



Universidade Federal de Pernambuco
Centro de Ciências Exatas e da Natureza
Departamento de Física

Pós-graduação em Física

**Controle Temporal Coerente e
Manipulação da Fase Óptica
na Transição de Dois Fótons
em Átomos de Rubídio**

José Ferraz de Moura Nunes Filho

Tese de Doutorado

Recife - PE
Maio 2008

Universidade Federal de Pernambuco
Centro de Ciências Exatas e da Natureza
Departamento de Física

José Ferraz de Moura Nunes Filho

**Controle Temporal Coerente e Manipulação da Fase Óptica
na Transição de Dois Fótons
em Átomos de Rubídio**

*Trabalho apresentado ao Programa de Pós-graduação em
Física do Departamento de Física da Universidade Federal
de Pernambuco como requisito parcial para obtenção do
grau de Doutor em Física.*

Orientadora: *Sandra Sampaio Vianna*
Co-orientador: *Lúcio Hora Acioli*

Recife - PE
Maio 2008

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



1. FÍSICA

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

por

José Ferraz de Moura Nunes Filho

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

Nunes Filho, José Ferraz de Moura
Controle temporal coerente e manipulação da fase
óptica na transição de dois fótons em átomos de
rubídio / José Ferraz de Moura Nunes Filho. - Recife
: O Autor, 2008
xxi, 122 folhas : il., fig., quadro.

Tese (doutorado) - Universidade Federal de
Pernambuco. CCEN. Física, 2008.

Inclui bibliografia.

1. óptica não linear. 2. Interferência quânticas. 3
Controle temporal coerente. 4 Efeitos acumulativos. 5
Transições de dois f[otons. 6 Manipulação da fase óptica.
I. Título



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

José Ferraz de Moura Nunes Filho

CONTROLE TEMPORAL COERENTE E MANIPULAÇÃO DA FASE ÓPTICA NA TRANSIÇÃO DE DOIS FÓTONS EM ÁTOMOS DE RUBÍDIO

A Banca Examinadora composta pelos Professores Sandra Sampaio Vianna (Presidente e Orientadora), Lúcio Hora Acioli (Co-orientador), José Wellington Rocha Tabosa, Leonardo de Souza Menezes, todos da Universidade Federal de Pernambuco, Marcos César Santos Oriá, da Universidade Federal da Paraíba e Carlos Henrique Monken, da Universidade Federal de Minas Gerais, consideram o candidato:

☒ Aprovado

☐ Reprovado

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 aos vinte e nove dias do mês de maio de 2008.

Agradecimentos

Esta Tese é o resultado do esforço de diversas pessoas que contribuíram direta ou indiretamente para a realização desse trabalho. A essas pessoas eu quero expressar meus sinceros agradecimentos.

À minha família, que sempre apoiou de forma incondicional todas as escolhas que precisaram ser feitas para a realização dessa tese.

À professora Sandra, pelos anos de dedicação, ao longo deste trabalho e também ao longo do mestrado e da iniciação científica. Por sua confiança em meu trabalho, suas cobranças nas horas certas e sua imensa paciência com as minhas falhas.

Ao professor Lúcio, pela co-orientação durante este trabalho, que muito me ensinou durante nossas conversas. Sua personalidade, via de regra bem-humorada e sua intuição física foram importantíssimas no desenvolvimento desta tese.

Aos companheiros que ajudaram a realizar os estudos presentes neste trabalho. Daniel Felinto, agora professor Daniel, que contribuiu de forma fundamental para a realização do primeiro estudo realizado nesta tese e pela análise teórica referente ao terceiro experimento. À Helena Barros e Whualkuer Bartra, pelas contribuições realizadas ao longo do segundo estudo, Helena na parte teórica e Whualkuer na parte experimental. À Carlos Bosco, pela participação direta na realização experimental do terceiro estudo.

Aos professores deste departamento que contribuíram para a formação geral em física e em particular aos professores do grupo de óptica: Tabosa, Cid, Rios, Anderson e Leonardo pelas discussões nos seminários das terças-feiras e idéias que advinham dessas discussões. Gostaria de agradecer ao professor Cid pela ajuda e orientação durante o período em que organizamos o seminário do Student Chapter.

Aos funcionários do Departamento de Física (DF): Sara Souza e Silva pela ajuda competente em todos os elementos burocráticos que surgiram ao longo deste período, à Paulo Roberto pela ajuda na organização logística do seminário do Student Chapter, à "Seu" Humberto e "Seu" Ivo

pelo auxílio prestado nas áreas de material de consumo e impressão, respectivamente. Aos funcionários dos setores de apoio: Severino da Silva, da oficina mecânica, Virginia Barbosa da química, Marcos Aurélio da oficina eletrônica, Teresa Cristina do setor de informática e todos os outros funcionários do DF que colaboram para a harmonia do departamento.

Ao longo dos quase cinco anos em que esse trabalho foi desenvolvido, várias pessoas foram importantes na construção do mesmo, seja diretamente como os citados acima, seja indiretamente, através de palavras de encorajamento ou críticas construtivas.

À Marina Dantas, pelos anos de convívio e pelos sonhos partilhados, alguns realizados, durante o desenvolvimento desta tese.

Aos amigos Pedro Hugo, Cássia Donato, Ailton Fernandes, Fernando Parísio e Carlos Bosco pelas conversas sobre os mais variados temas que ajudam fazer o cotidiano no DF mais agradável. Em particular à Pedro e Cássia pelo apoio nos momentos em que os problemas pessoais extrapolaram para o lado profissional.

Aos amigos Cléssio Leão, Wilson Barros, Antônio Romanguera e Eduardo Novais pelo período em que ocorreram as discussões sobre os mais variados temas após o almoço, durante o café realizado no "Hell's Lab".

Ao amigo Eduardo Ferraz (Vovô), pelo apoio incondicional e por vários episódios que ajudaram na parte logística da elaboração deste trabalho. À Elisa Leite pelas conversas sobre os mais variados temas que sempre ajudam a entender um outro tipo de universo. À Tarcísio Falcão pelo exemplo de trabalho sério que deve ser implementado sempre que algum projeto importante está sendo realizado. À Marco César pelo companheirismo e pelos ensinamentos relativos às motocicletas que aconteceram ao longo deste período. À Ivan Leite pela boa companhia, pelas divertidas pausas e ensinamentos musicais. À Marina Leite pelo exemplo de dedicação científica, pelos ótimos momentos que partilhamos e pela esperança.

"Aquilo que não te mata, te fortalece."

— FRIEDERICH NIETZSCHE

Resumo

Neste trabalho, utilizamos as técnicas de controle temporal coerente e de manipulação da fase óptica do campo óptico para investigar e controlar os diferentes caminhos quânticos induzidos em transições de dipolo elétrico envolvendo a absorção de dois fótons no átomo de rubídio. As transições foram excitadas por pares de pulsos de separação temporal variável e analisamos a resposta do meio atômico em função dessa separação. Três situações experimentais são analisadas envolvendo transições com diferentes características.

No primeiro experimento, utilizamos luz incoerente de um laser de corante com duração temporal de nanosegundos, mas com tempo de coerência de picosegundos, para excitar a transição de dois fótons, envolvendo níveis altamente excitados, níveis de Rydberg. A resposta do sistema é analisada através de um processo de mistura de quatro ondas, resolvida no tempo, e a seleção dos diferentes caminhos quânticos envolvidos no processo é feita a partir do controle da polarização dos campos do laser incidente. Interferências na frequência central do laser, interferências "ópticas", e no dobro dessa frequência, interferências quânticas, são observadas.

Nos outros dois estudos, a transição de dois fótons é excitada por pulsos com duração temporal da ordem de 100 femtosegundos. No primeiro caso, investigamos uma transição de dois fótons pura, entre os níveis 5S e 7S do rubídio, onde uma fase externa, dependente da frequência, é adicionada em um dos pulsos, enquanto o outro tem seu atraso temporal controlado. A fluorescência detectada é uma medida direta da população do estado excitado. Novamente, um sinal interferométrico é observado, cujo controle coerente é efetuado por uma combinação da fase externa e do atraso temporal.

O último experimento envolve uma transição sequencial, cuja ressonância de um fóton leva a efeitos de propagação observados no sinal de interesse. Outro aspecto importante é que a taxa de repetição do laser era maior que as taxas de relaxação dos níveis envolvidos, de forma que efeitos de acumulação na população e na coerência também estão presentes. A resposta do sistema é analisada através do processo de mistura paramétrica de quatro ondas, resolvido no tempo. O sinal interferométrico, com controle de polarização e da frequência de detecção, permite uma demonstração clara da origem quântica nas interferências "ópticas".

Palavras-chave: Controle Temporal Coerente, Manipulação da Fase Óptica, Transições de Dois Fótons, Interferências Quânticas, Efeitos Acumulativos.

Abstract

In this work, we use the techniques of temporal coherent control and phase manipulation of the optical field to investigate and control different quantum pathways in the two-photon absorption in rubidium atoms. Three experimental situations are studied involving transitions with different characteristics. In all of them, the medium response is analyzed as a function of the temporal delay between the pulse pairs responsible for the two-photon transition.

In the first experiment, we use incoherent light from a dye laser with pulse duration in the nanosecond scale, but with coherence time in the picosecond scale, to excite the two-photon transition, which involves highly excited levels, Rydberg states. The system response is analyzed through a time-resolved four-wave mixing process, and the quantum pathway selection is realized by polarization control of the incident laser fields. Interferences in the central laser frequency - "optical" interferences - and at twice this frequency - quantum interferences - are observed.

In the subsequent two studies, the two-photon transition is excited with 100 fs pulses. In the first case, we investigate a pure two-photon transition, the 5S - 7S rubidium transition, where an external frequency dependent phase is added in one pulse, while the temporal delay of a second pulse is controlled. We observe an interferometric signal, in which coherent control is achieved with external phase and temporal delay combination.

The last experiment involves a sequential transition, which has a one-photon resonance that leads to propagation effects observed in the signal. The laser repetition rate is greater than the atomic system relaxation rates, leading to accumulation effects in the population and coherence, which leads to important effects. A time-resolved parametric four-wave mixing is used to investigate the system response. The interferometric signal, with polarization and detection frequency control, allows us to clearly demonstrate the quantum origin of the "optical" interferences.

Keywords: Temporal Coherent Control, Optical Phase Manipulation, Two-Photon Transitions, Quantum Interferences, Accumulative Effects.

Sumário

1	Introdução	1
1.1	Óptica Não Linear	1
1.2	Espectroscopia com Luz Incoerente	5
1.3	Controle Coerente	8
1.4	Efeitos Acumulativos	13
1.5	Teoria de Propagação Linear	14
1.6	Propagação de Campos Eletromagnéticos em Meios Materiais	19
1.7	Descrição da Tese	22
2	Mistura de Quatro Ondas com Luz Incoerente	25
2.1	Introdução	25
2.2	Resultados Experimentais	27
2.3	Modelo Teórico e Discussão	32
2.3.1	Pulsos Atrasados com Polarizações Paralelas	37
2.3.2	Pulsos Atrasados com Polarizações Perpendiculares	43
3	Controle Coerente na Absorção de Dois Fótons	49
3.1	Introdução	49
3.2	Sintetizador de Fourier	50
3.3	Resultados Experimentais	54
3.4	Modelo Teórico para a Transição de Dois Fótons	60
4	Mistura Paramétrica de Quatro Ondas	71
4.1	Introdução	71
4.2	Mistura Paramétrica de Quatro Ondas (MPQO) sem Atraso Temporal	74
4.3	Mistura Paramétrica de Quatro Ondas com Atraso Temporal	79
4.3.1	Oscilações Interferométricas	79
4.3.2	Controle Temporal Coerente na MPQO	89
4.4	Modelo Teórico e Discussão	94
5	Conclusão	111
	Bibliografia	115

Lista de Figuras

1.1	Representação dos possíveis caminhos quânticos para a transição de dois fótons com atraso entre os pulsos. A seta preta representa a excitação pelo primeiro pulso a atingir o meio, enquanto a seta em cinza representa a excitação pelo pulso atrasado de τ .	10
1.2	Espectro teórico, $ \tilde{\epsilon}(\nu) ^2$, da envoltória do campo após a propagação por 5,0 cm da amostra. Consideramos $\alpha_0 z = 48$. No quadro interno, temos uma ampliação da região em torno da origem.	17
1.3	Campo propagado, $ \tilde{\epsilon}(t) ^2$, após percorrer 5,0 cm no vapor atômico. Os parâmetros, utilizados na obtenção desta figura, foram os mesmos que os da figura 1.2.	18
2.1	Estados do átomo de rubídio relevantes no processo de Mistura de Quatro Ondas (MQO) e os comprimentos de onda dos campos envolvidos. Também estão indicados o fato de estarmos trabalhando com um laser cuja largura de banda é suficiente para excitar simultaneamente os níveis 16D e 18S, a separação de energia entre esses níveis, os comprimentos de onda dos lasers utilizados e da emissão coletada.	26
2.2	Aparato experimental utilizado nos experimentos de controle temporal coerente na MQO utilizando luz incoerente.	27
2.3	Espectro de emissão da MQO para o comprimento de onda central do laser de corante igual a 602,5 nm. A figura mostra as três ressonâncias atômicas englobadas pela largura de linha do laser de corante.	29
2.4	Sinal da MQO resolvida no tempo para uma varredura longa do atraso entre os pares de pulsos, quando apenas o nível 16D é excitado. Configuração das polarizações dos pulsos: $E(t - \tau) \perp E(t)$ e $E_{IR} \perp E_4$.	30
2.5	Sinal da MQO resolvida no tempo em função do atraso entre os pares de pulsos para duas configurações das polarizações dos pulsos. Em (a) e (b), todos os pulsos têm polarizações paralelas, (c) e (d) $E(t - \tau) \perp E(t)$ e $E_{IR} // E_4$. Em (a) e (c) as varreduras são feitas dentro do pico central, $\tau \approx \tau_c$, e em (b) e (d) temos $\tau \gg \tau_c$.	31
2.6	Estados atômicos envolvidos no processo de geração da MQO e as frequências dos campos envolvidos.	33
2.7	Espectro de emissão da MQO. Os círculos abertos são uma reprodução da figura 2.3. A curva sólida é um ajuste teórico baseado nas equações (2.22)-(2.24) para $\tau = 0$.	40

2.8	Representação dos possíveis caminhos quânticos para a transição de dois fótons com atraso entre os pulsos. A seta em cinza escuro representa a excitação pelo primeiro pulso a atingir o meio, enquanto a seta em cinza claro representa a excitação pelo pulso atrasado de τ .	42
2.9	Transição por dois fótons atrasados temporalmente, explicitando a polarização dos pulsos. O primeiro pulso a interagir com o meio possui polarização ao longo da direção $\hat{x}$ e o pulso atrasado de τ ao longo da direção $\hat{y}$.	44
3.1	Diagrama com os níveis de energia do rubídio relevantes para o estudo da manipulação da fase em conjunto com o atraso temporal em uma transição de dois fótons. Estão indicados também os comprimentos de onda do laser que faz a transição de dois fótons e da fluorescência observada.	49
3.2	Compressor de pulsos de par de grades na configuração em que não se introduz nenhum "chirp" adicional ao pulso que se propaga pelo mesmo.	52
3.3	Fase extra introduzida no sintetizador de Fourier, no formato de uma função degrau (preto) e espectro do pulso (cinza).	53
3.4	Montagem experimental utilizada para os experimentos de correlação cruzada colinear e de detecção da fluorescência. Os números 1 e 2 indicam os pulsos presentes no experimento, sendo o pulso 1 o que recebe o atraso temporal e o pulso 2 o que recebe a fase externa, ao se propagar pelo sintetizador de Fourier. Legenda: DF - Divisor de Feixes; SF - Sintetizador de Fourier; LA - Linha de Atraso; RD - Roda Dentada ("chopper"); ER - Espelho Removível; AF - Alto-Falante; PMT - Fotomultiplicadora.	55
3.5	Fluorescência parcial em função de τ , para diferentes posições normalizadas da fase externa.	57
3.6	Representação esquemática da distribuição de fase, para $\tau = 0$, quando um dos pulsos possui uma amplitude do degrau de fase igual a π e o outro não possui fase extra (parte superior) e a distribuição espectral do produto desses dois pulsos (parte inferior).	58
3.7	Variação da fluorescência total em função do atraso temporal entre os pulsos. (a) Varredura rápida em τ . Varreduras de alta precisão para (b) $\tau \approx -190$ fs e (c) $\tau \approx -40$ fs.	59
3.8	Estados atômicos envolvidos na transição de dois fótons sem ressonância intermediária, também apresentamos, esquematicamente, as frequências das transições atômicas e dos lasers.	61
3.9	Fase externa (em preto) introduzida experimentalmente ao longo do espectro do pulso (em cinza). O parâmetro σ determina o quão abrupta é a descida da função erro usada como modelo para a função de fase introduzida no pulso através de sua propagação pelo SF.	64

3.10	Módulo quadrado da função $F_{12}(\tau)$ para a situação em que não há fase extra introduzida no sintetizador de Fourier.	66
3.11	Gráficos teóricos para a intensidade total da fluorescência, (a) para varreduras rápidas em τ , (b) e (c) para varreduras com precisão interferométrica no atraso, em torno de -190 fs e -40 fs, respectivamente.	68
3.12	Módulo quadrado da função $F_{12}(\tau)$ para $\delta\phi = 1/16$ e a amplitude do degrau de fase de $3,17\pi$.	69
4.1	Diagrama com os níveis de energia do rubídio relevantes para o estudo da MPQO. Estão indicados também os comprimentos de onda de todas as transições atômicas.	71
4.2	Aparato experimental. O polarizador após as linhas de atraso pode ser colocado ou removido com o intuito de modificar as polarizações dos pulsos que incidem no vapor de Rb. O mesmo acontece com o espelho na entrada do monocromador, para coletarmos a emissão do vapor para frente ou a 90° , respectivamente.	73
4.3	Aparato experimental utilizado nas medidas sem atraso temporal. O espelho na entrada da célula de rubídio pode ser colocado ou removido com o intuito de coletarmos a emissão em 420 nm copropagante ou contrapropagante ao feixe do laser de Ti:safira, respectivamente.	75
4.4	Intensidade do sinal em 420 nm, para: (a) o sinal copropagante (MPQO) e (b) contrapropagante (ASE) ao laser de Ti:safira. As medidas de intensidade foram realizadas em função da densidade do vapor atômico para uma potência fixa do laser de Ti:safira = 200 mW.	76
4.5	Intensidade em 420 nm, para o sinal de MPQO, quadro (a), e para o sinal de ASE, quadro (b). As medidas de intensidade foram realizadas em função da potência do laser de Ti:safira para dois valores distintos da densidade do vapor de rubídio, $N \approx 1,5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ (quadrados) e $N \approx 4,6 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ (círculos).	77
4.6	Gráficos, em escala logarítmica, da intensidade do sinal gerado em 420 nm, para o sinal de MPQO, quadro (a), e para o sinal de ASE, quadro (b). As medidas de intensidade foram realizadas em função da potência do laser de Ti:safira para três valores distintos da densidade do vapor de rubídio, $N \approx 1,1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ (quadrados), $N \approx 2,7 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ (círculos) e $N \approx 5,9 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ (triângulos).	78
4.7	Variação da intensidade da fluorescência em 420 nm com o atraso relativo entre os pulsos para varreduras curtas do braço da linha de atraso que tem maior resolução temporal. Cada linha da figura corresponde a uma diferente configuração de polarização dos pulsos de excitação. Na primeira linha, temos polarizações lineares e paralelas; na segunda, polarizações lineares e perpendiculares e, na terceira, polarizações circulares e ortogonais. As varreduras foram realizadas em torno de $\tau = 0$ e $\tau = 45 \text{ ps}$.	80

- 4.8 Variação da intensidade da MPQO em 420 nm com o atraso relativo entre os pulsos para varreduras curtas do braço da linha de atraso que tem maior resolução temporal. Cada linha da figura corresponde a uma diferente configuração de polarização dos pulsos de excitação. Na primeira linha, temos polarizações lineares e paralelas; na segunda, polarizações lineares e perpendiculares e, na terceira, polarizações circulares e ortogonais. As varreduras foram realizadas em torno de $\tau = 0$ e $\tau = 45$ ps. 81
- 4.9 Representação dos possíveis caminhos quânticos para a transição de dois fótons quando os pulsos com atraso possuem polarizações lineares e perpendiculares. As setas em cinza escuro representam os pulsos que interagem com o sistema no instante t e possuem polarização $\hat{x}$, enquanto que as setas em cinza claro são os pulsos que interagem com o sistema no instante $t + \tau$ e possuem polarização $\hat{y}$. 83
- 4.10 Representação dos possíveis caminhos quânticos para a transição de dois fótons quando os pulsos com atraso possuem polarizações circulares e perpendiculares entre si. As setas em cinza escuro representam os pulsos que interagem com o sistema no instante t e possuem polarizações $\hat{\sigma}_+$, enquanto que as setas em cinza claro são os pulsos que interagem com o sistema no instante $t + \tau$ e possuem polarização $\hat{\sigma}_-$. 84
- 4.11 Intensidade da emissão em 420 nm para o sinal coletado a 90° , fluorescência no quadro (a) e na mesma direção do feixe do laser de Ti:safira, MPQO no quadro (b), para uma mesma densidade do vapor de rubídio, $N = 1,1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$. 90
- 4.12 Intensidade da emissão em 420 nm para o sinal na mesma direção do feixe do laser de Ti:safira (MPQO), em função do atraso entre os pulsos, para várias densidades do vapor de Rb. 91
- 4.13 Intensidade da emissão em 420 nm para o sinal do processo de MPQO, em função do atraso entre os pulsos. Nesta figura, apresentamos o zero do sinal para cada uma das medidas realizadas. 92
- 4.14 Intensidade da emissão em 420 nm para o sinal do processo de MPQO em uma varredura rápida. As curvas foram obtidas quando a aquisição dos dados é realizada na mesma frequência que modula os dois braços da linha de atraso, quadro (a), e na soma das frequências que modulam os braços da linha de atraso, quadro (b). 93
- 4.15 Variação de $|\rho_{13}|^2$ em uma varredura rápida de τ , obtida a partir das equações (4.32) - (4.36). Os parâmetros utilizados foram $T_p = 140$ fs, $\mu_{12}\epsilon_0/\hbar = 1,4$ THz e $\alpha_0 z = 36$. No quadro (a), temos $T_R = 13,000405$ ns e no quadro (b) $T_R = 13,0001685$ ns. 104
- 4.16 Comparação entre $|\rho_{13}|^2$ e ρ_{33} para uma varredura rápida. Os parâmetros utilizados foram $T_p = 140$ fs e $T_R = 13,000405$ ns, $\mu_{12}\epsilon_0/\hbar = 1,4$ THz e $\alpha_0 z = 36$. 105
- 4.17 Variação de $|\rho_{13}|^2$ para uma varredura rápida do atraso. No quadro (a) a intensidade inicial do campo elétrico é tal que $\mu_{12}\epsilon_0/\hbar = 0,7$ THz, enquanto no quadro (b) temos uma reprodução do quadro (a) da figura 4.15. 107

- 4.18 Variação de $|\rho_{13}|^2$ para uma varredura rápida obtida a partir das equações (4.32) - (4.36). Os parâmetros utilizados foram $T_p = 140$ fs e $T_R = 13,000405$ ns, $\mu_{12}\epsilon_0/\hbar = 1,4$ THz. Nos quadros (a), (b) e (c) variamos o parâmetro que controla a densidade da amostra, sendo o mesmo igual a $\alpha_0 z = 19, \alpha_0 z = 36$ e $\alpha_0 z = 95$, respectivamente. 109

CAPÍTULO 1

Introdução

Nesta Tese, iremos apresentar estudos que envolvem a interação entre a radiação eletromagnética e a matéria, cujo foco principal é o controle da interação visando a obter um estado quântico pré-determinado. Durante a realização deste trabalho, foram utilizadas técnicas de controle temporal coerente e espectroscopia com luz incoerente, e o sinal observado se deve ao processo de mistura de ondas. Além disso, efeitos de propagação no pulso durante sua passagem através de um meio atômico denso e efeitos de acumulação nas populações e coerências do sistema atômico foram observados em alguns dos experimentos descritos nesta Tese e tiveram que ser incorporados na teoria que descreve esses experimentos para termos uma análise mais realista dos mesmos. Nesse primeiro capítulo, faremos uma introdução aos conceitos mais fundamentais das técnicas utilizadas e descreveremos os efeitos que foram incorporados à teoria. Na seção 1.6, descreveremos a organização dos capítulos seguintes da Tese.

1.1 Óptica Não Linear

A óptica não linear descreve os fenômenos que ocorrem como consequência da modificação das propriedades ópticas de um sistema material pela presença de radiação eletromagnética. Usualmente, os efeitos não lineares só ocorrem quando a magnitude do campo elétrico da radiação é comparável aos campos elétricos internos do meio material. Até o início dos anos 60, as fontes de radiação utilizadas eram, em sua maioria, lâmpadas de arco de mercúrio. Com o advento do laser [1], a intensidade da fonte de radiação aumentou consideravelmente (a potência por unidade de área do laser de rubi, criado por Maiman e colaboradores [1] era 10^{12} vezes maior que as lâmpadas de mercúrio utilizadas na época) e assim vários processos não-lineares puderam ser observados: a geração de segundo harmônico [2], geração de soma e diferença de frequências [3], amplificação paramétrica [4], entre outros. Logo após esses experimentos pioneiros, uma explicação teórica foi apresentada baseada na resposta não linear dos elétrons que estão sujeitos ao campo elétrico [5]. Posteriormente, Bloembergen e Shen introduziram o formalismo da matriz densidade, com efeitos de saturação e tratamento perturbativo, resultando num melhor entendimento dos processos não lineares [6].

Podemos dizer que o "núcleo" da óptica não linear está nos conceitos de suscetibilidades e polarizações não lineares. Isto pode ser percebido se utilizarmos as equações de Maxwell:

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = \rho, \quad (1.1a)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0, \quad (1.1b)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}, \quad (1.1c)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \vec{J}, \quad (1.1d)$$

e as relações constitutivas do meio, dadas por:

$$\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P}, \quad (1.2a)$$

$$\vec{B} = \mu_0 \vec{H} + \vec{M}. \quad (1.2b)$$

onde ρ é a densidade volumétrica de cargas livres, $\vec{J}$ é a densidade volumétrica de corrente, ϵ_0 é a permissividade elétrica do vácuo, μ_0 é a permeabilidade magnética do vácuo, $\vec{P}$ é a polarização macroscópica do meio, $\vec{M}$ é a magnetização macroscópica do meio, $\vec{E}$ é o campo elétrico, $\vec{D}$ é o vetor deslocamento elétrico, $\vec{B}$ é o campo magnético e $\vec{H}$ é o campo de magnetização.

Se o material não for magnético, $\vec{M} = \vec{0}$, e não possuir cargas livres, $\rho = 0$, $\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = 0$ e $\vec{J} = \vec{0}$, podemos obter:

$$\vec{\nabla}^2 \vec{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2}. \quad (1.3)$$

Esta equação descreve a propagação da onda eletromagnética no meio material e a polarização macroscópica serve como termo de fonte para o campo.

Para entendermos fisicamente a origem da polarização macroscópica induzida no meio, vamos analisar microscopicamente o que acontece com os átomos que constituem o material. Em um material dielétrico as cargas positivas e negativas dos átomos estão ligadas de forma não rígida, de modo que sob a ação de um campo elétrico externo, a nuvem eletrônica se desloca para acompanhar a oscilação do campo que incide sobre o meio. Tal deslocamento, entretanto, não é acompanhado pelos prótons presentes no núcleo, devido à sua massa ser consideravelmente maior que a da nuvem eletrônica. Assim, a oscilação dos elétrons corresponde a pequenos momentos de dipolo microscópicos no meio, que originam a polarização macroscópica do material [7].

Uma descrição clássica para este modelo microscópico é feita utilizando-se o sistema mecânico massa-mola, submetido a uma força externa. Nessa descrição, os elétrons do meio, de massa m e carga $-e$, estariam ligados aos íons por uma mola e o meio seria constituído por N desses osciladores clássicos não harmônicos por unidade de volume. A força externa seria o resultado da aplicação do campo elétrico externo sobre os elétrons, os quais respondem a esse campo de acordo com a seguinte equação:

$$\frac{d^2x}{dt^2} + \gamma \frac{dx}{dt} + \omega_0^2 x - (ax^2 + bx^3 + \dots) = -\frac{eE(t)}{m}. \quad (1.4)$$

onde $x(t)$ é o deslocamento do elétron a partir da posição de equilíbrio, ω_0 é a frequência de ressonância e γ é a constante de amortecimento. As constantes, a , b , $\dots$, descrevem o grau de não harmonicidade do potencial e são consideradas de pequena magnitude, de modo a podermos tratá-las perturbativamente. Para resolvermos a equação (1.4), vamos expandir $x(t)$ em uma série de Taylor:

$$x(t) = x^{(1)}(t) + x^{(2)}(t) + x^{(3)}(t) + \dots. \quad (1.5)$$

Inicialmente, desprezamos os termos não harmônicos do potencial e tomamos o primeiro termo da expansão de $x(t)$. Com isto a equação (1.4) fica:

$$\frac{d^2x^{(1)}}{dt^2} + \gamma \frac{dx^{(1)}}{dt} + \omega_0^2 x^{(1)} = -\frac{eE(t)}{m}. \quad (1.6)$$

Vamos supor, inicialmente, que o campo elétrico incidente no meio é senoidal e monocromático:

$$E(t) = E_0 \cos(\omega t) = \frac{E_0}{2} [\exp(i\omega t) + \exp(-i\omega t)]. \quad (1.7)$$

ao substituirmos a equação (1.7) na equação (1.6), obtemos a seguinte solução [8]:

$$x^{(1)}(t) = -\frac{eE_0}{2m} \left[\frac{\exp(i\omega t)}{\omega_0^2 - \omega^2 + i\gamma\omega} + \frac{\exp(-i\omega t)}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega} \right]. \quad (1.8)$$

A polarização induzida no meio é dada por: $P(t) = -Nex(t)$. Além disso, podemos escrever a polarização em função da suscetibilidade do meio através da seguinte equação [9]:

$$P(t) = \frac{\epsilon_0}{2} [\chi(\omega) E_0 \exp(i\omega t) + \chi^*(\omega) E_0 \exp(-i\omega t)]. \quad (1.9)$$

Substituindo a equação (1.8) para $x(t)$, na expressão para a polarização, $P(t) = -Nex(t)$, e comparando o resultado com a equação (1.9), podemos escrever uma expressão para a suscetibilidade:

$$\chi(\omega) = \frac{Ne^2}{m} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega}. \quad (1.10)$$

A solução para $x^{(2)}(t)$ é obtida usando-se a expressão para $x^{(1)}(t)$ como entrada na equação (1.4). Procedimentos análogos e sucessivos são usados na obtenção das soluções de ordens superiores para o deslocamento dos elétrons. Os diversos termos da polarização macroscópica associados a essas soluções representam os termos da polarização não linear, sendo dados por:

$$P^{(n)}(t) = -Nex^{(n)}(t). \quad (1.11)$$

Desta forma, vemos que a polarização macroscópica pode ser expandida em uma série de potências do campo elétrico como:

$$P_i = \chi_{ij}^{(1)} E_j + \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots, \quad (1.12)$$

onde acrescentamos os sub-índices que representam o sistema de coordenadas cartesianas e assim podemos obter qual é a polarização do campo originado pela polarização macroscópica. Através desse formalismo de suscetibilidades é possível analisar uma grande variedade de processos não lineares, como por exemplo: absorção não linear [10], misturas de ondas [3], amplificação paramétrica [4], entre outros.

Em materiais centro-simétricos, i. e., com simetria de inversão, duas direções opostas são completamente equivalentes de modo que a polarização macroscópica satisfaz $\vec{P}(\vec{r}) = \vec{P}(-\vec{r})$. Dessa forma, as suscetibilidades de ordem par são nulas, na equação (1.12), e o termo não linear de ordem mais baixa é o termo em terceira ordem nos campos, dado por $\chi^{(3)}$. Nos estudos realizados nesta Tese, iremos tratar da interação entre a radiação eletromagnética e o vapor atômico de rubídio, ou seja, o meio de interesse possui simetria de inversão e assim o termo não linear que tem a maior contribuição para a polarização macroscópica é o que está associado à suscetibilidade de terceira ordem.

Os processos descritos pela suscetibilidade não linear de terceira ordem são chamados de Mistura de Quatro Ondas (MQO). Tal processo é um exemplo de geração de soma e diferença de frequências [3]. Entre as possibilidades de ocorrência da MQO podemos ter a interação do meio com duas ondas eletromagnéticas, sendo geradas duas novas ondas e a interação do meio com três ondas eletromagnéticas, sendo gerada, coerentemente, uma quarta onda.

Fisicamente, podemos entender este último processo considerando a interação individual de cada campo com o meio dielétrico. O primeiro campo origina uma polarização que oscila com a

mesma frequência do campo que a criou. A aplicação do segundo campo também força uma polarização que tem a frequência do segundo campo e a interferência entre os dois campos vai originar harmônicos na polarização que oscilam na soma e diferença de frequência desses dois campos. A aplicação de um terceiro campo também irá originar uma polarização e essa última irá interferir com as polarizações originadas da aplicação dos dois primeiros campos. Esses "batimentos" nas diversas combinações lineares de soma e diferença de frequências é que dá origem à quarta onda, na mistura de quatro ondas. Como cada uma das frequências, que surgem do batimento dos diversos campos, pode atuar como fonte de um novo campo, teremos campos com frequências que correspondem a todas as combinações lineares possíveis das frequências dos três campos que incidiram originalmente sobre o meio dielétrico. No caso do processo de terceira ordem que descreve a soma de frequências $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$, por exemplo, representaremos a polarização não linear associada por:

$$P_i^{(3)}(\omega_4) = K \left[\chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_4 : \omega_1, \omega_2, -\omega_3) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) E_l^*(\omega_3) \right], \quad (1.13)$$

onde K é um fator numérico relacionado ao sentido, ao longo da direção $\hat{i}$, em que o campo elétrico originado pela polarização oscila.

A MQO tem sido utilizada como uma técnica de investigação da interação entre a radiação eletromagnética e a matéria, como nos trabalhos iniciais de Vasil'eva e colaboradores [11], para medir o tempo de relaxação eletrônico de um corante orgânico e de Golub e Mossberg [12] na observação do batimento em 7,2 THz, que corresponde à separação entre as linhas D_1 e D_2 da estrutura fina do rubídio. Várias aplicações também já foram demonstradas, como a conjugação de fase óptica [13] e a conversão do infravermelho para o visível com tempos de resposta rápidos [14].

1.2 Espectroscopia com Luz Incoerente

Nenhuma fonte de luz é perfeitamente monocromática. Sempre existe uma distribuição em frequência com uma largura característica, $\Delta\nu$, centrada em uma certa frequência média, ν . Essa largura característica é chamada de largura espectral da fonte de luz. A coerência se apresenta sobre dois aspectos: o espacial e o temporal. O aspecto espacial está associado ao caráter extenso da fonte luminosa, conceito este que não será de muita importância nos estudos realizados ao longo desta Tese. Uma discussão interessante sobre a coerência espacial e temporal pode ser encontrada no livro do Mandel e Wolf [15]. Para um campo constituído por várias frequências:

$$E(t) = \sum_i A_i \cos(\omega_i t) \quad (1.14)$$

a coerência temporal é caracterizada por um tempo característico, chamado tempo de coerência, t_c , que pode ser entendido como o intervalo de tempo relacionado ao atraso relativo entre campos,

ambos descritos matematicamente como o campo da equação (1.14), que se propagam em dois braços de um interferômetro de Michelson, durante o qual é possível observar as franjas de interferência, caso esses campos sejam postos a interferir [16]. Isto quer dizer que, num experimento de auto-correlação, as franjas de interferência só podem ser observadas se a diferença de percurso óptico, entre os braços do interferômetro for igual ou menor que o comprimento de coerência, $l_c = ct_c$, da luz que é posta a interferir.

Para estudarmos a relação entre a largura de linha e o tempo de coerência de uma fonte, precisamos utilizar o teorema de Fourier, segundo o qual uma função $F(t)$ pode ser expressa através de uma integral sobre a variável ω , e vice-versa, da seguinte forma:

$$\begin{aligned} F(t) &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} G(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega, \\ G(\omega) &= \int_{-\infty}^{+\infty} F(t) \exp(i\omega t) dt. \end{aligned} \quad (1.15)$$

As funções $F(t)$ e $G(\omega)$ são a transformada de Fourier (TF) uma da outra e as variáveis t e ω são ditas canonicamente conjugadas. No nosso caso, as variáveis t e ω são tempo e frequência angular, respectivamente. Em todos os casos estudados na natureza, podemos associar um tempo característico, Δt , a uma largura espectral característica, $\Delta\omega$. Por exemplo, em campos eletromagnéticos limitados pela TF, i. e., quando o produto $\Delta t \Delta\omega$ é mínimo, podemos associar a duração temporal do processo com sua largura espectral através do conjunto de equações (1.15).

Quando estamos interessados em estudar processos atômicos que possuem dinâmica com tempos característicos na escala de fentosegundos é necessário utilizar uma ferramenta cuja resolução temporal seja grande o suficiente para observarmos os processos de interesse. Geralmente nesses estudos são utilizados lasers que geram pulsos de duração total, T_p , de alguns fentosegundos. Uma das características desses lasers é a geração de pulsos limitados por TF. Por exemplo, um pulso limitado pela TF com forma Gaussiana tem $\Delta\omega\Delta t = 0,441$, enquanto que um pulso limitado por Fourier com forma Lorentziana tem $\Delta\omega\Delta t = 0,6$ [17]. Como a duração total do pulso é muito pequena, na escala de fentosegundos, sua largura espectral deve ser muito grande, na escala de terahertz, para que o limite da transformada de Fourier seja atingido.

Uma outra forma de se obter resolução temporal de alguns fentosegundos é o emprego de campos não limitados por transformada de Fourier. Neste caso, utiliza-se um laser que produz pulsos de longa duração, podendo chegar até a dezenas de nanosegundos, e com espectro largo, de forma que $\Delta\omega\Delta t \gg 1$. Embora o pulso seja temporalmente muito longo, este ainda pode ser utilizado em estudos de dinâmica ultra rápida, pois este pulso não apresenta travamento de modos, i. e., não é limitado pela TF e assim pode possuir um tempo de coerência, t_c , de alguns fentosegundos. Este é o parâmetro que determina a resolução temporal na técnica de espectroscopia com luz incoerente.

O primeiro trabalho que empregou luz incoerente na espectroscopia resolvida no tempo, que até então era feita utilizando-se pulsos ultra curtos, foi o de Vasil'eva e colaboradores [11]. Neste trabalho, foi utilizada a técnica de autodifração com luz incoerente. Os autores perceberam que, se os feixes incidentes na amostra não forem coerentes então as posições dos máximos e mínimos do padrão de interferência variam no tempo. Entretanto, a distância que separa os máximos e mínimos se mantém constante. Dessa forma, é possível medir a intensidade da luz em um dos máximos de difração. Os autores mediram, então, intensidade da difração em função do atraso relativo τ entre os feixes que originaram o padrão interferométrico, $I(\tau)$, dividida pelo seu valor em $\tau = 0$, $I(0)$. Como essa grandeza é independente das intensidades dos pulsos do laser e de algumas características da amostra (como absorção e transmissão do corante, e espessura da amostra), foi possível obter o tempo de relaxação eletrônica de uma amostra de corante.

Posteriormente, o fenômeno de eco de fótons foi estudado utilizando-se luz incoerente [18]. Num experimento típico de eco de fótons, dois feixes provenientes do mesmo laser são usados para excitar uma amostra. Esses feixes são não colineares e atrasados temporalmente. A excitação da amostra pelo primeiro pulso resulta em uma distribuição espacial e espectral periódica da população do nível mais excitado, ou da coerência entre dois níveis de interesse. Após um intervalo de tempo τ , o segundo pulso sonda essa amostra e é observado um pulso irradiado pelo sistema, atrasado em relação ao segundo pulso pelo mesmo intervalo de tempo τ . Para a observação do eco de fótons, precisamos de uma resolução temporal maior, ou da mesma ordem, do tempo de relaxação da população ou da coerência excitada. Por esse motivo, apenas pulsos ultra curtos, com tempos de duração menores que o inverso da largura linha não homogênea, eram utilizados nesse tipo de experimento. Porém, Asaka e colaboradores [18] mostraram que é possível observar o fenômeno de eco de fótons com luz incoerente, pois a resolução temporal é determinada pelo tempo de coerência dos pulsos, t_c , que excitam a amostra e não pela duração dos mesmos, T_p . Os autores compararam os resultados para a intensidade do sinal de eco de fótons em função do atraso entre os pulsos que excitavam a amostra nos casos em que os pulsos eram ultra-curtos ($T_p = 3$ ps), ou quando eram pulsos de luz incoerente ($t_c = 0,7$ ps), medindo o mesmo valor para a taxa de decaimento da coerência de ≈ 60 ps.

As técnicas com luz incoerente têm permitido medir vários tempos de relaxação na matéria condensada. Por exemplo, a técnica de excitação e prova com luz incoerente foi proposta por Tomita e colaboradores [19]. Neste trabalho, os autores utilizam um laser de Nd: YAG, operando no modo Q-switch como uma fonte de luz incoerente [20], para medir tempos de relaxação de populações atômicas com resolução temporal da ordem do inverso da largura de linha do laser, i. e., aproximadamente 30 ps. Posteriormente, Minami e Hasegawa [21] propuseram a utilização de dois lasers diferentes na configuração de excitação e prova. Um dos lasers é um Nd: YAG e o outro um laser de corante, bombeado pelo primeiro. Neste caso, a correlação medida entre os pulsos dos lasers foi na intensidade dos campos e não na sua amplitude, como é usualmente realizado. Isto

acarretou um aumento na resolução temporal obtida, a qual passou a ser de até 50 ps, enquanto que no caso em que medimos a correlação na amplitude dos campos temos uma resolução de 90 ps.

Morita e colaboradores [22] analisaram o fenômeno de propagação coerente de um feixe de luz incoerente, de baixa intensidade, através de um meio ressonante. Os autores utilizam um laser de corante, de largura de linha de 2,1 nm, que se propaga através de vapor de sódio. O laser foi sintonizado de modo a ficar ressonante com a transição $3S \rightarrow 3P$. Neste trabalho, foi demonstrado que a correlação cruzada entre a luz que se propaga no meio e a luz que não sofre os efeitos de propagação, em função do atraso entre esses pulsos, reproduz a mesma oscilação específica que o comportamento de um pulso ultra curto e coerente que se propaga através do mesmo meio. A única diferença observada é a presença das linhas D_1 e D_2 do nível 3P, no perfil da correlação cruzada para o caso da luz incoerente, pois a largura de linha dos pulsos é suficiente para excitar essas linhas simultaneamente.

A utilização de luz incoerente tornou-se, então, uma técnica muito importante para a espectroscopia resolvida no tempo, pois os resultados obtidos com ela se mostraram tão significativos quanto os obtidos com pulsos ultra curtos. Essa técnica tem permitido a observação de vários fenômenos importantes. No caso da óptica não linear, podemos citar o emprego de técnicas envolvendo luz incoerente para a observação de tempos de defasamento de colisões em vapores atômicos [23], interferência transiente utilizando mistura de quatro ondas com luz incoerente [12], mistura de quatro ondas resolvida no tempo com luz incoerente [24], entre outros.

Uma recente aplicação para as fontes de luz incoerente tem sido a técnica de manipulação da interação entre a radiação e a matéria, mais especificamente no controle coerente [25], que é o tópico da próxima seção.

1.3 Controle Coerente

Uma das áreas que mais evoluíram nos últimos anos, no que diz respeito à interação entre radiação eletromagnética e a matéria, foi o do controle coerente. Esta técnica consiste em utilizar as características da radiação para favorecer um determinado estado final quando vários estados podem resultar desta interação. Uma das formas de realizar tal controle é através de interferências construtivas e destrutivas que acontecem entre os diversos caminhos quânticos que são excitados simultaneamente pela radiação. Um dos seus principais objetivos é possibilitar que reações químicas resultem apenas no produto almejado [26, 27]. Desde o começo da década de 90, temos testemunhado avanços consideráveis no controle coerente [28]. Esses avanços possibilitaram o uso da técnica para aplicações em física [29], biologia [30] e química [31, 32].

Para um melhor entendimento dos processos que permitem realizar o controle coerente de reações químicas, devemos utilizar sistemas mais simples nos quais a interação radiação-matéria é mais fácil de ser controlada e analisada. É nesse contexto que se utiliza o controle coerente da interação radiação-matéria em sistemas atômicos [33, 34]. Por serem sistemas mais simples, os sistemas atômicos servem como protótipos para o desenvolvimento de teorias que são mais fáceis de comparar com os resultados experimentais. Vários estudos foram então realizados em átomos alcalinos [35, 36, 37], uma vez que estes apresentam apenas um elétron em sua última camada, sendo assim os sistemas mais simples de se modelar a partir do átomo de hidrogênio. O tema desta Tese baseia-se no controle coerente de transições atômicas no átomo de rubídio.

Durante a evolução dos estudos entre a interação radiação-matéria, várias técnicas surgiram na tentativa de controlar essa interação. Uma delas, o controle ótimo, consiste em moldar a distribuição de fase do campo incidente e assim, como as transições atômicas dependem dessa fase, controlar o resultado da interação [35]. Neste trabalho, Meshulach e Silberberg utilizam o controle ótimo para moldar o perfil espectral de um pulso ultra curto e demonstram o controle coerente na transição de dois fótons entre os níveis $6S_{1/2}$ e $8S_{1/2}$ do cézio. Vários outros trabalhos foram então realizados utilizando-se a manipulação de perfil espectral do pulso [38, 39]. Entre eles, destacam-se a aplicação do controle ótimo na microscopia [40, 41].

Uma das principais motivações para se comprimir pulsos de laser, até se atingir o limite da transformada de Fourier, é a maximização da interação entre radiação e matéria. Porém, em um trabalho realizado pelo grupo do Silberberg [42], é apresentado um experimento em que, através de uma modelagem apropriada do perfil espectral do pulso, uma absorção de dois fótons pode ser maximizada além dos limites obtidos por um pulso limitado por Fourier. Esse trabalho é realizado na transição sequencial $5S \rightarrow 5P \rightarrow 5D$ do rubídio e os autores mostram que, ao se removerem determinadas componentes espectrais do pulso, é possível duplicar a taxa de absorção do mesmo, em comparação com pulsos não manipulados espectralmente e com intensidade de pico 40 vezes maior.

