



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

TESE DE DOUTORADO

**EXCITAÇÃO COERENTE DE UM VAPOR ATÔMICO POR TRENS
DE PULSOS ULTRACURTOS E LASERS CONTÍNUOS**

por

Marco Polo Moreno de Souza

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. José Roberto Rios Leite (DF-UFPE)
Prof. Edilson Lucena Falcão Filho (DF-UFPE)
Prof. Ricardo Rego Bordalo Correia (IF - UFRGS)
Prof. Luis Eduardo Evangelista de Araujo (IF - Unicamp)

Recife - PE, Brasil
Junho - 2012

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

Souza, Marco Polo Moreno de.

Excitação coerente de um vapor atômico por trens de pulsos ultracurtos e lasers contínuos / Marco Polo Moreno de Souza. – Recife: O Autor, 2012.

ix, 129 f.: fig., tab.

Orientadora: Sandra Sampaio Vianna.

Tese (Doutorado) - Universidade Federal de Pernambuco. CCEN. Física, 2012.

Inclui bibliografia e apêndice.

1. Óptica. 2. Espectroscopia de laser. 3. Átomos - modelos. I. Vianna, Sandra Sampaio (orientadora). II. Título.

535.2

(22. ed.)

FQ 2012-024



Universidade Federal de Pernambuco
Departamento de Física – CCEN
Programa de Pós-Graduação em Física
Cidade Universitária - 50670-901 Recife PE Brasil
Fone (++ 55 81) 2126-8449/2126-8450 - Fax (++ 55 81) 3271-0359
<http://www.df.ufpe.br/pg> e-mail: posgrad@df.ufpe.br

Parecer da Banca Examinadora de Defesa de Tese de Doutorado

Marco Polo Moreno de Souza

EXCITAÇÃO COERENTE DE UM VAPOR ATÔMICO POR TRENS DE PULSOS ULTRACURTOS E LASERS CONTÍNUOS

A Banca Examinadora composta pelos Professores Sandra Sampaio Vianna (Presidente e Orientadora), José Roberto Rios Leite, Edilson Lucena Falcão Filho, todos do Departamento de Física da Universidade Federal de Pernambuco, Ricardo Rego Bordalo Correia, do Instituto de Física da Universidade Federal do Rio Grande do Sul e Luis Eduardo Evangelista de Araujo, do Instituto de Física da Universidade Estadual de Campinas, consideram o candidato:

☐ Aprovado

☐ Reprovado

☐ 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 sete de junho de dois mil e doze.

Profa. Sandra Sampaio Vianna
Presidente e Orientadora

Prof. José Roberto Rios Leite

Prof. Edilson Lucena Falcão Filho

Prof. Ricardo Rego Bordalo Correia

Prof. Luis Eduardo Evangelista de Araujo

*Dedico esta tese a todos os amantes da ciência e da
tecnologia.*

Agradecimentos

Aos meus pais, pela motivação que me deram em relação aos estudos.

A minha orientadora Sandra, pela minha formação, pela paciência, pela dedicação e pelos seus conselhos sempre muito úteis.

A Daniel, meu coorientador do mestrado, pelas discussões fundamentais que contribuíram para a elaboração desta tese.

A Giovana, pela inestimável ajuda na realização e análise de dados do experimento da transição de dois fótons, e Matheus, pela ajuda no alinhamento do laser de femtossegundos.

Aos colegas de laboratório, alguns dos quais trabalharam na melhoria do nosso laser de diodo e na caracterização do laser de femtossegundos: Fernando, Gabriel, Clarissa, Filipe, Christianne, Brenda, Rafael, Milton e Bruno.

Aos participantes do grupo de óptica, em particular Rios, Tabosa, Lúcio, Edilson e Márcio, pelas discussões que ajudaram a melhorar a tese em vários aspectos.

A Marcos, técnico em eletrônica do Departamento de Física, por ter solucionado vários dos nossos problemas na parte eletrônica.

A Anderson, pela gentileza em emprestar o gerador de funções e o analisador de espectro.

A todos os professores que contribuíram para a minha formação, do ensino infantil à pós-graduação.

A todos os meus colegas que contribuíram, direta ou indiretamente, para a realização deste trabalho.

Ao Departamento de Física e seus funcionários das secretarias, do setor de química, da oficina mecânica e do setor financeiro.

Ao CNPq, a CAPES e a FACEPE, pelos recursos.

*O enigma não existe. Se uma questão pode ser colocada, poderá também
ser respondida.*

—LUDWIG WITTGENSTEIN, TRACTATUS
LOGICO-PHILOSOPHICUS, 6.5

Resumo

Apresentamos uma abordagem, com ênfase no domínio das frequências, para o problema da excitação de átomos por um trem de pulsos ultracurtos. Trabalhamos no regime de acumulação coerente, no qual o intervalo de tempo entre os pulsos é menor do que os tempos de relaxação do meio. Primeiramente, revisamos os fundamentos da interação coerente entre lasers, contínuos e pulsados, e sistemas atômicos, onde introduzimos o formalismo da matriz densidade para um sistema de dois níveis. Este formalismo é depois estendido para sistemas de três níveis na configuração tipo λ e em cascata. Utilizamos a solução numérica das equações de Bloch integradas no tempo para modelar a impressão do pente de frequências no perfil Doppler de um vapor de átomos de rubídio na presença de um feixe de prova contínuo. No regime de campo fraco, apresentamos um tratamento teórico para a coerência atômica induzida por um trem de pulsos em átomos de dois níveis, que nos permitiu chegar a uma solução fechada para a coerência em termos dos modos do pente de frequências. Essa abordagem, no domínio da frequência, é usada para analisar o armazenamento coerente de população em um sistema de três níveis do tipo λ , nas proximidades das ressonâncias de um e de dois fótons. A partir de resultados numéricos e analíticos, obtemos um pente de linhas de transparência eletromagneticamente induzida (EIT). Propomos a observação experimental desse pente de EIT no perfil Doppler através de um feixe de prova contínuo. Por fim, empregamos a abordagem no domínio das frequências para modelar resultados de dois experimentos. No primeiro, usamos um laser de diodo contínuo para sondar o bombeio óptico induzido por um laser de Ti:safira com 1 GHz de taxa de repetição em vapor de átomos de rubídio. A alta taxa de repetição permitiu resolver as transições hiperfinas para os estados $5P_{1/2}$ e $5P_{3/2}$. Discutimos os resultados obtidos a partir das técnicas de espectroscopia seletiva em velocidade e da espectroscopia com taxa de repetição. No segundo experimento, usamos a ação combinada do laser de diodo e do trem de pulsos ultracurtos na transição ressonante por dois fótons $5S - 5P - 5D$ para fazer espectroscopia dos níveis hiperfinos $5D_{3/2}$ e $5D_{5/2}$. O experimento é realizado sem travar a frequência de *off-set* do laser de Ti:safira, a qual estimamos a partir dos resultados experimentais.

Palavras-chave: pente de frequências, trem de pulsos ultracurtos, laser de diodo, espectroscopia, vapor de rubídio, equações de bloch, acumulação coerente, transições hiperfinas.

Abstract

We present an approach, with emphasis on the frequency domain, to the problem of atomic excitation by a train of ultrashort pulses. We work on coherent accumulation regime, in which the time interval between pulses is smaller than the relaxation time of the medium. First, we review the fundamentals of coherent interaction between lasers, pulsed and continuous, and atomic systems, where we have introduced the density matrix formalism for a two-level system. This formalism is then extended to Lambda and cascade three-level systems. We use the numerical solution of the Bloch equations, integrated in time, to model the frequency comb printed on the Doppler profile of an atomic rubidium vapor in the presence of a continuous probe beam. In the weak field limit, we present a theoretical treatment for the atomic coherence induced by a train of ultrashort pulses in two-level atoms, which has allowed us to reach to a closed solution in terms of frequency comb modes. This approach, in the frequency domain, is used to analyze the coherent population trapping in a three-level lambda system near the one- and two-photon resonances. From numerical and analytical results, we obtain a comb of electromagnetically induced transparency (EIT) lines. We propose the experimental observation of this EIT comb, in the Doppler profile, using a continuous probe beam. Finally, we use the approach in frequency domain to model results from two experiments. At first, we use a diode laser to probe the optical pumping induced by an 1 GHz repetition rate Ti:sapphire laser in an atomic rubidium vapor. The high repetition rate has allowed to solve the hyperfine transitions to the $5P_{1/2}$ and $5P_{3/2}$ states. We discuss the results with the velocity-selective and repetition rate spectroscopies. In the second experiment, we used the combined action of a diode laser and a train of ultrashort pulses in the resonant two-photon transition $5S-5P-5D$, to do spectroscopy in the $5D_{3/2}$ and $5D_{5/2}$ hyperfine levels. The experiment is performed without locking the offset frequency of Ti:sapphire laser, which we estimate from the experimental results.

Keywords: Frequency-comb, ultrashort pulse train, diode laser, spectroscopy, rubidium vapor, bloch equations, coherent accumulation, hyperfine transitions.

Sumário

1	Introdução	1
1.1	O trem de pulsos ópticos e o pente de frequências	4
2	Fundamentos da interação coerente entre lasers e sistemas atômicos	7
2.1	Solução das equações de Bloch para campos contínuos	9
2.2	Ressonância com o pente de frequências	10
2.2.1	Solução numérica	10
2.2.2	Espectroscopia com a taxa de repetição	14
2.2.3	Espectroscopia seletiva em velocidade	15
3	A impressão do pente de frequências na distribuição atômica de velocidades	17
3.1	Esquema experimental	17
3.2	Resultados	19
3.3	Teoria	22
3.3.1	Variação com a potência do laser cw	28
3.3.2	Dependência com a densidade atômica	33
3.4	Conclusões	34
4	Abordagem no domínio da frequência	35
4.1	O trem de pulsos como uma superposição de campos cw	35
4.2	Solução das equações de Bloch	36
4.3	Fora do regime da acumulação coerente	39
4.4	Interação com um vapor atômico	41
4.5	Propagação em um vapor atômico	41
4.6	Campos intensos	46
4.7	Conclusões	47
5	Teoria analítica para o aprisionamento coerente de população	49
5.1	Aprisionamento coerente de população	50
5.2	Equações de Bloch	51
5.3	Resultados numéricos	53
5.4	Tratamento analítico	55
5.5	EIT em um vapor atômico	60
5.6	Conclusões	61

6	Experimento 1: Bombeamento óptico entre níveis hiperfinos do rubídio	63
6.1	O laser de Ti:safira pulsado	63
6.2	O laser de diodo contínuo	65
6.3	Absorção saturada	66
6.4	Esquema experimental	69
6.5	Espectroscopia seletiva em velocidade	70
6.6	Espectroscopia com a taxa de repetição	75
6.7	Conclusões	76
7	Experimento 2: Transição de dois fótons em cascata no rubídio	77
7.1	Esquema experimental	77
7.2	Resultados	80
7.3	Teoria	85
7.3.1	Equações de Bloch e análise preliminar	85
7.3.2	Modelagem	89
7.4	Dependência com o grupo de velocidade atômico	93
7.5	Cálculo da frequência de <i>off-set</i> do laser de Ti:safira	96
7.6	Influência do bombeio óptico do laser de diodo	97
7.6.1	Posição dos picos no perfil Doppler	98
7.6.2	Forma de linha dos picos	101
7.7	Conclusões	102
8	Conclusões	103
A	Programa em C++	104
B	Tabela de dados	108
C	Equações de Bloch	113
C.1	Sistema de dois níveis	113
C.2	Sistema de 3 níveis tipo Λ	114
C.3	Sistema de 3 níveis tipo cascata	116
D	Programa que resolve as equações de Bloch analiticamente	118

Introdução

A teoria clássica da interação linear entre luz e matéria foi desenvolvida por H. A. Lorentz [1]. Entretanto, os primeiros estudos experimentais envolvendo a interação coerente entre luz e sistemas atômicos apareceram após a invenção do laser por T. H. Maiman [2] e A. Javan, em 1960 [3]. O laser revolucionou muitas áreas da física e de toda a ciência. Uma de suas características principais, a coerência, contribuiu para a descoberta de novos efeitos não lineares envolvendo a interação coerente entre luz e matéria.

Outra contribuição importante veio seis anos depois, com o desenvolvimento dos lasers de corante [4], sintonizáveis em praticamente todo o espectro óptico. O laser de diodo foi inventado em 1962, porém a adição de uma cavidade externa veio bem depois, em 1977, o que o deixou sintonizável e reduziu a sua emissão a um único modo longitudinal, com largura de linha de 32 MHz [5]. Quatro anos depois surgiu o laser de diodo com cavidade externa na configuração Littrow [6], bastante usado ainda hoje em espectroscopia atômica. Com essa configuração, sua largura de linha ficou abaixo de 1 MHz [7].

Ainda na década de 1960, foi desenvolvida a técnica de *mode-locking* (travamento de modos) [8], com a qual se tornou possível a geração de trens de pulsos com duração temporal extremamente curta. A duração de cada pulso é determinada pela quantidade de modos travados, isto é, que oscilam em fase dentro da cavidade do laser, e que também é responsável pela relação de fase bem definida entre os pulsos do trem. Um dos desafios era a estabilidade dos lasers, pois, como foi notado vários anos depois, pulsos uniformemente espaçados no tempo correspondem a modos de frequência uniformemente espaçadas [9]. Essa característica ficou conhecida como pente de frequências ópticas, sendo uma das contribuições à ciência pelas quais Theodor W. Hänsch e John L. Hall ganharam o prêmio Nobel de Física em 2005.

Em 1978, Hänsch e colaboradores apresentaram um dos primeiros lasers de corante *mode-locked* com pulsos de centenas de femtossegundos [10]. Embora o pente de frequências ainda não houvesse sido caracterizado, nesse mesmo ano um importante trabalho foi publicado pelo grupo do Hänsch com esse laser de corante, onde eles usaram a estrutura do pente para medir diferença de frequência entre níveis hiperfinos do sódio [11].

Em 1982 foi apresentado o laser de Titânio-safira (Ti:safira) por P. E. Moulton [12], primeiramente operando apenas no regime pulsado. No começo da década de 1990, diversos trabalhos reportaram a geração de pulsos com menos de 100 femtossegundos. Hoje, um laser de Ti:safira típico, operando no regime de modos travados, produz pulsos com duração entre 10 femtossegundos (fs) e alguns picossegundos, a uma taxa de repetição entre 70 e 90 MHz.

A busca por pulsos com largura temporal cada vez menor tem por base a ideia de produzir um laser com luz branca, cuja emissão cobre todo o espectro visível. No ano de 2000, Bellini e Hänsch sugeriram o uso de pentes de frequência, com grande largura de banda, para fazer me-

didadas de frequência absoluta desde o infravermelho até o ultravioleta [13]. A primeira medida absoluta de frequência usando um pente de frequência veio logo em seguida, onde M. Niering e colaboradores mediram a frequência da transição de dois fótons 1S-2S do hidrogênio com uma incerteza de $1,9 \times 10^{-14}$ [14], uma ordem de magnitude mais precisa do que todas as outras medidas. Esse experimento confirmou a viabilidade do uso dos pentes de frequências para metrologia. Em 2011, novas medidas para a frequência dessa mesma transição foram feitas, atingindo a incerteza de $4,2 \times 10^{-15}$ [15]. Além de espectroscopia, o pente de frequências ópticas possui inúmeras outras aplicações, como o desenvolvimento de relógios atômicos ópticos [16], medida de distâncias com resolução de sub-picômetros [17], calibração de espectrógrafos para observações astronômicas [18], caracterização de ruído em lasers [19], testes de possíveis variações de constantes fundamentais da física [20], realização de óptica não linear extrema [21], informação quântica [22], computação quântica [23], e geração de pulsos de attossegundos através de altos harmônicos [24].

Os primeiros estudos teóricos envolvendo a interação coerente de um pulso de luz ultracurto e sistemas atômicos apareceram no final da década de 1960 [25, 26]. O tratamento teórico da excitação de sistemas atômicos por um trem de pulsos ultracurtos veio somente em 1986, com o trabalho de Kocharovskaya e Khanin [27]. Eles consideraram a relação de fase bem definida entre os pulsos do trem, e trataram a interação na condição em que o intervalo de tempo entre os pulsos é menor do que os tempos de vida dos átomos, condição conhecida hoje como “regime de acumulação coerente”. Em sistemas atômicos de dois níveis, esse problema foi investigado numericamente por Bradley em 1991 [28] e soluções exatas, por iteração, vieram logo em seguida com os trabalhos de Temkin (1993) [29], e Vitanov e Knight (1995) [30].

Em 2003, Felinto e colaboradores investigaram a acumulação coerente induzida por um trem de pulsos ultracurtos em sistemas atômicos de dois níveis com alargamento Doppler [31], apresentando uma solução exata para a população excitada no regime estacionário. Através de uma expansão perturbativa, essa solução foi estendida para sistemas de três níveis em cascata [32]. A partir de 2005, o grupo de Pichler apresentou uma série de trabalhos teóricos e experimentais sobre a “impressão” do pente de frequências na distribuição atômica de velocidades de um vapor de rubídio (Rb) [33, 34, 35]. Em 2009, Soares e Araujo apresentaram um dos primeiros estudos sobre os efeitos de propagação na acumulação coerente induzidos por um trem de pulsos ultracurtos em sistemas de dois e de três níveis [36]. Nesse mesmo ano, Felinto e López apresentaram uma teoria perturbativa para a interação do trem de pulsos com sistemas atômicos com uma quantidade arbitrária de níveis [37], com generalidade suficiente para considerar pulsos secante-hiperbólicos, pulsos com chirp e pulsos 0π . Um ponto importante do trabalho foi apresentar uma abordagem numérica para tratar, de forma eficiente, a complexidade intrínseca de um sistema de muitos níveis.

É bem conhecido que o problema da excitação coerente de átomos por um trem de pulsos ultracurtos pode ser entendido sob o ponto de vista espectral, principalmente no regime de acumulação coerente, onde vemos a interação dos átomos com os modos do pente de frequências, ao invés de com uma sequência de pulsos do trem. Os trabalhos descritos nos dois parágrafos anteriores, basicamente, abordaram o problema em questão sob esse ponto de vista. Entretanto, toda a teoria desenvolvida por estes autores trata o problema pelo domínio do tempo, onde as equações de Bloch são resolvidas através da interação entre os pulsos e os átomos. O

tema desta tese se baseia na investigação do mesmo tipo de problema, porém com uma fundamentação teórica voltada para o domínio da frequência. Nesse aspecto, podemos dizer que apresentamos uma nova abordagem para um problema bem estabelecido na literatura.

Ainda nesse capítulo, descreveremos as características essenciais de um trem de pulsos ultracurtos, nos domínios do tempo e da frequência. No capítulo 2, revisaremos os aspectos fundamentais da interação coerente entre lasers, contínuos ou pulsados, e átomos de dois níveis. Empregaremos o formalismo da matriz densidade para o cálculo das populações e das coerências atômicas devido à interação com o campo dos lasers. A partir das equações de Bloch, discutiremos as soluções analíticas no regime estacionário e a evolução temporal das populações e das coerências através de cálculos numéricos.

O assunto tratado no capítulo 3 é, de certa forma, uma revisão da “impressão” do pente de frequências no perfil Doppler de um vapor de Rb. A excitação dos átomos pelo trem de pulsos de femtossegundos, gerado por um laser de Ti:safira com 76 MHz de taxa de repetição, é sondada por um laser de diodo contínuo. Estudaremos a dependência do pente de frequências impresso com a intensidade do laser de diodo e com a densidade dos átomos do vapor. O tratamento teórico é todo feito no domínio do tempo, de forma que essa abordagem padrão possa ser comparada com a abordagem no domínio da frequência, usada no restante da tese.

As principais ideias desta tese serão desenvolvidas no capítulo 4, onde atacaremos o problema da excitação de átomos de dois níveis pelo trem de pulsos ultracurtos no domínio da frequência. Um dos objetivos é mostrar o regime de equivalência entre os tratamentos teóricos no domínio do tempo e da frequência. No limite de campo fraco, chegaremos a uma solução analítica fechada para a coerência induzida pelo trem de pulsos. Essa solução é usada para incluir a interação com um vapor atômico para, em seguida, permitir visualizar os efeitos de propagação. Por fim, investigaremos a abordagem no limite de campos intensos, e discutiremos a conexão entre o deslocamento Stark induzido pelos modos do pente de frequências e pulsos de área π .

No capítulo 5, estudaremos o armazenamento coerente de população induzido por um trem de pulsos ultracurtos em um sistema de três níveis do tipo Λ . Esse capítulo é um teste para a abordagem discutida no capítulo 4, agora em um sistema mais complexo, onde novos efeitos não lineares podem estar presentes. Primeiro resolveremos as equações de Bloch numericamente, no domínio do tempo, e depois analiticamente, no domínio da frequência. Compararemos os dois resultados, que mostram um pente de linhas de transparência eletromagneticamente induzida (EIT). Propomos a observação experimental desse pente de EIT no perfil Doppler através de um feixe de prova contínuo.

Os capítulos 6 e 7 são “testes experimentais” para a nossa abordagem no domínio da frequência. O experimento discutido no capítulo 6 é semelhante ao apresentado no capítulo 3, porém usamos um laser de Ti:safira com 1 GHz de taxa de repetição. Essa alta taxa de repetição torna a abordagem bem mais aplicável, pois nesse caso as transições hiperfinas alargadas por efeito Doppler são excitadas por apenas 1 modo do pente de frequências. Além disso, as baixas intensidades de ambos os lasers tornaram possível um tratamento analítico para a modelagem dos resultados experimentais, que foram obtidos através de duas técnicas: a espectroscopia seletiva em velocidade e a espectroscopia com a taxa de repetição.

Fechamos a tese com o experimento discutido no capítulo 7, onde investigamos a transição

de dois fótons 5S-5P-5D, em um vapor de rubídio, excitada simultaneamente pelos lasers de Ti:safira e de diodo. Os resultados desse capítulo apresentam melhor resolução em comparação com o anterior, devido ao travamento da taxa de repetição do laser com o auxílio de um gerador de funções externo. O experimento foi realizado sem travar a frequência de *off-set* do laser de Ti:safira, a qual estimamos a partir dos resultados experimentais.

1.1 O trem de pulsos ópticos e o pente de frequências

Podemos definir o trem de pulsos ópticos como uma sequência de pulsos eletromagnéticos com envoltórias idênticas, separados temporalmente por um intervalo constante, e com uma relação de fase bem definida entre si. Uma sequência de pulsos com tal característica é obtida de lasers pulsados com travamento na fase (*mode-locked*), como os lasers de Ti:safira usados nos resultados obtidos dessa tese.

Seguiremos a notação de Cundiff [38] para escrever matematicamente o módulo do campo elétrico de um trem de pulsos:

$$E(t) = \sum_{n=0}^{N-1} E_0(t - nT_R) e^{-i(\omega_c t - n\omega_c T_R + n\Delta\phi)}. \quad (1.1)$$

$E_0(t)$ representa a envoltória de um pulso, N indica a quantidade de pulsos, T_R o intervalo de tempo entre dois pulsos consecutivos, ω_c a frequência da onda portadora e $\Delta\phi$ a diferença de fase pulso-a-pulso introduzida pelos elementos ópticos da cavidade do laser.

Fazendo uso da transformada de Fourier, podemos visualizar as componentes de frequência do campo. Aplicando essa ideia na Eq. (1.1), temos:

$$\begin{aligned} \tilde{E}(\omega) &= \int_{-\infty}^{\infty} \sum_{n=0}^{N-1} E_0(t - nT_R) e^{-i\omega_c t + in\omega_c T_R - in\Delta\phi} e^{i\omega t} dt \\ \tilde{E}(\omega) &= \sum_{n=0}^{N-1} e^{-in(\omega_c T_R - \Delta\phi)} \int_{-\infty}^{\infty} E_0(t - nT_R) e^{i(\omega - \omega_c)t} dt \\ \tilde{E}(\omega) &= \sum_{n=0}^{N-1} e^{-in(\omega T_R - \Delta\phi)} \int_{-\infty}^{\infty} E_0(t) e^{i(\omega - \omega_c)t} dt \\ \tilde{E}(\omega) &= \tilde{E}_0(\omega - \omega_c) \sum_{n=0}^{N-1} e^{-in(\omega T_R - \Delta\phi)}. \end{aligned} \quad (1.2)$$

A Eq. (1.2) é a representação de um pente de frequências. O trem de pulsos e o pente de frequências estão mostrados na Fig. 1.1, onde os parâmetros, que não são importantes agora, foram escolhidos para uma melhor visualização.

A largura de cada um dos modos do pente de frequências depende do tamanho do trem de pulsos, e é dada por $\approx 1/(NT_R)$. Em outras palavras, quanto mais pulsos o trem possuir, mais

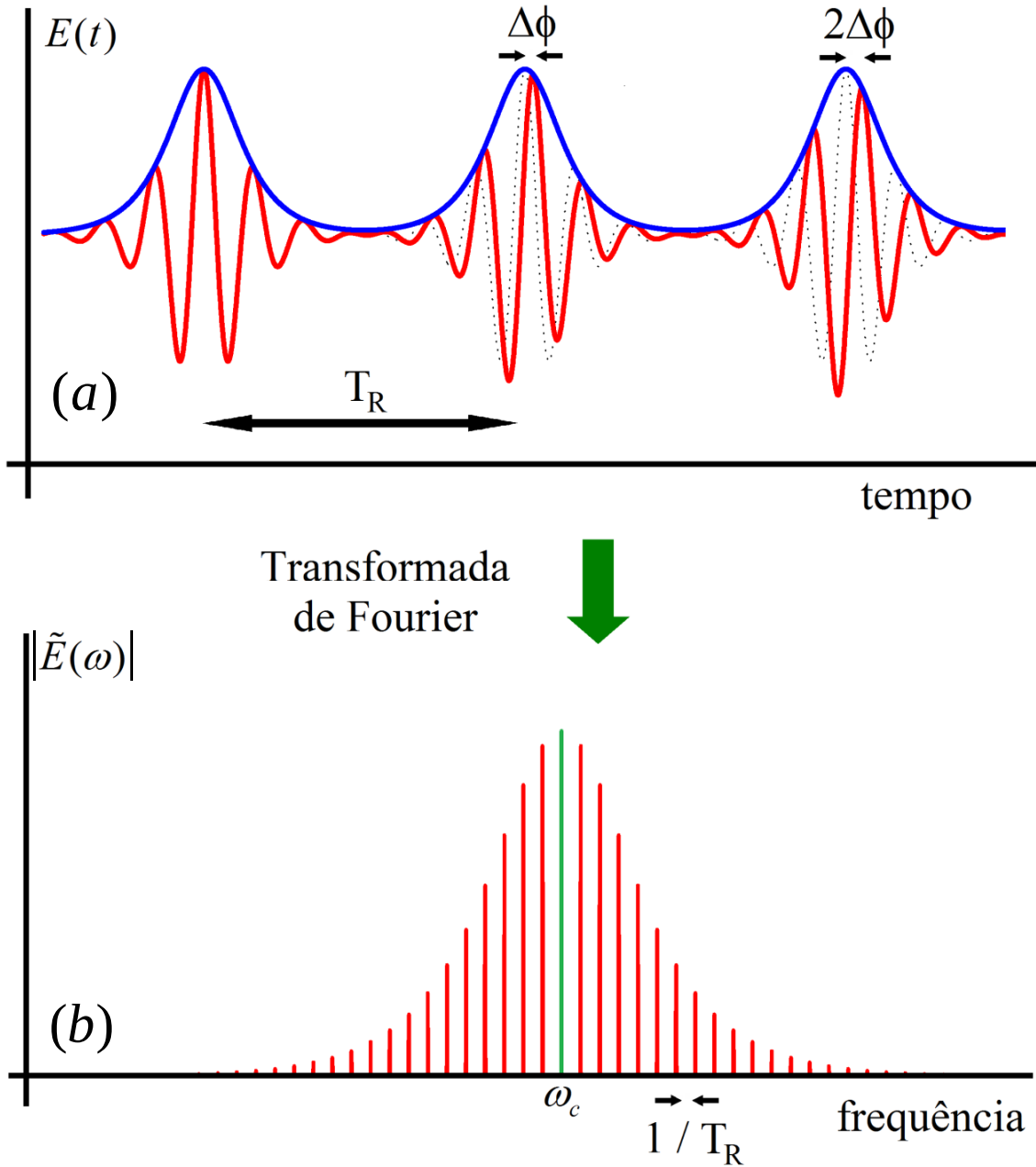


Figura 1.1 Representação diagramática de um trem de pulsos [(a), Eq. (1.1)] e de um pente de frequências [(b), Eq. (1.2)]. A curva em azul é a envoltória dos pulsos.

estreitos serão seus modos. A Fig. 1.2 ilustra essa afirmação, onde representamos os modos do pente de frequências em função da quantidade de pulsos do trem. Naturalmente, para um trem com infinitos pulsos,

$$\begin{aligned}\tilde{E}(\omega) &= \tilde{E}_0(\omega - \omega_c) \sum_{n=0}^{\infty} e^{-in(\omega T_R - \Delta\phi)} \\ \tilde{E}(\omega) &= 2\pi\tilde{E}_0(\omega - \omega_c) \sum_{m=-\infty}^{\infty} \delta(\omega T_R - \Delta\phi + 2\pi m) \\ \tilde{E}(\omega) &= \frac{2\pi\tilde{E}_0(\omega - \omega_c)}{T_R} \sum_{m=-\infty}^{\infty} \delta\left(\omega - \frac{\Delta\phi}{T_R} + \frac{2\pi m}{T_R}\right).\end{aligned}\quad (1.3)$$

Definindo $1/T_R \equiv f_R$, que podemos chamar de taxa de repetição, e fazendo $\Delta\phi f_R \equiv 2\pi f_0$, podemos escrever a Eq. (1.3) de uma maneira mais compacta, a saber

$$\tilde{E}(\omega) = 2\pi\tilde{E}_0(\omega - \omega_c) f_R \sum_{m=-\infty}^{\infty} \delta(\omega - \omega_m), \quad (1.4)$$

no qual

$$\omega_m = 2\pi(f_0 + m f_R). \quad (1.5)$$

ω_m representa a frequência do m -ésimo modo do pente de frequências, e f_0 é conhecido como frequência de off-set.

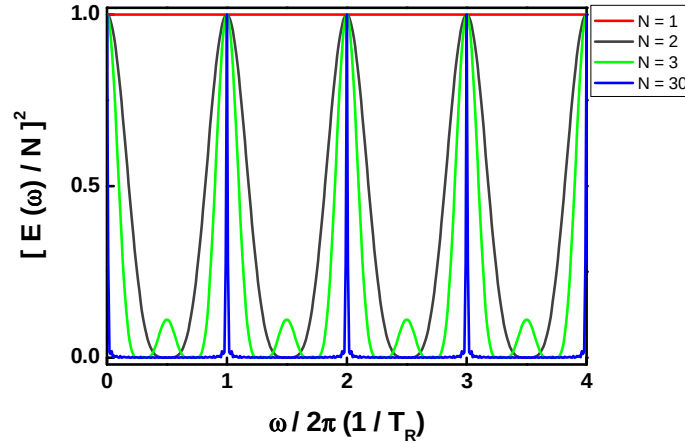


Figura 1.2 Pente de frequências normalizado em função da quantidade de pulsos do trem.

A quantidade de modos contida no pente de frequências depende da separação entre os modos, f_R , e da largura de banda de um pulso, $\Delta\omega$. Esse valor é da ordem de $\Delta\omega/f_R$ ou, equivalentemente, de T_R/T_p , onde $T_p \approx 1/\Delta\omega$ é a largura temporal do pulso. Um laser com $f_R = 100$ MHz e $T_p = 100$ fs tem em torno de 100 mil modos.

Fundamentos da interação coerente entre lasers e sistemas atômicos

O objetivo deste capítulo é apresentar os fundamentos da interação coerente entre lasers contínuos ou pulsados e sistemas atômicos de dois níveis, que é a base teórica sobre a qual se sustentam as ideias desenvolvidas nesta tese. Estaremos limitados a três importantes aproximações. A primeira delas diz respeito à natureza do campo elétrico, que consideraremos uma grandeza clássica. Nos casos de nosso interesse, a intensidade do campo é suficientemente alta de forma que o seu aspecto corpuscular pode ser desprezado. A segunda é a aproximação de dipolo elétrico, que diz respeito à natureza da interação átomo-campo. Consideraremos ainda que esse campo é uniforme na região ocupada pelo átomo [39]. A última aproximação diz respeito apenas ao átomo. Independente da quantidade de elétrons do sistema atômico, nosso modelo teórico supõe que apenas um elétron (o que tem maior energia) interage com o campo, de forma muito semelhante ao átomo de hidrogênio. Essa aproximação é boa para metais alcalinos, no qual se enquadra o rubídio.

Átomos possuem infinitas ressonâncias, embora na prática apenas algumas delas sejam acessíveis por um laser real. Seguindo esse raciocínio, desprezaremos as transições longe da ressonância com a frequência do laser, e, neste capítulo, suporemos que o átomo possui apenas dois níveis de energia (veja a Fig. 2.1), o que constitui outra importante aproximação. Assim, escrevemos o Hamiltoniano total como

$$\hat{H} = \sum_{k=1}^2 \hbar \omega_k |k\rangle \langle k| - e \hat{\mathbf{r}} \cdot \mathbf{E}(t), \quad (2.1)$$

onde o primeiro termo do lado direito representa o Hamiltoniano do átomo livre, sendo $\hbar \omega_k$ a energia do estado quântico $|k\rangle$. O segundo termo é o Hamiltoniano da interação do átomo com o campo na aproximação de dipolo elétrico, no qual $\hat{\mathbf{r}}$ é o operador vetor posição do elétron. Para simplificar, escreveremos $e \hat{\mathbf{r}} \cdot \mathbf{E}(t) = \hat{\mu} E(t)$, onde $\hat{\mu}$ é a componente do operador momento de dipolo elétrico na direção do campo.

Nesta tese estudaremos a influência do campo em um *ensemble* de átomos, e usaremos o formalismo da matriz densidade para calcular a probabilidade de encontrar um átomo em certo estado. Para esse propósito, devemos resolver a equação de Liouville-Neumann para a evolução temporal da matriz densidade:

$$\frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}, \hat{\rho}], \quad (2.2)$$

onde $\hat{\rho}$ é o operador matriz densidade. Calculando explicitamente um elemento específico ρ_{ij} ,

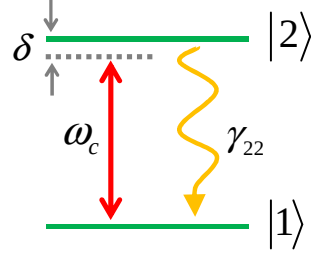


Figura 2.1 Representação esquemática de um sistema atômico de dois níveis, onde ω_c é a frequência de oscilação do campo, γ_{22} é a taxa de relaxação do estado excitado e δ é a dessintonia do campo.

e incluindo de forma fenomenológica o termo de decaimento espontâneo, temos que

$$\begin{aligned}
 \dot{\rho}_{ij} &= -\frac{i}{\hbar} \langle i | [\hat{H}, \hat{\rho}] | j \rangle - \gamma_j \langle i | \hat{\rho} | j \rangle \\
 \dot{\rho}_{ij} &= -\frac{i}{\hbar} \sum_k [\hbar \omega_k (\langle i | k \rangle \langle k | \hat{\rho} | j \rangle - \langle k | j \rangle \langle i | \hat{\rho} | k \rangle) \\
 &\quad + (\langle i | \hat{\rho} | k \rangle \langle k | \hat{\mu} | j \rangle - \langle i | \hat{\mu} | k \rangle \langle k | \hat{\rho} | j \rangle) E(t) - \gamma_j \langle i | \hat{\rho} | j \rangle] \\
 \dot{\rho}_{ij} &= -(i\omega_{ij} + \gamma_j) \rho_{ij} + \frac{iE(t)}{\hbar} \sum_k (\mu_{ik} \rho_{kj} - \mu_{kj} \rho_{ik}) \\
 \dot{\rho}_{ij} &= -(i\omega_{ij} + \gamma_j) \rho_{ij} + i \sum_k \Omega_{ik}(t) \rho_{kj} + c.c.
 \end{aligned} \tag{2.3}$$

Na Eq. (2.3), γ_j é taxa de decaimento (ou taxa de relaxação) do elemento ρ_{ij} e $\omega_{ij} = \omega_i - \omega_j$. O termo $\mu_{ij} = \langle i | \hat{\mu} | j \rangle$ representa o momento de dipolo elétrico da transição $|i\rangle \rightarrow |j\rangle$. Os elementos de matriz ρ_{ii} representam as populações atômicas, e os elementos ρ_{ij} , para $i \neq j$, representam as coerências entre os estados $|i\rangle$ e $|j\rangle$. Pela regra de ouro de Fermi [40], a taxa de transição entre os respectivos estados é proporcional a $|\mu_{ij}|^2$.

Na Eq. (2.3) usamos também que:

$$\Omega_{ij}(t) = \frac{\mu_{ij} E(t)}{\hbar}. \tag{2.4}$$

Escrevendo explicitamente os elementos da matriz densidade da coerência e da população do estado excitado, chegamos ao seguinte sistema de equações:

$$\dot{\rho}_{12} = (i\omega_{21} - \gamma_{12}) \rho_{12} - i\Omega(t) (1 - 2\rho_{22}) \tag{2.5a}$$

$$\dot{\rho}_{22} = -\gamma_{22} \rho_{22} + i\Omega(t) \rho_{12} + c.c., \tag{2.5b}$$

onde usamos o fato de que $\rho_{11} + \rho_{22} = 1$ e lembramos que $\rho_{12} = \rho_{21}^*$. Além disso, fizemos $\Omega_{12} \equiv \Omega$. As equações acima são conhecidas como equações de Bloch ópticas [41]. Quando a frequência do campo estiver próximo da frequência de ressonância dos átomos, isto é, $\omega_c \approx \omega_{21}$,

a coerência atômica ρ_{12} oscilará aproximadamente na frequência do campo, de forma que podemos escrever

$$\rho_{12}(t) = \sigma_{12}(t)e^{i\omega_c t}, \quad (2.6)$$

onde σ_{12} é uma função que varia lentamente quando comparada com $e^{i\omega_c t}$. Podemos escrever a equação do campo como $E(t) = E_0(t)e^{i\omega_c t}$, onde $E_0(t)$ é a envoltória do campo, de forma que a equação acima nos permite reescrever as equações de Bloch como

$$\dot{\sigma}_{12} = (i\delta - \gamma_{12})\sigma_{12} - i\Omega_0(t)(1 - 2\rho_{22}) \quad (2.7a)$$

$$\dot{\rho}_{22} = -\gamma_{22}\rho_{22} + i\Omega_0(t)\sigma_{12} + c.c., \quad (2.7b)$$

onde usamos $\Omega(t) = \Omega_0(t)e^{i\omega_c t}$, sendo

$$\Omega_0(t) = \frac{\mu_{12}E_0(t)}{\hbar}, \quad (2.8)$$

que é a definição da frequência de Rabi dependente do tempo. A diferença entre as frequências da ressonância atômica e do campo será chamada de dessintonia do campo: $\delta = \omega_{21} - \omega_c$. Nas equações (2.7), também usamos a aproximação de onda girante [41], que nos permitiu desprezar os termos que oscilavam com o dobro da frequência do campo.

2.1 Solução das equações de Bloch para campos contínuos

A solução em função do tempo das equações de Bloch (Eq. 2.7), obtidas por Torrey [42] no contexto de ressonância magnética nuclear, são demasiadamente complexas para serem analisadas nesta tese. Entretanto, o estudo no regime estacionário pode ser analisado facilmente, fazendo $\dot{\sigma}_{12} = \dot{\rho}_{22} = 0$. Nesse caso, a solução das equações de Bloch é dada por

$$\bar{\sigma}_{12} = \frac{(\gamma_{12} + i\delta)\Omega_0}{\gamma_{12}^2 + \delta^2 + 4\Omega_0^2(\gamma_{12}/\gamma_{22})} \quad (2.9a)$$

$$\bar{\rho}_{22} = \frac{2\Omega_0^2}{\gamma_{22}\gamma_{12} + \delta^2(\gamma_{22}/\gamma_{12}) + 4\Omega_0^2}, \quad (2.9b)$$

onde a barra indica que a solução é no regime estacionário, e $\Omega_0(t) = \Omega_0$ (campo contínuo).

Na Fig. 2.2 mostramos a população no regime estacionário em função da dessintonia do campo. Consideramos $\gamma_{22}/2\pi = 5$ MHz, $\gamma_{12} = \gamma_{22}/2$ (desprezamos colisões defasadoras) e, para as frequências de Rabi, usamos (a) $\Omega_0 = \gamma_{22}/100$ e (b) $\Omega_0 = \gamma_{22}$. Para baixas intensidades do campo (isto é, $\Omega_0/\gamma_{22} \ll 1$), a largura de linha é dominada pela largura de linha natural da transição (γ_{22}). Para intensidades próximas da intensidade de saturação ($\Omega_0/\gamma_{22} \approx 1$), podemos notar o alargamento por potência, que pode ser escrito a partir da Eq. (2.9b) como

$$\Delta\omega = 2\sqrt{\gamma_{12}^2 + 4\Omega_0^2(\gamma_{12}/\gamma_{22})}. \quad (2.10)$$

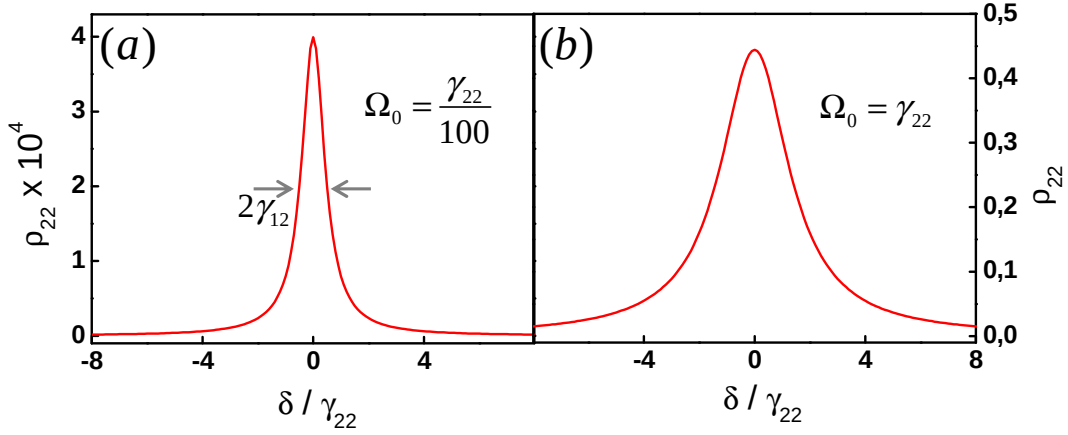


Figura 2.2 População ρ_{22} , no regime estacionário, em função da dessintonia do campo, para dois valores da frequência de Rabi.

2.2 Ressonância com o pente de frequências

Se o período de repetição de um trem de pulsos é menor do que os tempos de relaxação dos átomos, estes adquirem uma coerência total que resulta da excitação acumulada devido à interação com os pulsos do trem. Esse caso especial, que está presente em todos os resultados experimentais descritos nesta tese, é conhecido por “regime de acumulação coerente” [31]. Dentro desse regime, a interação de um trem de pulsos com sistemas atômicos foi objeto de estudo de inúmeros pesquisadores. Em 1987, Thomas apresentou uma solução analítica fechada para a interação com N pulsos gaussianos [43], embora tenha desprezado os decaimentos espontâneos. Em 1993, Temkin apresentou em seu artigo [29] uma teoria analítica para esse problema. Esta é baseada em uma aproximação na qual os pulsos têm forma de onda retangular, com largura temporal $T_p \ll T_R$. Nessas condições, as equações de Bloch são resolvidas exatamente tanto na presença quanto na ausência de um pulso retangular, e a partir daí o problema é resolvido por iteração. Em 1995, Kruger publicou uma teoria baseada nos modos do pente de frequências, cuja solução perturbativa é válida no regime estacionário [44]. Mais tarde, em 2003, Felinto apresentou uma solução analítica válida mesmo em altas intensidades do campo [31], onde foi estudada a impressão do pente de frequências no perfil Doppler de um vapor atômico.

Apresentaremos aqui a solução numérica das equações de Bloch.

2.2.1 Solução numérica

Grande parte dos resultados numéricos apresentados nesta tese são baseados no método que discutiremos nessa seção. As equações diferenciais (2.7) para a interação do primeiro pulso do trem com o sistema atômico são resolvidas numericamente, a partir do algoritmo de Runge-Kutta clássico de quarta ordem [45]. O resultado é usado como condição inicial para o decaimento espontâneo, quando temos $\Omega_0(t) = 0$ e onde as equações de Bloch são resolvidas

exatamente:

$$\sigma_{12}(t) = \sigma_{12}(0)e^{(i\delta - \gamma_{12})t} \quad (2.11a)$$

$$\rho_{22}(t) = \rho_{22}(0)e^{-\gamma_{22}t}, \quad (2.11b)$$

onde $\sigma_{12}(0)$ e $\rho_{22}(0)$ são os elementos da matriz densidade logo após a passagem do pulso. É importante salientar que essa solução exata no decaimento economiza bastante tempo de computação. O ciclo excitação/decaimento é repetido para os N pulsos em um *loop*, conforme mostra a Fig. 2.3.

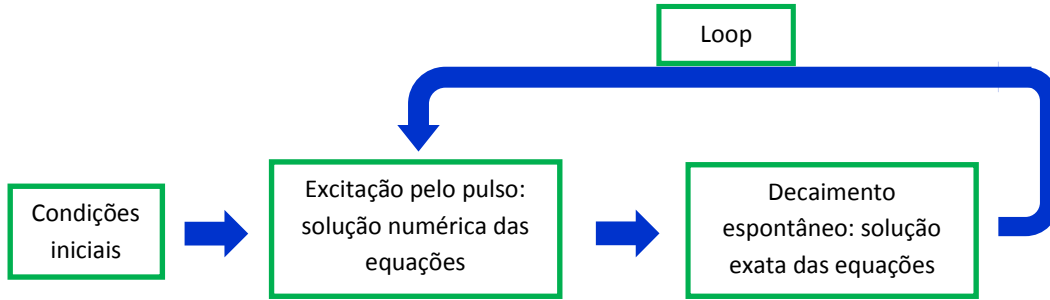


Figura 2.3 Fluxograma lógico do método numérico empregado para resolver as equações de Bloch.

Na Fig. 2.4 mostramos os resultados para a interação com uma sequência de pulsos com envoltória retangular, obtidos a partir de um programa escrito na linguagem C++ (ver apêndice A) que usa a lógica mostrada na Fig. 2.3. Usamos $f_R = 100$ MHz ($T_R = 10$ ns), $\Delta\phi = 0$ ($f_0 = 0$), $\gamma_{22}/2\pi = 5$ MHz (tempo de vida = 25 ns, valor bem próxima da transição $5S \rightarrow 5P$ do rubídio, ver tabelas B.3 e B.4), $\gamma_{12} = \gamma_{22}/2$, $T_p = 100$ fs, $\omega_c/2\pi = 400$ THz ($\lambda_c = 750$ nm), $\omega_{21}/2\pi = 400$ THz + $\delta/2\pi$ e $\Omega_0(T_p/T_R) = 0,01\gamma_{22}$. (O uso do fator T_p/T_R ficará mais claro no capítulo 4. Por hora podemos dizer que $\Omega_0(T_p/T_R)$ é aproximadamente a frequência de Rabi por modo.) Primeiro podemos notar que a população ρ_{22} tende ao equilíbrio para tempos longos, ainda que ela oscile em torno de um valor médio. Chamaremos essa situação de *regime estacionário*, embora que, rigorosamente falando, isso não seja verdade. Em (a) usamos $\delta = 0$, logo ω_{21} é um múltiplo da taxa de repetição, isto é, $\omega_{21}/2\pi = m f_R$, onde $m = 4 \times 10^6$. Em outras palavras, o modo m está em ressonância com a transição atômica. Isso equivale a dizer que, no domínio do tempo, a sequência de pulsos do trem deixa uma coerência total no sistema atômico que resulta em uma interferência construtiva. Para uma pequena dessintonia de $\delta/2\pi = 10$ MHz, a coerência total passa a resultar em uma interferência parcialmente construtiva. Observe a diminuição de aproximadamente uma ordem de grandeza da população no regime estacionário. Na situação (c) temos $\delta/2\pi = 50$ MHz, ou seja, uma interferência totalmente destrutiva, já que a ressonância atômica se situa exatamente entre dois modos do pente de frequências. E na situação (d) temos $\delta/2\pi = 100$ MHz, o que indica que o sistema atômico volta a estar em ressonância, só que agora com o modo $m + 1$.

Na Fig. 2.5(a) mostramos a evolução temporal de ρ_{22} para campos pulsados com diferentes taxas de repetição (100 MHz e 1 GHz) e para campos contínuos. Na Fig. 2.5(b) temos os

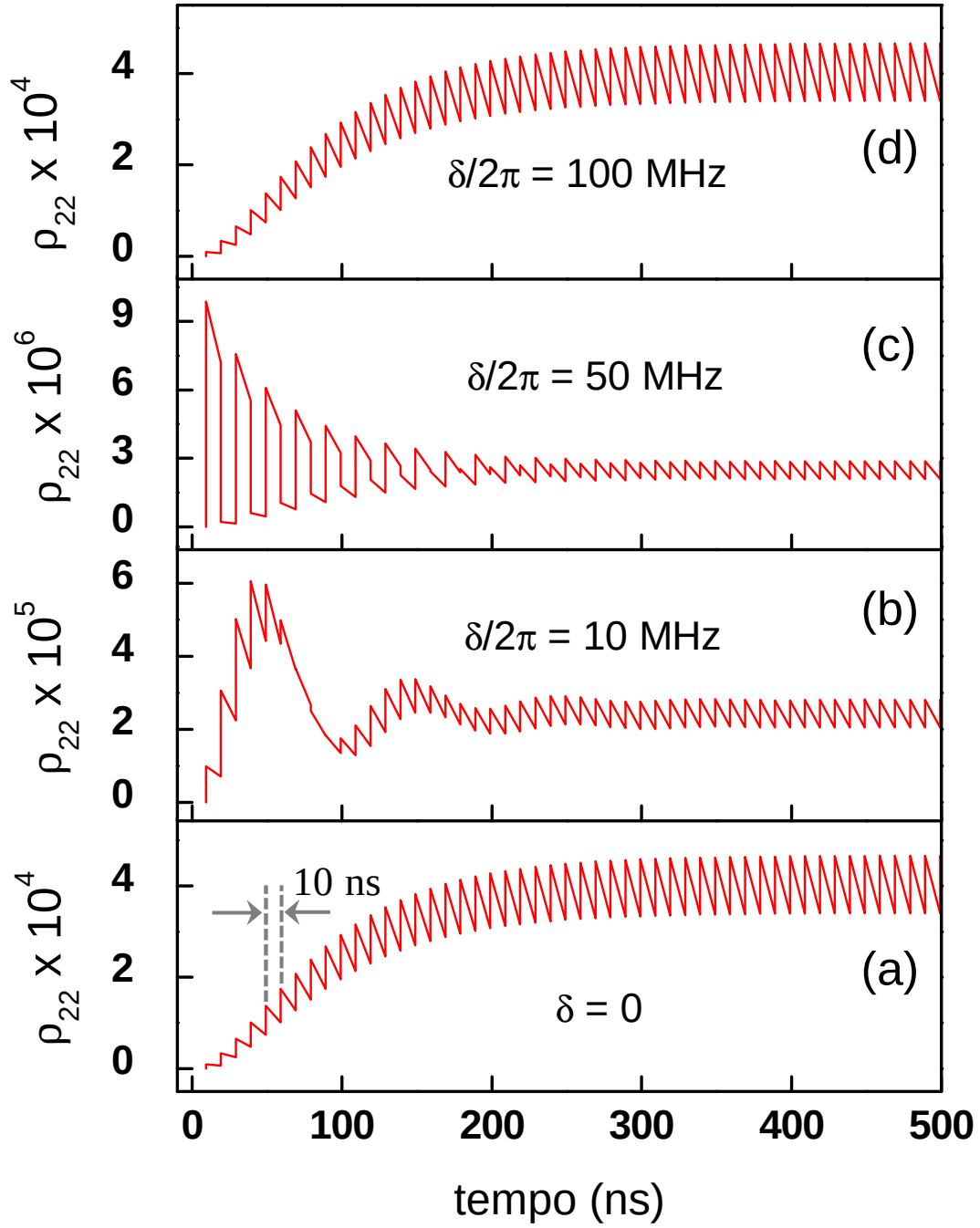


Figura 2.4 Evolução temporal da população p_{22} devido à excitação pela sequência de pulsos do trem. Usamos $f_R = 100$ MHz, $\gamma_{22}/2\pi = 5$ MHz, $\gamma_{12} = \gamma_{22}/2$, $\omega_c/2\pi = 400$ THz e $\omega_{21}/2\pi = 400$ THz + $\delta/2\pi$, onde (a) $\delta = 0$, (b) $\delta/2\pi = 10$ MHz, (c) $\delta/2\pi = 50$ MHz e (d) $\delta/2\pi = 100$ MHz.

detalhes da região destacada de (a). O resultado para o campo contínuo corresponde ao limite $T_R \rightarrow T_p$ do resultado para o campo pulsado. Isso leva a uma das ideias fundamentais desta tese: a interação coerente entre sistemas atômicos e trens de pulsos ultracurtos com alta taxa de repetição pode ser descrita de forma totalmente equivalente à interação coerente de campos contínuos com o mesmo sistema atômico. Isso será discutido novamente no capítulo 4 e será a base dos capítulos 5, 6 e 7.

