic rubidium is presented. The experiments were performed in a room-temperature rubidium cell with continuous-wave external cavity diode lasers. Optical-optical double-resonance spectroscopy with counterpropagating beams allows the detection of the nondipole transition free of Doppler broadening. The $5p_{3/2}$ state is prepared by excitation with a laser locked to the maximum F cyclic transition of the D_2 line, and the forbidden transition is produced by excitation with a 911 nm laser. Production of the forbidden transition is monitored by detection of the 420 nm fluorescence that results from decay of the $6p_{3/2}$ state. Spectra with three narrow lines (≈ 13 MHz FWHM) with the characteristic $F - 1$, F , and $F + 1$ splitting of the $6p_{3/2}$ hyperfine structure in both rubidium isotopes were obtained. The results are in very good agreement with a direct calculation that takes into account the $5s \rightarrow 5p_{3/2}$ preparation dynamics, the $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ nondipole excitation geometry, and the $6p_{3/2} \rightarrow 5s_{1/2}$ decay. The comparison also shows that the electric-dipole-forbidden transition is a very sensitive probe of the preparation dynamics.

DOI: [10.1103/PhysRevA.92.042511](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.92.042511)

PACS number(s): 32.70.Cs, 32.70.Fw

I. INTRODUCTION

While the electric dipole approximation is a cornerstone in the study of the interaction between optical radiation fields and atoms, transitions induced by optical fields beyond this approximation have also become important tools in atomic structure calculations. These so-called “forbidden transitions” have been traditionally used in astrophysical and plasma studies [1]. They now play a fundamental role in metrology [2] and have also been used in experiments testing parity nonconserving interactions in atoms [3].

In early studies of forbidden transitions, Sayer *et al.* [4] determined transition probabilities of electric quadrupole (E_2) transitions using a tungsten lamp. The first direct observation of electric quadrupole effects in multiphoton ionization dates back to the work of Lambropoulos *et al.* [5]. Electric-dipole-forbidden transitions were exploited in three-wave-mixing experiments for optical sum and difference frequency generation in Ref. [6].

The use of intense continuous-wave or pulsed laser sources has facilitated the observation of weak absorption lines. For instance, Guéna *et al.* [7] recorded evidence of the highly forbidden $6s_{1/2} \rightarrow 7s_{1/2}$ transition by detecting a fluorescence inhibition in a three-level system driven by two cw lasers in a heated caesium vapor. More recently, Tojo *et al.* [8] reported a determination of the oscillator strength of a E_2 transition with a temperature-controlled cell and an external cavity diode laser. Also, the study of strongly forbidden $J = 0 \rightarrow J = 0$ transitions via single-photon excitation is presented in Ref. [9]. Excitation of forbidden transitions involving states with nonzero angular momentum in alkali-metal atoms have

also been studied over the past few years [10–14]. The coherent mixing of waves is theoretically studied in Ref. [10] for $n_1 \ ^2p \rightarrow n_2 \ ^2p$ transitions. The excitation of the $5p \rightarrow 8p$ forbidden transition in thermal rubidium atoms was produced with a sequence of pulsed lasers by Bayram *et al.* [11] and the same transition is observed in ultracold rubidium atoms with narrowband cw lasers in Ref. [13].

The experiment with ultracold atoms [13] allowed resolution of the atomic hyperfine structure and conclusively determined that the magnetic dipole contribution to this transition was negligible. Other experiments with dipole-forbidden transitions and ultracold alkali-metal atoms include the measurement of the $3p \rightarrow 4p$ transition in sodium [12] and also the $5s \rightarrow nd$ transitions in rubidium [14]. Recently, experiments performed in atomic vapor nanocells with a half-wavelength thickness and an applied magnetic field demonstrated a strong enhancement of the probabilities of forbidden transitions [15].

In this article we present experimental observations of the $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ electric-dipole-forbidden transition using external cavity diode lasers (ECDL) in atomic rubidium at room temperature. We were able to resolve the hyperfine structure of the $6p_{3/2}$ state. Even though the results presented here pertain a $p \rightarrow p$ transition in atomic rubidium, our results clearly indicate that similar experiments can be performed with the other alkali-metal atoms. This is in agreement with the observation in Ref. [12] that moderate cw laser powers could be used to excite the $np \rightarrow (n+1)p$ forbidden transition in any of the alkali metals. The data are compared with the results of a calculation that considers three independent steps, namely, state preparation, nondipole excitation, and decay of the $6p_{3/2}$ levels, where the first and third steps are dipole transitions, whereas the nondipole excitation is an electric quadrupole transition.

*ferama@nucleares.unam.mx

†jimenez@nucleares.unam.mx

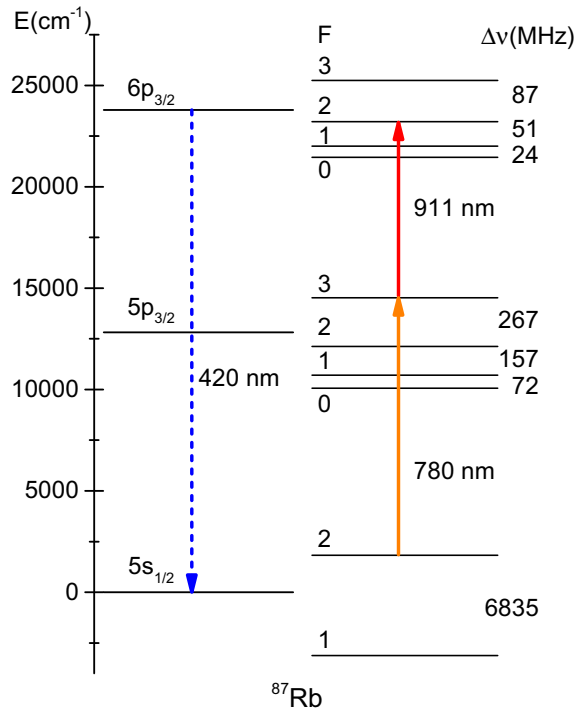


FIG. 1. (Color online) Energy levels of ^{87}Rb . The left panel includes the fine structure. The hyperfine structure is shown to the right. Note that the frequency scale changes for the hyperfine structure of each state.

II. EXPERIMENTAL SETUP

Figure 1 shows an energy-level diagram, where the total angular momentum quantum numbers and the hyperfine splittings correspond to ^{87}Rb . A similar figure, with different values of F and hyperfine splittings, is obtained for ^{85}Rb . In the experiment a laser in resonance with the $5s \rightarrow 5p_{3/2}$ transition at 780 nm (D_2 line) is used to prepare atoms in the $5p_{3/2}$ state. A second laser beam at 911 nm is used to produce the $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ electric-dipole-forbidden transition. We detect this excitation channel because atoms in the $6p_{3/2}$ state have a significant probability of decaying directly into the $5s$ ground state by emission of a 420 nm photon.

The experimental setup is shown in Fig. 2. Home-built external cavity diode lasers (ECDL) provide the 780 and 911 nm photon beams. Both lasers were built after the design of Refs. [16,17], adapted to the emission wavelengths. ECDL1 operates at the frequency of the D_2 transition in atomic rubidium (780 nm). It has an emission bandwidth of less than 6 MHz. Its frequency can be locked to the Doppler-free cyclic transition of either of the rubidium isotopes [18,19]. ECDL2 uses a laser diode with a nominal emission wavelength of 915 nm [20]. The external cavity configuration was designed and built to tune the emission of this laser to 911 nm. It operates in a single mode and can be tuned across mode-hop free regions of ≈ 3 GHz. The bandwidth of the laser is narrower than the 7.5 MHz resolution of a confocal scanning Fabry-Pérot interferometer (Thorlabs, 1.5 GHz FSR, SA200-8B). Under normal operation conditions one obtains up to 100 mW of single-mode laser power at the output of the external cavity.

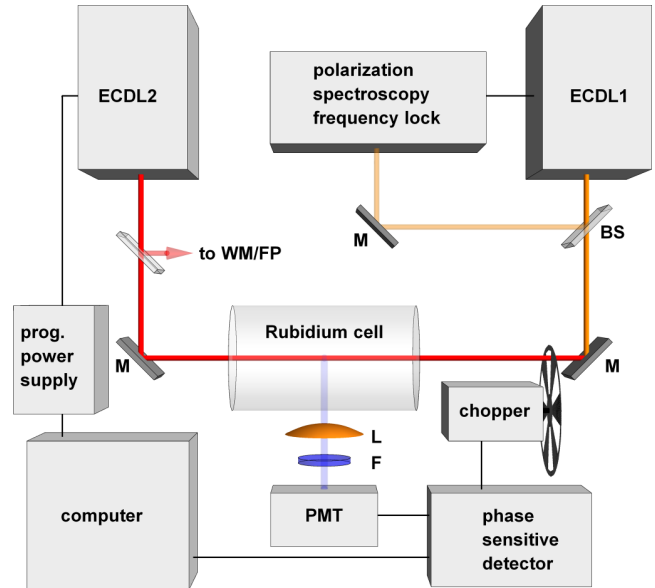


FIG. 2. (Color online) Experimental setup for polarized velocity selective spectroscopy. ECDL: external cavity diode laser; PMT: photomultiplier tube; M: mirror; BS: beam splitter; L: lens system; F: 420 nm interference filter. A small part of the 911 nm beam is sent to a wave meter (WM) and a 1.5 GHz Fabry-Pérot interferometer (FP).

Both beams are linearly polarized with parallel electric-field vectors, and counterpropagate along a rubidium cell at room temperature. The production of the electric-dipole-forbidden transition is monitored by detecting the 420 nm fluorescence that results from the direct decay into the $5s$ ground state. These blue photons are collected by a lens system that focuses them into the cathode of a photomultiplier tube (PMT). A bandpass filter centered at 420 nm is placed in front of the PMT window. In the experimental setup the detection direction is perpendicular to the linear polarization direction of both laser beams, and also perpendicular to their propagation direction. A chopper is used to modulate the incidence of the preparation beam with a frequency of 800 Hz. The amplified PMT current signal and the chopper reference frequency signal are sent to a phase sensitive detector whose voltage output is read in a computer interface. This interface also controls a programmable power supply that is used to scan the frequency of ECDL2. An electric-dipole-forbidden spectrum is the in-phase PMT signal as a function of the voltage applied to the frequency scan of ECDL2. A wave meter with a 0.05 nm resolution is used for the initial tuning of ECDL2. The Fabry-Pérot interferometer mentioned above is used to monitor the single-mode operation of ECDL2, and it also provides a coarse frequency scale.

Both laser beams were collimated and produced elliptical cylinders along the 7.5-cm-long rubidium cell. The ECDL1 beam profile was a $4.9 \text{ mm} \times 2.4 \text{ mm}$ ellipse and that of ECDL2 was a $4.5 \text{ mm} \times 2.3 \text{ mm}$ ellipse. Both beams overlap inside the rubidium cell. For the 911 nm beam we used the maximum available power of 100 mW, which results in an average intensity of 12.3 kW m^{-2} . The fluorescence lines can be broadened by the power of the 780 nm preparation beam. We therefore decided to use $100 \mu\text{W}$ of power. This puts

its average intensity at 10.7 W m^{-2} , below the 16.46 W m^{-2} saturation intensity for the D_2 transition [21].

In either rubidium isotope, the $5s_{1/2}$ hyperfine splitting is larger than the D_2 Doppler width at room temperature. Therefore, the frequency of the preparation photons at 780 nm has been used to determine the initial hyperfine state of the three-step excitation sequence. We used polarization spectroscopy [18,19] to lock the frequency of the preparation beam to the Doppler free $F \rightarrow F + 1$ cyclic transition ($F = 2$ in ^{87}Rb or $F = 3$ in ^{85}Rb). The 911 nm laser has been used to excite the $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ electric-dipole-forbidden transition. By sending it in a counterpropagating configuration one can perform a Doppler free excitation into the hyperfine states of the $6p_{3/2}$ manifold [22]. For zero velocity atoms the excitation sequence is $F_1 = F \rightarrow F_2 = F + 1 \rightarrow F_3$. Direct use of the electric quadrupole selection rules ($\Delta F = 0, \pm 1, \pm 2$) results in $F_3 = 1, 2,$ and 3 for ^{87}Rb and $F_3 = 2, 3,$ and 4 for ^{85}Rb . For each isotope one therefore expects a triplet with the frequency splitting of the well-known hyperfine structure of the $6p_{3/2}$ state [23]. These splittings were used for the frequency calibration of the dipole-forbidden spectra.

III. CALCULATION OF RELATIVE LINE INTENSITIES

The relative intensities of the emission that follows the electric-dipole-forbidden excitation have been calculated. We found that the experimental results for these intensities are properly described assuming that (i) the system can be described in terms of three sequential steps (preparation $5s \rightarrow 5p_{3/2}$, electric quadrupole excitation $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$, and decay $6p_{3/2} \rightarrow 5s$) and (ii) the rate equation approximation is valid for the description of the first step. The assumption (i) is based on the fact that the forbidden excitation is very weak compared to the transitions of the preparation step, so that the modification of the population of the $5p_{3/2}$ states due to both the electric quadrupole excitation and the subsequent electric dipole decay can be neglected in a first analysis.

