



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

DISSERTAÇÃO DE MESTRADO

**CONTROLE COERENTE EM ÁTOMOS DE RB POR
MANIPULAÇÃO DA FASE DE PULSOS ULTRACURTOS**

por

Helena Gonçalves de Barros

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. Lúcio Hora Acioli (Orientador-UFPE)

Prof^a. Sandra Sampaio Vianna (Co-Orientadora - DF – UFPE)

Prof. Flávio Menezes de Aguiar (DF - UFPE)

Prof. Sérgio Carlos Zílio (IF – USP/SC)

Recife - PE, Brasil
Março - 2005



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

Parecer da Banca Examinadora de Defesa de Dissertação de Mestrado

Helena Gonçalves de Barros

CONTROLE COERENTE EM ÁTOMOS DE RB POR MANIPULAÇÃO DA FASE DE PULSOS ULTRACURTOS

A Banca Examinadora composta pelos Professores Lúcio Hora Acioli (Presidente e Orientador), Sandra Sampaio Vianna (Co-Orientadora), Flávio Menezes de Aguiar, todos da Universidade Federal de Pernambuco e Sérgio Carlos Zílio, do Instituto de Física da Universidade de São Paulo – São Carlos, consideram a candidata:

Aprovado com Distinção () Aprovado () Reprovado

Secretaria do Programa de Pós-Graduação em Física do Departamento de Física do Centro de Ciências Exatas e da Natureza da Universidade Federal de Pernambuco aos trinta e um dias do mês de março de 2005.

Prof. Lúcio Hora Acioli
Presidente e Orientador

Profª. Sandra Sampaio Vianna
Co-Orientadora

Prof. Flávio Menezes de Aguiar

Prof. Sérgio Carlos Zílio

Agradecimentos

Primeiramente, gostaria de agradecer ao prof. Lúcio Acioli pela maravilhosa orientação e incrível dedicação a este projeto. Nossas ricas e freqüentes discussões me ensinaram muito não apenas sobre óptica e física em geral, mas também sobre fatos da vida. Sua amizade bem humorada e seu apoio e confiança sobre mim fizeram com que este período, traumatizante para muitos, se transformasse numa bela jornada pelo mundo da física.

Gostaria de agradecer também à profa. Sandra Vianna por sua grande contribuição a esta tese. Sua experiência em laboratório e suas indagações instigaram reflexões importantes e impulsionaram a exploração de diferentes aspectos deste trabalho.

Obrigada a Whualkuer Bartra, que por várias vezes me socorreu quando era necessária a intervenção de pessoas mais experientes no laboratório.

Agradeço também ao Departamento de Física pelo apoio e ao CNPq pelo financiamento.

Sou também grata ao prof. Sérgio Carlos Zílio e ao Instituto de Física da USP de São Carlos por prover amostras que permitiram realizar medidas mais precisas.

Agradeço ainda aos meus amigos de dentro e fora deste mundo acadêmico que sempre estiveram ao meu lado nos bons e maus momentos, me acalmando em momentos de tensão e me incentivando sempre a seguir em frente.

Por fim, gostaria de agradecer à minha família, que por toda a minha vida sempre me apoiou e sempre procurou me ajudar de todas as maneiras possíveis. A meus pais e irmãos que sempre se preocuparam em me mostrar as belezas da vida e me ajudaram a enxergar com mais otimismo e esperança o mundo que nos cerca. Sem estes incentivos e sem esta ajuda não conseguiria chegar onde estou.

Resumo

Controle quântico coerente tem por objetivo impulsionar um sistema quântico a atingir um determinado estado final desejado. Seu estudo é amplamente realizado hoje em dia para manipular transições em sistemas atômicos, quebrar ligações moleculares e otimizar a eficiência em reações químicas, por exemplo.

Nesta tese serão apresentados resultados experimentais e teóricos do controle temporal coerente parcial em duas transições distintas, ambas de dois fótons em átomos de Rubídio, sendo a principal diferença entre elas a presença ou não de ressonância com um nível intermediário. A primeira transição explorada ocorre entre os níveis 5S e 7S e não apresenta esta ressonância sendo, portanto, mais simples de ser estudada. Por outro lado, a segunda transição 5S-5P-5D possui ressonância com o nível intermediário $5P_{3/2}$ e por conta disto propicia, por exemplo, o aparecimento de efeitos de propagação, inexistentes na transição 5S-7S.

Estas duas transições foram excitadas por pares de pulsos ultracurtos de separação temporal variável. O controle coerente parcial foi atingido através da manipulação da fase do campo elétrico de um destes dois pulsos que incidem sobre o sistema atômico. Esta manipulação foi realizada utilizando-se um meio material para introduzir uma fase cuja amplitude, largura e posição do degrau relativa ao espectro do pulso permitiu controlar interferências entre os diversos caminhos quânticos possíveis ao sistema. Configurações adequadas desta função de fase proporcionaram uma diminuição parcial ou total (anulação) da absorção de dois fótons para determinados valores do atraso temporal entre os pulsos. No caso da transição 5S-5P-5D, interações entre os efeitos de propagação e manipulação de fase foram detectadas e deformações provocadas pela propagação foram controladamente modificadas.

A descrição teórica destas situações experimentais foi feita utilizando-se teoria de perturbação de segunda ordem em um sistema de três níveis, tratando-se separadamente os casos com e sem ressonância intermediária. Através desta análise teórica, algumas das características essenciais presentes nos resultados experimentais foram qualitativamente compreendidas. Apesar de não se ter obtido valores teóricos corretos para determinadas variáveis experimentais no caso da transição 5S-5P-5D, pôde-se, através desta teoria, entender as variações de amplitude nos

picos centrais e laterais e o aparecimento de oscilações de período 473 fs referentes a interferências quânticas nos sinais de fluorescência desta transição. Até o presente momento, não se tem notícia de trabalhos que explorem o controle coerente temporal parcial destas duas transições desta maneira.

Abstract

Coherent quantum control aims to drive a quantum system towards a desired final state. Nowadays its study is widely employed to manipulate transitions in atomic systems, to break molecular bonds and to optimize the output of chemical reactions, for instance.

In this thesis experimental and theoretical results of partial temporal coherent control in two different two-photon transitions of Rubidium atoms will be presented. The main difference between them is the existence or not of a resonance with an intermediate level. The first transition explored occurs between the 5S and the 7S levels and doesn't present this resonance therefore being the simplest transition studied. On the other hand, the second transition studied 5S-5P-5D presents a one-photon resonance with the intermediate level $5P_{3/2}$, which allows the appearance of propagation effects, for instance, not present in the 5S-7S transition.

These two transitions were excited by pairs of ultrashort pulses of variable temporal separation. The partial coherent control was achieved through phase manipulation of the electric field made in one of these two pulses. This phase manipulation was accomplished using a medium to introduce an extra phase, whose amplitude, width and position of the step relative to the pulse spectrum allowed controlling quantum interferences between the several possible quantum paths available to the system. Adequate phase configurations permitted partial or complete annihilation of the two-photon absorption for certain values of temporal delay between the pulses. In the case of the 5S-5P-5D transition, interactions between propagation and phase manipulation effects were detected and deformations due to propagation effects were modified in a controlled way.

The theoretical description of these experimental situations was made using second order perturbation theory in a three level model, treating the resonant and non resonant cases separately. Through this theoretical analysis, some special features of the experimental results could be explained. Despite of not obtaining the correct theoretical values to some experimental variables in the case of the transition 5S-5P-5D, this theory made it possible to comprehend the variations in the amplitudes of the central and lateral peaks and the presence of 473 fs period oscillations correspondent to quantum interferences in the fluorescence signals of this transition.

