



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

## **DISSERTAÇÃO DE MESTRADO**

**ACOPLAMENTO DE DOIS FEIXES COM LASERS DE FEMTOSSEGUNDOS EM  
VAPOR DE Rb**

por

**Bruno Gomes da Costa**

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

### **Banca Examinadora:**

Prof. Prof. Lúcio Hora Acioli (Orientador-UFPE)  
Profª. Sandra S. Vianna (Co-orientadora - DF - UFPE)  
Prof. Prof. José W Rocha Tabosa (DF - UFPE)  
Prof. Ricardo Rego Bordalo Correia (DF – UFRGS)

Recife - PE, Brasil  
Outubro – 2007

Costa, Bruno Gomes da

Acoplamento de dois feixes em vapor de Rb usando lasers de femtossegundos / Bruno Gomes da Costa. - Recife : O autor, 2007.

vi, 82 folhas : il., fig., tab.

Dissertação (mestrado) - Universidade Federal de Pernambuco. CCEN. Depto. de Física, 2007.

Inclui bibliografia e apêndices.

1. Óptica não-linear. 2. Física atômica. 3. Acoplamento de dois feixes. 4. Lasers de femtossegundos. 5. Propagação linear de pulsos curtos. I. Título.

535.2

CDD (22.ed.)

FQ2007-0033



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

---

## Parecer da Banca Examinadora de Defesa de Dissertação de Mestrado

---

**Bruno Gomes da Costa**

### ACOPLAMENTO DE DOIS FEIXES COM LASERS DE FEMTOSSEGUNDOS EM VAPOR DE Rb

A Banca Examinadora composta pelos Professores Lúcio Hora Acioli (Presidente e Orientador), Sandra S. Vianna (Co-orientadora), José W. Rocha Tabosa, todos da Universidade Federal de Pernambuco e Ricardo Rego Bordalo Correia, do Departamento de Física da Universidade Federal do Rio Grande do Sul, consideram o candidato:

☒ Aprovado

☐ Reprovado

Secretaria do Programa de Pós-Graduação em Física do Departamento de Física do Centro de Ciências Exatas e da Natureza da Universidade Federal de Pernambuco em quinze de outubro de 2007.

Prof. Lúcio Hora Acioli  
Presidente e Orientador

Prof.<sup>a</sup> Sandra S. Vianna  
Co-orientadora

Prof. José W Rocha Tabosa

Prof. Ricardo Rego Bordalo Correia

# Agradecimentos

Agradeço primeiramente a Deus, por ter me dado forças nos momentos mais difíceis para que este trabalho pudesse ser realizado.

Agradeço especialmente ao professor Lúcio Acioli pela grande paciência e dedicação para a realização deste projeto. Aos professores Sandra Vianna e Daniel Felinto agradeço o apoio e participação importantíssima.

Agradeço a Carlos Bosco não apenas pelo seu apoio no laboratório e sua experiência sobre física, mas pelas conversas humoradas e motivadoras. Agradeço também a Douglas Lacerda por sua ajuda, durante muitas horas de trabalho e finais de semanas ensolarados, na realização das simulações computacionais.

Aos amigos do departamento: Hallisson, Gilberto, Jehan, Rodolfo, Plínio, André e Fábio Oikawa que me acompanharam tanto nos momentos difíceis e noites em claro, como nas boas horas de lazer. Agradeço também aos colegas de laboratório José Ferraz, Bruno Beckmann, Cláudio e Fábio.

Agradeço ao CNPq pelo financiamento dos meus estudos no Departamento de Física da UFPE.

**Aos meus pais,  
Benonil e Maria do Carmo,  
meu irmão, Breno,  
que tanto os amo.**

# Resumo

Lasers de femtosegundos operando no regime de travamento de modos têm sua taxa de repetição determinada pelo tempo de ciclo do pulso na cavidade laser ( $T_R = 2L/c$ ). A taxa de repetição de lasers de Ti:safira é tipicamente da ordem de 100 MHz, com  $T_R \approx 10$  ns. Com isto  $T_R$  pode ser menor que os tempos de relaxação da população ( $T_1$ ) e coerência ( $T_2$ ) em meios atômicos, que podem ser da ordem de várias dezenas de nanosegundos, no Rb, por exemplo. O resultado é que a interação de um pulso com o meio atômico ocorre antes que a modificação produzida no sistema pelo pulso anterior tenha decaído completamente, o que produz efeitos interessantes.

Neste trabalho, serão apresentados resultados teóricos e experimentais do acoplamento de dois feixes (two-beam coupling) em vapor de Rb, onde são estudadas modificações do sinal detectado na direção do feixe de sonda, após o acoplamento deste com o feixe de bombeio. O experimento é realizado em uma célula contendo átomos de Rb em densidades que variam entre  $10^{12}$  a  $10^{14}$  átomos/cm<sup>3</sup>. No nosso experimento focamos duas transições distintas: 5S–5P<sub>1/2</sub> e 5S–5P<sub>3/2</sub>–5D, onde a primeira corresponde a uma transição de um fóton e a segunda envolve uma transição de dois fótons.

No estudo da transição 5S–5P<sub>3/2</sub>–5D, o efeito de acumulação da população em um sistema de três níveis produz batimentos de 2,11 THz nos sinais de experimentos de fluorescência e two-beam coupling e que são observados em nossos resultados experimentais; além dos efeitos de propagação linear que produzem oscilações do sinal na escala de picosegundos. Também estudamos a transição 5S–5P<sub>1/2</sub>, que é mais simples de analisar, pois os batimentos em 2,11 THz não estão presentes.

Simulações numéricas foram realizadas baseadas em uma teoria de perturbação de terceira ordem para o sistema de dois níveis, levando em conta os efeitos de propagação linear dos pulsos até a região de interação dos dois feixes, mas sem considerar a acumulação. Através desta teoria é possível explicar e compreender melhor algumas das características essenciais presentes nos resultados experimentais.

Palavras-chaves: 1. Óptica não-linear. 2. Física atômica. 3. Acoplamento de dois feixes.  
4. Lasers de femtossegundos. 5. Propagação linear de pulsos curtos.

# Abstract

Femtosecond lasers operating in the mode-locked regime have a repetition rate determined by the round trip time of the pulse inside the laser cavity ( $T_R = 2L/c$ ). For Ti:sapphire lasers the repetition rate is typically of the order of 100 MHz, with  $T_R \approx 10$  ns. Under this condition  $T_R$  may be smaller than the population relaxation time ( $T_1$ ) and the coherence relaxation time ( $T_2$ ) in atomic systems, which may be of the order of several tens of nanoseconds in Rb, for example. The result is that the interaction of a pulse with an atom happens before the modification produced in the system by the previous pulse has completely decayed, resulting in new interesting effects.

In this work we present theoretical and experimental results of two-beam coupling in Rb vapor, where the modifications produced in a probe beam by its coupling with a pump beam. The experiment is made in a cell containing Rb atoms with densities which vary between  $10^{12}$  and  $10^{14}$  atoms/cm<sup>3</sup>. In our experiments we have focused in two distinct atomic transitions:  $5S-5P_{1/2}$  e  $5S-5P_{3/2}-5D$ , the first corresponding to a one-photon transition while the second involves a two-photon transition.

For the  $5S-5P_{3/2}-5D$  transition, the effect of population accumulation in a three level system produces 2.11 THz beatings in the signals for fluorescence and two-beam coupling, as observed in the experimental results. Linear propagation effects are also observed, and produce beatings in the observed signals on a picosecond time scale. We also study the  $5S-5P_{1/2}$  transition, which is simpler to analyze because the 2.11 THz beating is not present.

Numerical simulations were performed based on third order perturbation theory for a two-level system, including linear propagation of the pulses until the interaction region of the two beams, without considering accumulation. Through this theory it is possible to explain and understand better some of the essential characteristics present in the experimental results.

Keywords: 1. Nonlinear Optics. 2. Atomic Physics. 3. Two-beam coupling.  
4. Femtosecond lasers. 5. Propagation linear of short pulses.

# Índice

|                                                                                            |                                      |
|--------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------|
| <b>INTRODUÇÃO:</b> .....                                                                   | 1                                    |
| <b>CAPÍTULO 1: GERAÇÃO DE PULSOS ULTRA-CURTOS</b> .....                                    | 3                                    |
| 1.1 Duração de pulsos e largura espectral.....                                             | 4                                    |
| 1.2 Medição de um pulso ultra-curto.....                                                   | 5                                    |
| 1.3 Acoplamento de modos .....                                                             | 8                                    |
| 1.4 O Laser de Titânio-Safira ( $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ ).....                          | 11                                   |
| 1.4.1 Meio de ganho .....                                                                  | 11                                   |
| 1.4.2 Não-linearidade do índice de refração. Automodulação de fase e autofocalização. .... | 12                                   |
| 1.4.3 Velocidade de grupo e dispersão .....                                                | 15                                   |
| 1.4.4 Distorção de fase.....                                                               | 15                                   |
| 1.4.5 Dispersão da velocidade de grupo na cavidade do laser. ....                          | 18                                   |
| 1.4.6 A cavidade.....                                                                      | 19                                   |
| <b>CAPÍTULO 2: ACOPLAMENTO DE PULSOS ULTRACURTOS EM VAPOR ATÔMICO</b> .....                | <b>ERRO! INDICADOR NÃO DEFINIDO.</b> |
| 2.1 Propagação de pulsos em meios materiais .....                                          | 22                                   |
| 2.2 Polarização não-linear .....                                                           | 25                                   |
| 2.3 Descrição do processo de mistura de ondas .....                                        | 26                                   |
| 2.4 Acoplamento de dois feixes com um laser contínuo (CW) .....                            | 27                                   |
| 2.5 Interação Átomo – Campo.....                                                           | 29                                   |
| 2.5.1 Matriz Densidade .....                                                               | 29                                   |
| 2.5.2 Equações de Bloch para interação átomo – campo.....                                  | 30                                   |
| 2.6 Cálculo da polarização não-linear de 3ª. ordem.....                                    | 34                                   |
| 2.7 Variação da energia transmitida.....                                                   | 37                                   |
| 2.8 Propagação de um pulso curto .....                                                     | 40                                   |

|                                                                                                      |           |
|------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| <b>CAPÍTULO 3: ACOPLAMENTO DE DOIS FEIXES EM VAPOR DE RUBÍDIO:<br/>RESULTADOS EXPERIMENTAIS.....</b> | <b>51</b> |
| 3.1 – Descrição dos experimentos .....                                                               | 51        |
| 3.2 – Resultados envolvendo a transição de dois fótons .....                                         | 55        |
| 3.3 – Análise teórica de uma transição de dois fótons sem ressonância intermediária .....            | 61        |
| <b>CAPÍTULO 4: CONCLUSÕES E PERSPECTIVAS.....</b>                                                    | <b>73</b> |
| <b>APÊNDICE A.....</b>                                                                               | <b>76</b> |
| <b>APÊNDICE B.....</b>                                                                               | <b>77</b> |
| <b>BIBLIOGRAFIA.....</b>                                                                             | <b>80</b> |

# Lista de Figuras

**Figura 1.1:** Autocorrelacionador por geração de segundo harmônico em configuração não-colinear. (Pág. 6)

**Figura 1.2:** (a) Perfil de intensidade e (b) a função da autocorrelação para pulsos secante hiperbólica e gaussiano de mesma duração  $T_p$ . (Pág. 7)

**Figura 1.3:** Esquema das duas formas básicas de acoplamento de modos [4]. (Pág. 8)

**Figura 1.4:** Esquema dos modos da cavidade vazia, largura de ganho do laser, e dos modos de oscilação laser resultante limitado pela largura  $\Delta\nu_g$ , onde.  $\Delta\nu_g = \Delta\omega_g/2\pi$  e  $\Delta\nu_c = \Delta\omega_c/2\pi$ . (Pág. 9)

**Figura 1.5:** Efeito do número de modos acoplados sob a intensidade e duração dos pulsos na saída do laser:  $N = 10$  e  $N = 100$ . Nestes gráficos,  $T_c = 12$  ns (corresponde a uma taxa de repetição de aproximadamente 82 MHz) (Pág. 10)

**Figura 1.6:** Espectro de absorção e emissão do Ti:safira [21]. (Pág. 12)

**Figura 1.7:** Esquema do travamento de modos via autofocalização (*Kerr lens mode-locking*) [15]. (Pág. 14)

**Figura 1.8:** Contribuições dos diferentes termos da expansão da fase adquirida pela propagação do pulso em série de Taylor no atraso de grupo e o efeito sobre o perfil temporal do pulso [15]. (Pág. 18)

**Figura 1.9:** Campo elétrico de um pulso com dispersão da velocidade de grupo (a) positiva (b) e negativa [4]. (Pág. 18)

**Figura 1.10:** Cavidade de um laser de Ti:safira [4]. (Pág. 19)

**Figura 2.1:** Diagrama representando o processo de mistura de ondas. (Pág. 26)

**Figura 2.2:** Diagrama representando o processo de acoplamento de dois feixes no caso de um laser contínuo. (Pág. 27)

**Figura 2.3:** Representação esquemática da interação de um sistema atômico de dois níveis com uma onda eletromagnética monocromática. (Pág. 30)

**Figura 2.4:** Contribuições dos três termos de polarização sobre a variação da energia transmitida  $\Delta U(\tau)$  desconsiderando os efeitos de propagação pelo meio. Os pulsos nessas simulações são secantes hiperbólicas com largura temporal de 180 fs. Consideramos nessas simulações também que  $\gamma_1 = \gamma_2 = 0$  e  $\Delta = 0$ . (Pág. 39)

**Figura 2.5:** Parte real e imaginária da forma de linha, que estão relacionadas com a absorção e a dispersão do pulso, respectivamente. A região entre as linhas tracejadas é uma região de dispersão anômala, e as regiões à esquerda da primeira e à direita da segunda linha correspondem à dispersão normal. **(Pág. 45)**

**Figura 2.6:** Espectro do pulso após a propagação. **(Pág. 46)**

**Figura 2.7:** Atraso de grupo de algumas frequências do espectro de pulso ao se propagar por um meio ressonante com  $\alpha_0 z = 22$  relacionado experimentalmente à temperatura de 102 °C, e densidade de  $5,4 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ . **(Pág. 47)**

**Figura 2.8:** Perfil temporal teórico do pulso propagado por meio de um meio ressonante com  $\alpha_0 z = 22$  (relacionado experimentalmente à temperatura de 102 °C, e densidade de  $5,4 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ ). Na escala linear o efeito da propagação aparenta ser desprezível, mas na escala logarítmica torna-se evidente os efeitos de sobre o perfil temporal do pulso. **(Pág. 48)**

**Figura 2.9** Perfil temporal teórico do pulso propagado por meio de um meio ressonante com  $\alpha_0 z = 81$  (relacionado experimentalmente à temperatura de 122°C, e densidade de  $1,9 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ ). Mais uma vez, na escala linear, temos que o efeito da propagação aparenta ser desprezível, mas na escala logarítmica torna-se evidente os efeitos de sobre o perfil temporal do pulso. **(Pág. 49)**

**Figura 2.10** Perfil temporal teórico do pulso propagado por meio de um meio ressonante com  $\alpha_0 z = 322$  (relacionado experimentalmente à temperatura de 149 °C, e densidade de  $8,0 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ ), para três diferentes larguras temporais. **(Pág. 50)**

**Figura 3.1:** Curva da densidade atômica dos átomos de Rb em função da temperatura. **(Pág. 52)**

**Figura 3.2:** Esquema dos níveis de energia do átomo de Rb. **(Pág. 52)**

**Figura 3.3:** Arranjo experimental para o acoplamento de dois feixes e fluorescência com pulsos temporalmente atrasados. **(Pág. 53)**

**Figura 3.4:** **(a)** Curva experimental da fluorescência em uma temperatura de 69°C, cuja densidade atômica é  $5,1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ , onde estão presentes oscilações na frequência de batimento  $\omega_{32} - \omega_{21}$ . **(b)** Esquema do sistema atômico onde ocorre emissão estimulada e que causa a frequência de batimento **(c)** FFT da curva da fluorescência. **(Pág. 56)**

**Figura 3.5:** **(a)** Curvas experimentais da medida da fluorescência em diferentes temperaturas (densidades). **(b)** Curvas experimentais do acoplamento de dois feixes em diferentes temperaturas (densidades). **(Pág. 57)**

**Figura 3.6:** Curvas experimentais do acoplamento de dois feixes com ressonância sequencial de dois fótons para diferentes comprimentos de propagação dos feixes até atingirem a região de interação. O comprimento de onda do laser estava centrado em  $\lambda = 778 \text{ nm}$ . A temperatura do forno foi mantida a 122 °C, para a qual a densidade atômica é de  $1,9 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ . **(Pág. 58)**

**Figura 3.7:** Curvas experimentais de acoplamento de dois feixes para diferentes comprimentos de onda central do laser. As medidas foram realizadas em uma temperatura de 126°C, onde a densidade atômica é de  $2,3 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ . (Pág. 59)

**Figura 3.8:** Curvas experimentais de acoplamento de dois feixes para diferentes comprimentos de onda e larguras de banda do laser. As medidas foram realizadas em uma temperatura de 129°C, onde a densidade atômica é de  $2,8 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ . (Pág. 60)

**Figura 3.9:** Curvas experimentais de acoplamento de dois feixes ressonante à transição de um fóton para diferentes densidades atômicas (temperaturas). (a)  $5,4 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$  (102 °C), (b)  $1,0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$  (112 °C), (c)  $1,9 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$  (122 °C), (d)  $3,5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$  (133 °C), (e)  $8,0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$  (149 °C). (Pág. 61)

**Figura 3.10:** Acoplamento de dois feixes em uma única varredura onde apenas o feixe de sonda e simultaneamente os feixes de sonda e bombeio foram bloqueados. Por se tratar de uma única varredura, esta curva apresenta um ruído considerável em relação às demais curvas apresentadas neste trabalho. A “depressão” do sinal entre 4 e 8 ps é espúria. (Pág. 62)

**Figura 3.11:** (a) Simulação numérica para o acoplamento de dois feixes ressonantes com transição de um fóton para diferentes coeficientes de absorção  $\alpha_0$  e (b) resultados experimentais para diferentes densidades. As curvas correspondentes às simulações numéricas foram normalizadas para que tivessem a mesma amplitude. (Pág. 63)

**Figura 3.12:** Simulações numéricas do sinal do acoplamento de dois feixes,  $\Delta U$ , e as contribuições dos diferentes termos da polarização,  $\Delta U_1$ ,  $\Delta U_2$ , e  $\Delta U_3$ , para  $\alpha_0 z = 8$  (densidade atômica  $2,0 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ ). (Pág. 64)

**Figura 3.13:** Simulações numéricas do sinal do acoplamento de dois feixes,  $\Delta U$ , e as contribuições dos diferentes termos da polarização,  $\Delta U_1$ ,  $\Delta U_2$ , e  $\Delta U_3$ , para  $\alpha_0 z = 22$  (densidade atômica  $5,4 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ ). (Pág. 64)

**Figura 3.14:** Simulações numéricas do sinal do acoplamento de dois feixes,  $\Delta U$ , e as contribuições dos diferentes termos da polarização,  $\Delta U_1$ ,  $\Delta U_2$ , e  $\Delta U_3$ , para  $\alpha_0 z = 40$  (densidade atômica  $1,0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ ). (Pág. 65)

**Figura 3.15:** Simulações numéricas do sinal do acoplamento de dois feixes,  $\Delta U$ , e as contribuições dos diferentes termos da polarização,  $\Delta U_1$ ,  $\Delta U_2$ , e  $\Delta U_3$ , para  $\alpha_0 z = 80$  (densidade atômica  $2,0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ ). (Pág. 65)

**Figura 3.16:** Simulações numéricas do sinal do acoplamento de dois feixes,  $\Delta U$ , e as contribuições dos diferentes termos da polarização,  $\Delta U_1$ ,  $\Delta U_2$ , e  $\Delta U_3$ , para  $\alpha_0 z = 141$  (densidade atômica  $3,5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ ). (Pág. 66)

**Figura 3.17:** Simulações numéricas para o acoplamento de dois feixes ressonantes com a transição de um fóton, para diferentes durações do pulso. Nesta situação o coeficiente de absorção é  $\alpha_{0z} = 240$ , correspondendo à densidade atômica de  $6,0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ . **(Pág. 67)**

**Figura 3.18:** Simulações numéricas para o acoplamento de dois feixes com ressonância de um fóton, para uma varredura de frequência positiva ( $C = 1,73$ ) e efeitos de propagação desprezíveis:  $\alpha_{0z} \approx 0$ . **(Fig. 68)**

**Figura 3.19:** Simulações numéricas para o perfil temporal do pulso propagando-se em um meio com uma ressonância de um fóton, para o caso de um pulso (i) sem *chirp* ( $C = 0$ ) e (ii) com varredura de frequência positiva ( $C = 1,73$ ), e coeficiente de absorção  $\alpha_{0z} = 180$ , correspondendo à densidade atômica  $4,5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ . **(Fig. 69)**

**Figura 3.20:** Simulações numéricas do acoplamento de dois feixes ressonantes à transição de um fóton para o caso de um pulso com varredura de frequência positiva ( $C = 1,73$ ) e nula. **(Pág. 70)**

**Figura 3.21:** Taxa de energia transferida no acoplamento de dois feixes nos casos (a) bombeio ressonante com a transição de um fóton e (b) bombeio não-ressonante. **(Pág. 71)**

## Introdução

Os primeiros 27 anos do século XX foram marcados na história das ciências naturais pela revolucionária mudança no entendimento de fenômenos que ocorrem na escala atômica, não só pelas limitações da física clássica, mas também pelo desenvolvimento de uma teoria com um largo alcance de aplicabilidade. A partir do postulado de Max Planck em 1900, vários cientistas, tais como Einstein e Compton desenvolveram trabalhos que propuseram modificações no entendimento que se tinha da interação entre luz e matéria, onde a troca de energia ocorria por meio de pacotes de energia denominados de fótons. Durante o primeiro quarto do século passado, cientistas como Heisenberg, Dirac e Schrödinger e outros contribuíram para a formulação da mecânica quântica como conhecida hoje.

A partir de então, estudos de respostas não-lineares que ondas eletromagnéticas causam em meios materiais deram início à óptica não-linear. A óptica não-linear teve origem experimental na descoberta da geração de segundo harmônico por Franken e colaboradores [1] em 1961, logo após a construção do primeiro laser por Theodore Harold Maiman em 1960. O desenvolvimento da óptica não-linear, desde o seu surgimento até os dias atuais, está intimamente ligado ao dos lasers. Tipicamente, apenas campos emitidos por lasers, cuja intensidade é grande se comparada com a dos campos internos dos átomos, torna evidente não-linearidades dos meios. O estudo da óptica não-linear tornou-se mais fácil com o surgimento dos lasers pulsados devido à alta intensidade de pico.

Pulsos ultra-curtos de luz, cuja duração é na ordem de femtossegundos ( $10^{-15}$  s), são utilizados em diversas áreas da física, química e biologia. Lasers deste tipo são utilizados para o estudo em espectroscopia de alta resolução resolvida no tempo [2,3]. Pulsos de femtossegundos também são usados para investigar dinâmica de processos ultra-rápidos [4], controle coerente temporal [5, 6] e estudo de processos de mistura de ondas [7-10]. Na medicina, pulsos de femtossegundos são utilizados em cirurgias para remover tecidos sem afetar térmica ou estruturalmente outros tecidos. Além disso, existe um enorme potencial nas áreas de comunicações, eletrônica de alta velocidade e processamento de sinais.

As interações ópticas não-lineares com uso de pulsos ultra-curtos, tais como acoplamento de dois feixes (*two-beam coupling* – TBC) e mistura de quatro ondas são importantes ferramentas experimentais para investigar a dinâmica de estados excitados, monitorar reações químicas, determinar taxas de relaxação, estudar espectroscopia transiente e interações entre luz e matéria. No caso da técnica de acoplamento de dois feixes, um feixe de pulsos ultra-curtos incide sobre a amostra (moléculas ou átomos), modificando as propriedades ópticas do meio, e pulsos ultra-curtos de um segundo feixe, atrasado temporalmente em relação ao primeiro, sonda essas modificações. Neste trabalho estaremos interessados em investigar a troca de energia entre dois feixes incidentes num meio não-linear, onde tal meio foi escolhido como o vapor de rubídio (Rb) e nas quais nossas medidas experimentais foram focadas em duas transições:  $5S-5P_{1/2}$  e  $5S-5P_{3/2}-5D$ .

No capítulo 1 deste trabalho apresentaremos uma rápida discussão sobre as técnicas de geração de pulsos ultra-curtos, suas características e alguns efeitos ao se propagarem por um meio dispersivo. Primeiro, com relação à geração de pulsos ultra-curtos, neste primeiro capítulo, voltaremos nossa atenção para a geração de um trem de pulsos por meio da técnica de travamento de modos passivo. As características do meio laser também serão apresentadas. O laser utilizado em nosso trabalho é o laser de Ti:Safira, um laser comercial e bastante confiável capaz de gerar pulsos da ordem de dezenas de femtossegundos. A fim de entender melhor a propagação de pulsos ultra-curtos em meios dispersivos apresentaremos conceitos como dispersão da velocidade de grupo, atraso de grupo e varredura de frequência.

No capítulo 2, além de uma breve revisão a respeito da propagação de ondas eletromagnéticas em meios materiais, discutiremos sobre as polarizações não-lineares induzidas por campos intensos em um meio. Em seguida, a técnica de acoplamento de dois feixes, para o caso de um laser contínuo (*Continuous Wave* – CW), será apresentada, e comparada com lasers pulsados. O acoplamento de dois feixes é a principal técnica utilizada na realização de nossos experimentos.

A interação não-linear entre luz e matéria e seus efeitos serão abordados, onde calcularemos a variação da energia transmitida pelo campo de sonda após os dois feixes interagirem entre si no vapor de Rb. Antes de interagirem no vapor, cada um dos feixes percorre um comprimento ao longo do meio. Esta propagação ressonante através do meio provocará fortes modificações na forma do pulso propagado, modificando assim a variação da energia transmitida [7, 8]. Finalizaremos este segundo capítulo fazendo uma abordagem dos efeitos da propagação linear baseados no trabalho do Crisp [11].

No terceiro capítulo apresentaremos o aparato experimental e os resultados obtidos para as duas transições estudadas do Rb. No que se refere à transição  $5S-5P_{3/2}-5D$ , que envolve a absorção de dois fótons, efeitos de acumulação [12] estão presentes, e podem ser visualizados por meio de batimentos correspondente as frequências de transições  $5S-5P_{3/2}$  e  $5P_{3/2}-5D$ .

Tratando-se da transição  $5S-5P_{1/2}$ , que é feita por meio da absorção de um fóton, tais batimentos não estão presentes. Baseados no cálculo da variação da energia do feixe de sonda apresentadas no capítulo 2, simulações numéricas foram realizadas modificando algumas propriedades dos pulsos e do meio, tais como duração do pulso, densidade do meio e varredura de frequência. Apesar do experimento ter sido realizado no domínio do tempo, utilizamos, também cálculos da variação da energia transmitida em um acoplamento de dois feixes no domínio da frequência para melhor explicarmos nossos resultados.

No último capítulo, apresentaremos nossas conclusões e perspectivas a respeito dos resultados apresentados neste trabalho.

## Capítulo 1

# GERAÇÃO DE PULSOS ULTRA-CURTOS

Pulsos com duração da ordem de femtossegundos são usados em diversas áreas de pesquisas tais como óptica não-linear, física dos semicondutores, estudo de processos de relaxação ultra-rápida de moléculas, espectroscopia não-linear, processos ópticos coerentes, biofísica, bioquímica, química molecular, medicina e telecomunicações. Hoje em dia, é possível obter pulsos com duração de até dezenas de attossegundos ( $10^{-18}$  s).

A técnica fundamental para a geração de pulsos ultra-curtos é o acoplamento de modos longitudinais (*mode-locking*) de um laser, através da qual os modos de oscilação do laser apresentam uma relação de fase fixa entre si. Com isto, a saída do laser apresenta uma modulação de amplitude resultante de batimento entre os modos oscilantes acoplados. Esse sistema foi demonstrado primeiramente por Hargrove [13] e seus colaboradores em um laser de He-Ne em 1964. Neste caso, um modulador de amplitude foi inserido dentro da cavidade, de modo a forçar a oscilação acoplada dos modos. Naquela época pulsos com duração na ordem de 100 ps foram observados, porém com potência de pico muito baixa, de apenas alguns watts, uma vez que se tratava de um laser de operação contínua. Este tipo de modulador atuava por meio de um sinal elétrico externo à cavidade laser, e este tipo de acoplamento foi denominado de acoplamento de modos ativo (*active mode-locking*).

Pulsos com duração de picosegundos e alta potência foram obtidos pela primeira vez por Mocker e Collins [14] que fizeram uso de um laser pulsado de Rubi, no qual introduziram no interior da cavidade um elemento passivo constituído de um absorvedor saturável [15]. Tal acoplamento é chamado de acoplamento de modos passivo (*passive mode-locking*). Pulsos com duração da ordem de dezenas de picosegundos e potência de alguns gigawatts foram obtidos nesses experimentos, gerando assim pulsos mais curtos e estáveis. A partir de então, várias técnicas foram introduzidas para reduzir a duração temporal dos pulsos.

Neste primeiro capítulo, será feita uma breve descrição sobre a geração de pulsos ultra-curtos de luz baseada na tese de Doutorado de Carlos A. C. Bosco [4]. O objetivo é discutir as principais características do laser de Ti:safira, usado em nosso trabalho.

## 1.1 Duração de pulsos e largura espectral

Um dos parâmetros mais importantes para caracterizar um laser de femtossegundos é a duração do pulso. Consideremos um campo elétrico linearmente polarizado na direção x, e que se propaga na direção do eixo z positivo:

$$\vec{E}(z,t) = \varepsilon(z,t) \cos[\omega_L (t - nz/c) - \varphi(z,t)] \hat{x} \quad (1.1)$$

tal que  $\varepsilon(z,t)$  e  $\varphi(z,t)$  são, respectivamente, a envoltória e a fase do campo elétrico que variam lentamente em um período óptico ou ao longo de uma distância de um comprimento de onda. Ainda sobre a Eq. 1.1,  $n$  é o índice de refração do meio,  $\omega_L$  a frequência angular da onda eletromagnética. O vetor de onda é dado por  $\vec{k} = \frac{\omega_L}{c} \hat{z}$ .

A intensidade  $I(t)$  deste campo, isto é, a energia transmitida por unidade de área e por unidade de tempo, é proporcional ao módulo quadrado da envoltória do campo,  $I(t) \propto |\varepsilon(t)|^2$ .

Definimos a duração de um pulso  $T_p$ , como sendo a largura a meia altura (*full width at half maximum* – FWHM) do perfil da intensidade. Na verdade, pela dificuldade de definir a forma exata do pulso, as formas mais comuns para descrever o perfil foram selecionadas. Os mais comumente citados são os pulsos Gaussianos, para qual a dependência do perfil do campo no domínio temporal é:

$$\varepsilon(t) = \varepsilon_0 \cdot \exp\left(-\frac{2 \ln(2) t^2}{T_p^2}\right) \quad (1.2)$$

e os pulsos secante hiperbólica:

$$\varepsilon(t) = \varepsilon_0 \cdot \operatorname{sech}\left(-\frac{1.763 t}{T_p}\right) \quad (1.3)$$

Muitas vezes é importante relacionar o perfil do campo elétrico  $\varepsilon(t)$  no domínio temporal com perfil do campo elétrico no domínio espectral  $\tilde{\varepsilon}(\omega)$  através da transformada de Fourier e de sua inversa, da seguinte forma:

$$\varepsilon(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\varepsilon}(\omega) e^{-i\omega t} d\omega \quad (1.4a)$$

e

$$\tilde{\varepsilon}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \varepsilon(t) e^{i\omega t} dt \quad (1.4b)$$

A largura espectral  $\Delta\omega_p$  é definida como sendo a largura à meia altura da intensidade espectral,  $S(\omega) = |\tilde{E}(\omega)|^2$ . Devido às características temporais e espectrais dos campos estarem relacionadas através da transformada de Fourier e sua inversa, a largura espectral  $\Delta\omega_p$  e a duração do pulso  $T_p$  não variam independentemente uma da outra. Existe um produto mínimo entre  $T_p$  e  $\Delta\omega_p$ :

$$T_p \Delta\omega_p = 2\pi \Delta\nu_p T_p \geq 2\pi a \quad (1.5)$$

onde  $a$  é uma constante numérica na ordem de 1, cujo valor depende da forma do pulso. Alguns valores de  $a$  são mostrados na terceira coluna da tabela 1.1. A igualdade surge para pulsos sem varredura de frequência (ou *chirp*), e neste caso, diz-se que os *pulsos são limitados por transformada de Fourier*. Tais pulsos exibem a mais curta duração possível para uma dada largura espectral e forma do pulso.

| <i>Envoltória do campo</i> | <i>Perfil da intensidade</i>   | <i>a</i> | <i>T<sub>G</sub>/T<sub>p</sub></i> |
|----------------------------|--------------------------------|----------|------------------------------------|
| Gaussiana                  | $\exp(-4 \ln(2) t^2 / T_p^2)$  | 0,441    | 1,441                              |
| Secante Hiperbólica        | $\text{sech}^2(1,763 t / T_p)$ | 0,315    | 1,543                              |
| Lorentziana                | $[1 + (1,287 t / T_p)^2]^{-2}$ | 0,142    | 1,544                              |

**Tabela 1.1:** Valores de  $a$  e  $T_G$  (ver próxima secção) para diferentes perfis temporais de pulsos [16].

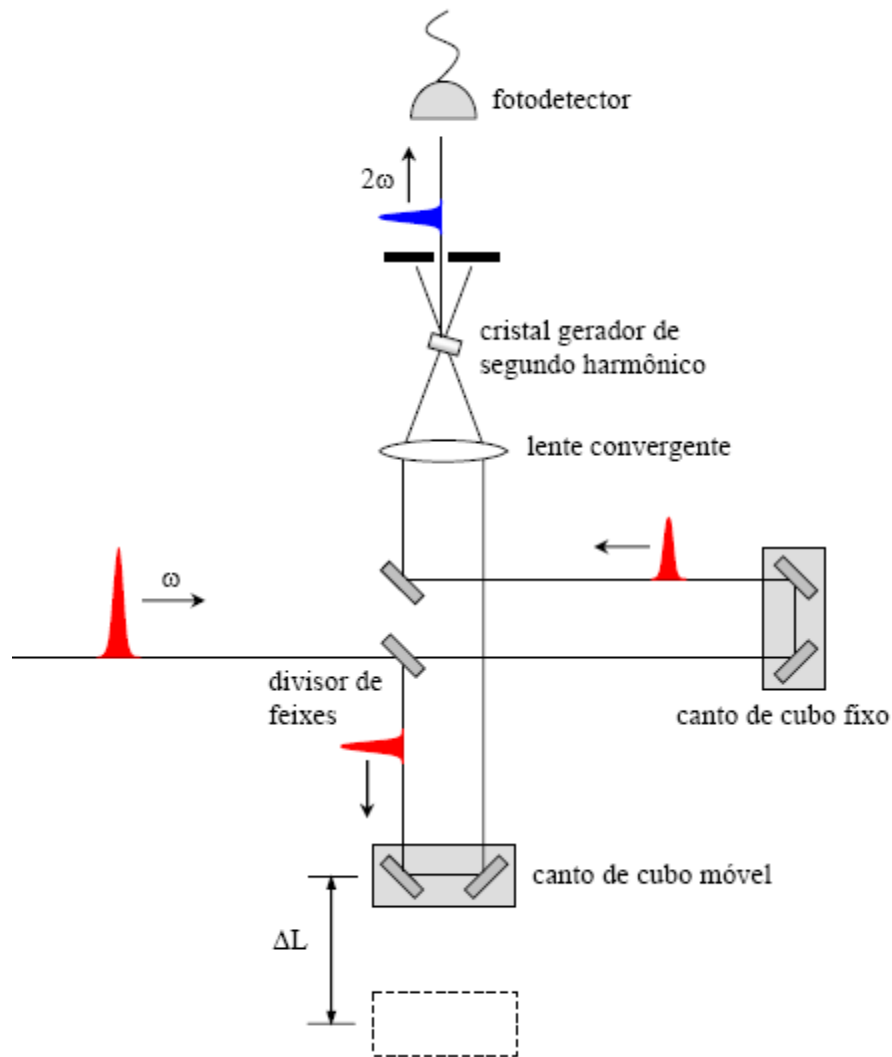
## 1.2 Medição de um pulso ultra-curto

Dado que não existem sistemas de detecção suficientemente rápidos para realizar medidas do perfil de intensidade de pulsos\*, torna-se então necessário fazer uso de técnicas alternativas. Uma das técnicas mais utilizadas é a autocorrelação por geração de segundo harmônico. Este tipo de técnica permite obter a duração dos pulsos a partir de uma função, chamada de *função de auto-correlação*,  $G(\tau)$  [17].

