

## Capítulo 4

# Acumulação coerente num sistema de três níveis

Nossa motivação para o estudo da acumulação coerente devido à interação de um trem de pulsos com um sistema atômico vem da investigação da transição seqüencial discutida no Cap. 2. Naquele capítulo, analisamos nossos resultados experimentais a partir do desenvolvimento de uma teoria de acumulação incoerente na qual consideramos apenas a acumulação na população do nível mais excitado. Entretanto, ressaltamos que tal procedimento era uma simplificação do problema, pois na situação experimental descrita a amostra também deveria acumular coerência. No presente capítulo, daremos continuidade à investigação da transição seqüencial, adaptando a teoria do Cap. 3 para um sistema de três níveis.

Nosso maior objetivo neste capítulo, no entanto, não é simplesmente explicar com mais detalhes os experimentos do Cap. 2. Nossa ênfase aqui é o desenvolvimento de uma teoria para tratar o problema mais geral da excitação de um sistema de três níveis por um longo trem de pulsos de forma arbitrária. Esta teoria prescinde de qualquer simplificação específica para uma determinada forma de pulso. Portanto, ela pode ser

aplicada num contexto bem mais amplo que o dos experimentos do Cap. 2.

Uma das possíveis aplicações da teoria deste capítulo corresponde a uma generalização da teoria de controle coerente através da manipulação da forma do pulso, o chamado controle ótimo. Veremos que é possível tratar este controle por um trem longo de pulsos, ao invés de por um único pulso. Para exemplificar as consequências da manipulação da forma do pulso sobre o estado atômico estacionário, ao final do processo de acumulação, comparamos os resultados para dois trens de pulsos com formas bem distintas. Um dos trens sendo constituído por pulsos  $0\pi$ , como no Cap. 2, e o outro por pulsos tipo secante hiperbólica. Mostramos com isso que a forma do pulso pode modificar inclusive a descrição qualitativa do estado final do sistema. Neste sentido, o processo de excitação da transição sequencial pode ser dominado tanto pelo nível 2 quanto pelo nível 3, dependendo da forma do pulso.

A discussão apresentada neste capítulo revela um comportamento mais rico que o presente em trabalhos anteriores que também tratam do processo de acumulação de excitação no meio. Primeiro, porque nenhum desses trabalhos anteriores, até onde sabemos, considerou modificações na forma do pulso de excitação. Nas investigações experimentais, se utiliza sempre a forma de pulso que sai diretamente do laser, enquanto que nos estudos teóricos se emprega normalmente alguma forma que facilite os cálculos, como pulsos gaussianos ou quadrados. Segundo, porque a maioria desses trabalhos lida com sistemas de níveis mais simples, como transições de dois fótons puras [27, 28, 32] ou de um fóton apenas [29, 30, 31, 39, 40, 41, 43], de modo que nenhuma competição entre níveis excitados ocorre nesses casos.

O fato de termos um comportamento mais rico também pode ser interessante para a concepção de futuras aplicações em metrologia. Nestas aplicações, são importantes a estabilização e o controle dos dois parâmetros principais que caracterizam o pente de frequências do laser: a separação entre os modos do pente,  $1/T_R$ , e a fase não-linear  $\Phi_R$

que leva a um desvio do valor das frequências desses modos com relação a um múltiplo inteiro de  $1/T_R$ , contando a partir da frequência central  $\omega_L$ . No entanto, as técnicas experimentais de controle desses parâmetros usualmente modificam ambos ao mesmo tempo [38]. Neste sentido, seria interessante a obtenção de sinais experimentais, a partir de um sistema atômico, que permitissem realizar medidas independentes tanto de  $\Phi_R$  quanto de  $T_R$ . Estas medidas poderiam originar novas técnicas de estabilização da fase do pente de frequências de um laser de femtosegundos [16].

No entanto, a variação de um sistema simples, como o de dois níveis do Cap. 3, com os parâmetros do pente de frequências do laser é de certa forma trivial, podendo ser entendida em termos de uma única ressonância. No geral, esta condição de ressonância não permite distinguir uma pequena modificação em  $T_R$  de outra pequena modificação em  $\Phi_R$ , pois ambas tiram o sistema da ressonância. Por outro lado, quando consideramos uma transição seqüencial, temos o jogo de três ressonâncias, correspondendo à primeira e segunda transição, e à transição de dois fótons. Esta situação mais complexa pode então ser usada para elaborar medidas que forneçam  $T_R$  e  $\Phi_R$  independentemente. Na Ref. [16] foi colocada uma primeira proposta teórica neste sentido, em que se utiliza uma armadilha magneto-ótica de rubídio e a transição seqüencial  $5S \rightarrow 5P \rightarrow 5D$ . Aqui faremos também uma proposta de medida que fornece  $T_R$  apenas, independentemente de  $\Phi_R$ . Acreditamos que esta medida é até mais simples que a proposta na Ref. [16], pois utiliza um vapor atômico ao invés de uma armadilha magneto-ótica.

Neste capítulo, iniciaremos a discussão de forma análoga à do Cap. 3. Deste modo, na seção 4.1 definiremos o nosso modelo para o sistema atômico, enquanto na seção 4.2 obteremos expressões para a excitação do sistema por um pulso de laser ultracurto partindo de um estado arbitrário do sistema atômico. Estas expressões são utilizadas na seção 4.3 para estabelecer um tratamento numérico eficiente que nos dá o estado estacionário final do sistema. Ao contrário do Cap. 3, não analisaremos aqui expressões analíticas

gerais para o estado estacionário. Isto porque elas são razoavelmente complicadas e não oferecem uma vantagem clara com relação ao tratamento numérico, nem do ponto de vista conceitual nem computacional.

A seção 4.3 é também onde analisamos a diferença entre a excitação do sistema por um trem de pulsos  $0\pi$  e por um trem de pulsos tipo secante hiperbólica. Nesta comparação, observamos uma mudança na periodicidade do pente de frequências impresso no perfil Doppler das populações do sistema. Esta diferença de periodicidade indica que a excitação por pulsos tipo secante hiperbólica privilegia os processos de transição seqüencial, que passam pela excitação do nível 2. Enquanto a excitação por pulsos  $0\pi$  privilegia os processos de transição por dois fótons, em que o nível 2 não precisa ser excitado. Nesta seção, discutiremos também como a medida das grandezas atômicas varia em função dos parâmetros  $T_R$  e  $\Phi_R$  num sistema alargado inhomogeneamente. Nesse contexto, mostraremos que a média da população no nível 3, para uma excitação por pulsos secante hiperbólicos, depende apenas de  $T_R$ , sendo insensível a uma modificação de  $\Phi_R$ .

Finalmente, na seção 4.4, generalizaremos a teoria de controle temporal coerente da seção 2.3, permitindo agora que todas as populações e coerências possam ser acumuladas no meio. Obtemos assim curvas teóricas similares às mostradas na Fig. 2.19 para a variação da população  $\rho_{33}$  em uma varredura longa do atraso entre os pulsos no par. Os resultados da seção 4.4 confirmam então, em bases ainda mais sólidas, a adequação da nossa explicação para o sinal experimental do Cap. 2 relativo a uma transição seqüencial. Ao mesmo tempo, o tratamento mais cuidadoso do problema também permitiu que pudéssemos discutir os erros introduzidos no modelo pelo fato de lidarmos com intensidades intermediárias numa teoria perturbativa. Fizemos isso através de comparações diretas com integrações numéricas das equações de Bloch para o sistema de três níveis. Estas comparações mostram que os erros são pequenos e que não afetam a forma das curvas.

## 4.1 Modelo

Consideraremos um átomo de três níveis em cascata sob a ação do campo elétrico  $E(t)$  de um pulso de laser, com frequência central  $\omega_L$ . Os estados fundamental, intermediário e mais excitado do átomo são rotulados por  $|1\rangle$ ,  $|2\rangle$  e  $|3\rangle$ , respectivamente. O hamiltoniano do sistema tem a forma  $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{int}$ , onde  $\hat{H}_0 = \hbar\omega_{12}|2\rangle\langle 2| + \hbar\omega_{13}|3\rangle\langle 3|$  é o hamiltoniano do átomo livre. O acoplamento  $\hat{H}_{int}$  descreve a interação do átomo com o campo

$$\hat{H}_{int} = -\mu_{12}E(t)|1\rangle\langle 2| - \mu_{23}E(t)|2\rangle\langle 3| + \text{h.c.} .$$

O hamiltoniano do sistema, portanto, é o mesmo do Cap. 2.

As equações de Bloch que descrevem a evolução temporal dos vários elementos  $\rho_{kl}$  da matriz densidade do átomo são dadas, na aproximação de onda girante, por

$$\frac{\partial \rho_{33}}{\partial t} = \left( i\frac{\mu_{23}\mathcal{E}^*}{\hbar} \sigma_{23} + \text{c.c.} \right) - \frac{\rho_{33}}{T_{33}}, \quad (4.1a)$$

$$\frac{\partial \rho_{22}}{\partial t} = \left( i\frac{\mu_{12}\mathcal{E}^*}{\hbar} \sigma_{12} + \text{c.c.} \right) - \left( i\frac{\mu_{23}\mathcal{E}^*}{\hbar} \sigma_{23} + \text{c.c.} \right) - \frac{\rho_{22}}{T_{22}} + \frac{\rho_{33}}{T_{33}}, \quad (4.1b)$$

$$\frac{\partial \sigma_{23}}{\partial t} = i\delta_{23}\sigma_{23} + i\frac{\mu_{23}\mathcal{E}}{\hbar} (\rho_{33} - \rho_{22}) + i\frac{\mu_{12}\mathcal{E}^*}{\hbar} \sigma_{13} - \frac{\sigma_{23}}{T_{23}}, \quad (4.1c)$$

$$\frac{\partial \sigma_{12}}{\partial t} = i\delta_{12}\sigma_{12} + i\frac{\mu_{12}\mathcal{E}}{\hbar} (2\rho_{22} + \rho_{33} - 1) - i\frac{\mu_{23}\mathcal{E}^*}{\hbar} \sigma_{13} - \frac{\sigma_{12}}{T_{12}}, \quad (4.1d)$$

$$\frac{\partial \sigma_{13}}{\partial t} = i\delta_{13}\sigma_{13} + i\frac{\mu_{12}\mathcal{E}}{\hbar} \sigma_{23} - i\frac{\mu_{23}\mathcal{E}}{\hbar} \sigma_{12} - \frac{\sigma_{13}}{T_{13}}, \quad (4.1e)$$

onde  $T_{kl}$  é o tempo de relaxação do elemento  $kl$  da matriz densidade, e  $\mathcal{E}(t) = E(t)e^{-i\omega_L t}$  é a envoltória de variação lenta do pulso de laser. As coerências estão também representadas por suas envoltórias de variação lenta:  $\sigma_{12} = \rho_{12}e^{-i\omega_L t}$ ,  $\sigma_{23} = \rho_{23}e^{-i\omega_L t}$  e  $\sigma_{13} = \rho_{13}e^{-2i\omega_L t}$ . As três dessintonias são definidas por  $\delta_{12} = \omega_{12} - \omega_L$ ,  $\delta_{23} = \omega_{23} - \omega_L$  e  $\delta_{13} = \omega_{13} - 2\omega_L = \delta_{12} + \delta_{23}$ . A população do nível 1,  $\rho_{11}$ , foi eliminada das Eqs. (4.1) utilizando a condição de normalização. A dedução das Eqs. (4.1) é mostrada no apêndice A.

O modelo para o trem de pulsos do laser que usaremos aqui é o mesmo do capítulo anterior, descrito pelas Eqs. (3.2) a (3.4).

## 4.2 Solução para um estado inicial arbitrário

Como visto nos capítulos anteriores, o primeiro passo para tratar um problema envolvendo acumulação de excitação no meio é resolver o problema da interação de um único pulso do laser com o sistema quântico num estado inicial arbitrário. A integração numérica das equações de Bloch (4.1) já fornece a evolução temporal geral do sistema para uma condição inicial qualquer. No entanto, tal integração requer tempos computacionais que impossibilitariam a sua ampla aplicação em todos os problemas abordados neste capítulo. No que segue, faremos algumas aproximações de forma a obter um esquema numérico eficiente para sondar a evolução temporal do sistema. O primeiro passo é escrever as Eqs. (4.1) na sua forma integral. Com este fim, introduziremos as funções auxiliares

$$s_{ii}(t) = \rho_{ii}(t)e^{t/T_{ii}}, \quad (4.2a)$$

$$s_{ij}(t) = \sigma_{ij}(t)e^{-i\delta_{ij}t+t/T_{ij}} \quad (i \neq j), \quad (4.2b)$$

e os operadores

$$\hat{A}(t, t') = \frac{i\mu_{12}}{\hbar} \int_0^t dt' \mathcal{E}_n(t') e^{-i\delta_{12}t'}, \quad (4.3a)$$

$$\hat{B}(t, t') = \frac{i\mu_{23}}{\hbar} \int_0^t dt' \mathcal{E}_n(t') e^{-i\delta_{23}t'}, \quad (4.3b)$$

$$\hat{C}(t, t') = \frac{1}{T_{33}} \int_0^t dt' e^{t'(\frac{1}{T_{22}} - \frac{1}{T_{33}})}. \quad (4.3c)$$

onde  $\mathcal{E}_n(t)$  é a envoltória do n-ésimo pulso do trem a atingir o meio. A aplicação de um destes operadores a uma função  $f(t)$  resulta numa integral da função. Por exemplo,

$$\hat{A}(t, t')f(t') = \frac{i\mu_{12}}{\hbar} \int_0^t dt' \mathcal{E}_n(t') e^{-i\delta_{12}t'} f(t'),$$

e

$$\hat{B}(t, t')\hat{A}(t', t'')f(t'') = -\frac{\mu_{12}\mu_{23}}{\hbar^2} \int_0^t dt' \mathcal{E}_n(t') e^{-i\delta_{23}t'} \int_0^{t'} dt'' \mathcal{E}_n(t'') e^{-i\delta_{12}t''} f(t'').$$

Usando as definições (4.2) e (4.3), a forma integral das Eqs. (4.1) é dada por

$$s_{33}(t) = \rho_{33}^n - \left[ \hat{B}^*(t, t') e^{-i\delta_{23}t'} e^{t'/T_{33}} \sigma_{23}(t') + c.c. \right], \quad (4.4a)$$

$$s_{22}(t) = \rho_{22}^n - \left[ \hat{A}^*(t, t') e^{-i\delta_{12}t'} e^{t'/T_{22}} \sigma_{12}(t') + c.c. \right] \\ + \left[ \hat{B}^*(t, t') e^{-i\delta_{23}t'} e^{t'/T_{22}} \sigma_{23}(t') + c.c. \right] + \hat{C}(t, t') s_{33}(t'), \quad (4.4b)$$

$$s_{23}(t) = \sigma_{23}^n - \hat{A}^*(t, t') e^{-i\delta_{13}t'} e^{t'/T_{23}} \sigma_{13}(t') + \hat{B}(t, t') e^{t'/T_{23}} [\rho_{33}(t') - \rho_{22}(t')], \quad (4.4c)$$

$$s_{12}(t) = \sigma_{12}^n + \hat{B}^*(t, t') e^{-i\delta_{13}t'} e^{t'/T_{12}} \sigma_{13}(t') \\ + \hat{A}(t, t') e^{t'/T_{12}} [2\rho_{22}(t') + \rho_{33}(t') - 1], \quad (4.4d)$$

$$s_{13}(t) = \sigma_{13}^n + \hat{A}(t, t') e^{-i\delta_{23}t'} e^{t'/T_{13}} \sigma_{23}(t') - \hat{B}(t, t') e^{-i\delta_{12}t'} e^{t'/T_{13}} \sigma_{12}(t'), \quad (4.4e)$$

onde  $\rho_{ij}^n$  dá o estado do sistema antes do n-ésimo pulso do trem.

Nossa primeira aproximação é considerar  $E(t)$  um pulso muito curto quando comparado com todos os tempos de relaxação  $T_{kl}$ . Neste caso, dentro das integrais, podemos escrever

$$\mathcal{E}_n(t') e^{t'/T_{kl}} \approx \mathcal{E}_n(t'). \quad (4.5)$$

Esta aproximação é análoga à aproximação (3.6) utilizada no Cap. 3. Ela permite que o conjunto de equações integrais (4.4) seja escrito numa forma bem mais simples:

$$s_{33}(t) = \rho_{33}^n - \left[ \hat{B}^*(t, t') s_{23}(t') + c.c. \right], \quad (4.6a)$$

$$s_{22}(t) = \rho_{22}^n - \left[ \hat{A}^*(t, t') s_{12}(t') + c.c. \right] + \left[ \hat{B}^*(t, t') s_{23}(t') + c.c. \right] + \hat{C}(t, t') s_{33}(t'), \quad (4.6b)$$

$$s_{23}(t) = \sigma_{23}^n - \hat{A}^*(t, t') s_{13}(t') + \hat{B}(t, t') [s_{33}(t') - s_{22}(t')], \quad (4.6c)$$

$$s_{12}(t) = \sigma_{12}^n + \hat{B}^*(t, t') s_{13}(t') + \hat{A}(t, t') [2s_{22}(t') + s_{33}(t') - 1], \quad (4.6d)$$

$$s_{13}(t) = \sigma_{13}^n + \hat{A}(t, t') s_{23}(t') - \hat{B}(t, t') s_{12}(t'). \quad (4.6e)$$

Esta forma das equações de Bloch pode ser facilmente iterada para dar o estado  $\rho(t)$  do sistema como várias séries de potências do campo relacionadas com cada um dos  $\rho_{ij}^n$ . Assim, ela permite a aplicação da teoria de perturbação na situação mais geral de um estado inicial arbitrário.

Nossa próxima aproximação é considerar  $E(t)$  fraco o suficiente para manter apenas os termos de ordem mais baixa nas séries perturbativas. Na seção 4.2.1, é dada a dedução detalhada das expressões para cada  $s_{ij}(t)$  sob esta aproximação. Na seção 4.2.2, essas expressões para  $s_{ij}(t)$  são utilizadas para obter o estado antes do próximo pulso atingir o meio.

### 4.2.1 Dedução das expressões para os vários $s_{ij}(t)$

Nesta seção, obteremos as expressões para os vários  $s_{ij}(t)$  através de iterações sucessivas das Eqs. (4.6). No que segue, iremos empregar uma notação simplificada que omite as variáveis temporais quando elas aparecem como uma seqüência simples. A expressão  $\hat{A}^* \hat{B} \hat{A} s_{13}$ , por exemplo, representa  $\hat{A}^*(t, t') \hat{B}(t', t'') \hat{A}(t'', t''') s_{13}(t''')$ . Se dois fatores com seqüências temporais independentes aparecerem juntos eles estarão separados por “ $\times$ ”. A expressão  $\hat{B} \times \hat{B}^* \hat{A}^*$ , por exemplo, indica o termo  $\hat{B}(t, t') \hat{B}^*(t, t'') \hat{A}^*(t'', t''')$ .