Under these assumptions, the probability to observe a 420 nm photon resulting from the decay of the $|6p_{3/2}F_3\rangle$ hyperfine states is given by

$$P(F_3) = \sum_{M_2, M_3, F'_1, M'_1, \lambda} \sigma(F_2, M_2) |\langle 5p_{3/2}F_2M_2 | T | 6p_{3/2}F_3M_3 \rangle|^2 \times |\langle 6p_{3/2}F_3M_3 | D_\lambda | 5s_{1/2}F'_1M'_1 \rangle|^2. \quad (1)$$

Here $\sigma(F_2, M_2)$ is the population of the $|5p_{3/2}F_2M_2\rangle$ prepared by the 780 nm laser, T is the nondipole transition operator, and D_λ is the $6p_{3/2} \rightarrow 5s_{1/2}$ electric dipole operator associated to the polarization λ . The sum is performed over all projections of total angular momenta of the initial M_2 and final M_3 states of the nondipole transition, the angular momenta of the final $5s_{1/2}$ hyperfine states (F'_1, M'_1), and also over two orthogonal polarization directions λ . The value of the total angular momentum of the intermediate state F_2 corresponds to the $F \rightarrow F + 1$ cyclic transition of the D_2 preparation step.

The geometry of the experiment that is used in the calculation is the following (Fig. 3). The preparation and nondipole beams counterpropagate along the x axis. They are both linearly polarized, with parallel electric-field vectors. We

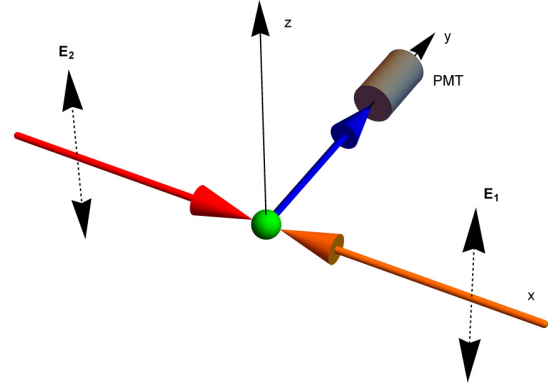


FIG. 3. (Color online) Geometry used in the calculation. The preparation (780 nm) and the forbidden excitation (911 nm) beams propagate respectively in the negative and positive directions of the x axis with parallel linear polarizations \mathbf{E}_1 and \mathbf{E}_2 directed along the z axis. The detection of the fluorescence is performed by the PMT in the positive direction of the y axis.

take this polarization direction as the z axis. Finally, the 420 nm fluorescence is detected along the y axis.

The first step is then the calculation of the alignment of the $5p_{3/2}F_2 = F + 1$ state induced by the preparation laser. This establishes the relative populations $\sigma(F_2, M_2)$ of the magnetic sublevels [19], which were calculated using the rate equation approximation taking into account the transit time T_{trans} of the atoms across the preparation beam [19]. Einstein rate equations for the F and $F_2 = F + 1$ states in the cyclic transition [say, $F_1 = 2(3)$ and $F_2 = 3(4)$ for ^{87}Rb (^{85}Rb)] with all the magnetic projections M read

$$\frac{dN_{M_i}}{dt} = \rho B_{M_i}^{M_j} (N_{M_j} - N_{M_i}) + \sum_{M_j} A_{M_i}^{M_j} N_{M_j}, \quad (2)$$

$$\frac{dN_{M_j}}{dt} = -\rho B_{M_i}^{M_j} (N_{M_j} - N_{M_i}) - \sum_{M_i} A_{M_i}^{M_j} N_{M_j}. \quad (3)$$

Equation (2) describes the changes on the population of the lower F, M_i states so that the sum runs over all the possible upper states F_2, M_j that can decay spontaneously to the M_i state with an Einstein coefficient $A_{M_i}^{M_j}$; the stimulated transitions involve the Einstein coefficients $B_{M_i}^{M_j}$ multiplied by the radiation energy density ρ . The second equation, Eq. (3), describes the changes on the population of the upper F, M_j states. In it, the sum now runs over all the lower M_i states coupled by spontaneous emission. Clearly, Eq. (2) is the negative of Eq. (3) establishing a conservation of population that is approximately valid under the experimental conditions since the second step corresponds to the much less probable forbidden transition.

The Euler method was used to solve the differential equations (2) and (3) using temporal evolutions corresponding to several values of ρ and a time $T_{\text{trans}} \sim 10 \mu\text{s}$, which corresponds to the mean transit of thermal atoms ($T \sim 300 \text{ K}$) through the laser beams used in the experiment. The time

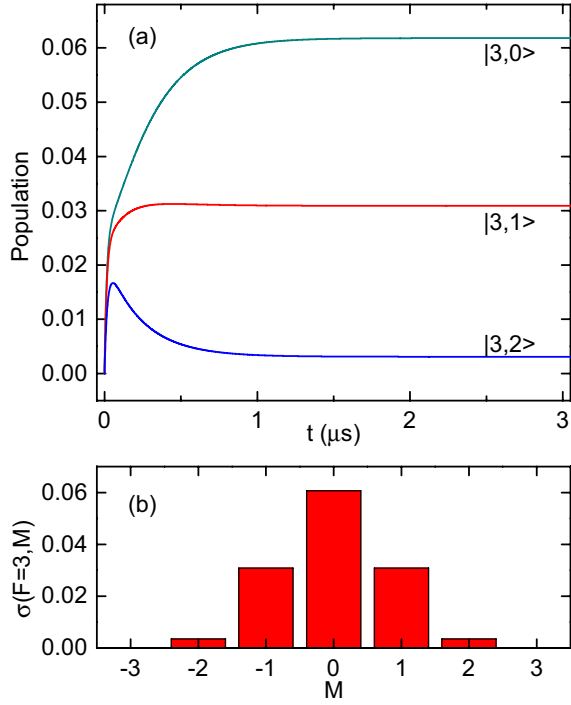


FIG. 4. (Color online) (a) Temporal evolution of the populations of the $5p_{3/2}$ $F = 3$ M_F magnetic sublevels for ^{87}Rb ; (b) time average of these $5p_{3/2}$ magnetic state populations $[\sigma(F = 3, M_F)]$ integrated over a time period of $10 \mu\text{s}$.

average of the population $N_M(t)$ yields the $\sigma(F_2, M_2)$ value,

$$\sigma(F_2, M_2) = \frac{1}{T_{\text{trans}}} \int_0^{T_{\text{trans}}} N_M(t) dt. \quad (4)$$

Figure 4(a) illustrates the temporal evolution for the population of the $|5P_{3/2}, F_2 = 3M\rangle$ magnetic projection states for ^{87}Rb . The preparation beam is linearly polarized with an energy density ρ corresponding to an intensity $I = 0.65I_0$, where I_0 is the saturation intensity for rubidium D_2 line, and its frequency is resonant to the $F_1 = 2 \rightarrow F_2 = 3$ cyclic transition. The behavior of the negative M levels is identical to that of the positive M levels. The selection rule for linearly polarized light $\Delta M = 0$ prevents excitation into the $M = \pm 3$ sublevels. For this preparation intensity the steady-state population of all magnetic sublevels is reached within the first two microseconds. For $M = 0$ and ± 1 the steady state is asymptotically reached from below, while for $M = \pm 2$ there is a population maximum for very short excitation times, and the steady state is reached from above. Figure 4(b) shows the $\sigma(F_2 = 3, M_2)$ obtained taking the time average of the populations over a transit time of $10 \mu\text{s}$. These are the available populations that could be excited by the quadrupole electric transition. It can be observed that the population is maximum for the magnetic state $M_2 = 0$, but that there are significant contributions from the $M = \pm 1$ and $M = \pm 2$ states. Qualitatively similar time evolution curves and population distributions are found for different values of the energy density of the preparation laser. The time to achieve the steady state is reduced for higher values of ρ , and the corresponding asymptotic population values are larger. It is interesting, however, that the ratios

$\sigma(3, M)/\sum_M \sigma(3, M)$ remain almost constant for $0.1 \leq I/I_0 \leq 1.0$. Equivalent results were obtained for ^{85}Rb .

The second step corresponds to the calculation of the $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ nondipole excitation. This transition could arise from electric quadrupole and magnetic dipole couplings of the atom to the light field. Previous studies of the $5p \rightarrow 8p$ dipole-forbidden transition in cold rubidium atoms [13] showed no significant contribution from magnetic dipole couplings; the ultimate reason was that a radiative $M1$ transition between states of the same parity but with orthogonal spatial wave functions is highly forbidden; its description in general requires taking into account subtle relativistic effects. There is no reason to expect a different scenario in our experimental setup. Therefore, in the present calculation, we restricted our study to the electric quadrupole transition operator T . Since the nondipole beam counterpropagates to the dipole beam along the x axis, and it is also linearly polarized in the z direction with an electric-field amplitude E_{20} , the relevant component of the electric quadrupole tensor operator is

$$T = -eE_{20}z(ik_2x), \quad (5)$$

which is written in terms of the components of the irreducible tensor operators of rank two,

$$T = -eE_{20}k_2r^2 \frac{-Y_{2,1} + Y_{2,-1}}{\sqrt{2}}. \quad (6)$$

The Wigner-Eckart theorem then gives the transition matrix element

$$\begin{aligned} & \langle 5p_{3/2}F_2M_2 | T | 6p_{3/2}F_3M_3 \rangle \\ &= (-1)^{F_2-M_2} \sqrt{\frac{(2F_2+1)(2F_3+1)}{2}} \begin{Bmatrix} J_3 & F_3 & I \\ F_2 & J_2 & 2 \end{Bmatrix} \\ & \times \left[- \begin{pmatrix} F_2 & 2 & F_3 \\ -M_2 & 1 & M_3 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} F_2 & 2 & F_3 \\ -M_2 & -1 & M_3 \end{pmatrix} \right] \\ & \times \langle 5p_{3/2} || T || 6p_{3/2} \rangle, \end{aligned} \quad (7)$$

where the terms in parentheses are Wigner 3- j symbols, the curly bracket is a 6- j symbol, I is the nuclear spin, and $\langle 5p_{3/2} || T || 6p_{3/2} \rangle$ is the reduced matrix element. For this geometry the selection rules for the magnetic quantum numbers are

$$\Delta M = \pm 1. \quad (8)$$

Finally, the $6p \rightarrow 5s$ decay was observed along the y axis, with no polarization selection. Therefore, for calculating the measured relative decay rates we took incoherent sums of the $D_1 = x$ and $D_2 = z$ electric dipole operators.

The resulting intensities of the triplet F_3 lines, through the Wigner-Eckart theorem, have a common factor that is the product of squares of reduced matrix elements of the electric quadrupole transition and the electric dipole transitions $\langle 6p_{3/2} || D || 5s_{1/2} \rangle$. These factors cancel out for relative line intensities, which have been directly compared with the experimental data. The calculation indicates that geometrical effects in the $6p \rightarrow 5s$ decay play a minor role (less than 3%) in the relative intensities. On the other hand, the relative peak intensities strongly depend on the populations of the $5p_{3/2}$ magnetic sublevels produced in the preparation state. Therefore, the electric quadrupole transition is at the same

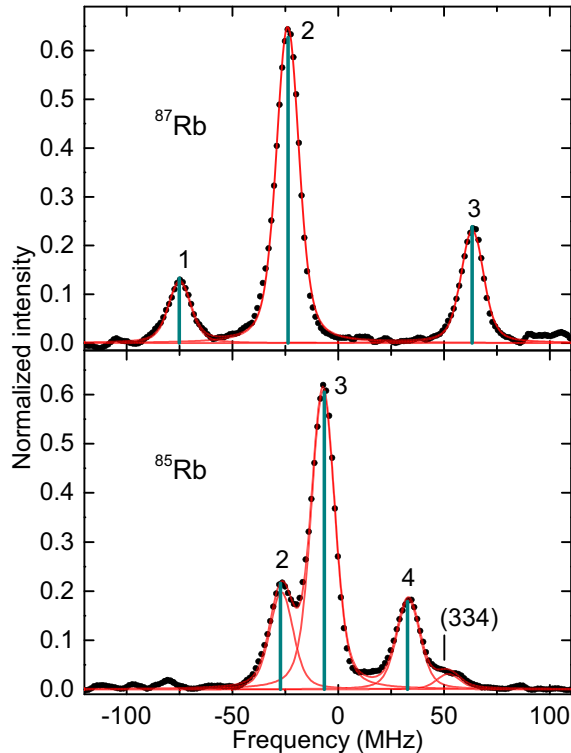


FIG. 5. (Color online) Fluorescence emission spectra. Dots: experimental data; continuous lines: result of fitting Voigt profiles to each line. The numeric labels indicate the F value of the $6p_{3/2}$ hyperfine state. The velocity selected transition in ^{85}Rb is indicated by the parentheses with the F values of the excitation chain. The vertical bars give the position and calculated relative intensity of each hyperfine state.

time a sensitive and nonperturbing probe of the preparation dynamics of the $5p_{3/2}M_2$ magnetic sublevels.

IV. RESULTS: COMPARISON BETWEEN EXPERIMENT AND THEORY

Figure 5 shows typical spectra of the fluorescence signal recorded as the frequency of the 911 nm laser was scanned. The original horizontal scale is the voltage applied to the ECDL2 piezo. A coarse frequency equivalence is obtained with the Fabry-Pérot interferometer. The least-squares fits of independent Voigt profiles [24] shown in the plot were performed for each spectrum. The center and height of each peak was varied independently, whilst the widths (Gaussian and Lorentzian) were the same for all peaks. The differences between peak centers were then fit to the known $6p_{3/2}$ hyperfine splittings [23]. Finally, the zero in frequency was shifted to the center of gravity of the $6p_{3/2}$ hyperfine manifold common to both isotopes [23]. After this calibration the resulting total linewidth for both isotopes is $\Gamma = 12.9 \pm 0.2$ MHz (FWHM).