Until now there is no record of this kind of partial temporal coherent control in these two transitions.

Índice

CAPÍTULO 1: INTRODUÇÃO	2
CAPÍTULO 2: PRINCÍPIOS BÁSICOS: ABSORÇÃO DE UM E DOIS FÓTONS	8
2.1 – Estudo da transição de um fóton.....	9
2.2 – Estudo de transições de dois fótons.....	12
2.2.1 – Transição de dois fótons sem ressonância intermediária	16
2.2.2 – Transição de dois fótons com ressonância intermediária	20
CAPÍTULO 3: MANIPULAÇÃO DA FASE ÓPTICA DE PULSOS ULTRACURTOS	21
3.1 – Propagação de pulsos ultracurtos em meios materiais	22
3.2 – Compressor de pulsos de par de grades.....	26
3.3 – Manipulação da fase com o uso do Sintetizador de Fourier.....	29
3.4 – Calibração do Sintetizador de Fourier.....	32
CAPÍTULO 4: CONTROLE TEMPORAL COERENTE DA TRANSIÇÃO 5S-7S	37
4.1 – Descrição dos experimentos	38
4.2 – Resultados experimentais: transição 5S-7S do Rb.....	43
4.3 – Análise teórica de uma transição de dois fótons sem ressonância intermediária	44
4.3.1 – Cálculo analítico da correlação cruzada	44
4.3.2 – Cálculo analítico da absorção de dois fótons na transição 5S-7S do Rb.....	45
4.4 – Ajuste teórico dos resultados experimentais de fluorescência e correlação cruzada da transição 5S-7S	51
CAPÍTULO 5: CONTROLE TEMPORAL COERENTE DA TRANSIÇÃO 5S-5P-5D	58
5.1 – Teoria de propagação linear	61
5.1.1 – Teoria de propagação de pulsos de pequenas áreas em meios ressonantes.....	61
5.1.2 – Efeitos da manipulação da fase no perfil temporal do pulso propagado.....	69
5.2 – Resultados experimentais do perfil temporal	74

5.3 – Resultados experimentais: transição 5S-5P-5D.....	79
5.4 – Análise teórica de uma transição de dois fótons com ressonância intermediária.....	83
5.5 – Transição 5S-5P-5D: comparação entre teoria e experimento.....	93
CAPÍTULO 6: CONCLUSÕES.....	96
BIBLIOGRAFIA	100

Lista de Figuras

Figura 2.1: Esquema de um sistema de três níveis excitado por um pulso de frequência central ω_0 e largura de banda $\Delta\omega$. **(Pág. 15)**

Figura 2.2: Espectro do pulso (preto) e função degrau de fase (cinza) com variação de fase de π . A frequência ω_d representa a posição ao longo do espectro aonde a função de fase apresenta seu degrau. **(Pág. 17)**

Figura 2.3: Absorção de dois fótons para um sistema de três níveis quando não há ressonância com o nível intermediário em função da posição ω_d da função degrau de fase introduzida no campo elétrico do pulso ao longo do seu espectro. **(Pág. 18)**

Figura 2.4: Representação esquemática dos campos elétricos que excitam a transição do nível fundamental para o nível mais excitado na situação de mínima interferência destrutiva. Neste esquema, a fase introduzida no pulso foi tal que metade de suas componentes espectrais possui uma fase de π e a outra metade não possui esta fase, fazendo com que o produto dos campos tenha sempre fase total π . **(Pág. 18)**

Figura 2.5: Representação esquemática dos campos elétricos que excitam a transição do nível fundamental para o nível mais excitado na situação de interferência destrutiva máxima. Neste esquema, a fase introduzida no pulso foi tal que aproximadamente um terço de suas componentes espectrais possuem uma fase de π , fazendo com que metade da soma dos termos do produto dos campos tenha fase total π e a outra metade não, gerando forte interferência destrutiva. **(Pág. 19)**

Figura 3.1: Compressor de pulsos de par de grades na configuração de “chirp” nulo. **(Pág. 27)**

Figura 3.2: Esquema demonstrando o papel da primeira grade e da primeira lente no Sintetizador de Fourier. **(Pág. 28)**

Figura 3.3: Esquema que ajuda a explicar a linearidade da distribuição de comprimentos de onda ao longo do plano de Fourier. **(Pág. 29)**

Figura 3.4: Fase no formato de uma função degrau (cinza) introduzida ao longo do espectro do pulso, apresentado em função dos comprimentos de onda (preto). **(Pág. 30)**

Figura 3.5: Lâmina com filme fino depositado em metade dela e com um objeto opaco introduzido para o experimento de calibração. A interface entre as regiões sem e com o filme fino representa a subida da função degrau de fase e, portanto, sua posição está relacionada ao parâmetro λ_d . **(Pág. 32)**

Figura 3.6: Dados experimentais (cinza) e ajustes teóricos (pontos pretos) da calibração do SF. Cada par de curvas experimental e teórica está associado a uma posição da lâmina no plano de Fourier e, portanto, a um valor do parâmetro λ_b . **(Pág. 33)**

Figura 3.7: Relação entre λ_d e x obtida com a calibração. (Pág. 33)

Figura 3.8: Fase (cinza) introduzida experimentalmente ao longo do espectro do pulso (preto). O parâmetro σ' determina o quão abrupta é a subida da função erro usada como modelo para a função de fase introduzida no sistema pelo filme fino. (Pág. 34)

Figura 4.1: Esquema da transição 5S-7S, a qual não apresenta ressonâncias com níveis intermediários, apesar de estes existirem. (Pág. 38)

Figura 4.2: Montagem experimental feita para os experimentos de correlação cruzada colinear e de fluorescência. Os números 1 e 2 indicam os dois pulsos do experimento. DF – divisor de feixes; LA – linha de atraso (motor de passo com canto de cubo acoplado); SF – Sintetizador de Fourier; AF – alto-falante; RD – roda dentada; ER – espelho removível; PMT – fotomultiplicadora. (Pág. 40)

Figura 4.3: Gráficos experimentais de fluorescência (esquerda) e correlação cruzada (direita) em função do atraso relativo entre os pulsos. Cada par de correlação cruzada e fluorescência corresponde a uma posição da placa de fase ao longo do espectro e, portanto, a um comprimento de onda λ_d . (Pág. 43)

Figura 4.4: Os quatro possíveis caminhos quânticos para se chegar do nível fundamental ao nível mais excitado. Cada seta representa um fóton e o número ao lado de cada uma delas representa de qual pulso este fóton foi absorvido. (Pág. 47)

Figura 4.5: Módulo quadrado das funções $F_{12}(\tau)$ e $F_{21}(\tau)$ para a situação em que não há manipulação de fase dos campos elétricos. (Pág. 49)

Figura 4.6: Gráficos unindo experimento (pontos) e teoria (linha) para fluorescência (a) e correlação cruzada (b) em função do atraso relativo entre os pulsos. Para este par, o valor teórico de ω_d era abaixo do menor valor contido no espectro do pulso, significando que nenhuma das componentes espectrais recebeu fase extra. (Pág. 51)

Figura 4.7: Gráficos unindo experimento (pontos) e teoria (linha) para fluorescência (a) e correlação cruzada (b) em função do atraso relativo entre os pulsos. Para este par, o valor teórico de ω_d correspondeu a metade da frequência necessária para ocorrer a transição, ou seja, $\omega_d = \omega_a / 2$, o que equivale a $\lambda_d = 760$ nm. (Pág. 52)