Para moldar o perfil espectral do campo é bastante comum a utilização de um compressor de pulsos constituído de um par de grades de difração [43], juntamente com uma máscara de fase e/ou amplitude. Em geral, são utilizados dois tipos de máscaras. Em um deles, são utilizados meios materiais ou fendas para manipular a amplitude e/ou a fase do pulso [44]. No outro tipo, é utilizada uma placa denominada SLM, do inglês "Spatial Light Modulator" [45]. Esta placa é constituída de diversos "pixels", que recebem individualmente uma voltagem pré-determinada para modificar as características físicas que governam a propagação do pulso através da placa e assim é possível formar a função de fase ou amplitude desejada a ser impressa no pulso que se propaga através da mesma. Iremos denominar esse dispositivo experimental, composto pelo compressor de par de grades mais a máscara de amplitude/fase, de sintetizador de Fourier e uma explicação detalhada de seu funcionamento será feita no capítulo 3.

Uma técnica bastante utilizada na manipulação da interação radiação-matéria é o controle temporal coerente. Nesta técnica, pares de pulsos atrasados temporalmente são utilizados para excitar um sistema atômico [25, 33, 37] ou molecular [46, 47]. Os pulsos atrasados no tempo criam vários caminhos quânticos possíveis para a excitação do sistema e a interferência entre esses caminhos está relacionada com o atraso temporal entre os pares de pulsos.

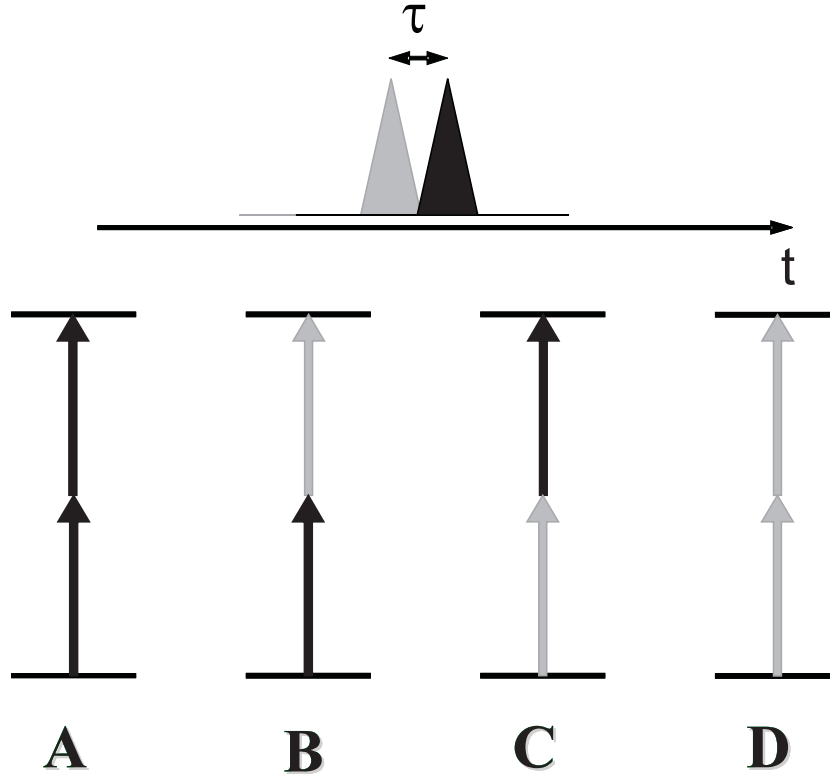


Figura 1.1 Representação dos possíveis caminhos quânticos para a transição de dois fótons com atraso entre os pulsos. A seta preta representa a excitação pelo primeiro pulso a atingir o meio, enquanto a seta em cinza representa a excitação pelo pulso atrasado de τ .

Ao longo de toda esta Tese, iremos trabalhar com transições de dois fótons com pulsos atrasados temporalmente. Devido a isso, vamos detalhar os possíveis caminhos quânticos presentes nesse tipo de transição, bem como as oscilações que acontecem devido à interferência entre esses caminhos. Na figura 1.1, representamos, esquematicamente, os quatro caminhos quânticos que são excitados em uma transição de dois fótons com pulsos atrasados temporalmente. Nesta figura, o pulso que interage primeiro com o meio está representado por um seta preta e a seta cinza representa o pulso atrasado de τ . O caminho quântico A representa a absorção de dois fótons do primeiro pulso; o caminho B representa a absorção de um fóton do primeiro pulso, seguida da absorção de

um fóton do segundo pulso; o caminho C representa a absorção de um fóton do segundo pulso seguida pela absorção de um fóton do primeiro pulso (os caminhos quânticos B e C só são possíveis em uma transição de dois fótons pura, quando os pulsos estão sobrepostos temporalmente); e finalmente o caminho D representa a absorção de dois fótons do segundo pulso.

Quando analisamos o sinal de um processo não linear com resolução interferométrica, no qual está presente a transição de dois fótons, observamos a presença de oscilações em ω_L , a frequência central do laser que excita a transição de dois fótons, e em $2\omega_L$, o dobro dessa frequência. Isto se deve à interferência entre dois caminhos quânticos, indistinguíveis, que conectam o mesmo estado inicial e final na transição. Como ficará claro ao longo deste trabalho, as oscilações em ω_L ocorrem devido à interferência entre os caminhos quânticos A e B, A e C, B e D, e C e D, apresentados na figura 1.1. Já as oscilações em $2\omega_L$ se devem à interferência entre os caminhos A e D. A associação entre as frequências dos padrões interferométrico, ω_L ou $2\omega_L$, e os caminhos quânticos que interferem para originá-las será demonstrada ao longo desta Tese.

Para que dois caminhos quânticos interfiram, podendo assim originar as oscilações, seja em ω_L , seja em $2\omega_L$, eles devem ser indistinguíveis. Isso se deve ao fato das oscilações estarem associadas aos termos de interferência que ocorrem quando tomamos o quadrado da amplitude de probabilidade de uma transição atômica com mais de um caminho quântico possível. Por exemplo, para os caminhos A e B da figura 1.1, podemos escrever a probabilidade de transição entre o nível fundamental e o nível mais excitado como:

$$\begin{aligned} P_{f \rightarrow e} &= |a_{f \rightarrow e}|^2 = |A + B \cdot \exp[-i\omega_L \tau]|^2 \\ &= |A|^2 + |B|^2 + 2\text{Re}\{A \cdot B \cdot \exp[i\omega_L \tau]\} , \end{aligned} \quad (1.16)$$

onde os fatores A e B estão relacionados às probabilidades de transição entre os estados atômicos e serão calculadas nos próximos capítulos desta Tese. Podemos notar que o fato de estarmos trabalhando com caminhos quânticos indistinguíveis, leva ao surgimento de um termo de interferência entre esses caminhos, o último termo da equação (1.16), que oscila com a mesma frequência do laser que excita a transição atômica.

Como citado anteriormente, para que dois caminhos quânticos interfiram, eles precisam ser indistinguíveis. No caso de pulsos atrasados temporalmente podemos identificar o caminho quântico excitado, através do conhecimento da ordem em que os dois pulsos interagem com o sistema atômico. Por exemplo, no caso dos caminhos quânticos A e D da figura 1.1, podemos identificar qual caminho quântico foi excitado, pois o caminho quântico A se deve apenas à absorção de dois fótons do primeiro pulso, enquanto o caminho D, se deve apenas à absorção de dois fótons do segundo pulso de tal forma que podemos identificar qual caminho foi excitado através da separação temporal entre eles. Entretanto, ao interagir com o sistema atômico, a excitação provocada

pelo primeiro ou pelo segundo pulso pode decair em qualquer instante de tempo, de tal forma que a informação sobre a separação temporal dos pulsos é perdida e assim os caminhos quânticos se tornam indistinguíveis.

O controle temporal coerente é muito bem exemplificado no trabalho de Blanchet e colaboradores [33], onde é utilizada uma sequência de dois pulsos ultra rápidos idênticos para excitar a transição de dois fótons entre os níveis 6S e 7D do cézio. Pela primeira vez é feita a distinção entre interferências ópticas, oscilações que ocorrem com a mesma frequência do laser que faz a transição de dois fótons, e interferências puramente quânticas, oscilações que possuem o dobro da frequência desse laser. Ao variarmos o atraso relativo entre os pulsos que excitam o sistema atômico, somos capazes de verificar a mudança do perfil interferométrico. Para valores do atraso menores que a superposição temporal dos dois pulsos, as interferências ópticas dominam o perfil interferométrico, enquanto que para atrasos muito maiores que a superposição entre os pulsos temos apenas a existência das interferências quânticas.

Um exemplo em que temos a manipulação da fase do campo elétrico através da propagação do mesmo em um meio material é o trabalho de Barros e colaboradores [48]. Neste estudo, os autores utilizam uma placa de quartzo sobre a qual é depositado um filme fino para introduzir uma fase externa, no formato de uma função degrau suavizada (função erro), em parte do espectro do pulso. Os autores então utilizam o pulso, cuja fase foi modificada pela função degrau, em conjunto com outro pulso que não sofre manipulação de fase, mas que pode ser atrasado em relação ao primeiro. Os estudos são realizados na transição sequencial $5S \rightarrow 5P \rightarrow 5D$ do rubídio e é observado que é possível a aniquilação de caminhos quânticos acessíveis ao sistema tanto através da manipulação da fase de um dos pulsos, quanto através do atraso entre os pulsos, quando as duas técnicas são utilizadas simultaneamente.

Uma das principais aplicações desta técnica é o desenvolvimento de chaves ópticas ultra-rápidas em semicondutores [49, 50]. Outra área que vem utilizando as técnicas do controle temporal coerente e também do controle ótimo, é a litografia [51]. Neste trabalho, os autores utilizam simultaneamente as duas técnicas para conseguir resoluções litográficas menores que as permitidas pelo limite clássico da difração, dada por $d_c \approx \lambda/NA$, onde λ é o comprimento de onda da radiação e NA é a abertura numérica do aparato experimental [52]. Teoricamente, é mostrado que utilizando-se N transições de um fóton é possível reduzir o limite litográfico para $d_N = d_c/N$ e experimentalmente um aparato é construído para demonstrar esse resultado numa transição de dois fótons, obtendo um fator dois de aumento da resolução litográfica.

Outra forma de se manipular a interação radiação-matéria é através dos estados de polarização dos campos que incidem sobre o meio. Devido às regras de seleção existentes para a polarização macroscópica induzida no meio, aos campos incidentes e ao tensor susceptibilidade não linear, é possível selecionar diferentes caminhos quânticos e assim manipular a interação entre o meio e

os campos. Alguns estudos foram realizados em que o produto final dessa interação é alterado pela manipulação da polarização dos campos que incidem sobre o meio [36, 53]. Posteriormente, foram elaborados moduladores de pulsos que criam estados de polarização nos campos em tempo real. Esses dispositivos são retroalimentados via computador até que a interação atinja o resultado final desejado [54, 42, 55]. No primeiro capítulo desta Tese, iremos utilizar a técnica do controle temporal coerente para analisar um sinal de mistura de quatro ondas, e além disso iremos utilizar o controle de polarização para aniquilar alguns dos caminhos quânticos acessíveis ao sistema.

1.4 Efeitos Acumulativos

A interação entre a matéria e uma luz pulsada como, por exemplo, lasers de picosegundos e femtosegundos, leva a um outro tipo de efeito, o de acúmulo de excitação no meio. Esse efeito surge porque, em geral, os tempos de relaxação das populações e coerências do sistema atômico são maiores que o período de repetição do laser, de modo que o sistema nunca relaxa completamente entre dois pulsos consecutivos do laser. Dizemos então, que o átomo não interage apenas com um único pulso emitido pelo laser, mas com uma sequência deles, denominada de trem de pulsos.

O estudo de processos acumulativos começou na década de 70, quando Teets e colaboradores [56] descreveram as suas características mais básicas e mostraram a possibilidade de utilizar trens de pulsos para realizar espectroscopia em que as larguras de linha observadas são menores que as permitidas pelo limite inferior da transformada de Fourier do campo que forma um pulso individual. No domínio das frequências, a explicação para esse efeito vem do fato que, quando o tempo de relaxação da coerência é maior que o período de repetição dos pulsos, os átomos interagem com o pente de frequências do trem de pulsos, e não com o espectro de um pulso individual. A largura espectral de um dos dentes do pente é bem menor que a largura espectral de cada pulso, o que leva à possibilidade de realizar espectroscopia com resolução melhor que a determinada por um único pulso.

A partir destas idéias, foram então montados experimentos visando à obtenção de um sinal livre de efeito Doppler, a partir da ação do pente de frequências. Um sinal sem o alargamento Doppler pode ser obtido sempre que um dos modos do pente de frequências do laser fica ressonante com a transição atômica. Esse princípio básico foi utilizado em diversas técnicas experimentais, tais como: espectroscopia de dois fótons livre do efeito Doppler [56], espectroscopia de polarização em vapores atômicos [57], absorção saturada em vapores atômicos [58], absorção linear num feixe atômico [59].

Posteriormente, foram desenvolvidas teorias para explicar a acumulação coerente em sistemas de dois níveis [60, 61]. Em particular, Bradley [60] mostra pela primeira vez a impressão do pente

de frequências do laser dentro do perfil Doppler da transição atômica de um sistema de dois níveis. O autor então aplica a teoria desenvolvida para estudar a linha D_2 do sódio e obtém uma ótima concordância entre experimento e teoria.

Felinto e colaboradores [62] mostram pela primeira vez o processo de acumulação de excitação do meio em um sistema de três níveis com ressonância intermediária. Neste trabalho, os autores desenvolvem uma teoria capaz de levar em conta os processos de acumulação da excitação do meio atômico, tanto na população dos níveis excitados quanto nas coerências das transições atômicas e aplicam a teoria para a transição sequencial $5S \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 5D$ do átomo de rubídio. Também fica demonstrada a possibilidade de se realizar o controle temporal coerente em transições sequenciais e é analisada a resposta do sistema levando em conta efeitos de propagação que modificam o espectro do pulso. Em particular, iremos analisar a modificação do formato de um pulso que se propaga em um vapor atômico denso na próxima seção.

1.5 Teoria de Propagação Linear

Uma teoria utilizada para explicar os efeitos de propagação de pulsos em meios atômicos densos, compostos de átomos de dois níveis, é conhecida há várias décadas [63]. Um guia importante para os muitos efeitos de distorção que ocorrem nesta situação é o teorema da área [63, 64]. A área de um pulso é definida por:

$$\text{Área} = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\mu E(t, z)}{\hbar} dt, \quad (1.17)$$

onde μ é o momento de dipolo elétrico da transição atômica, cujo pulso que se propaga é ressonante e $E(t, z)$ é o campo elétrico do pulso após ter se propagado uma distância z dentro da amostra.

O teorema da área estabelece que, durante a propagação, o pulso tem sua área modificada até que atinge uma área igual a $2n\pi$, onde n é um número inteiro. O valor específico de n para um determinado pulso depende de sua área inicial e assim de sua intensidade inicial. Pulsos fracos, com área inicial menor que π (que correspondem aos pulsos utilizados ao longo desta Tese), evoluem para uma área de 0π . Essa evolução tem dois limites principais, dependendo da razão entre a largura espectral do laser $\Delta\omega_L$ e a largura de linha da transição atômica $\Delta\omega_a$. Quando $\Delta\omega_L$ é menor que $\Delta\omega_a$, temos que a evolução para um pulso 0π é acompanhada da absorção de toda a energia do pulso pelo meio. Este é o caso em que temos o decaimento exponencial da energia do pulso em função do comprimento de penetração no meio, i. e., o limite clássico conhecido como a lei de Beer.

No caso em que a largura espectral do pulso é muito maior que a largura de linha da transição atômica, o pulso passa apenas por variações pequenas de energia, devido à absorção de uma pequena parte do seu perfil espectral ressonante com a transição atômica. O pulso pode se propagar ao longo de toda a amostra, não apresentando o decaimento exponencial na sua energia. Agora o pulso desenvolve um comportamento oscilatório na amplitude do campo, sendo composto de partes positivas e negativas, que quando se somam levam ao resultado total de 0π . Após a passagem de um pulso 0π , não temos excitação na transição de um fóton, pois devido ao seu comportamento oscilatório, a parte positiva do pulso leva à transição, enquanto que a parte negativa leva ao processo de emissão estimulada. Isto resulta num comportamento oscilatório do processo de excitação que ao final da passagem do pulso o torna nulo.

Uma outra forma de se interpretar a ausência de excitação da população do nível mais excitado, após a passagem de um pulso 0π , é feita utilizando-se o domínio espectral. Um pulso de duração temporal da mesma ordem de grandeza ou menor que o tempo de relaxação da população atômica terá uma largura de banda espectral que é comparável ou maior que a largura de linha espectral do meio em que o pulso está se propagando. Com a evolução da propagação deste pulso, o meio absorve apenas as componentes espectrais do pulso que estão em ressonância com a transição atômica. Desta forma, o espectro do pulso desenvolve um "buraco" e pode ser comparado à superposição entre dois espectros de pulsos com frequências centrais distintas. Como nenhum dos pulsos presentes na superposição possui as frequências de ressonância da transição atômica, então depois da evolução do pulso inicial até o desenvolvimento do pulso 0π , essa transição deixa de ser excitada.

Em 1970, Crisp [65] apresentou uma teoria que descreve a propagação de pulsos de área pequena em meios atômicos densos. De acordo com a teoria proposta por Crisp, após propagar-se por um meio ressonante, a envoltória de um pulso de área pequena pode ser descrita por:

$$\varepsilon(z, t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{\varepsilon}(\omega) \exp \left[-i\omega \left(t - \frac{nz}{c} \right) - \alpha A(\omega)z \right] d\omega, \quad (1.18)$$

onde n é o índice de refração do meio, considerado constante sobre todo o espectro do pulso, $A(\omega)$ é a forma de linha da transição atômica e $\alpha = 2\pi N \mu^2 \omega_L / \hbar n c$, sendo N a densidade atômica e $\tilde{\varepsilon}(\omega)$ é a transformada de Fourier da envoltória do campo na entrada do meio:

$$\tilde{\varepsilon}(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} \varepsilon(0, t) e^{i\omega t} dt. \quad (1.19)$$

Considerando apenas o efeito Doppler como a origem do alargamento não homogêneo na função forma de linha da transição atômica, podemos escrevê-la como:

$$A(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\Gamma_G} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp[-(\delta_0 - \delta)^2/2\Gamma_G^2]}{\frac{1}{T} - i(\delta + \omega)} d\delta, \quad (1.20)$$

onde δ_0 é a dessintonia $\omega_a - \omega_L$ entre a frequência da transição atômica e a frequência do laser, T é o tempo de vida homogêneo da coerência, Γ_G é a largura da função forma de linha da transição atômica e δ é a dessintonia extra vinda do alargamento não-homogêneo. O coeficiente de absorção do meio é dado por $\alpha_0 = \alpha/\sqrt{2\pi}\Gamma_G$.

A comparação desta teoria com experimentos sempre resultou num acordo excelente [66, 67, 68]. No primeiro trabalho, Rothenberg e colaboradores [66] fazem um estudo experimental e teórico pioneiro para a propagação de um pulso fraco em um vapor atômico, o que leva à formação de um pulso 0π . Os resultados obtidos nesse trabalho mostram a principal característica deste tipo de pulso, o comportamento oscilatório de sua envoltória. O meio utilizado foi o vapor de sódio, cuja densidade podia ser variada. Em particular, foi mostrado que devido ao processo de excitação e de-excitação do meio, criado pelo comportamento oscilatório da envoltória do pulso, podemos atingir um limite em que o vapor atômico fica transparente ao pulso 0π que se propaga através dele.

Kallmann e colaboradores [67] generalizam a teoria de propagação de pulsos 0π para situações em que os pulsos propagados podem ser ressonantes com mais de dois níveis. O estudo mostrou que a forma que o pulso adquire durante a sua propagação pelo meio tem dois limites característicos: o primeiro limite é dominado pela estrutura fina do meio em questão, i. e., pelos diversos sub-níveis que são excitados simultaneamente pelo pulso. Já o segundo regime mostra as oscilações na envoltória do pulso, que é a característica principal da propagação de um pulso 0π . A distinção entre os dois regimes de propagação do pulso se dá através da densidade atômica do meio. Para densidades baixas e intermediárias, a estrutura dos níveis hiperfinos se faz sentir na forma que a envoltória do pulso adquire durante a propagação e assim o pulso não evolui até atingir a condição de pulso 0π . Já para o caso de altas densidades, a região do espectro que é completamente absorvida na propagação engloba todas as linhas hiperfinas. Por isso, a estrutura desses subníveis não é mais importante e o sistema se comporta como se tivesse apenas dois níveis.

No terceiro trabalho [68], é estudada uma transição seqüencial entre os níveis $5S \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 5D$ do átomo de rubídio. A população do nível $5D$, é monitorada através da fluorescência entre os níveis $6P$ e $5S$, em função do atraso entre os pares de pulsos, que excitam a transição seqüencial. Entre os diversos efeitos observados, os autores utilizam a teoria de propagação linear para explicar o surgimento de batimentos, na escala de picosegundos, no sinal de interesse. Isto é possível, pois o momento de dipolo elétrico da primeira transição, $5S \rightarrow 5P_{3/2}$, é muito maior que o momento de dipolo elétrico da segunda transição, $5P_{3/2} \rightarrow 5D$. Além disso, o campo elétrico utilizado no trabalho em questão é de baixa intensidade, fazendo com que mais átomos realizem a primeira

transição, em comparação com a segunda, pois para a excitação da segunda transição é necessária a absorção de dois fótons. Esses dois fatores fazem com que a polarização macroscópica relativa à primeira transição exerça uma influência muito maior sobre o campo que a pequena polarização excitada na segunda transição. O pulso se propaga então como se estivesse interagindo apenas com a primeira transição, e a teoria de propagação linear pode ser utilizada.

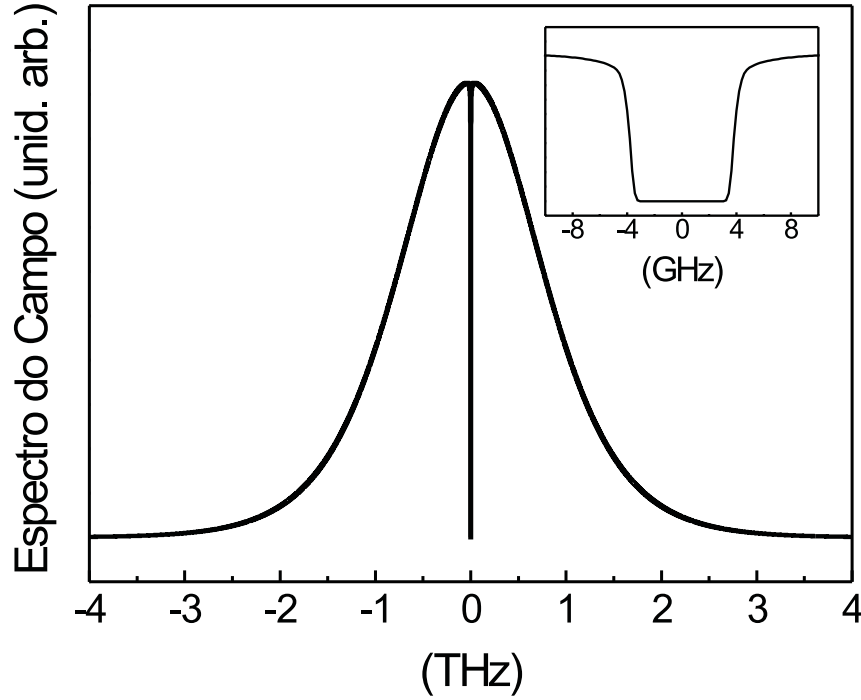


Figura 1.2 Espectro teórico, $|\tilde{\mathcal{E}}(\nu)|^2$, da envoltória do campo após a propagação por 5,0 cm da amostra. Consideramos $\alpha_0 z = 48$. No quadro interno, temos uma ampliação da região em torno da origem.

Para frisar mais o aspecto da teoria de propagação linear, que afirma que as componentes de frequência do pulso que fariam a transição entre os níveis 5S e 5P são completamente absorvidas durante a propagação do pulso no vapor de rubídio, plotamos na figura 1.2, o espectro teórico do pulso propagado, utilizando as equações (1.17) - (1.19). Para obtermos essa figura, consideramos $\delta_0 = 0$, $T = 53,4$ ns, $\Gamma_G/2\pi = 1,0$ GHz e $z = 5,0$ cm. O valor de T é aquele associado à transição $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2}$ do rubídio, para o caso de um alargamento homogêneo puramente radiativo. O valor de Γ_G representa um alargamento efetivo da ordem das contribuições dos vários níveis hiperfinos participantes da transição, pois estamos no regime de altas densidades, de modo que a estrutura hiperfina não altera o perfil do pulso que se propaga. O campo inicial é dado

por $\varepsilon(t) = \varepsilon_0 \text{sech}(1,763t/T_P)$, com $T_P = 180$ fs. O valor da densidade que utilizamos em nossa figura foi igual a $N = 2,1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$, o que equivale a um produto do coeficiente de absorção da amostra pela distância percorrida na mesma de $\alpha_0 z = 48$, que é o nosso parâmetro de ajuste para a densidade.

No quadro principal da figura 1.2, vemos o espectro total do pulso, com sua parte central consumida devido à propagação. No quadro interno, temos uma ampliação em torno da frequência central do pulso e podemos verificar que o mínimo em frequência se estende por mais de 6,0 GHz, o que é suficiente para englobar toda a estrutura hiperfina da transição. Dessa forma, podemos verificar que a propagação do pulso pelo vapor de rubídio leva à criação de um "buraco" no perfil espectral do pulso, exatamente na frequência da transição atômica entre os níveis $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2}$ e, assim, não teremos transferência de população entre esses níveis.

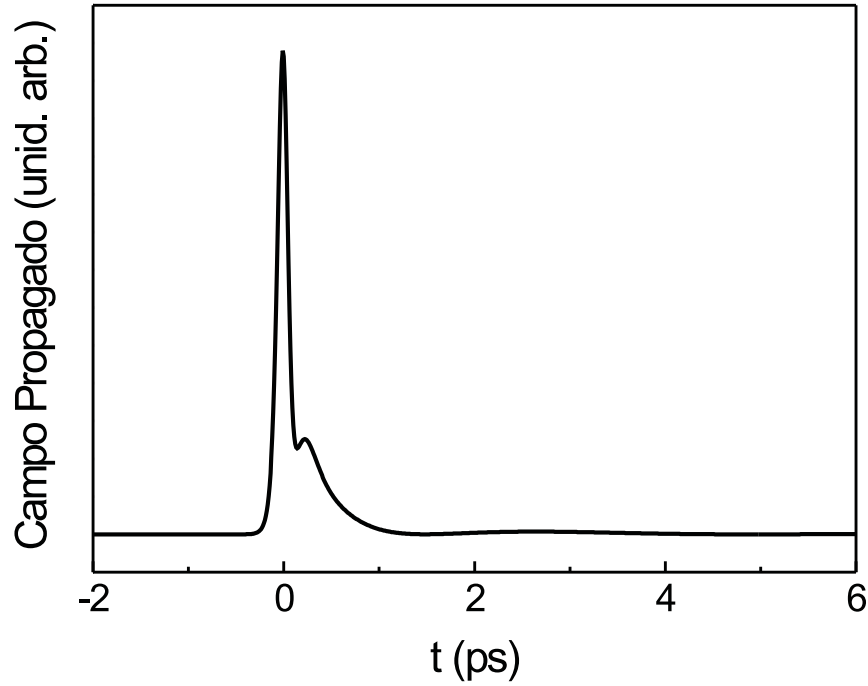


Figura 1.3 Campo propagado, $|\tilde{\varepsilon}(t)|^2$, após percorrer 5,0 cm no vapor atômico. Os parâmetros, utilizados na obtenção desta figura, foram os mesmos que os da figura 1.2.

Na figura 1.3, apresentamos o campo propagado após uma distância de 5,0 cm no interior do vapor de rubídio. Os parâmetros utilizados na obtenção dessa figura foram os mesmos que os

utilizados na figura 1.2. Podemos notar as oscilações na envoltória do campo, que surgem devido à absorção de parte das suas componentes espectrais, como mostrado na figura 1.2.

Em todos os trabalhos citados anteriormente, os pulsos utilizados nos estudos de propagação linear eram pulsos ultra rápidos. Entretanto, Bouchene e colaboradores [69] demonstram, teórica e experimentalmente, a formação de um pulso 0π com luz incoerente. Os autores realizam um experimento de correlação cruzada com pulsos de um laser de corante, com duração temporal de 8,0 ns e tempo de coerência de 30 ps, em que um dos pulsos se propaga através de um vapor de estrôncio opticamente denso. É verificado, então, que o perfil temporal da correlação cruzada é idêntico ao obtido se o experimento fosse realizado com pulsos de luz coerentes de duração temporal de 30 ps. Mais uma vez, fica demonstrado que a resolução temporal de um experimento, no qual se utiliza luz incoerente, é determinada pelo tempo de coerência dos pulsos e não pela sua duração temporal.

1.6 Propagação de Campos Eletromagnéticos em Meios Materiais

No capítulo 3 desta Tese, iremos utilizar a manipulação da fase de um campo eletromagnético em conjunto com o controle temporal coerente para realizar o controle de uma transição de dois fótons. A manipulação da fase do campo elétrico é obtida com o auxílio de um sintetizador de Fourier, cujo princípio físico básico é que o campo eletromagnético, ao propagar-se através de um meio material, adquire uma fase extra que tem características controladas pelo meio. Para entendermos melhor como é possível manipular a fase do campo através de sua propagação, vamos desenvolver uma breve explicação de como a fase de um pulso se altera quando o mesmo se propaga por um meio material.

O campo elétrico de um pulso radiativo pode ser descrito de forma geral como:

$$E(t) = \varepsilon(t)e^{-i[\omega_L t + \phi(t)]}. \quad (1.21)$$

O termo $\varepsilon(t)$ representa a envoltória do pulso, que pode assumir diversos formatos, e. g., Gaussianas, Lorentzianas, secantes hiperbólicas, entre outros. Vamos considerar, por simplicidade, que no nosso caso temos o formato Gaussiano, de modo que a sua envoltória na entrada do meio ($z=0$), pode ser escrita como:

$$\varepsilon(t) = \varepsilon_0 e^{-at^2}, \quad (1.22)$$

onde $a = 2\ln(2)/\tau_p^2$ e τ_p é a largura a meia altura da intensidade do pulso. Assim, a expressão para o campo total do pulso fica:

$$E(t) = \varepsilon_0 e^{-at^2} e^{-i[\omega_L t + \phi(t)]} . \quad (1.23)$$

Pela equação (1.21), vemos que a parte oscilatória do campo é dada por: $\phi_T(t) = \omega_L t + \phi(t)$. O primeiro termo é responsável pela oscilação na frequência do campo ω_L e depende linearmente com o tempo. Já o segundo termo, denominado de fase do campo elétrico, pode depender do tempo de várias formas. Vamos considerar que a fase tem uma dependência quadrática com o tempo, i. e., $\phi(t) = bt^2$.

A frequência instantânea do campo é definida por [70]:

$$\omega_I(t) \equiv \frac{d\phi_T(t)}{dt} . \quad (1.24)$$

No nosso caso $\phi_T(t) = \omega_L t + bt^2$, utilizando a equação (1.24) a frequência instantânea fica:

$$\omega_I(t) = \omega_L + 2bt , \quad (1.25)$$

ou seja, a dependência quadrática da fase do campo elétrico com o tempo leva a uma dependência linear da frequência instantânea.

Essa dependência linear com o tempo, na frequência instantânea, também é conhecida como o "chirp" do pulso. Vamos considerar que nos pulsos emitidos pelo laser de Ti:safira temos $b = 0$, i. e., os pulsos não possuem "chirp". De modo que seu campo elétrico será dado por:

$$E(t) = \varepsilon_0 \exp \left[-\frac{2 \ln(2) t^2}{\tau_p^2} \right] e^{-i\omega_L t} . \quad (1.26)$$

Como mencionado na seção 1.2, podemos relacionar o campo elétrico no domínio temporal com o campo elétrico no domínio espectral, através de sua transformada de Fourier (equações (1.15)):

$$\begin{aligned} E(t) &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{E}(\omega) e^{-i\omega t} d\omega , \\ \tilde{E}(\omega) &= \int_{-\infty}^{+\infty} E(t) e^{i\omega t} dt . \end{aligned} \quad (1.27)$$

Sendo a transformada de Fourier de uma Gaussiana também uma Gaussiana, podemos utilizar a equação (1.26) para obter:

$$\tilde{E}(\omega) = \tilde{\epsilon}_0 \exp \left[-2 \ln(2) \left(\frac{\omega - \omega_L}{\Delta\omega} \right)^2 \right], \quad (1.28)$$

onde $\Delta\omega$ é a largura de banda espectral do pulso e sua unidade é o radiano por segundo.

Quando um pulso Gaussiano se propaga por um meio material depois de uma certa distância z , ele adquire um termo exponencial, dado pela constante de propagação $\beta(\omega)$ da seguinte forma [9, 65]:

$$\tilde{E}(\omega, z) = \tilde{E}(\omega, z=0) e^{i\beta(\omega)z} = \tilde{\epsilon}_0 \exp \left[-2 \ln(2) \left(\frac{\omega - \omega_L}{\Delta\omega} \right)^2 \right] e^{i\beta(\omega)z}. \quad (1.29)$$

Podemos expandir a constante de propagação $\beta(\omega)$ numa série de Taylor em torno da frequência central do laser:

$$\beta(\omega) = \beta(\omega_L) + (\omega - \omega_L) \left[\frac{d\beta(\omega)}{d\omega} \right]_{\omega=\omega_L} + \frac{(\omega - \omega_L)^2}{2} \left[\frac{d^2\beta(\omega)}{d\omega^2} \right]_{\omega=\omega_L} + \dots \quad (1.30)$$

O primeiro termo desta equação determina o atraso de fase, dado por:

$$\Delta t_\phi = \frac{\beta(\omega_L)z}{\omega_L}, \quad (1.31)$$

que está associado à velocidade de fase da onda:

$$v_\phi = \frac{\omega_L}{\beta(\omega_L)}. \quad (1.32)$$

O segundo termo está relacionado ao atraso de grupo:

$$\Delta t_g(\omega) = \beta'(\omega)z, \quad (1.33)$$

e à velocidade de grupo da onda nesse meio:

$$v_g(\omega) = \frac{1}{\beta'(\omega_L)} = \frac{d\omega}{d\beta}. \quad (1.34)$$

Com esta definição para a velocidade de grupo, pode-se perceber que a segunda derivada da constante de propagação (terceiro termo da equação (1.30)), está relacionada à dispersão da velocidade de grupo, $DVG \equiv dv_g/d\omega$, da seguinte forma:

$$\frac{d^2\beta}{d^2\omega} = \frac{d}{d\omega} \left(\frac{1}{v_g(\omega)} \right) = \frac{-1}{v_g^2(\omega)} DVG. \quad (1.35)$$

Outra forma de escrever a velocidade de fase, utilizando-se o índice de refração do meio, é dada por:

$$v_\phi = \frac{c}{n_r(\omega)}, \quad (1.36)$$

onde $n_r(\omega)$ é a parte real do índice de refração do meio e c é a velocidade da luz no vácuo. Comparando as equações (1.32) e (1.36), podemos escrever:

$$\beta(\omega) = \frac{n_r(\omega)}{c} \omega. \quad (1.37)$$

Analisando as equações (1.29) e (1.37) podemos notar que ao se propagar um campo elétrico em um meio material estamos introduzindo uma fase extra nesse campo. Esta fase pode ser moldada adequadamente, uma vez que se conheça a parte real do índice de refração do meio, $n_r(\omega)$. A parte imaginária do índice de refração, $n_i(\omega)$, está associada à absorção do campo pelo meio e não será utilizada na manipulação da fase do campo elétrico. Podemos então concluir que a passagem de um pulso por um meio dispersivo constitui uma maneira simples de introduzir uma fase extra no campo elétrico que o descreve, e esta será a forma utilizada no estudo do capítulo 3.

1.7 Descrição da Tese

No Capítulo 2 desta Tese, utilizamos luz incoerente e controle de polarização para investigar o sinal de mistura de quatro ondas resolvida no tempo de um sistema atômico. O experimento é realizado em vapor de rubídio e o sinal gerado está associado a um processo em que $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$, onde ω_1 e ω_2 são frequências provenientes de um laser com tempos de coerência da ordem de picosegundos e induzem uma transição de dois fótons sem ressonância intermediária, ω_3 também provém do mesmo laser e induz uma emissão estimulada, e ω_4 é a frequência do sinal de interesse. Observamos, então, batimentos na escala de fentosegundos no sinal de mistura de quatro ondas gerado, quando variamos o atraso entre os pulsos que realizam a transição de dois fótons entre os níveis 5S e 16D, e 5S e 18S. Através da dependência desse sinal com a polarização dos campos incidentes, podemos selecionar quais caminhos quânticos vão contribuir para o sinal. Assim, podemos aniquilar os caminhos quânticos que levam a oscilações que têm a mesma frequência do campo que induz a transição de dois fótons (oscilações ópticas) e observamos apenas oscilações que têm o dobro dessa frequência (oscilações quânticas).

No Capítulo 3, combinamos as técnicas de modulação de fase do campo óptico com a de controle temporal coerente. Utilizamos dois pulsos para excitar a transição de dois fótons pura $5S \rightarrow 7S$ do rubídio. Um dos pulsos tem sua fase manipulada através de um sintetizador de Fourier, e o outro pulso, que provém diretamente do laser, passa através de uma linha de atraso. Com essa combinação de pulsos, mostramos que para uma determinada função aplicada à fase de um dos pulsos, no nosso caso uma função degrau, é possível encontrar um determinado atraso τ , associado ao outro pulso, para o qual rotas quânticas específicas do processo de absorção de dois fótons são aniquiladas. Em particular, obtemos uma situação em que as oscilações ópticas são destruídas e observamos apenas oscilações quânticas.

O Capítulo 4 está dividido em duas partes. A primeira consiste na análise e caracterização dos sinais provenientes da fluorescência e da mistura paramétrica de quatro ondas de um mesmo sistema atômico excitado por um laser de femtosegundos. A caracterização é feita em função da potência do laser incidente e da polarização dos campos que excitam a transição de dois fótons e permite distinguir entre as contribuições provenientes da fluorescência, das contribuições relativas ao processo de mistura paramétrica de quatro ondas [71, 72, 73].

Na segunda parte do Capítulo 4, iremos analisar o sinal de mistura de quatro ondas paramétrica resolvido no tempo. Assim como no Capítulo 2, esse sinal está associado a um processo em que as frequências dos campos envolvidos nas transições atômicas de interesse são tais que $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$, onde $\omega_1 + \omega_2$ induzem uma transição de dois fótons, mas desta vez a estrutura de níveis é tal que temos uma ressonância intermediária. Além disso, o campo de frequência ω_3 também é gerado pelo meio, diferentemente do estudo realizado no Capítulo 2, em que esse campo era proveniente de um outro pulso que interagiu com o sistema. Por estarmos tratando de uma transição sequencial, na absorção de dois fótons, vamos observar efeitos de propagação no sinal de mistura de quatro ondas resolvido no tempo. Além disso, como o laser utilizado para excitar a transição de dois fótons possui uma taxa de repetição menor que os tempos de relaxação das populações e coerências dos estados de interesse também iremos observar efeitos de acumulação no meio em estudo.

No Capítulo 5, apresentamos as nossas conclusões sobre os diversos estudos realizados ao longo desta Tese. Revisitamos nossos principais resultados e indicamos alguns desenvolvimentos futuros, assim como perspectivas para a continuação desses trabalhos.

Mistura de Quatro Ondas com Luz Incoerente

2.1 Introdução

Neste capítulo, vamos utilizar luz incoerente e controle de polarização para investigar a resposta de um sistema atômico sujeito a um processo de Mistura de Quatro Ondas (MQO), resolvida no tempo. O experimento é realizado em vapor de rubídio e o sinal gerado é analisado na frequência $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$, onde $\omega_1 + \omega_2$ excita uma transição de dois fótons. Os feixes de frequências ω_1 e ω_2 são provenientes de uma fonte de luz pulsada e de banda larga (luz incoerente), que tem um tempo de coerência, τ_c , da ordem de alguns picosegundos, sendo assim muito menor que o tempo de duração dos pulsos (da ordem de nanosegundos).

A intensidade do sinal gerado é analisada em função do atraso temporal entre os pulsos incoerentes e apresenta batimentos na escala de fentosegundos, associados às transições atômicas. Através da dependência do sinal de MQO com a polarização dos campos que incidem no sistema atômico, somos capazes de selecionar os diferentes caminhos quânticos que contribuem para o sinal, ver figura 1.1. Podemos, então, distinguir entre dois tipos de interferências: as interferências ópticas (oscilações na mesma frequência da luz que excita a transição de dois fótons) que ocorrem quando os pulsos se sobrepõem temporalmente, dentro do tempo de coerência da luz incoerente, e as interferências quânticas (oscilações no dobro da frequência da luz que excita a transição de dois fótons), que podem ocorrer para valores do atraso entre os pares de pulsos menores que os tempos de relaxação do sistema atômico, da ordem de centenas de nanosegundos, no caso em estudo.

A figura 2.1 mostra, esquematicamente e fora de escala, os níveis de energia do átomo de rubídio, relevantes em nosso experimento. Nela, são apresentados o nível fundamental, 5S, os níveis que são simultaneamente excitados, a partir da transição de dois fótons, 16D e 18S, e o nível ressonante por três fótons, 6P_{3/2}. Além disso, também estão indicados os comprimentos de onda centrais dos lasers que fazem a transição de dois fótons, correspondendo às frequências ω_1 e ω_2 , do laser que estimula a transição dos níveis 16D e 18S, para o nível 6P_{3/2}, que corresponde à frequência ω_3 e o comprimento de onda do sinal gerado na frequência ω_4 .

Na seção 2.1, iremos apresentar e discutir os resultados experimentais obtidos e o aparato uti-

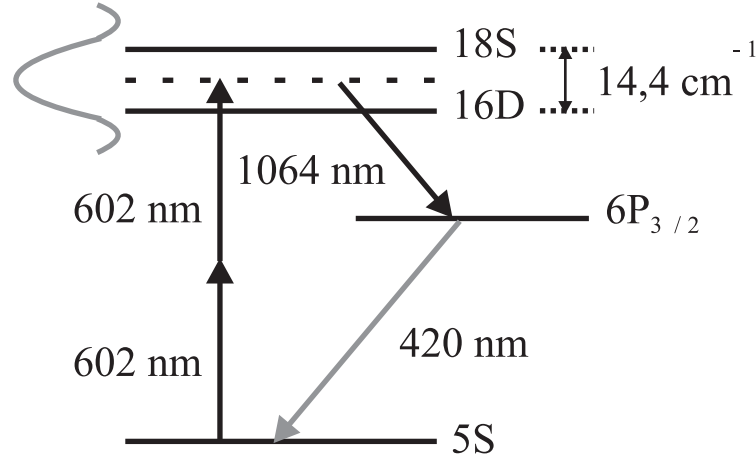


Figura 2.1 Estados do átomo de rubídio relevantes no processo de Mistura de Quatro Ondas (MQO) e os comprimentos de onda dos campos envolvidos. Também estão indicados o fato de estarmos trabalhando com um laser cuja largura de banda é suficiente para excitar simultaneamente os níveis 16D e 18S, a separação de energia entre esses níveis, os comprimentos de onda dos lasers utilizados e da emissão coletada.

lizado. Vamos apresentar medidas realizadas sem o atraso temporal entre os pulsos que excitam a transição de dois fótons. Esse tipo de medida deixa claro o fato de estarmos trabalhando com um laser cuja largura de banda é capaz de excitar simultaneamente os níveis 16D e 18S. Nessa mesma medida é possível observar a ressonância por três fótons, com o nível $6P_{3/2}$. Outro conjunto de medidas mostra a dependência do sinal de MQO, com o atraso temporal entre os pulsos, responsáveis pela transição de dois fótons. Utilizaremos duas escalas temporais. Em uma delas, iremos observar oscilações interferométricas, i. e., oscilações com frequências da mesma ordem de grandeza que a frequência do laser que excita a transição de dois fótons e analisamos o comportamento destas oscilações quando variamos a polarização dos três campos que incidem sobre o sistema atômico. Na outra escala, não temos resolução temporal suficiente para observar as oscilações interferométricas e assim observamos apenas a média sobre um período óptico, do sinal de MQO resolvido no tempo.

Os resultados experimentais são analisados utilizando a teoria desenvolvida na dissertação de mestrado do autor [74]. Como fizemos todo o desenvolvimento teórico na dissertação, iremos apenas fazer uso dos principais resultados, sem a preocupação de descrever todos os detalhes envolvidos nos cálculos. Iremos mostrar que caminhos quânticos contribuem para cada uma das oscilações observadas, assim como em que regiões do atraso entre os pulsos elas podem ocorrer. Também mostramos como, a partir do controle da polarização dos campos incidentes, é possível selecionar os diferentes caminhos quânticos. Em particular, discutimos como é possível aniquilar os caminhos que levam à oscilação em ω_L e assim explicar os resultados observados.

Figura 2.2 Aparato experimental utilizado nos experimentos de controle temporal coerente na MQO utilizando luz incoerente.

Os pares de pulsos são obtidos pela passagem deste feixe por um interferômetro do tipo Mach-Zender, no qual um dos braços tem seu comprimento fixo, enquanto que o comprimento do outro braço, l , pode ser variado por uma linha de atraso. Na saída do interferômetro, os pulsos, temporalmente atrasados, têm polarizações perpendiculares e ambos contêm as frequências ω_1 e ω_2 , necessárias para o processo de MQO. Podemos utilizar um polarizador, após o interferômetro, para que os pulsos tenham polarizações paralelas. O terceiro feixe, utilizado para estimular a transição entre os níveis 16D e 18S de volta ao nível $6P_{3/2}$, corresponde ao harmônico fundamental do laser de Nd: YAG e será denominado de E_{IR} . Este feixe contém a frequência ω_3 , de modo que a conservação da energia no processo de MQO está associada a processos de geração de uma quarta onda cuja frequência é dada por: $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$.

Os três feixes se sobrepõem espacialmente, numa configuração colinear, e são focalizados no centro de uma célula selada contendo vapor de rubídio. A célula tem comprimento de 5.0 cm e é aquecida até uma temperatura de, aproximadamente, 180 °C, correspondendo a uma densidade atômica de $\approx 3,72 \times 10^{14}$ átomos/cm³. O sinal gerado na frequência ω_4 tem comprimento de onda igual a 420 nm e é analisado por um espectrômetro e detectado por uma fotomultiplicadora (PMT). Antes da entrada do espectrômetro, temos um polarizador, utilizado como um analisador, para selecionarmos a direção da polarização do campo detectado.