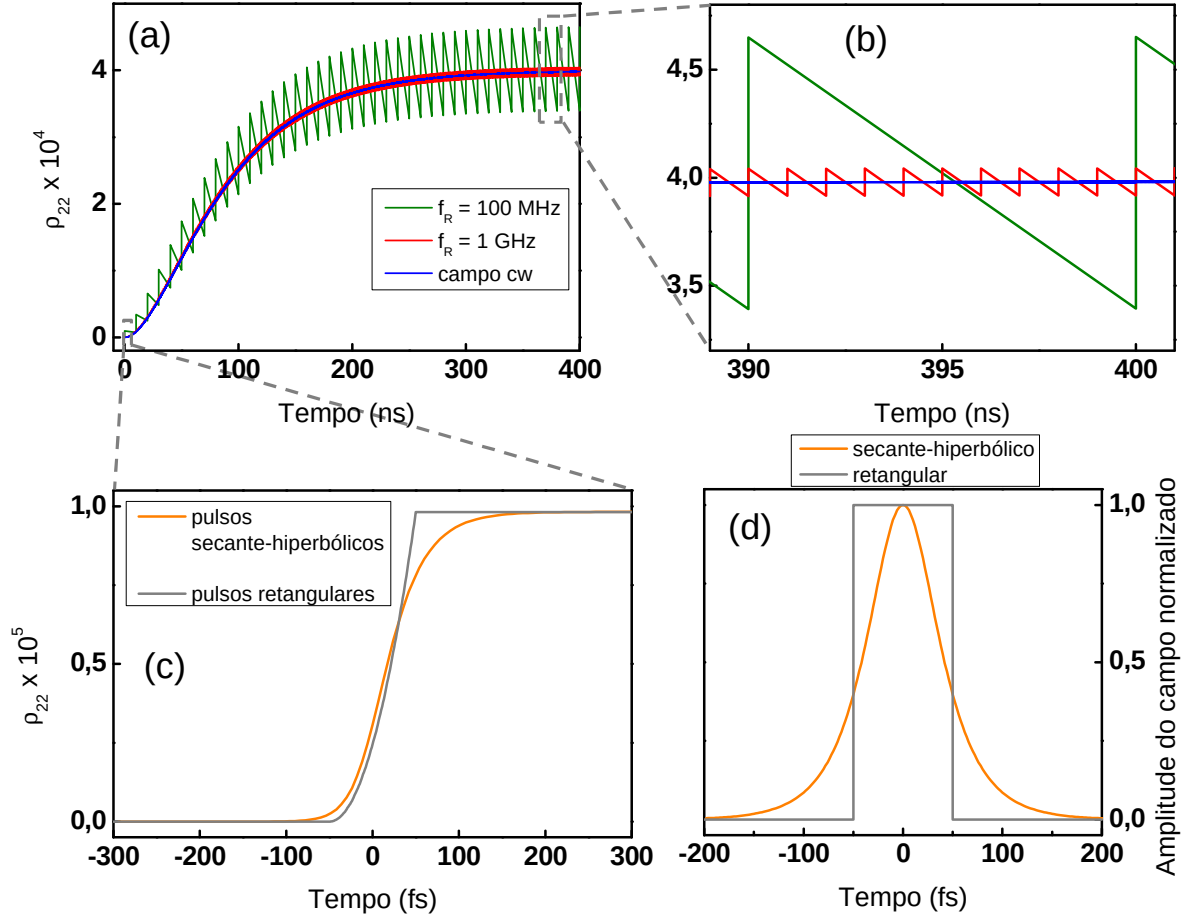


Figura 2.5 (a) Evolução temporal de ρ_{22} para campos pulsados com 100 MHz (curva verde) e 1 GHz (curva vermelha) de taxa de repetição, e para campos cw (curva azul). Os demais parâmetros são iguais aos da Fig. 2.4(a). Em (b) e (c) temos uma ampliação das regiões destacadas de (a). Em (d) temos a forma de onda de dois tipos de pulsos com a mesma área θ : secante hiperbólico e retangular.

A Fig. 2.5(c) mostra a diferença entre as excitações com dois tipos de pulsos, mas com a mesma área θ : o secante hiperbólico, que é mais realista para um laser de Ti:safira [46], e o retangular, que é apenas uma aproximação conveniente. Observe a Fig. 2.5(d). Esses pulsos são descritos matematicamente pelas seguintes equações:

$$E_0(t) = E_0 \operatorname{sech} \left(\frac{1,763t}{T_p} \right) \quad (2.12)$$

e

$$E_0(t) = \begin{cases} E_0, & \text{se } -T_p/2 < t < T_p/2, \\ 0, & \text{caso contrário.} \end{cases} \quad (2.13)$$

A definição da área de um pulso é dada por [25]:

$$\theta = \frac{\mu_{12}}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} E_0(t) dt. \quad (2.14)$$

Embora a forma da excitação seja diferente, a população total excitada por ambos os tipos de pulsos é a mesma. Trabalharemos apenas com pulsos retangulares nesta tese por dois motivos: simplicidade nos cálculos analíticos e velocidade nos cálculos numéricos.

2.2.2 Espectroscopia com a taxa de repetição

Na Fig. 2.6 mostramos a população ρ_{22} em função da taxa de repetição do trem de pulsos, para $t = 1 \mu s$ (regime estacionário) e $f_R = 1 \text{ GHz} + \delta f_R$. Os outros parâmetros são iguais aos da Fig. 2.4(a). Como $\Delta\phi = 0$ ($f_0 = 0$), temos que $\omega_{21}/2\pi = m f_R$, de modo que as ressonâncias para cada modo m do pente de frequências são dadas por

$$f_R = \frac{\omega_{21}}{2\pi m}, \text{ onde } m = 1, 2, 3, \dots \quad (2.15)$$

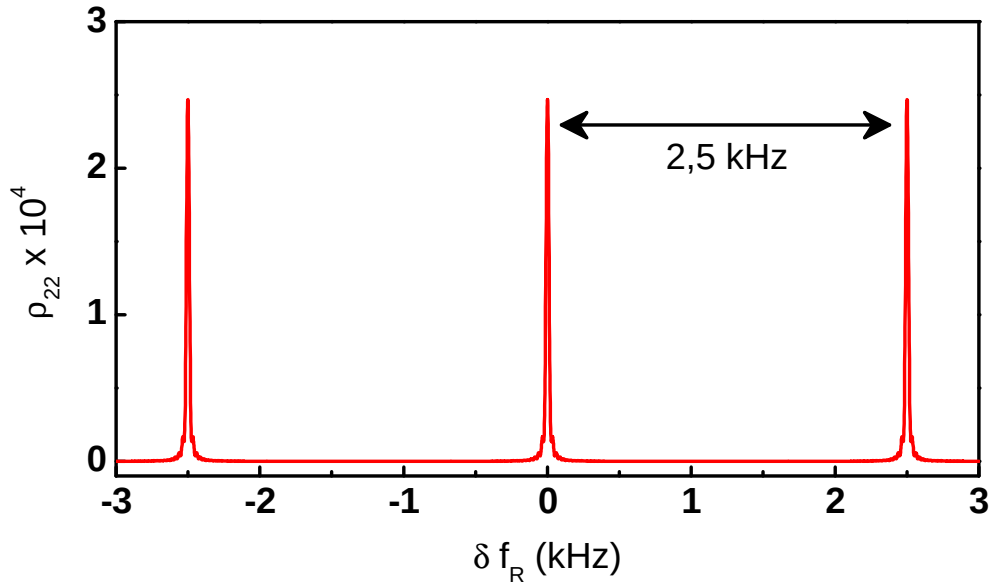


Figura 2.6 População ρ_{22} em função da taxa de repetição do trem de pulsos, para $f_R = 1 \text{ GHz} + \delta f_R$.

Para $\delta f_R = 0$, temos que $m = 4 \times 10^5$ é o modo ressonante. As ressonâncias vizinhas podem ser calculadas rapidamente a partir da derivada de f_R em relação a m :

$$\begin{aligned}\frac{\partial f_R}{\partial m} &= -\frac{\omega_{21}}{2\pi m^2} \\ \Delta f_R &= -\left(\frac{2\pi}{\omega_{21}}\right) f_R^2 \Delta m,\end{aligned}\tag{2.16}$$

onde trabalhamos como se m fosse uma variável contínua e fizemos $\partial \approx \Delta$. Para $\Delta m = 1$ (vizinho mais próximo), temos que $|\Delta f_R| = 2,5$ kHz. Isto é, uma varredura de 2,5 kHz em torno da taxa de repetição de 1 GHz corresponde em uma varredura de 1 GHz na frequência óptica.

2.2.3 Espectroscopia seletiva em velocidade

Em um vapor, devido ao efeito Doppler, cada átomo pertencente a certo grupo de velocidade “vê” as frequências dos modos do pente deslocadas de $\Delta = \mathbf{k}_m \cdot \mathbf{v}$, onde $\mathbf{k}_m$ é o vetor de onda do modo m e $\mathbf{v}$ é a velocidade do átomo. Em um vapor de rubídio interagindo com um trem de pulsos com taxa de repetição de 100 MHz, os átomos entram em ressonância com vários modos do pente de frequências, dado que a largura do perfil Doppler para o Rb, na temperatura ambiente, é da ordem de 500 MHz. Isso pode ser visto na Fig. 2.7(a), onde a população ρ_{22} foi calculada para diferentes grupos de velocidade, considerando um tempo de interação de $t = 1 \mu s$, e depois pesando pelo perfil Doppler:

$$\rho_{22}^D = \rho_{22} \exp\left(-\frac{\Delta^2}{2\Delta_D^2}\right),\tag{2.17}$$

onde usamos $\Delta_D/2\pi = 200$ MHz. Os outros parâmetros são iguais aos da Fig. 2.4(a). Cada pico dessa figura, que tem uma forma de linha lorentziana, corresponde à excitação de um determinado grupo de átomos por um dos modos do pente de frequências. O alargamento por potência observado em (b) é análogo ao observado na Fig. 2.2(b).

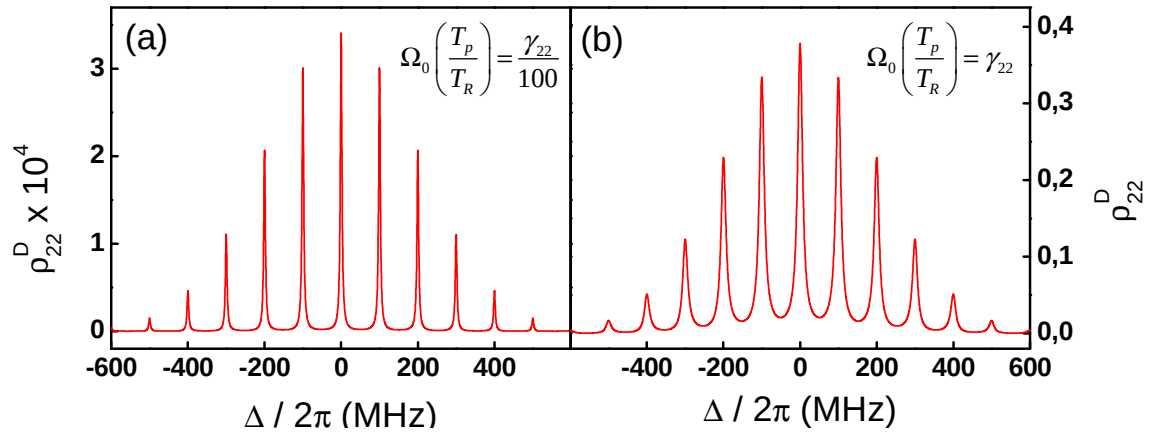


Figura 2.7 População ρ_{22} excitada por um trem de pulsos ultracurtos com taxa repetição de 100 MHz em função da dessintonia dos grupos de velocidade atômicos de um vapor, para dois valores da frequência de Rabi.

A impressão do pente de frequências na distribuição atômica de velocidades

Neste capítulo revisitamos nosso primeiro experimento cujos resultados estão descritos na minha Dissertação de Mestrado [47], os quais envolvem o estudo da “impressão” do pente de frequências de um laser de femtossegundos no perfil Doppler de um vapor atômico de rubídio. O experimento foi feito com altas intensidades em ambos os lasers, o que tornou impraticável um estudo com cálculos analíticos. Dessa forma, todos os resultados apresentados são numéricos, e as equações de Bloch são resolvidas no domínio do tempo.

Apresentaremos um estudo sobre a dependência dos resultados com a densidade dos átomos do vapor, o que significa outro obstáculo à aplicabilidade de uma teoria analítica. Trabalhar com amostras atômicas no regime de baixas densidades simplifica o tratamento teórico dos resultados experimentais. Dentre os trabalhos que se situam dentro desse regime, podemos citar, por exemplo, as medidas de frequência com espectroscopia de alta resolução fazendo uso da interação entre pentes de frequências e átomos frios [48].

A introdução de um segundo laser (de diodo contínuo) de modo a sondar experimentalmente a impressão do pente de frequências no vapor foi feito em uma série de trabalhos de Pichler e colaboradores [33, 34, 35]. Eles trabalharam no regime de baixas intensidades. Nosso trabalho segue a mesma linha do grupo de Pichler, entretanto nossa ênfase está no estudo da dependência do pente de frequências impresso com a intensidade do laser de diodo e com a densidade dos átomos de rubídio do vapor.

A apresentação de alguns resultados do mestrado neste capítulo é motivada (i) por ser um estudo feito com um laser com taxa de repetição da ordem de 100 MHz e (ii) porque todo o tratamento teórico é feito no domínio do tempo.

Para um melhor entendimento da análise teórica, apresentaremos nas seções 3.1 e 3.2 o esquema experimental e os principais resultados.

3.1 Esquema experimental

O esquema experimental está mostrado na Fig. 3.1. O trem de pulsos é gerado por um laser de Ti:safira (modelo *MIRA 900B-Coherent*, emprestado do laboratório do Prof. Anderson Gomes) com pulsos de aproximadamente 150 fs de duração temporal e taxa de repetição de 76 MHz. O laser de diodo, cuja cavidade externa (configuração *Littrow* [7]) e controladores de corrente e temperatura foram construídos em nosso laboratório, possui largura de linha da ordem de 1 MHz. Uma grade de difração junto à cavidade externa possibilita a retroalimentação óptica, o que contribui para o estreitamento da largura de linha do laser. Entretanto, a cavidade externa

também é responsável pela formação dos saltos de modo, o que implica em uma varredura em frequência óptica contínua de no máximo 1 GHz. Essa limitação nos fez partir para o uso do laser de diodo sem cavidade externa, construído por Milton Viana sob a orientação do Prof. Daniel Felinto. Descreveremos esse laser no capítulo 6.

Os feixes dos dois lasers (diodo e fs), com polarizações ortogonais entre si, se superpõem no centro da célula de Rb formando um pequeno ângulo, em uma configuração que pode ser co- ou contra-propagante. A célula de 5 cm de comprimento contém os isótopos do Rb em suas abundâncias naturais, porém nesse capítulo estudamos apenas o ^{87}Rb . Trabalhamos com a célula entre aproximadamente 30 e 80°C, o que corresponde a densidades atômicas entre 10^9 e 10^{12} átomos/cm³. A densidade atômica, para o rubídio, é determinada a partir da pressão de vapor [49] [equações (3.1a) e (3.1b)] e da equação do gás ideal (3.1c):

$$\log_{10} P_v = 4,857 - \frac{4215}{T} \quad (\text{fase sólida}) \quad (3.1a)$$

$$\log_{10} P_v = 4,312 - \frac{4040}{T} \quad (\text{fase líquida}) \quad (3.1b)$$

$$\mathcal{N} = \frac{P_v}{k_B T}, \quad (3.1c)$$

onde $\mathcal{N}$ é a densidade atômica (em átomos/m³), P_v é a pressão de vapor (em unidades de atm), T é a temperatura (em K), e k_B é a constante de Boltzmann.

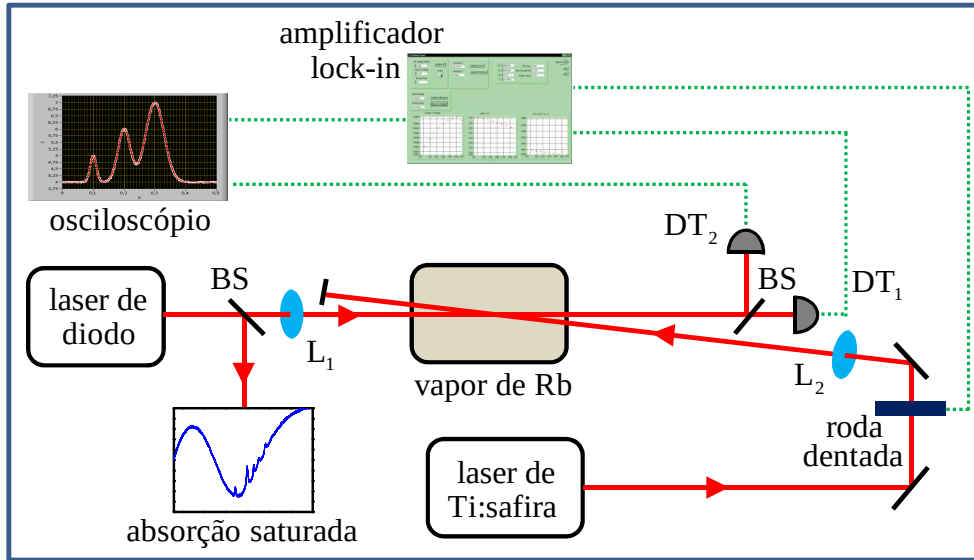


Figura 3.1 Esquema experimental. BS: divisor de feixes (*beam splitter*), DT₁: fotodetector 1, DT₂: fotodetector 2, L₁ e L₂: lentes convergentes.

Os lasers são sintonizados na linha D₂ do ^{87}Rb : $5^2S_{1/2} \rightarrow 5^2P_{3/2}$ (780 nm, ver Fig. B.2 do apêndice B), e possuem potência média máxima de 350 mW (Ti:safira) e 240 μW (diodo). O

feixe do laser de fs é modulado pela roda dentada em 1,8 kHz e focalizado pela lente L_2 em um diâmetro de $120\ \mu\text{m}$ no centro da célula de Rb, o que resulta em um campo elétrico com amplitude de pico de $E_0^{fs} = 4,0 \times 10^7\ \text{V/m}$, que é mantido constante em todas as medidas. O feixe do laser de diodo também é focalizado no centro da célula, com um diâmetro de aproximadamente $100\ \mu\text{m}$, e sua intensidade é controlada através de filtros. Sua frequência é variada em torno da transição em estudo, alargada por efeito Doppler, com uma taxa de 200 MHz/s. Usamos a absorção saturada de uma segunda célula de Rb, à temperatura ambiente, para calibrar a escala de frequência dos nossos resultados. Entraremos em mais detalhes sobre a absorção saturada no capítulo 6.

A aquisição de dados é feita a partir de dois fotodetectores. O sinal do fotodetector DT_1 é enviado a um amplificador *lock-in*, que usa o sinal vindo da roda dentada como referência. O sinal processado pelo *lock-in* é então enviado a um osciloscópio digital. A função do *lock-in* é calcular a diferença entre os sinais de transmissão do laser de diodo na presença ($T_{cw,fs}$) e na ausência (T_{cw}) do laser de fs. Matematicamente, podemos chamar essa variação de

$$\Delta T = T_{cw,fs} - T_{cw}. \quad (3.2)$$

O sinal do fotodetector DT_2 , por outro lado, é enviado diretamente ao osciloscópio, e assim ele representa uma medida direta da transmissão total do diodo depois de passar pela célula. DT_2 serve, portanto, para fixarmos a fase de referência da roda dentada para o sinal em DT_1 .

3.2 Resultados

A impressão do pente de frequências no perfil Doppler do vapor de Rb (obtida com DT_2) está mostrada na Fig. 3.2(a). A variação da transmissão do laser de diodo induzida pelo trem de pulsos do laser de fs está representada em função da frequência do laser de diodo, que está sendo variada entre as transições hiperfinas $F = 1 \rightarrow F' = 0, 1, 2$ [Fig. 3.2(b)]. O zero da escala da frequência é relativo à média entre as frequências de ressonância das três transições: $F = 1 \rightarrow F' = 0, 1, 2$, ponderada pelos seus respectivos momentos de dipolo elétrico. A temperatura da célula está fixa em 31°C e os dois feixes estão se superpondo na configuração contra-propagante. A potência do laser de diodo está em $4\ \mu\text{W}$, o que corresponde a uma amplitude do campo elétrico de $100\ \text{V/m}$. Observe que ΔT oscila entre valores negativos e positivos. Ou seja, dependendo da frequência do laser de diodo, sua transmissão aumenta ou diminui devido à presença do laser de fs. Note também que existe uma leve assimetria em relação ao eixo das frequências. Discutiremos esses dois pontos em boa parte deste capítulo.

As medidas envolvendo a dependência com a potência do laser de diodo estão mostradas na Fig. 3.3, para uma densidade atômica de $\mathcal{N} = 2,2 \times 10^{10}\ \text{átomos/cm}^3$. Nesse caso, usamos a configuração co-propagante. Observamos que a visibilidade das modulações diminui conforme a potência do laser de diodo é aumentada, comportamento esse que está de acordo com os resultados do grupo de Pichler [35].

Investigamos também a dependência do acoplamento dos lasers com a densidade atômica. Observe a Fig. 3.4. Cada linha representa uma temperatura (isto é, uma densidade) da célula de Rb. A configuração é contra-propagante e a potência do laser de diodo está fixa em $4\ \mu\text{W}$. Na

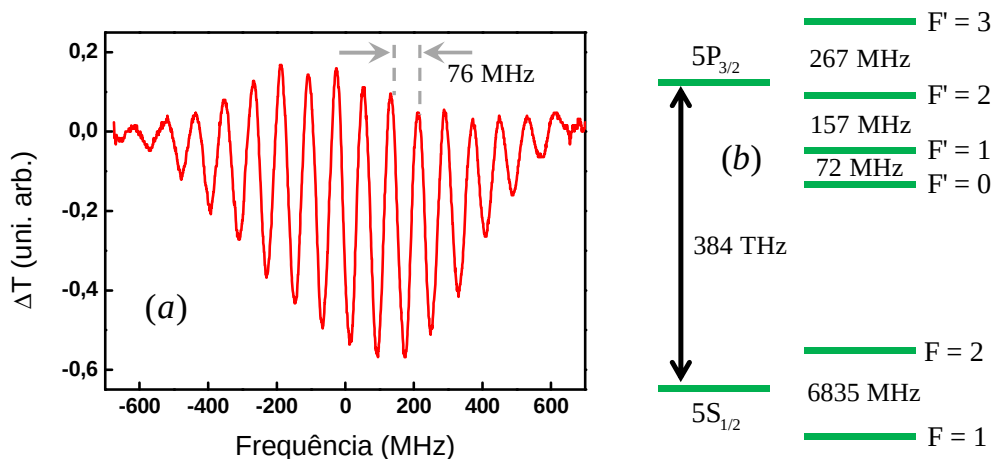


Figura 3.2 (a) Variação da transmissão do laser de diodo em função da sua frequência, devido à presença do laser de fs. O laser de diodo está sintonizado em torno de $F = 1 \rightarrow F' = 0, 1, 2$ e a densidade dos átomos do vapor vale $2,2 \times 10^{10}$ átomos/cm³. A configuração é contra-propagante. (b) Diagrama dos níveis de interesse do ^{87}Rb , linha D_2 .

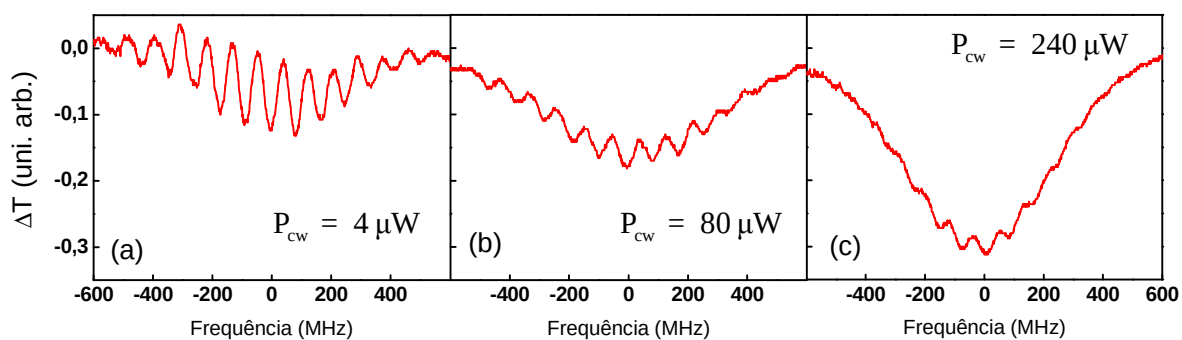


Figura 3.3 Variação da transmissão do laser de diodo em função da sua frequência para três valores de potência: (a) $4 \mu\text{W}$, (b) $80 \mu\text{W}$ e (c) $240 \mu\text{W}$. A configuração é co-propagante.

coluna da esquerda está representada a variação da transmissão do laser de diodo (ΔT , DT_1), enquanto que na coluna da direita está representada a transmissão direta ($T_{cw,fs}$, DT_2) do laser de diodo. Os dados referentes aos dois quadros de cada linha são obtidos simultaneamente no experimento. O sinal do DT_2 mostra a forte absorção do laser de diodo para altas temperaturas.

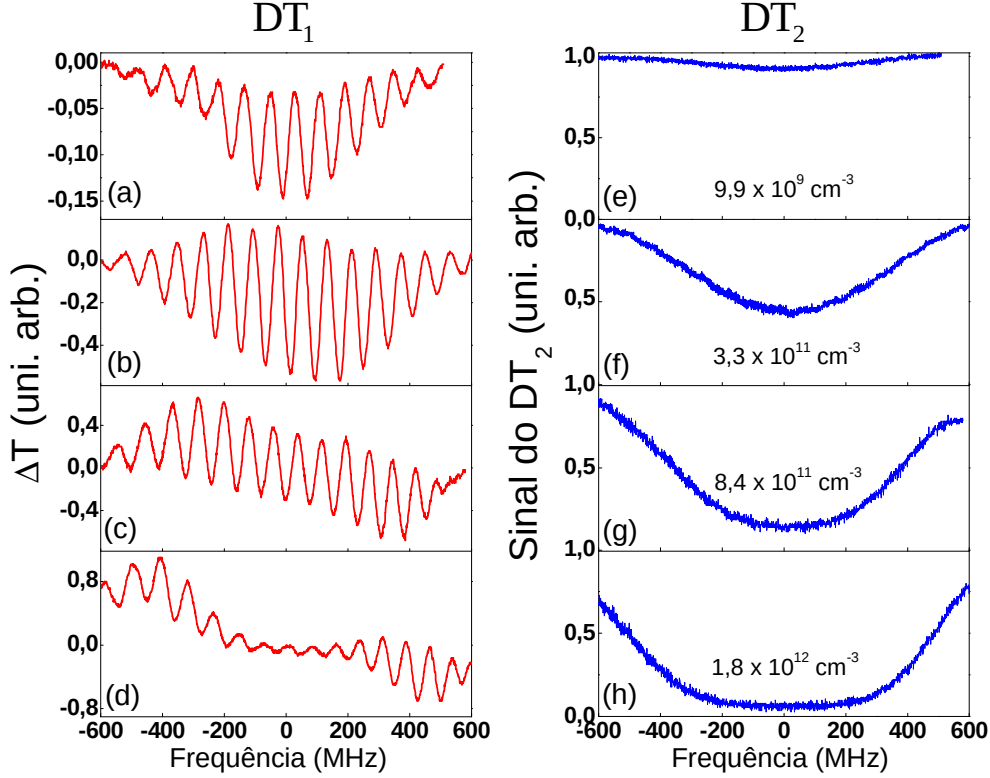


Figura 3.4 (a)-(d) Variação da transmissão do laser de diodo (ΔT) em função da sua frequência. (e)-(h) Transmissão normalizada do laser de diodo ($T_{cw,fs}$) através da célula. A potência do laser de diodo está fixa em $4 \mu W$. As densidades atômicas são (a,e) $9,9 \times 10^9$ átomos/cm³, (b,f) $3,3 \times 10^{11}$ átomos/cm³, (c,g) $8,4 \times 10^{11}$ átomos/cm³, e (d,h) $1,8 \times 10^{12}$ átomos/cm³.

Podemos ver que a variação da transmissão do laser de diodo na temperatura ambiente [Fig. 3.4(a)] é sempre negativa. Ou seja, a presença do laser de fs sempre tende a aumentar a absorção do laser de diodo, para qualquer frequência em torno das ressonâncias hiperfinas estudadas. Para densidades mais altas [(b) e (c)], entretanto, a assimetria da curva começa a se tornar cada vez mais acentuada, de forma que podemos observar duas regiões distintas: uma em que ΔT assume apenas valores positivos e outra em que ΔT assume apenas valores negativos. Em (d), a absorção do laser de diodo é tão alta que na região central do perfil Doppler praticamente não há transmissão através da célula.

Na Fig. 3.5 mostramos parte do pente de frequências impresso quando o laser de diodo está sintonizado em duas linhas Doppler do ^{87}Rb : (a) $F = 1 \rightarrow F' = 0, 1, 2$ e (b) $F = 2 \rightarrow F' = 1, 2, 3$. O objetivo é entender as assimetrias presentes nessas linhas Doppler que, como podemos ver, possuem comportamentos contrários: $\Delta T > 0$ para uma região de frequência implica em $\Delta T < 0$

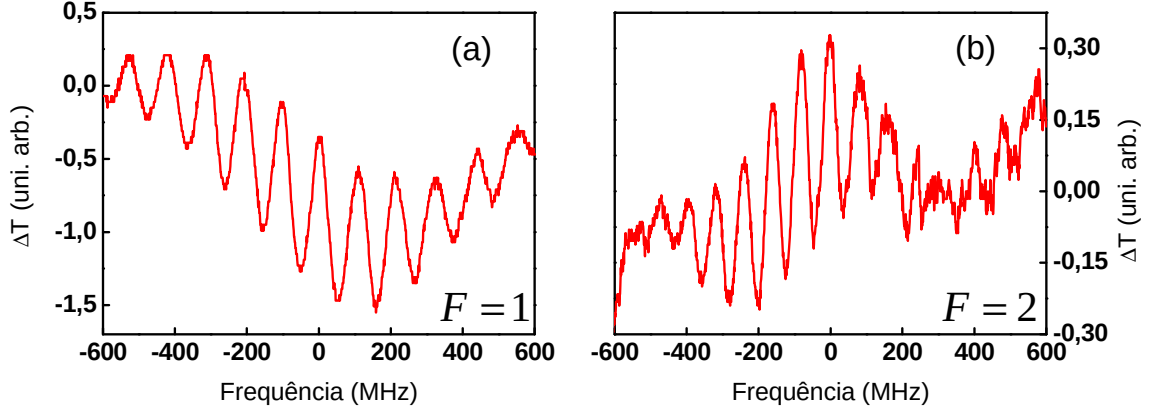


Figura 3.5 Variação da transmissão do laser de diodo em função da sua frequência. O laser de diodo está sintonizado em torno da linha Doppler (a) $F = 1 \rightarrow F' = 0, 1, 2$ e (b) $F = 2 \rightarrow F' = 1, 2, 3$. A densidade atômica está fixa em $1,8 \times 10^{10}$ átomos/cm³.

na outra região, e vice-versa.

3.3 Teoria

Para explicar os aspectos fundamentais que estão por trás dos resultados descritos na seção anterior, consideramos um modelo que prima pela simplicidade. Suponha que o átomo de Rb é um sistema de quatro níveis, sendo dois estados fundamentais e dois estados excitados. Veja a Fig. 3.6. Os dois estados fundamentais, $|1\rangle$ e $|2\rangle$, correspondem aos dois níveis hiperfinos do estado $5S_{1/2}$. Eles são essenciais no modelo, pois permitem descrever as várias condições de bombeio óptico envolvendo os lasers de diodo e de fs. Os dois estados excitados, $|3\rangle$ e $|4\rangle$, representam os diferentes níveis hiperfino do estado $5P_{3/2}$, e são introduzidos devido ao fato de que as polarizações dos lasers são ortogonais entre si. Assim, os lasers podem interagir com os átomos através do mesmo estado fundamental, mas eles não estão conectados com as mesmas transições.

Os campos elétricos (parte escalar) são descritos pelas seguintes equações:

$$E_{cw}(t) = E_0^{cw} e^{i\omega_{cw}t} \quad (3.3a)$$

$$E_{fs}(t) = E_0^{fs}(t) e^{i\omega_c t}, \quad (3.3b)$$

onde E_0 são as funções amplitude dos campos, que para o caso do laser de diodo (cw) é uma constante, e para o laser de fs,

$$E_0^{fs}(t) = \sum_{n=0}^{N-1} E_0(t - nT_R) e^{in(\Delta\phi - \omega_c T_R)}, \quad (3.4)$$

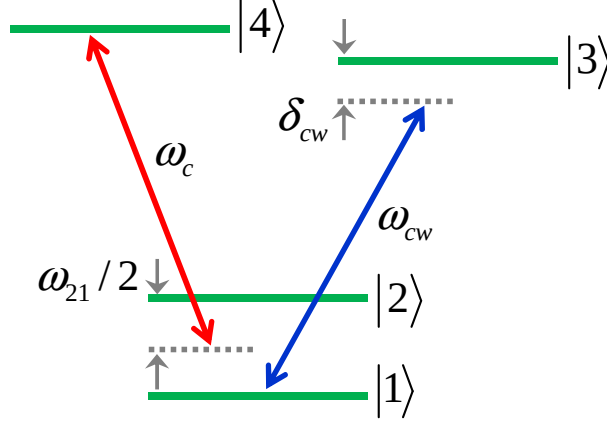


Figura 3.6 Modelo teórico de um sistema atômico de quatro níveis e das interações átomo-campo.

onde $E_0(t)$ é a forma da envoltória de um único pulso [ver Eq. (1.1)], onde trabalhamos na aproximação de pulsos retangulares [Eq. (2.13)].

O Hamiltoniano da interação átomo-campo é dado por

$$\hat{H}_{int} = -\mu_{13}E_{cw}(t)|1\rangle\langle 3| - \mu_{14}E_{fs}(t)|1\rangle\langle 4| - \mu_{24}E_{fs}(t)|2\rangle\langle 4| + \text{h.c.}, \quad (3.5)$$

onde h.c. indica o Hamiltoniano conjugado e μ_{ij} é o momento de dipolo da transição $|i\rangle \rightarrow |j\rangle$.

As frequências de Rabi são dadas por

$$\Omega_{13} = \frac{\mu_{13}E_0^{cw}}{\hbar} \quad (3.6a)$$

$$\Omega_{14}(t) = \frac{\mu_{14}E_0^{fs}(t)}{\hbar} \quad (3.6b)$$

$$\Omega_{24}(t) = \frac{\mu_{24}E_0^{fs}(t)}{\hbar}, \quad (3.6c)$$

de forma que podemos escrever as equações de Bloch, já na aproximação de onda girante, como:

$$\dot{\rho}_{11} = (-i\Omega_{13}^* \sigma_{13} - i\Omega_{14}^* \sigma_{14} + c.c.) + \gamma_{44} \rho_{44}/2 + \gamma_{33} \rho_{33} (1 - \Psi/2) - \Gamma(\rho_{11} - \rho_{11}^0) \quad (3.7a)$$

$$\dot{\rho}_{22} = (-i\Omega_{24}^* \sigma_{24} + c.c.) + \gamma_{44} \rho_{44}/2 + \gamma_{33} \rho_{33} \Psi/2 - \Gamma(\rho_{22} - \rho_{22}^0) \quad (3.7b)$$

$$\dot{\rho}_{33} = (-i\Omega_{13} \sigma_{31} + c.c.) - \gamma_{33} \rho_{33} - \Gamma \rho_{33} \quad (3.7c)$$

$$\dot{\rho}_{44} = (-i\Omega_{14} \sigma_{41} - i\Omega_{24} \sigma_{42} + c.c.) - \gamma_{44} \rho_{44} - \Gamma \rho_{44} \quad (3.7d)$$

$$\dot{\sigma}_{12} = i\omega_{21} \sigma_{12} + i\Omega_{13} \sigma_{32} + i\Omega_{14} \sigma_{42} - i\Omega_{24}^* \sigma_{14} - \Gamma \sigma_{12} \quad (3.7e)$$

$$\dot{\sigma}_{13} = i\delta_{cw} \sigma_{13} + i\Omega_{13}(\rho_{33} - \rho_{11}) + i\Omega_{14} \sigma_{43} - (\gamma_{13} + \Gamma) \sigma_{13} \quad (3.7f)$$

$$\dot{\sigma}_{14} = i(\delta_{fs} + \omega_{21}/2) \sigma_{14} + i\Omega_{13} \sigma_{34} + i\Omega_{14}(\rho_{44} - \rho_{11}) - i\Omega_{24} \sigma_{12} - (\gamma_{14} + \Gamma) \sigma_{14} \quad (3.7g)$$

$$\dot{\sigma}_{23} = i(\delta_{cw} - \omega_{21}) \sigma_{23} - i\Omega_{13} \sigma_{21} + i\Omega_{24} \sigma_{43} - (\gamma_{23} + \Gamma) \sigma_{23} \quad (3.7h)$$

$$\dot{\sigma}_{24} = i(\delta_{fs} - \omega_{21}/2) \sigma_{24} - i\Omega_{14} \sigma_{21} + i\Omega_{24}(\rho_{44} - \rho_{22}) - (\gamma_{24} + \Gamma) \sigma_{24} \quad (3.7i)$$

$$\dot{\sigma}_{34} = i(\delta_{fs} - \delta_{cw} + \omega_{21}/2) \sigma_{34} + i\Omega_{13}^* \sigma_{14} - i\Omega_{14} \sigma_{31} - i\Omega_{24} \sigma_{32} - (\gamma_{13} + \Gamma) \sigma_{34}, \quad (3.7j)$$

onde

$$\omega_{21} = \frac{E_2 - E_1}{\hbar}, \quad (3.8)$$

sendo E_i a energia do estado $|i\rangle$. ρ_{ij} representa o elemento ij da matriz densidade, e γ_{ij} representa sua taxa de relaxação. O parâmetro Ψ determina se a transição $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ feita pelo laser cw é aberta ($\Psi = 1$) ou fechada ($\Psi = 0$). A transição é aberta se os átomos no estado $|3\rangle$ podem decair para os estados $|1\rangle$ e $|2\rangle$, e é fechada se eles decaem apenas para o estado $|1\rangle$. A distinção entre esses dois tipos de transições é de fundamental importância quando existe um bombeio óptico intenso, o que é o caso de todos os resultados desse capítulo e também do capítulo 7.

As coerências estão representadas em termos de suas envoltórias lentas:

$$\sigma_{12} = \rho_{12} \quad (3.9a)$$

$$\sigma_{k3} = \rho_{k3} e^{-i\omega_{cw}t} \quad (3.9b)$$

$$\sigma_{k4} = \rho_{k4} e^{-i\omega_c t} \quad (3.9c)$$

$$\sigma_{34} = \rho_{34} e^{-i(\omega_c - \omega_{cw})t}, \quad (3.9d)$$

onde $k = 1, 2$, e as dessintonias estão definidas por

$$\delta_{cw} = \omega_{31} - \omega_{cw} \quad (3.10a)$$

$$\delta_{fs} = \omega_{41} - \frac{\omega_{21}}{2} - \omega_c. \quad (3.10b)$$

Observe que na definição da Eq. (3.10b), estamos dizendo que o valor da frequência da onda portadora do laser de fs varia em torno de $\omega_c = \omega_{41} - \omega_{21}/2$. Nosso espectrômetro não tem

precisão suficiente para nos fornecer esse valor com essa resolução (centenas de MHz). Como nos cálculos temos que colocar algum valor para ω_c , então usamos a definição da Eq. (3.10b), que é arbitrária. Analisando esse problema no domínio das frequências, devemos lembrar, porém, que ω_c é apenas um dos modos do pente de frequências [38], e o espectro do trem de pulsos cobre milhares deles, de forma que o sistema atômico pode estar interagindo com os seus modos vizinhos. O que queremos dizer é que para os resultados descritos nesse capítulo, conhecer o valor de ω_c é irrelevante. Tampouco sabemos quais foram os modos participantes da interação. Resultados com maior precisão serão discutidos no capítulo 7, onde usamos um analisador de espectro com resolução que nos permite saber exatamente os modos que estão em ressonância com os átomos do vapor.

Usamos os seguintes parâmetros em nossos cálculos numéricos: $T_p = 150$ fs para a largura temporal de um pulso, $T_R = 13$ ns para o período de repetição ($1/T_R \approx 76,9$ MHz) e $\Delta\phi = 0$ ($f_0 = 0$). Desconhecemos o valor da frequência de *off-set* desse laser, de forma que essa é outra arbitrariedade. Porém, como já argumentado no parágrafo anterior, não estamos interessados em saber os modos ressonantes do pente de frequências, de forma que conhecer o valor de $\Delta\phi$ também é irrelevante aqui. Os tempos de vida usados para os estados envolvidos foram $T_{33} = T_{44} = 26,2$ ns e $T_{13} = T_{14} = T_{23} = T_{24} = T_{34} = 2T_{44} = 52,4$ ns ($\gamma_{ij} = 1/T_{ij}$) [50]. A separação em frequência entre os estados fundamentais vale $\omega_{21}/2\pi = 6835$ MHz. Para um feixe com diâmetro de ≈ 100 μm , consideramos um tempo de interação de 400 ns, o que corresponde a uma taxa de relaxação de $\Gamma \approx 2\pi \times 400$ kHz.

Também consideramos o efeito Doppler devido à interação com os átomos do vapor. Usamos $\Delta_D/2\pi = 200$ MHz [ver Eq. (2.17)]. Assim, as dessintonias, com a correção do deslocamento Doppler (Δ), são dadas por

$$\delta_{cw} = \delta_{cw}^0 - \Delta \quad (3.11a)$$

$$\delta_{fs} = \delta_{fs}^0 \pm \Delta, \quad (3.11b)$$

onde δ^0 representa as dessintonias para o grupo de átomos com velocidade nula na direção dos feixes. O sinal $\pm$ indica a diferença entre as configurações co- e contra-propagante. Como a frequência do laser de fs está fixa em todos os resultados, então $\delta_{fs}^0 = 0$.

A evolução temporal dos elementos da matriz densidade é obtida através da solução das equações diferenciais (3.7) em todas as ordens dos campos. Consideramos o trem de pulsos interagindo com os átomos inicialmente com populações igualmente divididas entre os dois estados fundamentais. Como aproximação, usamos um momento de dipolo médio para todos os acoplamentos átomo-campo: $\mu_{13} = \mu_{14} = \mu_{24} = 1 \times 10^{-29}$ C.m. Integramos as equações de Bloch numericamente em um programa escrito em C++ usando o algoritmo de Runge-Kutta com passo adaptável [45], com uma lógica semelhante à descrita na Fig. 2.3. A diferença é que o cálculo aqui é totalmente numérico, visto que, na ausência dos pulsos do laser de fs, ainda existe o laser cw com alta intensidade. A integração na presença dos pulsos na verdade é a parte mais rápida do programa, visto que precisamos integrar apenas em centenas de femtossegundos. A integração no intervalo entre os pulsos, entretanto, é demorada devido ao tamanho da janela temporal (13 ns). Dessa forma, todos esses resultados numéricos levaram entre várias

horas e alguns dias para serem efetuados em um computador com processador *Core 2 Quad* versão *Extreme*, usado na época.

Para um *ensemble* de átomos, a absorção é proporcional à parte imaginária da polarização, que no nosso caso é proporcional à parte imaginária da coerência entre os estados $|1\rangle$ e $|3\rangle$ ($\text{Im}\sigma_{13}$) excitada pelo laser de diodo. Como medimos a variação da transmissão do laser de diodo induzida pela sequência de pulsos do trem, então calculamos

$$\Delta\text{Im}\sigma_{13} = -(\text{Im}\sigma_{13}^{cw, fs} - \text{Im}\sigma_{13}^{cw}), \quad (3.12)$$

onde o símbolo Im representa a parte imaginária.

As coerências $\sigma_{13}^{cw, fs}$ e σ_{13}^{cw} são integradas até um tempo $t = 1,5 \mu\text{s}$, que é quando o sistema já atingiu o estado estacionário. Nos cálculos levamos em conta apenas os grupos de átomos que estão em ressonância com a frequência do campo cw, isto é, fizemos $\Delta = \delta_{cw}$. O resultado final é então pesado pelo perfil Doppler $\exp(-\Delta^2/2\Delta_D^2)$.

Na Fig. 3.7 mostramos $\Delta\text{Im}\sigma_{13}$ em função da frequência do laser de diodo, onde consideramos uma transição aberta para Ω_{13} . Usamos para a amplitude de pico do campo elétrico do laser de fs (a) $E_{fs} = 4 \times 10^5 \text{ V/m}$ e (b) $E_{fs} = 4 \times 10^7 \text{ V/m}$. O campo do laser de diodo foi mantido fixo em $E_{cw} = 0,04 \text{ V/m}$. Isso corresponde às seguintes frequências de Rabi por modo:

$$\Omega_{cw} = \frac{\gamma_{33}}{10000} \quad (3.13a)$$

$$\Omega_m = \frac{\gamma_{44}}{100} \quad (a) \quad (3.13b)$$

$$\Omega_m = \gamma_{44} \quad (b), \quad (3.13c)$$

onde usamos $\Omega_{13} \equiv \Omega_{cw}$ e $\Omega_{14}^m = \Omega_{24}^m \equiv \Omega_m$.

Para baixas intensidades do laser de fs [Fig. 3.7(a)], claramente observamos uma transferência de população seletiva em velocidades [33] entre os dois estados fundamentais, induzida pela presença do pente de frequências. Como o campo cw interage apenas com o estado $|1\rangle$, sua absorção aumenta ou diminui dependendo da quantidade de átomos que esse estado possui. Isto é, para um dado grupo de átomos com certa velocidade que está em ressonância com um dos modos do pente na transição $|1\rangle \rightarrow |4\rangle$, a população do estado $|1\rangle$ diminui e valores positivos de $\Delta\text{Im}\sigma_{13}$ são obtidos. Por outro lado, para grupos de átomos que estão em ressonância com um dos modos do pente na transição $|2\rangle \rightarrow |4\rangle$, a população de $|2\rangle$ é transferida para $|1\rangle$ por bombeio óptico, o que aumenta a absorção do campo cw levando a valores negativos de $\Delta\text{Im}\sigma_{13}$. Existe uma diferença de 11 MHz [Fig. 3.7(c)] entre dois grupos de átomos, mais próximos, que têm sua absorção aumentada ou diminuída pelo campo cw. Supondo que o grupo de átomos com velocidade nula na direção dos feixes está em ressonância com a transição $|1\rangle \rightarrow |4\rangle$ para um modo m [Fig. 3.7(d)], então deve existir outro grupo de átomos que está em ressonância com a transição $|1\rangle \rightarrow |4\rangle$ para um modo $m - 89$, porque

$$\frac{\omega_{21}}{2\pi} \approx 89 \times f_R - 11 \text{ MHz}. \quad (3.14)$$

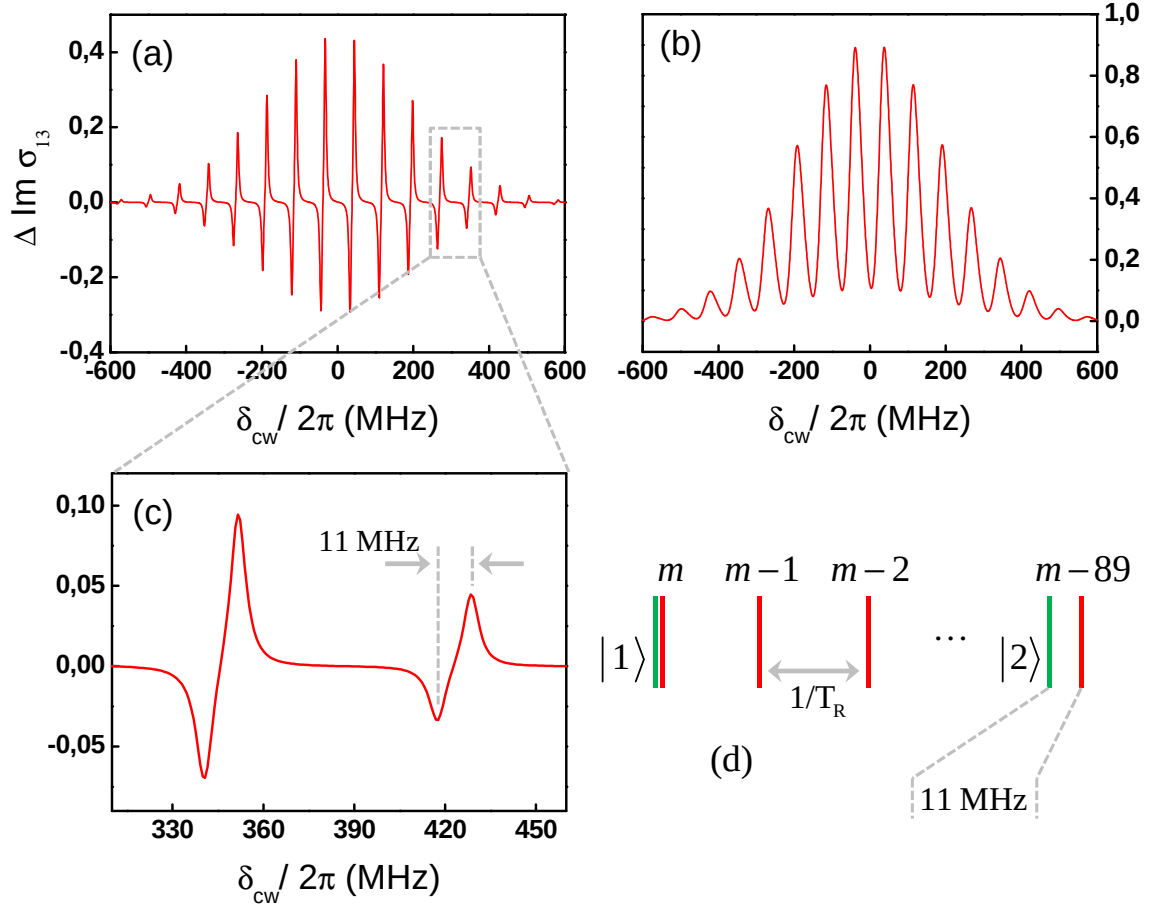


Figura 3.7 Variação da parte imaginária da coerência ($\Delta \text{Im} \sigma_{13}$) em função da dessintonia do campo cw (δ_{cw}), para dois valores distintos da frequência de Rabi por modo do campo pulsado: (a) $\Omega_m = \gamma_{44}/100$ e (b) $\Omega_m = \gamma_{44}$, com a frequência de Rabi do campo cw fixa em $\Omega_{cw} = \gamma_{33}/10000$. Em (c) mostramos os detalhes da região destacada de (a). Em (d) temos a representação dos modos entre as transições $|1\rangle \rightarrow |4\rangle$ e $|2\rangle \rightarrow |4\rangle$.

Quando a intensidade do laser de fs aumenta [Fig. 3.7(b)], continuamos a ver a impressão do pente de frequências no perfil Doppler do vapor, mas agora o bombeio óptico seletivo em velocidades é prejudicado devido ao alargamento por potência da transição induzida pelos modos do pente. Em outras palavras, isso acontece quando a largura de linha supera ou é da ordem de 11 MHz. Assim, $\Delta \text{Im}\sigma_{13}$ é sempre positiva devido à maior transferência da população para o estado excitado $|4\rangle$.

3.3.1 Variação com a potência do laser cw

Investigamos também a dependência de $\Delta \text{Im}\sigma_{13}$ com a intensidade do campo cw. Para o caso de baixas intensidades, a variação percentual de população é mostrada na Fig. 3.8 para ambos os estados fundamentais, $\Delta\rho_{11}$ e $\Delta\rho_{22}$, quando a razão entre as frequências de Rabi por modo do laser cw e do laser de fs é ligeiramente menor ou maior do que 1. Nesta figura a frequência de Rabi por modo do laser de fs está fixa em $\gamma_{44}/100$ e o campos elétrico do laser de diodo é: $E_0^{cw} = 4 \text{ V/m}$ [$\Omega_{cw} = 0,010\gamma_{33}$, figuras 3.8(a) e (b)] e $E_0^{cw} = 5 \text{ V/m}$ [$\Omega_{cw} = 0,012\gamma_{33}$, figuras 3.8(c) e (d)], o que corresponde às razões indicadas na figura. Podemos ver que a população do estado $|1\rangle$ pode aumentar ou diminuir dependendo da relação entre as frequências de Rabi, de modo que o feixe mais forte domina o bombeio óptico. Para observar esta competição entre os dois feixes, consideramos um grupo de velocidades cujos átomos estão em ressonância simultânea com o campo cw na transição $|1\rangle \rightarrow |4\rangle$ (aberta) e com um dos modos do pente na transição $|2\rangle \rightarrow |4\rangle$.