Solução para  $s_{33}$ 

$$\begin{aligned}
s_{33} &= \rho_{33}^n - \left( \hat{B}^* s_{23} + c.c. \right) \\
&= \rho_{33}^n - \left( \hat{B}^* \sigma_{23}^n + c.c. \right) + \left( \hat{B}^* \hat{A}^* s_{13} + c.c. \right) - \left[ \hat{B}^* \hat{B} (s_{33} - s_{22}) + c.c. \right] \\
&= \rho_{33}^n - \left( \hat{B}^* \sigma_{23}^n + c.c. \right) + \left( \hat{B}^* \hat{A}^* \sigma_{13}^n + c.c. \right) - \left[ \hat{B}^* \hat{B} (\rho_{33}^n - \rho_{22}^n) + c.c. \right] \\
&\quad + \left( \hat{B}^* \hat{A}^* \hat{A} s_{23} + c.c. \right) - \left( \hat{B}^* \hat{A}^* \hat{B} s_{12} + c.c. \right) + 2 \left[ \hat{B}^* \hat{B} \left( \hat{B}^* s_{23} + c.c. \right) + c.c. \right] \\
&\quad - \left[ \hat{B}^* \hat{B} \left( \hat{A}^* s_{12} + c.c. \right) + c.c. \right] + \left( \hat{B}^* \hat{B} \hat{C} s_{33} + c.c. \right)
\end{aligned}$$

Deste passo para o próximo, apareceria um termo do tipo  $\hat{B}^* \hat{A}^* \hat{A} \sigma_{23}^n$ . Este termo, no entanto, é desprezado por ser de terceira ordem no campo e já existir um termo de primeira ordem com  $\sigma_{23}^n$ .

Também é importante notar que a aproximação de pulso curto implica que um termo como  $\hat{B}(t, t') \hat{C}(t', t'') s_{33}(t'')$  é muito menor que um termo da forma  $\hat{B}(t, t') s_{33}(t')$ , e pode ser desprezado numa expressão que contenha ambos. Isto porque o integrando que contém  $\hat{C}$  representa a parcela da população  $\rho_{33}$  que decai incoerentemente durante o período em que o pulso está presente no meio, o que é bem menor que a própria população  $\rho_{33}$ . Colocando esta argumentação em termos mais numéricos, note que se o pulso tem uma duração  $T_p$  e é curto, o resultado de ordem zero da integração  $\hat{C}$  é da ordem de  $T_p \rho_{33}^n / T_{33}$ , portanto  $T_p / T_{33}$  vezes menor que o resultado de mesma ordem do termo sem  $\hat{C}$ .

Com estas observações em mente, continuamos as iterações:

$$\begin{aligned}
s_{33} &= \rho_{33}^n - \left( \hat{B}^* \sigma_{23}^n + c.c. \right) + \left( \hat{B}^* \hat{A}^* \sigma_{13}^n + c.c. \right) - \left[ \hat{B}^* \hat{B} (\rho_{33}^n - \rho_{22}^n) + c.c. \right] \\
&\quad - \left( \hat{B}^* \hat{A}^* \hat{B} \sigma_{12}^n + c.c. \right) - \left[ \hat{B}^* \hat{B} \left( \hat{A}^* \sigma_{12}^n + c.c. \right) + c.c. \right] \\
&\quad - \left( \hat{B}^* \hat{A}^* \hat{A} \hat{A}^* s_{13} + c.c. \right) + \left[ \hat{B}^* \hat{A}^* \hat{A} \hat{B} (s_{33} - s_{22}) + c.c. \right]
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& - \left( \hat{B}^* \hat{A}^* \hat{B} \hat{B}^* s_{13} + c.c. \right) - \left[ \hat{B}^* \hat{A}^* \hat{B} \hat{A} (2s_{22} + s_{33} - 1) + c.c. \right] \\
& - 2 \left[ \hat{B}^* \hat{B} \left( \hat{B}^* \hat{A}^* s_{13} + c.c. \right) + c.c. \right] + 2 \left\{ \hat{B}^* \hat{B} \left[ \hat{B}^* \hat{B} (s_{33} - s_{22}) + c.c. \right] + c.c. \right\} \\
& - \left[ \hat{B}^* \hat{B} \left( \hat{A}^* \hat{B}^* s_{13} + c.c. \right) + c.c. \right] - \left\{ \hat{B}^* \hat{B} \left[ \hat{A}^* \hat{A} (2s_{22} + s_{33} - 1) + c.c. \right] + c.c. \right\} \\
& - \left[ \hat{B}^* \hat{B} \hat{C} \left( \hat{B}^* s_{23} + c.c. \right) + c.c. \right] \\
= & \rho_{33}^n - \left( \hat{B}^* \sigma_{23}^n + c.c. \right) + \left( \hat{B}^* \hat{A}^* \sigma_{13}^n + c.c. \right) - \left[ \hat{B}^* \hat{B} (\rho_{33}^n - \rho_{22}^n) + c.c. \right] \\
& - \left( \hat{B}^* \hat{A}^* \hat{B} \sigma_{12}^n + c.c. \right) - \left[ \hat{B}^* \hat{B} \left( \hat{A}^* \sigma_{12}^n + c.c. \right) + c.c. \right] + \left[ \hat{B}^* \hat{A}^* \hat{B} \hat{A} + c.c. \right] \\
& + \left\{ \hat{B}^* \hat{B} \left[ \hat{A}^* \hat{A} + c.c. \right] + c.c. \right\}
\end{aligned}$$

Nesta última equação, temos finalmente uma expressão para  $s_{33}$  que depende de todos os  $\rho_{ij}^n$  na ordem mais baixa do campo (o termo sem qualquer  $\rho_{ij}^n$  deve ser entendido como implicitamente multiplicado por  $\rho_{11}^n$ ). Esta expressão, no entanto, pode ainda ser muito simplificada se empregarmos as relações (B.1), (B.8), e (B.9) do apêndice B. Neste caso, obtemos

$$\begin{aligned}
s_{33} = & |\hat{B} \hat{A}|^2 + \left( 1 - |\hat{B}|^2 \right) \rho_{33}^n + |\hat{B}|^2 \rho_{22}^n - \left( \hat{B}^* \sigma_{23}^n + c.c. \right) + \left( \hat{B}^* \hat{A}^* \sigma_{13}^n + c.c. \right) \\
& - \left( \hat{B} \times \hat{B}^* \hat{A}^* \sigma_{12}^n + c.c. \right) . \tag{4.7}
\end{aligned}$$

### Solução para $s_{22}$

Com aproximações análogas às empregadas para obter a Eq. 4.7 para  $s_{33}$ , a iteração da expressão para  $s_{22}$  é feita da seguinte forma:

$$\begin{aligned}
s_{22} = & \rho_{22}^n - \left( \hat{A}^* s_{12} + c.c. \right) + \left( \hat{B}^* s_{23} + c.c. \right) + \hat{C} s_{33} \\
= & \rho_{22}^n - \left( \hat{A}^* s_{12} + c.c. \right) + \left( \rho_{33}^n - s_{33} \right) + \hat{C} s_{33} \\
= & \rho_{22}^n - \left( \hat{A}^* \sigma_{12}^n + c.c. \right) + \left( \hat{A}^* \hat{B}^* s_{13} + c.c. \right) - \left[ \hat{A}^* \hat{A} (2s_{22} + s_{33} - 1) + c.c. \right]
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + (\rho_{33}^n - s_{33}) + \hat{C}s_{33} \\
= & \rho_{22}^n - \left( \hat{A}^* \sigma_{12}^n + c.c. \right) - \left( \hat{A}^* \hat{B}^* \sigma_{13}^n + c.c. \right) - \left[ \hat{A}^* \hat{A} (2\rho_{22}^n + \rho_{33}^n - 1) + c.c. \right] \\
& + \left( \hat{A}^* \hat{B}^* \hat{A}s_{23} + c.c. \right) - \left( \hat{A}^* \hat{B}^* \hat{B}s_{12} + c.c. \right) + 2 \left[ \hat{A}^* \hat{A} (\hat{A}^* s_{12} + c.c.) + c.c. \right] \\
& + \left[ \hat{A}^* \hat{A} (\hat{B}^* s_{23} + c.c.) + c.c. \right] + (\rho_{33}^n - s_{33}) + \hat{C}s_{33} \\
= & \rho_{22}^n - \left( \hat{A}^* \sigma_{12}^n + c.c. \right) - \left( \hat{A}^* \hat{B}^* \sigma_{13}^n + c.c. \right) - \left[ \hat{A}^* \hat{A} (2\rho_{22}^n + \rho_{33}^n - 1) + c.c. \right] \\
& + \left( \hat{A}^* \hat{B}^* \hat{A}\sigma_{23}^n + c.c. \right) + \left[ \hat{A}^* \hat{A} (\hat{B}^* \sigma_{23}^n + c.c.) + c.c. \right] + (\rho_{33}^n - s_{33}) + \hat{C}s_{33}
\end{aligned}$$

Utilizando as relações (B.2) e (B.6) do apêndice B e a eq. (4.7), obtemos então

$$\begin{aligned}
s_{22} = & |\hat{A}|^2 + \left( 1 - 2|\hat{A}|^2 - |\hat{B}|^2 + \hat{C}|\hat{B}|^2 \right) \rho_{22}^n + \left( |\hat{B}|^2 - |\hat{A}|^2 - \hat{C}|\hat{B}|^2 + \hat{C} \right) \rho_{33}^n \\
& - \left( \hat{A}^* \sigma_{12}^n + c.c. \right) - \left[ \left( \hat{A}^* \times \hat{B}^* - \hat{C}\hat{B}^* \hat{A}^* \right) \sigma_{13}^n + c.c. \right] \\
& + \left[ \left( \hat{B}^* - \hat{C}\hat{B}^* \right) \sigma_{23}^n + c.c. \right] \tag{4.8}
\end{aligned}$$

Como era de se esperar, a expressão para a população  $\rho_{22}$  é a única que, na ordem mais baixa do campo, depende explicitamente do decaimento incoerente do nível 3 através dos termos com o operador  $\hat{C}$ .

### Solução para $s_{13}$

A dedução da expressão para  $s_{13}$  segue passos análogos aos usados para deduzir as expressões para  $s_{33}$  e  $s_{22}$ . Estes passos, no entanto, são agora encurtados por já termos deduzidos essas expressões anteriores. A dedução de  $s_{13}$  segue, então, como

$$\begin{aligned}
s_{13} = & \sigma_{13}^n + \hat{A}s_{23} - \hat{B}s_{12} \\
= & \sigma_{13}^n + \hat{A}\sigma_{23}^n - \hat{B}\sigma_{12}^n - \hat{A}\hat{A}^* s_{13} + \hat{A}\hat{B}(s_{33} - s_{22}) - \hat{B}\hat{B}^* s_{13} - \hat{B}\hat{A}(2s_{22} + s_{33} - 1),
\end{aligned}$$

utilizando as eqs. (4.7) e (4.8), e o complexo conjugado da relação (B.6) do apêndice B,

obtemos finalmente

$$\begin{aligned}
s_{13} &= \hat{B}\hat{A} + (1 - \hat{A}\hat{A}^* - \hat{B}\hat{B}^*)\sigma_{13}^n + \hat{A}\sigma_{23}^n - \hat{B}\sigma_{12}^n + (\hat{A} \times \hat{B} - 2\hat{B}\hat{A})\rho_{33}^n \\
&\quad - (\hat{A} \times \hat{B} + \hat{B}\hat{A})\rho_{22}^n .
\end{aligned} \tag{4.9}$$

### Solução para $s_{23}$

A partir das expressões para  $s_{33}$ ,  $s_{22}$  e  $s_{13}$  podemos deduzir diretamente a expressão para  $s_{23}$ . Fazemos isto substituindo as eqs. (4.7), (4.8) e (4.9), e utilizando as relações (B.3), (B.5) e (B.7) do apêndice B. Obtemos assim

$$\begin{aligned}
s_{23} &= \sigma_{23}^n - \hat{A}^* s_{13} + \hat{B} (s_{33} - s_{22}) \\
&= -\hat{A}^* \times \hat{B}\hat{A} + \left(1 - \hat{A}^* \hat{A} - 2\hat{B}\hat{B}^*\right) \sigma_{23}^n - \hat{B}^2 \sigma_{32}^n - \hat{A}^* \sigma_{13}^n + \hat{B}\rho_{33}^n - \hat{B}\rho_{22}^n \\
&\quad + \hat{A}^* \times \hat{B}\sigma_{12}^n + \hat{B}\hat{A}\sigma_{21}^n .
\end{aligned} \tag{4.10}$$

### Solução para $s_{12}$

Finalmente, a expressão para  $s_{12}$  é obtida substituindo as eqs. (4.7), (4.8) e (4.9), e utilizando as relações (B.4) e (B.5) do apêndice B. Ficamos, então, com

$$\begin{aligned}
s_{12}(t) &= \sigma_{12}^n + \hat{B}^* s_{13} + \hat{A}(2s_{22} + s_{33} - 1) \\
&= -\hat{A} + \left(1 - \hat{B}^* \hat{B} - 2\hat{A}\hat{A}^*\right) \sigma_{12}^n - \hat{A}^2 \sigma_{21}^n + \hat{B}^* \sigma_{13}^n + 2\hat{A}\rho_{22}^n + \hat{A}\rho_{33}^n \\
&\quad + \hat{A} \times \hat{B}^* \sigma_{23}^n + \hat{A}\hat{B}\sigma_{32}^n
\end{aligned} \tag{4.11}$$

### 4.2.2 O estado antes do próximo pulso

As Eqs. (4.7) a (4.11) dão a solução, num instante  $t$  qualquer, para a matriz densidade de um átomo de três níveis excitado por um pulso de laser a partir de um estado inicial arbitrário. Essas equações podem ser então usadas para obter o estado do sistema no instante  $t = T_R$ , ou seja, logo antes do próximo pulso atingir o átomo. Com isso é possível escrever o estado  $\rho^{n+1}$  antes de um pulso  $n+1$  arbitrário como função do estado  $\rho^n$  antes do pulso  $n$ . Como visto no capítulo anterior, este é um passo essencial para tratar problemas com acumulação de excitação no meio.

Iremos fazer ainda uma última aproximação de modo a simplificar os cálculos. Consideraremos que a duração do pulso é bem menor que o tempo de repetição  $T_R$  do laser. Esta aproximação é bem razoável para as formas de pulso e taxas de repetição que consideramos nesta tese, e ela permite escrever termos do tipo  $\hat{C}\hat{B}$  como  $\hat{C} \times \hat{B}$ . Isto porque a integral em  $\hat{B}$  atinge um valor estacionário muito antes de qualquer variação significativa no integrando de  $\hat{C}$ , de modo que ela pode ser colocada para fora da integral em  $\hat{C}$ . Esta aproximação também permite substituir o limite  $T_R$  por  $\infty$  nas integrais que envolvem a envoltória do pulso.

Utilizando esta última aproximação, as Eqs. (4.7) a (4.11) levam então às seguintes expressões para  $\rho^{n+1}$  em função de  $\rho^n$ :

$$\begin{aligned} \rho_{33}^{n+1} = e^{-T_R/T_{33}} \{ & |I_3|^2 + (1 - |I_2|^2) \rho_{33}^n + |I_2|^2 \rho_{22}^n - (I_2^* \sigma_{23}^n + c.c.) + (I_3^* \sigma_{13}^n + c.c.) \\ & - (I_2 I_3^* \sigma_{12}^n + c.c.) \} \end{aligned} \quad (4.12a)$$

$$\begin{aligned} \rho_{22}^{n+1} = e^{-T_R/T_{22}} \{ & |I_1|^2 + (1 - 2|I_1|^2 - |I_2|^2 + I_6 |I_2|^2) \rho_{22}^n - [(I_1^* I_2^* - I_6 I_3^*) \sigma_{13}^n + c.c.] \\ & + (|I_2|^2 - |I_1|^2 - I_6 |I_2|^2 + I_6) \rho_{33}^n - (I_1^* \sigma_{12}^n + c.c.) \\ & + [(I_2^* - I_6 I_2^*) \sigma_{23}^n + c.c.] \} \end{aligned} \quad (4.12b)$$

$$\begin{aligned} \sigma_{23}^{n+1} = & e^{i\delta_{23}T_R - T_R/T_{23}} \left\{ -I_1^* I_3 + (1 - I_4^* - 2I_5) \sigma_{23}^n - I_2^2 \sigma_{32}^n - I_1^* \sigma_{13}^n + I_2 \rho_{33}^n - I_2 \rho_{22}^n \right. \\ & \left. + I_1^* I_2 \sigma_{12}^n + I_3 \sigma_{21}^n \right\} \end{aligned} \quad (4.12c)$$

$$\begin{aligned} \sigma_{12}^{n+1} = & e^{i\delta_{12}T_R - T_R/T_{12}} \left\{ -I_1 + (1 - I_5^* - 2I_4) \sigma_{12}^n - I_1^2 \sigma_{21}^n + I_2^* \sigma_{13}^n + 2I_1 \rho_{22}^n + I_1 \rho_{33}^n \right. \\ & \left. + I_1 I_2^* \sigma_{23}^n + (I_1 I_2 - I_3) \sigma_{32}^n \right\} \end{aligned} \quad (4.12d)$$

$$\begin{aligned} \sigma_{13}^{n+1} = & e^{i\delta_{13}T_R - T_R/T_{13}} \left\{ I_3 + (1 - I_4 - I_5) \sigma_{13}^n + I_1 \sigma_{23}^n - I_2 \sigma_{12}^n + (I_1 I_2 - 2I_3) \rho_{33}^n \right. \\ & \left. - (I_1 I_2 + I_3) \rho_{22}^n \right\} \end{aligned} \quad (4.12e)$$

onde

$$I_1 = \hat{A}(\infty, t') 1 = i \frac{\mu_{12}}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt' \mathcal{E}_n(t') e^{-i\delta_{12}t'} = i \frac{\mu_{12}}{\hbar} \tilde{E}(\omega_{12}) \quad (4.13a)$$

$$I_2 = \hat{B}(\infty, t') 1 = i \frac{\mu_{23}}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt' \mathcal{E}_n(t') e^{-i\delta_{23}t'} = i \frac{\mu_{23}}{\hbar} \tilde{E}(\omega_{23}) \quad (4.13b)$$

$$I_3 = \hat{B}(\infty, t') \hat{A}(t', t'') 1 = -\frac{\mu_{12} \mu_{23}}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt' \mathcal{E}_n(t') e^{-i\delta_{23}t'} \int_{-\infty}^{t'} dt'' \mathcal{E}_n(t'') e^{-i\delta_{12}t''} \quad (4.13c)$$

$$I_4 = \hat{A}(\infty, t') \hat{A}^*(t', t'') 1 = \frac{\mu_{12}^2}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt' \mathcal{E}_n(t') e^{-i\delta_{12}t'} \int_{-\infty}^{t'} dt'' \mathcal{E}_n^*(t'') e^{i\delta_{12}t''} \quad (4.13d)$$

$$I_5 = \hat{B}(\infty, t') \hat{B}^*(t', t'') 1 = \frac{\mu_{23}^2}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt' \mathcal{E}_n(t') e^{-i\delta_{23}t'} \int_{-\infty}^{t'} dt'' \mathcal{E}_n^*(t'') e^{i\delta_{23}t''} \quad (4.13e)$$

$$I_6 = \frac{1}{T_{33}} \int_0^{T_R} dt' \exp \left( \frac{t'}{T_{22}} - \frac{t'}{T_{33}} \right) \quad (4.13f)$$

são integrais simples que resultam da aplicação dos operadores  $\hat{A}$ ,  $\hat{B}$ ,  $\hat{C}$  e composições deles, a números constantes. As Eqs. (4.12) são a base para todos os cálculos das próximas seções. Note que as integrais  $I_1$  e  $I_2$  são proporcionais à transformada de Fourier do campo nas frequências das transições  $1 \rightarrow 2$  e  $2 \rightarrow 3$ , respectivamente. Elas estão

relacionadas, portanto, aos processos de absorção e emissão estimulada nessas transições. Já a integral  $I_3$  está relacionada aos processos de dois fótons, sendo facilmente reconhecida como o complexo conjugado da Eq. (2.4) para a amplitude de probabilidade do nível 3 excitado por um único pulso a partir do estado fundamental. As integrais  $I_4$  e  $I_5$  representam contribuições de segunda ordem para as transições de um fóton, e a integral  $I_6$  está relacionada à variação da população do nível 2 por conta da emissão espontânea de 3 para 2 e de 2 para 1.