A figura 2.3 apresenta o espectro de emissão do sinal de MQO, quando apenas um dos feixes da linha de atraso é utilizado, o que corresponde a um atraso nulo entre os pulsos que excitam a transição de dois fótons e todos os pulsos possuem polarizações paralelas. Neste caso, o sinal é analisado pelo espectrômetro, i. e., realizamos uma varredura na frequência de detecção do espectrômetro, para uma frequência fixa do laser de corante. Os três picos que aparecem podem ser entendidos se lembrarmos que a largura de banda do laser de corante é da ordem de 18 cm^{-1} , maior que a separação de energia entre os níveis 16D e 18S, que é igual a $14,4 \text{ cm}^{-1}$ [76]. O processo de MQO corresponde à absorção de dois fótons do laser de corante, de frequências ω_1 e ω_2 , seguido pela emissão de um fóton de frequência ω_3 e pela emissão de um fóton com comprimento de onda $\lambda_4 \approx 420 \text{ nm}$. O sinal, então, apresenta um máximo sempre que $\omega_1 + \omega_2$ for ressonante com uma das transições atômicas para os níveis de Rydberg 16D ou 18S (ressonâncias por dois fótons). O terceiro máximo do sinal, localizado entre as ressonâncias por dois fótons, acontece quando $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$ for igual a frequência da transição atômica entre os níveis $6P_{3/2}$ e o nível fundamental 5S (ressonância por três fótons). Vale lembrar que todas essas ressonâncias atômicas têm pequena separação espectral, sendo a frequência da transição entre os níveis 5S e 16D, $\omega_{5S-16D} = 33.180,03 \text{ cm}^{-1}$, a frequência de transição entre os níveis 5S e 18S, $\omega_{5S-18S} = 33.194,44 \text{ cm}^{-1}$ e a frequência de ressonância por três fótons, $\omega_3 + \omega_{5S-6P_{3/2}} = 33.191,10 \text{ cm}^{-1}$, de modo que a largura de banda do laser de corante é capaz de excitá-las simultaneamente. Para obtermos o espectro da figura 2.3, a frequência central do laser de corante foi sintonizada em $\omega_{5S-18S} - 2\omega_L = 1,2 \text{ cm}^{-1}$, de forma a compensarmos as diferentes probabilidades da transição de dois fótons entre o nível

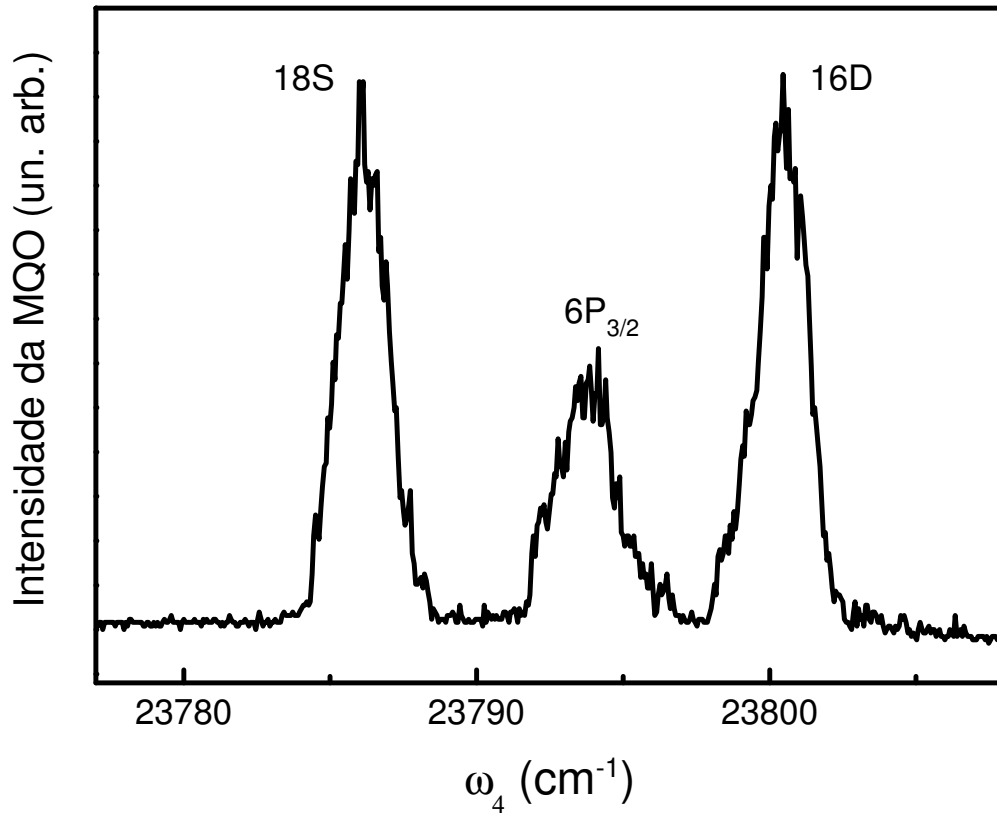


Figura 2.3 Espectro de emissão da MQO para o comprimento de onda central do laser de corante igual a 602,5 nm. A figura mostra as três ressonâncias atômicas englobadas pela largura de linha do laser de corante.

fundamental e os níveis 16D e 18S e obtermos os dois picos com, aproximadamente, a mesma intensidade.

A figura 2.4 apresenta a variação do sinal de MQO em função do atraso entre os pulsos, τ , para uma varredura rápida, da ordem de 8,0 ps, sem resolução interferométrica no atraso entre os pulsos. Nesta medida, o laser de corante tem sua frequência fixa de tal forma a excitar apenas o nível 16D e o espectrômetro está sintonizado na frequência de emissão da MQO, ω_4 . Para obtermos esse resultado, os campos atrasados no tempo possuem polarizações perpendiculares, ou seja, $E(t - \tau) \perp E(t)$, e o campo gerado, E_4 , tem polarização perpendicular ao campo E_{IR} . A curva consiste, simplesmente, de um pico na origem dos atrasos, superposto a um patamar constante. Note que,

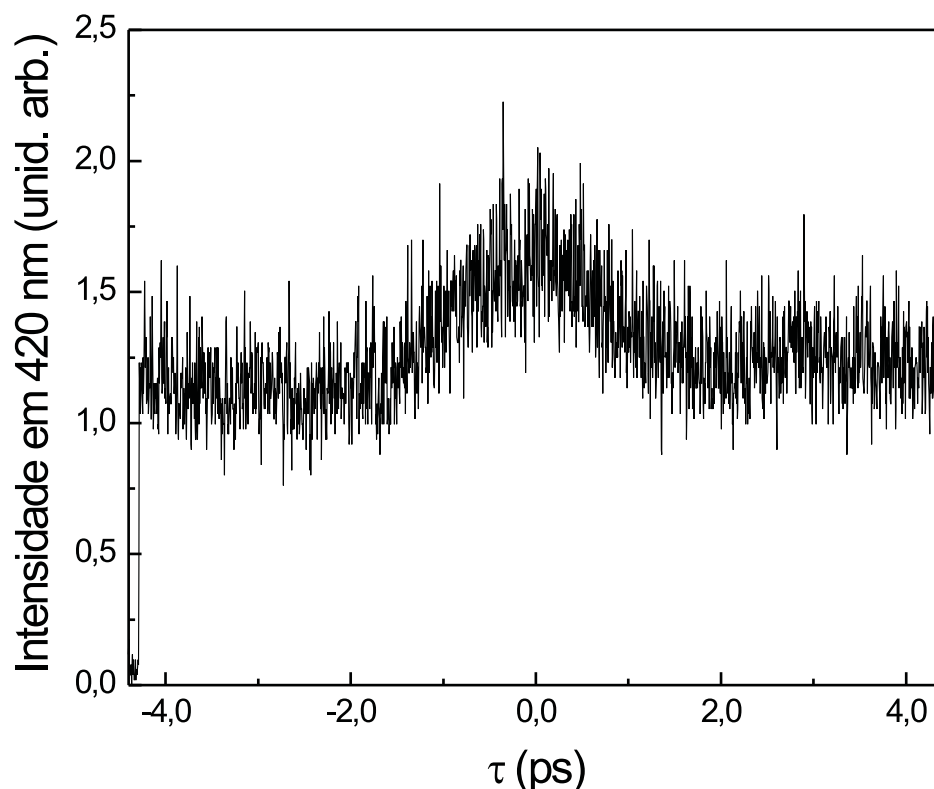


Figura 2.4 Sinal da MQO resolvida no tempo para uma varredura longa do atraso entre os pares de pulsos, quando apenas o nível 16D é excitado. Configuração das polarizações dos pulsos: $E(t - \tau) \perp E(t)$ e $E_{IR} \perp E_4$.

ao tirarmos a medida, tomamos o cuidado de marcar o zero de sinal, para termos uma indicação do valor deste fundo constante. Ao examinarmos a curva, percebemos que a razão entre o pico central e o patamar é de aproximadamente 0,94. Este pico central pode ser entendido através de uma analogia com um experimento de auto-correlação, em que temos a existência de um artefato semelhante, cuja largura está associada ao tempo de coerência dos pulsos que interferem. No nosso caso, a largura deste pico central guarda uma relação com o tempo de coerência dos pulsos que excitam a transição de dois fótons, como ficará claro na análise teórica.

Os resultados para uma varredura do atraso temporal com maior resolução são apresentados na figura 2.5. A coluna da esquerda se refere a varreduras em torno da origem, dentro do máximo central mostrado na figura 2.4, ou seja, para $\tau \approx \tau_c$. A coluna da direita mostra duas varreduras bem

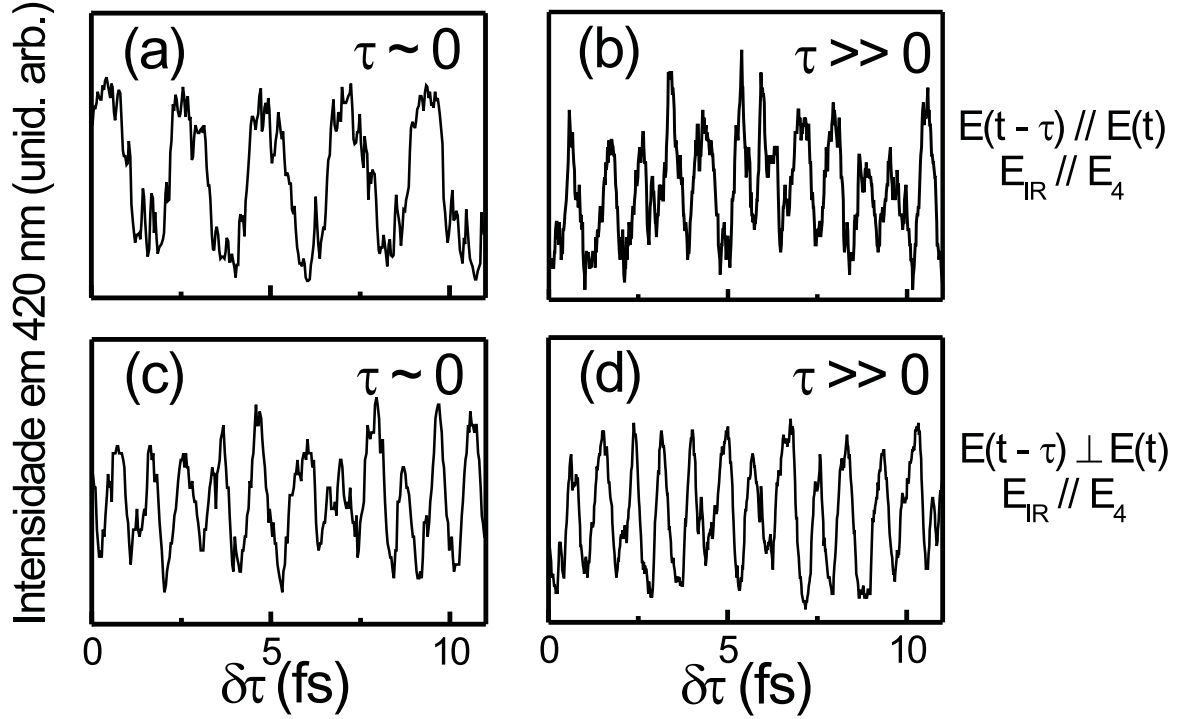


Figura 2.5 Sinal da MQO resolvida no tempo em função do atraso entre os pares de pulsos para duas configurações das polarizações dos pulsos. Em (a) e (b), todos os pulsos têm polarizações paralelas, (c) e (d) $E(t - \tau) \perp E(t)$ e $E_{IR} \parallel E_4$. Em (a) e (c) as varreduras são feitas dentro do pico central, $\tau \approx \tau_c$, e em (b) e (d) temos $\tau \gg \tau_c$.

distantes da origem, em torno de $\tau \approx 8,0$ ps. A escala horizontal é a mesma nas quatro varreduras apresentadas, $\delta\tau = 11$ fs.

Variamos a configuração da polarização dos pulsos que interagem com o sistema atômico. Nos quadros (a) e (b), todos os pulsos têm polarização paralela e a medida é realizada de tal forma a detectarmos o campo gerado com polarização paralela à dos campos que incidem no sistema atômico. Já nos quadros (c) e (d), os campos atrasados têm polarizações perpendiculares, $E(t - \tau) \perp E(t)$, e utilizamos um analisador para detectarmos apenas a componente do campo gerado que é paralela ao campo E_{IR} .

A diferença entre as curvas (a) e (b) é a variação da região do atraso entre os pulsos na qual a medida com resolução interferométrica é realizada. Entretanto, podemos notar que essa variação

leva à modificação do padrão das oscilações observadas. Vemos que fora da origem (em $\tau \approx 8,0$ ps), a frequência da oscilação interferométrica dobra com relação ao seu valor na origem, passando de uma frequência igual a frequência central do laser de corante, ω_L ($= \omega_1, \omega_2$), para o dobro dessa frequência, $2\omega_L$. As oscilações que ocorrem na frequência ω_L são chamadas de oscilações "ópticas", por terem um análogo clássico, associado ao efeito de interferência observado em um interferômetro de Michelson. Este análogo consiste no fato deste tipo de oscilação existir apenas em regiões, do atraso entre os pulsos, em que os mesmos se sobrepõem temporalmente, porém a natureza deste tipo de oscilação é quântica, no sentido de que a mesma ocorre devido à interferência entre dois caminhos quânticos indistinguíveis (ver seção 1.3). Já as oscilações em $2\omega_L$, são denominadas de oscilações quânticas, por não possuírem um análogo clássico. O fato de que através da manipulação do atraso entre os pares de pulsos que excitam a transição de dois fótons, somos capazes de modificar o comportamento do sinal, no nosso caso o sinal proveniente de um processo de MQO, fazendo com que este oscile entre máximos e mínimos, é a base da técnica do controle temporal coerente. Além disso, a mudança do padrão interferométrico, indo das oscilações "ópticas" em torno da origem, para as oscilações quânticas quando $\tau \gg \tau_c$, é um efeito bastante conhecido na literatura [33, 37].

Nas curvas (c) e (d), quando $E(t - \tau) \perp E(t)$ e $E_{IR} \parallel E_4$, o padrão interferométrico é o mesmo tanto para $\tau \approx 0$, como para $\tau \gg \tau_c$. Em particular, as oscilações observadas têm frequência igual ao dobro da frequência do laser de corante, indicando que apenas as oscilações quânticas estão presentes.

Uma comparação interessante a ser feita nesse conjunto de medidas é entre as curvas (a) e (c), pois para uma mesma região do atraso temporal, em torno da origem, é possível modificar o padrão interferométrico através da manipulação das polarizações dos campos que incidem sobre o sistema atômico. Passamos das oscilações "ópticas", quando todos os pulsos têm a mesma polarização, para as oscilações quânticas quando $E(t - \tau) \perp E(t)$ e $E_{IR} \parallel E_4$. Esse efeito pode ser explicado utilizando-se as regras de seleção do tensor suscetibilidade não linear de terceira ordem, o que será feito através da teoria apresentada na próxima seção.

2.3 Modelo Teórico e Discussão

A teoria utilizada para explicar os resultados experimentais obtidos na seção anterior foi desenvolvida na dissertação de mestrado. Nesta seção, iremos apenas indicar as principais passagens, para comparar e discutir com os resultados experimentais. Para um maior detalhamento dos cálculos, sugerimos a leitura da referência [74, 77].

Estamos interessados em calcular a polarização macroscópica induzida na frequência $\omega_4 =$

$\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$, devido à interação entre os campos $\vec{E}_1$, $\vec{E}_2$, $\vec{E}_3$ e o meio atômico. Para isso, precisamos calcular, primeiramente, a coerência entre os dois níveis atômicos que irá gerar a polarização macroscópica associada ao processo de MQO de interesse. Nessa primeira etapa dos cálculos, consideraremos que os campos incidem sobre o sistema atômico simultaneamente, i. e., eles interagem com o sistema no mesmo instante de tempo. Posteriormente, iremos relaxar essa condição para introduzirmos o atraso temporal entre os pares de pulsos dos campos $\vec{E}_1$ e $\vec{E}_2$. É importante frisar que ambos os campos, $\vec{E}_1$ e $\vec{E}_2$, possuem pulsos que interagem com o sistema atômico nos instantes t e $t - \tau$, como ficará claro quando escrevermos esses campos matematicamente.

O sistema atômico de interesse é constituído de quatro níveis de energia, rotulados pelos vetores de estado: $|a\rangle$, $|b\rangle$, $|c\rangle$ e $|d\rangle$, como mostra esquematicamente a figura 2.6, os quais estão associados aos estados 5S, 6P_{3/2}, 16D e 18S do átomo de rubídio, respectivamente. Os estados $|a\rangle$, $|c\rangle$ e $|d\rangle$ possuem a mesma paridade, sendo esta oposta à do estado $|b\rangle$.

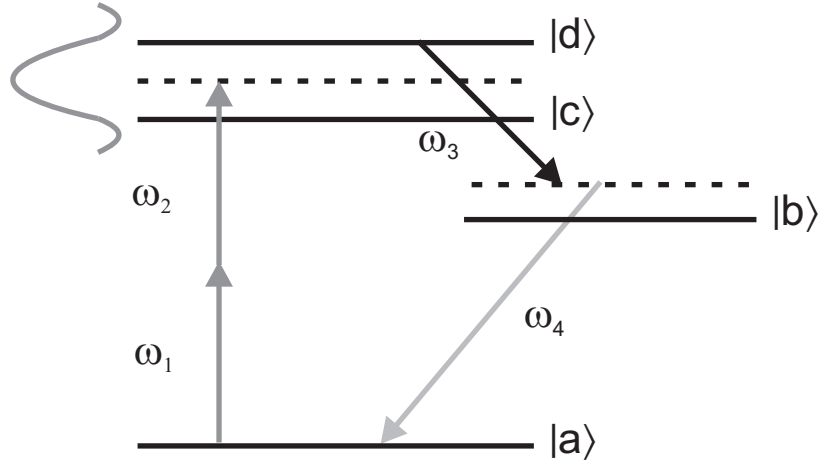


Figura 2.6 Estados atômicos envolvidos no processo de geração da MQO e as frequências dos campos envolvidos.

Queremos então obter a resposta do meio material quando submetido à interação com o campo eletromagnético total dado por:

$$\vec{E}(z,t) = \sum_{l=1}^3 \frac{1}{2} \vec{u}_l \{ \varepsilon_l(z,t) \exp[i(k_l z - \omega_l t)] + c.c. \}, \quad (2.1)$$

onde $\vec{k}_l = k_l \hat{z}$ é o vetor de onda dos campos, que são copropagantes, ao longo da direção z , $\vec{u}_l$ define o vetor de polarização dos campos, $\varepsilon_l(z,t)$ representam suas amplitudes e c. c. significa o complexo conjugado.

Como estamos tratando da interação do campo descrito pela equação (2.1) com um vapor atômico, o termo não linear de mais baixa ordem na expansão (1.12), será o de terceira ordem no campo, uma vez que o meio de interesse é centro-simétrico. Nosso interesse está em calcular a polarização macroscópica gerada no meio, cuja componente de frequência é $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$, de tal forma que esta polarização é dada por:

$$\vec{P}^{(3)}(\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3) = \chi^{(3)}(\omega_4) : \vec{E}_1(\omega_1) \vec{E}_2(\omega_2) \vec{E}_3^*(\omega_3). \quad (2.2)$$

Descreveremos o sistema atômico como um conjunto de N dipolos elétricos por unidade de volume, onde cada átomo tem um estado específico, $|i\rangle$. Entretanto, para analisarmos efeitos macroscópicos associados a esse conjunto de dipolos, precisamos levar em conta que o sistema atômico como um todo constitui uma mistura estatística dos estados de cada átomo, onde cada um dos átomos contribui com peso w_i para o *ensemble*. A descrição desse conjunto de dipolos pode então ser feita utilizando-se o operador matriz densidade, $\hat{\rho}$, sendo este definido como uma média ponderada sobre todos os subestados acessíveis aos átomos que compõem o *ensemble* [78]:

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

Através do formalismo do operador densidade é possível calcular o valor esperado de grandezas físicas. Se $\hat{A}$ for o operador correspondente a um determinado observável físico, seu valor esperado será dado por:

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

onde Tr significa o traço da matriz associada ao produto entre os operadores $\hat{\rho}$ e $\hat{A}$.

O operador densidade nos leva à definição da matriz densidade, a qual representa este operador numa base de autoestados convenientes ao problema em consideração. Os elementos diagonais, ρ_{nn} , são as probabilidades de encontrarmos o sistema no autoestado $|n\rangle$ e por isso estão associados às populações atômicas. Já os elementos fora da diagonal, ρ_{nm} , representam a fase associada à transição entre os autoestados $|n\rangle$ e $|m\rangle$ e correspondem às coerências entre esses autoestados. A matriz densidade tem sua dinâmica governada pela equação de Liouville:

$$\frac{\partial \hat{\rho}(t)}{\partial t} = \frac{i}{\hbar} [\hat{\rho}(t), \hat{H}] + \left(\frac{\partial \hat{\rho}(t)}{\partial t} \right)_{rel.}, \quad (2.5)$$

onde $[\hat{\rho}(t), \hat{H}]$ é o comutador entre o operador densidade e o Hamiltoniano total do sistema e já introduzimos, fenomenologicamente, as taxas de relaxação das populações e coerências dos níveis em estudo.

Através da equação (2.4) e utilizando as matrizes associadas aos operadores densidade e dipolo elétrico, podemos obter a seguinte expressão para a polarização macroscópica:

$$\bar{P} = N(\mu_{ab}\rho_{ba} + \mu_{bc}\rho_{cb} + \mu_{bd}\rho_{db} + c.c.). \quad (2.6)$$

Estamos interessados em calcular a intensidade do sinal na frequência da onda gerada pelo processo de MQO, i. e., $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$. Apenas o termo proporcional a ρ_{ab} na equação (2.6) irá contribuir para o sinal na frequência de interesse. Podemos então escrever que a intensidade desse sinal será dada por:

$$\bar{I}_{interesse} = \bar{I} \propto |\bar{P}(\omega_4)|^2 = 4N^2 \mu_{ab}^2 |\rho_{ba}|^2. \quad (2.7)$$

A partir da equação de Liouville, equação (2.5), é possível obtermos as equações de movimento para cada um dos elementos da matriz densidade:

$$\frac{\partial \rho_{ij}}{\partial t} = -i\omega_{ij}\rho_{ij} + \left(\frac{\partial \rho_{ij}}{\partial t}\right)_{rel.} + \frac{1}{i\hbar} [\hat{H}_{int.}, \hat{\rho}]_{ij}, \quad (2.8)$$

onde $\hat{H}_{int.} = -\vec{\mu} \cdot \vec{E}(z, t)$ é o Hamiltoniano de interação entre os campos eletromagnéticos e o sistema atômico e estamos supondo apenas a interação de dipolo elétrico, ω_{ij} é a frequência correspondente à energia da transição entre os estados $|i\rangle$ e $|j\rangle$.

Partindo da equação (2.8) e fazendo as seguintes aproximações: i) aproximação de onda girante para os elementos da matriz densidade e para os elementos da matriz do Hamiltoniano de interação; ii) casamento de fase entre os campos que incidem no sistema atômico e o campo que é gerado no processo de MQO; iii) expansão perturbativa dos campos que incidem sobre o sistema atômico, na qual consideramos que o meio absorve ou emite apenas um fóton de cada campo; iv) finalmente, considerando o regime estacionário, podemos chegar à seguinte equação para a coerência de interesse [74]:

$$\rho_{ab}^{(1,1,1)} = \frac{1}{[(\omega_4 - \omega_{ab}) - i\gamma_{ab}]} \left\{ \frac{V_{ac}V_{cb}}{[(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ac}) - i\gamma_{ac}]} + \frac{V_{ad}V_{db}}{[(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ad}) - i\gamma_{ad}]} \right\}, \quad (2.9)$$

onde γ_{ij} é a taxa de relaxação da coerência entre os níveis i e j e os fatores dados pelos V's são os elementos da matriz do Hamiltoniano de interação, sendo definidos por:

$$V_{ai} = \frac{k_{ai}\epsilon_1\epsilon_2}{2\hbar}, \quad (2.10a)$$

$$V_{ib} = -\frac{\mu_{ib}\epsilon_3^*}{2\hbar} \quad (i = c, d), \quad (2.10b)$$

onde ε_1 , ε_2 e ε_3 são as envoltórias que variam lentamente no tempo dos campos $\vec{E}_1$, $\vec{E}_2$ e $\vec{E}_3$, respectivamente. k_{ai} é a constante de acoplamento efetiva da transição de dois fótons, sendo dada por um somatório que leva em conta a contribuição de todos os níveis intermediários, entre o estado $|a\rangle$ e o estado $|i\rangle$ [79]:

$$k_{ai} = \frac{1}{2\hbar} \sum_l \frac{\mu_{al}\mu_{li}}{\sqrt{\omega_{il} - \omega_1}\sqrt{\omega_{il} - \omega_2}}, \quad (2.11)$$

onde ω_{il} é a frequência da transição entre os níveis i e l . A equação (2.11) representa a constante de acoplamento efetiva no caso da absorção de um fóton do campo $\vec{E}_1$ e outro fóton do campo $\vec{E}_2$.

Pela equação (2.9), notamos a presença de dois termos distintos na coerência entre os estados $|a\rangle$ e $|b\rangle$. O primeiro termo dentro das chaves se deve ao "caminho quântico" que envolve o estado $|c\rangle$, enquanto que o segundo termo dentro das chaves é devido ao estado $|d\rangle$. Como veremos mais adiante, esses dois termos originarão duas polarizações distintas, que contribuirão para a polarização total de interesse.

A partir da equação (2.9) para a coerência, podemos calcular a suscetibilidade de terceira ordem [80], que será dada por:

$$\chi^{(3)}(\omega_4) = \frac{N\mu_{ab}}{2\hbar^3\varepsilon_0[(\omega_4 - \omega_{ab}) - i\gamma_{ab}]} \left\{ \frac{k_{ac}\mu_{cb}}{[(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ac}) - i\gamma_{ac}]} + \frac{k_{ad}\mu_{db}}{[(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ad}) - i\gamma_{ad}]} \right\}. \quad (2.12)$$

A partir da equação (2.12), podemos calcular a polarização macroscópica de interesse, uma vez que a mesma é dada pela equação (2.2). Entretanto, para os campos $\vec{E}_1(\omega_1)$ e $\vec{E}_2(\omega_2)$, utilizados no experimento, existe uma distribuição de frequências na qual esses campos podem oscilar e que deve ser levada em consideração em uma descrição teórica realista dos mesmos. Já o campo $\vec{E}_3(\omega_3)$ possui uma distribuição de frequência muito mais estreita que os dois primeiros, de modo que será considerado como descrito por uma função delta em torno da frequência ω_3^0 . Dessa forma, a polarização macroscópica pode ser escrita como:

$$\vec{P}^3(\omega_4) = \int \int \int d\omega_1 d\omega_2 d\omega_3 \chi^{(3)}(\omega_4) : \vec{E}_1(\omega_1) \vec{E}_2(\omega_2) \vec{E}_3^*(\omega_3) \delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_3 - \omega_4) \delta(\omega_3 - \omega_3^0), \quad (2.13)$$

onde $\delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_3 - \omega_4)$ é a função delta que garante a conservação da energia no sistema.

Introduzimos, agora, o atraso temporal entre os pulsos dos campos $\vec{E}_1$ e $\vec{E}_2$. Vamos considerar, em primeiro lugar, o caso em que os pulsos atrasados temporalmente têm polarizações paralelas. Posteriormente, consideraremos que esses pulsos possuem polarizações perpendiculares

e mostraremos que a mudança na configuração dessas polarizações nos leva a obter resultados completamente distintos para o sinal da MQO resolvida no tempo, em acordo com os resultados experimentais da seção 2.2.

2.3.1 Pulsos Atrasados com Polarizações Paralelas

Devido às propriedades de simetria do vapor atômico, o qual constitui um meio centro-simétrico, pode-se mostrar que os elementos do tensor suscetibilidade não linear de terceira ordem obedecem às regras do conjunto de equações (2.14) [81]:

$$\chi^{xxxx} = \chi^{yyyy} = \chi^{zzzz}, \quad (2.14a)$$

$$\chi^{yyzz} = \chi^{zzyy} = \chi^{zzxx} = \chi^{xxzz} = \chi^{xxyy} = \chi^{yyxx}, \quad (2.14b)$$

$$\chi^{yzyz} = \chi^{zyzy} = \chi^{zxzx} = \chi^{xzxz} = \chi^{xyxy} = \chi^{yxyx}, \quad (2.14c)$$

$$\chi^{yzzz} = \chi^{zyyz} = \chi^{zxxz} = \chi^{xxzx} = \chi^{xyyz} = \chi^{yxyx}, \quad (2.14d)$$

$$\chi^{xxxx} = \chi^{xxyy} + \chi^{xyxy} + \chi^{xyyx}. \quad (2.14e)$$

Nessas equações, os três últimos índices sobrescritos indicam as polarizações dos campos que incidem sobre o sistema e o primeiro índice indica a polarização do campo gerado pelo processo de MQO.

O primeiro caso a ser considerado é quando os pulsos que interagem com o sistema atômico nos instantes t e $t - \tau$ têm polarizações paralelas, que vamos considerar ao longo da direção $\hat{y}$. Podemos então escrever os campos $\vec{E}_1(\omega_1)$ e $\vec{E}_2(\omega_2)$, como:

$$\vec{E}_1(\omega_1) = E(\omega_1) [1 + e^{-i\omega_1\tau}] \hat{y}, \quad (2.15a)$$

$$\vec{E}_2(\omega_2) = E(\omega_2) [1 + e^{-i\omega_2\tau}] \hat{y}. \quad (2.15b)$$

O campo $\vec{E}_3(\omega_3)$ é paralelo aos campos $\vec{E}_1(\omega_1)$ e $\vec{E}_2(\omega_2)$, de modo que podemos escrever:

$$\vec{E}_3(\omega_3) = E(\omega_3) \hat{y}. \quad (2.16)$$

Substituindo as equações (2.12), (2.15) e (2.16) na equação (2.13) e realizando as integrais nas deltas de Dirac, obtemos:

$$P_y(\omega_4) = \frac{N}{2\hbar^3 \epsilon_0} \int \frac{E(\omega_1)E(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)E^*(\omega_3)}{[(\omega_4 - \omega_{ab}) - i\gamma_{ab}]} g(\omega_1, \omega_3 + \omega_4 - \omega_1; \tau) \left\{ \frac{K_c^{yyyy}}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac}) - i\gamma_{ac}]} + \frac{K_d^{yyyy}}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad}) - i\gamma_{ad}]} \right\} d\omega_1, \quad (2.17)$$

onde definimos a função:

$$g(\omega_1, \omega_3 + \omega_4 - \omega_1; \tau) \equiv [1 + e^{-i\omega_1 \tau}] [1 + e^{-i(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1) \tau}], \quad (2.18)$$

e também utilizamos a seguinte notação para o produto tensorial envolvido na equação (2.13):

$$K_i^{jkl} = \mu_{ab}^j \mu_{ib}^m k_{ai}^{kl}, \quad (i = c, d), \quad (2.19)$$

com j sendo a direção da polarização do campo gerado no meio, m é a polarização do pulso pertencente ao campo $\vec{E}_3$ e k, l são as direções das polarizações dos outros dois pulsos. Como estamos supondo todos os campos paralelos ao longo da direção $\hat{y}$ a equação (2.19) fica:

$$K_i^{yyyy} = \mu_{ab}^y \mu_{ib}^y k_{ai}^{yy}, \quad (i = c, d), \quad (2.20)$$

que tem a forma das constantes K_c^{yyyy} e K_d^{yyyy} , presentes na equação (2.17).

Note também que na equação (2.17) temos a presença de dois termos que contribuem para a polarização. Esses termos refletem o fato de que na expressão para a coerência de interesse, equação (2.9), temos a presença de duas parcelas que indicam se as transições atômicas do sistema evoluíram através do estado $|c\rangle$ ou $|d\rangle$. Na equação (2.17) identificamos o "caminho quântico", através do qual o sistema evolui, com as constantes K_c^{yyyy} e K_d^{yyyy} , para os caminhos $|a\rangle \rightarrow |c\rangle \rightarrow |b\rangle$ e $|a\rangle \rightarrow |d\rangle \rightarrow |b\rangle$, respectivamente.

Por estarmos trabalhando com campos originados de uma fonte de luz incoerente, os campos $\vec{E}_1$ e $\vec{E}_2$, devemos realizar uma média de conjunto sobre esses campos, pois os mesmos sofrem variações aleatórias de amplitude. A média é então realizada para que o sinal final não contenha essas variações. Experimentalmente, essa média é realizada durante o processo de medição, pois os detetores utilizados não possuem resolução temporal suficiente para detectar essas variações, que ocorrem em intervalos de tempo muito curtos. No limite em que o tempo característico de resposta dos detetores é muito maior que as variações presentes no campo, podemos substituir a média temporal, realizada no detetor, por uma média de conjunto sobre os campos que possuem essas variações (hipótese de ergodicidade [82]). Além disso, precisamos realizar uma integração na frequência de saída, ω_4 , pois como os campos $\vec{E}_1$ e $\vec{E}_2$ possuem uma distribuição espectral, o campo $\vec{E}_4$, gerado no processo MQO também irá possuir uma distribuição no domínio das frequências.

Assim, ao realizarmos a integração em ω_4 iremos levar em conta todas as contribuições dessa distribuição espectral.

Podemos então escrever a intensidade do sinal de MQO como sendo proporcional a:

$$I_y \propto \int \langle |P_y(\omega_4)|^2 \rangle d\omega_4. \quad (2.21)$$

Substituindo a equação (2.17) na equação (2.21), considerando que as distribuições de probabilidade para as amplitudes dos campos $\vec{E}_1$ e $\vec{E}_2$ são Gaussianas, assim como suas densidades espectrais, é possível mostrar que a intensidade do sinal de MQO, em função do atraso entre pares de pulsos do laser que excita a transição de dois fótons, no caso em que todos os campos que incidem sobre o sistema possuem polarizações paralelas, é dado por [74]:

$$I_y \propto \frac{N^2 \pi^{3/2} I_1 I_2 I_3}{\alpha \hbar^6 \epsilon_0^2} \int \frac{d\omega_4}{[(\omega_4 - \omega_{ab})^2 + \gamma_{ab}^2]} \exp \left[-\frac{(2\omega_L - \omega_3 - \omega_4)^2}{4\alpha^2} \right] \{A(\tau) \cdot B\}, \quad (2.22)$$

onde I_1, I_2, I_3 são as intensidades dos campos $\vec{E}_1, \vec{E}_2, \vec{E}_3$, respectivamente, ω_L é a frequência central do laser que faz a transição de dois fótons, α é uma constante definida por: $\alpha^{-1} = 2 \cdot \sqrt{\ln(2)} \tau_c$, sendo τ_c o tempo de coerência do laser de corante. Os fatores A e B são dados por:

$$A(\tau) = 2 + 4 \exp \left[-\frac{\alpha^2 \tau^2}{4} \right] \cos \left[\frac{(\omega_3 + \omega_4) \tau}{2} \right] + \cos [(\omega_3 + \omega_4) \tau] + \exp [-\alpha^2 \tau^2], \quad (2.23)$$

e:

$$B = \frac{(K_c^{yyyy})^2}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac})^2 + \gamma_{ac}^2]} + \frac{(K_d^{yyyy})^2}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad})^2 + \gamma_{ad}^2]} + \frac{2K_c^{yyyy} K_d^{yyyy} [(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac})(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad}) - \gamma_{ac} \gamma_{ad}]}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac})^2 + \gamma_{ac}^2][(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad})^2 + \gamma_{ad}^2]}. \quad (2.24)$$

Antes de realizarmos uma análise mais detalhada das equações (2.22) - (2.24), podemos fazer uma comparação entre essas equações e os resultados experimentais obtidos, para verificarmos se a teoria descreve, de forma satisfatória, o experimento realizado. Um dos resultados experimentais obtidos na seção 2.2 é o espectro de emissão da MQO, apresentado na figura 2.3. Para obtermos essa curva, todos os campos tinham a mesma polarização e utilizamos apenas um dos braços da linha de atraso, de forma que não existia atraso entre os pulsos. Na obtenção das equações (2.22) - (2.24), consideramos que todos os pulsos têm polarizações paralelas e ao fazer $\tau = 0$, nessas

equações, podemos reproduzir a situação experimental. A figura 2.7 mostra a comparação entre o experimento e a teoria. Nesta figura os círculos abertos são a reprodução dos dados experimentais já apresentados na seção 2.2, enquanto que a curva sólida é um ajuste teórico, baseado nas equações (2.22) - (2.24) com $\tau = 0$. Vemos então que as equações apresentadas descrevem, de modo satisfatório o espectro de emissão da MQO.

Para o ajuste teórico utilizamos que a relação entre K_c^{yyyy} e K_d^{yyyy} , que vem do cálculo da parte radial dos elementos da matriz de dipolo elétrico entre os níveis envolvidos na transição [83], é dada por: $K_c^{yyyy} = 4,2K_d^{yyyy}$. Além disso, também precisamos considerar que a resolução do espectrômetro é de $2,0 \text{ cm}^{-1}$, a mesma utilizada no experimento.

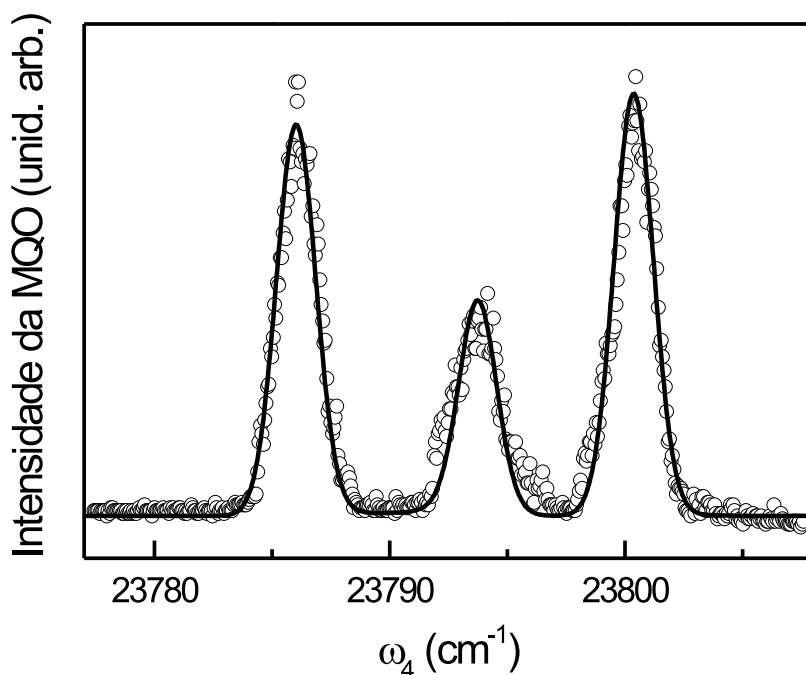


Figura 2.7 Espectro de emissão da MQO. Os círculos abertos são uma reprodução da figura 2.3. A curva sólida é um ajuste teórico baseado nas equações (2.22)-(2.24) para $\tau = 0$.

O fator B definido na equação (2.24) corresponde aos possíveis caminhos quânticos quando

um único pulso interage com o sistema. O primeiro e segundo termos de B indicam a passagem do sistema através do caminho quântico $|a\rangle \rightarrow |c\rangle \rightarrow |b\rangle$ ou $|a\rangle \rightarrow |d\rangle \rightarrow |b\rangle$, respectivamente. O terceiro termo corresponde à interferência entre estes dois caminhos quânticos. Ele surge devido à indistinguibilidade entre os dois caminhos quânticos que podem levar o sistema do estado $|a\rangle$ para o estado $|b\rangle$, de modo que ambos os estados contribuem para o sinal de MQO e este sinal é proporcional ao módulo ao quadrado da soma das amplitudes de probabilidade do sistema. Teremos então um termo proporcional ao quadrado da amplitude de probabilidade do sistema evoluir através do estado $|c\rangle$, um termo proporcional ao quadrado da amplitude de probabilidade do sistema evoluir através do estado $|d\rangle$ e um termo de interferência. Este efeito foi discutido em detalhe por S. S. Vianna e colaboradores [36].

Nossa análise principal será feita no fator A, pois este fator contém toda a dependência com τ presente na intensidade do sinal de MQO. Da equação (2.23), vemos que este fator possui quatro termos. O primeiro constitui uma componente de fundo e independe do atraso τ . O segundo termo consiste numa oscilação na metade da frequência da transição de dois fótons, muito próxima, portanto, da frequência do laser que excita essa transição. Também é importante notar que este termo só existirá dentro do tempo de coerência do laser que faz a transição de dois fótons, devido ao fator exponencial que multiplica o cosseno. No terceiro termo, temos uma oscilação na frequência da transição de dois fótons, ou seja, muito próxima do dobro da frequência do laser que faz essa transição. Essa oscilação ocorre para qualquer valor de τ , pois não temos um fator exponencial semelhante ao do segundo termo. Note que as oscilações no dobro da frequência do laser que excita a transição de dois fótons são menores que as oscilações na frequência desse laser por um fator de quatro. Isso indica que em regiões de atraso τ em que ambas oscilações estiverem presentes só iremos observar as últimas, devido à sua intensidade ser bem maior. Finalmente, o último termo corresponde a uma Gaussiana, cuja largura é proporcional ao tempo de coerência do laser que excita a transição de dois fótons e que é um fator comum em medidas de convolução entre dois pulsos atrasados temporalmente. O resultado obtido na equação (2.23) é bastante semelhante ao obtido na referência [37], em que os autores estudam processos de absorção de um e dois fótons, com pulsos atrasados temporalmente, e mostram que, nas transições de dois fótons, as oscilações presentes em regiões de atraso entre os pulsos maiores que o tempo de coerência do laser que as excita é igual ao dobro da frequência deste laser, enquanto que para as transições de um fóton só temos oscilações na mesma frequência do laser. Até os fatores numéricos, que multiplicam os termos que dependem do atraso temporal, são os mesmos. Porém, nessa referência, os autores utilizam lasers de fentosegundos com pulsos coerentes (limitados por TF).

Na figura 2.8, mostramos novamente a figura 1.1 que representa os possíveis caminhos quânticos para a excitação de uma transição de dois fótons com pulsos atrasados temporalmente, com a mudança que o nível mais excitado pode ser ou o estado $|c\rangle$, ou o estado $|d\rangle$, definidos no nosso modelo atômico. Nesta figura, representamos o pulso que interage com o sistema no instante $t - \tau$ como o pulso 1 e o pulso que interage com o sistema no instante t como o pulso 2. Os quatro

caminhos quânticos, discutidos na seção 1.3, são possíveis: o sistema absorve dois fótons do pulso 1 (caminho quântico A, esquematizado na figura 2.8) ou dois fótons do pulso 2 (caminho quântico D); o sistema absorve o primeiro fóton do pulso 1, seguido de um fóton do pulso 2 (caminho quântico B); e finalmente, o sistema absorve o primeiro fóton do pulso 2, seguido de um fóton do pulso 1 (caminho quântico C), as amplitudes de probabilidade destas duas últimas formas de excitação são não nulas, pois os pulsos se sobrepõem temporalmente.

As oscilações na frequência da transição de dois fótons, $2\omega_L$, ocorrem devido à interferência entre os caminhos quânticos A e D, enquanto que as oscilações na metade da frequência de transição de dois fótons, ω_L , ocorrem devido à interferência entre os caminhos A e B, A e C, B e D, e C e D. Isso pode ser demonstrado experimentalmente se pudermos cancelar a excitação da transição de dois fótons pelos caminhos B e C, pois assim iremos destruir parte dos caminhos que interferem para levar às oscilações em ω_L . Uma forma de se fazer isso, experimentalmente, é aumentar o atraso entre os pulsos até que os mesmos não guardem mais uma relação de fase entre si, i. e., aumentar o valor de τ até que este seja maior que o tempo de coerência τ_c do laser que faz a transição de dois fótons. Esse fato pode ser visto através da equação (2.23), pois o termo que oscila em ω_L possui um fator exponencial que decai com τ_c . A utilização da variação de τ para o cancelamento de caminhos quânticos é uma idéia que já foi bastante utilizada na literatura e um exemplo que explicita bem o seu uso é o estudo realizado por Blanchet e colaboradores [33].

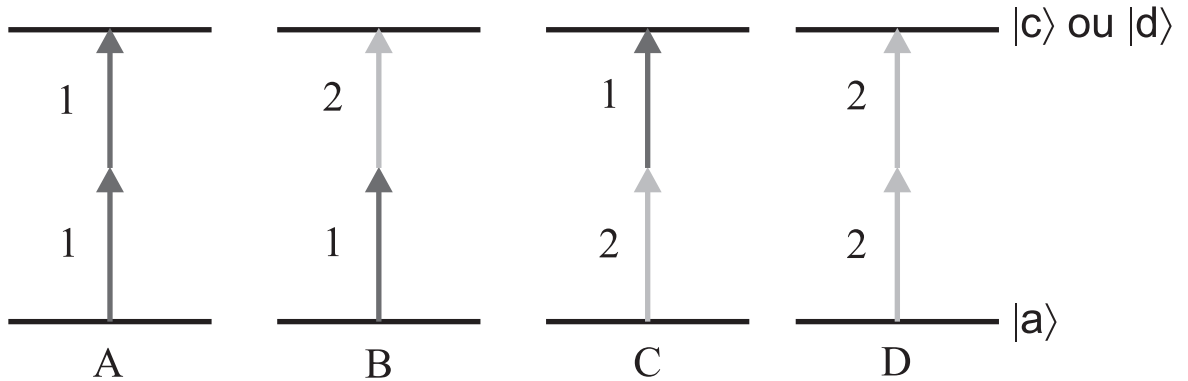


Figura 2.8 Representação dos possíveis caminhos quânticos para a transição de dois fótons com atraso entre os pulsos. A seta em cinza escuro representa a excitação pelo primeiro pulso a atingir o meio, enquanto a seta em cinza claro representa a excitação pelo pulso atrasado de τ .