A configuração que utilizamos é a não-colinear, como mostrado na figura 1.1, que permite obter um sinal livre de fundo (*back-ground*). O feixe do laser passa por um divisor de feixes, gerando assim dois pulsos que percorrem os braços do autocorrelacionador. Um dos braços possui um refletor canto de cubo sobre um motor de passos, que permite controlar o atraso relativo entre os dois pulsos. O atraso entre os pulsos é dado pela diferença de caminho óptico  $\Delta L = L_2 - L_1$ , de forma que, o atraso entre os pulsos é  $\tau = 2\Delta L/c$ . Os dois feixes em seguida são focalizados em um cristal óptico não-linear, por exemplo, um cristal de BBO (beta-BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>), que gera um feixe de segundo harmônico na direção de cada um dos feixes incidentes. Um terceiro feixe é gerado quando os pulsos estão temporalmente sobrepostos, e sua direção é determinada pela condição de casamento de fase. A intensidade deste terceiro feixe é máxima quando os pulsos estão sobrepostos temporalmente e diminui à medida que o módulo do atraso,  $|\tau|$ , aumenta.

---

\* Uma outra técnica para determinação da largura de pulsos de femtossegundos é o *FROG*, técnica na qual permite medir a amplitude e a fase de lasers de femtossegundos [18].

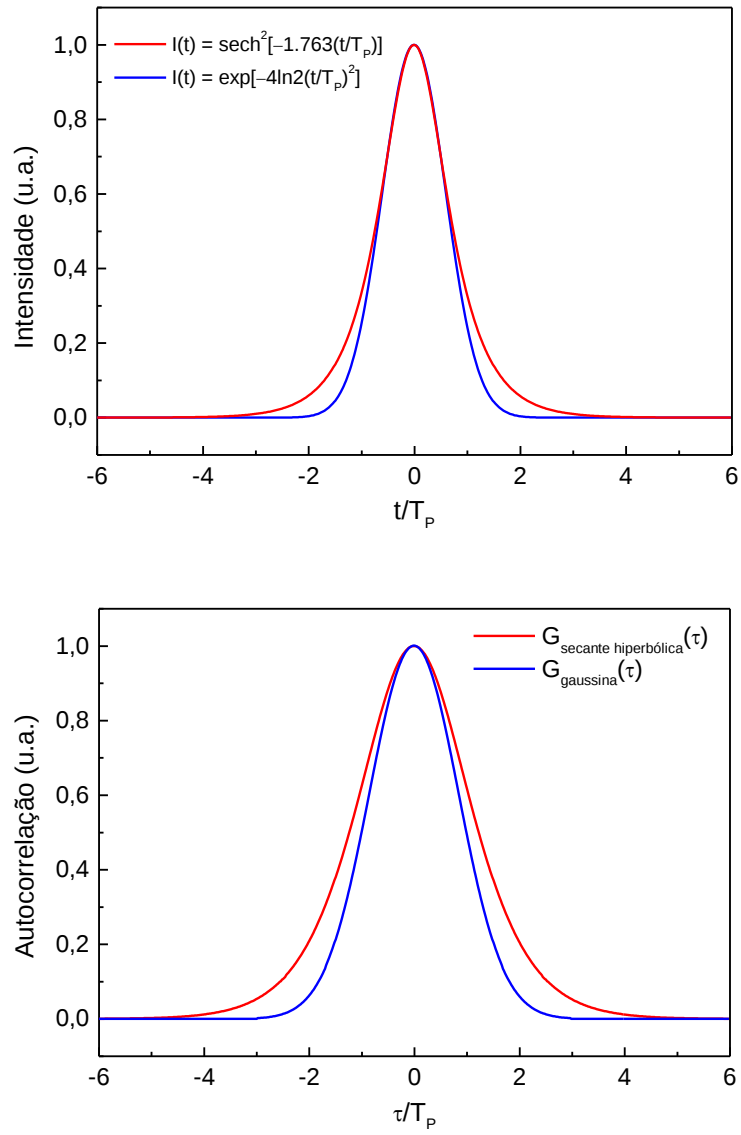


**Figura 1.1:** Autocorrelacionador por geração de segundo harmônico em configuração não-colinear.

Um detector lento em relação à duração do pulso é utilizado para fazer as medidas de autocorrelação, que integra a intensidade do sinal gerado. O sinal medido é proporcional à função de autocorrelação:

$$G(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(t - \tau) I(t) dt \quad (1.6)$$

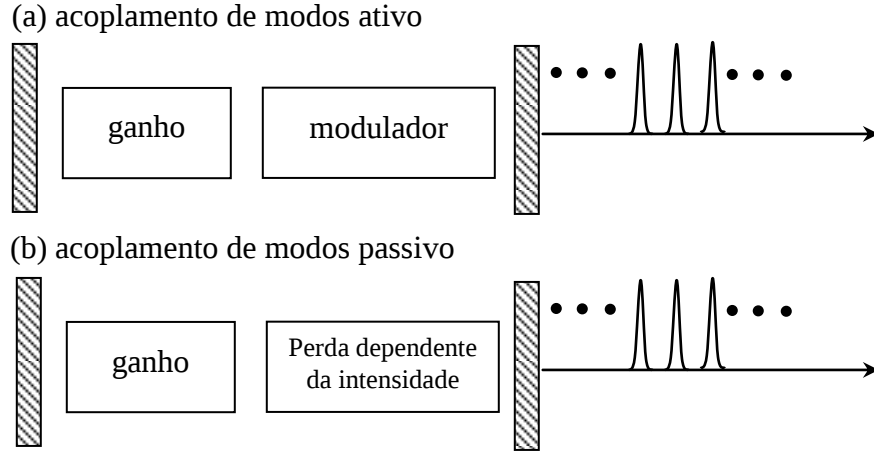
A largura à meia altura da função de autocorrelação,  $T_G$ , está relacionada à largura temporal do pulso  $T_P$ . A relação entre  $T_G$  e  $T_P$  depende da hipótese da forma do pulso. Na tabela 1.1 são mostradas algumas relações entre os dois. A figura 1.2 mostra o perfil de intensidade e funções de autocorrelação (normalizadas) para pulsos secante hiperbólica e gaussiano como descritos pelas Eq. 1.2 e 1.3, respectivamente.



**Figura 1.2:** (a) Perfil de intensidade e (b) a função da autocorrelação para pulsos secante hiperbólica e gaussiano de mesma duração  $T_p$ .

### 1.3 Acoplamento de Modos

A técnica do acoplamento de modos pode ser implementada de duas formas: (i): o acoplamento de modos ativo ou (ii) passivo. No primeiro deles, um modulador é inserido na cavidade laser e atuado por um circuito externo. Já no segundo, insere-se na cavidade laser um elemento óptico não-linear com a propriedade de tornar as perdas menores para maiores valores de intensidades circulantes (absorvedor saturável). Nos lasers de Ti:safira isto pode ser feito por meio de um elemento auto-focalizador acoplado a uma abertura, como veremos adiante.



**Figura 1.3:** Esquema das duas formas básicas de acoplamento de modos [4]

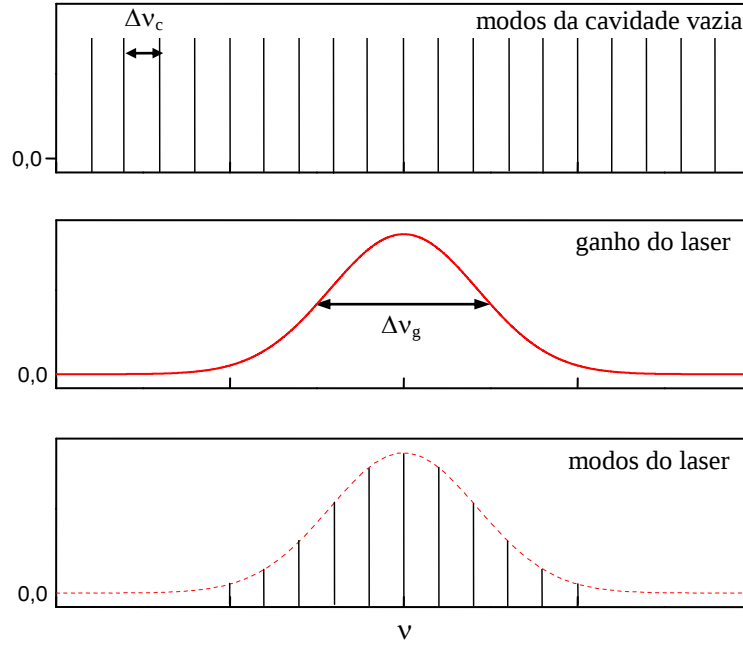
Para o melhor entendimento da técnica de acoplamento de modos, consideraremos um ressoador com dois espelhos a uma distância de separação  $L$ , onde são permitidos neste  $N$  modos de oscilação longitudinal do campo eletromagnético, no qual a separação de frequência destes modos é:

$$\omega_{n+1} - \omega_n = \frac{\pi c}{L} \equiv \Delta\omega_c \quad (1.7)$$

onde  $c$  é a velocidade da luz, e  $n$  é o índice referente ao  $n$ -ésimo modo de oscilação da cavidade. A quantidade de modos e quais destes modos longitudinais oscilam quando o laser está em operação dependem da largura de banda do ganho do meio laser utilizado, o tipo da cavidade laser e elementos intracavidade que limitam o número de modos. O campo na saída do laser é dado pela soma dos campos dos diversos modos:

$$E(t) = \sum_n E_n(t) \exp[-i(\omega_n t + \Delta\phi_n(t))] \quad (1.8)$$

Quando não existe nenhum controle sobre os modos permitidos,  $E_n(t)$  e  $\Delta\phi_n(t)$  podem variar livremente em função das perturbações externas, e assim, o laser apresenta uma saída instável devido à interferência entre os modos oscilantes. O número máximo de modos em oscilação,  $N$ , pode ser estimado pela razão entre a largura de linha  $\Delta\omega_g$  do meio laser e a separação entre os modos  $\Delta\omega_c$ :  $N \approx \Delta\omega_g / \Delta\omega_c$ . Para lasers de femtossegundos típicos,  $N$  é da ordem de  $10^5$  a  $10^6$ . A figura abaixo ilustra como o número de modos de oscilação da cavidade é limitado pela largura de linha de ganho do laser.



**Figura 1.4:** Esquema dos modos da cavidade vazia, largura de ganho do laser, e dos modos de oscilação laser resultante limitado pela largura  $\Delta\nu_g$ , onde.  $\Delta\nu_g = \Delta\omega_g/2\pi$  e  $\Delta\nu_c = \Delta\omega_c/2\pi$ .

Suponhamos que todos estes modos são excitados de tal forma que os diferentes modos mantém uma mesma fase relativa e com iguais amplitudes, ambas constantes no tempo. Esta situação é chamada de acoplamento de modos (*mode-locking*), e faz com que a intensidade dos campos emitidos consista de um trem de pulsos periódicos. Sejam  $E_n(t) = E_0$  e  $\Delta\phi_n(t) = 0$  para todos modos de oscilação, teríamos:

$$E(t) = \sum_{-(N-1)/2}^{(N-1)/2} E_0 \exp[-i(\omega_0 + n\Delta\omega_c)t] = E_0 e^{-i\omega_0 t} \left[ \frac{\text{sen}(N\Delta\omega t/2)}{\text{sen}(\Delta\omega t/2)} \right]. \quad (1.9)$$

A primeira consequência importante da Eq. 1.9 é que a taxa de repetição do laser é  $\Delta\omega_c/2\pi$ . De fato, para  $T_R = 2\pi/\Delta\omega_c$ :

$$\begin{aligned} E(t + T_R) &= \sum_{-(N-1)/2}^{(N-1)/2} E_0 \exp \left[ -i(\omega_0 + n\Delta\omega_c) \left( t + \frac{2\pi}{\Delta\omega_c} \right) \right] \Rightarrow \\ E(t + T_R) &= \sum_{-(N-1)/2}^{(N-1)/2} E_0 \exp[-i(\omega_0 + n\Delta\omega_c)t] \exp \left[ -2\pi i \left( \frac{\omega_0}{\Delta\omega_c} + 1 \right) \right] \Rightarrow E(t + T_R) = E(t), \end{aligned} \quad (1.10)$$

desde que  $\omega_0 / \Delta\omega_c = m$  seja um inteiro.

Podemos obter a intensidade do campo de saída uma vez que  $I(t) \propto |E(t)|^2$ , assim:

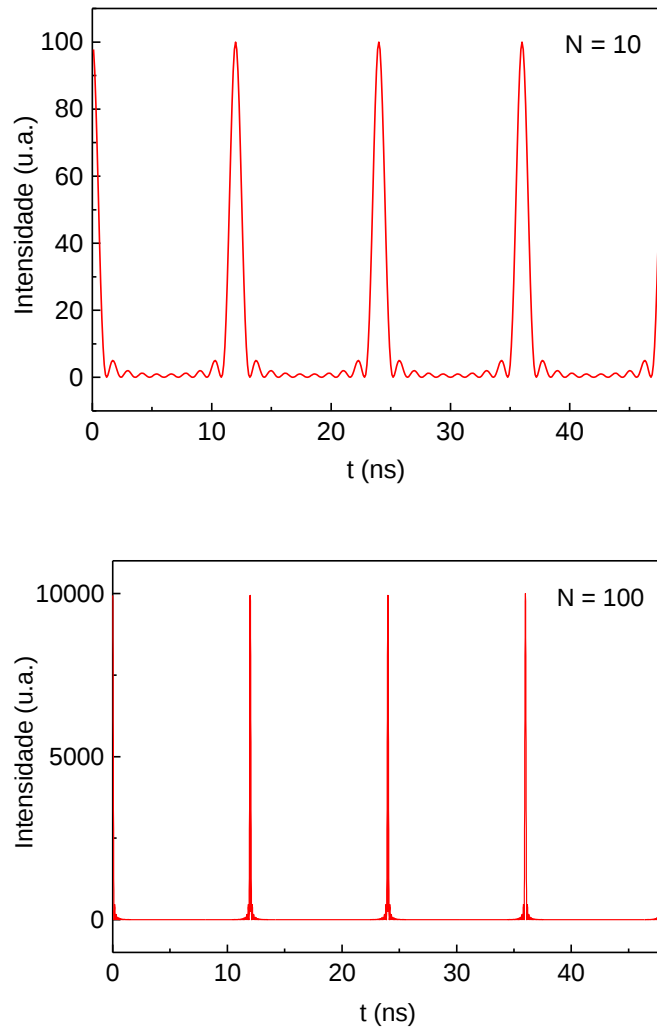
$$I(t) = I_0 \left[ \frac{\text{sen}(N\Delta\omega t/2)}{\text{sen}(\Delta\omega t/2)} \right]^2 \quad (1.11)$$

Vemos que a intensidade do campo de saída de um laser de modos acoplados é emitida na forma de um trem de pulsos com um período  $T_R = 2\pi/\Delta\omega_c$ , e na qual cada pulso tem uma duração dada aproximadamente por  $T_P = T_R/N$ . Usando a expressão para o número de modos da cavidade  $N \approx \Delta\omega_g / \Delta\omega_c$ , bem como a expressão  $T_R = 2\pi/\Delta\omega_c$ , obtém-se que:

$$T_P \approx \frac{2\pi}{\Delta\omega_g} = \frac{1}{\Delta\nu_g}, \quad (1.12)$$

de modo que a largura do pulso é aproximadamente o inverso da largura espectral de ganho do laser.

Ainda com respeito à Eq. 1.10, vemos que a intensidade máxima  $I(sT_R)$ , onde  $s$  é um inteiro não-nulo, é  $N^2$  vezes intensidade de um único modo do laser; e que tal intensidade máxima é  $N$  vezes a média temporal da intensidade.



**Figura 1.5:** Efeito do número de modos acoplados sob a intensidade e duração dos pulsos na saída do laser:  $N = 10$  e  $N = 100$ . Nestes gráficos,  $T_c = 12$  ns (corresponde a uma taxa de repetição de aproximadamente 82 MHz)

## 1.4 O Laser de Titânio-Safira (Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)

Com a introdução do laser de femtossegundos de Ti:safira [19, 20], no início da década de 90, os lasers de femtossegundos deixaram de ser instrumentos complicados que necessitavam de várias horas de trabalho para a preparação e ajuste, e tornou-se um equipamento simples e confiável. O meio de ganho, o cristal de Ti:safira, que possui uma largura de banda grande e é um meio ativo no estado sólido, junto com a descoberta dos espelhos com compensação de varredura de frequência levou à possibilidade de se obter pulsos com duração inferior a 10 fs, a uma potência média de mais de 500 mW e taxa de repetição na ordem de centenas de MHz.

Para o funcionamento de um laser de femtossegundos operando por meio de travamentos de modos passivo são necessários alguns requisitos: um meio de grande largura de banda, um modulador de fase e/ou amplitude, e um dispositivo para compensar a varredura de frequência causada pela dispersão dos diversos elementos que constituem a cavidade, e além do mais, que o controle de ganho/perda seja feito pela própria intensidade do pulso. O cristal de Ti:safira além de ser um meio de ganho de banda larga, também é um modulador de fase que desempenha uma importante função na modulação das perdas.

O mecanismo para a geração de pulsos ultra-curtos no laser de Ti:safira é baseado nos efeitos de automodulação de fase, que leva à geração de novas frequências, e da autofocalização, que junto com uma fenda, atua como um absorvedor saturável. Ambos efeitos ocorrem devido à não-linearidade produzida pelas altas intensidades dos pulsos propagantes. Os princípios básicos dos efeitos ópticos não-lineares serão discutidos no capítulo 2.

Para gerar pulsos com a menor duração possível é preciso reduzir a dispersão da velocidade grupo (*group velocity dispersion* – GVD), onde tal dispersão intracavidade é dominada pela dispersão da propagação dos pulsos no cristal de Ti:safira e tem sinal positivo no intervalo de sintonização. A compensação desta dispersão de velocidade grupo é usualmente feita por um par de prismas no interior da cavidade.

A seguir discutiremos um pouco sobre o meio de ganho do laser de Ti:safira e os efeitos não-lineares: automodulação de fase e autofocalização.

### 1.4.1 Meio de ganho

O íon de titânio Ti<sup>3+</sup> é responsável pela ação laser de Ti:safira. O Ti:safira é um material cristalino produzido pela introdução de Ti<sub>2</sub>O<sub>3</sub> em uma quantidade de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (safira) fundido. Um rubi sintético deste material é desenvolvido desta fundição onde os íons Ti<sup>3+</sup> são substituídos por um pequeno percentual dos íons Al<sup>3+</sup>. A figura 1.6a e 1.6b mostra a estrutura dos níveis, e os espectros de absorção e emissão, respectivamente.

As transições de absorção ocorrem sobre uma largura de banda que abrange comprimentos de onda de 400 nm a 600 nm, onde apenas uma destas é mostrada na figura acima. As transições de fluorescência ocorrem do menor nível vibracional do estado excitado para o maior nível vibracional do estado fundamental. A emissão e absorção espectral resultante são mostradas na figura 1.6 (b).

Apesar da banda de fluorescência estender-se em comprimentos de ondas de 600 nm a 1000 nm, a ação laser somente é possível em comprimentos maiores do 670 nm. Isso é devido às bandas de fluorescência e absorção se sobreporem em comprimentos de onda de 600 a 670 nm.

A estrutura eletrônica do íon de  $Ti^{3+}$  possui uma camada fechada e mais um elétron livre no nível 3d, cujos níveis tem suas degenerescências levantadas pelo campo cristalino do hospedeiro,  $Al_2O_3$ . O estado excitado  $^2E$ , que é duplamente degenerado, com uma energia que é da ordem de  $19000\text{ cm}^{-1}$  acima da energia do estado  $^2T_2$ . Além disto há o estado fundamental e mais dois outros estados separados por energias de  $38\text{ cm}^{-1}$  e  $107\text{ cm}^{-1}$ . O ganho no meio é produzido com a excitação para o nível  $^2E$  usando um laser de  $\lambda \approx 500\text{ nm}$ . A emissão laser ocorre entre o estado  $^2E$  e o estado de mais alta energia em  $^2T_2$  (o estado de  $107\text{ cm}^{-1}$ ). Para evitar popular termicamente o nível inferior da transição  $^2T_2$  é importante resfriar o cristal, em torno de  $17^\circ\text{C}$ .

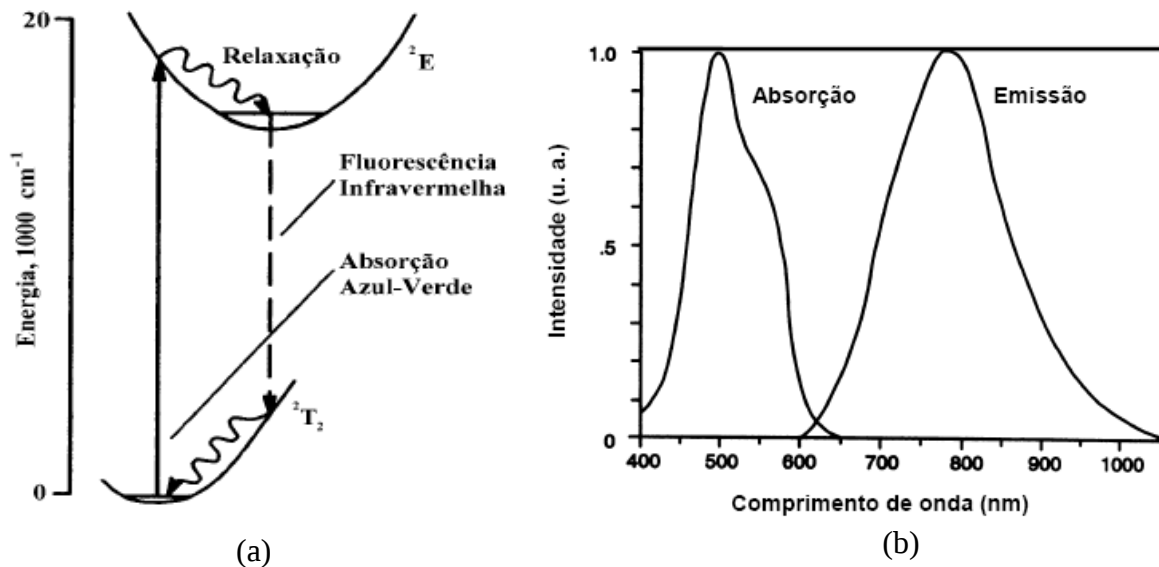


Figura 1.6: Espectro de absorção e emissão do Ti:safira [21].

#### 1.4.2 Não-linearidade do índice de refração. Automodulação de fase e autofocalização.

##### Automodulação de fase

A automodulação de fase óptica (SPM – *self-phase modulation*) é um efeito não-linear devido à alta intensidade dos pulsos ultra-curtos, onde, mesmo que a energia de um pulso seja pequena, a intensidade de pico atinge valores muito altos. Por exemplo, um pulso com duração de 100 fs e energia de 1 nJ tem potência de pico de 10 kW, e se for focalizado por uma lente de distância focal 10 cm é possível obter uma intensidade de  $1\text{ GW/cm}^2$ . A automodulação de fase é baseada no fato de que o índice de refração do meio torna-se dependente da intensidade da luz propagante:

$$n = n_0 + n_2 I \quad (1.13)$$

onde  $n_0$  é o índice de refração para pequenas intensidades,  $n_2$  é o índice de refração não linear, e  $I$  é a intensidade do pulso. Em geral, o valor de  $n_2$  é muito pequeno, por exemplo, para a safira  $n_2 \cong 8 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$ , de forma que apenas para intensidades muito altas o efeito torna-se relevante.

Se a dispersão puder ser desprezada, de forma que o perfil temporal do pulso seja mantido ao longo de um meio que apresenta uma não-linearidade deste tipo, a fase total do pulso será:

$$\phi(t) = \omega_0 t - kz = \omega_0 t - \frac{\omega_0 n z}{c} \Rightarrow \phi(t) = \omega_0 t - \frac{\omega_0 n_0 z}{c} - \frac{\omega_0 n_2 z I(t)}{c} \quad (1.14)$$

onde  $\vec{k} = k\hat{z}$  é o vetor de onda,  $z$  é a distância percorrida pelo pulso. Para uma onda com fase dependente do tempo a frequência instantânea é definida como:

$$\omega(t) = \frac{d\phi(t)}{dt} = \omega_0 - \frac{\omega_0 n_2 z}{c} \frac{dI(t)}{dt} \quad (1.15)$$

e após a propagação, o campo sofre um desvio de frequências dependente do tempo dado por:

$$\delta\omega(t) = - n_2 z \frac{2\pi}{\lambda} \frac{dI(t)}{dt}. \quad (1.16)$$

Tal desvio de frequência implica que novas frequências são criadas no espectro do pulso incidente, acarretando um alargamento espectral. A geração de novas frequências é uma consequência direta da existência da não-linearidade do meio. No caso da safira, se um pulso de intensidade intracavidade de  $20 \text{ GW/cm}^2$  em  $800 \text{ nm}$ , propaga-se por  $1 \text{ cm}$  ao longo deste meio, teremos  $\delta\omega \approx 1,35 \times 10^{13} \text{ Hz}$ , que corresponde a uma largura de banda de  $\delta\lambda = 4,6 \text{ nm}$ .

## Autofocalização

Além da dependência do índice de refração não linear com a intensidade do pulso propagante, o que dá origem ao SPM como visto na secção anterior, esta dependência também resulta em uma variação espacial no índice de refração que deve focalizar o feixe. Em um feixe

Gaussiano [22], por exemplo, no qual  $I(t) = I_0(t) \cdot \exp\left(\frac{-2r^2}{w_0^2}\right)$ , onde  $I_0(t)$  é a intensidade no

centro do feixe ( $r = 0$ ) e  $w_0$  é cintura mínima no mesmo, o índice de refração é mais intenso no centro se comparado com as partes mais externas do feixe. Com isso um efeito tipo lente é induzido pelo próprio pulso no qual o índice de refração torna-se maior no eixo de propagação do que nas bordas, formando uma lente convergente.

Podemos estimar a magnitude do efeito estudando um meio não linear colocado na cintura do feixe como sendo mais curto que o parâmetro confocal do feixe propagante. De acordo com a Eq. 1.14, podemos escrever a variação da fase não linear:

$$\Delta\phi(t) \approx -\frac{2\pi n_2 z}{\lambda} I_0(t) \left( 1 - \frac{2r^2}{w_0^2} \right) \quad (1.17)$$

Quando um feixe propaga-se em um meio em que a defasagem da fase varia com o quadrado da distância radial,  $\Delta\phi(t) = Br^2$ , o feixe focaliza a uma distância:

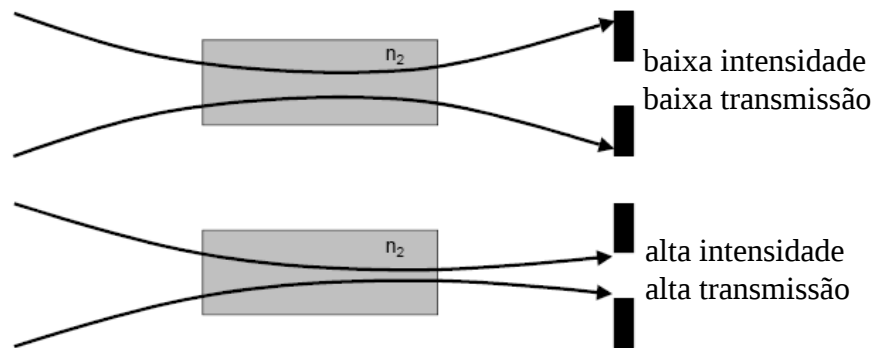
$$f(t) = \frac{\omega_0}{2cB(t)}. \quad (1.18)$$

De acordo com a Eq. 1.17, portanto, a distância focal da lente induzida pela não linearidade do meio é:

$$f(t) = \frac{n_0 \pi w_0^2}{8n_2 P(t) z} \quad (1.19)$$

onde  $P(t) = \pi w_0^2 I(t)/2$  é a potência do feixe propagante..

Na figura abaixo está ilustrado o mecanismo da autofocalização, onde os feixes mais intensos são mais focalizados, e então a transmissão do feixe através de uma fenda torna-se maior. Esse fenômeno tem um tempo de resposta igual ao da não-linearidade eletrônica que é da ordem de  $10^{-15}$  s. O efeito da autofocalização tem um efeito semelhante ao de um absorvedor saturável rápido, onde são mais transmitidas as flutuações de maior intensidade, o que favorece a operação pulsada.



**Figura 1.7:** Esquema do travamento de modos via autofocalização (*Kerr lens mode-locking*) [15].

### 1.4.3 Velocidade de grupo e dispersão

Seja o campo elétrico de um pulso dado pela Eq. 1.1 descrito pela parte real de:

$$E(t) = \varepsilon(t) \exp[-i(\omega_L t - \varphi(t))] \quad (1.20)$$

onde  $\varepsilon(t)$  na equação acima representa a envoltória do campo elétrico. O termo  $\exp(-i\omega_L t)$  introduz uma oscilação na frequência óptica  $\omega_L$  e a fase  $\varphi(t)$  pode depender do tempo de diversas formas. Consideraremos ainda que, a transformada de Fourier é dada por:

$$\tilde{E}(\omega) = \tilde{\varepsilon}(\omega) \exp(i\Phi_0(\omega)) \quad (1.21)$$

Quando um pulso propaga-se ao longo de um comprimento  $z$  em um meio dispersivo de índice de refração  $n(\omega)$ , o pulso adquire uma fase, dependente da frequência, dada por  $\Phi(\omega) = \omega n(\omega) z / c$ , e onde  $k(\omega) = \omega n(\omega) / c$ . Conforme a dependência de  $\Phi(\omega)$  com a frequência angular  $\omega$ , diferentes tipos de distorções de fase ocorrem, e assim efeitos diferentes na distorção da envoltória temporal do pulso.

Um pulso ultra-curto tem necessariamente um espectro de frequências largo. Com isto, as diferentes componentes espectrais do pulso propagam-se em um meio dispersivo com velocidades diferentes dadas por:

$$v_g(\omega) = \frac{\partial \omega}{\partial k} = \frac{1}{\frac{\partial k}{\partial \omega}} = \frac{z}{\frac{\partial}{\partial \omega}(\Phi(\omega))} = \frac{1}{\frac{\partial}{\partial \omega} \left( \frac{\omega n(\omega)}{c} \right)} \Rightarrow v_g(\omega) = \frac{c}{n(\omega) + \omega \frac{\partial n}{\partial \omega}} \quad (1.22)$$

Sistemas óticos capazes de compensar distorções acumuladas pela propagação do pulso em um meio material, restaurando assim a forma original dos pulsos são muito importantes para o funcionamento de um laser de femtossegundos.

### 1.4.4 Distorção de fase:

Para analisar o efeito da fase acumulada no perfil de um pulso ao se propagar em um meio dispersivo, faremos uma expansão em série de Taylor da fase, em torno da frequência de oscilação central do laser  $\omega_L$ :

$$\Phi(\omega) = \Phi(\omega_L) + \frac{d\Phi}{d\omega}(\omega_L) \times (\omega - \omega_L) + \frac{1}{2} \frac{d^2\Phi}{d\omega^2}(\omega_L) \times (\omega - \omega_L)^2 + \frac{1}{6} \frac{d^3\Phi}{d\omega^3}(\omega_L) \times (\omega - \omega_L)^3 + \dots \quad (1.23)$$

Cada um dos termos acima terá um efeito diferente sobre o perfil do pulso propagante. O entendimento sobre os efeitos de cada um dos termos da fase  $\Phi(\omega)$  na expansão 1.23, torna-

se mais fácil ao usarmos o conceito de atraso de grupo para cada um dos termos acima. O atraso de grupo é definido por:

$$\tau_g(\omega) \equiv \frac{d\Phi(\omega)}{d\omega} \quad (1.24)$$

segue da Eq. 1.23,

$$\tau_g(\omega) = \frac{d\Phi}{d\omega}(\omega_L) + \frac{d^2\Phi}{d\omega^2}(\omega_L) \times (\omega - \omega_L) + \frac{1}{2} \frac{d^3\Phi}{d\omega^3}(\omega_L) \times (\omega - \omega_L)^2 + \dots \quad (1.25)$$

O primeiro termo da Eq. 1.23 corresponde a um desvio de fase para todas as frequências e assim não introduz nenhum atraso de grupo. O segundo termo desta equação corresponde a um atraso de grupo fixo para todas as frequências. Isto corre porque quando a fase introduzida pela propagação varia linearmente com a frequência, nenhuma distorção ocorre no perfil do pulso, apenas um deslocamento na origem do tempo.

São os termos de ordem superior ou igual a dois na frequência que contribuem para a distorção do perfil temporal do pulso. A primeira destas contribuições depende da derivada segunda da fase  $\Phi(\omega)$  com respeito à frequência central do laser, e está relacionada à dispersão da velocidade de grupo (GVD) em torno da frequência central do laser. A dispersão da velocidade de grupo é a taxa em que a velocidade grupo muda em função do comprimento de onda:

$$\text{GVD} = \frac{dv_g}{d\lambda} \quad (1.26)$$

Uma vez que  $\omega = 2\pi c/\lambda$ , podemos relacionar a GVD com a derivada segunda da fase em relação à frequência:

$$\begin{aligned} \text{GVD} &= \frac{dv_g}{d\lambda} = \frac{dv_g}{d\omega} \frac{d\omega}{d\lambda} = \frac{d}{d\omega} \left[ \left( \frac{dk}{d\omega} \right)^{-1} \right] \left( -\frac{2\pi c}{\lambda^2} \right) = \frac{\omega^2 v_g^2}{2\pi c} \frac{d^2k}{d\omega^2} \Rightarrow \\ \text{GVD} &= \frac{\omega^2 v_g^2}{2\pi c z} \frac{d^2\Phi}{d\omega^2} \end{aligned} \quad (1.27)$$

Por exemplo, para o vidro BK-7 o parâmetro  $\frac{d^2k}{d\omega^2}$  que está diretamente relacionado à GVD é 453 fs<sup>2</sup>/cm e para o cristal de Ti:safira é de 612 fs<sup>2</sup>/cm, ambos para um comprimento de onda igual a 800 nm.

Quando  $\Phi(\omega) \propto \omega^2$ , dizemos que o atraso de grupo tem uma varredura de frequência linear com frequência. Neste tipo de distorção na fase, quando  $\frac{d^2\Phi}{d\omega^2}(\omega_L) > 0$  (GVD > 0) as

componentes de maior frequências apresentam um atraso maior em relação as frequências menores. No domínio temporal, isto reflete-se no fato que as menores frequências são adiantadas em relação às maiores, de modo que o pulso emerge com uma varredura de frequência (*chirp*) ao longo de seu perfil temporal.

Neste caso, em que  $\frac{d^2\Phi}{d\omega^2}(\omega_L)$  é positivo, as frequências menores ocorrem na frente do pulso e as frequências maiores ocorrem na traseira, porém a simetria do pulso não é quebrada. Com  $\frac{d^2\Phi}{d\omega^2}(\omega_L) < 0$  (GVD < 0) temos o contrário.

Por exemplo, tratando com pulsos de perfil gaussiano,

$$\varepsilon(t) = \varepsilon_0 \cdot \exp\left[-\frac{2 \ln(2) t^2}{T_p^2(1-iC)}\right] = \varepsilon_0 \cdot \exp\left[-\frac{2 \ln(2) t^2}{T_p^2(1+C^2)}\right] e^{-i\frac{2 \ln(2)C t^2}{T_p^2(1+C^2)}} \quad (1.28)$$

onde C é o *chirp*.