### 4.3 Acumulação com diferentes formas de pulso

Se o período de repetição do laser  $T_R$  é menor que os tempos de relaxação do sistema, a amostra nunca relaxará completamente entre dois tiros consecutivos do laser. Vimos nos capítulos anteriores que, nesta situação, o meio passa a acumular excitação, na forma de coerências e populações nos estados excitados, à medida que a seqüência de pulsos o atinge. Para abordar este problema no átomo de três níveis, o primeiro passo foi obter as Eqs. (4.12) que descrevem a interação de pulsos individuais do trem com o átomo num estado inicial arbitrário. O próximo passo é aplicar essas expressões para determinar a evolução temporal do sistema com a seqüência de pulsos. Isto é feito de forma direta pelo uso sucessivo das Eqs. (4.12) a partir de um estado inicial qualquer, quando o trem de pulsos é ligado. Como esse conjunto de equações fornece o estado do sistema antes do próximo pulso atingir o meio, sua utilização sucessiva termina por descrever a desejada evolução temporal durante todo o trem de pulsos.

Nas seções 4.3.1 e 4.3.2 investigaremos a acumulação por trens de pulsos secante hiperbólicos e  $0\pi$ , respectivamente. De modo a fazer conexões com os dados experimentais apresentados no Cap. 2, consideraremos os parâmetros para um vapor de rubídio excitado por um laser de Ti:safira ressonante com a transição seqüencial  $5S \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 5D$ .

O laser então está sintonizado em 778 nm, e consideraremos que seus pulsos têm uma largura temporal de  $T_p = 140$  fs. O período de repetição  $T_R$  do laser é de cerca de 13 ns. Os níveis  $5S$ ,  $5P_{3/2}$ , e  $5D$  são rotulados  $|1\rangle$ ,  $|2\rangle$ , e  $|3\rangle$ , respectivamente. Os tempos de vida dos níveis  $|2\rangle$  e  $|3\rangle$  são  $T_{22} = 26.7$  ns e  $T_{33} = 241$  ns [56]. 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  $T_{23} = [(2T_{22})^{-1} + (2T_{33})^{-1}]^{-1} = 48.1$  ns. Consideraremos também um alargamento inhomogêneo Doppler com largura de linha  $\delta_D/2\pi = 0.2$  GHz. A razão entre os momentos de dipolo da primeira e da segunda transição é  $\mu_{23}/\mu_{12} \simeq 0.2$  [59]. Em ambas seções 4.3.1 e 4.3.2 usaremos que a magnitude do campo elétrico é tal que  $\mu_{12}\mathcal{E}_0/\hbar = 0.2$  THz, onde  $\mathcal{E}_0$  é o valor de pico de  $\mathcal{E}(t)$  na entrada da célula de vapor. Além disso, a partir dos parâmetros dados acima, temos  $I_6(T_R) \simeq 0.07$ .

Se  $\delta_{ij}^0$  representa as dessintonias para o grupo de átomos em repouso no referencial do laboratório, as dessintonias para um grupo de átomos arbitrário no perfil inhomogêneo 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  $\delta$  é o desvio Doppler com respeito à transição de um fóton e desprezamos a diferença (da ordem de  $10^{-3}\delta$ ) nos desvios Doppler da primeira e da segunda transição. Para simplificar, consideraremos  $\delta_{13}^0 = 0$ , o que significa que a frequência central do laser está precisamente ressonante por dois fótons com o grupo de átomos em repouso no referencial do laboratório. Isto nos permite escrever as dessintonias na forma

$$\delta_{12} = -\Delta - \delta, \quad (4.14a)$$

$$\delta_{23} = \Delta - \delta, \quad (4.14b)$$

$$\delta_{13} = -2\delta, \quad (4.14c)$$

onde  $\Delta = (\omega_{23} - \omega_{12})/2 = 2\pi \times 1.056$  THz para a transição do rubídio que estamos considerando.

Neste capítulo, quando aplicarmos as Eqs. (4.12), consideraremos apenas durações de

pulso bem menores que  $1/\delta_D$ , o tempo de defasamento inhomogêneo. Neste caso, *dentro das integrais que envolvem o campo*, podemos aproximar  $\delta_{12} \approx -\Delta$  e  $\delta_{23} \approx \Delta$ . Esta aproximação é muito importante por facilitar qualquer cálculo que envolva médias sobre o perfil inhomogêneo, pois dessa forma as integrais  $I_1$  a  $I_5$  só precisam ser computadas uma única vez durante todo o cálculo. Note que esta aproximação é também análoga à aproximação (3.6) do Cap. 3.

### 4.3.1 Pulsos secante hiperbólicos

De modo a esclarecer como as Eqs. (4.12) são aplicadas ao nosso problema, na Fig. 4.1 comparamos resultados de uma integração numérica direta das Eqs. (4.1) com aqueles obtidos a partir das Eqs. (4.12). Consideramos um trem de pulsos tipo secante hiperbólica interagindo com um átomo inicialmente no estado fundamental. As Eqs. (4.1) foram numericamente integradas usando um método padrão de Runge-Kutta de quarta ordem com tamanho de passo adaptável [66], e seus resultados para  $\rho_{22}(t)$  e  $\rho_{33}(t)$  estão mostrados pela linha sólida. As Eqs. (4.12) são aplicadas ao estado do sistema antes de um pulso qualquer do trem, e fornecem o estado logo antes da chegada do próximo pulso. O resultado, para  $\rho_{22}$  e  $\rho_{33}$ , das aplicações sucessivas das Eqs. (4.12) ao estado inicial é mostrado pelos círculos abertos. Como uma estimativa para a eficiência dos cálculos, observamos que num computador onde as integrações numéricas das Eqs. (4.1) levam cerca de 1.5 horas, o cálculo baseado nas Eqs. (4.12) leva menos de 10 segundos.

A quantidade importante obtida dos cálculos é o valor final, estacionário, dos círculos abertos. Este valor determina então o estado estacionário  $\rho^f$  da acumulação coerente, como discutido na seção 3.3 para o átomo de dois níveis. Todos os elementos da matriz densidade atingem um valor estacionário desse tipo, que numericamente observamos ser independente da condição inicial. Este comportamento indica que o estado final do sistema deve depender apenas de uma condição de auto-consistência que relaciona  $\rho^{n+1}$  a  $\rho^n$ ,

da mesma forma que nas seções 2.3 e 3.3. Para o sistema de equações (4.12), no entanto, a expressão auto-consistente final para a matriz densidade é razoavelmente complicada, o que nos levou a preferir uma abordagem numérica mais direta. Consideraremos o estado final do sistema simplesmente aquele que resulta de um número suficientemente grande de aplicações sucessivas das Eqs. (4.12).

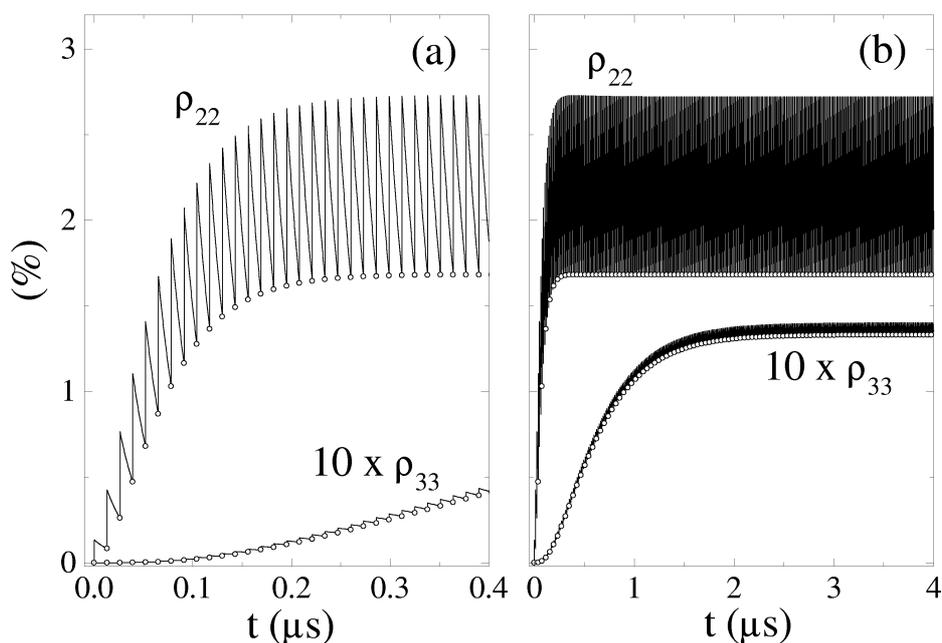


Figura 4.1: Evolução temporal das populações  $\rho_{22}$  e  $\rho_{33}$  a partir do estado fundamental. A linha sólida resulta de uma integração numérica direta das Eqs. (4.1). Os círculos abertos vêm de aplicações sucessivas das Eqs. (4.12). Os quadros (a) e (b) mostram diferentes escalas da mesma evolução temporal. Em (b), plotamos um círculo branco a cada três, para melhorar a visualização. Consideramos ainda  $\Phi_R = 0$ ,  $\delta = 0$  e  $T_R = 13$  ns.

Na Fig. 4.1, consideramos  $\Phi_R = 0$  e o grupo de átomos com  $\delta = 0$ . Também consideramos  $T_R = 13$  ns, de modo que  $\delta_{12} T_R = 2\pi N_{12}$  e  $\delta_{23} T_R = 2\pi N_{23}$ , onde  $N_{12}$  e  $N_{23}$  são inteiros. Nestas condições, temos um fator de aumento de cerca de 13 quando comparamos o  $\rho_{22}$  final com o resultado de um único tiro, dado pelo primeiro máximo

da linha sólida na Fig. 4.1. Para  $\rho_{33}$ , este fator de aumento é de cerca de 35000. Estes valores são muito maiores que os fatores de aumento incoerentes esperados de teorias que levam em conta apenas acumulação de população nos níveis excitados, como na seção 2.3. Para os nossos valores de  $T_{22}$  e  $T_{33}$ , estes fatores incoerentes são  $\gamma_{22} = 1.6$  e  $\gamma_{33} = 18$  para as populações  $\rho_{22}$  e  $\rho_{33}$ , respectivamente. Já vimos na seção 3.3 que a ocorrência desses fatores de aumento grandes é um efeito coerente que vem da interferência construtiva entre as coerências excitadas pelos vários pulsos do trem. Para o sistema de três níveis que estamos tratando aqui, e baseado nas Eqs. (4.12), as condições para interferência construtiva quando  $\Phi_R = 0$  são

$$\begin{cases} \delta_{12}T_R = -\Delta T_R - \delta T_R = 2N_{12}\pi, \\ \delta_{23}T_R = \Delta T_R - \delta T_R = 2N_{23}\pi, \\ \delta_{13}T_R = -2\delta T_R = 2N_{13}\pi, \end{cases} \quad (4.15)$$

onde  $N_{12}$ ,  $N_{23}$  e  $N_{13}$  são inteiros, o que é o caso na Fig. 4.1.

Para outros grupos de átomos, com  $\delta \neq 0$ , as condições (4.15) não são necessariamente satisfeitas. A situação neste caso é mais complexa, e pode levar tanto a interferências construtivas quanto a interferências destrutivas, da mesma forma que na seção 3.3. A Fig. 4.2 plota o valor estacionário de todos os elementos da matriz densidade para os vários grupos de átomos dentro do perfil Doppler. Esta figura representa uma generalização para três níveis da Fig. 3.3 do capítulo anterior. A linha sólida na Fig. 4.2a, por exemplo, dá a variação da população final do nível 2 com a dessintonia inhomogênea  $\delta$ , para os mesmos parâmetros da Fig. 4.1 e pesada pelo perfil Doppler  $\exp(-\delta^2/2\delta_D^2)$ . A Fig. 4.2a, portanto, é completamente análoga à Fig. 3.3.

Usando a definição (3.4)

$$\omega_N = \omega_L + \frac{2\pi N}{T_R} + \frac{\Phi_R}{T_R}$$

para a frequência do N-ésimo modo do laser, as condições (4.15), para  $\Phi_R = 0$ , podem

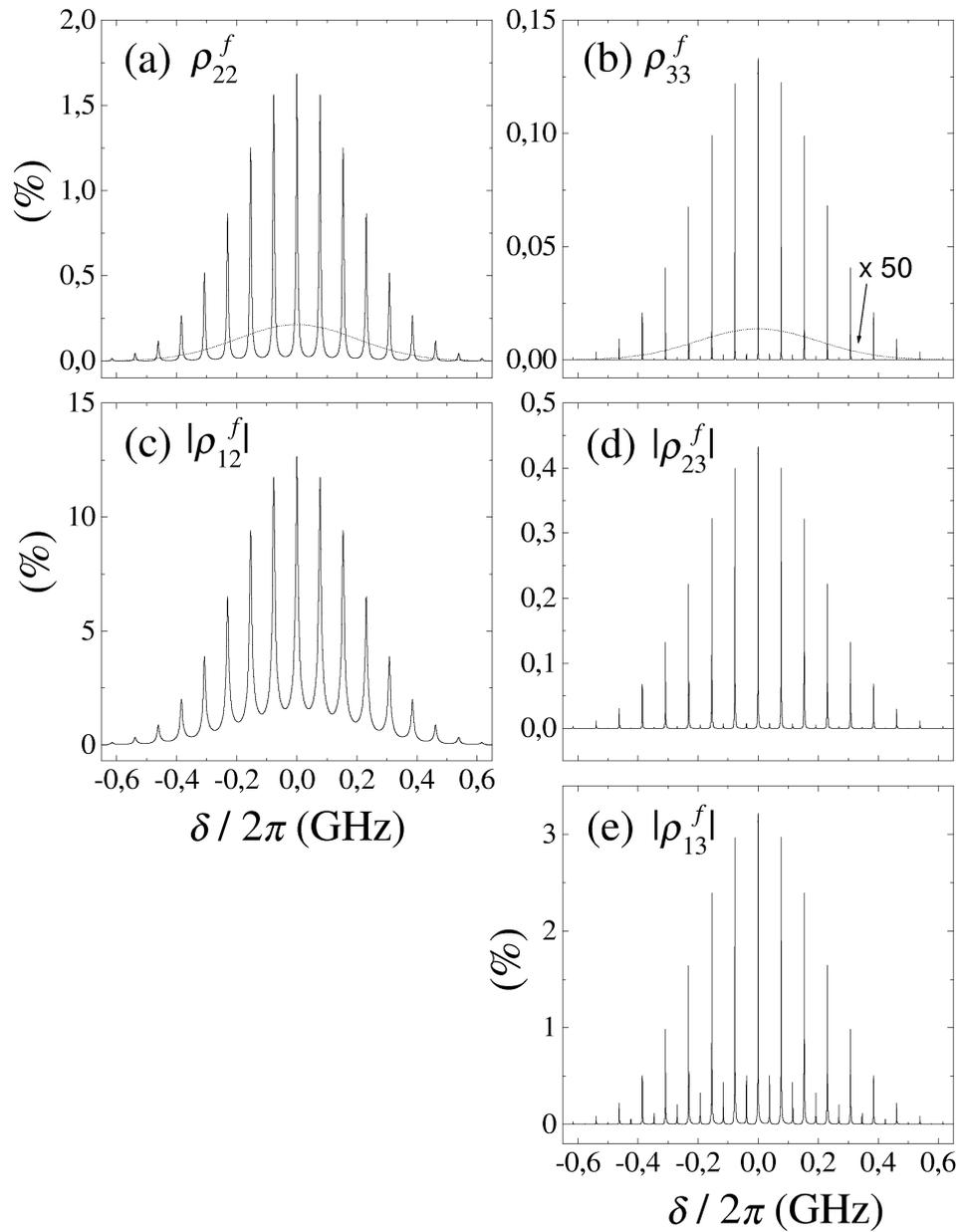


Figura 4.2: Estado estacionário do sistema para os vários grupos de átomos no perfil inhomogêneo. Consideramos  $\Phi_R = 0$  e  $T_R = 13$  ns. Para a curva pontilhada, fizemos  $T_{12} = T_{23} = T_{13} = 1$  ns. No quadro (b), a curva pontilhada foi multiplicada por 50 para facilitar a visualização.

também ser escritas como

$$\left\{ \begin{array}{l} \omega_{12} = \omega_{N_{12}} , \\ \omega_{23} = \omega_{N_{23}} , \\ \omega_{13} = 2\omega_{N_{13/2}} . \end{array} \right. \quad (4.16)$$

As condições (4.16) indicam que a estrutura de picos na Fig. 4.2 vem de uma condição de ressonância. Esta observação é reforçada quando consideramos um  $\Phi_R \neq 0$  na nossa análise. Neste caso, as novas condições para interferência construtiva obtidas a partir das Eqs. (4.12) são ainda as condições (4.16). Dessa forma, a inclusão de um  $\Phi_R \neq 0$  na Fig. 4.2 leva a uma modificação completamente análoga à da Fig. 3.3, isto é, a uma simples translação dos picos em todas as curvas de uma quantidade igual a  $\Phi_R/2\pi T_R$ .

A fase  $\Phi_R$  tem uma forte influência na matriz densidade final para um grupo de átomos em particular, como mostrado pela curva sólida na Fig. 4.3. No entanto, ao lidarmos com médias sobre um perfil inomogêneo, se  $\delta_D \gg 2\pi/T_R$  a matriz densidade média não apresenta nenhuma dependência com  $\Phi_R$ , como ilustrado pela curva tracejada na Fig. 4.3. Um comportamento análogo é observado para os outros elementos da matriz densidade. A média sobre o perfil inomogêneo é definida por

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

para qualquer elemento  $ij$  da matriz densidade . A dependência trivial da média com  $\Phi_R$  vem do tipo de modificação que  $\Phi_R$  causa nos vários grupos de átomos dentro do perfil inomogêneo, isto é, uma simples translação da excitação de um grupo de átomos para outro.