Na Ref. [51] ao invés de utilizarmos como parâmetro a frequência de Rabi, comparamos a área dos campos, definida pela integral

$$\theta = \frac{\mu_{ij}}{\hbar} \int_0^{T_R} E_0(t) dt, \quad (3.15)$$

onde E_0 pode ser tanto a envoltória de um dos pulsos do trem como a amplitude de campo do laser cw. Apesar dessa forma equivalente de comparar a força do acoplamento entre os dois campos ser válida, descrever a acumulação coerente em termos do parâmetro θ não é bom por uma razão principal: *a coerência total deixada nos átomos pelo campo depende de toda a sequência de pulsos do trem, e não de um único pulso*. Dois trens de pulsos com mesma área, mas com taxas de repetições diferentes, implicam em uma dinâmica bem diferente quando interagindo com átomos. Um parâmetro melhor seria a área total dos N pulsos do trem. Além disso, a interpretação dos resultados em termos dos modos do pente (domínio da frequência) é geralmente mais simples, e a frequência de Rabi por modo permite uma comparação direta com os resultados da interação de campos cw com trens de pulsos. Voltaremos a essa ideia no capítulo 4.

A Fig. 3.9 mostra a população do estado excitado $|4\rangle$ em função dos grupos de átomos Δ , com ambos os campos fixos em frequência. As frequências de Rabi por modo são $\Omega_{cw} = 2,5\gamma_{33}$ e $\Omega_m = \gamma_{44}/100$. A distribuição dos grupos de velocidade, em torno de $\Delta = 0$, está mostrada para três condições: (a) sem a presença do campo cw, (b) com a presença do campo cw em uma transição fechada e (c) com a presença do campo cw em uma transição aberta. A frequência do campo cw está fixa em $\omega_{cw} = \omega_{31}$, isto é, $\delta_{cw}^0 = 0$, e ρ_{44} está pesado pelo perfil Doppler. Como descrito antes, a estrutura periódica de dois picos observada para baixas intensidades do

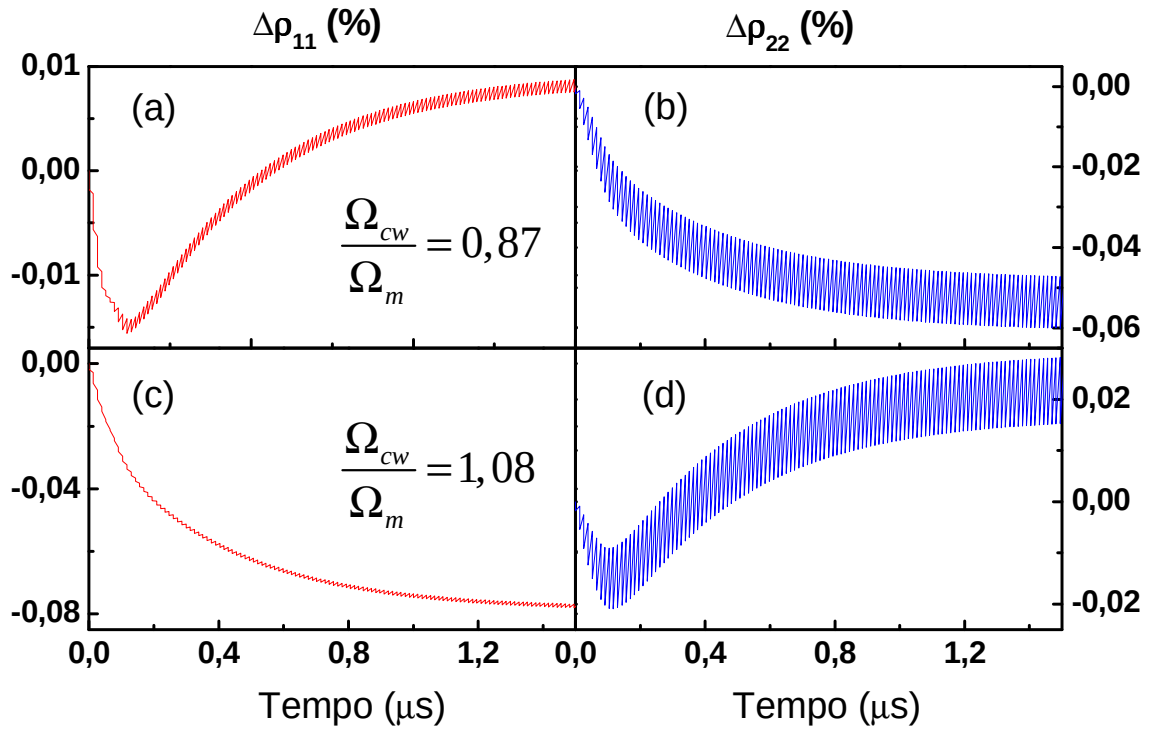


Figura 3.8 Evolução temporal da variação percentual das populações para $\Delta\rho_{11}$ [(a) e (c)] e $\Delta\rho_{22}$ [(b) e (d)], quando a razão entre as frequências de Rabi é < 1 [(a) e (b)] e > 1 [(c) e (d)]. As curvas foram obtidas para uma transição aberta do campo cw e para um grupo de átomos que está em ressonância simultânea com os dois campos.

laser de fs [como na Fig. 3.7(a)] é consequência das duas condições de ressonância, $|1\rangle \rightarrow |4\rangle$ e $|2\rangle \rightarrow |4\rangle$, com diferentes modos do pente de frequências. Para uma intensidade do laser cw que corresponde a uma amplitude de campo de $E_0^{cw} = 1000$ V/m, podemos observar os vários grupos de átomos que ainda são sensíveis aos modos do pente. Entretanto, o efeito Stark na transição atômica $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$, devido à alta intensidade do campo cw, desloca dentro do perfil Doppler a impressão dos modos do pente que estão em ressonância com a transição $|1\rangle \rightarrow |4\rangle$, como mostrado nas linhas tracejadas da Fig. 3.9. Notamos também que os modos do pente em ressonância com a transição $|2\rangle \rightarrow |4\rangle$ (pico esquerdo de cada par de picos) não são deslocados, pois esses dois estados não estão conectados com o campo cw. Seguindo as linhas tracejadas na Fig. 3.9 claramente vemos que os grupos de átomos indicados estarão em ressonância ou não com os modos do pente de frequências dependendo da intensidade do campo cw. Isso significa que efeitos acumulativos nos átomos com essas velocidades específicas serão destruídos devido ao efeito Stark na transição atômica. Por outro lado, como mostrado na figura, haverá outros grupos de átomos que passarão das condições de interferência destrutiva para construtiva, dependendo do deslocamento Stark.

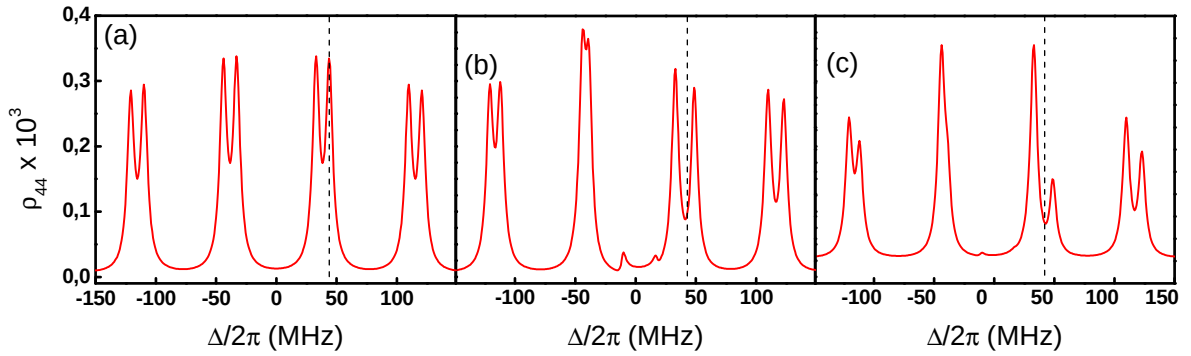


Figura 3.9 População ρ_{44} para diferentes grupos de velocidade dos átomos, pesado pelo perfil Doppler e com $\Omega_m = \gamma_{44}/100$: (a) sem o campo cw, e com o campo cw em uma transição (b) fechada e (c) aberta. A dessintonia do campo cw está fixa em $\delta_{cw} = 0$. As linhas tracejadas indicam os grupos de átomos que mudaram de uma condição de interferência construtiva para destrutiva devido ao efeito Stark.

Uma comparação de $\Delta \text{Im}\sigma_{13}$ entre a transição $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ excitada pelo campo cw aberta ou fechada, é mostrada na Fig. 3.10. A variação da transmissão do campo cw induzida pela presença do pente de frequências foi calculada para $\Omega_m = \gamma_{44}$ fixo, mas com a frequência de Rabi do campo cw variando por uma ordem de magnitude: de $\Omega_{cw} = \gamma_{33}/10$ ($E_0^{cw} = 40$ V/m) [(a)-(b)] para $\Omega_{cw} = \gamma_{33}$ ($E_0^{cw} = 400$ V/m) [(c)-(d)]. Em primeiro lugar, é importante notar que a curva na Fig. 3.10(a) foi obtida para os mesmos parâmetros usados na Fig. 3.7, exceto para a frequência de Rabi do campo cw, que é 3 ordens de magnitude maior. Para levar em conta efeitos como alargamento por potência e efeito Stark, devido à alta intensidade do campo cw, as curvas da Fig. 3.10 foram obtidas, para cada dessintonia δ_{cw} do campo cw, integrando $\Delta \text{Im}\sigma_{13}$ sobre a contribuição de todos os grupos de átomos dentro do perfil Doppler. Matematicamente,

$$\Delta \text{Im}\sigma_{13}(\delta_{cw}) = \frac{1}{(2\pi\Delta_D^2)^{1/2}} \int_{-\infty}^{\infty} \Delta \text{Im}\sigma_{13}(\delta_{cw}, \Delta) e^{-\Delta^2/2\Delta_D^2} d\Delta. \quad (3.16)$$

Para baixas intensidades do campo cw, a parte não nula da integral se limita a largura de linha natural da transição. Entretanto, para as intensidades usadas em (b), essa região não nula é da ordem da largura de linha alargada por potência.

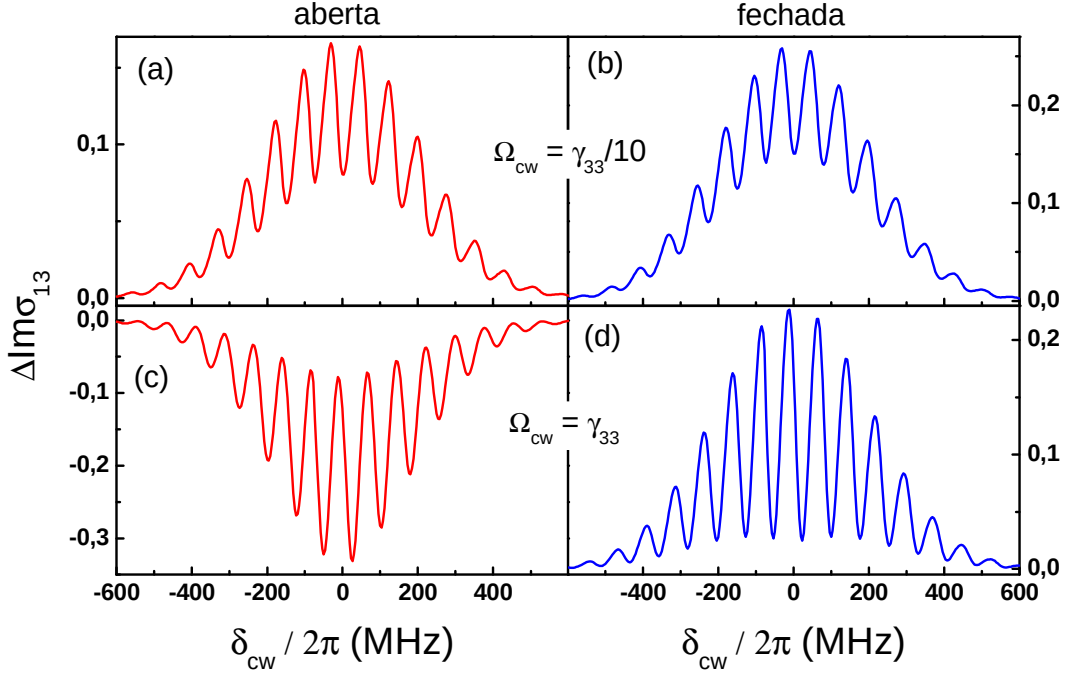


Figura 3.10 Variação da parte imaginária da coerência ($\Delta \text{Im}\sigma_{13}$) em função da dessintonia do campo cw (δ_{cw}) para uma transição aberta [(a) e (c)] e fechada [(b) e (d)] do campo cw, para duas diferentes intensidades.

Para baixas intensidades ($\Omega_{cw} = \gamma_{33}/10$), obtemos amplificação da transmissão ($\Delta \text{Im}\sigma_{13} > 0$) do campo cw para ambos os tipos de transições. Quando a intensidade do campo cw aumenta, encontramos uma região onde os dois tipos de transições, fechada e aberta, apresentam comportamentos distintos com respeito à absorção e amplificação. Enquanto que para a transição fechada continuamos a obter amplificação, para a transição aberta os modos do pente de frequências induzem um aumento da absorção do campo cw para todas as frequências dentro do perfil Doppler. Esse comportamento diferente pode ser entendido se notarmos que para a transição fechada apenas os modos do pente podem transferir população de $|1\rangle$ para $|2\rangle$. Entretanto, para a transição aberta, existe uma competição entre os modos dos dois campos no processo de transferência de população (como mostrado na Fig. 3.8), e o campo cw domina esse processo por ter maior frequência de Rabi.

Para simular nossos resultados experimentais, levamos em conta este comportamento distinto que depende da natureza das transições atômicas. As contribuições das transições abertas

e fechadas, $\sum \Delta \text{Im} \sigma_{13}$, são adicionadas para calcular a variação da transmissão do campo cw devido à presença dos modos do pente de frequências, quando a frequência do campo cw é variada sobre as frequências das diferentes transições hiperfinas. Os resultados obtidos estão representados na Fig. 3.11(a), para o campo cw nas transições $F = 1 \rightarrow F' = 0, 1, 2$. Já podemos notar que o comportamento oposto entre a transição fechada ($F = 1 \rightarrow F' = 0$) e as transições abertas ($F = 1 \rightarrow F' = 1, 2$) é a principal causa da assimetria observada na Fig. 3.3. Consideramos a separação em frequência e a diferença entre os momentos de dipolo das transições hiperfinas. Usamos para as amplitudes dos campos $E_0^{fs} = 4 \times 10^7$ V/m ($\Omega_m = \gamma_{44}$) e $E_0^{cw} = 150$ V/m ($\Omega_{cw} = 0,4\gamma_{33}$). Para o cálculo de Ω estamos usando $\mu = 1,0 \times 10^{-29}$ C.m como referência. As curvas foram obtidas através da integração sobre a contribuição de todos os grupos de átomos dentro do perfil Doppler da transição $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$. Para cada grupo de velocidade dos átomos, calculamos o valor médio das coerências dentro de um intervalo T_R para valores de tempo onde o sistema já atingiu o regime estacionário.

Definimos a variação da transmissão do campo cw devido à presença dos modos do pente de frequências como

$$\Delta T_{calc} = E_0^{cw}(\mathcal{N}) \times \sum \Delta \text{Im} \sigma_{13}. \quad (3.17)$$

Observe a Fig. 3.11(b). $E_0^{cw}(\mathcal{N})$ é a amplitude do campo cw devido à absorção linear do feixe pelos átomos do vapor, que depende da dessintonia com respeito à transição alargada por efeito Doppler e da densidade de átomos. Para baixas densidades como mostrado na Fig. 3.3, a absorção linear é negligenciável e $E_0^{cw}(\mathcal{N}) \approx E_0^{cw}$.

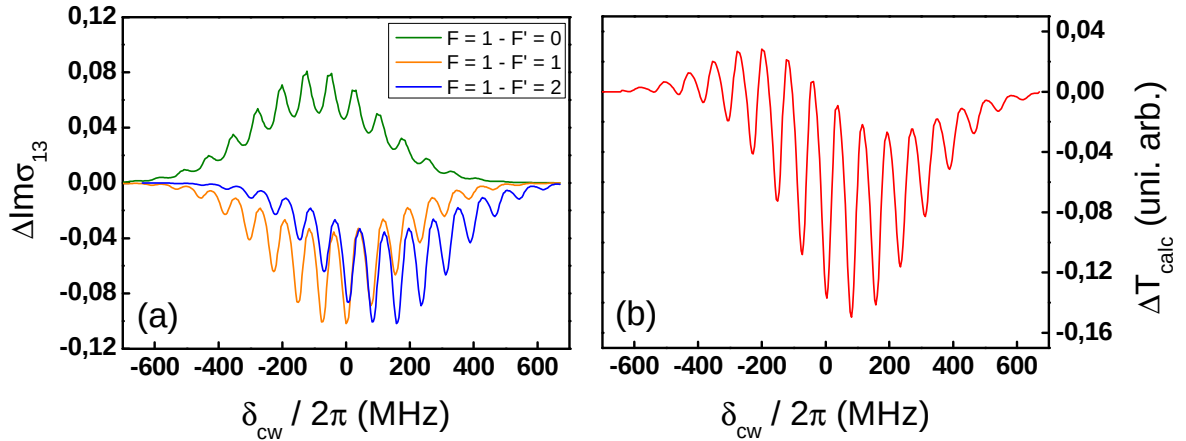


Figura 3.11 (a) Variação da parte imaginária da coerência ($\Delta \text{Im} \sigma_{13}$) em função da dessintonia do campo cw (δ_{cw}), para três transições hiperfinas: $F = 1 \rightarrow F' = 0, 1, 2$. (b) Variação da transmissão do campo cw (ΔT) em função sua dessintonia. Em todas as curvas, usamos $E_0^{cw} = 150$ V/m. A curva vermelha é a soma das três curvas de (a).

A variação com a intensidade do campo cw está mostrada na Fig. 3.12. Usamos para as amplitudes dos campos $E_0^{fs} = 4 \times 10^7$ V/m ($\Omega_m = \gamma_{44}$) e três valores para a amplitude do campo cw: (a) $E_0^{cw} = 150$ V/m ($\Omega_{cw} = 0,4\gamma_{33}$), (b) $E_0^{cw} = 1000$ V/m ($\Omega_{cw} = 1,2\gamma_{33}$) e (c) $E_0^{cw} =$

2000 V/m ($\Omega_{cw} = 2,5\gamma_{33}$). Os valores dos campos e das frequências de Rabi correspondem às condições experimentais do resultado mostrado na Fig. 3.3, para uma potência média de 350 mW do laser de fs, com aproximadamente as mesmas razões entre as frequências de Rabi dos campos.

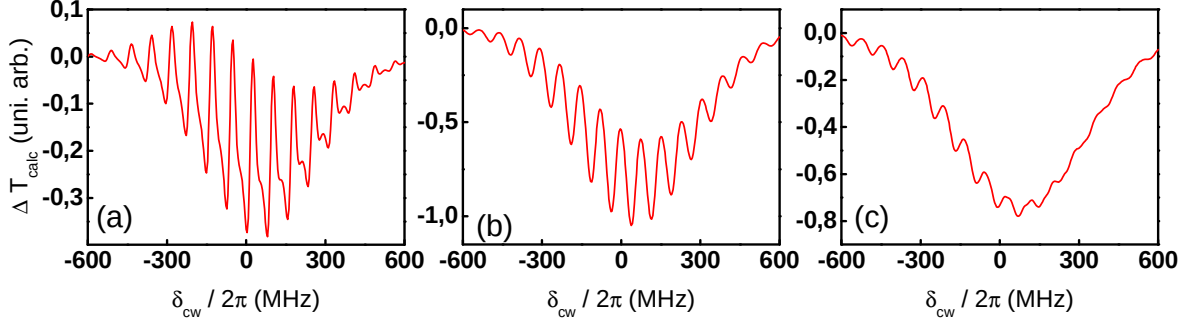


Figura 3.12 Resultados numéricos para a variação da transmissão do campo cw, ΔT_{calc} , em função da sua dessintonia, para três valores do campo elétrico: (a) $E_0^{cw} = 150$ V/m, (b) $E_0^{cw} = 1000$ V/m e (c) $E_0^{cw} = 2000$ V/m. Nos cálculos foram consideradas todas as três transições hiperfinas possíveis da linha Doppler estudada: $F = 1 \rightarrow F' = 0, 1, 2$.

3.3.2 Dependência com a densidade atômica

Simulamos também os resultados experimentais para diferentes densidades atômicas. Os cálculos numéricos foram feitos seguindo os passos descritos na subseção anterior, para $E_0^{fs} = 4 \times 10^7$ V/m ($\Omega_m = \gamma_{44}$) e $E_0^{cw} = 100$ V/m ($\Omega_{cw} = \gamma_{33}/4$), o que corresponde às condições experimentais da Fig. 3.4, onde as potências médias são 350 mW e 4 μ W para os lasers de Ti:safira e de diodo, respectivamente. De modo a comparar teoria e experimento no regime de altas densidades, a dependência da amplitude do campo do laser de diodo com a densidade, $E_0^{cw}(\mathcal{N})$, foi levada em conta. Essa informação foi obtida dos dados do fotodetector DT₂, mostrado nas figuras 3.4(f) e (h). Portanto, os resultados experimentais para a variação da transmissão do laser de diodo podem ser comparados com ΔT_{calc} . O resultado para as duas linhas Doppler $F = 1$ e $F = 2$ e para duas densidades atômicas estão mostrados na Fig. 3.13.

Para a Fig. 3.13(a) usamos os dados da absorção linear da Fig. 3.4(f), que correspondem a uma profundidade óptica de $\alpha L = 2$ e, para a Fig. 3.13(b) a absorção linear é dada pela curva da Fig. 3.4(h), com $\alpha L = 10$. Como na Fig. 3.4(b), a curva da Fig. 3.13(a) mostra valores positivos para o cálculo da variação da transmissão do campo cw para o lado esquerdo do perfil Doppler. Porém, na Fig. 3.13(b), observamos claramente duas regiões com comportamentos diferentes, muito similar ao que foi observado na Fig. 3.4(d). Do lado esquerdo obtemos valores positivos para ΔT_{calc} , enquanto que para o lado direito valores negativos são obtidos. Esses resultados indicam que, dependendo das intensidades dos dois lasers, as respostas do sistema atômico para transições abertas ou fechadas apresentam comportamentos distintos. Para verificar a influência da natureza da transição excitada pelo campo cw, também calculamos ΔT_{calc} para $F = 2 \rightarrow F' = 1, 2, 3$. O resultado está mostrado na Fig. 3.13(c) e pode ser comparado com

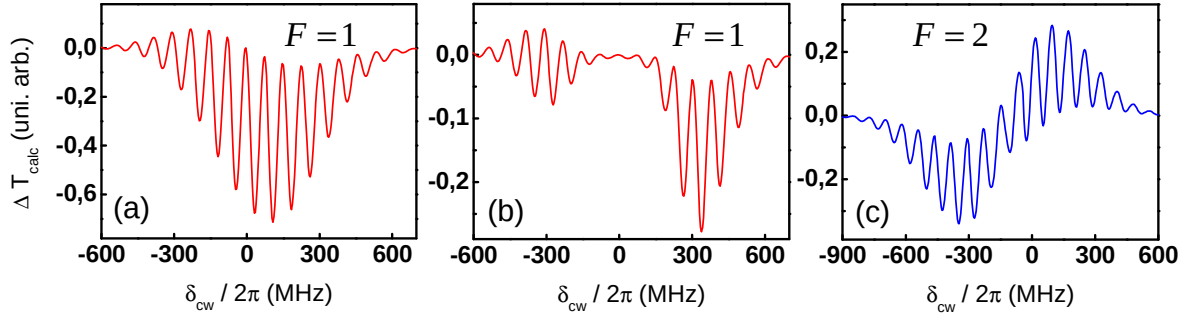


Figura 3.13 Variação da transmissão do campo cw (ΔT_{calc}) em função da sua dessintonia. Consideramos todas as transições hiperfinas da linha $F = 1$ para as profundidades ópticas (a) $\alpha L = 2$ e (b) $\alpha L = 10$, e $F = 2$ para (c) $\alpha L = 2$.

os resultados experimentais da Fig. 3.5. Podemos notar que valores positivos de ΔT_{calc} estão de lados opostos dentro do perfil Doppler, como observado no experimento, e correspondem às posições em frequência onde ocorrem as transições hiperfinas fechadas.

3.4 Conclusões

Apresentamos resultados experimentais para o efeito de um laser de femtossegundos na absorção de um laser de diodo através de um vapor de Rb. Esse efeito foi investigado experimentalmente com o laser de diodo variando sua frequência através da linha D₂ com alargamento inhomogêneo, e a impressão do pente de frequências no perfil Doppler foi estudada em função da densidade atômica e das intensidades dos lasers. Usamos um modelo mais simples possível, onde levamos em conta a interação de dois campos com um *ensemble* de átomos de quatro níveis. Nossa análise descreve os papéis do bombeio óptico e do alargamento por potência na consolidação dos vários regimes de competição entre os dois lasers, dependendo das suas intensidades relativas e da natureza das transições atômicas (aberta ou fechada) excitada pelo campo cw. Também mostramos que os vários grupos de velocidade dos átomos são sensíveis aos modos do pente de frequências mesmo em altas potências do campo cw, porém o efeito Stark das transições atômicas desloca a impressão dos modos do pente próximos à frequência do campo cw, diminuindo a visibilidade do pente impresso no perfil Doppler.

Os resultados descritos nesse capítulo foram publicados no periódico *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* [51]:

M. Polo, C. A. C. Bosco, L. H. Acioli, D. Felinto, S. S. Vianna, “Coupling between cw lasers and a frequency comb in dense atomic samples,” *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **43**, 055001 (2010).

Abordagem no domínio da frequência

Neste capítulo atacaremos o problema da excitação dos átomos por um trem de pulsos ultracurtos no domínio das frequências. O objetivo é mostrar o regime de equivalência entre os tratamentos teóricos no domínio do tempo e no domínio da frequência, além das vantagens e desvantagens no emprego de cada um deles para cada tipo de situação. As ideias desenvolvidas aqui serão extremamente úteis no entendimento dos capítulos que se seguem.

Focaremos nos aspectos mais fundamentais do problema em questão, de forma que nos limitaremos a um sistema atômico constituído de dois níveis.

4.1 O trem de pulsos como uma superposição de campos cw

Conforme colocado no capítulo 1, um trem de pulsos infinito pode ser descrito no domínio da frequência pela Eq. (1.4), que reescrevemos abaixo:

$$\tilde{E}(\omega) = 2\pi\tilde{E}_0(\omega - \omega_c) f_R \sum_{m=-\infty}^{\infty} \delta(\omega - \omega_m). \quad (4.1)$$

Fazendo a transformada de Fourier inversa desta equação, obtemos

$$\begin{aligned} E(t) &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} 2\pi\tilde{E}_0(\omega - \omega_c) f_R \sum_{m=-\infty}^{\infty} \delta(\omega - \omega_m) e^{-i\omega t} d\omega \\ E(t) &= \sum_{m=-\infty}^{\infty} f_R \tilde{E}_0(\omega_m - \omega_c) e^{-i\omega_m t} \\ E(t) &= \sum_{m=-\infty}^{\infty} E_m e^{-i\omega_m t}, \end{aligned} \quad (4.2)$$

onde

$$E_m = f_R \tilde{E}_0(\omega_m - \omega_c) \quad (4.3)$$

define a amplitude de cada modo do pente de frequências. Convém lembrar que $\tilde{E}_0(\omega)$ representa o espectro de um único pulso e que a frequência de um modo m do pente de frequências é dada por $\omega_m/2\pi = f_0 + m f_R$, onde f_0 é a frequência de *off-set* e f_R é a taxa de repetição.

A Eq. (4.2) é uma outra forma de escrever um trem de infinitos pulsos [52]. Podemos entendê-lo como sendo composto por uma superposição coerente de campos cw, cada um oscilando em uma frequência ω_m e todos com a mesma fase. Em problemas em que a ênfase está no domínio da frequência, como é o caso na maior parte desta tese, trabalhar com essa forma de escrever o trem de pulsos é vantajoso por duas razões: além de ser mais intuitivo, ela permite uma enorme simplificação teórica na solução das equações de Bloch, como veremos.

4.2 Solução das equações de Bloch

As equações de Bloch para um sistema de dois níveis são dadas pelas equações (2.5):

$$\dot{\rho}_{12} = (i\omega_{21} - \gamma_{12})\rho_{12} - i\Omega(t)(1 - 2\rho_{22}) \quad (4.4a)$$

$$\dot{\rho}_{22} = -\gamma_{22}\rho_{22} + i\Omega(t)\rho_{12} + c.c., \quad (4.4b)$$

onde $\Omega(t) = \mu_{12}E(t)/\hbar$, sendo μ_{12} o momento de dipolo da transição. γ_{22} e γ_{12} são as taxas de relaxação da população e da coerência, e ω_{21} é a frequência de ressonância da transição. Como consideramos o sistema fechado, a população do estado $|1\rangle$ é dada por $\rho_{11} = 1 - \rho_{22}$.

Usaremos a teoria da perturbação [53] para resolver as equações acima. É natural supor que as populações e as coerências devem oscilar nas frequências dos modos do pente ω_j bem como em combinações dessas frequências: $\omega_j \pm \omega_k$, $\omega_j \pm \omega_k \pm \omega_l$, $\dots$. Assim, podemos escrever os elementos da matriz densidade como uma expansão perturbativa em série de potências dos campos:

$$\rho_{12} = \sum_j \sigma_{12}^{(1)}(t)e^{i\omega_j t} + \sum_{jkl} \sigma_{12}^{(3)}(t)e^{i(\omega_j - \omega_k + \omega_l)t} + \dots \quad (4.5a)$$

$$\rho_{22} = \rho_{22}^{(0)} + \sum_{jk} \sigma_{22}^{(2)}(t)e^{i(\omega_j - \omega_k)t} + \sum_{jklm} \sigma_{22}^{(4)}(t)e^{i(\omega_j - \omega_k + \omega_l - \omega_m)t} + \dots, \quad (4.5b)$$

onde $\sigma_{ij}^{(n)}(t)$ é uma função que evolui lentamente se comparada a $e^{i\omega_j t}$. O índice n indica a ordem do campo. Para a população, desprezamos os termos que oscilam com uma frequência muito distante de $\omega_j - \omega_k$, por exemplo: $\omega_j + \omega_k$, $\omega_j + \omega_k + \omega_l + \omega_m$, $\dots$. De forma equivalente, para a coerência, desprezamos os termos que oscilam com uma frequência muito distante de ω_j , por exemplo: $\omega_j + \omega_k + \omega_l$.

Fazendo uso da Eq. (4.2), substituindo as equações (4.5) nas equações (4.4), e combinando os termos de mesma potência dos campos, chegamos em um sistema de equações que permite

uma solução iterativa para $\sigma_{ij}^{(n)}(t)$:

$$\dot{\sigma}_{12}^{(1)} = [i(\omega_{21} - \omega_j) - \gamma_{12}] \sigma_{12}^{(1)} - i(1 - 2\rho_{22}^{(0)}) \Omega_j \quad (4.6a)$$

$$\dot{\sigma}_{22}^{(2)} = -(\gamma_{22} + i\omega_{jk}) \sigma_{22}^{(2)} - i\Omega_j \sigma_{21}^{(1)}, \quad (4.6b)$$

$$\dot{\sigma}_{12}^{(3)} = [i(\omega_{21} - \omega_{jkl}) - \gamma_{12}] \sigma_{12}^{(3)} - i(1 - 2\sigma_{22}^{(2)}) \Omega_j \quad (4.6c)$$

$\vdots$

onde $\omega_{jk} = \omega_j - \omega_k$, $\omega_{jkl} = \omega_j - \omega_k + \omega_l$ e

$$\Omega_m = \frac{\mu_{12} E_m}{\hbar} \quad (4.7)$$

é a frequência de Rabi do modo m .

Resolvendo a Eq. (4.6a) para a condição inicial $\sigma_{12}^{(1)}(0) = 0$, encontramos

$$\sigma_{12}^{(1)}(t) = \frac{1 - e^{[i(\omega_{21} - \omega_j) - \gamma_{12}]t}}{\omega_{21} - \omega_j + i\gamma_{12}} (1 - \rho_{22}^{(0)}) \Omega_j. \quad (4.8)$$

Usando a equação acima na Eq. (4.5a) e fazendo $\rho_{22}^{(0)} = 0$ (população do estado excitado na ausência do campo), chegamos à expressão final para a coerência em primeira ordem do campo:

$$\rho_{12}^{(1)}(t) = \sum_m \frac{1 - e^{[i(\omega_{21} - \omega_m) - \gamma_{12}]t}}{\omega_{21} - \omega_m + i\gamma_{12}} \Omega_m e^{i\omega_m t}. \quad (4.9)$$

Para o cálculo exato de $\rho_{12}^{(1)}$, devemos somar a contribuição de todos os modos do pente de frequências para obter a coerência total induzida nos átomos pelo campo. Isso implica considerar aproximadamente 100 mil modos para um laser de 100 MHz de taxa de repetição e pulsos com 100 fs de largura temporal. Entretanto, como pode ser observado pelo denominador do lado direito da Eq. (4.9), somente os modos que satisfazem a relação $\omega_{21} - \omega_m \approx \gamma_{12}$ contribuem de forma significativa para o valor de $\rho_{12}^{(1)}$. Em outras palavras, podemos dizer que, independente da quantidade efetiva de modos do pente, somar apenas os modos que “cabem” dentro da largura de linha da transição ($2\gamma_{12}$) constitui uma excelente aproximação para a interação átomo-campo no limite de baixas intensidades. A aproximação de desprezar os modos do pente que estão longe da ressonância atômica está no mesmo pé de igualdade da aproximação de desprezar as transições atômicas que estão longe da ressonância de um campo cw.

Na Fig. 4.1(a) comparamos a evolução temporal da coerência obtida a partir da Eq. 4.9 com o cálculo numérico obtido pela integração direta das equações de Bloch através do algoritmo de Runge-Kutta de quarta ordem (ver seção 2.2.1 e apêndice A). As duas curvas estão superpostas. Na Fig. 4.1(b) mostramos os detalhes de (a), além de comparar o efeito da quantidade de modos no comportamento de $\rho_{12}^{(1)}$. Usamos $f_R = 100$ MHz, $f_0 = 0$, $\gamma_{22} = 2\gamma_{12} = 2\pi \times 5$ MHz,

$\omega_{21}/2\pi = 400$ THz, $\omega_c/2\pi = 400$ THz e $T_p = 100$ fs (esses dois últimos apenas no cálculo numérico). Observe desses dados que o modo $m = 4 \times 10^6$ está em ressonância com a transição ($\omega_m = \omega_{21}$). Para o cálculo analítico de (a) usamos 101 modos consecutivos, sendo 50 modos com frequência menor que a do modo $m = 4 \times 10^6$ e 50 modos com frequência maior. Para (b) usamos 1 (curva pontilhada), 11 (curva verde) e 101 (curva vermelha) modos.

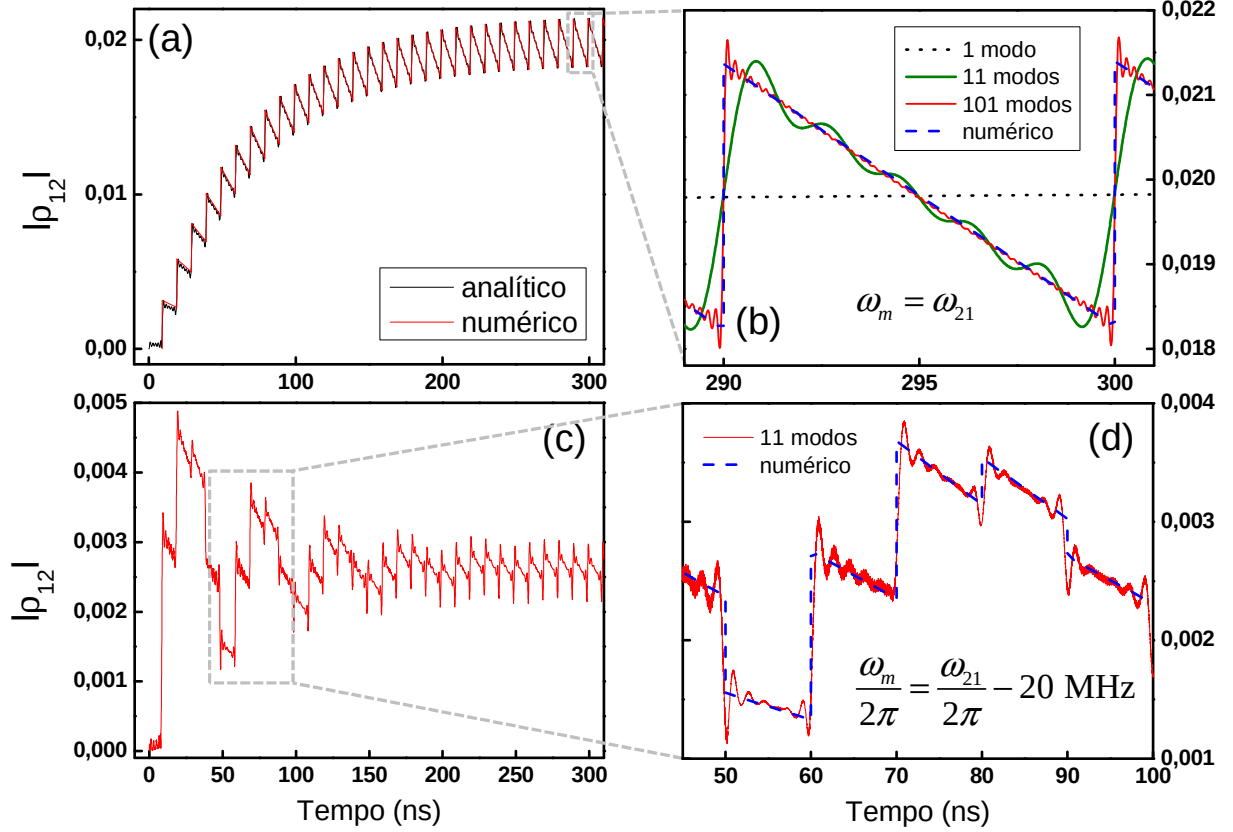


Figura 4.1 (a e c) Evolução temporal do módulo de ρ_{12} , onde comparamos o resultado obtido a partir da Eq. (4.9) com o cálculo numérico obtido pela integração direta das equações de Bloch, sendo (a) $\omega_m = \omega_{21}$ e (c) $\omega_m = \omega_{21} - 2\pi \times 20$ MHz. Em (b), mostramos os detalhes da região tracejada de (a) para o resultado analítico com 1, 11 e 101 modos. A curva tracejada azul mostra o resultado do cálculo numérico. (d) mostra os detalhes da região tracejada de (c) com o cálculo numérico e analítico (11 modos). Usamos em todas as curvas $f_R = 100$ MHz, $\gamma_{22} = 2\gamma_{12} = 2\pi \times 5$ MHz e $\Omega_m = \gamma_{22}/100$.

Como uma aproximação conveniente, consideramos a mesma amplitude para todos os modos no resultado analítico na Fig. 4.1, com $\Omega_m = \gamma_{22}/100$. Como os modos mais próximos da ressonância estão em torno de ω_c , então podemos aproximar que $\omega_c - \omega_m \approx 0$ e assim, a partir da Eq. (4.3), podemos escrever

$$\begin{aligned}
E_m &= f_R \lim_{\eta \rightarrow 0} \int E_0(t) e^{i\eta t} dt \\
E_m &= E_0 \times \left(\frac{T_p}{T_R} \right),
\end{aligned} \tag{4.10}$$

onde usamos a aproximação de pulsos quadrados, sendo E_0 a amplitude do campo (no domínio do tempo).

Na Fig. 4.1(c) mostramos a evolução temporal da coerência obtida a partir da Eq. (4.9) para as mesmas condições da fig. 4.1(a) com 11 modos, exceto que agora $\omega_{21}/2\pi = 400 \text{ THz} + 20 \text{ MHz}$, situação na qual nenhum modo está em ressonância. O comportamento observado, já conhecido no caso da interação entre átomos e campos contínuos, é o resultado do descompasso entre a frequência de oscilação do dipolo elétrico induzido pelo campo e a frequência do modo mais próximo da ressonância, implicando em uma interferência parcialmente destrutiva. Em (d) comparamos resultados numéricos e analíticos, onde novamente observamos uma boa concordância.

4.3 Fora do regime da acumulação coerente

Já estamos convencidos de que a Eq. (4.9) é válida dentro do regime de acumulação coerente ($\gamma_{22} < f_R$). Mas e fora desse regime? No domínio do tempo, isso significa que as populações e as coerências atômicas relaxam completamente no intervalo de tempo entre dois pulsos consecutivos, de forma que a interação com um único pulso é suficiente para descrever completamente a interação átomo-campo.

Na Fig. 4.2(a) mostramos a evolução temporal de ρ_{12} fora do regime de acumulação coerente, onde usamos $f_R = 5 \text{ MHz}$. Os outros parâmetros são os mesmos da Fig. 4.1(b) com 101 modos. Em (b) comparamos os resultados para 1 (curva verde), 11 (curva azul) e 101 modos (curva vermelha). Observe que o resultado para 1 modo não descreve nem o comportamento médio como observado na Fig. 4.1(b). Isso se deve ao fato de que os modos estão mais próximos uns dos outros devido à baixa taxa de repetição, e assim a largura natural da transição é suficiente para englobar mais de um modo, como mostrado em (c). Temos então que, fora do regime de acumulação coerente, no domínio do tempo apenas um pulso é necessário para descrever a interação átomo-campo, ao passo que no domínio da frequência devemos somar muitos modos, o que torna a Eq. (4.9) pouco prática nesse caso.

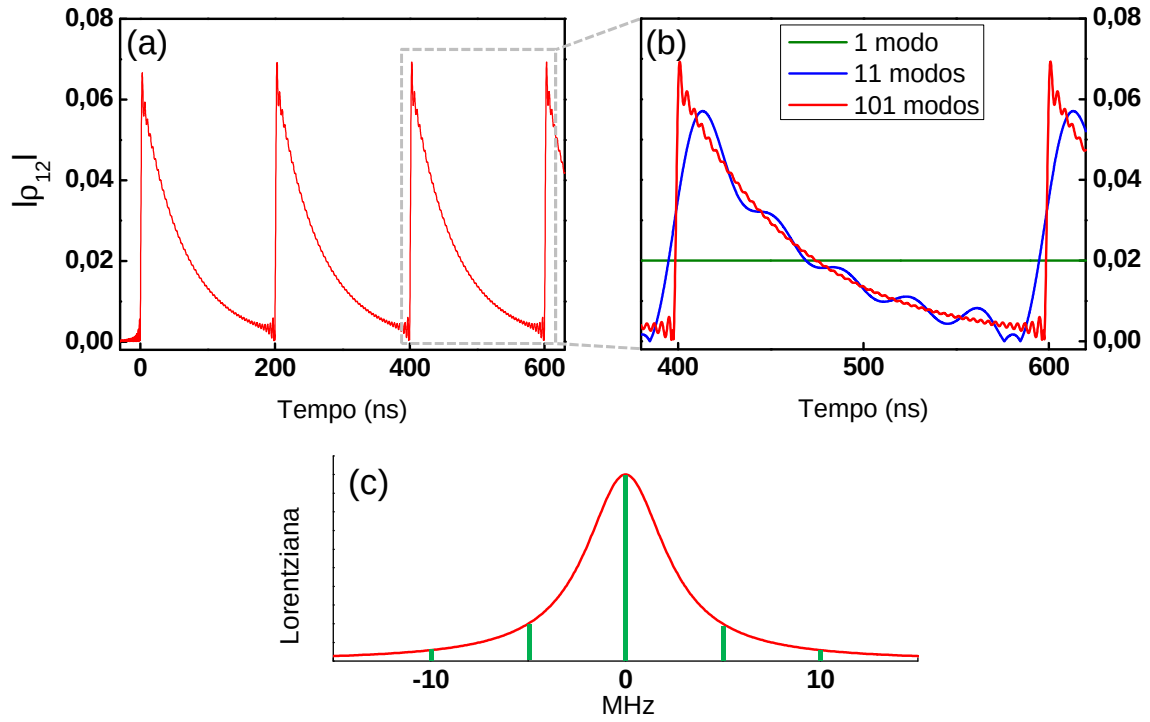


Figura 4.2 (a) Evolução temporal do módulo de ρ_{12} obtido a partir da Eq. (4.9), considerando 101 modos centrados em torno da ressonância. Em (b), mostramos os detalhes da região tracejada de (a), onde comparamos o efeito da soma de modos. Em (c), temos a quantidade de modos (linhas verdes) dentro da largura natural da transição (linha vermelha). Usamos $f_R = 5$ MHz, $\omega_{21}/2\pi = 400$ THz, $\gamma_{22} = 2\gamma_{12} = 2\pi \times 5$ MHz e $\Omega_m = \gamma_{22}/100$.

4.4 Interação com um vapor atômico

Conforme visto na seção 2.2.3, cada grupo de átomos com certa velocidade “vê” as frequências dos modos do pente deslocadas de $\Delta = \mathbf{k}_m \cdot \mathbf{v}$, onde $\mathbf{k}_m$ é o vetor de onda do modo m e $\mathbf{v}$ é a velocidade do grupo de átomos. Assim, incluindo na Eq. (4.9) a correção Δ na frequência da transição e o peso do perfil Doppler [Eq. (2.17)], chegamos a

$$\rho_{12}^{(1)}(t) = e^{-\Delta^2/2\Delta_D^2} \times \sum_m \frac{1 - e^{[i(\omega_{21} - \omega_m + \Delta) - \gamma_{12}]t}}{\omega_{21} - \omega_m + \Delta + i\gamma_{12}} \Omega_m e^{i\omega_m t}. \quad (4.11)$$

A Fig. 4.3 mostra a dependência da coerência ρ_{12} com os grupos de átomos e com o tempo de interação átomo-campo, onde consideramos 11 modos. Para $t = 5$ ns [Fig. 4.3(a), o que significa, no domínio do tempo, uma interação dos átomos com um único pulso], temos, para a largura de cada modo (ver Fig. 1.2), 200 MHz, maior do que a taxa de repetição (100 MHz). Assim, existe uma superposição dos modos, de forma que os átomos interagem praticamente com um espectro contínuo de frequências, fazendo com que todos os átomos do perfil Doppler sejam excitados. Já para $t = 15$ ns [Fig. 4.3(b), dois pulsos], temos para a largura de cada modo ≈ 70 MHz. Neste caso as modulações já são visíveis. Na Fig. 4.3(c) temos $t = 95$ ns (10 pulsos), o que implica em uma largura de ≈ 10 MHz para cada modo. Na Fig. 4.3(d) temos $t = 295$ ns, (30 pulsos) o que implica em uma largura de ≈ 3 MHz para cada modo, que já é menor do que a largura de linha da transição (5 MHz). Podemos dizer que com 30 pulsos o sistema atômico já atingiu o regime estacionário.

A vantagem do uso da Eq. (4.11) em problemas que dependem da frequência, e em que o sistema já atingiu o regime estacionário, está na velocidade dos cálculos computacionais. Enquanto que a Eq. (4.11) é uma solução analítica fechada, o método numérico [ver seção (2.2.1)] dá a solução após a interação com uma certa quantidade de pulsos para um valor específico de Δ , que depois deve ser novamente resolvido para os demais valores de Δ dentro do perfil Doppler.

4.5 Propagação em um vapor atômico

A representação de um trem de pulsos como uma superposição coerente de modos cw [Eq. (4.2)] torna possível uma solução analítica fechada para o problema da propagação em um vapor atômico para baixas intensidades e no regime estacionário. A equação da propagação unidimensional de uma onda eletromagnética na direção z por um meio com polarização é dada por [41]:

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) E(z, t) = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} P(z, t), \quad (4.12)$$

onde $P(z, t)$ é a polarização induzida (desconsideramos o caráter vetorial do campo e da polarização), c é a velocidade da luz e μ_0 é a permeabilidade magnética no vácuo (ver tabela B.1). A polarização total é dada pela soma das polarizações de cada átomo. Assim, para um sistema de dois níveis,

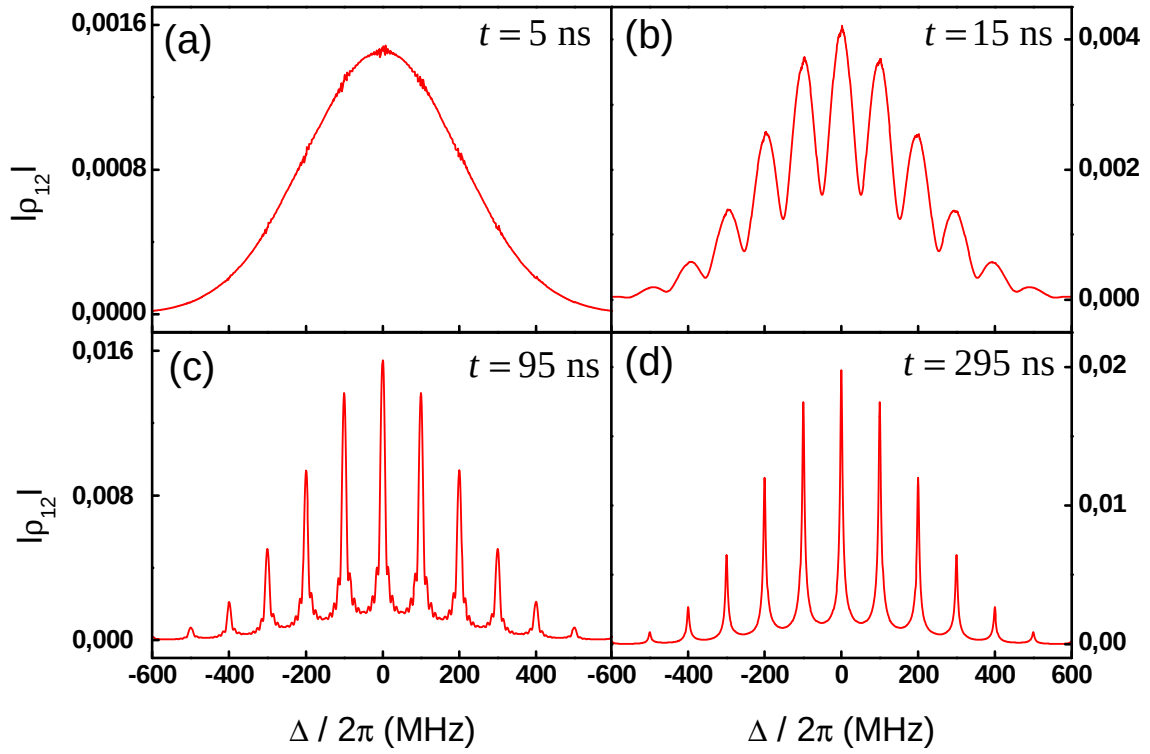


Figura 4.3 Módulo de ρ_{12} em função dos grupos de átomos (Δ) obtido a partir da Eq. (4.11), para (a) 1, (b) 2, (c) 10 e (d) 30 pulsos. Usamos 11 modos, $\Delta_D/2\pi = 200$ MHz e os mesmos parâmetros da Fig. 4.1(a).

$$P(z, t) = \mathcal{N} \langle \hat{\mu} \rangle = \mathcal{N} \mu_{12} \rho_{12}(z, t) + c.c., \quad (4.13)$$

onde $\mathcal{N}$ representa o número de átomos por unidade de volume.

Queremos encontrar a equação que descreve um trem de pulsos ultracurtos propagado após uma grande quantidade de pulsos ter atravessado a amostra. Com a inclusão da dependência em z , o campo elétrico é escrito como

$$E(z, t) = \sum_m E_m(z) e^{i(\omega_m t - k_m z)}, \quad (4.14)$$

onde k_m é o número de onda do modo m . Para tempos muito longos (regime estacionário), a coerência dada pela Eq. (4.9) se torna

$$\rho_{12}^{(1)} = \sum_m \frac{e^{i\omega_m t}}{\omega_{21} - \omega_m + i\gamma_{12}} \Omega_m. \quad (4.15)$$

Combinando as equações de (4.12) a (4.15), chegamos à seguinte relação:

$$\sum_m \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) E_m(z) e^{i(\omega_m t - k_m z)} = \frac{\mathcal{N} \mu_{12}^2 \mu_0}{\hbar} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \sum_m \frac{E_m(z) e^{i(\omega_m t - k_m z)}}{\omega_{21} - \omega_m + i\gamma_{12}}. \quad (4.16)$$

Dentro da aproximação [41]:

$$\frac{\partial E_m}{\partial z} \ll k_m E_m, \quad (4.17)$$

obtemos a lei de Beer para cada modo m do pente de frequências:

$$\frac{\partial E_m(z)}{\partial z} = -g(\omega_m) E_m(z), \quad (4.18)$$

onde

$$g(\omega_m) = \frac{\mathcal{N} \mu_{12}^2 \mu_0 c}{2\hbar} \frac{\omega_m}{\gamma_{12} - i(\omega_{21} - \omega_m)} \quad (4.19)$$

é a forma de linha de absorção para cada modo, no qual as partes real e imaginária descrevem os efeitos de absorção e dispersão, respectivamente.