A transformada de Fourier deste pulso é:

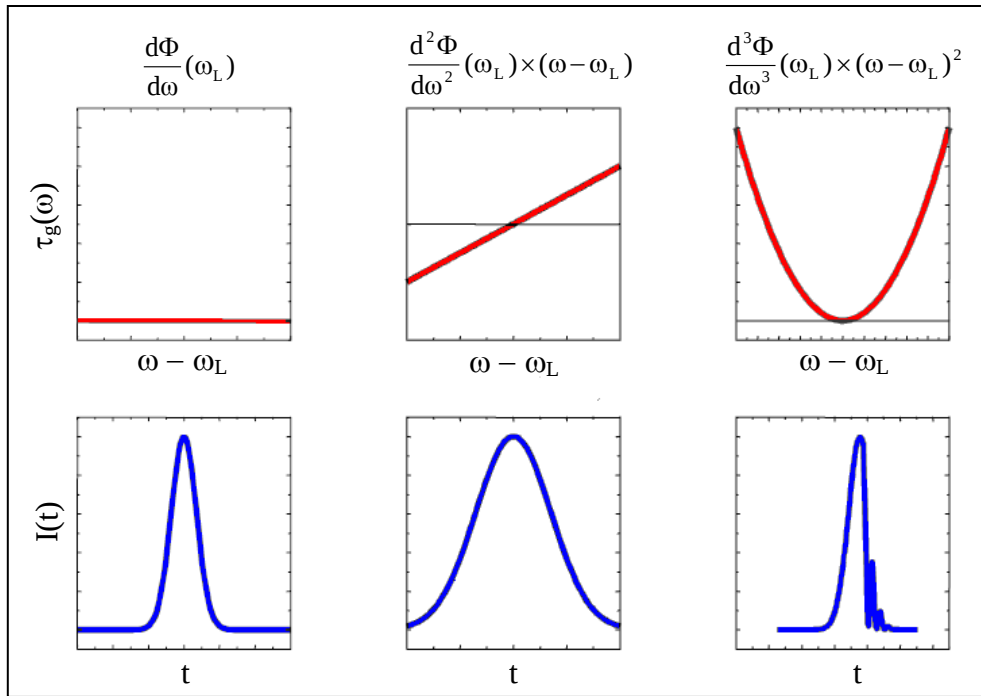
$$\tilde{\varepsilon}(\omega) = \frac{\varepsilon_0 T_p \sqrt{\pi} \sqrt[4]{1+C^2}}{\sqrt{2 \ln 2}} \cdot \exp\left(-\frac{T_p^2 \omega^2}{8 \ln 2}\right) \cdot \exp\left[-i\left(\frac{\arctg C}{2} + \frac{T_p^2 \omega^2 C}{8 \ln 2}\right)\right] \quad (1.29)$$

Vemos então que no caso de  $\Phi(\omega) \propto \omega^2$ , nenhuma modificação ocorre no tipo de envoltória temporal do pulso propagante, isto é, o pulso ao se propagar tem sua envoltória mantida como uma gaussiana, no entanto, com uma largura temporal maior comparada com o caso em que  $C = 0$ . Já no domínio espectral, a intensidade do pulso mantém sua mesma largura do caso sem *chirp*, porém com o pico central maior.

Além do mais, vemos que o pulso não é mais limitado por transformada de Fourier, uma vez que, tomando a largura à meia altura  $\Delta T_p$  do perfil da intensidade no domínio temporal ( $I(t) \propto |\varepsilon(t)|^2$ ) e a largura à meia altura espectral  $\Delta \omega_p$  da intensidade espectral ( $S(\omega) = |\tilde{\varepsilon}(\omega)|^2$ ), temos:

$$\Delta T_p \cdot \Delta \omega_p = 2 \ln 2 \sqrt{1+C^2} \geq 2\pi a \quad (1.30)$$

Ainda com respeito à expansão dada pela Eq. 1.23, vemos que a próxima contribuição ao atraso de grupo tem um formato quadrático com  $\omega$ . No caso em que  $\frac{d^3\Phi}{d\omega^3}(\omega_L) > 0$ , tanto frequências mais baixas quanto as mais altas, serão atrasadas em relação à frequência central  $\omega_L$ . Este tipo de contribuição causa no perfil temporal do pulso uma cauda oscilatória devido à interferência (batimento) entre as frequências mais baixas e mais altas.

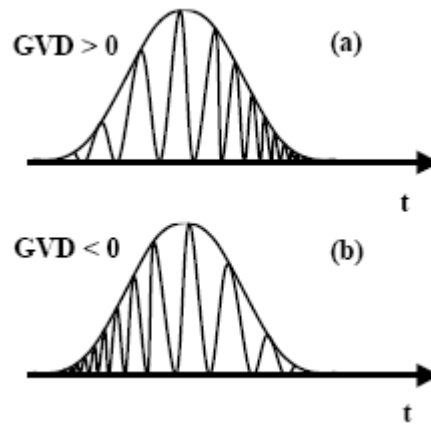


**Figura 1.8:** Contribuições dos diferentes termos da expansão da fase adquirida pela propagação do pulso em série de Taylor no atraso de grupo e o efeito sobre o perfil temporal do pulso [15].

#### 1.4.5 Dispersão da velocidade de grupo na cavidade do laser

O controle da dispersão da velocidade de grupo dentro da cavidade é muito importante para o funcionamento de lasers de femtossegundos. Como os pulsos curtos têm uma banda espectral larga, as diversas componentes espectrais do pulso irão sofrer diferentes atrasos como vimos na sessão anterior, resultando na alteração da forma do pulso será alterada.

Segundo a Eq. 1.21, se  $GVD > 0$ , as componentes espectrais do pulso de maior frequência serão atrasadas em relação às componentes de menor frequência. Para  $GVD < 0$ , temos o contrário. A dispersão da velocidade de grupo pode ser relacionada com o *chirp* (varredura de frequência) segundo as equações 1.23, 1.27 e 1.29.

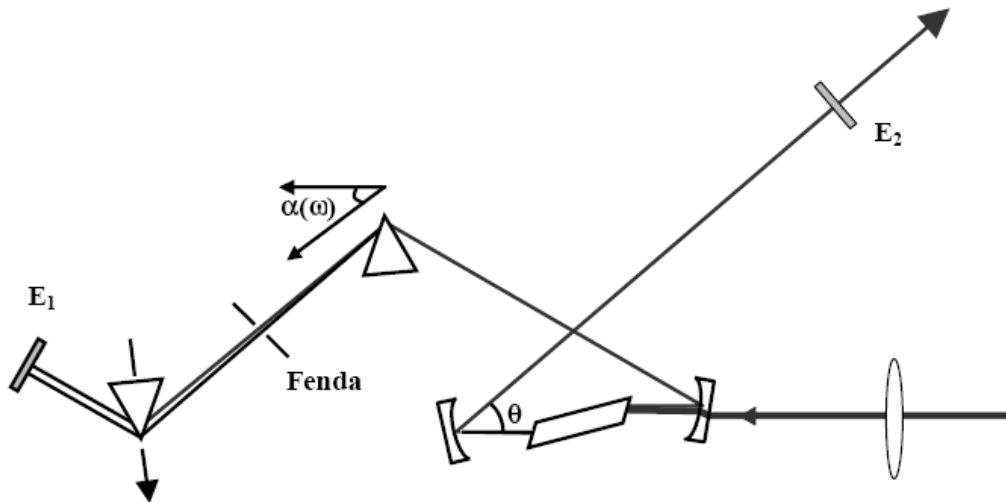


**Figura 1.9:** Campo elétrico de um pulso com dispersão da velocidade de grupo (a) positiva (b) e negativa [4].

Para cristais de Ti:safira com comprimento de alguns centímetros, os efeitos de dispersão e de automodulação produzem uma GVD positiva sobre os pulsos. Deste modo é necessário recorrer ao uso de dispersões geométricas para construir um sistema com GVD negativa. Os sistemas mais importantes para esse fim são o par de grades de difração e o par de prismas. No laser de Ti:safira é usado um par de prismas capaz de introduzir uma GVD deste tipo. [23, 24].

#### 1.4.6 A cavidade

A figura abaixo mostra alguns dos detalhes importantes para o laser de Ti:safira baseados nos conceitos discutidos ao longo deste capítulo. Um laser de bombeamento excita o cristal de Ti:safira com um comprimento de onda de aproximadamente 500 nm, comprimento de onda em que o meio apresenta seu pico de absorção. Efeitos não-lineares serão sofridos pelo feixe que circula no interior da cavidade, tal como o efeito da autofocalização no cristal fará com que o cristal de Ti:safira se comporte como um absorvedor saturável rápido, importante para o funcionamento de um laser de femtossegundos. O par de primas mostrados na figura a seguir é usado para compensar a GVD positiva do cristal. Na saída, o laser emite um trem de pulsos sintonizáveis em torno de 800 nm.



**Figura 1.10:** Cavidade de um laser de Ti:safira. [4]

Em nosso trabalho, utilizamos um laser comercial de Ti:safira (modelo Tsunami – Spectra-Physics). A seguir, temos algumas das características do equipamento:

- **intervalo de sintonização:** 740 nm a 850 nm
- **potência média:** 800 mW
- **taxa de repetição:** 82 MHz ( $T_R = 12$  ns)
- **largura temporal:**  $\approx 100$  fs
- **divergência do feixe:**  $< 0,6$  mrad
- **diâmetro do feixe:**  $\approx 2$  mm
- **laser de bombeio:** Laser CW de Nd:YVO<sub>4</sub> (modelo Millenia – Spectra-Physics). Potência máxima de 5,5 W e comprimento de onda de  $\lambda = 532$  nm.

Nosso objetivo até aqui foi descrever os princípios básicos do laser de Ti:safira assim como o mecanismo da geração de pulsos ultra-curtos. Apresentamos também conceitos como dispersão da velocidade de grupo (GVD), atraso de grupo e varredura de frequência. Vimos como diferentes contribuições da fase  $\Phi(\omega)$  adquirida por um pulso ao se propagar por um meio dispersivo pode modificar a forma do pulso no domínio temporal.

## Capítulo 2

# ACOPLAMENTO DE PULSOS ULTRA-CURTOS EM UM VAPOR ATÔMICO

Desde os primeiros desenvolvimentos de lasers de pulsos ultra-curtos (aqui consideramos como ultra-curtos, pulsos cujas durações sejam menores do que 1 ps) os principais objetivos foram quase sempre relacionados ao estudo de sistemas cuja evolução temporal ocorresse nesta escala de tempo. Este é o caso das excitações criadas pela radiação em moléculas orgânicas, metais, e semicondutores, por exemplo. Nestes sistemas o principal interesse era o estudo da evolução temporal das populações, e secundariamente das coerências criadas pela radiação. Em ambos os casos o interesse era quase sempre voltado para a interação de pulsos de largura de banda da mesma ordem de grandeza que as larguras espectrais dos sistemas em foco. Nos experimentos que discutiremos neste trabalho a situação é bastante distinta: a largura de banda espectral do laser é cerca de  $10^3 - 10^4$  vezes maior que a largura das transições atômicas de nosso interesse, que são menores inclusive que a taxa de repetição do laser. Este regime introduz uma nova gama de fenômenos tais como: efeitos de propagação, acumulação da população e acumulação da coerência, alguns dos quais serão tratados aqui.

Neste capítulo serão apresentados os conceitos necessários para descrever a interação entre luz e matéria no regime de nosso interesse: tempos de relaxação do meio atômico maiores que a duração dos pulsos incidentes ou o período de repetição do laser. Iniciamos com uma revisão sobre a propagação linear de campos eletromagnéticos em meios materiais e em seguida consideramos a influência da presença de uma polarização não-linear de terceira ordem. Esta polarização será responsável pelo efeito que denominaremos de acoplamento de dois feixes (*two-beam coupling*), que é um processo de mistura de ondas presente nos experimentos em que se emprega a técnica conhecida por *bombeio e sonda* (“*pump and probe*”).

Utilizando o formalismo da matriz densidade, faremos uma discussão sobre o cálculo da polarização não-linear induzida por um sistema atômico de dois níveis interagindo com pulsos ultra-curtos. Obtida a expressão da polarização não-linear na qual estamos interessados, obteremos a expressão do sinal que será detectado em experimentos de acoplamento de dois feixes.

Finalmente, encerraremos este capítulo discutindo, no regime linear, a propagação de pulsos ultra-curtos em meio ressonantes de altas densidades atômicas, onde importantes efeitos se manifestam na forma de absorção e dispersão, modificando assim o perfil temporal do pulso.

## 2.1 Propagação de pulsos em meios materiais

Antes de discutirmos as interações entre átomos e a radiação eletromagnética, nesta seção faremos uma breve revisão sobre a descrição de ondas eletromagnéticas em meios materiais. Sabemos que as leis básicas da eletricidade e do magnetismo podem ser escritas na forma diferencial por meio de quatro equações

$$\nabla \times \vec{E}(\vec{r}, t) = -\frac{1}{c} \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (2.1a)$$

$$\nabla \times \vec{H}(\vec{r}, t) = \frac{4\pi}{c} \vec{J}(\vec{r}, t) + \frac{1}{c} \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad (2.1b)$$

$$\nabla \cdot \vec{D}(\vec{r}, t) = 4\pi \rho(\vec{r}, t) \quad (2.1c)$$

$$\nabla \cdot \vec{B}(\vec{r}, t) = 0, \quad (2.1d)$$

conhecidas como equações de Maxwell\* [25].

Os termos  $\rho(\vec{r}, t)$  e  $\vec{J}(\vec{r}, t)$  são a densidade de carga e densidade de corrente livre, e os vetores  $\vec{E}(\vec{r}, t)$  e  $\vec{H}(\vec{r}, t)$  são os campos elétrico e magnético, respectivamente. Estes campos estão relacionados ao vetor deslocamento  $\vec{D}(\vec{r}, t)$  e ao vetor indução magnética  $\vec{B}(\vec{r}, t)$  da seguinte forma:

$$\vec{D}(\vec{r}, t) = \vec{E}(\vec{r}, t) + 4\pi \vec{P}(\vec{r}, t) \quad (2.2a)$$

$$\vec{B}(\vec{r}, t) = \vec{H}(\vec{r}, t) + 4\pi \vec{M}(\vec{r}, t) \quad (2.2b)$$

onde os vetores  $\vec{P}(\vec{r}, t)$  e  $\vec{M}(\vec{r}, t)$  são a polarização e a magnetização que podem ser induzidas pelos campos externos no meio.

A equação que governa a propagação de uma onda eletromagnética, em um meio material, pode ser obtida a partir das equações de Maxwell, onde estão incluídas as polarizações e magnetizações induzidas no meio. A equação de onda é dada por:

$$\left( \vec{\nabla} \times \vec{\nabla} \times - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \vec{E} = \sigma \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2} + \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial (\vec{\nabla} \times \vec{M})}{\partial t} \quad (2.3)$$

Consideramos ainda que o meio, além de homogêneo, é também isolante, não magnético e que não existem cargas livres. Supondo ainda que o campo elétrico está polarizado na direção x e se propaga na direção z positivo, a Eq. 2.3 toma a seguinte forma:

$$\left( \frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) E(z, t) = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} P(z, t) \quad (2.4)$$

---

\*O sistema de unidades utilizado é o Gaussiano.

Na Eq. 2.4 acima a polarização pode ser interpretada como um termo de fonte para campo elétrico. Dizemos, portanto, que o campo incidente cria uma polarização no meio, que por sua vez gera um campo elétrico que soma-se ao campo elétrico incidente.

A polarização é o resultado da perturbação criada pelo campo elétrico na amostra. A aplicação do campo externo sobre o meio produz uma distorção da densidade de carga elétrica ligada às moléculas e átomos, induzindo momentos de dipolo elétrico microscópicos que desaparecem quando o campo é desligado, depois de um período de relaxação. A polarização é uma grandeza macroscópica resultante da soma dos momentos de dipolo  $\vec{\mu}$  de cada átomo do meio. Supondo que o número de átomos por unidade de volume seja  $N$ , com apenas um elétron opticamente ativo, a polarização é dada por:

$$\vec{P} = N\langle\vec{\mu}\rangle \quad (2.5)$$

onde  $\langle\vec{\mu}\rangle = -e\langle\vec{r}\rangle$  é a média dos momentos de dipolo elétrico de cada átomo, onde  $e$  é a carga elétrica elementar e  $\vec{r}$  é o vetor posição deste elétron.

Supomos que a Eq. 2.4 admita uma solução para o campo elétrico (monocromático, linearmente polarizado na direção  $x$ , e propagando no sentido de  $z$  positivo) na forma:

$$E(z,t) = \varepsilon(z,t)\cos[\omega_L(t - nz/c) - \varphi(z,t)], \quad (2.6)$$

onde  $\varepsilon(z,t)$  e  $\varphi(z,t)$  são, respectivamente, a envoltória e a fase do campo elétrico que variam lentamente em um período óptico ou ao longo de um comprimento de onda. Tal consideração é conhecida como a aproximação da variação lenta da envoltória (SVEA) [26]. Ainda na Eq. 2.6,  $n$  é a contribuição não ressoante para o índice de refração do meio, e  $\omega_L$  a frequência angular da onda eletromagnética. O vetor de onda é dado por  $\vec{k} = \frac{\omega_L}{c} \hat{z}$ .

Podemos escrever o campo elétrico na seguinte forma:

$$E(z,t) = A(z,t) \cdot e^{-i\omega_L(t - nz/c)} + C.C., \quad (2.7)$$

sendo  $A(z,t) = \frac{1}{2} \varepsilon(z,t) e^{i\varphi(z,t)}$ , de onde segue que:

$$\frac{\partial}{\partial z} E(z,t) = \left[ \frac{\partial}{\partial z} A(z,t) + i \frac{n\omega_L}{c} A(z,t) \right] \cdot e^{-i\omega_L(t - nz/c)} + C.C., \quad (2.8)$$

e que

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} E(z,t) = \left[ \frac{\partial^2}{\partial z^2} A(z,t) + 2i \frac{n\omega_L}{c} \frac{\partial}{\partial z} A(z,t) - \frac{n^2 \omega_L^2}{c^2} A(z,t) \right] \cdot e^{-i\omega_L(t - nz/c)} + C.C. \quad (2.9)$$

Ainda temos que:

$$\frac{\partial}{\partial t} E(z, t) = \left[ \frac{\partial}{\partial t} A(z, t) - i\omega_L A(z, t) \right] \cdot e^{-i\omega_L (t - nz/c)} + C.C. \quad (2.10)$$

e

$$\frac{\partial^2}{\partial t^2} E(z, t) = \left[ \frac{\partial^2}{\partial t^2} A(z, t) - 2i\omega_L \frac{\partial}{\partial t} A(z, t) - \omega_L^2 A(z, t) \right] \cdot e^{-i\omega_L (t - nz/c)} + C.C. \quad (2.11)$$

Sendo a polarização escrita na forma:

$$P(z, t) = \wp(z, t) \cdot e^{-i\omega_L (t - nz/c)} + C.C. \quad (2.12)$$

De forma análoga:

$$\frac{\partial^2}{\partial t^2} P(z, t) = \left[ \frac{\partial^2}{\partial t^2} \wp(z, t) - 2i\omega_L \frac{\partial}{\partial t} \wp(z, t) - \omega_L^2 \wp(z, t) \right] \cdot e^{-i\omega_L (t - nz/c)} + C.C. \quad (2.13)$$

A aproximação da variação lenta da envoltória leva às seguintes aproximações:

$$\begin{aligned} \left| \frac{\partial^2}{\partial z^2} A(z, t) \right| &<< \left| k \frac{\partial}{\partial z} A(z, t) \right| \\ \left| \frac{\partial^2}{\partial t^2} A(z, t) \right| &<< \left| \omega_L \frac{\partial}{\partial t} A(z, t) \right| \\ \left| \frac{\partial^2}{\partial t^2} \wp(z, t) \right| &<< \left| \omega_L \frac{\partial}{\partial t} \wp(z, t) \right| << \left| \omega_L^2 \wp(z, t) \right| \end{aligned} \quad (2.14)$$

Substituindo as Eqs. 2.9, 2.11, 2.13 e 2.14, a equação de onda 2.4 torna-se:

$$\left( \frac{\partial}{\partial z} + \frac{n}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right) A(z, t) = \frac{2\pi \omega_L}{nc} i \wp(z, t) \quad (2.15)$$

chamada de *equação de onda reduzida*.

## 2.2 Polarização não-linear

Campos elétricos de amplitudes pequenas (comparados aos campos internos dos átomos) produzem pequenos deslocamentos dos elétrons em torno da posição de equilíbrio ao serem aplicados em um meio dielétrico. Neste caso a polarização induzida pelo meio é linear no campo elétrico aplicado. Quando a intensidade do campo é muito alta, passa ser necessário levar-se em conta contribuições não-lineares para a polarização do meio. Em geral, a polarização não-linear pode ser expandida em séries de potências do campo aplicado [10]:

$$P_i = \epsilon_0 \chi_{ij}^{(1)} E_j + \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)} : E_j(\vec{r}, t) E_k(\vec{r}, t) + \epsilon_0 \chi_{ijkl}^{(3)} : E_j(\vec{r}, t) E_k(\vec{r}, t) E_l(\vec{r}, t) + \dots, \quad (2.16)$$

onde  $\chi^{(n)}$  é a susceptibilidade elétrica de n-ésima ordem. O primeiro termo da Eq. 2.16 é a polarização linear e é responsável por fenômenos ópticos tais como refração e absorção da luz. O primeiro termo não-linear é a contribuição de 2ª ordem, e é responsável por efeitos como geração de segundo harmônico (*second harmonic generation* – SHG), e a geração de soma e diferença das frequências. Para materiais com simetria de inversão, materiais centrossimétricos, este tipo de não-linearidade é nula,  $\chi_{ijk}^{(2)} = 0$ .

O segundo termo não-linear, devido a  $\chi^{(3)}$ , é responsável por efeitos ópticos não-lineares de terceira ordem que incluem geração de terceiro harmônico, mistura de frequências, auto-modulação de fase, efeito Kerr óptico, entre outros. Mesmo para meios com simetria de inversão, temos  $\chi_{ijkl}^{(3)} \neq 0$ . Processos não-lineares de ordem mais alta do que a de terceira são menos eficientes, a não ser para os casos em que uma ressonância do material é explorada, quando efeitos de alta ordem podem torna-se evidentes.

A Eq. 2.16 para ser válida no domínio temporal, pressupõe que a amostra responde instantaneamente ao campo elétrico aplicado; em outras palavras, o meio não exibe nenhuma memória: a polarização em um instante de tempo  $t = t_0$  deve depender apenas do valor do campo em  $t = t_0$ . Como veremos a seguir, para interações ressonantes entre luz e matéria, respostas não instantâneas do meio e efeitos de memória são resultados de processos de relaxação da fase e energia do sistema. Estes efeitos tornam-se perceptíveis quando ocorrem em uma escala de tempo na mesma ordem da duração dos pulsos ou maior do que estes. Felizmente, em processos não-ressonantes, muitos deles são bem descritos por uma resposta instantânea mesmo quando excitados por pulsos com duração da ordem de  $10^{-13}$  s. Mas de um modo ou de outro, os efeitos de memória são prováveis de ocorrer em escalas de tempo da ordem de femtosegundos, e o termo de polarização na n-ésima ordem depende da história do campo em tempos passados [16]:

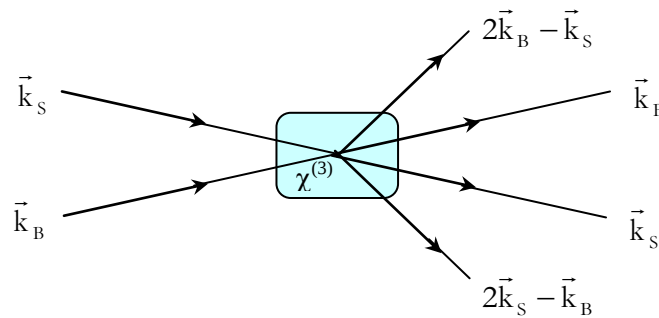
$$P^{(n)}(t) = \epsilon_0 \iiint \chi^{(n)}(t_1, t_2, \dots, t_n) E(t - t_1) E(t - t_1 - t_2) E(t - t_1 - \dots - t_n) dt_1 dt_2 \dots dt_n \quad (2.17)$$

## 2.3 Descrição do processo de mistura de ondas

Quando uma ou mais ondas eletromagnéticas incidem sobre um meio não-linear, é induzida uma polarização não-linear que se torna um termo de fonte na Eq. 2.15, e eventualmente pode gerar outras ondas eletromagnéticas. A resposta não-linear também pode dar origem à troca de energia entre os campos eletromagnéticos incidentes. Ambos tipos de resposta do meio são denominados *processos de mistura de ondas* [7-10]. No caso em que os campos incidentes apresentam a mesma frequência o processo é denominado de *mistura de ondas degenerada*, caso contrário, o processo é dito *não-degenerado*.

O processo de mistura de ondas pode ser realizado experimentalmente em diversas configurações dependendo da direção dos feixes incidentes sobre a amostra. A situação de nosso interesse é aquela em que os dois feixes incidem sobre a amostra fazendo um ângulo (relativamente pequeno, mas irrelevante para o processo). Também gostaríamos de estudar a situação em que a diferença entre as frequências dos feixes incidentes é relativamente pequena, de modo que o processo de mistura de ondas é aproximadamente não-degenerado. Tal configuração experimental permite estudar a troca de energia entre dois feixes, e por isto é denominada de *acoplamento de dois feixes* (*two beam-coupling*) [29-33]. Também fazemos com que um dos feixes seja mais intenso do que outro, sendo denominado o feixe de *bombeio*, ao passo que o segundo feixe, menos intenso, é denominado o feixe de *sonda*. Com isto, o feixe de bombeio perturba as propriedades ópticas do meio, e o de sonda mede estas modificações criadas pelo primeiro.

Uma vez que nosso interesse é investigar processos não-lineares, e tratando-se de vapores de átomos que apresentam simetria de inversão, as polarizações não-lineares de terceira ordem são as polarizações não-lineares de mais baixa ordem presentes no meio. Nesta situação as polarizações induzidas e os campos gerados por estas podem se propagar nas direções (frequências respectivas)  $2\vec{k}_S - \vec{k}_B$ ,  $(2\omega_S - \omega_B)$ ;  $2\vec{k}_B - \vec{k}_S$ ,  $(2\omega_B - \omega_S)$ ;  $\vec{k}_B$ ,  $(\omega_B + \omega_S - \omega_S)$ ; e  $\vec{k}_S$ ,  $(\omega_S + \omega_B - \omega_B)$ , onde  $\vec{k}_S$  e  $\vec{k}_B$  são os vetores de onda dos feixes de sonda e de bombeio, respectivamente. Apesar de apenas dois feixes interagirem na amostra gasosa, o processo pode ser considerado uma mistura de quatro ondas, levando em consideração que um dos feixes contribui com dois fótons.

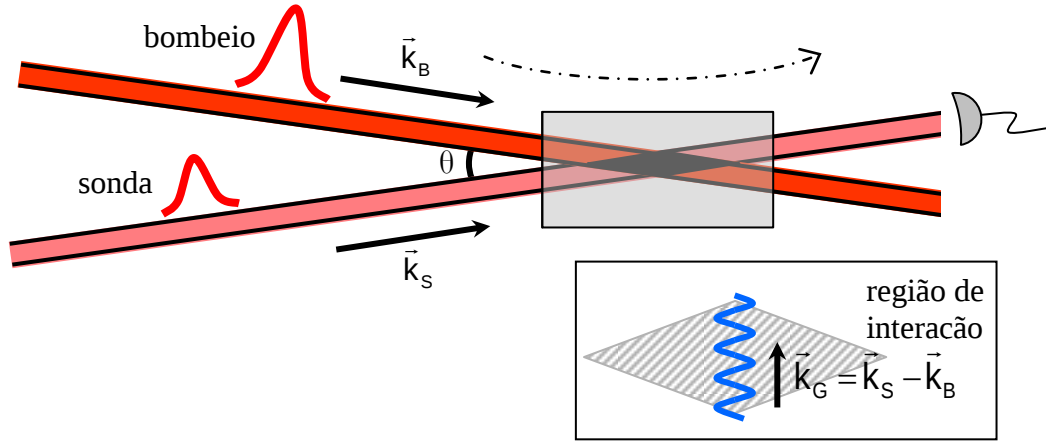


**Figura 2.1:** Diagrama representando o processo de mistura de ondas.

## 2.4 Acoplamento de dois feixes com um laser contínuo (CW)

Para facilitar a compreensão do processo de acoplamento de dois feixes com lasers pulsados, revisaremos primeiro o tratamento do acoplamento de dois feixes com feixes contínuos (CW), como apresentados por [30]. Assumiremos que os campos dos feixes de sonda e bombeio têm amplitudes  $E_S$  e  $E_B$ , e frequências  $\omega_S$  e  $\omega_B$ . Estes dois feixes possuem vetores de onda  $\vec{k}_S$  e  $\vec{k}_B$ , respectivamente.

Uma das formas destes dois feixes trocarem energia entre si é através de um processo de interação coerente em que sua interação cria uma grade de interferência no meio na direção  $\vec{k}_S - \vec{k}_B$ . A grade de intensidade produz uma modulação no índice de refração, pela qual os feixes serão difratados um na direção do outro. Se a não-linearidade do meio é não-instantânea, a grade no índice de refração terá uma fase diferente da grade de intensidade, criando assim um deslocamento de fase na luz difratada. Dependendo do sinal, o desvio da fase pode manifestar-se como perda ou ganho na energia transmitida na direção do feixe de sonda.



**Figura 2.2:** Diagrama representando o processo de acoplamento de dois feixes no caso de um laser contínuo.

Supondo que os campos são aproximadamente co-propagantes ao longo do eixo  $z$ , o campo elétrico no meio é dado pela soma dos campos:

$$\vec{E}(z,t) = \vec{E}_S(z,t) + \vec{E}_B(z,t) + \text{c.c.} \quad (2.18)$$

A partir da Eq. 2.15 e considerando a polarização não-linear como

$$P_{NL}(z,t) = E(z,t) \int_{-\infty}^t dt' R_{NL}(t-t') E(z,t')^2 \quad (2.19)$$

onde  $R_{NL}(t-t')$  é uma função resposta não-linear de terceira ordem, e para o caso em que a resposta é dada por  $R_{NL}(z,t) = R_{NL}^0 / T_{rel.} \exp[-(t-t')/T_{rel.}]$ , e que  $T_{rel.}$  é o tempo de resposta do

meio. As variações de energia do feixe de sonda e bombeio podem ser obtidas a partir da variação da intensidade dos feixes ao longo da direção de propagação:

$$\begin{aligned}\frac{d}{dz}|E_S|^2 &= -8\pi k_S R_{NL}^0 \frac{\Delta\omega T_{rel}}{1 + (\Delta\omega T_{rel})^2} |E_S|^2 |E_B|^2 \\ \frac{d}{dz}|E_B|^2 &= +8\pi k_B R_{NL}^0 \frac{\Delta\omega T_{rel}}{1 + (\Delta\omega T_{rel})^2} |E_S|^2 |E_B|^2\end{aligned}\tag{2.20}$$

onde  $\Delta\omega = \omega_B - \omega_S$ . Para  $\Delta\omega < 0$ , o sonda ganha energia do bombeio, já quando  $\Delta\omega > 0$ , temos o contrário. No caso em que  $\Delta\omega = 0$ , nenhuma transferência de energia ocorre.

No limite em que a resposta é instantânea ( $T_{rel} \rightarrow 0$ ), o acoplamento anula-se. Neste caso não existe atraso na fase entre a grade do índice de refração e de intensidade, não havendo transferência de energia de um feixe para outro. No nosso experimento, como veremos adiante, o tempo de resposta é muito longo comparado com a largura do pulso, cerca de  $10^6$  vezes maior.

É importante ressaltar que a interação entre os feixes nas direções  $\vec{k}_S$  e  $\vec{k}_B$  também produzem componentes da polarização não-linear de terceira ordem nas direções  $2\vec{k}_S - \vec{k}_B$  e  $2\vec{k}_B - \vec{k}_S$ . Os processos de mistura de ondas que acoplam estas ondas incidentes não satisfazem a condição de casamento de fase, a não ser que o ângulo entre os feixes seja muito pequeno. Uma análise mais detalhada mostra que o casamento de fase requer que o ângulo entre os feixes incidentes seja  $\theta < \lambda/nL$ , onde  $n$  é o índice de refração do meio e  $L$  o comprimento da região de interação. Quanto mais o ângulo entre os feixes incidentes excede este valor, menor será a contribuição destes processos.

No caso de lasers pulsados, o processo de transferência de energia entre os feixes de sonda e bombeio apresenta algumas semelhanças com o que foi descrito aqui, mas é preciso tomar cuidado com o fato de que a largura de banda de frequências do laser pulsado implica que diversas combinações de frequências contribuem para o sinal total observado.

Neste capítulo, utilizaremos o formalismo da matriz densidade  $\hat{\rho}$  para calcular a polarização não-linear induzida, e assim, a taxa de transferência de energia entre os campos pulsados de sonda e bombeio. No capítulo 3, apresentaremos outra análise sobre a troca de energia entre pulsos CW com frequências distintas.

## 2.5 Interação Átomo – Campo

### 2.5.1. Matriz Densidade

A evolução do estado quântico de um átomo do sistema é descrita pela equação de Schrödinger. Ao lidar com sistemas físicos reais onde o número de átomos é muito grande, no entanto, não é possível determinar precisamente os estados quânticos do sistema. Nestes casos, é apropriada a utilização do formalismo da matriz densidade para se obter o valor médio de observáveis físicos.

Seja o estado quântico  $|\psi(t)\rangle = \sum_n c_n(t)|u_n\rangle$ , de forma que  $\{|u_n\rangle\}$  é uma base ortonormal. O valor médio de um determinado observável  $\hat{A}$ , denotado por  $\langle\hat{A}\rangle$ , num dado instante de tempo  $t$  é dado por [34]:

$$\langle\hat{A}\rangle = \langle\psi(t)|\hat{A}|\psi(t)\rangle = \sum_{m,n} c_m^*(t)c_n(t)\langle u_m|\hat{A}|u_n\rangle = \sum_{m,n} c_m^*(t)c_n(t)A_{mn} \quad (2.21)$$

O operador densidade  $\hat{\rho}$  é definido por:

$$\hat{\rho} \equiv |\psi(t)\rangle\langle\psi(t)| \quad (2.22)$$

que, na base  $\{|u_n\rangle\}$ , é representado por uma matriz densidade, cujos elementos são:

$$\rho_{mn} = \langle u_m|\hat{\rho}|u_n\rangle = \overline{c_n^*(t)c_m(t)} \quad (2.23)$$

neste formalismo, os elementos da diagonal principal da matriz densidade ( $\rho_{nn}$ ) estão relacionados às populações nos respectivos níveis, enquanto que os elementos fora da diagonal principal ( $\rho_{mn}$ ) estão relacionados às coerências entre os estados  $|u_n\rangle$  e  $|u_m\rangle$ .

O operador densidade  $\hat{\rho}$  é Hermitiano, visto que  $\rho_{mn} = \rho_{nm}^*$ .

Segue que o valor médio de um observável  $\hat{A}$  pode ser dado por:

$$\langle\hat{A}\rangle = \sum_{m,n} c_m^*(t)c_n(t)A_{mn} = \sum_{m,n} \rho_{nm}A_{mn} = \sum_n (\rho A)_{nn} \Rightarrow \langle\hat{A}\rangle = \text{Tr}(\hat{\rho}\hat{A}) \quad (2.24)$$

A evolução temporal do estado  $|\psi(t)\rangle$  é descrita segundo a equação de Schrödinger:

$$i\hbar \frac{d}{dt}|\psi(t)\rangle = \hat{H}|\psi(t)\rangle \quad (2.25)$$

e a partir da equação de Schrödinger, é possível mostrar que a evolução temporal do operador densidade é:

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

Para um sistema de átomos dois níveis, a matriz densidade é uma matriz  $2 \times 2$ , dada por:

$$\begin{aligned} \hat{\rho} &= |\psi(t)\rangle\langle\psi(t)| = (a|a\rangle + b|b\rangle)(\langle a|a^* + \langle b|b^*) \Rightarrow \\ \hat{\rho} &= \begin{pmatrix} aa^* & ab^* \\ ab^* & aa^* \end{pmatrix} \Rightarrow \hat{\rho} \doteq \begin{pmatrix} \rho_{bb} & \rho_{ba} \\ \rho_{ab} & \rho_{aa} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (2.27)$$

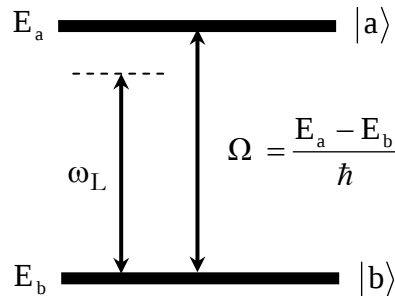
Pelo formalismo da matriz densidade  $\hat{\rho}$ , a polarização pode ser calculada a partir da Eq. (2.5), conforme descrito na seção 2.1:

$$P = N \text{Tr}(\hat{\rho}\hat{\mu}) \quad (2.28)$$

de forma que o operador momento de dipolo  $\hat{\mu}$  na forma matricial tem seus elementos dados por  $\mu_{mn} = -e\langle u_m | \vec{r} | u_n \rangle$ .