For both isotopes we observe the expected three lines that result from the excitation sequence $5s_{1/2}F \rightarrow 5p_{3/2}F + 1 \rightarrow 6p_{3/2}F_3$ ($F_3 = F - 1, F, \text{ and } F + 1$) for zero velocity atoms. Also, the splittings of the triplets correspond to the known frequency separation between the $6p_{3/2}F_3$ hyperfine

states of each isotope [23]. However, other groups of atoms, with nonzero velocity projections, are also excited by the preparation laser. For these groups the Doppler shift of the counterpropagating 911 nm laser only partially compensates the Doppler shift of the preparation beam, and the dipole-forbidden transitions appear at frequencies different to the ones obtained with the maximum F preparation. The strongest of these velocity-selected nondipole transitions results from the $F \rightarrow F \rightarrow F + 1$ excitation chain ($2 \rightarrow 2 \rightarrow 3$ in ^{87}Rb and $3 \rightarrow 3 \rightarrow 4$ in ^{85}Rb). In ^{85}Rb there is a clear indication of a shoulder ≈ 19 MHz above the $F = 4$ peak, in good agreement with position of the velocity selected transition that is expected to appear 16.4 MHz above the $3 \rightarrow 3 \rightarrow 4$ excitation. No evidence of the corresponding $2 \rightarrow 2 \rightarrow 3$ transition is found in the ^{87}Rb spectrum. This transition is expected to occur 37 MHz above the $F_3 = 3$ line in Fig. 5.

The fit also gives information about the relative intensity of the hyperfine lines. For ^{85}Rb the relative intensities are 20%, 62%, and 18%, while for ^{87}Rb they are 12%, 65%, and 23%. The calculated relative line intensities are 22%, 60%, and 18% for ^{85}Rb and 13%, 63%, and 24% for ^{87}Rb , in very good agreement with the measured values. No variation of these ratios was found for values of the preparation laser power between 10 and 100 μW . This is in agreement with the calculation that also predicts no significant change of the intensity ratios in this range of preparation laser intensities.

The intensity of the velocity selected peak in ^{85}Rb ($3 \rightarrow 3 \rightarrow 4$) is 3.2% of the sum of intensities of the other three peaks. In the calculation the electric quadrupole transition probability for this line is comparable to the ones in the zero velocity triplet. The reduction of its intensity is explained in terms of optical pumping effects that effectively move the $F_2 = 3$ population into the $F_1 = F - 1 = 2$ dark state.

V. CONCLUSIONS

In summary, direct evidence of the $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ electric-dipole-forbidden excitation using ECDL in atomic rubidium at room temperature was observed. Efficient detection of the fluorescence that follows the Doppler-free optical-optical excitation allowed resolution of the $6p_{3/2}$ hyperfine structure. Our results confirm that the $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ excitation is the result of an electric quadrupole transition. A simple calculation using a sequential two-step excitation and one-step decay is in very good agreement with the experiment. This electric-dipole-forbidden transition is a very sensitive probe of the dynamics of the $5s \rightarrow 5p_{3/2}$ preparation step.

ACKNOWLEDGMENTS

We thank J. Rangel for his help in the construction of the diode laser. This work was supported by DGAPA-UNAM, Mexico, under Projects PAPIIT No. IN116309, No. IN110812, and No. IA101012, by CONACyT, Mexico, under Basic Research Project No. 44986, and National Laboratory Project No. LN260704.

- [1] E. Biémont and C. J. Zeippen, Probabilities for forbidden transitions in atoms and ions: 1989-1995. A commented bibliography, *Phys. Scr.*, **T65**, 192 (1996).
- [2] R. van Rooij, J. S. Borbely, J. Simonet, M. D. Hoogerland, K. S. E. Eikema, R. A. Rozendaal, and W. Vassen, Frequency metrology in quantum degenerate helium: Direct measurement of the $2^3S_1 \rightarrow 2^1S_0$ transition, *Science* **333**, 196 (2011).
- [3] M.-A. Bouchiat and C. Bouchiat, Parity violation in atoms, *Rep. Prog. Phys.* **60**, 1351 (1997).
- [4] B. Sayer, R. Wang, J. C. Jeannet, and M. Sassi, Absorption measurements of quadrupole transition probabilities 6s-nD in caesium vapour, *J. Phys. B* **4**, L20 (1971).
- [5] M. Lambropoulos, S. E. Moody, S. J. Smith, and W. C. Lineberger, Observation of Electric Quadrupole Transitions in Multiphoton Ionization, *Phys. Rev. Lett.* **35**, 159 (1975).
- [6] A. Flusberg, T. Mossberg, and S. R. Hartmann, Optical Difference-Frequency Generation in Atomic Thallium Vapor, *Phys. Rev. Lett.* **38**, 59 (1977); Optical Sum-Frequency-Generation Interference in Atomic Sodium Vapor, **38**, 694 (1977).
- [7] J. Guéna, M. Lintz, P. Jacquier, L. Pottier, and M. Bouchiat, Doppler-free inhibited fluorescence spectroscopy of a forbidden three-level system, *Opt. Commun.* **62**, 97 (1987).
- [8] S. Tojo, T. Fujimoto, and M. Hasuo, Precision measurement of the oscillator strength of the cesium $6^2S_{1/2} \rightarrow 5^2D_{5/2}$ electric quadrupole transition in propagating and evanescent wave fields, *Phys. Rev. A* **71**, 012507 (2005).
- [9] A. V. Taichenachev, V. I. Yudin, C. W. Oates, C. W. Hoyt, Z. W. Barber, and L. Hollberg, Magnetic Field-Induced Spectroscopy of Forbidden Optical Transitions with Application to Lattice-Based Optical Atomic Clocks, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 083001 (2006); Z. W. Barber, C. W. Hoyt, C. W. Oates, L. Hollberg, A. V. Taichenachev, and V. I. Yudin, Direct Excitation of the Forbidden Clock Transition in Neutral ^{174}Yb Atoms Confined to an Optical Lattice, *ibid.* **96**, 083002 (2006).
- [10] P. V. Mironova, V. D. Ovsiannikov, and V. V. Tchernoushchine, Interference of E2 and M1 $n_1^2P - n_2^2P$ transition amplitudes in steady-field-induced coherent mixing of two resonant waves on atoms, *J. Phys. B* **38**, 2467 (2005); E2/M1 amplitude ratio in dipole-forbidden transitions of alkali atoms from two-wave mixing, *Laser Phys.* **15**, 492 (2005).
- [11] S. B. Bayram, M. D. Havey, D. V. Kupriyanov, and I. M. Sokolov, Anomalous depolarization of the $5p^2P_{3/2} \rightarrow 8p^2P_{j'}$ transitions in atomic ^{87}Rb , *Phys. Rev. A* **62**, 012503 (2000).
- [12] M. Bhattacharya, C. Haimberger, and N. P. Bigelow, Forbidden Transitions in a Magneto-optical Trap, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 213004 (2003).
- [13] R. Pires, M. Ascoli, E. E. Eyler, P. L. Gould, and A. Derevianko, Upper limit on the magnetic dipole contribution to the 5p-8p transition in Rb by use of ultracold atom spectroscopy, *Phys. Rev. A* **80**, 062502 (2009).
- [14] D. Tong, S. M. Farooqi, E. G. M. van Kempen, Z. Pavlovic, J. Stanojevic, R. Côté, E. E. Eyler, and P. L. Gould, Observation of electric quadrupole transitions to Rydberg nd states of ultracold rubidium atoms, *Phys. Rev. A* **79**, 052509 (2009).
- [15] G. Hakhumyan, C. Leroy, R. Mirzoyan, Y. Pashayan-Leroy, and D. Sarkisyan, Study of “forbidden” atomic transitions on D_2 line using Rb nano-cell placed in external magnetic field, *Eur. Phys. J. D* **66**, 119 (2012); A. Sargsyan, A. Tonoyan, G. Hakhumyan, A. Papoyan, E. Mariotti, and D. Sarkisyan, Giant modification of atomic transition probabilities induced by a magnetic field: Forbidden transitions become predominant, *Laser Phys. Lett.* **11**, 055701 (2014).
- [16] A. S. Arnold, J. S. Wilson, and M. G. Boshier, A simple extended-cavity diode laser, *Rev. Sci. Instrum.* **69**, 1236 (1998).
- [17] C. J. Hawthorn, K. P. Weber, and R. E. Scholten, Littrow configuration tunable external cavity diode laser with fixed direction output beam, *Rev. Sci. Instrum.* **72**, 4477 (2001).
- [18] C. P. Pearman, C. S. Adams, S. G. Cox, P. F. Griffin, D. A. Smith, and I. G. Hughes, Polarization spectroscopy of a closed atomic transition: Applications to laser frequency locking, *J. Phys. B* **35**, 5141 (2002).
- [19] M. L. Harris, C. S. Adams, S. L. Cornish, I. C. McLeod, E. Tarleton, and I. G. Hughes, Polarization spectroscopy in rubidium and cesium, *Phys. Rev. A* **73**, 062509 (2006).
- [20] Axcel Photonics. 905/915 nm Single-Mode Laser Diodes, 200 mW Series, Product No. M9-915-0200-s50.
- [21] H. J. Metcalf and P. van der Straten, *Laser Cooling and Trapping* (Springer, New York, 1999).
- [22] M. Kaminsky, R. T. Hawkins, F. V. Kowalski, and A. L. Schawlow, Identification of Absorption Lines by Modulated Lower-Level Population: Spectrum of Na_2 , *Phys. Rev. Lett.* **36**, 671 (1976).
- [23] E. Arimondo, M. Inguscio, and P. Violino, Experimental determinations of the hyperfine structure in the alkali atoms, *Rev. Mod. Phys.* **49**, 31 (1977).
- [24] A. Corney, *Atomic and Laser Spectroscopy*, Oxford Classic Texts in the Physical Sciences (Oxford University Press, Oxford, 2006).

Control of electronic magnetic state population via light polarization in the $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ electric quadrupole transition in atomic rubidium

C Mojica-Casique¹, F Ponciano-Ojeda¹, S Hernández-Gómez¹,
O López-Hernández¹, J Flores-Mijangos¹, F Ramírez-Martínez^{1,3},
D Sahagún², R Jáuregui² and J Jiménez-Mier^{1,4}

¹Instituto de Ciencias Nucleares, UNAM, Circuito Exterior, Ciudad Universitaria, 04510 Cd. Mx., Mexico

²Instituto de Física, UNAM, Ciudad Universitaria, 04510 Cd. Mx., Mexico

E-mail: ferama@nucleares.unam.mx and jimenez@nucleares.unam.mx

Received 15 August 2016, revised 1 November 2016

Accepted for publication 25 November 2016

Published 29 December 2016



CrossMark

Abstract

Doppler-free optical double-resonance spectroscopy is used to study the $5s_{1/2} \rightarrow 5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ excitation sequence in room-temperature rubidium atoms. This involves a $5s_{1/2} \rightarrow 5p_{3/2}$ electric dipole preparation step followed by the $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ electric quadrupole excitation. A detailed experimental and theoretical study of the dependence on the excitation beams polarization from the 420 nm decay fluorescence ($6p_{3/2} \rightarrow 5s_{1/2}$) is presented. When a circularly polarized preparation beam is used, it produces a strongly oriented $5p_{3/2}$ intermediate state. In this case a linear quadrupole excitation beam transfers the oriented state to the $6p_{3/2}$ hyperfine states. For linearly polarized preparation and quadrupole excitation beams the spectra of the $6p_{3/2}$ hyperfine lines follow a cosine squared dependence on the angle between the polarization directions. As a consequence, it is shown that the choice of polarization configuration allows direct use of the electric quadrupole transition selection rules to control the populations of the $6p_{3/2}$ hyperfine magnetic sublevels in the absence of external fields. This is achieved by independently enhancing or suppressing either $\Delta M_F = \pm 1$ or ± 2 electric quadrupole transitions.

Keywords: spectroscopy free of Doppler broadening, electric dipole forbidden transition, electric quadrupole selection rules

(Some figures may appear in colour only in the online journal)

1. Introduction

Optical-optical double-resonance laser spectroscopy is a widely used technique to perform Doppler-free studies of transitions between excited states of atoms [1]. One laser is used to excite ground state atoms into the initial state of the transition, and a second laser produces the desired excitation. When the preparation laser frequency is fixed within the Doppler well of the first transition and the excitation laser is

either co- or counterpropagating with the first one, one can obtain velocity-selective spectra [2] with linewidths significantly smaller than the Doppler width of the preparation transition (recent examples are [3–8]). There are many examples of the use of optical-optical spectroscopy to study electric-dipole transitions to excited states in atoms [1] but only recently this technique has been used to perform Doppler-free studies of electric dipole forbidden transitions in room temperature atoms [9, 10].

Many articles develop the theory of coherent mixing for two photon interaction in which one of them corresponds to a dipole forbidden transition (see for example [11]). In this

³ First author to whom any correspondence should be addressed.

⁴ Second author to whom any correspondence should be addressed.

context Miranova *et al* propose that the polarization state of the light field could be used to control the efficiency of coherent mixing [12].

In this paper we demonstrate experimentally that control of polarization states can be used to transfer atoms into specific quantum states. We propose a novel technique that allows the control of selection rules without magnetic field and then production of specific atomic systems via polarization beam configuration. Results for different polarization configurations of the combined preparation and quadrupole excitation lasers are given. Furthermore, it is shown that polarization configuration can be chosen to distinguish between the dynamics of the preparation stage and the selection rules of the electric quadrupole transition. This could be a useful toolbox beyond the dipole approximation, for example in the study of polarization degree in optical transitions as made by Baumgartner *et al* [13] and in the study of quantum beat spectroscopy made by Bayram *et al* [14].