A Eq. (4.18) admite, para $E_m(0) = E_m$, a seguinte solução:

$$E_m(z) = E_m e^{-g(\omega_m)z}. \quad (4.20)$$

Com a inclusão do efeito Doppler, a forma de linha de absorção deve ser integrada sobre a contribuição de todos os grupos de velocidades atômicos do vapor. Assim,

$$g(\omega_m) = \frac{\mathcal{N} \mu_{12}^2 \mu_0 c \omega_m}{2\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-\Delta^2/(2\Delta_D^2)}}{i(\omega_{21} - \omega_m - \Delta) - \gamma_{12}} d\Delta. \quad (4.21)$$

Apesar de o problema estar resolvido, a Eq. (4.21) é pouco prática na hora de representar a solução graficamente. Assim, faremos outra aproximação, na qual incluiremos na integral apenas os grupos de átomos do vapor que estão em ressonância com algum modo m . Assim, $\Delta = \omega_{21} - \omega_m$, de forma que a equação (4.21) se torna

$$g(\omega_m) = \alpha e^{-(\omega_{21}-\omega_m)^2/(2\Delta_D^2)}, \quad (4.22)$$

onde

$$\alpha = \frac{\mathcal{N} \mu_{12}^2 \mu_0 c \omega_c}{2\hbar \gamma_{12}} \quad (4.23)$$

é o coeficiente de absorção dos modos do pente de frequências, onde também fizemos $\omega_m = \omega_c$. Combinando as equações (4.14) e (4.20), obtemos a expressão para um trem de pulsos propagados em termos de suas componentes de Fourier:

$$E(z, t) = \sum_m E_m e^{-g(\omega_m)z} e^{i\omega_m t}, \quad (4.24)$$

onde desconsideramos a fase de propagação $k_m z$.

Queremos descrever a absorção dos modos pelo vapor, de forma que não podemos mais considerar a mesma amplitude para os modos. Assim, para simplificar os cálculos, vamos supor uma forma de linha gaussiana para o espectro de um pulso:

$$\tilde{E}_0(\omega) = e^{-\omega^2/2\Delta\omega^2}, \quad (4.25)$$

onde $\Delta\omega$ indica a largura espectral do pulso.

Na Fig. 4.4(a) representamos a Eq. (4.24) no domínio da frequência. Para isso, calculamos a FFT (*Fast Fourier Transform* - Transformada de Fourier Rápida) a partir da solução gráfica dessa equação no domínio do tempo, com o auxílio do software *Microcal Origin*. Usamos $\Delta\omega/2\pi = 2,5$ THz, $\gamma_{12}/2\pi = 2,5$ MHz, $f_R = 100$ MHz, $f_0 = 0$, $\alpha z = 1$, $t = 20$ ns, $\Delta_D/2\pi = 200$ MHz e 200 mil modos centrados em torno da frequência da onda portadora. Nas outras figuras mostramos os detalhes da região tracejada de (a), onde usamos as profundidades ópticas (b) $\alpha z = 0$ (sem propagação), (c) $\alpha z = 1$ e (d) $\alpha z = 10$. A envoltória observada em (c) e (d), que representa a “mordida” nos modos próximos à ressonância, é exatamente a mesma obtida na literatura para o caso da propagação de um único pulso. Veja, por exemplo, a Ref. [54].

Podemos concluir que a Eq. (4.24) é bastante eficiente quando estamos interessados nos efeitos de absorção e dispersão de poucos modos devido à propagação em um sistema atômico. Entretanto, se o objetivo for a obtenção do trem de pulsos propagados no domínio do tempo, novamente essa abordagem no domínio da frequência é válida, porém pouco prática, visto que teremos que somar da ordem de 10^5 modos para pulsos de femtossegundos.

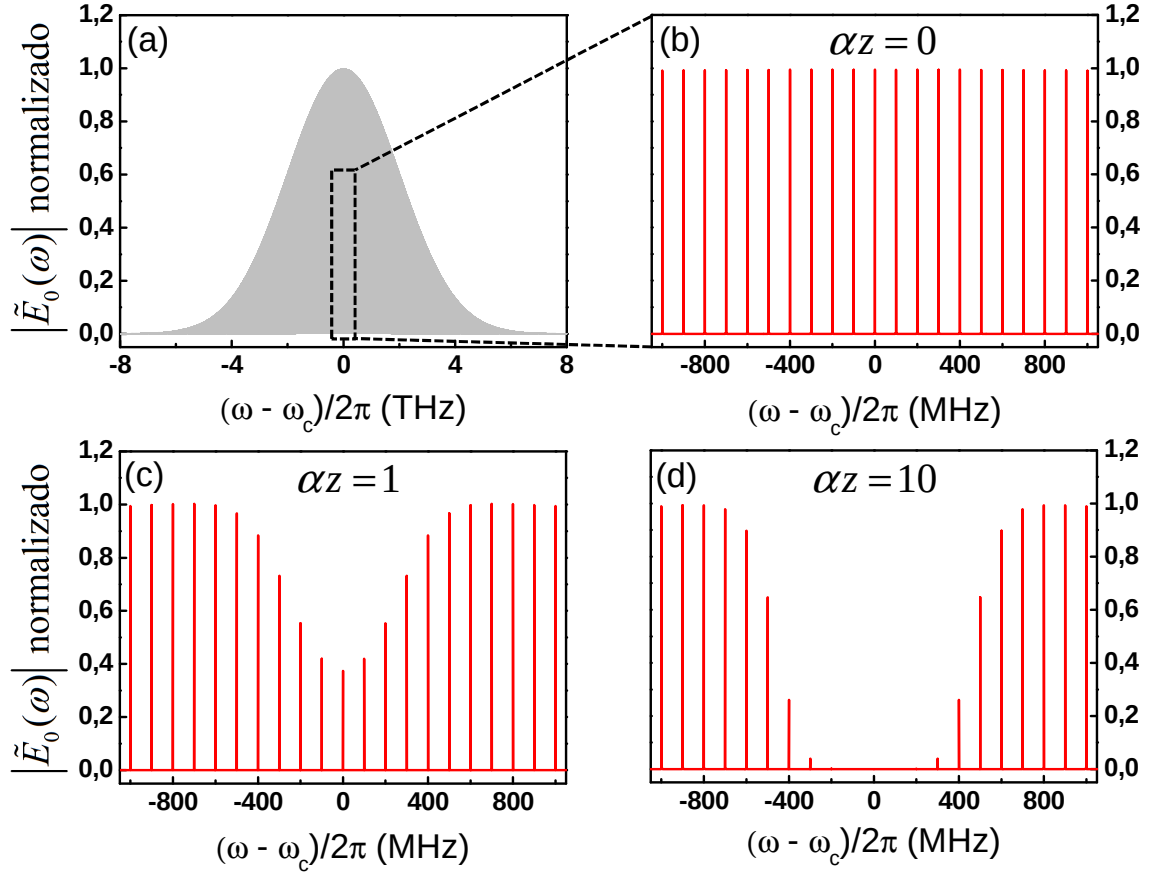


Figura 4.4 (a) FFT da solução gráfica da equação (4.24), onde representamos o módulo da amplitude de campo do trem de pulsos no domínio da frequência. Usamos $\gamma_{12}/2\pi = 2,5$ MHz, $f_R = 100$ MHz, $f_0 = 0$, $\alpha z = 1$, $t = 20$ ns, $\Delta_D/2\pi = 200$ MHz e 200 mil modos centrados em torno da frequência da onda portadora. Nas outras figuras mostramos os detalhes da região tracejada de (a), onde usamos (b) $\alpha z = 0$, (c) $\alpha z = 1$ e (d) $\alpha z = 10$.

4.6 Campos intensos

Existe um limite prático para o cálculo dos elementos da matriz densidade em termos dos modos do pente de frequências. No domínio do tempo, sabemos que um trem de pulsos de área π não cria coerência entre os estados atômicos [29, 31, 25]. Isso significa que, no domínio da frequência, uma interferência destrutiva devido ao deslocamento Stark dos diversos modos do pente de frequências destrói a coerência. Chegamos a essa conclusão notando que um pulso de área π implica em

$$\begin{aligned} \frac{\mu_{12}}{\hbar} \int E_0(t) dt &= \pi \\ \frac{\mu_{12}}{\hbar} E_0 T_p &= \pi \\ \Omega_0 T_p &= \pi \\ \frac{\Omega_m}{2\pi} &= \frac{f_R}{2} \end{aligned} \quad (4.26)$$

para a frequência de Rabi do modo m , onde usamos a aproximação de pulsos quadrados. Na convenção adotada para o campo, o deslocamento Stark na ressonância é dado por $\Omega_m = f_R/2$, isto é, metade da distância entre dois modos vizinhos. A Fig. 4.5 ilustra essa situação.

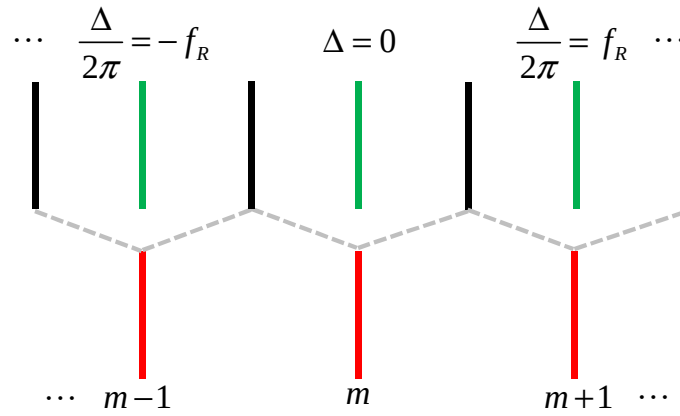


Figura 4.5 Representação dos modos do pente de frequências (linhas vermelhas) interagindo com os átomos do vapor, onde as linhas verdes representam as ressonâncias de cada grupo de velocidade dos átomos que “enxergam” os modos do pente. As linhas pretas representam os deslocamentos Stark devido à intensidade dos modos, onde $\Omega_m/2\pi = f_R/2$.

Na Fig. 4.6 comparamos os resultados para a coerência obtidos a partir da interação com o trem de pulsos com os resultados obtidos a partir da interação com campos cw, ambos através de cálculos numéricos. A coerência ρ_{12} , no regime estacionário, está representada em função dos grupos de átomos do vapor. As colunas esquerda e direita representam os resultados obtidos com $f_R = 100$ MHz e $f_R = 1$ GHz, respectivamente. As curvas azuis foram obtidas a partir da interação com um trem de pulsos com área θ como indicado (tempo de interação = $1 \mu s$),

e as curvas vermelhas foram obtidas a partir da interação com campos cw, equidistantes em frequência de f_R , com a frequência de Rabi por modo, Ω_m , conforme indicada. Para $f_R = 100$ MHz usamos 11 modos, suficientes para ocupar todo o perfil Doppler. Para $f_R = 1$ GHz, entretanto, um único modo é suficiente.

Observamos uma boa concordância entre as duas abordagens (domínios do tempo e frequência) nas três primeiras linhas da Fig. 4.6, mesmo em altas intensidades, como em (g) onde $\Omega_m = 10\gamma_{22}$ com $f_R = 1$ GHz. Já na quarta linha, onde $\theta = \pi$, os resultados divergem. O resultado em azul é o correto, já que a coerência deve ser nula nesse caso. Cada vez que a área de um pulso se aproxima de π , uma maior quantidade de modos deve ser considerada para que os resultados das duas abordagens convirjam. Entretanto, exatamente em $\theta = \pi$, uma quantidade infinita de modos deve ser considerada. Assim, $[0, \pi)$ é o intervalo para a área do pulso no qual é possível escrever ρ_{12} (e os outros elementos da matriz densidade) como uma expansão finita em suas componentes de Fourier (isto é, nos modos m).

4.7 Conclusões

Estudamos a interação coerente de um trem de pulsos ultracurtos em um sistema de dois níveis no domínio da frequência. A partir das equações de Bloch, chegamos a uma solução fechada para a coerência atômica em primeira ordem do campo, na qual ρ_{12} é expresso em termos das ressonâncias dos modos do pente de frequências. Usamos essa solução para investigar, no domínio da frequência, a acumulação coerente e a propagação por um vapor atômico no limite de baixas densidades. Por fim, chegamos ao limite de $\Omega_m/2\pi = f_R/2$ para a frequência de Rabi por modo para a validade da expansão do campo em termos de suas componentes de Fourier.

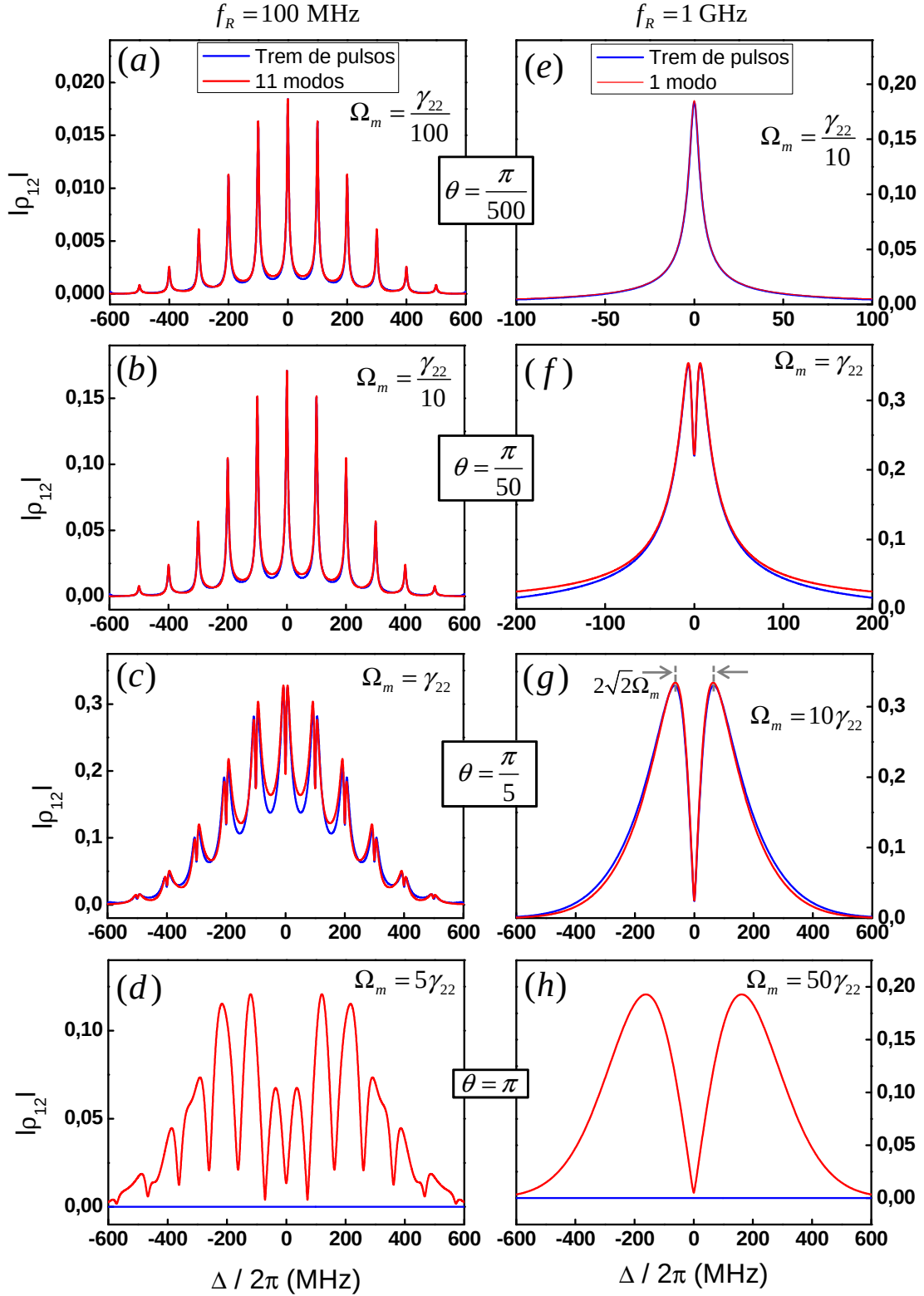


Figura 4.6 Módulo da coerência ρ_{12} , no regime estacionário, em função dos grupos de átomos do vapor, para (coluna esquerda) $f_R = 100$ MHz e (coluna direita) $f_R = 1$ GHz. As curvas azuis foram obtidas a partir da interação com um trem de pulsos com área θ como indicado, e as curvas vermelhas foram obtidas a partir da interação com campos cw equidistantes de f_R em frequência, com as frequências de Rabi por modo Ω_m indicado.

Teoria analítica para o aprisionamento coerente de população

Neste capítulo apresentaremos uma análise do aprisionamento coerente de população (CPT - *coherent population trapping*) induzido por um trem de pulsos ultracurtos em um sistema de três níveis do tipo Λ (lambda), próximo das ressonâncias de um e de dois fótons.

O aprisionamento coerente de população foi observado pela primeira vez em 1976 por Al-zetta e colaboradores [55]. Mesmo o CPT induzido por um trem de pulsos, no regime de acumulação coerente, é um tema de pesquisa relativamente antigo. Em 1981, Mlynek e colaboradores [56] observaram os efeitos na coerência atômica ao ajustar a taxa de repetição dos pulsos a um submúltiplo da diferença de frequência entre dois níveis hiperfinos do sódio. Teoricamente, o problema foi primeiramente estudado por Kocharovskaya e Khanin [27], em 1986. Um estudo mais realístico, envolvendo a interação entre um trem de pulsos de femtossegundos e vapor atômico de Rb, modelados como sistemas de quatro níveis, foi realizado por Aumiler [57], em 2010. O estudo teórico do CPT induzido por um trem de pulsos em sólidos cristalinos também tem sido reportado [58].

A observação experimental do sinal da transparência eletromagneticamente induzida (EIT - *electromagnetically induced transparency*), em função da taxa de repetição de um trem de pulsos, produzido por um laser de diodo *mode-locked*, foi obtida por Brattke [59] em uma célula com vapor de Rb com gás *buffer*, em 1998, e também por Sautenkov [60] em uma célula com vapor de Rb sem gás *buffer*, em 2005. O fenômeno da EIT, no qual o sistema atômico se torna transparente a um feixe de prova, está intimamente relacionado ao CPT [61].

Em 2007, Soares e Araújo apresentaram um tratamento analítico iterativo para o problema do CPT induzido por um trem de pulsos ultracurtos, onde eles estudaram o comportamento transiente das populações e das coerências atômicas em um sistema Λ degenerado [62]. Em 2006, a espectroscopia com a taxa de repetição no regime de EIT foi explorada por Arissian e Diels [63] usando um laser *mode-locked* de picossegundos.

Antes de entrar no efeito induzido por um trem de pulsos, revisaremos o caso clássico, que é o de dois campos cw interagindo com um sistema Λ .

5.1 Aprisionamento coerente de população

Suponha a interação ressonante entre dois campos e um sistema Λ , representada na Fig. 5.1, na qual $|1\rangle$ e $|2\rangle$ são os estados fundamentais, não conectados na aproximação de dipolo elétrico. Escreveremos o Hamiltoniano da interação átomo-campo como

$$\hat{H}_{int} = -\mu_{13}E_1(t)|1\rangle\langle 3| - \mu_{23}E_2(t)|2\rangle\langle 3| + \text{h.c.}, \quad (5.1)$$

onde h.c. indica o hamiltoniano conjugado. Podemos encontrar as populações e as coerências, após um tempo infinito de interação, resolvendo as equações de Bloch (ver equações C.13 do apêndice C) no regime estacionário. Se desprezarmos a taxa de relaxação da coerência entre os

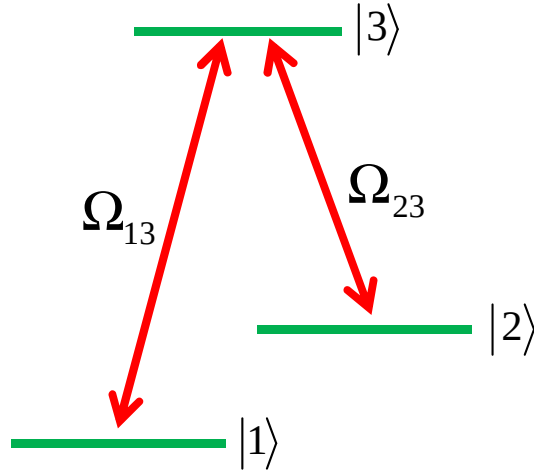


Figura 5.1 Sistema atômico de três níveis do tipo Λ , onde Ω_{13} e Ω_{23} representam as frequências de Rabi de dois campos (E_1 e E_2) nas transições indicadas.

estados fundamentais ($\gamma_{12} \approx 0$), então os elementos não-nulos da matriz densidade são dados por

$$\bar{\rho}_{11} = \frac{\Omega_{13}^2}{\Omega_{13}^2 + \Omega_{23}^2} \quad (5.2a)$$

$$\bar{\rho}_{22} = \frac{\Omega_{23}^2}{\Omega_{13}^2 + \Omega_{23}^2} \quad (5.2b)$$

$$\bar{\rho}_{12} = -\frac{\Omega_{13}\Omega_{23}}{\Omega_{13}^2 + \Omega_{23}^2} e^{i\omega_{21}t}, \quad (5.2c)$$

onde a barra indica que a solução está dentro do regime estacionário.

Para simplificar, começaremos com as populações iniciais igualmente distribuídas nos estados fundamentais ($\rho_{11}^{(0)} = \rho_{22}^{(0)} = 1/2$) e ficaremos restritos ao caso particular $\Omega_{13} = \Omega_{23}$. Então, considerando apenas a envoltória lenta da coerência ρ_{12} , a matriz densidade tende a

$$\hat{\sigma} \doteq \begin{pmatrix} 1/2 & 0 & 0 \\ 0 & 1/2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \xrightarrow{t \rightarrow \infty} \begin{pmatrix} 1/2 & -1/2 & 0 \\ -1/2 & 1/2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (5.3)$$

Isto é, partimos dos átomos em uma mistura incoerente dos estados fundamentais e chegamos a uma superposição coerente [40]. A relação acima pode ser melhor visualizada na notação de Dirac:

$$|1\rangle\langle 1| + |2\rangle\langle 2| \xrightarrow{t \rightarrow \infty} |D\rangle\langle D|, \quad (5.4)$$

onde

$$|D\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|1\rangle - |2\rangle). \quad (5.5)$$

Ou seja, os átomos ficam “aprisionados” em $|D\rangle$, conhecido como estado escuro (*dark state*), que é desacoplado do estado $|3\rangle$:

$$\langle D|\hat{\mu}|3\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}[\langle 1|\hat{\mu}|3\rangle - \langle 2|\hat{\mu}|3\rangle] = 0, \quad (5.6)$$

onde $\hat{\mu}$ é o operador dipolo elétrico. Esse “desacoplamento” pode ser entendido como uma interferência destrutiva entre os dois caminhos de excitação. Podemos pensar dessa forma ao notar a diferença de fase de π entre os estados fundamentais, responsável pelo sinal negativo na Eq. (5.5).

Observe que, nas condições apresentadas aqui, o sistema inevitavelmente cai no estado escuro, mesmo em campos fracos.

O elemento da matriz densidade do estado escuro, dado por

$$\rho_{DD} = \langle D|\hat{\rho}|D\rangle = \frac{1}{2}(\rho_{11} + \rho_{22}) - \text{Re}(\rho_{12}), \quad (5.7)$$

é máximo quando $\rho_{12} = -1/2$. Assim, ρ_{12} contém toda a informação a respeito do CPT, de forma que ela será a variável de interesse desse capítulo.

5.2 Equações de Bloch

Nosso tratamento é baseado no modelo apresentado na Fig. 5.2. Consideramos um sistema de átomos de três níveis na configuração tipo Λ interagindo com um trem de pulsos, representado pela Eq. (1.1):

$$E(t) = \sum_{n=0}^{N-1} E_0(t - nT_R) e^{-i(\omega_c t - n\omega_c T_R + n\Delta\phi)}. \quad (5.8)$$

$E_0(t)$ representa a envoltória de um pulso, N indica a quantidade de pulsos, T_R o intervalo de tempo entre dois pulsos consecutivos, ω_c a frequência da onda portadora e $\Delta\phi$ a diferença de fase pulso-a-pulso introduzida pelos elementos ópticos da cavidade do laser.

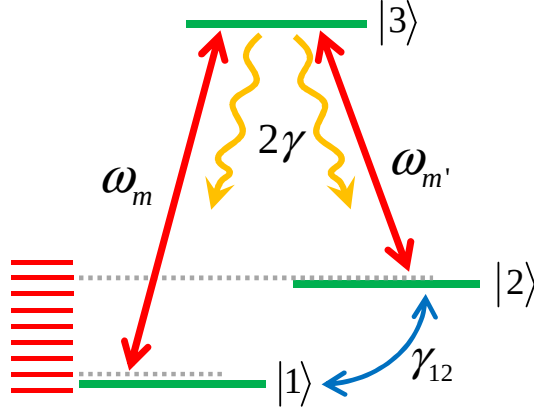


Figura 5.2 Representação esquemática de um sistema de três níveis do tipo Λ , onde ω_m e $\omega_{m'}$ são dois modos distintos do pente de frequências.

Os estados $|1\rangle$ e $|2\rangle$ não estão conectados na aproximação de dipolo elétrico. Assim, o hamiltoniano da interação átomo-campo é dado também pela Eq. (5.1).

$$\hat{H}_{int} = -\mu_{13}E(t)|1\rangle\langle 3| - \mu_{23}E(t)|2\rangle\langle 3| + \text{h.c.} \quad (5.9)$$

As equações de Bloch [ver equações (C.10) do apêndice C] podem ser escritas como:

$$\dot{\rho}_{11} = [i\Omega_{31}(t)\rho_{31} + \text{c.c.}] + \gamma\rho_{33} \quad (5.10a)$$

$$\dot{\rho}_{22} = [i\Omega_{32}(t)\rho_{32} + \text{c.c.}] + \gamma\rho_{33} \quad (5.10b)$$

$$\dot{\rho}_{33} = [i\Omega_{31}(t)\rho_{13} + \text{c.c.}] + [i\Omega_{32}(t)\rho_{23} + \text{c.c.}] - 2\gamma\rho_{33} \quad (5.10c)$$

$$\dot{\rho}_{12} = (i\omega_{21} - \gamma_{12})\rho_{12} - i\Omega_{32}(t)\rho_{13} + i\Omega_{13}(t)\rho_{32} \quad (5.10d)$$

$$\dot{\rho}_{13} = (i\omega_{31} - \gamma)\rho_{13} + i\Omega_{31}(t)(\rho_{33} - \rho_{11}) - i\Omega_{32}(t)\rho_{12} \quad (5.10e)$$

$$\dot{\rho}_{23} = (i\omega_{32} - \gamma)\rho_{23} + i\Omega_{32}(t)(\rho_{33} - \rho_{22}) - i\Omega_{31}(t)\rho_{21}, \quad (5.10f)$$

onde γ_{12} e $\gamma = \gamma_{13} = \gamma_{23}$ são as taxas de relaxação das coerências ρ_{12} , ρ_{13} e ρ_{23} , respectivamente. A taxa de relaxação da população ρ_{33} é dada por 2γ , e $\Omega_{ij}(t) = \mu_{ij}E(t)/\hbar$. Estaremos sempre no regime de acumulação coerente, onde as taxas de relaxação de todos os elementos da matriz densidade são menores do que a taxa de repetição do trem de pulsos.

Começaremos a análise dentro do domínio do tempo. Vamos investigar três situações, onde as condições em que o sistema atinge o regime estacionário, para cada caso, são obtidas pela integração numérica das equações de Bloch usando o algoritmo de Runge-Kutta de quarta ordem (ver seção 2.2.1). O bombeio óptico ocorre quando o modo m do pente de frequências entra em ressonância com uma das transições de um fóton [33]: $\omega_{3i}/2\pi = mf_R + f_0$, para

$i = 1$ ou $i = 2$. Neste caso, toda a população é bombeada para o estado $|1\rangle$ ($i = 2$) ou $|2\rangle$ ($i = 1$), de forma que todas as coerências entre os estados tendem a zero. A condição de ressonância Raman é caracterizada pela ressonância de dois fótons pura (sem ressonância de um fóton), e é obtida quando a taxa de repetição dos pulsos ou seus múltiplos coincide com a diferença de frequência entre os estados fundamentais [56], isto é, $\omega_{21}/2\pi = qf_R$, sendo q um número inteiro. A situação mais interessante, entretanto, é quando o sistema atômico está em ressonância simultânea com as transições de um e de dois fótons, que corresponde à condição de EIT. Neste caso, a coerência máxima é atingida com um número de pulsos muito menor do que na condição de ressonância Raman.

5.3 Resultados numéricos

A evolução temporal das populações ρ_{11} , ρ_{22} e ρ_{33} , durante a interação com o trem de pulsos, nas condições de ressonância de um e de dois fótons, está mostrada na Fig. 5.3(a). Os resultados são idênticos aos obtidos para um sistema Λ degenerado através da solução analítica iterativa [62]. Sem perda de generalidade, fizemos $f_0 = 0$ e usamos pulsos retangulares de duração $T_p = 100$ fs. Para simplificar, consideramos também $\mu_{13} = \mu_{23} = \mu$ e usamos a definição da frequência de Rabi por modo [ver Eq. (4.10)]:

$$\Omega_m = \Omega_0 \times \left(\frac{T_p}{T_R} \right), \quad (5.11)$$

onde Ω_0 é a magnitude da frequência de Rabi usual para um pulso quadrado. Nessas condições de ressonância a coerência entre os estados fundamentais ρ_{12} é mostrada na Fig. 5.3(b), para três valores de Ω_m . Esses resultados foram obtidos para $\gamma_{21} = 0$, $\omega_{31}/2\pi = 4 \times 10^6 f_R$, $\omega_{21}/2\pi = 70 f_R$ e $f_R = 50\gamma/2\pi$. Conforme vimos no caso de campos cw, nessas condições de ressonância o sistema sempre atinge a coerência máxima, embora que, para campos fracos, isso pode demorar mais do que 50 mil pulsos, enquanto que para $\Omega_m \approx \gamma$ essa coerência completa é obtida antes de uma centena de pulsos, e as oscilações de Rabi são observadas tanto nas populações quanto na coerência [62].

No regime estacionário, a resposta atômica à excitação pelo trem de pulsos de fs pode ser estudada em função da taxa de repetição dos pulsos. A Fig. 5.4 mostra (a) a população do estado excitado e (b) a coerência $|\rho_{12}|$ em função de δf_R , a variação de f_R em torno da condição $\omega_{21}/2\pi = 70 f_R$. Estes resultados foram obtidos com os mesmos parâmetros da Fig. 5.3, com $\omega_c = \omega_{31}$, $\gamma/2\pi = 2$ MHz e $\Omega_m = 2\gamma$, depois da interação do sistema atômico com mais de 500 pulsos. Os valores máximos da população do estado excitado, ρ_{33}^M , estão modulados pela ressonância Raman do meio. Como mostrado na Fig. 5.4(a), um aumento de ρ_{33}^M é observado quando f_R se aproxima da condição de ressonância de dois fótons. Entretanto, exatamente nessa ressonância, ρ_{33}^M vai à zero (c) e a envoltória da coerência $|\rho_{12}|$ [(b)] atinge seu valor máximo. O “buraco” na ressonância Raman e o valor máximo da envoltória de $|\rho_{12}|$ são características de uma “janela de EIT”. A observação experimental dessas janelas de EIT, usando pulsos ultracurtos, foi descrita nas referências [60, 63]. Nas figuras (d) e (e) temos os detalhes das proximidades da região Raman. Podemos ver os picos de ρ_{33} devido à ressonância de um fóton $\omega_{3i} = m f_R$. Próximo a $\delta f_R = 0$, isto é, quando as ressonâncias de um e de dois fótons

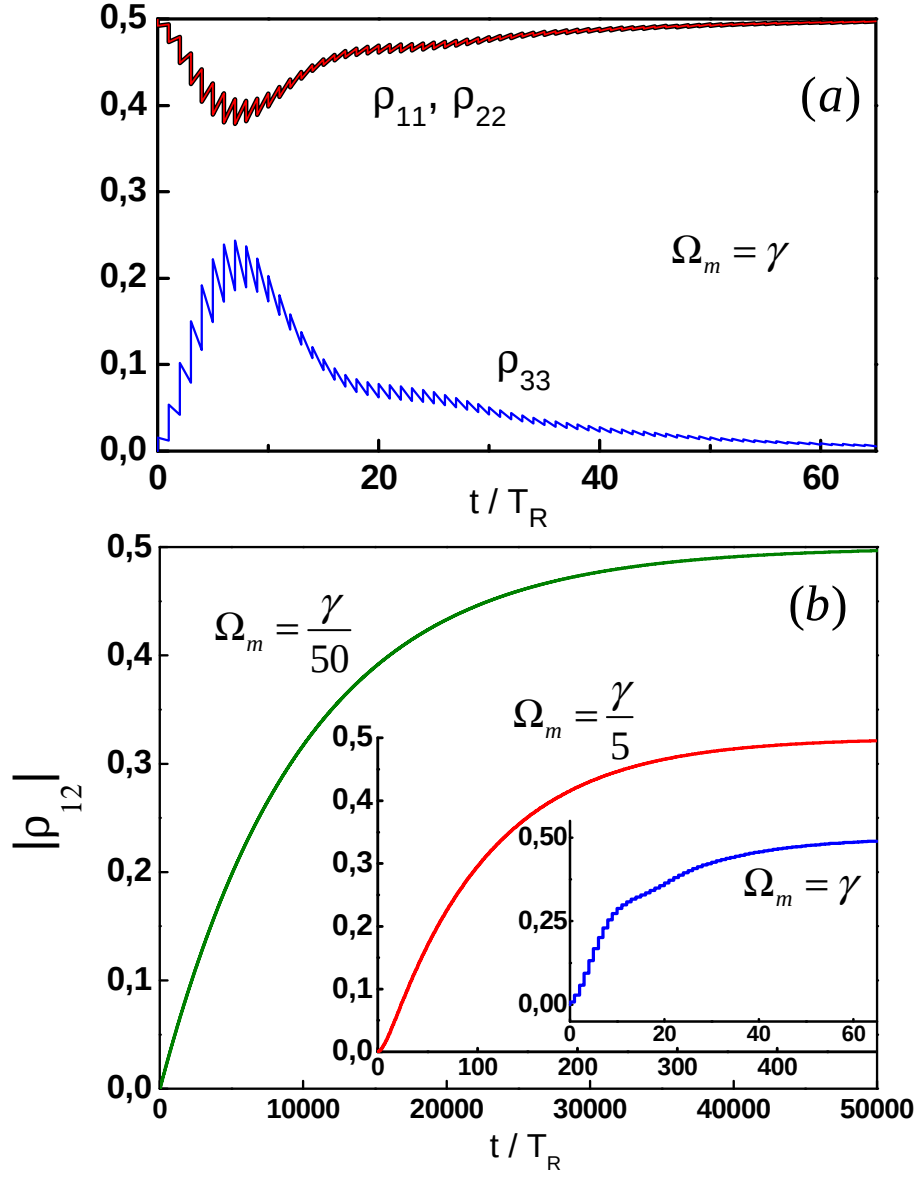


Figura 5.3 Evolução temporal (a) das populações e (b) da coerência entre os estados fundamentais devido à interação com o trem de pulsos, obtido pela integração numéricas das equações de Bloch [Eq. (5.10)]. Usamos $T_p = 100$ fs, $\omega_{31}/2\pi = 4 \times 10^6 f_R$, $\omega_{21}/2\pi = 70 f_R$, $\gamma_{21} = 0$ e $f_R = 50\gamma/2\pi$.

estão presentes, observamos um pente de linhas de EIT, caracterizado pelos vários buracos em ρ_{33} . Cada uma dessas linhas de EIT é formada por diferentes pares de modos (m, m') .

A diferença em frequência entre dois picos de EIT sucessivos [Fig. 5.4(d)] pode ser calculada da seguinte forma: suponha um modo m em ressonância com a transição ω_{3i} . Façamos $f_0 = 0$. Então, a mínima variação de f_R tal que o modo $m \pm 1$ ocupe o lugar de m na ressonância é dada por

$$\begin{aligned} 2\pi m f_R &= \omega_{3i} \\ \frac{\partial f_R}{\partial m} &= -\frac{\omega_{3i}}{2\pi m^2} \\ |\delta f_R| &= \frac{2\pi f_R^2}{\omega_{3i}} = \frac{f_R}{m}, \end{aligned} \quad (5.12)$$

onde fizemos $\partial f_R = \delta f_R$ e $\partial m = \delta m = 1$. Já a separação entre duas janelas de EIT é dada, seguindo um raciocínio análogo, por

$$|\delta f_R| = \frac{2\pi f_R^2}{\omega_{21}} = \frac{f_R}{q}. \quad (5.13)$$

Conforme f_R varia, q e m têm que ser ajustados, de forma que as separações em frequência não são equidistantes. Ainda, como m é da ordem de 10^6 e q assume valores da ordem de 70, temos que $f_R/m \sim \mathcal{O}(\text{Hz})$ e $f_R/q \sim \mathcal{O}(\text{MHz})$. Usando os parâmetros mencionados para o cálculo numérico e sabendo que $\omega_{3i} \approx \omega_c$, encontramos 25 Hz e $\approx 1,4$ MHz para a diferença na taxa de repetição entre dois picos de EIT e duas janelas de EIT, respectivamente.

5.4 Tratamento analítico

Conforme descrito no capítulo 4, o tratamento analítico com ênfase no domínio da frequência é o melhor caminho para investigar o aprisionamento coerente de população induzido pelo pente de frequências. Estamos interessados na resposta atômica próximo à ressonância de dois fótons, e após um longo período de interação com o trem de pulsos tal que o sistema já tenha atingido o regime estacionário. No limite de campo fraco, podemos negligenciar as variações nas populações e escrever $\rho_{33} = 0$, $\rho_{11} = \bar{\rho}_{11}$ e $\rho_{22} = \bar{\rho}_{22}$, onde $\bar{\rho}_{11}$ e $\bar{\rho}_{22}$ são as populações no regime estacionário e nas condições de ressonâncias de um e de dois fótons [64].

Começaremos o tratamento a partir da equação do pente de frequências [Eq. (1.4)]:

$$\tilde{E}(\omega) = 2\pi \tilde{E}_0(\omega - \omega_c) f_R \sum_{m=-\infty}^{\infty} \delta(\omega - \omega_m), \quad (5.14)$$

Aplicando a transformada de Fourier em todos os membros da Eq. (5.10d), temos que

$$\begin{aligned} \mathcal{F}[\dot{\rho}_{12}(t)] &= (i\omega_{21} - \gamma_{12})\mathcal{F}[\rho_{12}(t)] - i\mathcal{F}[\Omega_{32}(t)\rho_{13}(t)] + i\mathcal{F}[\Omega_{13}(t)\rho_{32}(t)] \\ \implies \\ i\omega \tilde{\rho}_{12}(\omega) &= (i\omega_{21} - \gamma_{12})\tilde{\rho}_{12}(\omega) - i\tilde{\Omega}_{32}(\omega) \otimes \tilde{\rho}_{13}(\omega) + i\tilde{\Omega}_{13}(\omega) \otimes \tilde{\rho}_{32}(\omega), \end{aligned} \quad (5.15)$$

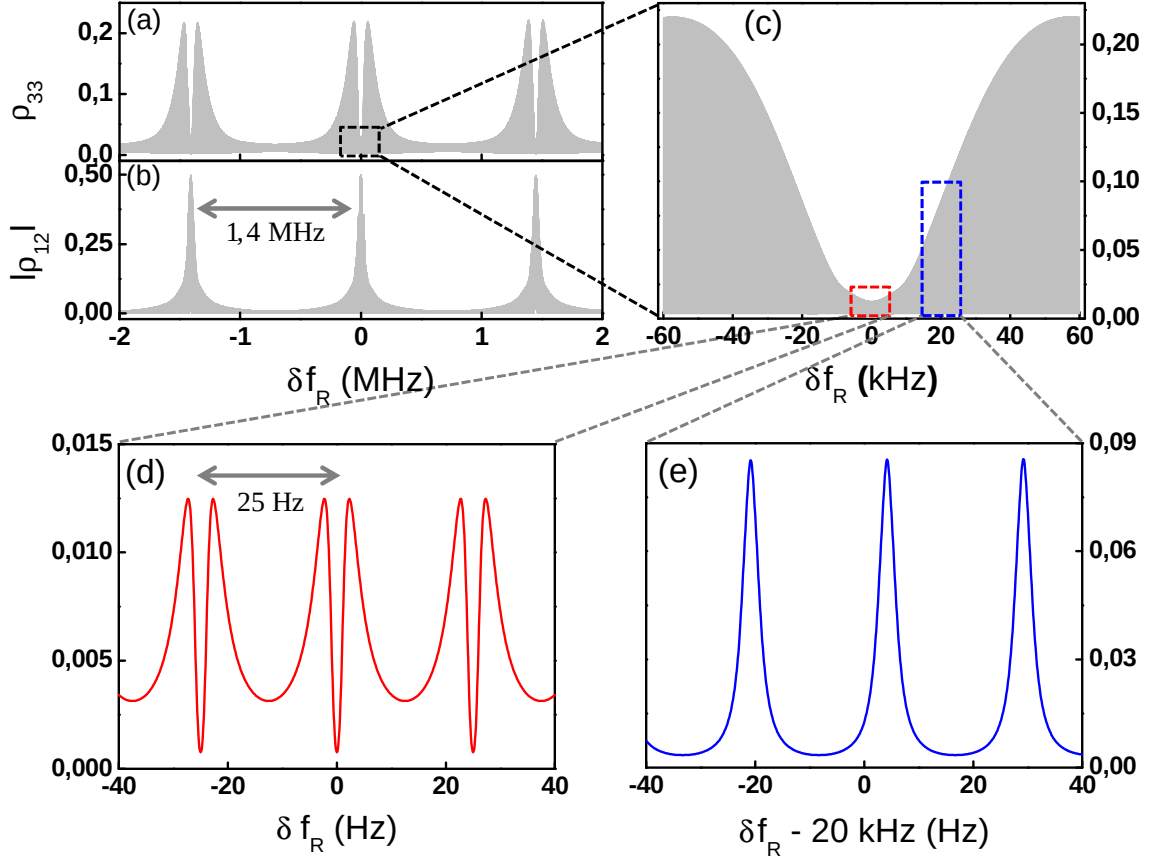


Figura 5.4 (a) População ρ_{33} e (b) coerência $|\rho_{12}|$ em função de δf_R , para $f_R = 100$ MHz, $(\gamma/2\pi) = 2$ MHz, $\omega_{21}/2\pi = 70 f_R$ e $\Omega_m = 2\gamma$, calculado pela integração numérica das equações de Bloch [Eq. (5.10)]. (c), (d) e (e) mostram os detalhes das regiões tracejadas, como indicado. Em (d) a taxa de repetição está variando em torno de 100 MHz, e em (e), em torno de 100 MHz + 20 KHz.

onde $\mathcal{F}$ representa a transformada de Fourier de uma função e $\tilde{\Omega}_{ij}(\omega) \otimes \tilde{\rho}_{kl}(\omega)$ é a convolução entre as duas funções [65]. As transformadas de Fourier das coerências e das frequências de Rabi são dadas por

$$\tilde{\rho}_{ij}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \rho_{ij}(t) e^{-i\omega t} dt \quad (5.16a)$$

$$\tilde{\Omega}_{ij}(\omega) = 2\pi \sum_m \Omega_{ij}^m \delta(\omega - \omega_m), \quad (5.16b)$$

onde Ω_{ij}^m é a frequência de Rabi do modo m na transição $|i\rangle \rightarrow |j\rangle$:

$$\Omega_{ij}^m = \frac{\mu_{ij} \tilde{E}_0(\omega_m - \omega_c)}{\hbar T_R}. \quad (5.17)$$

Efetuada os mesmos cálculos nas equações (5.10e) e (5.10f), podemos escrever o seguinte sistema de equações de Bloch no domínio da frequência:

$$\tilde{\rho}_{12}(\omega) = \frac{1}{\omega_{21} - \omega + i\gamma_{12}} \times \left[\tilde{\Omega}_{32}(\omega) \otimes \tilde{\rho}_{13}(\omega) - \tilde{\Omega}_{13}(\omega) \otimes \tilde{\rho}_{32}(\omega) \right] \quad (5.18a)$$

$$\tilde{\rho}_{13}(\omega) = \frac{1}{\omega_{31} - \omega + i\gamma} \times \left[\tilde{\Omega}_{23}(\omega) \otimes \tilde{\rho}_{12}(\omega) + \bar{\rho}_{11} \tilde{\Omega}_{13}(\omega) \right] \quad (5.18b)$$

$$\tilde{\rho}_{23}(\omega) = \frac{1}{\omega_{32} - \omega + i\gamma} \times \left[\tilde{\Omega}_{13}(\omega) \otimes \tilde{\rho}_{21}(\omega) + \bar{\rho}_{22} \tilde{\Omega}_{23}(\omega) \right]. \quad (5.18c)$$

Usando a Eq. (5.16b) e o teorema da convolução [65], temos que:

$$\begin{aligned} \tilde{\Omega}_{ij}(\omega) \otimes \tilde{\rho}_{kl}(\omega) &= \frac{1}{2\pi} \int 2\pi \sum_m \Omega_{ij}^m \delta(\eta - \omega_m) \tilde{\rho}_{kl}(\omega - \eta) d\eta \\ &\Rightarrow \\ \tilde{\Omega}_{ij}(\omega) \otimes \tilde{\rho}_{kl}(\omega) &= \sum_m \Omega_{ij}^m \tilde{\rho}_{kl}(\omega - \omega_m). \end{aligned} \quad (5.19)$$

Com isso, podemos reescrever as equações (5.18) como:

$$\tilde{\rho}_{12}(\omega) = \frac{1}{\omega_{21} - \omega + i\gamma_{12}} \times \left[\sum_m \Omega_{32}^m \tilde{\rho}_{13}(\omega + \omega_m) - \sum_m \Omega_{13}^m \tilde{\rho}_{32}(\omega - \omega_m) \right] \quad (5.20a)$$

$$\tilde{\rho}_{13}(\omega) = \frac{1}{\omega_{31} - \omega + i\gamma} \times \left[\sum_m \Omega_{23}^m \tilde{\rho}_{12}(\omega - \omega_m) + 2\pi \bar{\rho}_{11} \sum_m \Omega_{13}^m \delta(\omega - \omega_m) \right] \quad (5.20b)$$

$$\tilde{\rho}_{23}(\omega) = \frac{1}{\omega_{32} - \omega + i\gamma} \times \left[\sum_m \Omega_{13}^m \tilde{\rho}_{21}(\omega - \omega_m) + 2\pi \bar{\rho}_{22} \sum_m \Omega_{23}^m \delta(\omega - \omega_m) \right]. \quad (5.20c)$$

Como estamos interessados na coerência entre os estados fundamentais, usaremos as equações (5.20b) e (5.20c) para obter $\tilde{\rho}_{13}(\omega + \omega_m)$ e $\tilde{\rho}_{32}(\omega - \omega_m)$, e então combinaremos com a equação (5.20a). Encontramos

$$\begin{aligned} \tilde{\rho}_{12}(\omega) &= \frac{1}{\omega_{21} - \omega + i\gamma_{12}} \\ &\times \sum_{m,m'} \left\{ 2\pi \Omega_{13}^m \Omega_{32}^{m'} \left[\frac{\bar{\rho}_{11}}{\omega_{31} - \omega - \omega_{m'} + i\gamma} - \frac{\bar{\rho}_{22}}{\omega_{32} - \omega + \omega_m - i\gamma} \right] \delta(\omega - \omega_m + \omega_{m'}) \right. \\ &\left. + \left[\frac{\Omega_{23}^m \Omega_{32}^{m'}}{\omega_{31} - \omega - \omega_{m'} + i\gamma} - \frac{\Omega_{13}^m \Omega_{31}^{m'}}{\omega_{32} - \omega + \omega_m - i\gamma} \right] \tilde{\rho}_{12}(\omega - \omega_m + \omega_{m'}) \right\}. \end{aligned} \quad (5.21)$$

A equação (5.21) permite uma solução iterativa para $\tilde{\rho}_{12}(\omega)$. No limite de campo fraco, onde negligenciamos os processos envolvendo transições de quatro ou mais fótons, podemos obter uma solução fechada. Nesse caso, fazendo $\tilde{\rho}_{12}(\omega - \omega_m + \omega_{m'}) \approx \tilde{\rho}_{12}(\omega)$, obtemos

$$\tilde{\rho}_{12}(\omega) = \frac{2\pi \sum_{m,m'} \left[\frac{\bar{\rho}_{11}}{\omega_{31} - \omega - \omega_{m'} + i\gamma} - \frac{\bar{\rho}_{22}}{\omega_{32} - \omega + \omega_m - i\gamma} \right] \frac{\Omega_{13}^m \Omega_{32}^{m'} \delta(\omega - \omega_m + \omega_{m'})}{\omega_{21} - \omega + i\gamma_{12}}}{1 - \frac{1}{\omega_{21} - \omega + i\gamma_{12}} \sum_{m,m'} \left[\frac{\Omega_{23}^m \Omega_{32}^{m'}}{\omega_{31} - \omega - \omega_{m'} + i\gamma} - \frac{\Omega_{13}^m \Omega_{31}^{m'}}{\omega_{32} - \omega + \omega_m - i\gamma} \right]}. \quad (5.22)$$

A coerência entre os estados fundamentais, no regime estacionário, é então dada pela transformada de Fourier inversa da equação acima. Assim:

$$\rho_{12}(t) = \frac{\sum_{m,m'} \frac{\Omega_{13}^m \Omega_{32}^{m'}}{\omega_{21} - \omega_m + \omega_{m'} + i\gamma_{12}} \left[\frac{\bar{\rho}_{11}}{\omega_{31} - \omega_m + i\gamma} - \frac{\bar{\rho}_{22}}{\omega_{32} + \omega_{m'} - i\gamma} \right] e^{i(\omega_m - \omega_{m'})t}}{1 - \sum_{m,m'} \frac{1}{\omega_{21} - \omega_m + \omega_{m'} + i\gamma_{12}} \left[\frac{\Omega_{23}^m \Omega_{32}^{m'}}{\omega_{31} - \omega_m + i\gamma} - \frac{\Omega_{13}^m \Omega_{31}^{m'}}{\omega_{32} + \omega_{m'} - i\gamma} \right]}. \quad (5.23)$$

O denominador $\omega_{21} - \omega_m + \omega_{m'} + i\gamma_{12}$ na equação acima indica que selecionamos apenas processos envolvendo dois modos do pente de frequências. Quando a diferença de frequência entre esses dois modos, $\omega_m - \omega_{m'}$, é igual à diferença de frequência entre os estados fundamentais, ω_{21} , o sistema atômico é bombeado para uma superposição entre os dois estados [Eq. (5.5)], e portanto, o aumento em ρ_{12} caracteriza a condição de EIT. Nesta situação, temos também a contribuição das ressonâncias de um fóton de cada modo, como indicado pelos denominadores $\omega_{31} - \omega_m + i\gamma$ e $\omega_{32} + \omega_{m'} - i\gamma$. Podemos ver isso na Fig. 5.5, onde $|\rho_{12}|$ está representado em função da taxa de repetição dos pulsos. A envoltória dos valores máximos da coerência, $|\rho_{12}|_{max}$, determina a janela de EIT e cada pico corresponde a uma transição ressonante de um fóton. O que vemos é uma janela de EIT com um pente de linhas de EIT bem finas. Usamos nessa figura $\bar{\rho}_{11} = \bar{\rho}_{22} = 1/2$ [ver equações (5.2)], de forma que as frequências de Rabi das duas transições são iguais ($\Omega_{13}^m = \Omega_{23}^m = \Omega_m = \gamma/50$) e todos os outros parâmetros são os mesmos da Fig. 5.3. Nessas condições, o sistema atinge o valor máximo da coerência.

Podemos usar a Eq. (5.23) para obter a largura de linha da janela de EIT. Para isto, vamos considerar apenas os dois modos (m e m') do pente de frequências que estão mais próximos da ressonância Raman, e negligenciaremos as dessintonias de um fóton (estamos interessados na envoltória): $\omega_m = \omega_{31}$ e $\omega_{m'} = \omega_{32}$. Neste caso, podemos escrever

$$\begin{aligned} \omega_{21} - \omega_m + \omega_{m'} &= \omega_{21} - 2\pi(m - m')f_R \\ &= 2\pi(m - m')\delta f_R, \end{aligned} \quad (5.24)$$

onde usamos que $f_R = f_R^0 + \delta f_R$ e que $\omega_{21} = 2\pi(m - m')f_R^0$ (isto é, δf_R é uma pequena variação em torno da ressonância Raman). Assim, a Eq. (5.23) se torna

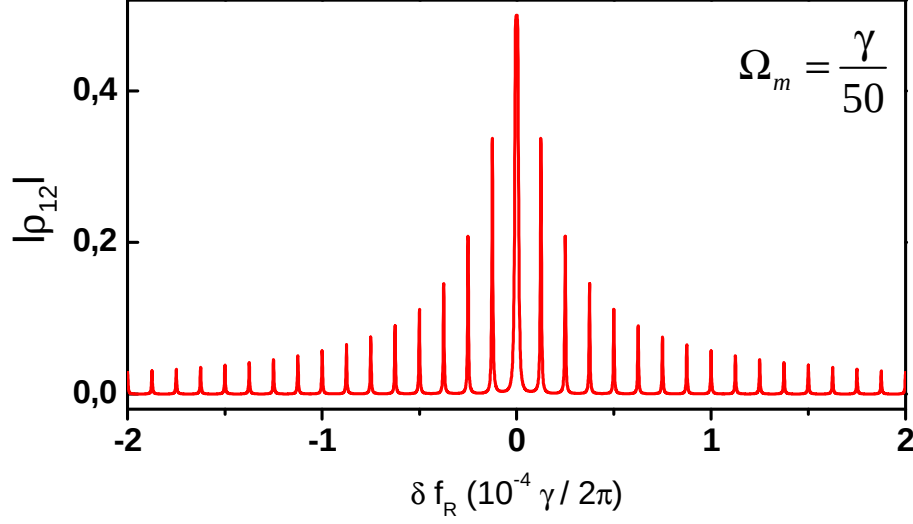


Figura 5.5 $|\rho_{12}|$, dado pela Eq. (5.23), em função de δf_R .

$$\rho_{12}(t) = \frac{1}{2} \left\{ \frac{-e^{i\omega_{21}t}}{1 - \frac{i\gamma[i\gamma_{12} - 2\pi(m-m')\delta f_R]}{2|\Omega_m|^2}} \right\}, \quad (5.25)$$

onde, para simplificar, fizemos $\Omega_{13}^m = \Omega_{23}^m = \Omega_m$ e $\bar{\rho}_{11} = \bar{\rho}_{22} = 1/2$.