Figura 4.8: Gráficos unindo experimento (pontos) e teoria (linha) para fluorescência (a) e correlação cruzada (b) em função do atraso relativo entre os pulsos. Para este par, o valor teórico de ω_d era acima do maior valor contido no espectro do pulso, significando que todas as componentes espectrais receberam fase extra. (Pág. 52)

Figura 4.9: Representação esquemática dos campos elétricos que excitam a transição do nível fundamental para o nível mais excitado na situação de máxima interferência destrutiva. Nesta situação, metade das componentes espectrais do pulso 2 tem uma diferença de fase de π com respeito à outra metade do pulso, propiciando à metade da soma do produto dos campos uma diferença de fase de π em relação ao resto desta soma. (Pág. 54)

Figura 4.10: Gráfico da absorção de dois fótons quando $\lambda_d = \lambda_L$ para cinco diferentes valores da amplitude do degrau de fase. Quando esta amplitude vale π , o mínimo da absorção de dois fótons está localizado em $\tau = 0$. (Pág. 55)

Figura 4.11: Gráfico dos comprimentos de onda correspondentes aos valores de ω_d utilizados na teoria para ajustar as curvas teóricas aos dados experimentais em função do valor experimental de x . (Pág. 56)

Figura 5.1: Esquema da transição 5S-5P-5D dos átomos de Rubídio. (Pág. 58)

Figura 5.2: Partes real e imaginária da forma de linha para $\alpha_0 z = 25$, responsáveis respectivamente, pela absorção e pela dispersão. As regiões antes da primeira e depois da segunda linha tracejada são regiões de dispersão normal e a região entre as duas linhas é uma região de dispersão anômala. (Pág. 64)

Figura 5.3: Espectro o pulso após sua propagação por um meio atômico denso para $\alpha_0 z = 25$. O efeito de absorção está evidenciado neste gráfico através da cavada em torno da frequência ω_{21} da primeira transição, apresentada em maiores detalhes no gráfico superior direito. (Pág. 65)

Figura 5.4: Derivada da parte imaginária da forma de linha para $\alpha_0 z = 25$, cujo sinal está diretamente relacionado com o atraso de grupo adquirido pelo pulso ao se propagar pelo meio. A região entre as linhas tracejadas representa a dispersão anômala, a qual adianta o pulso. As demais regiões representam a dispersão normal e introduzem um atraso positivo ao pulso. (Pág. 65)

Figura 5.5: Perfil temporal teórico do pulso ao se propagar por um meio atômico com densidade muito baixa (relacionado experimentalmente com a temperatura ambiente). (Pág. 68)

Figura 5.6: Perfil temporal teórico do pulso ao se propagar por um meio atômico com $\alpha_0 z = 25$ (relacionado experimentalmente à temperatura de 130°C , o que corresponde a uma densidade atômica de $3,4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$). (Pág. 68)

Figura 5.7: Perfil temporal teórico do pulso ao se propagar por um meio atômico com $\alpha_0 z = 630$ (relacionado experimentalmente à temperatura de 170°C , o que corresponde a uma densidade atômica de $2,4 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$). (Pág. 68)

Figura 5.8: Derivada da fase extra $\varphi(\omega)$ introduzida pelo SF. (Pág. 70)

Figura 5.9: Série de perfis temporais teóricos (sem convolução) de um pulso sem efeitos de propagação ($\alpha_0 z = 0 \rightarrow T_0$ ambiente) para diversos valores de ω_d , sendo o primeiro e último gráficos correspondentes, respectivamente, a nenhuma componente possuir fase extra e todas as componentes receberem fase extra. (Pág. 71)

Figura 5.10: Série de perfis temporais teóricos (sem convolução) de um pulso com efeitos de propagação ($\alpha_0 z = 25 \rightarrow T_1 \approx 130^\circ\text{C}$) para diversos valores de ω_d , sendo o primeiro e último gráficos correspondentes, respectivamente, a nenhuma componente possuir fase extra e todas as componentes receberem fase extra. **(Pág. 72)**

Figura 5.11: Série de perfis temporais teóricos (sem convolução) de um pulso com efeitos de propagação ($\alpha_0 z = 630 \rightarrow T_2 \approx 170^\circ\text{C}$) para diversos valores de ω_d , sendo o primeiro e último gráficos correspondentes, respectivamente, a nenhuma componente possuir fase extra e todas as componentes receberem fase extra. **(Pág. 73)**

Figura 5.12: Esquema do experimento de correlação cruzada não colinear realizado para sondar o perfil temporal do pulso após propagar-se pelo vapor atômico de Rb. **(Pág. 74)**

Figura 5.13: Série de gráficos experimentais de correlação cruzada que fornecem uma forma aproximada do perfil temporal do pulso propagado na situação em que os átomos estão à temperatura ambiente (a ser comparada com a série da figura 5.9 em que $\alpha_0 z = 0$). O primeiro gráfico apresenta a situação em que todas as componentes espectrais estão sem a fase extra ($\omega_d \ll \omega_L$) e o último gráfico representa a situação oposta ($\omega_d \gg \omega_L$). **(Pág. 75)**

Figura 5.14: Série de gráficos experimentais de correlação cruzada que fornecem uma forma aproximada do perfil temporal do pulso propagado na situação em que os átomos estão à $T_1 \approx 130^\circ\text{C}$ (densidade atômica $N = 3,4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$, a ser comparada com a série da figura 5.10 em que $\alpha_0 z = 25$). O primeiro gráfico apresenta a situação em que todas as componentes espectrais estão sem a fase extra ($\omega_d \ll \omega_L$) e o último gráfico representa a situação oposta ($\omega_d \gg \omega_L$). **(Pág. 76)**

Figura 5.15: Série de gráficos experimentais de correlação cruzada que fornecem uma forma aproximada do perfil temporal do pulso propagado na situação em que os átomos estão à $T_1 \approx 170^\circ\text{C}$ (densidade atômica $N = 2,4 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$, a ser comparada com a série da figura 5.11 em que $\alpha_0 z = 630$). O primeiro gráfico apresenta a situação em que todas as componentes espectrais estão sem a fase extra ($\omega_d \ll \omega_L$) e o último gráfico representa a situação oposta ($\omega_d \gg \omega_L$). **(Pág. 77)**

Figura 5.16: Sinal de fluorescência da transição 5S-5P-5D para duas diferentes temperaturas da célula. **(Pág. 80)**

Figura 5.17: Sinal de fluorescência da transição 5S-5P-5D à $T_1 = 130^\circ\text{C}$ para cinco valores diferentes de x . O primeiro gráfico apresenta a situação em que todas as componentes espectrais estão sem a fase extra ($\omega_d \ll \omega_L$) e o último gráfico representa a situação oposta ($\omega_d \gg \omega_L$). **(Pág. 81)**

Figura 5.18: Sinal de fluorescência da transição 5S-5P-5D à $T_1 = 170^\circ\text{C}$ para cinco valores diferentes de x . O primeiro gráfico apresenta a situação em que todas as componentes

espectrais estão sem a fase extra ($\omega_d \ll \omega_L$) e o último gráfico representa a situação oposta ($\omega_d \gg \omega_L$). **(Pág. 82)**

Figura 5.19: Módulo quadrado das funções $f_{12}(\tau)$ e $f_{21}(\tau)$ na situação em que $\varphi(\omega) = 0$ e $\alpha_o z = 25$. **(Pág. 86)**

Figura 5.20: $\rho_{33}(\tau)_{\text{calculada}}$ na situação em que $\varphi(\omega) = 0$ e $\alpha_o z = 25$. **(Pág. 87)**