Apesar da simplicidade das condições de ressonância (4.16), a acumulação de coerências numa transição seqüencial tem várias sutilezas. Primeiro, satisfazer qualquer uma das condições (4.16) não implica necessariamente que esta ressonância na coerência será traduzida num aumento de alguma das populações do sistema. Este aumento depende

de vários outros fatores, como os tempos de vida das coerências, a relação entre os momentos de dipolo da primeira e da segunda transição, e a forma do pulso, que pode ser projetada para favorecer alguns elementos específicos da matriz densidade à custa dos outros. Por outro lado, não é necessário satisfazer todas as três condições (4.16) para ter um tal aumento nas populações, já que é comum haver uma única coerência que domina o processo de excitação. Neste caso, as condições de ressonância para as outras coerências assumem uma importância secundária.

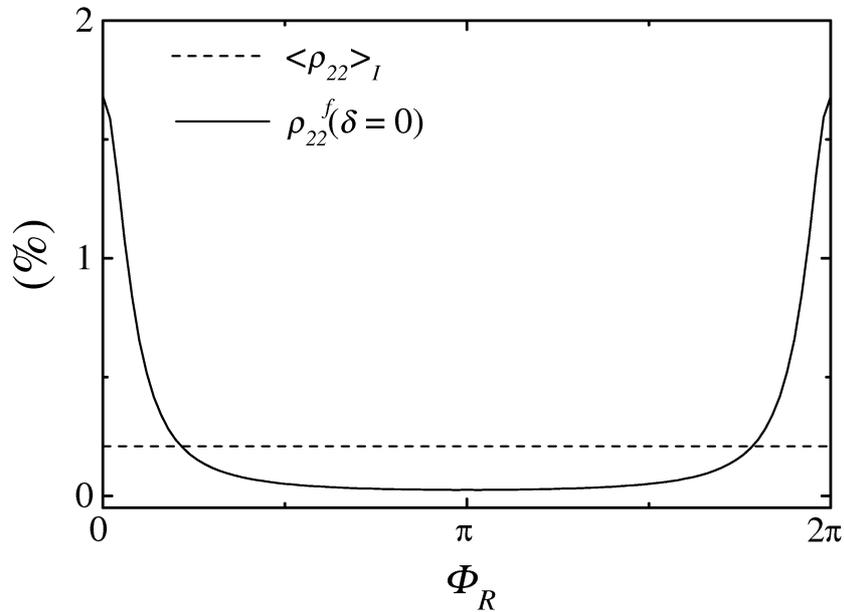


Figura 4.3: A curva sólida mostra a variação da população do nível 2 com  $\Phi_R$  para o grupo de átomos representado por  $\delta = 0$ . A curva tracejada mostra a dependência com  $\Phi_R$  da média da população do nível 2 sobre o perfil Doppler.

Na própria Fig. 4.2, a influência dos tempos de vida das coerências é esclarecida pela comparação entre as curvas sólida e pontilhada. Como visto na seção 3.3, a estrutura de picos desaparece se os tempos de vida das coerências levarem à não acumulação delas. Este é caso das curvas pontilhadas na Fig. 4.2, onde supomos arbitrariamente que  $T_{12} = T_{23} = T_{13} = 1$  ns.

O efeito da forma do pulso favorecendo alguns elementos específicos da matriz densidade será melhor explicado pela comparação com os resultados da seção 4.3.2 obtidos para um trem de pulsos  $0\pi$ . No caso do trem de pulsos tipo secante hiperbólica investigado nesta seção, um comportamento mais complexo já pode ser notado quando se observa a variação com  $\delta$  do valor final dos outros elementos da matriz densidade. Estes são mostrados nas Figs. 4.2b a 4.2e. Primeiramente, note que  $|\rho_{13}^f|$  apresenta ressonâncias na metade do período de  $|\rho_{12}^f|$ , como esperado a partir da condição (4.15) para  $\delta_{13}$ . No entanto, as ressonâncias mais fortes em  $|\rho_{13}^f|$  ocorrem para os mesmos grupos de átomos que apresentam também uma ressonância em  $|\rho_{12}^f|$ . O mesmo comportamento é observado em  $|\rho_{33}^f|$  e  $|\rho_{23}^f|$ , onde as ressonâncias na metade do intervalo entre dois modos adjacentes do laser mal podem ser vistas. Isto apenas enfatiza o fato de que é a transição de um fóton  $1 \rightarrow 2$ , e conseqüentemente a coerência  $\rho_{12}$ , que domina a interação do átomo com um trem de pulsos secante hiperbólicos, para as condições discutidas nesta seção. Isto leva a uma periodicidade de  $1/T_R$  na população do nível 3, o que difere do comportamento conhecido para uma transição de dois fótons pura. Nesta se observa apenas uma periodicidade de  $1/2T_R$  [27, 28, 32]. Na verdade, veremos na próxima seção que uma transição seqüencial permite também a observação de periodicidades de  $1/2T_R$  dependendo da forma do pulso.

O último ponto a ser discutido nesta seção é a resposta do sistema a uma pequena variação no período de repetição do laser  $T_R$ . A Fig. 4.4 mostra a variação de  $\langle \rho_{22} \rangle_I$  e  $\langle \rho_{33} \rangle_I$  com  $dT_R$ , definido por  $T_R = 13.000 \text{ ns} + dT_R$ . Os outros parâmetros nesta figura são os mesmos da curva sólida na Fig. 4.2. Note que a variação de  $dT_R$  faz com que  $\langle \rho_{33} \rangle_I$  varie por mais de uma ordem de grandeza, enquanto que  $\langle \rho_{22} \rangle_I$  permanece constante.

Este comportamento pode ser entendido olhando para as condições de ressonância (4.15). Se  $T_R = \pi N/\Delta$ , existirão sempre grupos de átomos para os quais  $\delta$  satisfaz todas as três condições (4.15), correspondendo ao caso discutido até aqui nesta seção. Na

Fig. 4.4, esta é a situação em todos os três pontos onde  $\langle \rho_{33} \rangle_I$  atinge o seu valor máximo. Se  $T_R \neq \pi N/\Delta$ , por outro lado, não é possível encontrar um grupo de átomos para o qual todas as três condições (4.15) são satisfeitas. Um grupo de átomos que satisfaz a condição para  $\delta_{12}T_R$  não irá satisfazer a condição para  $\delta_{23}T_R$ .

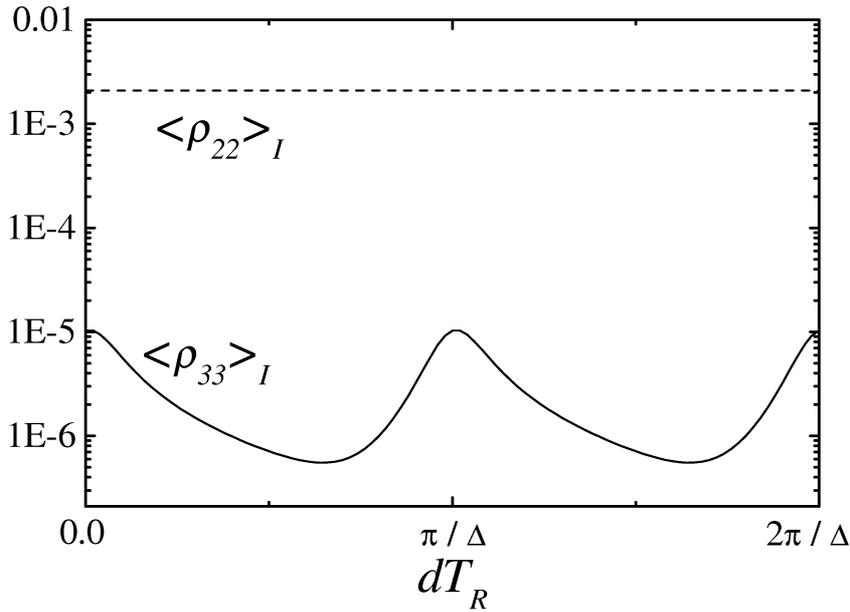


Figura 4.4: Variação da média das populações nos níveis 2 e 3 com uma pequena mudança na taxa de repetição do laser. A média foi feita sobre o perfil Doppler, e os outros parâmetros considerados foram os mesmos da linha sólida na Fig. 4.2, o que leva a  $\pi/\Delta = 473$  fs.

A população  $\langle \rho_{22} \rangle_I$  não é sensível a este problema, já que ela é afetada principalmente pela coerência  $\rho_{12}$ . Esta coerência depende apenas da condição de ressonância para  $\delta_{12}$ , que é sempre satisfeita por algum grupo de átomos no meio. A população  $\rho_{33}$ , no entanto, depende de forma crucial da coerência  $\rho_{23}$  para realizar a transição de um fóton  $2 \rightarrow 3$ . Esta coerência é influenciada principalmente pela condição de ressonância para  $\delta_{23}$ . Já que a excitação do nível  $|2\rangle$  depende basicamente da ressonância em  $\delta_{12}$ , e a transferência desta excitação para o nível  $|3\rangle$  depende da ressonância em  $\delta_{23}$ , a população  $\langle \rho_{33} \rangle_I$  é

fortemente afetada pelo fato das três condições (4.15) não serem satisfeitas ao mesmo tempo.

A discussão no último parágrafo pode receber uma interpretação ainda mais direta pela observação das condições (4.16). Para que as três condições sejam satisfeitas é necessário que existam diferentes modos do laser ressonantes com a primeira e a segunda transição ao mesmo tempo. Isto implica na diferença entre  $\omega_{12}$  e  $\omega_{23}$  ser um múltiplo de  $2\pi/T_R$ , o que obviamente ocorre apenas para valores particulares de  $T_R$ . Por outro lado, ressonância com uma das transições ou com a transição de dois fótons sempre ocorre separadamente para algum grupo de átomos dentro do perfil inhomogêneo quando a largura deste perfil é maior que a separação entre os modos do laser. Já que o valor de  $\langle\rho_{22}\rangle_I$  depende apenas de uma das ressonâncias, ele não sofre qualquer variação com uma pequena mudança em  $T_R$ . Por outro lado,  $\langle\rho_{33}\rangle_I$  é influenciado por ambas as ressonâncias, e assim é sensível à existência de valores especiais de  $T_R$  para os quais ambas as ressonâncias ocorrem.

Os resultados das Figs. 4.3 e 4.4 podem ter uma aplicação interessante em metrologia, pois neste campo é importante o controle separado dos dois graus de liberdade que caracterizam o pente de frequências do laser: o espaçamento  $1/T_R$  entre os modos e a fase  $\Phi_R$ . Estes dois parâmetros variam simultaneamente, em geral, quando se tenta manipular qualquer um deles individualmente. Da mesma forma, a maioria das grandezas atômicas sensíveis à ressonância com um dos modos do pente de frequências reage de forma similar a uma pequena variação de  $T_R$  ou de  $\Phi_R$ . Seria interessante, no entanto, idealizar medidas experimentais num sistema atômico que fornecessem  $T_R$  e  $\Phi_R$  de forma independente. Uma boa discussão deste problema pode ser encontrada na Ref. [16], onde é sugerida uma forma de contorná-lo pela conjugação de uma medida numa armadilha magneto-ótica de rubídio com uma modificação na cavidade do laser de fentosegundos. As Figs. 4.3 e 4.4, no entanto, indicam claramente que a medida da fluorescência do

nível 3 de uma transição seqüencial num vapor atômico fornece, de modo simples, uma grandeza que depende apenas de  $T_R$ , e é insensível a  $\Phi_R$ . Esta medida pode então ser usada para o controle individual de  $T_R$ .

### 4.3.2 Pulsos $0\pi$

As Eqs. (4.12) são válidas para qualquer forma de pulso, contanto que ele seja suficientemente curto. Esta é uma característica bem desejável para o estudo de técnicas de controle coerente, já que os esquemas mais avançados de controle envolvem a manipulação detalhada da fase e amplitude da envoltória do pulso. O ponto fundamental é que a excitação atômica depende bastante da forma desta envoltória.

Nesta seção, discutiremos o mesmo processo da seção anterior, só que agora com uma envoltória tipo  $0\pi$  para o pulso. Esta discussão servirá para fazer uma ponte com o capítulo 2, que discute bastante o efeito de pulsos  $0\pi$  sobre a excitação atômica. No entanto, a ênfase que daremos aqui será na comparação entre a excitação do sistema por pulsos  $0\pi$  e a excitação por pulsos tipo secante hiperbólica. Mostraremos que existem diferenças qualitativas significativas entre os resultados dos dois esquemas. Esta discussão aponta então para a importância de uma generalização, para trens de pulsos, do problema de controle de um sistema quântico por um único pulso com forma arbitrária de envoltória, que é a base do chamado controle ótimo.

Na Fig. 4.5 plotamos a evolução temporal das populações  $\rho_{22}$  e  $\rho_{33}$  sob a ação de um trem de pulsos  $0\pi$ . Esta figura é completamente análoga à Fig. 4.1 para um trem de pulsos secante hiperbólicos. A linha sólida na Fig. 4.5 resulta também de uma integração numérica das Eqs. (4.1), enquanto que os círculos abertos vêm da aplicação sucessiva das Eqs. (4.12) a partir do estado fundamental. Os parâmetros utilizados são os mesmos da Fig. 4.1. A única diferença reside na forma da envoltória. O pulso  $0\pi$  que atua no sistema é calculado utilizando o modelo da seção 2.2.1. Consideramos um pulso na

forma de secante hiperbólica na entrada da célula, igual ao utilizado na seção anterior, com  $T_p = 140$  fs e  $\mu_{12}\mathcal{E}_0/\hbar = 0.2$  THz. Este pulso é propagado por  $l = 2.5$  cm de amostra com um coeficiente de absorção  $\alpha_0$  tal que  $\alpha_0 l = 21$ , e desenvolve assim uma envoltória com área  $0\pi$ .

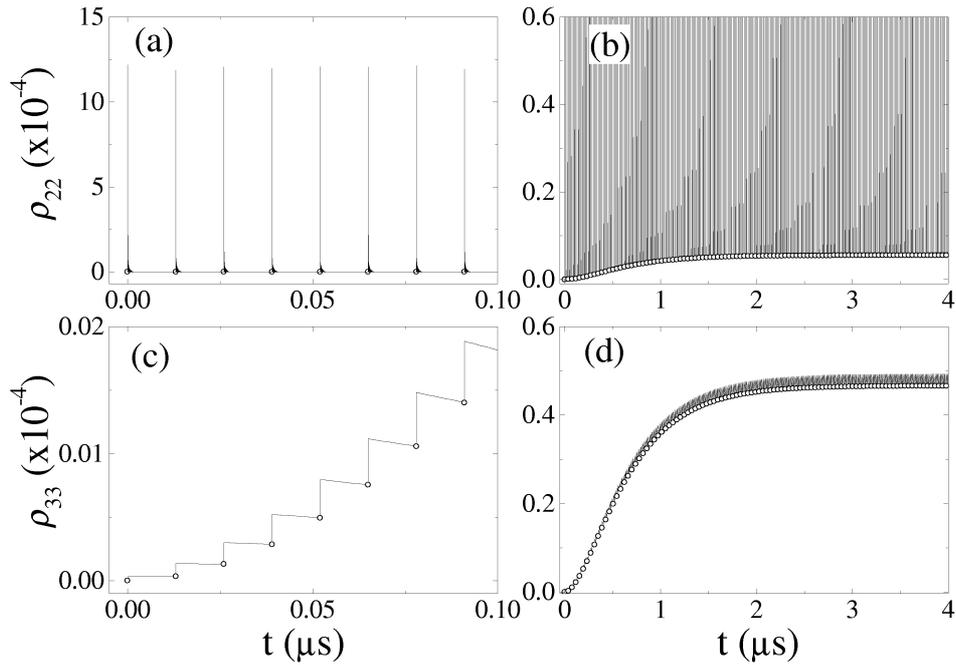


Figura 4.5: Evolução temporal das populações  $\rho_{22}$  e  $\rho_{33}$  a partir do estado fundamental sob a ação de um trem de pulsos  $0\pi$ . A linha sólida resulta de uma integração numérica direta das Eqs. (4.1). Os círculos abertos vêm de aplicações sucessivas das Eqs. (4.12). Os quadros (a) e (b) mostram diferentes escalas da mesma evolução temporal. Em (b), plotamos um círculo aberto a cada três, para melhorar a visualização. Consideramos uma densidade ótica de  $\alpha_0 l = 21$ . Os outros parâmetros são os mesmos da Fig. 4.1.

Já vimos na seção 2.2.1 que uma das características mais marcantes da atuação de um pulso  $0\pi$  sobre um átomo de dois níveis é a anulação da excitação no meio após a passagem do pulso. Num átomo de três níveis em cascata, um pulso  $0\pi$  ressonante com a transição intermediária também atua no sentido de anular a excitação residual desta

transição. Esta é a origem do enorme transiente que vemos no quadro (a) da Fig. 4.5 e que termina por praticamente anular o valor de  $\rho_{22}$  antes da chegada do próximo pulso. No entanto, quando temos acumulação no meio, o nível intermediário termina por ser também excitado devido a contribuições do nível superior. Esta é a origem do pequeno patamar que vemos surgir no quadro (b) da figura. Note que este patamar se desenvolve na mesma escala de tempo em que a população  $\rho_{33}$  atinge o seu estado estacionário, como podemos ver pelo quadro (d).

A situação estacionária da população  $\rho_{22}$  quando excitada por um trem de pulsos  $0\pi$  é, portanto, um grande transiente durante um curto intervalo de tempo superposto a um pequeno patamar praticamente constante. A média temporal do estado final de  $\rho_{22}$  continua sendo principalmente determinada pelo valor do patamar, como na seção anterior. No entanto, a influência do transiente precisa agora ser considerada explicitamente. Para isso, calculamos a média de  $\rho_{22}$  num período de excitação (dado por  $T_R$ ) do estado final do sistema, e separamos nesta média qual é a contribuição do transiente e do patamar. Obtivemos  $6.9 \times 10^{-6}$  para o valor médio total de  $\rho_{22}$ ,  $1.6 \times 10^{-6}$  vindos do transiente e os outros  $5.3 \times 10^{-6}$  vindos do patamar. O patamar, portanto, é responsável por três quartos da população média final do nível 2.

Além de contribuir com a maior parte da população  $\rho_{22}$ , o patamar também é responsável por qualquer variação dessa população devido a efeitos de acumulação. Isto porque o transiente induzido pelo pulso  $0\pi$  é um efeito linear que só depende dos valores iniciais dos elementos excitados da matriz densidade em uma ordem superior do campo, de modo que ele tem praticamente a mesma forma ao longo de todo o trem de pulsos. Os círculos abertos no quadro (b) da Fig. 4.5 mostram que as Eqs. (4.12) predizem bem o valor do patamar. Por conta dessas observações, na análise que segue discutiremos apenas a contribuição de  $\rho_{22}^f$  (a parcela da população relacionada ao patamar) para a população do nível 2.

