



UNIVERSIDADE FEDERAL DE PERNAMBUCO
DEPARTAMENTO DE FÍSICA – CCEN
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA

TESE DE DOUTORADO

**MISTURA DE QUATRO ONDAS EM ÁTOMOS DE RUBÍDIO
ENVOLVENDO ESTADOS DE RYDBERG**

Natalia Rodrigues de Melo

Recife
2014



**UNIVERSIDADE FEDERAL DE PERNAMBUCO
DEPARTAMENTO DE FÍSICA – CCEN
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA**

TESE DE DOUTORADO

**MISTURA DE QUATRO ONDAS EM ÁTOMOS DE RUBÍDIO
ENVOLVENDO ESTADOS DE RYDBERG**

por

Natalia Rodrigues de Melo

Tese apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Física do Departamento de Física da Universidade Federal de Pernambuco como parte dos requisitos para obtenção do título de Doutor em Física.

Banca Examinadora:

Profa. Sandra Sampaio Vianna (Orientadora, DF-UFPE)
Prof. Anderson Stevens Leônidas Gomes (DF-UFPE)
Prof. Daniel Felinto Pires Barbosa (DF-UFPE)
Prof. Philippe Wilhelm Courteille (IFSC-USP)
Prof. Sebastião José Nascimento de Pádua (DF-UFMG)

Recife
2014

Catálogo na fonte
Bibliotecária Joana D'Arc L. Salvador, CRB 4-572

Melo, Natalia Rodrigues de.
Mistura de quatro ondas em átomos de rubídio
envolvendo estados de Rydberg / Natalia Rodrigues de
Melo. – Recife: O Autor, 2014.
110 f.: fig., tab.

Orientadora: Sandra Sampaio Vianna.
Tese (Doutorado) - Universidade Federal de
Pernambuco. CCEN. Física, 2014.
Inclui referências e apêndices.

1. Óptica não-linear. 2. Análise espectral.
I. Vianna, Sandra Sampaio (orientadora). II. Título.

535.2 (22. ed.) FQ 2014-40



Universidade Federal de Pernambuco
Departamento de Física – CCEN
Programa de Pós-Graduação em Física
Cidade Universitária - 50670-901 Recife PE Brasil
Fone (++ 55 81) 2126-7640/2126-8449
<http://www.ufpe.br/ppg fisica> e-mail: posgrad@df.ufpe.br

Parecer da Banca Examinadora de Defesa de Tese de Doutorado

Natalia Rodrigues de Melo

MISTURA DE QUATRO ONDAS EM ÁTOMOS DE RUBÍDIO ENVOLVENDO ESTADOS DE RYDBERG

A Banca Examinadora composta pelos Professores Sandra Sampaio Vianna (Presidente e Orientador), Anderson Stevens Leônidas Gomes, Daniel Felinto Pires Barbosa, todos do Departamento de Física da Universidade Federal de Pernambuco, Philippe Wilhelm Courteille, do Instituto de Física de São Carlos da Universidade de São Paulo e Sebastião José Nascimento de Pádua, do Departamento de Física da Universidade Federal de Minas Gerais, consideram a candidata:

☒ Aprovada

☐ Reprovada

☐ Em exigência

Secretaria do Programa de Pós-Graduação em Física do Departamento de Física do Centro de Ciências Exatas e da Natureza da Universidade Federal de Pernambuco, em vinte e quatro de julho de dois mil e catorze.

Profa. Sandra Sampaio Vianna
Presidente e Orientadora

Prof. Anderson Stevens Leônidas Gomes

Prof. Daniel Felinto Pires Barbosa

Prof. Philippe Wilhelm Courteille

Prof. Sebastião José Nascimento de Pádua

*Para paizinho.
(In memoriam)*

Agradecimentos

Agradeço aos meus pais, José e Ana, e aos meus irmãos, Rodolfo e Joana, cujo incentivo e compreensão foram essenciais para me fazer continuar.

Ao meu marido, Alison, que esteve comigo em todas as etapas, escutou todas as minhas lamúrias e ficou feliz comigo todas as vezes que um resultado dava certo, mesmo sem entender nada do que eu explicava. Obrigada por tudo.

Aos amigos que fiz em todos esses anos de departamento, alguns que ainda almoçam comigo e outros que nem vejo mais: Gilvânia, Priscila, André, Milrian, Kelly, Gemima, Rafael, Wellington, Marco Polo. Obrigada, por terem tornado tudo mais fácil. Em especial, agradeço a Fernando, que me ajudou diretamente na montagem da AMO e me contagiou com seu entusiasmo. Ao professor Daniel Felinto e à Jaqueline pela ajuda inicial com a AMO.

Agradeço a professora Sandra Vianna pela dedicação e apoio durante a realização deste trabalho. Ela é, sem dúvidas, a referência mais importante da minha formação acadêmica.

Agradeço também aos outros professores do departamento de física que tanto contribuíram para minha formação. Aos funcionários do DF, em especial Paula, Marcos, sem o qual nenhuma tese experimental seria concluída, Ademir, por me fazer rir todos os dias e Azriel que faz o melhor café do DF.

Por fim, ao CNPq e a FACEPE pelo apoio financeiro.

Resumo

Neste trabalho, aplicamos a técnica de mistura de quatro ondas para estudar a resposta não-linear de uma amostra constituída de átomos de Rb, em vapor, com excitações ressonantes por dois e três fótons. As ressonâncias por dois fótons envolvem estados altamente excitados, estados de Rydberg, que podem ser acessados seletivamente, possibilitando uma comparação direta da resposta devido aos diferentes estados nd e $(n+2)s$, com n variando entre 14 e 20. Neste sistema, investigamos as propriedades do sinal gerado coerentemente em função da intensidade dos feixes incidentes e da densidade atômica. Duas configurações foram estudadas: i) colinear, onde os feixes de excitação incidem na amostra em uma mesma direção, e ii) de feixes cruzados, onde introduzimos um ângulo de cruzamento, θ , entre os feixes incidentes. A variação da intensidade do sinal gerado com os números quânticos n e l permite uma clara distinção dos vários caminhos de excitação, incluindo as diferentes contribuições dos níveis de estrutura-fina dos estados $5p$ e $6p$. Na configuração colinear e em altas densidades atômicas dois efeitos são analisados: i) a supressão do sinal gerado na posição da ressonância de três fótons, devido a efeitos de interferência destrutiva entre os campos incidentes e os campos gerados na amostra; e ii) um alargamento no perfil das linhas espectrais correspondentes às ressonâncias de dois fótons, indicando uma contribuição de mecanismos de auto-alargamento. Na configuração de feixes cruzados, investigamos o efeito cooperativo de deslocamento em frequência relacionado à ressonância de três fótons, o qual apresenta uma dependência tanto com a densidade atômica como com a interação com o próprio campo gerado. Mostramos que esses resultados, incluindo os efeitos de deslocamento em frequência e de casamento de fase, podem ser bem descritos por um modelo teórico simples baseado nas equações de Maxwell-Bloch semiclassicas, com um tratamento perturbativo nos campos incidentes. Em particular, obtemos uma estimativa para a seção de choque de auto-alargamento associada às coerências induzidas por dois fótons, bem como, uma boa descrição da dependência com θ do deslocamento em frequência cooperativo. A etapa final deste trabalho envolve a montagem e caracterização de uma armadilha magneto-ótica de Rb, visando o estudo da interação entre estados excitados a partir da coerência induzida por processos não-lineares.

Palavras-chave: Espectroscopia. Óptica não-linear. Mistura de quatro ondas. Estados de Rydberg.

Abstract

In this work, we apply the technique of four-wave mixing to study the nonlinear response of a Rb vapor sample, with resonant excitations by two and three photons. The two-photon resonances involve highly excited states, Rydberg states, and can be selectively accessed, giving to us the possibility to compare the response due to different states nd and $(n+2)s$, with $n = 14 - 20$. We investigate the properties of the coherent generated signal as a function of the incident beam intensity and of the atomic density. Two configurations were investigated: i) collinear, where the excitation beam focus on the sample in the same direction, and ii) cross beams, where we introduce a crossing angle, θ , between the incident beams. The dependence of the generated signal magnitude with quantum numbers n and l allows a clear distinction of the various quantum pathways of excitation, including the different contributions of the fine-structure levels $5p$ and $6p$. In the collinear configuration and for high atomic densities two effects are analyzed: i) suppression of the signal generated at the three-photon resonance position due to the effects of destructive interference between the incident field and the field generated in the sample; ii) an broadening of the spectral lines profile corresponding to the two-photon resonance, indicating a contribution of self-broadening mechanisms. In the configuration of crossed beams, we investigated the cooperative effect of frequency shift, which shows dependence on the atomic density and on the interaction with the field generated. We show that these results, including the effects of frequency shift and phase matching, can be well described by a simple theoretical model based on the Maxwell-Bloch semiclassical equations, with a perturbative treatment in the incident fields. In particular, we obtain an estimative for the cross section of self-induced broadening associated with two-photon induced coherences, as well as a good description of the dependence with θ of the cooperative frequency shift. The final stage of this work involves building and characterization of a magneto-optical trap of Rb, for the study of the interaction between excited states, through induced coherence from nonlinear processes.

Keywords: Spectroscopy. Nonlinear optics. four-wave mixing. Rydberg states.

Lista de Figuras

2.1	Representação dos níveis do Rb	17
2.2	Espectro de excitação da MQO	21
2.3	Cálculo do Espectro de MQO, diferentes caminhos, $n = 16d$ e $18s$	26
2.4	Cálculo do Espectro de MQO, diferentes caminhos, $n = 15d$ e $17s$	26
3.1	Esquema experimental	37
3.2	Intensidade e calibração do corante	38
3.3	Níveis de energia do Rb no processo de MQO	39
3.4	Espectro de MQO para os estados $17d$ e $19s$	39
3.5	Espectro de excitação da MQO para os estados nd , $(n+2)s$, com $n = 14 - 20$	41
3.6	Espectro de excitação e ajuste gaussiano $17d$	42
3.7	Espectro de excitação e ajuste gaussiano $16d$ e subtração	43
3.8	Espectro de excitação e ajuste gaussiano $16d$	43
3.9	Intensidade da MQO em função de I_{IV} e $I_{corante}$	45
3.10	Intensidade da MQO em função de N	46
3.11	Espectro de excitação da MQO para diferentes N	46
3.12	Intensidade da MQO em função de N , frequência fixa.	47
3.13	Espectro de excitação do sinal gerado em: (a) MQO e (b) SH.	49
3.14	Espectro de excitação do SH com e sem IV	50
3.15	Representação da abertura angular	52
3.16	Espectro de excitação da MQO com feixes cruzados	52
3.17	Intensidade da MQO em função de N , $\theta = 78mrad$	53
3.18	$\Delta\omega_{shift}$ em função de N	54
3.19	Espectro de excitação da MQO para diferentes θ	54
3.20	Intensidade da MQO em função de θ .	55
3.21	$\Delta\omega_{shift}$ em função de θ	55
4.1	Comparação teoria e experimento da MQO	60
4.2	Comparação teoria e experimento da MQO $n = 14 - 20$	62
4.3	Energia de interação em função de distância interatômica	64
4.4	Comparação da assimetria da MQO e SH	65
4.5	espectro de excitação da MQO e do SH, assimetria.	66
4.6	Comparação teoria e experimento considerando $n = 16$	67
4.7	Comparação teoria e experimento considerando $n = 15 - 20$	68
4.8	Intensidade da MQO em função de N .	69
4.9	Razão de intensidade $\frac{I_{16d}}{I_{18s}}$ em função de N	70

LISTA DE FIGURAS

4.10	Espectro de excitação da MQO calculados para diferentes N	72
4.11	Intensidade da MQO em função de N , para dois valores de $\Delta\omega_{shift}$	73
4.12	Intensidade do sinal de MQO calculado para diferentes θ	74
4.13	Intensidade da MQO em função θ	75
4.14	Deslocamento experimental em função N	76
4.15	Deslocamento teórico em função de N	77
4.16	Espectro de excitação da MQO calculado para diferentes θ	78
4.17	Espectro da MQO calculado para $N = 1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-1}$ em função de θ	79
4.18	Deslocamento em função de θ para $N = 1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-1}$	80
4.19	Cálculo do deslocamento em função de θ para diferentes N	81
5.1	Esquema do processo de resfriamento na AMO	83
5.2	Representação gráfica da região de confinamento.	84
5.3	Fotografia mostrando a montagem experimental da AMO.	86
5.4	Esquema do laser de resfriamento	87
5.5	Espectro de Absorção saturada envolvendo as transições do ^{87}Rb e ^{85}Rb	88
5.6	Absorção saturada para ^{87}Rb , $F_g = 2$ e $F_g = 1$	88
5.7	Níveis atômicos do átomo de Rb	89
5.8	Fotografia mostrando a nuvem atômica.	90
5.9	Fluorescência da AMO.	91
5.10	Esquema experimental da MQO	92
5.11	Esquema temporal do ciclo de liga e desliga dos moduladores acusto-óticos.	93
5.12	Análise do tempo de sincronia	94
A.1	Diagrama das transições, 16d	107
A.2	Diagrama das transições, 18s	109

Sumário

1	Introdução	11
2	Mistura de quatro ondas em sistemas atômicos com quatro níveis	16
2.1	Formalismo da matriz densidade	16
2.1.1	Cálculo da intensidade do sinal gerado	16
2.1.2	Acoplamento spin-órbita	24
2.2	Considerando a propagação	25
2.2.1	Equações de Maxwell	27
2.2.2	Configuração colinear	30
2.2.3	Configuração de feixes cruzados	30
2.3	Correção de campo local	32
2.4	Geração de segundo harmônico	33
3	Resultados experimentais em vapor de Rb.	35
3.1	Sistema experimental	35
3.2	Resultados	38
3.2.1	Configuração colinear	38
3.2.2	Comparação com o segundo harmônico	48
3.2.3	Configuração de feixes cruzados	51
4	Análise e Discussão	57
4.1	Cálculo do espectro de excitação do sinal gerado	57
4.1.1	taxas de relaxação	57
4.1.2	Convolução do espectro com a forma de linha do laser	59
4.2	Interação entre átomos de Rydberg e formação de estados moleculares	63
4.3	Dependência linear do auto-alargamento	66
4.4	Análise da intensidade do sinal de MQO	70
4.4.1	Intensidade do sinal de MQO em função de N	70
4.4.2	Intensidade do sinal de MQO em função de θ	73
4.5	Deslocamento em frequência	75
4.5.1	Deslocamento em função da densidade atômica.	76
4.5.2	Deslocamento em função de θ .	78
5	Armadilha Magneto-Ótica	82
5.1	Princípios de funcionamento de uma AMO	82
5.2	Montagem da armadilha magneto-ótica	85

SUMÁRIO

5.3	Caracterização da armadilha magneto-ótica	89
5.4	Mistura de quatro ondas em átomos frios	91
6	Conclusões e perspectivas	95
	Referências	98
	Apêndices	106
A	Matriz de dipolo elétrico	106
B	Níveis de energia do átomo de Rb	111

Introdução

A área da ótica não-linear sofreu um grande avanço nas últimas décadas, desde o desenvolvimento do laser em 1960. O laser, como fonte de luz coerente, possibilitou estudos experimentais envolvendo a interação entre luz e matéria, contribuindo para a descoberta de novos efeitos não-lineares. Em 1961, Franken [1] observou uma conversão de luz visível em radiação ultravioleta a partir de um processo de geração de segundo harmônico. Após esse trabalho pioneiro, diferentes efeitos não-lineares foram observados, como a geração de soma e diferença de frequências e amplificação paramétrica. Esses efeitos resultaram em novas tecnologias como: limitadores óticos [2] e armazenamento de dados óticos de alta densidade [3]. Assim como promoveu o desenvolvimento na biologia e na medicina, com o surgimento da microscopia confocal [4] e das técnicas de diagnóstico e de imagens de sistemas biológicos [5].

A incidência de um campo eletromagnético em uma amostra, induz uma polarização macroscópica no meio que pode ser expandida em potências do campo incidente da forma:

$$\vec{P} = \epsilon_0 \left(\chi^{(1)} \vec{E} + \chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots \right),$$

onde $\chi^{(n)}$ representa a susceptibilidade de n-ésima ordem. Em meios centro-simétricos, essa polarização deve ser invariante por inversão espacial, $\vec{P}(\vec{r}) = -\vec{P}(-\vec{r})$, o que resulta no cancelamento de todas as susceptibilidades de ordem par [6].

Em nosso trabalho, aplicamos a técnica de MQO, processo não-linear de terceira ordem, para estudar a resposta não linear de uma amostra de vapor atômico com átomos de Rb, com excitações ressonantes por dois e três fótons. As ressonâncias por dois fótons envolvem estados altamente excitados, estados de Rydberg, que podem ser acessados seletivamente, possibilitando uma comparação direta da resposta devido aos diferentes estados nd e $(n+2)s$, com n variando entre 14 e 20. Sistemas que apresentam ressonâncias por dois fótons são amostras eficientes para gerar novas frequências com possíveis aplicações em comunicação quântica [7, 8, 9], e com possibilidade de gerar campos com comprimento de onda para as telecomunicações [10].

Dois aspectos importantes serão explorados, a presença dos estados de Rydberg e a técnica de mistura de quatro ondas em si, analisando o comportamento do sinal gerado nas diferentes ressonâncias. Os estados de Rydberg, estados altamente excitados, têm atraído grande interesse, em especial devido às suas propriedades exageradas que escalam com o número quântico efetivo, $n^* = n - \delta$, onde δ é o defeito quântico do estado. Os átomos de Rydberg são muito grandes (n^{*2}), com alta sensibilidade a campos elétricos e magnéticos (n^{*7}) e também são fracamente ligados (n^{*-2}) [11]. Já foram feitas observações desses átomos com diâmetros da ordem de centésimos de milímetros, correspondendo a 100 mil vezes o diâmetro do mesmo átomo

no estado fundamental [12] e tempos de vida da ordem de 1 milésimo de segundo. Devido a essas propriedades esses átomos são considerados um sistema ideal para o estudo de interações atômicas, em particular, as interações de longo alcance [13, 14, 15]. Esses átomos muito excitados, têm recebido considerável atenção no contexto de informação quântica, fundamentada na interação de longo alcance [16, 17], com particular interesse no efeito de bloqueio quântico (*blockade effect*) [18, 19] e também no contexto de forte interação entre átomos [20, 21]. Singer e colaboradores [22] observaram a interação de longo alcance em um gás de átomos de Rydberg frios de rubídio. Nesse caso, a interação de van der Waals entre pares de átomos de Rydberg, separados de aproximadamente 100 mil vezes o raio de Bohr, é caracterizada por um alargamento espectral assimétrico da ordem da separação entre níveis adjacentes.

Em geral, efeitos semelhantes ao que estamos tratando são investigados monitorando átomos preparados em um determinado estado de Rydberg via íons ou elétrons gerados por pulsos de ionização [11]. Nesse caso, o sinal é proporcional à densidade atômica (N) e, apesar destas técnicas apresentarem alta eficiência, são destrutivas, isto é, os átomos não podem ser reutilizados. No nosso caso, a emissão do sinal de mistura de quatro ondas é resultado da resposta coerente de um ensemble de átomos devido à excitação ressonante por dois fótons, onde $I_{MQO} \propto |P|^2 \propto |\rho_{ba}|^2$. Assim, como uma radiação coerente, o sinal é proporcional a N^2 e ao emitirem, os átomos retornam ao estado fundamental. Eden e colaboradores [23] estudaram este tipo de coerência por dois fótons envolvendo estados altamente excitados em um esquema similar, usando lasers de femtosegundos. Porém, nesse caso, as frequências de batimento detectadas no sinal de mistura de quatro ondas são associadas com a excitação simultânea de mais de um estado nl . Em nossos resultados, a excitação da coerência é seletiva, de forma que sondamos cada estado de Rydberg separadamente, e verificamos que diferentes caminhos quânticos contribuem para o sinal gerado e podem ser identificados quando comparamos a resposta não-linear devido a um conjunto de níveis de Rydberg consecutivos.

Melo e Vianna [24], em 2008, estudaram a interação entre átomos de Rydberg, em vapor de Rb, através do processo não-linear de geração de segundo harmônico e observaram nas linhas espectrais, um alargamento assimétrico associado à interação entre átomos muito excitados. A geração de SH é proibida em meios centro-simétricos na aproximação de dipolo elétrico, só ocorrendo na presença de mecanismos de quebra de simetria. Essa quebra de simetria é provocada pelo surgimento de um campo elétrico interno, resultante da redistribuição dos elétrons ionizados [25]. Esse trabalho nos impulsionou a investigar os efeitos de interação, porém em outro processo não linear, devido à pouca eficiência da geração de SH e também à dificuldade de incluir os mecanismos de quebra de simetria num possível modelo teórico.

Assim, optamos por estudar o processo não-linear de mistura de quatro ondas (MQO), definido como um efeito resultante da não-linearidade de um meio que interage com três ondas eletromagnéticas. Nesse caso, uma quarta onda de frequência definida pela combinação linear das frequências das ondas incidentes é gerada coerentemente. Esse processo é permitido por dipolo elétrico, podendo ser descrito por uma susceptibilidade de terceira ordem, e possui melhor eficiência. O processo de MQO em vapor atômico tem sido utilizado para investigar um grande número de fenômenos não-lineares, como a geração de luz comprimida para aplicações em imagens quânticas [26] e armazenamento de *qubits* para utilização em comunicações quânticas de longa distância [27].

Nosso experimento em vapor atômico nos permite excitar a coerência entre o estado fundamental e um estado de Rydberg, de forma que investigamos o perfil espectral do sinal gerado, buscando encontrar a assimetria característica desse tipo interação. Ao longo dos nossos experimentos verificamos que a mistura de quatro ondas não era a técnica ideal para se investigar os efeitos da interação entre átomos muito excitados. Isso porque, outros efeitos tendem a mascarar as características dessa interação. Em particular, as ressonâncias envolvendo os níveis de Rydberg apresentaram outros efeitos, como o auto alargamento e a dependência com os diferentes caminhos quânticos, se mostrando muito interessantes. As ressonâncias de dois fótons com os estados de Rydberg, não apresenta ressonâncias intermediárias, de forma que esses níveis não influenciam nas taxas de relaxação. Assim, o campo gerado em MQO nos dá, diretamente, informações sobre a coerência induzida entre o estado de Rydberg e o estado fundamental.

É interessante notar que a presença de ressonâncias de dois e três fótons, em nosso sistema, abre a possibilidade da ocorrência de diferentes processos de forma complexa e não-linear, processos esses que podem competir entre si. Em 1987, Boyd e colaboradores [28] investigaram a competição entre a emissão espontânea amplificada (ASE) e a geração de mistura de quatro ondas, na condição ressonante por dois fótons em átomos de sódio. Eles verificaram uma total saturação do sinal de emissão de ASE quando alcançam uma condição de casamento de fase tal que favoreciam a geração do sinal de MQO. Wunderlich [29], em vapor de átomos de sódio, investiga a geração de novas frequências e sua dependência com a densidade atômica e a intensidade dos lasers incidentes. Nesse trabalho, além de observar uma saturação do sinal de MQO, verifica a existência de uma densidade crítica em que ocorre uma transição na dependência da intensidade do sinal de MQO, de quadrática para linear. Esse comportamento é bem explicado através de efeitos de cancelamento associados a ressonância de dois fótons.

Mais recentemente, Nagai e Nakanaga [30], investigaram a competição entre a geração de mistura de quatro ondas e a ionização por três fótons, ambos ressonantes por dois fótons, em átomos de Xe, em função da intensidade do laser de excitação. Eles observam uma inibição da ionização multifotônica, quando introduzem no sistema um laser que resulta em um processo de MQO ressonante, dando origem a um novo caminho de decaimento. Esse trabalho mostra que a geração de MQO é um processo livre de efeitos de ionização e de decomposição de estados excitados, se mostrando um método de espectroscopia bastante sensível, para átomos ou moléculas, desde que sejam sensíveis à absorção por dois fótons.

Outro efeito interessante que tem sido estudado em experimentos de mistura de quatro ondas envolve a interferência quântica devido a campos gerados internamente na amostra. Em 1982, efeitos de interferência entre diferentes harmônicos foram estudados por Jackson e Wyne [31]. Eles mostraram que dois caminhos quânticos coerentes, devido à uma excitação fundamental e a um terceiro harmônico, interferem destrutivamente inibindo o crescimento do sinal de ionização multifotônica.

Armyras e colaboradores, investigaram a saturação e transferência de população em um sistema de quatro níveis em átomos de potássio [32]. Eles apresentaram um estudo teórico sobre a redução da não-linearidade do sistema atômico devido à presença de um campo intenso, mostrando que há uma interferência destrutiva entre dois diferentes caminhos quânticos. Quando na presença do campo intenso, um segundo caminho é ativado provocando uma resposta li-

near devido à interferência com o primeiro caminho. Um estudo abrangente sobre os efeitos de interferência devido a campos gerados internamente em sistemas altamente ressonantes foi publicado por Deng e colaboradores [33], onde apresentam uma coletânea de resultados experimentais e análises envolvendo vários processos não-lineares ressonantes, além de respostas atômicas e moleculares.

Em relação às ressonâncias de dois fótons, o alargamento no perfil das linhas espectrais que observamos apresenta uma dependência linear com a densidade atômica, indicando contribuição de mecanismos de auto-alargamento. Esse alargamento é tratado na aproximação de colisão binária [34], resultando em um grande coeficiente de alargamento. Esse tipo de alargamento vem sendo estudado a partir de diferentes técnicas experimentais. Em 1979, Weber e Niemax [35] investigaram o alargamento espectral em átomos muito excitados de Cs, com número quântico da ordem de 40, utilizando técnicas espectroscópicas ressonantes por dois fótons. Na época desse experimento, os alargamentos associados a estados de Rydberg eram, em sua maioria, atribuídos à presença do gás buffer nas amostras. Weber mostrou que a contribuição desse tipo de efeito era muita pequena para explicar o grande alargamento observado em seu experimento com átomos muito excitados.

Em 1980, o alargamento começou a ser atribuído às colisões envolvendo átomos excitados e átomos no estado fundamental [36]. Stoicheff e Weinberger [37] investigaram efeitos de colisão $Rb^{**} + Rb$ em densidades suficientemente baixas para garantir o limite de colisão binária, envolvendo estados com $n < 30$ do átomo de Rb. Verificando um comportamento oscilatório da largura de linha em função do número quântico, eles conseguiram explicar quantitativamente o alargamento, fazendo uma associação com a seção de choque de colisão entre dois átomos, um no estado excitado e outro no fundamental. Esse tipo de interação foi investigada recentemente por Weller e colaboradores [38], onde estudaram espectros de absorção numa célula aquecida contendo átomos de Rb. Observações na linha D_1 mostraram modificações na largura de linha homogênea devido à interação dipolo-dipolo numa superposição coerente entre átomos, um no estado fundamental e outro no estado excitado.

Quando há interação entre dois átomos de Rydberg também é observado um alargamento espectral [13], e nesse caso, dependendo do estado envolvido e da densidade atômica, é possível analisar o efeito a partir de um modelo de interação de longo alcance [39]. Nesse caso o alargamento é associado ao deslocamento dos níveis atômicos devido a interação. Outros trabalhos associam o alargamento à formação de quase moléculas [40, 41], onde novas ressonâncias devido aos estados moleculares podem ser sintonizadas. No nosso trabalho, verificamos que interações do tipo Rydberg-Rydberg e/ou formação de quase-moléculas não são mecanismos relevantes para explicar o alargamento observado experimentalmente.

Nesta tese, além das ressonâncias de dois fótons estudamos detalhadamente as ressonâncias de três fótons, especificamente, com os estados $6P_{3/2}$ e $6P_{1/2}$. Dois efeitos marcantes associados a esse tipo de ressonância são observados: a saturação do sinal gerado de mistura de quatro ondas, exatamente na posição da ressonância de três fótons para alta densidade atômica, e o deslocamento na posição do pico referente a essa ressonância.

A saturação observada ocorre devido à interferência destrutiva de fótons ímpares [42], quando o campo de mistura de quatro ondas, gerado numa determinada região da amostra, é reabsorvido na região subsequente. Surge, então, uma interação entre o campo gerado e o campo

absorvido, os dois na frequência de MQO e defasados 180 graus. Esse efeito é dependente da densidade atômica, já que só ocorre no limite de alta absorção, e também da frequência, devido à condição de que o estado atômico considerado deve ser sintonizável por dois caminhos envolvendo um número ímpar de fótons. No nosso caso, o estado $6P_{3/2}$ é sintonizado por três fótons (envolvidos na MQO) e por um fóton (gerado na MQO).

Os efeitos de deslocamento de frequência têm sido estudados há bastante tempo. Em 1973, Fridberg e colaboradores analisaram os diferentes tipos de interações que poderiam originar um deslocamento na ressonância, como deslocamento Coulombiano, deslocamento cooperativo de Lamb, deslocamentos provocados por colisão ou interações de van der Waals [43]. Esse trabalho nos fornece ferramentas para identificar, através da estimativa das ordens de grandeza, que tipo de efeito é relevante em determinado experimento. O deslocamento da ressonância foi investigado tanto em sistemas de geração de harmônicos [44] quanto envolvendo soma e subtração de diferentes frequências [45], e recentemente, o interesse no deslocamento cooperativo de Lamb cresceu devido à conexão com efeitos de interação coletiva [46] como a superradiância [47]. Adams e colaboradores, utilizando uma célula de vapor de dimensões nanométricas sintonizáveis [48], observam um deslocamento Lamb que depende da densidade atômica e da largura da célula de vapor. Eles mostram que células cujo tamanho é aproximadamente $\frac{\lambda}{4}$ são um sistema promissor para o estudo da superradiância no limite de pequenos volumes e que este sistema possui forte não-linearidade, com possibilidades para estudos em ótica quântica envolvendo o efeito de *dipole blockade* [17].

Nossos experimentos apresentaram um deslocamento da ressonância de três fótons que cresce com o aumento do ângulo de cruzamento entre os feixes incidentes e cresce linearmente com o aumento da densidade. A dependência do deslocamento com θ e N , estão de acordo com a descrição de um efeito cooperativo. Investigamos detalhadamente esses dois efeitos associados à ressonância de três fótons e, tanto a saturação da intensidade quanto o deslocamento do pico, são bem descritos pelo modelo teórico apresentado.

No capítulo 2 desta tese, apresentamos nosso modelo teórico baseado no formalismo de matriz densidade aplicado para um sistema de quatro níveis e discutimos as aproximações utilizadas para descrever o sinal gerado de mistura de quatro ondas. Nesse capítulo, estabelecemos o comportamento do sinal e analisamos os principais efeitos que observamos experimentalmente. No capítulo 3, introduzimos nosso sistema experimental e apresentamos os resultados obtidos na geração de mistura de quatro ondas em vapor de rubídio. O sinal de MQO é investigado para estados de Rydberg nd e $(n+2)s$, com $n = 14 - 20$ ressonantes por dois fótons, e para as ressonâncias de três fótons envolvendo os estados $6P_{1/2}$ e $6P_{3/2}$. No capítulo 4, apresentamos uma análise detalhada dos resultados experimentais, mostrando a comparação entre esses resultados e os cálculos teóricos apresentados no capítulo 2, observando uma excelente concordância entre o modelo apresentado e os dados obtidos. No capítulo 5, descrevemos o procedimento de montagem e caracterização da armadilha magneto-ótica, e discutimos a realização de um experimento preliminar de MQO degenerada em átomos frios. Por fim, nossas conclusões e perspectivas são apresentadas no capítulo 6.

Mistura de quatro ondas em sistemas atômicos com quatro níveis

A resposta não-linear de um sistema atômico é maior quanto mais próximos de suas ressonâncias forem sintonizados os lasers de excitação, e/ou a soma e diferença de suas frequências e/ou seus harmônicos. Neste trabalho analisamos um sistema atômico constituído por átomos de rubídio aquecidos, onde é preciso considerar um formalismo que consiga descrever efeitos como o alargamento e o deslocamento das linhas de ressonância. Neste capítulo, obtivemos uma expressão analítica para o campo gerado através de um processo não linear de mistura de quatro ondas (MQO) em um sistema de quatro níveis. Utilizando o formalismo da matriz densidade [6], calculamos a susceptibilidade ótica de terceira ordem incluindo efeitos de propagação e casamento de fase. Além disso, fizemos uma análise do processo de geração de segundo harmônico (SH) em comparação com o processo de mistura de quatro ondas.

2.1 Formalismo da matriz densidade

Consideramos um sistema de quatro níveis como mostrado na figura 2.1a. Os níveis atômicos são representados pelas letras a , b' , b , c e d , e cada um deles, no nosso experimento, representa um determinado nível do átomo de rubídio. O estado a representa o estado fundamental $5s$, que é acoplado por dois fótons aos estados c ou d , estados excitados de Rydberg. Esse acoplamento é feito pelo campo $\vec{E}_1(\omega_1)$ correspondente ao laser de corante. No experimento é possível sintonizar a frequência do campo $\vec{E}_1(\omega_1)$, tornando-o ressonante por dois fótons com as transições $5s \rightarrow nd$ ou $5s \rightarrow (n+2)s$, com n entre 14-20. O nível b' representa o estado intermediário mais próximo da ressonância por um fóton com o campo $\vec{E}_1$ que, no nosso caso, é o estado $5p$ distante cerca de 3000 cm^{-1} da ressonância por um fóton. Na figura 2.1b apresentamos os níveis do átomo de Rb relevantes no nosso experimento e podemos verificar a correspondência descrita acima. O campo $\vec{E}_2(\omega_2)$ representa o campo na frequência de infra-vermelho (IV), que excita a coerência entre os estados de Rydberg e o estado $6p$, representado como b . Assim, o campo de mistura de quatro ondas é gerado na frequência $\omega_3 = 2\omega_1 - \omega_2$.

Ainda, a coerência com a transição $5s - nd$ pode gerar um campo na frequência $2\omega_1$, correspondente à geração de segundo harmônico.

2.1.1 Cálculo da intensidade do sinal gerado

Considerando a propagação da radiação eletromagnética em um meio, sabemos que a polarização induzida é proporcional ao campo que a induziu. Porém, em meios cuja resposta não-linear

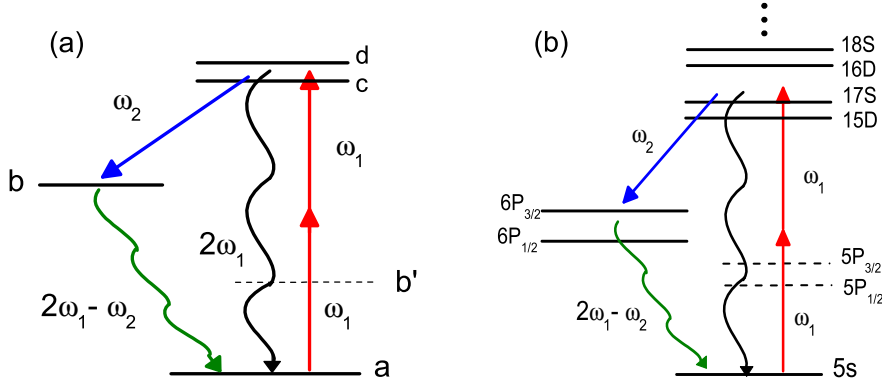


Figura 2.1 (a) Representação esquemática de um sistema de quatro níveis e (b) Especificação dos níveis relevantes no nosso sistema.

é grande podemos observar troca de energia entre os vários campos presentes na amostra, originando diferentes respostas como a soma e diferença de frequências ou geração de harmônicos.

Na aproximação de dipolo elétrico, a polarização macroscópica induzida por um campo $\vec{E}$, é escrita da forma [49]:

$$\vec{P} = \epsilon_0 \left(\chi^{(1)} \vec{E} + \chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots \right), \quad (2.1)$$

onde $\chi^{(1)}$ é a susceptibilidade linear e $\chi^{(n)}$ representa a susceptibilidade não-linear de n-ésima ordem. Em meios centro-simétricos, quando $\vec{r} \rightarrow -\vec{r}$ as propriedades devem se manter, logo, $\vec{P}(\vec{r}) \rightarrow -\vec{P}(-\vec{r})$. Essa condição só é satisfeita quando $\chi^{(n)} = 0$, para n par.

Sabemos que a susceptibilidade não-linear de ordem n é proporcional ao momento de dipolo da transição considerada elevado à potência $(n+1)$ [49]. Para que a série representada na equação 2.1 convirja, as componentes das susceptibilidades não-lineares consecutivas devem decrescer. Assim, podemos afirmar que, para meios centro-simétricos, a susceptibilidade de terceira ordem corresponde à maior contribuição não-linear, refletindo as propriedades microscópicas do sistema atômico.

Nosso objetivo é analisar a polarização macroscópica induzida no meio, na frequência do campo de mistura de quatro ondas, isto é, na componente de frequência ω_3 , que é representada como:

$$\vec{P}^{(3)}(\omega_3 = 2\omega_1 - \omega_2) = \chi^{(3)}(\omega_3) : \vec{E}_1(\omega_1) \vec{E}_1(\omega_1) \vec{E}_2^*(\omega_2). \quad (2.2)$$

Na aproximação de dipolo elétrico, o sistema é descrito como um conjunto de N dipolos elétricos por unidade de volume. Os átomos da amostra estão distribuídos em uma mistura estatística de estados $|i\rangle$, cujo peso estatístico é representado por w_i . Então, o operador densidade $\hat{\rho}$, que descreve a evolução temporal do sistema, é escrito da forma [50]:

$$\hat{\rho} = \sum_i w_i |i\rangle \langle i| . \quad (2.3)$$

Assim, as propriedades de um determinado observável, $\hat{A}$, são dadas pela média no *ensemble*:

$$\langle \hat{A} \rangle = Tr(\hat{\rho} \hat{A}) . \quad (2.4)$$

Podemos calcular a média da polarização macroscópica da forma:

$$\bar{P} = N \langle \hat{\mu} \rangle = N Tr(\hat{\rho} \hat{\mu}) = N(\mu_{ab}\rho_{ba} + \mu_{cb}\rho_{bc} + \mu_{bd}\rho_{db} + c.c.) . \quad (2.5)$$

onde μ é o momento de dipolo da transição. Como nosso interesse é estudar o sinal de mistura de quatro ondas gerado na frequência $\omega_3 = 2\omega_1 - \omega_2$, somente o termo proporcional a ρ_{ba} , termo de coerência entre os estados a e b , é relevante. Assim, nos concentramos no cálculo desse elemento da matriz densidade.

Podemos escrever o Hamiltoniano do sistema como:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{int} , \quad (2.6)$$

onde $\hat{H}_0$ é o hamiltoniano do átomo livre e $\hat{H}_{int}$ é o termo de interação do átomo com o campo, que na aproximação de dipolo elétrico é escrito da forma:

$$\hat{H}_{int} = -\vec{\mu} \cdot \vec{E} , \quad (2.7)$$

onde $\vec{E}$ é o campo responsável pelo acoplamento dos níveis envolvidos na transição considerada, que na aproximação semi-clássica, é escrito como:

$$\vec{E}_j(z, t) = \frac{1}{2} \left[\hat{e}_j E_j e^{-i\omega_j t + ik_j z} + c.c \right] . \quad (2.8)$$

onde $j = 1, 2$, ou 3 denota os três campos eletromagnéticos presentes na amostra, $\hat{e}_j$ e E_j correspondem, respectivamente, à direção de polarização e à amplitude do campo $\vec{E}_j$. Definindo Ω_{ik} como a frequência de Rabi da transição entre os estados i e k , as frequências de Rabi associadas aos estados considerados no nosso problema (a, b, c e d), são dadas por:

$$\begin{aligned} \Omega_{ab} &= \frac{\mu_{ab} E_3}{2\hbar} , \\ \Omega_{ai} &= \frac{k_{ai} E_1^2}{2\hbar} , \\ \Omega_{ib} &= \frac{\mu_{ib} E_2}{2\hbar} . \end{aligned} \quad (2.9)$$

onde $i = c$ ou d ; E_1, E_2 e E_3 são as amplitudes dos respectivos campos. k_{ai} é a constante de acoplamento efetivo da transição por dois fótons do campo E_1 , sendo definida como o somatório da contribuição de todos os níveis intermediários entre os estados a e i , da forma:

$$k_{ai} = \frac{1}{2\hbar} \sum_{b'} \frac{\mu_{ab'} \mu_{b'i}}{\omega_{ib'} - \omega_1} . \quad (2.10)$$

De modo explícito, utilizando as frequências de Rabi, podemos escrever o hamiltoniano de interação, no referencial de onda girante, considerando o acoplamento dos campos com os estados envolvidos no nosso estudo como:

$$\begin{aligned} \hat{H}_{int} = & -\hbar\Omega_{ac}e^{i2k_1z}|a\rangle\langle c| - \hbar\Omega_{ad}e^{i2k_1z}|a\rangle\langle d| - \hbar\Omega_{bc}e^{ik_2z}|b\rangle\langle c| \\ & - \hbar\Omega_{bd}e^{ik_2z}|b\rangle\langle d| - \hbar\Omega_{ab}e^{ik_3z}|a\rangle\langle b| + H.c. . \end{aligned} \quad (2.11)$$

Utilizamos a equação de Liouville [51] para descrever o comportamento temporal dos elementos da matriz densidade:

$$\frac{d\rho_{ij}}{dt} = \frac{-i}{\hbar}[\hat{H}, \hat{\rho}]_{ij} , \quad (2.12)$$

onde i e j podem ser a, b, c ou d .