O valor máximo da coerência ρ_{12} , determinado pela condição de ressonância de dois fótons, $\delta f_R = 0$, é dado por

$$|\rho_{12}|_{(\delta f_R=0)} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{1 + \frac{\gamma\gamma_{12}}{2|\Omega_m|^2}} \right). \quad (5.26)$$

A largura de linha $\Delta(\delta f_R)$ é determinada pelos valores de δf_R que satisfazem a condição $|\rho_{12}| = \frac{1}{2} |\rho_{12}|_{(\delta f_R=0)}$, de forma que, após alguns cálculos, chegamos em

$$\Delta(\delta f_R) = \frac{\sqrt{3}}{q\pi} \left(\gamma_{12} + \frac{2\Omega_m^2}{\gamma} \right), \quad (5.27)$$

onde $q = m - m'$ é o número de modos entre os dois estados fundamentais. A Eq. (5.27) é bem semelhante (mas não igual) à equação da largura de linha do CPT com lasers cw [66]. A diferença é a variável q (por razões óbvias) e a constante $\sqrt{3}$, fator geométrico que aparece porque aqui os dois modos tem suas frequências variadas quando f_R varia, diferentemente do caso clássico. O segundo termo dessa equação, proporcional à intensidade dos modos, descreve o alargamento por potência.

Na Fig. 5.6 representamos a envoltória de $|\rho_{12}|$ em função de δf_R , de modo a comparar a largura de linha da janela de EIT obtida dos nossos cálculos analíticos [Eq. (5.23)] com os resultados obtidos pela solução numérica das equações de Bloch [Eq. (5.10)], para três valores da frequência de Rabi por modo. Para baixas intensidades do campo, onde as expressões analíticas são válidas, as duas curvas se superpõem. Para $\Omega_m = \gamma/5$, as larguras de linha são quase as mesmas, embora pequenas diferenças já sejam notadas nas asas da curva. Para $\Omega_m = \gamma$, como esperado, o resultado analítico já não é válido, e então os resultados numéricos apresentam uma janela mais estreita devido aos efeitos de saturação.

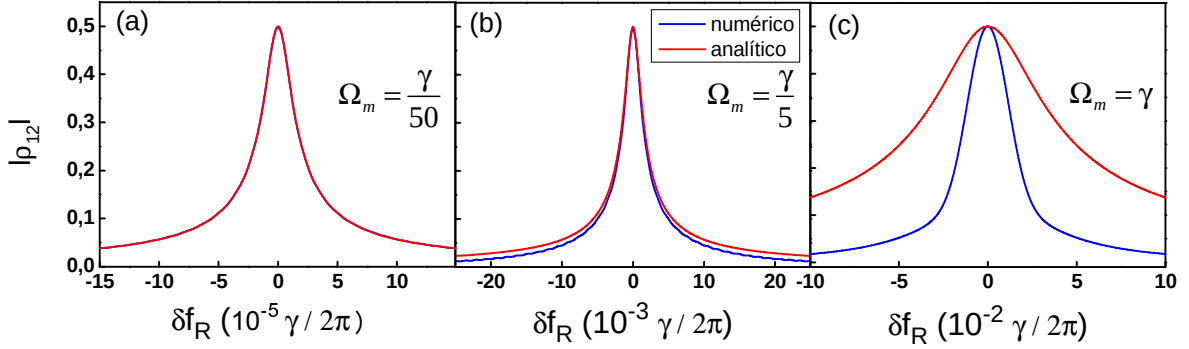


Figura 5.6 Comparação entre os resultados numéricos e analíticos para a envoltória de $|\rho_{12}|$ em função de δf_R , para três diferentes valores de Ω_m .

Lembramos também que a janela de EIT, descrita pela envoltória de $|\rho_{12}|$, foi observada experimentalmente com trem de pulsos ultracurtos produzido por um laser de diodo *mode-locked* [60], e com um laser de picossegundos [63]. Nesse último experimento, a fluorescência do estado excitado foi detectada e um decréscimo de ρ_{33} foi observado, correspondendo a um buraco na ressonância Raman mostrada na Fig. 5.4(c). Entretanto, até o momento não foi reportado a observação experimental do pente de linhas de EIT induzido por um trem de pulsos em função de sua taxa de repetição.

5.5 EIT em um vapor atômico

Como vimos na Fig. 5.5, a excitação de um sistema Λ por um trem de pulsos ultracurtos revela uma série de linhas de EIT estreitas dentro de uma janela de EIT. Conforme descrito, cada linha de EIT é determinada por uma ressonância simultânea de um e de dois fótons [Fig. 5.4(d)]. Entretanto, quando analisamos a interação com um vapor atômico, para cada valor de δf_R precisamos integrar a resposta atômica sobre todo o perfil Doppler, e então sempre vão existir grupos de velocidade atômicos em ressonância por um fóton, de forma que todas as linhas de EIT desaparecem e apenas o buraco na ressonância Raman (a janela de EIT) é observado. Esta corresponde à situação investigada por Arissian e Diels [63]. Para resolver as ressonâncias de um fóton em um vapor atômico, podemos travar a taxa de repetição dos pulsos e usar a espectroscopia seletiva em velocidade. Nesse caso, um laser contínuo com pequena

largura de linha, como um laser de diodo, pode ser usado para sondar a população de um dos estados fundamentais.

A variação da população de um dos estados fundamentais, $\Delta\rho_{11} = \rho_{11} - \rho_{11}^{(0)}$, no perfil Doppler, é mostrada na Fig. 5.7, para um meio com $\Delta_D = 100\gamma$ [ver Eq. (2.17)] e com as condições iniciais $\rho_{11}^{(0)} = \rho_{22}^{(0)} = 1/2$. Os resultados numéricos foram obtidos das equações de Bloch [Eq. (5.10)], usando $\Omega_m = \gamma/5$ para ambas as transições e após a interação do sistema atômico com mil pulsos. Os outros parâmetros foram os mesmos da Fig. 5.4. Em (a) usamos $f_R = 100$ MHz, o que corresponde a situação no qual todos os átomos estão na ressonância de dois fótons ($\omega_{21}/2\pi = 70f_R$), mas apenas alguns grupos de átomos estão também nas ressonâncias de um fóton, manifestando, portanto, os efeitos de EIT.

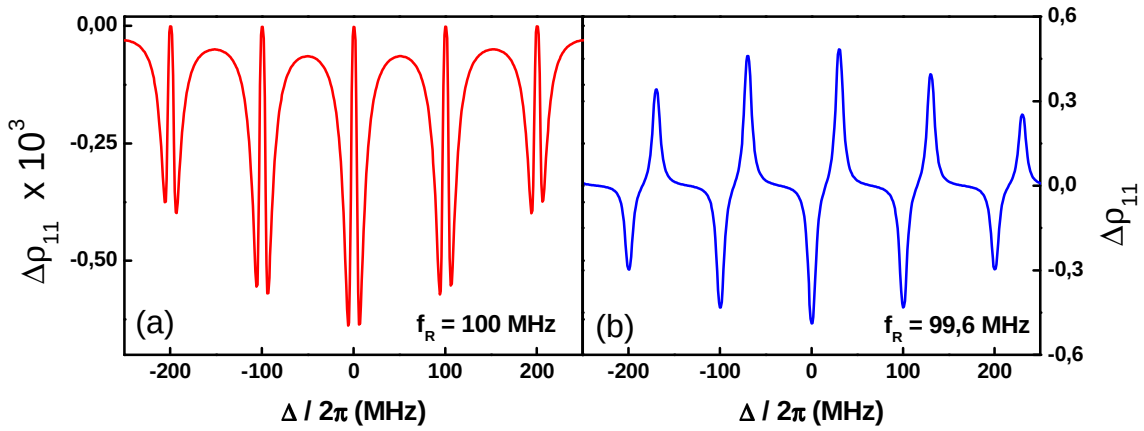


Figura 5.7 Variação da população do estado fundamental $|1\rangle$, $\Delta\rho_{11}$, em função dos grupos de átomos (Δ), para um meio com $\Delta_D = 100\gamma$. Usamos $\Omega_m = \gamma/5$ e (a) $\omega_{21}/2\pi = 70f_R$ (ressonância de dois fótons) e (b) $\omega_{21}/2\pi = 70,3f_R$.

Finalmente, quando mudamos a taxa de repetição dos pulsos para um valor diferente de um harmônico de ω_{21} , como mostrado na Fig. 5.7(b), observamos apenas os picos que correspondem ao bombeio óptico induzido pelas ressonâncias de um fóton em cada transição do sistema Λ , para grupos de átomos diferentes. Essa é a mesma situação já discutida na Fig. 3.7(a).

Assim, os resultados da Fig. 5.7(a) indicam que uma espectroscopia seletiva em velocidade pode ser usada para observar o pente de linhas de EIT no perfil Doppler de um vapor atômico.

5.6 Conclusões

Apresentamos um estudo do aprisionamento coerente de população em um sistema de três níveis tipo Λ induzido por um trem de pulsos ultracurtos, nas proximidades das ressonâncias de um e de dois fótons. A evolução temporal dos elementos da matriz densidade foi obtida da integração numérica das equações de Bloch. Os resultados mostraram um pente de linhas de EIT dentro de uma janela de ressonância Raman. Trabalhando no domínio da frequência, chegamos a uma solução analítica fechada, no regime de campo fraco, para a coerência entre

os estados fundamentais, que contêm toda a informação do fenômeno da EIT. Comparamos os resultados analíticos com os resultados numéricos, e obtemos uma boa concordância dentro do regime de validade. Finalmente, vimos que, através da técnica de espectroscopia seletiva em velocidade, em um vapor atômico, podemos sondar experimentalmente as linhas de EIT induzida pelo trem de pulsos com o uso de um laser de diodo cw.

No momento em que esta tese estava sendo finalizada, foi publicado um estudo analítico não perturbativo sobre o CPT induzido por um trem de pulsos [67]. A solução é similar ao método apresentado por Temkin [29], no qual as equações de Bloch são resolvidas tanto na ausência quanto na presença dos pulsos, onde também é usada a aproximação da interação impulsiva dos pulsos com o meio. Dessa forma, o problema é resolvido iterativamente.

Os resultados descritos nesse capítulo foram publicados no periódico *Journal of the Optical Society of America B* [68]:

Marco P. Moreno and Sandra S. Vianna, “Coherence induced by a train of ultrashort pulses in a Λ -type system,” *J. Opt. Soc. Am. B* **28**, 1124-1129 (2011).

Experimento 1: Bombeamento óptico entre níveis hiperfinos do rubídio

Usaremos um laser de femtossegundos com 1 GHz de taxa de repetição para fazer uma espectroscopia coerente em vapor de rubídio. Um laser de diodo sondará a excitação induzida pelo trem de pulsos ultracurtos nos vários grupos de velocidade atômicos. A principal motivação aqui é colocar em prática as ideias desenvolvidas no capítulo 4, isto é, modelaremos a interação átomo-campo no domínio da frequência.

Antes de entrarmos nos detalhes do experimento, descreveremos as características dos lasers de Ti:safira pulsado e de diodo usados nos resultados desse capítulo e do capítulo 7.

6.1 O laser de Ti:safira pulsado

O nosso gerador de trens de pulsos ópticos é um laser de Ti:safira pulsado [73, 74], da marca *BR-Labs* [75], modelo *TIS-ML-01*. Sua cavidade óptica, constituída de seis espelhos em formato de anel (veja a Fig. 6.1), permite uma sintonização entre 760 e 850 nm, gerando pulsos com taxa de repetição em torno de 1 GHz. Seu meio de ganho, como o nome indica, é um cristal de safira dopado com titânio ($\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$), cujo espectro de emissão e absorção pode ser encontrado na Ref. [12]. O laser é bombeado por um sistema Verdi (laser de Nd:YVO_4 bombeado por lasers de diodo com frequência dobrada), da marca *Coherent*, em 5 W de potência contínua, no comprimento de onda de 532 nm. O feixe de saída do laser de Ti:safira possui potência média que pode variar entre 300 e 900 mW.

O laser de Ti:safira emite pulsos com largura de banda da ordem de 20 nm. Um perfil espectral típico da luz emitida pelo laser, obtido com o espectrômetro *Ocean Optics*, está apresentado na Fig. 6.2.

A taxa de repetição dos pulsos pode ser sintonizada através de uma tensão aplicada nos terminais de uma cerâmica piezoelétrica (PZT) que, acoplada a um dos espelhos, faz com que o tamanho da cavidade seja variado em dezenas de micrômetros. Isso permite uma sintonização máxima da ordem de $\Delta f_R = 30$ kHz, indicando, a partir da Eq. (1.5), que a frequência óptica de um modo m próximo a 780 nm pode ser variada em torno de $\Delta\omega_m/2\pi = 10$ GHz.

Esse laser possui também uma eletrônica própria para o travamento da taxa de repetição. Um detector dentro da cavidade mede a taxa de repetição e compara com um VCO (*Voltage Controlled Oscillator*), um oscilador interno de referência, gerando um sinal de erro que pode ser ajustado através de um *loop filter* conectado ao PZT do espelho. O VCO permite ajustes finos (em alguns kHz) e grosseiros (em alguns MHz), de modo que possa acompanhar variações no tamanho da cavidade. Em medidas realizados por nós, observamos que o VCO apresenta

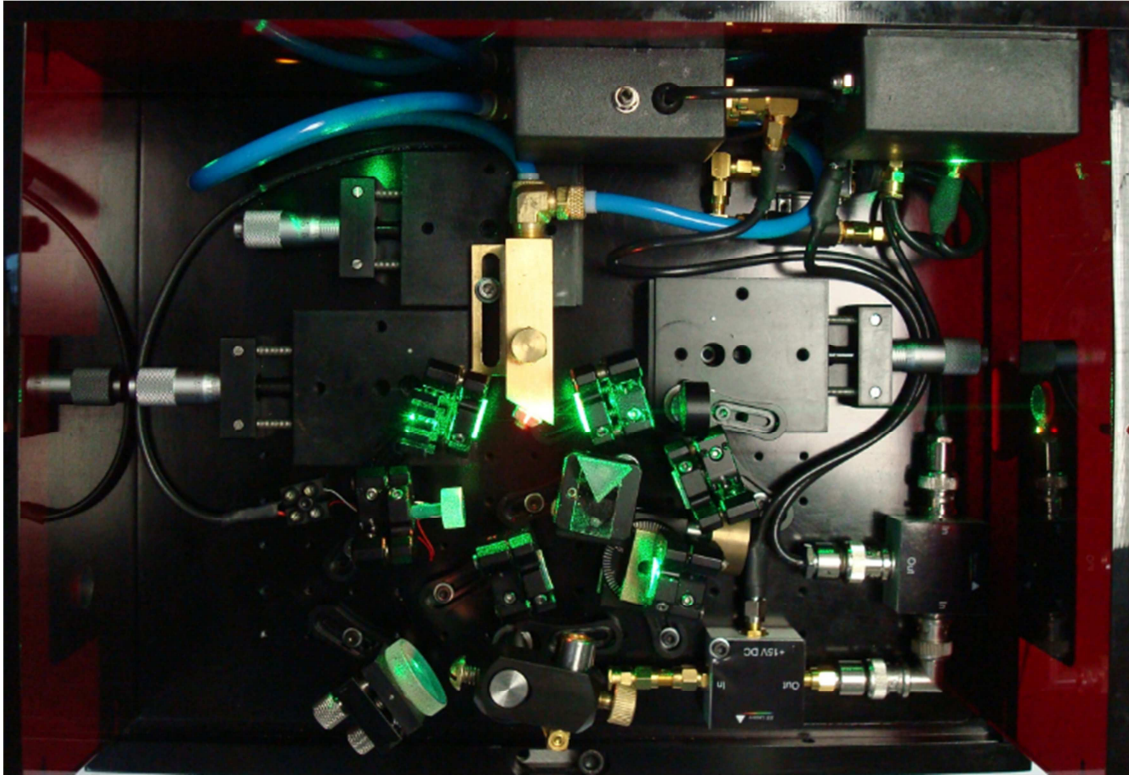


Figura 6.1 Foto da cavidade do laser de Ti:safira com 1 GHz de taxa de repetição.

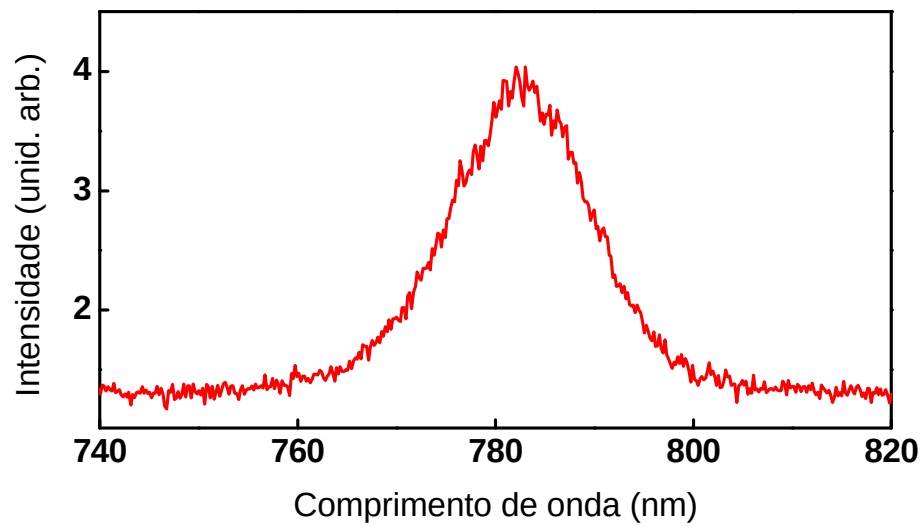


Figura 6.2 Perfil espectral da luz emitida pelo laser de Ti:safira.

um *jitter* (flutuações rápidas em torno de um valor médio) de 10 Hz e um *drift* (flutuações no valor médio, a longo prazo) de 20 Hz/min.

6.2 O laser de diodo contínuo

Usamos um laser de diodo monomodo da marca *Sanyo*, modelo *DL-7140-201*, operando em 780 nm à 18° C. Sua sintonização em frequência ocorre por meio do ajuste na corrente elétrica de injeção, através de um controlador construído especificamente para este fim. Para modular a frequência da luz emitida, usamos também um gerador de funções. A corrente atua na sintonização através do efeito Joule, cujo calor gerado muda a temperatura e, portanto, o tamanho da cavidade do laser. Trabalhando em uma corrente típica de 80 mA, o laser fornece uma potência da ordem de 50 mW, conforme está mostrado na Fig. 6.3.

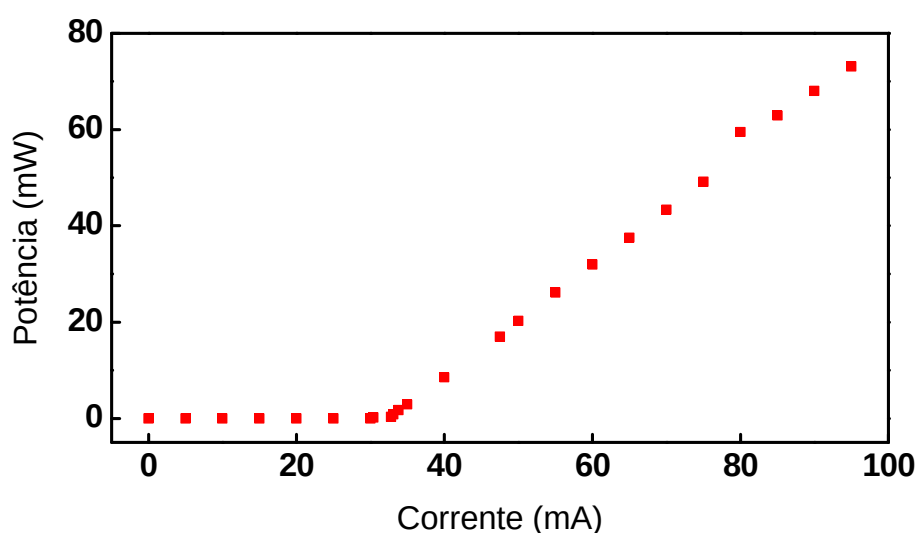


Figura 6.3 Potência de saída do laser de diodo medida em função da corrente de injeção, para $T = 18^\circ\text{C}$.

Sua montagem (Fig. 6.4), construída em nosso laboratório e sem cavidade externa, consiste de uma base metálica que serve de reservatório térmico que, através de um *peltier*, regula e estabiliza a temperatura do laser. Uma temperatura bem estabilizada é fundamental, pois além do fato já mencionado em relação ao tamanho da cavidade do laser, a temperatura também modifica a estrutura de bandas do diodo semicondutor, influenciando na frequência da luz emitida.

Com o intuito de ter uma ideia da pureza espectral do laser de diodo, estudamos a transmissão do seu feixe através de um interferômetro de Fabry-Perot [Fig. 6.5(a)]. A partir do *Free Spectral Range* do interferômetro (300 MHz), tornou-se possível uma calibração na variação da frequência do laser. Conforme indicado na Fig. 6.5(b), que mostra os detalhes da região destacada na Fig. 6.5(a), obtivemos uma largura de linha da ordem de 6 MHz. Essa medida, entretanto, está limitada pela resolução do interferômetro e, principalmente, pelo tempo de resposta do detector, porque nossos resultados (não apresentados aqui) indicam que varreduras em

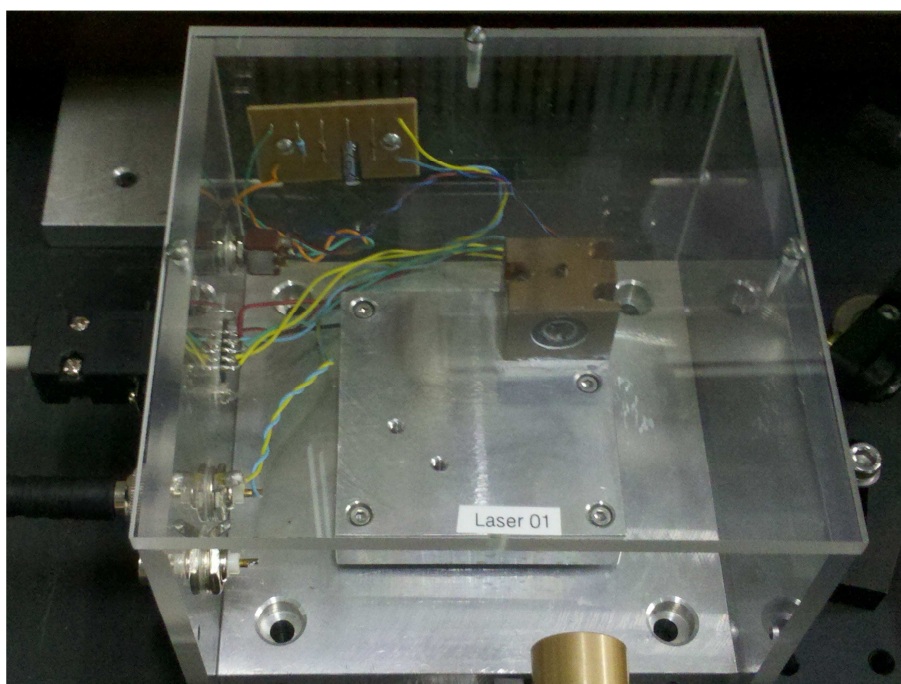


Figura 6.4 Foto da montagem do laser de diodo usado em nossos experimentos.

frequência mais rápida apresentam maiores larguras de linha. Isso pode ser visto claramente na assimetria da Fig. 6.5(b).

Por mais que o controle ativo da temperatura ajude na estabilização do laser, a frequência da luz emitida ainda flutua em alguns MHz no intervalo de tempo de alguns segundos. Dessa forma, quando era necessário a frequência do laser fixa, usamos um circuito eletrônico que fazia o travamento da frequência do laser em torno de uma transição atômica específica, o que possibilitou uma melhor resolução em nossos experimentos.

Para conhecermos a frequência do laser de diodo, utilizamos a técnica de absorção saturada.

6.3 Absorção saturada

A absorção saturada [76] é um tipo de espectroscopia sub-Doppler [77] muito útil de física atômica, que permite resolver as transições hiperfinas em um metal alcalino com alargamento inhomogêneo, como o vapor de rubídio. Basicamente, um feixe de um laser contínuo intenso (feixe de bombeio) incide em uma célula contendo o vapor atômico, e então é refletido de volta na célula. Esse feixe refletido, atenuado com auxílio de filtros, é chamado de feixe de prova, e é praticamente contra-propagante ao feixe de bombeio. A transmissão do feixe de prova é detectada com a frequência do laser sendo variada. Devido ao efeito Doppler, apenas os grupos de átomos com velocidade nula na direção dos feixes “sentem” a presença simultânea dos dois feixes. Como o feixe de bombeio é mais intenso, ele satura a transição, implicando em um aumento da transmissão do feixe de prova. Ou seja, picos relativos às transições sem efeito

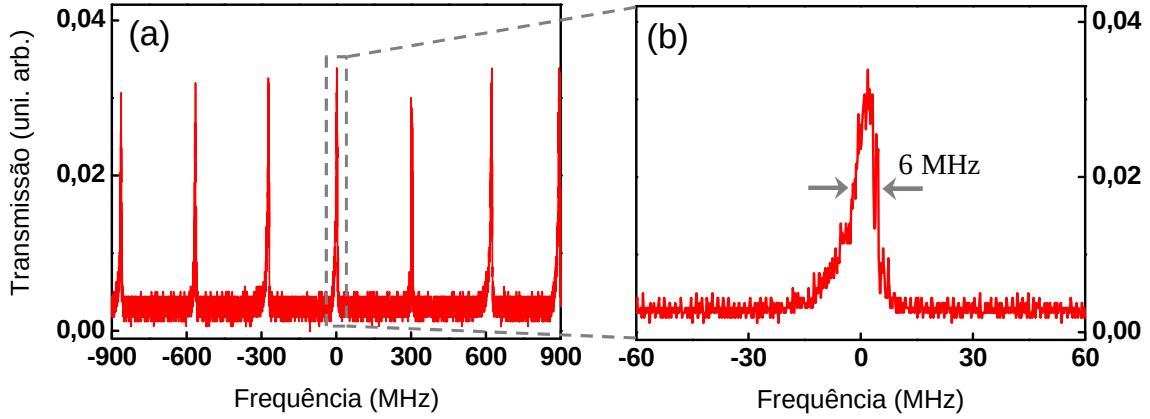


Figura 6.5 (a) Transmissão pela cavidade Fabry-Perot em função da frequência do laser de diodo. (b) Detalhe da região destacada de (a).

Doppler são visíveis dentro do perfil gaussiano. Porém, para cada par de transições existe um pico extra (*cross-over*), devido ao fato de existir um grupo de átomos que está em ressonância com ambos os feixes, mas em transições diferentes.

Com a absorção saturada, podemos identificar em quais transições hiperfinas o laser de diodo está sintonizado. No capítulo 7 sua importância será ainda maior, porque usaremos esta técnica para calibrar o laser de diodo de forma a termos uma escala absoluta de frequência. De fato, já existe inclusive um protótipo de um espectrômetro de absorção saturada com dimensões menores do que 1 cm [78]. Em 2009, Heinecke e colaboradores usaram um experimento de absorção saturada com um único modo de um laser de Ti:safira com 10 GHz de taxa de repetição [79] para estabilizar as frequências ópticas do pente de frequências.

Na Fig. 6.6(a) temos a curva de uma absorção saturada para todas as transições Doppler da linha D₂ ($5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2}$) do rubídio. Dois isótopos, ^{85}Rb e ^{87}Rb , possuem as maiores abundâncias naturais, o que corresponde a 72,17% e 27,83%, respectivamente (ver tabela B.2). Como a separação entre os níveis hiperfinos do estado fundamental ($5S_{1/2}$) é maior do que a largura do perfil Doppler (ver figuras B.1 e B.2 do apêndice B), é possível observar, mesmo sem a absorção saturada, quatro “linhas Doppler”, que chamaremos de $^{85}\text{Rb}, F = 2$, $^{85}\text{Rb}, F = 3$, $^{87}\text{Rb}, F = 1$ e $^{87}\text{Rb}, F = 2$, como mostra a Fig. 6.6(a). A linha $^{87}\text{Rb}, F = 2$ está mostrada em detalhe na Fig. 6.6(b), onde podemos ver todas as transições hiperfinas $F = 2 \rightarrow F' = 1, 2, 3$. Os demais picos são *cross-over*.

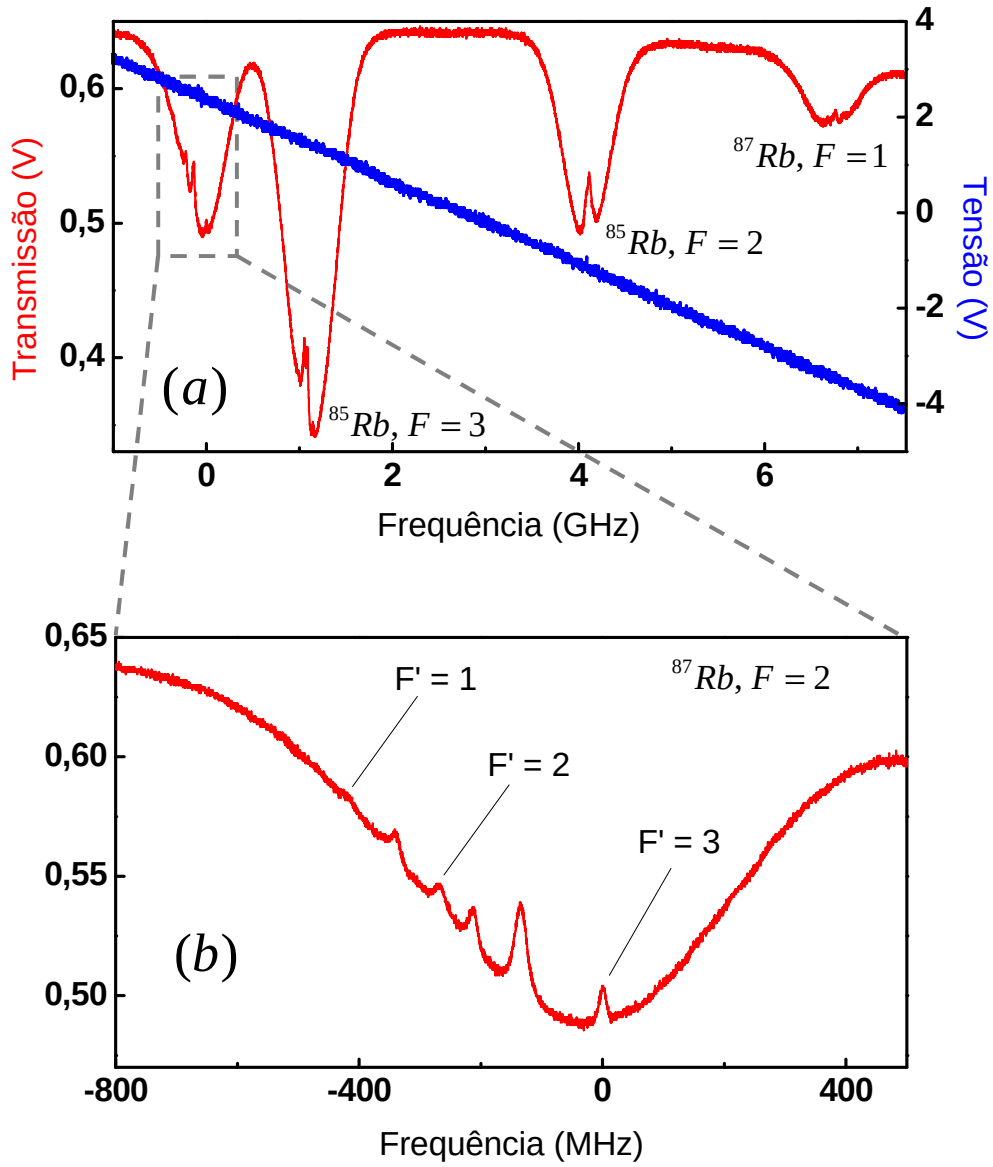


Figura 6.6 (a) Absorção saturada para as quatro linhas Doppler dos isótopos ^{85}Rb e ^{87}Rb . Em (b) temos uma ampliação da região destacada de (a). O zero da escala de frequência corresponde à frequência da transição $F=2 \rightarrow F'=3$ do ^{87}Rb : 384 228 116 MHz (~ 780 nm).

6.4 Esquema experimental

O esquema experimental utilizado está mostrado na Fig. 6.7. O laser de Ti:safira pode estar sintonizado tanto em 780 nm ($5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2}$, linha D_2) quanto em 795 nm ($5S_{1/2} \rightarrow 5P_{1/2}$, linha D_1). O papel do feixe do laser de diodo, sintonizado em 780 nm, é sondar as transições atômicas excitadas pelo laser de femtossegundos.

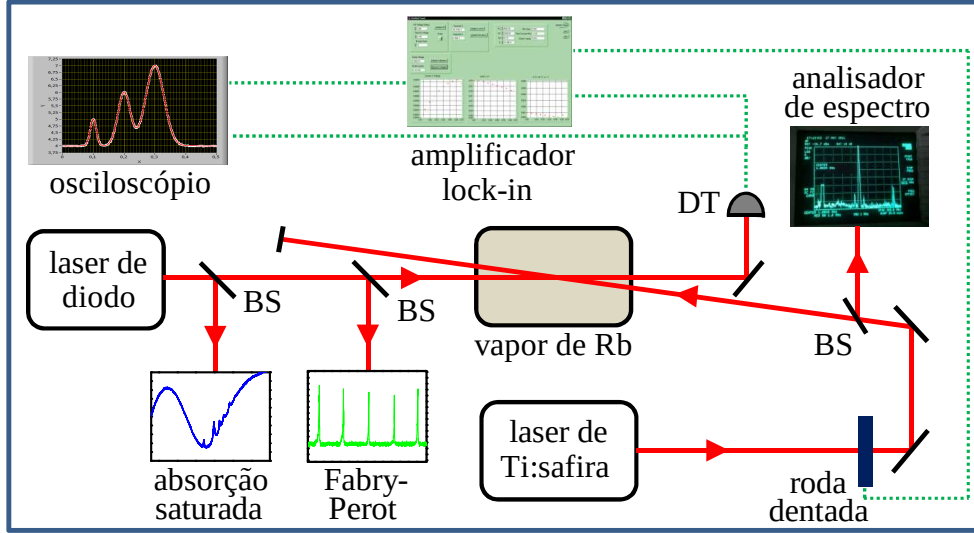


Figura 6.7 Arranjo experimental: as linhas vermelhas e os pontos verdes indicam o sentido dos feixes e sinais eletrônicos, respectivamente. Os detalhes dos experimentos com a cavidade do Fabry-Perot e com a absorção saturada não estão mostrados na figura. DT: fotodetector, BS: beam-splitter.

Nesse experimento, a potência média de saída do laser de fs está em 300 mW, o que significa uma potência por modo de aproximadamente $60 \mu\text{W}$. O diâmetro do feixe vale $\approx 2 \text{ mm}$. A taxa de repetição dos pulsos foi monitorada com um analisador de espectro da HP, que possui resolução de 10 kHz, insuficiente, portanto, para determinar o modo m do pente de frequências que está em ressonância com uma transição Doppler. O feixe do laser de diodo possui diâmetro de 1 mm e potência máxima de $170 \mu\text{W}$ na entrada da célula.

Assim como no capítulo 3, a aquisição de dados foi feita de duas formas: através da detecção direta da transmissão do laser de diodo através da célula, ou com o auxílio de um amplificador lock-in. No último caso, uma roda dentada serve de referência e o sinal de saída do lock-in representa a variação da transmissão do laser de diodo devido à presença do laser de fs.

Discutiremos os resultados experimentais a partir das duas técnicas comentadas brevemente nas seções 2.2.2 e 2.2.3: a espectroscopia seletiva em velocidade [33] e a espectroscopia com a taxa de repetição [63]. Na primeira, a taxa de repetição é travada e a excitação dos átomos pelo laser de fs é sondada pelo laser de diodo em função dos grupos de átomos dentro do perfil Doppler. Na segunda técnica, o laser de diodo tem sua frequência travada, e a ação do laser de fs é investigada em função da sua taxa de repetição.

6.5 Espectroscopia seletiva em velocidade

A Fig. 6.8 mostra a transmissão do laser de diodo através da linha Doppler $F = 3$ do ^{85}Rb em função da sua frequência, na presença e na ausência do laser de fs. O laser de fs está sintonizado em 780 nm ($5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2}$), e as frequências de Rabi por modo são $\Omega_{cw} = 0,6\gamma$ e $\Omega_m = 0,16\gamma$ (ver Eq. 5.11) para os lasers de diodo e fs, respectivamente, para a mesma transição $F = 3 \rightarrow F' = 3$ do ^{85}Rb , onde γ agora é a taxa de relaxação dos estados excitados. O processo físico que explica essa figura é o mesmo já discutido no capítulo 3: a transmissão do laser de diodo aumenta ou diminui dependendo do modo do pente de frequências que está interagindo com o grupo de átomos. O laser de diodo está bastante intenso ($\Omega_{cw} = 0,6\gamma$), o que explica a visibilidade acentuada do efeito do laser de fs na sua transmissão.

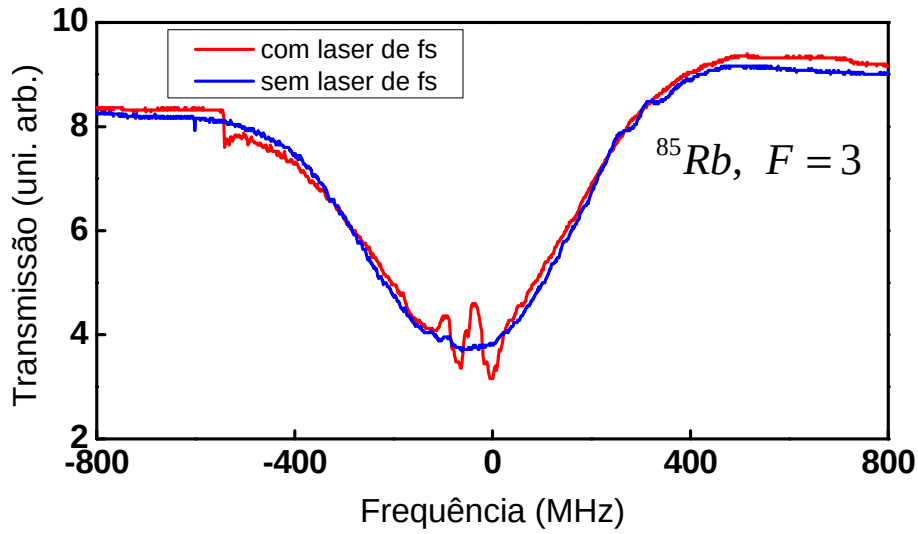


Figura 6.8 Transmissão do laser de diodo em função da sua frequência. O laser de fs está sintonizado em 780 nm.

Na Fig. 6.9 temos o sinal dado pelo *lock-in* (curva vermelha), que representa a variação da transmissão do laser de diodo em função da sua frequência, para as quatro linhas Doppler da linha D_2 do Rb. O sinal processado pelo *lock-in* elimina o perfil gaussiano, de forma que os picos são melhor visualizados. Mostramos também a absorção saturada (linha azul) e o sinal de saída da cavidade do Fabry-Perot (linha verde), que foram detectados simultaneamente com a transmissão do laser de diodo através da célula. Essas duas últimas curvas permitem identificar cada transição hiperfina que está sendo investigada. O laser de fs está novamente sintonizado em 780 nm e as frequências de Rabi são $\Omega_{cw} = 0,36\gamma$ e $\Omega_m = 0,16\gamma$, para a mesma transição $F = 3 \rightarrow F' = 3$. O número de picos observados em cada linha Doppler depende não apenas das transições feitas pelos modos do pente de frequências, mas também das transições “sondadas” pelo laser de diodo.

Note que, no capítulo 3, quando usamos um laser fs com taxa de repetição de 76 MHz, todas as transições hiperfinas estavam superpostas em um único pico (veja as figuras 3.2(a) e 3.11). No caso de um laser de 1 GHz, é possível investigar com mais detalhes as ressonâncias

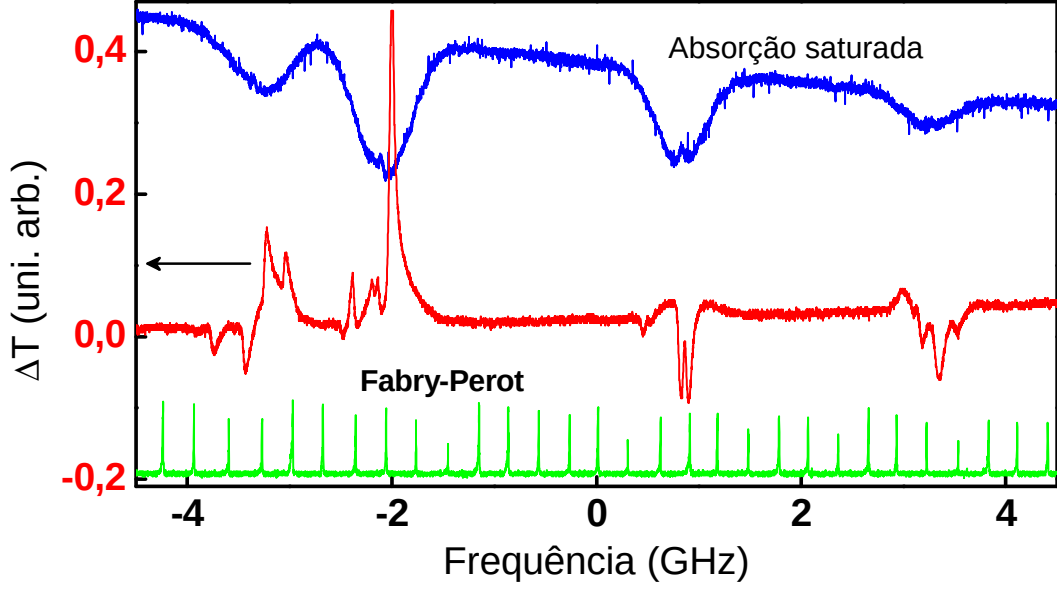


Figura 6.9 Variação da transmissão do laser de diodo, ΔT (curva vermelha), em função da sua frequência, para as quatro linhas Doppler da linha D_2 . O sinal da absorção saturada (linha azul) e o sinal da saída da cavidade do Fabry-Perot (linha verde) foram detectados simultaneamente.

dos modos do pente de frequências com as transições atômicas do sistema. De fato, como mostrado na Fig. 6.10(a), todas as transições em $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{1/2}$ excitadas pelo laser de fs, com $\Omega_m = 0,13\gamma$ ($F = 3 \rightarrow F' = 3$), estão resolvidas. ΔT foi obtida com o laser de diodo tendo sua frequência sendo variada em torno da linha Doppler $F = 3$ do ^{85}Rb , com $\Omega_{cw} = 0,08\gamma$ ($F = 3 \rightarrow F' = 3$). A partir de agora vamos nos concentrar na análise dos resultados do isótopo ^{85}Rb , com o laser de fs na linha D_1 e o laser de diodo na linha D_2 .

O esquema simplificado dos níveis de energia está apresentado na Fig. 6.10(c). Para a linha D_1 , o laser de fs interage com um sistema de quatro níveis, resultando em quatro ressonâncias com os modos do pente de frequências. O laser de diodo sonda a resposta atômica em três transições diferentes da linha D_2 : $F = 3 \rightarrow F'' = 2, 3, 4$. Isso explica o total de 12 picos (positivos e negativos) observados na figura, divididos em dois conjuntos de 6 picos, separados de 362 MHz. Cada par de picos positivos e negativos, separados de 36 MHz, reflete o bombeio óptico induzido por dois modos do pente de frequências que interage com os dois níveis hiperfinos do estado $5S_{1/2}$ (observe novamente a Fig. 3.7). Todas essas transições podem ser vistas no esquema representado na Fig. 6.10(d) para um grupo de velocidade específico, onde as linhas verdes e vermelhas indicam as transições atômicas e os modos do pente de frequências, respectivamente.

Antes de entrar nos detalhes da modelagem, podemos comparar ΔT com o laser de fs sintonizado em 780 nm ou 795 nm. Observe a Fig. 6.11. A menor separação entre os níveis hiperfinos do estado $5P_{3/2}$ (linha D_2 , 780 nm) dificulta a identificação das transições, ao passo que, para $5P_{1/2}$ (linha D_1 , 795 nm), além de haver menos níveis, eles são mais separados, o que torna a modelagem mais fácil. As frequências de Rabi são as mesmas da Fig. 6.10(a).

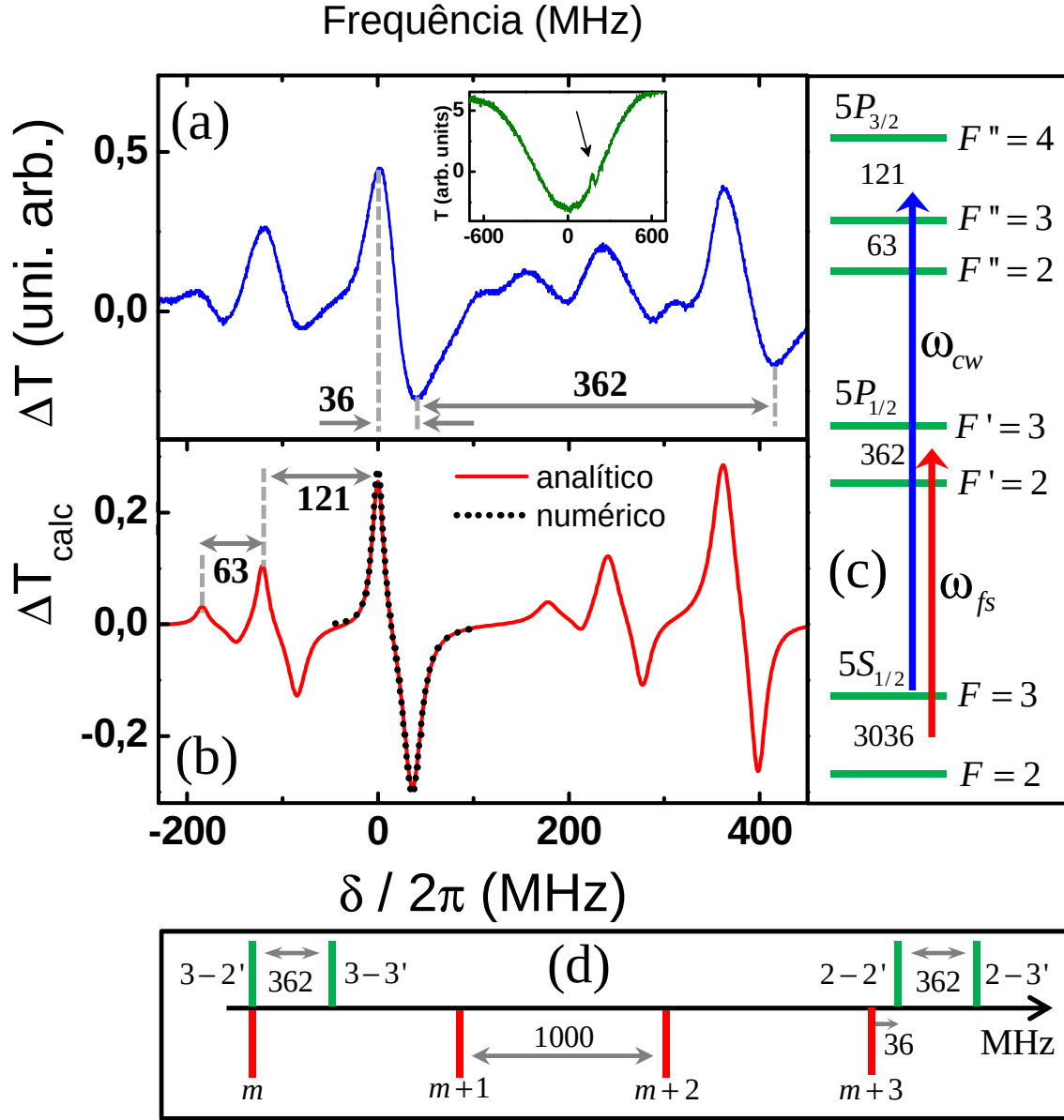


Figura 6.10 (a) Variação da transmissão do laser de diodo, ΔT , em função da sua frequência. O laser de fs está sintonizado em 795 nm, e o laser de diodo está sintonizado em torno da linha Doppler ^{85}Rb , $F = 3$. O gráfico interno mostra a posição, dentro do perfil Doppler, de dois modos do pente de frequências que estão excitando as transições sondadas pelo laser de diodo (veja a seta). (b) Variação da população do estado $|1\rangle$ para a situação experimental definida em (a), onde comparamos resultados analíticos obtidos da Eq. (6.1) com o resultado da integração numérica das equações de Bloch. (c) Níveis de energia do ^{85}Rb envolvidos no experimento. (d) Posição das transições atômicas (linhas verdes) em relação aos modos do pente de frequências (linhas vermelhas).

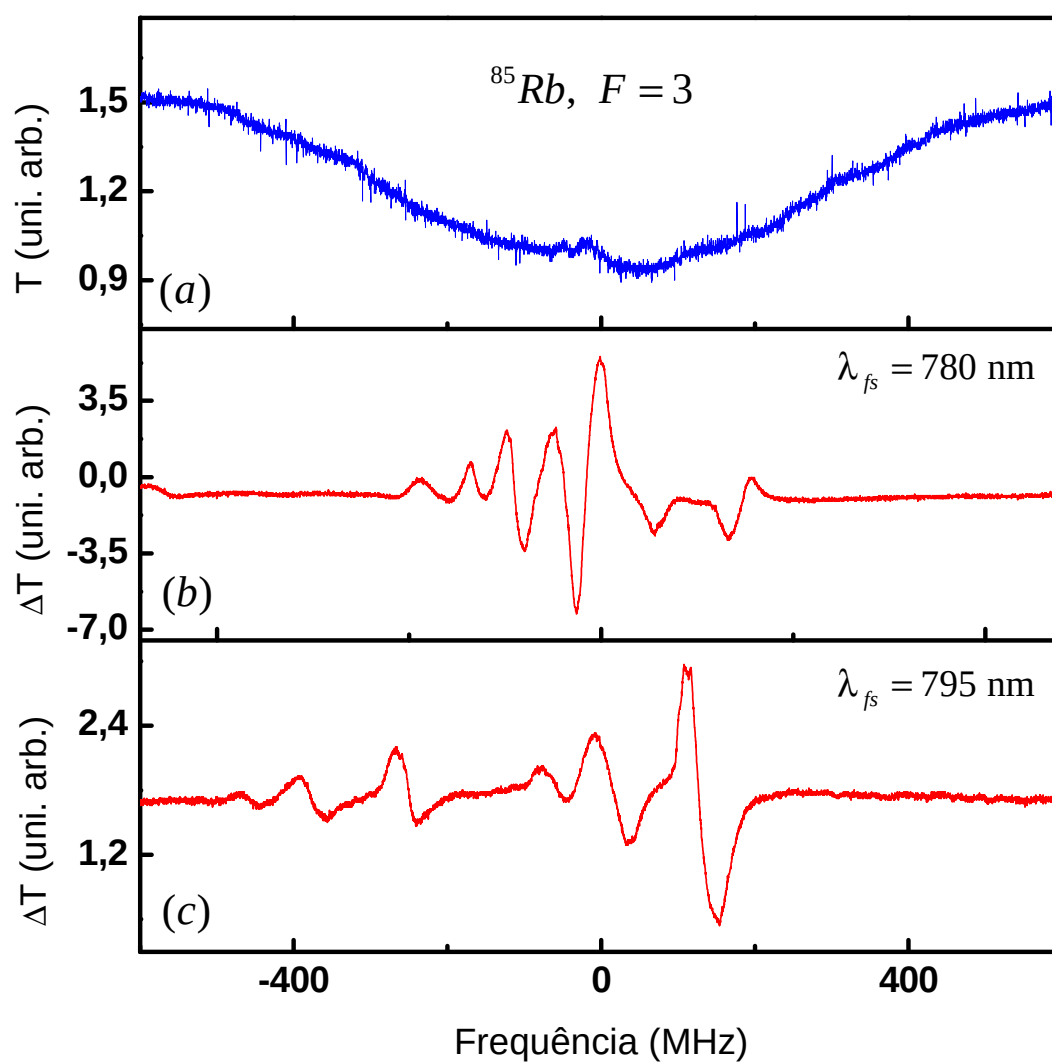


Figura 6.11 Comparação entre ΔT para o laser de fs em (b) 780 nm e em (c) 795 nm. Em (a), temos a curva da absorção saturada, que serve de base para as posições dos picos dos itens (b) e (c).