A recent article by our research group [9] showed that optical-optical double-resonance spectroscopy can be used to observe the $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ electric dipole forbidden transition in room temperature rubidium atoms with resolution of the $6p_{3/2}$ hyperfine states. In the present work a detailed investigation of the effect of the light polarization on the relative intensities of the $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ electric-dipole forbidden transition is presented. Using linear polarization for both preparation and electric quadrupole beams, with different electric field orientations allow the direct study of the electric quadrupole selection rules over the M_F magnetic quantum numbers. With a circularly polarized preparation beam and a linearly polarized electric quadrupole beam, one probes different dynamics of the preparation stage. Experimental spectra for both ^{85}Rb and ^{87}Rb are presented. The experimental data are compared with the results of calculations that consider a $5s_{1/2} \rightarrow 5p_{3/2}$ preparation step that establishes the magnetic sublevel populations of the $5p_{3/2}$ intermediate state, followed by a $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ electric quadrupole probe that does not significantly modify the populations of the $5P_{3/2}M_2$ magnetic sublevels. This three step model that includes an electric dipole forbidden transition explicitly takes into account the experimental polarization configurations. Furthermore, the model allows a direct calculation of the relative populations of the hyperfine magnetic sublevels in the $6p_{3/2}$ manifold, and it is shown that these populations can be controlled by the polarization of the electric quadrupole excitation laser.

This paper is structured as follows. Section 2 presents the relevant theory, starting with a discussion over the involved set of rubidium transitions. It also contains a detailed theoretical analysis of the transition matrix elements that occur in each polarization configuration. Furthermore, a discussion of the polarization effects on the production of the magnetic sublevels of the $5p_{3/2}$ intermediate state is presented. The role of polarization in the electric quadrupole selection rules leading to production of the different $6p_{3/2}$ hyperfine magnetic sublevels is also shown in detail. The experimental setup is presented in section 3. In section 4 a comparison between

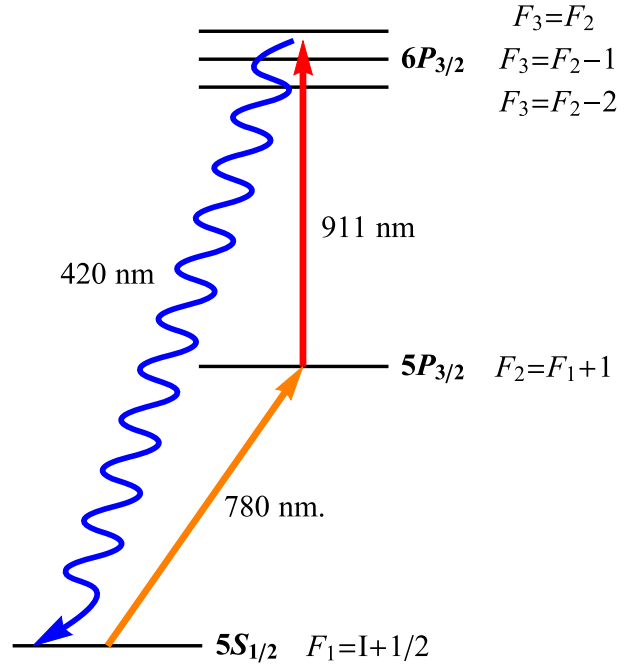


Figure 1. Energy levels of rubidium.

the experimental results and the calculations is made. Finally, general conclusions are presented in section 5.

2. Theory

Figure 1 shows the ladder configuration involving the relevant two photon transition followed by a decay straight to the ground state of rubidium. In the experiment a laser in resonance with the $5s_{1/2} \rightarrow 5p_{3/2}$ transition at 780 nm (D2 line) is used to prepare atoms in the $5p_{3/2}$ state. In particular, the preparation laser frequency is chosen to excite atoms in the $5S_{1/2} F = I + 1/2$ hyperfine state, where I is the nuclear spin. A second laser beam at 911 nm is used to produce the $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ electric dipole forbidden transition. We detect this excitation channel via 420 nm fluorescence emission for spontaneous decay from $6p_{3/2}$ state into the $5s_{1/2}$ ground state.

The probability to observe a 420 nm photon resulting from the decay of the $6P_{3/2}F_3$ hyperfine states can be written as [9]:

$$P(F_3) = \sum_{M_2, M_3, F_1', M_1', \lambda} \sigma_p(F_2, M_2) \times |\langle 5P_{3/2}F_2M_2 | T_q | 6P_{3/2}F_3M_3 \rangle|^2 \times |\langle 6P_{3/2}F_3M_3 | D_\lambda | 5S_{1/2}F_1'M_1' \rangle|^2. \quad (1)$$

Here $\sigma_p(F_2, M_2)$ is the population of the $5P_{3/2}F_2M_2$ prepared by the 780 nm laser, T_q is the electric quadrupole transition operator, and D_λ is the $6P_{3/2} \rightarrow 5s_{1/2}$ electric dipole decay operator associated to the light polarization state λ of the 420 nm decay fluorescence. The sum is performed over all projections of total angular momenta of the initial M_2 and

final M_3 states of the non-dipole transition, the angular momenta of the final $5S_{1/2}$ hyperfine states (F_1' , M_1'), and also over two orthogonal polarization directions λ . The value of the total angular momentum of the intermediate state F_2 corresponds to the $F \rightarrow F + 1$ cyclic transition of the D2 preparation step. In this expression it is assumed that the electric-dipole coupling of the first step is much stronger than the electric quadrupole excitation. Therefore, the first step determines the populations of the M_2 magnetic sublevels of the $5p_{3/2}$ state, which are then weakly coupled to the $6P_{3/2}$ state by the electric quadrupole operator.

Equation (1) shows how the light polarization can be used to modify the relative intensities of the blue fluorescence that results from the decay of the hyperfine manifold $6p_{3/2}F_3M_3$. On the one hand, the polarization of the 780 nm preparation laser allows control of the relative M_2 populations of the $5p_{3/2}$ intermediate state. A linearly polarized $5s_{1/2} \rightarrow 5p_{3/2}$ electric-dipole excitation produces a $5p_{3/2}F_2$ aligned state, while a circularly polarized light produces an oriented state [15]. On the other hand, a linearly polarized electric quadrupole coupling beam will transfer the $5p_{3/2}$ orientation or alignment into the $6p_{3/2}F_3M_3$ hyperfine states. The relative populations of these hyperfine states can be obtained by direct summation of the first two terms in equation (1) over the magnetic quantum numbers M_2 . The anisotropy in these populations translates into different relative intensities of the 420 nm fluorescence lines.

For the implementation of the three step model it is necessary to define the coordinate system for the two polarization configurations studied in this work. In figure 2 both laser beams are counter propagating, while the detection direction is orthogonal to laser propagation. These directions define the horizontal plane. The polarization state of the preparation laser determines the quantization axis for each polarization configuration. For a linearly polarized preparation beam the quantization axis is chosen parallel to its electric field along the z vertical direction, then the propagation direction becomes the x axis and the electric field vector of the electric quadrupole laser lies on the yz plane, making an angle θ with respect to the vertical axis. In the other polarization configuration, in which the preparation laser is circularly polarized and the electric quadrupole laser is linearly polarized, the propagation axis is now the quantization axis (defined as z axis). This time, the electric quadrupole excitation laser is chosen to have its electric field vector \mathbf{E}_2 parallel to the vertical direction, which is now the x axis.

2.1. Dipole transitions

The three step model (equation (1)) includes two electric dipole transitions. The first one is the $5s_{1/2} \rightarrow 5p_{3/2}$ excitation that prepares the initial states of the electric quadrupole transitions $5P_{3/2}F_2M_2$. After the interaction with the electric quadrupole laser some of the atoms are excited into the $6P_{3/2}F_3M_3$ manifold. There is a finite probability for these excited atoms to decay via the $6p_{3/2} \rightarrow 5s_{1/2}$ electric dipole transition.

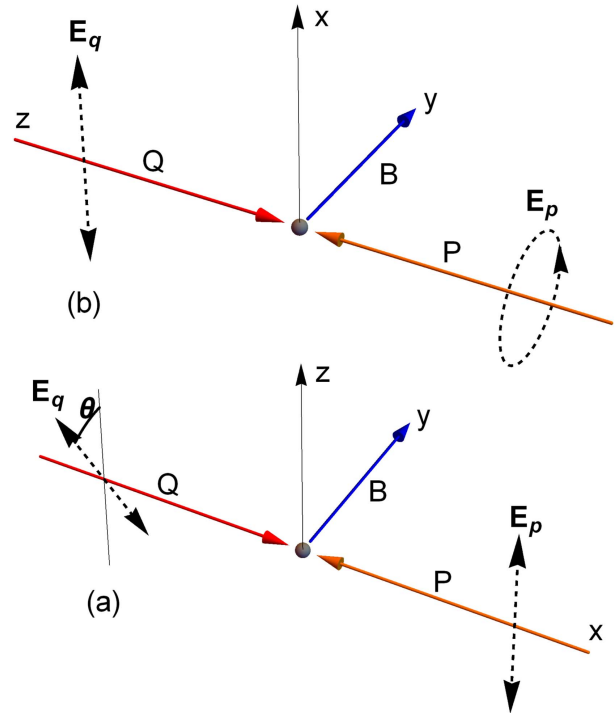


Figure 2. Geometry used in the calculation. Colinear preparation (P) and electric quadrupole (Q) beams define the propagation direction. The 420 nm fluorescence is detected along the y axis. (a) Linear-linear configuration. The electric field vector of the preparation beam defines the z -axis. The electric field vector of the quadrupole beam makes an angle θ with respect to the z -axis. (b) Circular-linear configuration. The propagation direction of the preparation beam now defines the z -axis.

2.1.1. Preparation step. First we show that our choice of the preparation step frequency also fixes the value of the $F_2 = F_1 + 1$ hyperfine state in equation (1). In principle one can excite, for well defined values of the axial atom velocity, each of the $F \rightarrow F_2 = F_1 - 1$, F_1 and $F_1 + 1$ transitions. However, the $F - 1$ and F hyperfine states have a finite probability of decaying into the $5S_{1/2}F - 1$ ground state (dark state) that can no longer interact with the preparation laser. Atoms in these $5p_{3/2}$ intermediate states are therefore pumped out of the preparation step. One therefore expects electric quadrupole spectra that are dominated by the $F \rightarrow F_2 = F + 1$ cyclic transition in the preparation step. The calculation shows that there is only one electric quadrupole transition that involves a $5P_{3/2}$ hyperfine state outside of this cyclic transition. Optical pumping into the dark state significantly reduces its intensity, and it will not be included in the model.

The temporal evolution of the relative populations of the $5P_{3/2}F_2M_2$ magnetic states is calculated using the Einstein rate equation approximation. The assumption is made that initially the $5S_{1/2}FM$ magnetic sublevels are statistically distributed. The system of equations is solved using the Euler method. A time averaging on the instant populations $5P_{3/2}F_2M_2$ states is performed to determine the effective

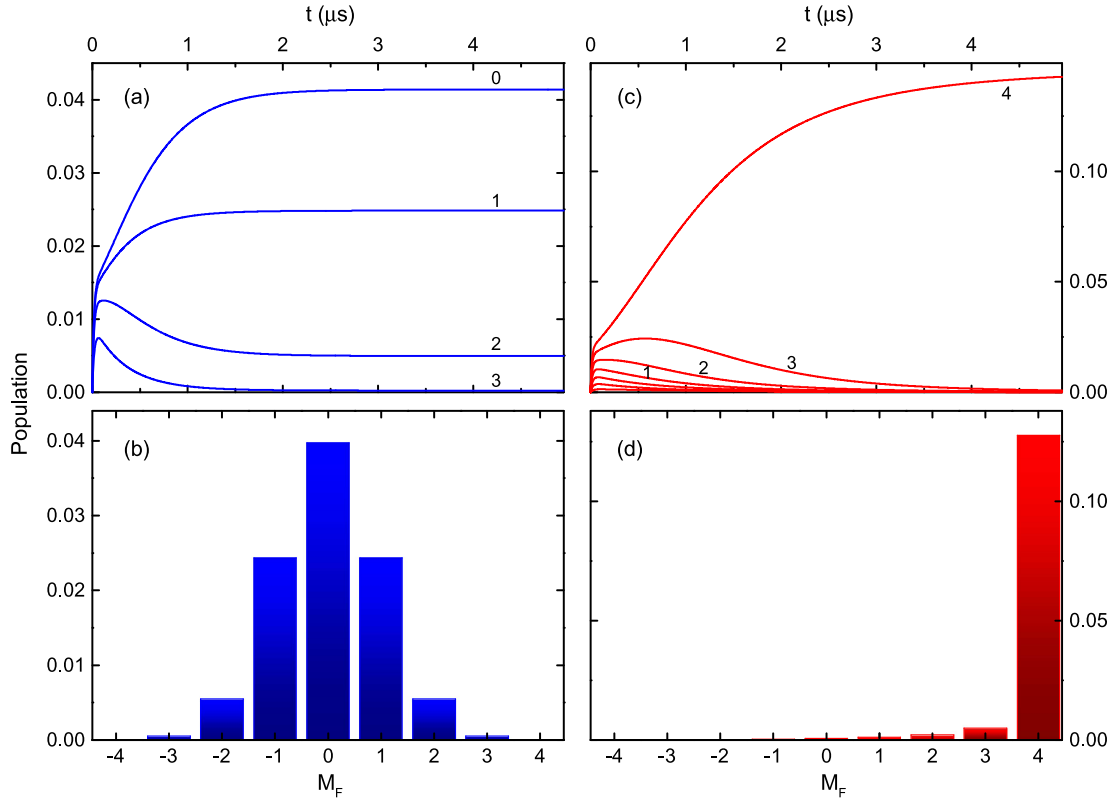


Figure 3. Temporal evolution (upper panels) and average populations (lower panels) for the $|F_2 = 4, M_2\rangle$ states in ^{85}Rb . The left panels correspond to preparation with a linearly polarized laser. In this case the evolution of the $-M_2$ states is identical to that of the $+M_2$ states. The right panels are for a circularly polarized preparation laser.

population available for the electric quadrupole transition. The integration time is the transit time T_{trans} of the atoms across the preparation beam [16]. For our experimental conditions we estimate $T_{\text{trans}} = 10 \mu\text{s}$.