De acordo com o formalismos da matriz densidade, os termos ρ_{ii} representam a população do estado i e os termos ρ_{ij} são termos de coerência relacionados às transições entre os estados i e j . A partir da equação 2.12 e incluindo os termos de relaxação de forma fenomenológica, a equação de movimento dos termos de coerência entre dois estados i e j é dada por:

$$\dot{\rho}_{ij} = -(i\omega_{ij} + \gamma_{ij})\rho_{ij} + i\sum_k \Omega_{ik}(t)\rho_{kj} + c.c.. \quad (2.13)$$

Nessa expressão, $\omega_{ij} = (E_j - E_i)/\hbar$, γ_{ij} é a taxa de relaxação de ρ_{ij} e Ω_{ik} é a frequência de Rabi, como definida anteriormente.

Para determinar as equações de movimento, relacionadas com o sistema de quatro níveis de interesse, como mostrado na figura 2.1, faremos as seguintes considerações:

- Introduzimos as variáveis que oscilam lentamente no tempo, de forma que os termos fora da diagonal da matriz densidade, termos de coerência, são dados por: $\rho_{ij} = \sigma_{ij}e^{i(\omega t - kz)}$, onde σ_{ij} varia lentamente.
- Utilizamos a aproximação de onda girante e calculamos a resposta do sistema no regime estacionário, isto é, para $\frac{d\rho_{ii}}{dt} = 0$ e $\frac{d\sigma_{ij}}{dt} = 0$. Já que os tempos de decaimento são mais curtos que a duração dos pulsos dos lasers.
- Consideramos um tratamento perturbativo, de forma que o campo $\vec{E}_1$ é considerado até segunda ordem e os campos $\vec{E}_2$ e $\vec{E}_3$ são considerados até primeira ordem.

Nessa ordem de perturbação, a população dos níveis é distribuída de forma que $\rho_{ii} = \delta_{ia}$, ou seja, toda a população está no estado fundamental. Isso é justificado, já que ρ_{ii} deve ser de ordem zero nos campos, logo, sem excitação não há transferência de população. Vale ressaltar que em nosso modelo consideramos que o sinal gerado pode envolver os dois estados de Rydberg mais próximos, e a coerência gerada é uma soma da contribuição de cada um desses estados. A coerência entre os estados de Rydberg c e d é identicamente nula, já que, na ordem que estamos considerando, não há campos que acoplam esses estados e são estados de mesma paridade. Como os campos são fracos, nenhuma população é transferida para estados mais

altos, assim como não existirá correlação de fase entre as funções de onda desses estados. Da mesma forma também são nulas as coerências ρ_{cb} e ρ_{db} , pois elas dependem do acoplamento entre os estados c e d . Para fins de simplificação, neste primeiro momento vamos considerar que o sistema é óticamente fino no limite de baixa densidade. Nesse sentido, podemos desprezar o termo linear com Ω_{ab} . Posteriormente, na seção 2.2, trataremos os efeitos de propagação do campo gerado.

Assim, os elementos de matriz não nulos e relevantes no nosso sistema são:

$$\begin{aligned}\sigma_{ca} &= \frac{i\Omega_{ac}e^{-2ik_1z}}{i\Delta_{ac} + \gamma_{ac}}, \\ \sigma_{da} &= \frac{i\Omega_{ad}e^{-2ik_1z}}{i\Delta_{ad} + \gamma_{ad}}, \\ \sigma_{ab} &= \frac{-i}{i\Delta_{ba} + \gamma_{ab}} \times (\sigma_{ac}\Omega_{cb}e^{i(k_2+k_3)z} + \sigma_{ad}\Omega_{db}e^{i(k_2+k_3)z}).\end{aligned}\quad (2.14)$$

A coerência de interesse, associada à transição entre os níveis b e a , considerando que $\sigma_{ba} = \sigma_{ab}^*$, é dada por:

$$\sigma_{ba} = \frac{-1}{\Delta_{ba} + i\gamma_{ab}} \times \left[\frac{\Omega_{bc}\Omega_{ca}}{\Delta_{ca} + i\gamma_{ac}} e^{-i\Delta k z} + \frac{\Omega_{bd}\Omega_{da}}{\Delta_{da} + i\gamma_{ad}} e^{-i\Delta k z} \right]. \quad (2.15)$$

As ressonâncias são definidas por $\Delta_{ab} = 2\omega_1 - \omega_2 - \omega_{ab}$ e $\Delta_{ai} = 2\omega_1 - \omega_{ai}$ com $i = c$ ou d . $\Delta k = (\vec{k}_3 - 2\vec{k}_1 + \vec{k}_2)_z$ é a componente do vetor de casamento de fase na direção de propagação, z .

Conhecendo esse elemento de matriz, σ_{ba} , podemos obter a intensidade média do sinal de MQO gerado, sabendo que:

$$\bar{I} \propto |\bar{P}|^2 = 4N^2\mu_{ab}^2 |\rho_{ba}^2| \quad (2.16)$$

Considerando $\Delta k = 0$, essa intensidade é da forma:

$$\bar{I} \propto \frac{N^2\mu_{ab}^2}{\Delta_{ab}^2 + \gamma_{ab}^2} \times \left[\frac{\Omega_{bc}^2\Omega_{ca}^2}{\Delta_{ca}^2 + \gamma_{ac}^2} + \frac{\Omega_{bd}^2\Omega_{da}^2}{\Delta_{da}^2 + \gamma_{ad}^2} + \frac{(2\Omega_{bc}\Omega_{ca}\Omega_{bd}\Omega_{da}) \times (\gamma_{ac}\gamma_{ad} + \Delta_{ca}\Delta_{da})}{(\Delta_{ca}^2 + \gamma_{ac}^2) \times (\Delta_{da}^2 + \gamma_{ad}^2)} \right] \quad (2.17)$$

Analisando a equação 2.17, verificamos que há três máximos de intensidades correspondentes às ressonâncias, quando Δ_{ab} , Δ_{ac} ou Δ_{ad} forem nulos. Para as frequências ω_1 , tal que Δ_{ac} ou Δ_{ad} são nulos, verificamos máximos (ou picos) correspondentes às ressonâncias de dois fótons entre o estado fundamental e o estado excitado de Rydberg. Quando ω_1 é tal que Δ_{ab} é nulo, o máximo observado está relacionado com a ressonância por três fótons entre os estados a e b . A partir da equação 2.17, podemos identificar tanto a posição das ressonâncias quanto a amplitude associada à cada máximo.

Na figura 2.2, esboçamos a expressão obtida na equação 2.17 em função da frequência do campo $\vec{E}_1$. Para esse esboço, estamos analisando estados específicos, de forma que comparando com os níveis da figura 2.1, temos: $a \equiv 5s$, $b \equiv 6P_{3/2}$, $b' \equiv 5P_{3/2}$, $c \equiv 16d$ e $d \equiv 18s$. Como um

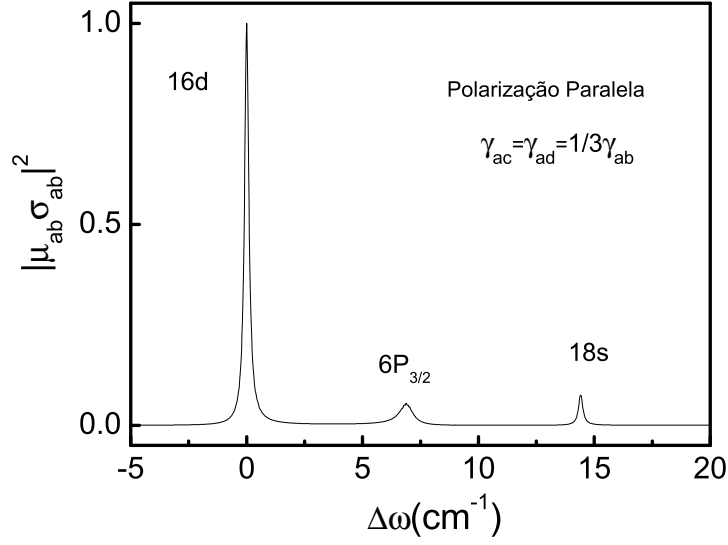


Figura 2.2 Espectro de excitação do sinal de MQO, campos de excitação com polarizações paralelas.

exemplo, fixamos os parâmetros da equação como: $\gamma_{ac} = \gamma_{ad} = \frac{1}{3}\gamma_{ab}$, onde $\gamma_{ab} = 0,3 \text{ cm}^{-1}$. Para estabelecer a relação de intensidade entre os picos assumimos que $\frac{\Omega_{ac}}{\Omega_{ad}} = 4,2$, valor inspirado na referência [52].

Na equação 2.15, verificamos que existem duas possibilidades de caminhos quânticos para a construção de σ_{ba} , via os estados c ou d . No nosso experimento, especificamente, as possibilidades são $(5s \rightarrow nd \rightarrow 6p)$ ou $(5s \rightarrow (n+2)s \rightarrow 6p)$, onde $n=14-20$. Esses dois caminhos competem no processo de geração do campo de mistura de quatro ondas. Essa competição aparece como um termo de interferência (terceiro termo entre colchetes na equação 2.17) que pode ser entendido classicamente, considerando que no processo de geração de MQO duas polarizações são induzidas coerentemente e na frequência ω_3 . Essas polarizações apresentam uma relação de fase, dependendo dos estados atômicos envolvidos, que semelhante a um experimento de fenda dupla de *Young*, podem interferir destrutiva ou construtivamente. Quanticamente, esse efeito pode ser entendido como uma interferência entre dois caminhos quânticos indistinguíveis [52], onde a amplitude de probabilidade da transição é dada pela soma das amplitudes de probabilidade de cada caminho e a intensidade observada (equação 2.16) é proporcional ao quadrado da soma dessas amplitudes. Os dois primeiros termos entre os colchetes na equação 2.17 correspondem aos picos de intensidade associados às ressonâncias de dois fótons com os estados c e d , especificamente, nd e $(n+2)s$. O termo fora dos colchetes determina a posição da ressonância de três fótons com o estado b , equivalente ao estado $6p$. As intensidades dos picos dependem da interferência entre os caminhos quânticos possíveis [52].

O termo de interferência pode assumir valores positivos ou negativos, dependendo dos valores das dessintonias Δ_{ac} e Δ_{ad} . Além disso, esse termo depende da relação entre as frequências de Rabi associadas aos dois possíveis caminhos quânticos e também da polarização relativa

dos campos de excitação. Controlando a polarização é possível mudar o caráter da interferência entre destrutiva e construtiva[52]. Em particular, utilizando uma polarização circular para os feixes de excitação, uma transição de dois fótons entre dois estados s não é permitida pelas regras de seleção, de forma que a transição $a \rightarrow d$ não ocorre. Assim, como somente um caminho é permitido não observamos mais interferência, semelhante ao experimento de dupla fenda de *Young*. Isto é, associando cada caminho à uma fenda, o padrão de interferência desaparece quando sabemos por qual fenda o feixe foi transmitido.

Se fixarmos a polarização dos feixes de excitação, de forma que os campos $\vec{E}_1$ e $\vec{E}_2$ têm polarizações lineares e paralelas, temos que o campo gerado deve ter a mesma direção de polarização devido às propriedades de simetria do meio isotrópico.

Para entender a influência da polarização no sinal de mistura de quatro ondas, precisamos calcular a parte dependente das polarizações dos campos de excitação. Como dito anteriormente, a susceptibilidade de terceira ordem depende da quarta ordem do momento de dipolo elétrico, e esse momento depende da polarização dos campos, de forma que podemos escrever $\mu_{ij} = \langle i | \vec{\mu} \cdot \vec{\epsilon} | j \rangle$, onde $\vec{\epsilon}$ representa a direção de polarização do campo envolvido na transição. No caso da constante de acoplamento efetivo da transição por dois fótons, devemos considerar a contribuição de todos os níveis intermediários. Essa contribuição depende tanto da dessintonia entre cada nível intermediário e um fóton do campo $\vec{E}_1$ como do *oscillator strength* da transição.

Utilizando as equações 2.5 e 2.13, podemos escrever a amplitude da polarização macroscópica induzida da forma:

$$P(\omega_3 = 2\omega_2 - \omega_1) \propto \frac{N\mu_{ab}}{\Delta_{ab} + i\gamma_{ab}} \left[\frac{\Omega_{ac}\Omega_{cb}}{\Delta_{ac} + i\gamma_{ac}} + \frac{\Omega_{ad}\Omega_{db}}{\Delta_{ad} + i\gamma_{ad}} \right] e^{-i\Delta k z}, \quad (2.18)$$

e então identificar o produto dos momentos de dipolo envolvidos com as transições consideradas. Assim, precisamos calcular o produto de quatro elementos de matriz do operador dipolo elétrico, $\hat{Q}_1^q$, na direção de polarização q do campo eletromagnético:

$$\mu_{ab}\Omega_{ai}\Omega_{ib} \propto \sum_{b',b} \langle a | \hat{Q}_1^{q_3} | b \rangle \langle b | \hat{Q}_1^{q_2} | i \rangle \langle i | \hat{Q}_1^{q_1} | b' \rangle \langle b' | \hat{Q}_1^{q_1} | a \rangle, \quad (2.19)$$

onde os estados a, b, b' , e $i = c$ ou d correspondem aos estados representados na figura 2.1. O somatório indica que devemos somar sobre os diversos estados intermediários.

O operador de dipolo elétrico é definido como:

$$\hat{Q}_1^q(\vec{r}) = e \sqrt{\frac{4\pi}{2p+1}} r Y_1^q(\theta, \phi), \quad (2.20)$$

onde e representa a carga do elétron, r a coordenada radial, θ é o ângulo da componente polar, ϕ é a coordenada azimutal e Y_1^q são os harmônicos esféricos. Então, utilizando os coeficiente de *Clebsch – Gordan* [53] e os símbolos 3-j de Wigner [51], cada um dos elementos da matriz de dipolo elétrico pode ser escrito na forma:

$$\langle nlm | \hat{Q}_1^q | n'l'm' \rangle = (-1)^m \sqrt{2l+1} \sqrt{2l'+1} \cdot \langle nl || er || n'l' \rangle \cdot \begin{pmatrix} l' & 1 & l \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} l' & 1 & l \\ m' & q & -m \end{pmatrix} \quad (2.21)$$

onde $\langle nl||er||n'l' \rangle$ é a componente radial do momento de dipolo, não reduzida.

Para calcular a componente radial do momento de dipolo precisamos conhecer as funções de onda radiais de cada estado envolvido. Essas funções são definidas como:

$$\langle nl||r||n'l' \rangle = \int R_{nl}^* r R_{n'l'} r^2 dr . \quad (2.22)$$

R_{nl} , são as soluções da equação de onda radial:

$$\frac{d^2 R_{nl}}{dr^2} + \frac{2}{r} \frac{dR_{nl}}{dr} + \frac{2m}{\hbar^2} \left(E + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r} - \frac{\hbar^2}{2m} \frac{l(l+1)}{r^2} - V_{core} \right) R_{nl} = 0 , \quad (2.23)$$

onde V_{core} é o potencial de interação do elétron de valência com o núcleo blindado pela nuvem eletrônica dos elétrons que constituem a camada fechada. Esse potencial não é bem estabelecido para átomos diferentes do átomo de hidrogênio, logo, não podemos resolver essa equação exatamente. No caso dos átomos alcalinos, podemos fazer a aproximação com o átomo de hidrogênio a partir da correção do número quântico principal, n , considerando o efeito do caroço. Esse efeito é tratado na teoria dos *defeitos quânticos*, onde n é substituído por um valor corrigido, n^* , tal que: $n^* = n - \delta_l$, onde δ_l é o defeito quântico associado com o momento angular orbital $l = s, p$ ou d . Os valores desses defeitos quânticos são dados pela expansão $\delta(n) = \delta_0 + \frac{\delta_2}{(n-\delta_0)^2} + \frac{\delta_4}{(n-\delta_0)^4} + \dots$, onde δ_0 , δ_2 e δ_4 são constantes [11].

Assim, utilizando um programa em *mathematica*, cedido por Jorge Kondo [54] da USP-São Carlos, calculamos numericamente as integrais definidas na equação 2.22 e obtivemos os valores dos momentos de dipolo para as transições envolvidas nos nossos resultados experimentais. Os valores podem ser encontrados na tabela 3.2. Apesar dos valores para o momento de dipolo poderem ser encontrado em diferentes referências, não é simples encontrar informações para estados com n grande. Os valores do momento de dipolo para interações envolvendo estados nd com $n = 4 - 8$ para o átomo de Rb podem ser encontrados na referência [55]. Também para átomos de Rb, momentos de dipolo para alguns estados mais altos, com $n \approx 20$ podem ser encontrados em [56]. Para simplificar a notação denotaremos esta componente radial do momento de dipolo com o subíndice R, usando μ_{ab}^R , de forma a deixar claro os estados envolvidos.

Em relação à parte angular, um cálculo detalhado pode ser encontrado na referência [57], onde Magno calculou esses elementos de matriz associados às transições envolvidas considerando diferentes polarizações. O cálculo foi feito desprezando os efeitos de acoplamento spin-órbita, portanto, usando a base n, l, m como conjunto adequado de números quânticos. No caso específico de polarizações paralelas, podemos reescrever a equação 2.17 da forma:

$$\bar{I} \propto \frac{N^2 |\mu_{ab}^R|^2}{\Delta_{ab}^2 + \gamma_{ab}^2} \left[\frac{\left(\frac{4}{45} k_{ac}^R\right)^2}{\Delta_{ac}^2 + \gamma_{ac}^2} + \frac{\left(\frac{1}{9} k_{ad}^R\right)^2}{\Delta_{ad}^2 + \gamma_{ad}^2} + \frac{\left(\frac{8}{405} k_{ac}^R k_{ad}^R\right) (\gamma_{ac} \gamma_{ad} + \Delta_{ac} \Delta_{ad})}{(\Delta_{ac}^2 + \gamma_{ac}^2)(\Delta_{ad}^2 + \gamma_{ad}^2)} \right] , \quad (2.24)$$

onde k_{ij}^R são as constantes de acoplamento efetivo da transição de dois fótons como definidas na equação 2.10, porém considerando só a parte radial dos momentos de dipolo envolvidos.

2.1.2 Acoplamento spin-órbita

Em nosso experimento, apesar de não termos resolução para definir a estrutura fina dos níveis de Rydberg, conseguimos resolver o estado $6p$. Mesmo não sendo possível filtrar a contribuição dos estados vizinhos, de acordo com as regras de seleção, podemos saber quais estados podem estar participando do processo de decaimento. Para cada estado de Rydberg nd , temos a influência da presença do estado $(n+2)s$ e de quatro estados intermediários envolvidos no processo de excitação, $5P_{1/2}$ e $5P_{3/2}$, e no processo de decaimento, $6P_{1/2}$ e $6P_{3/2}$. Além disso, dois tipos de polarização podem ser considerados, paralela e perpendicular.

Por exemplo, quando estamos ressonante por dois fótons com a transição $5s - nl$, o sinal gerado tem contribuição de quatro caminhos quânticos: $5s \rightarrow 5P_{1/2} \rightarrow nl \rightarrow 6P_{1/2} \rightarrow 5s$; $5s \rightarrow 5P_{1/2} \rightarrow nl \rightarrow 6P_{3/2} \rightarrow 5s$; $5s \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow nl \rightarrow 6P_{1/2} \rightarrow 5s$ e $5s \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow nl \rightarrow 6P_{3/2} \rightarrow 5s$.

Sabendo disso, foi necessário recalcular a parte angular dos elementos de matriz considerando o acoplamento spin-órbita. Para isso, trabalhamos em outra base de números quânticos, J e m_J , onde J é o momento angular total do elétron, $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$, podendo assumir valores no intervalo, $|L - S| \leq J \leq L + S$. As transições seguem a regra de seleção $\Delta J = 0, \pm 1$ e $\Delta m_J = \pm 1$ [50]. Utilizando o teorema de Wigner-Eckart [51], podemos escrever a seguinte relação:

$$\begin{aligned} \langle Jm_J | er | J'm_{J'} \rangle = & (-1)^{l'+l+2J'+S+m_J-1} \sqrt{(2J+1)(2J'+1)(2l+1)(2l'+1)} \cdot \begin{pmatrix} l & 1 & l' \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \cdot \\ & \cdot \left\{ \begin{matrix} l & l' & 1 \\ J' & J & S \end{matrix} \right\} \begin{pmatrix} J' & 1 & J \\ m_{J'} & q & -m_J \end{pmatrix} \cdot \langle nl || er || n'l' \rangle, \end{aligned} \quad (2.25)$$

onde q identifica a componente de $\vec{r}$ na base esférica, tal que $m_J = m_{J'} + q$. Essa equação será aplicada no cálculo de cada elemento da multiplicação apresentada na expressão 2.19, somando sobre todos os valores de m_J possíveis. Com esse procedimento, encontramos a parte angular dos elementos de matriz associados às ressonâncias nd e $(n+2)s$.

Assim para cada estado de Rydberg, $i = nd$ ou $(n+2)s$, vamos ter quatro equações, cada uma associada a um dos quatro caminhos citados acima, de forma que, a coerência de interesse pode ser escrita como:

$$\sigma_{ba} \propto \sum_{b,b'} \frac{-\mu_{ab}^R}{\Delta_{ba} + i\gamma_{ab}} \times \left[\frac{\mu_{bi}^R \mu_{ia}^R C_{b'b} e^{-i\Delta kz}}{\Delta_{ia} + i\gamma_{ai}} \right], \quad (2.26)$$

onde $C_{b'b}$ representa a parte angular do elemento de matriz, calculada de acordo com a equação 2.25, para o caminho quântico que envolve os estados b e b' , onde $b = 6P_{3/2}$ ou $6P_{1/2}$; e $b' = 5P_{3/2}$ ou $5P_{1/2}$. O resultado do cálculo dos coeficientes é apresentado nas tabelas 2.1 e 2.2, onde duas configurações em relação à polarização dos feixes incidentes são consideradas, paralela e perpendicular. Os cálculos detalhados podem ser vistos no apêndice A.

A intensidade total do sinal gerado é composta pela contribuição de cada um desses caminhos e proporcional ao módulo quadrado do somatório de todos os caminhos. Além disso, nossos resultados envolvem os estados nd e $(n+2)s$, medidos em um único espectro. Como discutimos na seção anterior, nos baseando no resultado da equação 2.17, há uma interferência entre os dois estados de Rydberg. Porém, considerando o acoplamento spin-órbita, para cada

Estado i	$C_{5P_{1/2}6P_{1/2}}$	$C_{5P_{1/2}6P_{3/2}}$	$C_{5P_{3/2}6P_{1/2}}$	$C_{5P_{3/2}6P_{3/2}}$
nd	$\frac{4}{81}$	$\frac{4}{405}$	$\frac{4}{405}$	$\frac{44}{405}$
$(n+2)s$	$\frac{2}{81}$	$\frac{4}{81}$	$\frac{4}{81}$	$\frac{8}{81}$

Tabela 2.1 Valores da parte angular do elemento de matriz para cada estado $i = nd$ ou $(n+2)s$, na configuração de feixes incidentes com polarização paralela.

Estado i	$C_{5P_{1/2}6P_{1/2}}$	$C_{5P_{1/2}6P_{3/2}}$	$C_{5P_{3/2}6P_{1/2}}$	$C_{5P_{3/2}6P_{3/2}}$
ns	$\frac{-2}{81}$	$\frac{-2}{405}$	$\frac{-2}{405}$	$\frac{-22}{405}$
$(n+2)s$	$\frac{2}{81}$	$\frac{4}{81}$	$\frac{4}{81}$	$\frac{8}{81}$

Tabela 2.2 Valores da parte angular do elemento de matriz para cada estado $i = nd$ ou $(n+2)s$, na configuração de feixes incidentes com polarização perpendicular.

estado de Rydberg existem quatro caminhos associados aos estados intermediários, e todos os caminhos interferem.

A contribuição de cada caminho pode ser avaliada separadamente. Nas figuras 2.3 e 2.4, mostramos a amplitude relativa do sinal para cada um dos caminhos possíveis, considerando a contribuição das polarizações paralela e perpendicular. Em cada espectro vemos os picos correspondentes às ressonâncias com os estados nd e $(n+2)s$, para $n=16$ e 15 respectivamente. Esses espectros foram calculados para os parâmetros: $\gamma_{ac} = \gamma_{ad} = \frac{1}{5}\gamma_{ab} = 0,1 \text{ cm}^{-1}$, além disso, para facilitar a comparação entre os espectros, foi feita uma convolução com a largura de linha do laser de excitação, o que alarga os espectros. Esse procedimento será explicado no capítulo 4.

Na figura 2.3, onde apresentamos os espectros de excitação envolvendo os estados $16d$ e $18s$, podemos verificar que o caminho que envolve o estado $6P_{1/2}$, contribui pouco para a intensidade total do sinal gerado. Quantitativamente, o espectro referente a este caminho (curva verde) é aproximadamente três ordens de grandeza menor que os demais. Já na figura 2.4, referente ao sinal de MQO envolvendo os estados $15d$ e $17s$, todos os caminhos considerados apresentam a mesma ordem de grandeza.

É importante destacar a contribuição dos estados $5P_{3/2}$ e $5P_{1/2}$ na intensidade do sinal gerado. Mesmo a dessintonia desses estados sendo muito grande, a distinção da estrutura fina é indispensável para explicar a intensidade observada experimentalmente, como veremos no próximo capítulo.

Assim, decidimos considerar a contribuição de todos os quatro caminhos nos cálculos teóricos que serão apresentados nesta tese.

2.2 Considerando a propagação

Considerando um meio opticamente denso, temos que o campo gerado numa determinada posição da amostra, depois de se propagar uma distância z , pode ser absorvido pelos átomos em posições subsequentes. Nesta seção vamos estudar a propagação do campo gerado no processo de MQO resolvendo as equações de *Maxwell* e analisando o resultado em duas situações: (i)

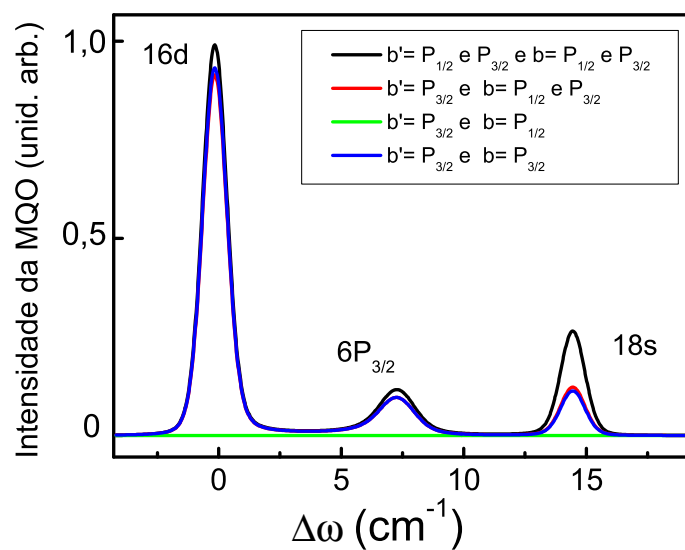


Figura 2.3 Cálculo dos espectro de excitação do sinal de MQO, considerando a contribuição de cada caminho para os estados $16d$ e $18s$.

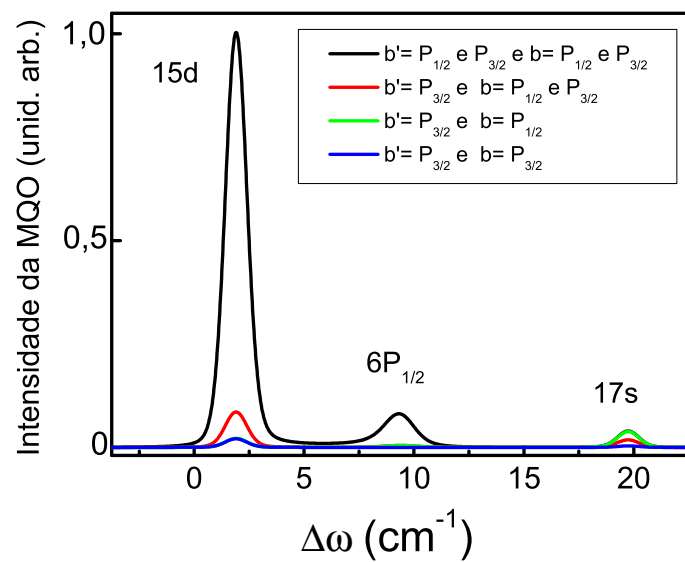


Figura 2.4 Cálculo dos espectro de excitação do sinal de MQO, considerando a contribuição de cada caminho para os estados $15d$ e $17s$

na configuração colinear, onde os dois feixes de excitação estão incidindo paralelamente na amostra e (ii) na configuração de feixes cruzados, quando os dois feixes de excitação incidem na amostra se cruzando num ângulo θ .

2.2.1 Equações de Maxwell

Os meios que respondem não linearmente aos campos eletromagnéticos podem desenvolver uma polarização macroscópica capaz de originar campos com novas componentes de frequência. A partir das equações de propagação de *Maxwell*, considerando que no meio não há correntes nem cargas livres e que este não possui propriedades magnéticas, podemos encontrar a expressão para a equação de onda em função da polarização macroscópica, da forma [6]:

$$\left[\nabla^2 - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right] \vec{E} = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}, \quad (2.27)$$

onde $\vec{P}$ é a polarização macroscópica induzida no meio, que pode ser expandida, como descrevemos na seção 2.1, em potências do campo:

$$\vec{P} = \epsilon_0 \left(\chi^{(1)} \vec{E} + \chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots \right). \quad (2.28)$$

Assim, podemos representá-la como uma composição de duas partes, uma linear e outra não linear:

$$\vec{P} = \vec{P}^L + \vec{P}^{NL}. \quad (2.29)$$

A parte linear da polarização e o índice de refração do meio estão associados à susceptibilidade de primeira ordem, $\chi^{(1)}$, da seguinte forma:

$$\vec{P}^L = \epsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E}, \quad (2.30)$$

$$n^2 - 1 = \text{Re} \left[\chi^{(1)} \right]. \quad (2.31)$$

De forma geral, podemos escrever a polarização e o campo EM explicitando sua dependência no tempo e no espaço:

$$\vec{E}_j(z, t) = \frac{1}{2} \left[\hat{e}_j E_j e^{-i\omega_j t + ik_j z} + c.c \right]. \quad (2.32)$$

$$\vec{P}_j(z, t) = \frac{1}{2} \left[\hat{e}_j P_j e^{-i\omega_j t + ik_j z} + c.c \right] \quad (2.33)$$

onde os termos, P_j e E_j representam as amplitudes lentas de $\vec{E}_j$ e $\vec{P}_j$ associadas a cada campo, com $j = 1, 2$ ou 3 , e $\hat{e}_j$ é a direção de polarização. Substituímos as representações 2.32 e 2.33 na equação de onda (2.27). Consideramos a aproximação de onda plana, definindo que a amplitude do campo só varia na direção z , tal que podemos reescrever ∇^2 como $\frac{\partial^2}{\partial z^2}$. Assim:

$$\left[\frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right] (E_j(z, t) \exp[i(k_j z - \omega_j t)]) = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} P_j(z, t) \exp[i(k_j z - \omega_j t)] . \quad (2.34)$$

Consideramos, então, a aproximação de variação lenta, onde os campos se propagam através do meio com amplitudes e fases variando lentamente no espaço e tempo, da mesma forma que a amplitude da polarização. Nessa aproximação, podemos desconsiderar os termos envolvendo derivadas parciais de segunda ordem, no tempo e no espaço, quando comparados com termos envolvendo derivadas de primeira ordem ou termos lineares, isto é:

$$\left| \frac{\partial^2 E}{\partial z^2} \right| \ll \left| k \frac{\partial E}{\partial z} \right| , \quad \left| \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} \right| \ll \left| \omega \frac{\partial E}{\partial t} \right| , \quad \left| \frac{\partial^2 P^{NL}}{\partial t^2} \right| \ll \left| \omega \frac{\partial P^{NL}}{\partial t} \right| \ll |\omega^2 P^{NL}| .$$

Lembrando que estamos analisando o sinal gerado na frequência $\omega_3 = 2\omega_1 - \omega_2$, vamos considerar a amplitude da polarização induzida no meio, nessa frequência, da forma:

$$P(\omega_3) = N\mu_{ab}\rho_{ba} . \quad (2.35)$$

A equação de onda para o campo gerado, na aproximação em que a amplitude lenta do campo é independente do tempo, é dada por:

$$\frac{\partial \Omega_{ba}}{\partial z} = i\kappa_{ab}\rho_{ba} , \quad (2.36)$$

onde $\kappa_{ab} = \frac{Nk_3|\mu_{ab}^R|^2}{2\hbar\epsilon_3}$.

Na equação 2.35 a coerência ρ_{ba} pode ser obtida com o mesmo procedimento utilizado na obtenção da equação 2.15, porém, temos que considerar que na equação 2.14 desprezamos a componente linear entre os estados a e b , Ω_{ab} . Já nesta seção, estamos analisando a propagação do campo $\vec{E}_3$, assumindo que o sistema físico não é mais oticamente fino. Nesse caso, o campo gerado no processo não-linear, em um dado ponto da célula, após propagar uma distância z , pode ser absorvido pelos átomos em posições subsequentes do meio. Logo, o termo linear não deve ser desprezado e a coerência é escrita da seguinte forma:

$$\sigma_{ba} = \sum_{b',b} \frac{-1}{\Delta_{ab} + i\gamma_{ba}} \left[\Omega_{ab} + \frac{\Omega_{bc}\Omega_{ca}e^{-i\Delta kz}}{\Delta_{ca} + i\gamma_{ac}} + \frac{\Omega_{bd}\Omega_{da}e^{-i\Delta kz}}{\Delta_{da} + i\gamma_{ad}} \right] , \quad (2.37)$$

onde o somatório é feito sobre todos os níveis intermediários. A dependência deste resultado com o nível b' , está implícita na frequência de Rabi de dois fótons, mais especificamente na constante de acoplamento efetivo de dois fótons, definida na equação 2.10. Por fim, devemos resolver uma equação diferencial da forma:

$$\frac{\partial \Omega_{ba}}{\partial z} = Ae^{-i\Delta kz} - B \cdot \Omega_{ba}(z) , \quad (2.38)$$

onde A e B são:

$$A \equiv \frac{-i\kappa_{ab}}{\Delta_{ab} + i\gamma_{ab}} \sum_{b',b} \left[\frac{\Omega_{bc}\Omega_{ca}}{\Delta_{ca} + i\gamma_{ac}} + \frac{\Omega_{bd}\Omega_{da}}{\Delta_{da} + i\gamma_{ad}} \right],$$

$$B \equiv \sum_{b',b} \frac{i\kappa_{ab}}{\Delta_{ab} + i\gamma_{ab}}. \quad (2.39)$$

A solução da equação diferencial (equação 2.38) tem a forma:

$$\Omega_{ba}(z) = \frac{A}{B} + C \cdot e^{-Bz}. \quad (2.40)$$

Com a condição de contorno $\Omega_{ba}(0) = 0$, temos:

$$\Omega_{ba}(z) \equiv \sum_{b',b} \frac{-i\kappa_{ab}}{(\Delta_{ab} + i\gamma_{ab})} \left[\frac{\Omega_{bc}\Omega_{ca}}{\Delta_{ca} + i\gamma_{ac}} + \frac{\Omega_{bd}\Omega_{da}}{\Delta_{da} + i\gamma_{ad}} \right] \cdot \left(\frac{e^{(-i\Delta k)z} - e^{-Bz}}{B - i\Delta k} \right), \quad (2.41)$$

onde o termo B , definido na equação 2.39, pode ser reescrito explicitando a parte real e imaginária, da forma:

$$B = \sum_{b',b} \frac{i\kappa_{ab}\Delta_{ab}}{\Delta_{ab}^2 + \gamma_{ab}^2} + \frac{\kappa_{ab}\gamma_{ab}}{\Delta_{ab}^2 + \gamma_{ab}^2}. \quad (2.42)$$

Podemos identificar o segundo termo da equação acima (eq. 2.42) como sendo equivalente ao coeficiente de absorção linear [6].

Utilizando a equação 2.42, podemos reescrever o denominador da equação 2.41, e obter a seguinte solução para o campo gerado:

$$\Omega_{ba}(z) \equiv \sum_{b',b} \frac{\frac{\kappa_{ab}}{\Delta k}}{(\Delta_{ab} - \frac{\kappa_{ab}}{\Delta k} + i\gamma_{ab})} \left[\frac{\Omega_{bc}\Omega_{ca}}{\Delta_{ca} + i\gamma_{ac}} + \frac{\Omega_{bd}\Omega_{da}}{\Delta_{da} + i\gamma_{ad}} \right] \cdot \left(e^{(-i\Delta k)z} - e^{-Bz} \right). \quad (2.43)$$

Essa é a forma geral do campo gerado no processo de MQO, onde podemos observar um termo real adicional a ressonância de três fótons, $\frac{\kappa_{ab}}{\Delta k}$, que é responsável pelo deslocamento da ressonância. Esse termo depende tanto da densidade atômica, de forma implícita em κ_{ab} , quanto do ângulo de cruzamento entre os feixes de excitação. O deslocamento em frequência foi tratado detalhadamente na referência [58] e investigado em diferentes experimentos com vapor de Xenônio e Kriptônio por Payne, Garret e colaboradores [59, 45, 60]. Esses trabalhos apresentam resultados em técnicas multifotônicas envolvendo excitações por dois e três fótons e ionização por quatro fótons para estados com $n \approx 7$. Eles observaram um deslocamento para o lado de altas energias, linearmente proporcional a densidades atômica, com um coeficiente linear proporcional ao *oscillator strength* da transição. Utilizando um modelo associado ao deslocamento cooperativo, eles explicam bem os resultado no limite de baixas densidades mas não para altas densidades, associando esta discrepância à proximidade de ressonâncias que não foram consideradas.

Em nosso experimento, o deslocamento observado é menor quando comparado aos resultados citados acima, mas temos resolução suficiente para analisar o comportamento desse deslocamento num intervalo grande de densidade, aproximadamente três ordens de grandeza. Além disso, nosso modelo considera a contribuição de todos os caminhos quânticos possíveis na geração do sinal, o que leva em conta a proximidade com as ressonâncias mais relevantes.

Nossos experimentos compreendem ainda resultados em duas configurações relacionadas com os campos incidentes: a configuração colinear, onde os feixes de IV e corante incidem na amostra na mesma direção de propagação; e a configuração de feixes cruzados, onde os feixes incidem na amostra formando um ângulo, θ , entre eles. Cada uma dessas configurações nos permite fazer aproximações específicas no resultado para o campo gerado (equação 2.43). A seguir, analisamos cada configuração e suas especificidades.

2.2.2 Configuração colinear

Nessa configuração os feixes de excitação se propagam na amostra paralelamente e sobrepostos, de forma que o ângulo de cruzamento entre eles, θ , é nulo. Como em nosso experimento trabalhamos em uma situação de alta focalização, podemos considerar que $\Delta k = 0$ na região de superposição dos feixes. Então o campo gerado pode ser reescrito da seguinte forma:

$$\Omega_{ba}(z) \equiv \sum_{b',b} -1 \left[\frac{\Omega_{bc}\Omega_{ca}}{\Delta_{ca} + i\gamma_{ac}} + \frac{\Omega_{bd}\Omega_{da}}{\Delta_{da} + i\gamma_{ad}} \right] \cdot (1 - e^{-Bz}) . \quad (2.44)$$

Analisando esse resultado, podemos verificar que a ressonância com o nível intermediário, $6p$, não aparece mais de forma explícita no denominador, assim como a dependência linear do campo gerado com a densidade atômica. A dependência com esses parâmetros se restringem ao termo exponencial, e^{-Bz} .