### 2.5.2. Equações de Bloch para a interação átomo-campo

A maior parte dos processos envolvendo interação entre radiação e matéria pode ser reduzida ao problema de um sistema atômico de dois níveis ( $|a\rangle$  e  $|b\rangle$ ) e um campo eletromagnético monocromático  $\omega_L$  como dado pela Eq. 2.6.



**Figura 2.3:** Representação esquemática da interação de um sistema atômico de dois níveis com uma onda eletromagnética monocromática.

O sistema atômico é descrito pela função de onda:

$$|\psi(t)\rangle = a(t)|a\rangle + b(t)|b\rangle \quad (2.29)$$

onde o Hamiltoniano de um átomo é dado por:

$$\hat{H}(t) = \hat{H}_0 + \hat{V}(t) \quad (2.30)$$

de modo que  $\hat{H}_0$  é o Hamiltoniano do átomo livre e é dado por:

$$\hat{H}_0 = \frac{\hbar\Omega}{2}|a\rangle\langle a| - \frac{\hbar\Omega}{2}|b\rangle\langle b| \quad (2.31)$$

sendo  $\Omega = \frac{E_a - E_b}{\hbar}$  a frequência de transição entre os estados  $|a\rangle$  e  $|b\rangle$ .

Para frequências ópticas típicas, o comprimento de onda da luz ( $\lambda \approx 10^{-7}$  m) é três ordens de grandeza maior que as dimensões atômicas ( $10^{-10}$  m). Assim, é razoável que desconsideremos as variações espaciais do campo elétrico. Com isto, a perturbação devido à interação de um átomo com a radiação é dada por:

$$\hat{V}(t) = -\vec{\mu} \cdot \vec{E}(t) \quad (2.32)$$

onde  $\vec{\mu}$  é o operador momento de dipolo elétrico ( $\vec{\mu} = -e\vec{r}$ ,  $e$  é a carga elétrica do elétron e  $\vec{r}$  o vetor posição do elétron).

Uma vez que  $\vec{\mu}$  é um operador ímpar, os elementos de matriz da diagonal são nulos deste operador ( $\mu_{aa} = \mu_{bb} = 0$ ). Para o caso de um sistema de dois níveis, isto sempre é verdade, contudo, é necessário que os estados  $|a\rangle$  e  $|b\rangle$  tenham paridade bem definida, para que esta afirmação seja verdadeira. O operador dipolo elétrico é escrito na base dos estados atômicos como:

$$\hat{\mu} = \mu_{ba}|b\rangle\langle a| + \mu_{ab}|a\rangle\langle b| \quad (2.33)$$

Escrevendo o campo elétrico na forma

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = [\vec{E}_0(\vec{r}, t) \cdot e^{-i\omega_L t} + \vec{E}_0^*(\vec{r}, t) \cdot e^{i\omega_L t}] \hat{z}, \text{ onde } \vec{E}_0(\vec{r}, t) = \frac{1}{2}(\vec{\epsilon}(\vec{r}, t) e^{i\varphi(\vec{r}, t)}) e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad (2.34)$$

temos que o potencial de interação é:

$$\hat{V}(t) = -[\mu_{ab}|a\rangle\langle b| + \mu_{ba}|b\rangle\langle a|]\vec{E}_0^*(\vec{r}, t)e^{i\omega_L t} - [\mu_{ab}|a\rangle\langle b| + \mu_{ba}|b\rangle\langle a|]\vec{E}_0(\vec{r}, t)e^{-i\omega_L t} \quad (2.35)$$

O operador  $|b\rangle\langle a|$  leva o átomo do estado fundamental para o excitado, e o operador  $|a\rangle\langle b|$  faz o inverso. Estes operadores têm uma evolução temporal livre proporcional a  $e^{-i\Omega t}$  e  $e^{i\Omega t}$ , respectivamente. Desta forma, o segundo e terceiro termo evoluem com uma diferença de frequência  $|\omega_L - \Omega|$ , e os outros com uma frequência  $|\omega_L + \Omega| \approx 2\Omega$ .

Os termos com frequência  $|\omega_L + \Omega|$  (não ressonantes) podem ser desprezados em intervalos de detecção grandes se comparados ao período ótico. Ao desprezar os termos não ressonantes do potencial de interação estamos realizando a chamada aproximação de onda girante (R.W.A. – *Rotating Wave Approximation*). Com esta aproximação, o Hamiltoniano de interação fica escrito da forma:

$$\hat{V}(t) = -\mu E_0^*(\vec{r}, t) e^{i\omega_L t} |b\rangle\langle a| - \mu E_0(\vec{r}, t) e^{-i\omega_L t} |a\rangle\langle b| \quad (2.36)$$

onde a fase entre os estados  $|a\rangle$  e  $|b\rangle$  foi escolhida de forma que  $\mu = \mu_{ab} = \mu_{ba}$ .

Para um sistema atômico com o Hamiltoniano descrito acima, temos que a partir da Eq. 2.26, a evolução temporal da diferença dos termos população e dos termos de coerência da matriz densidade, conhecidas como *equações de Bloch*, são dados por:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}(\rho_{aa} - \rho_{bb}) &= \frac{2i}{\hbar} (V_{ab}^* \rho_{ab} - V_{ab} \rho_{ab}^*) - \frac{(\rho_{aa} - \rho_{bb}) - (\rho_{aa} - \rho_{bb})_0}{T_1} \\ \frac{d\rho_{ab}}{dt} &= -i\Omega \rho_{ab} + \frac{i}{\hbar} V_{ab} (\rho_{aa} - \rho_{bb}) - \frac{\rho_{ab}}{T_2} \\ \frac{d\rho_{ba}}{dt} &= i\Omega \rho_{ba} - \frac{i}{\hbar} V_{ab}^* (\rho_{aa} - \rho_{bb}) - \frac{\rho_{ba}}{T_2} \end{aligned} \quad (2.37)$$

onde  $V_{ab} = -\mu E_0(\vec{r}, t) e^{-i\omega_L t} |a\rangle\langle b|$  e  $V_{ba} = V_{ab}^*$ .

No sistema de equações dadas acima,  $T_1$  é o tempo de relaxação da população e  $T_2$  é o tempo de relaxação da coerência que foram introduzidos fenomenologicamente. A primeira equação descreve a evolução temporal da diferença de população entre os estados excitado e fundamental, já a segunda e terceira equação determina a evolução temporal das coerências.

O tempo de relaxação  $T_2$  da coerência está relacionado ao fato de que se o campo  $E(t)$  for desligado, esperamos que  $\rho_{ab}$  decaia e eventualmente se aproxime de zero à medida que a fase relativa das coerências entre as  $N$  autofunções no ensemble seja perdida via “colisões”. Estas colisões são caracterizadas pelo fato que elas conservam energia, mas causam perda de informação envolvendo a fase da função de onda  $|\psi(t)\rangle = \sum_n \exp(-iE_n t/\hbar + \phi_n) |u_n\rangle$ .

Ainda com respeito às Eqs. 2.37, sendo  $N$  a densidade de átomos,  $\Delta N \equiv N(\rho_{aa} - \rho_{bb})$  é a diferença de densidade de população de átomos entre os estados excitado e fundamental. Se o campo  $E(t)$  fosse desligado,  $(\rho_{aa} - \rho_{bb})$  decairia para um valor de equilíbrio  $(\rho_{aa} - \rho_{bb})_0$  com uma constante de tempo  $T_1$ .

Escrevendo as coerências na forma  $\rho_{ab} = \sigma_{ab} e^{-i\omega_L t}$  e  $\rho_{ba} = \sigma_{ba} e^{i\omega_L t} = \sigma_{ab}^*$ , podemos escrever as equações de Bloch da seguinte forma:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}(\rho_{aa} - \rho_{bb}) &= \frac{2i\mu}{\hbar} (E_0(\vec{r}, t)\sigma_{ab}^* - E_0^*(\vec{r}, t)\sigma_{ab}) - \gamma_1 [(\rho_{aa} - \rho_{bb}) - (\rho_{aa} - \rho_{bb})_0] \\ \frac{d\sigma_{ab}}{dt} &= -(i\Delta + \gamma_2)\sigma_{ab} - \frac{i\mu}{\hbar} E_0(\vec{r}, t)(\rho_{aa} - \rho_{bb}) \\ \frac{d\sigma_{ba}}{dt} &= (i\Delta + \gamma_2)\sigma_{ba} + \frac{i\mu}{\hbar} E_0^*(\vec{r}, t)(\rho_{aa} - \rho_{bb}) \end{aligned} \quad (2.38)$$

onde  $\Delta \equiv \Omega - \omega_L$  é dessintonização entre a frequência de ressonância de um átomo particular e a frequência do campo elétrico, e  $\gamma_1 = 1/T_1$  e  $\gamma_2 = 1/T_2$  são as taxas de decaimento da população e coerência respectivamente.

A polarização induzida pelo campo externo é dada por:

$$P(t) = \langle \hat{P} \rangle = N \text{Tr}[\hat{\rho} \hat{\mu}] = N\mu(\rho_{ab} + \rho_{ba}) = 2N\mu \text{Re}(\rho_{ab}) \quad (2.39)$$

Escrevendo as coerências em termos de  $\sigma_{ab}$  e  $\sigma_{ba}$ , podemos escrever a polarização na forma:

$$P(t) = N\mu(\sigma_{ab} e^{-i\omega_L t} + \sigma_{ba} e^{i\omega_L t}) = 2N\mu \text{Re}(\sigma_{ab} e^{-i\omega_L t}) \quad (2.40)$$

e assim de acordo com a Eq. 2.12, a amplitude do polarização é:

$$\wp(\vec{r}, t) e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} = N\mu \sigma_{ab} \quad (2.41)$$

## 2.6 Cálculo da polarização não-linear de 3ª. ordem

Na seção anterior vimos como calcular a polarização criada num meio constituído de átomos de dois níveis, contudo não é, em geral, possível obter uma simples equação de movimento para  $P(t)$  a partir do sistema de Eq. 2.38. Somente em casos especiais isto pode ser feito. Para o desacoplamento das equações no sistema 2.38 utilizaremos o método perturbativo. Para encontrar polarizações não-lineares e suscetibilidades não-lineares de várias ordens, expandiremos os elementos da matriz densidade [10].

$$\rho = \rho^{(0)} + \rho^{(1)} + \rho^{(2)} + \rho^{(3)} + \dots \quad (2.42)$$

$$e \quad P(t) = \langle P \rangle = \langle P^{(1)} \rangle + \langle P^{(2)} \rangle + \langle P^{(3)} \rangle + \dots \quad (2.43)$$

$$\text{com} \quad P^{(n)}(t) = \langle P^{(n)} \rangle = \text{Tr}[\hat{\rho}^{(n)} \hat{P}] \quad (2.44)$$

onde  $\rho^{(0)}$  é o operador matriz densidade para um sistema em equilíbrio térmico. Assumimos que nenhuma polarização ótica está permanente no meio, de forma que  $\langle P^{(0)} \rangle = 0$ .

Estamos interessados em calcular a polarização não-linear de 3ª. ordem induzida pelo meio devido à interação do sistema com os campos de sonda e bombeio. Para isto é necessário determinar os termos de coerência do operador densidade em 3ª. ordem:

$$P^{(3)}(t) = N\mu(\sigma_{ab}^{(3)} \cdot e^{-i\omega_L t} + \sigma_{ba}^{(3)} \cdot e^{i\omega_L t}). \quad (2.45)$$

Consideraremos que antes da interação os átomos do ensemble encontram-se inicialmente no estado fundamental  $(\rho_{aa} - \rho_{bb})_{t \rightarrow -\infty} = -1$  e que não existe nenhuma coerência no sistema, isto é,  $(\rho_{ab})_{t \rightarrow -\infty} = (\rho_{ba})_{t \rightarrow -\infty} = 0$ . Após a interação com o campo elétrico, consideraremos que a população transferida para no estado excitado é muito pequena comparada com a população total,  $[(\rho_{aa} - \rho_{bb}) - (\rho_{aa} - \rho_{bb})_0] \ll (\rho_{aa} - \rho_{bb})_0$ .

Considerando o potencial de interação  $\hat{V}(t)$  como uma perturbação, a evolução do termo de coerência  $\sigma_{ab}$  em primeira ordem é dada por:

$$\frac{d\sigma_{ab}^{(1)}}{dt} = -(i\Delta + \gamma_2)\sigma_{ab}^{(1)} - \frac{i\mu}{\hbar} E_0(\vec{r}, t)(\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)}) \quad (2.46)$$

Pelas considerações acima,  $\rho_{bb}^{(0)} = 1$  e  $\rho_{aa}^{(0)} = 0$ , daí:

$$\frac{d\sigma_{ab}^{(1)}}{dt} = -(i\Delta + \gamma_2)\sigma_{ab}^{(1)} + \frac{i\mu}{\hbar} E_0(\vec{r}, t) \quad (2.47)$$

A equação acima pode ser integrada de forma que:

$$\sigma_{ab}^{(1)}(t) = \int_{-\infty}^t \frac{i\mu}{\hbar} E_0(\vec{r}, t_1) e^{(i\Delta + \gamma_2)(t_1 - t)} dt_1 \quad (2.48)$$

A evolução temporal da diferença dos termos de população da matriz densidade em segunda ordem é dada por:

$$\frac{d}{dt}(\rho_{aa} - \rho_{bb})^{(2)} = \frac{2i\mu}{\hbar} (E_0(\vec{r}, t) \sigma_{ba}^{(1)} - E_0^*(\vec{r}, t) \sigma_{ab}^{(1)}) - \gamma_1 [(\rho_{aa} - \rho_{bb})^{(2)} - (\rho_{aa} - \rho_{bb})_0^{(2)}] \quad (2.49)$$

Integrando a equação acima:

$$[\rho_{aa}(t) - \rho_{bb}(t)]^{(2)} = \int_{-\infty}^t \frac{2i\mu}{\hbar} [E_0(\vec{r}, t_2) \sigma_{ba}^{(1)}(t_2) - E_0^*(\vec{r}, t_2) \sigma_{ab}^{(1)}(t_2)] \cdot e^{\gamma_1(t_2 - t)} dt_2 \quad (2.50)$$

Substituindo  $\sigma_{ab}^{(1)}$  e  $\sigma_{ba}^{(1)}$  na equação anterior:

$$\begin{aligned} [\rho_{aa}(t) - \rho_{bb}(t)]^{(2)} &= \frac{2\mu^2}{\hbar^2} \int_{-\infty}^t dt_2 \int_{-\infty}^{t_2} dt_1 E_0^*(\vec{r}, t_2) E_0(\vec{r}, t_1) \cdot e^{\gamma_2(t_1 - t_2) + \gamma_1(t_2 - t)} e^{i\Delta(t_1 - t_2)} \\ &\quad + \frac{2\mu^2}{\hbar^2} \int_{-\infty}^t dt_2 \int_{-\infty}^{t_2} dt_1 E_0(\vec{r}, t_2) E_0^*(\vec{r}, t_1) \cdot e^{\gamma_2(t_1 - t_2) + \gamma_1(t_2 - t)} e^{-i\Delta(t_1 - t_2)} \end{aligned} \quad (2.51)$$

Finalmente podemos calcular as coerências de 3ª. ordem a partir da equação de movimento das coerências:

$$\frac{d\sigma_{ab}^{(3)}}{dt} = -(i\Delta + \gamma_2) \sigma_{ab}^{(3)} + \frac{i\mu}{\hbar} E_0(\vec{r}, t) (\rho_{aa}^{(2)} - \rho_{bb}^{(2)}) \quad (2.52)$$

Integrando a equação acima, segue que:

$$\sigma_{ba}^{(3)}(t) = \int_{-\infty}^t \frac{i\mu}{\hbar} E_0^*(\vec{r}, t_3) \cdot [\rho_{aa}^{(2)}(t_3) - \rho_{bb}^{(2)}(t_3)] \cdot e^{(i\Delta + \gamma_2)(t_3 - t)} dt_3 \quad (2.53)$$

E substituindo a Eq. 2.51 na equação acima, vem:

$$\begin{aligned} \sigma_{ab}^{(3)} &= \frac{2i\mu^3}{\hbar^3} \int_{-\infty}^t dt_3 \int_{-\infty}^{t_3} dt_2 \int_{-\infty}^{t_2} dt_1 E_0(\vec{r}, t_3) E_0^*(\vec{r}, t_2) E_0(\vec{r}, t_1) e^{\gamma_2(t_3 - t) + \gamma_1(t_2 - t_3) + \gamma_2(t_1 - t_2)} e^{i\Delta(t_3 - t_2 + t_1 - t)} \\ &\quad + \frac{2i\mu^3}{\hbar^3} \int_{-\infty}^t dt_3 \int_{-\infty}^{t_3} dt_2 \int_{-\infty}^{t_2} dt_1 E_0(\vec{r}, t_3) E_0(\vec{r}, t_2) E_0^*(\vec{r}, t_1) e^{\gamma_2(t_3 - t) + \gamma_1(t_2 - t_3) + \gamma_2(t_1 - t_2)} e^{-i\Delta(t_3 + t_2 - t_1 - t)} \end{aligned} \quad (2.54)$$

Uma vez que a polarização é criada pela superposição do feixe de bombeio e do feixe de sonda, a amplitude do campo elétrico  $E_0(\vec{r}, t)$  pode ser calculada em termos das amplitudes dos campos de excitação  $\vec{E}_B(t)$  e de sonda  $\vec{E}_S(t)$ , (ver apêndice A) isto é, mostra-se que:

$$E_0(t) = \frac{1}{2} \left[ \varepsilon_{0B}(\vec{r}, t) e^{i\vec{k}_B \cdot \vec{r}} + \varepsilon_{0S}(\vec{r}, t) e^{i\vec{k}_S \cdot \vec{r}} \right], \quad (2.55)$$

onde  $\varepsilon_{0B}(\vec{r}, t) = \varepsilon(\vec{r}, t) \cdot e^{-i\omega t}$  e  $\varepsilon_{0S}(\vec{r}, t) = \kappa \varepsilon_{0B}(\vec{r}, t - \tau) \cdot e^{i\omega \tau}$ , de modo que  $\kappa^2$  mede a razão entre as intensidades dos campos elétricos dos feixes de sonda e bombeio (faremos uso do caso em que  $\kappa^2 = 1$ ), e  $\tau$  é o atraso relativo entre os campos de sonda e bombeio. Substituindo  $E_0(t)$  na Eq. 2.54, veremos que a polarização não-linear de 3ª. ordem induzida no meio apresenta componentes que podem se propagar nas direções  $2\vec{k}_B - \vec{k}_S$ ,  $2\vec{k}_S - \vec{k}_B$ ,  $\vec{k}_S - \vec{k}_S + \vec{k}_B$  e  $\vec{k}_B - \vec{k}_B + \vec{k}_S$ , sendo na direção desta última a direção de propagação da polarização que nos interessa neste trabalho, uma vez que desejamos detectar variações do campo de sonda após se propagar por um meio não-linear contendo vapor de Rb.

Desta forma, a polarização não-linear de terceira ordem na direção criada pelo meio na direção do feixe de sonda tem sua amplitude  $\wp^{(3)}(\vec{r}, t)$  dada por:

$$\begin{aligned} \wp_S^{(3)}(\vec{r}, t, \tau) = & \frac{N\mu_i^4}{4\hbar^3} \int_{-\infty}^t dt_3 \int_{-\infty}^{t_3} dt_2 \int_{-\infty}^{t_2} dt_1 \varepsilon_{0S}(\vec{r}, t_3) \varepsilon_{0B}^*(\vec{r}, t_2) \varepsilon_{0B}(\vec{r}, t_1) e^{\gamma_2(t_3-t) + \gamma_1(t_2-t_3) + \gamma_2(t_1-t_2)} e^{i\Delta(t_3-t_2+t_1-t)} \\ & + \frac{N\mu_i^4}{4\hbar^3} \int_{-\infty}^t dt_3 \int_{-\infty}^{t_3} dt_2 \int_{-\infty}^{t_2} dt_1 \varepsilon_{0S}(\vec{r}, t_3) \varepsilon_{0B}(\vec{r}, t_2) \varepsilon_{0B}^*(\vec{r}, t_1) e^{\gamma_2(t_3-t) + \gamma_1(t_2-t_3) + \gamma_2(t_1-t_2)} e^{i\Delta(t_3+t_2-t_1-t)} \\ & + \frac{N\mu_i^4}{4\hbar^3} \int_{-\infty}^t dt_3 \int_{-\infty}^{t_3} dt_2 \int_{-\infty}^{t_2} dt_1 \varepsilon_{0B}(\vec{r}, t_3) \varepsilon_{0S}(\vec{r}, t_2) \varepsilon_{0B}^*(\vec{r}, t_1) e^{\gamma_2(t_3-t) + \gamma_1(t_2-t_3) + \gamma_2(t_1-t_2)} e^{i\Delta(t_3+t_2-t_1-t)} \\ & + \frac{N\mu_i^4}{4\hbar^3} \int_{-\infty}^t dt_3 \int_{-\infty}^{t_3} dt_2 \int_{-\infty}^{t_2} dt_1 \varepsilon_{0B}(\vec{r}, t_3) \varepsilon_{0B}^*(\vec{r}, t_2) \varepsilon_{0S}(\vec{r}, t_1) e^{\gamma_2(t_3-t) + \gamma_1(t_2-t_3) + \gamma_2(t_1-t_2)} e^{i\Delta(t_3-t_2+t_1-t)} \end{aligned} \quad (2.56)$$

Devido à simultaneidade, podemos entender esta polarização como sendo composta pela soma de três termos distintos na qual o mecanismo físico básico pode ser de fácil entendimento [27].

O primeiro destes termos, chamado de termo de população ou absorção saturada (*level population*), é dado pela soma das duas primeiras integrais da Eq. 2.56. Esta polarização é proporcional à elevação de população para o estado excitado que foi induzida pelo feixe de bombeio e que afeta o feixe de sonda ao passar pelo meio. Este termo é o único que precisa ter o pulso do feixe de sonda atrasado em relação aos pulsos do feixe de bombeio, e decai com uma constante de tempo igual a  $T_1$ .

A segunda contribuição é dada pela terceira integral da Eq. 2.56 e é chamada de acoplamento da polarização (*pump polarization coupling*). Tal termo é proporcional à polarização induzida pelo campo de bombeio e, quando o campo de sonda interage com esta polarização, cria uma modulação espacial das populações nos níveis fundamental e excitado que desempenha um papel semelhante a uma grade de difração. O campo de bombeio então interage com esta modulação espacial da população criando assim uma componente de polarização coerente com o campo de sonda. Este processo só ocorre quando o pulso de bombeio está sobreposto temporalmente com o pulso de sonda.

O terceiro termo da polarização, dado pela última integral, na Eq. (2.56) pode ser entendido como uma perturbação no decaimento da polarização induzida pelo campo de sonda, devido ao efeito Stark dinâmico produzido pelo campo de bombeio, que modula a frequência de transição atômica,  $\Omega$ . Este termo é chamado de decaimento livre da indução perturbada (*perturbed free induction decay*), e somente é detectado quando o campo de sonda coincide temporalmente com o campo de bombeio. Esta polarização também continua a ser relativamente importante quando o campo de bombeio não está em ressonância com a frequência de transição dos átomos, de forma que as populações do estado fundamental e do estado excitado não são muito alteradas.

## 2.7 Variação da Energia Transmitida

Nesta seção desenvolveremos a teoria para o cálculo da variação da energia  $\Delta U$  detectada pelo feixe de sonda em função do atraso  $\tau$  entre os feixes. Nossa teoria está limitada a um sistema de dois níveis, capaz de explicar parte de nossos resultados experimentais. A potência média por unidade de volume dissipada pelo campo elétrico devido à interação com os dipolos elétricos do meio é dada por:

$$\frac{\overline{\text{Potência}}}{\text{Volume}} = \overline{\vec{E} \cdot \frac{\partial \vec{P}}{\partial t}} \quad (2.57)$$

onde a barra na equação acima denota uma média temporal. A quantidade de interesse experimental é a variação da energia do campo de sonda, de modo que é este campo que deve ser considerado na Eq. (2.57), sendo que a polarização correspondente,  $\vec{P}_s^{(3)}$ , é a que tem vetor de onda na mesma direção do campo de sonda:  $\vec{k}_s = \vec{k}_s + \vec{k}_B - \vec{k}_B$ . Considerando ainda que o detector é lento comparado com a duração temporal do pulso de sonda, a variação da energia do pulso de sonda,  $\Delta U_s(\tau)$ , será dada por:

$$\Delta U_s(\tau) = V \int_{-\infty}^{\infty} \overline{\left( \vec{E}_s \cdot \frac{\partial \vec{P}_s}{\partial t} \right)} dt \quad (2.58)$$

Na Eq. (2.58) acima supomos que a região de interação (na qual há superposição dos feixes de bombeio e sonda) é opticamente fina, por simplicidade. Em nossas condições experimentais a região de superposição dos dois feixes é da ordem de 1 mm.

Escrevendo o campo elétrico do feixe de sonda e a polarização do meio nas formas:

$$\vec{E}_s(z,t) = \frac{1}{2} \left[ \varepsilon_{0s}(z,t) \cdot e^{-i\omega_L(t-nz/c)} + \varepsilon_{0s}^*(z,t) \cdot e^{-i\omega_L(t-nz/c)} \right] \hat{z} \quad (2.59)$$

e

$$\vec{P}(z,t) = \left[ \wp(z,t,\tau) \cdot e^{-i\omega_L(t-nz/c)} + \wp^*(z,t,\tau) \cdot e^{i\omega_L(t-nz/c)} \right] \hat{z} \quad (2.60)$$

Assim, considerando a aproximação da variação lenta da envoltória, temos  $\partial P(z,t)/\partial t = -i\omega_L \wp(z,t,\tau) \cdot e^{-i\omega_L(t-nz/c)} + C.C.$ , e então podemos escrever:

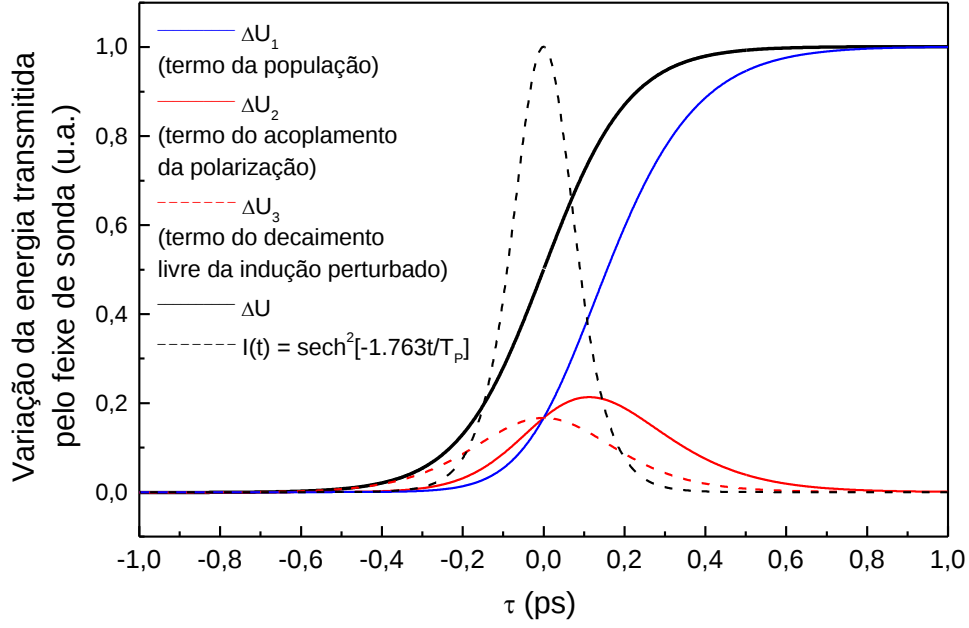
$$\begin{aligned} \vec{E}_s \cdot \frac{\partial \vec{P}}{\partial t} = \frac{i\omega_L}{2} \left[ -\wp(t,\tau) \varepsilon_{0s}(t) e^{-2i\omega_L(t-nz/c)} + \varepsilon_{0s}^*(t) \wp^*(t,\tau) \cdot e^{2i\omega_L(t-nz/c)} \right. \\ \left. - \varepsilon_{0s}^*(t) \wp(t,\tau) + \varepsilon_{0s}(t) \wp^*(t,\tau) \right] \end{aligned} \quad (2.61)$$

As envoltórias das polarizações foram escritas apenas como função do tempo já que as variações destas é muito pequena com relação à distância que os pulsos percorrem ao longo do meio. E assim, desprezando os termos acompanhados das exponenciais uma vez que é feita uma média temporal na expressão acima, temos:

$$\Delta U(\tau) = \omega_L V \text{Im} \int_{-\infty}^{\infty} \wp(t,\tau) \varepsilon_{0s}^*(t) dt \quad (2.62)$$

Nos nossos cálculos, trabalharemos com pulsos curtos, cuja a largura temporal ( $T_p$  é da ordem de 100 fs) é muito menor que os tempos de relaxação da coerência e da população ( $T_1$  e  $T_2$  são da ordem de 100 ns). Ainda, consideraremos que os campos elétricos estão em ressonância com a transição atômica. Desta forma, a polarização não-linear de 3ª. ordem que acabamos de calcular desta seção pode ser simplificada bastante. Com estas considerações teríamos  $\gamma_1 = \gamma_2 = 0$  e  $\Delta = 0$ .

Para uma melhor análise dos resultados experimentais que apresentaremos neste trabalho, a variação de energia transmitida foi calculada em simulações computacionais usando programas em C++ para os três diferentes termos da polarização induzida pelo meio que foram discutidos na seção 2.6. Para fazer as simulações teóricas, tivemos a colaboração do professor Daniel Felinto do Departamento de Física da UFPE, que cedeu gentilmente um programa utilizado em sua tese de doutorado, e que foram modificados com a grande ajuda do estudante de mestrado em física Douglas Pinto, com objetivo de atender nossas necessidades. A figura a seguir mostra cada uma das contribuições dos termos das polarizações para  $\Delta U(\tau)$  para uma situação física em que os efeitos de propagação do feixe pelo meio tornam-se desprezíveis e que os pulsos são secantes hiperbólicas com uma largura temporal  $T_p = 180$  fs.



**Figura 2.4:** Contribuições dos três termos de polarização sobre a variação da energia transmitida  $\Delta U(\tau)$  desconsiderando os efeitos de propagação pelo meio. Os pulsos nessas simulações são secantes hiperbólicas com largura temporal de 180 fs. Consideramos nessas simulações também que  $\gamma_1 = \gamma_2 = 0$  e  $\Delta = 0$ .

É importante notar que em  $\tau = 0$ , as três diferentes contribuições interceptam-se, uma vez que as expressões das polarizações para cada um dos três diferentes termos tornam-se iguais. Além do mais, o termo de população  $\Delta U_1$  é nulo em atrasos negativos na qual  $\tau \ll -T_p$ , pois o campo do feixe de sonda antecede o campo do feixe de bombeio, e assim ele atravessa o meio sem detectar nenhuma alteração de população dos átomos do meio. Em atrasos de módulo da ordem da largura do pulso, a contribuição  $\Delta U_1$  sofre um aumento até um valor limite, o qual foi usado para normalizar as curvas das demais contribuições. Para atrasos positivos em que  $\tau \gg T_p$ , a variação de energia transmitida torna-se constante, já que o campo de sonda está suficientemente atrasado em relação ao campo do feixe de bombeio de modo que toda população já foi levada o estado excitado. Nota-se também que o termo de população, em relação aos demais, tem a maior contribuição em atrasos positivos ( $\tau > 0$ ).

O termo de acoplamento da polarização  $\Delta U_2$  é simétrico com seu máximo deslocado para um atraso positivo. Esse termo torna-se não-nulo apenas quando o módulo do atraso entre os feixes de bombeio e de sonda não é muito maior que a duração dos pulsos,  $\tau \approx T_p$ . Podemos interpretar este resultado considerando o fato que o campo de bombeio precisa anteceder o campo de sonda para poderem criar a grade de difração que irá, em seguida, difratar o campo de bombeio na direção do feixe de sonda.

Finalmente, o termo de decaimento livre da indução perturbada  $\Delta U_3$ , que é simétrico em torno de  $\tau = 0$ , tem uma largura que também da ordem da largura temporal do pulso, e é maior (menor) do que  $\Delta U_1$  e  $\Delta U_2$  para atrasos negativos (positivos).

## 2.8 Propagação linear de um pulso curto

Nesta seção abordaremos o problema da propagação de pulsos curtos de baixa intensidade em meios ressonantes e densos [11]. Assumiremos que o meio ressonante seja constituído de  $N$  sistemas atômicos de dois níveis por unidade de volume imersos em um dielétrico homogêneo que pode ser caracterizado por um índice de refração  $n$  no qual é constante sobre o espectro do pulso.

Quando o campo incidente interage com o meio, uma polarização é induzida, e se tornará um termo de fonte na equação de uma onda eletromagnética. Deste modo, a polarização induzida pelo meio criará um campo elétrico que irá se somar com o campo incidente, o resultado é um campo distorcido temporalmente em relação ao seu perfil inicial.

A distorção do perfil temporal do pulso que descreveremos nesta seção pode ser explicada por vários argumentos, um deles é que, como o pulso é curto e tem largura temporal menor do que o tempo de relaxação da coerência  $T_2$ , este terá um perfil espectral mais largo que a linha de absorção do meio atenuador. Tal pulso, quando se propagar sofrerá uma drástica diminuição da amplitude do campo em torno da frequência central da transição atômica dos átomos devido ao meio absorvedor. Esta “mordida” no espectro do pulso será tão mais profunda quanto maior for a densidade do meio, que pode ser controlada experimentalmente pela temperatura, ou quanto maior for a distância percorrida pelo pulso ao longo do meio. Além da absorção do espectro do pulso na frequência de transição, o meio produz efeitos de dispersão no espectro do pulso propagado. Tal efeito de dispersão sobre as componentes espectrais não absorvidas faz com que o perfil temporal do pulso seja modificado.

Para determinar a forma do pulso propagado, iniciaremos com o cálculo da polarização linear do meio. O valor esperado do momento de dipolo elétrico de um átomo no estado  $|\psi(t)\rangle = a(t)|a\rangle + b(t)|b\rangle$  é dado por:

$$\langle \hat{\mu} \rangle = \langle \psi(t) | \hat{\mu} | \psi(t) \rangle = \mu (a^* b + ab^*) = 2 \operatorname{Re}(ab^*) \quad (2.63)$$

Ao invés da função de onda  $|\psi(t)\rangle$ , o estado de um átomo pode ser representado pelo vetor de Bloch,  $\vec{r}(t) = X \hat{x} + Y \hat{y} + Z \hat{z}$ , cujas componentes são reais e definidas da seguinte forma:

$$(X - iY)e^{-i(\omega_L t - nZ/c) + i\varphi(z,t)} \equiv 2ab^*, \quad (2.64a)$$

$$Z = aa^* - bb^* \quad (2.64b)$$

Temos que,  $X^2 + Y^2 + Z^2 = 1$ , pois  $aa^* + bb^* = 1$ . As componentes  $X$  e  $Y$  do vetor de Bloch estão relacionadas com os termos de coerência da matriz densidade  $\hat{\rho}$ , e a componente  $Z$  por sua vez com os termos de população de  $\hat{\rho}$ . A diferença de população entre os átomos no estado excitado e no estado fundamental por unidade de volume é  $NZ$ .