Já para a população  $\rho_{33}$ , o comportamento mostrado na Fig. 4.5 é muito semelhante ao da Fig. 4.1. No entanto, o fator de aumento de  $\rho_{33}^f$  com relação ao valor da excitação por um único pulso, dado pelo primeiro máximo da curva sólida do quadro (c), é agora de cerca de 1300, bem menor portanto que no caso da excitação por um trem de pulsos secante hiperbólicos. Isto pode ser entendido pelo fato do caminho de excitação seqüencial, através do nível 2, ter se tornado desprezível. Enquanto que na situação da seção anterior este é o caminho de excitação mais forte. Note também que agora o fator de aumento da população  $\rho_{22}$  não pode ser bem definido, pois a excitação de  $\rho_{22}$  por um único pulso  $0\pi$  é nula.

A população estacionária final  $\rho_{33}^f$  é de cerca de  $4.8 \times 10^{-5}$ , como podemos ver no quadro (d) da Fig. 4.5. Este valor é bem maior que a população final do nível 2. Note que a excitação de  $\rho_{33}$  por um único pulso é menor que a população transiente média de  $\rho_{22}$ . Portanto, a inversão de população na segunda transição, observada na Fig. 4.5, é ocasionada pelo próprio processo de acumulação.

A característica mais marcante da excitação por um trem de pulsos  $0\pi$ , no entanto, aparece quando analisamos a excitação do sistema ao longo do seu perfil Doppler. A Fig. 4.6 mostra os elementos  $\rho_{ij}^f$  da matriz densidade estacionária para todos os grupos de átomos dentro do perfil Doppler. Esta figura é análoga à Fig. 4.2, que foi obtida para um trem de pulsos secante hiperbólicos. Note que a periodicidade da estrutura de picos para  $\rho_{22}^f$  passou a ser de  $1/2 T_R$ , ao contrário da periodicidade de  $1/T_R$  observada para pulsos secante hiperbólicos. A população  $\rho_{33}^f$  também mostra a mesma periodicidade de  $\rho_{22}^f$ . Da condição (4.15), vemos que uma periodicidade desse tipo indica que a ressonância da coerência  $\rho_{13}$  é que está dirigindo o processo. Esta periodicidade de  $1/2 T_R$  é bem característica dos estudos com transições de dois fótons puras [27, 28, 32]. Para uma excitação por um trem de pulsos  $0\pi$ , temos portanto que a transição de dois fótons é que domina o processo, ao contrário da situação da seção anterior em que a transição de um

fóton é a dominante.

Nos quadros (c), (d) e (e) da Fig. 4.6, plotamos os resultados para as três coerências do sistema. Como sublinhado anteriormente, a periodicidade de  $1/2 T_R$  é encontrada de forma mais pronunciada na coerência  $\rho_{13}$ . Esta periodicidade também é encontrada nas outras coerências. No entanto,  $\rho_{12}$  e  $\rho_{23}$  ainda preservam uma considerável componente com periodicidade de  $1/T_R$ , como era de se esperar das suas respectivas condições de ressonância. O domínio de  $\rho_{13}$  pode ainda ser observado no seu maior valor absoluto, ao contrário do caso da seção anterior, onde  $\rho_{12}$  tinha o maior valor absoluto.

Matematicamente, o efeito do pulso  $0\pi$  nas Eqs. (4.12) corresponde a fazer  $I_1 \approx 0$ . Isto é fácil de entender se olharmos para a Eq. (4.13a), que define  $I_1$ . Nela vemos que  $I_1$  é proporcional à componente de Fourier do campo na frequência da primeira transição. Já vimos na seção 2.2.1 que essa é justamente a componente do campo que é completamente absorvida pelo meio ao longo da propagação do pulso e à medida que ele desenvolve a envoltória com  $0\pi$  de área. Portanto a formação do pulso  $0\pi$  leva diretamente a  $I_1 \approx 0$ .

Com  $I_1$  nulo, vemos a partir da Eq. (4.12b) que os termos de fonte que sobraram para  $\rho_{22}$  são todos originários da segunda transição, dependentes portanto de  $\rho_{33}$ ,  $\rho_{13}$  e  $\rho_{23}$ . Além disso, a maior parte desses termos é multiplicada por  $I_6$ , o que indica que eles se originam do decaimento incoerente do nível 3 para o 2. Fora esses termos, só sobram os que dependem apenas de  $I_2$ , que representa o processo de emissão estimulada que também joga população de 3 para 2. Não devemos estranhar, portanto, que  $\rho_{22}^f$  seja agora um reflexo direto de  $\rho_{33}^f$ . Note que até a relação entre os perfis de excitação coerente e incoerente (linha pontilhada na Fig. 4.6) é a mesma tanto para  $\rho_{33}^f$  como para  $\rho_{22}^f$ .

Finalmente, não observamos nenhuma dependência da média inhomogênea  $\langle \rho_{33} \rangle_I$  com variações de  $T_R$  e  $\Phi_R$  para o caso da excitação por pulsos  $0\pi$ . Isto ocorre porque não temos mais o mecanismo de excitação seqüencial da população do nível 3, que era o responsável

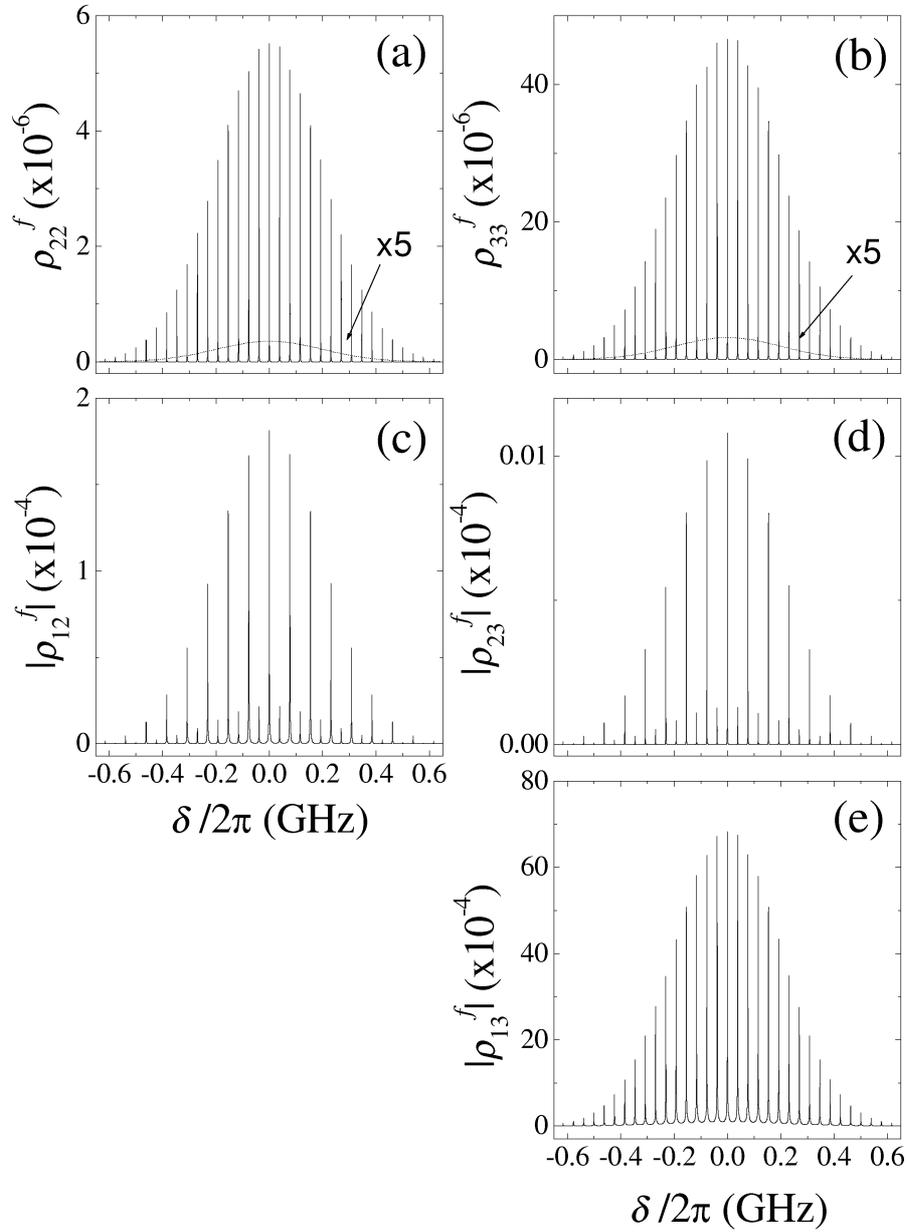


Figura 4.6: Estado estacionário do sistema excitado por um trem de pulsos  $0\pi$  para os vários grupos de átomos dentro do perfil inhomôneo. Consideramos  $\alpha_0 l = 21$  e os outros parâmetros iguais aos da Fig. 4.1. Para a curva pontilhada, fizemos  $T_{12} = T_{23} = T_{13} = 1$  ns, e multiplicamos o resultado por cinco para facilitar a visualização.

pela dependência de  $\langle \rho_{33} \rangle_I$  com  $T_R$  na Fig. 4.4. Como vimos acima, a condição de ressonância para  $\rho_{13}$  sozinha é a maior responsável por todo o processo de excitação.

## 4.4 Controle temporal coerente

Na teoria da seção 2.3, para simplificar o tratamento, consideramos que apenas a população  $\rho_{33}$  passava por um processo de acumulação. Vimos na seção anterior, no entanto, que a coerência  $\rho_{13}$  também acumula no meio, e que isto leva a enormes fatores de aumento para alguns grupos de átomos dentro do perfil Doppler. A discussão da seção 2.3 precisa, portanto, ser revisitada para incluir esse efeito no tratamento teórico.

Neste sentido, vamos aplicar agora a teoria deste capítulo, com acumulação em todas as coerências e populações, para a situação experimental da seção 2.2. O primeiro passo é adaptar as Eqs. (4.12) para levar em conta a ação de um trem de pares de pulsos, ao invés de um trem de pulsos individuais. Isto é feito de forma bem direta notando que a envoltória do n-ésimo par de pulsos é dada por

$$\mathcal{E}_n(t) = \mathcal{E}_{n1}(t) + e^{-i\omega_L \tau} \mathcal{E}_{n1}(t - \tau), \quad (4.17)$$

como na Eq. (2.7). Neste caso, as integrais de  $I_1$  a  $I_5$  passam a depender de  $\tau$  e podem ser escritas na forma

$$I_1(\tau) = \frac{i\mu_{12}}{\hbar} [1 + e^{-i\omega_{12}\tau}] \tilde{E}_{n1}(\delta_{12}) \quad (4.18a)$$

$$I_2(\tau) = \frac{i\mu_{23}}{\hbar} [1 + e^{-i\omega_{23}\tau}] \tilde{E}_{n1}(\delta_{23}) \quad (4.18b)$$

$$I_3(\tau) = F^*(0) + e^{-i\omega_{12}\tau} F^*(-\tau) + e^{-i\omega_{23}\tau} F^*(\tau) + e^{-i\omega_{13}\tau} F^*(0) \quad (4.18c)$$

$$I_4(\tau) = 2G(0) + e^{i\omega_{12}\tau} G(-\tau) + e^{-i\omega_{12}\tau} G(\tau) \quad (4.18d)$$

$$I_5(\tau) = 2H(0) + e^{i\omega_{23}\tau} H(-\tau) + e^{-i\omega_{23}\tau} H(\tau) \quad (4.18e)$$

onde  $\tilde{E}_{n1}(\delta)$  é a transformada de Fourier da envoltória  $\mathcal{E}_{n1}(t)$  na frequência  $\delta$ , e  $F(\tau)$  é dada pela Eq. (2.9) com  $\mathcal{E}_{n1}$  no lugar de  $\mathcal{E}_1$ . As funções  $G(\tau)$  e  $H(\tau)$  são dadas por

$$G(\tau) = \frac{\mu_{12}^2}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt \int_{-\infty}^{t+\tau} dt' \mathcal{E}_{n1}(t) \mathcal{E}_{n1}^*(t') e^{-i\delta_{12}t} e^{i\delta_{12}t'}, \quad (4.19a)$$

$$H(\tau) = \frac{\mu_{23}^2}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt \int_{-\infty}^{t+\tau} dt' \mathcal{E}_{n1}(t) \mathcal{E}_{n1}^*(t') e^{-i\delta_{23}t} e^{i\delta_{23}t'}, \quad (4.19b)$$

e representam processos de segunda ordem no campo relativos às transições de um fóton. Para um pulso  $0\pi$  na situação da seção 4.3.2, a função  $|H(\tau)|$  tem a forma de uma função degrau. Já a função  $|G(\tau)|$  é simétrica com relação à origem dos atrasos e monotonicamente decrescente com o valor absoluto de  $\tau$ . Apenas  $F(\tau)$  exhibe o comportamento ondulatório que aparece no sinal experimental da Fig. 2.12, como vimos na seção 2.2.2.

Antes de prosseguir com a comparação da teoria com o experimento, no entanto, é bom ter em mente exatamente o que buscamos com esta comparação. Isto porque a teoria desenvolvida neste capítulo envolve vários parâmetros novos, como  $T_R$  e  $\Phi_R$ , para os quais não tínhamos mecanismos de controle durante os experimentos. Naquela época, também não tínhamos meios de medir a varredura de frequências dos pulsos emitidos pelo laser de Ti:safira que utilizamos. Veremos a seguir que esta varredura tem um papel na determinação da forma do sinal. Esses parâmetros do laser têm variações lentas se comparadas com o tempo em que as medidas transcorriam. Por conta disso, não podemos considerar uma média sobre seus vários valores possíveis. Temos que utilizar valores específicos obtidos a partir de alguma espécie de ajuste.

A introdução destes parâmetros de ajuste requer que tenhamos mais cuidado em determinar o real significado da curva obtida ao final do ajuste. Neste sentido, o que buscaremos é mostrar que a teoria deste capítulo prevê o surgimento de curvas do tipo que observamos experimentalmente, para valores razoáveis dos parâmetros. Não teremos a preocupação de detalhar todas as nuances que observamos com a variação de cada um dos parâmetros individualmente. Daremos apenas o valor final do parâmetro utilizado

no ajuste, com algumas poucas comparações mais significativas com outros valores.

Vimos que o estado estacionário do átomo varia bastante dependendo de sua posição dentro do perfil Doppler, ou seja, dependendo do desvio  $\delta$  entre sua frequência de transição e a frequência para um grupo de átomos em repouso no referencial do laboratório. Na nossa situação experimental, observamos uma média do sinal relativo a cada um desses grupos de átomos. No entanto, para iniciar a discussão sobre a aplicação das Eqs. (4.12) aos experimentos do Cap. 2, consideraremos o caso mais simples da interação do trem de pares de pulsos com um único grupo de átomos, no caso aquele com  $\delta = 0$ . Apesar de não corresponder à nossa situação experimental, esta situação também pode ser encontrada na prática. Ela corresponderia a realizar os experimentos do Cap. 2 em uma armadilha magneto-ótica.

Os resultados de duas varreduras com pouca resolução em  $\tau$  para a excitação da população  $\rho_{33}$  por um trem de pares de pulsos  $0\pi$  estão mostrados na Fig. 4.7. Nesta figura, consideramos  $T_p = 140$  fs e  $\alpha_0 l = 21$ , da mesma forma que no ajuste da seção 2.3. A amplitude do campo é tal que  $\mu_{12}\mathcal{E}_0/\hbar = 0.65$  THz. Cada ponto da curva é uma média de 200 cálculos da população final  $\rho_{33}^f$  para diferentes valores de  $\tau$  dentro de um período ótico, determinado por  $2\pi/\omega_L$ .

Para os parâmetros do pente de frequências, supomos  $T_R = 13.0005$  ns e  $\Phi_R = 0$ . O valor de  $\Phi_R$  utilizado é o mais trivial, pois não esperamos uma dependência de nossas curvas experimentais com ele, já que a análise da Fig. 4.3 mostrou que este parâmetro não influencia médias sobre o perfil Doppler do vapor. O valor de  $T_R$  utilizado foi o que mais ajustava a teoria à forma das curvas experimentais. A partir das Eqs. (4.12), vemos que a variação do comportamento do sistema com  $T_R$  se repete a cada modificação de  $2\pi/\Delta \approx 1$  ps em  $T_R$ , sendo este então o intervalo de ajuste deste parâmetro. Dentro deste intervalo, todas as curvas obtidas são muito parecidas, mas ainda assim é possível determinar que um valor em torno de 13.0005 ns leva a um melhor ajuste.

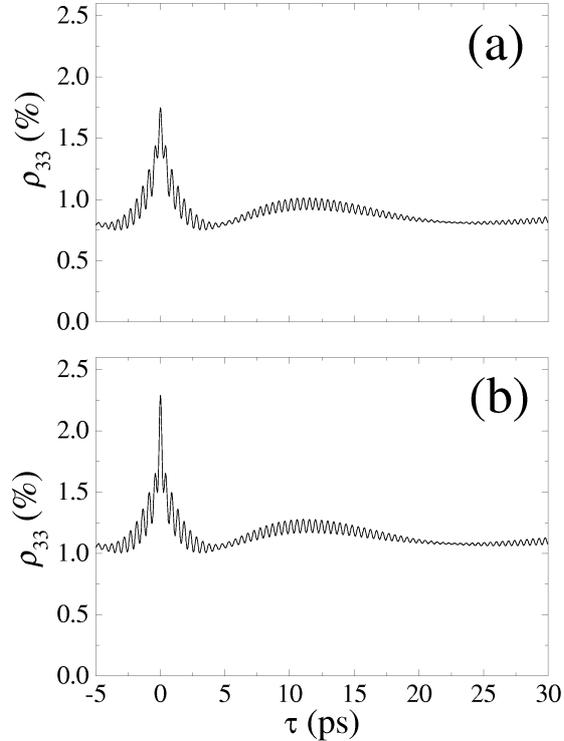


Figura 4.7: Variação da população  $\rho_{33}$  para uma varredura do atraso relativo entre os pulsos obtida a partir das Eqs. (4.12) com  $\delta = 0$ . Consideramos uma varredura com baixa resolução no atraso e pares de pulsos tipo  $0\pi$ , com  $T_p = 140$  fs,  $\alpha_0 l = 21$ ,  $\mu_{12}\mathcal{E}_0/\hbar = 0.65$  THz,  $T_R = 13.0005$  ns e  $\Phi_R = 0$ . Em (a), consideramos pulsos sem varredura de frequência. Em (b), consideramos pulsos com uma varredura de frequência determinada por  $a = 0.5$ , onde o parâmetro  $a$  é definido a partir da Eq. (4.20).