Na configuração colinear, no limite de alta densidade atômica os efeitos de propagação, que são estudados detalhadamente na seção 4.3, se tornam relevantes. Para altas densidades, o termo exponencial na equação 2.44 vai à zero, e o campo gerado é escrito como:

$$\Omega_{ba}(z) \equiv \sum_{b',b} -1 \left[\frac{\Omega_{bc}\Omega_{ca}}{\Delta_{ca} + i\gamma_{ac}} + \frac{\Omega_{bd}\Omega_{da}}{\Delta_{da} + i\gamma_{ad}} \right]. \quad (2.45)$$

Substituindo esse resultado na equação 2.37, vemos que σ_{ba} vai a zero, e consequentemente $\frac{\partial \Omega_{ba}}{\partial z} = 0$. Indicando que, nesse limite, o campo Ω_{ba} satura, e sua amplitude se torna constante. Esse efeito é característico da interferência destrutiva de fótons ímpares, que foi observada em nossos resultados experimentais e é mostrada no próximo capítulo.

2.2.3 Configuração de feixes cruzados

Na configuração de feixes cruzados, os dois feixes de excitação incidem na amostra se cruzando em um ângulo θ . Esse ângulo é importante no cálculo de Δk , que influencia tanto na intensidade dos picos referentes as ressonâncias de dois e três fótons, quanto na posição da ressonância de três fótons, como mostrado na equação 2.43. Na situação em que o campo gerado na frequência ω_3 é quase ressonante com a transição entre os níveis a e b , ocorre uma variação do índice de

refração e, através da equação de Sellmeier [6], podemos escrever o índice de refração como função da densidade atômica e das ressonâncias do sistema como:

$$n(\omega_3) = 1 + 2\pi \text{Re}\chi^{(1)} = 1 + \frac{2\pi N\mu_{ab}^2}{2\hbar\epsilon_0} \frac{\omega_{ab} - (2\omega_1 - \omega_2)}{(\omega_{ab} - (2\omega_1 - \omega_2))^2 - \gamma_{ab}^2} . \quad (2.46)$$

Ou, usando a definição de κ_{ab} :

$$n(\omega_3) = 1 + \frac{\kappa_{ab}}{k_3} \frac{\omega_{ab} - (2\omega_1 - \omega_2)}{(\omega_{ab} - (2\omega_1 - \omega_2))^2 - \gamma_{ab}^2} . \quad (2.47)$$

Na configuração de feixes cruzados, precisamos considerar as diferentes direções dos campos incidentes no cálculo do termo de casamento de fase $\Delta k = (\vec{k}_3 - 2\vec{k}_1 + \vec{k}_2)_z$. Assim, usando a relação dos cossenos, escrevemos Δk da forma:

$$\Delta k = (\vec{k}_3 - 2\vec{k}_1 - \vec{k}_2)_z = \frac{1}{c} \left((2\omega_1 - \omega_2)n(\omega_3) - (2\omega_1 - \omega_2) \left[1 + \frac{8\omega_1\omega_2 \left(\sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \right)^2}{(2\omega_1 - \omega_2)^2} \right]^{\frac{1}{2}} \right) \quad (2.48)$$

Nosso objetivo é encontrar uma equação simplificada, que descreva o deslocamento do pico referente à ressonância de três fótons. Faremos duas simplificações, primeiro, sabemos que os ângulos típicos do nosso experimento são da ordem de 10^{-3} rad , de forma que podemos analisar o termo de casamento de fase no limite de ângulos pequenos. E segundo, vamos desconsiderar a dispersão do índice de refração. Apesar de $n(\omega_3)$ ser sensível à posição de ressonância, para as densidade típicas do nosso experimento a variação no índice de refração é da ordem de 10^{-3} , e como queremos obter um comportamento simplificado, podemos considerar considerar $n(\omega_3) = 1$. Nesse limite, a condição de casamento de fase pode ser reescrita como:

$$\Delta k \approx \frac{2\omega_1\omega_2(1 - \cos(\theta))}{c(2\omega_1 - \omega_2)} , \quad (2.49)$$

e o termo de deslocamento de frequência, mostrado na equação 2.43, como:

$$\frac{\kappa_{ab}}{\Delta k} \approx \frac{c(2\omega_1 - \omega_2)\kappa_{ab}}{2\omega_1\omega_2(1 - \cos(\theta))} . \quad (2.50)$$

Isso significa que, para densidades fixas, o deslocamento apresenta uma dependência do tipo:

$$\frac{\kappa_{ab}}{\Delta k} \approx \frac{C}{1 - \cos(\theta)} , \quad (2.51)$$

onde C é uma constante. Essa dependência simplificada se torna eficaz quando precisamos comparar os resultados teóricos e experimentais. O efeito de deslocamento da ressonância foi verificado experimentalmente, e analisado através da teoria apresentada até aqui. Esses resultados serão discutidos nos capítulos 3 e 4.

2.3 Correção de campo local

O tratamento apropriado para descrever o comportamento de uma amostra atômica, precisa relacionar as propriedades macroscópicas (índice de refração, susceptibilidades) com as propriedades microscópicas (polarizabilidades). Estabelecer essa relação não é uma tarefa simples, já que cada átomo interage com o meio, e devemos considerar todos os tipos de interação possíveis. Um procedimento para considerar essas interações é introduzindo o conceito de campo local, $\vec{E}_{local}$ [6], que é o campo efetivo sentido por um átomo considerando as fontes externas e a presença dos outros átomos da amostra. A diferença entre o campo local e o campo macroscópico se torna maior quanto mais o índice de refração para uma determinada frequência se distancia da unidade, o que ocorre na condição de alta densidade ou de proximidade com as ressonâncias. No nosso caso, o campo ω_3 é gerado aproximadamente ressonante com a transição $5s - 6p$, e os outros campos não apresentam proximidade com outras ressonâncias, assim só vamos aplicar essa correção em Ω_{ba} . Para essa análise, vamos considerar somente a contribuição dos níveis intermediários $6P_{3/2}$ e $5P_{3/2}$, eliminando o somatório das equações.

O campo local está relacionado com o campo macroscópico (utilizado nas equações de Maxwell), em unidades gaussianas, da forma [61]:

$$\vec{E}_{local} = \vec{E} + \frac{4\pi}{3} \vec{P}(\omega_3), \quad (2.52)$$

onde $\vec{P}(\omega_3)$ é a polarização macroscópica induzida na frequência ω_3 , definida na equação 2.28.

Na correção de campo local, devemos considerar que os campos que aparecem na equação para a coerência entre os estados a e b , equação 2.37, são campos efetivos. Assim, vamos reescrever esta equação (2.37):

$$\sigma_{ba} = \frac{-1}{\Delta_{ab} + i\gamma_{ab}} \left[\bar{\Omega}_{ab} + \frac{\Omega_{ac}\Omega_{cb}e^{-1\Delta kz}}{\Delta_{ac} + i\gamma_{ac}} + \frac{\Omega_{ad}\Omega_{db}e^{-1\Delta kz}}{\Delta_{ad} + i\gamma_{ad}} \right], \quad (2.53)$$

onde substituímos Ω_{ab} , por $\bar{\Omega}_{ab}$ que é a representação do campo efetivo.

Utilizando a definição de frequência de Rabi, podemos escrever $\bar{\Omega}_{ab}$ em função de Ω_{ab} , da forma:

$$\bar{\Omega}_{ab} = \frac{\mu_{ab} \times E_{3local}}{2\hbar} = \Omega_{ab} + \frac{4\pi}{3} \frac{\mu_{ab} P(\omega_3)}{2\hbar} = \Omega_{ab} + \frac{4}{3} \frac{\kappa_{ab} c}{2\omega_3} \sigma_{ab}, \quad (2.54)$$

onde c é a velocidade da luz, $\kappa_{ab} = \frac{Nk_3|\mu_{ab}|^2}{2\hbar\epsilon_3}$ como tínhamos definido, E_{3local} é a amplitude do campo local associado ao campo macroscópico $\vec{E}_3$, e $P(\omega_3)$ é a amplitude da polarização.

Assim, também podemos reescrever σ_{ba} , com a correção de campo local:

$$\sigma_{ba} = \frac{-1}{\Delta_{ab} + i\gamma_{ba}} \left[\Omega_{ab} + \frac{4}{3} \frac{\kappa_{ab} c}{2\omega_3} \sigma_{ab} + \frac{\Omega_{ac}\Omega_{cb}}{\Delta_{ac} + i\gamma_{ac}} + \frac{\Omega_{ad}\Omega_{db}}{\Delta_{ad} + i\gamma_{ad}} \right]. \quad (2.55)$$

Logo:

$$\sigma_{ba} = \frac{-1}{\Delta_{ab} + \frac{4}{3} \frac{\kappa_{ab} c}{2\omega_3} + i\gamma_{ab}} \left[\Omega_{ab} + \frac{\Omega_{ac}\Omega_{cb}}{\Delta_{ac} + i\gamma_{ac}} + \frac{\Omega_{ad}\Omega_{db}}{\Delta_{ad} + i\gamma_{ad}} \right]. \quad (2.56)$$

Nessa equação, identificamos o termo $\frac{4}{3} \frac{\kappa_{ab} c}{2\omega_3}$, como um termo real adicionado a ressonância de três fótons, caracterizando um deslocamento da ressonância conhecido como deslocamento de Lorentz. Maki e colaboradores [62], examinaram o efeito de campo local em vapor de potássio, no regime de resposta linear e não-linear. Seus resultados mostraram a presença de um deslocamento da ressonância de três fótons, que no regime de resposta linear (baixas densidades), pode ser bem descritos com o tratamento feito nessa seção. Já no regime não linear (alta densidade), se torna necessário introduzir outros efeitos, como o deslocamento induzido por colisões [63], definido como $\Delta\omega_{col} = \frac{2\pi N e^2 a_0^2}{3\hbar}$, onde a_0 é o raio de Bohr, N a densidade atômica e e é a carga do elétron.

O deslocamento de Lorentz é, em geral, muito pequeno no caso dos vapores de metais alcalinos [34] e menores que o deslocamento provocado quando consideramos a propagação do campo $\vec{E}_3$. Para densidades da ordem de 10^{15} cm^{-3} o deslocamento de Lorentz é da ordem de 10^{-4} cm^{-1} . Em nosso experimento não temos resolução para identificar deslocamentos desta ordem, por isso esse termo não é considerado na descrição dos nossos resultados.

2.4 Geração de segundo harmônico

O processo de geração de segundo harmônico é um processo não-linear, descrito por uma polarização macroscópica induzida no meio, dependente de uma susceptibilidade de segunda ordem. Assim como discutido na seção 2.1, os processos de ordem pares não são permitidos em meios centro-simétricos na aproximação de dipolo elétrico. Entretanto, o sinal de geração de segundo harmônico tem sido observado em diferentes experimentos [64, 25, 65].

Mossberg e colaboradores [66] fizeram estudos da geração de segundo harmônico em Tálho, em um meio centro-simétrico, justificando suas observações por uma quebra na simetria do meio devido a um campo elétrico radial estático produzido por ionização, permitindo a geração do sinal. Resultados sobre o perfil espacial do feixe de SH [65] e dependência temporal [67], assim como resultados obtidos durante nosso projeto de mestrado [68], estão de acordo com esse modelo.

O mecanismo de um campo elétrico estático induzido por ionização, nos permite relacionar a geração de segundo harmônico com um processo não-linear via susceptibilidade de terceira ordem, (χ^3). De forma geral, podemos escrever a polarização de segundo harmônico resultante de um campo de excitação $\vec{E}_1$ e um campo estático $\vec{E}_s$, semelhante a equação 2.2, da forma [25]:

$$\vec{P}^{(3)}(2\omega) = \chi_a^{(3)}(2\omega)\vec{E}_1(\omega) \left[\vec{E}_s \cdot \vec{E}_1(\omega) \right] + \chi_b^{(3)}(2\omega)\vec{E}_s \left[\vec{E}_1(\omega) \cdot \vec{E}_1(\omega) \right] \quad (2.57)$$

Nessa expressão a polarização de terceira ordem é escrita como uma soma de duas parcelas, explicitando as duas direções possíveis de $\vec{P}$. Essas direções são determinadas pelo resultado dos produtos internos nos dois termos da soma. Assim, no primeiro e no segundo termo, a polarização deve assumir as direções dos campos E_1 e E_s , respectivamente. Essas susceptibilidades podem ser determinadas utilizando o formalismo de matriz densidade aplicado a um sistema de quatro níveis, seguindo o mesmo procedimento que utilizamos para descrever o processo de mistura de quatro ondas.

Considerando o esquema de níveis mostrado na figura 2.1, no caso da geração de segundo harmônico, precisamos considerar a contribuição dos níveis intermediários no processo de decaimento. Como não há um campo induzindo a coerência entre os estado c (ou d) e o estado b , vão ocorrer emissões paramétricas, a partir dos níveis mais próximos do estado de Rydberg [68].

Especificamente no nosso experimento, os níveis envolvidos são: $a \equiv 5s$, o estado fundamental do átomo de rubídio; c e d são os estado de Rydberg, nd e $(n+2)s$ com $n = 14 - 20$, assim como descrevemos no processo de MQO. A diferença é que neste caso o nível b não é definido e por isso precisamos somar a contribuição de todos os níveis intermediários. Podemos então escrever a amplitude da polarização como:

$$P^{(3)}(2\omega) \propto \sum_b \frac{\Omega_{bi}\Omega_{ab}}{(\Delta_{ab} + i\gamma_{ab})(\Delta_{bi} + i\gamma_{bi})}, \quad (2.58)$$

onde $i = c$ ou d . Escrita dessa forma, a polarização considera todas as possíveis combinações de estados que podem estar envolvidos no processo de geração de segundo harmônico.

Um estudo detalhado do sinal de geração de segundo harmônico foi realizado no nosso trabalho de mestrado [68], onde investigamos o alargamento assimétrico das linhas espectrais e dependência do sinal gerado com a densidade atômica. Nosso sistema atual permite observar tanto a geração do sinal de MQO quanto o sinal de SH. Assim, no próximo capítulo, apresentamos a comparação dos espectros de excitação para os dois processos não-lineares, analisando o perfil espectral e a intensidade relativa.

Resultados experimentais em vapor de Rb.

Neste capítulo, vamos apresentar os resultados experimentais obtidos no processo de mistura de quatro ondas (MQO) em um vapor atômico de Rb. Estudamos processos envolvendo ressonâncias por dois fótons, observando a coerência entre o estado fundamental $5s$ e estados de Rydberg com número quântico principal, n , entre 14 e 22 para as linhas s e d . E também ressonâncias por três fótons, em particular envolvendo os estados $6P_{3/2}$ e $6P_{1/2}$. Duas configurações foram utilizadas neste estudo, a configuração colinear (quando os feixes incidentes na amostra são copropagantes e formam um ângulo zero entre si) e a configuração de feixes cruzados (onde os feixes de excitação incidem na amostra formando um ângulo θ entre si). Além disso, comparamos os resultados experimentais da mistura de quatro ondas com os resultados de geração de segundo harmônico (SH), dois processos não-lineares envolvendo os mesmos estados de Rydberg.

Inicialmente, vamos apresentar o sistema experimental, suas características e a técnica utilizada.

3.1 Sistema experimental

Para a realização desse experimento utilizamos dois lasers, em diferentes comprimentos de onda, que interagem com átomos de Rb contidos em uma célula de pirex selada. Uma representação geral do esquema experimental é mostrada na figura 3.1.

O primeiro feixe é gerado por um laser de corante, sintonizável, em torno do comprimento de onda de 602 nm . Neste trabalho o laser de corante é definido como laser 1, e quando nos referimos às suas características usaremos este índice na representação (frequência ω_1 e amplitude do campo E_1). O laser de corante é bombeado pelo segundo harmônico de um laser de Nd:YAG, pulsado, modelo *Surelite* (Continuum), cujas características gerais são: comprimento de onda de $1064,5\text{ nm}$, duração do pulso de 5 ns e taxa de repetição de 5 Hz . Parte do feixe fundamental do laser de Nd:YAG com comprimento de onda $1064,5\text{ nm}$, na região de infravermelho (IV), também é utilizado para excitar a amostra, e é definido como laser 2, suas características serão representadas pelo índice 2 (frequência ω_2 e amplitude do campo E_2).

O laser 1 é responsável pela excitação dos átomos de Rb do estado fundamental $5s$ para os estados de Rydberg, nl , com n variando entre 14 e 22, e l podendo ser s ou d . O laser 2 estimula o processo de emissão de um fóton na frequência ω_2 e conseqüentemente a geração do sinal de MQO na frequência $\omega_3 = 2\omega_1 - \omega_2$, que será representado pelo índice 3 (frequência ω_3 e amplitude do campo E_3).

Os dois lasers são focalizados na célula de pirex que mede 5 cm de comprimento e 3 cm

de diâmetro, contendo uma mistura de ^{85}Rb e ^{87}Rb , na proporção encontrada na natureza (72% de ^{85}Rb e 28% de ^{87}Rb). A célula é colocada dentro de um forno caseiro com aberturas para entrada e saída dos feixes de lasers, e suas janelas são mantidas a uma temperatura em torno de 25 K maior que o centro da célula para evitar a deposição dos átomos de Rb. A temperatura é medida por um termopar do tipo *cromel-alumel* fixado externamente em uma posição central da célula que permite a determinação da temperatura com um erro de aproximadamente 5°C .

A densidade atômica é modificada através do controle da temperatura do forno, através da relação proposta por A. Gallagher [69]:

$$\log_{10}(N) = -\frac{A}{T} - (B + 1)\log_{10}(T) + C + 18,985, \quad (3.1)$$

onde N é a densidade atômica em cm^{-3} , T é a temperatura em K, e as constantes A , B , e C tem os seguintes valores: 4302; 1,5; e 11,722, respectivamente. Com isso, sabemos que na faixa de temperatura que trabalhamos, T variando de 130 a 260°C , a densidade atômica varia entre $3,0 \times 10^{13}$ e $6,5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$, com uma incerteza de aproximadamente 30%.

O sinal gerado é emitido na direção dos feixes incidentes, com comprimento de onda em torno de 420 nm, e é analisado por um monocromador, modelo 1681A (Instruments S.A.), localizado aproximadamente a 0,5 m da saída do forno. A detecção é feita por uma fotomultiplicadora, modelo 1P28 (Hamamatsu). Na entrada do monocromador utilizamos filtros passa banda para bloquear os feixes incidentes. O sinal, então, é processado por um integrador box-car, módulo SR250 da Stanford Research Systems, que também fornece o programa SR272, utilizado para leitura dos dados. Para conexão do sistema de detecção ao computador utilizamos o módulo SR245 e uma placa PCI-GPIB da National Instruments.

O laser de corante [70], cuja cavidade foi montada por nós, é excitado transversalmente utilizando uma lente cilíndrica de distância focal 10 cm e tem como meio ativo o corante Rodamina 610, diluído em metanol, com concentração $1,5 \times 10^{-3} \text{ M}$. Como elemento dispersivo utilizamos uma grade de difração, com 1800 ranhuras por milímetro, em montagem rasante, seguindo uma configuração do tipo *Littrow* [71]. A primeira ordem de difração da grade é refletida por um espelho ajustável e retorna para o meio ativo, estimulando o processo de emissão. A ordem zero de difração é utilizada como saída do laser de corante. Para a sintonização em frequência variamos o ângulo de retorno da primeira ordem de difração conectando um motor de passos, por um sistema de engrenagem, ao parafuso micrométrico do espelho de retorno. Na saída do laser utilizamos um polarizador de forma que o feixe, linearmente polarizado, é enviado a dois amplificadores. Esses amplificadores também são excitados transversalmente com lentes cilíndricas de 10 cm de distância focal, e têm como meio ativo Rodamina 640B, diluído em etanol, com concentração $1,2 \times 10^{-5} \text{ M}$. Os parâmetros típicos do sistema laser-amplificadores são: banda de emissão de 590 – 620 nm e largura de linha de aproximadamente $0,45 \text{ cm}^{-1}$, medida com o auxílio de um etalon. A potência média gerada pelo laser de corante, campo 1, é de 2,0 mW e para o laser no infravermelho, campo 2, utilizamos 5,0 mW de um total de 200 mW.

Os feixes dos lasers, correspondentes aos campos 1 e 2, com diâmetros aproximados de 0,7 e 1,5 cm, respectivamente, são combinados através de um espelho dicróico e focalizados no centro da célula. Podemos controlar a cintura dos feixes através da lente utilizada para focalizar. Utilizando lentes com focos entre 20 e 50 cm, a cintura dos dois feixes, ω_0^{IV} e $\omega_0^{\text{corante}}$, pode

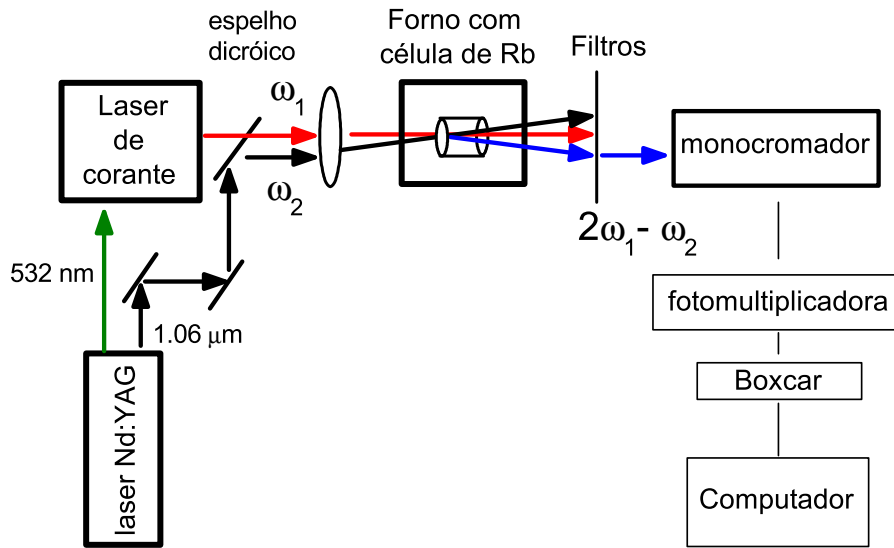


Figura 3.1 Esquema experimental utilizado nas medidas de mistura de quatro ondas em vapor.

variar entre $50 - 150 \mu\text{m}$. Optamos por trabalhar com uma lente de 30 cm de foco, formando uma cintura de aproximadamente $150 \mu\text{m}$ para o campo 1 e $100 \mu\text{m}$ para o campo 2. Essa escolha foi feita otimizando a geração de MQO, já que quanto menor a cintura dos feixes menor a região de interação e que se a cintura for muito grande a intensidade de excitação se torna pequena.

Os feixes de excitação incidem na célula se cruzando em um ângulo θ , que é controlado por um parafuso micrométrico conectado ao espelho dicróico que transmite o corante e reflete o IV. Variamos esse ângulo entre 0 e 78 mrad , com um erro de aproximadamente $1,5 \text{ mrad}$. Chamamos de configuração colinear quando $\theta = 0$ e configuração de feixes cruzados quando $\theta \neq 0$. Até 19 mrad é possível formar o ângulo utilizando uma única lente, fazendo com que um dos feixes atravesse o centro da lente e o outro passe pela extremidade. Para ângulos maiores isto não é possível devido ao diâmetro das lentes utilizadas, assim, é preciso que cada feixe seja focalizado por uma lente diferente.

Para calibração do laser de corante utilizamos um duplo espectrômetro, com fendas de $100 \mu\text{m}$ o que corresponde a uma resolução de $\approx 1 \text{ cm}^{-1}$. Medimos o comprimento de onda e a intensidade do laser para cada posição do parafuso micrométrico de sintonização. O resultado é apresentado na Fig. 3.2: (a) variação da intensidade do laser de corante em função do comprimento de onda e (b) o comprimento de onda em função da posição do parafuso micrométrico. Na figura 3.2a, a curva sólida representa um guia para os olhos do comportamento geral, e podemos ver que na região marcada pelo seguimento horizontal, a intensidade do laser de corante é praticamente constante. Esse intervalo compreende os níveis com n entre 12 e 22,

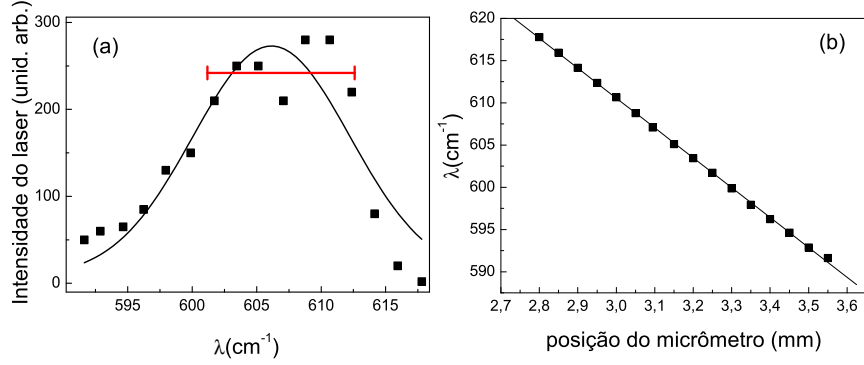


Figura 3.2 (a) Curva de intensidade do laser de corante; (b) Curva de calibração do laser de corante.

de forma que todos os níveis estudados estão dentro desse intervalo.

3.2 Resultados

Na figura 3.3, apresentamos um esquema simplificado dos níveis de energia do átomo de rubídio que são relevantes para o nosso experimento. As setas verticais em vermelho representam o processo de excitação da coerência entre o estado fundamental $5s$ e um estado excitado $n/$ induzido pela absorção de dois fótons do campo 1, e a seta em azul que aponta para baixo representa o processo de emissão estimulada induzida pelo campo 2. A seta ondulada em verde indica o campo gerado na mistura de quatro ondas enquanto que a seta ondulada em preto representa o campo gerado no processo de geração de segundo harmônico. Com o laser de corante sintonizável na região de comprimento de onda mostrada na figura 3.2(a), podemos acessar estados com energia em torno de 33190 cm^{-1} o que corresponde a n entre 11 e 22 e $l = s, d$. Também podemos verificar que, no processo de excitação, não há ressonâncias intermediárias próximas por um único fóton, uma vez que o nível mais próximo, corresponde ao estado $5P_{3/2}$, distante da ressonância cerca de 3000 cm^{-1} .

A seguir abordaremos cada uma das duas configurações experimentais estudadas, colinear e de feixes cruzados, separadamente.

3.2.1 Configuração colinear

Na configuração colinear, o ângulo entre os feixes de excitação é zero, resultando no sinal de MQO, gerado coerentemente, na mesma direção dos feixes incidentes.

Um espectro de excitação típico do sinal de MQO é mostrado na figura 3.4 onde apresentamos a intensidade do sinal gerado em função de $\Delta\omega = 2\omega_1 - \omega_{17d-5s}$, onde $\omega_{17d-5s} = (E_{17d} - E_{5s})/\hbar$. Essa varredura foi realizada com densidade fixa de $N = 0,9 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ e intensidades de excitação de $1,0 \text{ GW/cm}^2$ e $3,0 \text{ GW/cm}^2$ para os campos 1 e 2, respectivamente.

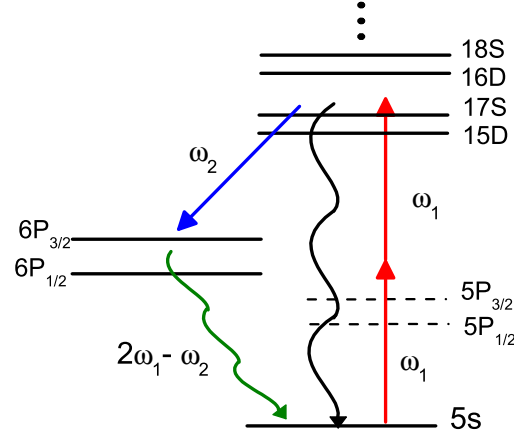


Figura 3.3 Níveis de energia do átomo de Rb relevantes para o processo de mistura de quatro ondas.

Utilizamos um espectrômetro centrado no comprimento de onda de 420 nm , com uma fenda de $2,5\text{ mm}$ correspondendo a uma janela de 9 nm , suficiente para detectar todo o sinal. A resolução das medidas é limitada pela largura de linha dos lasers, o que não permite resolver a estrutura fina dos níveis d . Podemos observar dois picos correspondentes às ressonâncias de dois fótons entre os estados $5s$ - $17d$ e $5s$ - $19s$ e que apresentam uma largura de linha da ordem de $1,5\text{ cm}^{-1}$.

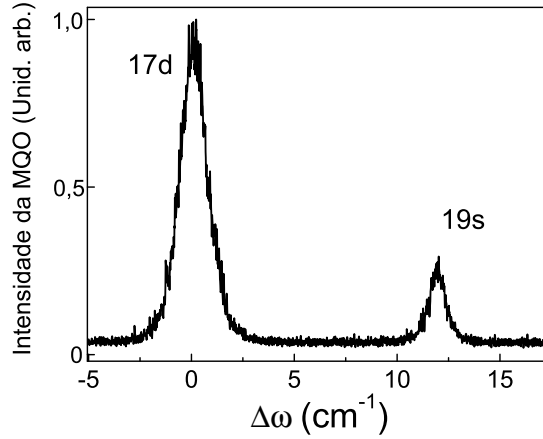


Figura 3.4 Espectro típico do sinal de mistura de quatro ondas, envolvendo os estados $17d$ e $19s$.

Como o laser de corante apresenta uma banda larga de sintonização, é possível observar o sinal de mistura de quatro ondas envolvendo outras ressonâncias de dois fótons. Na figura 3.5, podemos comparar os espectros de excitação para diferentes regiões espectrais. A intensidade do sinal é mostrada em função de $\Delta\omega = 2\omega_1 - \omega_{nd-5s}$ onde $\omega_{nd-5s} = (E_{nd} - E_{5s})/\hbar$,

n	$\omega_{nd} - \omega_{(n+2)s} (cm^{-1})$
14	22,29
15	17,83
16	14,41
17	11,92
20	7,11

Tabela 3.1 Diferença de energia entre os estado nd e $(n+2)s$

e $\Delta\omega = 0$ é a condição de ressonância de dois fótons com o estado nd . A densidade atômica é fixada em $5,0 \times 10^{15} cm^{-3}$, e as intensidades dos lasers de excitação são 1,0 e 3,0 GW/cm^2 , para os campos 1 e 2, respectivamente. Para comparação, cada curva é deslocada verticalmente e normalizada em relação ao pico nd , de forma que a intensidade relativa entre as curvas experimentais é dada pelo fator multiplicativo entre parênteses. O sinal é detectado com o espectrômetro fixado na frequência de MQO correspondentes.

A curva superior apresenta um único pico, correspondente à transição de dois fótons entre os estados $5s$ e $14d$. Nas curvas seguintes, os dois picos maiores correspondem às ressonâncias de dois fótons com os estados nd e $(n+2)s$ com $n = 15 - 20$. A distância entre os estados nd e $(n+2)s$ são mostradas na tabela 3.1, e correspondem à diferença de frequência entre estes estados.

Também podemos observar um terceiro pico, alargado e pouco definido, entre os estados $15d$ e $17s$ e entre os estados $16d$ e $18s$, em uma frequência intermediária entre os picos maiores. Esses picos intermediários estão relacionados com transições por três fótons entre o estado fundamental e os estados $6P_{1/2}$ e $6P_{3/2}$, respectivamente, e a subsequentemente emissão de volta ao estado fundamental.

Nesse resultado, a intensidade de cada pico é relacionada com a probabilidade de transição por dois fótons $5s - nl$, que é proporcional ao momento de dipolo da transição e inversamente proporcional ao número quântico principal, n . Essa probabilidade é suficiente para explicar a relação de intensidade entre a primeira e a última curva, que são associadas aos estados $14d$ e $20d$, respectivamente. Porém, quando analisamos a relação de intensidade entre as curva envolvendo os estados $15d$, $17s$, $16d$, $18s$, $17d$ e $19s$, ou ainda, quando comparamos a relação entre os picos nd e $(n+2)s$ em cada curva, relacionar diretamente a probabilidade de transição não é suficiente. Nesse caso, é preciso considerar a frequência de Rabi da transição de dois fótons, Ω_{ai} , que depende do momento de dipolo das transições e da proximidade com as ressonâncias intermediárias. Podemos verificar a validade dessa comparação em cada curva, observando que os picos associados aos estados nd são maiores que os picos associados aos estados $(n+2)s$, e de fato $\Omega_{ad} > \Omega_{as}$. Além disso, observamos o aumento de intensidade das curvas envolvendo os estados $15d$, $17s$, $16d$ e $18s$, devido a proximidade com o estado $6p$, ressonante por três fótons.

Para inferir corretamente as informações de cada curva, como posição, intensidade e largura de linha dos picos, é preciso fazer um ajuste matemático resultante da superposição de dois ou três picos. Uma aproximação razoável é fazer o ajuste considerando gaussianas. Dois procedimentos são adotados, o primeiro é utilizado quando temos picos bem definidos, o que

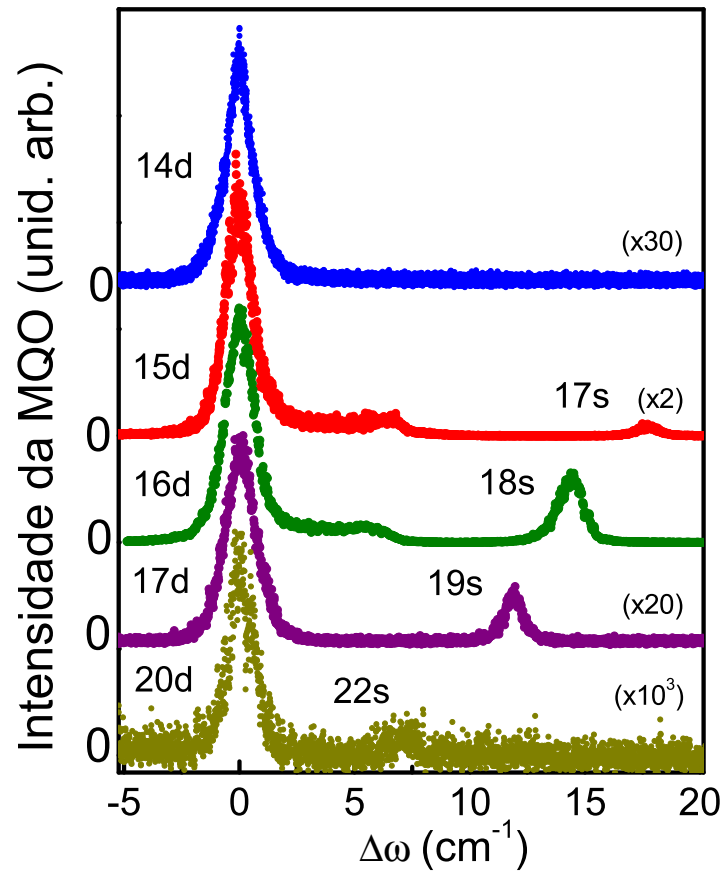


Figura 3.5 Espectro de excitação do sinal de mistura de quatro ondas, envolvendo os estados nd , $(n+2)s$, com $n = 14 - 20$, e as ressonâncias de três fótons $6P_{3/2}$ e $6P_{1/2}$, com $5,0 \times 10^{15} \text{cm}^{-3}$.

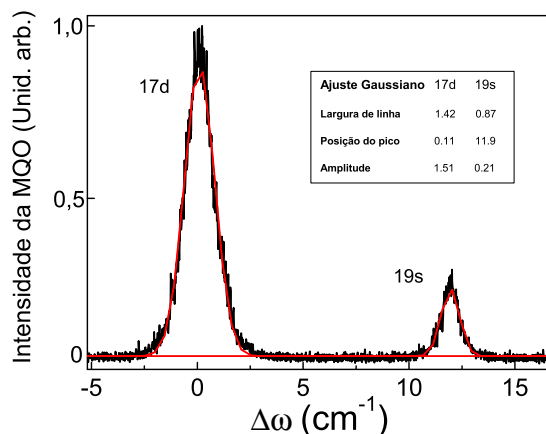


Figura 3.6 Espectro de excitação do sinal de MQO envolvendo os estados $17d$ e $19s$, e ajuste gaussiano.

acontece quando não observamos ressonâncias de três fótons. Nesse caso o ajuste é feito por uma soma direta de duas ou mais gaussianas, uma para cada pico do espectro considerado, onde podemos indicar a região onde cada gaussiana pode ser ajustada. Na figura 3.6, mostramos o ajuste para o espectro de excitação envolvendo os estados $17d$ e $19s$. Como podemos ver, o ajuste é bem eficiente, nos permitindo identificar a posição, amplitude, e largura de linha de cada pico.

Um segundo procedimento é feito quando os picos não são bem definidos, o que ocorre na ressonância de três fótons no limite de alta densidade. Nesse caso é necessário fazer um ajuste nos dois picos externos, subtrair o ajuste do resultado experimental, com o objetivo de isolar o pico não definido, e então fazer um novo ajuste. Esse procedimento é exemplificado nas figuras 3.7a e 3.7b, onde mostramos o ajuste feito para um espectro de excitação envolvendo os estados $16d$ e $18s$. Na figura 3.7a, realizamos o ajuste-1 de uma soma de duas gaussianas posicionadas nas ressonâncias de dois fótons, e então subtraímos o resultado experimental da curva de ajuste-1. O resultado da subtração é mostrado na figura 3.7b, onde a curva contínua (vermelha) é o resultado de um ajuste gaussiano, que indica a posição do pico referente à ressonância de três fótons com o estado $6P_{3/2}$, e que vamos chamar de ajuste-2. Na figura 3.8, verificamos o resultado do ajuste gaussiano resultante, que corresponde a soma dos ajuste 1 e 2. Esse ajuste resultante descreve bem o resultado experimental, inclusive a largura de linha associada ao pico que não é bem definido. Esses procedimentos de ajustes gaussianos são realizados em todos os espectros experimentais para determinação da intensidade, largura e posição de cada pico.

Em relação à largura de linha das ressonâncias de dois fótons, os picos apresentam uma largura em torno de $1,5 \text{ cm}^{-1}$, com uma tendência de alargamento em função do aumento do número quântico principal, para densidade fixa. Porém, a proximidade da ressonância de três fótons influencia bastante na largura do pico, de forma que, na figura 3.5, os picos 15 , 16 e $17d$ são os mais largos e o pico correspondente ao estado $14d$ é o de menor largura.

A dependência do sinal de mistura de quatro ondas na ressonância com o nível $16d$ em função da intensidade dos lasers incidentes é mostrada na figura 3.9. Nesse gráfico, cada ponto

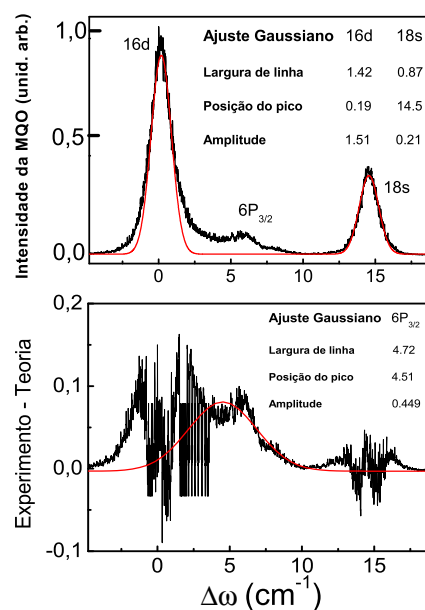


Figura 3.7 (a) Espectro de excitação do sinal de MQO envolvendo os estados $16d$ e $18s$ (curva preta), e o ajuste gaussiano (curva vermelha). (b) Subtração entre curva experimental e ajuste gaussiano (curva preta), e o ajuste gaussiano da curva de subtração (curva vermelha).

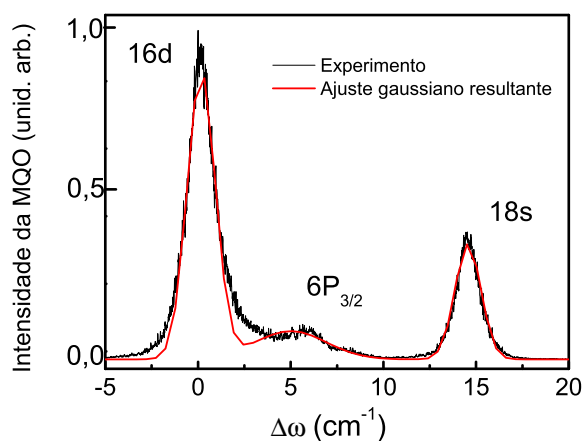


Figura 3.8 Espectro de excitação do sinal de MQO envolvendo os estados $16d$ e $18s$, e ajuste gaussiano resultante da soma dos dois ajuste: ajuste gaussiano dos dois picos maiores e ajuste gaussiano da curva de subtração.