Com a teoria desenvolvida até aqui, é possível explicar as curvas dos quadros (a) e (b) da figura 2.5, pois para essas medidas do sinal de MQO com resolução interferométrica, todos os campos presentes no sistema tinham polarizações paralelas. Note que, como descrito nos parágrafos anteriores, as oscilações em ω_L só existirão dentro do tempo de coerência do laser que faz a transição

de dois fótons, fato este que pode ser verificado nas quadros (a) e (b), pois quando a varredura é realizada dentro do tempo de coerência essas oscilações estão presentes, enquanto que para valores de $\tau \gg \tau_c$, não observamos esse tipo de oscilação. Já as oscilações em $2\omega_L$ estão presentes para quaisquer valores de τ , não sendo observadas dentro de τ_c , pois as oscilações em ω_L , são quatro vezes mais intensas, como mostra a equação (2.23).

Como mencionado anteriormente, uma outra forma de se denominar as oscilações em ω_L e $2\omega_L$, muito difundida na literatura sobre o assunto, é chamá-las de oscilações "ópticas" e quânticas, respectivamente. As oscilações "ópticas" são assim chamadas devido a possuírem um análogo clássico nas oscilações que surgem num interferômetro de Michelson, sendo que nos dois braços do interferômetro se propagam feixes originados do mesmo laser. Esse análogo se restringe ao fato dessas oscilações só existirem dentro do tempo de coerência do laser que excita a transição de dois fótons, assim como no caso do interferômetro, porém elas surgem da interferência entre dois caminhos quânticos distintos acessíveis ao sistema e por isso sempre utilizaremos aspas quando nos referirmos a esse tipo de oscilação.

2.3.2 Pulsos Atrasados com Polarizações Perpendiculares

Uma outra forma de se cancelar os caminhos quânticos que levam à oscilação em ω_L é a utilização das polarizações dos campos que interagem com o meio, em conjunto com as regras de seleção do tensor suscetibilidade não linear de terceira ordem. Vamos agora desenvolver a teoria necessária para a análise desta situação, considerando que os pulsos que interagem com o sistema atômico, nos instantes $t - \tau$ e t , têm polarizações ortogonais. Devido à simetria do meio, podemos considerar que o pulso que interage com o sistema no instante t possui polarização ao longo da direção $\hat{x}$ ou $\hat{y}$, sendo a polarização do outro pulso ortogonal à do primeiro, sem perda de generalidade. Os campos $\vec{E}_1$ e $\vec{E}_2$ podem então ser escritos como:

$$\vec{E}_1(\omega_1) = E(\omega_1) [\hat{x} + e^{-i\omega_1\tau}\hat{y}] , \quad (2.25a)$$

$$\vec{E}_2(\omega_2) = E(\omega_2) [\hat{x} + e^{-i\omega_2\tau}\hat{y}] . \quad (2.25b)$$

Continuamos a considerar que o pulso do campo $\vec{E}_3$, tem polarização ao longo da direção $\hat{y}$, podendo ser escrito como na equação (2.16).

Utilizando as regras de seleção do tensor $\chi^{(3)}$ cujos elementos da matriz que o representa e que são diferentes de zero são dados pelas equações (2.14), notamos que, desta vez, teremos polarizações macroscópicas ao longo das direções $\hat{x}$ e $\hat{y}$. Seguindo a nomenclatura da equação

(2.20), as constantes de acoplamento responsáveis pelas polarizações macroscópicas são: ao longo da direção $\hat{x}$, K_i^{xyyx} e K_i^{xyxy} ; ao longo da direção $\hat{y}$, K_i^{yyyy} e K_i^{yyxx} , com $i = c$ ou d . Este efeito das regras de seleção do tensor suscetibilidade não linear na polarização macroscópica pode ser melhor entendido com o auxílio da figura 2.9, onde mostramos, esquematicamente, as polarizações dos pulsos que interagem com o sistema nos instantes $t - \tau$ e t , respectivamente. Uma constante de acoplamento efetivo do tipo K_i^{xyxy} será proveniente do caminho quântico C, onde o primeiro fóton a interagir com o meio é polarizado ao longo do eixo $\hat{y}$, o segundo ao longo do eixo $\hat{x}$ e o terceiro com polarização ao longo do eixo $\hat{y}$ (pois é proveniente do campo $\vec{E}_3$), gerando uma polarização macroscópica ao longo do eixo $\hat{x}$, devido às regras de seleção. Os caminhos quânticos A, B e D estão associados às constantes de acoplamento do tipo: K_i^{yyxx} , K_i^{xyyx} e K_i^{yyyy} , respectivamente.

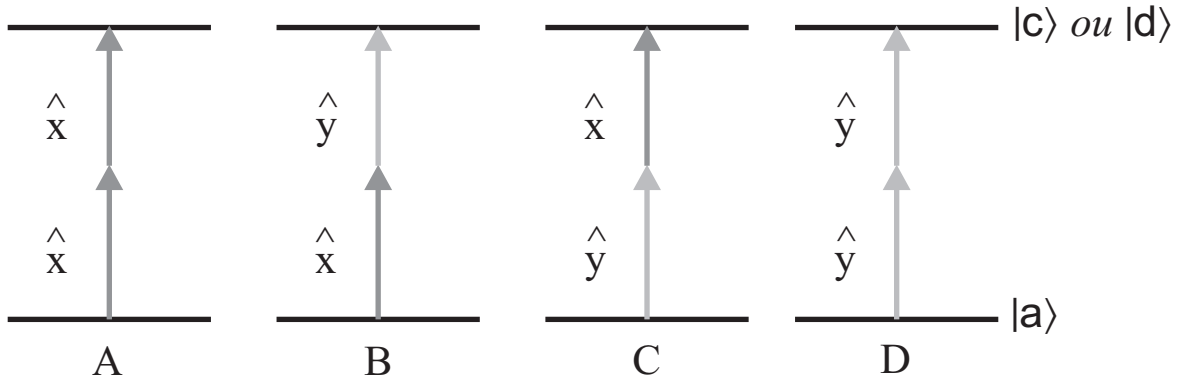


Figura 2.9 Transição por dois fótons atrasados temporalmente, explicitando a polarização dos pulsos. O primeiro pulso a interagir com o meio possui polarização ao longo da direção $\hat{x}$ e o pulso atrasado de τ ao longo da direção $\hat{y}$.

Continuando com os cálculos para a polarização macroscópica, obtemos as seguintes expressões para a suas componentes, ao longo da direção $\hat{x}$:

$$P_x(\omega_4) = \frac{N}{2\epsilon_0\hbar^3} \int d\omega_1 \frac{E(\omega_1)E(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)E^*(\omega_3)}{[(\omega_4 - \omega_{ab}) - i\gamma_{ab}]} \cdot \left\{ \frac{[e^{-i\omega_1\tau}K_c^{xyxy} + e^{-i(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)\tau}K_c^{xyyx}]}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac}) - i\gamma_{ac}]} + \frac{[e^{-i\omega_1\tau}K_d^{xyxy} + e^{-i(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)\tau}K_d^{xyyx}]}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad}) - i\gamma_{ad}]} \right\}. \quad (2.26)$$

Para a direção $\hat{y}$, teremos:

$$P_y(\omega_4) = \frac{N}{2\varepsilon_0\hbar^3} \int d\omega_1 \frac{E(\omega_1)E(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)E^*(\omega_3)}{[(\omega_4 - \omega_{ab}) - i\gamma_{ab}]} \cdot \left\{ \frac{[K_c^{yyxx} + e^{-i(\omega_3 + \omega_4)\tau} K_c^{yyyy}]}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac}) - i\gamma_{ac}]} + \frac{[K_d^{yyxx} + e^{-i(\omega_3 + \omega_4)\tau} K_d^{yyyy}]}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad}) - i\gamma_{ad}]} \right\}. \quad (2.27)$$

Para um meio isotrópico, as constantes de acoplamento efetivo, que aparecem nas equações (2.26) e (2.27), não têm, necessariamente, uma relação entre si e por isso não podem ser fatoradas (como foi feito quando os campos tinham a mesma polarização). Neste caso, o sinal gerado pela MQO não deve apresentar nenhuma oscilação, seja ela em ω_L ou em $2\omega_L$.

Para explicarmos as oscilações interferométricas, observadas experimentalmente, devemos lembrar que os estados $|c\rangle$ e $|d\rangle$ correspondem aos estados $|16D\rangle$ e $|18S\rangle$ do átomo de rubídio. Nos metais alcalinos, essas constantes de acoplamento efetivo apresentam uma relação bem definida, pois envolvem o produto de quatro transições de dipolo elétrico entre estados s, p e d. Neste caso, utilizando as regras de seleção dos coeficientes de Clebsch-Gordan, é possível mostrar que as constantes de acoplamento efetivo guardam as seguintes relações [84]:

i) Para o nível 18S:

$$K_{18S}^{yyyy} = K_{18S}^{yyxx}, \quad (2.28a)$$

$$K_{18S}^{xyxy} = K_{18S}^{xyyx} = 0. \quad (2.28b)$$

ii) Para o nível 16D:

$$\frac{3}{4}K_{16D}^{yyyy} = -\frac{3}{2}K_{16D}^{yyxx} = K_{16D}^{xyxy} = K_{16D}^{xyyx}. \quad (2.29)$$

Se considerarmos, separadamente, as transições de dois fótons para os níveis 18S e 16D, vemos que podemos por em evidência a parte radial dos elementos da matriz de interação e obtermos as seguintes equações para as polarizações. Quando apenas o nível 18S é excitado:

$$P_x^{(18S)}(\omega_4) = 0, \quad (2.30)$$

$$P_y^{(18S)}(\omega_4) = \frac{N}{2\hbar^3 \epsilon_0} \int d\omega_1 \frac{E(\omega_1)E(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)E^*(\omega_3)}{[(\omega_4 - \omega_{ab}) - i\gamma_{ab}]} \cdot \left\{ \frac{K_{18S}^{yyyy} [1 + e^{-i(\omega_3 + \omega_4)\tau}]}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad}) - i\gamma_{ad}]} \right\}. \quad (2.31)$$

Ou seja, apenas a componente da polarização macroscópica ao longo da direção $\hat{y}$, mesma direção da polarização do campo $\vec{E}_3$, é diferente de zero. Calculando a intensidade do sinal gerado, através da equação (2.21) e utilizando as mesmas considerações que no caso em que todos os campos possuem a mesma polarização, chegamos a:

$$I_y^{(18S)} \propto \frac{N^2 \pi^{3/2} I_1 I_2 I_3 (K_{18S}^{yyyy})^2}{\alpha \hbar^6 \epsilon_0^2} \int \frac{d\omega_4}{[(\omega_4 - \omega_{ab})^2 + \gamma_{ab}]^2} \cdot \left\{ \exp \left[-\frac{(2\omega_L - \omega_3 - \omega_4)^2}{4\alpha^2} \right] \cdot \frac{[1 + \cos(\omega_3 + \omega_4)\tau]}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad})^2 + \gamma_{ad}]^2} \right\}. \quad (2.32)$$

Vemos que apenas as oscilações em $2\omega_L$ estão presentes no sinal de MQO resolvido no tempo. As oscilações em ω_L não aparecem, uma vez que os caminhos quânticos B e C, necessários para a sua observação, têm uma constante de acoplamento efetivo nula. Além do termo que caracteriza as oscilações quânticas, temos a presença de uma componente de fundo para qualquer que seja o valor do atraso entre os pulsos.

Quando só o nível 16D é excitado, as polarizações ao longo das direções $\hat{x}$ e $\hat{y}$ são dadas por:

$$P_x^{(16D)}(\omega_4) = \frac{N}{2\hbar^3 \epsilon_0} \int d\omega_1 \frac{E(\omega_1)E(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)E^*(\omega_3)}{[(\omega_4 - \omega_{ab}) - i\gamma_{ab}]} \cdot \left\{ \frac{K_{16D}^{xyxy} [e^{-i\omega_1\tau} + e^{-i(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)\tau}]}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac}) - i\gamma_{ac}]} \right\}. \quad (2.33)$$

E:

$$P_y^{(16D)}(\omega_4) = \frac{N}{2\hbar^3 \epsilon_0} \int d\omega_1 \frac{E(\omega_1)E(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)E^*(\omega_3)}{[(\omega_4 - \omega_{ab}) - i\gamma_{ab}]} \cdot \left\{ \frac{K_{16D}^{yyxx} [1 - 2e^{-i(\omega_3 + \omega_4)\tau}]}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad}) - i\gamma_{ad}]} \right\}. \quad (2.34)$$

E a intensidade do sinal de MQO resolvida no tempo, para a direção $\hat{x}$ será:

$$I_x^{(16D)} \propto \frac{N^2 \pi^{3/2} I_1 I_2 I_3 (K_{16D}^{xyxy})^2}{\alpha \hbar^6 \epsilon_0^2} \int \frac{d\omega_4}{[(\omega_4 - \omega_{ab})^2 + \gamma_{ab}]^2} \cdot \left\{ \exp \left[-\frac{(2\omega_L - \omega_3 - \omega_4)^2}{4\alpha^2} \right] \cdot \frac{[1 + e^{-(\alpha\tau)^2}]}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac})^2 + \gamma_{ac}]^2} \right\}. \quad (2.35)$$

Por esta equação, podemos notar que não teremos oscilações "ópticas" ou quânticas, apenas um pico central, cuja largura está associada ao tempo de coerência do laser que excita a transição de dois fótons, e uma componente de fundo constante para qualquer valor do atraso entre os pares de pulsos.

Note que a equação (2.35) nos dá a intensidade do sinal de MQO, para uma configuração das polarizações dos campos que interagem com o sistema atômico igual à situação experimental em que obtivemos a medida apresentada na figura 2.4, i. e., os campos atrasados temporalmente têm polarizações ortogonais e a detecção é realizada em uma direção perpendicular à direção do campo E_3 , ($E(t - \tau) \perp E(t)$ e $E_3 \perp E_4$). Nesta figura, só temos a contribuição do nível 16D, pois como mostra a equação (2.30) o nível 18S não contribui para o sinal, de modo que a equação (2.35) descreve a intensidade total do sinal detetado. Podemos verificar que a razão entre o pico central e a componente de fundo obtida a partir da teoria é igual a 1, valor muito próximo do verificado experimentalmente, ≈ 0.94 .

O sinal gerado ao longo da direção $\hat{y}$ é dado por:

$$I_y^{(16D)} \propto \frac{N^2 \pi^{3/2} I_1 I_2 I_3 (K_{16D}^{yyxx})^2}{\alpha \hbar^6 \epsilon_0^2} \int \frac{d\omega_4}{[(\omega_4 - \omega_{ab})^2 + \gamma_{ab}]^2} \cdot \left\{ \exp \left[-\frac{(2\omega_L - \omega_3 - \omega_4)^2}{4\alpha^2} \right] \cdot \frac{[5 - 4\cos(\omega_3 + \omega_4)\tau]}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac})^2 + \gamma_{ac}]^2} \right\}. \quad (2.36)$$

Este resultado apresenta as mesmas características do obtido para a direção $\hat{y}$ do nível 18S: ausência das oscilações "ópticas", permanecendo apenas as oscilações quânticas e uma componente de fundo. A diferença, entre a intensidade do sinal de MQO na direção $\hat{y}$ para os níveis 16D e 18S, é dada pelas constantes de acoplamento efetivo que depende da parte radial dos estados envolvidos nas transições de dipolo elétrico.

Ao compararmos os resultados da equação (2.36) com os quadros (c) e (d) da figura 2.5, vemos que o modelo teórico, apesar de simples, consegue explicar as principais características dos

resultados experimentais. Não teremos mais as oscilações "ópticas", na frequência ω_L , mas as oscilações quânticas, em $2\omega_L$, estarão sempre presentes. Dessa forma, vemos como a manipulação das polarizações dos pulsos que incidem sobre o sistema atômico pode levar à aniquilação de caminhos quânticos. Em particular, numa transição de dois fótons vimos que os caminhos quânticos que interferem para originar as oscilações em ω_L são os caminhos A e B, A e C, D e B, e D e C, esquematizados nas figuras 2.8 e 2.9. Quando os pulsos atrasados têm polarizações perpendiculares, os caminhos B e C deixam de existir e assim não é possível haver interferência entre dois caminhos quânticos que levam às oscilações em ω_L . Entretanto, os caminhos A e D continuam existindo e como a interferência entre eles leva à oscilação em $2\omega_L$, ela está presente no sinal da MQO. O trabalho descrito nesse capítulo foi publicado nas referências [77, 85].

Controle Coerente na Absorção de Dois Fótons

3.1 Introdução

Neste capítulo, investigamos a transição de dois fótons entre os níveis 5S e 7S em vapor de rubídio, combinando as técnicas de manipulação da fase do campo eletromagnético e de controle temporal coerente. A transição de dois fótons é realizada por pulsos, provenientes do mesmo laser, que podem ser atrasados temporalmente, sendo que em um deles é introduzida uma fase externa através da utilização de um sintetizador de Fourier.

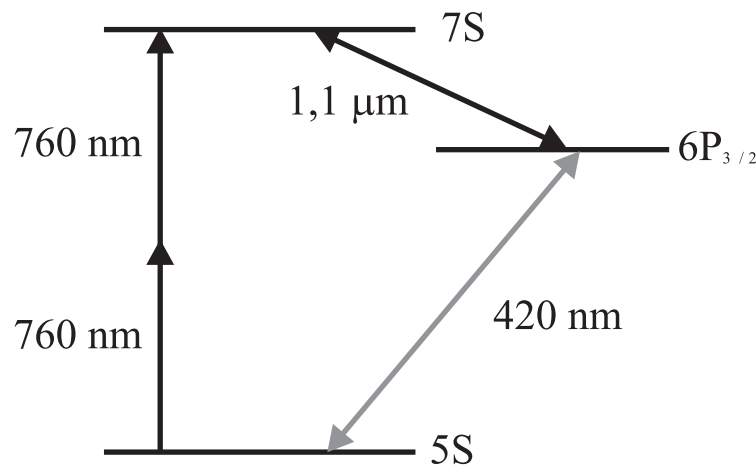


Figura 3.1 Diagrama com os níveis de energia do rubídio relevantes para o estudo da manipulação da fase em conjunto com o atraso temporal em uma transição de dois fótons. Estão indicados também os comprimentos de onda do laser que faz a transição de dois fótons e da fluorescência observada.

Diferente do experimento anterior, onde detectamos o feixe gerado pela coerência induzida no processo de MQO, neste experimento, a fluorescência gerada a partir do decaimento do nível $6P_{3/2}$ para o 5S é observada. Essa fluorescência, em 420 nm, é uma medida direta da população do nível mais excitado 7S. Os níveis de interesse para o experimento estão apresentados, esquematicamente,

na figura 3.1. Em particular, estudamos o comportamento desta fluorescência em função do atraso entre os pulsos, τ , que excitam a transição de dois fótons e em função da fase externa adicionada em um desses pulsos.

O experimento consiste em utilizar dois pulsos, temporalmente atrasados, para excitar uma transição de dois fótons. Para obtermos os pulsos que interagem com o sistema atômico, separamos um feixe proveniente de um laser de Ti:safira em dois. Um dos feixes passa através de uma linha de atraso, enquanto o outro se propaga através de um dispositivo experimental, denominado sintetizador de Fourier, que introduz uma fase extra em parte das componentes espectrais do mesmo.

Iremos começar o capítulo com a descrição do funcionamento do sintetizador de Fourier. Nesta primeira seção, vamos apresentar a montagem do sintetizador e descrever, matematicamente, a fase externa que esse dispositivo introduz no campo eletromagnético que se propaga através do mesmo.

Na seção 3.2, apresentaremos o aparato e os resultados experimentais obtidos. Nossos resultados mostram oscilações quânticas, oscilações no dobro da frequência do laser que excita a transição de dois fótons, $2\omega_L$, para valores do atraso temporal entre os pulsos nos quais deveríamos observar oscilações "ópticas", oscilações em ω_L . Esse fato evidencia, experimentalmente, que alguns caminhos quânticos acessíveis ao sistema, em uma transição de dois fótons, podem ser aniquilados utilizando-se uma combinação das técnicas de manipulação da fase do campo eletromagnético, e do controle temporal coerente. Em particular os caminhos quânticos destruídos são os que levam à criação das oscilações "ópticas".

Em seguida, utilizaremos o formalismo das amplitudes de probabilidade em conjunto com uma expansão perturbativa de segunda ordem no campo elétrico para descrever, teoricamente, a transição de dois fótons do nível fundamental para o nível excitado. Com a apresentação desses resultados, mostraremos como a introdução da fase externa em um dos pulsos, em conjunto com o atraso temporal, pode levar à aniquilação de alguns caminhos quânticos acessíveis ao sistema e assim confirmar, teoricamente, os resultados experimentais da seção anterior. Vale salientar que a fase externa, presente em um dos pulsos que excitam a transição de dois fótons, é proveniente da propagação do mesmo através de um meio material. Como foi visto na seção 1.6 do capítulo anterior, ao propagarmos um campo elétrico através de um meio dispersivo, podemos alterar a fase do mesmo.

3.2 Sintetizador de Fourier

O sintetizador de Fourier é um dispositivo utilizado para moldar a amplitude e/ou fase do campo eletromagnético de um pulso. Ele é constituído de um compressor de pulsos formado por um par de grades de difração e duas lentes dispostas em um mesmo eixo óptico, formando assim um telescópio de magnificação um [43]. No plano de Fourier do compressor é colocada uma máscara de amplitude e/ou fase. Seu nome advém do fato de que a modificação implementada no pulso por tal dispositivo é realizada no domínio espectral.

O objeto mais utilizado para a manipulação da amplitude/fase, é o modulador espacial de luz, *SLM* (do inglês, "Spatial Light Modulator"). Em geral, o *SLM* consiste de uma placa de cristal líquido, com diversos pixels, sendo que a tensão aplicada a cada um deles é controlada por computador. Variando-se a tensão, podemos alterar as grandezas físicas que governam a propagação da luz em meios materiais (e. g., índice de refração) de cada um dos pixels individualmente e assim moldar, dentro da resolução dos pixels presentes no *SLM*, a amplitude e/ou fase do campo que se propaga neste dispositivo.

Entretanto, o alto custo do *SLM* faz com que se busquem outras alternativas. As opções mais utilizadas são fendas ou meios materiais, colocados no plano de Fourier do compressor. Essas alternativas são mais viáveis que o *SLM*, porém limitam a forma das funções que podem ser aplicadas à amplitude/fase do campo elétrico, devido à dificuldade de se criar em fendas ou meios materiais que moldem a amplitude/fase com o formato de uma função arbitrária.

Na figura 3.2 mostramos, esquematicamente, o compressor de pulsos de par de grades, utilizado neste estudo. As grades do compressor possuem 1200 linhas/mm e as lentes têm foco igual a 10 cm. Ilustramos o plano de Fourier, o plano equidistante entre as duas lentes, e os eixos $\hat{x}$ e $\hat{y}$, sendo o eixo $\hat{z}$, o eixo de propagação do pulso através do compressor. Uma das principais utilidades do compressor de par de grades é compensar dispersões na velocidade de grupo do pulso, o que significa compensar o seu "chirp". Para que isso aconteça, as grades devem estar separadas por uma distância quatro vezes maior que sua distância focal, introduzindo um "chirp" positivo no pulso. Para se introduzir um "chirp" negativo, as grades devem estar separadas por uma distância menor que quatro vezes o seu foco.

Em nosso estudo, o compressor é utilizado apenas para dispersar as componentes de frequência do pulso que se propaga através do mesmo, ou seja, não queremos introduzir nenhum "chirp" no pulso, seja positivo ou negativo. Para que isso aconteça, as grades de difração devem estar separadas por uma distância igual a quatro vezes o foco das lentes e a distância entre cada uma das grades e a lente mais próxima deve ser igual à distância focal, como ilustra a figura 3.2. Esta dispersão nas frequências do pulso é importante, pois assim é possível introduzir uma fase extra em algumas das suas componentes espectrais, enquanto que outras componentes não recebem essa fase adicional.

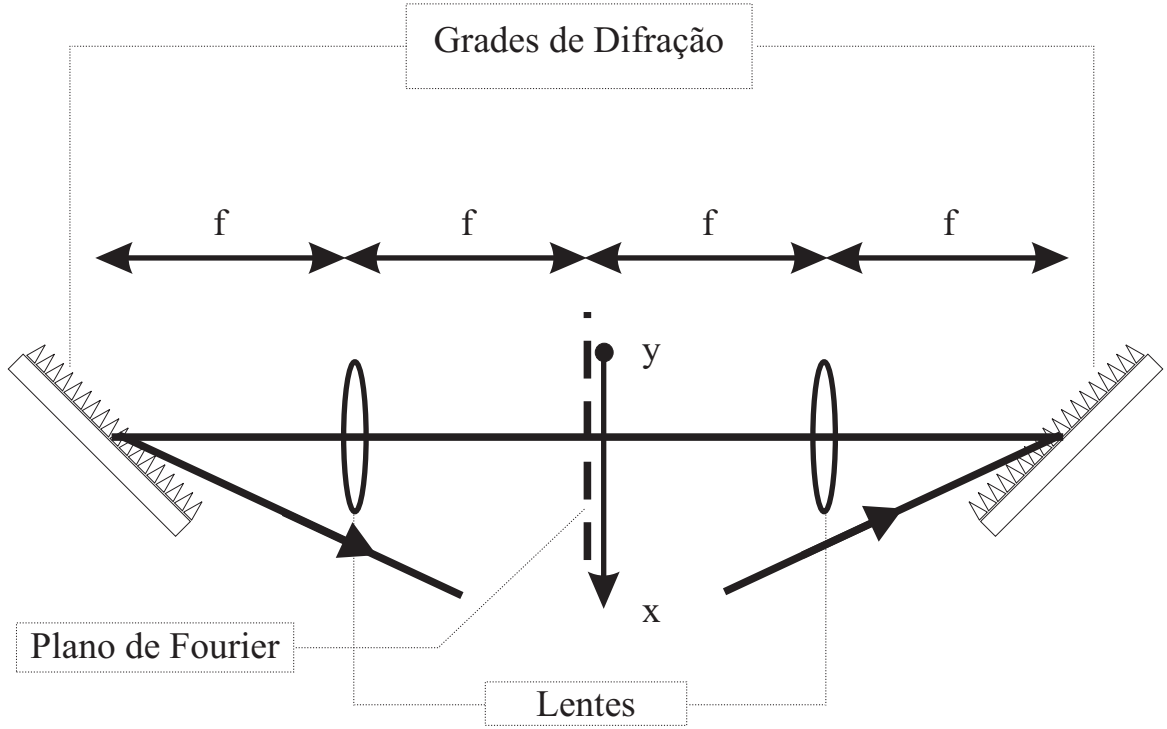


Figura 3.2 Compressor de pulsos de par de grades na configuração em que não se introduz nenhum "chirp" adicional ao pulso que se propaga pelo mesmo.

Para entendermos o funcionamento completo do compressor, vamos analisar separadamente cada um dos seus elementos. Quando um pulso de laser atinge a primeira grade, ele se dispersa, sendo cada uma das suas componentes de frequência difratadas para uma direção distinta, obedecendo a equação da grade [86]:

$$a(\sin\theta_d - \sin\theta_i) = m\lambda, \quad (3.1)$$

onde a é o parâmetro de difração da grade, igual a 1/1200 mm no nosso caso, θ_i e θ_d são os ângulos de incidência e de difração, respectivamente, e m é a m -ésima ordem de difração. A ordem de difração que é utilizada no compressor é a primeira ordem, de forma que podemos fazer sempre $m = 1$, na equação (3.1).

Quando os raios difratados atingem a primeira lente, eles são colimados e se propagam separados espacialmente até atingirem a segunda lente. Devido a essa separação espacial entre os raios difratados, que estão associados a diferentes componentes espectrais, é possível introduzir fases extras diferentes nas componentes espectrais do pulso. Isto é realizado através da utilização de uma lâmina de vidro, que possui um filme fino depositado em parte de sua superfície. Essa lâmina é colocada em uma posição equidistante das duas lentes, em um plano denominado de plano de

Fourier. Após a passagem pela lâmina, o pulso, dividido em vários raios de comprimentos de onda diferentes e já com a fase extra, atinge a segunda lente. Essa lente focaliza os diversos raios na segunda grade de difração que reúne espacialmente todas as componentes de frequência, revertendo assim o trabalho realizado pela primeira grade.

Em nosso estudo, utilizamos uma função de fase simples, a função degrau, a qual é introduzida no plano de Fourier do compressor. Esta função foi escolhida devido a dois fatores principais. O primeiro deles é sua fácil implementação experimental, sem a necessidade de se utilizar um *SLM* para isso. O segundo fator é que tal função é de simples modelagem teórica. Além desses fatores, tal função de fase já havia sido testada antes em trabalhos anteriores, demonstrando sua eficácia na manipulação dos caminhos quânticos acessíveis ao sistema [39, 48].

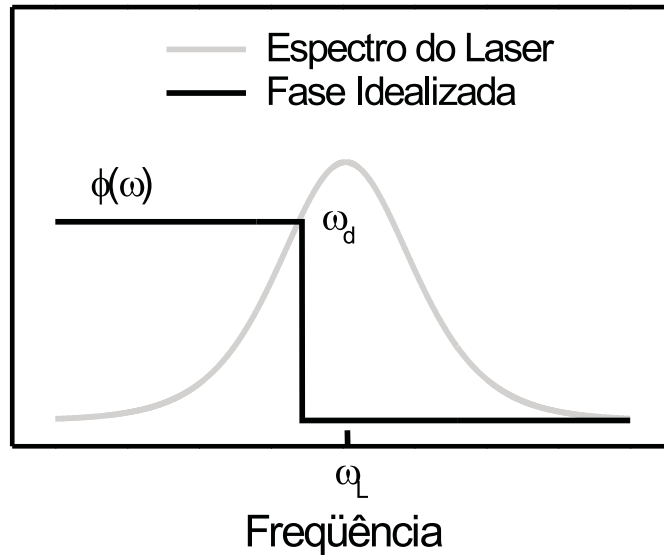


Figura 3.3 Fase extra introduzida no sintetizador de Fourier, no formato de uma função degrau (preto) e espectro do pulso (cinza).

Como parâmetros experimentais para a manipulação da fase do pulso, com a função degrau, utilizamos a frequência, ω_d , a partir da qual introduzimos o degrau da função de fase extra e a amplitude da função degrau, ϕ , que determina o valor da fase extra adicionada a uma parte das componentes espectrais do pulso. A figura 3.3 ilustra a função de fase extra introduzida no sintetizador de Fourier, em relação ao espectro do pulso do laser de Ti:safira.

3.3 Resultados Experimentais

Nesta seção, apresentaremos os resultados experimentais obtidos fazendo uso combinado das técnicas de manipulação da fase do pulso com o controle temporal coerente. Mostramos, experimentalmente, que com a escolha de uma determinada amplitude para a função degrau, que é a fase extra introduzida em um dos pulsos do experimento, é possível encontrar um atraso, τ , entre os pulsos que excitam a transição $5S \rightarrow 7S$ do rubídio, em que caminhos quânticos da transição de dois fótons são eliminados.

Os pulsos utilizados neste experimento são gerados por um laser de Ti:safira, com as seguintes características: comprimento de onda central, $\lambda_L = 760$ nm; largura de banda espectral, $\Delta\lambda = 6,5$ nm; potência média de 570 mW na saída do laser e taxa de repetição de 82 MHz.

Na figura 3.4, temos um esquema do aparato experimental. Os dois feixes, cujo atraso relativo é controlado, são definidos por um divisor de feixes colocado logo após a saída do laser de Ti:safira. Um dos feixes passa através de uma linha de atraso, onde adquire um atraso temporal τ , em relação ao segundo feixe, enquanto que esse último se propaga através do sintetizador de Fourier, a fim de receber uma fase externa. Vamos chamar de pulso 1 o pulso pertencente ao feixe que recebe o atraso temporal e pulso 2, o pulso que faz parte do feixe que recebe a fase externa. O atraso temporal é controlado por um motor de passo de resolução $0,1 \mu\text{m}$, o qual é comandado pelo computador através do dispositivo *Newport Motion Controller MM2500*. O percurso óptico dos dois pulsos é arranjado de tal forma que quando o motor de passo está na origem, os pulsos 1 e 2 percorrem a mesma distância. Assim, ao movermos o motor de passo para frente ou para trás, estamos adiantando ou atrasando o pulso 1 em relação ao pulso 2, respectivamente. O pulso 2, ao se propagar através do sintetizador de Fourier, recebe uma fase adicional ao atravessar a lâmina de vidro, sobre a qual é depositado um filme fino.

Após passarem pela linha de atraso e pelo sintetizador de Fourier, os pulsos 1 e 2 são superpostos em um segundo divisor de feixe. Os pulsos podem então seguir dois caminhos distintos, sendo a escolha de um ou outro feita pela inclusão ou retirada do espelho removível que se encontra presente no aparato experimental. Quando o espelho removível está presente no aparato experimental os pulsos 1 e 2 são direcionados a um cristal gerador de segundo harmônico, que é utilizado por nós para localizar o zero da linha de atraso, uma vez que quando os pulsos 1 e 2 se superpõem temporalmente, o sinal de segundo harmônico é maximizado. Quando o espelho removível não está presente na montagem, os feixes são focalizados no interior de uma célula de rubídio, por uma lente de 20 cm de foco. A célula de rubídio se localiza dentro de um forno, o qual foi aquecido até uma temperatura de aproximadamente 130°C , que corresponde a uma densidade de $3,4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$. O forno é o mesmo que utilizamos no experimento do capítulo 2.

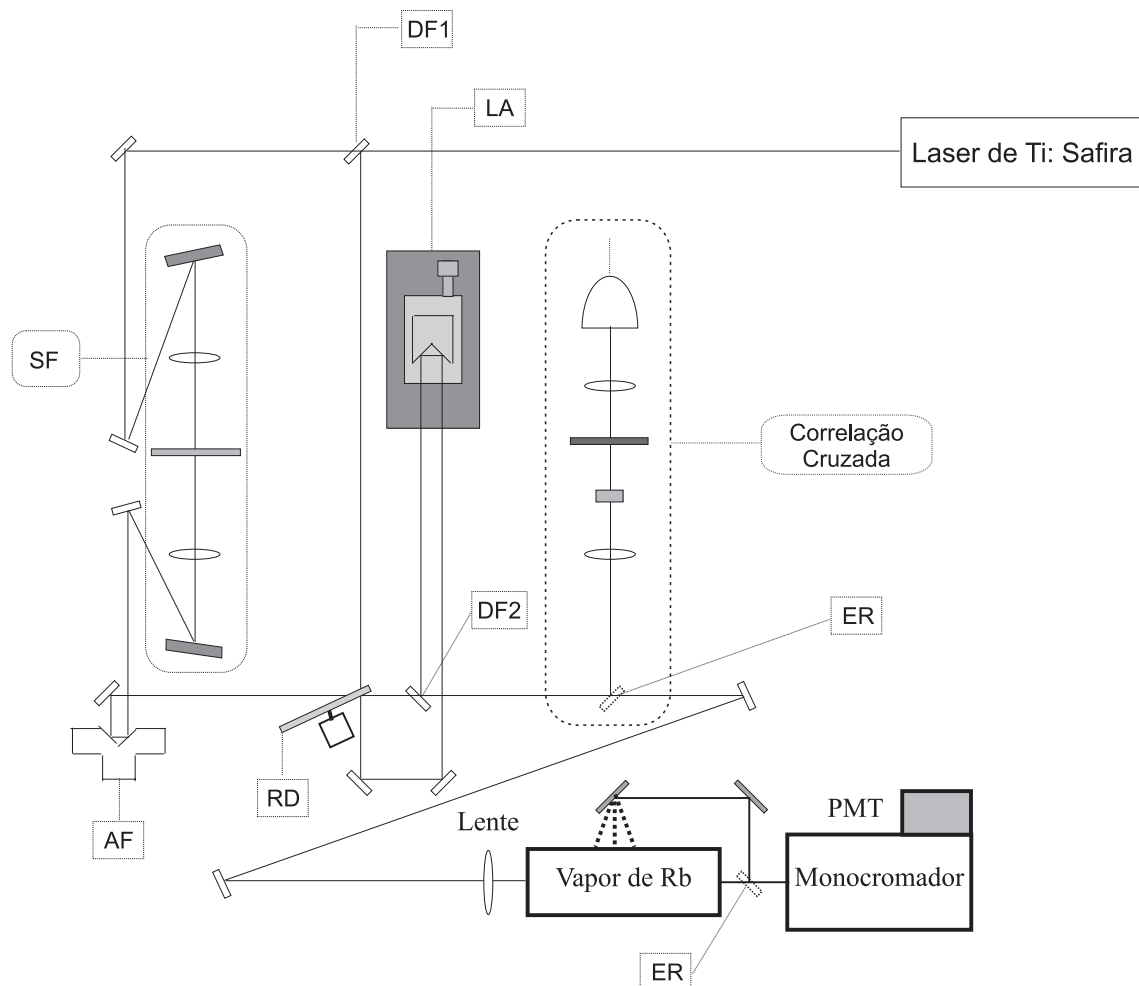


Figura 3.4 Montagem experimental utilizada para os experimentos de correlação cruzada colinear e de detecção da fluorescência. Os números 1 e 2 indicam os pulsos presentes no experimento, sendo o pulso 1 o que recebe o atraso temporal e o pulso 2 o que recebe a fase externa, ao se propagar pelo sintetizador de Fourier. Legenda: DF - Divisor de Feixes; SF - Sintetizador de Fourier; LA - Linha de Atraso; RD - Roda Dentada ("chopper"); ER - Espelho Removível; AF - Alto-Falante; PMT - Fotomultiplicadora.

Antes da superposição espacial dos feixes, fazemos com que ambos passem por uma roda dentada (*chopper*), para que os pulsos 1 e 2 recebam uma frequência de modulação, utilizada para sincronizar os dispositivos de detecção. Essa frequência pode ser a mesma para os dois pulsos ou distinta, dependendo de que tipo de medida estamos interessados em realizar. O *chopper* que utilizamos é formado por duas circunferências concêntricas, que modulam com frequências distintas os feixes que passam através de cada uma delas. Quando utilizamos a mesma frequência, estamos interessados em medir o sinal da absorção de dois fótons, independentemente de qual pulso esses fótons sejam provenientes. Quando a frequência de detecção é diferente para cada um dos pulsos, realizamos a detecção na soma dessas frequências, de forma a analisar apenas o sinal que depende da absorção de um fóton de cada pulso.

Como vimos no capítulo 2, a absorção de dois fótons pode acontecer de quatro formas diferentes: o sistema atômico absorve dois fótons do pulso 1, ou dois fótons do pulso 2, ou ainda, um fóton de cada pulso, podendo ser o primeiro fóton do pulso 1 e o segundo fóton do pulso 2 e vice-versa. As interferências quânticas e "ópticas" surgem da interferência entre esses quatro caminhos quânticos. A interferência quântica se deve à interferência entre os caminhos que absorvem 2 fótons de um mesmo pulso, caminhos A e D na figura 2.8. Já as interferências "ópticas" são devidas às interferências entre caminhos que absorvem dois fótons de um mesmo pulso e caminhos que absorvem um fóton de cada pulso, ou seja, interferências entre os caminhos A e B, A e C, B e D, e C e D da figura 2.8. A idéia central do experimento desse capítulo é utilizar a manipulação de fase, em um dos feixes, para evitar que os caminhos quânticos B e C se formem e assim prevenir a formação das interferências "ópticas".

O primeiro sinal investigado foi o sinal devido à contribuição de um fóton de cada pulso atrasado temporalmente. Para isso, cada um dos feixes é modulado por um *chopper* com frequências distintas e o sinal é detetado no *Lock-In*, na soma dessas frequências. Os resultados para a fluorescência parcial, i. e., o sinal de fluorescência que se deve apenas à absorção de um fóton de cada pulso, estão apresentados na figura 3.5. Nesta figura, a amplitude do degrau de fase utilizado foi $2,9\pi$ e as diversas curvas se referem a diferentes valores da posição na qual o degrau de fase é adicionado como fase extra às componentes espectrais do pulso:

$$\delta_\phi = \frac{\omega_d - \omega_L}{\Delta\omega}, \quad (3.2)$$

onde ω_d é a frequência de referência para a qual todas as componentes de frequência do pulso menores que ω_d recebem a fase extra, ω_L é a frequência central do laser de femtosegundo e $\Delta\omega$ é a largura espectral total à meia altura do máximo do pulso de femtosegundo.

A variação da frequência de referência ω_d foi feita através da variação da posição x da lâmina de vidro que se localiza no plano focal entre as duas lentes que constituem o sintetizador de Fourier. A calibração utilizada entre a coordenada x e a frequência de referência foi a mesma que a utilizada

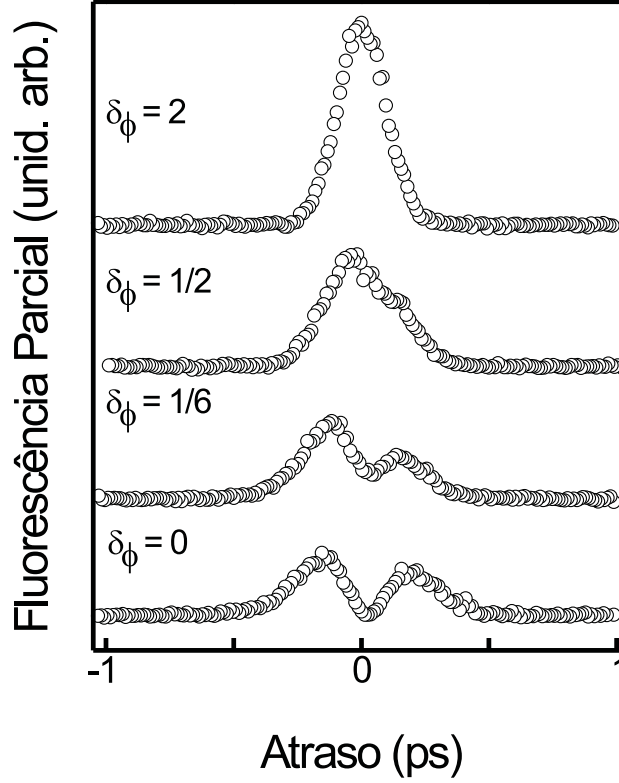


Figura 3.5 Fluorescência parcial em função de τ , para diferentes posições normalizadas da fase externa.

na referência [87].

Na figura 3.5, mostramos que, ao variarmos a posição δ_ϕ a partir da qual as componentes espectrais do pulso recebem uma fase extra de $2,9\pi$, é possível cancelar os dois caminhos quânticos B e C, que se devem à absorção de um fóton de cada pulso. Devido ao cancelamento de parte dos caminhos quânticos que contribuem para o sinal da absorção de dois fótons, chamamos a fluorescência observada de fluorescência parcial. O valor do degrau de fase adicionado em parte das componentes espectrais do pulso, igual a $2,9\pi$ nesta primeira parte dos experimentos, é obtido através de um ajuste da teoria aos resultados experimentais, que será descrito em detalhes na próxima seção. Partimos de uma situação em que nenhuma componente espectral recebe a fase extra, $\delta_\phi = 2$, até a situação em que exatamente metade das componentes espectrais recebem o degrau de

fase extra, $\delta_\phi = 0$, que corresponde a $\omega_d = \omega_L$.

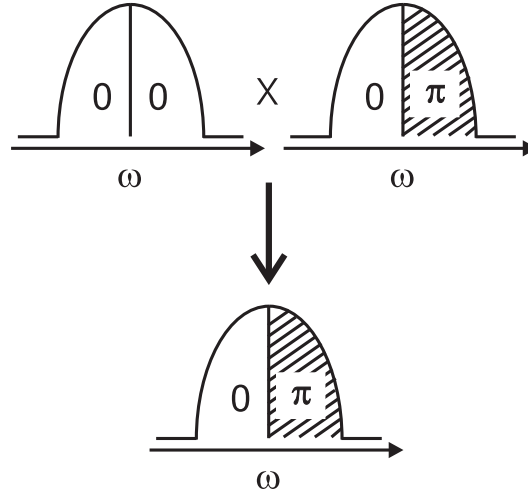


Figura 3.6 Representação esquemática da distribuição de fase, para $\tau = 0$, quando um dos pulsos possui uma amplitude do degrau de fase igual a π e o outro não possui fase extra (parte superior) e a distribuição espectral do produto desses dois pulsos (parte inferior).

O efeito de anulamento da transição de dois fótons pode ser entendido com o auxílio da figura 3.6. Estamos analisando uma transição de dois fótons em que um dos pulsos recebe uma fase de π , no nosso caso $2,9\pi$, em exatamente metade de suas componentes espectrais. Como é a integral do produto desses dois pulsos que determina a população do nível mais excitado, basta que metade das componentes espectrais deste produto tenha uma diferença de fase de π em relação à outra metade. Na situação descrita pela figura 3.6, há um mínimo na população do nível mais excitado. Este mínimo, porém, depende do valor do atraso, pois este também se manifesta como uma fase no campo elétrico. A influência do atraso temporal e da amplitude do degrau de fase na população do nível mais excitado ficará clara na análise teórica da seção 3.4.

A principal característica dos resultados apresentados na figura 3.5 é a comprovação experimental de que os caminhos quânticos B e C, da figura 2.8, podem ser anulados com a combinação adequada da fase extra e do atraso entre os pulsos. Dessa forma, deve ser possível prevenir a formação das oscilações "ópticas", uma vez que uma parte dos caminhos quânticos que interferem para originar essas oscilações não existem.