As discussões acima sugerem que os resultados da Fig. 6.10(a) podem ser explicados com um modelo simples que consiste de dois sistemas de três níveis tipo Λ , independentes, interagindo com os modos do pente de frequências. O sistema Λ é essencial porque ele descreve o bombeio óptico entre os níveis hiperfinos do estado fundamental. Além disso, como mostrado na Fig. 6.10(d), para qualquer grupo de átomos uma com certa velocidade, as ressonâncias com dois modos do pente de frequências nunca ocorrem simultaneamente (condição de CPT, ver capítulo 5), de forma que podemos considerar essas ressonâncias como independentes. Também consideraremos que a intensidade do laser de diodo é fraca, de forma que ele apenas sonda a população de um dos níveis fundamentais, sem alterá-la significativamente. Assim, não incluiremos o campo cw do laser de diodo em nosso modelo.

Trabalharemos no domínio da frequência para investigar a ação do trem de pulsos no sistema atômico. Aproveitaremos a grande separação entre os modos do pente de frequências e analisaremos o nosso sistema como um *ensemble* de átomos de três níveis (veja a Fig. 6.12), onde cada um interage com um único modo m que pode estar em ressonância com uma das transições: $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ ou $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$. A partir das equações de Bloch para um sistema de três níveis tipo Λ (ver equações (C.13) do apêndice C), e no regime estacionário onde $\dot{\rho}_{ii} = 0$ e $\dot{\sigma}_{ij} = 0$, encontramos a seguinte equação para a variação da população do estado $|1\rangle$:

$$\Delta\rho_{11} = \rho_{11}^{(0)} \times \left[1 + \frac{2\Omega_{13}^2(\gamma/\Gamma)}{\gamma^2 + 4(\Omega_{13}^2 + \delta_{31}^2)} \right]^{-1} + \rho_{22}^{(0)} \times \left[1 + \frac{\gamma^2 + 4(\Omega_{23}^2 + \delta_{32}^2)}{2\Omega_{23}^2(\gamma/\Gamma)} \right]^{-1}, \quad (6.1)$$

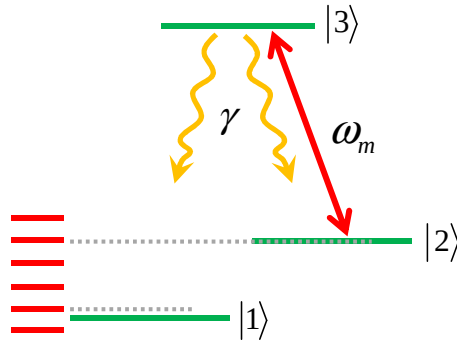


Figura 6.12 Modelo de um sistema de três níveis tipo Λ , onde ω_m é um modo do pente de frequências.

onde já adicionamos a contribuição das duas ressonâncias e usamos $\Delta\rho_{11} = \rho_{11} - \rho_{11}^{(0)}$. O primeiro termo do lado direito representa a solução das equações com um modo próximo à transição $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$, enquanto que o segundo termo corresponde à solução quando outro modo está em ressonância com a transição $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$. $\rho_{ii}^{(0)}$ é a população do estado $|i\rangle$ na ausência dos modos do pente de frequências, $\Omega_{i,3}$ e $\delta_{3,i}$ são as frequências de Rabi e as dessintonias dos modos com respeito à transição $|i\rangle \rightarrow |3\rangle$, onde $i = 1, 2$. Também incluímos no modelo a variável Γ , taxa de relaxação que equivale ao inverso do tempo de interação dos átomos com o campo. A Eq. (6.1) foi obtida nas aproximações $\Gamma \ll \Omega_{i,3}$ e $\Gamma \ll \gamma$.

Esta solução analítica foi usada para descrever a interação com os dois níveis hiperfinos do estado excitado, distantes de 362 MHz, cada um com seus respectivos momentos de dipolo. Como o laser de diodo sonda a população de um dos estados fundamentais em três transições diferentes, estas transições são adicionadas, tendo como peso seus momentos de dipolo. Na Fig. 6.10(b) temos o resultado analítico para a variação da população do estado $|1\rangle \equiv 5S_{1/2}, F = 3$: $\Delta T_{calc} \equiv -\Delta\rho_{11}$. A curva vermelha foi obtida com $\Gamma/2\pi = 10$ kHz, $\gamma/2\pi = 5$ MHz e $\Omega_{F,F'} = \gamma/5 \times \sqrt{S_{F,F'}}$, no qual $S_{F,F'}$ é a força do acoplamento, relativo, do campo com as transições de $5S_{1/2}, F \rightarrow 5P_{1/2}, F'$ (ver tabela B.7 do apêndice B), onde assumimos, para simplificar, que os níveis hiperfinos do estado fundamental são igualmente populados na ausência dos modos. Também consideramos as dessintonias, δ , com relação à transição $5S_{1/2}, F = 3 \rightarrow 5P_{1/2}, F' = 2$ e assim escrevemos $\delta_{FF'} = \delta$ para $F = 3$ e $F' = 2$, $\delta_{FF'}/2\pi = \delta/2\pi + 36$ MHz para $F = 2$ e $F' = 2$. Podemos ver que a solução analítica deste modelo simples está em concordância com os resultados experimentais. Note que mesmo com a frequência de *off-set* do laser fs não estabilizada, ainda conseguimos descrever os processos ópticos considerando a interação do vapor com os modos do pente de frequências.

Também comparamos nossos resultados analíticos com o resultado da integração numérica das equações de Bloch para um sistema de três níveis interagindo com o trem de pulsos ultracurtos (ver seção 2.2.1), onde usamos pulsos com duração de 100 fs. A variação da população do estado $|1\rangle$ obtida por esse cálculo numérico, para um par de picos negativo e positivo, está também apresentada na Fig. 6.10(b) (círculos sólidos em preto). Novamente, essa excelente concordância indica que a excitação dos átomos pelo trem de pulsos pode ser muito bem descrita em termos de modos do pente de frequências.

6.6 Espectroscopia com a taxa de repetição

Investigamos também a interação do vapor atômico com os modos do pente de frequências a partir da espectroscopia com a taxa de repetição. Travamos a frequência do laser de diodo na linha $F = 3$ do ^{85}Rb e detectamos a sua transmissão em função da taxa de repetição do laser de fs. Neste caso, não são todos os átomos do perfil Doppler que participam da interação, mas apenas uns poucos grupos de átomos que estão em ressonância com o laser de diodo (na verdade, um grupo de átomos para cada transição). Dessa forma o perfil Doppler é eliminado, e podemos assim detectar, diretamente, a variação na transmissão do laser de diodo devido à presença do laser de fs.

Os resultados experimentais estão mostrados na Fig. 6.13, para a linha Doppler $F = 3$ do ^{85}Rb . Usamos $\Omega_{cw} = 0,05\gamma$ ($F = 3 \rightarrow F' = 3$) e $\Omega_m = 0,12\gamma$ ($F = 3 \rightarrow F' = 3$). Com o auxílio de um gerador de funções e do PZT da cavidade, variamos a taxa de repetição de forma que a frequência dos modos ressonantes com os átomos foi variada em torno da linha $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{1/2}$. Como discutido antes, dois modos, m e $m + 3$, induzem bombeio óptico entre os níveis hiperfinos do estado fundamental, com esse processo ocorrendo nos dois níveis hiperfinos do estado excitado $5P_{1/2}$. Uma variação na transmissão do laser de diodo é observada toda vez que um modo do pente de frequências interage com os átomos que estão em ressonância com o laser de diodo. Assim, obtemos novamente os dois conjuntos de seis picos cada. Continuando a varrer a taxa de repetição, o sinal se repete em um intervalo de $\Delta f_R \approx 2,6$ kHz (ver seção

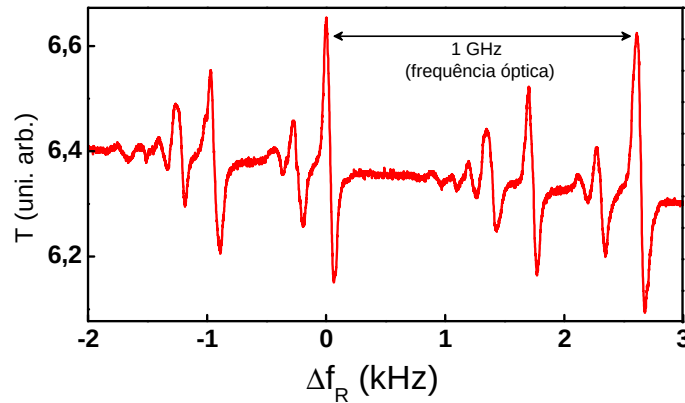


Figura 6.13 Medida direta da transmissão do laser de diodo, T , em função da taxa de repetição do laser de fs. O laser de diodo está com sua frequência fixa na linha $F = 3$ do ^{85}Rb e o laser de fs está sintonizado em 795 nm. O conjunto de picos separados de 1 GHz estão associados às mesmas transições, porém induzidas por diferentes modos do pente de frequências.

2.2.2), o que corresponde a uma mudança na frequência do modo de ≈ 1 GHz, como mostrado na Fig. 6.13.

A espectroscopia com a taxa de repetição apresenta algumas vantagens em relação à espectroscopia seletiva em velocidades, como a possibilidade de varreduras mais rápidas, o que minimiza o efeito do *drift* do *off-set* na qualidade das medidas.

6.7 Conclusões

Apresentamos, neste capítulo, os nossos primeiros resultados experimentais, a cerca da interação entre um laser de Ti:safira pulsado e um vapor atômico, que puderam ser descritos no domínio da frequência. Ao invés de olharmos a excitação dos átomos por uma sequência de pulsos com relação de fase bem definida, tratamos como uma excitação por modos com separação em frequência bem definida. Mais do que isso, dentre todos os modos do pente de frequências, consideramos apenas dois, aqueles com ressonância mais próxima de cada transição do sistema Λ no nosso modelo teórico.

Mostramos que o bombeio óptico entre os níveis hiperfinos pode ser bem resolvido usando um laser de fs com 1 GHz de taxa de repetição. A excitação das transições pelos modos do pente de frequências sobre os vários grupos de velocidade atômicos ou sobre grupos selecionados foi sondada por um laser de diodo através de duas técnicas: espectroscopia seletiva em velocidades e a espectroscopia com a taxa de repetição. Comparamos os resultados experimentais tanto com cálculos numéricos quanto analíticos.

Os resultados descritos nesse capítulo foram publicados no periódico *Journal of the Optical Society of America B* [80]:

Marco P. Moreno and Sandra S. Vianna, “Femtosecond 1 GHz Ti:sapphire laser as a tool for coherent spectroscopy in atomic vapor,” *J. Opt. Soc. Am. B* **28**, 2066-2069 (2011).

Experimento 2: Transição de dois fótons em cascata no rubídio

Neste capítulo, utilizamos o laser de Ti:safira de 1 GHz para explorarmos uma espectroscopia de dois fótons, em vapor de Rb. Embora a espectroscopia óptica com o pente de frequências já seja explorada há mais de três décadas, só mais recentemente os desenvolvimentos na estabilidade da taxa de repetição e da frequência de *off-set* [69] possibilitaram a identificação, na posição em frequência, dos modos ópticos com precisão melhor que uma parte em 10^{15} [16], tornando-se, assim, uma ferramenta poderosa para a espectroscopia de altíssima resolução [9] e para o controle coerente [70]. Em muitos destes experimentos são empregadas amostras frias em armadilhas magneto-ópticas [48, 71], ou um vapor no qual a transição de dois fótons com feixes contra-propagantes é permitida, tal que só alguns grupos de átomos, com velocidades bem específicas, são investigados enquanto a taxa de repetição é variada [72].

Aqui, investigamos a transição de dois fótons $5S \rightarrow 5P \rightarrow 5D$, em vapor de rubídio, quando esta é excitada simultaneamente pelos lasers de Ti:safira pulsado e de diodo contínuo. Assim como foi feito no capítulo anterior, modelaremos a interação átomo-campo no domínio da frequência.

Os lasers usados foram os mesmos já descritos no capítulo anterior. Entretanto, o laser de Ti:safira aqui teve sua taxa de repetição travada com o auxílio de um gerador de funções externo, com resolução de 1 Hz. Com um oscilador mais estável que o VCO do laser, tivemos uma maior estabilidade na taxa de repetição, o que possibilitou a obtenção de resultados experimentais com resolução muito melhor. Além disso, o analisador de espectro usado, também com resolução de 1 Hz, nos permitiu estimar a frequência de *off-set* do laser e saber exatamente o modo do pente de frequências que excitava determinada transição hiperfina.

7.1 Esquema experimental

O esquema simplificado do aparato experimental está representado na Fig. 7.1. Usamos um feixe de luz constituído por um trem de pulsos de femtossegundos (fs), gerado por um laser de Ti:safira com 1 GHz de taxa de repetição, $\lambda_{fs} \approx 780$ nm e $\Delta\lambda \approx 15$ nm (ver seção 6.1). Com este feixe é possível excitar as transições $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2}$ e $5P_{3/2} \rightarrow 5D$ (veja a Fig. 7.2) de um vapor de rubídio contido em uma célula selada, aquecida a aproximadamente 80 °C. Uma pequena reflexão do feixe é enviada para um analisador de espectro da *Agilent*, que nos permite determinar a taxa de repetição com resolução de 1 Hz. O sinal da fluorescência gerado devido ao decaimento espontâneo dos estados excitados é coletado com a lente L_2 , de distância focal 10 cm, filtrado no azul com o auxílio de um filtro que elimina a componente vermelha

e infravermelha da luz, e direcionado para a fotomultiplicadora 1P28. Essa fotomultiplicadora transforma o sinal luminoso em sinal elétrico e o envia para um osciloscópio digital da LeCroy. O feixe de um laser de diodo (ver seção 6.2) é usado para excitar a transição $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2}$. Uma parte desse feixe é desviada para um experimento de absorção saturada, necessário para a calibração na escala das frequências (ver seção 6.3). A potência desse feixe transmitida através da célula é medida com o fotodetector DT, e enviada ao osciloscópio. Os feixes dos lasers de Ti:safira e de diodo, contra-propagantes e com polarizações perpendiculares, se cruzam no centro da célula de Rb com diâmetros de $250 \mu\text{m}$ e $1,8 \text{ mm}$, respectivamente. Esses diâmetros implicam em tempos de voo de aproximadamente 800 ns ($\Gamma \approx 2\pi \times 200 \text{ kHz}$) e $7 \mu\text{s}$ ($\Gamma \approx 2\pi \times 25 \text{ kHz}$), respectivamente.

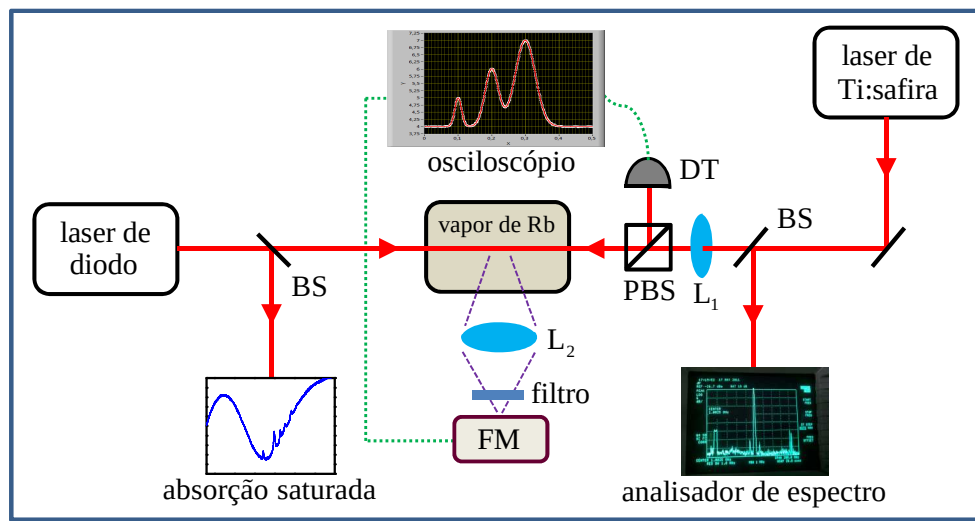


Figura 7.1 Esquema experimental. As linhas verdes e vermelhas representam, respectivamente, sinais elétricos e o caminho percorrido pelos feixes dos lasers. Legenda: BS - divisor de feixes (*beam splitter*), PBS - divisor de feixes por polarização, L_1 e L_2 - lentes esféricas convergentes com distâncias focais de 10 e 30 cm, FM - fotomultiplicadora, DT - fotodetector.

O diagrama de níveis de interesse está mostrado na Fig. 7.2. Os átomos excitados no nível $5D$ decaem através de dois caminhos: $5D \rightarrow 5P$ (776 nm) e $5D \rightarrow 6P$ ($5,2 \mu\text{m}$). A fluorescência em 776 nm é muito próxima do comprimento de onda dos lasers, de forma que sua detecção se torna difícil. Portanto, para sondar a população do nível $5D$, escolhemos detectar a fluorescência em 420 nm , que pôde ser facilmente separada das outras fluorescências usando um filtro. Para temperaturas da célula maiores do que 50°C e com o feixe de fs focalizado, é possível ver a olho nu uma luz azul no interior da célula devido ao processo paramétrico de mistura de quatro ondas.

Nossos resultados foram obtidos de duas formas distintas: (i) com a taxa de repetição do laser de Ti:safira fixa e variando a frequência óptica do laser de diodo e (ii) com a frequência do laser de diodo fixa e variando a taxa de repetição do laser de Ti:safira. No primeiro caso, a taxa de repetição do laser de Ti:safira, f_R , é travada com o auxílio de um gerador de funções externo da Agilent, que possui resolução de 1 Hz , e o laser de diodo tem sua frequência óptica

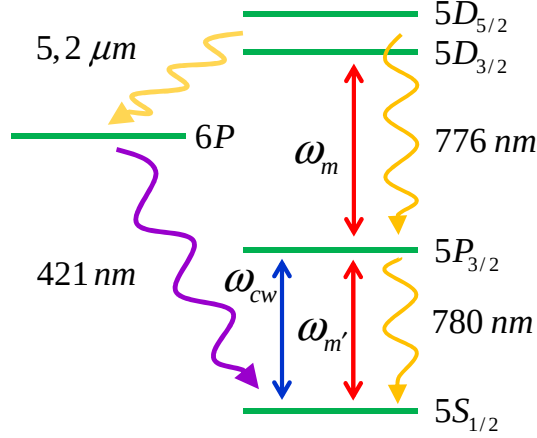


Figura 7.2 Diagrama simplificado dos níveis de energia e transições de interesse. O símbolo ω_{cw} representa a frequência do laser de diodo, enquanto que ω_m e $\omega_{m'}$ representam as frequências dos modos do pente de frequências mais próximas das ressonâncias mostradas na figura. As linhas curvas representam os possíveis caminhos que o átomo pode seguir no decaimento espontâneo. A estrutura completa, incluindo os níveis hiperfinos, é apresentada nas figuras B.1 e B.2 (apêndice B).

sendo variada em torno de uma ou mais linhas Doppler, a uma taxa de 10 a 100 MHz por milissegundo. No segundo caso, a frequência do laser de diodo é travada em alguma posição de uma das linhas Doppler e a taxa de repetição do laser de Ti:safira é variada em alguns kHz. Tanto o gerador de funções como o analisador de espectro foram emprestados do laboratório do Prof. Anderson Gomes, e foram fundamentais para a resolução exigida no experimento.

Os feixes dos lasers de diodo e de Ti:safira possuem potência média na entrada da célula de 2,7 mW e 300 mW, respectivamente. Entretanto, como a célula é mantida a 80 °C, a densidade atômica é suficientemente alta a ponto de reduzir drasticamente a potência por modo de ambos os lasers conforme o campo se propaga na célula. O sinal de fluorescência da transição de dois fótons devido à participação dos dois lasers vem do centro da célula, na região onde os feixes se cruzam. Dessa forma, o que nos interessa é a potência dos lasers nessa região. Para o laser de diodo, estimamos essa potência a partir das potências de entrada (P_i^{cw}) e de saída (P_f^{cw}) da célula, para diferentes frequências. Da lei de Beer, temos que

$$P_f^{cw} = P_i^{cw} e^{-\alpha z}, \quad (7.1)$$

onde α é o coeficiente de absorção [ver Eq. (4.23)] e z é o comprimento da célula. Dessa forma, αz é dado por

$$\alpha z = \ln(P_i^{cw}/P_f^{cw}), \quad (7.2)$$

e portanto a potência do laser de diodo no centro da célula fica sendo dada por

$$P_{cw} = P_i^{cw} e^{-0,5 \ln(P_i^{cw}/P_f^{cw})}. \quad (7.3)$$

Convém lembrar que o coeficiente α varia com a frequência e tem valores bem diferentes para cada uma das quatro linhas Doppler.

Para o laser de Ti:safira a situação é um pouco mais complicada. Apenas poucos modos dentre $\sim 10^4$ modos do pente de frequência sofrem atenuação devido à ressonância atômica, de forma que nosso detector não tem a resolução necessária para detectar alguma diferença entre as potências médias de entrada e de saída na célula. Além disso, em geral, uma transição de dois fótons é muito menos provável do que uma transição de um fóton, de forma que os modos em ressonância com a transição $5P \rightarrow 5D$ (776 nm) são muito menos absorvidos do que os modos em ressonância com a transição $5S \rightarrow 5P$ (780 nm). Assim, vamos considerar que os modos em torno de 776 nm não são absorvidos, e que os modos em torno de 780 nm sofrem absorção da mesma forma que o laser de diodo [Eq. (7.3)].

7.2 Resultados

A Fig. 7.3 mostra o sinal de fluorescência em 420 nm em função da frequência do laser de diodo (curva vermelha). Podemos ver transições que envolvem tanto o nível $5D_{3/2}$ como o nível $5D_{5/2}$. Os diversos picos correspondem às transições de dois fótons envolvendo o laser de diodo e diferentes modos do pente de frequências. Podemos ver também transições iguais sendo excitadas por dois modos vizinhos do pente de frequências, separadas de $\approx 1 f_R$ em frequência óptica do laser de diodo. A calibração dessa figura foi feita a partir dos picos da absorção saturada, e a curva foi obtida a uma taxa de varredura de 80 MHz por milissegundo.

O sinal de fundo da Fig. 7.3, por outro lado, tem sua origem nas transições de dois fótons devido apenas aos modos do pente de frequências, e seu valor depende da taxa de repetição, como está mostrado na Fig. 7.4. Sempre há sinal de fluorescência porque sempre há pelo menos um modo em ressonância com cada linha Doppler (e outro na transição $5P \rightarrow 5D$), entretanto, esse sinal pode crescer ou diminuir conforme esses modos estão em ressonância com mais ou menos átomos.

Na Fig. 7.5 mostramos com mais detalhes a fluorescência em função da frequência do laser de diodo para as linhas Doppler $F = 2$ do ^{87}Rb e $F = 3$ do ^{85}Rb . Em primeiro lugar, podemos ver pela Fig. 7.5(a) que a transmissão do laser de diodo através da célula aquecida (linha azul) vai praticamente à zero na região central das linhas Doppler. Observe também que cada pico da Fig. 7.3 é na verdade formado por um conjunto de picos, cada um correspondente a uma transição de dois fótons para os diferentes níveis hiperfinos F'' , como está mostrado nas figuras 7.5(b) e 7.5(c).

Na aquisição de dados, a posição desses picos varia ligeiramente com o tempo, de forma aleatória. Assim, para cada valor de f_R , e com os outros parâmetros fixos, foram feitas amostragens contendo 10 ou 50 varreduras adquiridas em sequência pelo osciloscópio. Três varreduras da amostragem correspondente à Fig. 7.5(b) estão apresentadas na Fig. 7.6. As curvas foram suavizadas (em uma janela de 10 pontos) para melhor visualização da variação na posição dos picos. É importante lembrar que a posição dos picos é medida com relação à transição $F = 2 \rightarrow F' = 3$ do ^{87}Rb para cada varredura. A Fig. 7.7 mostra a posição do centro de dois desses picos ($F'' = 3$ e $F'' = 4$), assim como a soma e a diferença dos centros deles, para outra taxa de repetição. Em 50 varreduras, observamos como a posição desses picos flutua com o

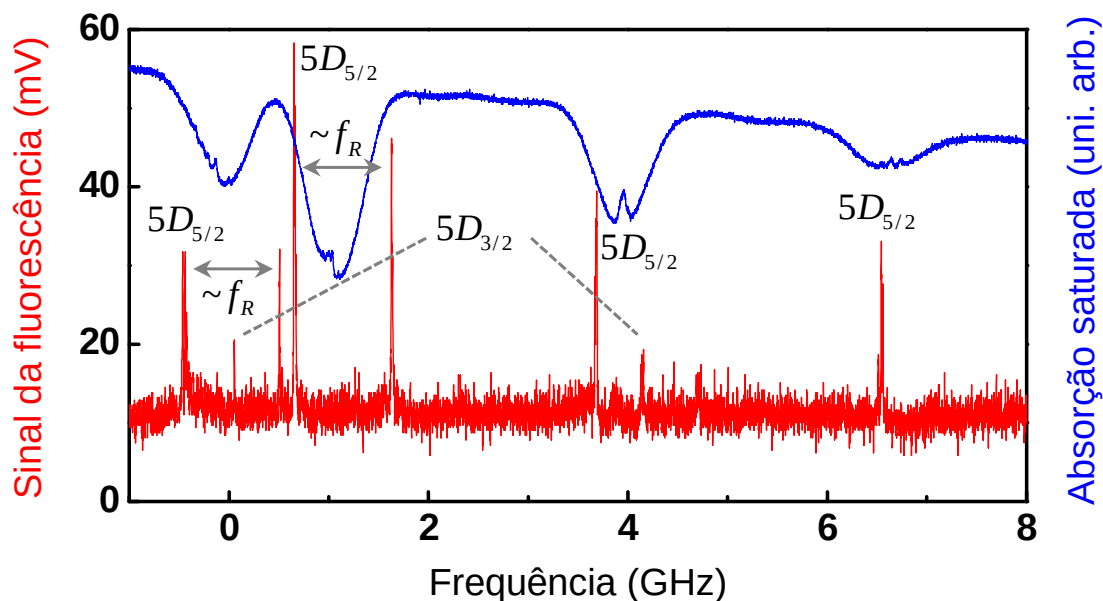


Figura 7.3 Sinal de fluorescência (linha vermelha) em função da frequência do laser de diodo, para as quatro transições Doppler (linha azul) dos isótopos ^{85}Rb e ^{87}Rb . As potências média de entrada na célula, para os lasers de femtossegundos e de diodo, são de 300 mW e 2,7 mW, respectivamente. A taxa de repetição está travada em $f_R = 1,004\,411\,920$ GHz. O zero da escala de frequência corresponde à frequência da transição $F = 2 \rightarrow F' = 3$ do ^{87}Rb (384 234 134 MHz).

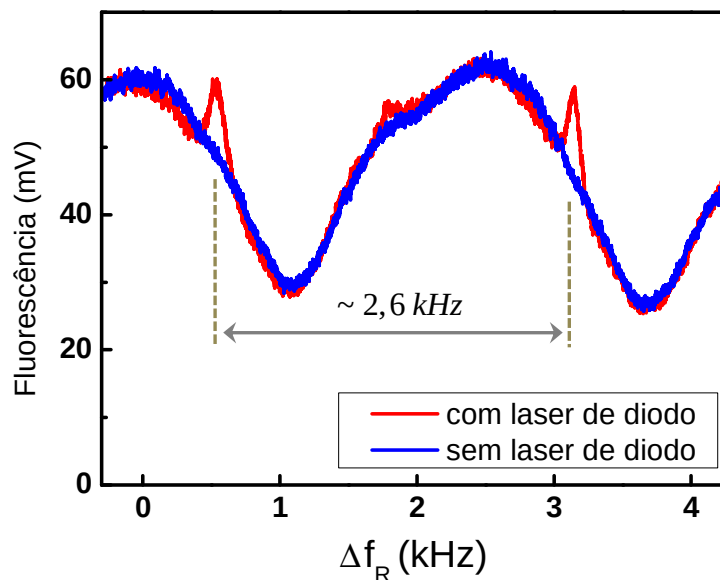


Figura 7.4 Fluorescência em função da variação da taxa de repetição, na presença e na ausência do laser de diodo. O zero da escala horizontal está definido de forma arbitrária.

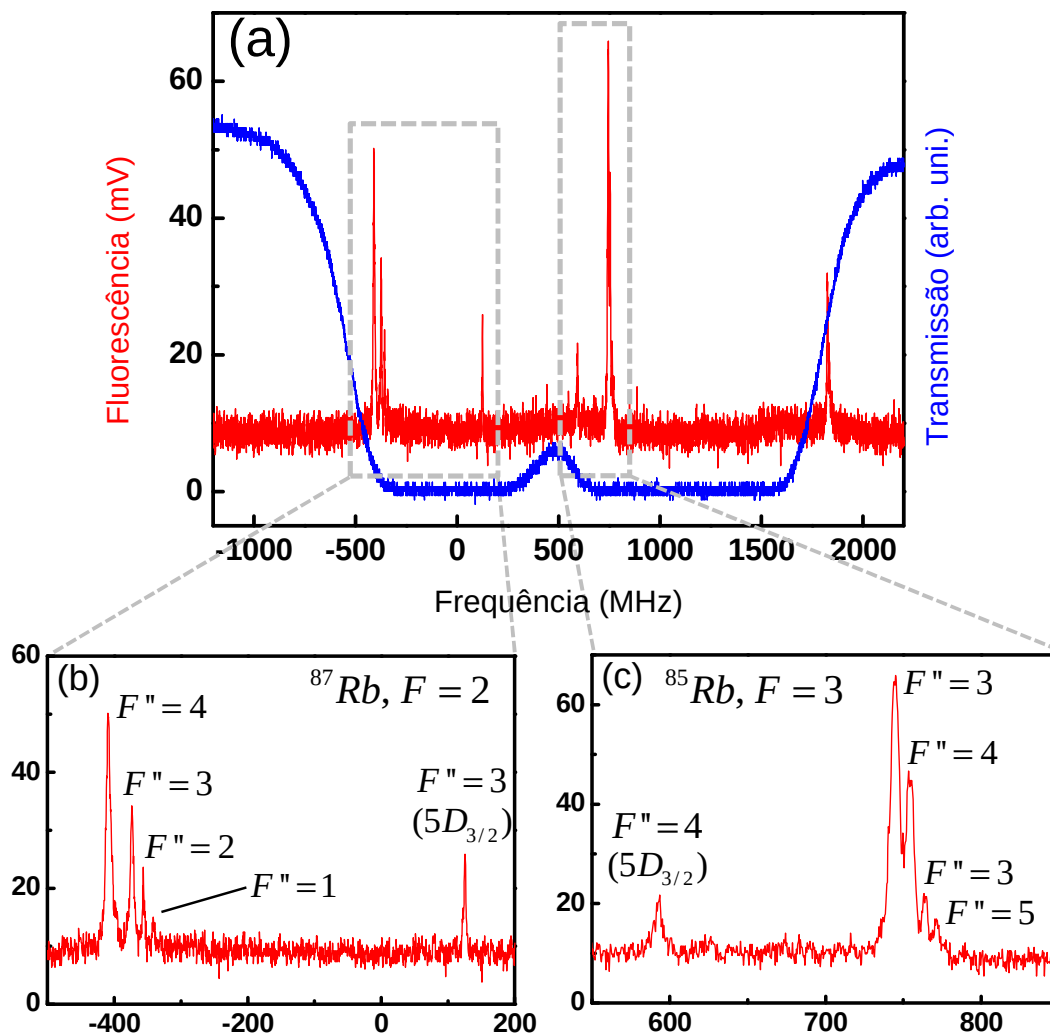


Figura 7.5 (a) (linha vermelha) Fluorescência em função da frequência do laser de diodo, para as linhas Doppler $F = 2$ do ^{87}Rb e $F = 3$ do ^{85}Rb e (linha azul) sinal da transmissão do laser de diodo na célula aquecida, para as mesmas condições da Fig. 7.3, porém com a taxa de repetição travada em $f_R = 1,004\,413\,750$ GHz. Os quadros (b) e (c) mostram os detalhes das regiões definidas nos retângulos tracejados de (a), onde os picos F'' se referem ao estado $5D_{5/2}$, exceto quando indicado o contrário.

tempo. A posição média desses picos pode ser calculada com um erro de ± 1 MHz, embora apresentem uma flutuação (*jitter*) em torno de ± 10 MHz. Observe que a diferença dos centros dos picos flutua em torno de um valor que permanece constante, enquanto que a curva da soma dos centros dos picos apresenta um *drift*, isto é, essa curva flutua em torno de um valor que varia no tempo. Podemos concluir do laser então que, além de um provável *jitter*, claramente a frequência de *off-set* também possui um *drift*. As 50 varreduras foram obtidas em um intervalo de tempo de 15 segundos.

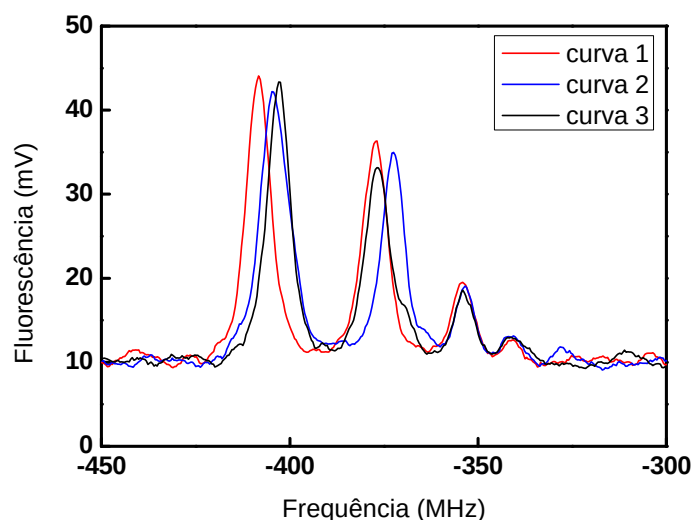


Figura 7.6 Três varreduras obtidas em sequência pelo osciloscópio, correspondente à Fig. 7.5(b). As curvas foram suavizadas.

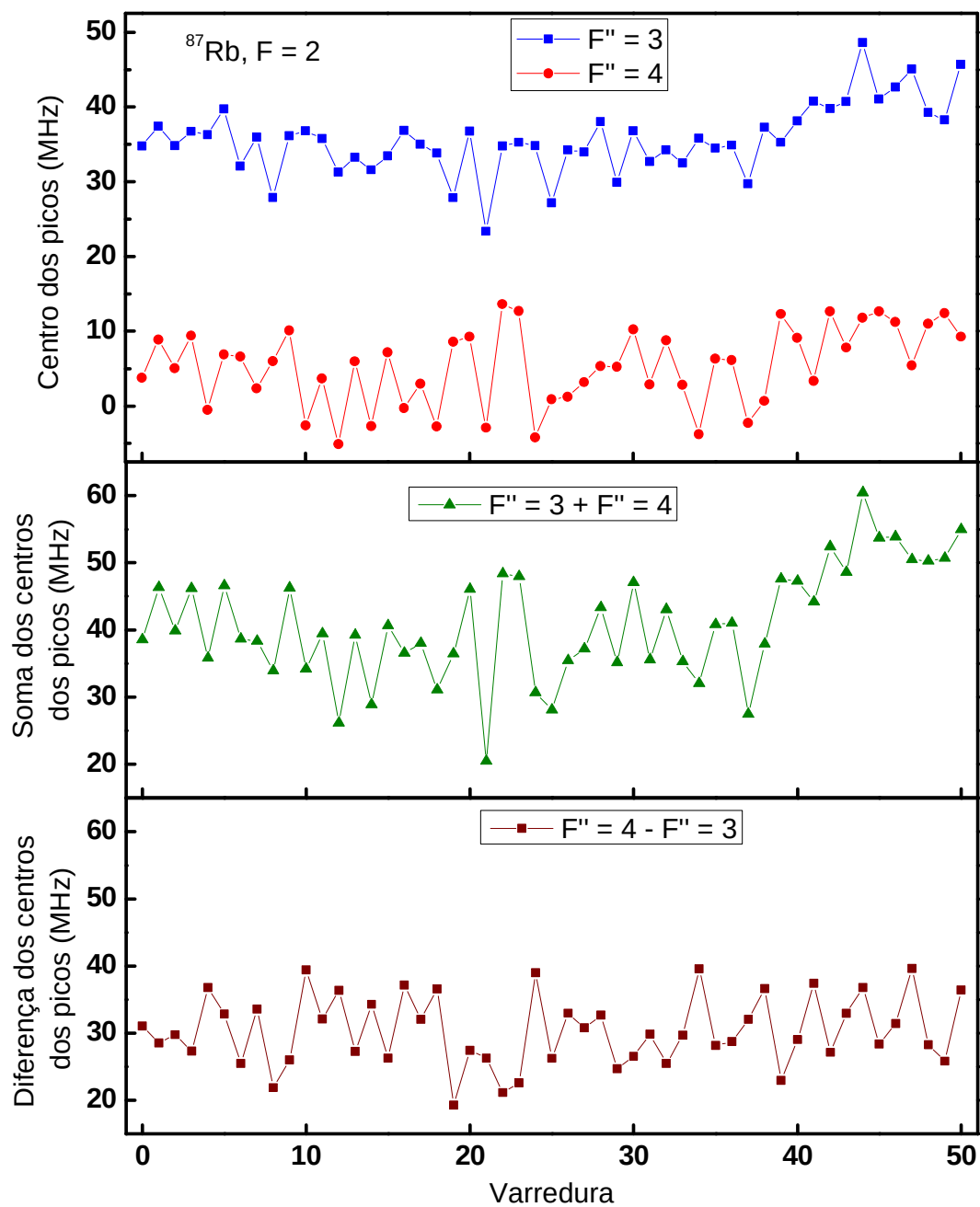


Figura 7.7 Posição absoluta do centro de dois picos ($F'' = 3$ e $F'' = 4$) do ^{87}Rb , $F = 2$, em função da amostragem, ou seja, do tempo, para todos os parâmetros controláveis fixos.

7.3 Teoria

7.3.1 Equações de Bloch e análise preliminar

Para explicar os resultados da última seção, vamos usar o modelo teórico mais simples possível. Se negligenciarmos por enquanto o sinal de fundo na transição de dois fótons, então um sistema de três níveis é o mínimo para começarmos. Chamaremos o estado fundamental de $|1\rangle$, que representará um dos níveis hiperfinos F do estado $5S_{1/2}$. O estado intermediário será chamado de $|2\rangle$, correspondendo a um dos níveis hiperfinos F' do estado $5P_{3/2}$. Analogamente, $|3\rangle$ corresponderá a um dos níveis hiperfinos F'' do estado final, podendo ser do $5D_{3/2}$ ou $5D_{5/2}$. Entretanto, como quase todas as transições $F \rightarrow F'$ do átomo real são abertas, decidimos incluir uma taxa de decaimento $\gamma_{22}/2$ do estado $|2\rangle$ para fora do sistema, deixando assim de haver conservação de população, como mostra a Fig. 7.8. Para simplificar, a transição $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$ sempre será considerada como sendo fechada. Na notação desse capítulo usaremos γ_{33} e γ_{22} para as taxas de decaimento espontâneo de $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$ e $|2\rangle \rightarrow |1\rangle$, respectivamente. δ_{cw} corresponderá à diferença de frequência entre o laser de diodo e a ressonância da transição $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$, para um átomo com velocidade zero, isto é, $\delta_{cw} = \omega_{21} - \omega_{cw}$. Analogamente, para o modo m do pente de frequências, escrevemos $\delta_m = \omega_{32} - \omega_m$. O retângulo cinza representa a distribuição de velocidades de Maxwell-Boltzmann, com Δ_D indicando a largura, em frequência, para o perfil Doppler correspondente. Seguindo o raciocínio dos últimos capítulos, olharemos para o trem de pulsos emitido pelo laser de Ti:safira no domínio da frequência, e levaremos em conta nas equações apenas o modo m do pente de frequências mais próximo da ressonância.

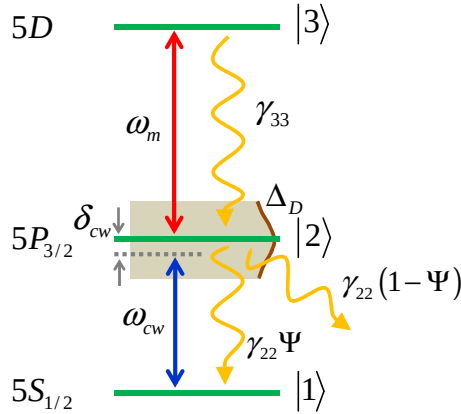


Figura 7.8 Nosso modelo teórico: um sistema de três níveis em cascata fechado ($\Psi = 1$) ou aberto ($\Psi = 1/2$). O retângulo em cinza representa o alargamento inhomogêneo por efeito Doppler.

As intensidades dos lasers no experimento, particularmente longe do centro do perfil Doppler onde os campos são mais intensos, não nos permite usar uma teoria de perturbação para chegarmos a uma solução das equações de Bloch. Entretanto, no regime estacionário, as aproximações descritas no parágrafo anterior nos permitem chegar a uma solução em todas as ordens dos campos envolvidos. Para isso, teremos que resolver as equações de Bloch para um sistema

de três níveis em cascata (ver apêndice C) dentro da aproximação $\dot{\rho}_{ii} = \dot{\sigma}_{ij} = 0$:

$$\dot{\rho}_{11} = 0 = -\Omega_{cw}\sigma_{12} + c.c. + \Psi\gamma_{22}\rho_{22} - \Gamma(\rho_{11} - \rho_{11}^{(0)}) \quad (7.4a)$$

$$\dot{\rho}_{22} = 0 = \Omega_{cw}\sigma_{12} + c.c. - \Omega_m\sigma_{23} + c.c. - (\gamma_{22} + \Gamma)\rho_{22} + \gamma_{33}\rho_{33} \quad (7.4b)$$

$$\dot{\rho}_{33} = 0 = \Omega_m\sigma_{23} + c.c. - (\Psi\gamma_{33} + \Gamma)\rho_{33} - \gamma_{33}\rho_{33} \quad (7.4c)$$

$$\dot{\sigma}_{12} = 0 = [i(\delta_{cw} - \Delta_{cw}) - \gamma_{12} - \Gamma]\sigma_{12} - i\Omega_m\sigma_{13} + i\Omega_{cw}(\rho_{22} - \rho_{11}) \quad (7.4d)$$

$$\dot{\sigma}_{23} = 0 = [i(\delta_m + \Delta_m) - \gamma_{23} - \Gamma]\sigma_{23} - i\Omega_{cw}\sigma_{13} + i\Omega_m(\rho_{33} - \rho_{22}) \quad (7.4e)$$

$$\dot{\sigma}_{13} = 0 = [i(\delta_{cw} + \delta_m + \Delta_{cw} - \Delta_m) - \gamma_{13} - \Gamma]\sigma_{13} + i\Omega_{cw}\sigma_{23} - i\Omega_m\sigma_{12}, \quad (7.4f)$$

onde $\Psi = 1$ para um sistema fechado e $\Psi = 1/2$ para um sistema aberto. $\rho_{11}^{(0)}$ é a população do estado $|1\rangle$ no equilíbrio, isto é, na ausência dos campos. A taxa de decaimento da coerência entre os estados $|i\rangle$ e $|j\rangle$ está representada por γ_{ij} , e Γ é o inverso do tempo de voo.

As frequências de Rabi por modo são dadas por

$$\Omega_{cw} = \frac{\mu_{12}E_{cw}}{\hbar} \quad (7.5a)$$

$$\Omega_m = \frac{\mu_{23}E_m}{\hbar}, \quad (7.5b)$$

onde E_{cw} e E_m são as amplitudes de campo por modo [ver Eq. (4.10)].

Para levar em conta o efeito Doppler, fizemos as seguintes correções nas frequências de ressonância:

$$\delta_{cw} \longrightarrow \delta_{cw} - \Delta_{cw} \quad (7.6a)$$

$$\delta_m \longrightarrow \delta_m + \Delta_m, \quad (7.6b)$$

onde $\Delta_{cw} = k_{cw}v$ e $\Delta_m = k_mv$ são os deslocamentos Doppler em primeira ordem na velocidade, sendo k_{cw} e k_m os números de onda do laser cw e do modo m do pente de frequências, e v a velocidade escalar do átomo.

Para simplificar a notação, chamaremos $\delta_{cw} = \delta$ e $\Delta_{cw} = \Delta$. Como o laser de diodo e o modo m do pente de frequências (na transição $5P \longrightarrow 5D$) têm frequências diferentes, então $\Delta_{cw} \neq \Delta_m$ para um mesmo átomo com velocidade v . Em outras palavras, a transição de dois fótons estudada aqui não é *Doppler free* [81]. Mas podemos expressar Δ_m em função de Δ da seguinte forma:

$$\begin{aligned} \Delta_m &= k_mv \\ \Delta_m &= \left(\frac{k_m}{k_{cw}}\right)\Delta \\ \Delta_m &= \left(\frac{\lambda_{cw}}{\lambda_m}\right)\Delta. \end{aligned} \quad (7.7)$$

Como a razão entre parênteses acima vale $780/776 \approx 1,005$, então, por exemplo, existe uma diferença de aproximadamente 5 MHz entre os deslocamentos Doppler de dois grupos de átomos separados por 1 GHz, valor esse que é sensível aos nossos experimentos.

Para conhecer a dessintonia do modo m (δ_m) precisamos, a princípio, saber a frequência da taxa de repetição f_R do pente de frequências e a frequência de *off-set* f_0 . Entretanto, também podemos inferir δ_m através da dessintonia do laser cw (δ) e do grupo de velocidade Δ . A transição de dois fótons ocorre quando a frequência de ressonância ω_{31} é igual à soma das frequências dos campos, incluindo as correções por efeito Doppler:

$$\begin{aligned}\omega_{31} = \omega_{32} + \omega_{21} &= \omega_m + \Delta_m + \omega_{cw} - \Delta \\ \delta_m &= -\delta + \left(\frac{\lambda_{cw}}{\lambda_m} - 1 \right) \Delta.\end{aligned}\quad (7.8)$$

Modelaremos o nosso sinal de fluorescência calculando a população do estado excitado ρ_{33} . A solução geral das equações de Bloch para um sistema de três níveis em cascata, porém, é bastante complexa [64], e não convém escrevê-las aqui. Dessa forma, usaremos o *software* Maple, um sistema algébrico computacional [82], para chegarmos a um valor numérico para ρ_{33} . A sequência lógica do código escrito no Maple (ver apêndice D) está esquematizada na Fig. 7.9:

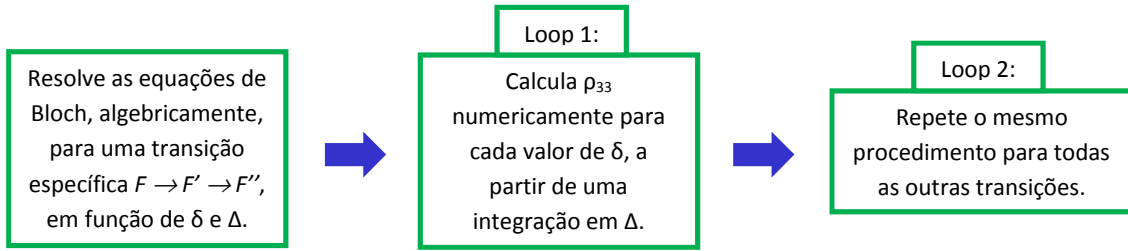


Figura 7.9 Diagrama esquemático do código escrito no Maple para resolver as equações de Bloch em todas as ordens dos campos.

O *loop 1* é a parte mais importante do nosso programa. Para cada dessintonia δ do laser cw e para uma dada transição $F \rightarrow F' \rightarrow F''$ específica, a população total do estado $|3\rangle$ é calculada integrando sobre a contribuição de todos os grupos de átomos Δ dentro do perfil Doppler. Matematicamente,

$$\rho_{33}^{(F,F',F'')}(\delta) = \frac{1}{(2\pi\Delta_D^2)^{1/2}} \int_{-\infty}^{\infty} \rho_{33}(\Delta, \delta; \Omega_{F,F'}, \Omega_{F',F''}) e^{-\Delta^2/2\Delta_D^2} d\Delta, \quad (7.9)$$

onde Δ_D indica a largura de linha do perfil Doppler. Nessa notação, deixamos explícita a dependência de ρ_{33} com as frequências de Rabi das transições hiperfinas:

$$\Omega_{F_1,F_2} = \frac{\mu_{F_1,F_2} E}{\hbar}, \quad (7.10)$$

onde μ_{F_1, F_2} é o elemento de matriz para o operador momento de dipolo elétrico que conecta os estados hiperfinos $|F_1\rangle$ e $|F_2\rangle$, e $E = E_{cw}$ ou $E = E_m$, dependendo da transição.

A Fig. 7.10 mostra ρ_{33} em função dos grupos de átomos, Δ , para diferentes valores de Ω_{cw} e compara esta população quando a transição $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ é fechada ou aberta. No regime de baixa intensidade para o campo cw [Fig. 7.10(a), com $\Omega_{cw} = \gamma_{22}/100$], quase não há diferença entre os sistemas fechado e aberto. Porém, a partir de intensidades mais altas [Fig. 7.10(b) e Fig. 7.10(c)], o forte bombeio óptico induzido pelo campo cw no sistema aberto induz diferenças em relação ao sistema fechado, como está ilustrado na Fig. 7.11.

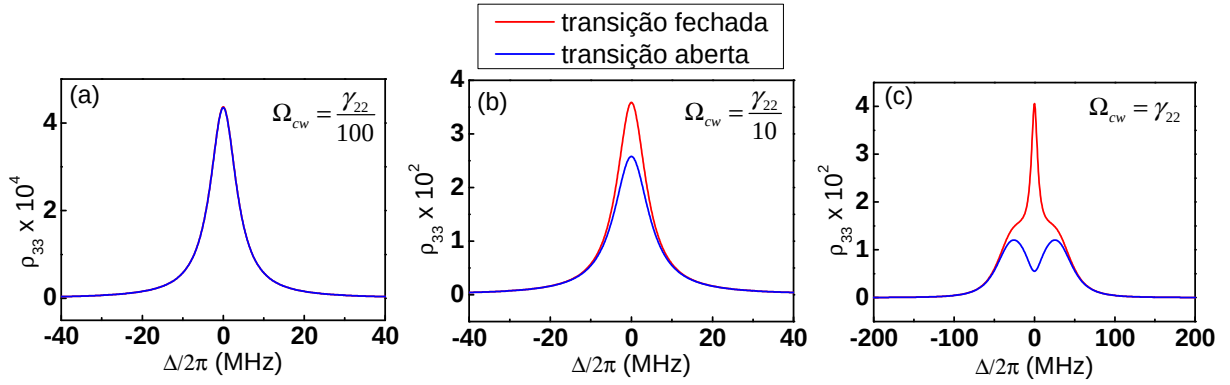


Figura 7.10 Populações do estado $|3\rangle$ em função dos grupos de átomos Δ , com $\Omega_m = \gamma_{33}$ e $\Gamma = 2\pi \times 200$ kHz, para um sistema fechado (linha vermelha) e aberto (linha azul). Os campos estão em ressonância de um fóton com sua respectiva transição para o grupo de átomos parados. Os parâmetros usados em (c) estão bem próximos dos parâmetros reais usados no experimento descrito nesse capítulo.

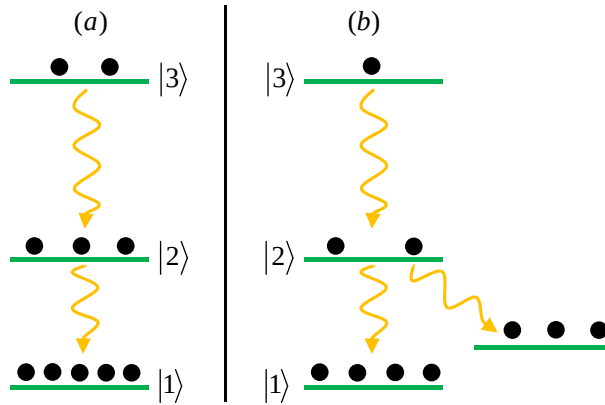


Figura 7.11 Ilustração de um sistema de 3 níveis (a) fechado e (b) aberto. As bolinhas pretas representam átomos em um estado. A população reduzida no estado $|3\rangle$ do sistema aberto se explica pela fuga dos átomos para um ou mais estados fora do sistema, devido ao bombeio óptico na transição $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$.

Para finalizar essa análise preliminar, mostramos na Fig. 7.12 a dependência de ρ_{33} em função de (a) Ω_{cw} e de (b) Γ , para os sistemas fechado (curva vermelha) e aberto (curva azul). Na Fig. 7.12(a), como era de se esperar, observamos valores ligeiramente diferentes para as frequências de Rabi de saturação. A Fig. 7.12(b) é outra forma de justificar a distinção entre os sistemas fechado e aberto na nossa modelagem, visto que ρ_{33} tem valores diferentes próximo à região $\Gamma/2\pi = 200$ kHz, correspondendo à situação experimental.