é resultado de um espectro ajustado como mostrado nas figuras 3.6-3.8, tomando como valor de referência o valor máximo do pico associado à ressonância de dois fótons com o estado $16d$. Para cada intensidade, é necessário verificar a tensão na fotomultiplicadora e os filtros utilizados para que não ocorra saturação na detecção. Variamos a intensidade utilizando filtros neutros a partir de um valor máximo de intensidade para os dois lasers de excitação. Esse valor máximo é representado na figura 3.9 como 100, e significa 1 GW/cm^2 para o laser de corante e $3,5 \text{ GW/cm}^2$ para o laser no IV. A intensidade do sinal de mistura de quatro ondas é normalizada pelo valor máximo de intensidade. Como o processo de geração de MQO depende de dois fótons do campo 1 e um fóton do campo 2, esperamos uma dependência quadrática com o campo 1 e linear com o campo 2. Na figura 3.9, verificamos essa dependência e podemos ver uma variação de duas ordens de grandeza na intensidade do sinal de mistura de quatro ondas quando variamos de duas ordens de grandeza a intensidade do laser de IV ou uma ordem de grandeza a intensidade do laser de corante. Através de um ajuste linear verificamos que o comportamento do sinal gerado em função da intensidade do laser no IV é linear como esperado. Porém, a dependência com a intensidade do laser de corante apresenta dois regimes, para baixas intensidades observamos o comportamento quadrático como esperado, e para altas intensidades a inclinação diminui, mostrando uma dependência quase linear. A intensidade em que a dependência se torna linear é definida como intensidade crítica, e depende da densidade atômica. No resultado mostrado na figura 3.9, a intensidade crítica é $0,1 \text{ GW/cm}^2$, para uma densidade fixa em $6,5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$.

A dependência do sinal gerado em função da intensidade dos lasers de excitação, também foi investigada para os outros estados de Rydberg presentes na figura 3.5, sendo observado o mesmo tipo de comportamento descrito para o nível $16d$. Essa mudança no comportamento da intensidade do sinal gerado indica uma saturação por potência, significando que deveríamos considerar um tratamento perturbativo até mais altas ordens no campo $\vec{E}_1$. Para simplificar o modelo teórico, isso não foi feito, já que considerando mais altas ordens nos campos não seria possível resolver as equações de *Maxwell* analiticamente e seria necessário um cálculo numérico iterativo. Apesar disso, o modelo teórico consegue explicar bem os resultados experimentais, o que será mostrado no capítulo 4.

Também investigamos o comportamento da intensidade do sinal de mistura de quatro ondas com a densidade atômica, medindo o valor máximo de cada pico associado à ressonância de dois fótons com os níveis $16d$ e $18s$, conforme mostrado na figura 3.10. De acordo com a equação 2.16, esperamos uma dependência quadrática da intensidade do sinal gerado em função da densidade atômica, comum aos processos coerentes [72]. Através de um ajuste linear, visto na figura 3.10, verificamos um comportamento quadrático quando consideramos o nível $18s$, porém observamos uma inclinação de aproximadamente 1,6 para o estado $16d$, indicando uma saturação do sinal.

Experimentalmente, o controle da densidade, baseado no controle de temperatura, é delicado, pois exige um tempo longo de cerca de 10 min para estabilização da temperatura a cada nova densidade. Para nos certificarmos que os dois níveis, nd e $(n+2)s$, sejam medidos nas mesmas condições experimentais, para cada densidade, realizamos uma varredura que compreenda as duas ressonâncias. A cada espectro inferimos o valor da intensidade de cada pico, ajustando uma superposição de curvas gaussianas, como mostrado nas figuras 3.6 -3.8 Na figura 3.10,

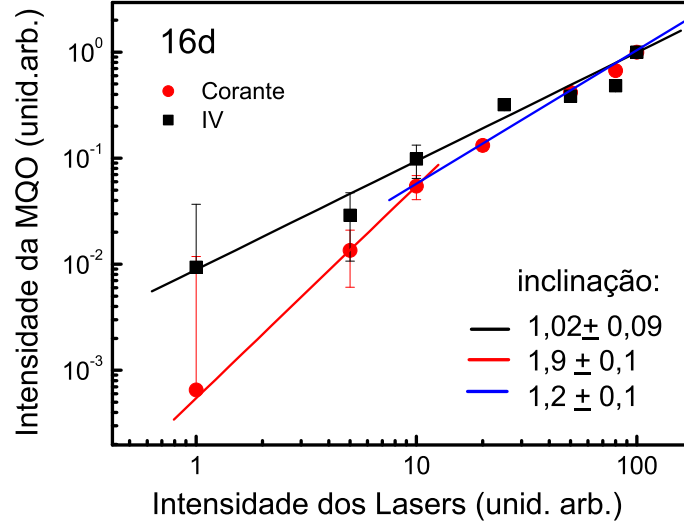


Figura 3.9 Dependência do sinal de mistura de quatro ondas com a intensidade dos lasers de excitação. O valor máximo, 100 %, significa 1 GW/cm^2 para o laser de corante e $3,5 \text{ GW/cm}^2$ para o laser no IV.

cada cor representa um conjunto de dados obtidos em um único dia de medida e a distribuição dos resultados indica uma uniformidade nas características experimentais e corrobora o comportamento observado.

Na figura 3.11 podemos observar os espectros de excitação correspondentes às ressonâncias por dois fótons com os estados $16d$ (Fig. 3.11a) e $15d$ (Fig. 3.11b), para três valores de densidades atômicas: (a) $6,5 \times 10^{15}$, (b) $1,0 \times 10^{15}$, e (c) $0,1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$. Para essas medidas, variamos a temperatura da célula de vapor de 150 a $259^\circ \text{ Celsius}$, correspondendo a uma variação de mais de uma ordem de grandeza na densidade atômica. A figura 3.11 se torna importante no estudo da forma de linha dos espectros, porque a partir dela podemos verificar que com o aumento da densidade atômica picos relacionados às ressonâncias de dois e três fótons apresentam um aumento na largura de linha. Quando a ressonância de três fótons se desloca para o lado de baixa energia, acaba ocorrendo uma superposição com o pico associado à ressonância de dois fótons com os estados nd , tornando este pico assimétrico para o lado de altas energias. Já o pico associado ao estado $(n+2)s$, também apresenta alargamento, porém não é observada nenhuma assimetria para as densidades estudadas.

Na densidade atômica que estamos trabalhando, onde colisões atômicas se tornam importantes, o alargamento das linhas espectrais é uma indicação clara de um efeito induzido por colisões entre átomos de rubídio. Não associamos à uma interação do tipo Rydberg-Rydberg, já que a forma assimétrica dos picos, para o lado de baixas energias, característica deste tipo de interação [24], não é observada em nossos resultados. O campo de mistura de quatro ondas, descrito pelas equações de *Maxwell* no capítulo anterior, é gerado pela polarização induzida no sistema atômico, e na ressonância de dois fótons, essa polarização é proporcional à coerência induzida pelos campos incidentes entre um estado de Rydberg e o estado fundamental. Assim,

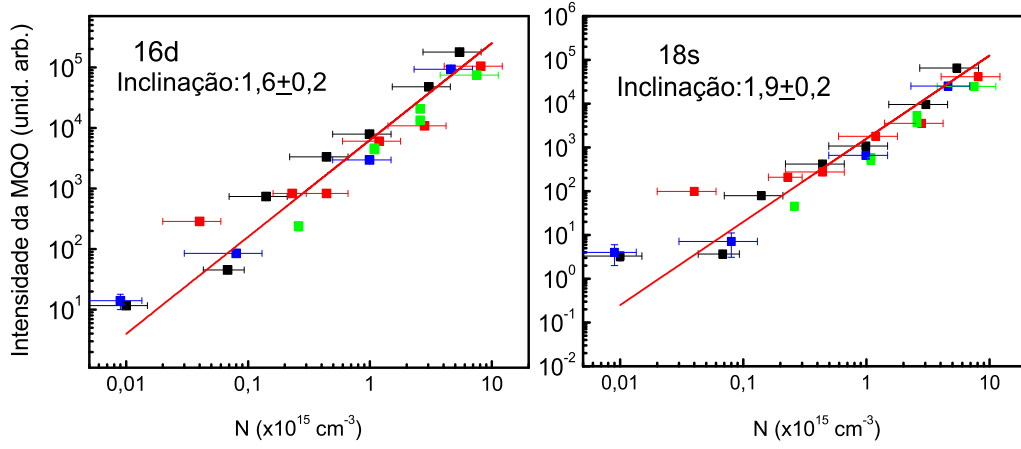


Figura 3.10 Intensidade do sinal de MQO em função da densidade atômica para dois estados ressonantes por dois fótons (a) 16d e (b) 18s.

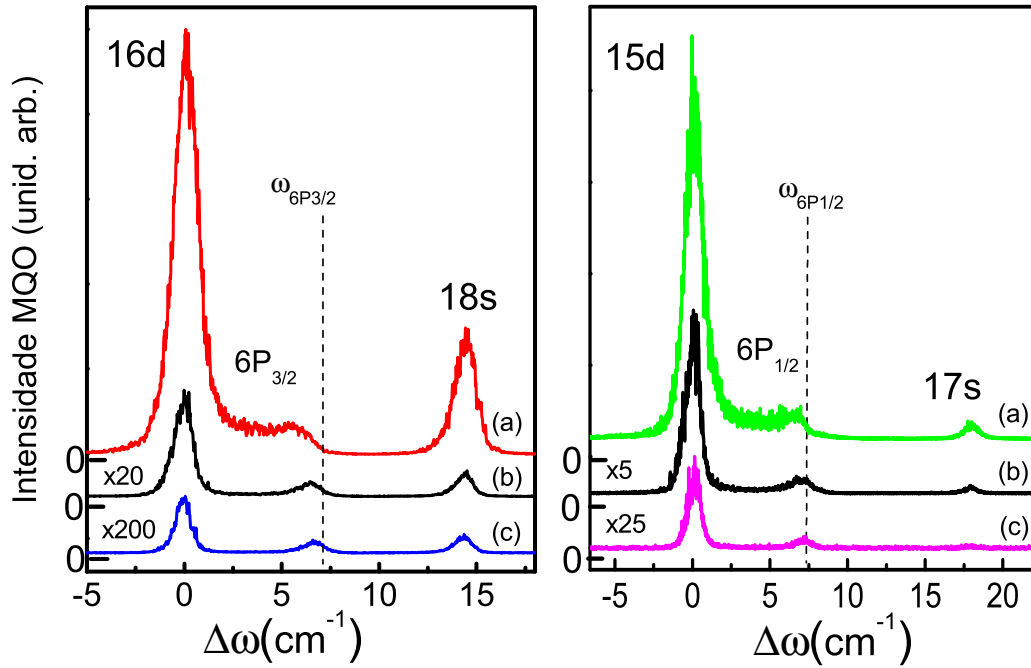


Figura 3.11 Espectros de excitação do sinal de MQO na configuração colinear, para diferentes densidades atômicas: (a) $6,5 \times 10^{15}$, (b) $1,0 \times 10^{15}$, e (c) $0,1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$.

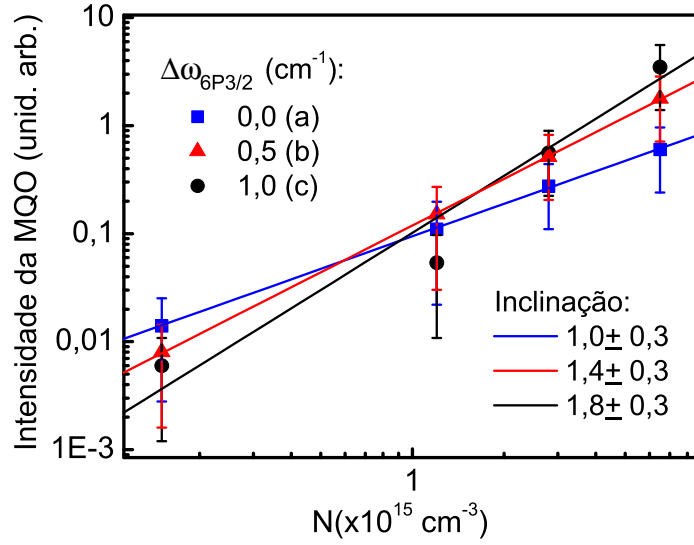


Figura 3.12 Dependência do sinal de MQO em função da densidade atômica para três posições de observação em relação a ressonância de três fótons: (a) $0,0 \text{ cm}^{-1}$; (b) $0,5 \text{ cm}^{-1}$; (c) $1,0 \text{ cm}^{-1}$.

atribuímos o alargamento dos picos associados às ressonâncias, a um efeito de superposição coerente entre estados de Rydberg e o estado fundamental, o que será discutido no próximo capítulo.

Como vimos no capítulo dois, a ressonância de três fótons, apresenta duas características significativas com o aumento da densidade atômica [58]: uma saturação de intensidade e um deslocamento do pico associados à essa ressonância para o lado de baixa energia. Para investigar o efeito de saturação, na figura 3.12, mostramos a dependência da intensidade do sinal de mistura de quatro ondas em função densidade atômica, para diferentes frequências fixas do laser 1. Vamos definir as posições de acordo com a quantidade $\Delta\omega_{6P3/2} = \omega_{ab} - (2\omega_1 - \omega_2)$, onde $\omega_{ab} = \omega_{5s6p} = (E_{6p} - E_{5s})/\hbar$. As três posições estudadas e apresentadas na figura 3.12 são: (a) exatamente na ressonância de três fótons $\Delta\omega_{6P3/2} = 0,0$; e (b) $\Delta\omega_{6P3/2} = 0,5$; e (c) $\Delta\omega_{6P3/2} = 1,0 \text{ cm}^{-1}$.

Nesse resultado verificamos que na posição da ressonância de três fótons, $\Delta\omega_{6P3/2} = 0,0$, o sinal apresenta a menor inclinação, enquanto que, quando nos afastamos (para o lado de baixa energia) dessa ressonância a intensidade do sinal de MQO cresce com uma inclinação maior. Através de um ajuste linear, verificamos a dependência da intensidade do sinal de MQO em função da densidade atômica e encontramos uma dependência quadrática quando estamos a 1 cm^{-1} deslocados para o lado de baixas energias. Porém, na posição da ressonância verificamos uma dependência linear com a densidade atômica, caracterizando o efeito de interferência destrutiva na ressonância de três fótons [58].

3.2.2 Comparação com o segundo harmônico

Ainda na configuração colinear, fizemos uma comparação entre a geração de segundo harmônico e a mistura de quatro ondas envolvendo os mesmos estados de Rydberg. Experimentalmente, para obter o sinal de segundo harmônico, podemos utilizar a mesma montagem experimental descrita na seção 3.1. Com esse sistema não é possível medir simultaneamente os dois sinais, é preciso realizar duas varreduras consecutivas, com os mesmos parâmetros (intensidade, densidade atômica e região de varredura), porém sintonizando o monocromador na região de frequência correspondente ao sinal de interesse.

O primeiro resultado comparativo que apresentamos (figura 3.13) mostra os espectros de excitação do sinal gerado de MQO e de SH. Esses espectros tem como referência a transição $5s \rightarrow 15d$, de forma que a intensidade do sinal gerado é dada em função de $\Delta\omega = 2\omega_1 - \omega_{15d-5s}$ onde $\omega_{15d-5s} = (E_{15d} - E_{5s})/\hbar$. O comprimento de onda do laser de corante (ω_1) varia na região de 601 a 604 nm. Na figura 3.13a os picos correspondem às ressonâncias de dois e três fótons observadas no processo de MQO. Podemos ver as ressonâncias de dois fótons com os estados excitados, $nl = 15d, 17s, 16d, 18s$ e $17d$, e as ressonâncias de três fótons com os estados $6P_{3/2}$ e $6P_{1/2}$. Já a figura 3.13b, os picos correspondem às ressonâncias de dois fótons observadas no processo de geração de segundo harmônico. Além dos níveis já citados acima, os mesmos da MQO, também observamos os níveis np , que não são vistos no espectro de mistura de quatro ondas porque a transição $np \rightarrow 6p$ não é permitida. Para essas medidas, o monocromador é fixado no comprimento de onda gerado, 420 nm para MQO e 302 nm para o SH, com fendas de 2,5 mm o que corresponde a uma janela de 9 nm, suficiente para detectar todo sinal gerado. O resultado é obtido para uma densidade fixa, $N = 6,5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ e a intensidade do laser de corante é fixada em $1,0 \text{ GW/cm}^2$.

Comparando os processos, temos que a eficiência do sinal de mistura de quatro ondas é maior que a eficiência da geração de segundo harmônico. Isso ocorre porque o processo de geração de SH é proibido em meios centro simétricos na aproximação de dipolo elétrico, como foi discutido na seção 2.2, e a mistura de quatro ondas é um processo permitido nessa aproximação. Além disso, a MQO é um processo estimulado pelo campo 2, e praticamente ressonante com o estado $6p$. É interessante verificar como a intensidade relativa entre os picos varia para cada processo. Para isso, definimos a razão $R_{dd} \equiv \frac{I_{nd}}{(I_{n+1})_d}$, como a razão entre as intensidade dos picos correspondentes às ressonâncias de dois estados d consecutivos, nd e $(n+1)d$. Considerando $n = 15$, essa razão é maior que 1 quando analisamos o espectro da geração de segundo harmônico, figura 3.13b, porém é menor que 1 analisando o espectro do sinal de mistura de quatro ondas (Fig. 3.13a).

Podemos entender essas relações, sabendo que as intensidades dos picos são diretamente proporcionais ao quadrado do momento de dipolo das transições correspondentes e inversamente proporcionais à dessintonia com os níveis atômicos. No caso do sinal de segundo harmônico, somente o processo de excitação é relevante, já que no processo de decaimento não existem ressonâncias intermediárias. Assim, descrevemos a relação entre as intensidades da forma: $R_{dd} \propto \left(\frac{k_{5s-nd}}{k_{5s-(n+1)d}} \right)^2$, onde k_{aj} é a constante de acoplamento efetivo da transição por dois fótons do campo 1. Essa constante considera a contribuição de todos os estados intermediários entre o estado fundamental e o estado excitado. O estado intermediário mais próximo

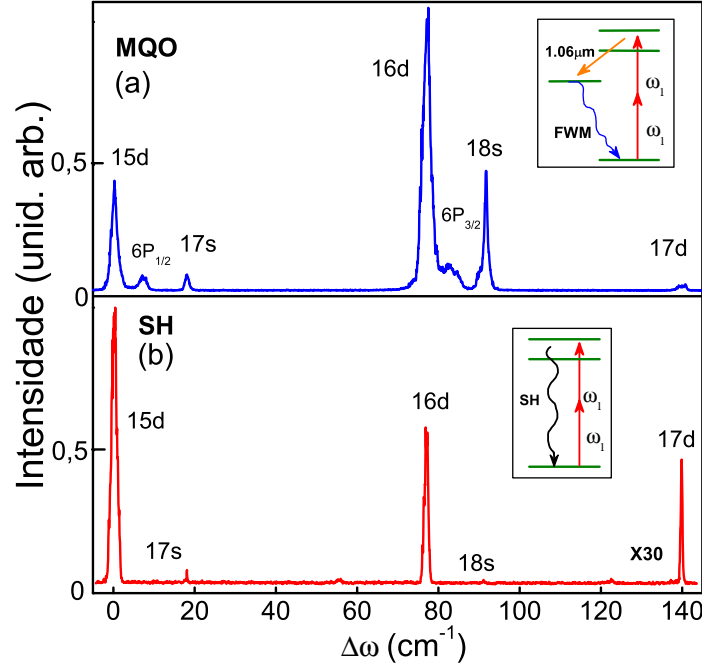


Figura 3.13 Espectro de excitação do sinal gerado em: (a) MQO e (b) SH.

da ressonância de um fóton com o campo 1 é o estado $5p$, comum aos processos de excitação, independente do nível excitado. Logo, a relação de intensidade é estabelecida pela relação entre os momentos de dipolo das transições entre o estado $5p$ e o estado nd excitado, da forma: $R_{dd} \propto (\frac{\mu_{5p-nd}}{\mu_{5p-(n+1)d}})^2$. Utilizando os momentos de dipolo da tabela 3.2, para os estados $15d$ e $16d$, encontramos uma razão de 1,3, enquanto que experimentalmente (Fig.3.13b) medimos uma razão de $1,5 \pm 0,3$, o que representa um bom acordo.

Já quando consideramos a mistura de quatro ondas, a intensidade do sinal depende tanto das transições de dois fótons (as mesmas associadas à geração de segundo harmônico) quanto das transições presentes no processo de decaimento, levando em conta a proximidade da ressonância de três fótons e os estados que participam do processo. Isto é, quando a excitação ocorre via ressonância de dois fótons com os níveis $16d$, $18s$, $15d$ ou $17s$, a proximidade da ressonância de três fótons com os estados $6P_{3/2}$ e $6P_{1/2}$ é relevante, já para os outros níveis a distância com os níveis $6P_{3/2}$ e $6P_{1/2}$ é muito grande, como podemos ver na tabela 3.2.

Nos dois casos, $n = 15$ e 16 , a ressonância de três fótons está distante cerca de 7 cm^{-1} e a razão entre os momentos de dipolo é muito próxima de um quando não consideramos a estrutura fina. Assim, para o caso do sinal de mistura de quatro ondas, não podemos usar simplesmente que $k_{5s-nl} \propto \mu_{5p-nl}$ para estimar a razão de intensidade, precisamos definir $k_{5s-nl-6P}^*$ da forma:

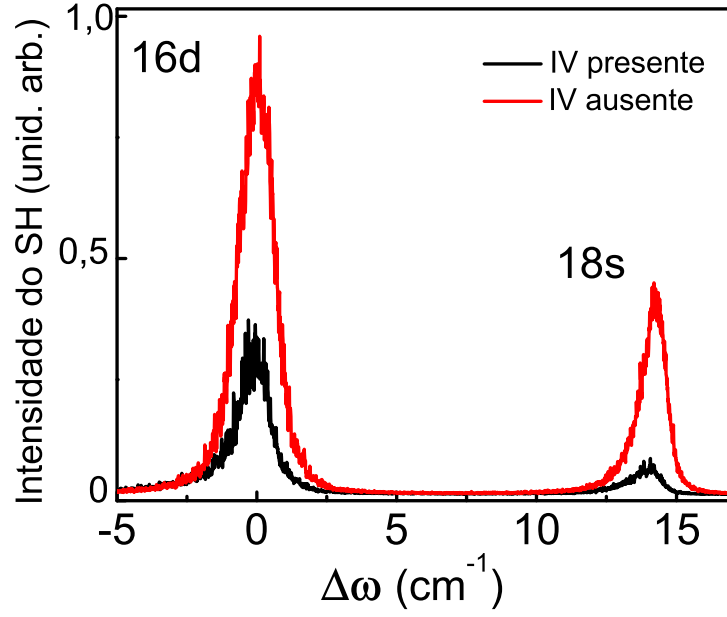


Figura 3.14 Espectro de excitação do sinal de segundo harmônico com e sem a presença do laser em $1.06\mu\text{ m}$

nl	$\mu_{5p-nd}^R (10^{-30} \text{ C.m})$	$\mu_{6p-nd}^R (10^{-30} \text{ C.m})$	$\Delta\omega_{6P_{3/2}}$	$\Delta\omega_{6P_{1/2}}$
14d	1,76	2,64	-181,1	-103,8
16s	0,79	1,69	-158,81	-81,48
15d	1,56	2,33	-84,5	-7,2
17s	0,71	1,49	-66,7	10,7
16d	1,40	2,09	7,0	70,4
18s	0,63	1,32	7,5	84,85
17d	1,26	1,87	56,2	133,5
19s	0,57	1,19	68,1	145,44
20d	0,97	1,43	188,6	265,9
22s	0,44	0,90	195,7	273,03

Tabela 3.2 Parte radial do momento de dipolo associado à transição entre os estados $nd - 6p$ e a distância da ressonância de três fótons $2\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ab}$, para $b = 6P_{3/2}$ e $6P_{1/2}$.

$$k_{5s-nl-6P}^* \propto \frac{\mu_{5s-5p}^R \mu_{5p-nl}^R \mu_{nl-6p}^R}{\frac{C_{nl-6P_{3/2}}}{\Delta\omega_{6P_{3/2}}} + \frac{C_{nl-6P_{1/2}}}{\Delta\omega_{6P_{1/2}}}}, \quad (3.2)$$

onde $\Delta\omega_{6P_j} = 2\omega_1 - \omega_2 - \omega_{a6P_j}$ e C_{nl-6P_j} corresponde à parte angular do momento de dipolo associado à transição $nl \rightarrow 6P_j$, com $j = 3/2$ ou $1/2$ e μ_{ji}^R é a parte radial do momento de di-

nl	$k_{5s-nl-6p}^*{}^2 \times 10^{-3}$
14d	0,027
15d	1,03
17s	0,011
16d	2,03
18s	0,13
17d	0,023
19s	0,0015
20d	0,0012
22s	$7,2 \times 10^{-5}$

Tabela 3.3 Valores de $k_{5s-nl-6p}^*$ para os estados nl, com $n = 14 - 20$ com $l = s, p$ ou d .

polo da transição $i - j$. Os valores da parte angular do momento de dipolo podem ser obtidos nas tabelas 2.1 e 2.2 dependendo da polarização. Calculamos $k_{5s-nl-6p}^*$ para os estados apresentados na figura 3.13 e o resultado pode ser visto na tabela 3.3, onde apresentamos o valor elevado ao quadrado para facilitar a comparação. Verificamos que a razão entre os sinais dos estados $15d$ e $16d$, calculado é 0,51 enquanto o medido experimentalmente é $0,4 \pm 0,1$. O bom acordo mostra a importância da proximidade dos estados intermediários para o sinal de mistura de quatro ondas.

Ainda com o objetivo de comparar esses dois processos não lineares, na figura 3.14 mostramos o espectro de excitação do sinal de segundo harmônico em função da dessintonia, $\Delta\omega = \omega_1 - \omega_{16d-5s}$, com e sem a presença do campo 2 (IV). Sabemos que o sinal de mistura de quatro ondas e o sinal de segundo harmônico são gerados simultaneamente no vapor atômico, e esse resultado mostra que há uma competição entre esses dois processos. Assim, quando introduzimos no sistema o campo 2, o sinal de segundo harmônico continua sendo gerado mais sofre uma diminuição. Essa diminuição ocorre porque a introdução do campo $\vec{E}_2$ dá origem a um novo caminho de decaimento, via mistura de quatro ondas.

3.2.3 Configuração de feixes cruzados

Nesta seção vamos apresentar os resultados na configuração de feixes cruzados, onde os feixes de excitação incidem na amostra se cruzando em um ângulo θ e o sinal de mistura de quatro ondas é gerado no ângulo de casamento de fase. No nosso experimento, o ângulo de cruzamento varia entre 3 e 19 mrad, experimentalmente significa deslocar o espelho dicróico (como descrito na seção 3.1) cerca de 9 mm, utilizando uma lente de 30 cm de foco. Os feixes de excitação, corante e IV, possuem diâmetro de 0,7 e 1,5 cm, respectivamente, e são focalizados no centro da célula. Como os feixes possuem um diâmetro extenso, o processo de focalização cria uma abertura angular, $\delta\phi$, estimada em torno de 3 mrad, originando um ângulo residual. Assim, a estimativa do ângulo de cruzamento, θ , é baseada no raio central dos feixes, como representamos na figura 3.15, com uma incerteza da ordem de $\pm 1,5$ mrad.

Em relação ao processo de propagação, o sinal de MQO é gerado em uma direção diferente da direção dos campos incidentes. Dessa forma, nessa configuração, os campos não vão intera-

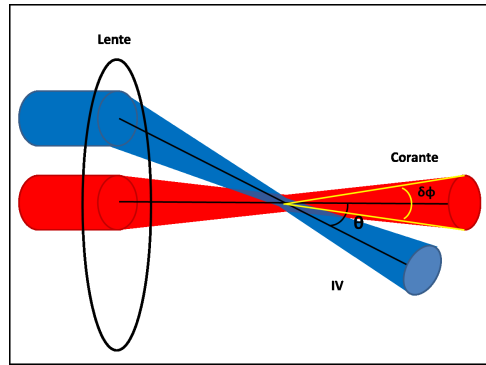


Figura 3.15 Representação esquemático do ângulo de cruzamento entre os feixes incidentes, mostrando a abertura angular.

gir com os mesmos átomos, exceto por uma pequena região de superposição devido à abertura angular dos feixes. Assim, o efeito de interferência destrutiva, que observamos na ressonância de três fótons na configuração copropagante, deve ser consideravelmente reduzido.

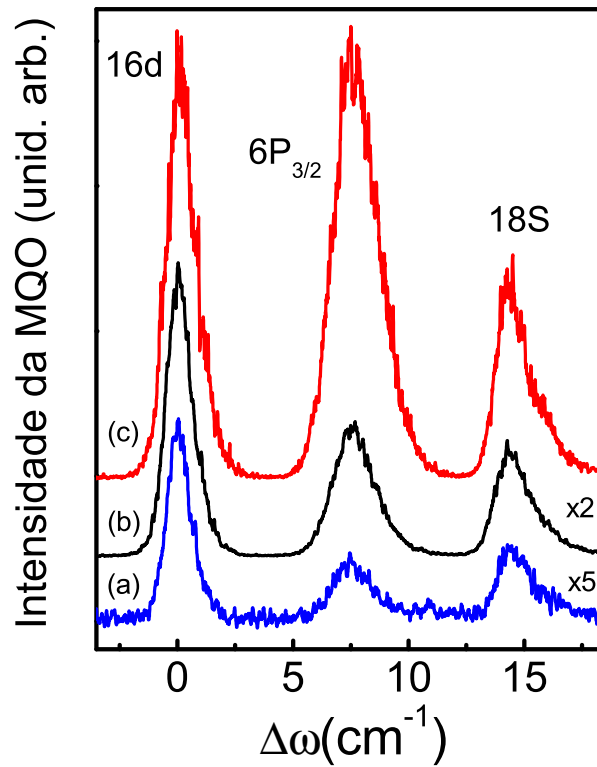


Figura 3.16 Espectros de excitação do sinal de MQO na configuração de feixes cruzados, $\theta = 78 \text{ mrad}$, para diferentes densidades atômicas (a) $0,5 \times 10^{15}$, (b) $1,5 \times 10^{15}$ e (d) $6,5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$

Para verificar o efeito dessa interferência, introduzimos um ângulo de 78 mrad entre os dois feixes de excitação e medimos o comportamento da intensidade do sinal de MQO variando a densidade atômica. Na figura 3.16, apresentamos espectros de excitação, para diferentes densidades: (a) $0,5 \times 10^{15}$; (b) $1,5 \times 10^{15}$ e (c) $6,5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ e ângulo fixo 78 mrad . Podemos verificar que, com o aumento da densidade, na posição da ressonância de três fótons, $\Delta\omega_{6P3/2} = 0$, não há mais saturação. Nessa posição medimos a intensidade do sinal de MQO em função da densidade, e podemos observar o comportamento na figura 3.17, verificando uma dependência quadrática, como esperávamos. Indicando que não ocorre o efeito de interferência destrutiva de fótons ímpares para este ângulo.

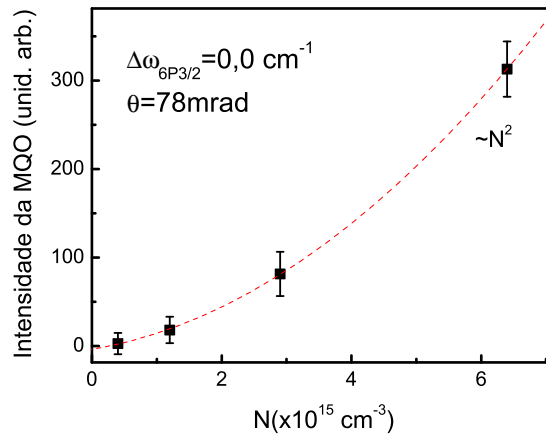


Figura 3.17 Dependência do sinal de MQO em função da densidade atômica, medido na posição da ressonância de três fótons, para configuração de feixes cruzados, com ângulo fixo de 78 mrad

Na configuração de feixes cruzados, também investigamos o deslocamento da ressonância de três fótons em função da densidade atômica, o que pode ser visto na fig. 3.18, para dois ângulos fixos de 17 mrad e 78 mrad . Definimos então a medida do deslocamento como $\Delta\omega_{shift} = (2\omega_1 - \omega_2 - \omega_{ab}) - \omega_{pico}$, onde ω_{pico} é a frequência em que a parece o pico associado a ressonância de três fótons nos espectros de excitação. Para os dois casos mostrados na figura 3.18, podemos dizer que temos um comportamento linear, e assim como indicado na equação 2.51, quanto menor o ângulo de cruzamento maior a inclinação.

Na figura 3.19, apresentamos os espectros de excitação do sinal de MQO, em uma densidade fixa de $1,0 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$, para diferentes valores de θ , entre 0 mrad e 17 mrad . Nessa figura os espectros estão normalizados em relação ao sinal do nível $16d$ para facilitar a observação do efeito na ressonância de três fótons. Em relação à intensidade, com o aumento de θ , podemos verificar que a razão entre os picos referentes às ressonâncias de dois e três fótons está diminuindo. Isso ocorre porque com o aumento do ângulo a intensidade do sinal na ressonância de três fótons diminui mais lentamente que o sinal na ressonância de dois fótons, efeito provocado pelo termo de casamento de fase introduzido na seção 2.2. Nessa figura (3.19), também fica muito claro o efeito de deslocamento da ressonância de três fótons. Quanto menor o ângulo θ , maior o deslocamento para o lado de baixa energia, isto é, o pico referente à ressonância de

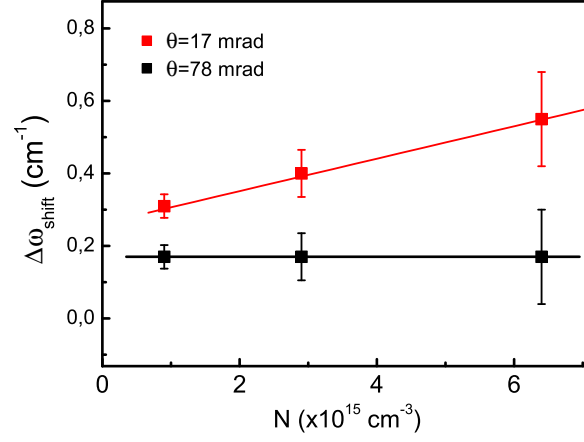


Figura 3.18 Medida do deslocamento da posição de ressonância de três fótons em função da densidade atômica, na configuração de feixes cruzados com ângulos fixos de 17 e 78 *mrad*

três fótons se aproxima do pico referente ao nível 16*d*. Esses dois efeitos, podem ser melhor entendidos nas figuras 3.20 e 3.21.

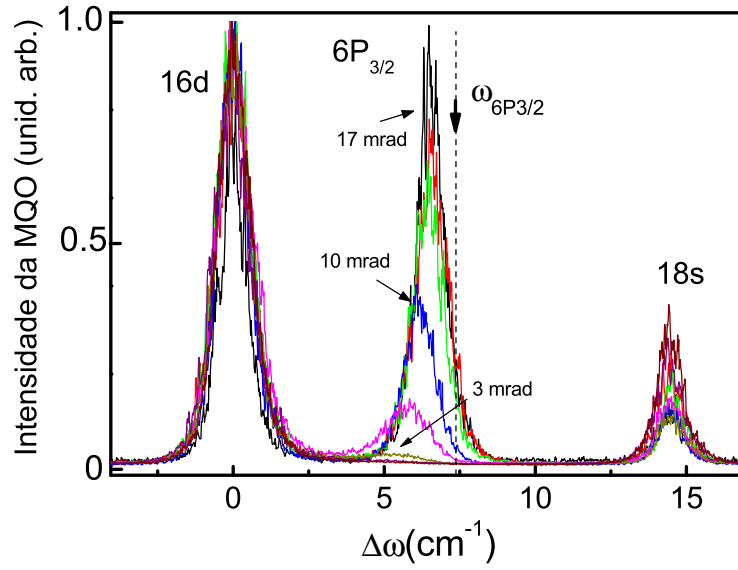


Figura 3.19 Espectros de excitação do sinal de mistura de quatro ondas para diferentes valores de θ , para densidade fixa $N = 1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$.

Na figura 3.20, mostramos a intensidade do sinal de MQO em função do ângulo de cruzamento θ , nas posições das ressonâncias de dois e três fótons. Na posição das ressonâncias de dois fótons a intensidade diminui com o aumento do ângulo de cruzamento, o que não é

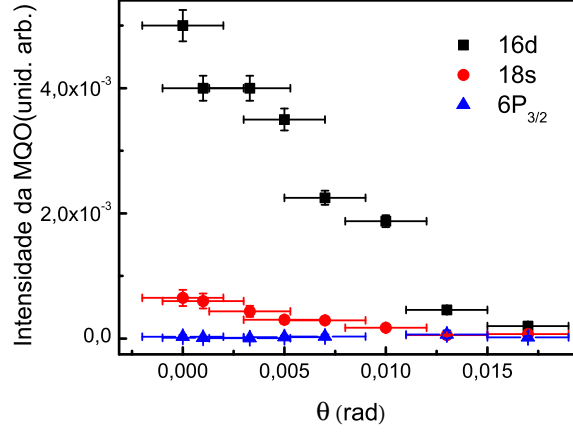


Figura 3.20 Dependência do sinal de MQO em função do ângulo de cruzamento entre os feixes incidentes, medido na posição das ressonâncias de dois e três fótons. Densidade fixa $N = 1 \times 10^{15} \text{cm}^{-3}$

possível observar na ressonância de três fótons já que nessa densidade, $N = 1 \times 10^{15} \text{cm}^{-3}$, o sinal é praticamente constante, devido ao efeito de interferência destrutiva. A diminuição da intensidade do sinal gerado com o aumento do ângulo de cruzamento ocorre, principalmente, devido ao fator de casamento de fase.

Quando aumentamos o ângulo de cruzamento, a região de interação, onde os feixes se sobrepõem, pode sofrer uma pequena diminuição, o que também provocaria uma diminuição do sinal. No nosso caso, os feixes de excitação possuem uma cintura tal que essa diminuição é desprezível, por isso podemos assumir que a região de interação é uma constante.

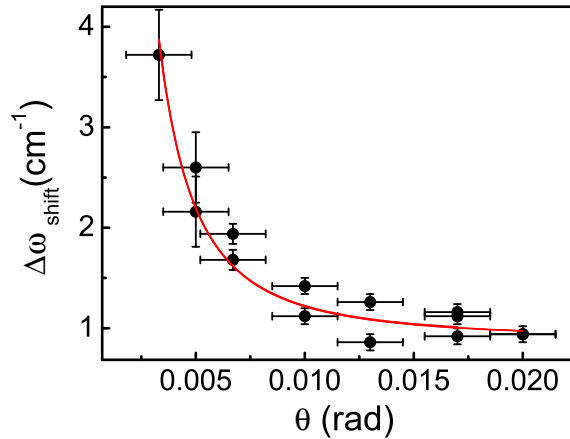


Figura 3.21 Deslocamento da ressonância de três fótons em função do ângulo de cruzamento entre os feixes de excitação.

O comportamento do deslocamento do pico associado à ressonância de três fótons em fun-

ção do ângulo de cruzamento entre os feixes é mostrado na figura 3.21. Para esse resultado, medimos a posição do pico em relação à posição esperada da ressonância de três fótons, que definimos como $\Delta\omega_{shift} = (2\omega_1 - \omega_2 - \omega_{ab}) - \omega_{pico}$, onde ω_{pico} é a frequência em que aparece o pico associado a ressonância de três fótons, e verificamos o deslocamento para cada valor de ângulo, θ . A linha contínua é o ajuste dos dados experimentais, mostrando que o deslocamento apresenta uma dependência do tipo:

$$\Delta\omega_{shift}(\theta) = A + \frac{C_{EXP}}{1 - \cos(\theta)}, \quad (3.3)$$

onde A e C_{EXP} são valores que dependem de N , como visto no capítulo 2. O ajuste matemático desta curva com os dados experimentais resulta em um parâmetro $C_{EXP} = (1,5 \pm 0,8) \times 10^{-5}$. E o parâmetro A , é um deslocamento residual. A previsão é que A seja nulo, ou seja, para ângulos muito grandes o deslocamento deve ser aproximadamente zero. Porém, experimentalmente, sabemos que os feixes de excitação quando focalizados, apresentam uma abertura angular, o que gera um pequeno deslocamento mesmo na situação de superposição.