Para demonstrar que o conjunto de técnicas de manipulação de fase juntamente com o atraso entre os pulsos pode ser utilizada, de forma eficiente, para cancelar determinados caminhos quânticos acessíveis ao sistema, fizemos medidas da fluorescência total dos átomos. Nesse caso os feixes 1 e 2 possuem a mesma frequência de modulação no *chopper*. O resultado obtido para a variação

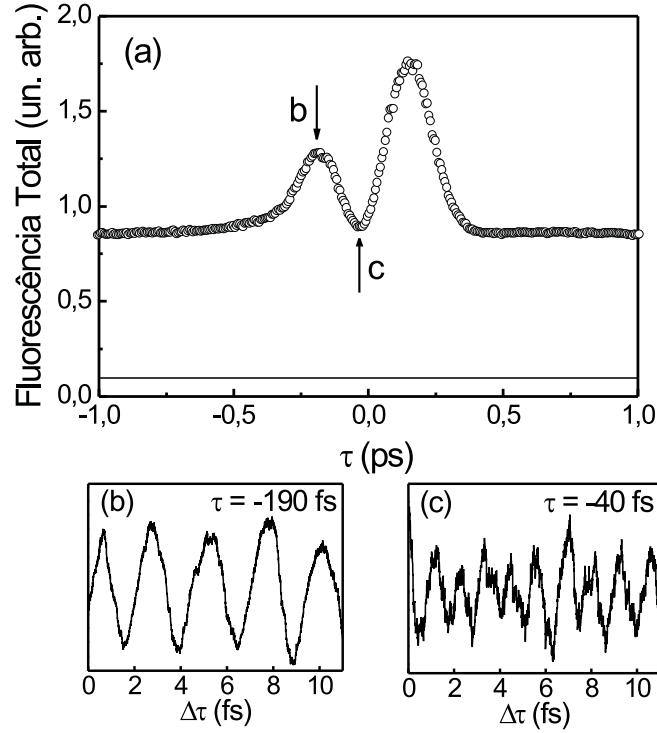


Figura 3.7 Variação da fluorescência total em função do atraso temporal entre os pulsos. (a) Varredura rápida em τ . Varreduras de alta precisão para (b) $\tau \approx -190$ fs e (c) $\tau \approx -40$ fs.

da fluorescência total em função do atraso temporal entre os pulsos, τ , para uma fase extra cuja amplitude do degrau é de $3,17\pi$ e $\delta_\phi = 0$, é apresentada na figura 3.7. No quadro (a), mostramos uma varredura rápida do atraso. Para esse valor da fase extra, a assimetria em um dos pulsos é compensada pelo atraso entre os pulsos quando $\tau \approx -40$ fs. Nesse valor do atraso temporal, a intensidade da fluorescência total apresenta um mínimo, com valores comparáveis aos da fluorescência para $\tau \geq 500$ fs, quando os pulsos estão totalmente separados temporalmente. Por outro lado, para $\tau \approx -190$ fs e $\tau \approx 140$ fs, quando a superposição temporal dos pulsos é menor que na origem dos atrasos, a intensidade da fluorescência apresenta máximos locais.

Nos quadros (b) e (c) da figura 3.7, temos os resultados de varreduras rápidas em τ , para dois valores diferentes deste atraso. Em $\tau \approx -190$ fs, quadro (b), observamos interferências "ópticas" com um período igual a 2,6 fs, que corresponde à frequência central do laser de Ti:safira, ω_L . Esse resultado indica que os quatro caminhos quânticos esquematizados na figura 2.8 estão pre-

sentes, i. e., para esse valor do atraso temporal, os dois pulsos ainda se sobrepõem temporalmente e a contribuição das interferências "ópticas" para a intensidade da fluorescência ainda é maior que a contribuição das interferências quânticas, apesar de não estarmos na origem do atraso temporal, $\tau = 0$. No quadro (c), temos um padrão com uma frequência de oscilação que corresponde ao dobro da frequência central do laser, $2\omega_L$, indicando a presença das interferências quânticas. A observação deste tipo de interferência, mesmo para valores do atraso temporal em que os dois pulsos se sobrepõem, é uma demonstração clara que os caminhos quânticos que envolvem a absorção de um fóton de cada pulso foram destruídos.

3.4 Modelo Teórico para a Transição de Dois Fótons

Nesta seção, discutiremos a excitação de um átomo de três níveis em cascata pelo campo de um par de pulsos do laser. O sistema atômico de interesse do presente capítulo não apresenta uma transição sequencial, porém pode ser tratada como um caso particular da teoria mais geral para o sistema de três níveis. Além disso, o sistema de níveis estudado no capítulo 4 consiste de um átomo de três níveis em cascata, de modo que a teoria desenvolvida aqui será utilizada também no próximo capítulo. Vamos obter expressões para o problema utilizando teoria de perturbação de segunda ordem nos campos presentes no sistema. Posteriormente, iremos relaxar a condição de um sistema atômico em cascata, para uma absorção de dois fótons sem ressonância intermediária e em seguida essas expressões serão empregadas na interpretação dos nossos resultados experimentais.

Na figura 3.8, apresentamos, esquematicamente, os níveis atômicos, as frequências das transições e as frequências do laser, envolvidos na absorção de dois fótons sem ressonância intermediária. Os estados $|1\rangle$, $|2\rangle$ e $|3\rangle$ utilizados no modelo teórico, correspondem aos níveis 5S, 5P e 7S do rubídio, respectivamente.

O hamiltoniano do sistema é a soma do hamiltoniano do átomo livre, $\hat{H}_0$, com o potencial dependente do tempo que descreve a interação do átomo com o campo, $\hat{V}(t)$, sendo dado por: $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}(t)$. O hamiltoniano do átomo livre é:

$$\hat{H}_0 = \hbar\omega_{12}|2\rangle\langle 2| + \hbar\omega_{13}|3\rangle\langle 3|, \quad (3.3)$$

onde ω_{12} e ω_{13} são as frequências que correspondem às energias das transições $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ e $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$, respectivamente. Na aproximação de dipolo elétrico, a interação entre o átomo e o campo pode ser escrita como:

$$\hat{V}(t) = -\mu_{12}E^*(t)|1\rangle\langle 2| - \mu_{23}E^*(t)|2\rangle\langle 3| + h.c., \quad (3.4)$$

onde μ_{12} e μ_{23} são os momentos de dipolo elétrico da primeira e segunda transições, respectivamente, $E^*(t)$ é o campo elétrico do laser e h. c. representa o hermitiano conjugado.

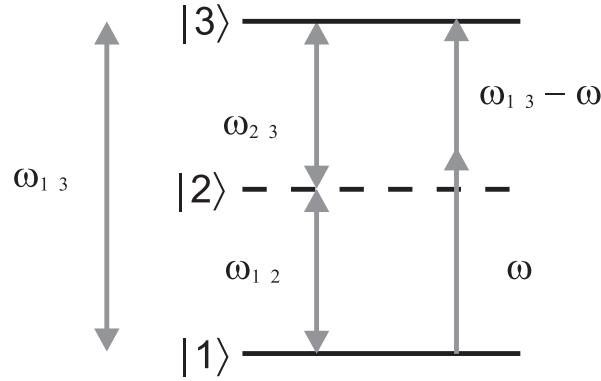


Figura 3.8 Estados atômicos envolvidos na transição de dois fótons sem ressonância intermediária, também apresentamos, esquematicamente, as frequências das transições atômicas e dos lasers.

Se $|\Psi(t)\rangle$ representar o estado do sistema em um instante de tempo t qualquer, na representação de Schrödinger, então esse estado na representação de interação é dado por:

$$|\Psi(t)\rangle_I = e^{i\hat{H}_0 t/\hbar} |\Psi(t)\rangle = c_1(t) |1\rangle + c_2(t) |2\rangle + c_3(t) |3\rangle, \quad (3.5)$$

onde $c_i(t)$ são os coeficientes da expansão da função de onda do sistema atômico em termos dos estados atômicos acessíveis e descrevem a evolução temporal desses estados atômicos.

Vamos considerar que o átomo está inicialmente no estado fundamental, logo:

$$|\Psi(0)\rangle_I = |\Psi(0)\rangle = |1\rangle. \quad (3.6)$$

A dinâmica de $|\Psi(t)\rangle_I$ é determinada pelo operador evolução temporal, que na representação de interação [88] é dada por:

$$\begin{aligned} \hat{U}_I(t) &= 1 - \frac{i}{\hbar} \int_0^t \hat{V}_I(t') \hat{U}_I(t') dt' \\ \hat{U}_I(t) &= 1 + \left(-\frac{i}{\hbar}\right) \int_0^t dt' \hat{V}_I(t') + \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^2 \int_0^t dt' \int_0^{t'} dt'' \hat{V}_I(t') \hat{V}_I(t'') + \dots, \end{aligned} \quad (3.7)$$

onde:

$$\hat{V}_I(t) = e^{i\hat{H}_0 t/\hbar} \hat{V}(t) e^{-i\hat{H}_0 t/\hbar}, \quad (3.8)$$

é o potencial de interação na representação de interação.

A grandeza investigada nos experimentos da seção anterior é a fluorescência associada ao nível mais excitado, a qual está diretamente ligada à população desse nível. Devemos, portanto, calcular o coeficiente que multiplica esse vetor de estado na expansão (3.5).

$$c_3(t) = \langle 3 | \Psi(t) \rangle_I = \langle 3 | \hat{U}_I(t) | \Psi(0) \rangle_I = \langle 3 | \hat{U}_I(t) | 1 \rangle. \quad (3.9)$$

Vamos considerar que o campo elétrico atuando no sistema atômico é fraco o bastante para que possamos aproximar $c_3(t)$ pelo termo de mais baixa ordem em sua expansão de potências do campo. Substituindo as expressões para $\hat{V}(t)$ e $\hat{U}_I(t)$ na equação (3.9) para $c_3(t)$ e retendo apenas o termo de mais baixa ordem, obtemos:

$$c_3(t) = -\frac{\mu_{12}\mu_{23}}{\hbar^2} \int_0^t dt' \int_0^{t'} dt'' e^{i\omega_{23}t'} E(t') e^{i\omega_{12}t''} E(t''), \quad (3.10)$$

onde $\omega_{23} = \omega_{13} - \omega_{12}$ é a frequência da transição entre os estados $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$.

Como vimos na seção 3.3, a manipulação dos campos elétricos que interagem com o sistema atômico é realizada modificando-se as componentes espectrais dos mesmos. Para que a descrição teórica seja realizada no domínio das frequências, devemos utilizar as equações (1.15) para obtermos as transformadas de Fourier dos campos da equação (3.10). Após a realização das transformadas de Fourier e considerando o estado estacionário, no qual tomamos o limite $t \rightarrow \infty$, podemos escrever o coeficiente $c_3(t)$ como [87]:

$$c_3(t \rightarrow \infty) = -\frac{\mu_{12}\mu_{23}}{i2\pi\hbar^2} \left[i\pi E(\omega_{12})E(\omega_{23}) + \mathcal{P} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{E(\omega)E(\omega_{13}-\omega)}{\omega_{12}-\omega} d\omega \right], \quad (3.11)$$

onde o símbolo $\mathcal{P}$ representa o valor principal de Cauchy.

Vamos agora analisar o caso em que não há ressonância intermediária. Nesta situação, a frequência ω_{12} não pertence ao espectro do pulso. Assim o primeiro termo da equação (3.11) não existe e também não há singularidades no denominador do segundo termo, pois ω não assume o valor ω_{12} . Desta forma podemos reescrever a equação (3.11) como:

$$c_3(t \rightarrow \infty) = \frac{i}{\hbar} Q_{13} \int_{-\infty}^{\infty} E(\omega)E(\omega_{13}-\omega) d\omega, \quad (3.12)$$

onde:

$$Q_{13} = \sum_n \frac{\mu_{3n}\mu_{n1}}{\hbar(\omega_{n1}-\omega_L)}, \quad (3.13)$$

é a constante de acoplamento efetiva da transição de dois fótons, como a descrita na equação (2.11).

O campo total que incide sobre o sistema é a soma dos campos elétricos dos pulsos 1 e 2, que recebem uma fase externa seja devido à propagação através de uma linha de atraso, seja devido à propagação pelo sintetizador de Fourier, respectivamente. Podemos, então, escrever o campo total como:

$$E(\omega) = E_1(\omega) + E_2(\omega), \quad (3.14)$$

onde:

$$E_1(\omega) = \varepsilon(\omega)e^{i\omega\tau}, \quad (3.15)$$

e:

$$E_2(\omega) = \varepsilon(\omega)e^{i\phi(\omega)}, \quad (3.16)$$

Estamos considerando que as amplitudes $\varepsilon(\omega)$ dos dois campos são iguais. A envoltória dos campos é dada por uma gaussiana e a fase extra $\phi(\omega)$ tem a forma de uma função erro. A função erro consiste de uma função degrau, como a apresentada na seção 3.2, "suavizada". Na figura 3.9 apresentamos, esquematicamente, a função erro que representa a fase externa adicionada pelo SF e o espectro do pulso.

Podemos, então, escrever a envoltória dos campos e a fase externa como:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_0 \exp \left[-2 \ln(2) \left(\frac{\omega - \omega_L}{\Delta\omega_p} \right)^2 \right], \quad (3.17)$$

e:

$$\phi(\omega) = FE \left(\frac{\omega - \omega_d}{\sigma} \right) \frac{(n-1)\omega d}{2c}, \quad (3.18)$$

onde ω_d representa o parâmetro que determina quais componentes espectrais do pulso serão afetadas pela fase e está associado à posição x da lâmina de vidro, n é o índice de refração do filme fino depositado sobre a lâmina, d é a espessura deste filme fino, c é a velocidade da luz no vácuo e FE indica a função erro, definida como:

$$FE(x) = 1 - \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x y^2 dy, \quad (3.19)$$

onde σ é o parâmetro que indica o quão abrupta é a mudança de derivada presente na função erro.

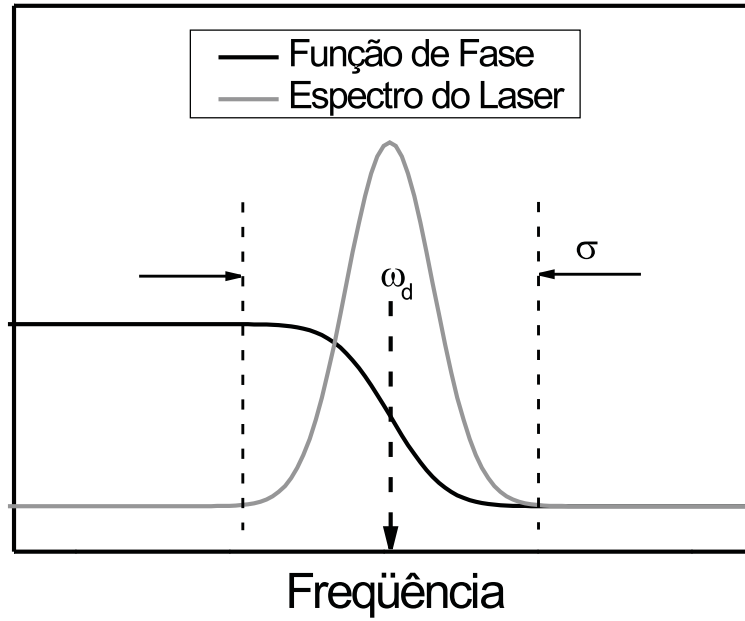


Figura 3.9 Fase externa (em preto) introduzida experimentalmente ao longo do espectro do pulso (em cinza). O parâmetro σ determina o quão abrupta é a descida da função erro usada como modelo para a função de fase introduzida no pulso através de sua propagação pelo SF.

Ao substituírmos o campo total na expressão (3.12) para o coeficiente c_3 , verificamos a presença de quatro termos diferentes, devido ao produto de $E(\omega)E(\omega_{13} - \omega)$. Esses termos estão associados aos diferentes caminhos quânticos possíveis em uma transição de dois fótons com pulsos atrasados temporalmente. Temos então:

$$c_3(\tau) = e^{i\omega_{13}\tau}F_{11} + e^{i\omega_{12}\tau}F_{12}(\tau) + e^{i\omega_{23}\tau}F_{21}(\tau) + F_{22}, \quad (3.20)$$

onde as funções F_{11} , $F_{12}(\tau)$, $F_{21}(\tau)$ e F_{22} , se referem aos caminhos quânticos A, B, C e D, da figura 2.8, respectivamente. Essas funções são definidas de forma a variar lentamente no tempo, quando comparadas com as oscilações interferométricas:

$$F_{11} = -\frac{\mu_{12}\mu_{23}}{i2\pi\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} \varepsilon(\omega)\varepsilon(\omega_{13}-\omega)d\omega, \quad (3.21a)$$

$$F_{12}(\tau) = -\frac{\mu_{12}\mu_{23}}{i2\pi\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} \varepsilon(\omega)\varepsilon(\omega_{13}-\omega)e^{i(\omega-\omega_{12})\tau}e^{i\phi(\omega_{13}-\omega)}d\omega, \quad (3.21b)$$

$$F_{21}(\tau) = -\frac{\mu_{12}\mu_{23}}{i2\pi\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} \varepsilon(\omega)\varepsilon(\omega_{13}-\omega)e^{-i(\omega-\omega_{12})\tau}e^{i\phi(\omega)}d\omega, \quad (3.21c)$$

$$F_{22} = -\frac{\mu_{12}\mu_{23}}{i2\pi\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} \varepsilon(\omega)\varepsilon(\omega_{13}-\omega)e^{i[\phi(\omega)+\phi(\omega_{13}-\omega)]}d\omega, \quad (3.21d)$$

As funções F_{11} e F_{22} , correspondem a caminhos quânticos referentes à absorção de dois fótons do mesmo pulso e não dependem, portanto, do atraso entre eles. Já as funções $F_{12}(\tau)$ e $F_{21}(\tau)$ dependem do atraso e tendem a zero para valores de τ distantes da origem. Isto se deve ao fato da transição em estudo não apresentar ressonância intermediária e, assim, necessitar de que os dois fótons se sobreponham temporalmente, para que tenhamos uma transição de dois fótons em que cada pulso contribua com a absorção de um fóton. Na figura 3.10 apresentamos o módulo quadrado da função $F_{12}(\tau)$, onde podemos observar as características mencionadas.

A população de um nível atômico é dada pelo quadrado do módulo da amplitude de probabilidade de o sistema se encontrar nesse nível, matematicamente:

$$\rho_{33}(\tau) = |c_3(\tau)|^2 = |e^{i\omega_{13}\tau}F_{11} + e^{i\omega_{12}\tau}F_{12}(\tau) + e^{i\omega_{23}\tau}F_{21}(\tau) + F_{22}|^2. \quad (3.22)$$

Através de uma mudança de variáveis é possível escrever $F_{21}(\tau)$ em função de $F_{12}(\tau)$, de modo que podemos reescrever a equação (3.22) como:

$$\rho_{33}(\tau) = |e^{i\omega_{13}\tau}F_{11} + 2e^{i\omega_{12}\tau}F_{12}(\tau) + F_{22}|^2, \quad (3.23)$$

logo:

$$\begin{aligned} \rho_{33}(\tau) = & |F_{11}|^2 + |F_{22}|^2 + 4|F_{12}(\tau)|^2 + \\ & F_{11}F_{22}^*e^{i\omega_{13}\tau} + F_{11}^*F_{22}e^{-i\omega_{13}\tau} + \\ & 2F_{11}F_{12}^*(\tau)e^{i\omega_{23}\tau} + 2F_{11}^*F_{12}(\tau)e^{-i\omega_{23}\tau} + \\ & 2F_{12}(\tau)F_{22}^*e^{i\omega_{12}\tau} + 2F_{22}F_{12}^*(\tau)e^{-i\omega_{12}\tau}. \end{aligned} \quad (3.24)$$

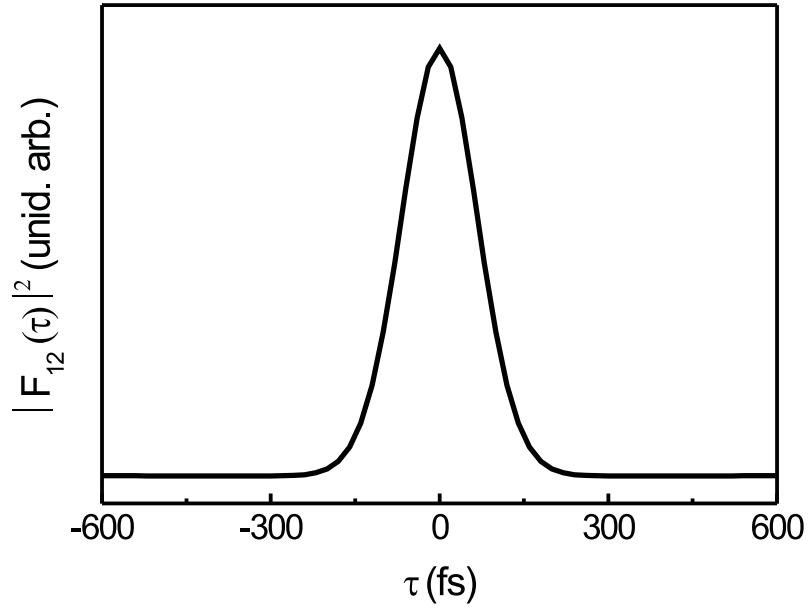


Figura 3.10 Módulo quadrado da função $F_{12}(\tau)$ para a situação em que não há fase extra introduzida no sintetizador de Fourier.

É importante notar as semelhanças do resultado expresso na equação (3.24) e o fator A da equação (2.23). Em ambos os resultados, temos oscilações na frequência da transição de dois fótons, ω_{13} e $\omega_3 + \omega_4$ nas equações (3.24) e (2.23), respectivamente, e oscilações em aproximadamente metade dessa frequência ω_{12} e ω_{23} na equação (3.24), e $(\omega_3 + \omega_4)/2$ na equação (2.23). Note também que as oscilações na metade da frequência de transição de dois fótons são maiores que a oscilação nessa frequência pelo mesmo fator, igual a quatro. Além disso, o fato das oscilações nas frequências de ressonância por um fóton possuírem sempre a função $F_{12}(\tau)$ como fator multiplicativo faz com que esse tipo de oscilação só exista quando os pulsos temporalmente atrasados se sobrepõem, assim como no resultado do capítulo 2, enquanto que, em ambos os resultados, as oscilações na frequência da transição de dois fótons existem para qualquer valor de τ . Isso pode ser visto na equação (3.24), pois as funções F_{11} e F_{22} independem do atraso entre os pulsos.

Na figura 3.11, reproduzimos, teoricamente, o resultado experimental da figura 3.7. Os parâmetros utilizados foram $\delta_\phi = 1/16$ e a amplitude do degrau de fase de $3,17\pi$. A escolha destes parâmetros se baseou no fato de conseguirmos fazer com que a fluorescência total fosse a um mínimo, com valores iguais aos obtidos quando o atraso entre os pulsos é muito maior que a superposição temporal dos mesmos, quando $\tau = -40$ fs, reproduzindo assim o resultado experimental. É

importante notar que um valor de $\delta_\phi = 1/16$ equivale a uma diferença de apenas 0,008 rad/fs entre ω_d e ω_L , de forma que não tínhamos controle experimental sobre uma variação tão pequena da frequência a partir da qual o degrau de fase é adicionado. Para a varredura na escala de ps, apresentada na figura 3.11a, tomamos a média sobre um período óptico da equação (3.24), de forma a podermos compará-la com a medida experimental. A média sobre um período óptico é obtida, a partir da equação (3.24), através da seguinte integral:

$$\langle \rho_{33}(\tau) \rangle_{opt.} = \frac{1}{T} \int_0^T \rho_{33}(t + \tau) dt. \quad (3.25)$$

Cada uma das funções F 's foi definida de forma a variar lentamente com o atraso temporal entre os pulsos, de tal forma que em um período óptico esta variação pode ser considerada nula. Podemos então retirar essas funções da integração restando apenas integrais de constantes e funções senos e co-senos, que se anulam ao efetuarmos a média sobre um período óptico. Logo, restam apenas os três primeiros termos da equação (3.24), que contribuem para o resultado do quadro (a) da figura 3.11.

Nos quadros (b) e (c), da figura 3.11, mostramos varreduras com resolução interferométrica, para um intervalo de $\Delta\tau = 11$ fs, em torno de -190 fs e -40 fs, respectivamente. Neste caso, não é necessária a realização da média sobre o período óptico da equação (3.24). Obtemos então uma reprodução dos quadros (b) e (c) da figura 3.7, em que observamos as oscilações em ω_L e $2\omega_L$.

Como vimos na figura 3.7, a medida experimental indica que o termo $4|F_{12}(\tau)|^2$ vai a zero, para $\tau = -40$ fs. Ao realizarmos uma medida com precisão interferométrica, em torno deste valor do atraso, em que os dois feixes possuem a mesma frequência de modulação, todos os termos da equação (3.24) estarão presentes, exceto os termos que possuem a função $F_{12}(\tau)$ como fator multiplicativo. Isso indica que os termos que oscilam nas frequências ω_{12} e ω_{23} serão iguais a zero, e portanto conseguimos anular os fatores que caracterizam as interferências "ópticas". Também é importante notar que os termos que caracterizam as interferências quânticas, termos que oscilam na frequência ω_{13} , permanecem inalterados devido à manipulação da fase dos pulsos.

Na figura 3.12, apresentamos o resultado teórico para o $|F_{12}(\tau)|^2$ quando utilizamos os mesmos valores dos parâmetros que os empregados na obtenção da figura 3.11. Podemos notar que para $\tau = -40$ fs o valor de $F_{12}(\tau)$ é praticamente nulo e assim os termos que foram multiplicados por essa função são muito menores que os demais termos presentes na equação (3.24). Dessa forma, verificamos teoricamente que a introdução da fase externa leva ao cancelamento dos termos que caracterizam as oscilações "ópticas", e assim como no caso experimental, as oscilações quânticas permanecem inalteradas.

Logo, através da introdução de uma fase externa em um dos pulsos que realiza uma transição de

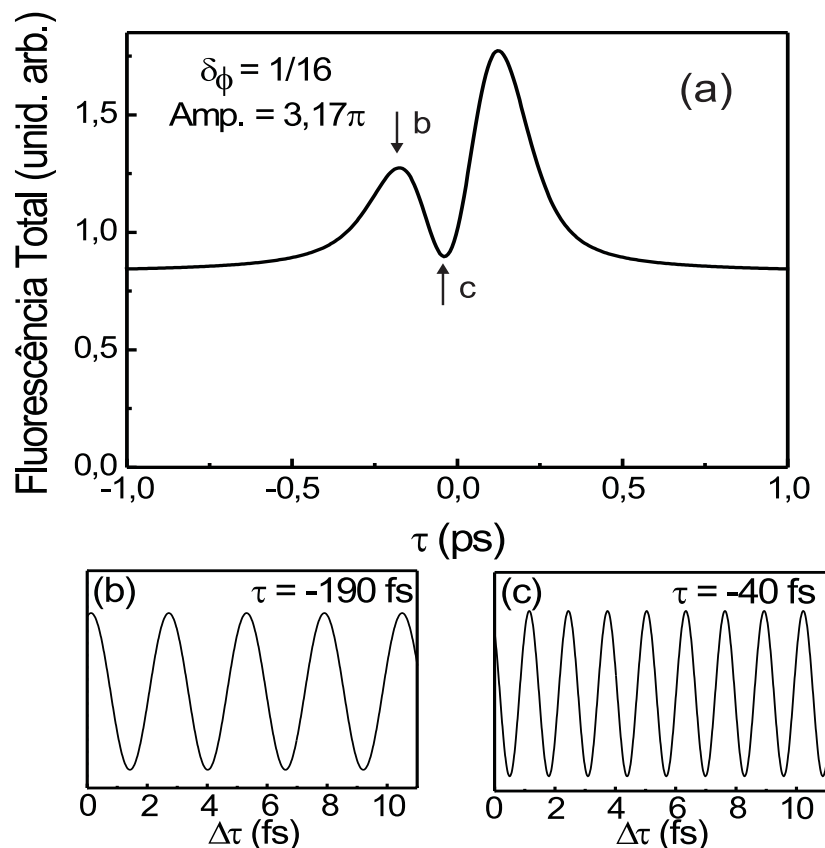


Figura 3.11 Gráficos teóricos para a intensidade total da fluorescência, (a) para varreduras rápidas em τ , (b) e (c) para varreduras com precisão interferométrica no atraso, em torno de -190 fs e -40 fs, respectivamente.

dois fótons com pulsos atrasados temporalmente, em conjunto com um atraso específico, é possível anular os caminhos quânticos que interferem levando às oscilações em frequências próximas à frequência do laser que excita a transição de dois fótons, ω_L , sem, no entanto, alterar os caminhos quânticos que inteferem, levando à oscilações no dobro dessa frequência. Ou seja, ao aplicarmos um degrau de fase qualquer à metade das componentes de frequência do espectro do pulso, é sempre possível obter um valor do atraso para o qual as oscilações "ópticas" são destruídas. O estudo realizado neste capítulo encontra-se na referência [89].

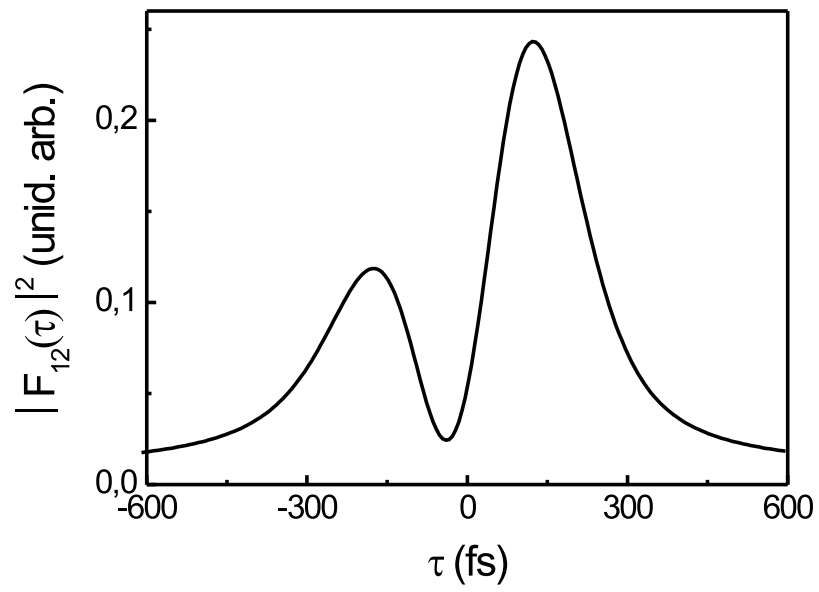


Figura 3.12 Módulo quadrado da função $F_{12}(\tau)$ para $\delta_\phi = 1/16$ e a amplitude do degrau de fase de $3,17\pi$.

Mistura Paramétrica de Quatro Ondas

4.1 Introdução

Neste capítulo, discutiremos uma série de resultados experimentais relativos ao controle temporal coerente, observado através de um sinal de Mistura Paramétrica de Quatro Ondas (MPQO), envolvendo uma transição seqüencial em um sistema de quatro níveis do átomo de rubídio. Utilizaremos a configuração mais simples para o controle temporal coerente, ou seja, um único par de pulsos, a mesma utilizada nos capítulos anteriores. A transição seqüencial que iremos estudar é a $5S \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 5D$, que pode decair para o nível fundamental do rubídio através da transição $5D \rightarrow 6P_{3/2} \rightarrow 5S$. O sinal observado tem comprimento de onda igual a 420 nm e corresponde à transição entre os níveis $6P_{3/2} \rightarrow 5S$. Também iremos analisar o sinal da fluorescência gerado pela população do nível 5D, de modo a comparar suas características com o sinal da MPQO.

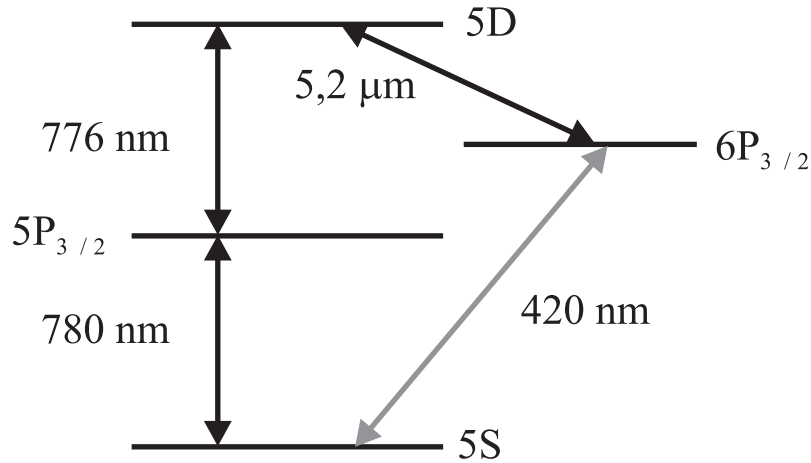


Figura 4.1 Diagrama com os níveis de energia do rubídio relevantes para o estudo da MPQO. Estão indicados também os comprimentos de onda de todas as transições atômicas.

Os campos que excitam o sistema atômico transferem população para o nível 5D. O sistema

pode então relaxar para o nível fundamental através da emissão espontânea entre os níveis 5D e $6P_{3/2}$, e $6P_{3/2}$ e 5S, gerando o sinal de fluorescência em 420 nm que corresponde a um dos sinais analisados no estudo deste capítulo. Em um outro processo, quando o campo associado à transição entre os níveis 5D e $6P_{3/2}$ se propaga pelo meio, sofre um processo de amplificação estimulada, devido à transferência de população para o nível 5D. Esse tipo de amplificação de um sinal de emissão espontânea é denominada na literatura de Emissão Espontânea Amplificada (ASE, do inglês "*Amplified Spontaneous Emission*") e iremos utilizar essa nomenclatura no decorrer deste capítulo.

Na seção 4.2, discutiremos os resultados experimentais obtidos quando não existe atraso temporal entre o par de pulsos que excita a transição seqüencial. A idéia é explicitar as principais diferenças entre o sinal proveniente da MPQO e o sinal de ASE, sem a introdução de um fator complicador que é o atraso temporal entre os pares de pulsos. Iremos mostrar que esses sinais têm características diferentes com relação à polarização, propagação e intensidade.

Os resultados experimentais, em função do atraso temporal entre os pares de pulsos, serão apresentados na seção 4.3. Na primeira parte, mostraremos medidas realizadas quando a variação do atraso temporal acontece com precisão interferométrica, i. e., temos resolução temporal suficiente para observar oscilações, cujas frequências são da mesma ordem de grandeza da frequência do laser que excita a transição seqüencial. Estudaremos o comportamento dessas oscilações em função do atraso temporal e da polarização entre os pulsos que excitam a transição seqüencial. Embora a situação experimental discutida aqui seja muito semelhante ao estudo do capítulo 2, veremos que, a análise para as diferentes polarizações, quando comparadas com o sinal da fluorescência, leva a uma discussão mais clara sobre as interferências quânticas.

A segunda parte dos resultados experimentais da MPQO em função do atraso temporal entre os pulsos consiste de medidas onde a variação temporal deste atraso entre os pares de pulsos ocorre na escala de dezenas de fentosegundos, de modo que não é possível observar as oscilações interferométricas. Nesse conjunto de medidas, iremos mostrar que a excitação de uma transição seqüencial possui várias características bem distintas da excitação de uma transição de dois fótons direta, como as realizadas nos capítulos anteriores. Uma dessas características, um batimento que varia com a densidade da amostra, é esclarecida com o auxílio da teoria de propagação linear, discutida na seção 1.5.

Para explicarmos a presença de outro batimento (em torno de 470 fs) no sinal de MPQO é necessário levarmos em conta efeitos acumulativos no sistema atômico. Felinto e colaboradores [62] desenvolveram um tratamento, baseado nas equações de Bloch, para um sistema atômico de três níveis, que leva em conta acumulação em todas as populações e coerências presentes no sistema atômico. Apresentamos aqui um tratamento baseado no formalismo de amplitudes de probabilidade que permite chegar às mesmas equações. Para isso, também utilizamos um sistema com

apenas três níveis e tratamos os campos perturbativamente. A comparação desta teoria com os resultados experimentais mostra uma concordância bastante razoável, apesar das simplificações no modelo teórico.

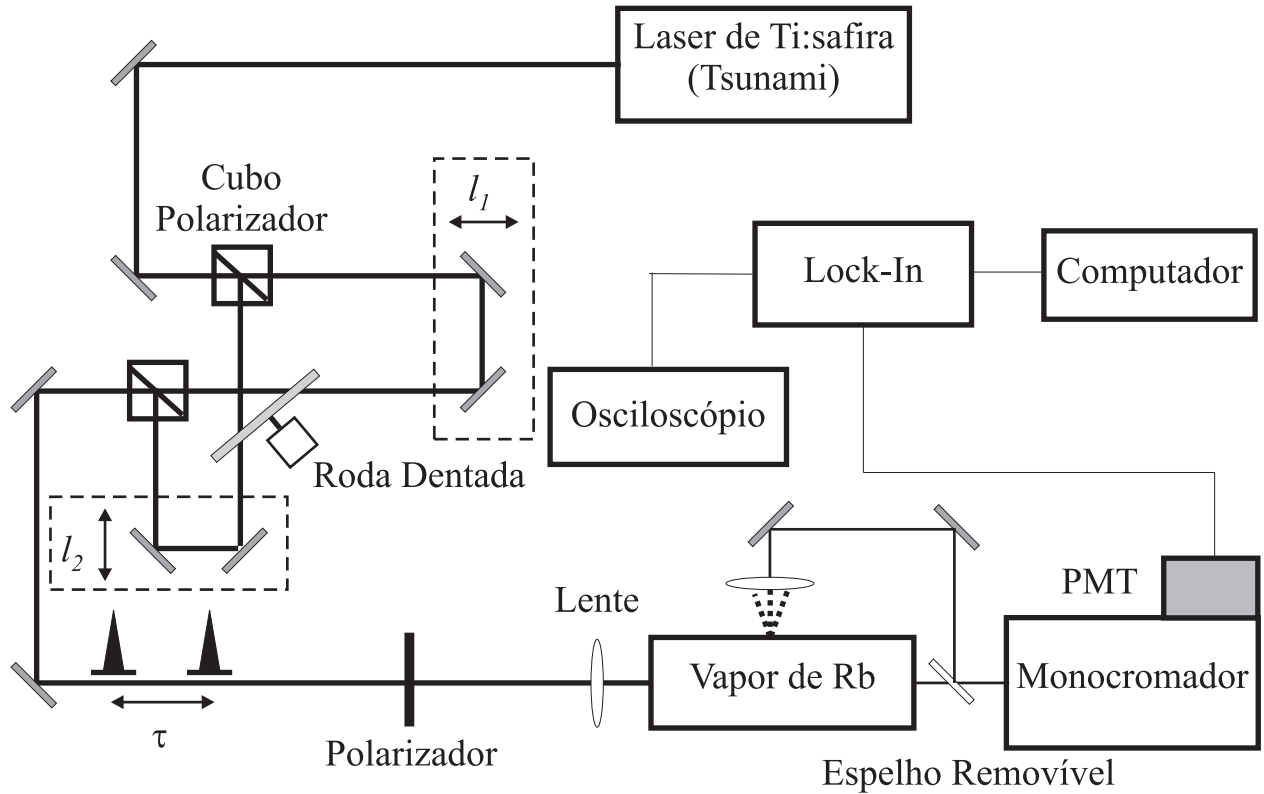


Figura 4.2 Aparato experimental. O polarizador após as linhas de atraso pode ser colocado ou removido com o intuito de modificar as polarizações dos pulsos que incidem no vapor de Rb. O mesmo acontece com o espelho na entrada do monocromador, para coletarmos a emissão do vapor para frente ou a 90° , respectivamente.

O aparato experimental utilizado nos estudos apresentados ao longo deste capítulo é apresentado na figura 4.2. Os pulsos de luz se originam de um laser de Ti:safira com 82 MHz de taxa de repetição e comprimento de onda central, $\lambda_L = 778$ nm. Eles têm cerca de 100 fs de duração e alguns nanojoules de energia. O laser utilizado no presente estudo é o mesmo laser do capítulo anterior. Os pares de pulsos são obtidos pela passagem por uma linha de atraso, cujos braços podem ter seus comprimentos, l_1 e l_2 , variados. Em cada um dos braços da linha de atraso existe uma roda dentada, *chopper*, que introduz uma frequência de modulação no trem de pulsos que se propaga através do mesmo. A frequência introduzida pelo *chopper* pode ser a mesma nos dois braços, quando estamos interessados em medir o sinal total de absorção de dois fótons, ou podemos mo-

dular cada um dos braços com frequências diferentes, quando estamos interessados apenas no sinal devido à absorção de um fóton de cada braço da linha de atraso. Os feixes são então superpostos e atravessam uma célula de rubídio cuja temperatura é variada, permitindo o controle da densidade atômica [90]. O feixe de laser é focalizado na entrada do forno por uma lente de 20 cm de distância focal, de modo que seu foco se encontra no meio da célula. A cintura do feixe no foco é de cerca de $70\ \mu\text{m}$. O sinal em 420 nm é coletado na direção para frente, a 90° e para trás, em relação ao feixe do laser de Ti:safira. Nos três casos, o sinal é analisado por um espectrômetro e detectado por uma fotomultiplicadora. Em seguida, o sinal é enviado para um amplificador *lock-in*, que o remete então para o computador. Os experimentos descritos neste capítulo consistem em medir a variação dessa intensidade no azul em função do atraso entre os pares de pulsos, que excitam a transição sequencial.

A necessidade de variar ambos os braços da linha de atraso vem das duas diferentes escalas temporais em que ocorrem as variações do sinal da MPQO e da fluorescência: a escala dos batimentos interferométricos nas frequências ópticas do sistema, e a escala em que observamos os efeitos de propagação e de acumulação em centenas de fentosegundos. Num dos braços, portanto, temos um translador que controla o atraso temporal com uma resolução de cerca de 0,67 fs, que é *insuficiente* para distinguir os batimentos interferométricos, que têm cerca de 1 fs de duração, mas permite variar o atraso em até dezenas de picosegundos. Vamos utilizar a letra grega τ para denominar o atraso temporal nessa escala. No outro braço, temos um alto-falante que gera vibrações rápidas em torno de um certo atraso fixo. O sinal aplicado ao alto falante, que é uma senóide com frequência em torno de 195 Hz, é utilizado para sincronizar um osciloscópio. Observando o centro da rampa de variação do atraso no osciloscópio temos um sinal que corresponde a várias varreduras consecutivas. Utilizamos um osciloscópio que permite gravar a tela, de modo que é possível obter o resultado de uma única varredura devido à vibração do alto-falante. Esta varredura tem resolução suficiente para distinguir os batimentos interferométricos. Para diferenciar a variação de um dos braços em relação ao outro, vamos utilizar $\delta\tau$ para designar as varreduras do braço de maior resolução.

4.2 Mistura Paramétrica de Quatro Ondas (MPQO) sem Atraso Temporal

Nesta primeira seção, apresentaremos resultados experimentais para o sinal em 420 nm sem o atraso temporal entre os pulsos. Nosso objetivo é diferenciar o sinal gerado no processo de MPQO do sinal gerado no processo de ASE.

O aparato experimental utilizado nas medidas sem o atraso temporal entre os pulsos é mostrado, esquematicamente, na figura 4.3. Ele consiste, basicamente, do mesmo aparato apresentado na

figura 4.2, do qual foi removida a linha de atraso. Uma outra modificação é o fato de podermos coletar o sinal em 420 nm contrapropagante ao feixe do laser de Ti:safira. Também introduzimos dois polarizadores, um na entrada da célula de rubídio e o outro na entrada do espectrômetro, que iremos chamar de analisador, de modo que podemos comparar a polarização do sinal em 420 nm com a polarização do laser de Ti:safira.

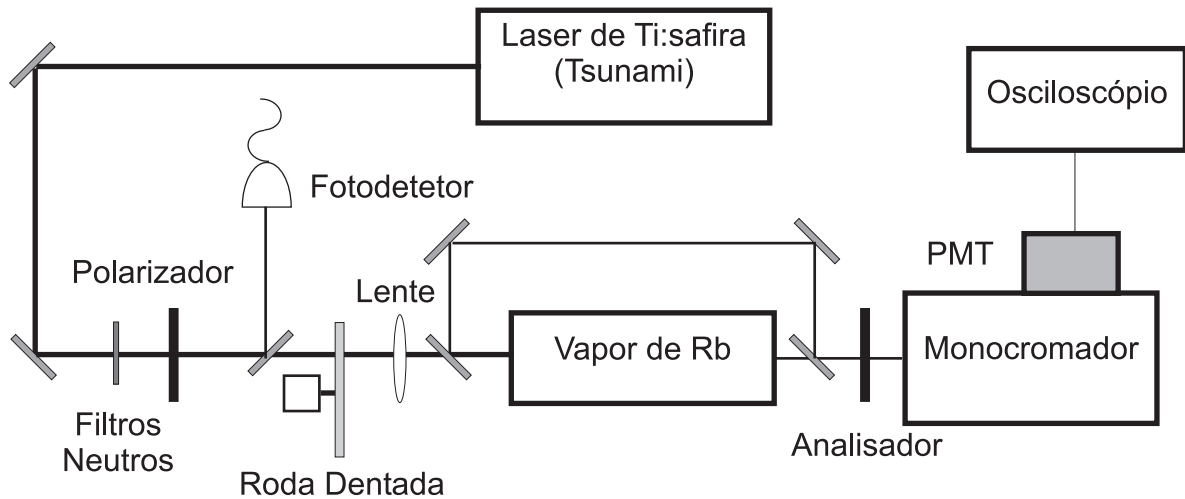


Figura 4.3 Aparato experimental utilizado nas medidas sem atraso temporal. O espelho na entrada da célula de rubídio pode ser colocado ou removido com o intuito de coletarmos a emissão em 420 nm copropagante ou contrapropagante ao feixe do laser de Ti:safira, respectivamente.

O comportamento do sinal em 420 nm, devido aos processos de MPQO e de ASE, foi estudado em função da potência do laser e em função da densidade do vapor de rubídio. O controle da intensidade do feixe incidente foi feito utilizando-se filtros neutros e a medida dessa intensidade foi realizada no fotodetetector, antes da entrada na célula de rubídio. Por ser um processo coerente, a MPQO é copropagante ao feixe do laser que excita o sistema. A medida do sinal de ASE foi realizada na direção contrapropagante ao feixe desse laser, para evitar contribuições do processo de MPQO.

Na figura 4.4(a), mostramos a variação da intensidade do sinal em 420 nm em função da densidade do vapor de rubídio para uma potência fixa do laser que excita o vapor, $P_L = 200$ mW. Temos o comportamento do sinal de MPQO quando o polarizador e o analisador são paralelos, cujos pontos no gráfico são representados por quadrados, e perpendiculares, que têm os pontos no gráfico representados por círculos. Na figura 4.4(b), utilizamos a mesma configuração para analisar o sinal devido ao ASE.