For a linearly polarized preparation beam the temporal evolution of the $5P_{3/2}$ magnetic sublevels M_2 of ^{85}Rb is presented in figure 3(a). In this case the selection rule $\Delta M = 0$ prevents excitation into the $M_2 = \pm 4$ sublevels. The integrated populations are given in figure 3(b), which shows that the system accumulates the maximum population in the $M_2 = 0$ state. As expected for linearly polarized light, the populations of the negative M_2 levels are equal to those of the positive M_2 levels, which means that one ends up with an aligned atomic ensemble [15].

For the case of a circularly polarized preparation laser, the calculation was performed under similar conditions, but now the selection rule is $\Delta M = +1$. The temporal evolution is shown in figure 3(c) and the population time average is shown in figure 3(d). In this case the population accumulates in the extreme $M_2 = F_2 = +4$ magnetic state, resulting in a strongly oriented system [15].

Qualitatively similar time evolution curves and relative population distributions are found for different values of the preparation laser intensity I_{780} . The time to achieve the steady state is reduced for higher values of I_{780} and the corresponding asymptotic population values are larger. However, it is interesting that the ratios $\sigma(3, M)/\sum_M \sigma(3, M)$ remain

almost constant for I_{780} below the saturation intensity. Equivalent results were obtained for ^{87}Rb .

2.1.2. Decay process. Decay from the $6p_{3/2}$ is the other electric dipole process in the three step model. In our geometry the blue fluorescence is always detected along the y axis. Therefore, the electric field vector for the 420 nm photons is in the zx plane. In our experiment we do not select the final hyperfine state of the decay nor the polarization state of the 420 nm photon, the contribution of this third step is the incoherent sum for the polarization states $\lambda = z, x$ given by

$$D_x^2 + D_z^2 = |\langle 6P_{3/2} F_3 M_3 | D_z | 5S_{1/2} F_1' M_1' \rangle|^2 + |\langle 6P_{3/2} F_3 M_3 | D_x | 5S_{1/2} F_1' M_1' \rangle|^2. \quad (2)$$

This becomes the third factor in equation (1), and is the same for the two polarization configurations studied in this work.

2.2. The electric quadrupole transition

2.2.1. Linear-linear configuration. With the geometry described in figure 2 the electric field \vec{E}_2 can be separated in two components, one of them \vec{E}_{\parallel} is parallel to the quantization axis with an amplitude $E_2 \cos \theta$ and the other component, \vec{E}_{\perp} is perpendicular with an amplitude $E_2 \sin \theta$. Since the tensor operator for an electric quadrupole transition is $T_q = -e(\vec{k} \cdot \vec{r})(\vec{r} \cdot \vec{E}_2)$, we can write each component of

the transition matrix element for the quadrupole excitation as

$$\begin{aligned}
& \langle 5p_{3/2} F_2 M_2 | T_{\parallel} | 6p_{3/2} F_3 M_3 \rangle \\
& \equiv \langle 5p_{3/2} F_2 M_2 | T_{xz} | 6p_{3/2} F_3 M_3 \rangle \\
& = -eE_2 k_2 \langle 5p_{3/2} || r^2 || 6p_{3/2} \rangle \\
& \times \left\langle 5p_{3/2}, F_2 M_2 \left| \left(\frac{Y_{2,-1} - Y_{2,+1}}{\sqrt{2}} \right) \right| 6p_{3/2} F_3 M_3 \right\rangle, \quad (3) \\
& \langle 5p_{3/2} F_2 M_2 | T_{\perp} | 6p_{3/2} F_3 M_3 \rangle \\
& \equiv \langle 5p_{3/2} F_2 M_2 | T_{xy} | 6p_{3/2} F_3 M_3 \rangle \\
& = -eE_2 k_2 \langle 5p_{3/2} || r^2 || 6p_{3/2} \rangle \\
& \times \left\langle 5p_{3/2} F_2 M_2 \left| \left(\frac{Y_{2,-2} - Y_{2,+2}}{\sqrt{2}} \right) \right| 6p_{3/2} F_3 M_3 \right\rangle, \quad (4)
\end{aligned}$$

where the Wigner–Eckart theorem is used to separate the dynamical part from the geometric part. Two different selection rules for the magnetic quantum numbers result from these equations. They are $\Delta M = \pm 1$ for parallel linear polarizations and $\Delta M = \pm 2$ for the perpendicular case.

The square of the complete quadrupole transition matrix element gives the probability for the second step in the process. Taking into account that the contributions have different selection rules, the second step probability can be written as

$$\begin{aligned}
& |\langle 5p_{3/2} F_2 M_2 | T_{\theta} | 6p_{3/2} F_3 M_3 \rangle|^2 \\
& = |\langle 5p_{3/2} F_2 M_2 | T_{\parallel} | 6p_{3/2} F_3 M_3 \rangle|^2 \cos^2 \theta \\
& + |\langle 5p_{3/2} F_2 M_2 | T_{\perp} | 6p_{3/2} F_3 M_3 \rangle|^2 \sin^2 \theta, \quad (5)
\end{aligned}$$

where T_{θ} denotes the dependence of the transition in the angle θ between the linear polarized electric fields E_1 and E_2 .

When one substitutes the corresponding expressions for time average population $\sigma_p(F_2, M_2)$ given in figure 3(b), the quadrupole electric probability in equation (5), and the decay probability in equation (2) into equation (1) and after performing the sums over M_2, M_3, F_1' and M_1' , one obtains a function that describes the angular distribution of the probability to observe a 420 nm photon for each $6p_{3/2}$ hyperfine state,

$$P_{\theta}(F_3) = P_{\parallel} \cos^2 \theta + P_{\perp} \sin^2 \theta, \quad (6)$$

where the coefficients P_{\parallel} and P_{\perp} are given by

$$\begin{aligned}
P_{\parallel} &= \sum_{M_2, M_3, F_1', M_1'} \sigma_p(F_2, M_2) \\
&\times |\langle 5p_{3/2} F_2 M_2 | T_{\parallel} | 6p_{3/2} F_3 M_3 \rangle|^2 (D_x^2 + D_z^2), \quad (7)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
P_{\perp} &= \sum_{M_2, M_3, F_1', M_1'} \sigma_p(F_2, M_2) \\
&\times |\langle 5p_{3/2} F_2 M_2 | T_{\perp} | 6p_{3/2} F_3 M_3 \rangle|^2 (D_x^2 + D_z^2). \quad (8)
\end{aligned}$$

2.2.2. Circular–linear configuration. When the circular preparation beam defines the quantization axis z as the propagation direction, the quadrupole electric field vector \vec{E}_2 lies on the xy plane. In this case, the transition probability

does not depend on the angle θ , therefore for calculation convenience \vec{E}_2 is taken parallel to the vertical direction, i.e. $\theta = 0$ in figure 2. Then the electric quadrupole transition matrix element is

$$\begin{aligned}
& \langle 5p_{3/2} F_2 M_2 | T_q | 6p_{3/2} F_3 M_3 \rangle \\
& \equiv \langle 5p_{3/2} F_2 M_2 | T_{xz} | 6p_{3/2} F_3 M_3 \rangle \\
& = -eE_2 k_2 \langle 5p_{3/2} || r^2 || 6p_{3/2} \rangle \\
& \times \left\langle 5p_{3/2} F_2 M_2 \left| \left(\frac{Y_{2,-1} - Y_{2,+1}}{\sqrt{2}} \right) \right| 6p_{3/2} F_3 M_3 \right\rangle. \quad (9)
\end{aligned}$$

The transition probability for quadrupole transition is the square of equation (9), its value is used to calculate the second term in expression equation (1) for the circular linear polarization case.

3. Experimental setup

Details of the experimental setup were presented in [9]. Here only the modifications made for the polarization studies (see figure 4) are presented. The 780 nm preparation beam is taken from an external cavity diode laser (ECDL). The 911 nm quadrupole excitation beam is now a commercial CW titanium-sapphire laser (Ti:Sapphire, M Squared Lasers). The polarization states of two beams are prepared before they counterpropagate along a rubidium cell at room temperature. A quarter wave plate is added for the experiments with a circularly polarized preparation beam. The degree of polarization of the preparation beam was measured both with and without the quarter-wave plate. Without the quarter-wave plate a $p_{\ell} = 0.987(4)$ linear polarization was obtained and with the quarter-wave plate we obtained $p_{\ell} = 0.968(2)$ circularly polarized light. Finally, the use of a half-wave plate allows to rotate the linear polarization of the 911 nm electric quadrupole beam with polarization degree of $p_{911} = 0.86(7)$, limited by the optical setup.

Polarization spectroscopy is used to lock the frequency of the 780 nm preparation laser to the Doppler free $F \rightarrow F + 1$ cyclic transition ($F = 2$ in ^{87}Rb or $F = 3$ in ^{85}Rb) [16–18]. An optical system with two lenses and a 20 nm bandpass filter is used to collect the 420 nm blue fluorescence into the photomultiplier tube. A phase-sensitive detection system is used to obtain the $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ electric quadrupole excitation spectra. The initial tuning of the 911 nm laser is achieved with a wavemeter with a 0.050 nm resolution. A Fabry–Perot interferometer is used to monitor the single-mode operation of the 911 nm laser, and it also provides a coarse frequency scale, but the final calibration is made by comparing the spectra to the known hyperfine splittings of the $6p_{3/2}$ state [19].

For the 911 nm beam a power of 50 mW was used, which results in an average intensity of 6.2 kW m^{-2} . For the 780 nm preparation beam 100 μW of power were used with an average intensity of 10.7 W m^{-2} , below the 16.46 W m^{-2} saturation intensity for the D2 transition [20].

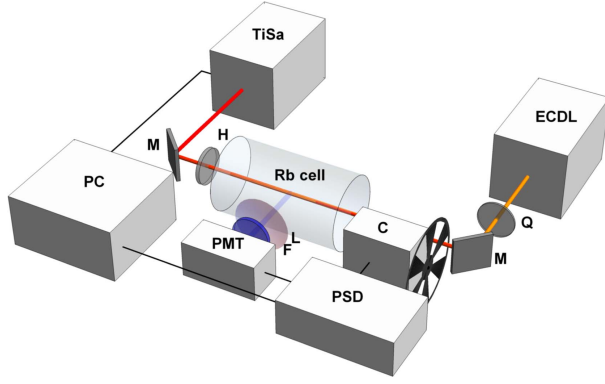


Figure 4. Experimental setup for polarized Doppler-free double resonance spectroscopy. ECDL: external cavity diode laser; TiSa: titanium-sapphire laser; Q: 780 nm quarter wave plate; H: 911 nm half wave plate; PMT: photomultiplier tube; M: mirror; L: lens system; F: 420 nm interference filter; C: chopper; PSD: phase sensitive detector, PC: computer.

The two polarization configurations of interest were already discussed in section 2. In the first one a linearly polarized light is used for both the $5s_{1/2} \rightarrow 5p_{3/2}$ preparation step and the $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ quadrupole excitation. The intensity of the $6P_{3/2}F_3$ hyperfine fluorescence lines were measured as function of angle θ between polarization vectors giving angular distribution curves for each hyperfine state. Two measurement methods for each angle θ were used to construct the angular distribution curves. In one, full spectra were recorded and the line intensities were obtained for each spectrum. The overall intensity and the relative hyperfine intensities of these spectra depend on the stability of the preparation laser. In the course of the measurements both frequency and intensity were found to fluctuate. Thus, for each angle several individual spectra were obtained to average out these fluctuations. This procedure magnified systematic effects that resulted from drifts in the laser intensity and frequency. In the second procedure shorter scans across individual lines were recorded and the line intensities were directly read from the peak heights of these short scans. Direct comparison of these two methods results in angular distributions that agree with each other, but with less scatter and smaller error bars in the data obtained with the shorter scans.

The relatively low polarization of the quadrupole excitation light imposes a correction in equation (6) that can be included by considering an extra contribution for two orthogonal components electric field vectors, \vec{E}_a making an angle θ with respect to the quantization axis, and \vec{E}_b that now makes an angle $\pi/2 + \theta$ with respect to the quantization axis. The separate contributions to the line intensities are:

$$P_{p,\theta}(F_3) = \frac{|\vec{E}_a|^2}{|\vec{E}_a|^2 + |\vec{E}_b|^2} P_\theta(F_3) + \frac{|\vec{E}_b|^2}{|\vec{E}_a|^2 + |\vec{E}_b|^2} P_{\pi/2+\theta}(F_3), \quad (10)$$

where $P(\theta)$ for perfect linear polarization is given by equation (6). The resulting angular distribution can be

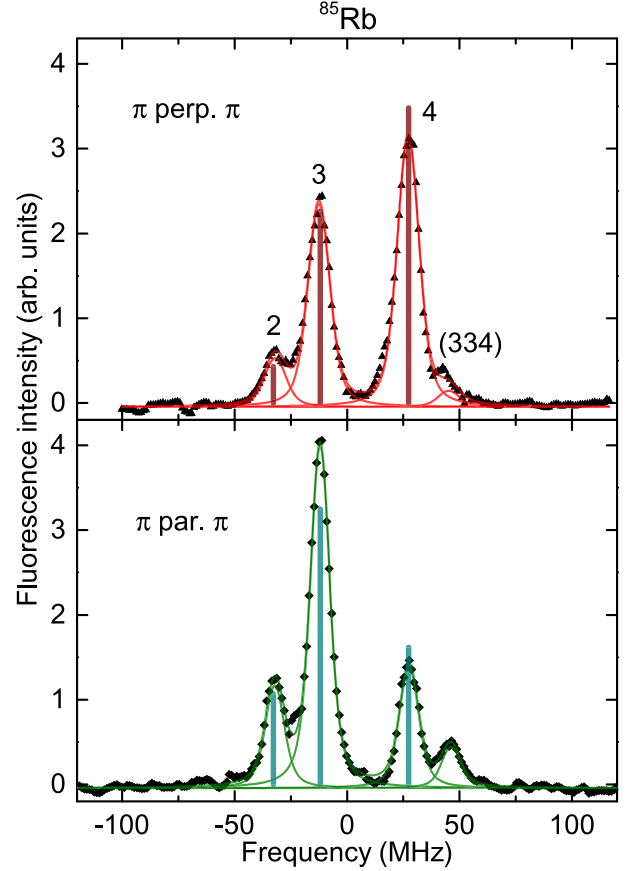


Figure 5. Fluorescence emission spectra of ^{85}Rb for linear polarization of both preparation and electric quadrupole excitation lasers. The numbers give the position of the three $6P_{3/2}F_3$ hyperfine fluorescence lines. The vertical bars give the position and calculated relative intensity of each hyperfine fluorescence line. The parenthesis indicates the position of the $3 \rightarrow 3 \rightarrow 4$ velocity selected line which is not included in the calculation.

expressed in terms of the degree of polarization

$$p_{911} = \frac{|\vec{E}_a|^2 - |\vec{E}_b|^2}{|\vec{E}_a|^2 + |\vec{E}_b|^2}. \quad (11)$$

In the second polarization configuration a circularly polarized preparation beam and a linearly polarized quadrupole beam are used. The model predicts that in this case there should be no effect in the relative line intensity if the linear polarization direction of the 911 nm laser is rotated. A quick test of this prediction was made, and no angular dependence on θ was found in the circular-linear case.