Experimentalmente, medir o $\Delta\omega_{shift}$ para ângulos muito pequenos não é simples. Isso acontece devido a dois fatores: primeiro, a interferência destrutiva que impede uma boa visualização do pico $6P_{3/2}$ para altas densidades; e segundo, o shift é grande o suficiente para que o pico associado a ressonância de três fótons seja encoberto pela largura de linha do pico referentes ao nível $16d$. Nesses casos, para cada espectro é necessário seguir o procedimento apresentado nas figuras 3.7 e 3.8, realizando um ajuste de curvas gaussianas em duas etapas para determinar a posição do pico intermediário. Assim, os valores experimentais na condição de pequeno θ e grande N , apesar do procedimento cuidadoso de ajuste, apresentam erros de leitura bastante significativos.

Análise e Discussão

Neste capítulo vamos analisar os resultados experimentais com base na teoria apresentada no capítulo 2, utilizando o programa *mathcad* 7.0, o qual nos permite calcular os espectros de excitação próximo das condições experimentais estudadas. O objetivo é verificar e analisar os efeitos observados, como o alargamento das linhas espectrais, a interferência destrutiva e o deslocamento na ressonância de três fótons.

4.1 Cálculo do espectro de excitação do sinal gerado

A equação 2.41, descreve a intensidade do sinal de mistura de quatro ondas considerando efeitos de propagação. Para associar essa equação com os nossos resultados experimentais, precisamos identificar os parâmetros desta equação, adequados ao nosso experimento. As energias dos níveis são bem conhecidas [73], e os momentos de dipolo podem ser calculados numericamente como mostramos no capítulo 2. De forma que os parâmetros indeterminados são as taxas de relaxação γ_{ai} onde $i = b, c$ e d .

4.1.1 taxas de relaxação

Um grande número de processos influencia a taxa de relaxação total das transições, como efeitos de radiação de corpo negro, decaimento espontâneo, alargamento *Doppler*, colisão e ionização. Nesta seção vamos verificar a influência de cada um desses efeitos, e estimar suas contribuições para as taxas de relaxação.

Os estados de Rydberg são caracterizados por possuírem um grande tempo de vida radiativo, τ , já que $\tau \propto n^{*3}$ [11]. Assim, como a taxa de decaimento espontâneo é calculada como o inverso do tempo de vida, podemos afirmar que a contribuição desse efeito na taxa de relaxação é muito pequena, da ordem de 0,03 MHz (10^{-6} cm^{-1}).

Em relação à radiação de corpo negro, a taxa de decaimento induzida por esse processo é dada pela relação $\gamma_{\text{corponegro}} = \frac{4\alpha^3 k_B T}{3n^2}$ [11], onde n é o número quântico principal, α é a constante de estrutura fina e k_B é a constante de Boltzmann. Considerando as temperaturas típicas que trabalhamos durante o experimento, a contribuição desse efeito também é muito pequena, da ordem de 0,003 MHz (10^{-7} cm^{-1}), e por isso, esses fatores não serão levados em conta. Recentemente, as taxas de ionização devido a radiação de corpo negro, foram calculadas numericamente para átomos de sódio e rubídio, envolvendo estados com $n = 8 - 65$ [74]. Mostrando que a taxa de ionização devido a radiação de corpo negro varia com a densidade atômica, com o número quântico principal, e também em relação aos estados considerados $l = s, p$ ou d .

Porém, no intervalo de estados que trabalhamos, $n = 14 - 20$, a variação é muito pequena, de forma que nossa estimativa pode ser considerada válida para todos os estados que estudamos.

De acordo com a referência [75], podemos quantificar o alargamento provocado por colisões entre os átomos da amostra, da forma $\gamma_{colisão} = 2Nv\sigma_b$, onde N é a densidade atômica, v é a velocidade relativa dos átomos e σ_b é a seção de choque de colisão associada aos átomos num estado b (nl). Nesse caso, consideramos a aproximação de que todos os átomos estão no mesmo estado, de forma, que podemos associar essa estimativa a um processo de colisão entre dois átomos de Rydberg. A seção de choque de colisão depende do número quântico principal efetivo, n^* , e do raio de Bohr, a_0 , de acordo com a expressão [11]:

$$\sigma_{n^*l} = \pi \frac{a_0^2 n^{*2}}{2} [5n^* + l - 3l(l+1)]. \quad (4.1)$$

Essa expressão nos permite calcular a seção de choque para os estados que trabalhamos, nd e $(n+2)s$ com $n = 14 - 20$, e os valores obtidos são da ordem de 10^{-13} cm^2 . A velocidade relativa dos átomos tem um valor típico relacionado com a velocidade dos elétrons na órbita do raio de Bohr [11], dado por $v \approx 10^{-3} v_0$, onde $v_0 = 2,19 \cdot 10^6 \text{ m/s}$. Como em nosso experimento queremos entender o comportamento do sinal gerado em função da densidade atômica, podemos escrever a taxa de alargamento associada à colisão entre dois átomos excitados da forma $\gamma_{colisão} = \xi N$, com $\xi = 2v\sigma_b$. Para o estado $16d$, obtemos $\frac{\xi}{2\pi}$ da ordem de $3,7 \times 10^{-14} \text{ MHz cm}^3$, o que nos permite estimar a contribuição deste tipo de efeito na largura de linha espectral. Nas condições típicas do nosso experimento, para temperatura entre 300 e 530 K, a taxa de relaxação devido a esse tipo de colisão está entre 0,008 e $0,06 \text{ cm}^{-1}$. Apesar de pequeno, este valor é maior do que os valores citados anteriormente, mostrando que a colisão entre átomos excitados é um efeito relevante no processo de relaxação, porém com uma taxa de alargamento muito pequena, como veremos na seção 4.2.

Em relação ao efeito Doppler, consideramos que, na situação de equilíbrio, os átomos na célula de vapor obedecem a uma distribuição de velocidades do tipo *Maxwell-Boltzmann*. Assim, podemos estimar a largura Doppler, usando a expressão [49]:

$$\gamma_{doppler} = 2f \sqrt{\frac{2K_B T}{mc^2}} \approx 7,1 \cdot 10^{-7} f \cdot \sqrt{\frac{T}{M}}, \quad (4.2)$$

onde f é a frequência central da linha espectral e M é a massa molar. Para um valor de temperatura típico, $T = 430 \text{ K}$, a largura Doppler é estimada da ordem de $5,3 \times 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$ ou $1,6 \text{ GHz}$. Esse valor é da mesma ordem do efeito provocado por colisão entre dois átomos de Rydberg, logo o processo de alargamento Doppler também é relevante na taxa de relaxação total.

Por fim, vamos analisar a contribuição da fotoionização no processo de relaxação. Para o átomo de rubídio, a energia de ionização é $E_{ion} \cong 33690,4 \text{ cm}^{-1}$ [76], aproximadamente 500 cm^{-1} acima da energia do nível de Rydberg $16d$, que estudamos detalhadamente. De acordo com a referência [77], a taxa de fotoionização por um fóton de energia $\hbar\omega_i$, é dada por:

$$\gamma_{ion} = \frac{\sigma_{nl} I(\omega_i)}{\hbar\omega_i}, \quad (4.3)$$

onde σ_{nl} é a seção de choque de fotoionização do estado nl e $I(\omega_i)$ é a intensidade do laser na

Processos	γ (cm^{-1})
$\gamma_{cor\,p\,negro}$	10^{-7}
$\gamma_{colis\tilde{a}o}$	0,06
$\gamma_{Doppler}$	0,05
γ_{ion}	0,1

Tabela 4.1 Valores estimados de γ para diferentes processos: radiação de corpo negro, colisão, efeito Doppler e fotoionização.

frequência ω_i . Apesar da seção de choque ser diferente para cada estado nl que estudamos no experimento, para esses estados de Rydberg essa diferença é menor que uma ordem de grandeza. Como nesta seção o objetivo é verificar se a fotoionização é um processo que influencia na largura de linha, vamos fazer uma análise aproximada. Já foram realizados experimentos para determinação da seção de choque de fotoionização dos átomos de rubídio [78, 56], de forma que conhecemos o valor típico para os estados de Rydberg como sendo da ordem de $10^{-17} cm^2$. No nosso experimento assumimos que o laser de corante é responsável pela ionização já que é esse laser que acopla os estados de Rydberg com o nível fundamental. Para uma determinada intensidade do laser de corante, $I(\omega_1) = 5 \times 10^8 W/cm^2$, e conhecendo a energia do estado, $33180 cm^{-1}$, um valor típico encontrado para a taxa de fotoionização, γ_{ion} é de aproximadamente $0,1 cm^{-1}$. Esse valor é quase o dobro das taxas relacionadas aos processos de colisão e alargamento Doppler, indicando que esse efeito é dominante no processo de relaxação para nosso experimento.

Considerando todas as contribuições discutidas nesta seção, sumarizadas na tabela 4.1, temos uma boa estimativa da ordem de grandeza das taxas de relaxação envolvidas no sistema. Tomamos a taxa de relaxação da coerência, γ_{nl} , entre o estado fundamental e o estado nl , como sendo metade da soma de todas as contribuições acima. Isso nos dá $\gamma_{nl} = 0,105 cm^{-1}$, que é menor que a largura espectral do laser de corante $\approx 0,5 cm^{-1}$.

4.1.2 Convolução do espectro com a forma de linha do laser

Experimentalmente, sabemos que os lasers de excitação possuem uma largura de linha grande, em torno de uma ordem de grandeza maior que a largura Doppler. Para incluir nos espectros calculados o efeito dessas larguras, é necessário fazer a convolução do perfil espectral que calculamos com a forma de linha dos lasers de excitação. Considerando que o laser de corante tem um perfil espectral aproximadamente gaussiano, podemos representa-lo da forma:

$$g(\tilde{\omega}_1 - \omega_1) \propto \int_{-\infty}^{\infty} e^{\frac{-2(\tilde{\omega}_1 - \omega_1)^2}{\delta_{corante}}}, \quad (4.4)$$

onde $\delta_{corante}$ é a largura de linha do laser de corante. Assim a intensidade do sinal de mistura de quatro ondas é dada por um perfil do tipo:

$$\bar{I}(\tilde{\omega}_1) = \int_{-\infty}^{\infty} \{\bar{I}(\omega_1) \cdot g_L(\tilde{\omega}_1 - \omega_1)\} d\omega_1. \quad (4.5)$$

Na prática, só é necessário efetuar a integral acima, no intervalo definido pelos dados ex-

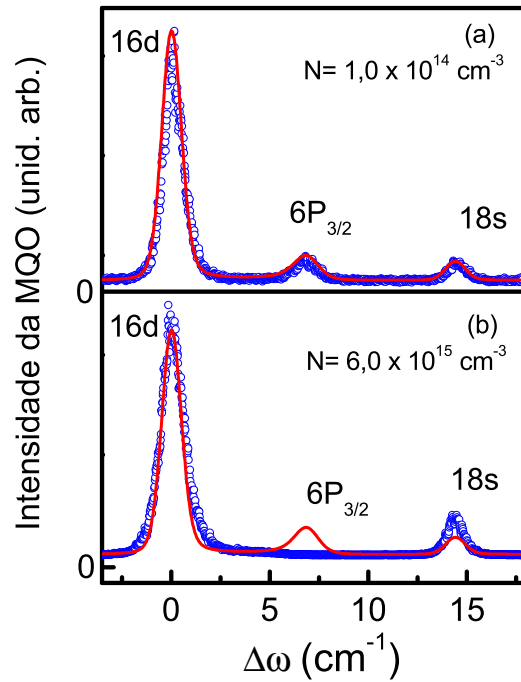


Figura 4.1 Comparação entre teoria e experimento do sinal de mistura de quatro ondas. Os círculos em azul correspondem ao resultado experimental e a linha sólida vermelha representa o cálculo teórico, com os parâmetros: $\gamma_{ab} = 0,45 \text{ cm}^{-1}$, $\gamma_{ac} = \gamma_{ad} = 0,11 \text{ cm}^{-1}$. Para duas densidades (a) $N = 1,0 \times 10^{14}$ e (b) $N = 6,0 \times 10^{15} \text{ cm}^{-1}$.

perimentais, no nosso caso na região de varredura espectral que é da ordem de 10 cm^{-1} . Esse procedimento corresponde à convolução somente com o laser de corante, isto é, seria necessário fazer uma convolução com a forma de linha do laser no infravermelho (campo 2) também. Porém, sabemos que o laser no IV participa diretamente da transição ressonante por três fótons com o estado $6p$, enquanto que os estados de Rydberg são ressonantes por dois fótons com o laser de corante. Assim, a forma de linha do laser de IV só afeta a largura do pico referente a ressonância de três fótons, por isso, optamos por simplificar o cálculo computacional, não fazendo a convolução com este laser. Consideramos, então, que a largura de linha do pico associado à ressonância de três fótons, γ_{ab} , é limitada pela largura de linha do feixe no IV, cujo valor estimado é de $0,45 \pm 0,05 \text{ cm}^{-1}$.

Após a convolução, pudemos analisar a compatibilidade da estimativa das taxas de relaxação com os resultados experimentais. Realizamos uma comparação entre teoria e experimento em vários espectros experimentais medidos em condições semelhantes, considerando as larguras de linha estimadas na seção anterior para as ressonâncias de dois fótons. Após vários testes, verificamos a compatibilidade desses valores e assim fixamos as larguras γ_{ai} , onde $i = c$ e d , como sendo $0,11 \text{ cm}^{-1}$ e $\gamma_{ab} = 0,45 \text{ cm}^{-1}$.

Na figura 4.1, mostramos a comparação entre o espectro de excitação teórico (linha contí-

nua) e experimental (círculo abertos), em função da dessintonia do laser de corante com o nível $16d$, para duas densidade, $1,0 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ (4.1a) e $6,0 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ (4.1b). Os parâmetros utilizados para o cálculo teórico foram: $\gamma_{ab} = 0,45$; $\gamma_{ac} = \gamma_{ad} = 0,11 \text{ cm}^{-1}$. Os coeficientes de *ClebschGordan* são dados na tabela 2.1, considerando que o experimento foi feito na configuração de polarização paralela entre os feixes incidentes. E os momentos de dipolo das transições $b' - i$ e $i - b$ são dados na tabela 3.2. O espectro teórico é calculado pela convolução mostrada na equação 4.4, onde $\bar{I}(\omega_1)$ é dada pela equação 4.5 (que é o módulo quadrado da equação 2.26 definida no capítulo 2), da forma:

$$I_{MQO} \propto \left| \sum_{i,b,b'} \frac{-\mu_{ab}^R}{\Delta_{ba} + i\gamma_{ab}} \times \left[\frac{\mu_{bi}^R \mu_{ib'}^R C_{b'b} e^{-i\Delta k z}}{\Delta_{ia} + i\gamma_{ai}} \right] \right|^2, \quad (4.6)$$

onde, $i = c$ ou d ; $b = 6P_{3/2}$ ou $6P_{1/2}$; e $b' = 5P_{3/2}$ ou $5P_{1/2}$, considerando todos os estados intermediários. Nesse caso, a configuração é colinear, e a alta focalização dos dois feixes incidentes no centro da célula nos permite um bom casamento de fase, logo consideramos $\Delta k = 0$.

Nessa figura, podemos avaliar quanto o modelo teórico consegue descrever os dados experimentais. Para uma densidade baixa, $N = 1,0 \times 10^{14}$ (Fig. 4.1a), encontramos um bom acordo entre teoria e experimento. Porém, analisando os resultados para altas densidades (fig. 4.1b) vemos que o ajuste não é bom. Podemos observar que a relação de intensidade entre os picos correspondentes às ressonâncias $16d$ e $18s$ não é bem ajustada, assim como a largura dos picos também não é compatível. Além disso, não conseguimos reproduzir o comportamento associado à ressonância de três fótons.

Essas mesmas características podem ser observadas para os outros estados de Rydberg. Na figura 4.2, mostramos os espectros de excitação teóricos e experimentais envolvendo os estados nd e $(n+2)s$ com $n = 14 - 20$, para uma densidades fixa $N = 5,0 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$. Verificamos que para os níveis $14d$ e $20d$ encontramos um bom acordo entre teoria e experimento mesmo para alta densidade. Porém, para os espectros envolvendo os níveis nd e $(n+2)s$, com $n=15, 16$ e 17 , o ajuste não é bom. Além da discrepância entre teoria e experimento associada à razão de intensidade, os dados experimentais também apresentam um alargamento que não é previsto na teoria.

Esse resultado indica que outros efeitos começam a ser relevantes no processo de mistura de quatro ondas e precisam ser considerados. Sabemos que o alargamento é provocado por interação entre átomos de rubídio, o que pode acontecer entre dois átomos excitados (de Rydberg) ou entre um átomo excitado e um átomo no estado fundamental. Nas próximas seções, investigamos essas duas possibilidades, com o objetivo de identificar que tipo de modificação, no modelo até então descrito, seria necessária para explicar o alargamento observado experimentalmente.

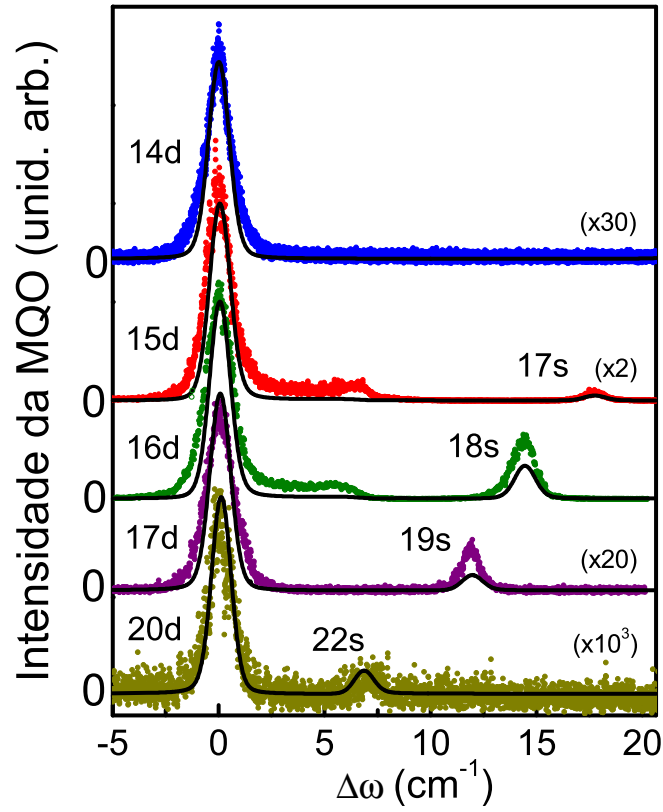


Figura 4.2 Comparação entre teoria e experimento do sinal de mistura de quatro ondas para os estado nd e $(n+2)s$, para $n = 14 - 20$. Os círculos correspondem ao resultado experimental e a linha sólida representa o cálculo teórico, com os parâmetros: $\gamma_{ab} = 0,45 \text{ cm}^{-1}$, $\gamma_{ac} = \gamma_{ad} = 0,11 \text{ cm}^{-1}$. Para $N = 5,0 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$.

4.2 Interação entre átomos de Rydberg e formação de estados moleculares

Nesta seção, vamos investigar a interação entre átomos de Rydberg, nos baseando no modelo de interação de longo alcance entre pares de átomos. Como citamos anteriormente, a alta polarizabilidade dos átomos de Rydberg faz deles um sistema ideal para o estudo da interação de longo alcance, do tipo van-der-Waals, entre dipolos mutuamente induzidos, particularmente, a formação de quase moléculas do tipo $(A^* + A^*)$ [40]. Nesse caso, o alargamento das linhas de ressonância cresce com o aumento da densidade atômica o que ocorre devido ao deslocamento dos níveis atômicos dos pares interagentes. As curvas de potencial podem ser determinadas considerando uma interação eletrostática de longo alcance. Utilizando um programa de acesso livre para o cálculo dos coeficientes de dispersão, podemos calcular o conjunto de curvas de potencial associadas a cada par interagente. Nesse conjunto, cada curva corresponde a uma das simetrias dos estados moleculares acessíveis àquele par [79].

Para obter as curvas de potencial é necessário calcular o potencial de interação para as assintóticas dos estados, $nl + nl$. Isso foi feito por Marinescu [80], para estados com baixos valores de números quântico principal, baseado nos termos assintóticos de interação descritos por Dalgarno e colaboradores [81]. Uma extensão desse tratamento para átomos de Rydberg, com $n \approx 90$, foi desenvolvida por Singer e colaboradores [79].

Considerando que o hamiltoniano do sistema é:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}(\vec{r}_1, \vec{r}_2), \quad (4.7)$$

onde H_0 é a energia dos átomos correlacionados (estados moleculares não perturbados) e $V(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$ é o potencial de interação entre os átomos, com $\vec{r}_1$ e $\vec{r}_2$ sendo as posições relativas de cada elétron em relação ao centro do átomo. Para grandes distâncias interatômicas, R , podemos considerar que a energia de interação é um termo perturbativo da energia total, e então, expandir esse potencial como uma soma infinita de potências de $1/R$, da forma:

$$\hat{V}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{C_n}{R^n} \quad (4.8)$$

Esse somatório pode ser explicitado e a representação do potencial de interação pode ser escrita, considerando os coeficiente de dispersão, C_n , calculados usando teoria de perturbação até a segunda ordem. Na forma simplificada o potencial de interação é:

$$V(R) = -\frac{C_5}{R^5} - \frac{C_6}{R^6} - \frac{C_7}{R^7} + \dots \quad (4.9)$$

Para encontrar esses coeficientes é necessário diagonalizar a matriz de primeira ordem na correção de energia e então expandir os auto-valores em potenciais de $1/R$, processo que deve ser repetido para cada simetria molecular. Neste trabalho, calculamos os coeficientes através da interface <http://quantendynamik.physik.uni-freiburg.de/potcalc.htm> [82] e utilizando o programa *mathcad* encontramos os valores numéricos para $V(R)$, gerando a curva mostrada na figura 4.3, onde apresentamos a energia de interação dos pares $16d + 16d$; $5s + 6P_{3/2}$; $5s + 6P_{1/2}$ e $5s + 5s$, em função da distância interatômica.

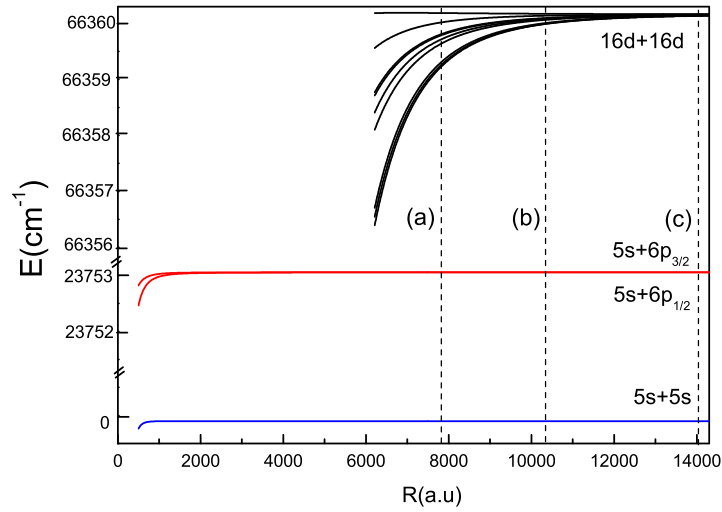


Figura 4.3 Energia de interação dos pares $16d + 16d$, $5s + 6P_{3/2}$, $5s + 6P_{1/2}$ e $5s + 5s$, em função da distância interatômica. As linhas verticais indicam as distâncias interatômicas referentes às densidades: (a) $N = 5,0 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$, (b) $N = 2,5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ e (c) $N = 1,0 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$.

Nesse resultado, as linhas verticais indicam a distância interatômica associadas a três densidade atômicas diferentes, (a) $N = 5,0 \times 10^{15}$, (b) $2,5 \times 10^{15}$ e (c) $1,0 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$. A distância interatômica é dada por $(\frac{4\pi}{3} N_{\text{ryd}})^{-1/3}$, onde N_{ryd} é a densidade de átomos excitados. Para o processo de excitação por dois fótons que estamos estudando, temos que considerar que a presença do laser de IV, quase ressonante com a transição *Rydberg* $\rightarrow 6p$, induz um decaimento muito rápido. Além do fato que não estamos induzindo troca de população e sim criando uma coerência entre os estados. Esses fatores implicam em uma baixa eficiência no processo de excitação, de forma que estimamos essa eficiência sendo da ordem de 0,1% da densidade atômica total. Nessas posições, a correspondente energia de interação pode ser associada à largura dos picos nos espectros de excitação para o determinado nível atômico estudado. Uma análise detalhada desta correspondência, pode ser vista na referência [68], onde os espectros de excitação do sinal de geração de segundo harmônico apresentam um alargamento assimétrico, característico da interação entre átomos muito excitados, envolvendo estados de Rydberg, com n da ordem de 13.

No resultado mostrado na figura 4.3, verificamos que uma interação do tipo $16d + 16d$ para densidades da ordem $5,0 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ resultaria em um alargamento um pouco menor de 1 cm^{-1} . Esse resultado é incompatível com as nossas observações experimentais, cujos espectros nessa densidade atômica apresentam larguras de linha em torno de $1,8 \text{ cm}^{-1}$. Para densidades menores, $2,5 \times 10^{15}$ e $1,0 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$, o deslocamento é muito pequeno de forma que o alargamento devido a esse efeito é desprezível. Quando consideramos interação de longo alcance entre átomos em estados diferentes, ou formação de quase moléculas do tipo, $5s + 6P_{3/2}$ ou $6P_{1/2}$, o deslocamento das linhas de potencial é muito pequeno, isto é, a interação é fraca e provocaria um alargamento também muito pequeno. Semelhante ao que ocorre quando

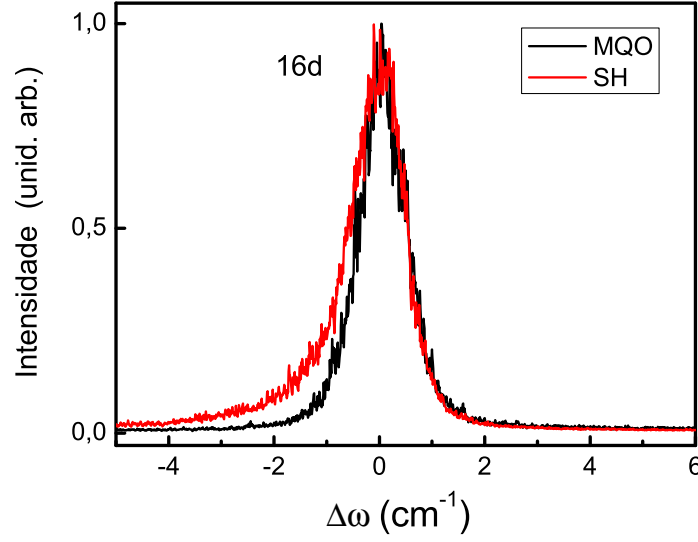


Figura 4.4 Espectro de excitação comparando dois efeitos não-lineares a MQO e a geração de SH, para o estado $16d$. Densidade fixa de $6,0 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$, e intensidade $I_{\text{corante}} = 2,5 \text{ GW/cm}^2$ e $I_{\text{IV}} = 4,0 \text{ GW/cm}^2$.

consideramos a interação, $5s - 5s$, entre dois átomos no estado fundamental. Essa comparação nos permite afirmar, que a interação de longo-alcance ou formação de quase moléculas não pode ser o mecanismo relevante para explicar o alargamento observado nos nossos resultados experimentais, para ressonâncias de dois ou três fótons. Como citamos anteriormente, ainda de acordo com a referência [68], a assimetria para o lado de baixas energias observada nos espectros de excitação é considerada como uma assinatura do efeito de interação entre átomos de Rydberg. Assim, realizamos uma comparação dos espectros de excitação do sinal de geração de SH, apresentados no trabalho acima citado, com os espectros do sinal de MQO medidos por nós, o que pode ser visto na figura 4.4. Nesse resultado, apresentamos os espectros para os dois processos não-lineares, MQO e SH, para uma densidade fixa de $N = 6,5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$, intensidade $I_{\text{corante}} = 2,5 \text{ GW/cm}^2$ e $I_{\text{IV}} = 4,0 \text{ GW/cm}^2$ e o pico corresponde à ressonância por dois fótons com o estado $16d$. Observamos que o pico associado à MQO não apresenta a assimetria observada no pico de SH, mostrando que a interação entre átomos excitados não é relevante para explicar os nossos resultados experimentais.

Investigamos também outros processos de decaimento que poderiam estar presentes nas condições experimentais que estamos trabalhando. Na figura 4.5 apresentamos o espectros de emissão quando o laser de corante está sintonizado na ressonância do nível $16d$, fixando as condições experimentais, densidade $N = 6,5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$, e intensidades $I_{\text{corante}} = 1,5 \text{ GW/cm}^2$ e $I_{\text{IV}} = 3,5 \text{ GW/cm}^2$. O espectrômetro foi preparado com fendas de $0,25 \text{ mm}$ o que resulta numa resolução de $0,9 \text{ nm}$, e variamos o comprimento de onda de observação por 80 nm . Observamos um único pico devido à emissão da MQO, em aproximadamente $420,5 \text{ nm}$. Uma ampliação da região de emissão em torno do pico observado pode ser vista no *inset* e mostra

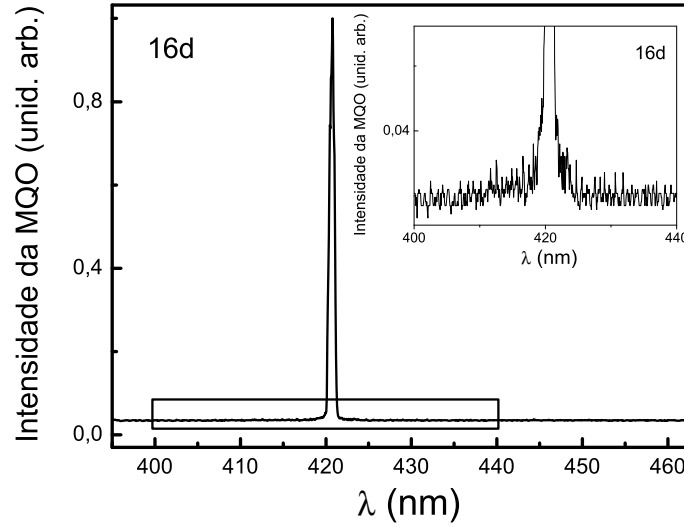


Figura 4.5 Espectro de excitação do sinal gerado de MQO e SH, para o estado 16d em função da sintonização com o laser de corante. $N = 6,5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ e intensidade $I_{\text{corante}} = 2,5 \text{ GW/cm}^2$ e $I_{\text{IV}} = 4,0 \text{ GW/cm}^2$.

que não há outros picos, o que indica a ausência de emissões devido a outros estados, quando estamos na condição de ressonância.

A partir do resultado desta seção, podemos afirmar que outros mecanismos devem ser mais relevantes para o efeito de alargamento das linhas espectrais associadas às ressonâncias de dois fótons. Na próxima seção, vamos verificar o comportamento deste alargamento e assim estabelecer que tipo de mecanismos são mais relevantes para o alargamento da linha.

4.3 Dependência linear do auto-alargamento

Como vimos nas últimas seções o modelo teórico descrito no capítulo 2, não é suficiente para explicar o comportamento experimental observado para altas densidades. Além disso, verificamos que mecanismos como interação de longo alcance entre átomos excitados ou formação de estados moleculares não contribuem consideravelmente para o alargamento das linhas espectrais. No limite de alta densidade observamos tanto uma discrepância em relação à razão de intensidade entre os níveis nd e $(n+2)s$, como uma largura de linha incompatível quando comparamos teoria e experimento. Sabemos que isso ocorre, porque o modelo teórico não leva em conta os efeitos de interação e colisão entre os átomos da amostra. Consideramos, então, a aproximação de colisão binária, e seguindo um tratamento de alargamento por colisão [34] reescrevemos a taxa de relaxação total para os estados nd e $(n+2)s$ como:

$$\Gamma_{ai} = \gamma_{ai} + \Gamma_{\text{self}} = \gamma_{ai} + \beta N, \quad (4.10)$$

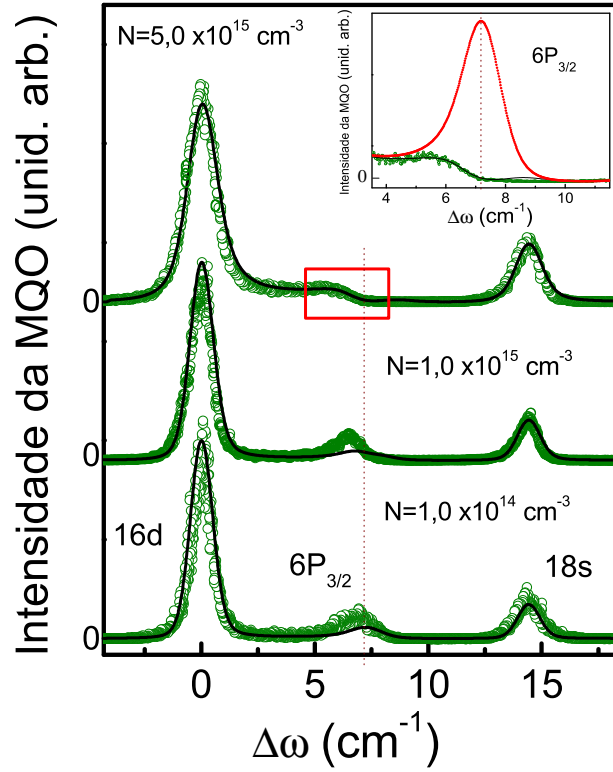


Figura 4.6 Comparação entre teoria e experimento do sinal de mistura de quatro ondas. Os círculos abertos correspondem ao resultado experimental e a linha sólida representa o cálculo teórico incluindo o efeito de auto-alargamento para $\frac{\beta}{2\pi} = 2,1 \times 10^{-12} \text{ MHz cm}^3$. Parâmetros: $\gamma_{ab} = 0,45 \text{ cm}^{-1}$, $\gamma_{ac} = \gamma_{ad} = 0,11 \text{ cm}^{-1}$. Para três densidades $N = 1,0 \times 10^{14}$, $N = 1,0 \times 10^{15}$ e $N = 5,0 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$.

onde β é o coeficiente de auto-alargamento. No processo não-linear descrito aqui, a dependência linear do coeficiente de auto-alargamento com a densidade atômica indica a contribuição da interação entre dois átomos de rubídio. Como o sinal de MQO é proporcional à coerência induzida entre o estado fundamental e um estado de Rydberg, o coeficiente de auto-alargamento é associado ao decaimento dessa coerência.

Na figura 4.6, apresentamos os espectros de mistura de quatro ondas (círculos abertos), envolvendo os estados $16d$ e $18s$, para três densidades atômicas, juntamente com o ajuste teórico correspondente a cada curva (linhas sólidas), agora com as taxas de relaxação dadas por Γ_{ai} . Nesse resultado, consideramos que os dois coeficientes β , associados aos níveis nd e $(n+2)s$, obedecem uma relação de proporcionalidade do tipo $\sqrt{\frac{g_d}{g_s}}$, onde g_i é a degenerescência do estado i [34]. Podemos verificar que há um bom acordo com os dados experimentais, já que conseguimos explicar, tanto a largura dos picos associados às ressonâncias de dois fótons, quanto a relação de intensidade entre os picos. No *inset* da figura 4.6, a linha vermelha representa o cálculo do espectro teórico na região do pico associado à ressonância de três fótons

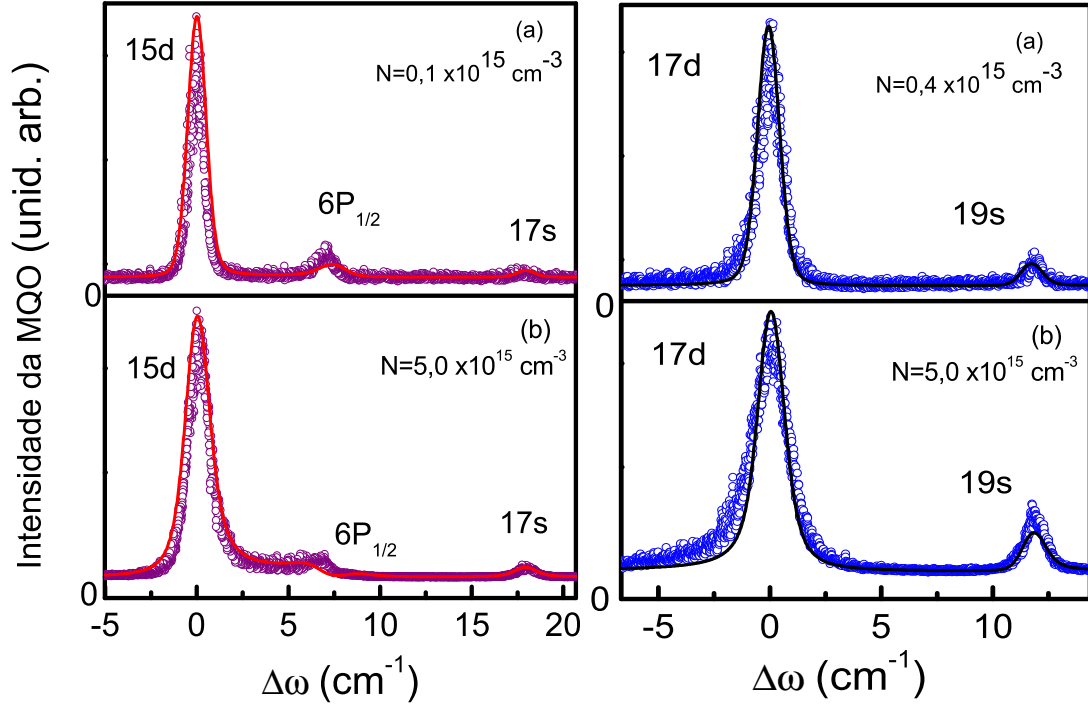


Figura 4.7 Comparação entre teoria e experimento do sinal de mistura de quatro ondas para os estado nd e $(n+2)s$, para $n=15$ e 17 . Os círculos abertos correspondem ao resultado experimental e a linha sólida representa o cálculo teórico, com os parâmetros: $\gamma_{ab} = 0,45 \text{ cm}^{-1}$, $\gamma_{ac} = \gamma_{ad} = 0,11 \text{ cm}^{-1}$. Para três valores de densidade: $N = 0,1 \times 10^{15}$, $N = 0,4 \times 10^{15}$ e $N = 5,0 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$.

quando desprezamos a interação com o campo gerado no processo de MQO. Nessas condições, o efeito de interferência destrutiva não ocorre e deveríamos observar um pico de aproximadamente mesma intensidade que o pico associado ao estado $18s$, o que corrobora a validade do nosso modelo. Na figura 4.7, resultados semelhantes são mostrados para as curvas envolvendo os níveis $15d$, $17s$, $17d$ e $19s$. Nessas curvas utilizamos o mesmo valor de β encontrado no ajuste das curvas para o nível $16d$, e novamente encontramos um acordo muito bom entre teoria e experimento.

Verificamos que o coeficiente β é importante para descrever não somente a forma das linhas espectrais como também a dependência da intensidade dos níveis nd e $(n+2)s$ com a densidade atômica. Na figura 4.8, apresentamos a intensidade do sinal de mistura de quatro ondas na ressonância de dois fótons com o nível $16d$ em função da densidade atômica (círculos fechados). A curva sólida representa a teoria incluindo o auto-alargamento e a curva pontilhada mostra o comportamento teórico da intensidade em função da densidade atômica, quando não levamos

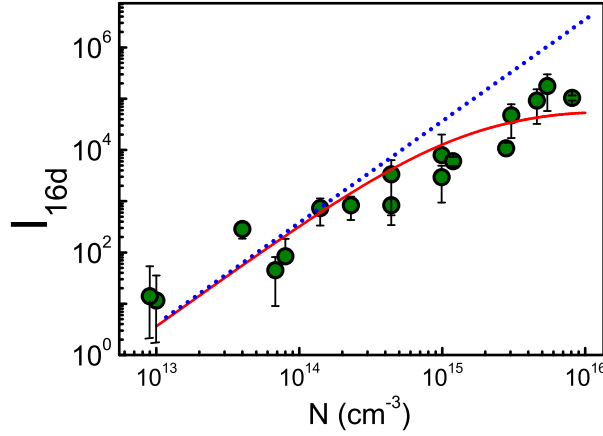


Figura 4.8 Intensidade do sinal de MQO na posição de ressonância de dois fótons com o nível $16d$ em função da densidade atômica. Experimento (círculos abertos) e ajuste teórico com $\frac{\beta}{2\pi} = 2,1 \times 10^{-12} \text{ MHz cm}^3$ (linhas sólidas).

em conta o efeito de alargamento, isto é, fazendo $\beta = 0$. Apesar dessa curva apresentar uma inclinação menor que quadrática, como verificamos no capítulo 3, ela não explica a saturação da intensidade para altas densidades, o que a curva sólida faz.