O valor esperado do momento de dipolo elétrico de um átomo no estado  $|\psi(t)\rangle$  é dado em termos das componentes do vetor de Bloch por:

$$\langle \hat{\mu} \rangle = \mu \text{Re} [(X - iY) e^{-i(\omega_L t - nz/c) + i\phi(z,t)}] \quad (2.65)$$

Assumiremos uma distribuição de frequência de transições atômicas descrita por uma função de distribuição normalizada  $g(\Delta)$ , onde  $\Delta \equiv \Omega - \omega_L$  é a desintonização entre a frequência de ressonância de um átomo particular e a frequência do campo elétrico. Para este meio alargado não homogêneo, a polarização linear induzida pelo campo elétrico aplicado é:

$$P(z,t) = N \int_{-\infty}^{\infty} \langle \hat{\mu} \rangle g(\Delta) d\Delta = N \mu \text{Re} \left\{ \int_{-\infty}^{\infty} [(X(z,t,\Delta) - iY(z,t,\Delta))] e^{-i(\omega_L t - nz/c) + i\phi(z,t)} g(\Delta) d\Delta \right\} \quad (2.66)$$

onde  $X(z,t,\Delta)$  e  $Y(z,t,\Delta)$  são as variáveis definidas pela Eq. 2.64a, que correspondem a um átomo com frequência de transição  $\Omega = \omega_L + \Delta$ .

Na notação da seção 2.1, temos  $P(z,t) = \wp(z,t) \cdot e^{-i\omega_L(t - nz/c)} + \text{C.C.}$ , com:

$$\wp(z,t) = \frac{1}{2} e^{i\phi(z,t)} \cdot \left( \int_{-\infty}^{\infty} [(X(z,t,\Delta) - iY(z,t,\Delta))] g(\Delta) d\Delta \right) \quad (2.67)$$

e a equação de onda na forma reduzida, Eq. (2.15), torna-se:

$$\left( \frac{\partial}{\partial z} + \frac{n}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right) (\wp(z,t) \cdot e^{i\phi(z,t)}) = \frac{2\pi N \omega_L}{nc} i \int_{-\infty}^{\infty} [(X(z,t,\Delta) - iY(z,t,\Delta))] g(\Delta) d\Delta e^{i\phi(z,t)} \quad (2.68)$$

A partir da evolução temporal da matriz densidade para um sistema de dois níveis interagindo com um campo elétrico e as definições das componentes do vetor de Bloch dadas pela Eq. 2.64, temos que a resposta de um sistema atômico na qual tem frequência de transição  $\Omega = \omega_L + \Delta$ , a um campo elétrico pode ser escrita na forma:

$$\dot{X}(z,t,\Delta) = -[\Delta + \dot{\phi}(z,t)]Y(z,t,\Delta) - \frac{X(z,t,\Delta)}{T_2}, \quad (2.69a)$$

$$\dot{Y}(z,t,\Delta) = [\Delta + \dot{\phi}(z,t)]X(z,t,\Delta) + \left[ \frac{\mu \varepsilon(z,t)}{\hbar} \right] Z(z,t,\Delta) - \frac{Y(z,t,\Delta)}{T_2}, \quad (2.69b)$$

$$\dot{Z}(z,t,\Delta) = -\left[ \frac{\mu \varepsilon(z,t)}{\hbar} \right] Y(z,t,\Delta) - \frac{Z(z,t,\Delta) - Z_0}{T_1}. \quad (2.69c)$$

onde  $T_1$  é o tempo de relaxação da população e  $T_2$  é o tempo homogêneo de relaxação da coerência. As Eq. 2.69 constituem um sistema de equações diferenciais acopladas com as seguintes condições iniciais  $X(z,t_0,\Delta) = Y(z,t_0,\Delta) = 0$  e  $Z(z,t_0,\Delta) = Z(0)$ . Isto corresponde a

assumir que no instante de tempo  $t_0$ , imediatamente antes da entrada do pulso, o meio não apresenta nenhuma polarização e que a diferença de população entre os estados excitado e fundamental é  $N Z(0)$ .

A partir das Eq. 2.69a e 2.69b, temos:

$$\dot{X}(z,t,\Delta) - i\dot{Y}(z,t,\Delta) = -\left[\frac{1}{T_2} + i(\Delta + \dot{\phi}(z,t))\right][X(z,t,\Delta) - iY(z,t,\Delta)] - i\left(\frac{\mu \varepsilon(z,t)}{\hbar}\right)Z(z,t,\Delta) \quad (2.70)$$

As Eq. 2.70 e 2.69c podem ser escritas em uma forma integral:

$$[X(z,t,\Delta) - iY(z,t,\Delta)] e^{i\phi(z,t)} = -i \int_{-\infty}^t \frac{\mu \varepsilon(z,t')}{\hbar} e^{i\phi(z,t')} Z(z,t',\Delta) \exp\left[-\left(\frac{1}{T_2} + i\Delta\right)(t-t')\right] dt' \quad (2.71a)$$

$$Z(z,t,\Delta) = Z(0) - \int_{-\infty}^t \frac{\mu \varepsilon(z,t')}{\hbar} Y(z,t',\Delta) e^{-(t-t')/T_1} dt' \quad (2.71b)$$

Substituindo 2.71a na equação de onda na forma reduzida 2.68, temos:

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{n}{c} \frac{\partial}{\partial t}\right)(\varepsilon(z,t) \cdot e^{i\phi(z,t)}) = \frac{2\pi N \mu^2 \omega_L}{\hbar n c} \int_{-\infty}^t \varepsilon(z,t') e^{i\phi(z,t')} e^{-(t-t')/T_2} \left[ \int_{-\infty}^{\infty} g(\Delta) e^{-\Delta(t-t')} Z(z,t',\Delta) d\Delta \right] dt' \quad (2.72)$$

Resolvendo a equação de onda acima temos a envoltória do pulso propagado.

## Propagação de pulsos de área pequena

A solução deste conjunto de equações é possível a partir da introdução do conceito de área do pulso. A área do pulso é definida como sendo:

$$\theta(z) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\mu \varepsilon(z,t)}{\hbar} dt. \quad (2.73)$$

A área do pulso pode ser entendida como a rotação do vetor de Bloch  $\vec{r}(t)$  durante a interação entre o átomo e o pulso. É possível mostrar que o módulo da variação de  $Z(z,t,\Delta)$  entre os instantes de tempo  $t$  e  $t_0$  é menor do que o módulo quadrado da área do pulso [11]:

$$|Z(z,t,\Delta) - Z(0)| \leq |\theta(z)|^2 \quad (2.74)$$

No nosso trabalho, os pulsos possuem área pequena ( $\theta(z) \ll \pi/4$ ), da qual correspondem a pulsos de baixa intensidade. Assim, considerando que todos os átomos do sistema encontram-se inicialmente no estado fundamental, podemos com boa aproximação escrever  $Z(z,t,\Delta) \cong Z(0) = -1$ .

Esta consideração propicia o desacoplamento das equações do sistema 2.71, e então, para pulsos de área pequena a equação de onda reduzida, dada por 2.72, tornar-se:

$$\left( \frac{\partial}{\partial z} + \frac{n}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right) (\varepsilon(z,t) \cdot e^{i\varphi(z,t)}) = -\alpha \int_{-\infty}^t G(t-t') \varepsilon(z,t') e^{i\varphi(z,t')} dt', \quad (2.75)$$

$$\text{onde } G(t) \equiv e^{-t/T_2} \int_{-\infty}^{\infty} g(\Delta) e^{-i\Delta t} d\Delta \text{ e } \alpha \equiv \frac{2\pi N \mu^2 \omega_L}{n\hbar c}.$$

Fazendo  $x = t - t'$ , vem:

$$\left( \frac{\partial}{\partial z} + \frac{n}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right) (\varepsilon(z,t) \cdot e^{i\varphi(z,t)}) = -\alpha \int_0^{\infty} G(x) \varepsilon(z, t-x) e^{i\varphi(z, t-x)} dx. \quad (2.76)$$

A amplitude do campo  $A(z,t) = \varepsilon(z,t) e^{i\varphi(z,t)}$  no domínio temporal está relacionada ao campo elétrico  $\tilde{\varepsilon}(z,\omega)$  no domínio de frequências através da transformada de Fourier e sua inversa da seguinte forma:

$$\varepsilon(z,t) e^{i\varphi(z,t)} = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\varepsilon}(z,\omega) e^{-i\omega t} d\omega, \quad (2.77a)$$

$$\tilde{\varepsilon}(z,\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \varepsilon(z,t) e^{i\varphi(z,t)} e^{i\omega t} dt. \quad (2.77b)$$

Desta forma, escrevendo as funções temporais no domínio da frequência

$$\left( \frac{\partial}{\partial z} + \frac{n}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right) \left( \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\varepsilon}(z,\omega) e^{-i\omega t} d\omega \right) = -\alpha \int_0^{\infty} G(x) \left( \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\varepsilon}(z,\omega) e^{-i\omega(t-x)} d\omega \right) dx. \quad (2.78)$$

e invertendo a ordem de integração da integral do lado direito, e considerando a variação lenta do envelope do campo, vem:

$$\frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \left[ \left( \frac{\partial}{\partial z} - i \frac{n\omega}{c} \right) \tilde{\varepsilon}(z,\omega) \right] e^{-i\omega t} d\omega = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \left[ \left( -\alpha \int_0^{\infty} G(x) e^{i\omega x} dx \right) \tilde{\varepsilon}(z,\omega) \right] e^{-i\omega t} d\omega. \quad (2.79)$$

Definindo  $F(\omega) = \int_0^{\infty} G(x)e^{i\omega x} dx$  como a forma de linha da transição e igualando os integrandos, temos:

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} - i\frac{n\omega}{c}\right)\tilde{\varepsilon}(z, \omega) = -\alpha F(\omega)\tilde{\varepsilon}(z, \omega) \Rightarrow \frac{\partial}{\partial z}\tilde{\varepsilon}(z, \omega) = \left(i\frac{n\omega}{c} - \alpha F(\omega)\right)\tilde{\varepsilon}(z, \omega), \quad (2.80)$$

A Eq. (2.80) pode ser integrada, de forma que:

$$\tilde{\varepsilon}(z, \omega) = \tilde{\varepsilon}(0, \omega)\exp\left(i\frac{n\omega}{c}z - \alpha F(\omega)z\right) \quad (2.81)$$

A envoltória do campo após propagar-se por uma distância  $z$  ao longo do meio ressoante é dada no domínio temporal por:

$$\varepsilon(z, t)e^{i\varphi(z, t)} = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\varepsilon}(0, \omega)\exp\left[-i\omega\left(t - \frac{n}{c}z\right) - \alpha F(\omega)z\right] d\omega \quad (2.82)$$

A forma de linha da transição é então:

$$\begin{aligned} F(\omega) &= \int_0^{+\infty} G(x)e^{i\omega x} dx = \int_0^{+\infty} \left( e^{-x/T_2} \int_{-\infty}^{+\infty} g(\Delta) e^{-i\Delta x} d\Delta \right) e^{i\omega x} dx = \\ F(\omega) &= \int_{-\infty}^{+\infty} g(\Delta) \left( \int_0^{+\infty} e^{\left[\frac{1}{T_2} + i(\omega - \Delta)\right]x} dx \right) d\Delta \Rightarrow \\ F(\omega) &= \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{g(\Delta)}{1/T_2 - i(\omega - \Delta)} d\Delta \end{aligned} \quad (2.83)$$

A forma de linha da transição depende então da forma do alargamento dos átomos. Tomando um alargamento não homogêneo em que  $g(\Delta)$  é uma gaussiana normalizada (equivale a tomar o alargamento não homogêneo como sendo o alargamento Doppler), a função  $F(\omega)$  torna-se:

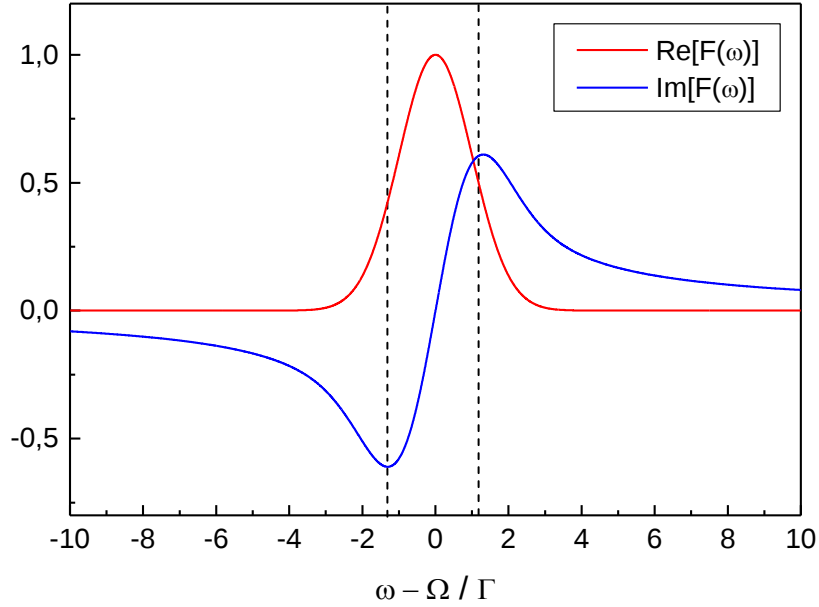
$$F(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\Gamma} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{e^{-\Delta^2/2\Gamma^2}}{\gamma_2 - i(\omega - \Delta)} d\Delta \quad (2.84)$$

onde  $\Gamma$  é a largura Doppler da transição (largura de linha não homogênea), e  $\gamma_2 = 1/T_2$  a largura de linha homogênea. Na transição entre os níveis  $5S$  e  $5P_{1/2}$  do átomo de Rb, temos  $\Gamma/2\pi = 1,0$  GHz, e  $\gamma_2 = 19$  MHz ( $T_2 = 53$  ns).

A forma de linha  $F(\omega)$ , possui uma parte real e uma parte imaginária, as quais dão origem a dois termos distintos importantes. Segundo a Eq. 2.82, o termo  $-\alpha \text{Re}F(\omega)z$  está relacionado à absorção do espectro do pulso em torno da frequência de transição atômica  $\Omega$ . O coeficiente de absorção é definido como sendo  $\alpha_0 = \frac{\alpha}{\sqrt{2\pi}\Gamma}$ . Já o termo  $-\alpha \text{Im}F(\omega)z$  contribuirá para a dispersão das componentes de Fourier do pulso, onde a fase total introduzida pela propagação no meio é:

$$\Delta\phi(\omega) = k(\omega)z = \frac{n\omega z}{c} - \alpha \text{Im} F(\omega)z \quad (2.85)$$

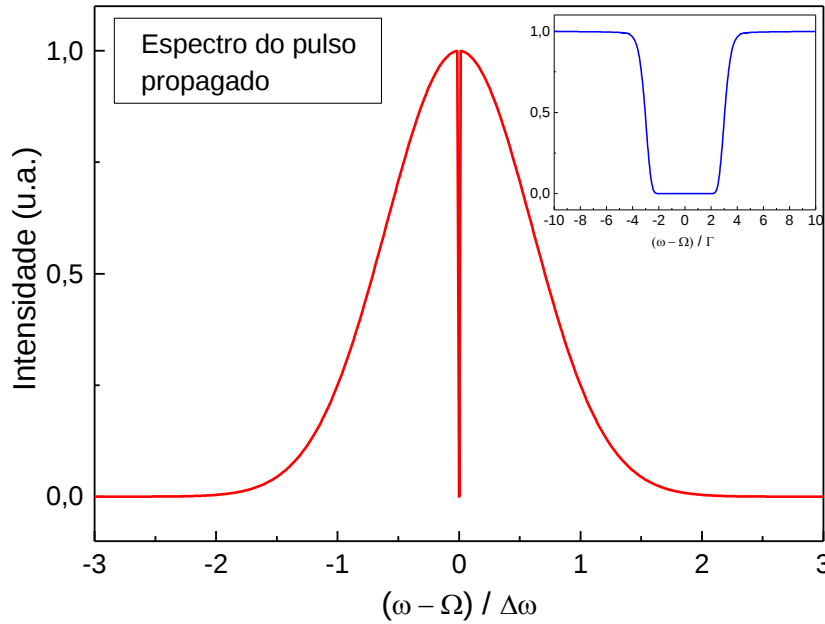
O perfil da forma de linha  $F(\omega)$  é descrito como a combinação de uma Gaussiana (associada ao alargamento não homogêneo) e uma Lorentziana (associada ao alargamento homogêneo). Tal forma de linha, muitas vezes é chamada de *perfil Voigt* [36], e tem uma largura intermediária entre as duas formas de linha homogênea e não homogênea.



**Figura 2.5:** Parte real e imaginária da forma de linha, que estão relacionadas com a absorção e a dispersão do pulso, respectivamente. A região entre as linhas tracejadas é uma região de dispersão anômala, e as regiões à esquerda da primeira e à direita da segunda linha correspondem à dispersão normal.

A figura anterior representa as partes real e imaginária da forma de linha  $F(\omega)$ . As regiões antes e depois das linhas tracejadas representam as regiões de dispersão normal, e a região entre as linhas tracejadas representa a dispersão anômala. As linhas verticais tracejadas correspondem aos valores de  $\omega_d$ , na qual  $\left( \frac{d}{d\omega} \text{Im}[F(\omega)] \right) \Big|_{\omega=\omega_d} = 0$ , cujo valor pode ser calculado numericamente. Para as larguras de linha homogênea e não homogênea dadas acima, temos  $\omega_d - \Omega \cong 1,3 \Gamma$ .

No domínio espectral, o efeito da absorção reflete-se na forma de uma “mordida” em torno da frequência central de transição dos átomos, onde a largura desta mordida é tanto menor, quanto menor forem as larguras de linha homogênea e não homogênea do meio. Já a profundidade da mordida no espectro do pulso depende da densidade atômica do meio, a qual está relacionada experimentalmente à temperatura em que se encontram os átomos de Rb. Quanto maior a densidade atômica do meio, mais átomos cruzarão o caminho do pulso e uma maior absorção será feita no espectro do pulso, aumentando a profundidade e a largura do espectro que sofrerá tal efeito. Aumentar esta densidade equivale a aumentar o produto  $\alpha_0 z$ . O gráfico abaixo mostra que não só o espectro é absorvido em torno da frequência central de transição  $\Omega$ , como também as frequências próximas a esta são afetadas pela absorção. Este gráfico foi calculado para um pulso de largura temporal de  $T_p = 180$  fs, o que corresponde a uma largura espectral de  $\Delta\omega = 1,5 \times 10^{13}$  Hz, e um coeficiente de absorção  $\alpha_0$  tal que  $\alpha_0 z = 22$ . Tal absorção corresponde a um experimento realizado a uma temperatura de  $102^\circ\text{C}$ , cuja densidade nesta temperatura é de  $5,4 \times 10^{12}$  átomos/cm<sup>3</sup>. As frequências na qual  $|\omega - \Omega| \leq 6\Gamma$  são absorvidas pelo meio.

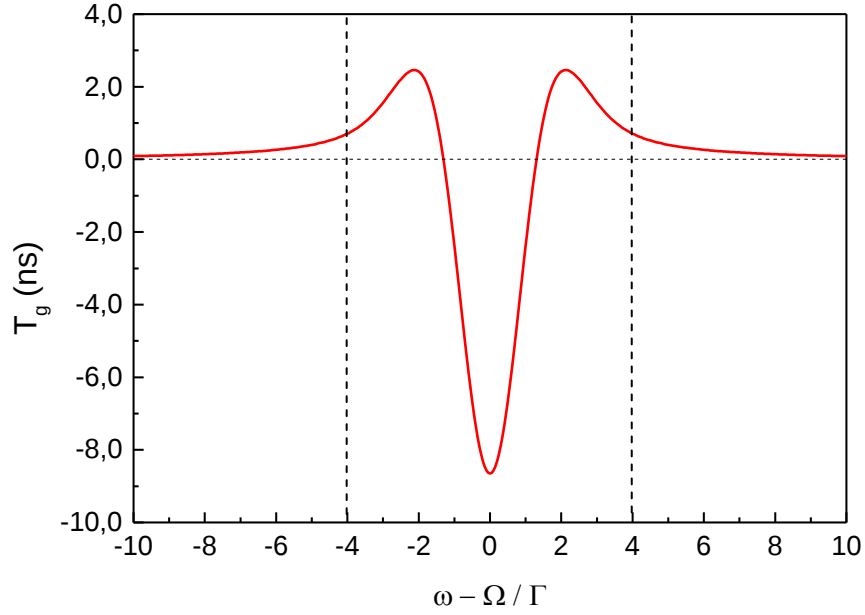


**Figura 2.6:** Espectro do pulso após a propagação.

Podemos explicar as modificações que ocorrem no perfil do pulso no domínio temporal ao se propagar pelo meio ressonante a partir da fase  $\Delta\phi$  introduzida pela propagação. Define-se o atraso de grupo  $\tau_g(\omega)$  como:

$$\tau_g(\omega) = \frac{d\Delta\phi(\omega)}{d\omega} = \frac{nz}{c} - \alpha z \frac{d[\text{Im } F(\omega)]}{d\omega} \quad (2.86)$$

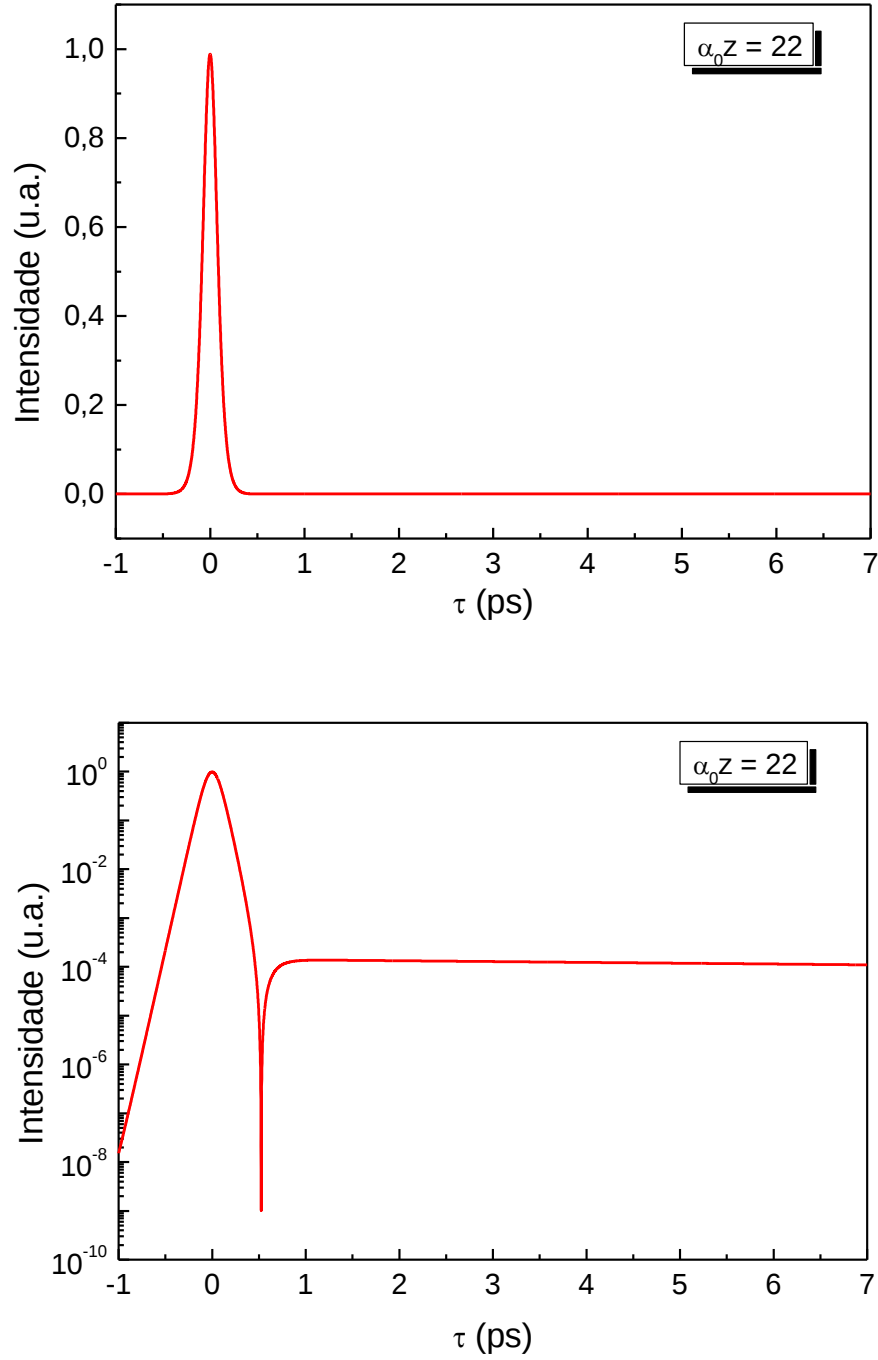
o primeiro termo da equação acima está relacionado à parte constante do índice de refração do meio e introduz um mesmo atraso de grupo positivo para todas as componentes de Fourier do pulso.



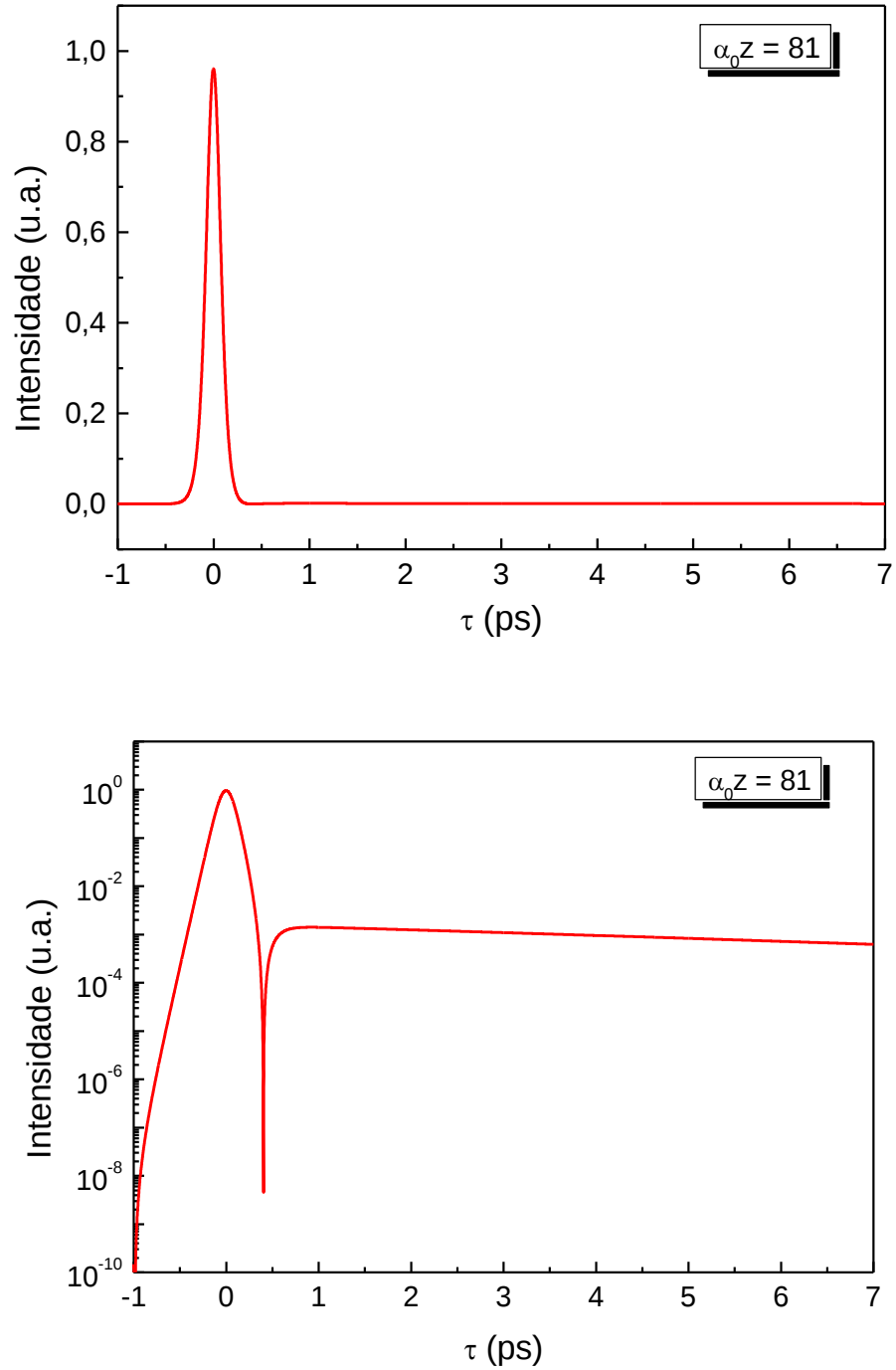
**Figura 2.7:** Atraso de grupo de algumas freqüências do espectro de pulso ao se propagar por um meio ressonante com  $\alpha_0 z = 22$  relacionado experimentalmente à temperatura de 102 °C, e densidade de  $5,4 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ .

Na região de dispersão anômala onde  $\frac{d[\text{Im } F(\omega)]}{d\omega} > 0$ , o atraso de grupo introduzido pela propagação pode ser negativo, o que adiantaria estas componentes do campo elétrico, ou positivo, atrasando-as. Já a dispersão normal, promove apenas atrasos de grupo positivos nas componentes espectrais do campo, atrasando as mesmas. Porém, deve-se observar que, para esta densidade, as componentes espectrais entre  $\Omega - 4\Gamma$  e  $\Omega + 4\Gamma$  que poderiam sofrer dispersão anômala são excluídas do espectro do pulso devido a absorção no meio, assim, apenas atrasos de grupo positivos são introduzidos pela propagação do pulso no meio. A dispersão normal, portanto, causa uma deformação no perfil temporal do pulso na qual freqüências abaixo e acima da ressonância atômica,  $\Omega$ , adquirem um atraso de grupo positivo. Isto resulta em uma cauda oscilatória atrasada em relação à parte central do pulso, da mesma forma que descrito na sub-seção 1.4.4. As componentes espectrais do pulso com freqüências mais próximas de  $\Omega$  sofrerão atrasos de grupo maiores.

A seguir, mostraremos algumas curvas resultantes de simulações numéricas da intensidade do pulso propagado  $I(t) \propto |\varepsilon(t)|^2$ . As intensidades dos campos propagados podem ser determinadas por meio de um experimento de correlação cruzada, conforme descrito na Seção (1.2), onde um dos feixes passaria pelo meio ressonante e seria sondado por outro que não propagou pelo meio. As figuras mostram, as intensidade dos campos no domínio temporal para três diferentes densidades. Para propagação por uma distância  $z = 2.5 \text{ cm}$  num vapor de rubídio, com o laser de femtossegundos sintonizado na transição  $5S-5P_{1/2}$ , e duração temporal de 180 fs, consideramos diferentes densidades atômicas  $N$ , e calculamos os perfis do pulso propagado, mostrados nas Fig. 2.8 e 2.9.

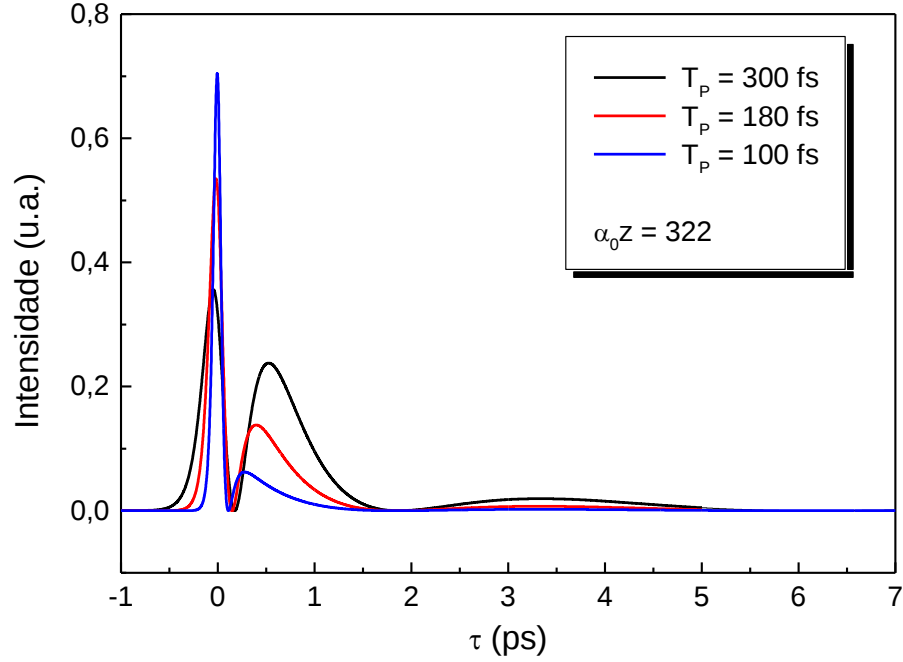


**Figura 2.8:** Perfil temporal teórico do pulso propagado por meio de um meio ressonante com  $\alpha_0 z = 22$  (relacionado experimentalmente à temperatura de 102 °C, e densidade de  $5,4 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ ). Na escala linear o efeito da propagação aparenta ser desprezível, mas na escala logarítmica torna-se evidente os efeitos de sobre o perfil temporal do pulso.



**Figura 2.9** Perfil temporal teórico do pulso propagado por meio de um meio ressonante com  $\alpha_0 z = 81$  (relacionado experimentalmente à temperatura de 122°C, e densidade de  $1,9 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ ). Mais uma vez, na escala linear, temos que o efeito da propagação aparenta ser desprezível, mas na escala logarítmica torna-se evidente os efeitos de sobre o perfil temporal do pulso.

A figura 2.10 mostra o perfil temporal de três diferentes pulsos de mesma amplitude mas com durações diferentes ao longo de um meio cujo coeficiente de absorção é tal que  $\alpha_0 z = 322$ . Vemos que quanto maior for a duração do pulso, menor será sua largura espectral, de modo que mais componentes espectrais estarão mais próximas à frequência de ressonância cujo atraso de grupo é maior. Deste modo, mais frequências do espectro do pulso iram ser atrasadas, contribuindo para as oscilações que aparecem na região  $\tau > 0$ .



**Figura 2.10** Perfil temporal teórico do pulso propagado por meio de um meio ressonante com  $\alpha_0 z = 322$  (relacionado experimentalmente à temperatura de 149 °C, e densidade de  $8,0 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ ), para três diferentes larguras temporais.

Neste capítulo apresentamos a teoria do acoplamento de dois feixes que pode ser usada para investigar não-linearidades em meios materiais. Nesse trabalho utilizaremos a técnica do acoplamento de dois feixes para estudar variações da energia transmitida pelo campo de sonda em função do atraso em relação ao campo de bombeio, após interagirem numa região contendo vapor de Rb. Estudamos neste capítulo também a propagação linear, uma vez que os campos têm seu perfil temporal modificado ao se propagarem através de um meio ressonante, e que, como veremos adiante, as medidas experimentais realizadas são sensíveis a este efeito.

## Capítulo 3

# ACOPLAMENTO DE DOIS FEIXES EM VAPOR DE RUBÍDIO: RESULTADOS EXPERIMENTAIS

Neste capítulo apresentaremos a descrição do aparato experimental usado para a realização de medidas de acoplamento de dois feixes e de fluorescência em vapor de Rb [37]. A apresentação dos resultados das medidas experimentais será dividida em duas partes distintas. Na primeira parte são apresentadas medidas de acoplamento de dois feixes com ressonâncias de dois fótons sequenciais. Na segunda parte as medidas são realizadas na condição de ressonância de apenas um fóton, que é mais simples de analisar. Também são apresentados resultados de simulações numéricas para esta última situação, baseadas nos desenvolvimentos apresentados no capítulo 2, relativos à variação de energia do feixe de sonda.

Nas simulações, alguns parâmetros foram manipulados a fim de analisar as características dos sinais experimentais apresentados, tais como coeficiente de absorção, duração do pulso e varredura de frequência (*chirp*). Este capítulo é encerrado fazendo-se uma análise CW da energia transmitida pelo feixe de sonda no domínio espectral para o acoplamento de dois feixes degenerado e não-degenerado, com o objetivo de obter um melhor entendimento do problema.