Um outro parâmetro que sempre merece atenção em problemas relacionados a pulsos ultracurtos é a magnitude da varredura de frequência do pulso. A origem dessa varredura de frequência é a dispersão da velocidade de grupo, GVD (do inglês *group velocity dispersion*), para as várias componentes de frequência dentro do pacote de onda que forma o pulso. Esta dispersão vem da dependência do índice de refração do meio com o comprimento de onda da luz incidente, o que resulta em uma velocidade de propa-

gação diferente para as várias componentes de frequência do pulso. Podemos ter, por exemplo, as componentes de frequência mais baixa adiantadas no tempo (chegando antes na amostra) com relação às componentes de frequência mais altas, ou vice versa. Este efeito é tão mais pronunciado quanto menor for a duração do pulso, devido ao aumento da largura de banda de frequência.

Toda cavidade de laser incorpora elementos que geram GVD no pulso propagante dentro da cavidade. Como este é um efeito que atua geralmente no sentido de alargar o pulso, os lasers de femtosegundos são usualmente projetados visando minimizá-lo. Isto é feito combinando elementos da cavidade que geram dispersão em sentidos opostos, como prismas e a passagem pelo meio de ganho. No entanto, é comum que reste alguma varredura de frequência no pulso na saída do laser, o que às vezes leva à necessidade de compensar essa varredura fora da cavidade.

No caso dos nossos experimentos, não utilizamos nenhuma compensação fora da cavidade, de modo que nosso pulso muito provavelmente continha uma certa varredura de frequência. Para estudar a influência desse efeito sobre as nossas curvas experimentais, consideramos agora que na entrada da célula de vapor o pulso tem a forma de uma secante hiperbólica com uma certa varredura de frequência. Teoricamente, esta é introduzida através de uma operação no domínio das frequências. Se  $\tilde{\mathcal{E}}'(\Omega)$  é a transformada de Fourier do pulso sem varredura (uma secante hiperbólica no domínio do tempo), o pulso com varredura no domínio das frequências é dado por

$$\tilde{\mathcal{E}}(\Omega) = \tilde{\mathcal{E}}'(\Omega)e^{iaT_p^2\Omega^2/4}, \quad (4.20)$$

onde utilizamos o parâmetro adimensional  $a$  para parametrizar a quantidade de varredura do pulso. Esta modificação no espectro do pulso gera, no domínio do tempo, um pulso com varredura de frequência linear, ou seja, a frequência instantânea do pulso (definida como a derivada no tempo da fase do pulso) é uma função linear do tempo [68, 69].

O efeito da varredura de frequência sobre uma medida do tipo mostrado na Fig. 4.7a está ilustrado na Fig. 4.7b. Nesta, consideramos um campo dado pela Eq. (4.20) com  $a = 0.5$ , os outros parâmetros utilizados são iguais aos da Fig. 4.7a. Este valor para o parâmetro  $a$  está de acordo com medidas que foram feitas posteriormente da varredura de frequência do laser de Ti:safira que utilizamos no experimento. Estas medidas indicaram um valor de  $a$  entre -1 e 1. Notamos que a varredura de frequência influencia apenas a altura do pico central da curva mostrada na Fig. 4.7. Esta varredura, portanto, não é crucial para a explicação dos batimentos observados no sinal, mas tem uma importância considerável em qualquer comparação mais detalhada com os dados experimentais.

O cálculo que resultou na Fig. 4.7 tem uma complexidade razoável, envolvendo concomitantemente vários processos de diferentes ordens no campo e com pesos diferentes no processo de acumulação, que depende tanto do campo como dos tempos de relaxação. Além disso, cada ponto nas curvas representa uma média sobre um período ótico de uma função que apresenta batimentos interferométricos não-harmônicos, como pudemos inferir a partir da análise da seção 2.3. Isto ressalta bem a importância da discussão simplificada da seção 2.3, que revela de forma clara os elementos físicos mínimos necessários para a ocorrência dos batimentos observados. Com relação a esta análise, a curva da Fig. 4.7 apresenta duas distinções qualitativas principais: o afinamento do pico na origem e a possibilidade de controle da altura desse pico através da varredura de frequência. Lembremos que a largura do pico central era a maior diferença entre a teoria da seção 2.3 e os experimentos, de modo que seu afinamento indica um melhor ajuste entre os dois.

Mesmo tendo em mente a dificuldade em determinar precisamente quais processos envolvidos no cálculo da Fig. 4.7 são os responsáveis por essa melhora no ajuste, consideramos que modificações que se restringem ao pico central são devidas geralmente ao melhor tratamento dado agora aos processos de excitação seqüencial por um fóton,

em que o átomo absorve um fóton de cada pulso no par. A interferência entre os dois caminhos seqüenciais ocorre apenas em torno do pico central, como vimos no Cap. 2. Estes processos dependem diretamente das coerências  $\rho_{12}$  e  $\rho_{23}$ , cujas acumulações no meio estão sendo levadas em conta no tratamento dessa seção, mas foram desprezadas na seção 2.3.

Um outro ponto precisa ser analisado agora em detalhe. Note que a intensidade que utilizamos para o pulso na Fig. 4.7,  $\mu_{12}\mathcal{E}_0/\hbar = 0.65$  THz, é razoavelmente maior que o utilizado na seção 4.3,  $\mu_{12}\mathcal{E}_0/\hbar = 0.2$  THz. A intensidade da seção 4.3 leva a um acordo excelente entre o cálculo baseado nas Eqs. (4.12) e a integração numérica das equações de Bloch (4.1). Para a intensidade da Fig. 4.7, no entanto, começam a aparecer pequenos desvios entre o resultado dos dois cálculos. Esses desvios vêm do fato da teoria empregar uma aproximação de baixa intensidade.

Por conta disso, resolvemos fazer uma análise mais aprofundada dos erros presentes na teoria da seção 4.3 para a intensidade da Fig. 4.7. Nossa abordagem foi comparar diretamente um pequeno trecho da curva da Fig. 4.7 [obtida a partir das Eqs. (4.12)] com o mesmo resultado obtido a partir das equações de Bloch (4.1), já que as equações de Bloch são válidas para qualquer intensidade. Esta comparação está mostrada na Fig. 4.8. Nesta figura, cada ponto é uma média entre dez cálculos realizados com diferentes atrasos dentro de um período ótico (de 2.6 fs) em torno do valor de  $\tau$  mostrado no eixo horizontal. Vemos assim que existem diferenças, mas a previsão das Eqs. (4.12) continua sendo muito boa. Em média, o desvio observado entre os valores das duas curvas foi de 1.3 %. É bom perceber que a Fig. 4.8 tem uma importância extra por mostrar o batimento em 473 fs surgindo diretamente das Eqs. (4.1), explicitando assim que esse batimento não pode ser relacionado a nenhum artifício matemático relacionado às aproximações no modelo original.

Como discutido anteriormente, a curva experimental mostrada na Fig. 2.12 repre-

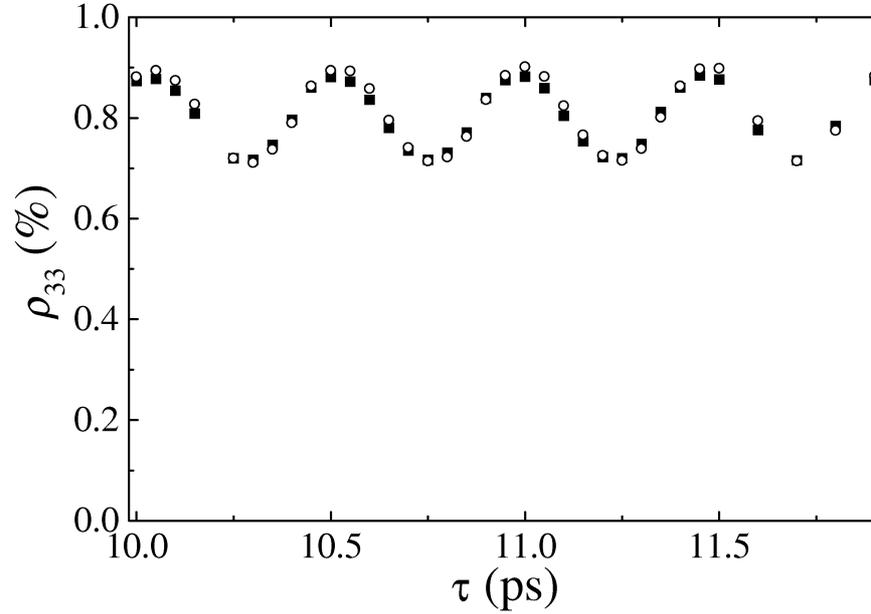


Figura 4.8: Variação da população do nível 3 com o atraso relativo entre os pulsos. Os parâmetros utilizados foram os mesmos da Fig. 4.7. Os círculos abertos foram obtidos com as Eqs. (4.12), enquanto os quadrados cheios foram obtidos com as equações de Bloch (4.1). Cada ponto é uma média entre os resultados de dez cálculos da população com pequenas diferenças de atraso dentro de um período ótico (2.6 fs).

sendo uma média da fluorescência emitida pelos vários grupos de átomos dentro do perfil Doppler do vapor. Vimos na Fig. 4.6 que a população no nível 3 pode variar muito dentro desse perfil Doppler, de modo que é importante discutir o efeito dessa média sobre a forma da curva apresentada na Fig. 4.7b. Na Fig 4.9 mostramos o efeito dessa média sobre a curva na Fig. 4.7b. Consideramos um perfil Doppler com largura de  $\delta_D/2\pi = 0.2$  GHz. Na Fig. 4.9a, todos os outros parâmetros utilizados são iguais aos da Fig. 4.7b. Vemos, portanto, que a média sobre o perfil inhomogêneo leva a uma diminuição da visibilidade do batimento em 473 fs se compararmos com a curva com  $\delta = 0$  para os mesmos parâmetros. No entanto, aumentando a intensidade do campo, o batimento volta a aparecer, como podemos ver na Fig. 4.9b, obtida com  $\mu_{12}\mathcal{E}_0/\hbar = 1.7$  THz. Nos

experimentos, estimamos o valor da quantidade  $\mu_{12}\mathcal{E}_0/\hbar$  em cerca de 1 THz, próximo portanto do valor teórico.

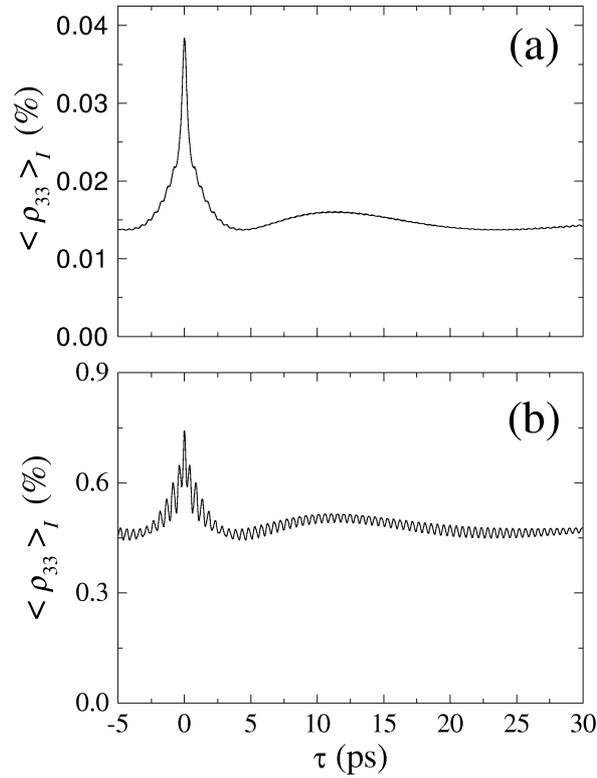


Figura 4.9: Média sobre o perfil Doppler da variação da população  $\rho_{33}$  com o atraso entre os pulsos do par, para (a)  $\mu_{12}\mathcal{E}_0/\hbar = 0.65$  THz e (b)  $\mu_{12}\mathcal{E}_0/\hbar = 1.7$  THz. Os outros parâmetros são os mesmos da Fig. 4.7b.

Para obter a Fig. 4.9b não realizamos nenhum ajuste mais detalhado, apenas aumentamos a intensidade com relação à situação da Fig. 4.9a. No entanto, ela mostra de forma clara que o batimento de femtosegundos e a envoltória de picosegundos estão presentes mesmo quando consideramos acumulação nas coerências e médias sobre o perfil Doppler, que é a nossa situação experimental. Na Fig. 4.10a, mostramos uma comparação melhorada entre a teoria e a parte da curva experimental que varia com o atraso, subtraindo o fundo constante. Para gerar esta figura, consideramos  $\mu_{12}\mathcal{E}_0/\hbar = 1.4$  THz,  $a = 0.8$  e  $T_R = 13.0003$  ns. Os outros parâmetros foram os mesmos da Fig. 4.9b. Na

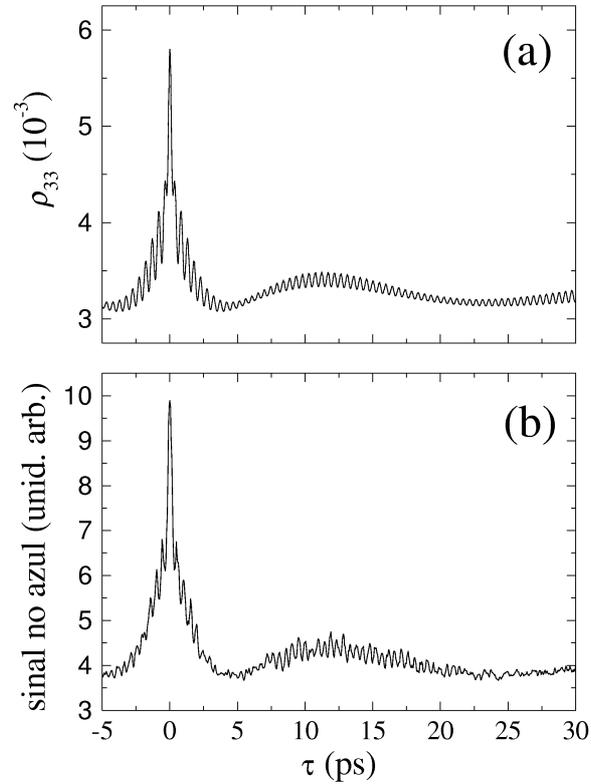


Figura 4.10: No quadro (a) temos a média sobre o perfil Doppler da população  $\rho_{33}$  como função do atraso entre os pulsos do par. Para esta curva, utilizamos  $\mu_{12}\mathcal{E}_0/\hbar = 1.4$  THz,  $a = 0.8$  e  $T_R = 13.0003$  ns. Os outros parâmetros foram os mesmos da Fig. 4.9b. No quadro (b) mostramos novamente os dados experimentais da Fig. 2.12a.

Fig. 4.10b, mostramos novamente a curva experimental da Fig. 2.12a. A comparação entre as curvas nos quadros (a) e (b) é bem razoável, o que confirma novamente a adequação da nossa teoria. A principal diferença entre as duas curvas é agora a relação do sinal que varia com o fundo constante. Esta diferença pode ser apreciada pela observação da escala vertical nos dois quadros, já que ambas se referem ao zero de sinal. No caso da Fig. 4.10, a principal dificuldade para obter uma melhor comparação com o experimento foi realmente o tempo de máquina requerido por estes últimos cálculos. Apesar da teoria desse capítulo ter melhorado muito o tempo de computação quando comparada

com integrações numéricas das equações de Bloch, a média sobre a largura Doppler fez com que atingíssemos nosso limite de capacidade computacional. Uma curva como as mostradas na Fig. 4.9 ou na Fig. 4.10b requer cerca de sete horas para ser calculada, o que nos levou a testar apenas alguns poucos valores de parâmetros.

# Capítulo 5

## Conclusão

Estudamos, nesta tese, vários aspectos da interação coerente de sistemas atômicos com trens de pulsos ultracurtos. Consideramos tanto átomos de dois como de três níveis, e sistemas com e sem alargamento inhomogêneo. Para o trem de pulsos, levamos em conta a fase relativa entre os vários pulsos do trem, e também diferentes formas para a envoltória do pulso. Neste sentido, observamos experimentalmente a formação de pulsos  $0\pi$  no meio e a sua atuação sobre os átomos. Também realizamos experimentos com a forma de pulso que sai diretamente do laser, do tipo secante hiperbólica. Além disso, consideramos a atuação tanto de trens de pulsos individuais como de trens de pares de pulsos.

Essa variedade de estudos procurou não apenas esclarecer os ingredientes fundamentais por trás dos nossos resultados experimentais, mas também buscou oferecer uma formulação teórica do problema que permitisse a extensão desses estudos a um conjunto bem mais amplo de experimentos. Esta é a preocupação por trás, por exemplo, da extensão da teoria do Cap. 2 para incluir também a acumulação de coerência. Apesar de aparentar que o ganho na comparação da teoria com o experimento foi pequeno, o ganho na compreensão da nossa situação física foi enorme. Isto possibilitou a correta percepção

da riqueza do nosso sistema e de suas inúmeras potencialidades.

Uma das principais contribuições desta tese foi mostrar que os efeitos de acumulação de excitação no meio podem ser cruciais para explicar sinais de controle coerente de sistemas atômicos. Nos últimos anos, lasers de femtosegundos com altas taxas de repetição, tipicamente da ordem de 100 MHz, vêm sendo comumente empregados em estudos de controle coerente sem a devida atenção aos processos de acumulação que ocorrem no meio. Mostramos aqui, de forma clara, que esses processos podem influenciar bastante o sinal, com o aparecimento inclusive de novas frequências de batimento. Embasamos nossa discussão em uma série de experimentos de controle temporal coerente para a transição  $5S \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 5D$  do rubídio, cujos resultados não podiam ser explicados com uma teoria que levasse em conta apenas a interação do átomo com um único par de pulsos do laser. Oferecemos, em seguida, uma primeira explicação para o nosso sinal baseada numa teoria analítica simplificada que leva em conta apenas a acumulação de população no meio. Esta teoria foi posteriormente estendida para incluir acumulação nas coerências e o alargamento inomogêneo do meio. Com esta última teoria, obtivemos finalmente uma descrição detalhada da nossa situação experimental que reflete bem os sinais observados.

A busca de uma compreensão mais aprofundada do processo de acumulação nos levou também a revisitar o problema da interação coerente de um átomo de dois níveis com um trem de pulsos. Neste caso, mostramos que o fato de estarmos lidando com pulsos ultracurtos possibilita algumas aproximações que levam a uma solução analítica do problema em todas as ordens do campo. Dessa forma, fomos capazes de discutir o regime não linear de excitação utilizando expressões analíticas simples, ao contrário dos estudos anteriores para o mesmo problema, que empregavam integrações numéricas diretas das equações de Bloch. Além disso, realizamos um experimento de absorção saturada com um laser de femtosegundos que mostra a impressão do pente de frequências

do laser sobre o perfil Doppler de um vapor atômico, um efeito que decorre diretamente da acumulação de coerência no meio.