4. Results and discussion

4.1. Linear-linear polarization

Figure 5 shows typical spectra for ^{85}Rb obtained with linearly polarized lasers when the electric fields are parallel (bottom) and perpendicular (top). Each of these two spectra isolate the corresponding contribution of P_{\parallel} and P_{\perp} in

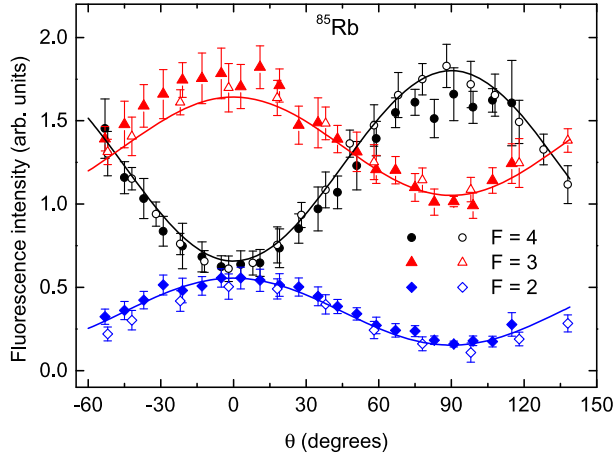


Figure 6. Dependence of the ^{85}Rb fluorescence intensity on the relative direction of the linear polarization of the electric quadrupole laser with respect to the linear polarization of the preparation laser. The continuous lines give the calculated angular distributions, corrected for the degree of polarization of the 911 light. For the meaning of the symbols, the normalization procedure and the inclusion of the partial polarization effect see the text.

equation (6). These spectra independently probe the $\Delta M = \pm 1$ and $\Delta M = \pm 2$ electric quadrupole selection rules. The calculated hyperfine intensities are also indicated by vertical bars in this figure. In these spectra a constant background was subtracted from the experimental data. The calculated values include the effect of a partially polarized 911 nm beam, equation (10). Both spectra show the three hyperfine components $F_3 = 2, 3$ and 4 , and a weaker peak that results from the velocity selected $F_1 = 3 \rightarrow F_2 = 3 \rightarrow F_3 = 4$ excitation sequence [9]. This is the only velocity selective excitation with a significant electric quadrupole transition probability and it was not included in the calculation. The results of Voigt profiles to each line, all with the same widths (11.5 MHz FWHM) are also indicated. The two extreme cases of the linear-linear configurations display rather different relative hyperfine intensities, all in good agreement with the model. For parallel polarizations the maximum occurs for $F_3 = 3$, with almost equal contributions from the $F_3 = 2$ and $F_3 = 4$ lines. In the case of perpendicular polarizations the maximum corresponds to $F_3 = 4$, with a very small contribution from $F_3 = 2$.

The angular distribution of the decay fluorescence was measured for each $6P_{3/2}$ hyperfine line. The results are shown in figure 6. The solid symbols give the intensities obtained from averages over several full spectra recorded at each value of θ . The open symbols are the result of quick scans of separate hyperfine lines. The two measurement methods agree with each other within the experimental error, that is given by statistical fluctuations only. The continuous lines are the result of the calculation. They include the effect of a partially polarized quadrupole beam. To compare experiment and theory in a single plot, a constant background and an overall normalization factor are needed. The degree of polarization of the 911 nm was used as a third parameter in the fit. These three parameters were optimized, in a least squares sense, simultaneously for the three hyperfine peaks. The theoretical

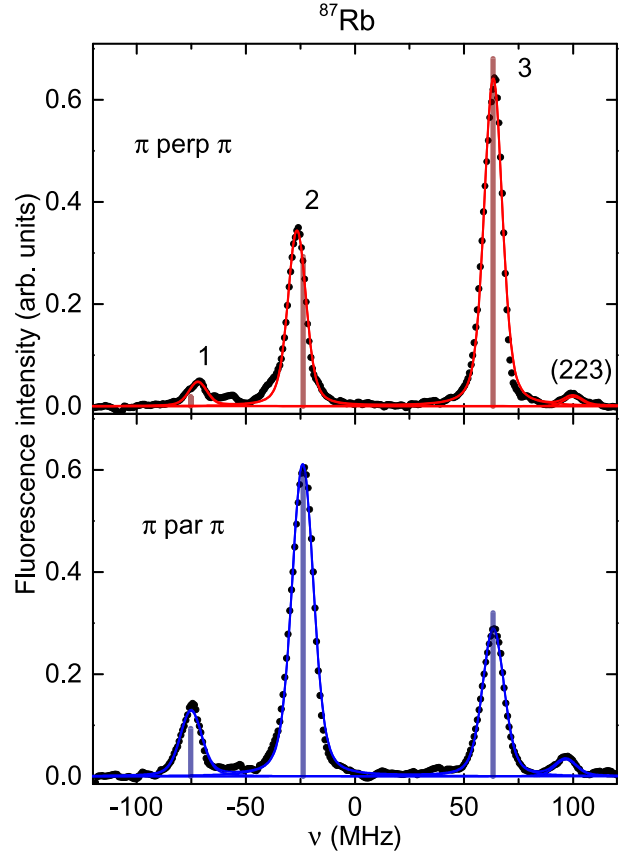


Figure 7. Fluorescence emission spectra of ^{87}Rb for linear polarization of both preparation and electric quadrupole excitation lasers. The numbers give the position of the three $6p_{3/2}F_3$ hyperfine fluorescence lines. The vertical bars give the position and calculated relative intensity of each hyperfine fluorescence line. The parenthesis indicates the position of the $2 \rightarrow 2 \rightarrow 3$ velocity selected line which is not included in the calculation.

curves in figure 6 were obtained for a polarization $p_{911} = 0.78$, which is within the measured value of $0.86(7)$. The fitted constant background was consistent with the one obtained for each individual spectrum. There is very good agreement between experiment and theory. The cosine squared angular distribution is confirmed for all three lines. The $F = 4$ hyperfine line has a minimum at $\theta = 0^\circ$ and a maximum at 90° . The opposite behavior is found for the $F = 3$ and $F = 2$ hyperfine lines. Also, the largest changes occur for $F = 4$. The $F = 2$ lines is always below the other two lines, but at 0° its intensity is close to that of the $F = 4$ line.

For ^{87}Rb a comparison between parallel and perpendicular spectra, and also between experiment and theory, is presented in figure 7. These spectra are similar to the ones found for ^{85}Rb (figure 5). For this isotope we did not perform a full angular distribution measurement, but the agreement between experiment and theory for the parallel and perpendicular cases, and the results for ^{85}Rb , give us confidence in the validity of the three step model.

Table 1. Relative intensities of hyperfine lines.

^{87}Rb	Parallel			Perpendicular		
	1	2	3	1	2	3
F_3						
Calculated ($p_{911} = 1.0$)	0.14	0.61	0.25	0.01	0.26	0.72
Calculated ($p_{911} = 0.78$)	0.13	0.59	0.28	0.03	0.30	0.67
Experiment	0.13(2)	0.59(8)	0.28(4)	0.045(6)	0.32(4)	0.63(5)
^{85}Rb	Parallel			Perpendicular		
	2	3	4	2	3	4
F_3						
Calculated ($p_{911} = 1.0$)	0.22	0.60	0.18	0.03	0.34	0.63
Calculated ($p_{911} = 0.78$)	0.18	0.55	0.27	0.07	0.37	0.56
Experiment	0.20(2)	0.57(4)	0.23(3)	0.07(1)	0.36(2)	0.57(4)

A comparison between experiment and theory for the relative intensity of the hyperfine fluorescence lines is also made in table 1, where we present numerical results normalized so that the sum of the three intensities is equal to one. The first line for each isotope gives the theoretical values obtained for a polarization $p_{911} = 1$, while the second line gives values corrected for a polarization $p_{911} = 0.78$. The main effect of a partially polarized electric quadrupole beam is to reduce the contrast between the different fluorescence lines. The experimental numbers are the result of the average over the recorded spectra. Once again, there is very good agreement between and experiment.

The confidence on the model is used to infer the relative population for each of the magnetic sublevels in the upper states $6p_{3/2}F_3$. This population is calculated using the excitation terms in equation (1), with the sum performed over the M_2 quantum numbers. Figure 8 shows the calculated populations for each of the magnetic sublevels of the $F_3 = 2, 3$ and 4 hyperfine states of ^{85}Rb . They correspond to the linear-linear excitation configuration. The parallel configuration is contrasted with perpendicular configuration for each F_3 state. For parallel configuration, in which the $\Delta M = \pm 1$ selection rule the $F_3 = 3$ state has the greatest population. For perpendicular configuration the selection rule is $\Delta M = \pm 2$ and now the $F_3 = 4$ state has the greatest population. All the F_3 states show distributions that are symmetrical with respect to $M_3 = 0$, something characteristic of aligned states. However, only for the $F_3 = 2$ state the $M_3 = 0$ has the largest population. For $F_3 = 3$. The maxima are at $M_3 = \pm 1$ and for $F = 4$ they are at $M_3 = \pm 2$. This is definitely a population distribution characteristic of an electric quadrupole transition. These population distributions reflect the interplay between the $5P_{3/2}F = 4$ population distributions produced by the preparation laser shown in figure 3 and the geometric matrix elements of the electric quadrupole transition, which are determined by the electric quadrupole selection rules.

4.2. Circular-linear polarization

The relative intensities of the $6p_{3/2}F_3$ hyperfine fluorescence lines are also different for the configuration in which the 780 nm preparation laser is circularly polarized and the

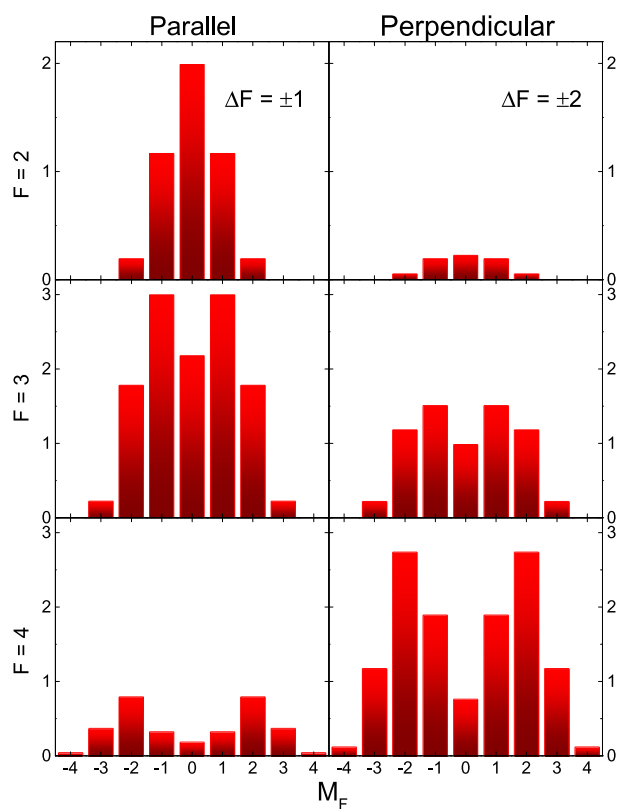


Figure 8. Relative population in $6P_{3/2}$ states for ^{85}Rb hyperfine states for the linear-linear polarization configuration. The left column shows the populations for parallel polarizations (here the selection rule $\Delta M = \pm 1$ applies). The right column gives the populations for perpendicular polarizations, when the $\Delta M = \pm 2$ selection rule applies. Note the differences in the ordinate scales.