Também verificamos, que este modelo descreve bem a relação de intensidade entre os níveis nd e $(n+2)s$ em função da densidade atômica. Na figura 4.9, apresentamos a razão de intensidade entre os picos associados às ressonâncias de dois fótons com os estados $16d$ e $18s$ em função da densidade atômica (círculos fechados). A curva sólida representa o resultado do cálculo teórico incluindo o coeficiente de auto-alargamento, β , mostrando bom acordo entre o modelo utilizado e os dados experimentais. Nesse resultado, as linhas tracejadas indicam os limites, inferior e superior, associado ao valor de β . Na figura 4.9, também apresentamos o resultado do cálculo teórico, quando consideramos o coeficiente de auto-alargamento nulo, $\beta = 0$, representado pela linha pontilhada. O comportamento da linha, independente da densidade atômica, indica que a introdução da taxa de auto-alargamento é essencial para explicar nossos resultados experimentais.

A partir do ajuste de vários espectros experimentais, entre eles os apresentados nas figuras 4.6 e 4.7, encontramos um valor médio para o coeficiente de auto-alargamento, $\frac{\beta}{2\pi} = 2,1 \times 10^{-12} \text{ MHz cm}^3$. Esse valor é aproximadamente uma ordem de grandeza maior do que resultados recentes, medidos nas linhas D_1 e D_2 do Rb [38, 84]. Uma diferença similar é encontrada quando comparamos nosso resultado com medidas de alargamento das linhas utilizando espectroscopia por dois fótons, em átomos de Rb, para estados com $n \approx 20$ [37], onde o alargamento é estudado em função do número quântico principal, porém somente para um intervalo de baixas densidades. Apesar de sabermos que o efeito de alargamento observado ocorre devido a interação entre um átomo excitado e um átomo no estado fundamental, o alto valor de β encontrado, nos faz presumir que o alargamento é resultado da contribuição de diferentes efeitos como ionização associativa [85] e l -mixing por colisão [11] envolvendo o par de átomos

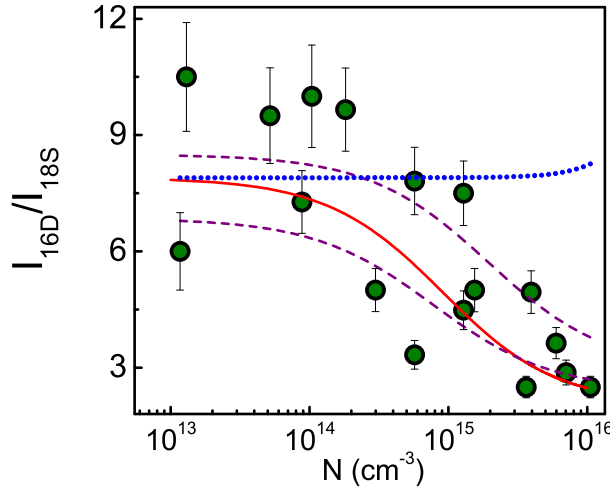


Figura 4.9 Razão de intensidade entre os picos 16d e 18s em função da densidade atômica (círculos) e o ajuste teórico incluindo β (linha sólida).

considerado.

4.4 Análise da intensidade do sinal de MQO

Nesta seção analisamos o modelo teórico introduzido no capítulo 2, incluindo o efeito de auto-alargamento discutido na última seção. Analisamos, especificamente, o comportamento da intensidade do sinal de MQO, nas posições de ressonância com dois e três fótons, em função da densidade atômica e do ângulo de cruzamento entre os feixes incidentes.

4.4.1 Intensidade do sinal de MQO em função de N

A intensidade do campo gerado no processo de mistura de quatro ondas é descrita pelas equações de Maxwell-Bloch, considerando os efeitos de propagação e as ressonâncias do meio atômico. Como vimos na seção 2.2, os efeitos de propagação se tornam relevantes no limite de alta densidade, sendo as ressonâncias de três fótons mais afetadas do que as de dois fótons.

Uma forma de quantificar esse efeito é saber o quanto que esse campo pode ou não ser absorvido pelo meio, isto é, qual a condição de forte absorção do campo gerado de MQO. A condição de forte absorção é a condição necessária para que o efeito de interferência destrutiva se torne relevante. Isso acontece quando, na equação 2.44, o termo exponencial tende a zero, ou seja, quando $Re(B) \gg 1$, onde B é dado pela equação 2.42.

Assim a condição de forte absorção [86], pode ser escrita como:

$$\frac{\kappa_{ab}\gamma_{ba}Z}{\Delta_{ab}^2 + \gamma_{ab}^2} \gg 1. \quad (4.11)$$

Para estabelecer a partir de qual densidade o efeito de interferência se torna relevante, vamos fazer uma estimativa considerando $\gamma_{ab} \approx 0,5 \text{ cm}^{-1}$, e z , o comprimento de interação, da ordem de 1 cm . Como definimos no capítulo 2, $\kappa_{ab} = \frac{Nk_3|\mu_{ab}|^2}{2\hbar\epsilon_3}$, substituindo os valores das constantes físicas e explicitando a dependência com a densidade atômica podemos escrever $\kappa_{ab} = (5 \times 10^{-16} \times N) \text{ cm}^{-2}$.

Em relação a dessintonia, Δ_{ab} , temos:

1. Na posição da ressonância de três fótons (6p): $\Delta_{ab} = 0 \text{ cm}^{-1} \rightarrow \frac{\kappa_{ab}z}{\gamma_{ab}} \gg 1 \rightarrow N \gg 1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$
2. Na posição da ressonâncias de dois fótons (16d e 18s): $\Delta_{ab} \approx 7 \text{ cm}^{-1} \rightarrow \frac{0,5\kappa_{ab}z}{7^2+0,5^2} \gg 1 \rightarrow N \gg 1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$

Logo, os efeitos provocados pela propagação do campo Ω_{ba} se tornam importantes para densidades diferentes nas ressonâncias de dois e três fótons. As densidades típicas dos nossos experimentos variam em um intervalo entre $1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ e $6,5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$, o que indica que os efeitos da interação com o campo gerado não são relevantes na descrição do comportamento das ressonâncias de dois fótons. Entretanto, na posição da ressonância de três fótons os efeitos de absorção estão presentes, e precisamos considerá-los na análise da intensidade destas ressonâncias.

Vários estudos, realizados principalmente na década de oitenta, investigam processos baseados em excitações multifotônicas, envolvendo transições que são permitidas por mais de um caminho quântico, na aproximação de dipolo elétrico. Payne e colaboradores estudaram efeitos cooperativos na geração de terceiro harmônico próximo à ressonância de três fótons [87]. Em experimentos realizados com gás de Xenônio [45], observaram que a excitação por três fótons é suprimida, próximo à ressonância. Esse efeito ocorre devido a uma interferência destrutiva envolvendo a excitação por três fótons, devido aos lasers incidentes, e a excitação por um fóton, devido ao campo gerado de mistura de quatro ondas. Em 1993, Garret estudou processos de emissão espontânea e mistura de quatro ondas em Sódio [88] e observou uma drástica supressão no ganho do sinal estimulado devido a uma interferência entre os campos de excitação e o campo gerado em mistura de quatro ondas.

No nosso caso, o sinal de mistura de quatro ondas apresenta uma supressão ou uma saturação do ganho da intensidade, o que ocorre devido a uma interferência entre a excitação coerente ressonante por três fótons e a excitação por um fótons induzida pelo campo gerado na frequência ω_3 . Essa interferência é entendida como uma relação de fase entre os campos envolvidos nos dois caminhos quânticos possíveis. Esse efeito é diferente de outros processos não-lineares, pois independe da potência dos lasers de excitação, dependendo fortemente da condição de forte absorção, que como vimos anteriormente, é função da densidade atômica e da proximidade com a ressonância de três fótons. Essa condição se torna importante na observação da saturação do sinal de MQO na ressonância por três fótons [31, 86]. Como explicamos na seção 2.2.2, a saturação é verificada a partir de uma forma limite do campo Ω_{ba} , dada pela equação 2.45, que na configuração colinear, e no regime de altas densidades, ou forte absorção, o termo exponencial se anula [42]. Nesse limite, verificamos que $\rho_{ab} = 0$, e consequentemente,

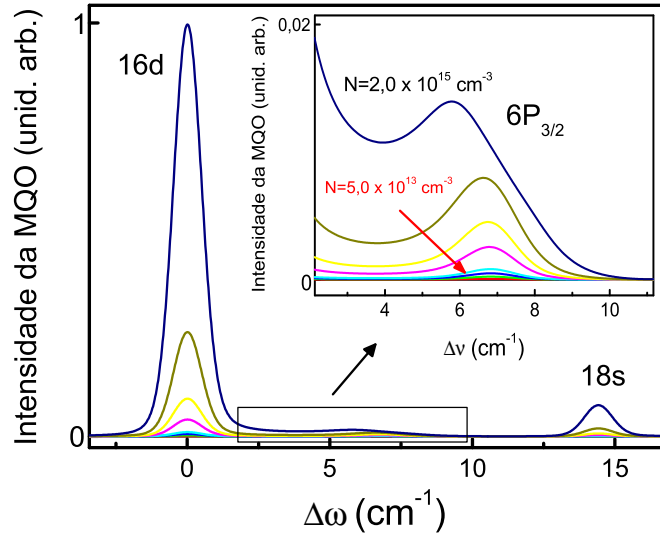


Figura 4.10 Espectros de excitação de mistura de quatro ondas calculados para diferentes densidades, envolvendo as ressonâncias de dois fótons com os estados $16d$ e $18s$, e de três fótons com o estado $6P_{3/2}$. Para densidades desde $N = 6,0 \times 10^{13}$ até $N = 2,0 \times 10^{15}$

$\dot{\rho}_{ab} = 0$ também. Isto é, na condição de forte absorção, o campo gerado na frequência ω_3 satura a coerência entre os estados a e b , tornando a geração do sinal de MQO independente da densidade atômica. O que caracteriza o efeito denominado interferência destrutiva nas ressonâncias de fótons ímpares.

Considerando o efeito de interferência destrutiva, queremos entender o comportamento da intensidade do sinal de mistura de quatro ondas na ressonância de três fótons, com o aumento da densidade atômica. Na figura 4.1b, é possível verificar a necessidade de se introduzir os efeitos de propagação na descrição do sinal.

A intensidade do sinal gerado é proporcional ao quadrado do módulo da frequência de Rabi do campo gerado, dada pela equação 2.41. Utilizando a equação 4.7, calculamos a convolução da intensidade do campo com o perfil de intensidade do campo 1 e geramos os espectros de excitação teóricos para diferentes densidades.

Na figura 4.10, apresentamos a intensidade do sinal de mistura de quatro ondas calculada em função da dessintonia com o laser de corante. Esses espectros teóricos foram calculados sem considerar o efeito de auto-alargamento, já que ele não é relevante para a intensidade do pico associado à ressonância de três fótons que vamos analisar. Variamos a densidade em duas ordens de grandeza, desde $N = 6,0 \times 10^{13}$ até $N = 2,0 \times 10^{15}$.

Primeiro, queremos verificar o efeito de saturação devido à interferência destrutiva, por isso, medimos a intensidade do sinal de mistura de quatro ondas para duas posições diferentes do espectro de excitação calculado na figura 4.10; exatamente na ressonância de três fótons, $\Delta\omega_{6P_{3/2}} = 0$, e deslocados para o lado de baixas energias, na posição $\Delta\omega_{6P_{3/2}} = 1 \text{ cm}^{-1}$, onde $\Delta\omega_{6P_{3/2}} = \omega_{5s6P_{3/2}} - (2\omega_1 - \omega_2)$ como definimos no capítulo 3.

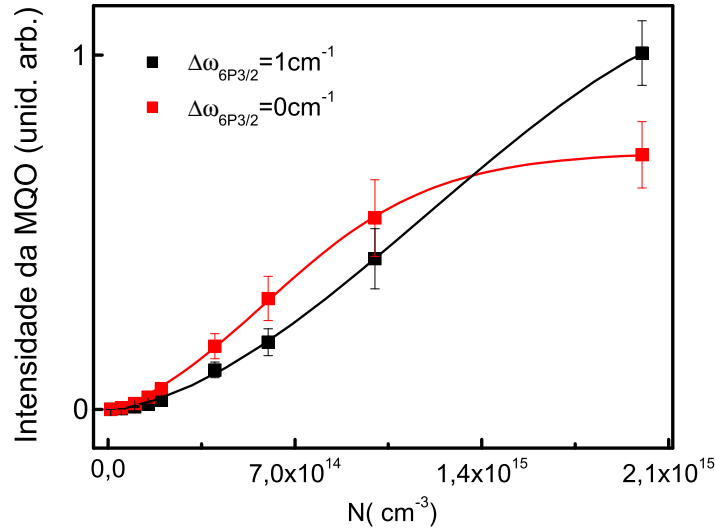


Figura 4.11 Intensidade do sinal de mistura de quatro ondas em função da densidade atômica, para duas posições do espectro: $\Delta\omega_{6P_{3/2}} = 0$ e 1 cm^{-1}

Na figura 4.11 apresentamos a intensidade do sinal nessas duas posições em função da densidade atômica. Onde o cálculo teórico é representado pelos pontos e a curva contínua representa um ajuste polinomial como um guia para os olhos. Na região estudada, há um comportamento de saturação quando estamos exatamente na ressonância de três fótons em relação ao comportamento quando nos afastamos da ressonância. Esse comportamento é muito semelhante ao que é observado experimentalmente, como mostramos na figura 3.12, onde verificamos que o crescimento se torna mais próximo do comportamento quadrático esperado quanto mais longe da posição da ressonância.

O modelo teórico considerado é capaz de descrever o comportamento da intensidade do sinal de mistura de quatro ondas na ressonância de três fótons em função da densidade atômica. Em geral, o efeito de interferência destrutiva de fótons ímpares é estudado em experimentos de transparência induzida por laser[89], ou experimentos de ionização observando deslocamentos Autler-Townes [42], sem o envolvimento de estados muito excitados.

4.4.2 Intensidade do sinal de MQO em função de θ

Nesta seção, vamos analisar o comportamento da intensidade do sinal de mistura de quatro ondas quando variamos o ângulo de cruzamento entre os feixes de excitação, θ . Na figura 4.12, apresentamos a intensidade do sinal de MQO calculada nas posições de ressonância de dois e de três fótons em função do ângulo de cruzamento para duas densidades atômicas $N = 0,1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ (figura 4.12a) e $N = 6,5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ (figura 4.12b). Para esses resultados utilizamos os parâmetros $\gamma_{ac} = \gamma_{ad} = 0,1 \text{ cm}^{-1}$, $\gamma_{ab} = 0,45 \text{ cm}^{-1}$, o comprimento de interação, $z = 1 \text{ cm}$, e não consideramos a convolução com a forma de linha do campo $\vec{E}_1$, com a finalidade de

obter uma curva contínua em θ . Considerando essa convolução, seria necessário calcular um espectro de excitação para cada ângulo, e em cada espectro inferir os valores de intensidade através do ajuste gaussiano mostrado nas figuras 3.7 e 3.8. Após vários testes, verificamos que nesse caso, os resultados são equivalente, com e sem a integração.

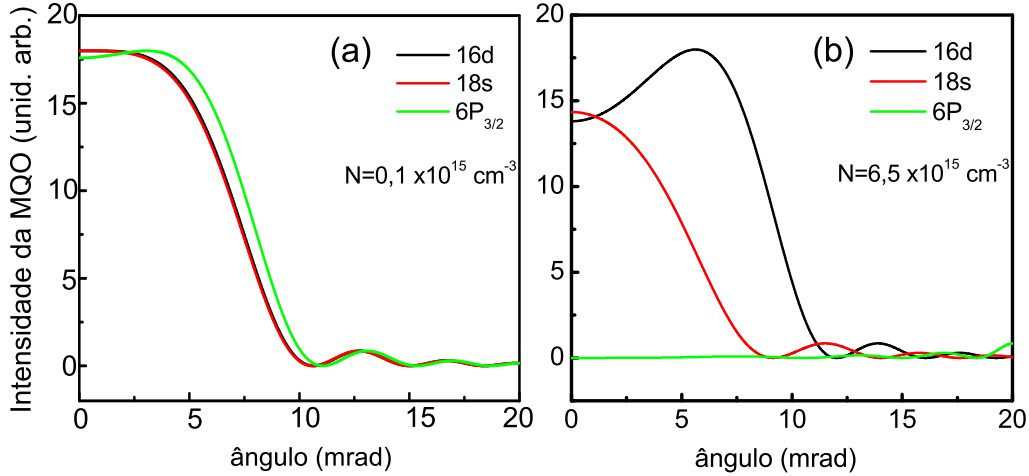


Figura 4.12 Intensidade do sinal de mistura de quatro ondas nas posições de ressonância de dois fótons com os níveis 16d e 18s e na posição de ressonância de três fótons com o nível $6P_{3/2}$ em função do ângulo de cruzamento entre os feixes de excitação para duas densidades atômicas: (a) $0,1 \times 10^{15}$ e (b) $N = 6,5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$.

Podemos observar que para baixa densidade (fig. 4.12a) os três picos apresentam um comportamento muito semelhante. Conforme o ângulo aumenta o sinal diminui rapidamente tendendo a zero, e a partir de $\theta \approx 10 \text{ mrad}$ apresenta um comportamento oscilatório em torno de um valor de intensidade bem pequeno. Essa diminuição brusca da intensidade do sinal com o ângulo de cruzamento é um comportamento característico do efeito de casamento de fase. Para altas densidades (fig. 4.12b), o comportamento da intensidade varia para cada posição de ressonância. Na posição de ressonância de três fótons verificamos um valor constante que independe do ângulo de cruzamento, o que ocorre devido à interferência destrutiva discutida na seção anterior. O pico associado à ressonância com o estado 18s diminui rapidamente de intensidade com o aumento do ângulo e inicia um comportamento oscilatório em torno de um valor mínimo a partir de $\theta = 9 \text{ mrad}$. Já o pico associado à ressonância com o estado 16d cresce inicialmente, apresentando um valor máximo de intensidade para um ângulo $\theta \approx 6 \text{ mrad}$, correspondendo ao ângulo de melhor casamento de fase. Para ângulos maiores que este, a intensidade diminui rapidamente até $\theta = 12 \text{ mrad}$ quando se inicia o comportamento oscilatório.

O ângulo para o qual a intensidade do sinal tende a zero e o comportamento fica oscilatório, também depende do comprimento de interação, z . Como dito anteriormente, no nosso experimento é razoável considerar que z não varia com θ , porém a estimativa de seu valor não é simples. Procurando obter um resultado qualitativo, realizamos vários testes e encontramos um

valor médio de comprimento de interação que ajusta bem uma série de espectros experimentais medidos nas mesmas condições de densidade atômica e intensidade dos laser de excitação. Assim, optamos por fixar o comprimento de interação $z = 0,7 \text{ cm}$.

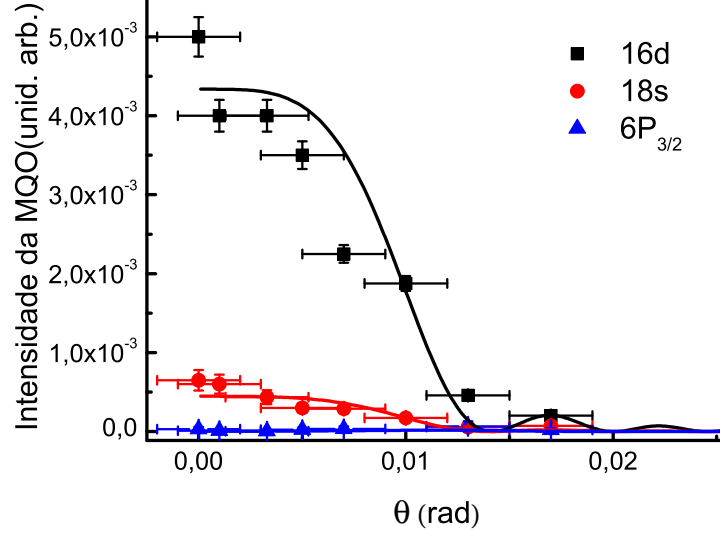


Figura 4.13 Intensidade do sinal de mistura de quatro ondas nas posições de ressonância de dois fótons com os níveis $16d$ e $18s$ e na posição de ressonância de três fótons com o nível $6P_{3/2}$ em função do ângulo de cruzamento entre os feixes de excitação para densidade atômica fixa $N = 1,0 \times 10^{15}$ e $\frac{\beta}{2\pi} = 2,1 \times 10^{-12} \text{ MHz cm}^3$.

Apresentamos na figura 4.13, a comparação entre os resultados experimentais (já mostrados na figura 3.20) e a previsão teórica, da intensidade do sinal de mistura de quatro ondas nas posições de ressonância. A densidade atômica é fixada de acordo com o experimento, $N = 1,0 \times 10^{15}$, utilizamos os mesmo valores de γ que utilizamos nos resultados anteriores e o coeficiente de auto-alargamento determinado na seção 4.3, $\frac{\beta}{2\pi} = 2,1 \times 10^{-12} \text{ MHz cm}^3$. Podemos ver que o nosso modelo explica bem o comportamento da intensidade em função do ângulo de cruzamento entre os feixes de incidência. Apesar de, experimentalmente, não termos resolução para verificar o comportamento oscilatório da intensidade em função de θ , verificamos, na região entre 3 e 15 *mrad* um comportamento médio de diminuição da intensidade com aumento do ângulo de cruzamento, bastante semelhante com a previsão teórica.

4.5 Deslocamento em frequência

Quando excitamos a coerência entre dois níveis, tal que a transição é permitida por um e três fótons, além do efeito de interferência destrutiva discutido nas seções anteriores outro efeito é observado na ressonância de três fótons, o deslocamento da posição de máximo de intensidade correspondente a essa ressonância [59, 45]. Esse deslocamento, como verificamos experimen-

talmente, deve depender tanto da densidade atômica quanto do ângulo de cruzamento entre os feixes de excitação, de acordo com a seção 2.2.1, mais especificamente pela equação 2.50.

4.5.1 Deslocamento em função da densidade atômica.

Em relação à densidade atômica, observamos, experimentalmente, que o pico associado à ressonância de três fótons se desloca para o lado de baixas energia com o aumento de N . Esse deslocamento é medido de acordo com a quantidade $\Delta\omega_{shift}$ correspondente a posição relativa do máximo de intensidade quando comparada com a posição da ressonância, assim como definido no capítulo 3. Na Fig. 4.14, apresentamos o valor do deslocamento, $\Delta\omega_{shift}$, medido nos espectros experimentais, em função da densidade atômica para as ressonâncias $5s-6P_{1/2}$ e $5s-6P_{3/2}$.

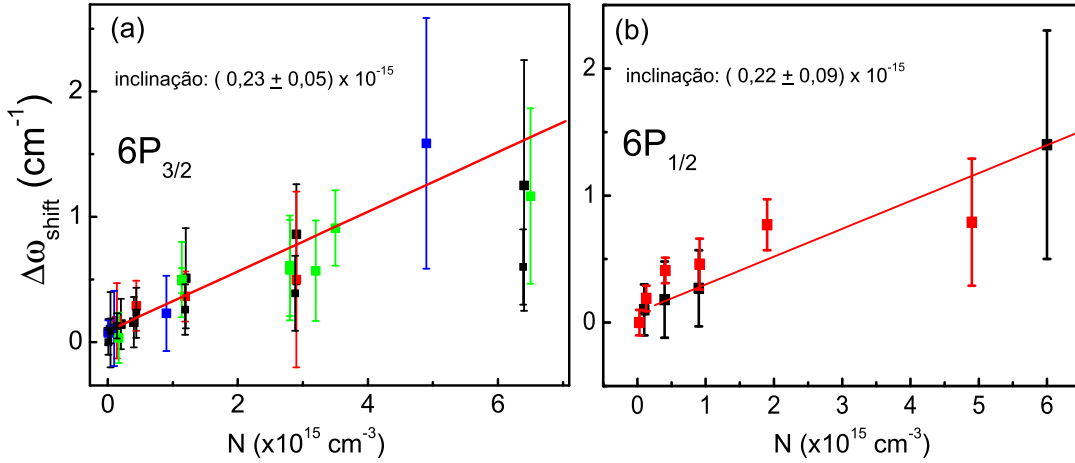


Figura 4.14 Medida do deslocamento da posição de ressonância de três fótons em função da densidade atômica, para espectros experimentais envolvendo os níveis (a) $6P_{3/2}$ (b) $6P_{1/2}$.

De acordo com a equação 2.50, e lembrando que $\kappa_{ab} = \frac{Nk_3|\mu_{ab}|^2}{2\hbar\epsilon_3}$, esperamos um comportamento linear do deslocamento em função da densidade atômica. Assim, fizemos um ajuste linear, mostrado nas figuras 4.14 (a) e (b), e nos dois casos encontramos uma inclinação de aproximadamente $(0,2 \pm 0,1) \times 10^{-15} \text{ cm}^2$. Como dito anteriormente, as medidas com densidade são delicadas e demoradas, por isso, na figura 4.14, estamos apresentando conjuntos de medidas realizados em dias diferentes (cada cor representa um dia de medida) garantindo condições experimentais aproximadamente iguais. Dessa forma mostramos que, apesar da grande barra de erro, o comportamento linear do deslocamento pode ser visualizado.

Utilizando os espectros da figura 4.10, calculados na configuração colinear para diferentes densidades, podemos investigar a dependência do deslocamento com a densidade atômica prevista pela teoria. Para isso, realizamos um ajuste gaussiano em cada espectro, seguindo o

mesmo procedimento feito para os espectros experimentais, como indicado nas figuras 3.6-3.8. Com esse procedimento de ajustes com gaussianas, identificamos a posição do pico central e calculamos o deslocamento em relação a ressonância de três fótons, $\Delta\omega_{shift}$. Esse deslocamento ocorre para o lado de baixas energias, o que está de acordo com a equação 2.43, onde a condição de casamento de fase é satisfeita para frequências menores do que a frequência da ressonância por três fótons [58].

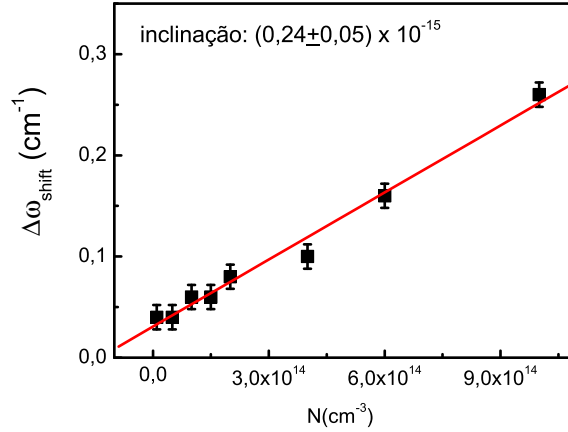


Figura 4.15 Medida do deslocamento da ressonância de três fótons em função da densidade atômica, referente aos espectros calculados na figura 4.7.

Apresentamos na figura 4.15 o deslocamento, $\Delta\omega_{shift}$, em função da densidade atômica, obtidos nos espectros da figura 4.10. Os pontos representam o deslocamento medido em cada espectro teórico e a linha contínua representa um ajuste linear, com inclinação de $0,24 \pm 0,05 \times 10^{-15} \text{ cm}^2$. Optamos por estudar detalhadamente o nível $6P_{3/2}$, porque o pico associado à ressonância de três fótons com este nível é mais intenso. Podemos comparar esse resultado com o que observamos experimentalmente na figura 4.14a, onde ambos apresentam um comportamento linear cuja inclinação é da ordem de $0,2 \times 10^{-15} \text{ cm}^2$, indicando um bom acordo entre teoria e experimento.

Analisando a equação 2.43, vemos que o termo associado ao deslocamento é dado por $\frac{\kappa_{ab}}{\Delta k}$, onde $\kappa_{ab} = \frac{Nk_3|\mu_{ab}|^2}{2\hbar\epsilon_3}$. Porém, o resultado observado nos espectros de excitação, é influenciado pela interferência entre os caminhos quânticos e também pela largura de linha dos picos, que em altas densidades, podem se superpor devido ao alargamento. Com o objetivo de verificar, se somente o termo $\frac{\kappa_{ab}}{\Delta k}$ pode explicar o comportamento do deslocamento, fizemos uma estimativa de $\frac{\kappa_{ab}}{N\Delta k}$, cujo significado é correspondente ao da inclinação medida na figura 4.15. Para isso, vamos considerar que na configuração colinear existe um ângulo residual, da ordem da incerteza estimada devido a abertura angular, $1,5 \text{ mrad}$. Com esse valor, calculamos um coeficiente da ordem de $(1,5 \pm 0,5) \times 10^{-15} \text{ cm}^2$, um valor que é bem diferente daquele encontrado quando medimos o deslocamento nos espectros de excitação, que apresentou um concordância muito boa com o experimento. Essa estimativa, mostra que não podemos associar o deslocamento diretamente com o termo $\frac{\kappa_{ab}}{\Delta k}$, é preciso calcular os espectros de excitação e inferir

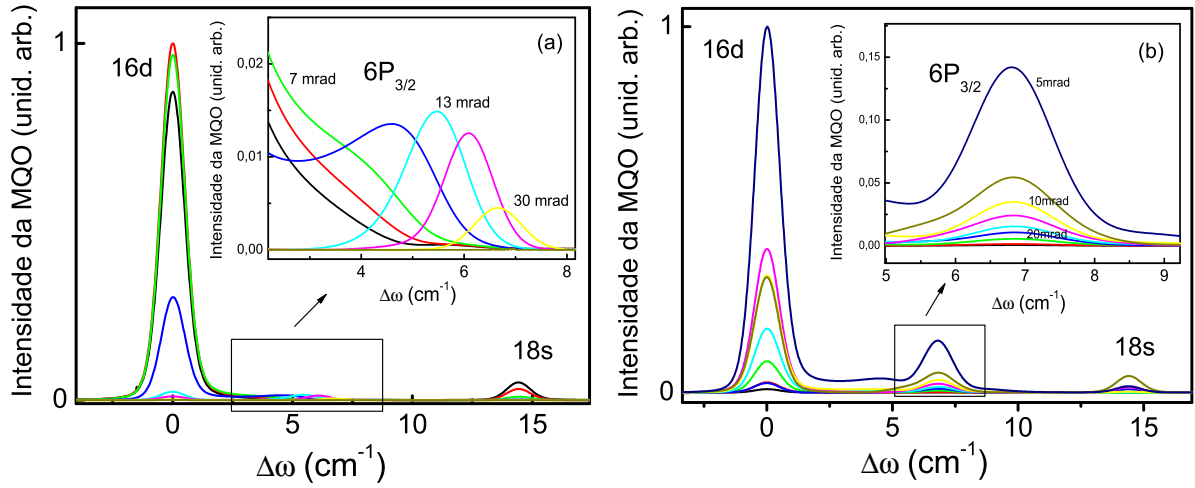


Figura 4.16 Cálculo do espectro de excitação da mistura de quatro ondas para diferentes ângulos de cruzamento entre os feixes de excitação. Para densidades fixa (a) $N = 2 \times 10^{16}$ e (b) $N = 1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$

a posição do pico referente à ressonância de três fótons em cada um deles. Indicando que o deslocamento efetivo do pico associado à ressonância de três fótons, aquele observado em cada espectro calculado, depende dos efeitos da proximidade dos picos associados às ressonâncias de dois fótons.

4.5.2 Deslocamento em função de θ .

Na figura 3.21 apresentamos o comportamento do deslocamento em função de θ observado nos dados experimentais que foram obtido nos espectros da figura 3.19. Nosso objetivo aqui é, de forma mais condizente com o experimento, utilizar o modelo teórico para investigar o comportamento do deslocamento em frequência em função do ângulo de cruzamento entre os feixes. Para isso, calculamos o espectro de excitação da mistura de quatro ondas envolvendo os estado $16d$ e $18s$, para diferentes valores de θ , no intervalo de 3 a 30 *mrad*. Na figura 4.16 apresentamos os espectros calculados na condição de que os lasers de excitação têm intensidades constantes, e a densidade e o comprimento de interação são parâmetros fixos. No cálculo da figura 4.16a, a densidade é $2,0 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, maior que a densidade experimental máxima. Escolhemos esta densidade para que o efeito de deslocamento fosse mais visível. Na figura 4.16b a densidade utilizada é $1,0 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$, a mínima densidade que trabalhamos experimentalmente. A partir do zoom visto nessas figuras podemos observar o deslocamento do pico correspondente à ressonância de três fótons com o estado $6P_{3/2}$ e assim como previsto pela equação 2.50, quanto maior N , maior o efeito de deslocamento em função do ângulo. Não conseguimos verificar isso, experimentalmente, devido à eficiência na geração do sinal de mis-

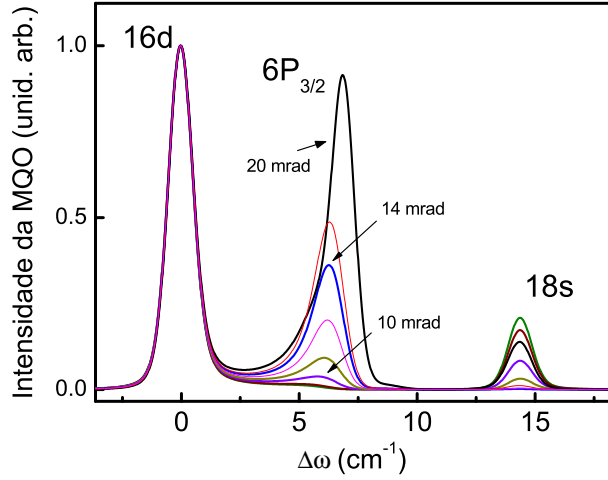


Figura 4.17 Espectro de excitação teórico calculado para densidade atômica de $N = 1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ e $\frac{\beta}{2\pi} = 2,1 \times 10^{-12} \text{ MHz cm}^3$.

tura de quatro ondas e à limitação da nossa resolução. O sinal como um todo diminui muito quando aumentamos o ângulo de cruzamento, assim, precisamos aumentar a densidade atômica, o que por sua vez aumenta o efeito de interferência destrutiva, dificultando a observação da ressonância de três fótons.

O efeito de deslocamento é bem visualizado para uma densidade de $1,0 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ e os espectros experimentais, nessa densidade, para diferentes ângulos de cruzamento, de 0 à 17 mrad, foram mostrados na figura 3.19. Os espectros de excitação calculados para a mesma densidade atômica estudada experimentalmente são mostrados na figura 4.17. Nesse resultado, apresentamos a intensidade da mistura de quatro ondas em função da dessintonia do laser de corante, calculada para a densidade de $1,0 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$, e coeficiente de auto alargamento $\frac{\beta}{2\pi} = 2,1 \times 10^{-12} \text{ MHz cm}^3$. Comparando esse resultado com o mostrado na figura 3.19, observamos uma grande semelhança entre os espectros e seu comportamento geral. Vemos que para ângulos muito pequenos há uma superposição entre os picos associados à ressonância de três fótons com o estado $6P_{3/2}$ e de dois fótons com o estado $16d$, tornando o espectro assimétrico para o lado de baixa energia da ressonância de três fótons. Para cada um dos espectros da figura 4.17, realizamos novamente um ajuste gaussiano com o objetivo de identificar a posição do pico intermediário, como exemplificado nas figuras 3.6-3.8. Na figura 4.18, apresentamos o valor encontrado para o deslocamento da ressonância de três fótons, $\Delta\omega_{shift}$, em função do ângulo θ . Os pontos representam o valor medido em cada espectro da figura 4.17, e a linha contínua representa um ajuste com a equação 2.51. Esse resultado é compatível com o que foi observado experimentalmente, como podemos ver no *inset* da figura 4.18.

A partir do ajuste teórico na figura 4.18, encontramos um parâmetro $C_{TEO} = (5,2 \pm 0,2) \times 10^{-5}$, que é o correspondente do parâmetro $C_{EXP} = (1,5 \pm 0,8) \times 10^{-5}$ encontrado para o resultado experimental da figura 3.21. Os valores apresentam a mesma ordem de grandeza, porém com um fator de aproximadamente 4 entre eles. Essa diferença entre os parâmetros pode

estar associada a diversos fatores, principalmente devido a sua forte dependência com N . Como dito anteriormente, nos nossos experimentos, o controle da temperatura é um procedimento sensível, de forma que temos uma incerteza de aproximadamente 30% no valor de densidade estimada e essa incerteza não é considerada no modelo teórico.

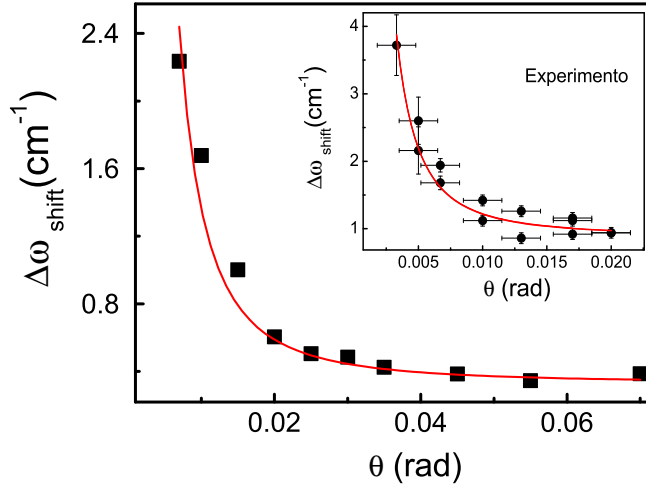


Figura 4.18 Cálculo do deslocamento da ressonância de três fótons em função do ângulo de cruzamento entre os feixes incidentes, para uma densidade fixa $N = 1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-1}$ e coeficiente de auto-alargamento $\frac{\beta}{2\pi} = 2,1 \times 10^{-12} \text{ MHz cm}^3$.

Logo, precisamos verificar o quanto que a incerteza na estimativa da densidade pode ser crítico para o acordo entre experimento e teoria, isto é, na obtenção do parâmetro C . Para isso, calculamos o deslocamento da ressonância de três fótons em função do ângulo de cruzamento, para duas densidades diferentes, $N = 1,3 \times 10^{15}$; $N = 0,6 \times 10^{15}$, o que é mostrado na figura 4.19. Essas densidades correspondem a $\pm 30\%$ no valor da densidade estimada para o resultado experimental considerado. Nesse gráfico, cada ponto é resultado do ajuste gaussiano de um espectro calculado, e a curva contínua representa um ajuste com a equação 2.51. Encontramos os valores da constante C , para as duas densidade consideradas, $N = 1,3 \times 10^{15}$; $N = 0,6 \times 10^{15}$, como sendo, $7,8 \times 10^{-5}$ e $3,2 \times 10^{-5}$, respectivamente. O valor encontrado para a densidade mais baixa dentro do limite de incerteza é bem próximo do valor experimental, de forma que podemos afirmar, considerando os erros associados a estimativa da densidade, que os valores C_{TEO} e C_{EXP} apresentam uma boa concordância e que a densidade relacionada aos resultados experimentais pode ter sido superestimada.

Nesse capítulo, mostramos que a forma mais adequada para a descrição do sinal gerado de mistura de quatro ondas, consiste no cálculo detalhado dos espectros de excitação. A partir dos espectros, os efeitos associados ao alargamento das linhas espectrais se tornam mais evidentes, assim como sua influência em outro aspectos, como na intensidade dos picos associados às ressonâncias de dois e três fótons e nos efeitos de deslocamento.

No próximo capítulo, vamos apresentar a montagem e caracterização de uma armadilha

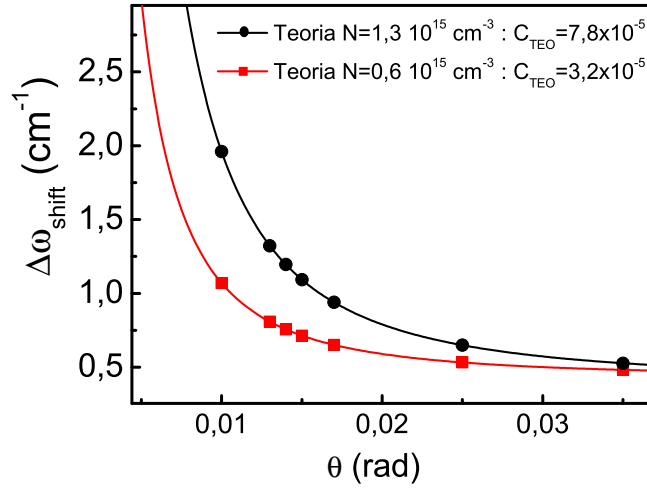


Figura 4.19 Cálculo do deslocamento, $\Delta\omega_{shift}$, para três diferentes densidades: $N = 0,6 \times 10^{15}$; $N = 6,5 \times 10^{15}$ e $N = 1,3 \times 10^{15}$ (círculos) e ajuste com a equação 2.51 (linhas contínuas).

magneto-ótica, assim como a preparação para a realização de um experimento preliminar de mistura de quatro ondas em átomos frios.