Ainda no contexto do átomo de dois níveis, investigamos o efeito sobre o sistema atômico da existência de uma fase relativa entre os pulsos do trem. Esta fase é uma componente fundamental de qualquer descrição do trem de pulsos emitido por um laser de femtosegundos com travamento de modos, e sua importância tem sido constantemente frisada nos últimos anos no contexto dos novos desenvolvimentos em metrologia de frequências óticas com lasers de femtosegundos. A inclusão desta fase na nossa discussão do átomo de dois níveis, e nas expressões finais deduzidas, visa o esclarecimento do seu papel sobre um sistema atômico simples, antes de discutir seus efeitos no contexto mais complicado de uma transição seqüencial.

Após o tratamento do átomo de dois níveis, passamos a discutir o problema da acumulação de coerência num sistema de três níveis em cascata. Para isso, formulamos uma teoria perturbativa que fornece o estado estacionário do átomo devido a sua excitação por um longo trem de pulsos ultracurtos com forma arbitrária de envoltória. Esta teoria leva em conta acumulação em todas as populações e coerências do sistema. Procuramos aplicá-la, mais especificamente, ao estudo da excitação da transição seqüencial  $5S \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 5D$  num vapor de rubídio.

No estudo da transição seqüencial, nosso primeiro objetivo foi entender as diferenças entre a excitação do sistema por um trem de pulsos tipo secante hiperbólica, e a sua excitação por um trem de pulsos  $0\pi$ . A motivação para este estudo é bem clara: a forma tipo secante hiperbólica dos pulsos é obtida diretamente do laser e é a mais utilizada na literatura, enquanto os pulsos  $0\pi$  são os responsáveis pela excitação em nossos experimentos à medida em que aumentamos a densidade do vapor atômico. Procuramos com isso estender o nosso entendimento do problema partindo da nossa situação experimental específica e comparando-a com um caso mais comum. Também era nossa intenção

ilustrar o fato de que a teoria desenvolvida por nós podia ser aplicada para uma forma arbitrária de envoltória. Os resultados desse estudo, no entanto, mostraram que a forma da envoltória tem uma influência enorme sobre o resultado do processo de acumulação, de modo que ficou claro que esta investigação teve um caráter ainda mais geral: ela indica a importância de se combinar o efeito de acumulação de excitação no meio com as técnicas de controle coerente baseadas na modelagem da envoltória do pulso. Mais especificamente, observamos que o período da estrutura cavada pelo trem de pulsos  $0\pi$  no perfil Doppler do meio é o dobro do período da estrutura cavada pelo trem de pulsos tipo secante hiperbólica. Esta observação indica que a transição de dois fótons domina o processo de acumulação no caso de pulsos  $0\pi$ , enquanto as transições de um fóton são dominantes para pulsos tipo secante hiperbólica.

A dependência da excitação atômica com os parâmetros que caracterizam o pente de frequências do laser de fentosegundos apresenta um comportamento bem mais rico para uma transição seqüencial que para um sistema de dois níveis. Mostramos, por exemplo, que podemos ter uma variação de mais de uma ordem de grandeza na população do nível  $5D$  do rubídio para pequenas modificações na taxa de repetição do laser. Medidas desse tipo podem servir de base para esquemas alternativos de estabilização e controle do pente de frequências do laser de fentosegundos. Elas também abrem caminho para novas investigações acerca do papel, na excitação de um sistema atômico, da fase relativa entre pulsos do trem.

Apesar de servir de base para uma discussão mais aprofundada dos nossos resultados experimentais de controle temporal coerente, nosso estudo da acumulação coerente num átomo de três níveis permaneceu basicamente teórico. O principal motivo para não termos realizado vários dos experimentos sugeridos ao longo desse estudo foi o fato de não termos atualmente controle da fase do nosso laser de fentosegundos. Neste sentido, esses resultados teóricos têm servido como uma motivação extra para a realização do controle

de fase do laser de Ti:safira que usamos ao longo desta tese. Paralelamente, estamos em contato com outros grupos que podem realizar esses experimentos em um horizonte de tempo mais curto. Esperamos com isso que a investigação desta tese sobre os efeitos da interação de sistemas atômicos com trens de pulsos ultracurtos tenha uma continuidade, e que esta leve ainda à observação de novos efeitos e a um maior aprofundamento da nossa imagem física do problema.



# Apêndice A

## Equações de Bloch para um sistema de três níveis

Consideraremos um átomo de três níveis em cascata, onde  $|1\rangle$ ,  $|2\rangle$  e  $|3\rangle$  indicam os níveis fundamental, intermediário e mais excitado, respectivamente. Os estados  $|1\rangle$  e  $|3\rangle$  têm a mesma paridade, que é oposta à do estado  $|2\rangle$ . O hamiltoniano  $\hat{H}$  do átomo sujeito a um campo elétrico  $E(t)$  pode ser escrito na forma

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{int} \quad (\text{A.1})$$

onde  $\hat{H}_0$  é o hamiltoniano na ausência do campo

$$\hat{H}_0 = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & \hbar\omega_{12} & 0 \\ 0 & 0 & \hbar\omega_{13} \end{pmatrix} \quad (\text{A.2})$$

e  $\hat{H}_{int}$  é o hamiltoniano de interação do átomo com a radiação dado por

$$\hat{H}_{int} = \begin{pmatrix} 0 & V_{12} & 0 \\ V_{12}^* & 0 & V_{23} \\ 0 & V_{23}^* & 0 \end{pmatrix} \quad (\text{A.3})$$

onde  $V_{12} = -\mu_{12}E$ ,  $V_{23} = -\mu_{23}E$  e consideramos apenas interações tipo dipolo elétrico.

O primeiro passo para se obter as Eqs. de Bloch do sistema é deduzir a forma das Eqs. de Liouville para o operador matriz densidade  $\hat{\rho}$

$$\frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}, \hat{\rho}] = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}_0, \hat{\rho}] - \frac{i}{\hbar} [\hat{H}_{int}, \hat{\rho}] \quad (\text{A.4})$$

onde

$$\hat{\rho} = \begin{pmatrix} \rho_{11} & \rho_{12} & \rho_{13} \\ \rho_{21} & \rho_{22} & \rho_{23} \\ \rho_{31} & \rho_{32} & \rho_{33} \end{pmatrix}. \quad (\text{A.5})$$

Para o primeiro termo do lado direito de (A.4), temos

$$\hat{H}_0 \hat{\rho} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ \hbar\omega_{12}\rho_{21} & \hbar\omega_{12}\rho_{22} & \hbar\omega_{12}\rho_{23} \\ \hbar\omega_{13}\rho_{31} & \hbar\omega_{13}\rho_{32} & \hbar\omega_{13}\rho_{33} \end{pmatrix} \quad \text{e} \quad \hat{\rho} \hat{H}_0 = \begin{pmatrix} 0 & \hbar\omega_{12}\rho_{12} & \hbar\omega_{13}\rho_{13} \\ 0 & \hbar\omega_{12}\rho_{22} & \hbar\omega_{13}\rho_{23} \\ 0 & \hbar\omega_{12}\rho_{32} & \hbar\omega_{13}\rho_{33} \end{pmatrix}$$

de onde segue que

$$-\frac{i}{\hbar} [H_0, \rho] = \begin{pmatrix} 0 & i\omega_{12}\rho_{12} & i\omega_{13}\rho_{13} \\ -i\omega_{12}\rho_{21} & 0 & i\omega_{23}\rho_{23} \\ -i\omega_{13}\rho_{31} & -i\omega_{23}\rho_{32} & 0 \end{pmatrix}. \quad (\text{A.6})$$

Para o segundo termo do lado direito de (A.4), temos

$$\hat{H}_{int} \hat{\rho} = \begin{pmatrix} V_{12}\rho_{21} & V_{12}\rho_{22} & V_{12}\rho_{23} \\ V_{12}^*\rho_{11} + V_{23}\rho_{31} & V_{12}^*\rho_{12} + V_{23}\rho_{32} & V_{12}^*\rho_{13} + V_{23}\rho_{33} \\ V_{23}^*\rho_{21} & V_{23}^*\rho_{22} & V_{23}^*\rho_{23} \end{pmatrix}$$

e

$$\hat{\rho} \hat{H}_{int} = \begin{pmatrix} V_{12}^*\rho_{12} & V_{12}\rho_{11} + V_{23}^*\rho_{13} & V_{23}\rho_{12} \\ V_{12}^*\rho_{22} & V_{12}\rho_{21} + V_{23}^*\rho_{23} & V_{23}\rho_{22} \\ V_{12}^*\rho_{32} & V_{12}\rho_{31} + V_{23}^*\rho_{33} & V_{23}\rho_{32} \end{pmatrix}.$$

Segue que, definindo  $w_{21} = \rho_{22} - \rho_{11}$  e  $w_{32} = \rho_{33} - \rho_{22}$ ,

$$[H_{int}, \rho] = \begin{pmatrix} V_{12}\rho_{21} - V_{12}^*\rho_{12} & V_{12}w_{21} - V_{23}^*\rho_{13} & V_{12}\rho_{23} - V_{23}\rho_{12} \\ -V_{12}^*w_{21} + V_{23}\rho_{31} & (V_{12}^*\rho_{12} - V_{12}\rho_{21}) + (V_{23}\rho_{32} - V_{23}^*\rho_{23}) & V_{12}^*\rho_{13} + V_{23}w_{32} \\ V_{23}^*\rho_{21} - V_{12}^*\rho_{32} & -V_{23}^*w_{32} - V_{12}\rho_{31} & V_{23}^*\rho_{23} - V_{23}\rho_{32} \end{pmatrix}$$

ou ainda

$$-\frac{i}{\hbar} [H_{int}, \rho] = \begin{pmatrix} \tilde{V}_{12}^*\rho_{12} + \text{c.c.} & \tilde{V}_{12}w_{21} + \tilde{V}_{23}^*\rho_{13} & \tilde{V}_{12}\rho_{23} - \tilde{V}_{23}\rho_{12} \\ \tilde{V}_{12}^*w_{21} + \tilde{V}_{23}\rho_{31} & (\tilde{V}_{23}^*\rho_{23} + \text{c.c.}) - (\tilde{V}_{12}^*\rho_{12} + \text{c.c.}) & \tilde{V}_{23}w_{32} - \tilde{V}_{12}^*\rho_{13} \\ \tilde{V}_{12}^*\rho_{32} - \tilde{V}_{23}^*\rho_{21} & \tilde{V}_{23}^*w_{32} - \tilde{V}_{12}\rho_{31} & -\tilde{V}_{23}^*\rho_{23} + \text{c.c.} \end{pmatrix}, \quad (\text{A.7})$$

onde  $\tilde{V}_{ij} = -iV_{ij}/\hbar$ .

Substituindo as Eqs. (A.6) e (A.7) em (A.4), obtemos a forma final para as Eqs. de Liouville

$$\frac{\partial \rho_{33}}{\partial t} = -\tilde{V}_{23}^*\rho_{23} + \text{c.c.}, \quad (\text{A.8a})$$

$$\frac{\partial \rho_{22}}{\partial t} = (\tilde{V}_{23}^*\rho_{23} + \text{c.c.}) - (\tilde{V}_{12}^*\rho_{12} + \text{c.c.}), \quad (\text{A.8b})$$

$$\frac{\partial \rho_{23}}{\partial t} = i\omega_{23}\rho_{23} + \tilde{V}_{23}w_{32} - \tilde{V}_{12}^*\rho_{13}, \quad (\text{A.8c})$$

$$\frac{\partial \rho_{12}}{\partial t} = i\omega_{12}\rho_{12} + \tilde{V}_{12}w_{21} + \tilde{V}_{23}^*\rho_{13}, \quad (\text{A.8d})$$

$$\frac{\partial \rho_{13}}{\partial t} = i\omega_{13}\rho_{13} + \tilde{V}_{12}\rho_{23} - \tilde{V}_{23}\rho_{12}. \quad (\text{A.8e})$$

Note que não precisamos escrever as equações para  $\rho_{32}$ ,  $\rho_{21}$  e  $\rho_{31}$ , pois estas são simplesmente o complexo conjugado das equações para  $\rho_{23}$ ,  $\rho_{12}$  e  $\rho_{13}$ , respectivamente. Também não escrevemos a equação para  $\rho_{11}$ , pois esta pode ser obtida diretamente utilizando a condição de normalização  $\rho_{11} + \rho_{22} + \rho_{33} = 1$ .

As equações de Bloch são obtidas a partir das equações de Liouville pela inclusão do termo de relaxação específico de cada elemento da matriz densidade. Utilizando as

definições de  $\tilde{V}_{ij}$ ,  $V_{ij}$  e  $w_{ij}$ , temos então que as equações de Bloch do sistema são

$$\frac{\partial \rho_{33}}{\partial t} = \left( i \frac{\mu_{23} E^*}{\hbar} \rho_{23} + \text{c.c.} \right) - \frac{\rho_{33}}{T_{33}}, \quad (\text{A.9a})$$

$$\frac{\partial \rho_{22}}{\partial t} = \left( i \frac{\mu_{12} E^*}{\hbar} \rho_{12} + \text{c.c.} \right) - \left( i \frac{\mu_{23} E^*}{\hbar} \rho_{23} + \text{c.c.} \right) - \frac{\rho_{22}}{T_{22}} + \frac{\rho_{33}}{T_{33}}, \quad (\text{A.9b})$$

$$\frac{\partial \rho_{23}}{\partial t} = i\omega_{23}\rho_{23} + i \frac{\mu_{23} E}{\hbar} (\rho_{33} - \rho_{22}) + i \frac{\mu_{12} E^*}{\hbar} \rho_{13} - \frac{\rho_{23}}{T_{23}}, \quad (\text{A.9c})$$

$$\frac{\partial \rho_{12}}{\partial t} = i\omega_{12}\rho_{12} + i \frac{\mu_{12} E}{\hbar} (2\rho_{22} + \rho_{33} - 1) - i \frac{\mu_{23} E^*}{\hbar} \rho_{13} - \frac{\rho_{12}}{T_{12}}, \quad (\text{A.9d})$$

$$\frac{\partial \rho_{13}}{\partial t} = i\omega_{13}\rho_{13} + i \frac{\mu_{12} E}{\hbar} \rho_{23} - i \frac{\mu_{23} E}{\hbar} \rho_{12} - \frac{\rho_{13}}{T_{13}}, \quad (\text{A.9e})$$

onde utilizamos novamente a condição de normalização para eliminar  $\rho_{11}$ . O termo  $\rho_{33}/T_{33}$  na Eq. (A.9b) representa a alimentação incoerente da população  $\rho_{22}$  pelo decaimento da população  $\rho_{33}$ .

Na aproximação de onda girante, podemos reescrever as Eqs. (A.9) em termos das envoltórias de variação lenta  $\mathcal{E} = Ee^{-i\omega_L}$ ,  $\sigma_{12} = \rho_{12}e^{-i\omega_L}$ ,  $\sigma_{23} = \rho_{23}e^{-i\omega_L}$  e  $\sigma_{13} = \rho_{13}e^{-2i\omega_L}$ . Estas equações assumem então a forma

$$\frac{\partial \rho_{33}}{\partial t} = \left( i \frac{\mu_{23} \mathcal{E}^*}{\hbar} \sigma_{23} + \text{c.c.} \right) - \frac{\rho_{33}}{T_{33}}, \quad (\text{A.10a})$$

$$\frac{\partial \rho_{22}}{\partial t} = \left( i \frac{\mu_{12} \mathcal{E}^*}{\hbar} \sigma_{12} + \text{c.c.} \right) - \left( i \frac{\mu_{23} \mathcal{E}^*}{\hbar} \sigma_{23} + \text{c.c.} \right) - \frac{\rho_{22}}{T_{22}} + \frac{\rho_{33}}{T_{33}}, \quad (\text{A.10b})$$

$$\frac{\partial \sigma_{23}}{\partial t} = i\delta_{23}\sigma_{23} + i \frac{\mu_{23} \mathcal{E}}{\hbar} (\rho_{33} - \rho_{22}) + i \frac{\mu_{12} \mathcal{E}^*}{\hbar} \sigma_{13} - \frac{\sigma_{23}}{T_{23}}, \quad (\text{A.10c})$$

$$\frac{\partial \sigma_{12}}{\partial t} = i\delta_{12}\sigma_{12} + i \frac{\mu_{12} \mathcal{E}}{\hbar} (2\rho_{22} + \rho_{33} - 1) - i \frac{\mu_{23} \mathcal{E}^*}{\hbar} \sigma_{13} - \frac{\sigma_{12}}{T_{12}}, \quad (\text{A.10d})$$

$$\frac{\partial \sigma_{13}}{\partial t} = i\delta_{13}\sigma_{13} + i \frac{\mu_{12} \mathcal{E}}{\hbar} \sigma_{23} - i \frac{\mu_{23} \mathcal{E}}{\hbar} \sigma_{12} - \frac{\sigma_{13}}{T_{13}}, \quad (\text{A.10e})$$

que são as Eqs. (4.1) utilizadas como ponto de partida do Cap. 4.