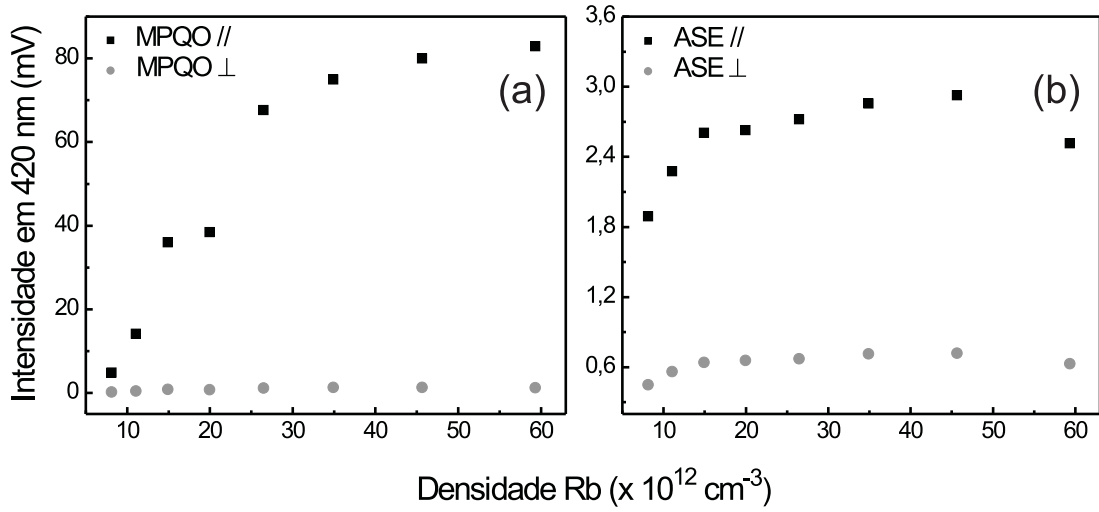


Figura 4.4 Intensidade do sinal em 420 nm, para: (a) o sinal copropagante (MPQO) e (b) contrapropagante (ASE) ao laser de Ti:safira. As medidas de intensidade foram realizadas em função da densidade do vapor atômico para uma potência fixa do laser de Ti:safira = 200 mW.

O fato de o sinal de MPQO ser muito mais intenso no caso em que o polarizador e o analisador são paralelos em comparação a quando estes são perpendiculares indica que o sinal gerado em 420 nm é polarizado com a mesma polarização do feixe incidente. Este comportamento é característico de um processo coerente e está de acordo com os estudos das referências [72, 73, 91, 92]. Em particular, Zhu e colaboradores [73], estudaram a mesma transição atômica com lasers de centenas de femtosegundos e dezenas de nanosegundos de duração temporal e o sinal em 420 nm, resultante da interação dos pulsos dos lasers com a transição atômica, foi caracterizado como sendo proveniente de um processo de MPQO.

Em um outro trabalho, Boyd e colaboradores [72] mostram que a excitação por dois fótons, entre os níveis $3S \rightarrow 3D$ do sódio, pode levar ao ASE, entre os níveis $3D \rightarrow 3P$ e depois entre os níveis $3P \rightarrow 3S$, concomitantemente com um processo de MPQO entre os mesmos níveis citados. O processo de MPQO leva à criação de fótons nas frequências das transições atômicas entre os níveis $3S$ e $3P$, e entre os níveis $3P$ e $3D$. Uma vez que temos a presença de fótons com essas frequências, o sistema atômico pode absorvê-los, de modo a criar um novo caminho quântico para a absorção de dois fótons entre os níveis $3S$ e $3D$. Os autores mostram que a interferência entre os caminhos quânticos, devido à absorção de dois fótons do laser que excita inicialmente o sistema e devido à absorção de dois fótons gerados no processo de MPQO, leva a uma interferência destrutiva que impede a transferência de população para o nível $3D$ e, assim, o processo de ASE para frente

é suprimido. Esse mesmo tipo de interferência pode acontecer em nosso sistema, de modo que o sinal copropagante, observado quando o polarizador e o analisador são paralelos se deve a um processo de MPQO.

No caso do sinal contrapropagante, não é possível obtermos a condição de casamento de fase e assim não podemos observar um sinal coerente. Quando levamos em conta o fato de que o espelho utilizado na reflexão do sinal contrapropagante na saída da célula de rubídio tem uma direção de polarização preferencial, obtemos a mesma intensidade para o sinal contrapropagante, quando o polarizador e o analisador estão na configuração paralela ou perpendicular, indicando que o sinal gerado neste processo não é polarizado, característica de um processo de ASE.

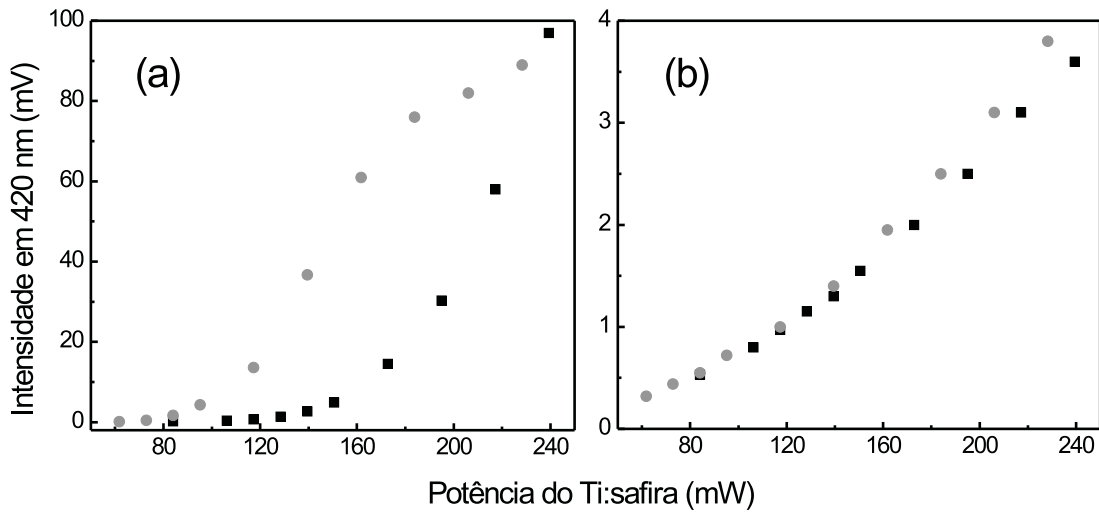


Figura 4.5 Intensidade em 420 nm, para o sinal de MPQO, quadro (a), e para o sinal de ASE, quadro (b). As medidas de intensidade foram realizadas em função da potência do laser de Ti:safira para dois valores distintos da densidade do vapor de rubídio, $N \approx 1.5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ (quadrados) e $N \approx 4.6 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ (círculos).

A partir de agora, vamos nos concentrar nos sinais de MPQO e ASE quando o polarizador e o analisador são paralelos. A figura 4.5 mostra a variação da intensidade do sinal em 420 nm em função da potência do Ti:safira, para dois valores distintos da densidade do vapor atômico. No gráfico, para o sinal de MPQO, figura 4.5(a), podemos notar que a intensidade do sinal em 420 nm se mantém praticamente constante, até um certo valor de limiar da potência do laser de Ti:safira e a partir daí começamos a ter um processo de ganho. Vemos que este valor de limiar depende da densidade atômica e que diminui conforme a densidade aumenta. Por exemplo, para $N \approx 1,5$

$\times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$, a potência de limiar é de $\approx 160 \text{ mW}$, enquanto que para $N \approx 4,6 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ a potência de limiar tem seu valor reduzido para $\approx 100 \text{ mW}$. Também podemos observar um efeito de saturação do sinal para a curva de maior densidade.

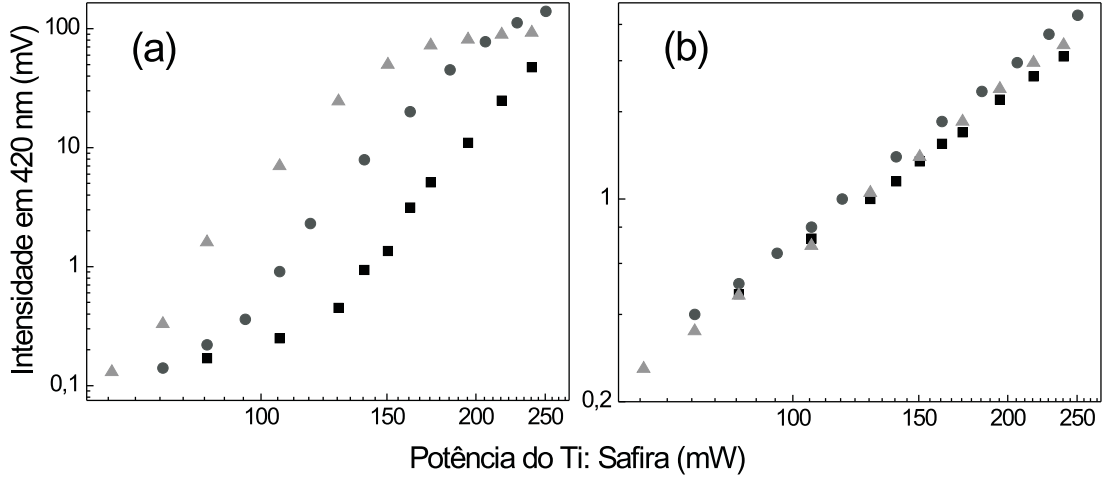


Figura 4.6 Gráficos, em escala logarítmica, da intensidade do sinal gerado em 420 nm, para o sinal de MPQO, quadro (a), e para o sinal de ASE, quadro (b). As medidas de intensidade foram realizadas em função da potência do laser de Ti:safira para três valores distintos da densidade do vapor de rubídio, $N \approx 1,1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ (quadrados), $N \approx 2,7 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ (círculos) e $N \approx 5,9 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ (triângulos).

Um formalismo teórico que explica os processos de ganho e saturação do sinal de MPQO pode ser obtido utilizando-se as equações de Maxwell, linearizadas, para descrever a evolução dos campos gerados nesse processo em função da distância percorrida no meio atômico [9]. Essa teoria prevê uma dependência do tipo cosseno hiperbólico com a intensidade do campo que excita a transição atômica quando o sistema não apresenta efeitos de saturação e um comportamento do tipo tangente hiperbólica quando a saturação é levada em consideração.

No gráfico do sinal de ASE, apresentado na figura 4.5 (b), verificamos o mesmo comportamento para os dois valores da densidade do vapor de rubídio. É importante observar as escalas dos dois gráficos apresentados: a intensidade da MPQO, quadro (a), é cerca de duas ordens de grandeza maior que a intensidade do ASE, quadro (b), indicando que a MPQO sofre um processo de ganho ao se propagar no interior do vapor atômico.

A dependência do sinal gerado com a intensidade do feixe incidente pode ser melhor visualizada num gráfico $\log \times \log$, conforme apresentado na figura 4.6, para três densidades atômicas

distintas. No caso do sinal de ASE, as três curvas apresentam a mesma dependência quadrática com a intensidade do feixe incidente. Esse resultado é esperado teoricamente, pois estamos analisando uma transição de dois fótons. Já no gráfico para o sinal de MPQO, verificamos uma mudança na curva ao aumentarmos a densidade atômica. Para a densidade mais baixa, é possível observar que há uma potência de limiar a partir da qual a inclinação da curva aumenta. Nas demais curvas, notamos que a potência de limiar diminui com o aumento da densidade e que o sinal satura.

É importante observar, nas figuras 4.5 e 4.6, os valores da intensidade do laser de Ti:safira que levam à saturação do sinal de MPQO e sua relação com a densidade atômica. Para os valores de maior densidade atômica apresentados, $N = 4,6 \times 10^{13} \text{cm}^{-3}$ e $N = 5,9 \times 10^{13} \text{cm}^{-3}$, o efeito de saturação é observado para potências acima de 150 mW. Este resultado será importante na análise do sinal quando variamos o atraso entre os pulsos.

4.3 Mistura Paramétrica de Quatro Ondas com Atraso Temporal

4.3.1 Oscilações Interferométricas

Nesta seção, apresentaremos os resultados experimentais obtidos para varreduras da linha de atraso com resolução temporal suficiente para observarmos as oscilações interferométricas. Utilizando a nomenclatura definida na introdução deste capítulo, investigaremos como o sinal varia em função do atraso entre os pulsos, $\delta\tau$. Dois casos distintos serão analisados: no primeiro, o sinal é coletado em um ângulo de 90° com relação à direção de propagação do laser de femtosegundos; no segundo caso, coletamos o sinal na mesma direção da propagação dos pulsos incidentes. Em ambos os casos, a luz é detectada em 420 nm. Na seção anterior, mostramos evidências de que o sinal copropagante são gerados no processo de MPQO, enquanto que o sinal contrapropagante se deve ao processo de ASE. No caso do sinal coletado a 90° , teremos uma medida da fluorescência do nível 5D, a qual é diretamente proporcional à população desse nível.

Os resultados obtidos para a fluorescência e para a MPQO estão apresentados na figura 4.7 e 4.8, respectivamente. Nas duas figuras, a coluna da esquerda se refere a varreduras em torno da origem, com o braço da linha de atraso que efetua varreduras de menor resolução fixo em $\tau = 0$. A coluna da direita corresponde a uma varredura distante da origem, com o braço de menor resolução em $\tau = 45$ ps. Além disso, cada linha das figuras corresponde a uma diferente combinação das polarizações dos pulsos atrasados temporalmente. Na primeira linha, ambos os pulsos têm polarizações lineares e paralelas e as indicamos pelo símbolo geométrico de paralelo, //. Na segunda linha, os pulsos atrasados têm polarizações lineares e perpendiculares entre si e sua indicação será feita pelo símbolo $\perp$. Finalmente, na terceira linha, os pulsos possuem polarizações circulares e ortogonais entre si e sua representação na figura será feita através dos símbolos σ_+ ,

Fluorescência

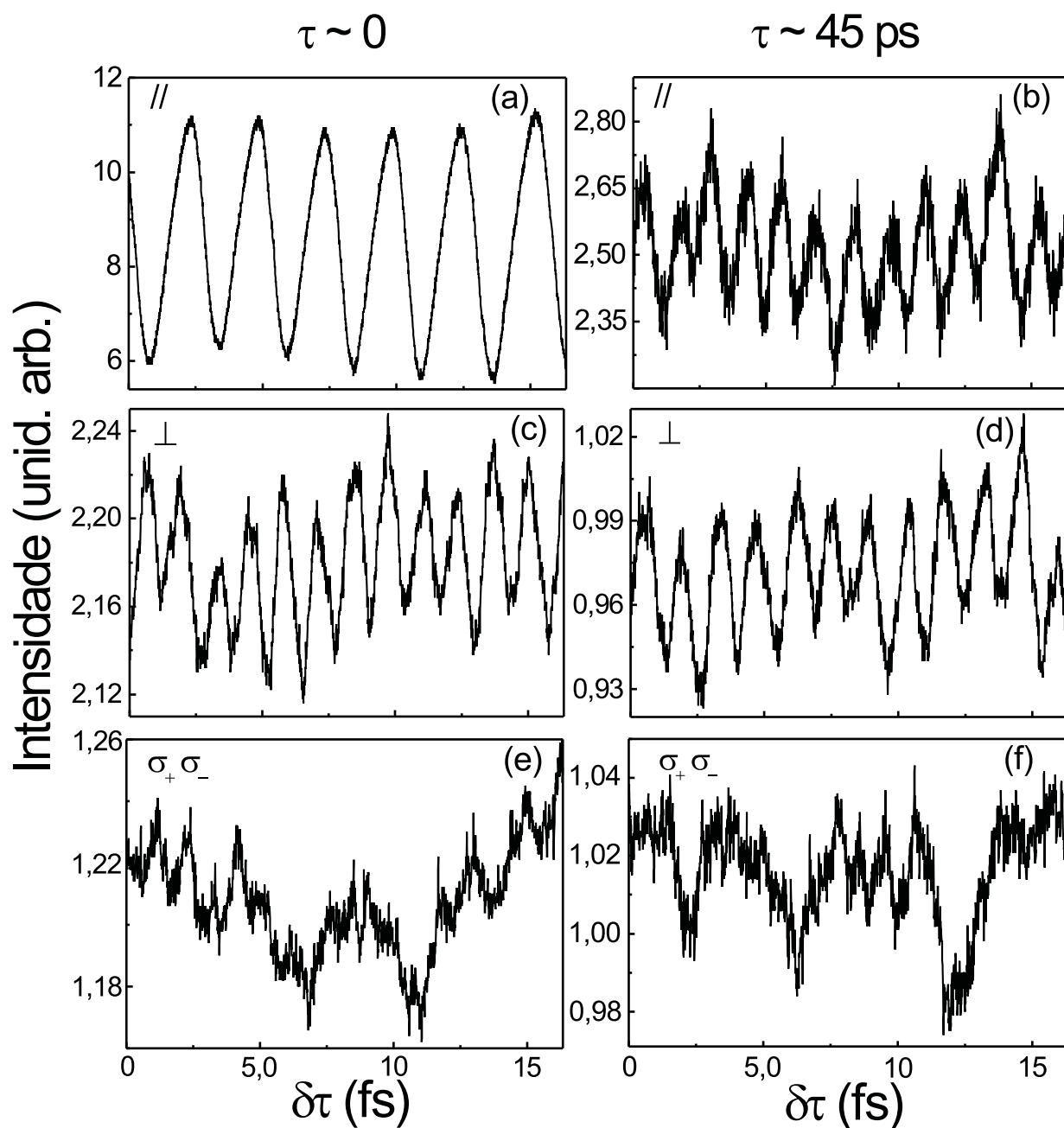


Figura 4.7 Variação da intensidade da fluorescência em 420 nm com o atraso relativo entre os pulsos para varreduras curtas do braço da linha de atraso que tem maior resolução temporal. Cada linha da figura corresponde a uma diferente configuração de polarização dos pulsos de excitação. Na primeira linha, temos polarizações lineares e paralelas; na segunda, polarizações lineares e perpendiculares e, na terceira, polarizações circulares e ortogonais. As varreduras foram realizadas em torno de $\tau = 0$ e $\tau = 45$ ps.

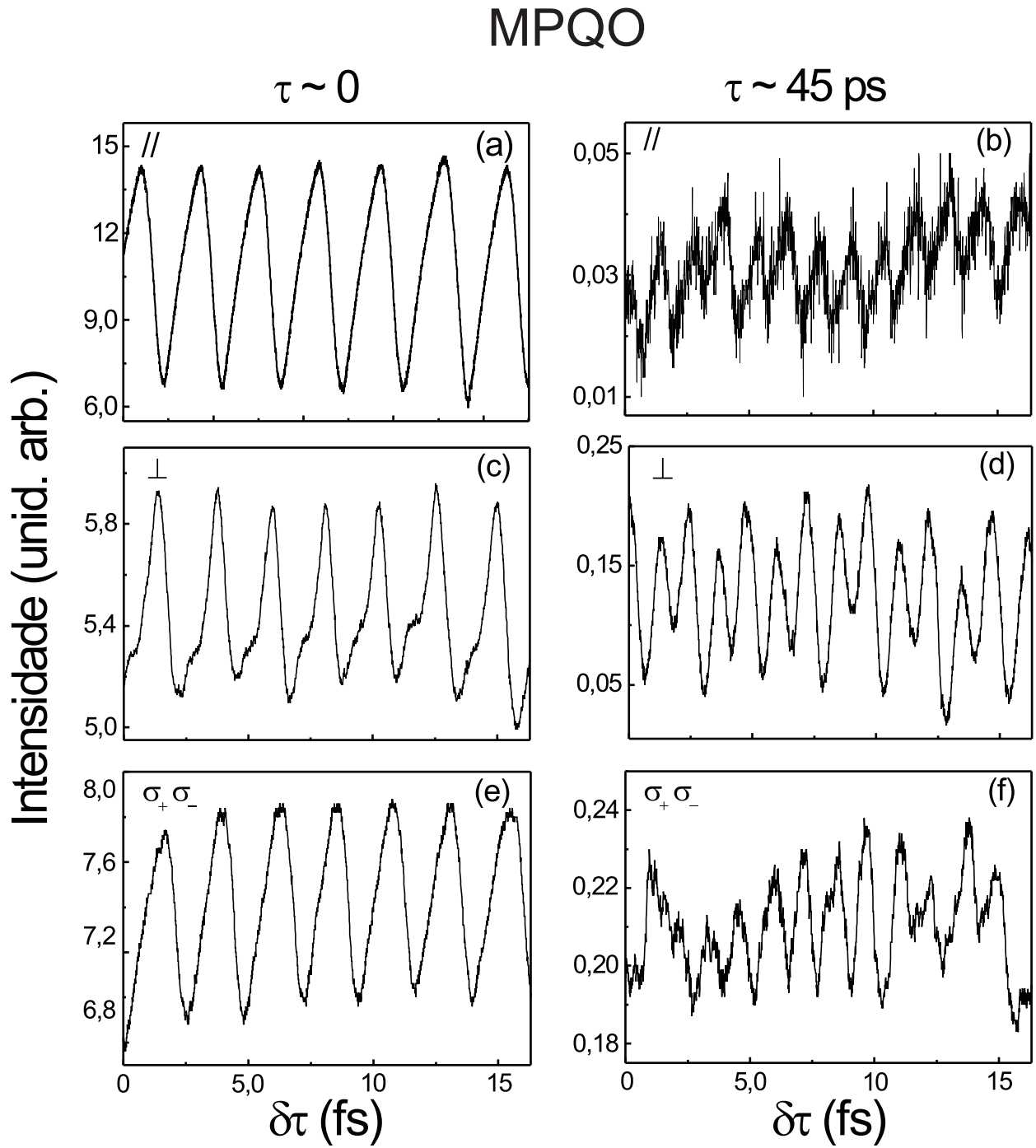


Figura 4.8 Variação da intensidade da MPQO em 420 nm com o atraso relativo entre os pulsos para varreduras curtas do braço da linha de atraso que tem maior resolução temporal. Cada linha da figura corresponde a uma diferente configuração de polarização dos pulsos de excitação. Na primeira linha, temos polarizações lineares e paralelas; na segunda, polarizações lineares e perpendiculares e, na terceira, polarizações circulares e ortogonais. As varreduras foram realizadas em torno de $\tau = 0$ e $\tau = 45 \text{ ps}$.

para o pulso polarizado circularmente à direita e σ_- , para o pulso polarizado circularmente à esquerda. A escala horizontal, de $\delta\tau = 16,5$ fs, é a mesma para todas as medidas apresentadas e o sinal foi detetado sem analisador. No caso das polarizações paralelas, podemos observar que a frequência da oscilação interferométrica fora da origem ($\tau = 45$ ps) dobra com relação ao seu valor na origem, passando de uma frequência $\omega_L = 2\pi \cdot 2,6$ rad/fs para uma frequência de $2\omega_L = 2\pi \cdot 5,2$ rad/fs. Já para as polarizações perpendiculares, observamos uma diferença no comportamento das oscilações. Para a fluorescência só observamos as oscilações em $2\omega_L$, seja na varredura em torno da origem ou em $\tau = 45$ ps, enquanto que para a MPQO, temos as oscilações em ω_L em torno da origem e em $2\omega_L$ em $\tau = 45$ ps. No caso em que as polarizações são circulares e ortogonais, a fluorescência não apresenta nenhum tipo de oscilação, enquanto que a MPQO vai das oscilações em ω_L , em torno da origem para $2\omega_L$ em $\tau = 45$ ps. Como vimos no capítulo 2, as oscilações em ω_L são também chamadas de oscilações "ópticas" e as oscilações em $2\omega_L$ de oscilações quânticas.

As diferenças entre os sinais com resolução interferométrica para a fluorescência e para a MPQO estão presentes quando os pulsos que excitam a transição de dois fótons possuem polarizações ortogonais, sejam elas lineares ou circulares. No caso em que as polarizações dos pulsos atrasados são paralelas, o resultado é o mesmo e uma explicação para ele foi realizada na seção 2.3.

Note que, no estudo do capítulo 2 não estávamos trabalhando com uma transição sequencial e sim com uma absorção de dois fótons sem nível intermediário. Entretanto, os pulsos do laser de Ti:safira dentro da célula de rubídio evoluem para pulsos do tipo 0π , como foi mostrado na seção 1.5. Essa evolução é acompanhada pela absorção de parte do espectro do pulso. Dessa forma, não existe transferência de população entre os níveis 5S e 5P, e assim a transição de dois fótons com a absorção de um fóton de cada pulso só ocorre quando o atraso τ entre os pulsos for menor que o tempo de coerência do laser de Ti:safira, τ_c , da mesma forma que acontece quando temos uma transição de dois fótons pura, sem a presença do nível intermediário. Em um estudo realizado pelo grupo do Silberberg [93], os autores utilizaram um sintetizador de Fourier, em conjunto com um *spatial light modulator*, para manipular o espectro do campo que faz a transição de dois fótons na mesma transição sequencial analisada nesta seção. A manipulação foi realizada de modo a retirar do espectro dos pulsos as componentes de frequência que fariam a transição de um fóton. Assim, não teremos a transferência de população entre os níveis 5S e 5P, de maneira semelhante ao que acontece quando os pulsos atrasados evoluem para um pulso 0π .

Quando as polarizações são perpendiculares e lineares, a diferença se encontra na varredura realizada em torno da origem. Para a fluorescência, observamos a oscilação em $2\omega_L$, enquanto que para a MPQO temos a oscilação em ω_L . É importante notar que, mesmo no caso de uma interferência puramente clássica, como a obtida em um experimento com um interferômetro de Michelson, quando as polarizações dos campos atrasados temporalmente são perpendiculares entre si não observamos as oscilações na frequência do campo incidente. A observação desse tipo de

oscilação no sinal de MPQO indica, de forma inequívoca, que este efeito é de natureza quântica, sendo chamado de oscilação "óptica" devido apenas ao fato da interferência ocorrer na frequência ω_L , igual ao caso clássico.

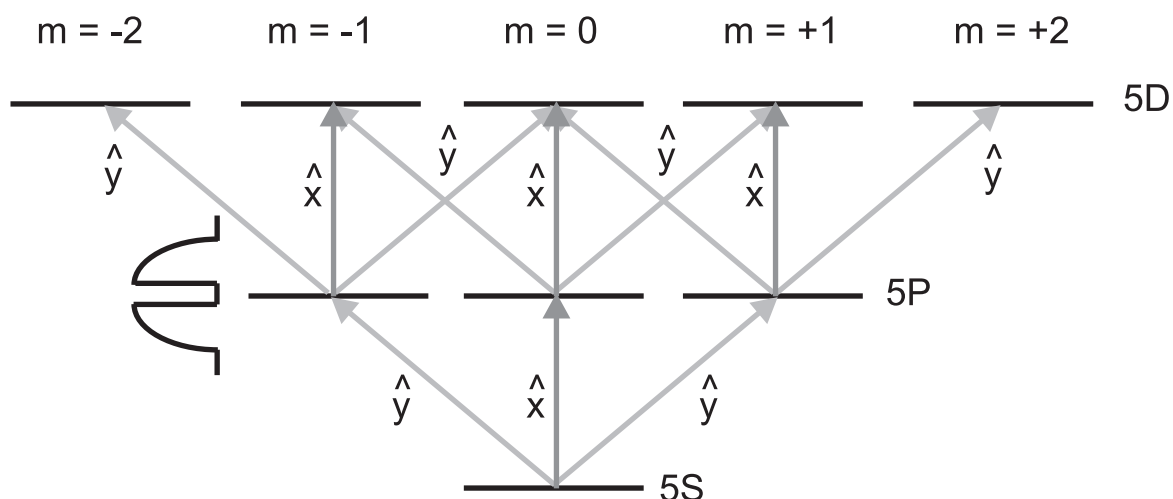


Figura 4.9 Representação dos possíveis caminhos quânticos para a transição de dois fótons quando os pulsos com atraso possuem polarizações lineares e perpendiculares. As setas em cinza escuro representam os pulsos que interagem com o sistema no instante t e possuem polarização $\hat{x}$, enquanto que as setas em cinza claro são os pulsos que interagem com o sistema no instante $t + \tau$ e possuem polarização $\hat{y}$.

Assim, por estar claro que as oscilações "ópticas" se devem à efeitos quânticos, precisamos entender porque estas oscilações não ocorrem no sinal de fluorescência em torno da origem. Para que dois caminhos quânticos distintos possam interferir e assim originar as oscilações em ω_L , ou em $2\omega_L$, é necessário que ambos levem ao mesmo estado final. No caso do estudo de uma transição cíclica, em que o sistema atômico parte e chega ao mesmo nível, isso sempre acontece. Esse é o caso do sinal de MPQO, em que o sistema atômico começa e termina sua evolução no nível 5S. Entretanto, o sinal de fluorescência não é caracterizado por uma transição cíclica e assim devemos em primeiro lugar verificar se os pulsos atrasados temporalmente levam o sistema atômico ao mesmo nível final. Na figura 4.9, mostramos a transição de dois fótons entre os níveis $5S \rightarrow 5P \rightarrow 5D$, explicitando a estrutura do momento angular orbital desses níveis e os caminhos quânticos acessíveis ao sistema atômico quando os pulsos atrasados temporalmente têm polarizações perpendiculares. Vamos adotar a convenção de que o pulso que interage com o sistema no instante t possui polarização ao longo da direção $\hat{x}$ e o pulso atrasado de τ tem polarização ao longo da direção $\hat{y}$. Definimos que o eixo de quantização do sistema atômico é paralelo ao eixo $\hat{x}$. Isso implica que o pulso com polarização $\hat{y}$ só irá efetuar transições de um fóton em que a variação do momento angular orbital do átomo seja $\Delta m = \pm 1$, enquanto que o pulso com polarização $\hat{x}$ irá

efetuar transições de um fóton com $\Delta m = 0$. Na figura, o pulso com polarização $\hat{x}$, que interage com o sistema no instante t , está representado pela seta em cinza escuro, enquanto que o pulso com polarização $\hat{y}$, que interage com o sistema no instante $t + \tau$, está representado pela seta em cinza claro.

Vemos, então, que apenas os subníveis com $m = 0, \pm 1$ são excitados por mais de um caminho quântico. Entretanto, os subníveis em que $m = \pm 1$, são excitados pela absorção de um fóton de cada um dos pulsos atrasados. Como foi visto no capítulo 2, a interferência entre esses caminhos não leva a nenhum tipo de oscilação. Já o subnível com $m = 0$, é excitado pela absorção de dois fótons do mesmo pulso, seja do pulso que interage com o sistema no instante t , seja do pulso que interage com o sistema no instante $t + \tau$. A interferência entre esses dois caminhos leva à oscilação em $2\omega_L$.

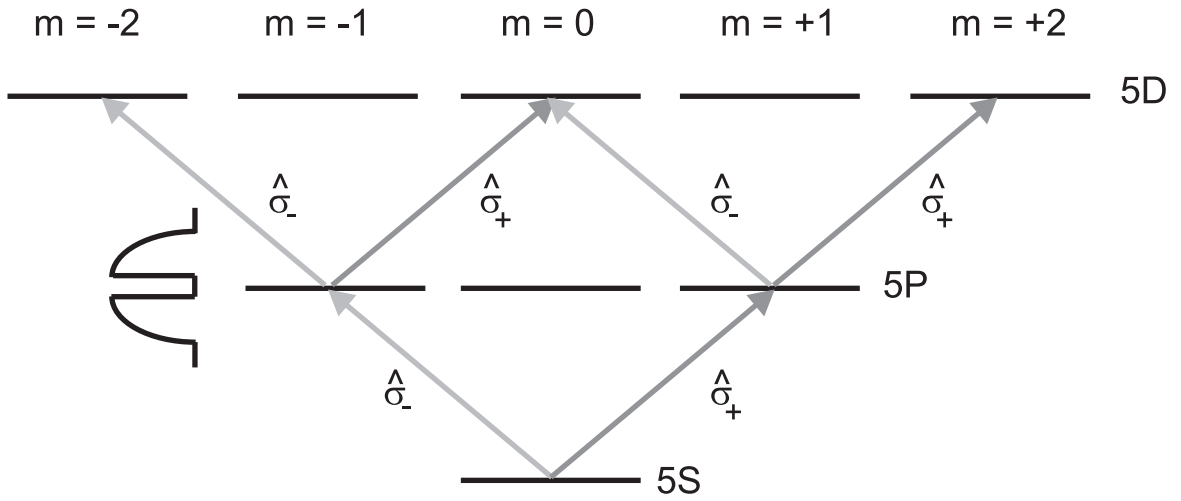


Figura 4.10 Representação dos possíveis caminhos quânticos para a transição de dois fótons quando os pulsos com atraso possuem polarizações circulares e perpendiculares entre si. As setas em cinza escuro representam os pulsos que interagem com o sistema no instante t e possuem polarizações $\hat{\sigma}_+$, enquanto que as setas em cinza claro são os pulsos que interagem com o sistema no instante $t + \tau$ e possuem polarização $\hat{\sigma}_-$.

Para o caso em que as polarizações dos pulsos atrasados são circulares e ortogonais entre si, também temos situações distintas para a fluorescência e a MPQO. O caso da MPQO é mais simples e vamos começar por ele. Temos uma transição cíclica em que todos os caminhos quânticos devidos à absorção de dois fótons são possíveis. Desta forma, enquanto os pulsos se sobrepõem temporalmente, as oscilações "ópticas" ocorrem e são observadas por serem mais intensas que as oscilações quânticas, como foi visto no capítulo 2. Para valores do atraso em que os pulsos não se

sobrepõem, as oscilações "ópticas" deixam de existir e observamos apenas as oscilações quânticas, as quais ocorrem para qualquer valor do atraso.

Para a fluorescência, precisamos mais uma vez analisar os subníveis do momento angular orbital que são excitados quando os pulsos têm polarizações perpendiculares e circulares. Na figura 4.10, representamos os possíveis caminhos quânticos para esse caso. O pulso que interage com o sistema no instante t tem polarização $\hat{\sigma}_+$ e está representado na figura por setas em cinza escuro, enquanto que o pulso que interage com o sistema no instante $t + \tau$ tem polarização $\hat{\sigma}_-$ e na figura está representado pelas setas em cinza claro. Para que a análise da variação do momento angular orbital do átomo de rubídio fique mais simples, vamos considerar que o eixo de quantização dos átomos é agora paralelo à direção de propagação dos feixes do laser, i. e., é paralelo à direção $\hat{z}$. Assim, o pulso com polarização $\hat{\sigma}_+$ irá fazer transições de um fóton em que o átomo tem uma variação de momento angular $\Delta m = +1$, enquanto que o pulso com polarização $\hat{\sigma}_-$ realizará transições de um fóton que acarretem uma variação de momento angular de $\Delta m = -1$.

Utilizando a figura 4.10, podemos notar que apenas o nível $5D_{m_l=0}$ será excitado por mais de um caminho quântico. Entretanto, os dois caminhos que excitam esse nível dependem de um fóton de cada pulso e a interferência entre eles não leva a nenhum tipo de oscilação. Note que quando o atraso entre os pulsos for maior que o tempo de coerência do laser de Ti:safira, os caminhos devidos à absorção de um fóton de cada pulso não existirão mais e assim não teremos nenhum nível final que seja excitado por mais de um caminho quântico, portanto nenhum tipo de oscilação interferométrica existirá. Nessa configuração das polarizações dos pulsos que excitam a transição de dois fótons, não iremos observar nenhum tipo de oscilação, seja em ω_L , ou em $2\omega_L$, para qualquer valor do atraso entre os pulsos. A última linha da figura 4.7 mostra, experimentalmente, este fato.

Uma teoria bem simples, baseada no formalismo da referência [94], para a explicação das oscilações interferométricas, que pode ser aplicada tanto para a fluorescência quanto para a MPQO, se baseia nas equações de Bloch. O desenvolvimento teórico realizado aqui é análogo ao do capítulo 2, a única diferença é que neste capítulo iremos trabalhar no domínio do tempo, enquanto no capítulo 2 o desenvolvimento foi realizado no domínio espectral. Vamos apresentar o formalismo teórico para o sinal da MPQO quando os pulsos atrasados são paralelos. Porém, a descrição baseada no mesmo formalismo para o sinal da fluorescência e para as demais configurações das polarizações dos pulsos incidentes é direta e será indicada ao longo da evolução teórica. Nos cálculos que seguem, iremos considerar que os níveis $5S$, $5P_{3/2}$, $5D$ e $6P_{3/2}$ são rotulados pelos estados $|1\rangle$, $|2\rangle$, $|3\rangle$ e $|4\rangle$, respectivamente.

As equações de movimento da matriz densidade para o sistema atômico esquematizado na figura 4.1, sob a ação de um campo elétrico total $E(t)$, podem ser escritas como:

$$\dot{\rho}_{ii} = - \sum_{i,j < i} \gamma_{ij} \rho_{ii} + \sum_{i,j > i} \gamma_{ji} \rho_{jj} + \frac{i}{\hbar} \sum_j (\mu_{ij} \rho_{ji} - \mu_{ji} \rho_{ij}) E(t), \quad (4.1a)$$

$$\dot{\rho}_{ij} = - (i\omega_{ij} + \Gamma_{ij}) \rho_{ij} + \frac{i}{\hbar} \sum_k (\mu_{ik} \rho_{kj} - \mu_{kj} \rho_{ik}) E(t), \quad (4.1b)$$

onde $E(t)$ é a soma dos campos de bombeamento, E_p , com o campo gerado entre os níveis 5D e $6P_{3/2}$, E_i , e o campo do sinal, E_s , gerado entre os níveis $6P_{3/2}$ e 5S, μ_{ij} é o momento de dipolo da transição entre os estados $|i\rangle$ e $|j\rangle$, γ_{ij} é a taxa de decaimento das populações, Γ_{ij} é a taxa de decaimento das coerências e ω_{ij} é a frequência que corresponde à energia da transição entre os estados $|i\rangle$ e $|j\rangle$.

A expansão perturbativa dos elementos da matriz densidade até 3º ordem no campo é dada por:

$$\rho_{ij} = \rho_{ij}^{(0,0,0)} + \rho_{ij}^{(1,0,0)} + \rho_{ij}^{(1,1,0)} + \rho_{ij}^{(1,1,1)}, \quad (4.2)$$

onde os sobrescritos representam a absorção de um fóton do campo E_p , seguido de mais um fóton do mesmo campo e finalmente a absorção de um fóton do campo E_i . Vamos considerar que $\rho_{11}^{(0,0,0)} = 1$ e $\rho_{ij}^{(0,0,0)} = 0$, para $i \neq j$ e $i = j \neq 1$. A primeira ordem da expansão da equação (4.1b) é dada por:

$$\rho_{12}^{(1,0,0)}(t) = \frac{i\mu_{12}}{\hbar} e^{-(i\omega_{12} + \Gamma_{12})t} \int_{-\infty}^t e^{(i\omega_{12} + \Gamma_{12})t'} E_p(t') dt', \quad (4.3)$$

e todos os outros elementos da matriz densidade, nessa ordem da expansão perturbativa, são nulos. O termo que irá gerar a coerência na frequência detetada experimentalmente é dado por:

$$\rho_{13}^{(1,1,0)}(t) = \frac{i\mu_{13}}{\hbar} e^{-(i\omega_{13} + \Gamma_{13})t} \int_{-\infty}^t e^{(i\omega_{13} + \Gamma_{13})t'} \rho_{12}^{(1,0,0)}(t') E_p(t') dt'. \quad (4.4)$$

Finalmente, o termo da matriz densidade em terceira ordem no campo, que está associado à frequência de interesse, é:

$$\rho_{14}^{(1,1,1)}(t) = \frac{i\mu_{14}}{\hbar} e^{-(i\omega_{14} + \Gamma_{14})t} \int_{-\infty}^t e^{(i\omega_{14} + \Gamma_{14})t'} \rho_{13}^{(1,1,0)}(t') E_i(t') dt'. \quad (4.5)$$

Se o sinal de interesse fosse a fluorescência, teríamos que ir até a quarta ordem na expansão perturbativa dos elementos da matriz densidade e o elemento dessa matriz que está associado à fluorescência é a população do nível mais excitado, ou seja, iríamos calcular $\rho_{33}^{(2,2,0)}(t)$.

Os campos que aparecem nas equações (4.3) - (4.5), podem ser escritos como:

$$E_k(t) = \varepsilon_k(t)e^{i\omega_k t} + \varepsilon_k^*(t)e^{-i\omega_k t}, \quad (4.6)$$

com $k = p$ ou i e, além disso, ε é a amplitude do campo, que varia lentamente no tempo. O campo total, que incide sobre o sistema atômico, é composto de dois pulsos que interagem com o meio nos instantes t e $t - \tau$, de modo que podemos escrevê-lo como:

$$\begin{aligned} E_{kT}(t) &= E_k(t) + E_k(t - \tau) \\ &= \varepsilon_k(t)e^{i\omega_k t} + \varepsilon_k^*(t)e^{-i\omega_k t} + \varepsilon_k(t - \tau)e^{i\omega_k(t - \tau)} + \varepsilon_k^*(t - \tau)e^{-i\omega_k(t - \tau)}. \end{aligned} \quad (4.7)$$

Na equação (4.7), consideramos que os pulsos atrasados temporalmente possuem polarizações paralelas. Para relaxar essa condição, basta acrescentar o versor na direção em que os campos se encontram polarizados. Ao substituirmos esse campo na expressão para a coerência entre os estados $|a\rangle$ e $|b\rangle$, equação (4.5), iremos obter todas as componentes de frequência que são combinações lineares de ω_p , ω_p e ω_i . Porém, a frequência de detecção do sinal de MPQO é igual a $\omega_s = 2\omega_p - \omega_i$. Para obtermos apenas esta componente de frequência, devemos reter os termos proporcionais a $\varepsilon_p^* \varepsilon_p \varepsilon_i$. Fazendo essa seleção dos termos e considerando que o campo E_i , numa primeira aproximação, pode ser descrito matematicamente pela função delta de Dirac, $E_i(t) = [\delta(t) + \delta(t - \tau)][\varepsilon_i e^{i\omega_i t} + \varepsilon_i^* e^{-i\omega_i t}]$, temos:

$$\begin{aligned} \rho_{MPQO}^{(1,1,1)}(t) &= \frac{-i\mu_{14}\mu_{23}\mu_{12}}{\hbar^3} e^{-(i\omega_{14} + \Gamma_{14})t} \left[\varepsilon_i \left(1 + e^{-i(\omega_{43} - \omega_i)\tau} e^{(\Gamma_{14} - \Gamma_{13})\tau} \right) \right] \\ &\quad \left[F(0) + e^{\Gamma_{12}\tau} e^{i\omega_{12}\tau} F(-\tau) + e^{(\Gamma_{13} - \Gamma_{12})\tau} e^{i\omega_{23}\tau} F(\tau) + e^{\Gamma_{13}\tau} e^{i\omega_{13}\tau} F(0) \right], \end{aligned} \quad (4.8)$$

onde a função $F(\tau)$ é definida por:

$$F(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} dt \int_{-\infty}^{t+\tau} dt' e^{(\Gamma_{13} - \Gamma_{12})t} e^{\Gamma_{12}t'} e^{i\delta_{23}t} e^{i\delta_{12}t'} \varepsilon_p^*(t) \varepsilon_p(t'). \quad (4.9)$$

As funções $F(0)$, $F(\tau)$ e $F(-\tau)$ estão relacionadas às transições de dois fótons e guardam uma analogia com as funções F_{11} , F_{12} e F_{21} , definidas na seção 3.4. À parte da fase extra adicionada pelo sintetizador de Fourier e pelos momentos de dipolo das transições, estas funções estão relacionadas pela transformada de Fourier (TF), sendo $F(0)$ a TF de F_{11} , $F(\tau)$ a TF de F_{12} e $F(-\tau)$ a TF de F_{21} . Desta forma, a função $F(0)$ está associada à transição de dois fótons, quando esses fótons pertencem ao mesmo pulso, $F(\tau)$ está associada à absorção de dois fótons quando o primeiro fóton absorvido vem do primeiro pulso e o segundo fóton do pulso atrasado e $F(-\tau)$ se refere à absorção de dois fótons em que o primeiro fóton vem do pulso atrasado e o segundo fóton do primeiro pulso.

A intensidade do sinal de MPQO observado é proporcional a:

$$I_S(\tau) \propto \int_{\tau}^{\infty} |P_{MPQO}(t, \tau)|^2 dt, \quad (4.10)$$

onde $P_{MPQO}(t, \tau)$ é a polarização na frequência de detecção do sinal de MPQO, sendo igual a:

$$P_{MPQO}(t, \tau) = N\mu_{14}\rho_{MPQO}^{(1,1,1)}(t, \tau). \quad (4.11)$$

Para o cálculo da polarização quando os pulsos atrasados são perpendiculares, devemos levar em conta as regras de seleção do meio, através da inclusão do tensor suscetibilidade não linear de terceira ordem, como foi feito na seção 2.3.2.

O sinal de interesse será então proporcional ao módulo quadrado de $P_{MPQO}(t, \tau)$, utilizando a equação (4.8) e após alguma manipulação algébrica, podemos escrevê-lo como:

$$\begin{aligned} |P_{MPQO}(t, \tau)|^2 &= \frac{2N^2\mu_{14}^4\mu_{23}^2\mu_{12}^2}{\hbar^6} e^{-2\Gamma_{14}t} [1 + \cos(\delta_{43}\tau)] \cdot \\ &[2|F(0)|^2 + |F(-\tau)|^2 + |F(\tau)|^2 + 2|F(0)|^2 \cos(2\omega_p\tau) + (e^{-i\Delta\tau}F(-\tau)F^*(\tau) + c.c.) \\ &+ 2\cos(\omega_p\tau) \left[2\text{Re} \left(e^{i\Delta\tau/2} F(0)F^*(-\tau) \right) \right] + 2\cos(\omega_p\tau) \left[2\text{Re} \left(e^{i\Delta\tau/2} F^*(0)F(\tau) \right) \right]], \end{aligned} \quad (4.12)$$

onde $\Delta = \omega_{23} - \omega_{12}$ e $\delta_{43} = \omega_{43} - \omega_i$.

Note que dos termos que caracterizam oscilações, apenas os cossenos em $\omega_p\tau$ e $2\omega_p\tau$ irão caracterizar oscilações com frequência interferométrica, pois os demais termos oscilam lentamente quando comparados a eles. Teremos então a presença de oscilações na frequência central do laser que excita a transição de dois fótons, ω_p , que estão associadas às oscilações "ópticas", e oscilações em $2\omega_p$, que correspondem às oscilações quânticas. Por estarmos trabalhando com pulsos 0π , não temos a transferência de população para o nível intermediário da transição sequencial e a absorção de dois fótons se comporta como se o mesmo não existisse. Dessa forma, os termos multiplicados pelas funções $F(\tau)$ ou $F(-\tau)$, só ocorrerão quando os pulsos estiverem superpostos temporalmente. Logo, as oscilações "ópticas" apenas existem para valores de τ em torno da origem dos atrasos. Já as oscilações quânticas aparecem na equação (4.12), multiplicadas pela função $F(0)$, que independe de τ e por isso esse tipo de oscilação ocorre para qualquer valor do atraso entre os pulsos. Este é exatamente o comportamento verificado experimentalmente na primeira linha da figura 4.8.