Figura 5.21: Gráficos dos três termos da equação 5.23 na situação em que $\omega_d = \omega_{21}$ e $\alpha_o z = 25$. **(Pág. 89)**

Figura 5.22: $\rho_{33}(\tau)_{\text{calculada}}$ na situação em que $\omega_d = \omega_{21}$ e $\alpha_o z = 25$. **(Pág. 90)**

Figura 5.23: Gráficos dos três termos da equação 5.23 na situação em que $\omega_d = \omega_{32}$ e $\alpha_o z = 25$. **(Pág. 90)**

Figura 5.24: $\rho_{33}(\tau)_{\text{calculada}}$ na situação em que $\omega_d = \omega_{32}$ e $\alpha_o z = 25$. **(Pág. 91)**

Figura 5.25: Gráficos dos três termos da equação 5.23 na situação em que $\omega_d = \omega_L$ e $\alpha_o z = 25$. **(Pág. 92)**

Figura 5.26: $\rho_{33}(\tau)_{\text{calculada}}$ na situação em que $\omega_d = \omega_L$ e $\alpha_o z = 25$. **(Pág. 92)**

Capítulo 1

Introdução

O início do século XX foi marcado por fortes afirmações no tocante à radiação e matéria. Após o postulado de quantização da radiação, proposto por Max Planck em 1900, vários trabalhos desenvolvidos por renomados cientistas como Einstein e Compton transformaram a visão que se tinha da interação entre luz e matéria, propondo que esta ocorria através da troca de pacotes de energia, denominados fótons. Durante este século, Dirac e Schrödinger contribuíram para que a mecânica quântica provocasse uma revolução no tratamento de átomos e moléculas, quantizando os seus níveis de energia e tratando a sua interação com a radiação na forma da troca de fótons.

A partir daí, começou-se também a estudar efeitos em que a radiação provoca no meio respostas não-lineares com a sua intensidade, dando início a uma área da física conhecida como óptica não-linear. Efeitos como geração de segundo harmônico e absorção de dois fótons começaram a serem explorados. O trabalho desta tese envolve o estudo das transições de dois fótons 5S-7S e 5S-5P-5D em átomos de Rubídio.

A absorção de dois fótons é um dos mais básicos mecanismos não-lineares de interação entre radiação e matéria. Ela consiste da excitação de uma só vez de um átomo ou molécula de um estado quântico de mais baixa energia para um estado quântico de maior energia de mesma paridade. Uma vez que ambos os estados possuem mesma paridade, regras quânticas de conservação de paridade implicam que dois pacotes de energia devem ser absorvidos simultaneamente para que esta transição ocorra.

A teoria da absorção de dois fótons foi proposta por Maria Göppert-Mayer em 1931 em sua tese de doutorado [1]. Neste documento, o tratamento da mecânica quântica de Dirac é estendido para processos eletrônicos que envolvem dois operadores de aniquilação (ou dois de criação) para descrever absorção ou emissão de dois fótons. Ela propõe que neste caso a absorção envolve a interação de dois fótons com o átomo via um estado virtual, descrito como a superposição de estados, não sendo este um verdadeiro auto-estado do átomo. A probabilidade

de transição de um processo eletrônico de dois fótons ocorrer foi deduzida usando teoria de perturbação de segunda ordem dependente do tempo. Sua derivação claramente propõe que a probabilidade de ocorrer uma absorção de dois fótons é quadrática com a intensidade da excitação. A absorção de dois fótons será abordada no capítulo 2 desta tese, onde serão deduzidas expressões para a amplitude de probabilidade de ocorrer transições de dois fótons que apresentam ou não ressonância com um nível intermediário.

O surgimento dos lasers pulsados facilitou bastante o estudo de transições de muitos fótons. Isto se deve basicamente a duas importantes propriedades deste tipo de laser: a alta intensidade de pico e a grande largura de banda espectral. A primeira delas facilita o estudo de efeitos ópticos não-lineares em geral, uma vez que estes efeitos são dependentes da intensidade do campo elétrico de ordens superiores a um. A grande largura espectral, por sua vez, permite que um único pulso forneça fótons de frequências diferentes, aumentando a probabilidade de transição.

O vasto conjunto de aplicações dos lasers pulsados impulsionou a ciência a buscar pulsos cada vez mais curtos. Surgiram então os pulsos ultracurtos, ou seja, pulsos de largura temporal da ordem de centenas de femtossegundos ($1\text{fs} = 10^{-15}\text{s}$) ou menor. Isto somente tornou-se possível através da técnica de travamento de modos [2,3], desenvolvida na década de 60. O primeiro laser de femtossegundos foi produzido na década de 70 e apenas na década de 80 foi possível gerar pulsos confiáveis de largura temporal inferior a 100 fs.

Uma das aplicações atuais deste tipo de laser é a espectroscopia de alta resolução resolvida no tempo [4,5]. Lasers de femtossegundos com trens de pulsos bem caracterizados representam uma importante ferramenta para a metrologia óptica [6-8]. A dinâmica de processos ultra-rápidos [9,10] também é feita com pulsos ultracurtos. Na medicina, os pulsos de femtossegundos também têm várias utilidades. Eles são, por exemplo, utilizados em cirurgias para remover tecidos sem afetar térmica ou estruturalmente os tecidos adjacentes. Ultimamente, pulsos de femtossegundos com potências da ordem de terawatts têm sido desenvolvidos e utilizados no estudo de plasmas e campos de altas energias.

O controle quântico coerente de sistemas atômicos e moleculares representa outra importantíssima aplicação deste tipo de laser. O principal objetivo do controle coerente é forçar

um sistema quântico a atingir um determinado estado final através de sua interação com a radiação. Neste processo, pulsos ultracurtos possibilitam, por exemplo, que reações químicas [11-15] resultem somente no produto almejado. O tema desta tese baseia-se justamente no controle quântico coerente parcial de duas transições dos átomos de Rubídio. Este controle é em geral feito aproveitando-se de interferências entre possíveis caminhos quânticos para anular as rotas indesejadas e direcionar o sistema para um almejado estado final. Este tipo de controle coerente foi demonstrado teórica e experimentalmente em diversos sistemas atômicos [16-24], moleculares [11-14] e de estado sólido [25].

Em se tratando de sistemas atômicos, os átomos alcalinos são os mais utilizados, sendo o Césio e o Rubídio os mais comuns neste tipo de experimento. Eles possuem apenas um elétron na sua última camada e por isso podem ser descritos de uma maneira mais simples, servindo de modelo inicial para sistemas mais complexos. Os átomos de Rubídio foram escolhidos para a realização deste trabalho, onde duas de suas transições, a 5S-7S e a 5S-5P-5D, são estudadas. No decorrer desta tese, a estrutura hiperfina destes átomos será desconsiderada. A razão para isto é que a variação da fase externamente controlada que é imposta a este sistema ocorre numa região espectral muito maior que a separação entre os níveis hiperfinos. A distinção destes, portanto, é irrelevante à descrição teórica do problema, uma vez que todos são essencialmente submetidos à mesma fase.

O controle quântico coerente é geralmente realizado moldando-se pulsos ultracurtos, de forma que o domínio de técnicas de modelagem de pulsos é essencial para que se consiga excitar o sistema em questão da maneira desejada. A mais conhecida destas técnicas utiliza um compressor de pulsos de par de grades [26] juntamente com uma máscara de fase e/ ou amplitude para moldar os campos elétricos dos pulsos. Este sistema é denominado aqui de Sintetizador de Fourier (SF) devido a sua capacidade de sintetizar novos pulsos utilizando-se de sua transformada de Fourier para tal. Este aparato experimental, descrito em detalhes no capítulo 3 desta tese, permite a manipulação de cada frequência do pulso individualmente (respeitando-se os limites de difração). A codificação e decodificação de sinais em comunicações ópticas [27,28] representam outra importante aplicação da modelagem de pulsos ultracurtos, impulsionando seu estudo para o desenvolvimento de comunicações ópticas seguras.