# Apêndice B

## Relações úteis

No que segue, daremos a dedução de várias relações úteis para o cálculo dos diversos  $s_{ij}(t)$ . Todos os passos dessas deduções empregam apenas integrações por partes. No entanto, não faremos explicitamente nenhuma dessas integrações. Recomendamos que o leitor escreva na forma de integrais uma das expressões mais simples, e a deduza uma vez para se familiarizar com o uso dos operadores  $\hat{A}(t, t')$  e  $\hat{B}(t, t')$  para realizar integrações por partes. A vantagem de introduzir uma notação baseada nesses operadores é justamente facilitar a visualização dessas integrações. Finalmente, note ainda que a aplicação de um desses operadores a um número constante transforma o operador numa integral usual.

$$\hat{B}(t, t')\hat{B}^*(t', t'') + \hat{B}^*(t, t')\hat{B}(t', t'') = \hat{B}(t, t')\hat{B}^*(t, t'') = |\hat{B}(t, t')|^2 \quad (\text{B.1})$$

$$\hat{A}(t, t')\hat{A}^*(t', t'') + \hat{A}^*(t, t')\hat{A}(t', t'') = \hat{A}(t, t')\hat{A}^*(t, t'') = |\hat{A}(t, t')|^2 \quad (\text{B.2})$$

$$\hat{B}(t, t')\hat{B}(t', t'') = \frac{1}{2}|\hat{B}(t, t')|^2 \quad (\text{B.3})$$

$$\hat{A}(t, t')\hat{A}(t', t'') = \frac{1}{2}|\hat{A}(t, t')|^2 \quad (\text{B.4})$$

$$\hat{A}^*(t, t')\hat{B}(t', t'') + \hat{B}(t, t')\hat{A}^*(t', t'') = \hat{A}^*(t, t')\hat{B}(t, t'') \quad (\text{B.5})$$

$$\hat{A}^*(t, t')\hat{B}^*(t', t'') + \hat{B}^*(t, t')\hat{A}^*(t', t'') = \hat{A}^*(t, t')\hat{B}^*(t, t'') \quad (\text{B.6})$$

$$\begin{aligned} \hat{A}^*(t, t')\hat{B}(t', t'')\hat{A}(t'', t''') &= \hat{A}^*(t, t')\hat{B}(t, t'')\hat{A}(t'', t''') - \hat{B}(t, t')\hat{A}^*(t', t'')\hat{A}(t', t''') \\ &= \hat{A}^*(t, t')\hat{B}(t, t'')\hat{A}(t'', t''') - \hat{B}(t, t')|\hat{A}(t', t'')|^2 \end{aligned} \quad (\text{B.7})$$

$$\begin{aligned} &\hat{B}^*(t, t')\hat{A}^*(t', t'')\hat{B}(t'', t''') + \hat{B}^*(t, t')\hat{B}(t', t'')\hat{A}^*(t'', t''') + \hat{B}(t, t')\hat{B}^*(t', t'')\hat{A}^*(t'', t''') \\ &= \hat{B}^*(t, t') \left[ \hat{A}^*(t', t'')\hat{B}(t'', t''') + \hat{B}(t', t'')\hat{A}^*(t'', t''') \right] \\ &\quad + \hat{B}(t, t')\hat{B}^*(t, t'')\hat{A}^*(t'', t''') - \hat{B}^*(t, t')\hat{B}(t', t'')\hat{A}^*(t', t''') \\ &= \hat{B}^*(t, t')\hat{B}(t', t'')\hat{A}^*(t', t''') + \hat{B}(t, t')\hat{B}^*(t, t'')\hat{A}^*(t'', t''') - \hat{B}^*(t, t')\hat{B}(t', t'')\hat{A}^*(t', t''') \\ &= \hat{B}(t, t')\hat{B}^*(t, t'')\hat{A}^*(t'', t''') \end{aligned} \quad (\text{B.8})$$

$$\begin{aligned} &\hat{B}^*(t, t')\hat{B}(t', t'')\hat{A}^*(t'', t''')\hat{A}(t''', t''''') + \hat{B}^*(t, t')\hat{B}(t', t'')\hat{A}(t'', t''')\hat{A}^*(t''', t''''') \\ &+ \hat{B}(t, t')\hat{B}^*(t', t'')\hat{A}^*(t'', t''')\hat{A}(t''', t''''') + \hat{B}(t, t')\hat{B}^*(t', t'')\hat{A}(t'', t''')\hat{A}^*(t''', t''''') \\ &+ \hat{B}^*(t, t')\hat{A}^*(t', t'')\hat{B}(t'', t''')\hat{A}(t''', t''''') + \hat{B}(t, t')\hat{A}(t', t'')\hat{B}^*(t'', t''')\hat{A}^*(t''', t''''') \\ &= \hat{B}^*(t, t')\hat{B}(t', t'') \left[ \hat{A}^*(t'', t''')\hat{A}(t''', t''''') + \hat{A}(t'', t''')\hat{A}^*(t''', t''''') \right] \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& +\hat{B}(t, t')\hat{B}^*(t', t'') \left[ \hat{A}^*(t'', t''')\hat{A}(t''', t''''') + \hat{A}(t'', t''')\hat{A}^*(t''', t''''') \right] \\
& +\hat{B}^*(t, t')\hat{A}^*(t', t'')\hat{B}(t'', t''')\hat{A}(t''', t''''') + \hat{B}(t, t')\hat{A}(t', t'')\hat{B}^*(t'', t''')\hat{A}^*(t''', t''''') \\
= & \hat{B}^*(t, t')\hat{B}(t', t'')\hat{A}^*(t'', t''')\hat{A}(t''', t''''') + \hat{B}(t, t')\hat{B}^*(t', t'')\hat{A}^*(t'', t''')\hat{A}(t''', t''''') \\
& +\hat{B}^*(t, t')\hat{A}^*(t', t'')\hat{B}(t'', t''')\hat{A}(t''', t''''') - \hat{B}^*(t, t')\hat{B}(t', t'')\hat{A}^*(t'', t''')\hat{A}(t''', t''''') \\
& +\hat{B}(t, t')\hat{A}(t', t'')\hat{B}^*(t'', t''')\hat{A}^*(t''', t''''') - \hat{B}(t, t')\hat{B}^*(t', t'')\hat{A}^*(t'', t''')\hat{A}(t''', t''''') \\
= & \hat{B}^*(t, t')\hat{A}^*(t', t'')\hat{B}(t'', t''')\hat{A}(t''', t''''') + \hat{B}(t, t')\hat{A}(t', t'')\hat{B}^*(t'', t''')\hat{A}^*(t''', t''''') \\
= & |\hat{B}(t, t')\hat{A}(t', t'')|^2 \tag{B.9}
\end{aligned}$$



# Bibliografia

- [1] A. H. Zewail. *Femtochemistry: Ultrafast dynamics of the chemical bond*. World Scientific, Singapore, 1994.
- [2] H. Rabitz, R. Vivie-Riedle, M. Motzkus, e K. Kompa. Whither the future of controlling quantum phenomena? *Science*, 288:824–828, 2000.
- [3] S. A. Rice. Optical control of reactions. *Nature*, 403:496–497, 2000.
- [4] J. L. Herek, W. Wohlleben, R. J. Cogdell, D. Zeldler, e M. Motzkus. Quantum control of energy flow in light harvesting. *Nature*, 417:533–535, 2002.
- [5] B. J. Pearson, J. L. White, T. C. Weinacht, e P. H. Bucksbaum. Coherent control using adaptive learning algorithms. *Phys. Rev. A*, 63(6):063412, 2001.
- [6] Th. Udem, R. Holzwarth, e T. W. Hänsch. Optical frequency metrology. *Nature*, 416:233–237, 2002.
- [7] J. Reichert, R. Holzwarth, Th. Udem, e T. W. Hänsch. Measuring the frequency of light with mode-locked lasers. *Opt. Commun.*, 172:59–68, 1999.
- [8] S. A. Diddams, D. J. Jones, J. Ye, S. T. Cundiff, J. L. Hall, J. K. Ranka, R. S. Windeler, R. Holzwarth, Th. Udem, e T. W. Hänsch. Direct link between microwave and optical frequencies with a 300 THz femtosecond laser comb. *Phys. Rev. Lett.*, 84(22):5102–5105, 2000.

- [9] J. von Zanthier, J. Abel, Th. Becker, M. Fries, E. Peik, H. Walther, R. Holzwarth, J. Reichert, Th. Udem, T. W. Hänsch, A. Yu. Nevsky, M. N. Skvortsov, e S. N. Bagayev. Absolute frequency measurement of the  $^{115}\text{In}^+ 5s^2 1S_0-5s5p 3P_0$  transition. *Opt. Commun.*, 166:57–63, 1999.
- [10] J. Reichert, M. Niering, R. Holzwarth, M. Weitz, Th. Udem, e T. W. Hänsch. Phase coherent vacuum-ultraviolet to radio frequency comparison with a mode-locked laser. *Phys. Rev. Lett.*, 84(15):3232–3235, 2000.
- [11] M. Niering, R. Holzwarth, J. Reichert, P. Pokasov, Th. Udem, M. Weitz, T. W. Hänsch, P. Lemonde, G. Santarelli, M. Abgrall, P. Laurent, C. Salomon, e A. Clairon. Measurement of the hydrogen  $1S - 2S$  transition frequency by phase coherent comparison with a microwave cesium fountain clock. *Phys. Rev. Lett.*, 84(24):5496, 2000.
- [12] Th. Udem, S. A. Diddams, K. R. Vogel, C. W. Oates, E. A. Curtis, W. D. Lee, W. M. Itano, R. E. Drullinger, J. C. Bergquist, e L. Hollberg. Absolute frequency measurements of the  $\text{Hg}^+$  and Ca optical clock transitions with a femtosecond laser. *Phys. Rev. Lett.*, 86(22):4996–4999, 2001.
- [13] S. A. Diddams, Th. Udem, J. C. Bergquist, E. A. Curtis, R. E. Drullinger, L. Hollberg, W. M. Itano, W. D. Lee, C. W. Oates, K. R. Vogel, e D. J. Wineland. An optical clock based on a single trapped  $^{199}\text{Hg}^+$ . *Science*, 293(5531):825–828, 2001.
- [14] T. Udem, J. Reichert, T. W. Hänsch, e M. Kourogi. Absolute optical frequency measurement of the cesium  $D_2$  line. *Phys. Rev. A*, 62(3):031801, 2000.
- [15] A. Yu. Nevsky, R. Holzwarth, J. Reichert, Th. Udem, T. W. Hänsch, J. von Zanthier, H. Walther, H. Schnatz, F. Riehle, P. V. Pokasov, M. N. Skvortsov, e S. N. Bagayev.

- Frequency comparison and absolute frequency measurement of I<sub>2</sub>-stabilized lasers at 532 nm. *Opt. Commun.*, 192:263–272, 2001.
- [16] T. H. Yoon, A. Marian, J. L. Hall, e J. Ye. Phase-coherent multilevel two-photon transitions in cold Rb atoms: Ultrahigh-resolution spectroscopy via frequency-stabilized femtosecond laser. *Phys. Rev. A*, 63(1):011402, 2000.
- [17] D. Meshulach e Y. Silberberg. Coherent quantum control of two-photon transitions by a femtosecond laser pulse. *Nature*, 396:239–242, 1998.
- [18] V. Blanchet, C. Nicole, M. A. Bouchene, e B. Girard. Temporal coherent control in two-photon transitions: From optical interferences to quantum interferences. *Phys. Rev. Lett.*, 78(14):2716–2719, 1997.
- [19] M. A. Bouchene, V. Blanchet, C. Nicole, N. Melikechi, B. Girard, H. Ruppe, S. Rutz, E. Schreiber, e L. Wöste. Temporal coherent control induced by wave packet interferences in one and two photon transitions. *Eur. Phys. J. D*, 2:131–141, 1998.
- [20] N. F. Scherer, R. J. Carlson, A. Matro, M. Du, A. J. Ruggiero, V. Romero-Rochin, J. A. Cina, G. R. Fleming, e S. A. Rice. Fluorescence-detected wave packet interferometry: Time resolved molecular spectroscopy with sequences of femtosecond phase-locked pulses. *J. Chem. Phys.*, 95(3):1487–1511, 1991.
- [21] V. Blanchet, M. A. Bouchene, O. Cabrol, e B. Girard. One-color coherent control in Cs<sub>2</sub>: Observation of 2.7 fs beats in the ionization signal. *Chem. Phys. Lett.*, 233:491–499, 1995.
- [22] V. Blanchet, M. A. Bouchene, e B. Girard. Temporal coherent control in the photoionization of Cs<sub>2</sub>: Theory and experiment. *J. Chem. Phys.*, 108(12):4862–4876, 1998.

- [23] A. P. Heberle, J. J. Baumberg, e K. Köhler. Ultrafast coherent control and destruction of excitons in quantum wells. *Phys. Rev. Lett.*, 75(13):2598–2601, 1995.
- [24] D. S. Citrin e T. B. Norris. Constraints on coherent control of quantum-well excitons for high-speed all-optical switching. *IEEE J. Quantum Electron.*, 33(3):404–407, 1997.
- [25] V. Engel e H. Metiu. Two-photon wave-packet interferometry. *J. Chem. Phys.*, 100(8):5448–5458, 1994.
- [26] N. Garro, S. P. Kennedy, A. P. Heberle, e R. T. Phillips. Coherent control of two-photon transitions. *Phys. Stat. Sol. B*, 221:385–389, 2000.
- [27] R. Teets, J. N. Eckstein, e T. W. Hänsch. Coherent two-photon excitation by multiple light pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 38(14):760–764, 1977.
- [28] J. N. Eckstein, A. I. Ferguson, e T. W. Hänsch. High-resolution two-photon spectroscopy with picosecond light pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 40(13):847–850, 1978.
- [29] A. I. Ferguson, J. N. Eckstein, e T. W. Hänsch. Polarization spectroscopy with ultrashort light pulses. *Appl. Phys.*, 18:257–260, 1979.
- [30] B. Couillaud, A. Ducasse, L. Sarger, e D. Boscher. High-resolution saturated absorption spectroscopy with coherent trains of short light pulses. *Appl. Phys. Lett.*, 36(6):407–409, 1980.
- [31] E. Krüger. Absorption spectra of pulse-train-excited sodium two-level atoms. *J. Opt. Soc. Am. B*, 12(1):15–24, 1995.
- [32] M. J. Snadden, A. S. Bell, E. Riis, e A. I. Ferguson. Two-photon spectroscopy of laser-cooled rb using a mode-locked laser. *Opt. Commun.*, 125:70–76, 1996.

- [33] J. Mlynek, W. Lange, H. Harde, e H. Burggraf. High-resolution coherence spectroscopy using pulse trains. *Phys. Rev. A*, 24(2):1099–1102, 1981.
- [34] Y. Fukuda, J. Hayashi, K. Kondo, e T. Hashi. Synchronized quantum beat spectroscopy using periodic impact excitations with cw mode-locked laser pulses. *Opt. Commun.*, 38(5,6):357–360, 1981.
- [35] J. M. Kikkawa e D. D. Awschalom. Resonant spin amplification in n-Type GaAs. *Phys. Rev. Lett.*, 80(19):4313–4316, 1998.
- [36] H. Y. Carr. Steady-state free precession in nuclear magnetic resonance. *Phys. Rev.*, 112(5):1693–1701, 1958.
- [37] R. B. V. Azeredo, L. A. Colnago, e M. Engelsberg. Quantitative analysis using steady-state free precession nuclear magnetic resonance. *Anal. Chem.*, 72(11):2401–2405, 2000.
- [38] L. Xu, Ch. Spielmann, A. Poppe, T. Brabec, F. Krausz, e T. W. Hänsch. Route to phase control of ultrashort light pulses. *Opt. Lett.*, 21(24):2008–2010, 1996.
- [39] P. W. Milonni e L. E. Thode. Theory of mesospheric sodium fluorescence excited by pulse trains. *Appl. Opt.*, 31(6):785–800, 1992.
- [40] Lee C. Bradley. Pulse-train excitation of sodium for use as a synthetic beacon. *J. Opt. Soc. Am. B*, 9(10):1931–1944, 1992.
- [41] A. Gavrielides e P. Peterson. Periodic response of the Bloch equations to a pulse train; an application to mesospheric sodium. *Opt. Commun.*, 104(1,2,3):46–52, 1993.
- [42] E. Krüger. Excitation of two-level atoms in mode-locked laser fields. *Z. Phys. D*, 31(1-2):13–25, 1994.

- [43] R. J. Temkin. Excitation of an atom by a train of short pulses. *J. Opt. Soc. Am. B*, 10(5):830–839, 1993.
- [44] M. D. Crisp. Propagation of small-area pulses of coherent light through a resonant medium. *Phys. Rev. A*, 1(6):1604–1611, 1970.
- [45] J. E. Rothenberg, D. Grischkowsky, e A. C. Balant. Observation of the formation of the  $0\pi$  pulse. *Phys. Rev. Lett.*, 53(6):552–555, 1984.
- [46] D. Felinto, L. H. Acioli, e S. S. Vianna. Temporal coherent control of a sequential transition in rubidium atoms. *Opt. Lett.*, 25(12):917–919, 2000.
- [47] D. Felinto, C. A. C. Bosco, L. H. Acioli, e S. S. Vianna. Accumulative effects in temporal coherent control. *Phys. Rev. A*, 64(6):063413, 2001.
- [48] M. M. Salour. Quantum interference effects in two-photon spectroscopy. *Rev. Mod. Phys.*, 50(3):667–681, 1978.
- [49] J. J. Sakurai. *Modern Quantum Mechanics*. Addison-Wesley, 1995.
- [50] A. V. Smith e J. F. Ward. Doubly resonant four-photon interactions in cesium vapor. *IEEE J. Quantum Electron.*, 17(4):525–529, 1981.
- [51] M. S. Malcuit, D. J. Gauthier, e R. W. Boyd. Suppression of amplified spontaneous emission by the four-wave mixing process. *Phys. Rev. Lett.*, 55(10):1086–1089, 1985.
- [52] S. L. McCall e E. L. Hahn. Self-induced transparency by pulsed coherent light. *Phys. Rev. Lett.*, 18(21):908–911, 1967.
- [53] L. Allen e J. H. Eberly. *Optical Resonance and Two-Level Atoms*. Dover, 1987.
- [54] U. Kallmann, S. Brattke, e W. Hartmann. Propagation of resonant  $0\pi$  pulses in rubidium. *Phys. Rev. A*, 59(1):814–818, 1999.

- [55] N. Dudovich, D. Oron, e Y. Silberberg. Coherent transient enhancement of optically induced resonant transitions. *Phys. Rev. Lett.*, 88(12):123004, 2002.
- [56] O. S. Heavens. Radiative transition probabilities of the lower excited states of the alkali metals. *J. Opt. Soc. Am.*, 51(10):1058–1061, 1961.
- [57] W. H. Hesselink e D. A. Wiersma. Picosecond photon echoes stimulated from an accumulated grating. *Phys. Rev. Lett.*, 43(27):1991–1994, 1979.
- [58] Y. Silberberg, V. L. da Silva, J. P. Heritage, E. W. Chase, e M. J. Andrejco. Accumulated photon echoes in doped fibers. *IEEE J. Quantum Electron.*, 28(10):2369–2381, 1992.
- [59] Hermann Eicher. Third-order susceptibility of alkali metal vapors. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, QE-11(4):121–130, 1975.
- [60] M. A. Newbold e G. J. Salamo. Effects of relaxation on coherent continuous-pulse-train propagation. *Phys. Rev. Lett.*, 42(14):887–890, 1979.
- [61] M. A. Newbold e G. J. Salamo. Power spectrum of light scattered by a two-level atom in the presence of a pulse-train driving field. *Phys. Rev. A*, 22(5):2098–2107, 1980.
- [62] R. Loudon. *The Quantum Theory of Light*. Oxford University Press, 1995.
- [63] S. Mukamel. *Principles of Nonlinear Optical Spectroscopy*. Oxford University Press, 1995.
- [64] A. Yariv. *Quantum Electronics*. John Wiley & Sons, 1989.
- [65] F. Krausz, M. E. Fermann, T. Brabec, P. F. Curley, M. Hofer, M. H. Ober, C. Spielmann, E. Wintner, e A. J. Schmidt. Femtosecond solid-state lasers. *IEEE J. Quantum Electron.*, 28(10):2097–2122, 1992.

- [66] W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, e B. P. Flannery. *Numerical Recipes in C: The Art of Scientific Computing*. Cambridge University Press, 1999.
- [67] K. B. MacAdam, A. Steinbach, e C. Wieman. A narrow-band tunable diode laser system with grating feedback, and a saturated absorption spectrometer for Cs and Rb. *Am. J. Phys.*, 60(12):1098–1111, 1992.
- [68] G. P. Agrawal. *Nonlinear Fiber Optics*. Academic Press, 1989.
- [69] J.-C. Diels e W. Rudolph. *Ultrashort Laser Pulse Phenomena*. Academic Press, 1996.