4.3.2 Controle Temporal Coerente na MPQO

Nesta seção, iremos apresentar os resultados experimentais obtidos para o sinal gerado no processo de MPQO quando as variações do atraso temporal entre os pulsos de excitação é da ordem de dezenas de picosegundos. Neste caso, a varredura é feita pelo braço de menor resolução temporal e realizamos uma média sobre um período óptico, de forma que as oscilações interferométricas não são observadas. O aparato experimental é o mesmo apresentado na figura 4.2. A observação do sistema continua a ser feita através da emissão em 420 nm e os níveis relevantes para o estudo foram apresentados na figura 4.1.

A figura 4.11 mostra a variação da intensidade do sinal gerado em 420 nm em função do atraso temporal para o sinal coletado a 90° (fluorescência) e para frente (MPQO). As medidas foram realizadas para o mesmo valor da densidade do vapor de rubídio, $N = 1,1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$. Apesar de estarem associados a processos distintos, podemos observar que ambos apresentam comportamentos semelhantes com um máximo em torno da origem dos atrasos, um batimento em cerca de 470 fs e um batimento na envoltória do sinal com um período de dezenas de picosegundos.

O batimento em torno de 470 fs está associado à diferença entre as frequências das transições $5S \rightarrow 5P_{3/2}$ e $5P_{3/2} \rightarrow 5D$, que corresponde a um período de 473 fs. Ele ocorre devido a efeitos de acumulação presentes no sistema atômico. Este efeito foi analisado em detalhe na tese de Doutorado de Daniel Felinto [95] e é discutido nos artigos [62, 68, 96], e se deve ao fato de que o tempo de repetição do laser que excita a transição atômica é menor que o tempo de decaimento das populações e coerências envolvidas no processo. Assim, o sistema atômico não relaxa completamente entre dois pulsos consecutivos do laser, de modo que as populações e coerências vão se "acumulando", daí o nome dado ao efeito. A taxa de repetição do laser utilizado é de 82 MHz, que corresponde a uma separação temporal entre pulsos subsequentes de $\approx 12 \text{ ns}$. Por outro lado, os tempos de decaimento característicos das populações dos níveis 5D e $5P_{3/2}$ são 241 ns e 26,7 ns, respectivamente [97].

O batimento na escala de picosegundos se deve ao efeito de propagação, que modifica a envoltória do campo quando este se propaga através de um vapor atômico. Este efeito foi discutido na seção 1.5 e pode ser interpretado da seguinte forma: vimos que, ao se propagar no vapor atômico, parte do espectro do pulso é absorvida pelo meio, ver figura ??, de tal forma que o pulso passa a se comportar com se houvesse sido dividido em dois espectros distintos e o batimento se deve à diferença entre as frequências desses dois pulsos. Tanto os batimentos em 473 fs quanto os da escala de picosegundos foram estudados na tese de Daniel Felinto [95], através da análise do sinal de fluorescência.

Apesar das semelhanças entre os dois sinais, algumas diferenças também são observadas. A

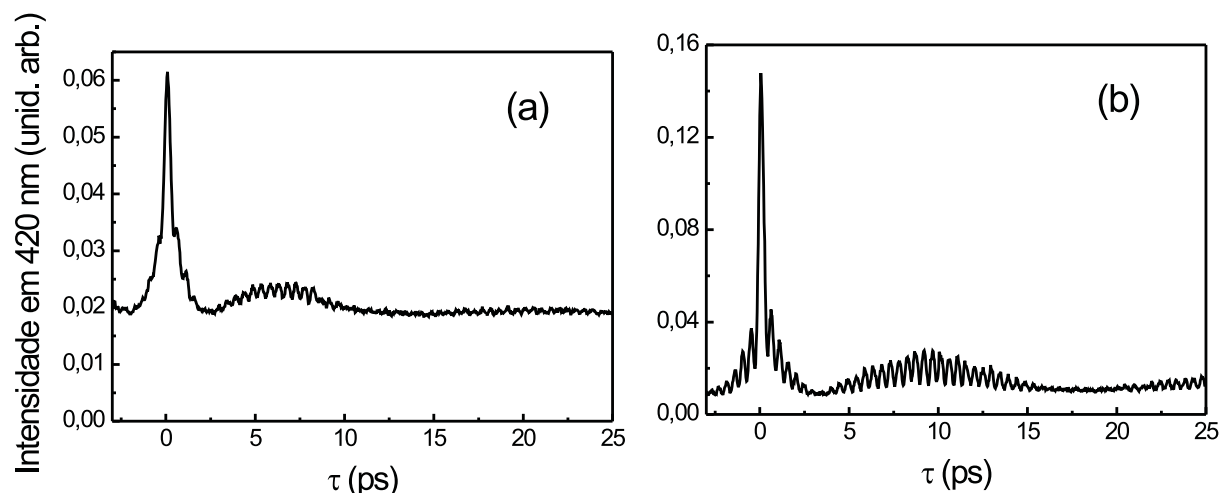


Figura 4.11 Intensidade da emissão em 420 nm para o sinal coletado a 90° , fluorescência no quadro (a) e na mesma direção do feixe do laser de Ti:safira, MPQO no quadro (b), para uma mesma densidade do vapor de rubídio, $N = 1,1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$.

primeira é que o sinal da fluorescência é menos intenso que o sinal de MPQO. Isto se deve ao fato de o sinal de MPQO ser direcional, sendo quase que totalmente emitido na mesma direção do feixe que excita a transição atômica, enquanto que no sinal de fluorescência não temos uma direção de emissão preferencial, de forma que a intensidade do sinal depende do ângulo sólido de coleta do mesmo. Na nossa detecção apenas uma parte do sinal total foi coletado, a parte que incidiu sobre a lente de aquisição posicionada a 90° em relação à direção de propagação do laser de Ti:safira (ver figura 4.2). Na obtenção da curva para a fluorescência na figura 4.11, realizamos uma média sobre três varreduras com o objetivo de visualizarmos melhor as características do sinal. Já para a MPQO não foi necessária a realização de tal média e a curva apresentada é o resultado de uma única varredura. Os dois sinais apresentam um pico central (quando os pulsos estão sobrepostos temporalmente) e um fundo que independe do atraso. Entretanto, a relação entre o pico central e o fundo é menor para a fluorescência do que para a MPQO, com valores de $R_{Fluo.} = 3,15$ e $R_{MPQO} = 16,13$. A razão para esta diferença entre os dois sinais se deve ao fato de que o sinal de MPQO sofre uma amplificação ao se propagar na célula de rubídio, enquanto que o sinal associado à emissão espontânea não tem essa característica, como vimos na seção 4.2. Podemos também notar que a visibilidade dos batimentos em torno de 470 fs é maior para o processo de MPQO.

A dependência do sinal de MPQO com a densidade atômica é apresentada na figura 4.12. Da curva inferior para a superior, as densidades são $8,1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$, $1,1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$, $1,5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$, $2,7 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ e $3,5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$, respectivamente. Nesta figura, as curvas são apresentadas sem

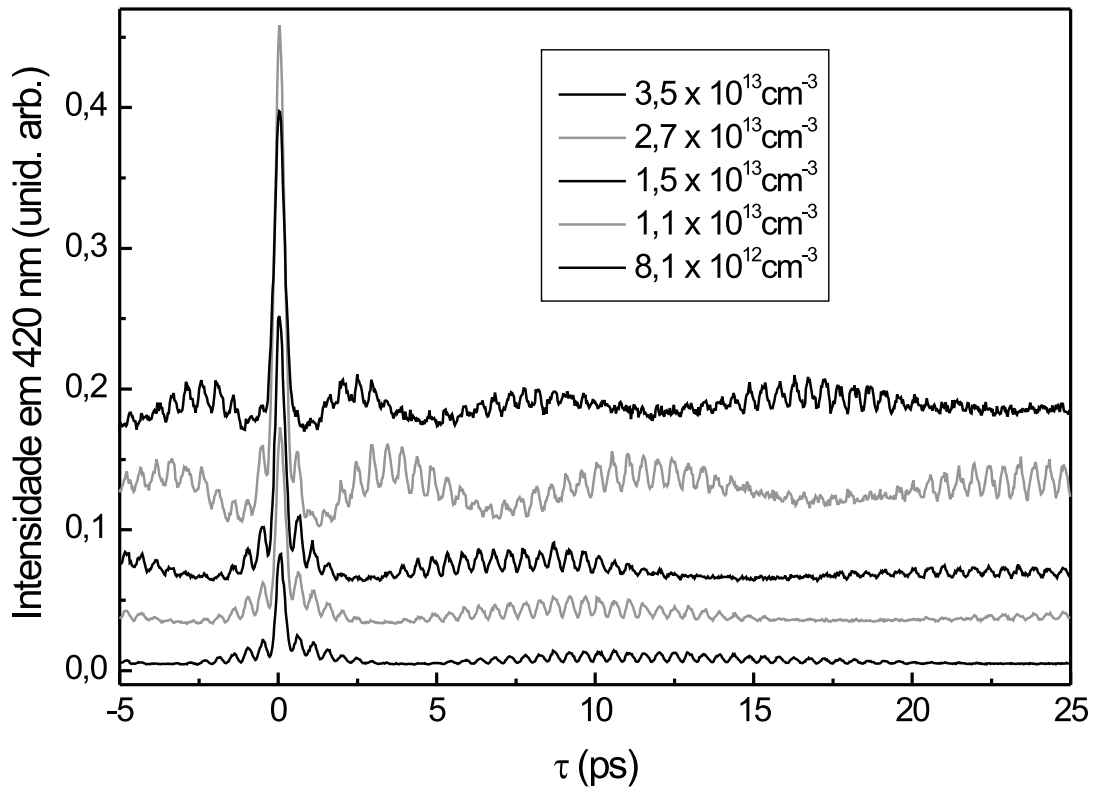


Figura 4.12 Intensidade da emissão em 420 nm para o sinal na mesma direção do feixe do laser de Ti:safira (MPQO), em função do atraso entre os pulsos, para várias densidades do vapor de Rb.

o fundo e deslocadas verticalmente para uma melhor comparação entre elas. Podemos, então, notar várias características do sinal em relação à variação com a densidade atômica. Em primeiro lugar, os batimentos em torno de 470 fs não variam com a densidade. Já o batimento na envoltória do sinal, na escala de picosegundos, aumenta sua frequência, com o aumento da densidade.

Um estudo comparativo, levando em conta a variação do fundo com a densidade atômica, é apresentado na figura 4.13. Podemos notar que, embora o sinal como um todo aumente, conforme a densidade aumenta, a variação não é a mesma para todo o intervalo de τ . Uma forma de observar isso é olhar para a razão entre o pico central e o fundo. Esta razão diminui com o aumento da densidade, indicando um crescimento menor quando os pulsos estão superpostos, quando comparado com o crescimento para $\tau > \tau_c$. Este comportamento se deve ao fato de no pico central os pulsos estarem superpostos e assim a intensidade do sinal é mais alta. Como vimos na seção 4.2, o limiar

em que o sinal de MPQO começa a saturar em função da densidade depende da intensidade dos pulsos que excitam o sistema. Assim, a razão pico/fundo diminui com o aumento da densidade do vapor de rubídio.

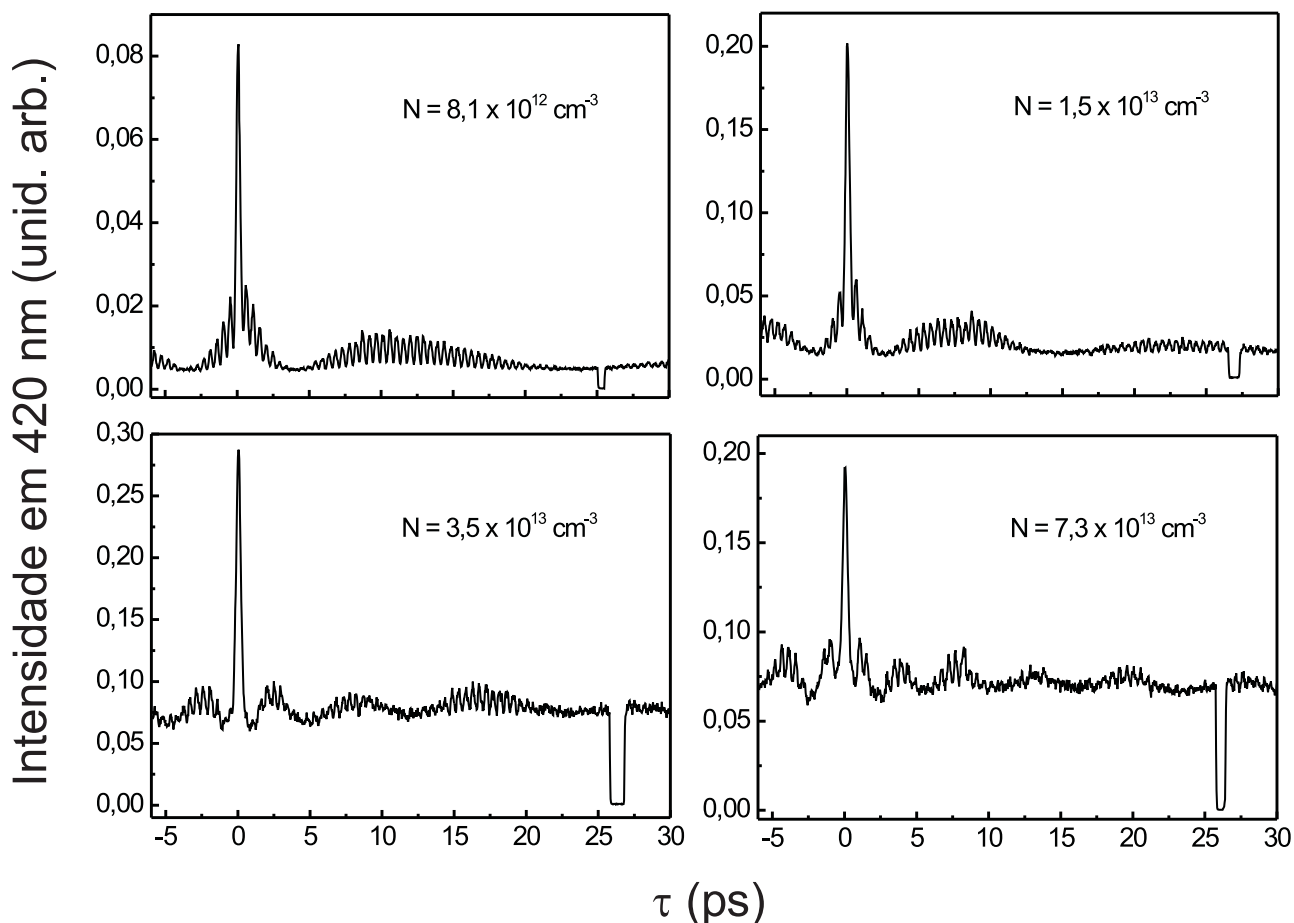


Figura 4.13 Intensidade da emissão em 420 nm para o sinal do processo de MPQO, em função do atraso entre os pulsos. Nesta figura, apresentamos o zero do sinal para cada uma das medidas realizadas.

Na figura 4.14, comparamos os resultados obtidos para a MPQO, quando utilizamos diferentes frequências para modular os dois braços da linha de atraso. Assim como no capítulo três, queremos observar a variação do sinal quando alguns caminhos quânticos do sistema são cancelados. No quadro superior, ambos os braços da linha de atraso possuem a mesma frequência de modulação, $f_1 = f_2$, e a aquisição dos dados é realizada nessa frequência. Assim, todos os caminhos quânticos de uma transição de dois fótons estão presentes. Já no quadro inferior, as frequências de modulação, em cada um dos braços, são diferentes e a aquisição é realizada na soma dessas frequências, f_1

+ f_2 . Medimos, portanto, a contribuição de um fóton de cada um dos pulsos na transição de dois fótons. Como vimos no capítulo 2, quando apenas esses caminhos quânticos estão presentes, não observamos nenhum tipo de oscilação inteferométrica, seja em ω_L ou em $2\omega_L$. Entretanto, podemos observar que tanto os efeitos de propagação, quanto o batimento em torno de 470 fs, permanecem inalterados. O fato interessante é que embora o sinal como um todo diminui de intensidade, na detecção em $f_1 + f_2$, a razão pico/fundo aumenta de aproximadamente um fator 2, indicando claramente que existe diferença entre os caminhos quânticos que contribuem para o sinal em $\tau \approx 0$ e em $\tau > \tau_c$.

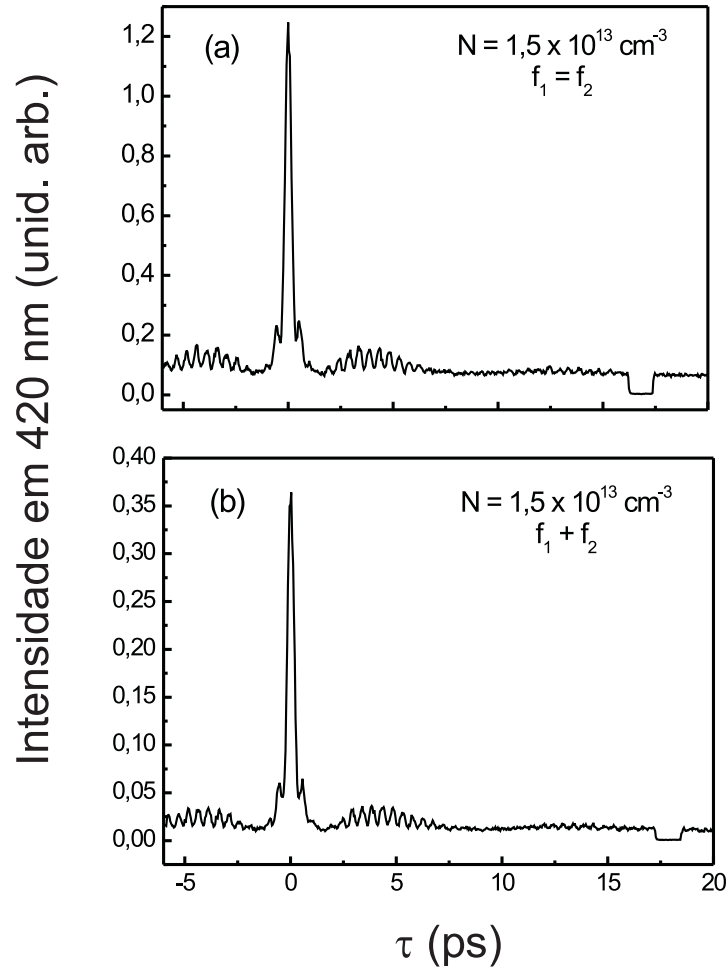


Figura 4.14 Intensidade da emissão em 420 nm para o sinal do processo de MPQO em uma varredura rápida. As curvas foram obtidas quando a aquisição dos dados é realizada na mesma frequência que modula os dois braços da linha de atraso, quadro (a), e na soma das frequências que modulam os braços da linha de atraso, quadro (b).

4.4 Modelo Teórico e Discussão

O sistema atômico do presente estudo é constituído por quatro níveis, como foi apresentado na figura 4.1. O sinal de MPQO é proporcional ao módulo quadrado da coerência, $|\rho_{14}|^2$ entre os níveis $6P_{3/2}$ e $5S$, e ρ_{14} é por sua vez proporcional a ρ_{13} , a coerência entre os estados $5S$ e $5D$, de modo que ρ_{13} deve conter as principais características presentes no sinal observado. Essa consideração é válida quando estamos interessados em obter o comportamento do sinal em função dos campos que excitam o sistema, de forma que efeitos associados a eles estarão presentes no resultado teórico, tais como efeitos de propagação dos campos no vapor de rubídio e efeitos acumulativos, devidos à taxa de repetição do laser que excita o sistema. Porém, devido a essa simplificação, não esperamos que efeitos, como o de amplificação dos campos gerados, associados ao processo de MPQO estejam presentes na descrição teórica.

Podemos encontrar na literatura estudos em que, devido à complexidade do sistema atômico, é utilizado um formalismo simplificado que considera apenas as coerências que exercem maior influência no comportamento do resultado da interação luz-matéria [98, 99, 100]. Em particular, Okada e colaboradores [99] mostram que o sinal de MPQO entre os níveis $2P$ e $2S$ do lítio é diretamente proporcional à coerência entre os níveis $2S$ e $3S$, excitada por uma absorção de dois fótons. O sistema analisado por Okada guarda muitas semelhanças com o nosso sistema. Devemos, então, obter uma descrição razoável do sinal em 420 nm, através da coerência entre os estados $5S$ e $5D$.

Nosso modelo teórico é constituído por um átomo com uma transição sequencial sob a ação de um campo elétrico $E_L(t)$, de um pulso de um laser, com frequência central ω_L . Os estados fundamental, intermediário e mais excitado do átomo são rotulados pelos kets $|1\rangle$, $|2\rangle$ e $|3\rangle$, respectivamente. O hamiltoniano do sistema tem a mesma forma do hamiltoniano apresentado na seção 3.4, podendo ser escrito como uma soma entre o hamiltoniano do átomo livre com o potencial de interação: $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}$, onde $\hat{H}_0 = \hbar\omega_{12}|2\rangle\langle 2| + \hbar\omega_{13}|3\rangle\langle 3|$. O potencial de interação, na aproximação de dipolo elétrico, é dado por:

$$\hat{V}(t) = -\mu_{12}E_L(t)|1\rangle\langle 2| - \mu_{23}E_L(t)|2\rangle\langle 3| + h.c.. \quad (4.13)$$

O estado do sistema, na representação de interação, num instante de tempo qualquer, é dado por:

$$|\Psi(t)\rangle_I = e^{i\hat{H}_0 t/\hbar} |\Psi(t)\rangle_S = c_1(t)|1\rangle + c_2(t)|2\rangle + c_3(t)|3\rangle, \quad (4.14)$$

onde os subíndices, nos vetores de estado, correspondem às representações de interação e de Schrödinger.

O primeiro passo, para incluir os efeitos de acumulação na descrição teórica, é considerar que o pulso do laser, ao interagir com o sistema atômico, não encontra os átomos no nível fundamental, mas numa superposição arbitrária dos auto-estados do átomo:

$$|\Psi(t=0)\rangle_I = c_1(t=0)|1\rangle + c_2(t=0)|2\rangle + c_3(t=0)|3\rangle. \quad (4.15)$$

A dinâmica de $|\Psi(t)\rangle_I$ é determinada pelo operador evolução temporal, $\hat{U}(t)$, o qual no quadro de interação é dado pela equação (3.7), i. e.:

$$\begin{aligned} \hat{U}_I(t) &= 1 - \frac{i}{\hbar} \int_0^t \hat{V}_I(t') \hat{U}_I(t') dt' \\ \hat{U}_I(t) &= 1 + \left(-\frac{i}{\hbar}\right) \int_0^t dt' \hat{V}_I(t') + \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^2 \int_0^t dt' \int_0^{t'} dt'' \hat{V}_I(t') \hat{V}_I(t'') + \dots \end{aligned} \quad (4.16)$$

Estamos interessados em calcular a coerência entre os níveis $|1\rangle$ e $|3\rangle$, a qual é expressa matematicamente como:

$$\rho_{13}(t) = c_3^*(t)c_1(t), \quad (4.17)$$

onde:

$$c_1(t) = \langle 1 | \Psi(t) \rangle_I = \langle 1 | e^{-i\hat{H}_0 t/\hbar} | \Psi(t) \rangle_I, \quad (4.18)$$

e:

$$c_3(t) = \langle 3 | \Psi(t) \rangle_I = \langle 3 | e^{-i\hat{H}_0 t/\hbar} | \Psi(t) \rangle_I. \quad (4.19)$$

Analisando a resposta do sistema de forma perturbativa, expandindo o operador evolução temporal até segunda ordem no campo. Substituindo 4.13 em 4.16, temos:

$$\begin{aligned} \hat{U}_I(t) &= 1 + \left(-\frac{i}{\hbar}\right) \int_{-\infty}^t dt' [-\mu_{12} E_L(t') e^{i(E_1-E_2)t'/\hbar} |1\rangle \langle 2| - \mu_{23} E_L(t') e^{i(E_2-E_3)t'/\hbar} |2\rangle \langle 3| \\ &\quad - \mu_{12} E_L^*(t') e^{i(E_2-E_1)t'/\hbar} |2\rangle \langle 1| - \mu_{23} E_L^*(t') e^{i(E_3-E_2)t'/\hbar} |3\rangle \langle 2|] \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^2 \int_{-\infty}^t dt' \int_{-\infty}^{t'} dt'' [\mu_{12}\mu_{23}E_L(t')E_L(t'')e^{i(E_1-E_2)t'/\hbar}e^{i(E_2-E_3)t''/\hbar}|1\rangle\langle 3| \\
& \quad + \mu_{12}^2E_L(t')E_L^*(t'')e^{i(E_1-E_2)t'/\hbar}e^{i(E_2-E_1)t''/\hbar}|1\rangle\langle 1| \\
& \quad + \mu_{23}^2E_L(t')E_L^*(t'')e^{i(E_2-E_3)t'/\hbar}e^{i(E_3-E_2)t''/\hbar}|2\rangle\langle 2| \\
& \quad + \mu_{12}^2E_L^*(t')E_L(t'')e^{i(E_2-E_1)t'/\hbar}e^{i(E_1-E_2)t''/\hbar}|2\rangle\langle 2| \\
& \quad + \mu_{23}^2E_L^*(t')E_L(t'')e^{i(E_3-E_2)t'/\hbar}e^{i(E_2-E_3)t''/\hbar}|3\rangle\langle 3| \\
& \quad + \mu_{12}\mu_{23}E_L^*(t')E_L^*(t'')e^{i(E_3-E_2)t'/\hbar}e^{i(E_2-E_1)t''/\hbar}|3\rangle\langle 1|], \tag{4.20}
\end{aligned}$$

onde utilizamos a equação (3.8) para obter o operador de interação na representação de interação, e E_1 , E_2 e E_3 , representam as energias dos estados $|1\rangle$, $|2\rangle$ e $|3\rangle$, respectivamente.

A evolução temporal do coeficiente $c_1(t)$ é dada por:

$$c_1(t) = \langle 1|e^{-i\hat{H}_0t/\hbar}|\Psi(t)\rangle_I = \langle 1|e^{-i\hat{H}_0t/\hbar}\hat{U}(t)|\Psi(t=0)\rangle_I, \tag{4.21}$$

utilizando o fato de que o pulso do laser encontra o sistema atômico numa superposição arbitrária dos auto-estados do átomo, descrita na equação (4.15), a equação (4.21) fica:

$$c_1(t) = e^{-iE_1t/\hbar}[c_1(0)\langle 1|\hat{U}_I(t)|1\rangle + c_2(0)\langle 1|\hat{U}_I(t)|2\rangle + c_3(0)\langle 1|\hat{U}_I(t)|3\rangle]. \tag{4.22}$$

Procedendo de forma análoga para $c_3(t)$, obtemos:

$$c_3(t) = e^{-iE_3t/\hbar}[c_1(0)\langle 3|\hat{U}_I(t)|1\rangle + c_2(0)\langle 3|\hat{U}_I(t)|2\rangle + c_3(0)\langle 3|\hat{U}_I(t)|3\rangle]. \tag{4.23}$$

Substituindo a equação (4.20) para o operador evolução temporal, na equação para $c_1(t)$, obtemos:

$$c_1(t) = e^{-iE_1t/\hbar}[c_1(0)\left(1 + \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^2 \int_{-\infty}^t dt' \int_{-\infty}^{t'} dt'' \mu_{12}^2 E_L(t')E_L^*(t'')e^{-i\omega_{12}t'}e^{i\omega_{12}t''}\right)$$

$$\begin{aligned}
& + c_2(0) \left(-\frac{i}{\hbar} \right) \int_{-\infty}^t dt' (-\mu_{12}) E_L(t') e^{-i\omega_{12}t'} \\
& + c_3(0) \left(-\frac{i}{\hbar} \right)^2 \int_{-\infty}^t dt' \int_{-\infty}^{t'} dt'' \mu_{12} \mu_{23} E_L(t') E_L(t'') e^{-i\omega_{12}t'} e^{i\omega_{23}t''} \Big]. \quad (4.24)
\end{aligned}$$

Para $c_3(t)$, teremos:

$$\begin{aligned}
c_3(t) = e^{-iE_3t/\hbar} & \left[c_1(0) \left(-\frac{i}{\hbar} \right)^2 \int_{-\infty}^t dt' \int_{-\infty}^{t'} dt'' \mu_{12} \mu_{23} E_L^*(t') E_L^*(t'') e^{i\omega_{23}t'} e^{i\omega_{12}t''} \right. \\
& + c_2(0) \left(-\frac{i}{\hbar} \right) \int_{-\infty}^t dt' (-\mu_{23}) E_L^*(t') e^{i\omega_{23}t'} \\
& \left. + c_3(0) \left(1 + \left(-\frac{i}{\hbar} \right)^2 \int_{-\infty}^t dt' \int_{-\infty}^{t'} dt'' \mu_{23}^2 E_L^*(t') E_L(t'') e^{i\omega_{23}t'} e^{-i\omega_{23}t''} \right) \right]. \quad (4.25)
\end{aligned}$$

O campo elétrico do pulso do laser pode ser escrito como:

$$E_L(t) = \varepsilon_L(t) e^{i\omega_L t} + \varepsilon_L^*(t) e^{-i\omega_L t}, \quad (4.26)$$

onde $\varepsilon(t)$ é a envoltória do pulso que varia lentamente no tempo, quando comparada com a frequência central do laser ω_L .

Substituindo a equação (4.26) nas equações (4.24) e (4.25), fazendo uso da aproximação de onda girante, na qual retemos apenas os termos que variam lentamente no tempo em comparação com as frequências ópticas presentes no sistema, podemos escrever a coerência de interesse como:

$$\rho_{13}(t) = e^{i\omega_{13}t} \{ c_1^*(0) K_3 - c_2^*(0) K_2 + c_3^*(0) [1 - K_5] \} \{ c_1(0) [1 - K_4] - c_2(0) K_1 + c_3^*(0) [K_1 K_2 - K_3] \}, \quad (4.27)$$

onde:

$$K_1 = i \frac{\mu_{12}}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt' \varepsilon(t') e^{-i\delta_{12}t'}, \quad (4.28a)$$

$$K_2 = i \frac{\mu_{23}}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt' \varepsilon(t') e^{-i\delta_{23}t'}, \quad (4.28b)$$

$$K_3 = -\frac{\mu_{12}\mu_{23}}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt' \varepsilon(t') e^{-i\delta_{23}t'} \int_{-\infty}^{\infty} dt'' \varepsilon(t'') e^{-i\delta_{12}t''}, \quad (4.28c)$$

$$K_4 = \frac{\mu_{12}^2}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt' \varepsilon(t') e^{-i\delta_{12}t'} \int_{-\infty}^{\infty} dt'' \varepsilon^*(t'') e^{i\delta_{12}t''}, \quad (4.28d)$$

$$K_5 = \frac{\mu_{23}^2}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt' \varepsilon(t') e^{-i\delta_{23}t'} \int_{-\infty}^{\infty} dt'' \varepsilon^*(t'') e^{i\delta_{23}t''}, \quad (4.28e)$$

são integrais simples. As dessintonias entre o laser e os níveis $|1\rangle$ e $|2\rangle$ do sistema atômico estão presentes nas integrais e são definidas por: $\delta_{12} = \omega_{12} - \omega_L$ e $\delta_{23} = \omega_{23} - \omega_L$, respectivamente.

É importante observar alguns aspectos físicos das integrais definidas no conjunto de equações (4.28). As duas primeiras, K_1 e K_2 , são proporcionais à transformada de Fourier do campo nas frequências das transições $1 \rightarrow 2$ e $2 \rightarrow 3$, respectivamente. Essas integrais estão relacionadas aos processos de emissão estimulada e absorção, nessas transições. A integral K_3 está associada aos processos de dois fótons. Já as integrais K_4 e K_5 são contribuições de segunda ordem no campo para processos de transição de um fóton.

Efetuada a multiplicação que aparece na equação (4.27) e retendo apenas os termos até segunda ordem no campo, ficamos com:

$$\begin{aligned} \rho_{13}(t) = e^{i\omega_{13}t} [K_3 + (1 - K_4 - K_5)\rho_{13}(0) + K_1\rho_{23}(0) - K_2\rho_{12}(0) \\ - (K_1K_2 + K_3)\rho_{22}(0) + (K_1K_2 - 2K_3)\rho_{33}(0)]. \end{aligned} \quad (4.29)$$

Definimos as coerências que aparecem na equação (4.29) em função de suas envoltórias, que variam lentamente no tempo:

$$\rho_{12}(t) = \sigma_{12}(t) e^{i\omega_L t}, \quad (4.30a)$$

$$\rho_{23}(t) = \sigma_{23}(t) e^{i\omega_L t}, \quad (4.30b)$$

$$\rho_{13}(t) = \sigma_{13}(t) e^{i2\omega_L t}. \quad (4.30c)$$

A equação para a coerência que varia lentamente no tempo entre os estados $|1\rangle$ e $|3\rangle$ é então:

$$\begin{aligned} \sigma_{13}(t) = e^{i\delta_{13}t} [K_3 + (1 - K_4 - K_5)\sigma_{13}(0) + K_1\sigma_{23}(0) - K_2\sigma_{12}(0) \\ - (K_1K_2 + K_3)\rho_{22}(0) + (K_1K_2 - 2K_3)\rho_{33}(0)], \end{aligned} \quad (4.31)$$

onde $\delta_{13} = \omega_{13} - 2\omega_L$ é a dessintonia para a transição de dois fótons.

Procedendo de maneira análoga, podemos chegar a equações semelhantes para todas as coerências e populações do sistema atômico em estudo. Para obtermos a dinâmica das populações e coerências, devemos considerar o decaimento dessas quantidades em função do tempo. Isso é realizado através da introdução de um fator exponencial $e^{-t/T_{ij}}$, multiplicando cada uma das equações (4.32) - (4.36), onde T_{ij} é o tempo de decaimento da respectiva população ou coerência. Com isso, temos a solução, num instante de tempo qualquer t , para as populações e coerências de um sistema atômico de três níveis, excitado por um pulso de laser a partir de um estado inicial arbitrário. Elas podem ser usadas para obter o estado do sistema antes do próximo pulso do laser atingir o átomo, ou seja, quando $t = T_R$, onde T_R é o tempo de repetição do laser. Podemos então escrever o estado do sistema atômico antes do $n + 1$ pulso, ρ^{n+1} , em função do estado ρ^n antes do pulso n . As equações para as populações e coerências são dadas por:

$$\begin{aligned} \rho_{33}^{n+1} = e^{-T_R/T_{33}} [|K_3|^2 + (1 - |K_2|^2)\rho_{33}^n + |K_2|^2\rho_{22}^n - (K_2^*\sigma_{23}^n + c.c.) \\ + (K_3^*\sigma_{13}^n + c.c.) - (K_2K_3^*\sigma_{12}^n + c.c.)], \end{aligned} \quad (4.32)$$

$$\begin{aligned} \rho_{22}^{n+1} = e^{-T_R/T_{22}} [|K_1|^2 + (1 - 2|K_1|^2 - |K_2|^2)\rho_{22}^n + (|K_2|^2 - |K_1|^2)\rho_{33}^n \\ - (K_1^*K_2^*\sigma_{13}^n + c.c.) - (K_1^*\sigma_{12}^n + c.c.) + (K_2^*\sigma_{23}^n + c.c.)], \end{aligned} \quad (4.33)$$

$$\begin{aligned} \sigma_{23}^{n+1} = e^{i\delta_{23}T_R - T_R/T_{23}} [-K_1^*K_3 + (1 - K_4^* + 2K_5)\sigma_{23}^n - K_2^2\sigma_{32}^n - K_1^*\sigma_{13}^n \\ + K_2\rho_{33}^n - K_2\rho_{22}^n + K_1^*K_2\sigma_{12}^n + K_3\sigma_{21}^n], \end{aligned} \quad (4.34)$$

$$\begin{aligned} \sigma_{12}^{n+1} = e^{i\delta_{12}T_R - T_R/T_{12}} [-K_1 + (1 - K_5^* - 2K_4)\sigma_{12}^n - K_1^2\sigma_{21}^n + K_2^*\sigma_{13}^n \\ + 2K_1\rho_{22}^n + K_1\rho_{33}^n + K_1K_2^*\sigma_{23}^n + (K_1K_2 - K_3)\sigma_{32}^n], \end{aligned} \quad (4.35)$$

$$\begin{aligned} \sigma_{13}^{n+1} = e^{i\delta_{13}T_R - T_R/T_{13}} [K_3 + (1 - K_4 - K_5)\sigma_{13}^n + K_1\sigma_{23}^n - K_2\sigma_{12}^n \\ + (K_1K_2 - 2K_3)\rho_{33}^n - (K_1K_2 + K_3)\rho_{22}^n]. \end{aligned} \quad (4.36)$$

É importante observar que como estamos calculando o estado antes no pulso $n + 1$, devemos utilizar o n -ésimo campo do pulso do laser no cálculo das integrais K_1 a K_5 . Com isto, essas integrais são agora escritas como:

$$K_1 = i \frac{\mu_{12}}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt' \epsilon_n(t') e^{-i\delta_{12}t'}, \quad (4.37a)$$

$$K_2 = i \frac{\mu_{23}}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt' \epsilon_n(t') e^{-i\delta_{23}t'}, \quad (4.37b)$$

$$K_3 = -\frac{\mu_{12}\mu_{23}}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt' \epsilon_n(t') e^{-i\delta_{23}t'} \int_{-\infty}^{\infty} dt'' \epsilon_n(t'') e^{-i\delta_{12}t''}, \quad (4.37c)$$

$$K_4 = \frac{\mu_{12}^2}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt' \epsilon_n(t') e^{-i\delta_{12}t'} \int_{-\infty}^{\infty} dt'' \epsilon_n^*(t'') e^{i\delta_{12}t''}, \quad (4.37d)$$

$$K_5 = \frac{\mu_{23}^2}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt' \epsilon_n(t') e^{-i\delta_{23}t'} \int_{-\infty}^{\infty} dt'' \epsilon_n^*(t'') e^{i\delta_{23}t''}, \quad (4.37e)$$

onde podemos observar que a única diferença entre o conjunto de integrais nas equações (4.28) e nas equações (4.37) é o fato de estarmos utilizando o campo do n -ésimo pulso.

Note-se que ao utilizarmos o formalismo das amplitudes de probabilidade para o cálculo das populações e coerências do sistema atômico não levamos em consideração as taxas de decaimento das populações e coerências dos níveis atômicos. Dessa forma, essas taxas não aparecem no cálculo das integrais presentes nas equações (4.37), o que aconteceria se utilizássemos o formalismo das equações de Bloch [95]. A duração temporal do pulso é da ordem de 100 fs, enquanto que as taxas de relaxação são da ordem de dezenas de nanosegundos, de modo que ao realizarmos as integrais das equações (4.37), podemos considerar que o sistema não sofreu nenhum decaimento devido à relaxação e assim não é necessário a inclusão das mesmas no cálculo dessas integrais.

Na nossa descrição teórica, estamos considerando que o sistema atômico interage com um trem de pulsos proveniente do laser de Ti:safira e não apenas com um único pulso. Para implementar a interação entre o sistema atômico e o trem de pulsos, basta notar que as equações (4.32) - (4.36) descrevem a interação de pulsos individuais do trem com o átomo um estado inicial arbitrário e podemos utilizá-las para determinar a evolução temporal do sistema com a sequência de pulsos. Isto é feito através do uso sucessivo das equações (4.32) - (4.36), a partir de um estado inicial qualquer, quando o trem de pulsos incide sobre o sistema. Como esse conjunto de equações fornece o estado do sistema antes do próximo pulso atingir o meio, sua utilização sucessiva acaba por descrever a desejada evolução temporal durante todo o trem de pulsos.

Iremos utilizar as equações (4.32) - (4.36) para investigar o sinal de MQO em um sistema atômico de quatro níveis, cujos resultados experimentais foram apresentados na seção 4.3.2. Para fazermos a conexão entre o modelo teórico e esses resultados, vamos considerar os parâmetros para um vapor de rubídio excitado por um laser de Ti:safira ressonante com a transição sequencial $5S \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 5D$ do rubídio. O comprimento de onda central do laser é de $\lambda_L = 778$ nm e sua largura temporal será da ordem de $T_p = 140$ fs. O período de repetição do laser, utilizado nos cálculos, será de $T_R = 13$ ns. No modelo teórico desenvolvido até aqui, os *kets* de estado $|1\rangle$, $|2\rangle$ e $|3\rangle$, se referem aos níveis $5S$, $5P_{3/2}$ e $5D$, respectivamente. Os tempos de vida dos níveis $5P_{3/2}$ e $5D$ são $T_{22} = 26,7$ ns e $T_{33} = 241$ ns [97]. Para o alargamento homogêneo, consideramos apenas processos radiativos, de modo que $T_{12} = 2T_{22} = 53,4$ ns, $T_{13} = 2T_{33} = 482$ ns e $T_{23} = [(2T_{22})^{-1} + (2T_{33})^{-1}] = 48,1$ ns. Vamos também levar em conta um alargamento não homogêneo, devido ao efeito Doppler, com largura de linha $\delta_D/2\pi = 0,2$ GHz. A razão entre os momentos de dipolo da primeira e segunda transições é $\mu_{23}/\mu_{12} \cong 0,2$ [101].

Considerando que δ_{ij}^0 representa as dessintonias para um grupo de átomos em repouso no referencial do laboratório, as dessintonias para um grupo de átomos arbitrário no perfil não homogêneo podem ser escritas como: $\delta_{12} = \delta_{12}^0 - \delta$, $\delta_{23} = \delta_{23}^0 - \delta$, e $\delta_{13} = \delta_{13}^0 - 2\delta$, onde δ é o desvio Doppler com respeito à transição de um fóton. Para simplificarmos o problema do desvio Doppler, consideramos que $\delta_{13}^0 = 0$, o que significa que a frequência central do laser é ressonante por dois fótons com o grupo de átomos em repouso no referencial do laboratório. Podemos então escrever as dessintonias como:

$$\delta_{12} = -\Delta - \delta, \quad (4.38a)$$

$$\delta_{23} = \Delta - \delta, \quad (4.38b)$$

$$\delta_{13} = -2\delta, \quad (4.38c)$$

onde $\Delta = (\omega_{23} - \omega_{12})/2$.

Para levarmos em consideração todos os grupos de átomos, com velocidades diferentes no perfil Doppler, é necessário realizar uma média sobre as diferentes dessintonias possíveis para esses átomos. Essa média sobre o perfil não homogêneo é definida por:

$$\langle \rho_{ij} \rangle_I = \frac{1}{\sqrt{2\pi\delta_D^2}} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-\delta^2/2\delta_D^2} \rho_{ij}(\delta) d\delta, \quad (4.39)$$

onde ρ_{ij} é o elemento da matriz densidade para o qual estamos realizando a média sobre o perfil não homogêneo.

Vamos agora introduzir o atraso temporal entre os pares de pulsos que excitam o sistema atômico, para que possamos analisar o sinal de controle temporal coerente como mostram os resultados experimentais da seção 4.3.2. A introdução do atraso entre os pares de pulsos que excitam o sistema atômico é feita de forma direta, bastando notar que a envoltória do n -ésimo par de pulsos pode ser escrita como:

$$\varepsilon_{np}(t) = \varepsilon_n(t) + e^{-i\omega_L \tau} \varepsilon_n(t - \tau). \quad (4.40)$$

Desta forma, as integrais de K_1 a K_5 passam a depender de τ e podem ser escritas como:

$$K_1(\tau) = i \frac{\mu_{12}}{\hbar} [1 + e^{-i\omega_{12}\tau}] \int_{-\infty}^{\infty} dt' \varepsilon_n(t') e^{-i\delta_{12}t'}, \quad (4.41a)$$

$$K_2(\tau) = i \frac{\mu_{23}}{\hbar} [1 + e^{-i\omega_{23}\tau}] \int_{-\infty}^{\infty} dt' \varepsilon_n(t') e^{-i\delta_{23}t'}, \quad (4.41b)$$

$$K_3(\tau) = F^*(0) + e^{-i\omega_{12}\tau} F^*(-\tau) + e^{-i\omega_{23}\tau} F^*(\tau) + e^{-i\omega_{13}\tau} F^*(0), \quad (4.41c)$$

$$K_4(\tau) = 2G(0) + e^{i\omega_{12}\tau} G(-\tau) + e^{-i\omega_{12}\tau} G(\tau), \quad (4.41d)$$

$$K_5(\tau) = 2H(0) + e^{i\omega_{12}\tau} H(-\tau) + e^{-i\omega_{12}\tau} H(\tau). \quad (4.41e)$$

onde as funções $F(\tau)$, $G(\tau)$ e $H(\tau)$ são definidas por:

$$F(\tau) = -\frac{\mu_{12}\mu_{23}}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt \int_{-\infty}^{t+\tau} dt' e^{i\delta_{23}t} e^{i\delta_{12}t'} \varepsilon_n^*(t) \varepsilon_n^*(t'), \quad (4.42a)$$

$$G(\tau) = \frac{\mu_{12}^2}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt \int_{-\infty}^{t+\tau} dt' e^{-i\delta_{12}t} e^{i\delta_{12}t'} \varepsilon_n(t) \varepsilon_n^*(t'), \quad (4.42b)$$

$$H(\tau) = \frac{\mu_{23}^2}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt \int_{-\infty}^{t+\tau} dt' e^{-i\delta_{23}t} e^{i\delta_{23}t'} \varepsilon_n(t) \varepsilon_n^*(t'). \quad (4.42c)$$

As funções $F(\tau)$ são as mesmas funções que foram definidas na seção 4.3.1, excluindo as taxas de decaimento das coerências, que estão presentes na equação (4.9) mas não aparecem nas equações (4.42), e os momentos de dipolo das transições atômicas que aparecem na definição da

equação (4.42), mas não estão presentes em (4.9). Essas funções estão associadas, portanto, aos possíveis caminhos quânticos de uma transição de dois fótons com pulsos atrasados temporalmente. As funções $G(\tau)$ e $H(\tau)$ representam processos de segunda ordem no campo relativos às transições de um fóton.

É importante notar que o parâmetro T_R , o período de repetição do laser de Ti:safira, aparece de forma explícita no conjunto de equações (4.32) - (4.36), em exponenciais do tipo $e^{i\delta_{ij}T_R}$. Isto faz com que este parâmetro influencie, de forma fundamental, os resultados que iremos obter para a coerência entre os níveis $|1\rangle$ e $|3\rangle$. Quando realizamos as medidas experimentais, não tínhamos meios de controlar a variação deste parâmetro e sua variação temporal é lenta, comparada com o tempo em que as medidas foram realizadas. Por isso, não podemos considerar uma média sobre seus vários valores possíveis, e tivemos que utilizar um valor específico obtido a partir do ajuste entre as curvas teóricas e os resultados experimentais.