Existem várias maneiras de fazer e detectar o controle coerente de um sistema. Pode-se, por exemplo, querer examinar o transiente coerente do estado mais excitado [18,20,22] ou o estado estacionário do sistema após a passagem dos pulsos [16,17]. E isto pode ser feito usando-se apenas um pulso, um par de pulsos ou até mesmo um trem de pulsos ultracurtos. A escolha depende do sistema que se queira manipular, das técnicas que se queira utilizar e do estado final que se deseja atingir. Por exemplo, pode-se querer manipular pulsos ultracurtos de tal maneira que a probabilidade de transição do sistema para o estado excitado seja máxima. N. Dudovich *et al.* [17] mostraram que transições de muitos fótons com ressonâncias com níveis intermediários não são necessariamente otimizadas por pulsos limitados por transformada de Fourier (pulsos em que o produto entre sua largura de banda e sua largura temporal é mínimo). Por outro lado, D. Meshulach e Y. Silberberg [19] mostraram que o contrário ocorre em transições de dois fótons sem ressonâncias com níveis intermediários, nas quais a manipulação dos pulsos só diminui a probabilidade de transição. Outra alternativa seria eliminar por completo a transição em questão apenas moldando-se os pulsos incidentes sobre o sistema [16]. Isto pode ser utilizado, por exemplo, para selecionar uma dentre outras transições possíveis ao sistema [20].

Para obter o resultado desejado, pode-se moldar o pulso de diferentes maneiras, manipulando-se a amplitude e /ou a fase do seu campo elétrico apropriadamente. Uma das estratégias utilizadas consiste em bloquear determinadas frequências do pulso para que estas não interfiram construtiva ou destrutivamente com outras componentes do próprio pulso [17,22]. Outra estratégia é modificar a fase do campo elétrico destes pulsos para que as interferências entre as contribuições das diferentes componentes espectrais sejam alteradas [16,17,20,22]. Para realizar isto experimentalmente, é freqüentemente utilizada no Sintetizador de Fourier uma placa denominada SLM (spatial light modulator) [29-31], em geral constituída de cristal líquido. Esta placa possui diversos pixels, os quais recebem individualmente uma determinada voltagem e em conjunto formam a função de fase e /ou de amplitude desejada ao longo do espectro do pulso. A resolução desta função gerada e a sua complexidade dependem basicamente do número, do tamanho e do espaçamento entre os pixels. Uma alternativa ao SLM mais acessível consiste no uso de meios materiais e fendas para manipular a fase e a amplitude dos campos elétricos que perturbam o sistema. No trabalho aqui apresentado, um filme fino é usado como meio material para introduzir uma fase extra no formato de uma função degrau suavizada (função erro) ao

longo do espectro do pulso manipulado. Limitações impostas por este método são discutidas mais adiante.

Com inspiração nos resultados previamente citados, desenvolveu-se neste trabalho o controle temporal coerente parcial de duas transições de átomos de Rubídio na forma de vapor. Este tipo de controle coerente é denominado temporal pois envolve a utilização de dois pulsos ultracurtos, cuja separação temporal τ é variável e representa um importante parâmetro experimental. Porém, apenas um destes pulsos tem a fase de seu campo elétrico alterada. Por sua vez, este controle é dito parcial porque neste trabalho escolheu-se estudar, por simplicidade, apenas alguns dos caminhos quânticos possíveis que o sistema pode seguir. Desta forma, nem todas as contribuições (outros caminhos quânticos) são experimentalmente detectadas.

A utilização de dois pulsos ao invés de um apresenta algumas características especiais. Uma delas é o aparecimento de diferentes caminhos quânticos não possíveis com a utilização de apenas um pulso, a qual foi considerada como vantagem neste trabalho, pois adiciona um grau de liberdade a mais para manipulação do sistema. Esta característica, porém, também acrescenta mais complexidade ao problema, tornando menos direta a análise física do processo.

A principal diferença entre as duas transições estudadas neste trabalho é a presença ou não de ressonância com um nível intermediário. O estudo da primeira transição, 5S-7S, é importante tendo em vista que trata-se de um sistema mais simples, pois não apresenta esta ressonância, simplificando bastante sua análise. O estudo desta transição, apresentado no capítulo 4, contribuiu para uma melhor compreensão dos processos de manipulação do pulso e de controle temporal coerente parcial de uma absorção de dois fótons sem ressonância intermediária.

Por possuir uma ressonância com o nível intermediário 5P, a transição 5S-5P-5D, discutida no capítulo 5, mostrou-se bem mais complexa de ser analisada, uma vez que envolve efeitos como propagação e acumulação de população inexpressivos na transição 5S-7S. A acumulação de população será brevemente discutida, porém não será incluída na teoria devido a sua rebuscada matemática. O efeito de propagação no meio atômico, por outro lado, é um importante personagem deste trabalho, sendo, portanto, incluído no modelo teórico. Desta forma, o estudo desta transição permitiu, dentre outras coisas, que se avaliasse a interação entre

os efeitos decorrentes da propagação e da manipulação de fase. Até o presente momento, não se tem notícia de trabalhos envolvendo este tipo de controle temporal coerente para avaliar esta interação.

Capítulo 2

Princípios Básicos: Absorção de Um e Dois Fótons

Em 1931, Maria Göppert-Mayer propôs em sua tese de doutorado [1] a teoria de absorção e emissão de dois fótons. Em seu trabalho, a probabilidade de transição foi deduzida a partir da teoria de perturbação de segunda ordem dependente do tempo, estendendo o tratamento quântico de Dirac para processos eletrônicos envolvendo dois operadores de criação ou aniquilação. No trabalho desta cientista, ficou clara a dependência da probabilidade de transição com o quadrado da amplitude dos campos elétricos perturbativos.

Neste segundo capítulo da tese, os problemas de absorção de um e dois fótons serão tratados através da teoria de perturbação de primeira e segunda ordens para se obter aproximadamente a probabilidade de transição. A notação de Dirac será utilizada ao longo deste capítulo, descrevendo os auto-estados do sistema como kets. O campo elétrico perturbativo assumirá aqui a forma de um pulso, cujas representações nos domínios espectral e temporal estão relacionadas entre si pela transformada de Fourier e sua inversa.

Para a absorção de um fóton, um modelo de dois níveis será utilizado na descrição do problema. A exploração desta transição será feita apenas a título ilustrativo, servindo de base para a transição de dois fótons.

Um modelo de três níveis será usado na descrição da absorção de dois fótons, criando uma subdivisão no tratamento do sistema de acordo com a presença ou não de ressonância com o nível intermediário. Um exemplo interessante do caso sem ressonância intermediária esclarecerá como a manipulação de fase do campo elétrico influencia na probabilidade de transição do nível fundamental para o nível mais elevado. A teoria de absorção de dois fótons desenvolvida aqui servirá posteriormente para o tratamento das transições 5S-7S e 5S-5P-5D exploradas experimentalmente.