### 3.1 Descrição dos experimentos

Para a realização dos experimentos de mistura de ondas, o meio não linear estudado foi o vapor de Rb, colocado em uma célula de quartzo previamente evacuada. A célula, por sua vez, é colocada dentro de um forno cuja temperatura, e desta forma a densidade de átomos, é controlada através de uma fonte de tensão variável (*variac*).

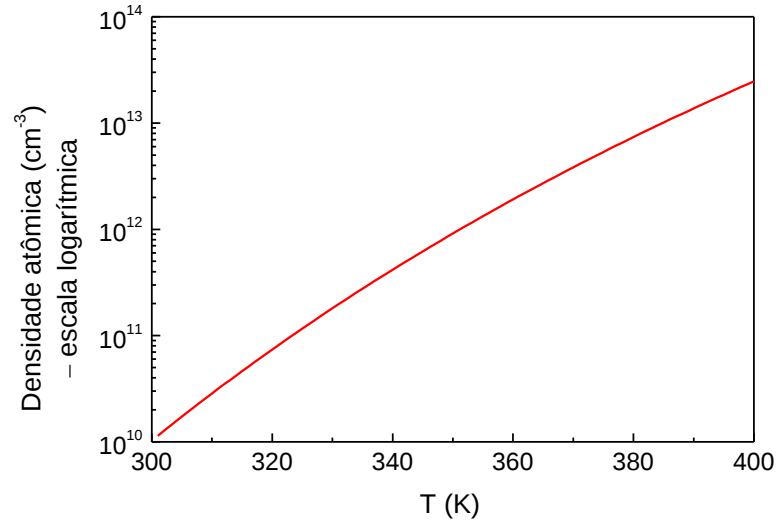
A densidade no interior da célula é dada [37] por:

$$N(T) = \frac{1,33 \cdot 10^{-5} P_L(T)}{k_B T} \quad (3.1)$$

onde

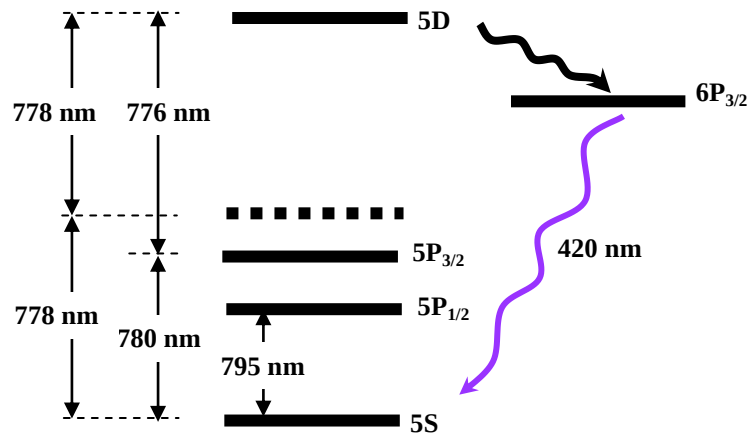
$$\log P_L(T) = 15,88253 - \frac{4529,635}{T} + 0,00058663T - 2,99138 \log T \quad (3.2)$$

onde  $k_B$  é a constante de Boltzmann e  $T$  é a temperatura em kelvin. Na Fig. 3.1 é mostrada a densidade de Rb em função da temperatura.



**Figura 3.1:** Curva da densidade atômica dos átomos de Rb em função da temperatura.

Os níveis de energia do átomo de rubídio são mostrados na figura 3.2 abaixo. Duas transições são particularmente relevantes para nossos resultados experimentais: (i) a transição de dois fótons  $5S - 5P_{3/2} - 5D$  ( $\lambda = 778$  nm); e (ii) a transição de um fóton  $5S - 5P_{1/2}$  ( $\lambda = 795$  nm). A largura de banda do laser é variável de 4 a 11 nm, o que equivale a variar a largura temporal do pulso de 230 a 85 fs. A análise dos resultados experimentais nessas duas transições será feita separadamente.

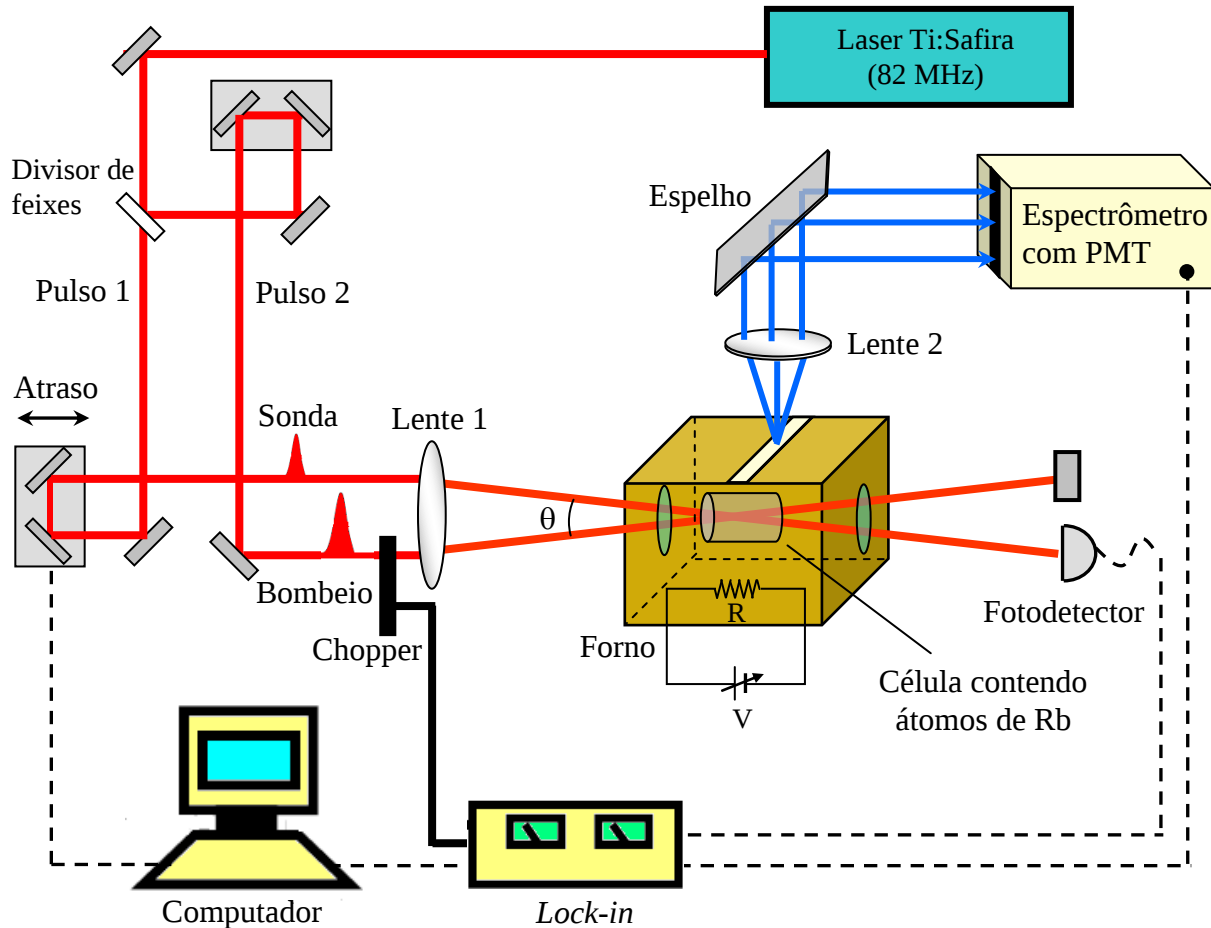


**Figura 3.2:** Esquema dos níveis de energia do átomo de Rb.

Os pulsos ultra-curtos utilizados no experimento são emitidos pelo laser de Ti:safira, cujos comprimentos de onda central e a largura espectral podem ser ajustados.

| <i>Propriedades do laser</i> |                 |
|------------------------------|-----------------|
| Comprimento de onda central  | 770 nm – 795 nm |
| Largura de banda             | 4 – 11 nm       |
| Largura temporal             | 230 – 85 fs     |
| Taxa de repetição dos pulsos | 82 MHz          |

O processo de acoplamento de dois feixes, conforme já descrito no capítulo 2, é realizado experimentalmente utilizando-se dois pulsos atrasados temporalmente para excitar o sistema atômico. Os pulsos transmitidos e refletidos em um divisor de feixes são chamados de pulsos 1 e 2, respectivamente. Pelo fato do feixe dos pulsos 1 apresentar uma intensidade seis vezes menor do que o feixe dos pulsos 2, o pulso 1 será sonda e outro, o de bombeio.



**Figura 3.3:** Arranjo experimental para o acoplamento de dois feixes e fluorescência com pulsos temporalmente atrasados.

O primeiro pulso adquire um atraso variável em relação segundo ao passar por uma linha de atraso, como mostrado na Fig. 3.3. Um motor de passo de resolução  $0,1 \mu\text{m}$  comandado pelo equipamento Newport Motion Controller MM2500 controla o atraso, recebendo comandos do computador durante os experimentos que indicam a varredura desejada.

O caminho que o pulso 1 (sonda – menos intenso) percorre é arranjado de modo que, quando o motor de passo está na origem (a meio caminho dos seus dois extremos), este pulso percorre o mesmo caminho óptico percorrido pelo pulso 2 (bombeio – mais intenso), e os dois pulsos estão superpostos temporalmente. Para encontrar precisamente o “zero” do motor de passos é feito um experimento de geração de segundo harmônico com os pulsos 1 e 2, que são focalizados por uma lente em um cristal de BBO.

Quando o canto de cubo móvel anda para frente e para atrás, estamos respectivamente adiantando ou atrasando o pulso 1 em relação ao pulso 2. Neste trabalho, estamos considerando que  $\tau > 0$  corresponde ao pulso 1 anteceder o pulso 2, no caso  $\tau < 0$ , temos o contrário.

Após os feixes dos pulsos 1 e 2 passarem por suas linhas de atraso, eles são focalizados por meio de uma lente convergente de distância focal 15 cm para se interceptarem em uma célula de comprimento 5 cm contendo o vapor de Rb. A célula está dentro de um forno de forma que sua temperatura pode ser controlada. O aparato experimental permite realizar medidas de dois tipos: uma da fluorescência [38-40] por meio de um espectrômetro conectado a uma placa foto-multiplicadora e uma outra de acoplamento de dois feixes através de um fotodetector colocado no caminho do feixe de sonda. As medidas foram realizadas uma de cada vez.

O primeiro destes experimentos tem como objetivo observar a fluorescência emitida pelo vapor de átomos de Rb quando estes são excitados por um par de pulsos dos feixes mencionados, em função do atraso temporal entre eles. A fluorescência é uma forma indireta de medir a população no estado excitado 5D. Quando o sistema absorve dois fótons, os átomos são excitados do estado 5S para 5D, e em seguida ocorrem dois decaimentos espontâneos consecutivos, um para o estado intermediário  $6P_{3/2}$  e em seguida para o estado fundamental 5S, onde na última transição, os fótons emitidos têm comprimento de onda de 420 nm. Este sinal da fluorescência é coletado por meio de uma lente convergente situada logo acima de uma abertura no forno, e em seguida refletido por um espelho plano para um espectrômetro onde o comprimento de onda de interesse (420 nm) é selecionado e enviado para uma fotomultiplicadora.

No caso do acoplamento de dois feixes, a variação da energia transmitida pelo feixe de sonda é detectada por um fotodetector que é lento, e assim integra a intensidade deste pulso. A expressão para esta variação de energia  $\Delta U(\tau)$  do feixe de sonda foi deduzida no capítulo 2 deste trabalho.

Tanto nos experimentos de fluorescência como nos de acoplamento de dois feixes é realizada uma detecção sensível à fase através de um amplificador “*lock-in*” (Stanford Research SR530), que processa o sinal da fotomultiplicadora ou do fotodetector e os envia para o computador. A modulação do feixe de bombeio é realizada por meio de um roda dentada (*chopper*) que permite modulação em duas frequências diferentes.

O controlador do motor de passos e o *lock-in* são comandados por um programa em linguagem Q-basic. Uma porta GPIB é utilizada para fazer a comunicação entre o motor de passos e o *lock-in* com o computador. Nas medidas de fluorescência e acoplamento de dois feixes foram realizadas em torno de 5 a 15 varreduras, na qual é feita uma média para diminuir o ruído do sinal.

Nas próximas seções, serão apresentados resultados experimentais quando o laser é sintonizado em  $\lambda = 778$  nm (transição ressonante de dois fótons) e  $\lambda = 795$  nm (transição ressonante de um fóton).

## 3.2 Resultados envolvendo a transição de dois fótons

Sejam  $|1\rangle$ ,  $|2\rangle$  e  $|3\rangle$  os estados quânticos correspondentes aos níveis 5S,  $5P_{3/2}$  e 5D do átomo de Rb, respectivamente. Considerando ainda  $\omega_{ji}$  a frequência de transição entre os estados  $|i\rangle$  e  $|j\rangle$ ,  $i < j$ , temos que  $\omega_{31} = \omega_{32} + \omega_{21}$ . A frequência de transição entre os níveis 5S e  $5P_{3/2}$  corresponde a um comprimento de onda de  $\lambda_{21} = 780$  nm, e para a transição entre os níveis  $5P_{3/2}$  e 5D, o comprimento de onda associado a esta transição é  $\lambda_{32} = 776$  nm. A frequência central  $\omega_L$  do laser foi sintonizada na metade da frequência de transição entre os estados 5S e 5D. O comprimento de onda correspondente à frequência  $\omega_L$  é  $\lambda_L = 778$  nm. A diferença entre o comprimento de onda do laser ( $\lambda_L$ ) e cada um dos comprimentos de onda das transições atômicas ( $\lambda_{21}$  e  $\lambda_{32}$ ) é de apenas 2 nm. Como a largura de banda do nosso laser é tipicamente da ordem de 10 nm, o processo de absorção de dois fótons neste caso envolve uma transição sequencial, na qual exploramos a ressonância com o nível intermediário  $5P_{3/2}$ .

A ressonância com o nível intermediário 5P, além de produzir efeitos de propagação no perfil temporal do pulso, como descrito no capítulo 2, também é responsável por um outro efeito importante no processo de absorção de dois fótons, que é a acumulação da população e da coerência [6, 12, 41].

Esses efeitos de acumulação da população são causados pelo fato de que a taxa de repetição do laser é maior do que a taxa de decaimento da população dos estados 5D e  $5P_{3/2}$ . O laser de Ti:safira apresenta uma taxa de repetição de 82 MHz, o que leva o sistema atômico interagir com pares de pulsos ultra-curtos em intervalos de 12 ns. Já os tempos de decaimento do átomo de Rb nos níveis 5D e  $5P_{3/2}$  são de 240 ns e 27 ns, maiores do que o tempo de chegada dos pulsos. Assim, os átomos não têm tempo suficiente para decair para o estado fundamental 5S, e portanto nem toda população que foi levada para os estados excitados encontrar-se-á no estado fundamental após a chegada de um novo par de pulsos.

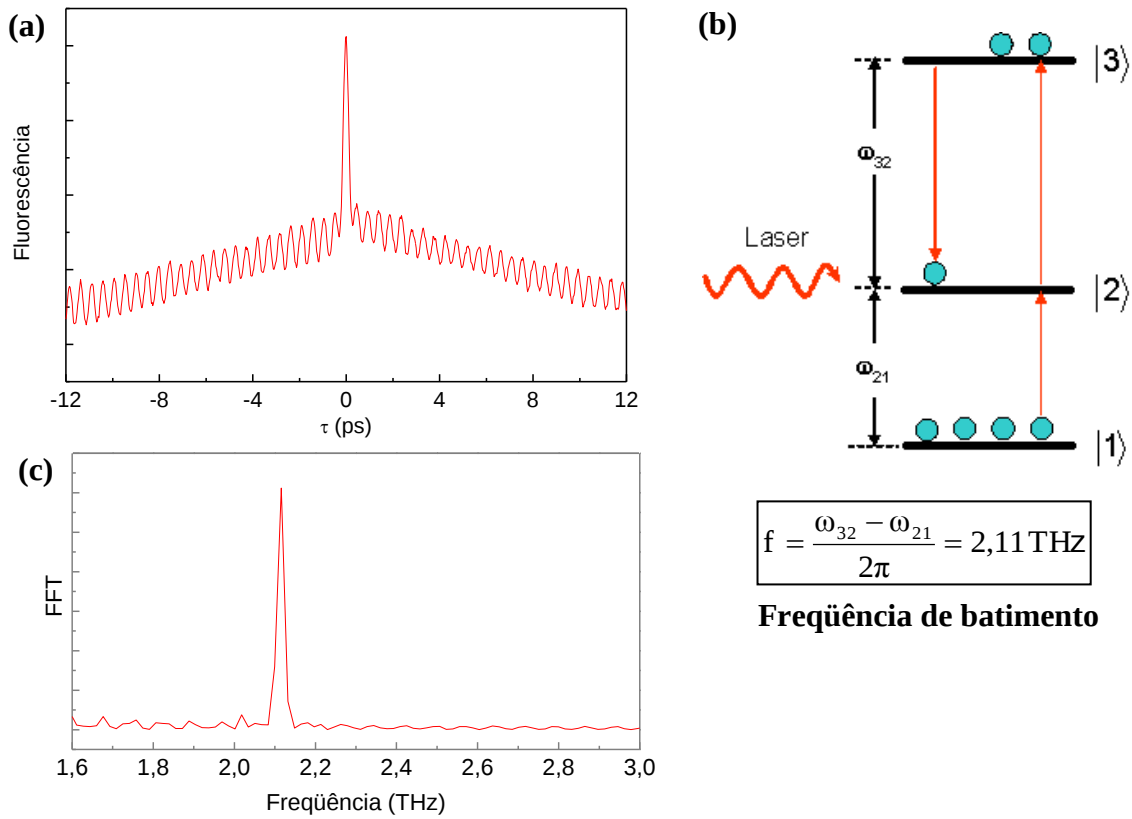
Devido a este efeito de acumulação, não podemos mais considerar o estado inicial do sistema como sendo o estado fundamental. A função de onda no instante anterior à chegada de um pulso,  $t_0$ , portanto, tem a forma:

$$|\psi(t_0)\rangle = c_1(t_0)|1\rangle + c_2(t_0)|2\rangle + c_3(t_0)|3\rangle \neq |1\rangle \quad (3.3)$$

À medida que mais pulsos chegam ao sistema atômico, eles encontram parte da população no nível 5D e provocam um aumento da população neste nível. Tal população no nível 5D decairá para o nível intermediário  $5P_{3/2}$ , através de um processo de emissão estimulada. Batimentos com frequência  $\omega_{32} - \omega_{21}$  são uma assinatura desta emissão nos sinais de experimentos que contém absorção de dois fótons [12]. Tratando dos níveis de átomos de Rb temos  $f = (\omega_{32} - \omega_{21})/2\pi = 2,11$  THz. Efeitos de acumulação são não só importantes em sistemas de três níveis, como também para um sistema de dois níveis. Em nossos estudos numéricos, os efeitos de acumulação da população e de coerência não foram considerados devido à sua complexa implementação. Tal procedimento, impede uma completa concordância entre os resultados experimentais e numéricos ao tratar acoplamento de dois feixes para a um sistema de dois níveis em que a transição envolve uma ressonância de um fóton.

Uma vez que os efeitos de acumulação nos termos de população  $\rho_{ii}$  estão presentes nos sinais experimentais da fluorescência, fizemos experimentos de acoplamento de dois feixes afim de investigar processos de transferência entre os campos de sonda e bombeio, mas que também apresentam efeitos de acumulação.

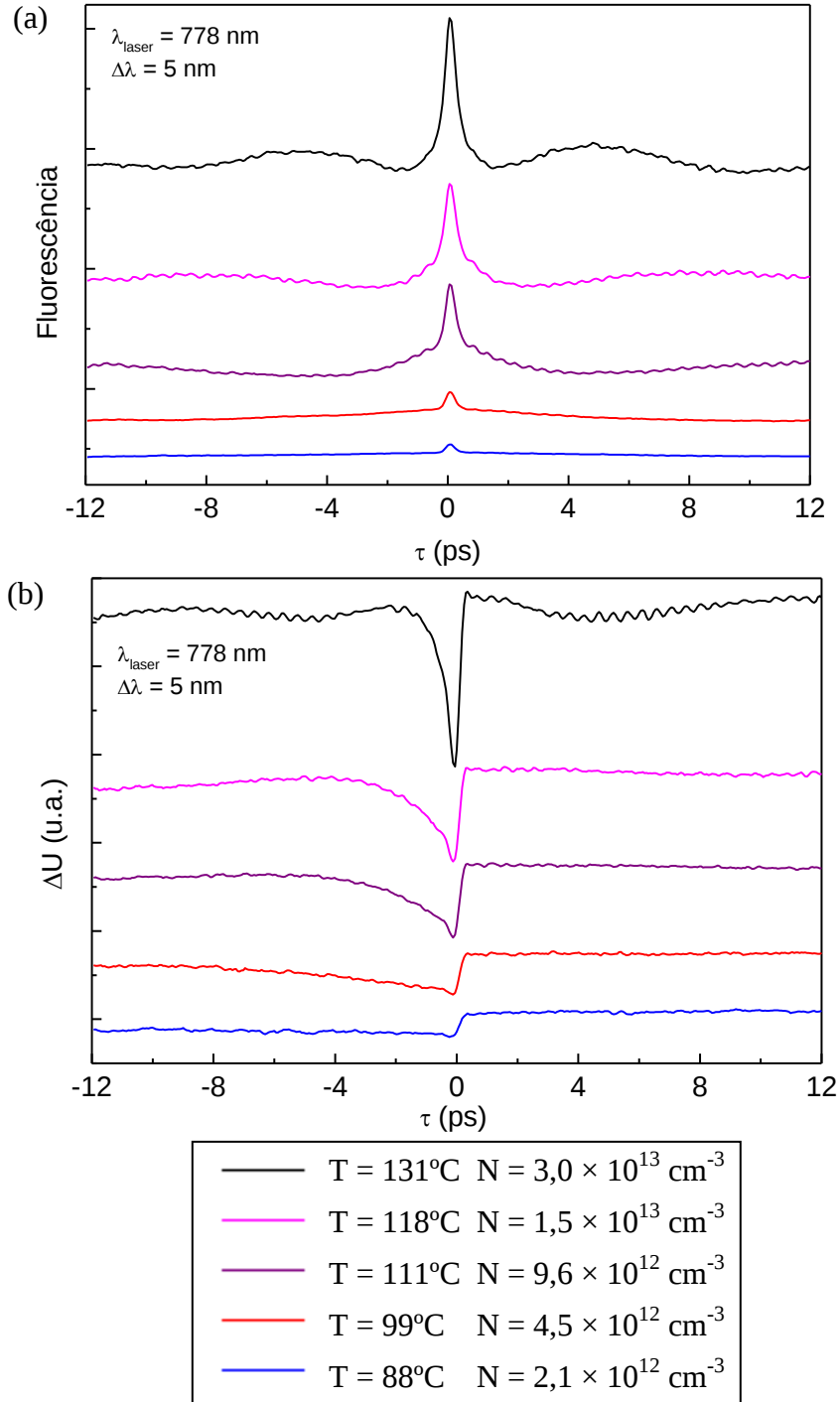
Variando-se a densidade atômica da célula o sinal da fluorescência apresenta tanto batimentos em 473 fs devido aos efeitos de acumulação, como oscilações na ordem de dezenas de picosegundos em consequência dos efeitos de propagação. Quanto maior for a densidade atômica do meio, maior é amplitude do sinal em virtude da presença de mais átomos que irão absorver dois fótons, e em seguida decair emitindo fótons em 420 nm. Aumentando a densidade do meio também observamos que a separação temporal entre os picos do sinal torna-se menor. Os batimentos são mais perceptíveis em baixas densidades, ver Fig. 3.4a.



**Figura 3.4:** (a) Curva experimental da fluorescência em uma temperatura de 69°C, cuja densidade atômica é  $5,1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ , onde estão presentes oscilações na frequência de batimento  $\omega_{32} - \omega_{21}$ . (b) Esquema do sistema atômico onde ocorre emissão estimulada e que causa a frequência de batimento (c) FFT da curva da fluorescência.

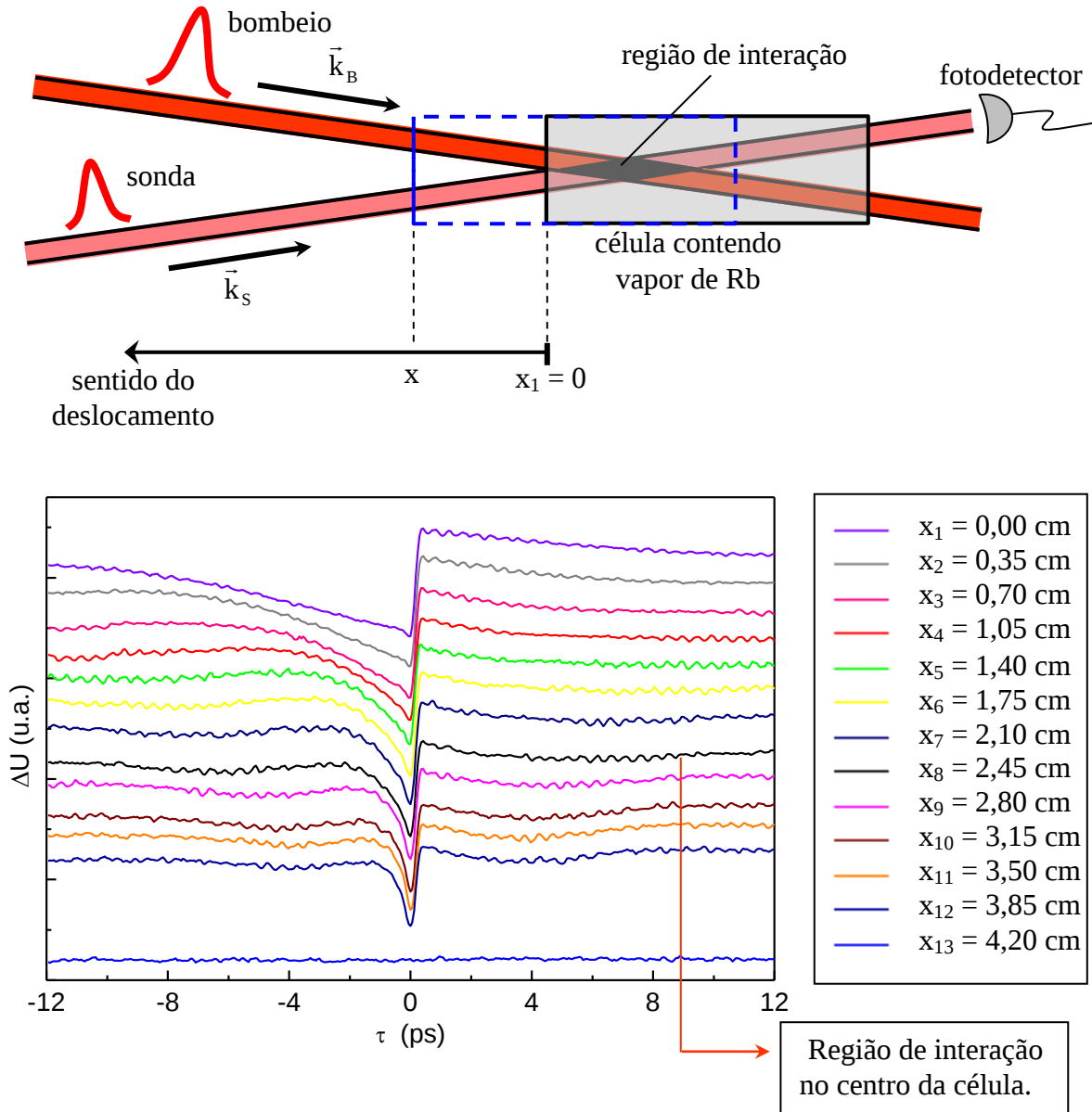
Na Fig. 3.5 a seguir, são apresentados pares de medidas experimentais da fluorescência e do acoplamento de dois feixes para diferentes densidades atômicas. Com o aumento da densidade, as medidas apresentam oscilações devido aos efeitos oscilatórios no perfil temporal do pulso causado pela propagação. Na curva que corresponde à maior densidade, os pontos de máximo laterais ocorrem aproximadamente em um mesmo atraso nos dois tipos de experimentos.

Um ponto interessante é o fato das curvas para acoplamento de dois feixes apresentarem batimentos em 473 fs. Isto indica que efeitos de acumulação da coerência podem estar presentes. Nestes experimentos, os batimentos tornam-se evidentes em altas densidades. Vemos também que o pico em torno de  $\tau = 0$  torna-se tão mais “profundo”, quanto maior a densidade.



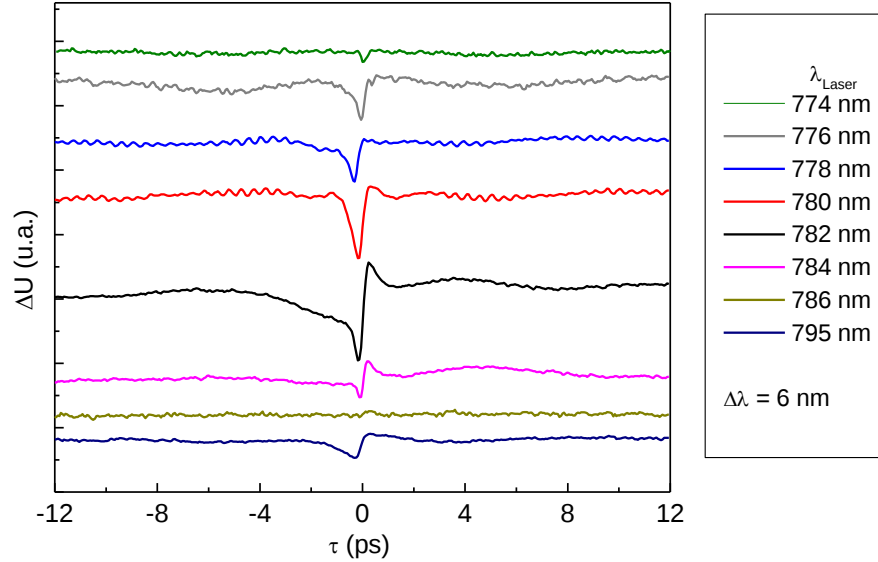
**Figura 3.5:** (a) Curvas experimentais da medida da fluorescência em diferentes temperaturas (densidades). (b) Curvas experimentais do acoplamento de dois feixes em diferentes temperaturas (densidades).

Uma vez que a absorção de um campo propagando em meio ressonante pode ser controlada pelo produto  $\alpha_0 z$ , o efeito de variar a densidade também é equivalente ao de mudar o comprimento de propagação dos campos de sonda e bombeio ao longo da célula contendo o Rb antes que os dois se interceptem. Para evidenciar isto, o forno foi posicionado de forma que a região de interação entre os feixes esteja primeiramente no início da célula ( $x_1 = 0$ ). A Fig. 3.6 abaixo mostra que à medida que o forno era deslocado, a distância percorrida pelos campos até a região de interação aumentava. Estes resultados devem ser comparados ao que se obtém variando a densidade atômica discutido anteriormente na figura 3.5.



**Figura 3.6:** Curvas experimentais do acoplamento de dois feixes com ressonância sequencial de dois fótons para diferentes comprimentos de propagação dos feixes até atingirem a região de interação. O comprimento de onda do laser estava centrado em  $\lambda = 778$  nm. A temperatura do forno foi mantida a 122 °C, para a qual a densidade atômica é de  $1,9 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ .

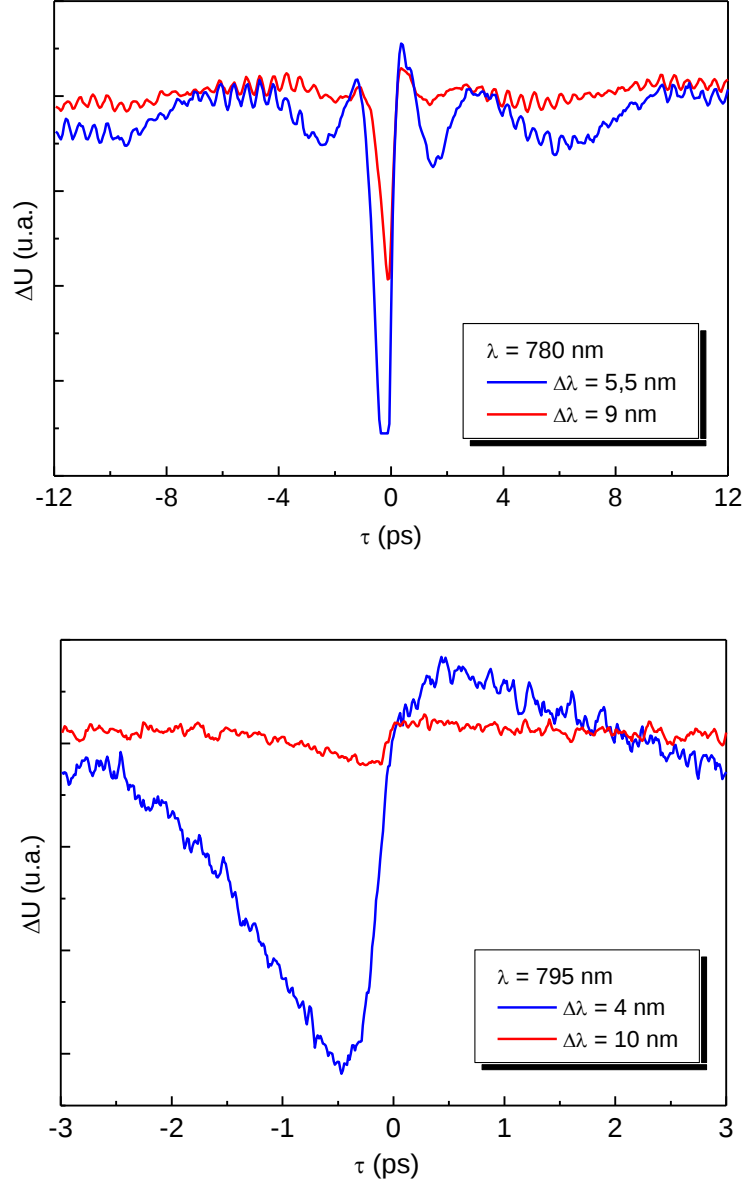
Apesar de nessa seção estarmos interessados em discutir resultados experimentais na absorção de dois fótons na transição  $5S - 5P_{3/2} - 5D$ , os sinais do acoplamento de dois feixes apresentam também contribuições do processo de absorção de um fóton da transição  $5S - 5P_{1/2}$ . Isto ocorre em virtude da largura espectral dos pulsos que é em torno de 5 nm, onde ao sintonizarmos a frequência central do laser de modo que  $\lambda_L = 778$  nm, o espectro do pulso abrange os comprimentos de onda para ambas transições  $5S - 5P_{3/2} - 5D$  (778 nm) e  $5S - 5P_{1/2}$  (780 nm). A fim de analisar a sensibilidade do sinal de acoplamento de dois feixes com o comprimento de onda central do laser, várias medidas neste tipo de experimento foram realizadas para diferentes comprimentos de onda central do laser e com largura de banda mantida em torno de 6 nm. Os resultados são mostrados na Fig. 3.7 abaixo.



**Figura 3.7:** Curvas experimentais de acoplamento de dois feixes para diferentes comprimentos de onda central do laser. As medidas foram realizadas em uma temperatura de 126°C, onde a densidade atômica é de  $2,3 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ .

Além do sinal obtido pelo acoplamento de dois feixes ser sensível à densidade atômica do meio, comprimento de propagação e comprimento de onda central do laser, este sinal depende da largura de banda do laser. Como pode ser visto através das curvas da Fig. 3.8, quanto maior a largura de banda do laser, ou mais curtos forem os pulsos, as amplitudes dos picos das medidas tornam-se menores. Analisando as curvas correspondentes ao comprimento de onda central do laser de 780 nm, vemos que as posições dos picos laterais, em torno de  $\tau = 0$ , não sofrem grandes alterações.