Nossa principal intenção é mostrar que a teoria deste capítulo prevê o surgimento de curvas que observamos experimentalmente, para valores razoáveis dos parâmetros. Não vamos nos preocupar com todos os detalhes que observamos com a variação de cada um dos parâmetros individualmente. Apresentaremos apenas o valor final de cada parâmetro utilizado no ajuste.

Vale lembrar que as envoltórias dos campos, que aparecem nas integrais K_1 a K_5 , são as envoltórias após a propagação do campo através do vapor de rubídio. Iremos utilizar a teoria de propagação linear, desenvolvida na seção 1.5, para obtermos a envoltória do campo após a sua propagação por uma distância z , dentro do vapor de rubídio. As equações (1.18) - (1.20) descrevem o efeito da propagação na envoltória do campo, sendo o campo inicial dado por: $\varepsilon(t) = \varepsilon_0 \text{sech}(1,763t/T_p)$, com $T_p = 140$ fs. A escolha de pulsos do tipo secante hiperbólica se deve ao fato desta ser a forma usual do pulso obtido em um laser de Ti:safira.

Na figura 4.15, apresentamos duas curvas teóricas para varreduras rápidas em τ para a excitação da coerência $|\rho_{13}|^2$ por um trem de pares de pulsos 0π . Nesta figura, consideramos $T_p = 140$ fs e a amplitude do campo no início da célula de rubídio é tal que $\mu_{12}\varepsilon_0/\hbar = 1,4$ THz. O parâmetro que governa a dependência do sinal com a densidade do vapor atômico $\alpha_0 z = 36$, onde α_0 foi definido na seção 1.5 e está associado ao coeficiente de absorção do meio e z é a distância que o campo percorreu dentro do vapor de Rb e a distância percorrida na amostra foi $z = 2,5$ cm, que corresponde ao centro da célula. É importante observar que, com a teoria proposta, estamos calculando as coerências e populações devidas a um único ponto no interior da célula e por isso não vamos considerar efeitos que estão associados aos campos gerados no processo de MPQO. Cada ponto da curva é uma média de 200 cálculos da coerência final ρ_{13}^f para diferentes valores de τ dentro de um período óptico, especificado por $2\pi/\omega_L$.

O parâmetro modificado, para a obtenção dos quadros (a) e (b) da figura 4.15, foi o tempo de

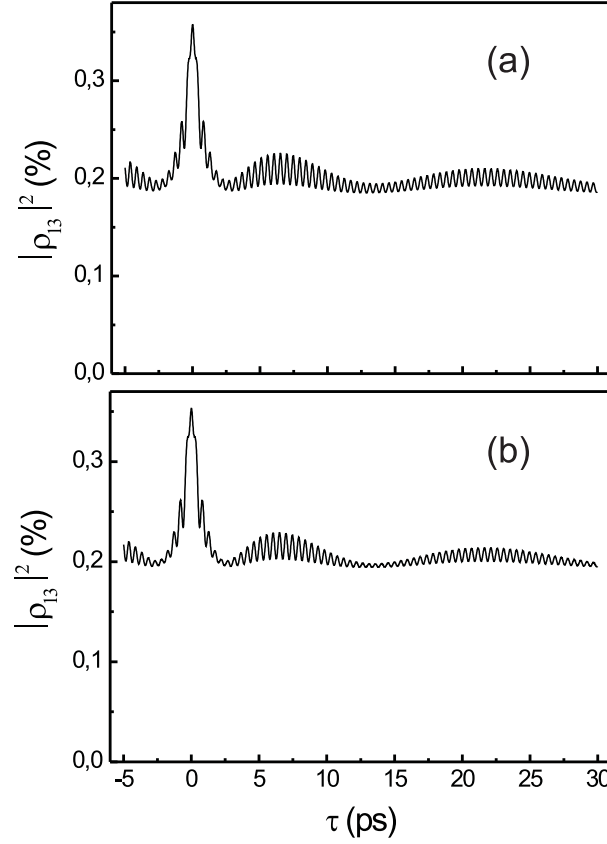


Figura 4.15 Variação de $|\rho_{13}|^2$ em uma varredura rápida de τ , obtida a partir das equações (4.32) - (4.36). Os parâmetros utilizados foram $T_p = 140$ fs, $\mu_{12}\epsilon_0/\hbar = 1,4$ THz e $\alpha_0 z = 36$. No quadro (a), temos $T_R = 13,000405$ ns e no quadro (b) $T_R = 13,0001685$ ns.

repetição T_R do laser de femtosegundos. No quadro (a), temos $T_R = 13,000405$ ns e no quadro (b), $T_R = 13,0001685$ ns. Para entendermos a escolha desses valores, vamos voltar às equações (4.32) - (4.36) e observar a dependência destas equações com T_R . Todas as coerências possuem um fator exponencial que oscila em função de T_R . Devido a isso, podemos ter a presença de interferências construtivas ou destrutivas para $|\rho_{13}|^2$. Podemos fazer uso das equações (4.38) para escrever a condição de interferência construtiva:

$$\delta_{12} = -\Delta - \delta = 2N_{12}\pi, \quad (4.43a)$$

$$\delta_{23} = \Delta - \delta = 2N_{23}\pi, \quad (4.43b)$$

$$\delta_{13} = -2\delta = 2N_{13}\pi, \quad (4.43c)$$

e as condições de interferência destrutiva ocorrem para valores inteiros e ímpares de π . Escolhemos, então, T_R de modo a termos os primeiros valores deste parâmetro implicam em interferências construtivas e destrutivas após 13 ns, para ρ_{13} , pois o sinal de interesse é proporcional ao módulo quadrado dessa coerência.

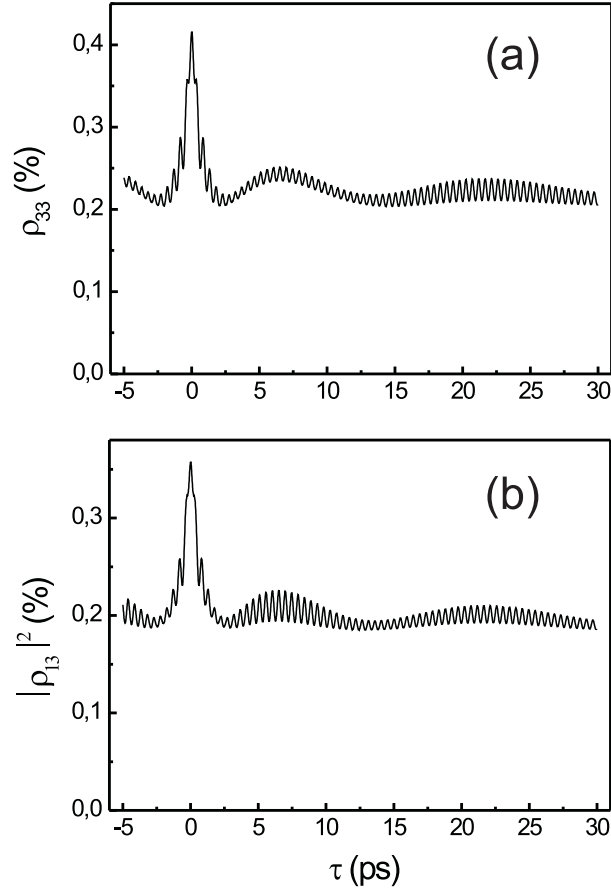


Figura 4.16 Comparação entre $|\rho_{13}|^2$ e ρ_{33} para uma varredura rápida. Os parâmetros utilizados foram $T_p = 140$ fs e $T_R = 13,000405$ ns, $\mu_{12}\epsilon_0/\hbar = 1,4$ THz e $\alpha_0 z = 36$.

Porém, pela figura 4.15, notamos que o sinal praticamente não varia ao passarmos de uma condição de interferência construtiva para a de interferência destrutiva. Isso acontece por estarmos trabalhando com pulsos 0π , de tal forma que as ressonâncias por um fóton não são importantes e para a transição de dois fótons consideramos, em nossa análise teórica, que estamos na condição de ressonância. Dessa forma, as interferências construtivas ou destrutivas aparecerão na obtenção

da média sobre o perfil Doppler, que foi realizada para obter as duas curvas, e por isso não há uma variação significativa com T_R no resultado obtido.

Fizemos uma comparação entre as curvas obtidas para a população do nível mais excitado e a coerência entre os estados $|1\rangle$ e $|3\rangle$. O resultado encontra-se na figura 4.16. Os parâmetros utilizados foram $T_p = 140$ fs e $T_R = 13,000405$ ns, $\mu_{12}\epsilon_0/\hbar = 1,4$ THz e $\alpha_0 z = 36$. Podemos notar que a única diferença entre os dois sinais está na visibilidade dos batimentos em 473 fs, que para a coerência é maior que para a população. O mesmo acontece no caso experimental, em que o sinal devido ao processo de MPQO tem uma visibilidade maior que a fluorescência para esses batimentos. É importante notar que a relação de intensidade entre o pico central e a componente de fundo é praticamente a mesma para a população e a coerência, contrário ao que observamos experimentalmente, indicando que algum efeito importante para a descrição do sinal de MPQO não foi considerado.

Na figura 4.17, utilizamos os mesmos parâmetros da figura 4.16 para analisar o comportamento da teoria quando alteramos a intensidade do campo inicial que incide sobre a célula. Na figura 4.16(a), essa intensidade é tal que $\mu_{12}\epsilon_0/\hbar = 0,7$ THz, enquanto que na figura 4.16(b) utilizamos o mesmo valor que o utilizado na obtenção da figura 4.15, i. e., $\mu_{12}\epsilon_0/\hbar = 1,4$ THz. A primeira mudança que observamos é que o sinal como um todo diminui de intensidade. Esse fato é esperado, uma vez que diminuimos a intensidade do campo inicial que incide sobre o vapor atômico. Para o valor da intensidade do campo inicial do quadro (a), as oscilações em 473 fs praticamente desaparecem, enquanto que as oscilações na escala de picosegundos não se alteram. Para entendermos a diminuição da visibilidade devemos lembrar que este batimento está associado à diferença entre as frequências das transições atômicas entre os níveis 5D e $5P_{3/2}$, e $5P_{3/2}$ e 5S. Essas transições ocorrem devido à emissão estimulada entre os níveis 5D e $5P_{3/2}$ e à absorção de um fóton entre os níveis $5P_{3/2}$ e 5S. Ao diminuirmos, portanto, a intensidade do campo que incide sobre o sistema atômico, estaremos diminuindo a intensidade do campo que induz o processo de emissão estimulada e a absorção de um fóton, fazendo com que aconteça uma diminuição da probabilidade de ocorrência deste processo.

Na figura 4.18, apresentamos três curvas teóricas para varreduras rápidas no atraso para a excitação da coerência $|\rho_{13}|^2$ por um trem de pares de pulsos 0π . Nesta figura, consideramos $T_p = 140$ fs e $T_R = 13,000405$ ns e $\mu_{12}\epsilon_0/\hbar = 1,4$ THz. O parâmetro modificado foi o que governa a dependência do sinal com a densidade do vapor atômico, $\alpha_0 z$. Para os três quadros da figura, esse parâmetro foi igual a $\alpha_0 z = 19$, $\alpha_0 z = 36$ e $\alpha_0 z = 95$, nos quadros (a), (b) e (c), respectivamente.

Através da figura 4.18, podemos observar que conseguimos reproduzir as principais características dos resultados experimentais, i. e., temos um batimento em 473 fs que se mantém constante para variações do parâmetro $\alpha_0 z$, os batimentos na escala de picosegundos diminuem o seu período com o aumento de $\alpha_0 z$. Este fato pode ser interpretado da seguinte maneira: ao se propagar por um

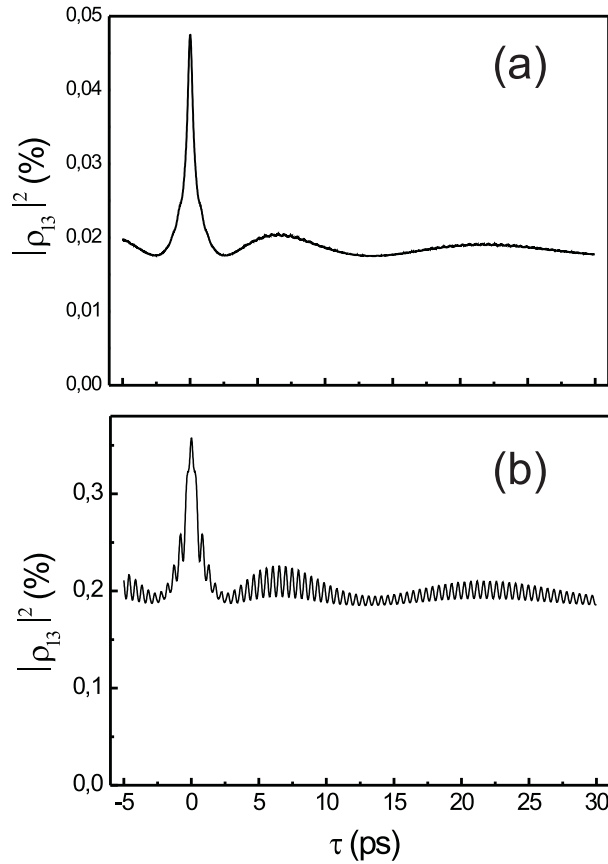


Figura 4.17 Variação de $|\rho_{13}|^2$ para uma varredura rápida do atraso. No quadro (a) a intensidade inicial do campo elétrico é tal que $\mu_{12}\epsilon_0/\hbar = 0,7$ THz, enquanto no quadro (b) temos uma reprodução do quadro (a) da figura 4.15.

vapor atômico denso, o espectro do pulso tem parte de seu espectro absorvido, ver figura ??, de tal forma que este pulso se comporta com sendo a combinação de dois outros pulsos separados espectralmente pelas componentes espectrais que foram absorvidas. Teremos, então, um batimento devido à diferença entre as frequências centrais desses pulsos. Ao aumentarmos a densidade essa separação espectral aumenta, de forma que a diferença entre as frequências centrais dos novos pulsos aumenta, o que implica na diminuição do período do batimento.

A razão pico/fundo é de $\approx 2,0$ para as três curvas. O fato de não levarmos em consideração efeitos de amplificação dos campos gerados no processo de MPQO na descrição teórica deve estar associado a essa discrepância entre a razão pico/fundo experimental e teórica. Uma teoria para descrever corretamente o sinal de MPQO que estamos analisando deve considerar os efeitos

acumulativos devido à interação entre o trem de pulsos e o sistema atômico, de propagação dos campos que excitam o sistema atômico e de amplificação dos campos que são gerados no processo de MPQO. Nosso modelo leva em conta os principais efeitos associados aos campos do laser de Ti:safira que excita os átomos. Entretanto, ele despreza efeitos de propagação e interação com o meio dos campos que são gerados no processo. A principal diferença associada ao processo de MPQO e a fluorescência é a amplificação dos campos em função da distância de propagação no vapor de rubídio. Como vimos na seção 4.2, uma formulação teórica para a amplificação dos campos do processo de MPQO é feita utilizando-se as equações de Maxwell. Portanto, para obtermos uma descrição mais realista do sinal de MPQO, devemos utilizar as equações de Maxwell-Bloch para descrever a dinâmica temporal do sinal de interesse e sua dependência com a distância percorrida no vapor atômico.

A teoria desenvolvida nesta seção é o primeiro passo na direção de obtermos uma descrição que leva em conta os principais efeitos que influenciam o sinal de MPQO. Com o intuito de simplificar o problema, uma vez que iremos precisar utilizar as equações de Maxwell para descrever a propagação dos campos gerados no processo de MPQO, utilizamos o formalismo de amplitudes de probabilidade para levar em conta os principais efeitos associados aos campos que excitam o sistema atômico e obtivemos resultados que apresentam os principais efeitos associados a esses campos.

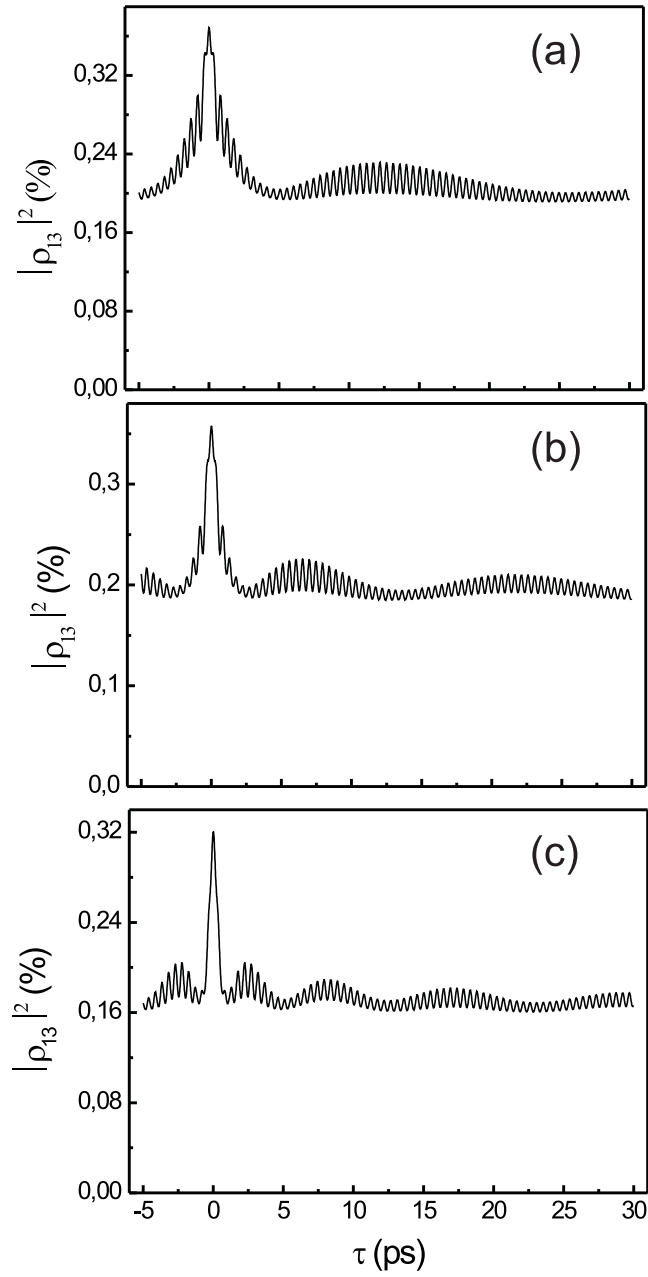


Figura 4.18 Variação de $|\rho_{13}|^2$ para uma varredura rápida obtida a partir das equações (4.32) - (4.36). Os parâmetros utilizados foram $T_p = 140$ fs e $T_R = 13,000405$ ns, $\mu_{12}\epsilon_0/\hbar = 1,4$ THz. Nos quadros (a), (b) e (c) variamos o parâmetro que controla a densidade da amostra, sendo o mesmo igual a $\alpha_0 z = 19, \alpha_0 z = 36$ e $\alpha_0 z = 95$, respectivamente.

CAPÍTULO 5

Conclusão

Nesta tese, estudamos vários aspectos do controle coerente em transições de dois fótons, em vapor de rubídio. Investigamos tanto a absorção de dois fótons, sem ressonância com nível intermediário, quanto a transição sequencial de dois fótons. Nos três experimentos realizados, a resposta do sistema atômico é analisada em função do atraso temporal entre pares de pulsos, responsáveis pela excitação do sistema.

No primeiro estudo, uma fonte de luz incoerente foi responsável pela transição de dois fótons entre o nível fundamental, 5S e os níveis de Rydberg 16D e 18S. A resposta do sistema atômico é analisada através da emissão entre os níveis $6P_{3/2}$ e 5S devida a um processo de mistura de quatro ondas em função do atraso entre os pulsos que excitam a transição de dois fótons.

Observamos dois tipos de oscilações no sinal detetado: a primeira, na frequência central do laser que excita a transição de dois fótons, denominada de oscilação "óptica", só ocorre para valores do atraso em que os pulsos se sobrepõem temporalmente. A segunda oscilação, no dobro da frequência central do laser, ocorre para valores do atraso entre os pulsos menores que o tempo de decaimento dos níveis envolvidos no processo. Este resultado é conhecido na literatura para o controle temporal coerente de uma transição de dois fótons. Entretanto, em nosso estudo foi utilizada uma fonte de luz incoerente, enquanto que na literatura se empregam fontes de pulsos ultracurtos para a obtenção dos mesmos resultados. Introduzimos mais um grau de liberdade no sistema, através da manipulação das polarizações dos campos que incidem no sistema atômico. Com a manipulação dessas polarizações fomos capazes de cancelar os caminhos quânticos que interferiam levando às oscilações "ópticas" e observamos apenas as oscilações quânticas, para qualquer valor do atraso entre os pulsos.

Utilizamos as equações de Bloch em uma expansão perturbativa até segunda ordem no campo incidente para modelar a interação entre o sistema atômico e os campos que interagem com o mesmo. Como trabalhamos com luz incoerente, desenvolvemos o formalismo matemático no domínio das frequências, para considerarmos todas as contribuições devidas à distribuição espectral dos campos que excitam a transição de dois fótons. Com essa teoria, fomos capazes descrever as regiões em que ocorrem as oscilações "ópticas" e quânticas, a relação das magnitudes destas oscilações e a razão existente entre o pico central e a componente de fundo. Além disso, utilizamos a

simetria do meio, presente na descrição teórica através do tensor suscetibilidade, em conjunto com o controle da polarização dos campos incidentes, para manipular os diversos caminhos quânticos existentes em uma absorção de dois fótons com pulsos atrasados.

No segundo experimento, estudamos a transição de dois fótons pura $5S \rightarrow 7S$ excitada por pares de pulsos atrasados temporalmente, provenientes de um laser de femtosegundos. Em um dos pulsos, uma fase externa é adicionada utilizando-se um sintetizador de Fourier. O degrau de fase e a posição do espectro do pulso sobre a qual a fase externa é adicionada são parâmetros experimentais e podem ser variados. Neste experimento, monitoramos o sinal devido à população do nível $7S$ em função do atraso entre os pares de pulsos que excitam a transição de dois fótons. Mostramos que com uma combinação específica do atraso temporal entre os pulsos e da fase externa adicionada, podemos controlar os caminhos quânticos existentes na transição de dois fótons. Em particular, mostramos que é possível cancelar os caminhos quânticos que interferem para originar as oscilações "ópticas", sem, no entanto, alterar os caminhos quânticos que levam às oscilações quânticas.

Utilizamos o formalismo das amplitudes de probabilidade, em que consideramos os termos até segunda ordem no campo elétrico, para modelar a interação entre o sistema atômico e os campos elétricos, atrasado no tempo e com a fase externa devida ao sintetizador de Fourier. Obtivemos uma ótima concordância entre os resultados experimentais e o modelo teórico. Com a utilização deste último, podemos prever que para um determinado degrau de fase aplicado à metade do espectro de um dos pulsos, é sempre possível obter um atraso temporal em que as oscilações "ópticas" são destruídas.

No terceiro experimento, investigamos a transição sequencial $5S \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 5D$, onde temos a ressonância com o nível intermediário $5P_{3/2}$. Essa ressonância foi responsável pela presença de diversos outros efeitos, que não ocorreram nos dois primeiros estudos realizados nesta tese: o efeito de propagação dos campos que excitam o sistema atômico e o efeito de acumulação nas populações e nas coerências dos níveis desse sistema.

O primeiro passo, realizado no estudo da transição sequencial, foi a realização de medidas na emissão em 420 nm, entre os níveis $6P_{3/2}$ e $5S$, em função da potência do campo que excita a transição e da densidade do vapor atômico. Coletamos o sinal numa direção perpendicular ao feixe de laser que incidia sobre o sistema atômico e na mesma direção deste feixe. Fizemos a caracterização desses dois tipos de sinal, mostrando claramente que o primeiro está associado à população do nível mais excitado da transição sequencial, em um processo de fluorescência, enquanto que o segundo está associado à coerência entre os níveis $6P_{3/2}$ e $5S$, resultante de um processo de MPQO.

Passamos, então, ao estudo da transição sequencial quando os pulsos que a excitavam pos-

suíam atraso temporal. Foram realizadas medidas com precisão interferométrica e medidas de varredura rápida no atraso entre os pulsos e mais uma vez coletamos o sinal devido aos processos de fluorescência e de MPQO. Nas medidas com precisão interferométrica, fizemos uma análise do comportamento dos dois sinais em função da polarização dos campos que incidem sobre o mesmo. Pudemos notar que a diferença entre os processos fica evidenciada quando os pulsos atrasados possuem polarizações perpendiculares. Em particular, para o processo de MPQO, quando as polarizações são lineares e perpendiculares, mostramos que as oscilações "ópticas" estão presentes, assim ficando comprovada sua natureza quântica. Utilizamos a mesma descrição teórica que foi utilizada no capítulo 2, porém desta vez no domínio temporal, para mostrar a ocorrência das oscilações "ópticas" e quânticas. Em particular, a teoria foi desenvolvida para a MPQO quando os pulsos atrasados no tempo possuem polarizações paralelas. Entretanto, indicamos as modificações necessárias para o cálculo da fluorescência e/ou para quando as polarizações dos pulsos forem perpendiculares.

Para a varredura rápida, verificamos que o sinal gerado no processo de MPQO apresenta algumas características semelhantes ao comportamento já conhecido da fluorescência. Em particular, a presença de batimentos na envoltória do sinal, na escala de picosegundos, que variam com a densidade do vapor atômico e uma oscilação em 473 fs, que é independente da densidade do vapor. Uma das diferenças observadas entre os dois sinais, verificada através das medidas experimentais, é que eles não guardam as mesmas relações de intensidade entre o máximo central e o fundo constante.

Utilizamos o formalismo de amplitudes de probabilidades para modelar a interação entre o sistema atômico e o trem de pulsos, proveniente do laser de Ti:safira. Nessa teoria, consideramos os principais efeitos associados aos campos que excitam a transição de dois fótons, os efeitos de propagação e os efeitos acumulativos. Como estávamos interessados apenas nos efeitos associados aos campos que excitam a transição, utilizamos um sistema de três níveis para modelar o nosso sistema atômico. Apesar de já existir na literatura um formalismo teórico, baseado nas equações de Bloch, que descreve o mesmo sistema, o formalismo das amplitude de probabilidade é mais simples e leva aos mesmos resultados.

Os resultados teóricos descrevem os principais efeitos associados aos campos do laser de Ti:safira, porém falha ao tentar descrever alguns aspectos do sinal experimental obtido. A principal discrepância entre teoria e experimento é verificada ao tentarmos comparar a razão pico/fundo dos dois resultados. Essa discordância deve estar associada ao fato de não considerarmos efeitos de propagação dos campos gerados no processo de MPQO e de sua interação com o vapor atômico. Uma sugestão é feita, no sentido de incluir esses efeitos no formalismo teórico, através do uso das equações de Maxwell, uma vez que essas equações descrevem a propagação de ondas eletromagnéticas em meios materiais.

A utilização das equações de Maxwell-Bloch para a descrição da interação entre campos eletro-

magnéticos e a matéria, e sua propagação em um meio material, já é bastante conhecida na literatura. Porém, não se consideram os efeitos de acumulação que estão presentes no sistema que estudamos. O desenvolvimento de uma descrição para a coerência entre os estados de interesse foi o primeiro passo, realizado neste trabalho, para a inclusão desse efeito em uma formulação que também considere os efeitos de propagação e interação dos campos gerados com o meio em que se propaga.

Referências Bibliográficas

- [1] T. H. Maiman. Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, **187**: 493, (1960).
- [2] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich. Generation of optical harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, **7**: 118, (1961).
- [3] M. Bass, P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich. Optical mixing. *Phys. Rev. Lett.*, **8**: 18, (1962).
- [4] S. A. Akhmanov, A. I. Kovrigin, A. S. Piskarskas, V. V. Fadeev, and R. V. Khokhlov. Observation of parametric amplification in the optical range. *JEPT Lett.*, **2**: 191, (1965).
- [5] D. A. Kleinman. Nonlinear polarization in optical media. *Phys. Rev.*, **126**: 1977, (1962).
- [6] N. Bloembergen and Y. R. Shen. Quantum-theoretical comparison of nonlinear susceptibilities in parametric media, laser, and Raman lasers. *Phys. Rev.*, **133**: 1964, (1964).
- [7] D. J. Griffiths. *Introduction to Electrodynamics*. Prentice Hall, New Jersey, (1989).
- [8] W. E. Boyce and R. C. di Prima. *Equações Diferenciais Elementares e Problemas de Valores de Contorno*. Guanabara Koogan S. A., Rio de Janeiro, (1994).
- [9] A. Yariv. *Quantum Electronics*. John Wiley and Sons, New York, (1989).
- [10] C. R. Giuliano and L. D. Hess. Nonlinear absorption of light - optical saturation of electronic transitions in organic molecules with high intensity laser radiation. *IEEE J. Quantum Electron.*, **3**: 358, (1967).
- [11] M. A. Vasil'eva, V. I. Malyshev, A. V. Masalov, and P. S. Antsiferov. Examination of ultra rapid relaxation in a medium by space-time modulation of the perturbing light. *Bull. Nat. Acad. Sci.*, **46**: 1203, (1982).
- [12] J. E. Golub e T. W. Mossberg. Ultrahigh-frequency interference beats in transient, incoherent-light four-wave mixing. *Opt. Lett.*, **11**: 431, (1986).
- [13] J. W. R. Tabosa, S. S. Vianna, and F. A. M. de Oliveira. Nonlinear spectroscopy and optical phase conjugation in cold cesium atoms. *Phys. Rev. A.*, **55**: 2968, (1997).

- [14] L. H. Acioli, A. S. L. Gomes, J. R. Rios Leite, and Cid B. de Araújo. Infrared to visible image conversion in Cd(S,Se) glass composites. *Appl. Phys. Lett.*, **54**: 1956, (1989).
- [15] L. Mandel and E. Wolf. *Optical Coherence and Quantum Optics*. Cambridge University Press, Cambridge, (1995).
- [16] G. Fowles. *Introduction to Modern Optics*. Dover, New York, (1989).
- [17] Editor: F. P. Schäfer. *Dye Lasers*. Topics in applied physics, volume 1. Springer Verlag, Berlin, (1973).
- [18] S. Asaka, H. Nakatsuka, M. Fujiwara, and M. Matsuoka. Accumulated photon echoes with incoherent light in Nd⁺³ doped silicate glass. *Phys. Rev. A*, **29**: 2286, (1984).
- [19] M. Tomita and M. Matsuoka. Ultrafast pump-probe measurement using intensity correlation of incoherent light. *J. Opt. Soc. Am. B*, **3**: 560, (1986).
- [20] D. J. Kuizenga, D. W. Phillion, T. Lund, and A. Siegman. Simultaneous Q-switching and mode-locking in the cw Nd: YAG laser. *Opt. Comm.*, **9**: 221, (1973).
- [21] F. Minami and A. Hasegawa. Ultrafast two-laser pump-probe measurement using temporally incoherent lights. *Appl. Phys. Lett.*, **54**: 978, (1989).
- [22] N. Morita, K. Torikuza, and T. Yajima. Coherent propagation effect of incoherent light. *J. Opt. Soc. Am. B*, **3**: 548, (1986).
- [23] J. E. Golub and T. W. Mossberg. Studies of picosecond collisional dephasing in atomic sodium vapor using broad-bandwidth transient four-wave mixing. *J. Opt. Soc. Am. B*, **3**: 554, (1986).
- [24] R. Beach, D. DeBeer, and S. R. Hartmann. Time-delayed four-wave mixing using intense incoherent light. *Phys. Rev. A*, **32**: 3467, (1985).
- [25] S. Cavalieri, M. Materazzi, R. Eramo, L. Fini, and A. Giugni. Multiphoton time-delay spectroscopy using not transform-limited laser pulses. *Opt. Comm.*, **182**: 161, (2000).
- [26] R. S. Judson and H. Rabitz. Teaching lasers to control molecules. *Phys. Rev. Lett.*, **68**: 1500, (1992).
- [27] R. N. Zare. Laser control of chemical reactions. *Science*, **279**: 1875, (1998).
- [28] D. C. Clary. Quantum theory of chemical reaction dynamics. *Science*, **279**: 1879, (1998).
- [29] J. A. Gupta, R. Knobel, N. Samarth, and D. D. Awschalom. Ultrafast manipulation of electron spin coherence. *Science*, **292**: 2458, (2001).

- [30] H. Rabitz, R. Vivie-Riedle, M. Motzkus, and K. Kompa. Whither the future of controlling quantum phenomena? *Science*, **288**: 824, (2000).
- [31] A. H. Zewail. *Femtochemistry: Ultrafast dynamics of the chemical bond*. World Scientific, Singapore, (1994).
- [32] M. Wollenhaupt, V. Engel, and T. Baumert. Femtosecond laser photoelectron spectroscopy on atoms and small molecules: Prototype studies in quantum control. *Annu. Rev. Phys. Chem.*, **56**: 25, (2005).
- [33] V. Blanchet, C. Nicole, M. A. Bouchene, and B. Girard. Temporal coherent control in two-photon transitions: From optical interferences to quantum interferences. *Phys. Rev. Lett.*, **78**: 2716, (1997).
- [34] A. Präkelt, M. Wollenhaupt, C. Sarpe-Tudoran, and T. Baumert. Phase control of a two-photon transition with shaped femtosecond laser-pulse sequences. *Phys. Rev. A*, **70**: 063407, (2004).
- [35] D. Meshulach and Y. Silberberg. Coherent quantum control of two-photon transitions by a femtosecond laser pulse. *Nature*, **396**: 239, (1998).
- [36] S. S. Vianna, P. Nussenzveig, W. C. Magno, and J. W. R. Tabosa. Polarization dependence and interference in four-wave mixing with Rydberg levels in rubidium vapor. *Phys. Rev. A*, **58**: 3000, (1998).
- [37] M. A. Bouchene, V. Blanchet, C. Nicole, N. Melikechi, B. Girard, H. Ruppe, S. Rutz, E. Schreiber, and L. Wöste. Temporal coherent control induced by wave packet interferences in one and two photon atomic transitions. *Eur. Phys. J. D*, **2**: 131, (1998).
- [38] R. Netz, A. Nazarkin, and R. Sauerbrey. Observation of selectivity of coherent population transfer induced by optical interferences. *Phys. Rev. Lett.*, **90**: 063001, (2003).
- [39] D. Meshulach and Y. Silberberg. Coherent quantum control of multiphoton transitions by shaped ultrashort optical pulses. *Phys. Rev. A*, **2**: 1287, (1999).
- [40] N. Dudovich, D. Oron, and Y. Silberberg. Single-pulse coherently controlled nonlinear Raman spectroscopy and microscopy. *Nature*, **418**: 512, (2002).
- [41] D. Oron and Y. Silberberg. Spatiotemporal coherent control using shaped, temporally focused beams. *Opt. Exp.*, **13**: 9903, (2005).
- [42] N. Dudovich, B. Dayan, S. M. G. Faeder, and Y. Silberberg. Transform limited pulses are not optimal for resonant multiphoton transitions. *Phys. Rev. Lett.*, **88**: 47, (2001).

- [43] O. E. Martinez. 3000 times grating compressor with positive group velocity dispersion: application to fiber compensation in 1.3-1.6 μm region. *IEEE J. Quantum Electron.*, **23**: 47, (1987).
- [44] J. Degert, W. Wohlleben, B. Chatel, M. Motzkus, and B. Girard. Realization of a time-domain Fresnel lens with coherent control. *Phys. Rev. Lett.*, **89**: 203003, (2002).
- [45] A. M. Weiner. Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators. *Rev. Sci. Instrum.*, **71**: 1929, (2000).
- [46] N. F. Scherer, R. J. Carlson, A. Matro, M. Du, J. Ruggiero, V. Romero-Rochin, J. A. Cina, G. R. Fleming, and S. A. Rice. Fluorescence-detected wave packet interferometry: Time resolved molecular spectroscopy with sequences of femtosecond phase-locked pulses. *J. Chem. Phys.*, **95**: 1487, (1991).
- [47] V. Blanchet, M. A. Bouchene, O. Cabrol, and B. Girard. One-color coherent control in CS_2 : Observation of 2.7 fs beats in the ionization signal. *Chem. Phys. Lett.*, **233**: 491, (1991).
- [48] H. G. Barros, W. Lozano B., S. S. Vianna, and L. H. Acioli. Influence of propagation and external phase in sequential two-photon absorption of femtosecond pulses. *Opt. Lett.*, **30**: 3081, (2005).
- [49] A. P. Heberle, J. J. Baumberg, and K. Köhler. Ultrafast coherent control and destruction of excitons in quantum wells. *Phys. Rev. Lett.*, **75**: 2598, (1995).
- [50] D. S. Citrin and T. B. Norris. Constraints on coherent control of quantum-well excitons for high-speed all-optical switching. *IEEE J. Quantum Electron.*, **33**: 404, (1997).
- [51] A. Pe'er, B. Dayan, M. Vucelja, Y. Silberberg, and A. A. Friesem. Quantum lithography by coherent control of classical light pulses. *Opt. Exp.*, **12**: 6600, (2004).
- [52] J. W. Goodman. *Introduction to Fourier Optics*. McGraw-Hill, New York, (1996).
- [53] V. M. Baev, K. J. Boller, and P. E. Toschek. Polarisation-dependent interference of two-photon absorption in a broad-band laser. *Opt. Comm.*, **66**: 225, (1988).
- [54] T. Brixner and G. Gerber. Femtosecond polarization pulse shaping. *Opt. Lett.*, **26**: 557, (2001).
- [55] T. Brixner, G. Krampert, T. Pfeifer, R. Selle, G. Gerber, M. Wollenhaupt, O. Graefe, C. Horn, D. Liese, and T. Baumert. Quantum control by ultrafast polarization shapping. *Phys. Rev. Lett.*, **92**: 208301, (2004).
- [56] R. Teets, J. N. Eckstein, and T. W. Hänsch. Coherent two-photon excitation by multiple light pulses. *Phys. Rev. Lett.*, **38**: 760, (1977).

- [57] A. I. Ferguson, J. N. Eckstein, and T. W. Hänsch. Polarization spectroscopy with ultrashort light pulses. *Appl. Phys.*, **18**: 257, (1979).
- [58] B. Couillaud, A. Ducasse, L. Sarger, and D. Boscher. High-resolution saturated absorption spectroscopy with coherent trains of short light pulses. *Appl. Phys. Lett.*, **36**: 406, (1980).
- [59] E. Krüger. Absorption spectra of pulse-train-excited sodium two-level atoms. *J. Opt. Soc. Am. B*, **12**: 15, (1995).
- [60] L. C. Bradley. Pulse-train excitation of sodium for use as a synthetic beacon. *J. Opt. Soc. Am. B*, **10**: 1931, (1992).
- [61] R. J. Temkin. Excitation of an atom by a train of short pulses. *J. Opt. Soc. Am. B*, **10**: 830, (1993).
- [62] 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).
- [63] L. Allen and J. H. Eberly. *Optical Resonance and Two-Level Atoms*. Dover, New York, (1987).
- [64] S. L. McCall and E. L. Hahn. Self-induced transparency by pulsed coherent light. *Phys. Rev. Lett.*, **18**: 908, (1967).
- [65] M. D. Crisp. Propagation of small-area pulses of coherent light through a resonant medium. *Phys. Rev. A*, **1**: 1604, (1970).
- [66] J. E. Rothenberg, D. Grischkowsky, and A. C. Balant. Observation of the formation of the 0π pulse. *Phys. Rev. Lett.*, **53**: 552, (1984).
- [67] U. Kallmann, S. Brattke, and W. Hartmann. Propagation of resonant 0π pulses in rubidium. *Phys. Rev. A*, **59**: 814, (1999).
- [68] D. Felinto, L. H. Acioli, and S. S. Vianna. Temporal coherent control of a sequential transition in rubidium atoms. *Opt. Lett.*, **25**: 917, (2000).
- [69] M. A. Bouchene, A. Débarre, J. C. Keller, J. L. Le Gouët, and P. Tchénié. Observation of 0π -pulse formation with incoherent light. *J. Opt. Soc. Am. B*, **9**: 281, (1992).
- [70] A. M. Weiner, D. E. Leaird, J. S. Patel, and J. R. Wullert. Programmable femtosecond pulse shaping by use of a multielement liquid-crystal phase modulator. *Opt. Lett.*, **15**: 326, (1990).
- [71] M. S. Malcuit, D. J. Gauthier, and R. W. Boyd. Suppression of amplified spontaneous emission by the four-wave mixing process. *Phys. Rev. Lett.*, **55**: 1086, (1985).

- [72] R. W. Boyd, M. S. Malcuit, and D. J. Gauthier. Competition between amplified spontaneous emission and the four-wave-mixing process. *Phys. Rev. A*, **35**: 1648, (1987).
- [73] C.-J. Zhu, A. A. Senin, Z.-H. Lu, J. Gao, Y. Xiao, and J. G. Eden. Polarization of signal wave radiation generated by parametric four-wave mixing in rubidium vapor: ultrafast (≈ 150 -fs) and nanosecond time scale excitation. *Phys. Rev. A*, **72**: 023811, (2005).
- [74] J. Ferraz. Mistura de quatro ondas em sistemas atômicos com luz incoerente. Dissertação de mestrado, Universidade Federal de Pernambuco, (2003).
- [75] I. Shoshan and U. P. Oppenheim. The use of a diffraction grating as a beam expander in a dye laser cavity. *Opt. Comm.*, **25**: 375, (1978).
- [76] National standard reference data system. II: 35, (1971).
- [77] J. Ferraz, D. Felinto, L. H. Acioli, and S. S. Vianna. Quantum interference in atomic vapor observed by four-wave mixing with incoherent light. *Opt. Lett.*, **30**: 1876, (2005).
- [78] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloë. *Quantum Mechanics, Volume 1*. John Wiley and Sons, New York, (1977).
- [79] A. Gusmán. *Report No. 91*. Max Planck Institute for Quantum Optics, Garching, Alemanha, (1984).
- [80] R. Loudon. *The Quantum Theory of Light*. Oxford University Press, (1995).
- [81] P. N. Butcher. *Nonlinear Optical Phenomena*. Bulletin 200, Ohio State University, (1965).
- [82] H. M. Nussenzveig. *Introduction to Quantum Optics*. Gordon and Breach Science Publishers, New York, (1973).
- [83] W. C. Magno. Interferência na mistura de quatro ondas envolvendo estados de Rydberg. Dissertação de mestrado, Universidade Federal de Pernambuco, (1998).
- [84] M. A. Yuratich and D. C. Hanna. Nonlinear atomic susceptibilities. *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.*, **9**: 729, (1976).
- [85] J. Ferraz, D. Felinto, L. H. Acioli, and S. S. Vianna. Temporal coherent control with incoherent light. *Optics and Photonics News*, Dezembro de 2005: 16.
- [86] E. Hecht. *Optics*. Addison Wesley Longman, Reading, Massachusetts, (1998).
- [87] H. G. Barros. Controle coerente em átomos de Rb por manipulação da fase de pulsos ultracurtos. Dissertação de mestrado, Universidade Federal de Pernambuco, (2005).

- [88] J. J. Sakurai. *Modern Quantum Mechanics*. Addison Wesley, (1995).
- [89] H. G. Barros, J. Ferraz, W. Lozano B., L. H. Acioli, and S. S. Vianna. Coherent control of quantum interference in two-photon absorption. *Phys. Rev. A*, 74: 055402, (2006).
- [90] A. Gallagher and E. L. Lewis. Determination of the vapor pressure of rubidium by optical absorption. *J. Opt. Soc. Am.*, **63**: 864, (1973).
- [91] W. R. Garrett, M. A. Moore, R. C. Hart, M. G. Payne, and R. K. Wunderlich. Suppression effects is stimulated hyper-Raman emissions and parametric four-wave mixing in sodium vapor. *Phys. Rev. A*, **45**: 6685, (1992).
- [92] R. K. Wunderlich, W. R. Garrett, R. C. Hart, M. A. Moore, and M. G. Payne. Nonlinear optical processes near the sodium 4D two-photon resonance. *Phys. Rev. A*, **41**: 6345, (1990).
- [93] N. Dudovich, D. Oron, and Y. Silberberg. Quantum control of the angular momentum distribution in the multiphoton absorption processes. *Phys. Rev. Lett.*, **92**: 103003, (2004).
- [94] Z. H. Lu, C. J. Zhu, A. A. Senin, J. R. Allen, J. Gao, and J. G. Eden. Production and probing of atomic wavepackets with ultrafast laser pulses: applications to atomic and molecular dynamics. *IEEE J. Selec. Top. Quantum Electron.*, **10**: 159, (2004).
- [95] D. Felinto. Interação coerente de sistemas atômicos com trens de pulsos ultracurtos. Tese de Doutorado, Universidade Federal de Pernambuco, (2002).
- [96] D. Felinto, C. A. C. Bosco, L. H. Acioli, and S. S. Vianna. Accumulative effects in temporal coherent control. *Phys. Rev. A*, **64**: 063413, (2001).
- [97] O. S. Heavens. Radiative transition probabilities of the lower excited states of the alkali metals. *J. Opt. Soc. Am.*, **51**: 1058, (1961).
- [98] K. Ikeda, J. Okada, and M. Matsuoka. Theory of cooperative cascade emission i: Linear stochastic theory. *J. Phys. Soc. Jpn.*, **48**: 1636, (1980).
- [99] J. Okada, K. Ikeda, and M. Matsuoka. Cooperative cascade emission. *Opt. Comm.*, **26**: 189, (1978).
- [100] J. H. Brownell, X. Lu, and S. R. Hartmann. Yoked superfluorescence. *Phys. Rev. Lett.*, **75**: 3265, (1995).
- [101] H. Eicher. Third-order susceptibility of alkali metal vapors. *IEEE J. Quantum Electron.*, **4**: 121, (1975).

- [102] W. C. Magno, R. B. Prandini, P. Nussenzveig, and S. S. Vianna. Four-wave mixing with Rydberg levels in rubidium vapor: observation of interference fringes. *Phys. Rev. A*, **63**: 063406, (2001).
- [103] J. Reichert, R. Holzwarth, Th. Udem, and T. W. Hänsch. Measuring the frequency of light with mode-locked lasers. *Opt. Comm.*, **172**: 59, (1999).
- [104] S. A. Diddams, D. J. Jones, J. Ye, S. T. Cundiff, J. L. Hall, J. K. Ranka, R. S. Windeler, R. Holzwarth, Th. Udem, and T. W. Hänsch. Direct link between microwave and optical frequencies with a 300 THz femtosecond laser comb. *Phys. Rev. Lett.*, **84**: 5102, (2000).
- [105] L. Xu, Ch. Spielmann, A. Poppe, T. Brabec, F. Krausz, and T. W. Hänsch. Route to phase control of ultrashort light pulses. *Opt. Lett.*, **21**: 2008, (1996).