911 nm electric quadrupole beam is linearly polarized. In this case the differences occur because of the different populations of the M_2 magnetic sublevels of the $5P_{3/2}$ intermediate state. Circularly polarized light produces a strongly oriented atomic state, with most of the population in either $M_2 = +F_2$ state for right circularly polarized light, and $M_2 = -F_2$ for left circularly polarized beam. As shown in figure 3(d). Figure 9 shows typical spectra for each isotope along with the calculated

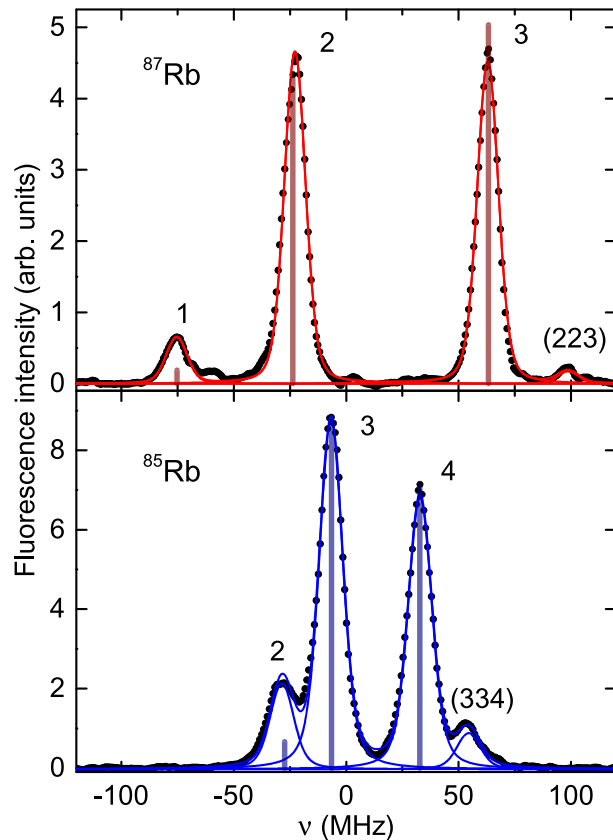


Figure 9. Fluorescence emission spectra for the circularly polarized preparation laser and a linearly polarized electric quadrupole excitation laser. The vertical bars give the position and calculated relative intensity of each hyperfine fluorescence line. The parenthesis indicates the position of the $F \rightarrow F \rightarrow F + 1$ velocity selected line which is not included in the calculation.

intensities. In this case one does not expect any effect because of the polarization of the quadrupole beam, therefore no corrections were included in the calculation. There is, again, very good agreement between experiment and theory. For both isotopes the two strongest peaks have comparable intensities. For ^{85}Rb both theory and experiment agree on the $F = 3$ peak being larger compared to $F = 4$. However, theory underestimates the intensity of the $F = 2$ peak. For ^{87}Rb the experimental spectra give the same intensities for both $F = 2$ and $F = 3$. The calculation gives $F = 3$ a slightly larger contribution. As for the other isotope, the model underestimates the intensity of the $F = 1$ peak. Both spectra show the presence of the $F \rightarrow F \rightarrow F + 1$ velocity selected peak.

5. Conclusions

We presented theoretical and experimental results showing that light polarization plays a major role in the Doppler-free study of the $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ electric quadrupole transition. Our three step model is crucial to interpret the experimental results. It shows that the magnetic state populations of the

intermediate state $5P_{3/2}F_2M_2$ are controlled by the polarization of the preparation laser. Linear polarization produces an aligned state with maximum population for $M_2 = 0$. Circularly polarized light produces an oriented state with almost all the population in the stretched state $M_2 = F_2$. In the second step the use of linear polarization for the electric quadrupole laser transfers the orientation/alignment of the $5P_{3/2}$ state into the $6P_{3/2}$ hyperfine states. The signature of the orientation/alignment is found in the relative line intensities of the decay fluorescence line of each of the hyperfine $6p_{3/2}$ states. For the linear-linear polarization configuration, the experimental data confirm a cosine squared dependence of the hyperfine line intensities as a function of the angle θ between the polarization directions. The calculation accurately reproduces the behavior of the angular distribution curves. Particularly interesting results occur for the extreme cases $\theta = 0^\circ$ and $\theta = 90^\circ$ because in the first case the electric quadrupole selection rules $\Delta M_F = \pm 1$ is the only one that applies, and when the polarizations are perpendicular, in the second case, the selection rule is $\Delta M_F = \pm 2$. This is not achieved with an electric dipole transition. Hence, the choice of light polarization in an electric quadrupole transition allows independent control of the $\Delta M = \pm 1$ or ± 2 transitions. Thus polarization control of electric quadrupole transitions can potentially become a very useful tool in the manipulation of quantum states of atoms. Even though the results presented here apply to thermal rubidium atoms, both experimental and theoretical methods can be applied to other alkali atoms [9, 21]. Combining state of the art diode lasers with sub-megahertz emission widths [22, 23] and the three-step model one should be able to interpret forbidden spectra for potassium, which has 4p and 5p hyperfine structure with separations comparable to the natural width.

Acknowledgments

We thank J Rangel for his help in the construction of the diode laser. This work was supported by DGAPA-UNAM, México, under projects PAPIIT Nos. IN116309, IN110812, and IA101012, by CONACyT, México, under Basic Research project No. 44986 and National Laboratory project LN260704.

References

- [1] Demtröder W 2015 *Laser Spectroscopy Vol 2: Experimental Techniques* 5th edn (Berlin: Springer)
- [2] Pinard M, Aminoff C G and Laloë F 1979 *Phys. Rev. A* **19** 2366
- [3] Moon H S and Noh H-R 2011 *Phys. Rev. A* **84** 033821
- [4] Li Y, Cai D, Ma R, Wang D, Gao J and Zhang J 2012 *Appl. Phys. B* **109** 189
- [5] Noh H-R and Moon H S 2012 *Phys. Rev. A* **85** 033817
- [6] Kale Y B, Tiwari V B, Singh S, Mishra S R and Rawat H S 2014 *J. Opt. Soc. Am. B* **31** 2531
- [7] Cha E H, Jeong T and Noh H-R 2014 *Opt. Commun.* **326** 175

- [8] Flores-Mijangos J, Ramírez-Martínez F, Colín-Rodríguez R, Hernández-Hernández A and Jiménez-Mier J 2014 *Phys. Rev. A* **89** 042502
- [9] Ponciano-Ojeda F, Hernández-Gómez S, López-Hernández O, Mojica-Casique C, Colín-Rodríguez R, Ramírez-Martínez F, Flores-Mijangos J, Sahagún D, Jáuregui R and Jiménez-Mier J 2015 *Phys. Rev. A* **92** 042511
- [10] Chan E A, Aljunid S A, Zheludev N I, Wilkowski D and Ducloy M 2016 *Opt. Lett.* **41** 2005
- [11] Mironova P V, Ovsianikov V D and Tchernouskine V V 2005 *Laser Phys.* **15** 492
- [12] Mironova P V, Ovsianikov V D and Tchernouskine V V 2005 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **38** 2467
- [13] Baumgartner S, Lauber S J and Bayram S B 2012 *Phys. Rev. A* **86** 062503
- [14] Bayram S B, Arndt P, Popov O I, Güney C, Boyle W P, Havey M D and McFarland J 2014 *Phys. Rev. A* **90** 062510
- [15] Blum K 2012 *Density Matrix Theory and Applications* 3rd edn (Berlin: Springer)
- [16] Harris M L, Adams C S, Cornish S L, McLeod I C, Tarleton E and Hughes I G 2006 *Phys. Rev. A* **73** 062509
- [17] Pearman C P, Adams C S, Cox S G, Griffin P F, Smith D A and Hughes I G 2002 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. B* **35** 5141
- [18] Carr C, Adams C S and Weatherill K J 2012 *Opt. Lett.* **37** 118
- [19] Arimondo E, Inguscio M and Violino P 1977 *Rev. Mod. Phys.* **49** 31
- [20] Metcalf H J and van der Straten P 1999 *Laser Cooling and Trapping* (Berlin: Springer)
- [21] Bhattacharya M, Haimberger C and Bigelow N P 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 213004
- [22] Saliba S D and Scholten R E 2009 *Appl. Opt.* **48** 6961
- [23] Thompson D J and Scholten R E 2012 *Rev. Sci. Instrum.* **83** 023107

Apéndice B

Diagrama de bloque para secuencia de captura de datos usando LabVIEW

En este apéndice se presentan las secuencias utilizadas para la captura de datos en el proceso experimental. Se utilizó el software comercial LabVIEW de National Instruments para generar dichas secuencias y realizar la adquisición de datos mediante un módulo DAQ NI-USB-6363. Como parte de las secuencias se utilizó una fuente programable Agilent E3643A conectada mediante GPIB a la computadora para generar las rampas de voltaje aplicadas al elemento piezoeléctrico de los láseres.

Se muestra una imagen del panel frontal del programa en el cual el usuario puede definir los parámetros de las secuencias de adquisición de datos. En la esquina superior izquierda se encuentran los distintos valores usados para determinar la rampa de voltaje producida: el voltaje inicial (V_{init}), el voltaje final (V_{max}) y el paso de voltaje (γ). También se pueden controlar el número de muestras que el programa toma por cada valor de voltaje. En el centro del panel se pueden definir tanto el directorio para guardar como la información complementaria (a los espectros obtenidos) sobre la toma de datos. Para guardar esta los espectros y esta información se activa el botón etiquetado *guardar*.

Los archivos se guardan de manera predeterminada con un nombre $P_{xxxx_yyyymmdd_hhmmss}.txt$, donde $xxxx$ es el número en serie de el espectro, $yyyymmdd$ es la fecha en el formato “año, mes, día” y $hhmmss$ es la estampa de tiempo del espectro. La información complementaria se almacena en un archivo de valores separados por coma llamado *Param.csv*. Junto con estos archivos también se guarda una gráfica del espectro, con el mismo nombre base que el archivo de texto correspondiente, en formato PostScript encapsulado.

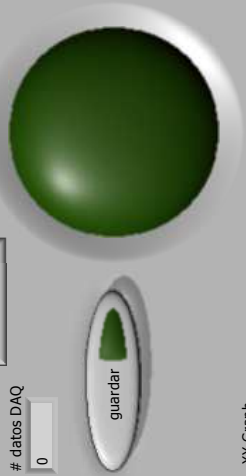
Nombre de archivo

number of samples milliseconds to wait Y

Vinit Vmax OFF SET tiempo x dato tiempo de barrido

Numeric Stop Offset corridas Corrida

datos DAQ



Corriente 911 Sensibilidad Voltaje PMT Pol. 780

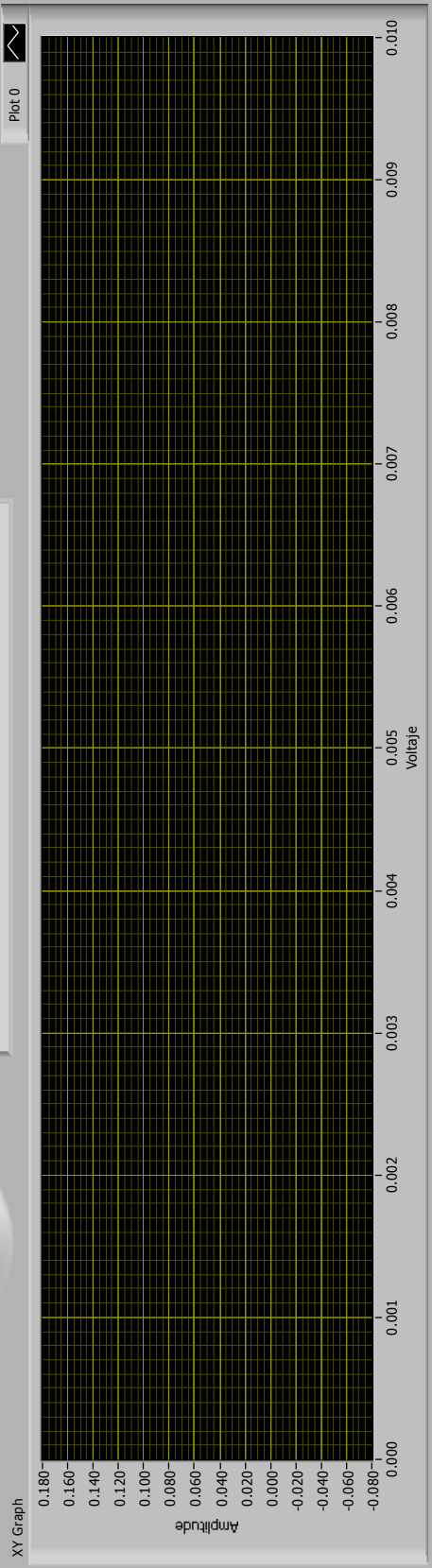
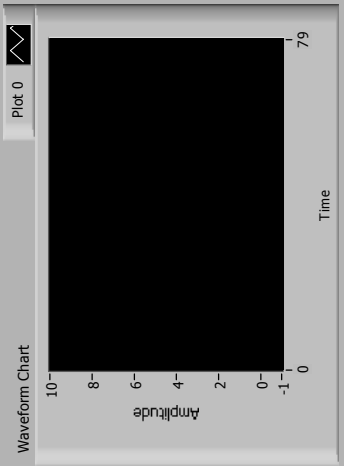
Pot. SX-I Cte. de tiempo Ganancia (10^n) Pol. 911

Isótopo Frec. Chopper Tiempo sub. filtro Theta L/

Temp. 911 Fase Pot. 911 (trans) Pot. 911 (refl)