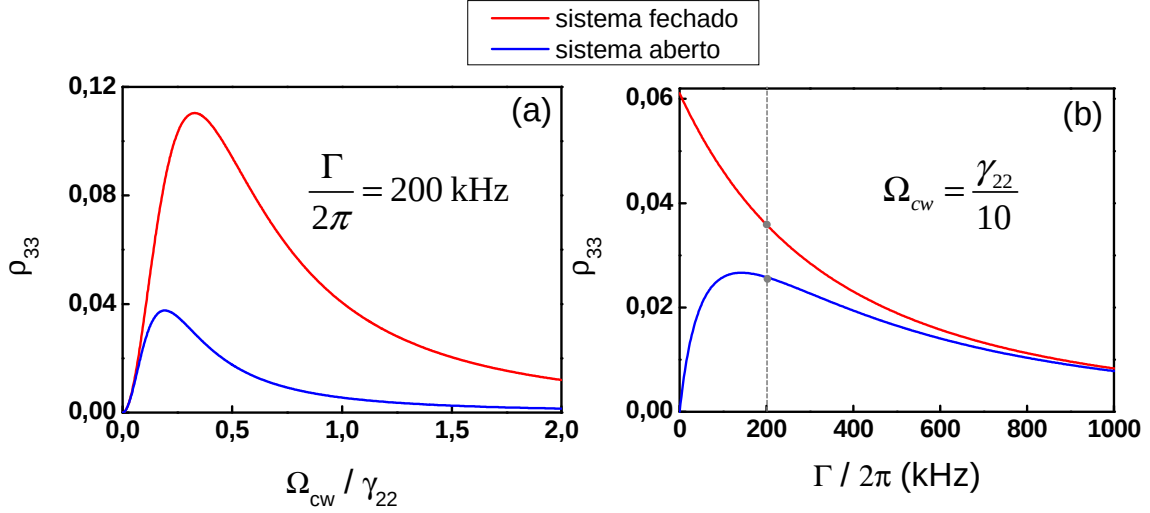


Figura 7.12 Dependência de ρ_{33} em função de (a) Ω_{cw} e de (b) Γ , para os sistemas fechado e aberto. Ambos os campos estão em ressonância com suas respectivas transições, e em ambas as curvas $\Omega_m = \gamma_{33}$.

7.3.2 Modelagem

A modelagem é feita calculando a soma das populações ρ_{33} para todas as transições de dois fótons $F \rightarrow F' \rightarrow F''$ permitidas pela aproximação de dipolo elétrico:

$$\rho_{33}^{calc}(\delta) = \sum_{F, F', F''} \rho_{33}^{(F, F', F'')}(\delta). \quad (7.11)$$

O elemento de matriz do operador dipolo elétrico de cada transição $F \rightarrow F'$ ($\langle F | e\hat{\mathbf{r}} | F' \rangle$) é calculado, como uma aproximação, através de uma média sobre todos os elementos de matriz envolvendo os subníveis magnéticos m_F e $m_{F'}$, que por sua vez são calculados fazendo uso do teorema de Wigner-Eckart e dos coeficientes de Clebsch-Gordan [83]:

$$\begin{aligned} \langle F, m_F | e\hat{\mathbf{r}}_q | F', m_{F'} \rangle &= (-1)^{2F'+I+J+J'+L+S+m_F+1} \langle L || e\hat{\mathbf{r}} || L' \rangle \\ &\times \sqrt{(2F+1)(2F'+1)(2J+1)(2J'+1)(2L+1)} \\ &\times \begin{pmatrix} F' & 1 & F \\ m_{F'} & -q & -m_F \end{pmatrix} \begin{Bmatrix} J & J' & 1 \\ F' & F & I \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} L & L' & 1 \\ J' & J & S \end{Bmatrix}. \end{aligned} \quad (7.12)$$

$\langle L || e\hat{\mathbf{r}} || L' \rangle$ é o elemento de matriz reduzido e $\hat{r}_q$ é a componente q do operador vetor $\hat{\mathbf{r}}$ na base esférica. $()$ e $\{\}$ se referem aos símbolos 3- j e 6- j de Wigner, respectivamente. Um algoritmo que calcula esses símbolos algebricamente, no Maple, pode ser encontrado na Ref. [84].

Como no experimento, os campos dos lasers de femtossegundos e de diodo têm polarizações perpendiculares, então duas componentes distintas do operador vetor $\hat{\mathbf{r}}$ devem ser consideradas. Vamos supor que a polarização do campo cw e do modo m do pente estão na direção y e x , respectivamente, e tomaremos a direção y como o eixo de quantização. Então estamos interessados no cálculo das componentes y e x dos elementos de matriz, que podem ser expressos na base esférica como [85]

$$\langle F, m_F | e\hat{r}_y | F', m_{F'} \rangle = \langle F, m_F | e\hat{r}_0 | F', m_{F'} \rangle \quad (7.13a)$$

$$\langle F, m_F | e\hat{r}_x | F', m_{F'} \rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} [\langle F, m_F | e\hat{r}_1 | F', m_{F'} \rangle - \langle F, m_F | e\hat{r}_{-1} | F', m_{F'} \rangle]. \quad (7.13b)$$

Pegaremos como exemplo a transição $F = 2 \rightarrow F' = 2 \rightarrow F'' = 2$. As transições não nulas entre os subníveis Zeeman estão mostradas na Fig. 7.13.

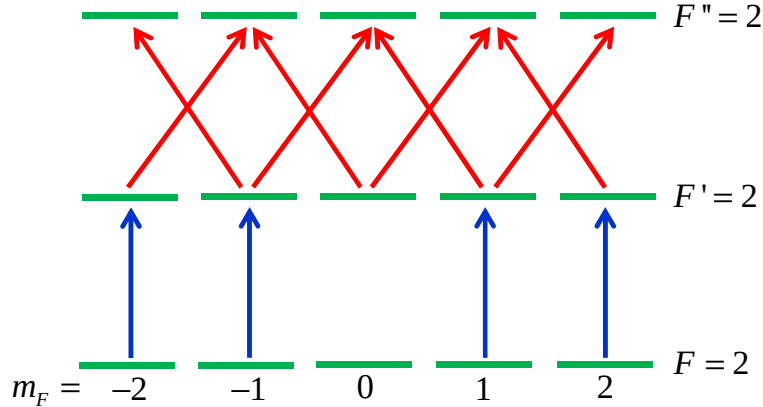


Figura 7.13 Transições não nulas entre subníveis Zeeman, para um campo com polarização no eixo de quantização y (em $F = 2 \rightarrow F' = 2$) e outro campo com polarização em x (em $F' = 2 \rightarrow F'' = 2$).

Na Fig. 7.14 mostramos a população do estado final $|3\rangle$, $\rho_{33}^{(F,F',F'')}$, para todas as oito transições permitidas da linha Doppler $F = 2$ do ^{87}Rb . O grupo de átomos $\Delta = 0$ está em ressonância simultânea com o campo cw na transição $F = 2 \rightarrow F' = 3$ e com o modo m na transição $F' = 3 \rightarrow F'' = 4$. Usamos os seguintes valores para as amplitudes dos campos, calculados a partir das potências medidas nessa região do perfil Doppler: $E_{cw} = 75 \text{ V/m}$ ($\Omega_{cw} \approx 0,3\gamma_{22}$ em $F = 2 \rightarrow F' = 3$) e $E_m = 350 \text{ V/m}$ ($\Omega_m \approx 3,5\gamma_{33}$ em $F' = 3 \rightarrow F'' = 4$). Como essas transições de dois fótons não são *Doppler free*, então existe uma pequena diferença em frequência entre as posições das transições que dependem de caminhos intermediários diferentes, como por exemplo, $F = 2 \rightarrow F' = 3 \rightarrow F'' = 3$ e $F = 2 \rightarrow F' = 2 \rightarrow F'' = 3$. O que muda entre essas transições é apenas o grupo de átomos que participa delas. Essa pequena diferença pode ser calculada da seguinte forma: suponha que um grupo de átomos com $v = 0$ ($\Delta = 0$ e

$\Delta_m = 0$) está em ressonância com a transição $F = 2 \rightarrow F' = 3$. Então outro grupo de átomos ($\Delta/2\pi = 267$ MHz) estará em ressonância com a transição $F = 2 \rightarrow F' = 2$. Porém, da Eq. (7.7), sabemos que o deslocamento Doppler para o modo m é ligeiramente diferente: $\Delta_m = (780/776) \times 267$ MHz $\approx 268,4$ MHz. Portanto, as transições $F = 2 \rightarrow F' = 3 \rightarrow F'' = 3$ e $F = 2 \rightarrow F' = 2 \rightarrow F'' = 3$ vão estar separadas por aproximadamente 1,4 MHz, uma pequena diferença que pode ser observada na Fig. 7.14 (curvas azul e vermelha). Generalizando, podemos calcular essa diferença através da seguinte equação [81]:

$$\delta_{F'} = \Delta_{F'} \left(\frac{\lambda_{cw}}{\lambda_m} - 1 \right), \quad (7.14)$$

onde $\Delta_{F'}$ corresponde à diferença de frequência entre dois níveis hiperfinos F' , que participam de cada caminho.

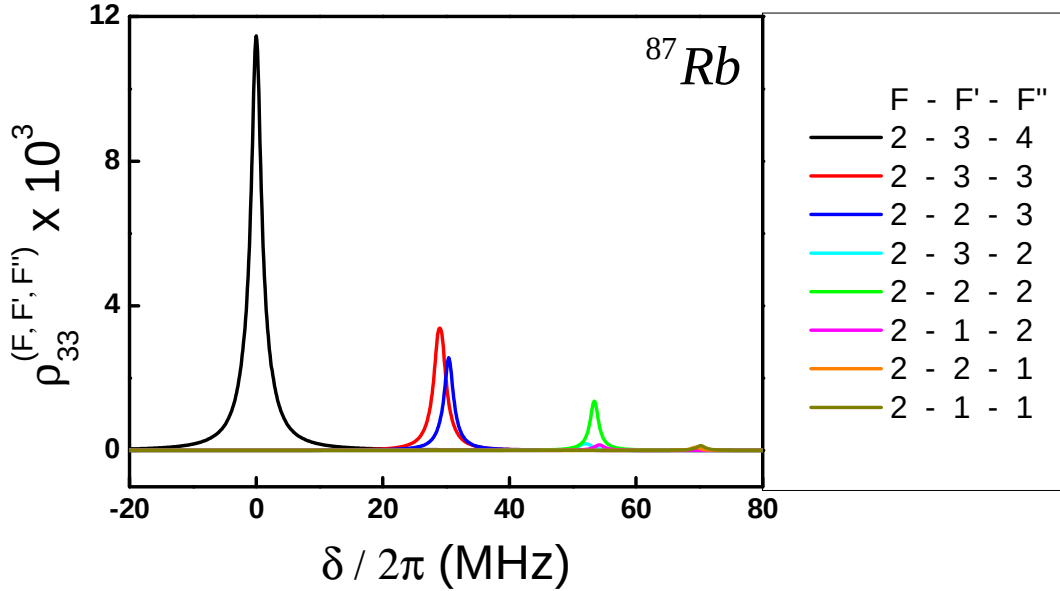


Figura 7.14 População $\rho_{33}^{(F, F', F'')}$ em função da frequência do campo cw, para todas as transições de dois fótons permitidas do ^{87}Rb , para a linha Doppler $F = 2$. O grupo de átomos $\Delta = 0$ está em ressonância simultânea com o campo cw na transição $F = 2 \rightarrow F' = 3$ e com o modo m na transição $F' = 3 \rightarrow F'' = 4$. Usamos $E_{cw} = 75$ V/m e $E_m = 350$ V/m.

Uma modelagem para cada uma das quatro linhas Doppler, incluindo todos os pontos discutidos acima, está mostrada na Fig. 7.15. Escolhemos modelar a situação em que as transições ocorressem próximas do centro do perfil Doppler ($\Delta \approx 0$). Isso não foi possível para a linha $F = 3$ do ^{85}Rb , devido à forte absorção do laser de diodo que fez com que a sua potência caísse a zero nessa região. Assim, nas figuras 7.15(c) e 7.15(d), mostramos a modelagem para esta transição próximo à borda do perfil Doppler. Na curva da direita apresentamos o resultado experimental obtido nas condições usadas na modelagem. Observamos uma boa concordância entre resultados teóricos e experimentais, embora as larguras de linha dos picos experimentais sejam ligeiramente maiores. Discutiremos esse fato na próxima seção.

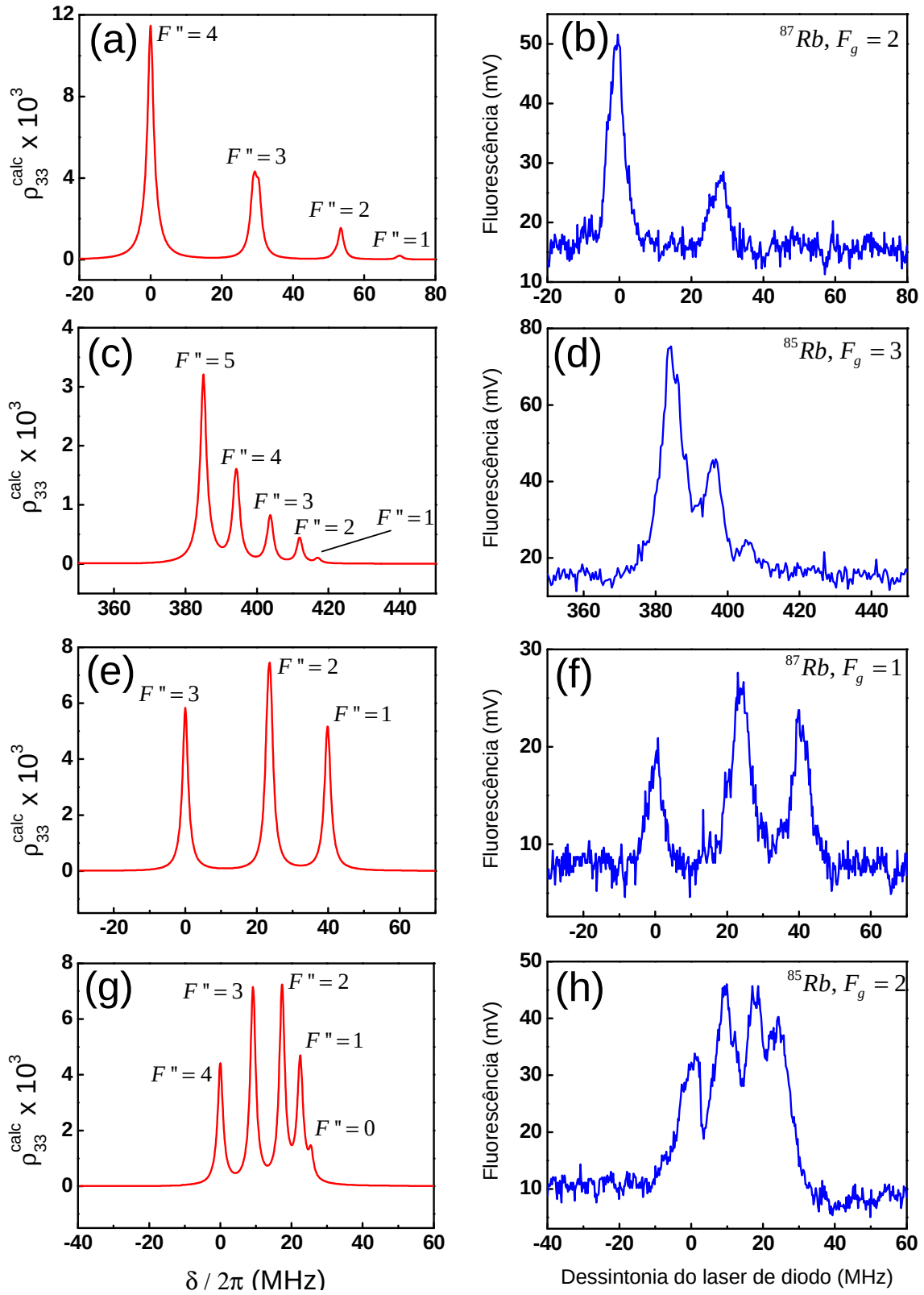


Figura 7.15 Resultado experimental (curvas azuis, coluna da direita) e modelagem da população do estado $|3\rangle$ (curvas vermelhas, coluna da esquerda) em função da frequência do campo cw, para as quatro linhas Doppler, com $E_{cw} = 75$ V/m, $E_m = 350$ V/m. O grupo de átomos $\Delta = 0$ está em ressonância com o campo cw na transição (a) $F = 2 \rightarrow F' = 3$, (e) $F = 1 \rightarrow F' = 2$, (g) $F = 2 \rightarrow F' = 3$. Em (c), o grupo de átomos $\Delta/2\pi = -385$ MHz está em ressonância com o campo cw na transição $F = 3 \rightarrow F' = 4$.

7.4 Dependência com o grupo de velocidade atômico

A relação de intensidade entre os picos varia fortemente com o grupo de velocidade dos átomos que estão participando da transição de dois fótons, conforme mostra a Fig. 7.16(a). Essa figura foi montada usando as curvas do sinal de fluorescência, onde subtraímos o sinal de fundo para uma melhor visualização e comparação, em função da frequência do laser de diodo, para diferentes valores da taxa de repetição. Cada cor se refere a uma taxa diferente, conforme mostra a legenda, com uma variação Δf_R de 300 Hz. O primeiro fato que podemos constatar é que os picos relativos à transição de dois fótons $F = 2 \rightarrow F'' = 2$ só aparecem do lado esquerdo (de menor frequência) do perfil Doppler, e que os picos relativos à transição de dois fótons $F = 2 \rightarrow F'' = 1$ aparecem apenas em algumas posições também do lado esquerdo do perfil Doppler. A amplitude do pico relativo à transição cíclica $F = 2 \rightarrow F'' = 4$, entretanto, não apresenta tanta assimetria em relação aos lados do perfil Doppler. O segundo fato é que os picos das bordas da Doppler aparecem mais largos do que os picos próximos ao centro.

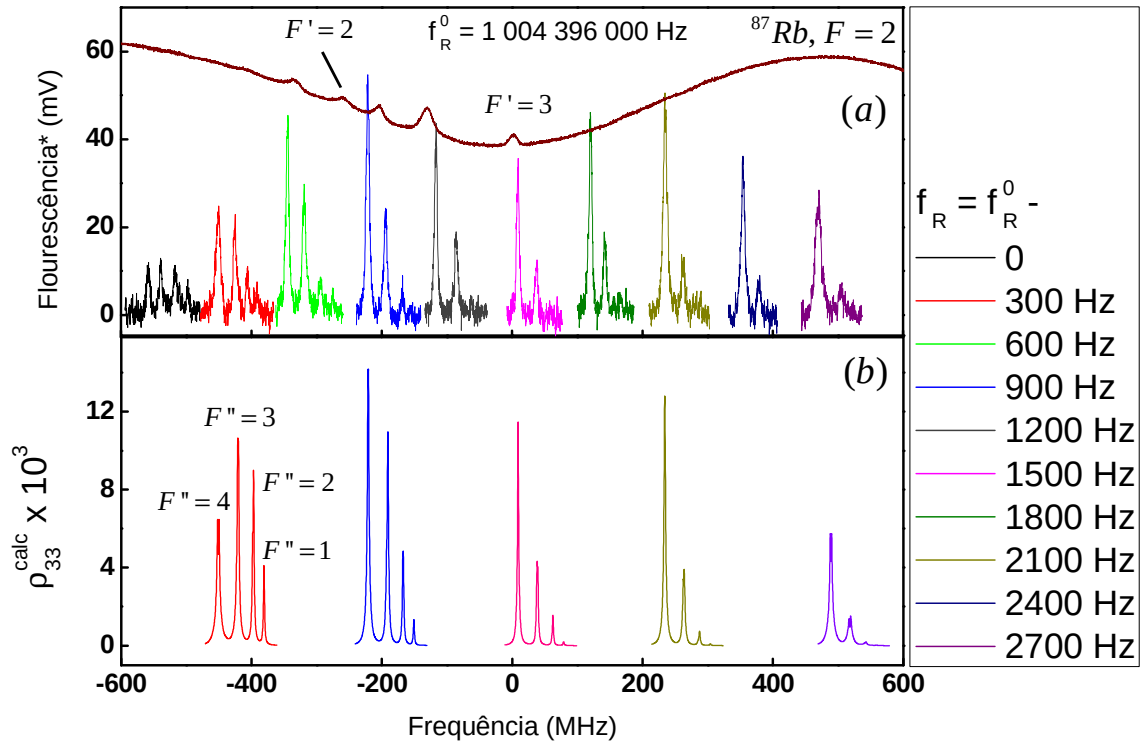


Figura 7.16 (a) Sinal de fluorescência, subtraído o sinal de fundo. A curva marrom corresponde à absorção saturada, usada para calibrar a frequência do laser de diodo. Em (b) temos a modelagem teórica de (a). Usamos $E_m = 350\text{ V/m}$, e $E_{cw} = 250\text{ V/m}$ (curva vermelha), 140 V/m (curva azul), 75 V/m (curva rosa), 130 V/m (curva amarela) e 240 V/m (curva violeta).

Os níveis hiperfinos do estado intermediário $5P_{3/2}$ têm forte influência na relação de intensidade entre os picos. Como vimos, dependendo do nível final F'' , diferentes níveis hiperfinos F' podem estar contribuindo para um mesmo pico de dois fótons. Por exemplo, a transição

de dois fótons ressonante $F = 2 \rightarrow F'' = 4$ envolve apenas um único caminho (via transição $F = 2 \rightarrow F' = 3$), enquanto que a transição $F = 2 \rightarrow F'' = 3$ envolve dois caminhos (via transições $F = 2 \rightarrow F' = 2, 3$). Além do valor do momento de dipolo influenciar, sabemos que quanto mais átomos estiverem sendo excitados, maior será a amplitude do pico da transição de dois fótons. Essa observação está de acordo com a Fig. 7.16(a), visto que no lado esquerdo da Doppler todos os quatro picos são visíveis, porque as transições com menor momento de dipolo, $F = 2 \rightarrow F'' = 1, 2$ estão em ressonância com mais grupos de átomos, pois esse lado é mais próximo em frequência das transições $F = 2 \rightarrow F' = 1, 2$ com o laser de diodo. No lado direito da Doppler, entretanto, estas transições estão mais distantes, e assim esses picos desaparecem.

Como foi visto, o nosso modelo descreve bem os picos das transições de dois fótons quando os grupos de átomos participantes estão próximos de $\Delta = 0$. Para outros grupos de velocidade, nosso modelo já não é tão fiel ao experimento. Isso pode ser visto quando comparamos as figuras 7.16(a) (experimental) e 7.16(b) (teórica), esta última na qual aplicamos a nossa teoria para modelar teoricamente os picos das transições de dois fótons em função dos grupos de velocidade dos átomos. Usamos nessa modelagem o valor dos campos calculados a partir das potências medidas nos dados da Fig. 7.16(a). A razoável discrepância entre teoria e experimento nessas condições pode ter origem em efeitos não inclusos em nosso modelo, como o auto alargamento das transições devido à interação dipolo-dipolo entre os átomos no regime de altas densidades [86, 87]: em nosso experimento, a densidade atômica calculada, a partir das equações (3.1), foi de $\sim 10^{12} \text{ cm}^{-3}$.

O alargamento observado nos picos que se encontram nas bordas da Doppler é consequência do aumento de potência dos lasers envolvidos. Isso pode ser visto na Fig. 7.17(a), onde a largura média dos picos referentes às transições $F = 2 \rightarrow F'' = 3, 4$ estão representadas em função das suas posições dentro do perfil Doppler. No centro, quando a potência do laser de diodo cai a poucos μW ($E_{cw} \approx 100 \text{ V/m}$), a largura fica em torno de 5 MHz, enquanto que nas bordas a largura tende a quase 10 MHz. Outros efeitos também são responsáveis, como (i) a largura de linha do laser de diodo, em torno de 1 MHz, (ii) o *jitter* na frequência de *off-set* em uma mesma varredura, (iii) a quebra da degenerescência dos subníveis Zeeman, e (iv) o alargamento devido ao tempo de resposta da fotomultiplicadora.

A dependência da amplitude desses picos com o grupo de velocidade está mostrada na Fig. 7.17(b). Dois parâmetros são importantes para essas amplitudes: (i) intensidade dos campos e (ii) quantidade de átomos envolvidos na transição. No centro da Doppler, a intensidade dos campos (principalmente do campo do laser de diodo) tende a ser bem menor, porém a quantidade de átomos é maior. Nas bordas da Doppler temos o efeito inverso. A relação entre esses dois parâmetros é que governa a amplitude dos picos.

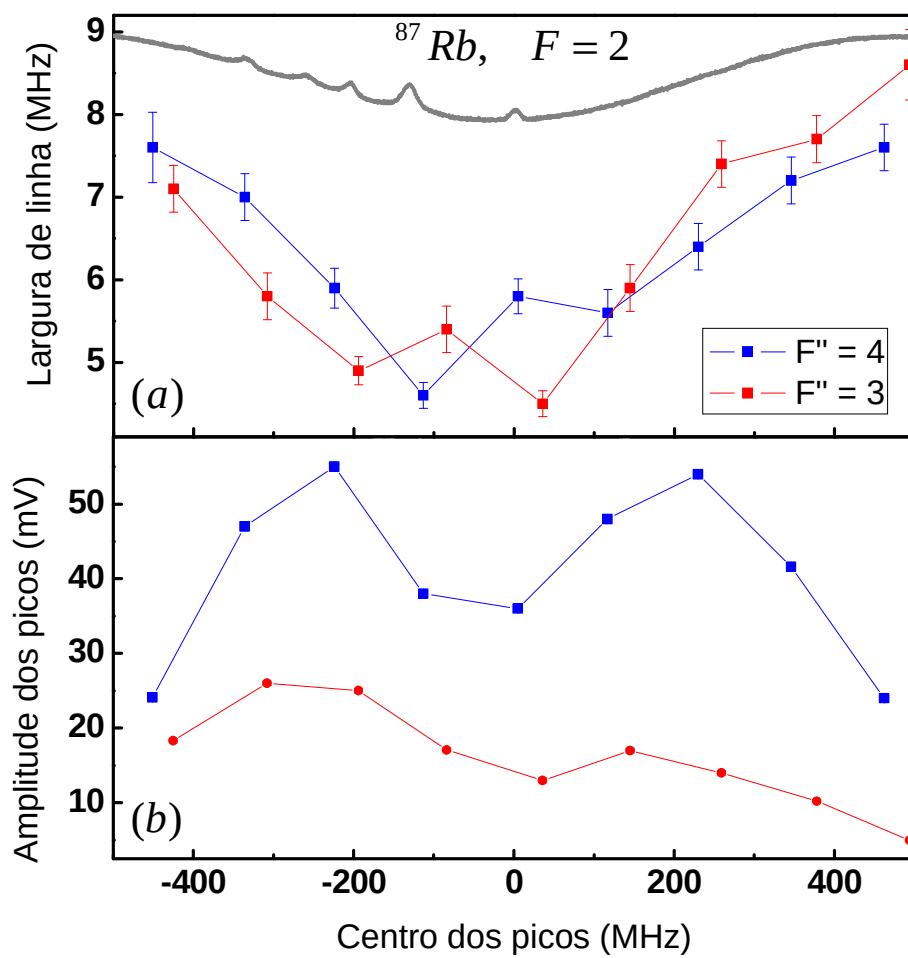


Figura 7.17 (a) Largura de linha e (b) amplitude dos picos das transições de dois fótons $F = 2 \rightarrow F'' = 3, 4$ em função de suas posições dentro do perfil Doppler.

7.5 Cálculo da frequência de *off-set* do laser de Ti:safira

O conhecimento da frequência absoluta das transições atômicas pode ser usado para determinar a frequência de *off-set* do laser de Ti:safira. Cada pico da Fig. 7.5(b), por exemplo, corresponde a uma ressonância de dois fótons (e também de um fóton), para um grupo de velocidade atômico (Δ) específico. Nesse sentido, a seguinte equação deve ser satisfeita:

$$\omega_{cw} - \Delta + \omega_m + \Delta_m = \omega_{31}. \quad (7.15)$$

Como o laser cw está em ressonância com esse grupo de átomos ($\omega_{21} = \omega_{cw} - \Delta$), obtemos a seguinte equação, no qual a frequência do modo m do pente de frequências pode ser determinada:

$$\omega_m = \omega_{32} - \left(\frac{\lambda_{cw}}{\lambda_m} \right) \Delta, \quad (7.16)$$

onde aproveitamos para lembrar que Δ pode ser determinado a partir da curva da absorção saturada.

Observando novamente a Fig. 7.5(b), obtemos o valor de ω_m , a partir do pico $F'' = 4$, fazendo as correspondências $F = 2 \leftrightarrow |1\rangle$, $F' = 3 \leftrightarrow |2\rangle$ e $F'' = 4 \leftrightarrow |3\rangle$. Como a frequência de cada modo pode ser escrita como $\omega_m/2\pi = m f_R + f_0$, onde sabemos que m é necessariamente um inteiro, e como conhecemos a taxa de repetição do laser ($f_R = 1,004\,413\,750$ GHz), podemos escrever

$$\frac{\omega_m}{2\pi} = 384\,643 \times f_R + 706 \text{ MHz}. \quad (7.17)$$

Então, explicitamente:

$$f_0 = 706 \text{ MHz}. \quad (7.18)$$

Vale ressaltar que como não estamos travando f_0 , este valor de f_0 corresponde à situação da Fig. 7.5 e, não necessariamente, é o mesmo valor de f_0 para outras séries de amostragem.

7.6 Influência do bombeio óptico do laser de diodo

Em determinadas condições de ressonância, o bombeio óptico induzido pelo laser de diodo pode contribuir para um aumento ou uma diminuição do sinal de fundo da transição de dois fótons devido somente ao laser de femtossegundos. Isso acontece quando um mesmo grupo de átomos está em ressonância simultaneamente com uma transição de dois fótons com o pente de frequências e com uma transição de um fóton do laser de diodo. Observe, por exemplo, a Fig. 7.18. A presença do laser de diodo na transição $F = 2 \rightarrow F' = 2$ induz um bombeio dos átomos para o nível hiperfino $F = 1$, o que aumenta a quantidade de átomos que podem ser excitados, por dois fótons do laser de Ti:safira, para o nível $F'' = 2$.

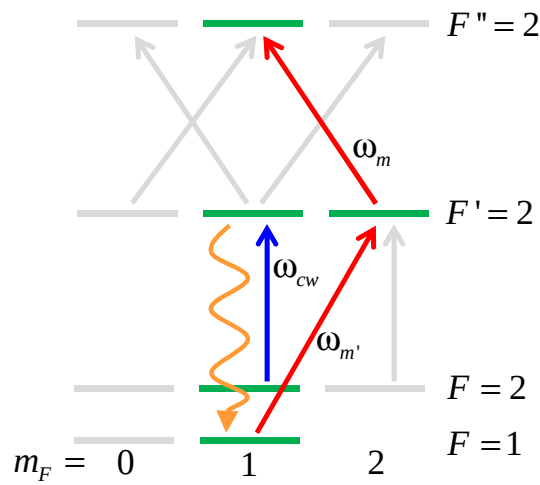


Figura 7.18 Influência do bombeio óptico do laser de diodo na transição de dois fótons do laser de Ti:safira.

Na Fig. 7.19, apresentamos uma curva típica da fluorescência em função da frequência do laser de diodo. Esta curva, obtida a partir da média de 10 varreduras efetuadas pelo osciloscópio, mostra, claramente, dois desses picos induzidos pelo bombeio óptico do laser de diodo. Eles estão separados por uma diferença de aproximadamente 157 MHz, e suas larguras de linha variam entre 50 e 90 MHz, bem maiores que as observadas para os outros picos da figura. Para esse caso, em particular, um desses picos largos vem da contribuição da fluorescência de um grupo de átomos que está em ressonância simultânea de um fóton com o laser de diodo na transição $F = 2 \rightarrow F' = 2$ e de dois fótons com o laser de Ti:safira na transição $F = 1 \rightarrow F''$. Pelo mesmo raciocínio, o outro pico largo vem do diodo na transição $F = 2 \rightarrow F' = 1$ (separado de 157 MHz da transição anterior).

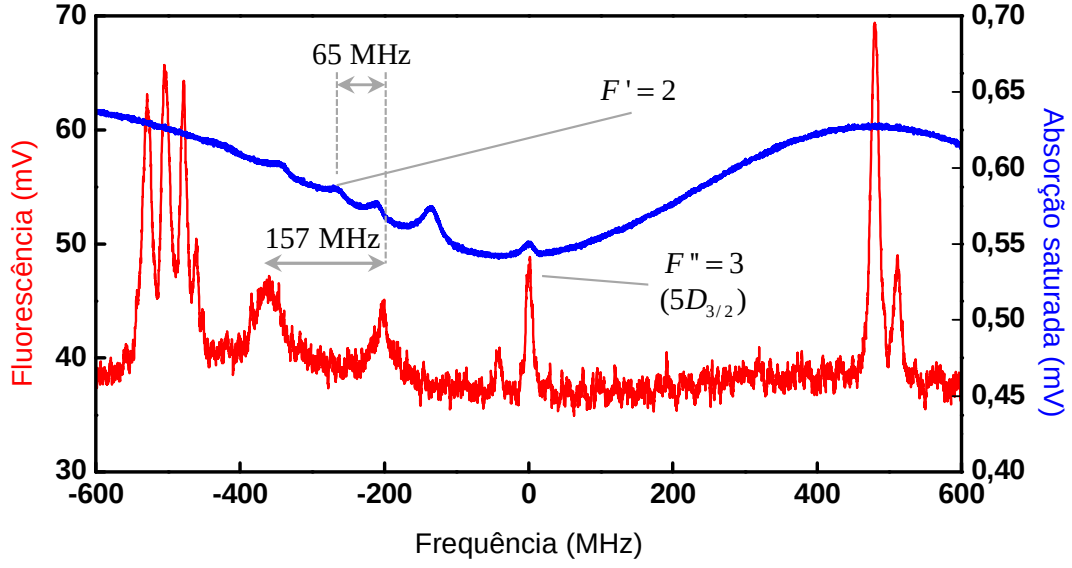


Figura 7.19 Fluorescência em função da frequência do laser de diodo, para a linha Doppler $F = 2$ do ^{87}Rb . O conjunto de picos estreitos do centro e das laterais correspondem às transições $5S_{1/2} \rightarrow 5D_{3/2}$ e $5S_{1/2} \rightarrow 5D_{5/2}$ já estudadas, respectivamente. Os picos induzidos por bombeio óptico do laser de diodo estão indicados pela separação de 157 MHz. Este sinal é uma média de dez varreduras do osciloscópio. A frequência de *off-set*, calculada a partir da posição do pico correspondente à transição $F = 2 \rightarrow F'' = 3$ do estado $5D_{3/2}$, e da taxa de repetição do laser de Ti:safira, $f_R = 1,004\,382\,780$ GHz, vale $f_0 = 692$ MHz.

7.6.1 Posição dos picos no perfil Doppler

Podemos determinar as posições desses picos largos dentro do perfil Doppler a partir de f_R , f_0 e Δ . As ressonâncias simultâneas de dois modos m e m' para um sistema de três níveis em cascata (ver figuras 7.2 e 7.8), para um mesmo grupo de velocidade de átomos, podem ser escritas matematicamente como

$$\omega_{21} = 2\pi(f_0 + m'f_R) + \Delta_{m'} \quad (7.19a)$$

$$\omega_{32} = 2\pi(f_0 + mf_R) + \Delta_m \quad (7.19b)$$

Usaremos a aproximação $\Delta_{m'} \approx \Delta_m$. Sabemos que a diferença entre eles dentro do perfil Doppler é de no máximo 5 MHz [ver Eq. (7.7)]. Então, resolvendo as equações acima para f_R , chegamos a

$$f_R = \frac{\omega_{32} - \omega_{21}}{2\pi M_1}. \quad (7.20)$$

Apenas valores muito específicos de f_R satisfazem a equação acima, onde $M_1 = m - m'$ é um inteiro. Em particular, para o valor de f_R dado nas condições da Fig. 7.19, e considerando todas

as ressonâncias no ^{87}Rb acessíveis aos modos m e m' do laser de Ti:safira, não existe nenhum inteiro M_1 que é solução da equação acima. A taxa de repetição mais próxima que satisfaz tal equação pode ser calculada a partir da sua derivada em relação a M_1 , o que implica em uma variação de

$$\begin{aligned}\frac{\partial f_R}{\partial M_1} &= -\frac{\omega_{32} - \omega_{21}}{2\pi M_1^2} \\ \Delta f_R &= -\frac{2\pi f_R^2}{\omega_{32} - \omega_{21}},\end{aligned}\quad (7.21)$$

onde fizemos $\partial M_1 = \Delta M_1 = 1$ e $\partial f_R = \Delta f_R$. Considerando que $(\omega_{32} - \omega_{21})/2\pi \approx 2$ THz para os dois isótopos do Rb, chegamos em $\Delta f_R \approx 0,5$ MHz, valor muito distante da sintonia máxima da taxa de repetição do laser (30 kHz). Isso descarta de uma vez por todas as transições de dois fótons em ressonância com nível intermediário.

No entanto, para ressonâncias de dois fótons puras, a equação a ser satisfeita é

$$f_R = \frac{\omega_{31} - 2(\Delta_m + 2\pi f_0)}{2\pi M_2}, \quad (7.22)$$

onde $M_2 = m + m'$ é outro número inteiro. Nesse caso, sempre vai existir um Δ_m no perfil Doppler para cada transição acessível aos modos m e m' que seja solução da equação acima para M_2 inteiro. Assim, mesmo para f_0 e f_R travados, existem diversos grupos de átomos contribuindo para a transição de dois fótons pura do laser de Ti:safira. Entretanto, sabemos que a transição de dois fótons mais provável é aquela cujos modos estão mais próximos das ressonâncias de um fóton. Vamos então procurar, entre todas as transições de dois fótons possíveis, aquela que é “mais ressonante” com o nível intermediário. Modificando as equações (7.19) para incluir a dessintonia ε com o nível intermediário, escrevemos

$$\omega_{21} = 2\pi(f_0 + m' f_R) + \Delta_m + \varepsilon \quad (7.23a)$$

$$\omega_{32} = 2\pi(f_0 + m f_R) + \Delta_m - \varepsilon. \quad (7.23b)$$

Resolvendo para $M_1 = m - m'$, chegamos em

$$M_1 = \frac{\omega_{32} - \omega_{21} - 2\varepsilon}{2\pi f_R}. \quad (7.24)$$

Como $|\varepsilon| \leq \pi f_R$, e M_1 é um inteiro, então a equação acima pode ser reescrita como

$$M_1 = \left\lfloor \frac{\omega_{32} - \omega_{21}}{2\pi f_R} \right\rfloor. \quad (7.25)$$

Estamos utilizando a notação de Graham [88], onde o símbolo $\lfloor \cdot \rfloor$ indica a parte inteira de um número real. Combinando as equações (7.24) e (7.25) e resolvendo para ε , e aplicando o mesmo raciocínio para o cálculo de Δ_m na Eq. (7.22), chegamos às equações que determinam a

dessintonia com o nível intermediário e o grupo de átomos ressonante com a transição de dois fótons:

$$\varepsilon = \pi f_R \left\{ \frac{\omega_{32} - \omega_{21}}{2\pi f_R} \right\} \quad (7.26a)$$

$$\Delta_m = \pi f_R \left\{ \frac{\omega_{31}}{2\pi f_R} \right\} - 2\pi f_0, \quad (7.26b)$$

onde $\{x\} \equiv x - [x]$ indica a parte fracionária de x . A aplicação dessas equações às transições de dois fótons do ^{87}Rb está mostrada na Tabela 7.1.

Tabela 7.1 - Dessintonia (ε) e grupo de átomos (Δ_m) para as transições hiperfinas do ^{87}Rb		
$f_R = 1,004\,382\,780\text{ GHz}; f_0 = 692\text{ MHz}$		
$5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 5D_{5/2}$		
$F \rightarrow F' \rightarrow F''$	$\varepsilon/2\pi\text{ (MHz)}$	$\Delta_m/2\pi\text{ (MHz)}$
$1 \rightarrow 2 \rightarrow 3$	218	45
$1 \rightarrow 2 \rightarrow 2$	230	57
$1 \rightarrow 1 \rightarrow 2$	-115	57
$1 \rightarrow 2 \rightarrow 1$	238	65
$1 \rightarrow 1 \rightarrow 1$	-107	65
$1 \rightarrow 0 \rightarrow 1$	-35	65
$5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 5D_{3/2}$		
$1 \rightarrow 2 \rightarrow 3$	-32	-205
$1 \rightarrow 2 \rightarrow 2$	-54	-227
$1 \rightarrow 1 \rightarrow 2$	103	-227
$1 \rightarrow 2 \rightarrow 1$	-68	-241
$1 \rightarrow 1 \rightarrow 1$	89	-241
$1 \rightarrow 0 \rightarrow 1$	161	-247
$1 \rightarrow 1 \rightarrow 0$	83	-247
$1 \rightarrow 0 \rightarrow 0$	155	-247

Os menores valores de $\varepsilon/2\pi$ (em módulo) são -32 e -35 MHz, correspondendo às transições $F = 1 \rightarrow F' = 2 \rightarrow F'' = 3$ do nível $5D_{3/2}$ e $F = 1 \rightarrow F' = 0 \rightarrow F'' = 1$ do nível $5D_{5/2}$, respectivamente. Lembrando que o momento de dipolo da transição $5P_{3/2} \rightarrow 5D_{3/2}$ é aproximadamente nove vezes menor do que o da transição $5P_{3/2} \rightarrow 5D_{5/2}$ (ver tabela B.6), podemos considerar que a transição $F = 1 \rightarrow F' = 0 \rightarrow F'' = 1$ do nível $5D_{5/2}$ é a que mais contribui para o sinal observado.

7.6.2 Forma de linha dos picos

Podemos modelar a forma de linha dos picos induzidos por bombeio óptico a partir da solução das equações de Bloch já discutidas nesse capítulo, mas agora com a presença de dois modos m e m' , co-propagantes, do pente de frequências. O campo cw do laser de diodo entra na teoria apenas como uma modificação da população do estado $|1\rangle$ no equilíbrio, selecionando um grupo de velocidades. Assim, vamos resolver as equações de Bloch (7.4) fazendo as seguintes trocas:

$$cw \rightarrow m' \quad (7.27a)$$

$$\rho_{11}^{(0)} \rightarrow \rho_{11}^{(0)} + \left[1 + \frac{\gamma_{bb}^2 + 4(\Omega_{cw}^2 + \delta_{cw}^2)}{2\Omega_{cw}^2(\gamma_{bb}/\Gamma_{cw})} \right]^{-1}, \quad (7.27b)$$

onde na Eq. (7.27b) usamos o segundo termo do lado direito da Eq. (6.1) para o bombeio óptico do capítulo anterior, com as correspondências $|1\rangle \rightarrow |a\rangle$ e $|2\rangle \rightarrow |b\rangle$ para a transição acoplada com o campo cw. Observe a Fig. 7.20.

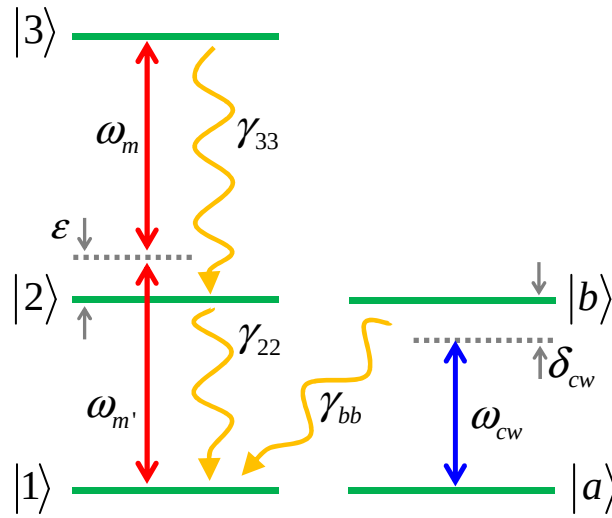


Figura 7.20 Modelo teórico para o estudo dos picos induzidos pelo bombeio óptico do campo cw. Os estados $|a\rangle$ e $|b\rangle$ não são incluídos nas equações de Bloch. A modificação do estado $|1\rangle$ pelo campo cw é governada pela Eq. (7.27b).

A Fig. 7.21 mostra a população do estado $|3\rangle$ calculada da mesma forma que na Fig. 7.14, onde as únicas diferenças foram as modificações (7.27). Primeiro veja que essa figura apresenta um sinal de fundo, que é determinado pela transição de dois fótons dos modos do pente com grupos de átomos que estão longe da ressonância com o laser de diodo. A forma de linha da figura tem uma largura à meia altura de 65 MHz. Isso é um pouco maior do que a largura experimental (50 MHz).

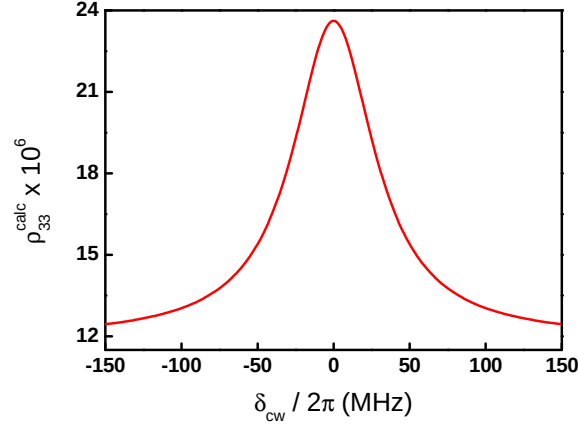


Figura 7.21 População do estado excitado $|3\rangle$ em função da frequência do laser cw. Usamos $E_{cw} = 500$ V/m, $E_m = 350$ V/m, $E_{m'} = 400$ V/m, $\varepsilon/2\pi = -35$ MHz e $\Delta/2\pi = 65$ MHz. Os momentos de dipolo usados correspondem aos das transições do ^{87}Rb $F = 1 \rightarrow F' = 0 \rightarrow F'' = 1(5D_{5/2})$ para o modos m e m' e $F = 2 \rightarrow F' = 2$ para o campo cw.

Como os modos do pente de frequências estão fixos, a largura de linha observada é dominada pelo bombeio óptico do laser cw. Na aproximação $\Gamma_{cw} \ll \Omega_{cw}$, γ_{bb} , essa largura de linha, calculada a partir da expressão (7.14b), vale

$$\Delta\omega = \Omega_{cw} \sqrt{\frac{\gamma_{bb}}{\Gamma_{cw}}}. \quad (7.28)$$

7.7 Conclusões

Investigamos, experimental e teoricamente, a transição de dois fótons $5S \rightarrow 5P \rightarrow 5D$ em vapor de rubídio, excitada simultaneamente pelos lasers de diodo e de Ti:safira. Usando a espectroscopia seletiva em velocidade, pudemos resolver as transições hiperfinas envolvendo os estados $5D_{3/2}$ e $5D_{5/2}$. A partir de uma grande quantidade de dados experimentais obtidos, analisamos estatisticamente as flutuações na frequência dos modos do pente de frequências. Também estimamos a frequência de *off-set* do laser de Ti:safira a partir dos dados experimentais.

Teoricamente, apresentamos um método algébrico para explicar os resultados experimentais, fundamentado no domínio da frequência. As equações de Bloch foram resolvidas exatamente, na presença do laser de diodo e de um modo do pente de frequências. Todas as quatro transições Doppler da linha D_2 do rubídio foram modeladas, e obtemos uma boa concordância entre teoria e experimento, mesmo sem o travamento da frequência de *off-set*, o que indica uma relativa potencialidade do sistema para espectroscopia de alta resolução.

Os resultados descritos nesse capítulo foram aceitos para publicação no periódico *Optics Letters*:

Marco P. Moreno, Giovana T. Nogueira, Daniel Felinto, Sandra S. Vianna, “Two-photon transitions driven by a combination of diode and femtosecond lasers”.

CAPÍTULO 8

Conclusões

Nesta tese, estudamos a interação entre um vapor atômico e um trem de pulsos ultracurtos na presença de um laser de diodo atuando ora como um laser de prova, ora como feixe de excitação.

1 - Abordamos o problema tanto no domínio temporal como no domínio da frequência. Por um lado, trabalhamos integrando numericamente as equações de Bloch e, por outro lado, apresentando soluções analíticas aproximadas. Foram investigados sistemas com dois, três e quatro níveis, envolvendo configurações λ e cascata. Nesse caso, exploramos efeitos de bombeio óptico, propagação, EIT e transições de um e de dois fótons.

2 - Do ponto de vista teórico, fizemos a conexão entre os domínios do tempo e da frequência, analisando seus limites quanto à potência, número de modos, tempo de interação e taxa de repetição. No regime de EIT, obtivemos uma equação fechada no limite de baixas intensidades, e mostramos o surgimento de um pente de linhas de EIT dentro das janelas de EIT.

3 - Do ponto de vista experimental, partimos de um laser de Ti:safira com taxa de repetição da ordem de 100 MHz, onde a descrição temporal se mostra mais apropriada, e chegamos a mostrar experimentos com um laser em 1 GHz na taxa de repetição, onde a descrição no domínio da frequência é mais clara e permite uma solução analítica simples no limite de campo fraco.

4 - Em particular, no caso do laser de 1 GHz, mostramos a possibilidade de fazer espectroscopia seletiva em velocidade com resolução nas transições hiperfinas de um e de dois fótons, dos níveis $5P$ (um fóton) e $5D$ (dois fótons). Efeitos como bombeio óptico, saturação e efeito Stark puderam ser visualizados e analisados.

5 - Embora não tenhamos um sistema travado na frequência de *offset*, mostramos a potencialidade do sistema para uma espectroscopia de alta resolução em uma banda de frequências bem larga (envolvendo os níveis $5D_{3/2}$ e $5D_{5/2}$).

APÊNDICE A

Programa em C++

O código apresentado aqui calcula a evolução temporal dos elementos da matriz densidade para um trem de pulsos ultracurtos interagindo com um sistema de dois níveis. As equações são resolvidas numericamente na presença dos pulsos e analiticamente na ausência deles.

A Fig. A.1 mostra a convergência de ρ_{22} em função do número de iterações no algoritmo de Runge-Kutta de quarta ordem. O erro relativo, ou erro direto [89], é definido pela seguinte equação:

$$\text{Erro relativo} = \frac{\rho_{22}^i - \rho_{22}^{i-1}}{\rho_{22}^i}, \quad (\text{A.1})$$

onde ρ_{22}^i é a população ρ_{22} após i iterações. Em todos os cálculos numéricos que usaram o algoritmo de Runge-Kutta nesta tese, trabalhamos sempre com o erro relativo menor que 10^{-8} . A frequência de Rabi por modo, Ω_m , está definida na Eq. (5.11).

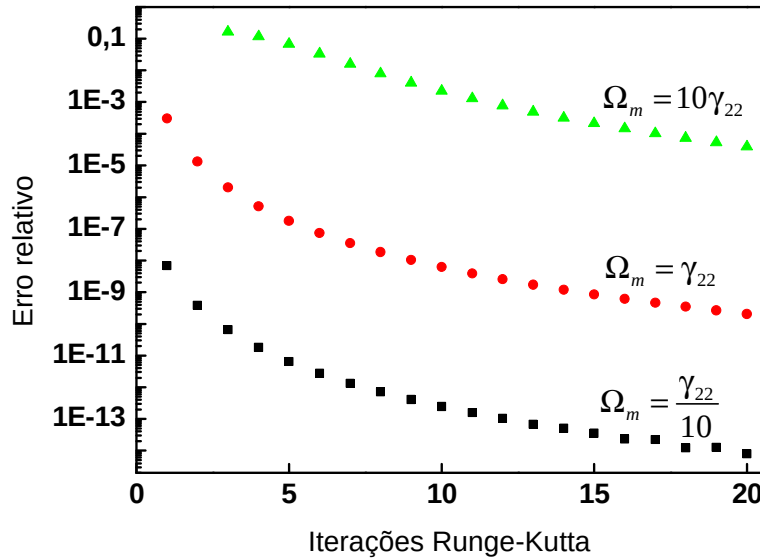


Figura A.1 Erro relativo, para ρ_{22} , em função do número de iterações para o algoritmo de Runge-Kutta de quarta ordem, para diferentes valores da frequência de Rabi por modo. Dados: $f_R = 100$ MHz, $\phi = 0$, $T_p = 100$ fs, $\omega_c = \omega_{21} = 2\pi \times 400$ THz, $N = 100$ pulsos e $\gamma_{22} = 2\gamma_{12} = 5$ MHz.