2.1 – Estudo da transição de um fóton

Considere um sistema de dois níveis excitado por um pulso ultracurto. O nível fundamental será representado por $|1\rangle$ e o nível excitado por $|2\rangle$ e se considerará que estes têm paridades opostas. O Hamiltoniano deste sistema pode ser descrito por

$$\hat{H}(t) = \hat{H}_0 + \hat{V}(t), \quad (2.1)$$

onde $\hat{H}_0(t)$ representa o Hamiltoniano do átomo livre e é dado por

$$\hat{H}_0 = \hbar\omega_{21} |2\rangle\langle 2|, \quad (2.2)$$

sendo $\omega_{21} = \omega_2 - \omega_1$ a frequência relacionada à energia $E_{21} = \hbar\omega_{21}$ necessária para excitar o sistema do nível 1 para o nível 2.

A interação da radiação com o sistema pode ser descrita através da equação

$$\hat{V}(t) = -\mu_{21}E^*(t)|1\rangle\langle 2| - \mu_{21}E(t)|2\rangle\langle 1|, \quad (2.3)$$

onde μ_{21} é o momento de dipolo elétrico da transição entre os níveis fundamental e excitado e $E(t)$ é o campo elétrico do pulso. Na representação de interação, este potencial aparece como

$$\hat{V}_I(t) = e^{i\frac{\hat{H}_0 t}{\hbar}} \hat{V}(t) e^{-i\frac{\hat{H}_0 t}{\hbar}}. \quad (2.4)$$

O campo elétrico $E(t)$ no domínio temporal está relacionado ao campo elétrico $\tilde{E}(\omega)$ no domínio de frequências através da transformada de Fourier e de sua inversa da seguinte maneira:

$$E(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(\omega) e^{-i\omega t} d\omega \quad e \quad (2.5)$$

$$\tilde{E}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} E(t) e^{i\omega t} dt. \quad (2.6)$$

Sendo $|\Psi(t)\rangle$ o ket correspondente ao estado do sistema na representação de Schrödinger, pode-se escrevê-lo na representação de interação como

$$|\Psi(t)\rangle_I = e^{i\frac{H_0 t}{\hbar}} |\Psi(t)\rangle = c_1(t)|1\rangle + c_2(t)|2\rangle, \quad (2.7)$$

onde os coeficientes $c_1(t)$ e $c_2(t)$ representam as amplitudes de probabilidade de o sistema se encontrar respectivamente nos estados $|1\rangle$ e $|2\rangle$. É importante salientar que na representação de interação a evolução temporal dos $c_i(t)$ é ditada apenas pelos campos elétricos externos.

Considerando-se que, inicialmente, o sistema encontra-se no estado fundamental tem-se:

$$|\Psi(t = -\infty)\rangle_I = |\Psi(t = -\infty)\rangle = |1\rangle. \quad (2.8)$$

A evolução temporal de $|\Psi(t)\rangle_I$ é determinada pelo operador evolução temporal $\hat{U}(t)$, que, na representação de interação, satisfaz à equação integral [32]

$$\hat{U}_I(t) = 1 - \int_{-\infty}^t \hat{V}_I(t') U_I(t') dt', \quad (2.9)$$

cujas iterações levam à série de Dyson

$$\hat{U}_I(t) = 1 + \left(-\frac{i}{\hbar}\right) \int_{-\infty}^t \hat{V}_I(t') dt' + \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^2 \int_{-\infty}^t \left[\int_{-\infty}^{t'} \hat{V}_I(t') \hat{V}_I(t'') dt'' \right] dt' + \dots \quad (2.10)$$

A população no estado excitado em um instante de tempo t é dada pelo quadrado da amplitude de probabilidade de o sistema estar neste estado neste instante. Assim, a população $\rho_{22}(t)$ do nível 2 num tempo t qualquer pode ser calculada da seguinte maneira:

$$\rho_{22}(t) = |c_2(t)|^2, \quad \text{onde} \quad (2.11)$$

$$c_2(t) = \langle 2 | \Psi(t) \rangle_I = \langle 2 | \hat{U}_I(t) | \Psi(t = -\infty) \rangle = \langle 2 | \hat{U}_I(t) | 1 \rangle. \quad (2.12)$$

Considerando-se que o campo incidente é fraco, vai-se utilizar somente o termo de ordem mais baixa restante da aplicação do operador evolução temporal ao estado fundamental. Assim, substituindo a Eq. 2.10 na Eq. 2.12 e eliminando os termos de ordens mais altas obtém-se

$$c_2(t) \approx \frac{i\mu_{21}}{\hbar} \int_{-\infty}^t E(t') e^{i\omega_{21}t'} dt'. \quad (2.13)$$

Para examinar a situação estacionária da população no nível excitado após a passagem do pulso, faz-se o limite de t tender a infinito. Nesta situação, a integral na Eq. 2.13 se iguala à Eq. 2.6 de maneira que

$$c_2(t \rightarrow \infty) \approx \frac{i\mu_{21}}{\hbar} \tilde{E}(\omega_{21}). \quad (2.14)$$

A população do nível mais excitado pode então ser escrita como

$$\rho_{22}(t \rightarrow \infty) \approx \frac{\mu_{21}^2}{\hbar^2} |\tilde{E}(\omega_{21})|^2. \quad (2.15)$$

Numa transição de um fóton, portanto, a população do nível mais excitado na situação estacionária depende apenas da componente do campo elétrico com frequência ressonante com a transição. Como pode ser analisado através da Eq. 2.15, uma mudança de fase no campo elétrico não influencia na população $\rho_{22}(t \rightarrow \infty)$. Assim, um controle coerente baseado na manipulação de fase do campo elétrico não surte efeito na população estacionária do nível mais excitado em uma transição de um fóton.

Porém, a análise muda ao se observar o comportamento do transiente coerente, ou seja, o comportamento momentâneo da população do estado mais excitado. Neste caso, a Eq. 2.14 não serve mais, aparecendo na Eq. 2.13 contribuições de termos fora de ressonância. N. Dudovich *et al* [18] e J. Degert *et al* [22] mostram que é possível modificar o transiente coerente de uma transição de um fóton através de manipulação da fase dos pulsos.

2.2 – Estudo de transições de dois fótons

Considere agora um sistema de três níveis $|1\rangle, |2\rangle$ e $|3\rangle$, tendo $|1\rangle$ e $|3\rangle$ mesma paridade, a qual é oposta à paridade do nível $|2\rangle$. Quer-se chegar do nível fundamental ($|1\rangle$) ao mais excitado ($|3\rangle$) através da interação deste sistema com um pulso ultracurto. O mesmo procedimento utilizado para uma transição de um fóton será seguido. Porém, agora a transição é de dois fótons e poderá ou não apresentar ressonância com o nível intermediário ($|2\rangle$), dependendo de alguns parâmetros do sistema. A presença ou não desta ressonância intermediária faz muita diferença e, por isso, separa o tratamento do sistema em dois casos. Estes dois casos servem de modelo para o tratamento mais detalhado da situação real apresentada nesta tese com as transições 5S-7S e 5S-5P-5D, a serem descritas nos capítulos 4 e 5, respectivamente.

O Hamiltoniano do sistema continua sendo a soma do Hamiltoniano do átomo livre com o potencial de interação, como apresentado na Eq. 2.1. Porém, cada uma destas parcelas ganhará agora termos a mais devido à presença do terceiro nível, como poder ser visto nas equações 2.16 e 2.17 abaixo:

$$\hat{H}_0 = \hbar\omega_{21}|2\rangle\langle 2| + \hbar\omega_{31}|3\rangle\langle 3| \quad e \quad (2.16)$$

$$\hat{V}(t) = (-\mu_{21}E^*(t)|1\rangle\langle 2| - \mu_{32}E^*(t)|2\rangle\langle 3|) + (-\mu_{21}E(t)|2\rangle\langle 1| - \mu_{32}E(t)|3\rangle\langle 2|), \quad (2.17)$$

onde as frequências $\omega_{21} = \omega_2 - \omega_1$ e $\omega_{31} = \omega_3 - \omega_1 = \omega_a$ relacionam-se, respectivamente, à energia necessária para excitar o sistema do nível 1 para o nível 2 ($E_{21} = \hbar\omega_{21}$) e do nível 1 para o nível 3 ($E_{31} = E_a = \hbar\omega_a$). Usando esta mesma notação tem-se ainda que $\omega_{32} = \omega_3 - \omega_2$ corresponde à energia necessária para excitar o sistema do nível 2 para o nível 3 concluindo-se, consequentemente, que $\omega_a = \omega_{32} + \omega_{21}$.