Armadilha Magneto-Ótica

Neste capítulo, descrevemos a montagem e caracterização de uma armadilha magneto-ótica (AMO) em átomos de Rb. Vamos descrever a preparação do sistema para realizar um experimento de mistura de quatro ondas em átomos frios. Esse é um experimento preliminar, cujo objetivo é nos familiarizarmos com o aparato da AMO, para no futuro utilizar a armadilha no estudo da interação entre átomos muito excitados.

5.1 Princípios de funcionamento de uma AMO

As armadilhas magneto-óticas são a principal ferramenta na obtenção de uma amostra de átomos frios, com aplicações que vão desde a metrologia até a computação quântica [90]. Experimentos utilizando átomos frios se beneficiam da movimentação reduzida dos átomos, onde os mecanismos de alargamento, como o efeito Doppler de segunda ordem, podem ser completamente eliminados. Essas características permitem a comparação direta entre teoria e experimento sem necessariamente considerar a distribuição de velocidades. Esses sistemas são muito utilizados para o estudo de processos de interação atômica, que é o nosso objetivo, inclusive envolvendo átomos de Rydberg [91, 19]. Assim, visando a realização de experimentos para investigar efeitos de interação entre átomos, montamos uma armadilha magneto-ótica na configuração proposta por Raab [92], onde três pares de feixes contrapropagantes em uma frequência específica são responsáveis pelo resfriamento dos átomos presentes em uma célula contendo vapor de Rb. O aprisionamento é feito a partir de um campo magnético na configuração anti-Helmholtz, cujo gradiente direciona os átomos para uma pequena região no centro da célula, onde o campo é nulo.

Considerando que um átomo absorve um fóton de energia $\hbar\omega_{ij} = E_j - E_i$ e momento $\hbar\vec{k}$, ele é excitado para um nível de energia E_j e seu momento muda para $\vec{p}_j = \vec{p}_i + \hbar\vec{k}$, onde $\vec{p}_j$ e $\vec{p}_i$ são os momentos final e inicial do átomo, respectivamente. Essa variação no momento do átomo é chamada de efeito de recuo ótico e ocorre de forma semelhante no processo de emissão, porém subtraindo o momento do fóton. No caso de fótons emitidos aleatoriamente, a média temporal do momento transferido tende a zero. Já para fótons absorvidos todos na mesma direção, o átomo sofre uma variação de velocidade, $\Delta v = \frac{\hbar k}{M}$, para cada evento, onde M é a massa do átomo. Apesar de essa variação ser muito pequena, devemos considerar o efeito acumulativo, quando um átomo permanece um certo tempo na presença de um laser ressonante com uma determinada transição atômica. Nesse caso, ocorrem vários ciclos de emissão e absorção, e o efeito de recuo provoca uma efetiva modificação na velocidade dos átomos. Para que essa modificação signifique uma diminuição na velocidade, precisamos que o

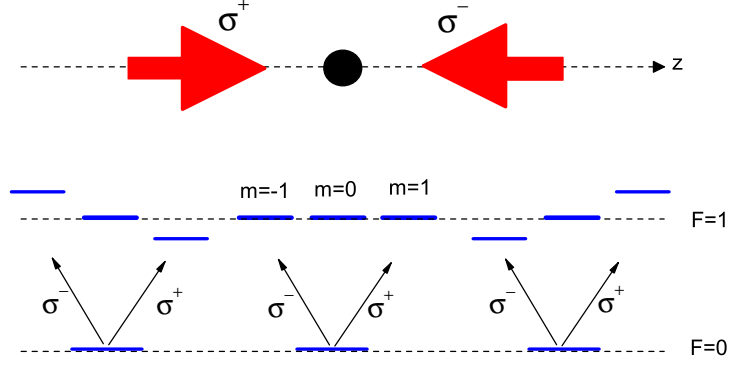


Figura 5.1 Esquema do processo de resfriamento. Representação do efeito do campo magnético nos níveis atômicos e polarização dos feixes .

átomo absorva preferencialmente fótons com momento no sentido contrário ao seu movimento. Isto é, queremos que a probabilidade de absorção seja maior para $\vec{k} \cdot \vec{v} < 0$ do que para $\vec{k} \cdot \vec{v} > 0$, o que ocorre quando sintonizamos o laser abaixo da frequência de ressonância [93].

Devido ao efeito Doppler, para os átomos que se movem com uma determinada velocidade os feixes de resfriamento apresentam diferentes frequências. Essas frequências podem se aproximar ou se afastar da ressonância, caso o feixe esteja no mesmo sentido ou sentido oposto da velocidade do átomo. A força que os feixes aplicam nos átomos é uma força de espalhamento, que é função da dessintonia entre a frequência do laser, ω , e da ressonância, ω_0 , considerando a variação devido ao efeito Doppler, kv . A dessintonia é definida como $\delta = \omega - \omega_0 \pm kv$, de forma que podemos escrever a amplitude da força de espalhamento como:

$$F_{esp}(\delta) = \hbar k \frac{\Gamma}{2} \frac{\frac{I}{I_{sat}}}{1 + \frac{I}{I_{sat}} + 4 \frac{\delta^2}{\Gamma^2}} \quad (5.1)$$

onde $\hbar k$ é o momento do fóton e I é a intensidade do feixe. I_{sat} e Γ correspondem, respectivamente, à intensidade de saturação e à largura natural da transição considerada.

Matematicamente, a diferença de amplitude entre as forças aplicadas em um átomo devido aos feixes copropagantes e contrapropagantes à sua velocidade é:

$$F_{resultante} = F_{esp}(\omega - \omega_0 - kv) - F_{esp}(\omega - \omega_0 + kv) , \quad (5.2)$$

onde δ é escrito de forma explícita para diferenciar as forças devido aos feixes co- e contrapropagantes à velocidade do átomo.

No limite de baixas velocidades podemos reescrever a força resultante como:

$$F_{resultante} \approx F_{esp}(\omega - \omega_0) - kv \frac{\partial F_{esp}}{\partial \omega} - \left[F_{esp}(\omega - \omega_0) + kv \frac{\partial F_{esp}}{\partial \omega} \right] \approx -2kv \frac{\partial F_{esp}}{\partial \omega}. \quad (5.3)$$

Assim, essa diferença nas forças devido ao efeito Doppler pode ser representada como:

$$F_{resultante} = -\alpha v \quad (5.4)$$

Esse resultado mostra que a força de troca de momento devido a pressão de radiação é uma força do tipo dissipativa. Na armadilha magneto-ótica, os três pares de feixes contrapropagantes, incidentes nas direções x , y e z , são originados do mesmo laser. De forma que nas três direções, uma força dissipativa provoca a diminuição da velocidade dos átomos, o que caracteriza o estado de melaço ótico.

Porém, essa força não gera uma região preferencial para que os átomos fiquem armadilhados. Para isso, é necessário escolher corretamente a polarização dos lasers utilizados no processo de resfriamento e adicionar ao sistema um campo magnético. Esse campo magnético gera uma diferença nas forças de espalhamento, de forma que a força resultante será responsável pelo efetivo confinamento dos átomos.

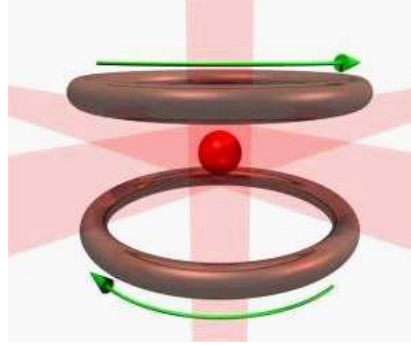


Figura 5.2 Representação gráfica da região de confinamento.

Na figura 5.1 podemos ver esquematicamente o processo de resfriamento que ocorre em cada uma das três direções. As duas setas horizontais representam os lasers de resfriamento, que na direção $+z$ possui polarização σ^+ e na direção $-z$ possui polarização σ^- . Para uma transição entre os níveis $F_g = 0$ e $F_e = 1$, precisamos considerar o efeito Zeeman, devido à presença do campo magnético, que levanta a degenerescência dos estados. Seguindo a representação da figura 5.1, quando um átomo se desloca na direção $+z$, o nível $m_F = -1$ se torna

ressonante com o feixe σ^- , forçando o átomo para a direção $-z$. Da mesma forma, se o átomo se desloca na direção $-z$, o nível $m_F = +1$ se torna ressonante com o feixe σ^+ , forçando o átomo na direção contrária, $+z$. Essa dinâmica ocorre na três direções, x , y e z , gerando um espaço de confinamento na região de cruzamento entre os pares de feixes contrapropagantes, como mostrado na figura 5.2.

Para descrever esse processo matematicamente, podemos incorporar o deslocamento de frequência devido ao efeito Zeeman na equação 5.1, da forma:

$$F_{resultante} = F_{esp}^{\sigma^+}(\omega - kv - (\omega_0 + \beta z)) - F_{esp}^{\sigma^-}(\omega + kv - (\omega_0 - \beta z)) \\ \approx -2kv \frac{\partial F_{esp}}{\partial \omega} + 2\beta z \frac{\partial F_{esp}}{\partial \omega}. \quad (5.5)$$

O termo $\omega_0 + \beta z$ corresponde à frequência de absorção ressonante para a transição $\Delta M_j = +1$, e $\omega_0 - \beta z$ à frequência de absorção ressonante para a transição $\Delta M_j = -1$, ambos na posição z . O deslocamento Zeeman para uma determinada posição z é dado por:

$$\beta z = \frac{g\mu_B}{\hbar} \frac{dB}{dz} z, \quad (5.6)$$

onde g é o fator de Landé, que nesse caso equivale a g_J , e μ_B é o magnéton de Bohr.

Podemos então calcular a força total em uma AMO, da forma:

$$F_{AMO} = -2kv \frac{\partial F_{esp}}{\partial \omega} (kv + \beta z) = -\alpha v - \frac{\alpha\beta}{k} z. \quad (5.7)$$

Esse resultado mostra que o efeito Zeeman na AMO dá origem a uma força do tipo restauradora, com uma constante de mola igual a $\frac{\alpha\beta}{k}$.

Assim, os átomos neutros em uma AMO estão sujeitos a uma força que tem caráter restaurador e dissipativo, ou seja, esta força deve agir como em um oscilador harmônico amortecido. Os átomos devem desacelerar e parar em um poço de potencial quadrático, localizado no centro da célula.

A seguir vamos descrever o procedimento de montagem e caracterização de nossa armadilha magneto-ótica que segue o princípio de funcionamento conforme apresentado.

5.2 Montagem da armadilha magneto-ótica

A armadilha montada por nós é formada por uma câmara de vácuo, ligada a uma bomba iônica *Startcell* da Varian, que mantém a pressão entre 10^{-8} e 10^{-9} Torr. Os átomos são introduzidos por um sistema de dispensers [94], acionado por uma corrente elétrica da ordem de 8 amperes. Na figura 5.3, apresentamos uma fotografia da montagem experimental da armadilha magneto-ótica. Nessa figura podemos identificar a célula que contém os átomos de Rb, a bomba iônica responsável por manter o vácuo na célula, as bobinas que geram o campo magnético na configuração anti-Helmholtz, e os colimadores de feixes. Para a armadilha utilizamos dois lasers de diodo, onde montamos, desde a cavidade até o controle eletrônico de temperatura e corrente. Um dos lasers é responsável pelo processo de resfriamento e o outro responsável pelo

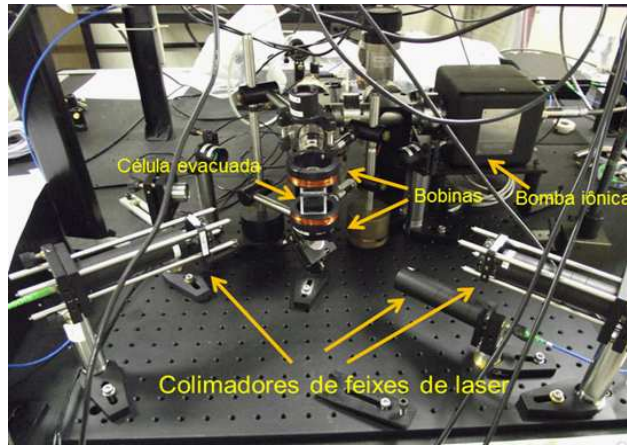


Figura 5.3 Fotografia mostrando a montagem experimental da AMO.

rebombeio. Nossos lasers de diodo são do tipo DL7140-201S, da Sanyo, comprados da Thorlabs, com comprimento de onda de aproximadamente 780 nm , adequado para a transição D_2 do ^{87}Rb . Como esses lasers apresentam uma largura de linha da ordem de 1 MHz , não foi preciso trabalhar com uma cavidade externa, de forma que a sintonização é feita através do controle da temperatura e da corrente aplicada no diodo.

Na figura 5.4 mostramos o esquema de montagem para controle do laser de resfriamento. Logo na saída do laser temos um isolador ótico de 60 dB , da Isowave, para evitar reflexões de retorno para o diodo. Com uma lâmina de microscópio uma pequena parte do laser é refletida para um experimento de absorção saturada, o qual é utilizado como ferramenta de sintonização. A maior parte do laser é direcionada para um modulador acusto-ótico, do qual a primeira ordem é alinhada em um amplificador Boosta, da Tóptica, cuja eficiência é da ordem de 180% . Esse amplificador possui um sistema *fiber dock* que acopla o feixe de saída em uma fibra ótica. A ordem zero do modulador fica disponível para uso em experimentos ou como feixe de alinhamento. Um esquema semelhante, mas sem o amplificador, é usado no laser de rebombeio.

Na figura 5.5, apresentamos o espectro de absorção saturada, numa região de varredura de aproximadamente 8 GHz . Nesse resultado, podemos identificar quatro vales correspondentes à resposta da absorção linear, devido às ressonâncias com as transições do ^{87}Rb e ^{85}Rb . Em cada um desses vales, é possível identificar os picos de absorção saturada, correspondentes aos estados da estrutura hiperfina de cada transição.

As duas caixas destacadas, identificadas como (a) e (b) na figura 5.5, correspondem às transições do ^{87}Rb desde $F_g = 2$ e $F_g = 1$, respectivamente. Na figura 5.6, apresentamos estas duas transições mais detalhadamente, onde podemos identificar os picos de cada transição. Com esse resultado, podemos diminuir a região de varredura, até sintonizar um único pico, ou seja, até que o laser esteja sintonizado em uma transição específica do átomo. Para evitar flutuações em torno dessas posições de ressonância devido às perturbações do ambiente, como mudanças de temperatura, é preciso utilizar um circuito eletrônico com sinal de retroalimentação para

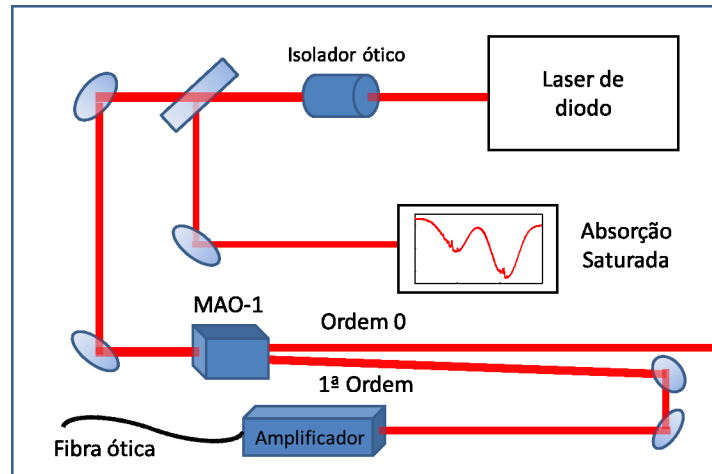


Figura 5.4 Esquema de montagem do laser de diodo utilizado para resfriamento dos átomos na AMO.

travar os lasers nas linhas específicas. Em nosso experimento, utilizamos dois desses circuitos, montados em nossa oficina eletrônica, cujo sinal de retroalimentação vem da própria absorção saturada.

No esquema representativo, mostrado na Fig. 5.1, consideramos uma transição de um sistema de 2 níveis, porém o átomo de Rb possui estrutura eletrônica bem mais complexa. Por isso, utilizamos, no processo de resfriamento, transições cíclicas cujo comportamento é semelhante a um sistema de dois níveis real. Na Fig. 5.7, apresentamos os níveis atômicos do isótopo 87 do átomo de Rb, onde a seta vermelha indica a transição cíclica, $F_g = 2 \rightarrow F_e = 3$, escolhida para sintonizar o laser de resfriamento. Devido às diversas características do sistema, como a largura de linha dos lasers por exemplo, essa transição não é perfeitamente fechada, isto é, alguns átomos podem decair para o estado $F_g = 1$ e entrar em ressonância com outra transição. Assim, precisamos de um laser, denominado laser de rebombeio, sintonizado na transição $F_g = 1 \rightarrow F_e = 2$, mantendo a maioria dos átomos na transição cíclica. Esse laser é representado pela seta azul, na figura 5.7.

Especificamente no nosso experimento, não sintonizamos a transição cíclica diretamente. Utilizamos um modulador acusto-ótico (MAO) de 200 MHz para modular a frequência do laser de diodo, o que gera uma separação espacial entre a ordem zero e a primeira ordem de difração do MAO. Esse modulador é representado como MAO-1, na figura 5.4. Sintonizamos o laser de diodo na frequência da transição $F_g = 2 \rightarrow F_e = 1\&3$, onde 1&3 representa o *crossover* entre os estados $F_e = 1$ e $F_e = 3$. A primeira ordem do MAO-1, apresenta uma frequência 200 MHz acima da frequência do laser de diodo, de forma que a primeira ordem sintoniza uma frequência 10 MHz abaixo da transição cíclica, $F_g = 2 \rightarrow F_e = 3$. Essa é a condição necessária para o resfriamento, como discutimos na seção anterior, e esse valor de dessintonia é típico dos experimentos em metais alcalinos.

A primeira ordem do MAO-1 é amplificada e a saída conectada a uma fibra ótica como mostra a figura 5.4. O feixe de laser amplificado que sai pela fibra é dividido em dois feixes na proporção de 70% para os eixos x e y , e 30% para o eixo z . Esses feixes são acoplados em fibras óticas que mantêm a polarização linear dos feixes. O feixe de menor intensidade é

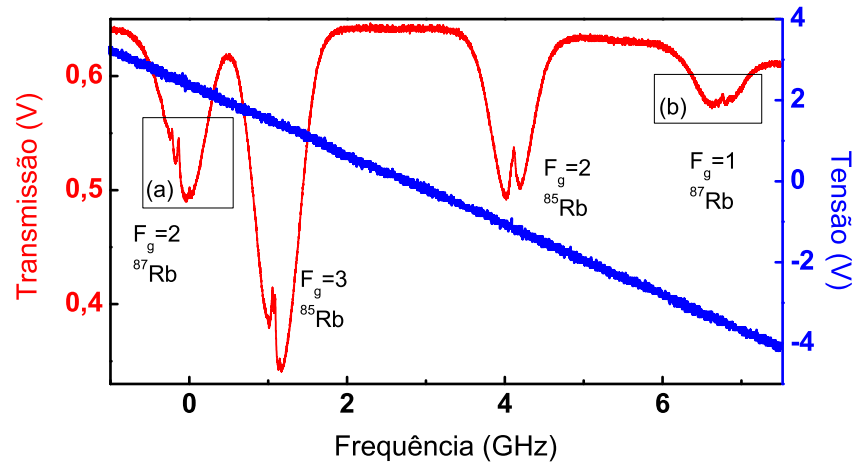


Figura 5.5 Espectro de Absorção saturada envolvendo as transições do ^{87}Rb e ^{85}Rb

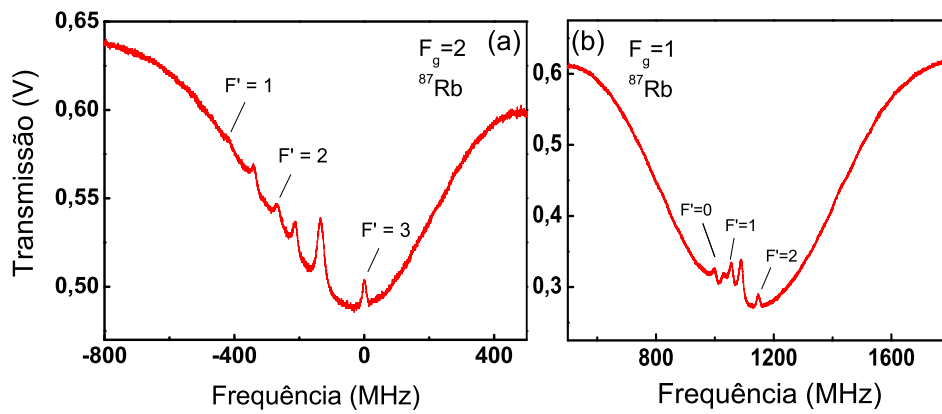


Figura 5.6 Espectro de Absorção saturada envolvendo as transições do ^{87}Rb , para (a) $F_g = 2$ e (b) $F_g = 1$.

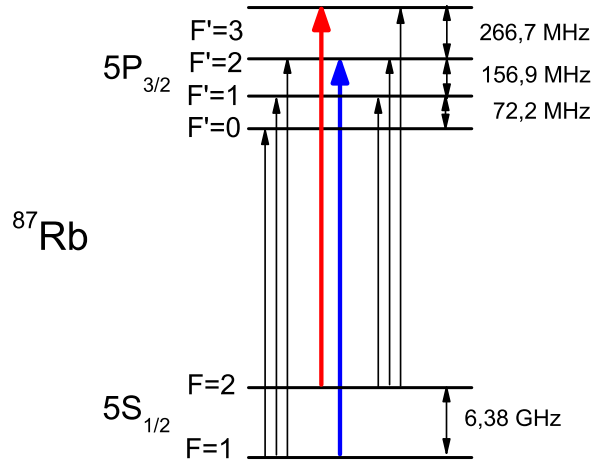


Figura 5.7 Níveis atômicos do átomo de Rb e representação dos lasers de resfriamento e rebombeio.

conectado diretamente no colimador correspondente ao eixo z . E o feixe mais forte passa por um divisor de feixes (de 50%), e cada metade é conectada ao colimador referente aos eixos x e y da armadilha. Nesse mesmo divisor de feixes introduzimos o laser de rebombeio, para que ele incida na AMO, juntamente com o campo de resfriamento nos eixos, x e y . Na saída de cada colimador fixamos uma placa de $\frac{\lambda}{4}$, para garantir as polarizações σ^+ ou σ^- . A potência média dos feixes que chegam na célula a partir dos colimadores é de aproximadamente 5 mW.

Após a otimização do sistema, foi possível visualizar a nuvem atômica a olho nu, como mostrado na fotografia da figura 5.8.

5.3 Caracterização da armadilha magneto-ótica

Uma primeira medida de caracterização da AMO consiste em estimar a fluorescência total emitida pela nuvem. Para isso, posicionamos uma lente de distância focal 10 cm, numa distância próxima da nuvem de forma que o máximo de fluorescência é capturado e coletado por um detector, modelo PDA36A da THORLABS. A partir do tamanho da lente, calculamos o ângulo sólido de emissão de fluorescência, da ordem de 0,06 sr (esferorradiano) e estimamos a quantidade total de fluorescência emitida pela nuvem.

A quantidade total de átomos na armadilha é dada pela potência total emitida, P_t , dividida pela energia de cada fóton, E_f , e multiplicada pela taxa de espalhamento dos átomos R , da forma:

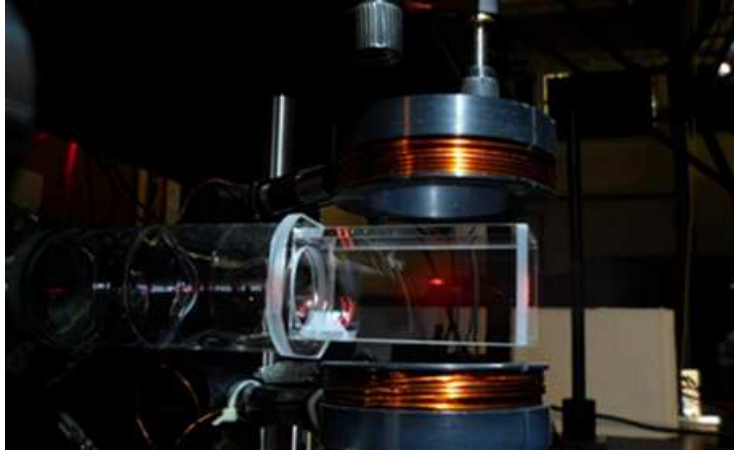


Figura 5.8 Fotografia mostrando a nuvem atômica.

$$N = \frac{P_t \cdot R}{E_f} . \quad (5.8)$$

A potência total é estimada como a potência da luz emitida pela nuvem de átomos em todas as direções, o que é feito em função do ângulo sólido determinado pela lente de detecção. A energia de cada fóton é definida como $\frac{hc}{\lambda}$, onde h é a constante de Planck, c a velocidade da luz e λ é o comprimento da luz incidente na armadilha. Já a taxa de espalhamento é determinada pela equação [76]:

$$R = \frac{\Gamma(I/I_s)}{1 + \frac{I}{I_s} + (\frac{2\delta}{\Gamma})^2} , \quad (5.9)$$

onde Γ é a largura natural da transição, δ é a dessintonia do laser com a transição cíclica, I é a intensidade dos lasers considerando os três eixos de incidência e I_s é a intensidade de saturação da transição. Assim, estimamos que conseguimos armadilhar da ordem 10^6 átomos na nossa armadilha, quando otimizada.

Outra forma de caracterização é medir a evolução temporal da fluorescência emitida pela nuvem eletrônica, durante o transiente em que a armadilha é preenchida ou esvaziada. Com isso podemos estimar o que chamamos de 'tempo de preenchimento', que é o tempo necessário para armadilhar o número total de átomos, N . Para isso, medimos a fluorescência da armadilha, assim como na medida anterior, porém, com o campo magnético inicialmente desligado. Como podemos ver na fig. 5.9, assim que o campo magnético é ligado, a fluorescência aumenta até chegar no valor máximo.

Sabemos que a intensidade medida é proporcional ao número de átomos presente na nuvem e que este número de átomos evolui da forma [95]:

$$N = N_0 \left[1 - \exp \left(\frac{-(t - t_0)}{\tau} \right) \right] , \quad (5.10)$$

onde N_0 é o número de átomos no início do processo de captura, e τ é o tempo de preenchimento característico.

Com o resultado da equação 5.7, podemos efetuar um ajuste teórico na medida de fluorescência em função do tempo, o que é representado na fig. 5.9 pela linha vermelha contínua. A partir do ajuste encontramos um tempo de preenchimento de aproximadamente 1,3 segundo, comparável a outros experimentos com metais alcalinos [96].

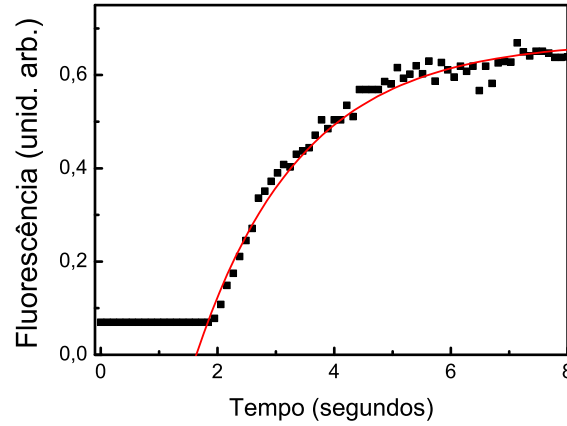


Figura 5.9 Medida da fluorescência em função do tempo e ajuste teórico para o tempo de preenchimento, $\tau = 1,3$ segundos.

Após a caracterização da armadilha magneto-ótica, iniciamos a etapa de alinhamento e controle dos lasers para o experimento de mistura de quatro ondas em átomos frios.

5.4 Mistura de quatro ondas em átomos frios

Atualmente, MQO degenerada [97] ou não-degenerada em AMO têm sido utilizadas para analisar e quantificar o movimento dos átomos em redes óticas [98] ou investigar a dinâmica dos átomos em baixas temperaturas [99].

Visando obter um melhor domínio do sistema, decidimos realizar um experimento preliminar, que consiste na obtenção do sinal de mistura de quatro ondas degenerado, envolvendo os estados $5S_{1/2}$ e $5P_{3/2}$.

Na figura 5.10(a) mostramos um esquema representativo do experimento, onde dois feixes em 780 nm são focalizados na nuvem atômica e incidem na amostra formando um ângulo de aproximadamente 1° entre eles. Os dois feixes são originados da ordem zero do MAO-1, representado na figura 5.4. No feixe 1, utilizamos um espelho para que o feixe volte na mesma direção de incidência mas em sentido contrário, e introduzimos no caminho desse feixe uma placa de $\frac{\lambda}{4}$, formando uma configuração de conjugação de fase. O sinal de MQO é gerado na direção de casamento de fase, que nesse caso, é a direção do feixe incidente 2, porém em sentido contrário. Os dois feixes incidentes e o feixe de retorno, possuem a mesma frequência ω_1 , e a frequência do sinal MQO é $\omega_4 = \omega_1 - \omega_2 + \omega_3$. Como todas as frequências de excitação

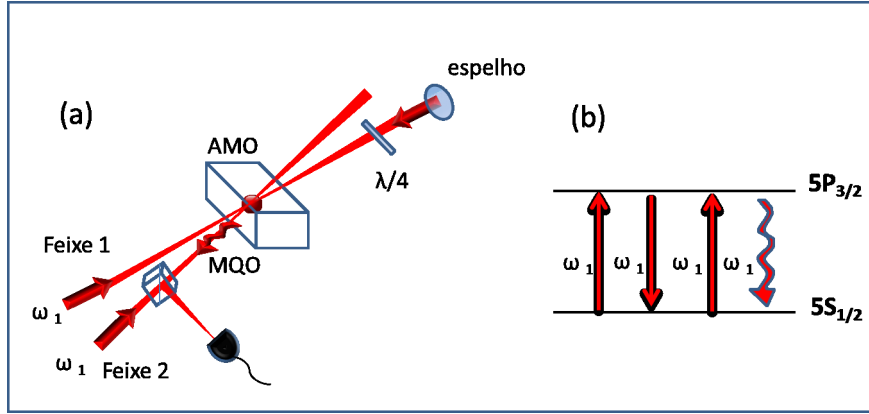


Figura 5.10 (a) Esquema experimental para a MQO em armadilha magneto-ótica (b) Representação das transições envolvidas no experimento de MQO degenerada, em armadilha magneto-ótica

são iguais $\omega_4 = \omega_1$, o que caracteriza uma mistura de quatro ondas degenerada. Esse processo é representado na figura 5.10(b), onde a e b representam os estados $5S_{1/2}$ e $5P_{3/2}$ do átomo de Rb.

Outro ponto importante que deve ser considerado nesse tipo de experimento é a sincronia entre os lasers de resfriamento e os lasers envolvidos na mistura de quatro ondas. Os lasers de resfriamento são sintonizados em uma determinada transição dos átomos de Rb, como indicado na figura 5.7. Assim, para realizar a mistura de quatro ondas, é preciso desligar os lasers de resfriamento, incidir os feixes de excitação da MQO, e religar o resfriamento, porém esse procedimento deve ser rápido o suficiente para que os átomos continuem armadilhados. Para isso, nosso sistema experimental segue um esquema em que um único laser de diodo é dividido para ser utilizado para resfriamento e para a MQO.

Utilizamos o feixe de ordem zero do MAO-1 no experimento de mistura de quatro ondas e um segundo modulador acusto-ótico (MAO-2) de 110 MHz é alinhado com esse feixe em dupla passagem, gerando uma primeira ordem com um deslocamento em frequência de 220 MHz acima da frequência de sua ordem zero. Assim, a primeira ordem do MAO-2 é sintonizada 8 MHz acima da transição cíclica de interesse, $F_g = 2 \rightarrow F_e = 3$, e devido à dupla passagem podemos fazer uma varredura de 40 MHz em torno da frequência principal.

Nesse processo de ligar e desligar os moduladores, quando o MAO-1 está ligado praticamente toda a intensidade é transferida para a primeira ordem, ou seja, para resfriar os átomos e preencher a armadilha magneto-ótica. Quando o MAO-1 está desligado, toda a intensidade está na ordem zero, e então precisamos ligar o MAO-2 para realizar a mistura de quatro ondas. Assim, o MAO-2 deve ter um ciclo contrário do MAO-1, isto é, o MAO-2 precisa estar ligado enquanto o MAO-1 estiver desligado.

Montamos, então, um circuito de sincronia, que controla os dois moduladores simultaneamente. Com esse circuito é possível controlar o intervalo de tempo em que o MAO-1 fica desligado (a armadilha fica desligada), e também o intervalo de tempo entre desligar o MAO-1 e ligar o MAO-2. Na figura 5.11, apresentamos um esquema dos tempos envolvidos neste processo. Nessa figura, a linha azul representa o laser de bombeio, que fica ligado durante todo o processo. A linha vermelha e preta, descritas como resfriamento e MQO, indicam o processo

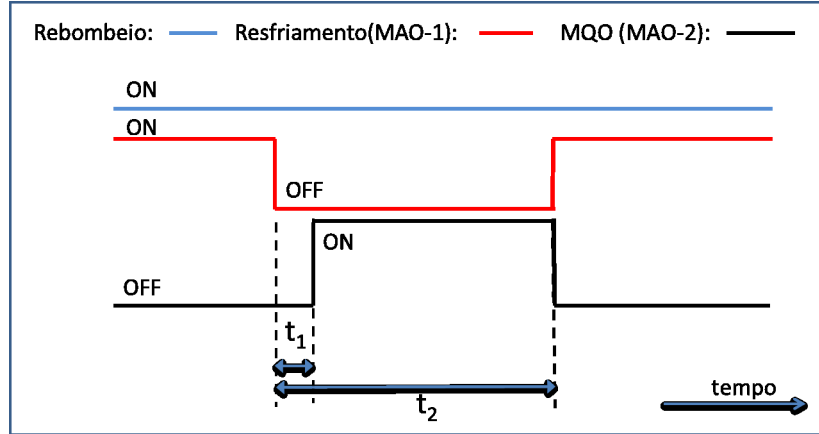


Figura 5.11 Esquema temporal do ciclo de liga e desliga dos moduladores acusto-óticos.

de ligar e desligar dos moduladores 1 e 2, respectivamente. O tempo t_1 , representa o atraso, intervalo de tempo entre desligar MAO-1 e ligar MAO-2, e o tempo t_2 , representa a janela de detecção, intervalo de tempo em que MAO-1 permanece desligado. Precisamos determinar quais os valores de t_1 e t_2 são adequados para o experimento.

Na figura 5.12, observamos a medida da fluorescência da armadilha magneto-ótica juntamente com o sinal de sincronia do MAO-1 (equivalente à linha vermelha na representação da figura 5.11). Nesse resultado, vemos que quando desligamos o primeiro modulador (o sinal de sincronia vai a zero) a intensidade da fluorescência cai rapidamente num intervalo de aproximadamente $100 \mu s$, e depois se mantém flutuando em torno de um valor muito pequeno. O MAO-1, e consequentemente o resfriamento, é religado após $0,5 ms$, e a fluorescência retoma sua intensidade inicial quase que instantaneamente, mostrando que os átomos permaneceram armadilhados durante o tempo de desligamento. O circuito de sincronia nos permite variar o atraso, t_1 , entre 100 e $450 \mu s$, e a janela de detecção, t_2 , entre $650 \mu s$ e $2ms$. De acordo com o resultado mostrado na figura 5.12, podemos definir o intervalo de medida do sinal de MQO, dentro deste intervalo de $0,5 ms$, já que nesse tempo os átomos ainda estão armadilhados. E o atraso necessário para ligar o MAO-2, como sendo no mínimo $100 \mu s$, para evitar o transiente.

Todo o esquema experimental discutido neste capítulo, incluindo o posicionamento dos lasers de excitação para o experimento de MQO, já foi realizado em nosso laboratório. Atualmente, estamos trabalhando na otimização do sistema de detecção do sinal de MQO. Além disso, como vamos realizar o experimento no domínio da frequência, também é necessário otimizar a frequência de varredura do laser de excitação da mistura de quatro ondas, em torno da transição $F_g = 2 \rightarrow F_e = 3$, para melhorar a visualização do sinal. Com esse experimento esperamos obter a experiência necessária com o aparato da armadilha magneto-ótica. O que significa, controlar a estabilização da AMO e otimizar o processo de sincronia, nos familiarizando com os tempos envolvido no sistema. Essa experiência é essencial para a realização de experimentos mais complexos, por exemplo, envolvendo excitação com diferentes frequências.

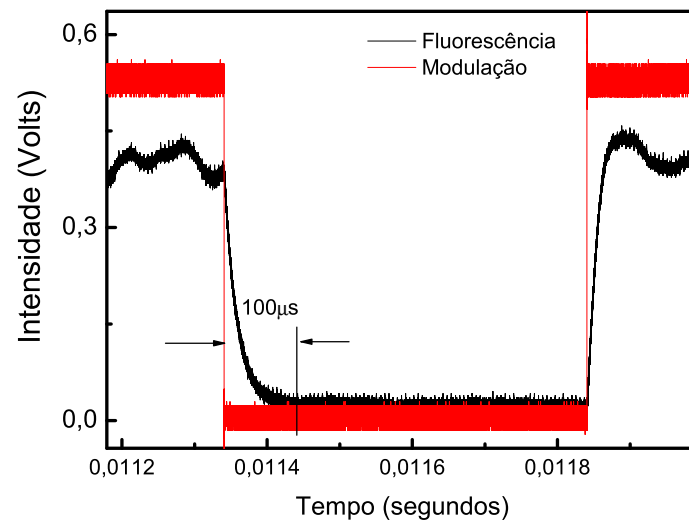


Figura 5.12 Medida da fluorescência da armadilha magneto-ótica juntamente com sinal de sincronia do modulador acusto-ótico.

Conclusões e perspectivas

Neste trabalho investigamos o sinal de mistura de quatro ondas gerado em uma amostra de vapor de rubídio envolvendo ressonâncias de dois e três fótons. Com o mesmo sistema experimental conseguimos estudar as ressonâncias de dois fótons, envolvendo estados de Rydberg, nl , com $n = 14 - 20$ e $l = s$ ou d , o que significa aproximadamente 15 estados; As ressonâncias de três fótons envolvem os estados $6P_{3/2}$ e $6P_{1/2}$. A partir dos espectros de excitação, onde apresentamos a intensidade do sinal de MQO em função da dessintonia com o laser de corante, estudamos a resposta devido às diferentes ressonâncias. As propriedades do sinal gerado foram investigadas em função da densidade atômica de 10^{14} a 10^{16} cm^{-3} e em função do ângulo de cruzamento entre os feixes de excitação.

Calculamos a intensidade do sinal gerado de mistura de quatro ondas utilizando o formalismo da matriz densidade e para obter uma expressão analítica para o campo gerado, incluindo efeitos de propagação e casamento de fase adotamos um tratamento perturbativo com relação à intensidade dos campos incidentes. Em nosso experimento podemos excitar as ressonâncias seletivamente, tornando possível analisar a relação de intensidade entre diferentes estados de Rydberg e verificar que essa relação depende tanto do momento de dipolo das transições quanto da proximidade com os estados intermediários.

Com a comparação entre teoria e experimento, vimos a necessidade de incluir a contribuição dos diferentes caminhos quânticos para cada transição estudada, e pudemos analisar qual é a contribuição relativa desses caminhos. Verificamos que, envolvendo os estados de Rydberg nd com $n = 16, 17$ e 20 , os caminhos quânticos envolvendo os estados intermediários $5P_{3/2}$ e $6P_{3/2}$ dominam a probabilidade de transição, de forma que a contribuição de outros estados intermediários, $5P_{1/2}$ e $6P_{1/2}$, é desprezível. A contribuição desses níveis intermediários na intensidade do sinal gerado nas ressonâncias em questão é de aproximadamente 1%. Já para os estados de Rydberg com $n = 15, 14$, todos os estados intermediários considerados $5P_{1/2}$, $5P_{3/2}$, $6P_{3/2}$ e $6P_{1/2}$ contribuem de forma semelhante e não podem ser descartados. De forma que, considerando o nível intermediário mais distante, $6P_{3/2}$, a intensidade dos picos associados aos níveis $14d$ e $15d$ apresentam um ganho de 50 e 5 vezes, respectivamente. Esses ganhos são essenciais para explicar a relação de intensidades entre diferentes estados de Rydberg.