Segue abaixo o programa escrito na linguagem C++.

```
# include <stdio.h>
# include <math.h>

double q12, q22, w, alpha, N, wL, w2, dd, Omega, h, t, Tr, fr, phi, Tp, x, y;
double a[4], b[4], k1[4], k2[4], k3[4], k4[4];
double Pi = 3.141592654;
int Pulsos, i, j, k, m, iteracoes, g;

//Equações de Bloch
double f(double a1, double a2, double a12, double b12, int i)
{
    if (i==1) return + 2*Omega*(b12*cos(alpha) - a12*sin(alpha)) + q22*a2;
    if (i==2) return - 2*Omega*(b12*cos(alpha) - a12*sin(alpha)) - q22*a2;
    if (i==3) return - dd*b12 - Omega*(a2-a1)*sin(alpha) - q12*a12;
    if (i==4) return dd*a12 + Omega*(a2-a1)*cos(alpha) - q12*b12;
}

main()
{
    FILE *arquivo;
    arquivo = fopen("dados.dat", "w"); //Cria o arquivo dados.dat para escrita
    iteracoes = 10; //Número de iterações no Runge-Kutta

    //Variáveis físicas do problema, em unidades do SI
    q22 = (2*Pi)*5e6; //Taxa de relaxação da população
    q12 = 0.5*q22; //Taxa de relaxação da coerência
    fr = 100e6; //Taxa de repetição do trem de pulsos
    Tp = 100e-15; //Largura temporal do pulso
    Pulsos = 100; //Número de pulsos do trem
    Omega = 0.01*q22/(fr*Tp); //Frequência de Rabi por modo
    w2 = (2*Pi)*400e12; //Frequência de ressonância do átomo
    wL = (2*Pi)*400e12; //Frequência da onda portadora do trem de pulsos
    phi = (2*Pi)*0.4*0; //Fase relacionada ao off-set

    t = 0; N = -1; dd = w2 - wL; Tr = 1/fr;
```

```

//Condições iniciais
a[1] = 1;      //População do estado 1
a[2] = 0;      //População do estado 2
a[3] = 0;      //Parte real da coerência
a[4] = 0;      //Parte imaginária da coerência

//Interação com N pulsos do trem
for (i = 1; i <= 2*Pulsos + 1; i++)
{
    //Solução das equações na presença dos pulsos
    if (i % 2 == 0)
    {
        N = N + 1;
        g = iteracoes;
        h = (1/double(g))*Tp;
        alpha = -N*wL*Tr + N*phi;

        //Começo do código do Runge-Kutta
        for (k = 1; k <= g; k++)
        {
            t = t + h;

            for (j = 1; j <= 4; j++)
                k1[j] = f(a[1],a[2],a[3],a[4],j);

            for (j = 1; j <= 4; j++)
                k2[j] = f(a[1]+k1[1]*h/2,a[2]+k1[2]*h/2,a[3]+k1[3]*h/2, a[4]+k1[4]*h/2,j);

            for (j = 1; j <= 4; j++)
                k3[j] = f(a[1]+k2[1]*h/2,a[2]+k2[2]*h/2,a[3]+k2[3]*h/2, a[4]+k2[4]*h/2,j);

            for (j = 1; j <= 4; j++)
                k4[j] = f(a[1]+k3[1]*h,a[2]+k3[2]*h,a[3]+k3[3]*h, a[4]+k3[4]*h,j);

            for (j = 1; j <= 4; j++)
                b[j] = a[j]+h*(k1[j]/6+k2[j]/3+k3[j]/3+k4[j]/6);

            for (m = 1; m <= 4; m++)

```

```

        a[m] = b[m];
    }
}

//Solução das equações no decaimento
if (i % 2 == 1)
{
    t = t + (Tr-Tp);
    x = dd*(Tr-Tp);
    y = (Tr-Tp)*q22;

    b[1] = a[1] + a[2]*(1-exp(-y));
    b[2] = a[2]*exp(-y);
    b[3] = (a[3]*cos(x) - a[4]*sin(x))*exp(-0.5*y);
    b[4] = (a[3]*sin(x) + a[4]*cos(x))*exp(-0.5*y);

    for (m = 1;m <= 4;m++)
        a[m] = b[m];
}

w = b[1] + b[2]; //Soma das populações

//Imprime o resultado na tela
printf("%d %12.10f %12.10f %12.10f %12.10f",
        i, b[1], b[2], sqrt(b[3]*b[3] + b[4]*b[4]), w);
printf("\n ");

//Imprime o resultado no arquivo
fprintf(arquivo,"%12.10f %12.10f %12.10f %12.10f",
        t*1e9-0.99999, b[1], b[2], sqrt(b[3]*b[3] + b[4]*b[4]));

fprintf(arquivo,"\n ");

}

fclose(arquivo);        //Fecha o arquivo
printf("\a ");          //Alerta sonoro de finalização do programa
}

```

APÊNDICE B

Tabela de dados

Apresentamos aqui as constantes utilizadas na tese. Em cada tabela, incluímos a referência pesquisada. Os valores para a força do oscilador (*oscillator strength*) nas tabelas B.7 e B.8 foram calculados a partir da Eq. (B.1).

Tabela B.1 - Constantes Físicas Fundamentais [50]		
Velocidade da luz	c	$3,0 \times 10^8$ m/s
Permeabilidade magnética do vácuo	μ_0	$4\pi \times 10^{-7}$ N/A ²
Permissividade elétrica do vácuo	ϵ_0	$8,85 \times 10^{-12}$ F/m
Constante de Planck	$\hbar$	$1,05 \times 10^{-34}$ J.s

Tabela B.2 - Propriedades Físicas do Rubídio [50]		
Número atômico		37
⁸⁵ Rb	Abundância natural relativa	72,2%
	Spin nuclear	5/2
⁸⁷ Rb	Abundância natural relativa	28,8%
	Spin nuclear	3/2

Tabela B.3 - Rubídio, Linha D₁ (5²S_{1/2} → 5²P_{1/2}) Propriedades das Transições Ópticas [50]		
Frequência de excitação	ω_0	$2\pi \times 377$ THz
Comprimento de onda (vácuo)	λ	795,0 nm
Tempo de vida	T	27,7 ns
Largura de linha	γ	$2\pi \times 5,8$ MHz
Momento de dipolo elétrico	μ	$2,5 \times 10^{-29}$ C.m

Força do Oscilador das transições hiperfinas (parte radial) [50]:

$$S_{F,F'} = (2F' + 1)(2J + 1) \left\{ \begin{matrix} J & J' & 1 \\ F' & F & I \end{matrix} \right\}^2 \quad (\text{B.1})$$

Tabela B.4 - Rubídio, Linha D₂(5²S_{1/2} → 5²P_{3/2}) Propriedades das Transições Ópticas [50]		
Frequência de excitação	ω_0	$2\pi \times 384$ THz
Comprimento de onda (vácuo)	λ	780,2 nm
Tempo de vida	T	26,2 ns
Largura de linha	γ	$2\pi \times 6,1$ MHz
Momento de dipolo elétrico	μ	$3,6 \times 10^{-29}$ C.m

Tabela B.5 - Elementos de Matriz do Operador Dipolo Elétrico [90]		
$\langle n, L \hat{\mu} n, L + 1 \rangle$	SI	Unidades atômicas
5S → 5P	$4,5 \cdot 10^{-29}$ C.m	5,31
5P → 5D	$8,6 \cdot 10^{-30}$ C.m	1,02

Tabela B.6 - Força do Oscilador das Transições Finas [50]	
$J \rightarrow J'$	$S_{JJ'}$
5S _{1/2} → 5P _{1/2}	1/3
5S _{1/2} → 5P _{3/2}	2/3
5P _{3/2} → 5D _{3/2}	1/10
5P _{3/2} → 5D _{5/2}	9/10

Tabela B.7 - Força do Oscilador [$S_{F,F'}$, Eq. (B.1)] das Transições Hiperfinas $F \rightarrow F'$ e $F' \rightarrow F''$ do ⁸⁵Rb				
5 ² S _{1/2} → 5 ² P _{1/2} (Linha D ₁)	S_{33}	4/9	S_{23}	7/9
	S_{32}	5/9	S_{22}	2/9
5 ² S _{1/2} → 5 ² P _{3/2} (Linha D ₂)	S_{34}	9/14	S_{23}	14/15
	S_{33}	5/18	S_{22}	7/18
	S_{32}	5/63	S_{21}	3/10
5 ² P _{3/2} → 5 ² D _{3/2}	S_{44}	3/4	S_{23}	128/225
	S_{43}	1/4	S_{22}	1/90
	S_{34}	9/28	S_{21}	21/50
	S_{33}	49/180	S_{12}	7/10
	S_{32}	128/315	S_{11}	3/10
5 ² P _{3/2} → 5 ² D _{5/2}	S_{45}	22/27	S_{23}	12/25
	S_{44}	1/6	S_{22}	2/5
	S_{43}	1/54	S_{21}	3/25
	S_{34}	9/14	S_{12}	14/45
	S_{33}	3/10	S_{11}	7/15
	S_{32}	2/35	S_{10}	2/9

Tabela B.8 - Força do Oscilador [$S_{F,F'}$, Eq. (B.1)] das Transições Hiperfinas $F \rightarrow F'$ e $F' \rightarrow F''$ do ^{87}Rb				
$5^2S_{1/2} \rightarrow 5^2P_{1/2}$ (Linha D ₁)	S_{22}	1/2	S_{12}	5/6
	S_{21}	1/2	S_{11}	1/6
$5^2S_{1/2} \rightarrow 5^2P_{3/2}$ (Linha D ₂)	S_{23}	7/10	S_{12}	5/12
	S_{22}	1/4	S_{11}	5/12
	S_{21}	1/20	S_{10}	1/6
$5^2P_{3/2} \rightarrow 5^2D_{3/2}$	S_{33}	4/5	S_{12}	8/15
	S_{32}	1/5	S_{11}	2/15
	S_{23}	7/25	S_{10}	1/3
	S_{22}	10/25	S_{01}	1
	S_{21}	8/25		
$5^2P_{3/2} \rightarrow 5^2D_{5/2}$	S_{34}	6/7	S_{21}	1/50
	S_{33}	2/15	S_{12}	7/10
	S_{32}	1/105	S_{11}	3/10
	S_{23}	56/75	S_{01}	1
	S_{22}	35/150		

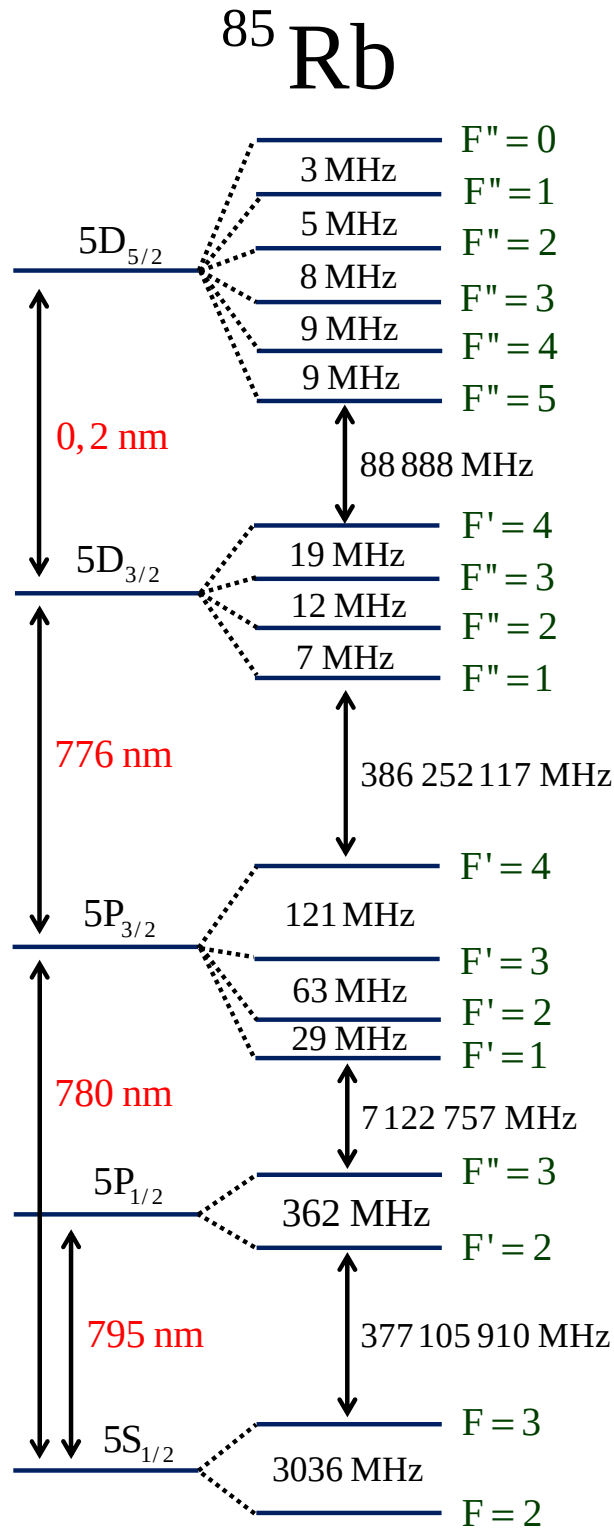


Figura B.1 Diagrama de níveis para a estrutura hiperfina do ^{85}Rb .

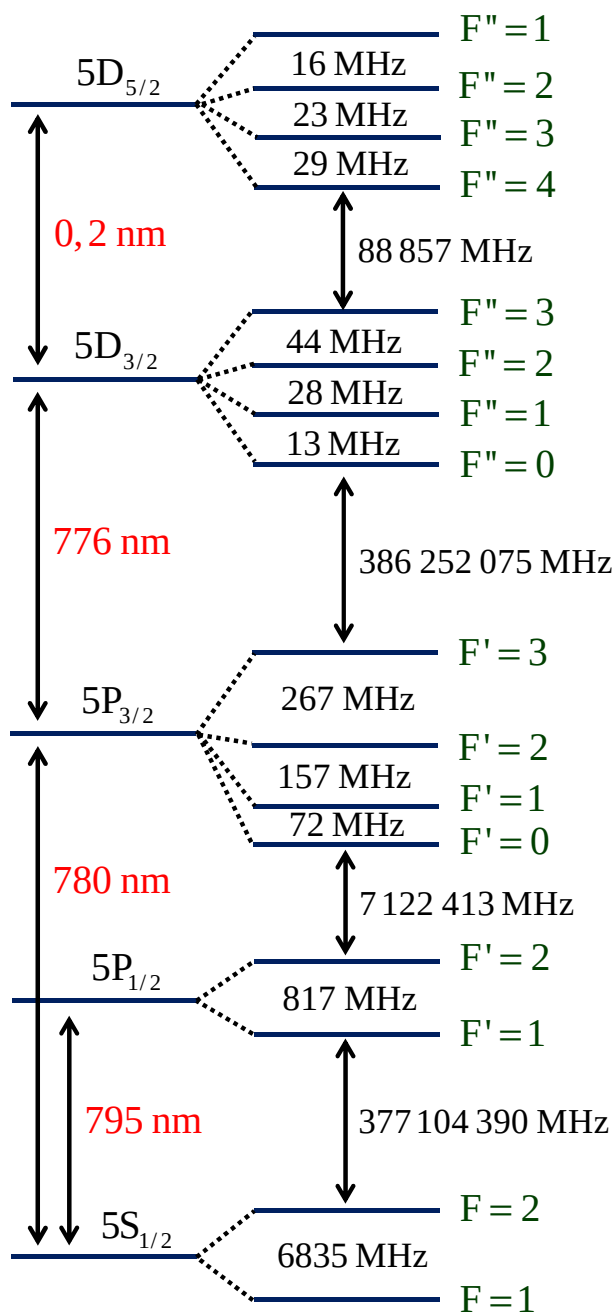
^{87}Rb 

Figura B.2 Diagrama de níveis para a estrutura hiperfina do ^{87}Rb .

APÊNDICE C

Equações de Bloch

Equações de Bloch para sistemas de dois e de três níveis nas configurações Λ e cascata.

C.1 Sistema de dois níveis

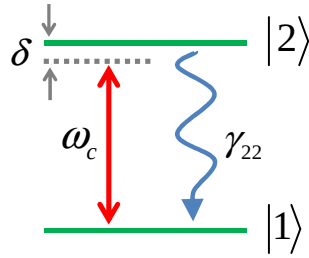


Figura C.1 Sistema atômico de dois níveis.

Hamiltoniano:

$$\hat{H} = \hbar\omega_{21} |2\rangle \langle 2| - \mu_{12}E(t) |1\rangle \langle 2| + \text{h.c.} \quad (\text{C.1})$$

Campo:

$$E(t) = E_0(t)e^{i\omega_c t}. \quad (\text{C.2})$$

Equações de Bloch:

$$\dot{\rho}_{11} = -i\Omega(t)\rho_{12} + \text{c.c.} + \gamma_{22}\rho_{22} \quad (\text{C.3a})$$

$$\dot{\rho}_{22} = i\Omega(t)\rho_{12} + \text{c.c.} - \gamma_{22}\rho_{22} \quad (\text{C.3b})$$

$$\dot{\rho}_{12} = (i\omega_{21} - \gamma_{12})\rho_{12} + i\Omega(t)(\rho_{22} - \rho_{11}), \quad (\text{C.3c})$$

Notação:

$$\Omega(t) = \Omega_0(t)e^{i\omega_c t} \quad (\text{C.4})$$

Frequência de Rabi:

$$\Omega_0(t) = \frac{\mu_{12}E_0(t)}{\hbar}. \quad (\text{C.5})$$

Equações de Bloch em termos da envoltória lenta da coerência e na aproximação de onda girante:

$$\dot{\rho}_{11} = -i\Omega_0(t)\sigma_{12} + \text{c.c.} + \gamma_{22}\rho_{22} \quad (\text{C.6a})$$

$$\dot{\rho}_{22} = i\Omega_0(t)\sigma_{12} + \text{c.c.} - \gamma_{22}\rho_{22} \quad (\text{C.6b})$$

$$\dot{\sigma}_{12} = (i\delta - \gamma_{12})\sigma_{12} + i\Omega_0(\rho_{22} - \rho_{11}) \quad (\text{C.6c})$$

Notação:

$$\rho_{12} = \sigma_{12}e^{i\omega_c t} \quad (\text{C.7a})$$

$$\delta = \omega_{21} - \omega_c \quad (\text{C.7b})$$

C.2 Sistema de 3 níveis tipo Λ

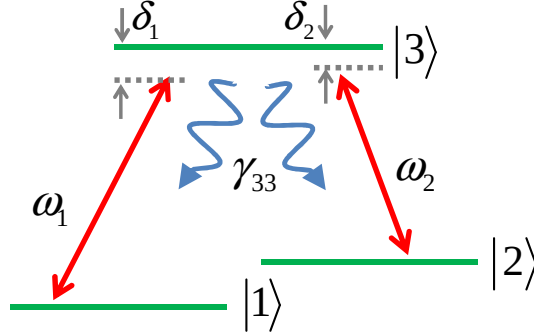


Figura C.2 Sistema atômico de três níveis tipo Λ .

Hamiltoniano:

$$\hat{H} = \hbar\omega_{21}|2\rangle\langle 2| + \hbar\omega_{31}|3\rangle\langle 3| - \mu_{13}E_1(t)|1\rangle\langle 3| + \text{h.c.} - \mu_{23}E_2(t)|2\rangle\langle 3| + \text{h.c.} \quad (\text{C.8})$$

Campos:

$$E_1(t) = E_1^0(t)e^{i\omega_1 t} \quad (\text{C.9a})$$

$$E_2(t) = E_2^0(t)e^{i\omega_2 t} \quad (\text{C.9b})$$

Equações de Bloch:

$$\dot{\rho}_{11} = -i\Omega_{31}(t)\rho_{13} + c.c. + \frac{\gamma_{33}}{2}\rho_{33} \quad (C.10a)$$

$$\dot{\rho}_{22} = -i\Omega_{32}(t)\rho_{23} + c.c. + \frac{\gamma_{33}}{2}\rho_{33} \quad (C.10b)$$

$$\dot{\rho}_{33} = i\Omega_{31}(t)\rho_{13} + c.c. + i\Omega_{32}(t)\rho_{23} + c.c. - \gamma_{33}\rho_{33} \quad (C.10c)$$

$$\dot{\rho}_{12} = (i\omega_{21} - \gamma_{12})\rho_{12} - i\Omega_{32}(t)\rho_{13} + i\Omega_{13}(t)\rho_{32} \quad (C.10d)$$

$$\dot{\rho}_{13} = (i\omega_{31} - \gamma_{13})\rho_{13} - i\Omega_{23}(t)\rho_{12} + i\Omega_{13}(t)(\rho_{33} - \rho_{11}) \quad (C.10e)$$

$$\dot{\rho}_{23} = (i\omega_{32} - \gamma_{23})\rho_{23} - i\Omega_{13}(t)\rho_{21} + i\Omega_{23}(t)(\rho_{33} - \rho_{22}) \quad (C.10f)$$

Notação:

$$\Omega_{k3}(t) = \Omega_{k3}^0(t)e^{i\omega_k t}. \quad (C.11)$$

Frequência de Rabi:

$$\Omega_{k3}^0(t) = \frac{\mu_{k3}E_k^0(t)}{\hbar}. \quad (C.12)$$

Equações de Bloch em termos da envoltória lenta da coerência e na aproximação de onda girante:

$$\dot{\rho}_{11} = -i\Omega_{31}^0(t)\sigma_{13} + c.c. + \frac{\gamma_{33}}{2}\rho_{33} \quad (C.13a)$$

$$\dot{\rho}_{22} = -i\Omega_{32}^0(t)\sigma_{23} + c.c. + \frac{\gamma_{33}}{2}\rho_{33} \quad (C.13b)$$

$$\dot{\rho}_{33} = i\Omega_{31}^0(t)\sigma_{13} + c.c. + i\Omega_{32}^0(t)\sigma_{23} + c.c. - \gamma_{33}\rho_{33} \quad (C.13c)$$

$$\dot{\sigma}_{12} = [i(\delta_2 - \delta_1) - \gamma_{12}]\sigma_{12} - i\Omega_{32}^0(t)\sigma_{13} + i\Omega_{13}^0(t)\sigma_{32} \quad (C.13d)$$

$$\dot{\sigma}_{13} = (i\delta_1 - \gamma_{13})\sigma_{13} - i\Omega_{23}^0(t)\sigma_{12} + i\Omega_{13}^0(t)(\rho_{33} - \rho_{11}) \quad (C.13e)$$

$$\dot{\sigma}_{23} = (i\delta_2 - \gamma_{23})\sigma_{23} - i\Omega_{13}^0(t)\sigma_{21} + i\Omega_{23}^0(t)(\rho_{33} - \rho_{22}) \quad (C.13f)$$

Notação:

$$\rho_{12} = \sigma_{12}e^{i(\omega_1 - \omega_2)t} \quad (C.14a)$$

$$\rho_{k3} = \sigma_{k3}e^{i\omega_k t} \quad (C.14b)$$

$$\delta_k = \omega_{3k} - \omega_k \quad (C.14c)$$

C.3 Sistema de 3 níveis tipo cascata

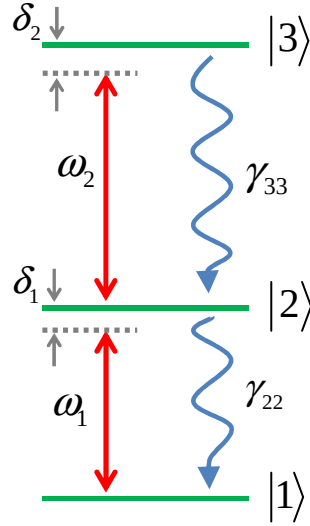


Figura C.3 Sistema atômico de três níveis tipo cascata.

Hamiltoniano:

$$\hat{H} = \hbar\omega_{21}|2\rangle\langle 2| + \hbar\omega_{31}|3\rangle\langle 3| - \mu_{12}E_1(t)|1\rangle\langle 2| + \text{h.c.} - \mu_{23}E_2(t)|2\rangle\langle 3| + \text{h.c.} \quad (\text{C.15})$$

Campos:

$$E_1(t) = E_1^0(t)e^{i\omega_1 t} \quad (\text{C.16a})$$

$$E_2(t) = E_2^0(t)e^{i\omega_2 t} \quad (\text{C.16b})$$

Equações de Bloch:

$$\dot{\rho}_{11} = -i\Omega_{21}(t)\rho_{12} + \text{c.c.} + \gamma_{22}\rho_{22} \quad (\text{C.17a})$$

$$\dot{\rho}_{22} = i\Omega_{21}(t)\rho_{12} + \text{c.c.} - i\Omega_{32}(t)\rho_{23} + \text{c.c.} - \gamma_{22}\rho_{22} + \gamma_{33}\rho_{33} \quad (\text{C.17b})$$

$$\dot{\rho}_{33} = i\Omega_{32}(t)\rho_{23} + \text{c.c.} - \gamma_{33}\rho_{33} \quad (\text{C.17c})$$

$$\dot{\rho}_{12} = (i\omega_{21} - \gamma_{12})\rho_{12} - i\Omega_{32}(t)\rho_{13} + i\Omega_{12}(t)(\rho_{22} - \rho_{11}) \quad (\text{C.17d})$$

$$\dot{\rho}_{23} = (i\omega_{32} - \gamma_{23})\rho_{23} - i\Omega_{21}(t)\rho_{13} + i\Omega_{32}(t)(\rho_{33} - \rho_{22}) \quad (\text{C.17e})$$

$$\dot{\rho}_{13} = (i\omega_{31} - \gamma_{13})\rho_{13} - i\Omega_{23}(t)\rho_{12} + i\Omega_{12}(t)\rho_{23} \quad (\text{C.17f})$$

Notação:

$$\Omega_{12}(t) = \Omega_{12}^0(t)e^{i\omega_1 t} \quad (\text{C.18a})$$

$$\Omega_{23}(t) = \Omega_{23}^0(t)e^{i\omega_2 t}. \quad (\text{C.18b})$$

Frequência de Rabi:

$$\Omega_{12}^0(t) = \frac{\mu_{12}E_1^0(t)}{\hbar} \quad (\text{C.19a})$$

$$\Omega_{23}^0(t) = \frac{\mu_{23}E_2^0(t)}{\hbar}. \quad (\text{C.19b})$$

Equações de Bloch em termos da envoltória lenta da coerência e na aproximação de onda girante:

$$\dot{\rho}_{11} = -i\Omega_{21}(t)\sigma_{12} + c.c. + \gamma_{22}\rho_{22} \quad (\text{C.20a})$$

$$\dot{\rho}_{22} = i\Omega_{21}^0(t)\sigma_{12} + c.c. - i\Omega_{32}^0(t)\sigma_{23} + c.c. - \gamma_{22}\rho_{22} + \gamma_{33}\rho_{33} \quad (\text{C.20b})$$

$$\dot{\rho}_{33} = i\Omega_{32}^0(t)\sigma_{23} + c.c. - \gamma_{33}\rho_{33} \quad (\text{C.20c})$$

$$\dot{\sigma}_{12} = (i\delta_1 - \gamma_{12})\sigma_{12} - i\Omega_{32}^0(t)\sigma_{13} + i\Omega_{12}^0(t)(\rho_{22} - \rho_{11}) \quad (\text{C.20d})$$

$$\dot{\sigma}_{23} = (i\delta_2 - \gamma_{23})\sigma_{23} - i\Omega_{21}^0(t)\sigma_{13} + i\Omega_{32}^0(t)(\rho_{33} - \rho_{22}) \quad (\text{C.20e})$$

$$\dot{\sigma}_{13} = [i(\delta_1 + \delta_2) - \gamma_{13}]\sigma_{13} - i\Omega_{23}^0(t)\sigma_{12} + i\Omega_{12}^0(t)\sigma_{23} \quad (\text{C.20f})$$

Notação:

$$\rho_{13} = \sigma_{13}e^{i(\omega_1+\omega_2)t} \quad (\text{C.21a})$$

$$\rho_{12} = \sigma_{12}e^{i\omega_1 t} \quad (\text{C.21b})$$

$$\rho_{23} = \sigma_{23}e^{i\omega_2 t} \quad (\text{C.21c})$$

$$\delta_1 = \omega_{21} - \omega_1 \quad (\text{C.21d})$$

$$\delta_2 = \omega_{32} - \omega_2 \quad (\text{C.21e})$$

APÊNDICE D

Programa que resolve as equações de Bloch analiticamente

Segue abaixo o programa, escrito para o Maple 6, que resolve as equações de Bloch analiticamente, para um sistema de três níveis em cascata com dois lasers cw (Apêndice C.3), no regime estacionário.

```
> restart;           # Reinicia as variáveis
> with(student):     # Abre a biblioteca student

> #Mapa das transições F - F' - F''
> #      [1]: 2-3-4
> #      [2]: 2-3-3
> #      [3]: 2-2-3
> #      [4]: 2-3-2
> #      [5]: 2-2-2
> #      [6]: 2-1-2
> #      [7]: 2-2-1
> #      [8]: 2-1-1

> # Campos dos lasers de fs (modo m) e de diodo (cw), em V/m
> campo[cw]:=280:
> campo[fs]:=700:

> # Momento de dipolo elétrico das transições S - P e P - D, em C.m, sobre h cortado
> SP:=2*3.14*3.6e-29/6.63e-34:
> PD:=2*3.14*8.2e-30/6.63e-34:

> grupo:=0:         # Dessintonia do modo m do pente
> Q:=2*Pi*200e3:     # Inverso do tempo de vóo
> Doppler:=250:      # Largura do perfil Doppler, em MHz
> N:=1200:           # Número de divisões da integração numérica no perfil Doppler
```



```

> # taxas de relaxação dos estados e das coerências, em Hz
> q[22]:=2*Pi*6e6;q[33]:=2*Pi*660e3:
> q[23]:=2*Pi*3.33e6;q[13]:=2*Pi*330e3:
> q[12]:=2*Pi*3e6:

> passo:=0.1;           # Passo na frequência do campo cw, em MHz
> varredura:=1100;      # Número de pontos total da curva
> inicio:=-200;         # Início da varredura

> # Oscillators strength das transições atômicas
> Scw:=[0.23,0.23,3/32,0.23,3/32,0.01,3/32,0.01];
> Sfs:=[0.28,2/45,0.25,0.002,7/80,0.23,0.004,3/20];

> # Vetor grupos de velocidades
> v:=[grupo,grupo,grupo,grupo,grupo,grupo,grupo,grupo];

> # Distância das transições em relação à transição 2-3 do campo cw
> H:=[0,0,267,0,267,267+157,267,267+157];
> P:=H + v;

> # Diferença entre os deslocamentos Doppler dos campos
> splitting:=H*(2.0/384);
> Y:=[0,29,29,29+23,29+23,29+23,29+23+16,29+23+16];
> desloca:=(Y + splitting)*(1/passo);

> # Peso das transições no perfil Doppler
> for i from 1 to 8 do
>   if (i mod 1=0) then desloca[i]:=round(desloca[i]); end if;
>   if (i mod 1=0) then peso[i]:=exp(-0.5*P[i]^2/Doppler^2); end if;
> end do;

> # Transição fechada (T=1) ou aberta (T=0.5) para o campo cw
> T:=1:

```

```

> # Loop 1: resolve as equações de Bloch analiticamente
> for n from 1 to 8 do
>   if (n=3) then T:=0.5; end if;
>   if (n=4) then T:=1; end if;
>   if (n>4) then T:=0.5; end if;
>   if (n mod 1=0) then Omega[12]:=SP*sqrt(Scw[n])*campo[cw]; end if;
>   if (n mod 1=0) then Omega[23]:=PD*sqrt(Sfs[n])*campo[fs]; end if;
>   if (n mod 1=0) then delta[12]:=2*Pi*1e6*(dcw-Delta); end if;
>   if (n mod 1=0) then delta[23]:=2*Pi*1e6*Delta*(1-2/384); end if;

>   # Equações de Bloch
>   if (n mod 1=0) then
>     x11:=2*Omega[12]*b[12]+T*q[22]*a[22]-Q*(a[11]-1)=0; end if;
>   if (n mod 1=0) then
>     x22:=-2*Omega[12]*b[12] + 2*Omega[23]*b[23] - (q[22]+Q)*a[22] +
>     q[33]*a[33]=0; end if;
>   if (n mod 1=0) then
>     x33:=-2*Omega[23]*b[23] - (q[33]+Q)*a[33]=0; end if;
>   if (n mod 1=0) then
>     x12:=- (q[12]+Q)*a[12] - delta[12]*b[12] + Omega[23]*b[13]=0; end if;
>   if (n mod 1=0) then
>     y12:=- (q[12]+Q)*b[12] + delta[12]*a[12] + Omega[12]*(a[22]-a[11]) -
>     Omega[23]*a[13]=0; end if;
>   if (n mod 1=0) then
>     x23:=- (q[23]+Q)*a[23] - delta[23]*b[23] - Omega[12]*b[13]=0; end if;
>   if (n mod 1=0) then
>     y23:=- (q[23]+Q)*b[23] + delta[23]*a[23] + Omega[23]*(a[33]-a[22]) +
>     Omega[12]*a[13]=0; end if;
>   if (n mod 1=0) then
>     x13:=- (q[13]+Q)*a[13] - (delta[12]+delta[23])*b[13] - Omega[12]*b[23] +
>     Omega[23]*b[12]=0; end if;
>   if (n mod 1=0) then
>     y13:=- (q[13]+Q)*b[13] + (delta[12]+delta[23])*a[13] + Omega[12]*a[23] -
>     Omega[23]*a[12]=0; end if;
>   # Fim das equações de Bloch

```

```

> # Resolve as equações de Bloch
> if (n mod 1=0) then z:=solve({x11,x22,x33,x12,y12,x23,y23,x13,y13},
> {a[11],a[22],a[33],a[12],b[12],a[23],b[23],a[13],b[13]}); end if;

> # Escreve a solução para rho[33] no vetor sol
> if (n mod 1=0) then sol[n]:=subs(z,a[33]); end if;
> end do;

> for i from 1 to varredura do
>   for j from 1 to 10 do
>     A[i,j]:=0;
>   end do;
> end do;

> # Loop 2: calcula rho[33] em função de delta, integrando sobre Delta
> for i from inicio to varredura+inicio do
>   # Integração sobre todos os grupos de átomos Delta
>   for n from 1 to 8 do
>     if (n mod 1=0) then
>       g[n]:=subs(dcw=i*passo,1/N*trapezoid(sol[n],Delta=-600..600,N)); end if;
>     end do;

>   for n from 1 to 8 do
>     if (n mod 1=0) then solution[n]:=g[n]*peso[n]; end if;
>   end do;

>   if (n mod 1=0) then A[i-inicio+1,1]:=i*passo; end if;

>   for n from 1 to 8 do
>     if (n mod 1=0) then A[i-inicio+1+desloc[n],n+1]:=Re(evalf(solution[n])); end if;
>   end do;

>   if (n mod 1=0) then
>     A[i-inicio+1,10]:=A[i-inicio+1,2]+A[i-inicio+1,3]+A[i-inicio+1,4]+A[i-inicio+1,5]+
>     A[i-inicio+1,6]+A[i-inicio+1,7]+A[i-inicio+1,8]+A[i-inicio+1,9]; end if;

```

```
> # Escreve rho[33] na tela, para todas as 8 transições
> if (n mod 1=0) then
>     printf("%g %g %g %g %g %g %g %g %g\n",
>     A[i-inicio+1,1], A[i-inicio+1,2], A[i-inicio+1,3], A[i-inicio+1,4],A[i-inicio+1,5],
>     A[i-inicio+1,6], A[i-inicio+1,7], A[i-inicio+1,8],A[i-inicio+1,9],
>     A[i-inicio+1,2]+A[i-inicio+1,3]+A[i-inicio+1,4]+A[i-inicio+1,5]+
>     A[i-inicio+1,6]+A[i-inicio+1,7]+A[i-inicio+1,8]+A[i-inicio+1,9]); end if;
> end do;

> # Cria a matriz de dados m e a exporta para o arquivo data.dat
> m:=Matrix(A,varredura,10);
> ExportMatrix("./data.dat", m);
```

Referências Bibliográficas

- [1] H. A. Lorentz, ed., **The Theory of Electrons** (Dover, New York, 1952).
- [2] T. H. Maiman. **Optical and Microwave-Optical Experiments in Ruby**, *Phys. Rev. Lett.* **4**, 564–566 (1960).
- [3] A. Javan, W. R. Bennett, Jr., and D. R. Herriott. **Population Inversion and Continuous Optical Maser Oscillation in a Gas Discharge Containing a He-Ne Mixture**, *Phys. Rev. Lett.* **6**, 106–110 (1960).
- [4] F. P. Schäfer, ed., **Dye Lasers** (Springer-Verlag, Berlin, 1990).
- [5] C. Voumard. **External-cavity-controlled 32-MHz narrow-band cw GaAlAs-diode lasers**, *Opt. Lett.* **1**, 61–63 (1977).
- [6] M. Fleming, and A. Mooradian. **Spectral characteristics of external-cavity controlled semiconductor lasers**, *IEEE J. Quantum Electron* **17**, 44–59 (1981).
- [7] K. B. MacAdam, A. Steinbach, and C. Wieman. **A narrow-band tunable diode laser system with grating feedback, and a saturated absorption spectrometer for Cs and Rb**, *Am. J. Phys.* **60**, 1098–1111 (1992).
- [8] M. DiDomenico. **Small-Signal Analysis of Internal (Coupling-Type) Modulation of Lasers**, *J. Appl. Phys.* **35**, 2870 (1964).
- [9] J. Ye, and S. T. Cundiff. **Femtosecond Optical Frequency Comb Technology: Principle, Operation and Application** (Springer, New York, 2005).
- [10] A. I. Ferguson, J. N. Eckstein, T. W. Hänsch. **A subpicosecond dye laser directly pumped by a mode-locked argon laser**, *Appl. Phys. Lett.* **49**, 5389–5391 (1978).
- [11] J. N. Eckstein, A. I. Ferguson, and T. W. Hänsch. **High-Resolution Two-Photon Spectroscopy with Picosecond Light Pulses**, *Phys. Rev. Lett.* **40**, 847–850 (1978).
- [12] P. F. Moulton. **Spectroscopic and laser characteristic of Ti:Al₂O₃**, *J. Opt. Soc. Am. B* **3**, 125–133 (1986).
- [13] Marco Bellini and Theodor W. Hänsch. **Phase-locked white-light continuum pulses: toward a universal optical frequency-comb synthesizer**, *Opt. Lett.* **25**, 1049–1051 (2000).

- [14] M. Niering, R. Holzwarth, J. Reichert, P. Pokasov, Th. Udem, M. Weitz, and T. W. Hänsch, P. Lemonde, G. Santarelli, M. Abgrall, P. Laurent, C. Salomon, and A. Clairon. **Measurement of the Hydrogen 1S-2S Transition Frequency by Phase Coherent Comparison with a Microwave Cesium Fountain Clock**, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 5496–5499 (2000).
- [15] Christian G. Parthey, Arthur Matveev, Janis Alnis, Birgitta Bernhardt, Axel Beyer, Ronald Holzwarth, Aliaksei Maistrou, Randolph Pohl, Katharina Predehl, Thomas Udem, Tobias Wilken, Nikolai Kolachevsky, Michel Abgrall, Daniele Rovera, Christophe Salomon, Philippe Laurent, and Theodor W. Hänsch. **Improved Measurement of the Hydrogen 1S-2S Transition Frequency**, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 203001 (2011).
- [16] W. H. Oskay, S. A. Diddams, E. A. Donley, T. M. Fortier, T. P. Heavner, L. Hollberg, W. M. Itano, S. R. Jefferts, M. J. Delaney, K. Kim, F. Levi, T. E. Parker, and J. C. Bergquist. **Single-Atom Optical Clock with High Accuracy**, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 020801 (2006).
- [17] T. R. Schibli, K. Minoshima, Y. Bitou, F.-L. Hong, H. Inaba, A. Onae, and H. Matsumoto. **Displacement metrology with sub-pm resolution in air based on a fs-comb wavelength synthesizer**, *Opt. Express* **14**, 5984 (2006).
- [18] Tilo Steinmetz, Tobias Wilken, Constanza Araujo-Hauck, Ronald Holzwarth, Theodor W. Hänsch, Luca Pasquini, Antonio Manescau, Sandro D’Odorico, Michael T. Murphy, Thomas Kentischer, Wolfgang Schmidt and Thomas Udem. **Laser Frequency Combs for Astronomical Observations**, *Science* **321**, 1335–1337 (2008).
- [19] K. Kim, J. W. Nicholson, M. Yan, J. C. Knight, N. R. Newbury, and S. A. Diddams. **Characterization of frequency noise on a broadband infrared frequency comb using optical heterodyne techniques**, *Opt. Express* **15**, 17715 (2007).
- [20] S. N. Lea. **Limits to time variation of fundamental constants from comparisons of atomic frequency standards**, *Rep. Prog. Phys* **70**, 1473–1523 (2007).
- [21] A. Baltus caronka, Th. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, Ch. Gohle, R. Holzwarth, V. S. Yakovlev, A. Scrinzi, T. W. Hänsch and F. Krausz. **Attosecond control of electronic processes by intense light fields**, *Nature* **421**, 611–615 (2003).
- [22] D. Hayes, D. N. Matsukevich, P. Maunz, D. Hucul, Q. Quraishi, S. Olmschenk, W. Campbell, J. Mizrahi, C. Senko, and C. Monroe . **Entanglement of atomic qubits using an optical frequency comb**, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 140501 (2010).
- [23] Nicolas C. Menicucci, Steven T. Flammia, and Olivier Pfister. **One-Way Quantum Computing in the Optical Frequency Comb**, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 130501 (2008).

- [24] E. Goulielmakis, V. S. Yakovlev, A. L. Cavalieri, M. Uiberacker, V. Pervak, A. Apolonski, R. Kienberger, U. Kleineberg and F. Krausz. **Attosecond Control and Measurement: Lightwave Electronics**, *Science* **317**, 769–775 (2007).
- [25] S. L. McCall and E. L. Hahn. **Self-Induced Transparency by Pulsed Coherent Light**, *Phys. Rev. Lett.* **18**, 908–911 (1967).
- [26] M. D. Crisp. **Propagation of Small-Area Pulses of Coherent Light through a Resonant Medium**, *Phys. Rev. A* **1**, 1604–1611 (1970).
- [27] O. A. Kocharovskaya, and Ya. I. Khanin. **Population trapping and coherence bleaching of a three-level medium by a periodic train of ultrashort pulses**, *Sov. Phys. JETP* **63**, 945–950 (1986).
- [28] Lee C. Bradley. **Pulse-train excitation of sodium for use as a synthetic beacon**, *J. Opt. Soc. Am. B* **9**, 1931–1944 (1992).
- [29] R. C. Temkin. **Excitation of an atom by a train of short pulses**, *J. Opt. Soc. Am. B* **10**, 830 (1993).
- [30] Nikolay V. Vitanov and Peter L. Knight. **Coherent excitation of a two-state system by a train of short pulses**, *Phys. Rev. A* **52**, 2245–2261 (1995).
- [31] D. Felinto, C. A. C. Bosco, L. H. Acioli, and S. S. Vianna. **Coherent accumulation in two-level atoms excited by a train of ultrashort pulses**, *Opt. Commun.* **215**, 69–73 (2003).
- [32] D. Felinto, L. H. Acioli and S. S. Vianna. **Accumulative effects in the coherence of three-level atoms excited by femtosecond-laser frequency combs**, *Phys. Rev. A* **70**, 043403 (2004).
- [33] D. Aumiler, T. Ban, H. Skenderović, and G. Pichler. **Velocity Selective Optical Pumping of Rb Hyperfine Lines Induced by a Train of Femtosecond Pulses**, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 233001 (2005).
- [34] T. Ban, D. Aumiler, H. Skenderović and G. Pichler. **Mapping of the optical frequency comb to the atom-velocity comb**, *Phys. Rev. A* **73**, 043407 (2006).
- [35] T. Ban, D. Aumiler, H. Skenderović, S. Vdović, N. Vujčić, and G. Pichler. **Cancellation of the coherent accumulation in rubidium atoms excited by a train of femtosecond pulses**, *Phys. Rev. A* **76**, 043410 (2007).
- [36] A. A. Soares and Luís E. E. de Araujo. **Influence of propagation on the coherent accumulation of excitation induced by an ultrashort pulse train**, *Phys. Rev. A* **80**, 013832 (2009).
- [37] Daniel Felinto and Carlos E. E. López. **Theory for direct frequency-comb spectroscopy**, *Phys. Rev. A* **80**, 013419 (2009).

- [38] S. T. Cundiff. **Phase stabilization of ultrashort optical pulses**, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **35**, R43–R59 (2002).
- [39] Marlan O. Scully and M. Suhail Zubairy. **Quantum Optics** (Cambridge University Press, Reino Unido, 1997).
- [40] J. J. Sakurai. **Modern Quantum Mechanics** (Addison-Wesley, EUA, 1994).
- [41] L. Allen and J. Eberly. **Optical Resonance and Two-Level Atoms** (Dover, Nova Iorque, 1987).
- [42] H. C. Torrey. **Transient Nutations in Nuclear Magnetic Resonance**, *Phys. Rev.* **76**, 1059 (1949).
- [43] Gerald F. Thomas. **Pulse train single-photon induced optical Ramsey fringes**, *Phys. Rev. A* **35**, 5060–5063 (1987).
- [44] E. Krüger. **Absorption spectra of pulse-train-excited sodium two-level atoms**, *J. Opt. Soc. Am. B* **12**, 15–24 (1995).
- [45] W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling and B. P. Flannery. **Numerical Recipes in C: The Art of Scientific Computing** (Cambridge University Press, Londres, 1999).
- [46] F. Krausz, M. E. Fermann, T. Brabec, P. F. Curley, M. Hofer, M. H. Ober, C. Spielmann, E. Wintner, A. J. Schmidt. **Femtosecond solid-state lasers**, *IEEE J. Quantum Electron.* **28**, 2097–2122 (1992).
- [47] Marco P. M. de Souza. **Efeitos Coerentes no Acoplamento dos Lasers de Femtosegundo e de Diodo em Vapor de Rubídio**. Dissertação de Mestrado, Universidade Federal de Pernambuco (2008).
- [48] A. Marian, M. Stowe, J. Lawall, D. Felinto and Jun Ye. **United time-frequency spectroscopy for global structure and dynamics**, *Science* **306**, 2063 (2004).
- [49] C. B. Alcock, V. P. Itkin, and M. K. Horrigan. **Vapor Pressure Equations for the Metallic Elements: 298–2500 K**, *Canadian Metallurgical Quarterly* **23**, 309–313 (1984).
- [50] D. A. Steck. **Alkali D Line Data**, <http://steck.us/alkalidata>.
- [51] M. Polo, C. A. C. Bosco, L. H. Acioli, D. Felinto, and S. S. Vianna. **Coupling between cw lasers and a frequency comb in dense atomic samples**, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **43**, 055001 (2010).
- [52] A. Yariv. **Quantum Electronics** (John Wiley-Sons, New York, 1989).
- [53] Robert W. Boyd. **Nonlinear Optics** (Academic Press, San Diego, 2003).
- [54] Opher Kinrot and Yehiam Prior. **Nonlinear interaction of propagating short pulses in optically dense media**, *Phys. Rev. A* **51**, 4996–5007 (1995).

- [55] G. Alzetta, A. Gozzini, L. Moi, and G. Orriols. **An experimental method for the observation of r.f. transitions and laser beat resonances in oriented Na vapour**, *Nuovo Cimento Soc. Ital. Fis. B* **36**, 5–20 (1976).
- [56] J. Mlynek, W. Lange, H. Harde, and H. Burggraf. **High-resolution coherence spectroscopy using pulse trains**, *Phys. Rev. A* **24**, 1099–1102 (1981).
- [57] D. Aumiler. **Coherent population trapping in ^{87}Rb atoms induced by the optical frequency comb excitation**, *Phys. Rev. A* **82**, 055402 (2010).
- [58] Roman Kolesov. **Coherent population trapping in a crystalline solid at room temperature**, *Phys. Rev. A* **72**, 051801(R) (2005).
- [59] S. Brattke, U. Kallmann and W.-D. Hartmann. **Coherent dark states of rubidium 87 in a buffer gas using pulsed laser light**, *Eur. Phys. J. D* **3**, 159–161 (1998).
- [60] Vladimir A. Sautenkov, Yuri V. Rostovtsev, C. Y. Ye, George R. Welch, Olga Kocharovskaya, and Marlan O. Scully. **Electromagnetically induced transparency in rubidium vapor prepared by a comb of short optical pulses**, *Phys. Rev. A* **71**, 063804 (2005).
- [61] M. Fleischhauer, A. Imamoglu, J. P. Marangos. **Electromagnetically induced transparency: optics in coherent media**, *Rev. Mod. Phys.* **77**, 633–673 (2005).
- [62] A. A. Soares, and L. E. E. de Araujo. **Coherent accumulation of excitation in the electromagnetically induced transparency of an ultrashort pulse train**, *Phys. Rev. A* **76**, 043818 (2007).
- [63] L. Arissian, and J.-C. Diels. **Repetition rate spectroscopy of the dark line resonance in rubidium**, *Opt. Commun.* **264**, 169–173 (2006).
- [64] R. M. Whitley, and C. R. Stroud, Jr. **Double optical resonance**, *Phys. Rev. A* **14**, 1498–1513 (1976).
- [65] Eugene Butkov. **Física Matemática** (LTC Editora S.A., Rio de Janeiro, 1988).
- [66] J. Vanier, A. Godone, and F. Levi. **Coherent population trapping in cesium: dark lines and coherent microwave emission**, *Phys. Rev. A* **58**, 2345–2358 (1998).
- [67] Ekaterina Ilinova and Andrei Derevianko. **The dynamics of three-level Λ -type system ultrashort laser pulses driven by the trains of ultrashort laser pulses**, *arXiv:1203.1963* (2012).
- [68] Marco P. Moreno and Sandra S. Vianna. **Coherence induced by a train of ultrashort pulses in a Λ -type system**, *J. Opt. Soc. Am. B* **28**, 1124–1129 (2011).
- [69] David J. Jones, Scott A. Diddams, Jinendra K. Ranka, Andrew Stentz, Robert S. Windeler, John L. Hall, Steven T. Cundiff. **Carrier-Envelope Phase Control of Femtosecond Mode-Locked Lasers and Direct Optical Frequency Synthesis**, *Science* **288**, 635–639 (2000).

- [70] M. C. Stowe, A. Pe'er, and J. Ye. **Control of four-level quantum coherence via discrete spectral shaping of an optical frequency comb**, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 203001 (2008).
- [71] M. Maric, J. J. McFerran, and A. N. Luiten. **Frequency-comb spectroscopy of the D_1 line in laser-cooled rubidium**, *Phys. Rev. A* **77**, 032502 (2008).
- [72] Jason E. Stalnaker, Vela Mbele, Vladislav Gerginov, Tara M. Fortier, Scott A. Diddams, Leo Hollberg, and Carol E. Tanner. **Femtosecond frequency comb measurement of absolute frequencies and hyperfine coupling constants in cesium vapor**, *Phys. Rev. A* **81**, 043840 (2010).
- [73] Giovana Trevisan Nogueira. **Desenvolvimento de pentes de frequências ópticas para metrologia e espectroscopia de precisão**. Tese de Doutorado, Inst. de Física Gleb Wataghin, UNICAMP (2007).
- [74] G. T. Nogueira, F. C. Cruz. **Optical frequency comb for high-resolution and precision metrology**, In: *Microwave and Optoelectronics Conference International*, 644–647 (2007).
- [75] BR Labs, <http://www.br-labs.com/>
- [76] T. W. Hänsch, M. D. Levenson, and A. L. Schawlow. **Complete hyperfine structure of a molecular iodine line**, *Phys. Rev. Lett.* **26**, 946–949 (1971).
- [77] W. Demtröder. **Laser Spectroscopy**, (Springer, Berlin, 1996).
- [78] Svenja A. Knappe, Hugh G. Robinson, and Leo Hollberg. **Microfabricated saturated absorption laser spectrometer**, *Opt. Express* **15**, 6293–6299 (2007).
- [79] D. C. Heinecke, A. Bartels, T. M. Fortier, D. A. Braje, L. Hollberg, and S. A. Diddams. **Optical frequency stabilization of a 10 GHz Ti:sapphire frequency comb by saturated absorption spectroscopy in 87 rubidium**, *Phys. Rev. A* **80**, 053806 (2009).
- [80] Marco P. Moreno and Sandra S. Vianna. **Femtosecond 1 GHz Ti:sapphire laser as a tool for coherent spectroscopy in atomic vapor**, *J. Opt. Soc. Am. B* **28**, 2066–2069 (2011).
- [81] J. E. Bjorkholm and P. F. Liao. **Line shape and strength of two-photon absorption in an atomic vapor with a resonant or nearly resonant intermediate state**, *Phys. Rev. A* **14**, 751 (1976).
- [82] Andre Heck. **Introduction to Maple** (Springer-Verlag, New York, 2003).
- [83] A. R. Edmonds. **Angular Momentum in Quantum Mechanics** (NJ: Princeton University Press, Princeton, 1960).
- [84] Shan-Tao Lai. **Computation of Algebraic Formulas for Wigner 3-j, 6-j, and 9-j Symbols by Maple**, *Int. J. Quantum Chem.* **52**, 593–607 (1994).

- [85] C. Cohen-Tannoudji. **Quantum Mechanics** (John Wiley & Sons. Inc., Singapore, Vol. 2, 2005).
- [86] M. Gorris-Neveux, P. Monnot, M. Fichet, M. Ducloy, R. Barbé, J.C. Keller. **Doppler-free reflection spectroscopy of rubidium D_1 line in optically dense vapour**, *Opt. Commun.* **134**, 85 (1997).
- [87] Lee Weller, Robert J. Bettles, Paul Siddons, Charles S. Adams and Ifan G. Hughes **Absolute absorption on the rubidium D_1 line including resonant dipole–dipole interactions**, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **44**, 195006 (2011).
- [88] Ronald L. Graham, Donald E. Knuth, and Oren Patashnik. **Concrete Mathematics** (Addison-Wesley Publishing Company, USA, 1989).
- [89] Suely Oliveira e David Stewart. **Desenvolvimento de programas científicos: um guia para um bom estilo** (LTC, Rio de Janeiro, 2010).
- [90] H. Eicher. **Third-Order Susceptibility of Alkali Metal Vapors**, *IEEE J. Quantum. Electron.* **QE-11**, 121 (1975).