Tanto nas curvas experimentais das figuras 3.6, 3.7 e 3.8 (a), que envolvem processos de absorção sequencial de dois fótons, os batimentos em 473 fs, estão presentes, batimentos estes, decorrentes da acumulação da população e da coerência em um sistema de três níveis. No caso em que o laser é centrado em 795 nm e possui uma largura de banda de até 10 nm, os pulsos provocam apenas a transição de um fóton, mas os efeitos de acumulação não deixam de estar presente, pois a taxa de relaxação no nível  $5P_{1/2}$  (27 ns) ainda é menor que a taxa de repetição do laser (12 ns). Porém, nenhum batimento é mais registrado, pois os campos interagem com sistema atômicos de dois níveis apenas, que envolvem transições de um fóton, o que torna impossível a presença dos batimentos.



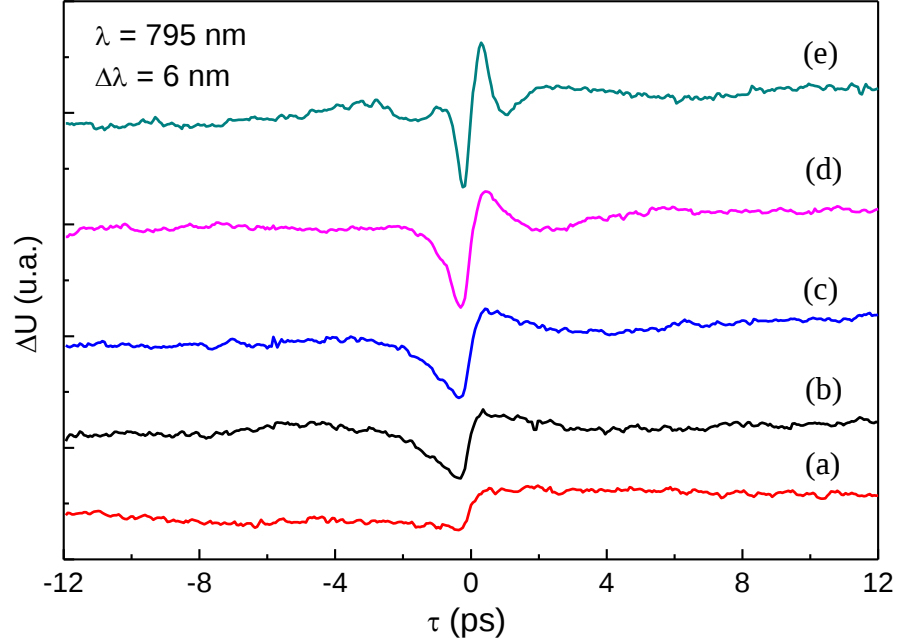
**Figura 3.8:** Curvas experimentais de acoplamento de dois feixes para diferentes comprimentos de onda e larguras de banda do laser. As medidas foram realizadas em uma temperatura de  $129^\circ\text{C}$ , onde a densidade atômica é de  $2,8 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ .

Considerando as dificuldades em relação à realização de estudos numéricos para a transição sequencial de dois fótons ( $5S - 5P_{3/2} - 5D$ ,  $\lambda_L = 778$  nm), optamos por nos concentrar nos experimentos de acoplamento de dois feixes para a transição de um fóton ( $5S - 5P_{1/2}$ ,  $\lambda_L = 795$  nm). Note-se que existe uma grande similaridade entre a primeira situação e a segunda com relação à forma do sinal detectado em torno de  $\tau = 0$ .

A seguir, apresentaremos resultados experimentais e numéricos do acoplamento de dois feixes no caso em que o laser está em ressonância com a frequência de transição  $5S - 5P_{1/2}$ .

### 3.3 Resultados envolvendo a transição de um fóton

Ao sintonizarmos o comprimento de onda do laser em 795 nm e ajustarmos a largura de banda em torno de 5 nm, a única transição relevante dos átomos de Rb é entre os níveis 5S e 5P<sub>1/2</sub>. Neste caso, os pulsos encontram-se em ressonância com um sistema de dois níveis, o que facilita bastante a análise dos resultados. Apenas para temperaturas acima de 100°C, que corresponde a uma densidade atômica de  $4,8 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ , conseguimos registrar experimentalmente alguma modificação da energia transmitida pelo campo de sonda em função do atraso em relação ao campo de bombeio. Na figura 3.9 a seguir são apresentados resultados experimentais para cinco diferentes densidades atômicas.



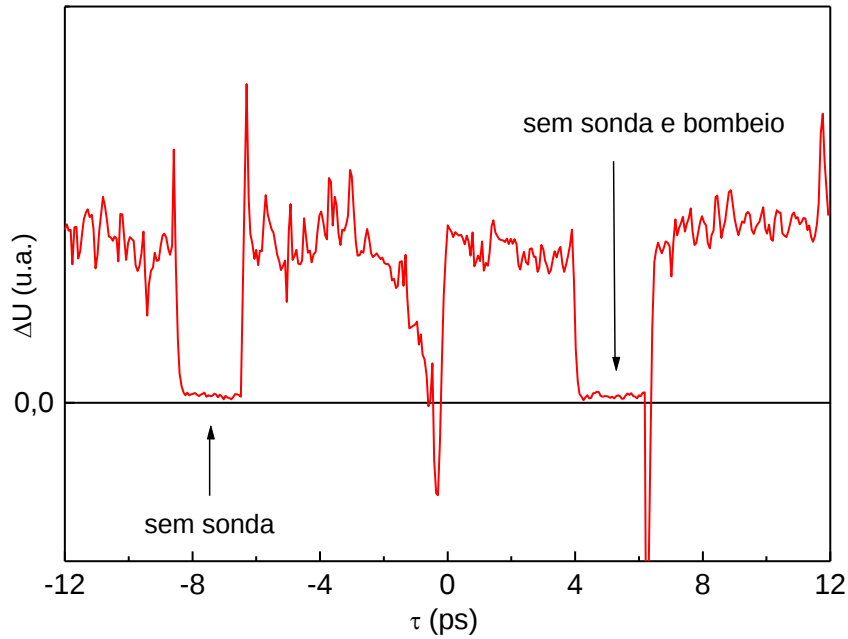
**Figura 3.9:** Curvas experimentais de acoplamento de dois feixes ressonante à transição de um fóton para diferentes densidades atômicas (temperaturas). **(a)**  $5,4 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$  (102 °C), **(b)**  $1,0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$  (112 °C), **(c)**  $1,9 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$  (122 °C), **(d)**  $3,5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$  (133 °C), **(e)**  $8,0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$  (149 °C).

Os efeitos de propagação do pulso ao longo da amostra causam as oscilações do sinal em uma escala da ordem de picosegundos. O sinal apresenta uma simetria do tipo  $\Delta U(-\tau) = -\Delta U(\tau)$  em torno de  $\tau = 0$ . A forma de “S” deste sinal também está presente nos resultados experimentais realizados com o laser centrado em 778 nm ou 780 nm. Isto nos leva a acreditar, que o fato da variação da energia transmitida  $\Delta U(\tau)$  ser uma função ímpar nos resultados experimentais obtidos para diversos comprimentos de onda deve-se à transição de um fóton.

À medida que a densidade atômica no interior da célula é aumentada, a forma do sinal torna-se diferente, e verificamos: (i) maior amplitude do sinal, (ii) mais oscilações presentes e (iii) as posições dos picos alteradas. O aumento da amplitude está relacionado ao fato que a polarização não-linear induzida no meio varia linearmente com a densidade atômica. Desta forma, em meios de maior densidade atômica, a troca de energia entre os campos de sonda e bombeio torna-se maior. As oscilações e as posições dos picos nas curvas da variação da

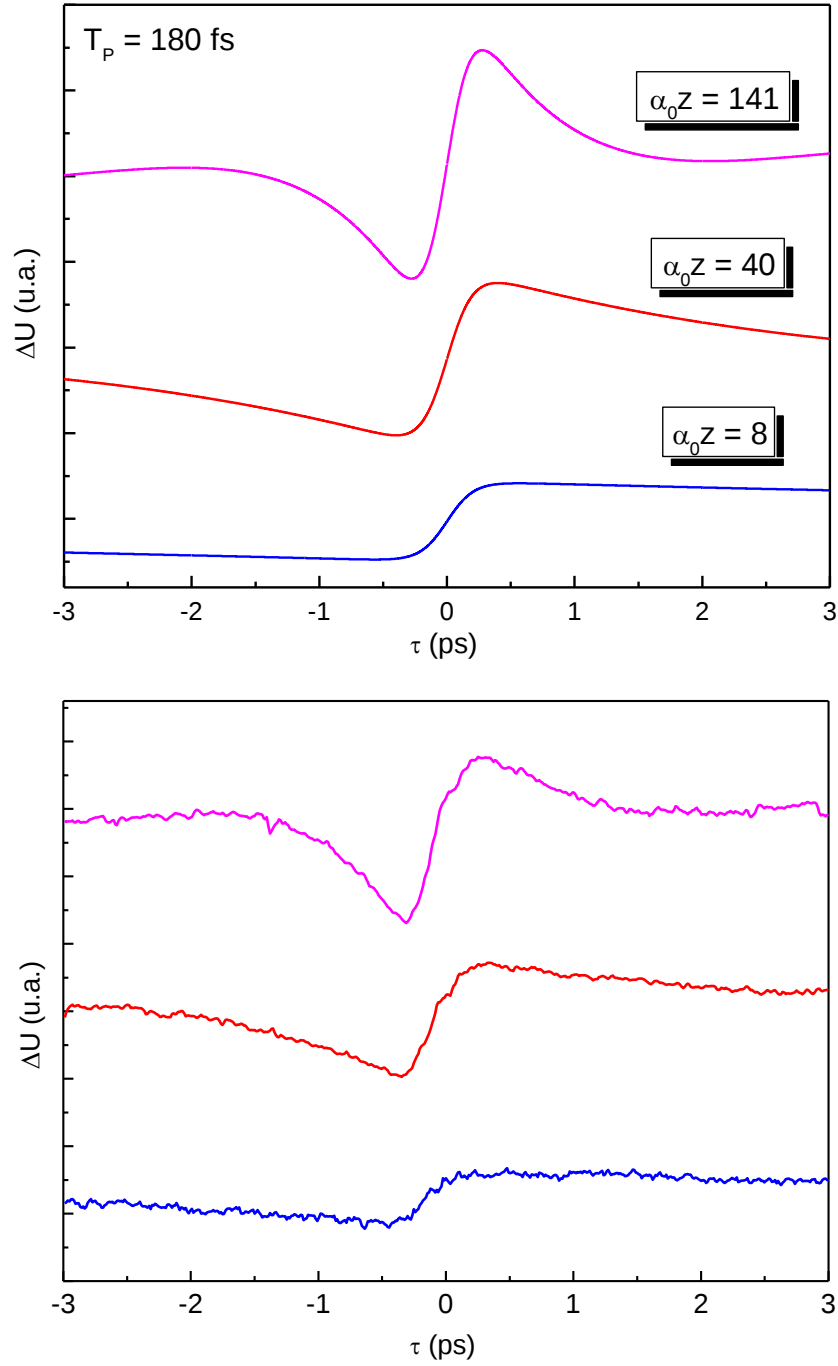
energia transmitida são decorrentes das modificações na envoltória temporal do pulso propagado.

Todas as curvas acima apresentam um sinal de fundo (*back-ground*) positivo. Tal sinal de fundo deve-se aos efeitos de acumulação da população, uma vez que a taxa de relaxação do átomo no estado excitado  $5P_{1/2}$  é menor que a taxa de repetição do laser. A Fig. 3.10 mostra o sinal de fundo quando o feixe de sonda é bloqueado antes do forno, e também, quando ambos o feixe de sonda e o de bombeio são bloqueados. Mesmo desconsiderando os efeitos de acumulação em um sistema de dois níveis, conseguimos descrever qualitativamente os resultados experimentais para o caso do laser ressonante com a transição de um fóton, a menos do sinal de fundo presente.

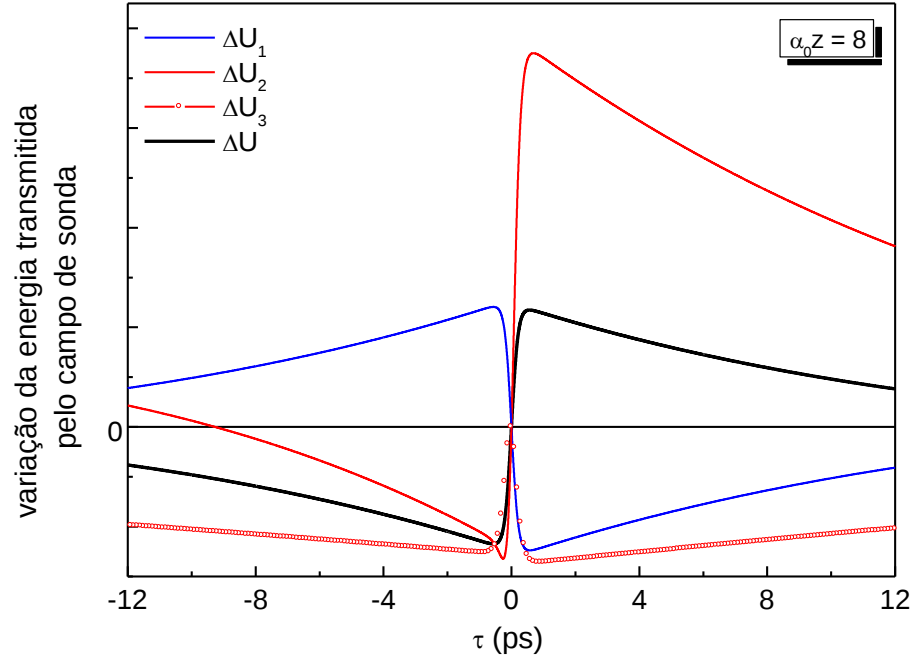


**Figura 3.10:** Acoplamento de dois feixes em uma única varredura onde apenas o feixe de sonda e simultaneamente os feixes de sonda e bombeio foram bloqueados. Por se tratar de uma única varredura, esta curva apresenta um ruído considerável em relação às demais curvas apresentadas neste trabalho. A “depressão” do sinal entre 4 e 8 ps é espúria.

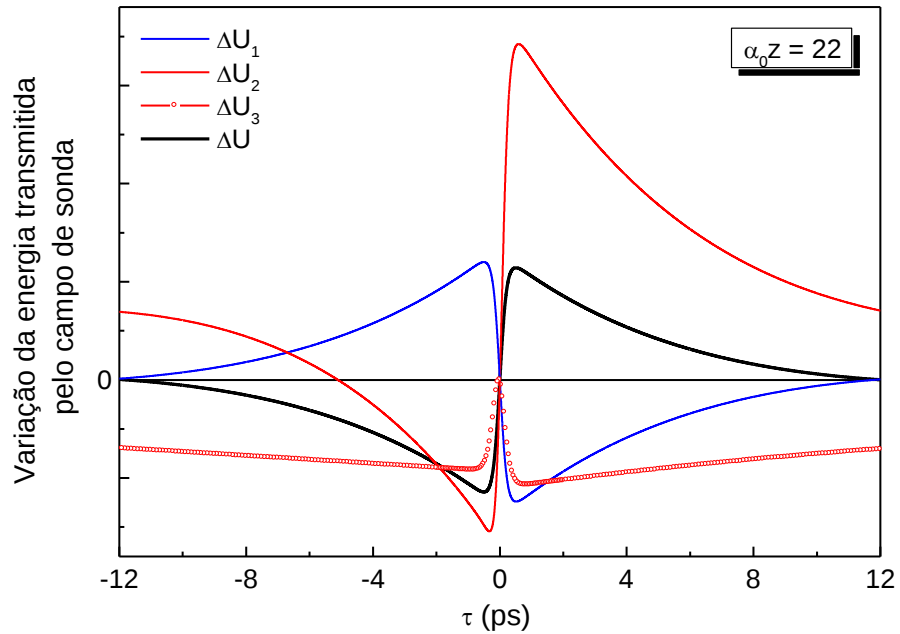
Realizamos portanto, simulações numéricas da variação da energia transmitida pelo feixe de sonda  $\Delta U(\tau)$ , para diferentes coeficientes de absorção  $\alpha_0$  e desconsiderando os efeitos de acumulação, a fim de comparar com os resultados experimentais acima. Nestas simulações cada uma das contribuições  $\Delta U_1(\tau)$ ,  $\Delta U_2(\tau)$  e  $\Delta U_3(\tau)$  (*absorção saturada*, *acoplamento da polarização* e *decaimento livre da indução perturbada*, respectivamente) dos termos de polarização discutidos no capítulo 2 foram calculadas separadamente, e em seguitas somados para obter a variação total da energia transmitida pelo pulso. A figura 3.11 mostra simulações numéricas e resultados experimentais de  $\Delta U(\tau)$  para três diferentes coeficientes de absorção, onde todas as curvas foram normalizadas entre si, de forma a ficarem com uma mesma amplitude em torno de  $\tau = 0$ . Em seguida, as Fig. 3.12 a 3.16 mostram  $\Delta U_1(\tau)$ ,  $\Delta U_2(\tau)$ ,  $\Delta U_3(\tau)$  e  $\Delta U(\tau)$  para diferentes coeficientes de absorção.



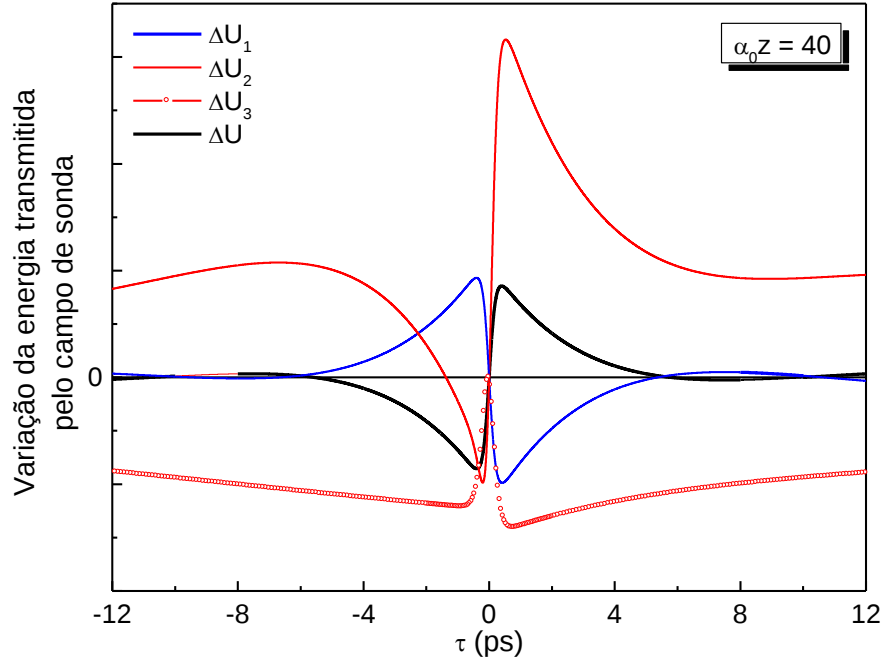
**Figura 3.11:** (a) Simulação numérica para o acoplamento de dois feixes ressonantes com transição de um fóton para diferentes coeficientes de absorção  $\alpha_0$  e (b) resultados experimentais para diferentes densidades. As curvas correspondentes às simulações numéricas foram normalizadas para que tivessem a mesma amplitude.



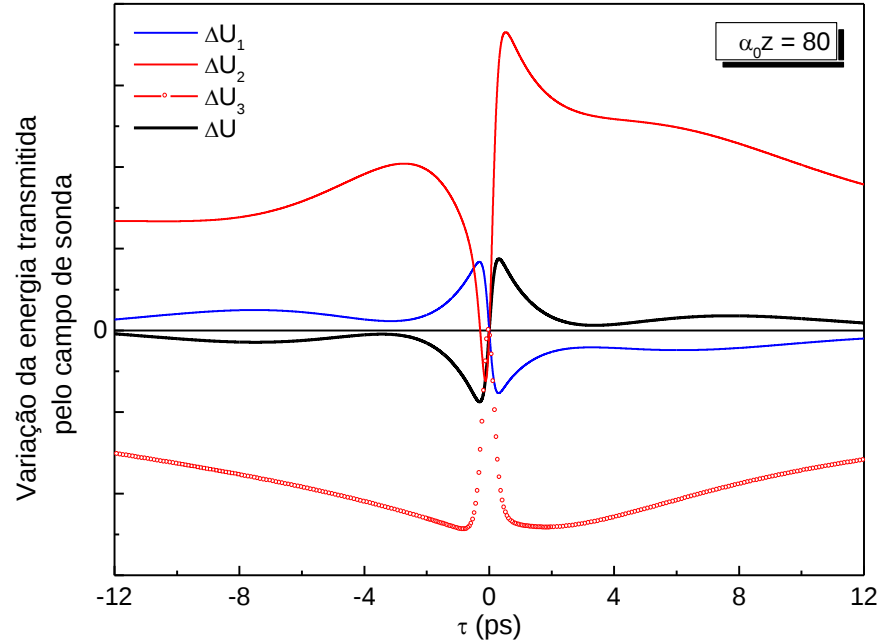
**Figura 3.12:** Simulações numéricas do sinal do acoplamento de dois feixes,  $\Delta U$ , e as contribuições dos diferentes termos da polarização,  $\Delta U_1$ ,  $\Delta U_2$ , e  $\Delta U_3$ , para  $\alpha_0 z = 8$  (densidade atômica  $2,0 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ ).



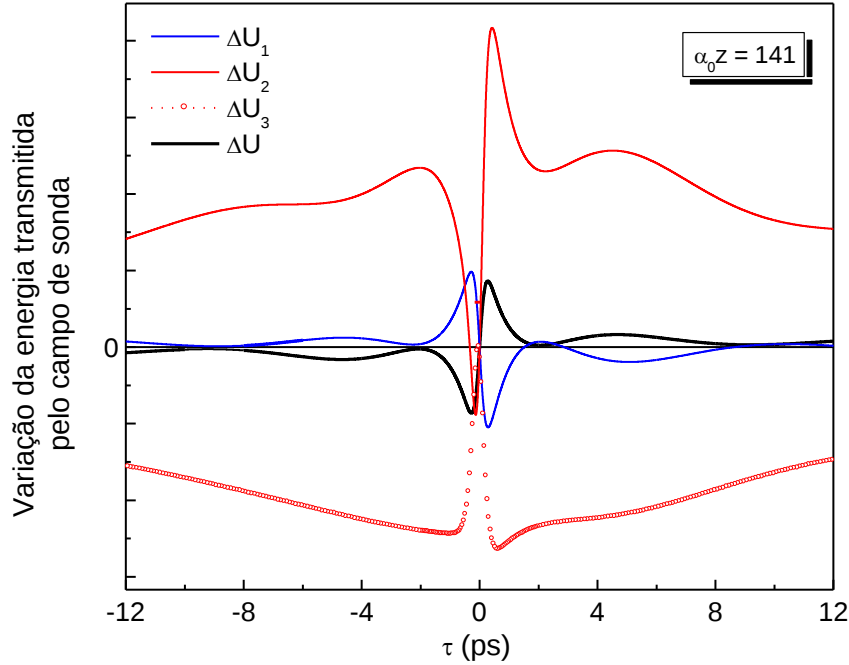
**Figura 3.13:** Simulações numéricas do sinal do acoplamento de dois feixes,  $\Delta U$ , e as contribuições dos diferentes termos da polarização,  $\Delta U_1$ ,  $\Delta U_2$ , e  $\Delta U_3$ , para  $\alpha_0 z = 22$  (densidade atômica  $5,4 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ ).



**Figura 3.14:** Simulações numéricas do sinal do acoplamento de dois feixes,  $\Delta U$ , e as contribuições dos diferentes termos da polarização,  $\Delta U_1$ ,  $\Delta U_2$ , e  $\Delta U_3$ , para  $\alpha_0 z = 40$  (densidade atômica  $1,0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ ).



**Figura 3.15:** Simulações numéricas do sinal do acoplamento de dois feixes,  $\Delta U$ , e as contribuições dos diferentes termos da polarização,  $\Delta U_1$ ,  $\Delta U_2$ , e  $\Delta U_3$ , para  $\alpha_0 z = 80$  (densidade atômica  $2,0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ ).



**Figura 3.16:** Simulações numéricas do sinal do acoplamento de dois feixes,  $\Delta U$ , e as contribuições dos diferentes termos da polarização,  $\Delta U_1$ ,  $\Delta U_2$ , e  $\Delta U_3$ , para  $\alpha_0 z = 141$  (densidade atômica  $3,5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ ).

A forma de cada uma das contribuições  $\Delta U_1(\tau)$ ,  $\Delta U_2(\tau)$  e  $\Delta U_3(\tau)$  obtidas nas figuras 3.12 a 3.16, assim como a variação total da energia transmitida pelo feixe de sonda  $\Delta U(\tau)$ , são completamente diferentes quando comparadas à situação em que a propagação foi desprezada ( $\alpha_0 = 0$ ) apresentado na figura 2.4. A primeira característica mais evidente dos resultados mostrados nas figuras 3.12 a 3.16 é que as oscilações que ocorrem na escala de picossegundos tornam-se mais frequentes à medida que a densidade do meio é aumentada, consequência direta da cauda oscilatória do perfil temporal do pulso propagado.

Chama atenção, também, que a contribuição da saturação da população,  $\Delta U_1(\tau)$ , é positiva para  $\tau < 0$  e negativa para  $\tau > 0$ , no caso em que a propagação está presente. Além do mais, vemos nas curvas acima, que  $\Delta U(\tau) \approx -\Delta U_1(\tau)$ , o que é muito diferente do caso em que os efeitos de propagação foram desconsiderados.

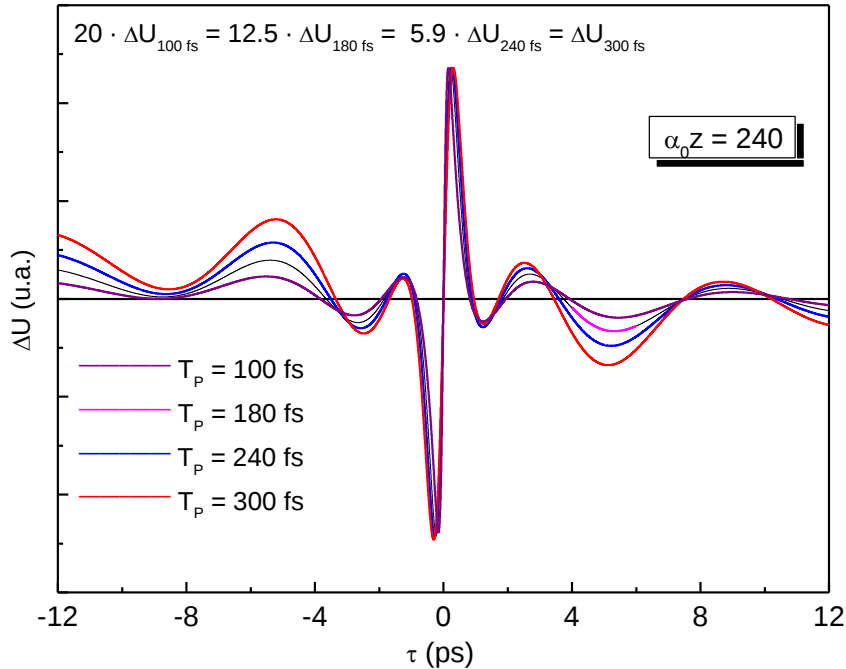
No caso do decaimento livre da indução perturbada a contribuição é sempre negativa, exceto em torno da origem ( $\tau \approx 0$ ) onde esta contribuição se anula, como todas as demais contribuições. A contribuição referente ao acoplamento da polarização apresenta sempre ganho para  $\tau > 0$ . Para  $\tau < 0$ , e longe da origem, esta contribuição é negativa para densidades baixas e eventualmente torna-se positiva para densidades maiores. Esta contribuição apresenta uma “depressão” em torno da origem. A largura desta “depressão” diminui à medida que a densidade atômica aumenta.

Aparentemente a variação total da energia do feixe tende a zero para atrasos muito maiores que a duração do pulso. Isto indica que o transiente produzido por pulsos que não

contém a frequência ressonante com a transição atômica são nulos, o que seria esperado porque os pulsos  $0-\pi$  gerados pela propagação linear no meio não depositam energia no sistema atômico. Este decaimento torna-se mais lento à medida que a densidade atômica aumenta. Isto acontece porque o atraso de grupo torna-se maior ( $\tau_g(\omega) \propto N$ ), aumentando assim a cauda oscilatória do perfil temporal do pulso propagado, de modo que os pulsos podem trocar energia, mesmo para atrasos muito longos.

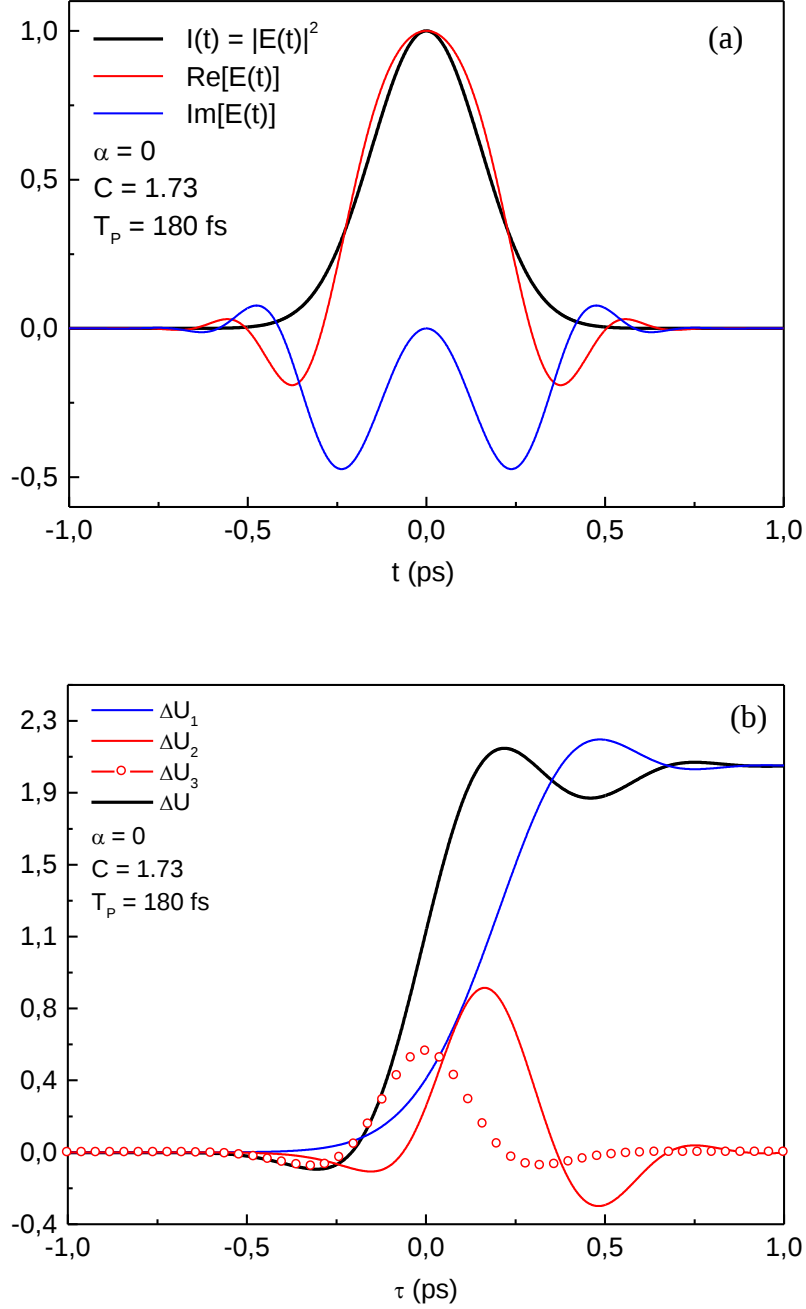
É importante ressaltar que  $\Delta U(\tau)$  é aproximadamente antissimétrica, isto é,  $\Delta U(-\tau) \approx -\Delta U(\tau)$  para baixas densidades (ver figuras 3.12 a 3.16). Isto é indicativo de que processos paramétricos dominam a transferência de energia entre os feixes. Esta afirmativa é baseada na idéia de que se alterarmos os papéis dos pulsos de bombeio e do sonda, onde houver aumento da energia de um, haverá diminuição de energia do outro, para curvas com este tipo de simetria, não havendo energia depositada nos átomos. Novamente isto é consistente com o fato do pulso ser  $0-\pi$ . Para densidades atômicas do meio muito elevadas, a antissimetria do sinal é quebrada (ver figura 3.17). Isto aparentemente também é observado em nossos resultados experimentais (ver figura 3.9), mas não compreendemos isto de maneira clara.

Também analisamos em nossas simulações a dependência do sinal com a duração do pulso, tendo em vista que verificamos experimentalmente que a variação da energia transmitida tem sua amplitude muito sensível à largura espectral do laser. A Fig. 3.17 mostra o comportamento de  $\Delta U(\tau)$  para diferentes durações do pulso. À medida que a largura do pulso é aumentada, a posição dos picos laterais não é fortemente modificada, mas a amplitude dos próprios picos é bastante sensível à duração do pulso. Experimentalmente registramos os efeitos da mudança da amplitude do sinal com a duração do pulso na Fig. 3.8.



**Figura 3.17:** Simulações numéricas para o acoplamento de dois feixes ressonantes com a transição de um fóton, para diferentes durações do pulso. Nesta situação o coeficiente de absorção é  $\alpha_0 Z = 240$ , correspondendo à densidade atômica de  $6,0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ .

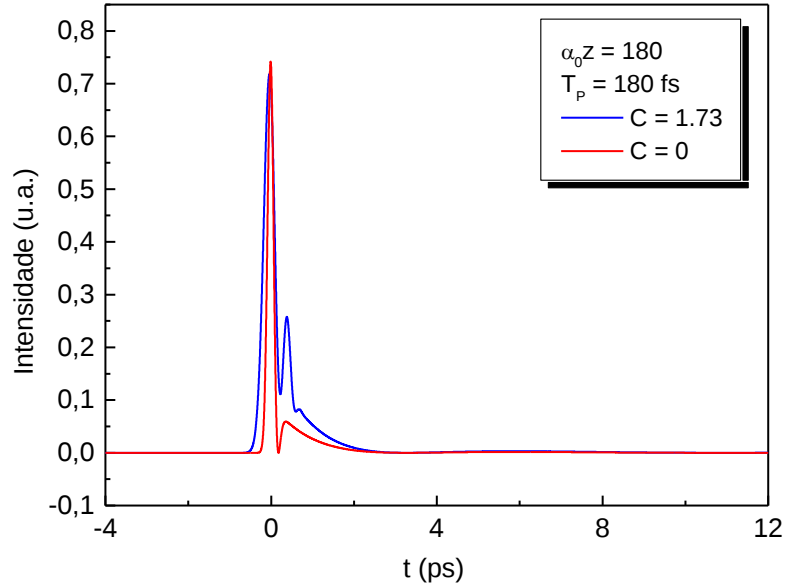
Para um melhor entendimento do processo de acoplamento de dois feixes realizamos simulações numéricas deste tipo de mistura de ondas com pulsos com varredura de frequência. Para este fim consideramos a situação em que  $C = 1,73$  na Eq. 1.28, com  $T_p = 180$  fs (ver Fig. 3.18a), e densidade suficientemente baixa para que os efeitos de propagação pudessem ser desprezados ( $\alpha_0 z \approx 0$ ). Para este parâmetro de *chirp*, o pulso tem a duração multiplicada por um fator de 2. Na Fig. 3.18b são apresentadas as diferentes contribuições para a variação da energia transmitida.



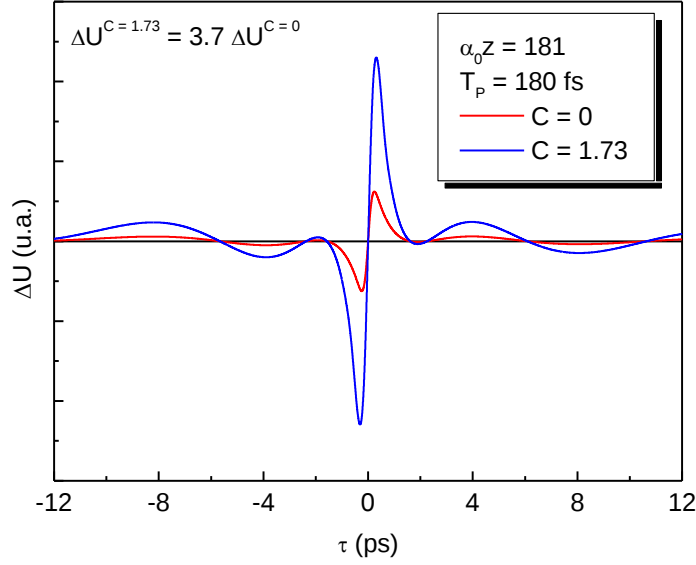
**Figura 3.18:** Simulações numéricas para o acoplamento de dois feixes com ressonância de um fóton, para uma varredura de frequência positiva ( $C = 1,73$ ) e efeitos de propagação desprezíveis:  $\alpha_0 z \approx 0$ .