Esses fatores podem ser entendidos considerando que a contribuição de cada caminho é associada a uma razão entre o momento de dipolo e a dessintonia, $\frac{\mu_{nd6P_j}}{\Delta 6P_j}$, onde nd é o nível de Rydberg e $j = 1/2$ ou $3/2$. Sabemos que $\mu_{nd6P_{3/2}} \approx 10 \times \mu_{nd6P_{1/2}}$ e as dessintonias foram relacionadas na tabela 3.2. Assim, podemos verificar que para o estado $15d$ as razões referentes aos estados $6P_{3/2}$ e $6P_{1/2}$ são aproximadamente iguais, enquanto que para o estados $14d$ a razão relacionada com o estado $6P_{3/2}$ é quase 6 vezes maior que a razão relacionada ao estado $6P_{1/2}$. Outro fato importante é que a relação de intensidade entre os picos associados aos níveis $15d$

e $17s$, pode ser invertida se desprezarmos a contribuição do nível intermediário mais distante, $6P_{3/2}$.

Ainda em relação às ressonâncias de dois fótons com os estados de Rydberg, comparamos a largura dos picos no perfil espectral e verificamos que deveríamos incluir um fator de alargamento das linhas. Introduzimos uma taxa de relaxação que depende linearmente da densidade atômica, obtendo um coeficiente de auto-alargamento da ordem de $\frac{\beta}{2\pi} = 2,1 \times 10^{-12} \text{ MHz cm}^3$. Associamos esse alargamento às colisões entre átomos de Rb, envolvendo um átomo no estado de Rydberg e outro no estado fundamental. Porém o grande valor encontrado para o coeficiente de auto-alargamento indica a contribuição de outros processos como ionização associativa e processos de *l-mixing*. A introdução dessa dependência para a taxa de relaxação foi essencial para descrever o comportamento das linhas espectrais com a densidade atômica, tanto em relação à largura de linha, quanto em relação às intensidades dos estados nd e $(n+2)s$, para $n = 15, 16$ e 17 .

Esses resultados relacionados às ressonâncias de dois fótons foram publicados na revista *Journal of the Optical Society of America B* [102]:

N. R. Melo and S. S. Vianna. **Two-photon resonant forward four-wave mixing in rubidium vapor involving Rydberg states**, *J. Opt. Soc. Am. B.* **31**, 1735-1740 (2014).

Analizamos o sinal de MQO em duas configurações específicas, colinear e de feixes cruzados, entendendo que tipo de efeitos cada uma delas apresenta. A partir do resultado das equações de Maxwell, pudemos entender dois efeitos importantes que ocorrem na posição da ressonância de três fótons: i) uma saturação da intensidade do pico quando estamos na configuração colinear e no limite de alta densidade, que associamos ao efeito de interferência destrutiva discutida no capítulo 2; e ii) um efeito cooperativo de deslocamento em frequência, que depende da densidade atômica e do ângulo de cruzamento entre os feixes.

O efeito de interferência destrutiva foi investigado em função da densidade atômica, para diferentes frequências de sintonização dos lasers incidentes, em torno da posição de ressonância de três fótons. Mostramos que, na região de densidades que estamos trabalhando, na posição da ressonância por três fótons o sinal já apresenta saturação. Indicando que o efeito de interferência não pode ser desprezado na descrição do sinal de MQO gerado.

Em relação ao efeito de deslocamento em frequência, com o modelo introduzido no capítulo 2 pudemos analisar esse deslocamento em função da densidade atômica e do ângulo de cruzamento entre os feixes incidentes. No limite de ângulos pequenos obtivemos uma dependência simples do deslocamento em frequência com θ , a qual descreve muito bem o comportamento experimental.

A etapa final deste trabalho envolveu a montagem e caracterização de uma armadilha magneto-ótica de átomos de Rb. Toda a parte de instrumentação, incluindo montagem dos laser de diodo para resfriamento e rebombeio, montagem do circuito de travamento em frequência dos lasers, circuito de sincronia para os moduladores acusto-óticos e montagem da câmara de vácuo, foi realizada durante o período de doutorado. Caracterizamos a AMO, encontrando um número de átomos da ordem de 10^6 , e um tempo de preenchimento da ordem de $1,3 \text{ s}$, valores semelhantes aos encontrados em outras armadilhas de átomos alcalinos. Nossa armadilha

magneto-ótica apresenta uma boa estabilidade, chegando a permanecer estável por um período de aproximadamente meia hora, com pequenas flutuações na fluorescência, o que é ideal para realização dos experimentos. Iniciamos a preparação para realizar o experimento de MQO em átomos frios, o que inclui o alinhamento dos feixes de excitação e a otimização dos parâmetros de varredura. A realização desse experimento preliminar é essencial para a nossa aprendizagem sobre a AMO, e nos dará experiência para a execução de experimentos mais complexos.

Nossa perspectiva é utilizar a armadilha magneto-ótica em dois tipos de experimento. Primeiro envolvendo um laser Ti:safira pulsado, com o qual vêm sendo realizados experimentos da interação do laser de fento-segundos com átomos de Rb em uma célula de vapor. A ideia é utilizar esse laser na armadilha magneto-ótica para investigar a espectroscopia de alta-resolução. Segundo, pretendemos utilizar um laser no azul, da Tóptica, com comprimento de onda de 480 nm e potência média de 50 mW , para realizar experimentos de mistura de quatro ondas. Diferente da MQO realizada em vapor, nós não vamos fazer uma transição de dois fótons. Vamos usar o laser de resfriamento da AMO, para fazer uma transição $5s - 5p$, e com o laser no azul vamos fazer uma transição $5p - nl$, onde nl é um estado altamente excitado com $n \approx 55$, e $l = d$ ou s . Utilizando o laser de resfriamento para induzir o decaimento $5p - 5s$, o sinal de MQO será gerado na frequência da transição $5p - nl$. Assim, podemos utilizar esse processo não-linear para investigar a interação entre átomos muito excitados.

Referências

- [1] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters and G. Weinreich. **Generation of Optical Harmonics**, *Phys. Rev. Lett.* **7**, 118 (1961).
- [2] M. Sheik-Bahae and M. P. Hasselbach. **Handbook of Optics**, (McGraw-Hill, New York. 2001).
- [3] D. A. Parthenopoulos, P. M. Rentzepis. **Three-Dimensional Optical Storage Memory**, *Science*. **245**, 843 (1989).
- [4] I. S. Averbukh, B. M. Chernobrod, O. A. Sedletsky, Y. Prior. **Coherent near field optical microscopy**, *Opt. Commun.* **174**, 33 (2000).
- [5] W. Denk, J. H. Strickler, W. W. Webb. **Two-photon laser scanning fluorescence microscopy**, *Science*. **248**, 4951 (1990).
- [6] R. W. Boyd, **Nonlinear Optics**, (Academic Press, San Diego, 2003).
- [7] T. Chaneliere, D. N. Matsukevich, S. D. Jenkins, T. A. B. Kennedy, M. S. Chapman, and A. Kuzmich. **Quantum Telecommunication Based on Atomic Cascade Transitions**, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 093604 (2006).
- [8] A. S. Zibrov, M. D. Lukin, L. Hollberg, and M. O. Scully. **Efficient frequency up-conversion in resonant coherent media**, *Phys. Rev. A*. **65**, 051801 (2002).
- [9] T. Meijer, J. D. White, B. Smeets, M. Jeppesen, and R. E. Scholten. **Blue five-level frequency-upconversion system in rubidium**, *Opt. Letts.* **7**, 1002-1004 (2006).
- [10] R. T. Willis, F. E. Becerra, L. A. Orozco, and S. L. Rolston. **Four-wave mixing in the diamond configuration in an atomic vapor**, *Phys. Rev. A*. **79**, 033814 (2009).
- [11] T. F. Gallagher. **Rydberg atoms**, (Cambridge University Press, Cambridge, 1994)
- [12] D. K. Kleppner, M. Littman and M. Zimmerman. **Highly Excited Atoms**, *Scientific American*. **244**, 118-128 (1981)
- [13] J. M. Raimond, G. Vitrant and S. Haroche. **Spectral line broadening due to the interaction between very excited atoms: 'the dense Rydberg gas'**, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **14**, L655. (1981)

- [14] S. M. Faroqui, D. Tong, S. Krishnan, J. Stanojevic, Y. P. Zhang, J. R. Ensher, A. S. Estrin, C. Boisseau, R. Côté, E. E. Eyler, and P. L. Gould. **Long-Range Molecular Resonances in a Cold Rydberg Gas**, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 183002 (2003).
- [15] A. L. Oliveira, M. W. Mancini, V. S. Bagnato and L. G. Marcassa. **Rydberg Cold Collisions Dominated by Ultralong Range Potential**, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 143002 (2003).
- [16] D. Jaksch, J. I. Cirac, P. Zoller, S. L. Rolston, R. Côté, and M. D. Lukin. **Fast Quantum Gates for Neutral Atoms**, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 2208 (2000).
- [17] M. D. Lukin, M. Fleischhauer, R. Côté, L. M. Duan, D. Jaksch, J. I. Cirac and P. Zoller. **Dipole Blockade and Quantum Information Processing in Mesoscopic Atomic Ensembles**, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 037901 (2001).
- [18] A. Reinhard, T. C. Liebisch, B. Knuffman and G. Raithel. **Level shifts of rubidium Rydberg states due to binary interactions**, *Phys. Rev. A* **75**, 032712 (2007).
- [19] Y. O. Dudin, and A. Kuzmich. **Strongly Interacting Rydberg Excitations of a Cold Atomic Gas**, *Science*. **336**, 887-889 (2012).
- [20] A. Kölle, G. Epple, H. Kübler, W. R. Lö, and T. Pfau. **Four-wave mixing involving Rydberg states in thermal vapor**, *Phys. Rev. A* **85**, 063821 (2012).
- [21] H. B. Zheng, X. Yao, Z. Y. Zhang, J. L. Che, Y. Q. Zhang, Y. P. Zhang, and M. Xiao. **Blocked six- and eight-wave mixing processes tailored by electromagnetically induced transparency scissors**, *Laser Phys.* **24**, 045404 (2014).
- [22] K. Singer, M. R. Lamour, T. Amthor, L. Marcassa and M. Weidemüller. **Suppression of Excitation and Spectral Broadening Induced by Interactions in a Cold Gas of Rydberg Atoms**, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 163001 (2004).
- [23] H. C. Tran , P. C. John , J. Gao, and J. G. Eden. **Interaction of atomic wave packets with four-wave mixing: detection of rubidium and potassium wave packets by coherent ultraviolet emission**, *Opt. Letts.* **23**, 70-72 (1998).
- [24] N. R. de Melo, and S. S. Vianna. **Rydberg-Rydberg interaction in the second-harmonic generation from rubidium atoms**, *Phys. Rev. A* **77**, 023418 (2008).
- [25] D. S. Bethune. **Optical second-harmonic generation in atomic vapors with focused beams**, *Phys. Rev. A* **23**, 3139 (1988).
- [26] V. Boyer, A. M. Marino, R. C. Pooser e P. D. Lett. **Entangled Images from Four-Wave Mixing**, *Science*. **321**, 544 (2008).
- [27] D. N. Matsukevich, T. Chaneliere, M. Bhattacharya, S. Y. Lan, S. D. Jenkins, T. A. B. Kennedy and A. Kuzmich. **Entanglement of a Photon and a Collective Atomic Excitation**, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 040405 (2005).

- [28] R. W. Boyd, M. S. Malcuit, D. J. Gauthier, and K. Rzażewski. **Competition between amplified spontaneous emission and the four-wave-mixing process**, *Phys. Rev. A.* **35**, 1648-1658 (1987).
- [29] R. K. Wunderlich, D. J. Gauthier, R. C. Hart, M. A. Moore, and M. G. Payne. **Nonlinear optical processes near the sodium 4D two-photon resonance**, *Phys. Rev. A.* **41**, 6345-6360 (1990).
- [30] H. Nagai, and T. Nakanaga. **Competition between two-photon-resonant three-photon ionization and four-wave mixing in Xe**, *Phys. Rev. A.* **84**, 063408 (2011).
- [31] D. J. Jackson, and J. J. Wynne. **Interference Effects between Different Optical Harmonics**, *Phys. Rev. Lett.* **49**, 543-546 (1982).
- [32] A. Armyras, D. Pentaris, T. Efthimiopoulos, N. Merlemis and A. Lyras. **Saturation and population transfer of a two-photon excited four-level potassium atom**, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **44**, 165401 (2011).
- [33] L. Deng, M. G. Payne, and W. R. Garrett. **Effects of multi-photon interferences from internally generated fields in strongly resonant systems**, *Phys. Rep.* **429**, 123-241 (2006).
- [34] E. L. Lewis. **Collisional relaxation of atomic excited states, line broadening and interatomic interactions**, *Phys. Rep.* **58**, 1-71 (1980).
- [35] K. H. Weber and K. Niemax. **Self-broadening of Doppler-free two-photon lines of Cs**, *Opt. Commun.* **28**, 317-320 (1979).
- [36] M. Hugon , F. Gounand and, P. R. Fournier. **Thermal collisions between highly excited and ground-state alkali atoms**, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **13**, L109-L112 (1980).
- [37] B. P. Stoicheff, and E. Weinberger. **Frequency Shifts, Line Broadenings, and Phase-Interference Effects in Rb +Rb Collisions, Measured by Doppler-Free Two-Photon Spectroscopy**, *Phys. Rev. Lett.* **44**, 733-736 (1980).
- [38] L. Weller, R. J. Bettles , P. Siddons, C. S. Adams, and I. G. Hughes. **Absolute absorption on rubidium D1 line: including resonant dipole-dipole interactions**, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **44**, 195006 (2011).
- [39] J. Stanojevic, R. Côté, D. Tong, S. M. Farooqi, E. E. Eyler and, P. L. Gould. **Long-range Rydberg-Rydberg interactions and molecular resonances**, *Eur. Phys. J. D.* **40**, 3-12. (2006).
- [40] C. Boisseau, I. Simbotin and, R. Côté. **Macrodimers: Ultralong Range Rydberg Molecules**, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 133004 (2002).
- [41] W. Li, T. Pohl, J. M. Rost, S. T. Rittenhouse, H. R. Sadeghpour, J. Nipper, B. Butscher, J. B. Balewski, V. Bendkowsky, R. Löw, and T. Pfau. **A Homonuclear Molecule with a Permanent Electric Dipole Moment**, *Science.* **334**, 1110 (2011).

- [42] M. G. Payne , L. Deng, and W. R. Garret. **Theory of the effect of odd-photon destructive interference on optical shifts in resonantly enhanced multiphoton excitation and ionization**, *Phys. Rev. A.* **58**, 1361-1371 (1998).
- [43] R. Friedberg , S. R. Hartmann and J. T. Manassah. **Frequency shifts in emission and absorption by resonant systems of two-level atoms**, *Phys. Rep.* **7**, 101 (1973).
- [44] V. E. Peet and R. V. Tsubin. **Gas-phase generation of resonance-enhanced third harmonic with crossed laser beams**, *Opt. Commun.* **214**, 381 (2002)
- [45] M. G. Payne and W. R. Garret. **Large pressure-dependent cooperative shifts in multicolor odd-photon resonant atomic excitation**, *Phys. Rev. A.* **42**, 1434 (1990).
- [46] M. O. Scully and A. A. Svidzinsky. **The Lamb Shift Yesterday, Today, and Tomorrow**, *Science.* **328**, 5983 (2010).
- [47] R. Röhlsberger, K. Schlage, B. Sahoo, S. Couet and R. Ruffer. **Collective Lamb Shift in Single-Photon Superradiance**, *Science.* **328**, 1248 (2010).
- [48] J. Keaveney, A. Sargsyan, U. Krohn, I. G. Hughes, D. Sarkisyan and C. S. Adams. **Cooperative Lamb Shift in an Atomic Vapor Layer of Nanometer Thickness**, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 173601 (2012).
- [49] Y. R. Shen. **The principles of Nonlinear Optics**, (Wiley-Interscience, California, 1984).
- [50] C. Cohen-Tannoudji. **Quantum Mechanics**, (Wiley & Sons. Inc., Singapore, 2005).
- [51] J. J. Sakurai. **Modern Quantum Theory of Light**, (Addison-Wesley, 1994).
- [52] S. S. Vianna, P. Nussenzveig , W. C. Magno, and J. W. Tabosa. **Polarization dependence and interference in four-wave mixing with Rydberg levels in rubidium vapor**, *Phys. Rev. A.* **58**, 3000-3003 (1998).
- [53] E. U. Condon and G. H. Shortley. **The theory of Atomic Spectra**, (Cambridge University Press , 1953)
- [54] J. D. M. Kondo. **Ressonâncias moleculares em estados nP de átomos de Rydberg frios**, Dissertação de Mestrado, USP-São Carlos, (2010).
- [55] M. S. Safrona, C. J. Williams and W. Clark. **Relativistic many-body calculations of electric-dipole matrix elements, lifetimes, and polarizabilities in rubidium**, *Phys. rev. A.* **69**, 022509 (2004).
- [56] M. Aymar, O. Robaux and S. Wane. **Central-field calculations of photoionisation cross sections of excited states of Rb and Sr^+ and analysis of photoionisation cross sections of excited alkali atoms using quantum defect theory**, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **17**, 993 (1984).

- [57] W. C. Magno. **Interferência na mistura de quatro ondas envolvendo estados de Rydberg**. Dissertação de Mestrado, DF-UFPE (1998).
- [58] L. Deng, M. G. Payne and W. R. Garrett. **Effects of multi-photon interferences from internally generated fields in strongly resonant systems**, *Phys. Rep.* **429**, 123 (2006).
- [59] W. R. Ferrell, M. G. Payne and W. R. Garrett. **Resonance broadening and shifting of spectral lines in xenon and krypton**, *Phys. Rev. A.* **36**, 81 (1987).
- [60] W. R. Garret, R. C. Hart, J. E. Wray, I. Datskou e M. G. Payne. **Large multiple collective line shifts observed in three-photon excitations of Xe**, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1717 (1990).
- [61] H. A. Lorentz. **The theory of electrons**, (Dover, New York, 1952).
- [62] J. J. Maki, M. S. Malcuit, J. E. Sipe and R. W. Boyd. **Linear and nonlinear optical measurements of the Lorentz local field**, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 972 (1991).
- [63] N. Bloembergen. **Nonlinear Optics**, (Benjamin, New York, 1965).
- [64] K. Miyazaki, T. Sato and H. Kashiwagi. **Spontaneous-Field-Induced Optical Second-Harmonic Generation in Atomic Vapors**, *Phys. Rev. Lett.* **43**, 1154 (1979).
- [65] S. S. Vianna, J. W. R. Tabosa and F. A. M. de Oliveira. **Two-photon resonant second harmonic generation from rubidium Rydberg atoms**, *Opt. Commun.* **116**, 67 (1995).
- [66] T. Mossberg, A. Flusberg, and S. R. Hartmann. **Optical second-harmonic generation in atomic thallium**, *Opt. Commun.* **25**, 121-124 (1978).
- [67] D. Kim, C. S. Mullin, and Y. R. Shen. **Second-harmonic generation in atomic vapor with picosecond laser pulses**, *J. Opt. Soc. Am. B.* **14**, 2530 (1997).
- [68] N. R. de Melo. **Interação Rydberg-Rydberg via geração de segundo harmônico em átomos de rubídio**, Dissertação de Mestrado, DF-UFPE (2009).
- [69] A. Gallagher and E. L. Lewis. **Determination of the vapor pressure of rubidium by optical absorption**, *J. Opt. Soc. Am.* **63**, 864-869 (1973).
- [70] C. V. Shank. **Physics of dye lasers**, *Rev. Mod. Phys.* **47**, 649 (1975).
- [71] I. Shoshan and U. P. Oppenheim. **The use of a diffraction grating as a beam expander in a dye laser cavity**, *Opt. Commun.* **25**, 375-378 (1978).
- [72] J. Okada, Y. Fukuda, and M. Matsuoka. **Optical Second Harmonic Generation in the Forbidden $2^2S_{1/2} - 3^2S_{1/2}$ Transition of Atomic Lithium Vapor**, *J. Phys. Soc. Jpn.* **50**, 1301 (1981).
- [73] R. R. T. Luna, G. H. Cavalcanti, L. H. Coutinho, and A. G. Trigueiros. **A compilation of wavelengths and energy levels for the spectrum of neutral rubidium (Rb I)**, *JQSRT.* **75**, 559-587 (2002).

- [74] I. I. Beterov, D. B. Tretyakov, I. I. Ryabtsev, A. Ekers and, N. N. Bezuglov. **Ionization of sodium and rubidium nS , nP , and nD Rydberg atoms by blackbody radiation**, *Phys. Rev. A*. **75**, 052720 (2007).
- [75] W. Demtröder. **Laser Spectroscopy**, (Springer series in chemical physics, Berlin, 1979).
- [76] D. A. Steck. **Rubidium 87 D line Data**, disponível on line em <http://steck.us/alkalidata> (revision 2.0.1 , 2 de maio 2008)
- [77] S. L. Chin, P. Lambropoulos. **Multiphoton Ionization of atoms**(Academic Press, 1984).
- [78] M. Chéret, L. Barbier, W. Lindinger, and R. Deloche. **Penning and associative ionisation of highly excited rubidium atoms**, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **15**, 3463-3477 (1982).
- [79] K. Singer, J. Stanojevic, M. Weidemüller and, R. Côté. **Long-range interactions between alkali Rydberg atom pairs correlated to the $ns - ns$, $np - np$ and $nd - nd$ asymptotes**, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **38**, S295 (2005).
- [80] M. Marinescu. **Dispersion coefficients for the $nP - nP$ asymptote of homonuclear alkali-metal dimers**, *Phys. Rev. A*. **56**, 4764 (1997).
- [81] A. Dalgarno and W. D. Davison. **The Calculation of Van Der Waals Interactions**, *Adv. Mol. Phys.* **2**, 1 (1966).
- [82] [http : //quantendynamik.physik.uni – freiburg.de/potcalc.htm](http://quantendynamik.physik.uni-freiburg.de/potcalc.htm).
- [83] F. Shen, J. Gao, A. A. Senin, C. J. Zhu, J. R. Allen, Z. H. Lu, Y. Xiao, and J. G. Eden. **Many-Body Dipole-Dipole Interactions between Excited Rb Atoms Probed by Wave Packets and Parametric Four-Wave Mixing**, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 143201 (2007).
- [84] V. A. Sautenkov. **Line shapes of atomic transitions in excited dense gas**, *Laser Phys. Lett.* **8**, 771 (2011).
- [85] M. Chret, L. Barbier, W. Lindinger and R. Deloche. **Penning and associative ionisation of highly excited rubidium atoms**, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **15**, 3463 (1982).
- [86] M. G. Payne, W. R. Garret and H. C. Baker. **Effects of collective emission on multiphoton excitation and ionization near a three-photon resonance**, *Chem. Phys. Lett.* **75**, 468 (1980).
- [87] M. G. Payne and W. R. Garret. **Cooperative effects on multiphoton ionization and third-harmonic generation in the region near three-photon resonance**, *Phys. Rev. A*. **26**, 356 (1982).
- [88] W. R. Garret. **Forward gain suppression of optically pumped stimulated emissions due to self-induced wave-mixing interference during a pump pulse**, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 4059 (1993).

- [89] L. Deng, W. R. Garret, G. Payne and D. Z. Lee. **Effect of the odd-photon destructive interference on laser-induced transparency and multiphoton excitation and ionization in rubidium**, *Phys. rev. A*. **54**, 4218 (1996).
- [90] H. Metcalt and P. Straten. **Cooling and trapping of neutral atoms**, *Phys. Rep.* **244**, 203 (1994).
- [91] T. Amthor, M. Reetz-Lamour, S. Westermann, J. Denskat, and Weidemuller. **Mechanical Effect of van der Waals Interactions Observed in Real Time in an Ultracold Rydberg Gas**, *Phys. rev. Lett.* **98**, 023004 (2007).
- [92] E. L. Raab, M. Prentiss, A. Cable, S. Chu e D. E. Pritchard. **Trapping of Neutral Sodium Atoms with Radiation Pressure**, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 23 (1987).
- [93] C. J. Foot. **Atomic Physics**, (Oxford university Press, New York, 2005).
- [94] D. R. Scherer, D. B. Fenner e J. M. Hensley. **Characterization of alkali metal dispensers and non-evaporable getter pumps in ultrahigh vacuum systems for cold atomic sensors**, *J. Vac. Sci. Technol. A*. **30**, 061602 (2012).
- [95] A. Yariv. **Quantum Eletronics**, (John Wiley and Sons, New York, 1989).
- [96] S. Bartalini, I. Herrera, L. Consolino, L. Pappalardo, N. Marino, G. D'Arrigo and F. S. Cataliotti. **Full characterization of the loading of a magnetooptical trap from an alkali metal dispenser**, *Eur. Phys. J. D*. **36**, 101 (2005).
- [97] G. L. Gattobigio, F. Michaud, J. Javaloyes, J. W. R. Tabosa, and R. Kaiser. **Bunching-induced asymmetry in degenerate four-wave mixing with cold atoms**, *Phys. rev. A*. **74**, 043407 (2006).
- [98] B. Lounis, P. Verkerk, J. Y. Courtois, C. Salomon and G. Grynberg. **Quantized Atomic Motion in 1D Cesium Molasses with Magnetic Field**, *Europhys. Lett.* **21**, 13 (1993).
- [99] D. S. Glassner and R. J. Knize. **Measurement of the Potassium 4 P Excited State Diffusion Coefficient in Xenon Gas Using Degenerate Four-Wave Mixing**, *Phys. rev. Lett.* **74**, 2212 (1995).
- [100] D. M. Brink and G. R. Satchler. **Angular Momentum**, (Oxford press, 1962).
- [101] <http://www.wolframalpha.com/>
- [102] N. R. Melo and S. S. Vianna. **Two-photon resonant forward four-wave mixing in rubidium vapor involving Rydberg states**, *J. Opt. Soc. Am. B*. **31**, 1735-1740 (2014).

Cálculo da parte angular dos elementos da matriz de dipolo elétrico

Neste apêndice mostramos o procedimento para calcular a parte angular dos elementos da matriz de dipolo elétrico, ou o coeficiente de *ClebschGordan* associado à transição, considerando o acoplamento spin-orbita.

De acordo com a expressão para a polarização macroscópica induzida no meio, dada pela equação 2.18, vemos que os elementos de matriz da transição, devem ser tratados como um produto de quatro elementos de matriz do operador dipolo elétrico, Q_1^q , como mostrado na equação 2.19, da forma:

$$\Omega_{ai}\Omega_{ib}\mu_{ba} \propto \sum_{b,i,n'} \langle a|Q_1^{q_4}|b\rangle \langle b|Q_1^{q_3}|i\rangle \langle i|Q_1^{q_2}|n'\rangle \langle n'|Q_1^{q_1}|a\rangle, \quad (\text{A.1})$$

onde b , a , n' , correspondem aos estados da figura 2.1, e $i = 16d$ ou $18s$. Cada um desses elementos pode ser escrito utilizando os símbolos $3j$ e $6j$, da seguinte forma:

$$\begin{aligned} \langle Jm_J|er|J'm_J'\rangle = & (-1)^{l'+l+2J'+S+m_J-1} \sqrt{(2J+1)(2J'+1)(2l+1)(2l'+1)} \cdot \begin{pmatrix} l & 1 & l' \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \cdot \\ & \cdot \left\{ \begin{matrix} l & l' & 1 \\ J' & J & S \end{matrix} \right\} \begin{pmatrix} J' & 1 & J \\ m_{J'} & q & -m_J \end{pmatrix} \cdot \langle nl||er||n'l'\rangle \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

onde $\langle nl||er||n'l'\rangle$ é a componente radial do momento de dipolo. E os coeficientes $3j$ (matriz entre parênteses) e $6j$ (matriz entre chaves), cujas propriedades podem ser encontradas na referência [100], podem ser obtidos utilizando o site de cálculos matemático desenvolvido pela *Wolfram Alpha* [101].

Para calcular esses elementos temos que considerar todas as transições possíveis entre os níveis atômicos envolvidos no nosso experimento. Como exemplo, apresentamos nas figuras A1 e A2 os diagramas dessas possíveis transições, envolvendo os estados $nD_{5/2}$ e $(n+2)S_{1/2}$, respectivamente, para campos incidentes com as polarizações paralelas entre si. Nessas condições, existem duas possibilidades para o processo de excitação (subida) e duas para o processo de emissão (descida), definidas pelos estados intermediários, $5P_{1/2}$ ou $5P_{3/2}$, na excitação, e $6P_{1/2}$ ou $6P_{3/2}$ na emissão. Isso gera uma combinação de 4 possibilidades para cada estado de Rydberg. Para cada uma, o número de caminhos é definido pelo número de níveis de cada estado, dado pelo valor de $(2j+1)$, isto é, vamos somar sobre todos os valores de m_j .

Explicitamos a seguir o cálculo dos coeficientes de *ClebschGordan*, somente para os casos com maior número de caminhos possíveis, para os estados de Rydberg, $16d$ e $18s$.

Na equação A.2, vemos que o primeiro símbolo $3j$ não depende de m_j , assim como o símbolo $6j$. Esses dois termos só dependem de l e J , e por isso podem ser calculados independente do somatório. Seus valores estão incluídos no valor numérico que antecede os termos do somatório nos resultados que seguem para os estados $16d$ e $18s$

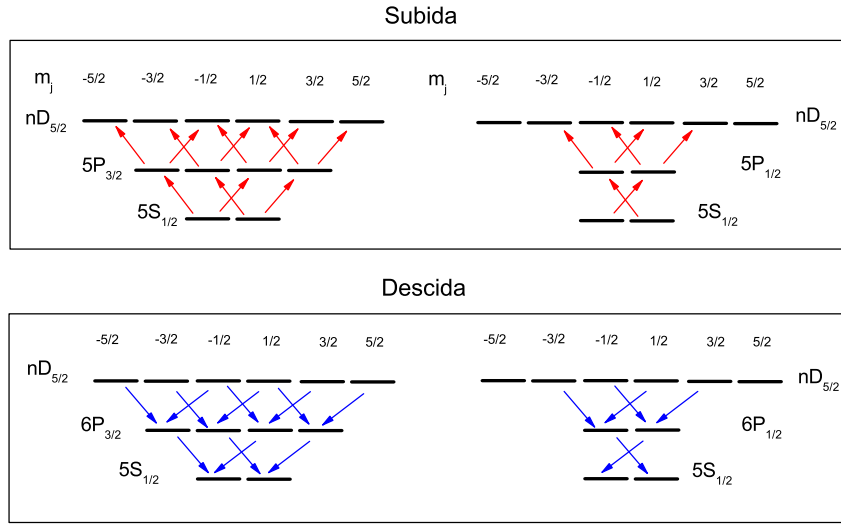


Figura A.1 Diagrama das possíveis transições por dipolo elétrico, para a polarização paralela dos campos incidentes tendo como estado mais excitado o nível $nD_{5/2}$. Transição $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{1/2}(5P_{3/2}) \rightarrow 16D_{5/2} \rightarrow 6P_{1/2}(6P_{3/2}) \rightarrow 5S_{1/2}$.

1. Cálculo do coeficiente de *ClebschGordan* considerando o nível $16d$ como estado mais excitado, envolvendo os estados $5P_{3/2}$ e $6P_{3/2}$. Nesse caso, temos 12 caminhos possíveis e as transições são:

$$5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 16D_{5/2} \rightarrow 6P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}.$$

$$\begin{aligned}
& \Omega_{5s_{1/2}16d_{5/2}} \Omega_{16d_{5/2}6p_{3/2}} \mu_{6p_{3/2}5s_{1/2}} = \frac{4}{5} \times \\
& \left\{ \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ -\frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{5}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{5}{2} & 1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{5}{2} \\ -\frac{3}{2} & -1 & \frac{5}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{1}{2} & -1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \right\} + \\
& \left\{ \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ -\frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{5}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{5}{2} & 1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{5}{2} \\ -\frac{3}{2} & -1 & \frac{5}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{1}{2} & -1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \right\} + \\
& \left\{ \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ -\frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{5}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{5}{2} & 1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{5}{2} \\ -\frac{3}{2} & -1 & \frac{5}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{1}{2} & -1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \right\} + \\
& \left\{ \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ -\frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{5}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{5}{2} & 1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{5}{2} \\ -\frac{3}{2} & -1 & \frac{5}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{1}{2} & -1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \right\} + \\
& \left\{ \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ -\frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{5}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{5}{2} & 1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{5}{2} \\ -\frac{3}{2} & -1 & \frac{5}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{1}{2} & -1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \right\} + \\
& \left\{ \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ -\frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{5}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{5}{2} & 1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{5}{2} \\ -\frac{3}{2} & -1 & \frac{5}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{1}{2} & -1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \right\} + \\
& \left\{ \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ -\frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{5}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{5}{2} & 1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{5}{2} \\ -\frac{3}{2} & -1 & \frac{5}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{1}{2} & -1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \right\} + \\
& \left\{ \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ -\frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{5}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{5}{2} & 1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{5}{2} \\ -\frac{3}{2} & -1 & \frac{5}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{1}{2} & -1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \right\} + \\
& \left\{ \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ -\frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{5}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{5}{2} & 1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{5}{2} \\ -\frac{3}{2} & -1 & \frac{5}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{1}{2} & -1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \right\} + \\
& \left\{ \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ -\frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{5}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{5}{2} & 1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{5}{2} \\ -\frac{3}{2} & -1 & \frac{5}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{1}{2} & -1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \right\} \times \\
& \langle 5s_{1/2} || er || 5p_{3/2} \rangle \langle 5p_{3/2} || er || 16d_{5/2} \rangle \langle 16d_{5/2} || er || 6p_{3/2} \rangle \langle 6p_{3/2} || er || 5s_{1/2} \rangle \quad (A.3)
\end{aligned}$$

Resolvemos as matrizes, calculando o valor dos símbolos $3j$ e encontramos o valor do coeficiente de *ClebschGordan* que corresponde à parte angular dos elementos de dipolo. Assim, podemos escrever o elemento da matriz de transição da forma:

$$\begin{aligned}
\Omega_{5s_{1/2}16d_{5/2}} \Omega_{16d_{5/2}6p_{3/2}} \mu_{6p_{3/2}5s_{1/2}} &= \frac{8}{75} \langle 5s_{1/2} || er || 5p_{3/2} \rangle \langle 5p_{3/2} || er || 16d_{5/2} \rangle \\
&\langle 16d_{5/2} || er || 6p_{3/2} \rangle \langle 6p_{3/2} || er || 5s_{1/2} \rangle . \quad (A.4)
\end{aligned}$$

O valor do coeficiente encontrado, $\frac{8}{75}$, corresponde somente ao estado $16d_{5/2}$. Para encontrar o valor total do coeficiente, que é mostrado na tabela 2.1, temos que calcular também a contribuição do estado $16d_{3/2}$, envolvendo os mesmos estados intermediários. A componente radial do momento de dipolo é calculada numericamente, como descrevemos no capítulo 2.

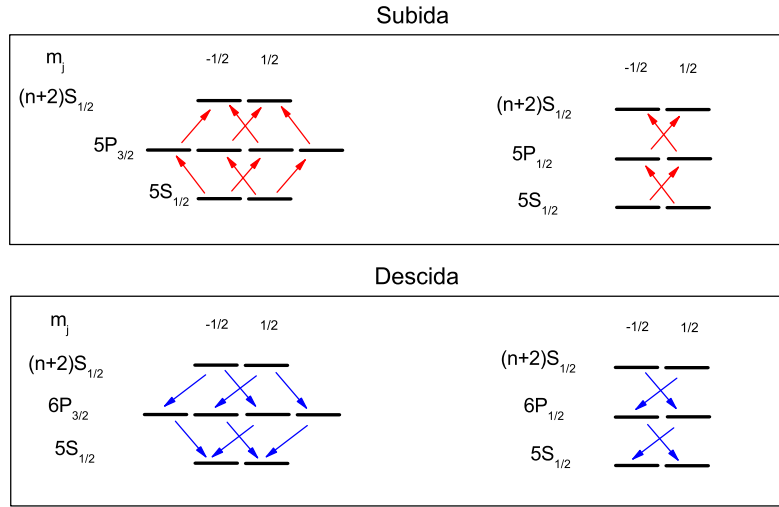


Figura A.2 Diagrama das possíveis transições por dipolo elétrico, para a polarização paralela dos campos incidentes, tendo como estado mais excitado o nível $(n+2)S_{1/2}$, envolvendo a transição $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{1/2}(5P_{3/2}) \rightarrow 18S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}(6P_{3/2}) \rightarrow 5S_{1/2}$.

2. Cálculo do coeficiente de *ClebschGordan* considerando o nível $18s$ como estado mais excitado, envolvendo os estados $5P_{3/2}$ e $6P_{3/2}$. Nesse caso, temos 8 caminhos possíveis e as transições são:

$$5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 18S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}.$$

$$\begin{aligned}
& \Omega_{5s_{1/2}18s_{1/2}} \Omega_{18s_{1/2}6p_{3/2}} \mu_{6p_{3/2}5s_{1/2}} = \frac{16}{9} \times \\
& \left\{ \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ -\frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{1}{2} & -1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ -\frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{1}{2} & -1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \right\} + \\
& \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ -\frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{1}{2} & -1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ -\frac{3}{2} & -1 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{1}{2} & 1 & -\frac{3}{2} \end{pmatrix} + \\
& \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ -\frac{3}{2} & -1 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{1}{2} & 1 & -\frac{3}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ -\frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{1}{2} & -1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} + \\
& \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ -\frac{3}{2} & -1 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{1}{2} & -1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ -\frac{3}{2} & -1 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{1}{2} & 1 & -\frac{3}{2} \end{pmatrix} + \\
& \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ -\frac{3}{2} & -1 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{1}{2} & 1 & -\frac{3}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ -\frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{1}{2} & -1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} + \\
& \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ -\frac{3}{2} & -1 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{1}{2} & -1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ -\frac{3}{2} & -1 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{1}{2} & 1 & -\frac{3}{2} \end{pmatrix} + \\
& \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ -\frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{1}{2} & -1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \\ -\frac{3}{2} & 1 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -\frac{1}{2} & -1 & \frac{3}{2} \end{pmatrix} \times \\
& \langle 5s_{1/2} || er || 5p_{3/2} \rangle \langle 5p_{3/2} || er || 18s_{1/2} \rangle \langle 18s_{1/2} || er || 6p_{3/2} \rangle \langle 6p_{3/2} || er || 5s_{1/2} \rangle
\end{aligned} \tag{A.5}$$

Novamente, resolvendo as matrizes relacionadas, temos:

$$\begin{aligned}
\Omega_{5s_{1/2}18s_{1/2}} \Omega_{18s_{1/2}6p_{3/2}} \mu_{6p_{3/2}5s_{1/2}} = \frac{8}{81} & \langle 5s_{1/2} || er || 5p_{3/2} \rangle \langle 5p_{3/2} || er || 18s_{1/2} \rangle \\
& \langle 18s_{1/2} || er || 6p_{3/2} \rangle \langle 6p_{3/2} || er || 5s_{1/2} \rangle .
\end{aligned} \tag{A.6}$$

Para as outras combinações, envolvendo os estados $5p_{1/2}$ ou $6p_{1/2}$, ou mesmo para encontrar os valores referentes à situação de polarização perpendicular, basta eliminar os caminhos que não são possíveis, devido a ausência dos níveis associados a um determinado m_j ou porque a polarização não permite a transição. O resultado dos cálculos associados a todas as combinações possíveis foram apresentados no capítulo 2, nas tabelas 2.1 e 2.2.

Níveis de energia do átomo de Rb

As energias dos níveis atômicos do átomo de Rb relevantes no nosso trabalho são mostradas na tabela B.1 [73]. Para o átomo de rubídio, a energia de ionização é $E_{ion} \cong 33690,4 \text{ cm}^{-1}$ [76], e a frequência do laser de IV é $9394,7 \pm 0,5 \text{ cm}^{-1}$.

Estado nl	J	Energia do nível (cm^{-1})
14d	3/2, 5/2	33005,84
16s	1/2	33028,11
15d	3/2, 5/2	33102,42
17s	1/2	33120,259
16d	3/2, 5/2	33179,95
18s	1/2	33194,44
17d	3/2, 5/2	33243,11
19s	1/2	33255,039
20d	3/2, 5/2	33375,516
22s	1/2	33382,618

Tabela B.1 Níveis de energia do átomo de Rb.