Path

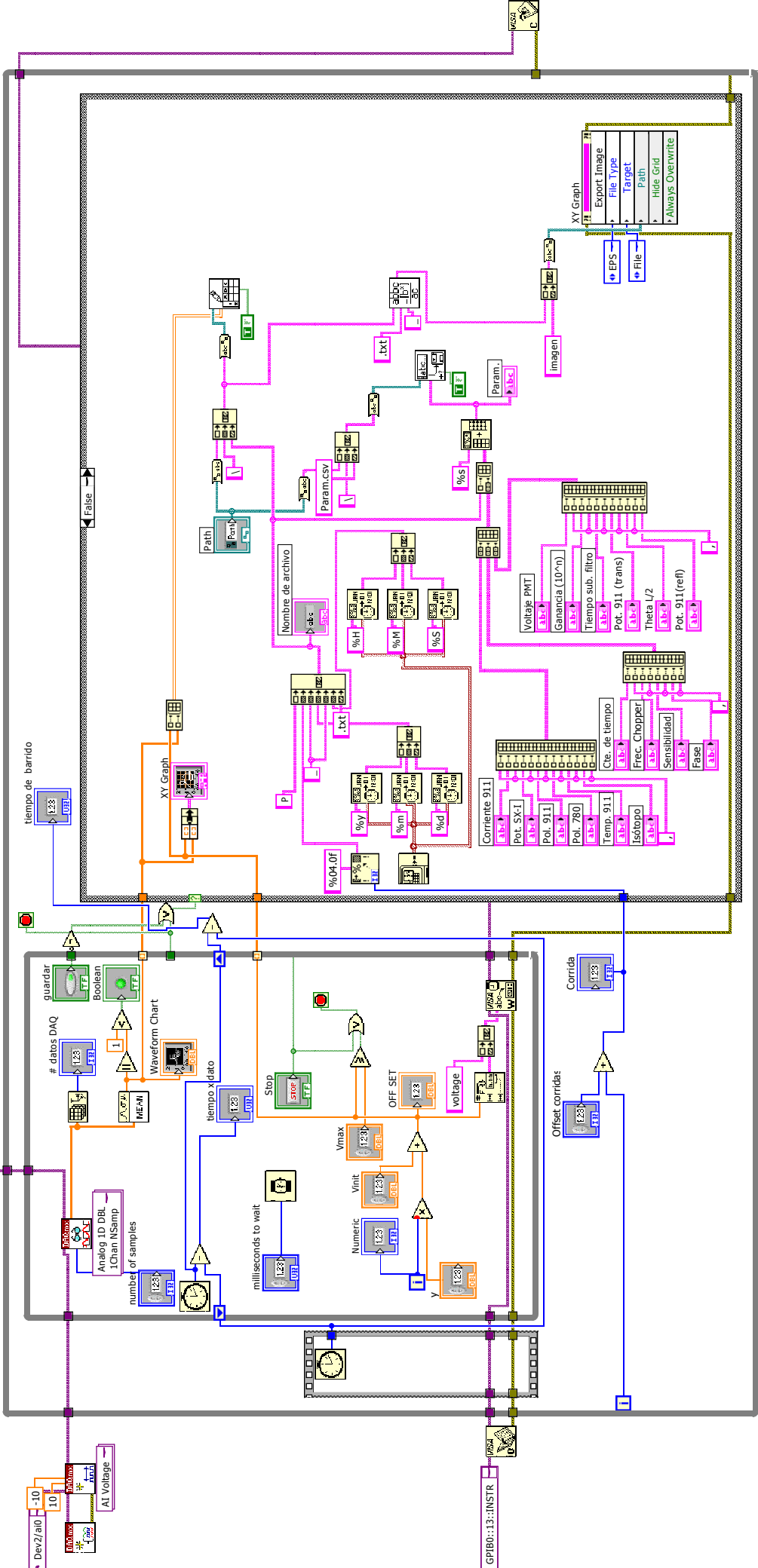
Param.



Cursors:

X	Y
21.975	4.907





Bibliografía

- [1] A. M. Akulshin, R. J. McLean, A. I. Sidorov, and P. Hannaford. Coherent and collimated blue light generated by four-wave mixing in Rb vapour. *Opt. Exp.*, 17(25):22861–22870, 2009.
- [2] A. M. Akulshin, A. A. Orel, and R. J. McLean. Collimated blue light enhancement in velocity-selective pumped Rb vapour. *J. Phys. B*, 45:015401, 2011.
- [3] E. Arimondo, M. Inguscio, and P. Violino. Experimental determinations of the hyperfine structure in the alkali atoms. *Rev. Mod. Phys.*, 49(1):31–75, January 1977.
- [4] A. S. Arnold, J. S. Wilson, and M. G. Boshier. A simple extended-cavity diode laser. *Rev. Sci. Instrum.*, 69(3):1236–1239, 1998.
- [5] M. Auzinsh, D. Budker, and S. Rochester. *Optically Polarized Atoms: Understanding Light-Atom Interactions*. Oxford University Press, 2010.
- [6] Z. W. Barber, C. W. Hoyt, C. W. Oates, L. Hollberg, A. V. Taichenachev, and V. I. Yudin. Direct excitation of the forbidden clock transition in neutral ^{174}Yb atoms confined to an optical lattice. *Phys. Rev. Lett.*, 96:083002, 2006.
- [7] M. Bhattacharya, C. Haimberger, and N. P. Bigelow. Forbidden transitions in a magneto-optical trap. *Phys. Rev. Lett.*, 91(21):213004, 2003.
- [8] E. Biémont and C. J. Zeippen. Probabilities for Forbidden Transitions in Atoms and Ions: 1989-1995. A Commented Bibliography. *Phys. Scr.*, T65:192–197, 1996.
- [9] M.-A. Bouchiat and C. Bouchiat. Parity violation in atoms. *Rep. Prog. Phys.*, 60(11):1351–1396, 1997.
- [10] M. Carrillo Fuentes. Diseño de un sistema de obtención de imágenes por absorción en átomos fríos de rubidio. Tesis de licenciatura, Facultad de Ciencias, Universidad Autónoma del Estado de México, 2011.
- [11] E. H. Cha, T. Jeong, and H.-R. Noh. Two-color polarization spectroscopy in v-type configuration in rubidium. *Opt. Commun.*, 326:175–179, sep 2014.
- [12] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg. *Atom-Photon Interactions: Basic Processes and Applications*. John Wiley & Sons, 1998.

-
- [13] R. Colín-Rodríguez, J. Flores-Mijangos, S. Hernández-Gómez, R. Jáuregui, O. López-Hernández, C. Mojica-Casique, F. Ponciano-Ojeda, F. Ramírez-Martínez, D. Sahagún, K. Volke-Sepúlveda, and J. Jiménez-Mier. Polarization effects in the interaction between multi-level atoms and two optical fields. *Physica Scripta*, 90(6):068017, 2015.
- [14] J. Dalibard and C. Cohen-Tannoudji. Dressed-atom approach to atomic motion in laser light: the dipole force revisited. *J. Opt. Soc. Am. B.*, 2(11):1707–1720, 1985.
- [15] W. Demtröder. *Laser Spectroscopy Vol. 2. Experimental Techniques*. Springer-Verlag, 5th. edition, 2015.
- [16] A. R. Edmonds. *Angular Momentum in Quantum Mechanics*. Princeton Landmarks in Mathematics and Physics. Princeton University Press, 4th edition, 1996.
- [17] D. Feiertag and G. zu Putlitz. Hyperfine Structure, g_J Factors and Lifetimes of Excited $^2P_{1/2}$ States of Rb. *Z. Physik*, 261:1–12, 1973.
- [18] M. L. Harris, C. S. Adams, S. L. Cornish, I. C. McLeod, E. Tarleton, and I. G. Hughes. Polarization spectroscopy in rubidium and cesium. *Phys. Rev. A*, 73(6):062509, 2006.
- [19] C. J. Hawthorn, K. P. Weber, and R. E. Scholten. Littrow configuration tunable external cavity diode laser with fixed direction output beam. *Rev. Sci. Instrum.*, 72(12):4477, 2001.
- [20] S. Hernández Gómez. Análisis experimental de una transición cuadrupolar eléctrica en átomos a temperatura ambiente usando un haz con estructura espacial. Tesis de maestría, Posgrado en Ciencias Físicas, UNAM, 2017.
- [21] A. Hernández-Hernández, E. Méndez-Martínez, A. Reyes-Reyes, J. Flores-Mijangos, J. Jiménez-Mier, M. López, and E. de Carlos. Polarized velocity selective spectroscopy of atomic rubidium using counterpropagating beams. *Opt. Commun.*, 282(5):887–891, March 2009.
- [22] I. V. Hertel and C. P. Schulz. *Atoms, Molecules and Optical Physics 2: Molecules and Photons - Spectroscopy and Collisions*, volume 2 of *Graduate Texts in Physics*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1 edition, 2015.
- [23] J. D. Jackson. *Classical Electrodynamics*. John Wiley & Sons, 3rd. edition, 1999.
- [24] R. Jáuregui. Control of atomic transition rates via laser-light shaping. *Phys. Rev. A*, 91:043842, 2015.
- [25] M. B. Kienlen, N. T. Holte, H. A. Dassonville, A. M. C. Dawes, K. D. Iversen, R. M. McLaughlin, and S. K. Mayer. Collimated blue light generation in rubidium vapor. *Am. J. Phys.*, 81(6):442, 2013.
- [26] A. Kramida, Yu. Ralchenko, J. Reader, and NIST ASD Team. NIST Atomic Spectra Database (ver. 5.3). [Online]. Available <https://www.nist.gov/pml/atomic-spectra-database>, 2016.
- [27] O. López-Hernández. Espectroscopia de la transición $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 5D_{3/2}$ por decaimiento del estado $6P$ en Rb atómico. Tesis de licenciatura, Facultad de Ciencias, UNAM, 2015.

- [28] O. López-Hernández, S. Hernández-Gómez, F. S. Ponciano-Ojeda, C. Mojica-Casique, R. Colín-Rodríguez, J. Flores-Mijangos, D. Sahagún, F. Ramírez-Martínez, and J. Jiménez-Mier. A laser spectroscopy system with combined absorption, polarization rotation and fluorescence detection to study two photon transitions in atomic rubidium. *Journal of Applied Research and Technology*, 13(6):543–550, 2015.
- [29] J. H. Marquardt, H. G. Robinson, and L. Hollberg. Line shapes of cascade two-photon transitions in a cesium magneto-optic trap. *J. Opt. Soc. Am. B.*, 13(7):1384–1393, 1996.
- [30] A. Messiah. *Quantum Mechanics*. Dover Publications, 1999.
- [31] H. J. Metcalf and P. van der Straten. *Laser Cooling and Trapping*. Springer, 1999.
- [32] M. Mitsunaga, T. Mukai, K. Watanabe, and T. Mukai. Dressed-atom spectroscopy of cold Cs atoms. *J. Opt. Soc. Am. B.*, 13(12):2696–2700, 1996.
- [33] C. A. Mojica Casique. *Espectroscopia libre de Doppler en el sistema en escalera $5S \rightarrow 5P \rightarrow 6P$ en rubidio atómico: efectos de la polarización de la luz en la transición cuadrupolar eléctrica $5P_{3/2} \rightarrow 6P_{3/2}$* . Tesis de doctorado, Posgrado en Ciencias Físicas, UNAM, 2016.
- [34] H. S. Moon, W. K. Lee, L. Lee, and J. B. Kim. Double resonance optical pumping spectrum and its application for frequency stabilization of a laser diode. *Appl. Phys. Lett.*, 85(18):3965, 2004.
- [35] C. P. Pearman, C. S. Adams, S. G. Cox, P. F. Griffin, D. A. Smith, and I. G. Hughes. Polarization spectroscopy of a closed atomic transition: applications to laser frequency locking. *J. Phys. B*, 35(24):5141–5151, 2002.
- [36] R. Pires, M. Ascoli, E. E. Eyler, P. L. Gould, and A. Derevianko. Upper limit on the magnetic dipole contribution to the $5p$ - $8p$ transition in Rb by use of ultracold atom spectroscopy. *Phys. Rev. A*, 80(6):062502, 2009.
- [37] F. S. Ponciano Ojeda. *Espectroscopia de la transición cuadrupolar eléctrica $5p_{3/2} \rightarrow 6p_{3/2}$ en el átomo de rubidio*. Tesis de licenciatura, Facultad de Ciencias, UNAM, 2014.
- [38] A. Reyes Reyes. *Espectroscopia de polarización en vapor de rubidio utilizando un diodo láser con cavidad extendida*. Tesis de licenciatura, Facultad de Ciencias, UNAM, 2008.
- [39] M. E. Rose. *Elementary Theory of Angular Momentum*. Dover Publications, Dover edition, 1995.
- [40] J. E. Sansonetti. Wavelengths, Transition Probabilities and Energy Levels for the Spectra of Rubidium (Rb I through Rb XXXVII). *J. Phys. Chem. Ref. Data*, 35(1):301–421, February 2006.
- [41] J. R. Santillan Díaz. *Caracterización de la trampa magneto-óptica del Instituto de Ciencias Nucleares de la UNAM*. Tesis de maestría, Posgrado en Ciencias Físicas, UNAM, 2014.
- [42] M. O. Scully and M. S. Zubairy. *Quantum Optics*. Cambridge University Press, 2001.
- [43] I. Sobelman. *Atomic spectra and radiative transitions*. Springer Series on Atoms and Plasmas. Springer-Verlag, 2nd edition, 1992.
- [44] D. A. Steck. Rubidium 85 D Line Data. Available online at <http://steck.us/alkalidata>, 2013.

-
- [45] D. A. Steck. Rubidium 87 D Line Data. Available online at <http://steck.us/alkalidata>, 2013.
- [46] A. V. Taichenachev, V. I. Yudin, C. W. Oates, C. W. Hoyt, Z. W. Barber, and L. Hollberg. Magnetic field-induced spectroscopy of forbidden optical transitions with application to lattice-based optical atomic clocks. *Phys. Rev. Lett.*, 96:083001, 2006.
- [47] D. Tong, S. M. Farooqi, E. G. M. van Kempen, Z. Pavlovic, J. Stanojevic, R. Côté, E. E. Eyler, and P. L. Gould. Observation of electric quadrupole transitions to Rydberg nd states of ultracold rubidium atoms. *Phys. Rev. A*, 79(5):052509, 2009.