O *chirp* introduzido faz com que as curvas de  $\Delta U_1(\tau)$ ,  $\Delta U_2(\tau)$  e  $\Delta U_3(\tau)$ , assim como  $\Delta U(\tau)$  percam sua simetria, e também passem a apresentar oscilações em uma escala na ordem de 100 fs.

Comparamos também o efeito da varredura de frequência do pulso “*chirpado*” e da varredura de frequência introduzida pela própria propagação do pulso no meio. Para a situação em que o coeficiente de absorção é  $\alpha_0 z = 180$ , calculamos numericamente a envoltória do pulso nos casos em que  $C = 0$  e  $C = 1,73$ , conforme mostrado na Fig. 3.19. Verificamos que apesar da envoltória do pulso ter uma forma diferente, nenhuma modificação ocorre na forma da variação da energia transmitida, ocorrendo apenas um aumento da amplitude do mesmo. Isto mostra que, para a variação da energia transmitida, a varredura de frequência do chirp que altera a forma do sinal do acoplamento de dois feixes no caso em  $\alpha_0 z = 0$ , torna-se desprezível se comparada com a varredura de frequência da propagação do pulso pelo meio.



**Figura 3.19:** Simulações numéricas para o perfil temporal do pulso propagando-se em um meio com uma ressonância de um fóton, para o caso de um pulso (i) sem *chirp* ( $C = 0$ ) e (ii) com varredura de frequência positiva ( $C = 1,73$ ), e coeficiente de absorção  $\alpha_0 z = 180$ , correspondendo à densidade atômica  $4,5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ .



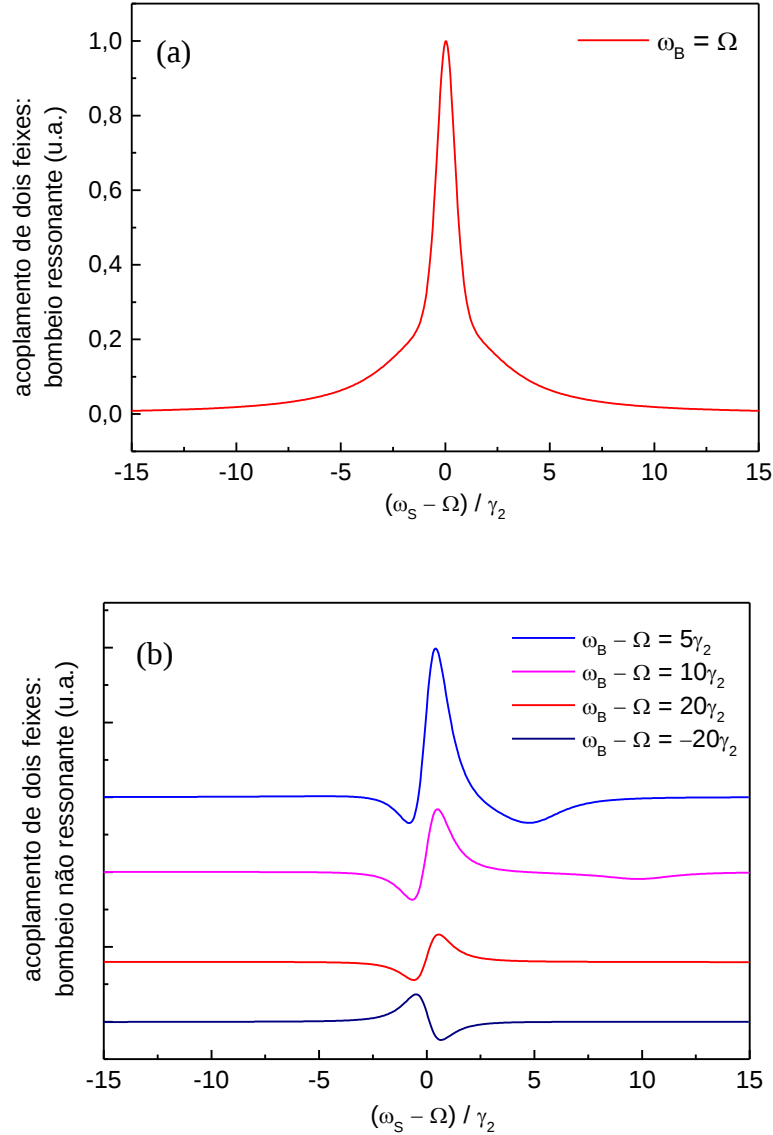
**Figura 3.20:** Simulações numéricas do acoplamento de dois feixes ressonantes à transição de um fóton para o caso de um pulso com varredura de frequência positiva ( $C = 1,73$ ) e nula.

Para um melhor entendimento dos efeitos da propagação sobre a forma temporal do sinal de acoplamento de dois feixes, calculamos a taxa da variação da energia transmitida na direção do feixe de sonda para o acoplamento de dois feixes no domínio espectral. Neste caso, os campos dos feixes de sonda e bombeio foram assumidos como campos monocromáticos  $\tilde{E}_s(\omega) = \varepsilon_{0s}\delta(\omega - \omega_s)$  e  $\tilde{E}_b(\omega) = \varepsilon_{0b}\delta(\omega - \omega_b)$ . A frequência do feixe  $\omega_b$  de sonda foi mantida constante, e calculamos o sinal do acoplamento de dois feixes em função da frequência do feixe de bombeio,  $\omega_s$ . A variação da energia transmitida na direção do campo de sonda por unidade de tempo é dada por (ver apêndice B):

$$\begin{aligned} \frac{dU}{dt} = \frac{2N\mu^4\omega_L\varepsilon_{0s}\varepsilon_{0b}^*\varepsilon_{0b}}{\hbar^3} & \left\{ \frac{1}{[i\gamma_1][(\Omega - \omega_s) - i\gamma_2][(\Omega - \omega_b) - i\gamma_2]} \right. \\ & + \frac{1}{[-i\gamma_1][(\Omega - \omega_s) - i\gamma_2][(\Omega - \omega_b) + i\gamma_2]} \\ & + \frac{1}{[(\Omega - \omega_s) - i\gamma_2][(\omega_b - \omega_s) - i\gamma_1][(\Omega - \omega_b) + i\gamma_2]} \\ & \left. + \frac{1}{[(\Omega - \omega_s) - i\gamma_2][(\omega_s - \omega_b) + i\gamma_1][(\Omega - \omega_b) - i\gamma_2]} \right\} \end{aligned} \quad (3.4)$$

Os dois primeiros termos da Eq.3.4 correspondem aos termos de população no domínio temporal, o terceiro ao acoplamento da polarização e o último ao decaimento livre da indução perturbada. Considerando que  $\gamma_1 = 2\gamma_2$ , verificamos que quando as frequências do campo de sonda e bombeio são iguais, o sinal é simétrico em relação à dessintonização do feixe de bombeio,  $\omega_s - \Omega$ . Quando as frequências são diferentes, esta simetria do sinal é quebrada, e passamos a ter um sinal em forma de “S”, semelhante ao que obtemos experimentalmente no domínio temporal.

Os resultados apresentados na Fig. 3.21 (regime CW) ajudam a compreender o processo de troca de energia entre pulsos que ocorrem no domínio temporal. Devido à propagação no meio ressonante os pulsos adquirem uma varredura de frequência, significando que diferentes frequências chegam na região de interação em tempos distintos, devido à dispersão do meio. Dependendo do atraso relativo, o feixe de sonda pode sofrer um aumento de sua energia, ou perder energia. Esta é a origem do formato em “S” observado experimentalmente na energia do feixe de sonda, quando usamos pulsos de femtossegundos para este tipo de medida. Ainda precisamos completar esta análise, tendo em vista que para o sinal CW pode haver uma troca de sinal dependendo da dessintonia do feixe de bombeamento, conforme pode ser observado nas duas últimas curvas da Fig. 3.21b.



**Figura 3.21:** Taxa de energia transferida no acoplamento de dois feixes nos casos (a) bombeio ressonante com a transição de um fóton e (b) bombeio não-ressonante.

Vimos neste capítulo aplicações da técnica de acoplamento de dois feixes, que foi aplicada para duas diferentes transições do Rb. Na transição  $5S-5P_{3/2}-5D$ , que refere-se a uma absorção de dois fótons, comparamos os resultados das medidas em um experimento de acoplamento de dois feixes com medidas em experimentos de fluorescência. Vimos algumas características em comum nestes dois tipos de experimentos, tal como efeitos de propagação e acumulação. Com respeito à transição  $5S-5P_{1/2}$ , que corresponde a uma transição de um fóton, simulações numéricas foram realizadas. Nas simulações, parâmetros como densidade, duração do pulso e *chirp* foram analisados afim de um melhor entendimento sobre as medidas observadas. Também analisamos a variação da energia transmitida pelo campo de sonda no domínio da frequência, supondo que os campos são monocromáticos.

## Capítulo 4

### CONCLUSÕES E PERSPECTIVAS

Neste trabalho foi estudado o acoplamento de dois feixes em vapor de Rb para as transições  $5S - 5P_{3/2} - 5D$  e  $5S - 5P_{1/2}$ , utilizando um laser de femtossegundos para excitar o sistema atômico.

Na primeira parte deste trabalho, apresentamos os princípios básicos para a geração de pulsos ultra-curtos em um laser de Ti:safira. Analisamos também os efeitos de dispersão sobre a envoltória de um pulso com uso de conceitos como dispersão da velocidade de grupo, atraso de grupo e varredura de frequência (*chirp*).

No segundo capítulo, foi apresentada a técnica do acoplamento de dois feixes, para o caso de campos monocromáticos, em meios não-ressonantes. A troca de energia entre os feixes dá-se quando dois campos de frequências distintas interagem simultaneamente em um meio não-linear. Neste mesmo capítulo calculamos a polarização não-linear de 3ª. ordem induzida e a variação da energia transmitida pelo feixe de sonda para o caso de campos pulsados, em um sistema de dois níveis. A polarização não-linear foi separada em três termos diferentes: (i) absorção saturada, (ii) acoplamento da polarização e (iii) decaimento livre da indução perturbada [28]. Apresentamos simulações numéricas da variação da energia transmitida pelo feixe de sonda para um meio ressonante, opticamente fino e com taxas de relaxação muito maiores que a duração dos pulsos. Na prática, isto não é totalmente verdadeiro, uma vez que os feixes propagam-se, até a região de interação, por um meio ressonante. Para tratar deste problema discutimos neste trabalho a teoria da propagação linear e os seus efeitos sobre o perfil temporal de pulsos de área pequena.

No capítulo 3, apresentamos o aparato experimental para realização de medidas do acoplamento de dois feixes em vapor de Rb. Os resultados experimentais foram apresentados em duas partes: uma referente à transição  $5S - 5P_{3/2} - 5D$  que envolve uma absorção de dois fótons, e outra à transição  $5S - 5P_{1/2}$  que envolve apenas absorção de um fóton, para a qual implementamos um programa numérico para simular os resultados. Tanto nos experimentos envolvendo absorção de um fóton ou dois fótons, verificamos que a variação da energia transmitida pelo feixe de sonda é sensível à densidade, devido aos efeitos de propagação, e à duração do pulso (largura espectral).

Para a transição  $5S - 5P_{3/2} - 5D$ , além das medidas do acoplamento de dois feixes, também foram realizadas medidas da fluorescência. Em trabalhos anteriores [6, 14], efeitos de acumulação foram estudados utilizando experimentos de fluorescência, que são sensíveis às populações criadas pelos pulsos incidentes. Efeitos de acumulação também estão presentes nos experimentos de acoplamento de dois feixes, conforme verificado pela presença dos

batimentos de frequências de 2,11 THz e a presença de um sinal de fundo em nossas medidas. Não pudemos afirmar destes resultados se este é um efeito de acumulação na coerência óptica.

O estudo do processo de acoplamento de dois fótons na transição de dois fótons  $5S - 5P_{3/2} - 5D$ , é complexo, devido à grande largura de banda do laser de femtossegundos: as medidas experimentais envolvem misturas dos processos de absorção de um e dois fótons. Procuramos então sintonizar o laser na transição  $5S - 5P_{1/2}$ , para estudar o acoplamento de dois feixes onde apenas a transição de um fóton está presente. Nesta nova configuração os batimentos em 2,11 THz não são mais observados mas os efeitos de acumulação são provavelmente responsáveis pelo sinal de fundo observado nas medidas realizadas para esta transição.

Fizemos simulações numéricas, desconsiderando os efeitos de acumulação, para a variação da energia transmitida no caso em que a frequência central dos pulsos encontra-se em ressonância com a frequência da transição  $5S - 5P_{1/2}$ . Conseguimos uma boa concordância entre a forma das curvas teóricas e experimentais para diferentes densidades atômicas do meio. Motivados com esta concordância, utilizamos também as simulações numéricas para analisar os efeitos da duração do pulso sobre a variação da energia transmitida pelo feixe de sonda. Vimos que tanto experimentalmente, quanto em nossas simulações, as amplitudes dos picos da variação da energia transmitida tornam-se maiores quanto maior for a duração do pulso. Isto é uma consequência direta da propagação linear, conforme mostrado na Fig. 2.10, onde pulsos de maior duração têm menor largura de banda. Com isto, os efeitos que afetam o espectro do pulso de forma localizada (em torno da frequência de ressonância, basicamente), são proporcionalmente mais significativos para os pulsos de maior duração.

Uma outra consequência da propagação sobre a variação da energia transmitida são as oscilações da ordem de picosegundos presentes nas medidas, que também estão presentes nas medidas de fluorescência. Essas oscilações apresentam períodos cada vez menores à medida que a densidade do meio é aumentada.

Analizamos, também numericamente, o acoplamento de dois feixes no domínio espectral, onde a frequência de um dos campos (bombeio) foi fixada, e a frequência do segundo (sonda) foi varrida. No caso do acoplamento de dois feixes degenerado em que o campo de bombeio está ressonante com a frequência de transição, a curva da taxa da variação da energia transmitida pelo campo de sonda em função da frequência apresenta um comportamento simétrico. Já no caso não-ressonante, verificamos que a taxa da variação da energia transmitida pelo campo de sonda é assimétrica. Lembramos que no caso de um pulso de femtossegundos a dispersão de atraso de grupo faz com que diferentes componentes de frequência cheguem à região de interação em instantes distintos. Juntando isto aos resultados para o acoplamento de dois feixes no regime CW discutidos neste parágrafo, acreditamos que possa ser encontrada uma interpretação física para nossos resultados experimentais e numéricos para a troca de energia entre os pulsos de femtossegundos.

Como perspectivas de continuidade deste trabalho enumeramos as seguintes possibilidades: (a) realizar análise numérica dos resultados experimentais para a transição  $5S - 5P_{3/2} - 5D$  que envolve absorção de dois fótons; (b) introduzir os efeitos de acumulação baseados nas referências [6, 14, 41] para as transições  $5S - 5P_{1/2}$  e  $5S - 5P_{3/2} - 5D$ . Além disto,

a interpretação das diferentes contribuições para a polarização de terceira ordem sugerida na referência [28] não envolve efeitos de propagação. Seria interessante analisar a contribuição de cada um destes termos levando em consideração os efeitos da propagação, isto é, como os efeitos de propagação modificam cada um dos termos  $\Delta U_1(\tau)$ ,  $\Delta U_2(\tau)$  e  $\Delta U_3(\tau)$ .

## APÊNDICE A

### Demonstração da Eq. 2.55:

O campo total na amostra é dado pela superposição dos campos dos feixes de sonda e bombeio:

$$\vec{E}(t) = \vec{E}_s(t) + \vec{E}_B(t) . \quad (\text{A.1})$$

Considerando que o campo de bombeio seja dado pela Eq. 2.6, temos:

$$\begin{aligned} E_B(z,t) &= \varepsilon_B(z,t) \cos[\omega_L t - \vec{k}_B \cdot \vec{r} - \varphi_B(z,t)] \Rightarrow . \\ E_B(z,t) &= \frac{1}{2} \varepsilon_B(z,t) \cdot e^{i\varphi_B(z,t)} \cdot e^{i(\vec{k}_B \cdot \vec{r} - \omega_L t)} + C.C. . \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

Definimos a amplitude complexa como:  $\varepsilon_{0B}(z,t) = \varepsilon_B(z,t) \cdot e^{i\varphi_B(z,t)}$ . Com isto:

$$E_B(z,t) = \frac{1}{2} \varepsilon_{0B}(z,t) \cdot e^{i(\vec{k}_B \cdot \vec{r} - \omega_L t)} + C.C. . \quad (\text{A.3})$$

De forma análoga:

$$E_S(z,t) = \frac{1}{2} \varepsilon_{0S}(z,t) \cdot e^{i(\vec{k}_S \cdot \vec{r} - \omega_L t)} + C.C. . \quad (\text{A.4})$$

Segue que, o campo total pode ser escrito como:

$$E(z,t) = \frac{1}{2} \left[ \varepsilon_{0S}(z,t) \cdot e^{i\vec{k}_S \cdot \vec{r}} + \varepsilon_{0B}(z,t) \cdot e^{i\vec{k}_B \cdot \vec{r}} \right] e^{-i\omega_L t} + C.C. \Rightarrow E(z,t) = E_0(z,t) e^{-i\omega_L t} + C.C. \quad (\text{A.5})$$

onde

$$E_0(z,t) = \frac{1}{2} \left[ \varepsilon_{0S}(z,t) \cdot e^{i\vec{k}_S \cdot \vec{r}} + \varepsilon_{0B}(z,t) \cdot e^{i\vec{k}_B \cdot \vec{r}} \right]. \quad (\text{A.6})$$

## APÊNDICE B

### Demonstração da Eq. 3.4:

Consideremos um sistema de dois níveis como mostrado na figura 2.3 interagindo com campos monocromáticos  $E_\alpha(t)$ ,  $E_\beta(t)$  e  $E_\gamma(t)$  com frequências genéricas  $\omega_\alpha$ ,  $\omega_\beta$  e  $\omega_\gamma$ , respectivamente. Escreveremos os campos na forma  $E_k(t) = E_k e^{-i\omega_k t} + E_k^* e^{i\omega_k t}$ , onde  $k = \alpha, \beta$  e  $\gamma$ . Seja ainda  $\rho_D = \rho_{aa} - \rho_{bb}$  e considerando que toda a população encontra-se inicialmente no estado fundamental, isto é,  $(\rho_{aa} - \rho_{bb})_0 = -1$ , e que o potencial que representa a interação do sistema atômico com os campos  $E_k(t)$  é  $\hat{V}(t) = -\vec{\mu} \cdot \vec{E}_k(t)$ . Neste caso o sistema de equação 2.37 torna-se:

$$\frac{d\rho_D}{dt} = \frac{2i\mu}{\hbar} E_k(t) (\sigma_{ab}^* - \sigma_{ab}) - \gamma_1 (\rho_D + 1) \quad (\text{B.1a})$$

$$\frac{d\rho_{ab}}{dt} = (-i\Omega - \gamma_2) \rho_{ab} - \frac{i\mu}{\hbar} E_k(t) \rho_D \quad (\text{B.1b})$$

$$\frac{d\rho_{ba}}{dt} = (i\Omega - \gamma_2) \rho_{ba} + \frac{i\mu}{\hbar} E_k(t) \rho_D \quad (\text{B.1c})$$

onde  $\Delta_k = \Omega - \omega_k$ .

Obteremos uma solução do sistema de equações B.1 de forma perturbativa, considerando o potencial de interação  $\hat{V}(t) = -\vec{\mu} \cdot \vec{E}(t)$  como uma perturbação em relação ao Hamiltoniano  $\hat{H}_0$  não perturbado, como descritos na seção 2.5. Sejam  $k = \alpha$ , temos que a evolução temporal dos termos de coerência em primeira ordem é dada por:

$$\frac{d\rho_{ab}^{(1)}}{dt} = (-i\Omega - \gamma_2) \rho_{ab}^{(1)} - \frac{i\mu}{\hbar} E_k(t) \rho_D^{(0)} \quad (\text{B.2})$$

Sendo  $\rho_{ab}^{(1)} = \sigma_{ab}^{(1)} \cdot e^{-i\omega_\alpha t}$ , os termos  $\sigma_{ab}^{(1)}$  e  $\sigma_{ba}^{(1)}$  representam as amplitudes que variam lentamente das coerências em 1ª. ordem. Considerando o estado estacionário ( $d\sigma_{ab}^{(1)}/dt = 0$ ), obtém-se:

$$\sigma_{ab}^{(1)}(\omega_\alpha) = -\frac{i\mu}{\hbar} \left[ \frac{E_\alpha}{i(\Omega - \omega_\alpha) + \gamma_2} \right] \rho_D^{(0)} \quad (\text{B.3a})$$

$$\sigma_{ab}^{(1)}(-\omega_\alpha) = \frac{i\mu}{\hbar} \left[ \frac{E_\alpha^*}{-i(\Omega - \omega_\alpha) + \gamma_2} \right] \rho_D^{(0)} \quad (\text{B.3b})$$

A partir deste resultado podemos calcular a evolução temporal do termo correspondente à diferença de população em 2ª. ordem, segundo a equação B.1a:

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_D^{(2)}}{dt} &= \frac{2i\mu}{\hbar} E_\beta(t) (\sigma_{ba}^{(1)} - \sigma_{ab}^{(1)}) - \gamma_1 \rho_D^{(2)} \Rightarrow \\ \frac{d\rho_D^{(2)}}{dt} &= -\frac{2i\mu}{\hbar} \left[ (E_\beta e^{-i\omega_\beta t} + E_\beta^* e^{i\omega_\beta t}) (\sigma_{ab}^{(1)}(\omega_\alpha) e^{-i\omega_\alpha t}) - (E_\beta e^{-i\omega_\beta t} + E_\beta^* e^{i\omega_\beta t}) (\sigma_{ba}^{(1)}(-\omega_\alpha) e^{i\omega_\alpha t}) \right] - \gamma_1 \rho_D^{(2)} \end{aligned} \quad (B.4)$$

Na equação acima, usando a aproximação de onda girante (R.W.A.), podemos desconsiderar os termos que oscilam com frequências  $\pm(\omega_\alpha + \omega_\beta)$ . Desta forma, seja  $\rho_D^{(2)}(\omega_\alpha - \omega_\beta) = \sigma_D^{(2)}(\omega_\alpha - \omega_\beta) \cdot e^{-i(\omega_\alpha - \omega_\beta)t}$  e  $\rho_D^{(2)}(-\omega_\alpha + \omega_\beta) = \sigma_D^{(2)}(-\omega_\alpha + \omega_\beta) \cdot e^{i(\omega_\alpha - \omega_\beta)t}$ , podemos considerar a equação B.4 separável em duas partes onde  $\rho_D = \rho_D^{(2)}(-\omega_\alpha + \omega_\beta) + \rho_D^{(2)}(\omega_\alpha - \omega_\beta)$ . Para o estado estacionário ( $d\sigma_D^{(2)}/dt = 0$ ), temos que:

$$\sigma_D^{(2)}(\omega_\alpha - \omega_\beta) = \left[ \frac{2\mu E_\beta^*/\hbar}{(\omega_\alpha - \omega_\beta) + i\gamma_1} \right] \cdot \left[ \frac{-\mu E_\alpha/\hbar}{(\Omega - \omega_\alpha) - i\gamma_2} \right] \rho_D^{(0)} \quad (B.5a)$$

$$\sigma_D^{(2)}(-\omega_\alpha + \omega_\beta) = \left[ \frac{2\mu E_\beta/\hbar}{(\omega_\alpha - \omega_\beta) - i\gamma_1} \right] \cdot \left[ \frac{-\mu E_\alpha^*/\hbar}{(\Omega - \omega_\alpha) - i\gamma_2} \right] \rho_D^{(0)} \quad (B.5b)$$

Podemos então calcular agora  $\sigma_{ab}^{(3)}$ . Segundo a equação B.1b, temos:

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{ab}^{(3)}}{dt} &= (-i\Omega - \gamma_2) \rho_{ab}^{(3)} - \frac{i\mu}{\hbar} E_\gamma(t) \rho_D^{(2)} \Rightarrow \\ \frac{d\rho_{ab}^{(3)}}{dt} &= (-i\Omega - \gamma_2) \rho_{ab}^{(3)} - \frac{i\mu}{\hbar} (E_\gamma e^{-i\omega_\gamma t} + E_\gamma^* e^{i\omega_\gamma t}) \left[ \sigma_D^{(2)}(\omega_\alpha - \omega_\beta) e^{-i(\omega_\alpha - \omega_\beta)t} + \sigma_D^{(2)}(-\omega_\alpha + \omega_\beta) e^{i(\omega_\alpha - \omega_\beta)t} \right] \end{aligned} \quad (B.6)$$

Uma vez que  $\pm(\omega_\alpha - \omega_\beta)$  são frequências baixas, a aproximação de onda girante será feita mais uma vez, de modo que:  $\rho_{ab}^{(3)}(\omega_\gamma + \omega_\alpha - \omega_\beta) = \sigma_D^{(3)}(\omega_\gamma + \omega_\alpha - \omega_\beta) \cdot e^{-i(\omega_\gamma + \omega_\alpha - \omega_\beta)t}$  e  $\rho_{ab}^{(3)}(\omega_\gamma - \omega_\alpha + \omega_\beta) = \sigma_D^{(3)}(\omega_\gamma - \omega_\alpha + \omega_\beta) \cdot e^{-i(\omega_\gamma - \omega_\alpha + \omega_\beta)t}$ . A equação B.6 tem soluções:

$$\sigma_{ab}^{(3)}(\omega_\alpha - \omega_\beta + \omega_\gamma) = -\frac{2\mu^3 E_\gamma E_\beta^* E_\alpha \rho_D^{(0)}}{\hbar^3 [(\Omega - \omega_\alpha + \omega_\beta - \omega_\gamma) - i\gamma_2] \cdot [(\omega_\beta - \omega_\alpha) - i\gamma_1] \cdot [(\Omega - \omega_\alpha) - i\gamma_2]} \quad (B.7a)$$

$$\sigma_{ab}^{(3)}(\omega_\beta - \omega_\alpha + \omega_\gamma) = \frac{2\mu^3 E_\gamma E_\beta E_\alpha^* \rho_D^{(0)}}{\hbar^3 [(\Omega - \omega_\beta + \omega_\alpha - \omega_\gamma) - i\gamma_2] \cdot [(\omega_\alpha - \omega_\beta) - i\gamma_1] \cdot [(\Omega - \omega_\alpha) + i\gamma_2]} \quad (B.7b)$$

No caso de dois campos:  $E_s(t) = \varepsilon_{0s} e^{i\vec{k}_s \cdot \vec{r} - i\omega_s t} + \text{C.C.}$  e  $E_B(t) = \varepsilon_{0B} e^{i\vec{k}_B \cdot \vec{r} - i\omega_B t} + \text{C.C.}$ , sonda e bombeio respectivamente, temos que o termo da absorção saturada corresponde aos indicados por  $\alpha$  e  $\beta$  como bombeio e  $\gamma$  como sonda para B.7a e B.7b. O termo de acoplamento da polarização corresponde a  $\alpha$  e  $\gamma$  como bombeio e  $\beta$  como sonda em B.7b. Já o termo de decaimento livre da indução perturbada corresponde a  $\beta$  e  $\gamma$  como bombeio e  $\gamma$  como sonda em B.7a. Lembrando que  $\rho_D^{(0)} = -1$ , a coerência em terceira ordem é então dada por:

$$\sigma_{ab}^{(3)} = \frac{2\mu^3 \varepsilon_{0s} \varepsilon_{0B}^* \varepsilon_{0B}}{\hbar^3} \left\{ \frac{1}{[i\gamma_1 \mathbb{I}(\Omega - \omega_2) - i\gamma_2 \mathbb{I}(\Omega - \omega_1) - i\gamma_2]} \right. \\ + \frac{1}{[-i\gamma_1 \mathbb{I}(\Omega - \omega_2) - i\gamma_2 \mathbb{I}(\Omega - \omega_1) + i\gamma_2]} \\ + \frac{1}{[(\Omega - \omega_2) - i\gamma_2 \mathbb{I}(\omega_1 - \omega_2) - i\gamma_1 \mathbb{I}(\Omega - \omega_1) + i\gamma_2]} \\ \left. + \frac{1}{[(\Omega - \omega_2) - i\gamma_2 \mathbb{I}(\omega_2 - \omega_1) + i\gamma_1 \mathbb{I}(\Omega - \omega_2) - i\gamma_2]} \right\} \quad (\text{B.8})$$

A potência (retirada do campo) é facilmente calculada:

$$\frac{\text{Potência}}{\text{Volume}} = -\vec{E} \cdot \frac{d\vec{P}}{dt} = -\text{Re}[\vec{E}_s^* \cdot \dot{\vec{P}}_s^{(3)}(\omega_s)] = -[\vec{E}_s^* (-i\omega_s \vec{P}^{(3)}(\omega_s))] = -\omega_s \text{Im}[\vec{E}_s^* \vec{P}^{(3)}] \Rightarrow \\ \frac{dU}{dt} \propto -\text{Im}[\vec{E}_s^* \cdot \sigma_{ab}^{(3)}(\omega_s)] \quad (\text{B.9})$$

Substituindo B.8 em B.9 obtermos a equação 3.4, como queríamos demonstrar.

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters e G. Weinreich. Generation of optical harmonics. *Phys. Rev. Lett.* **7**: 118- (1961).
2. T. W. Hänsch e H. Walther. Laser spectroscopy and quantum optics. *Rev. of Mod. Phys.*, **71**:S252-(1999).
3. M. Bellini, A. Bartoli e T. W. Hansch. Two-photon Fourier spectroscopy with femtosecond light pulses. *Opt. Lett.*, **22**: 540- (1997).
4. C. A. C. Bosco. *Dinâmica ultra-rápida em CdS, compostos orgânicos, e filmes finos de NiFe/NiO*. Tese de Doutorado, Departamento de Física – UFPE, (2003).
5. H. G. Barros. *Controle coerente em átomos de Rb por manipulação de fase de pulsos ultracurtos*. Dissertação de Mestrado, Departamento de Física – UFPE (2005).
6. D. Felinto. *Interação coerente de sistemas atômicos com trem de pulsos ultracurtos*. Tese de Doutorado, Departamento de Física – UFPE (2002).
7. O. Kinrot and Y. Prior. Nonlinear interaction of propagation short pulses in optically dense media. *Phys. Rev. A*, **51**: 4996- (1994).
8. O. Kinrot and Y. Prior. Four-wave mixing in optically dense media. *Phys. Rev. A*, **50**: 1999- (1993).
9. R. W. Boyd. *Nonlinear Optics*, Academic Press (2003).
10. Y. R. Shen. *The Principles of Nonlinear Optics*, John Wiley & Sons (1984).
11. M. D. Crisp. Propagation of small-area pulses of coherent light through a resonant medium, *Phys. Rev. Lett.*, **1**(6): 1604-1611 (1970).
12. D. Felinto, L. H. Acioli, e S. S. Vianna, Accumulative effects in coherence of three-level atoms excited by femtosecond-laser frequency combs. *Phys. Rev. A*, **70**: 043403 (2004).
13. L. E. Hargrove, R. L. Fork e M. A. Pollack. Locking of He-Ne laser modes induced by synchronous intracavity modulation. *Appl. Phys. Lett.*, **5**: 4, (1964).
14. H. W. Mocker and R. J. Collins, Mode competition and self-locking effects in a Q-switched ruby laser. *Appl. Phys. Lett.*, **7**: 270- (1965).

15. C. H. Brito Cruz e H.L. Fragnito. *Fenômenos Ultra-rápidos*. VII Escola José André Swieca, (2000).
16. J. Diels e W. Rudolph. *Ultrashort Laser Pulse Phenomena*. Academic Press (2006).
17. K. L. Sala, G. A. Kenny-Wallace, e G. E. Hall. CW autocorrelation measurements of picosecond laser pulses. *IEEE J. Quantum Electronics*, **16**: 990- (1980).
18. D. J. Kane, e R. Trebino, Single-shot measurement of the intensity and phase of an arbitrary ultrashort pulse by using frequency-resolved optical gating, *Opt Lett.*, **18**: 823- (1993).
19. D. E. Spence, P. N. Kean, e W. Sibbett. 60 Fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:Sapphire laser, *Opt. Lett.*, **16**: 42- (1991).
20. N. Sarukura, Y. Ishida, e H. Nakano. Generation of 50-Fsec pulses from a pulse compressed, CW, passively mode-locked Ti:Sapphire laser. *Opt.Lett.* **16**:153- (1991).
21. Tsunami Mode-locked Ti:sapphire Laser. *User's Manual*. Spectral-Physics (1995)
22. A. Yariv *Quantum Eletronics*. John Wiley & Sons (1983).
23. C. A. C. Bosco. *Propagação não-linear em lasers de Ti:safira para a geração de pulsos curtos*. Dissertação de Mestrado, Departamento de Física – UFPE, (1998).
24. R. L. Fork, O. E. Martinez, and J. P. Gordon. Negative dispersion using pairs of prisms. *Opt. Lett.*, **9**: 150- (1984).
25. J. D. Jackson. *Classical Electrodynamics*, John Wiley & Sons (1975).
26. R. A. Fisher, *Optical Phase Conjugation*, Academic Press (1983).
27. Carlos H. Brito Cruz, J.P.Gordon, P.C.Becker,R.L.Fork e Charles V. Shank. Dynamics of spectral hole burning. *IEEE J. Quantum Electronics*, QE-24, 261 (1988).
28. H. Friedmann e A. D. Wilson-Gordon. Asymmetry in pulsed four-wave mixing. *Phys. Rev. A*, **57**: 4854- (1998).
29. Langot, S. Montant, e E. Freysz. Measurement of non-instantaneous contribution to the  $\chi^{(3)}$  in different liquids using femtosecond chirped pulses. *Opt. Comm.*, **176**: 459- (2000).
30. S. Smolorz e F. Wise. Femtosecond two-beam coupling energy transfer from Raman and electronic nonlinearities. *J. Opt. Soc. Am. B*, **17**: 1636- (2000).
31. N. Tang e L. Sutherland. Time domain theory for pump-probe experiments with chirp pulses.

32. M. Sylla e G Rivoire. Degenerate two-beam coupling polarization properties in nonlinear materials. *J. Opt. Soc. Am. B*, **18**: 1612- (2001).
33. T. E. Dutton, P. M. Rentzepis, T. P. Shen, J. Scholl e D. Rogovin. Picosecond degenerate two-wave mixing. *J. Opt. Soc. Am. B*, **9**:1843- (1992).
34. J. J. Sakurai. *Modern Quantum Mechanics*, Addison-Wesley (1995).
35. L. S. Cruz. *Flutuações de campos eletromagnéticos interagindo em meios atômicos coerentemente preparados*. Tese de Doutorado, Instituto de Física – USP (2005).
36. F. G. Smith e T. A. King. *Optics and Photonics, An Introduction*. John Wiley & Sons (2000).
37. D.A. Steck. Rubidium 87 D line data. <http://steck.us/alkalidata> (2003).
38. D. Meshulach e Y. Silberberg. Coherent quantum control of two-photon transitions by a femtosecond laser pulse. *Nature*, **396**: 239- (1998).
39. N. Dudovich, D. Oron e Y. Silberberg. Coherent transient enhancement of optically induced resonant transitions. *Phys. Rev. Lett.*, **88**: 123004- (2002).
40. N. Dudovich, B. Dayan, S. M. G. Faeder e Y. Silberberg. Transform-limited pulses are not optimal for resonant multiphoton transitions. *Phys. Rev. Lett.*, **86**: 47- (2001).
41. D. Felinto, C. A. C. Bosco, L. H. Acioli e S. S. Vianna, Coherent accumulation in two-level atoms excited by a train of ultrashort pulses, *Opt. Comm*, **215**: 69- (2003).