O estado do sistema será agora apresentado na representação de interação por

$$|\Psi(t)\rangle_I = e^{i\frac{H_0 t}{\hbar}} |\Psi(t)\rangle = c_1(t)|1\rangle + c_2(t)|2\rangle + c_3(t)|3\rangle. \quad (2.18)$$

Mais uma vez, está-se supondo que o sistema está inicialmente no estado fundamental e que o campo é fraco o suficiente para que se desprezem os termos de ordem mais alta. Quer-se agora saber qual é a população do nível $|3\rangle$ e para tanto deve-se conhecer

$$c_3(t) = \langle 3 | \hat{U}_I(t) | 1 \rangle. \quad (2.19)$$

Substituindo a Eq. 2.10 na Eq. 2.19 e considerando apenas o termo de ordem mais baixa obtém-se

$$c_3(t) = -\frac{\mu_{21}\mu_{32}}{\hbar^2} \int_{-\infty}^t e^{i\omega_{32}t'} E(t') \left(\int_{-\infty}^{t'} e^{i\omega_{21}t''} E(t'') dt'' \right) dt'. \quad (2.20)$$

Observe que a equação acima possui dois campos elétricos dentro da integral. Cada um destes campos pode ser interpretado como correspondendo a um fóton da transição. Será importante obter a Eq. 2.20 em função dos campos elétricos no domínio espectral pois, como será visto nos próximos capítulos, a manipulação do campo elétrico será feita alterando-se a fase de suas componentes de frequência. Desta maneira, substituindo a Eq. 2.5 na Eq. 2.20 obtém-se

$$c_3(t) = -\frac{\mu_{21}\mu_{32}}{4\pi^2\hbar^2} \int_{-\infty}^t e^{i\omega_{32}t'} \left[\int_{-\infty}^{t'} e^{i\omega_{21}t''} \left(\int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(\omega') e^{-i\omega't'} d\omega' \right) \left(\int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(\omega'') e^{-i\omega''t''} d\omega'' \right) dt'' \right] dt'. \quad (2.21)$$

Invertendo a ordem das integrais no tempo com as integrais na frequência obtém-se:

$$c_3(t) = -\frac{\mu_{21}\mu_{32}}{4\pi^2\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(\omega') \left\{ \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(\omega'') \left[\int_{-\infty}^t e^{i(\omega_{32}-\omega')t'} \left(\int_{-\infty}^{t'} e^{i(\omega_{21}-\omega'')t''} dt'' \right) dt' \right] d\omega'' \right\} d\omega'. \quad (2.22)$$

A integração na variável t'' resulta em

$$\int_{-\infty}^{t'} e^{i(\omega_{21}-\omega'')t''} dt'' = \frac{e^{i(\omega_{21}-\omega''-i\xi)t'}}{i(\omega_{21}-\omega''-i\xi)}, \quad (2.23)$$

onde o termo $i\xi$ ($\xi > 0$ e real) foi introduzido para levar o resultado a zero no limite inferior da integral.

Fazendo o limite de $t \rightarrow \infty$ (estado estacionário), tem-se:

$$\lim_{t \rightarrow \infty} c_3(t) = -\frac{\mu_{21}\mu_{32}}{4\pi^2\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(\omega') \left\{ \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\tilde{E}(\omega'')}{i(\omega_{21} - \omega'' - i\xi)} \left[\int_{-\infty}^{\infty} e^{i(\omega_a - \omega' - \omega'' - i\xi)t'} dt' \right] d\omega'' \right\} d\omega'. \quad (2.24)$$

As integrais em t e ω'' são resolvidas utilizando-se a representação da função Delta de Dirac $\delta(x)$

$$\int_{-\infty}^{\infty} e^{i(x-x_0)y} dy = 2\pi\delta(x-x_0), \quad (2.25)$$

juntamente com o fato de que

$$\int f(x)\delta(x-x_0)dx = f(x_0). \quad (2.26)$$

Desta forma, no limite de $\xi \rightarrow 0$, após a substituição de ω'' por $\omega_a - \omega'$ segue que

$$\lim_{\xi \rightarrow 0} c_3(t \rightarrow \infty) = -\frac{\mu_{21}\mu_{32}}{i2\pi\hbar^2} \left[i\pi\tilde{E}(\omega_{21})\tilde{E}(\omega_{32}) + \wp \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\tilde{E}(\omega')\tilde{E}(\omega_a - \omega')}{\omega' - \omega_{32}} d\omega' \right]. \quad (2.27)$$

O símbolo \wp na Eq. 2.27 representa o Valor Principal de Cauchy e foi introduzido devido à singularidade da função em $\omega' = \omega_{32}$ através da seguinte relação:

$$\lim_{\xi \rightarrow 0} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{f(x)}{x-x_0-i\xi} dx = i\pi f(x_0) + \wp \int_{-\infty}^{\infty} \frac{f(x)}{x-x_0} dx. \quad (2.28)$$

Fazendo uma mudança de variáveis apropriada pode-se reescrever a Eq. 2.27 como

$$c_3(t \rightarrow \infty) = -\frac{\mu_{21}\mu_{32}}{i2\pi\hbar^2} \left[i\pi\tilde{E}(\omega_{21})\tilde{E}(\omega_{32}) + \wp \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\tilde{E}(\omega)\tilde{E}(\omega_a - \omega)}{\omega_{21} - \omega} d\omega \right]. \quad (2.29)$$

É importante salientar que o produto $\tilde{E}(\omega)\tilde{E}(\omega_a - \omega)$ representa, para cada valor de ω atribuído, um caminho quântico permitido ao sistema para chegar do nível fundamental ao nível mais excitado. O caminho quântico que corresponde a $\omega = \omega_{21}$ (primeiro termo da Eq. 2.29) é o caminho que está perfeitamente ressonante com o nível intermediário pois o campo elétrico do

pulso está centrado na frequência desta transição. Por conta disto, este termo é frequentemente chamado de ressonante.

De agora em diante é importante que se separe os casos em que há e em que não há ressonância com o nível intermediário. Para tanto, vai-se primeiro definir matematicamente esta classificação de casos. Suponha que um pulso caracterizado por uma frequência central ω_0 e por uma largura espectral $\Delta\omega$ incida sobre o sistema de três níveis descrito nesta seção. Se sua frequência central é próxima de metade da frequência de transição do nível fundamental para o nível mais excitado e sua largura de banda é grande o suficiente, este pulso pode excitar esta transição com dois fótons, de frequências ω e $\omega_a - \omega$, contidos em seu espectro. A figura 2.1 esquematiza este sistema.

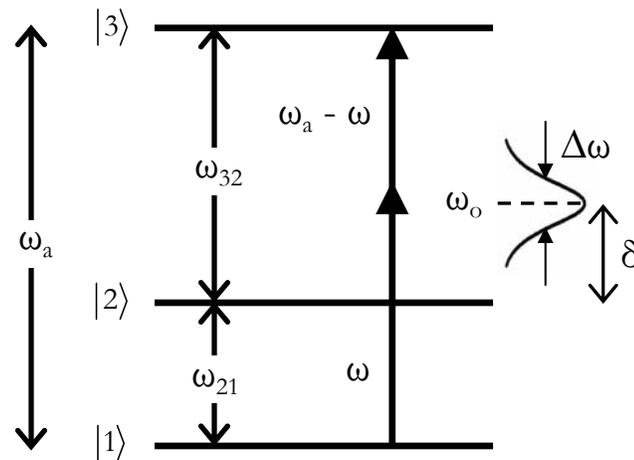


Figura 2.1: Esquema de um sistema de três níveis excitado por um pulso de frequência central ω_0 e largura de banda $\Delta\omega$.

Diz-se que não há ressonância com o nível intermediário quando a separação δ entre ω_0 e ω é maior do que a largura espectral do pulso. Por outro lado, quando estas duas quantidades têm valores próximos, existe uma componente espectral no pulso que corresponde à frequência da transição e, por isso, há ressonância com o nível intermediário.

2.2.1 – Transição de dois fótons sem ressonância intermediária

Quando não há ressonância com o nível intermediário, caso mais simples, a frequência ω_{21} não pertence ao espectro do pulso. Desta maneira, o primeiro termo da Eq. 2.29 não existe ($\tilde{E}(\omega_{21}) = 0$) e também não há singularidades no denominador do segundo termo, uma vez que ω não assume o valor ω_{21} quando o produto $\tilde{E}(\omega)\tilde{E}(\omega_a - \omega)$ difere de zero. Desta forma, fazendo-se neste denominador a aproximação de que $\omega \approx \frac{\omega_a}{2}$, obtém-se:

$$c_3^{\text{NR}}(t \rightarrow \infty) \approx -\frac{\mu_{21}\mu_{32}}{i2\pi\hbar^2\left(\omega_{21} - \frac{\omega_a}{2}\right)} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(\omega)\tilde{E}(\omega_a - \omega)d\omega. \quad (2.30)$$

Para compreender melhor a manipulação da fase óptica vai-se escrever o campo elétrico do pulso explicitamente como função de uma amplitude $\tilde{A}(\omega)$ e uma fase $\varphi(\omega)$

$$\tilde{E}(\omega) = \tilde{A}(\omega)e^{i\varphi(\omega)}. \quad (2.31)$$

Substituindo a Eq. 2.31 na Eq. 2.30 obtém-se

$$c_3^{\text{NR}}(t \rightarrow \infty) \approx -\frac{\mu_{21}\mu_{32}}{i2\pi\hbar^2\left(\omega_{21} - \frac{\omega_a}{2}\right)} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{A}(\omega)e^{i\varphi(\omega)}\tilde{A}(\omega_a - \omega)e^{i\varphi(\omega_a - \omega)}d\omega. \quad (2.32)$$

O papel da fase $\varphi(\omega)$ na Eq. 2.32 pode ser mais bem compreendido com o exemplo de um resultado obtido por D. Meschulach e Y. Silberberg [19]. Suponha que esta fase $\varphi(\omega)$ tenha o formato de uma função degrau, cuja amplitude vale π e cujo degrau se encerre a partir de uma determinada frequência ω_d do espectro a ser escolhida, como mostra a figura 2.2 abaixo.

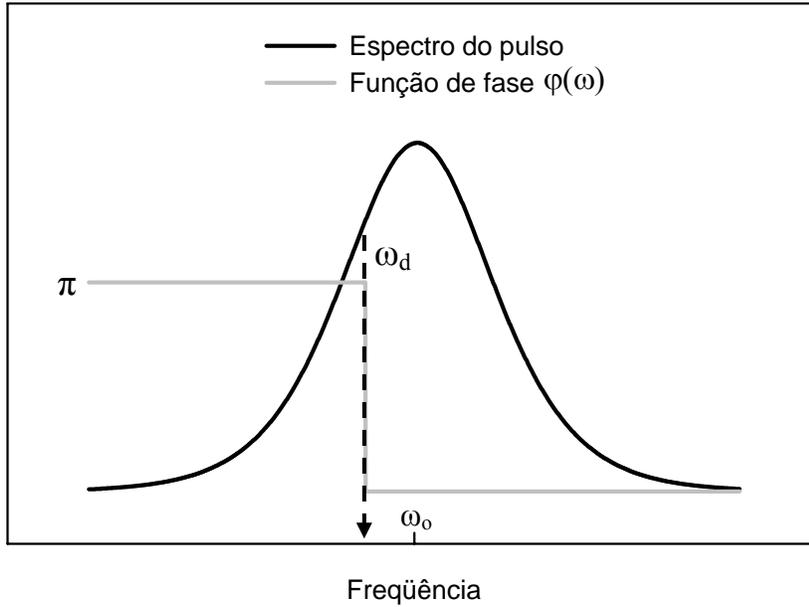


Figura 2.2: Espectro do pulso (preto) e função degrau de fase (cinza) com variação de fase de π . A frequência ω_d representa a posição ao longo do espectro onde a função de fase apresenta seu degrau.

A amplitude de probabilidade c_3^{NR} depende, na integral em ω da Eq. 2.30, do produto $\tilde{E}(\omega)\tilde{E}(\omega_a - \omega)$ dos campos de cada um dos fótons que compõem a transição. A fase dos campos de cada fóton é manipulada de tal forma que a fase total deste produto para as diferentes frequências ω influencia na interferência entre os diversos pares de fótons e assim altera o valor de c_3^{NR} . Dependendo da posição ω_d da função degrau de fase ao longo do espectro do pulso, a interferência entre os diferentes produtos dos campos dos dois fótons será mais ou menos destrutiva, alterando o valor final da população no nível mais excitado. O quadrado do módulo da amplitude de probabilidade c_3^{NR} da Eq. 2.32 foi calculado e a Fig. 2.3 apresenta seu resultado em função do parâmetro ω_d .

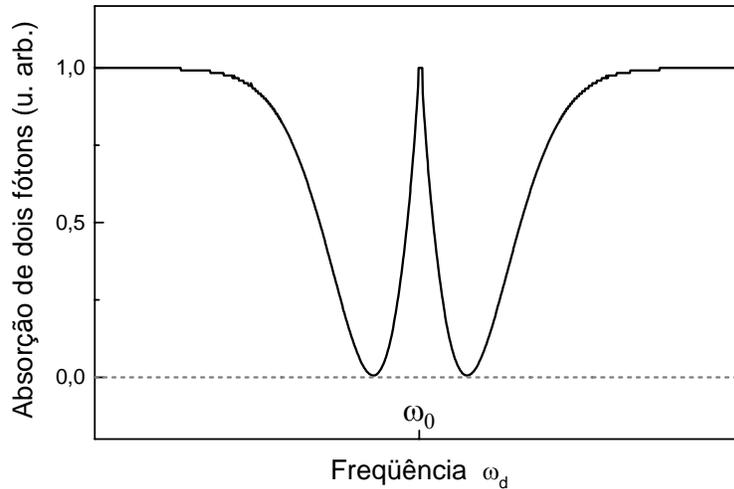


Figura 2.3: Absorção de dois fótons para um sistema de três níveis quando não há ressonância com o nível intermediário em função da posição ω_d da função degrau de fase introduzida no campo elétrico do pulso ao longo do seu espectro.

Como pode ser visto na Fig. 2.3, a absorção de dois fótons apresenta um pico em $\omega_d = \omega_0$, ou seja, há um máximo local quando a função de fase intercepta exatamente metade do espectro do pulso. A Fig. 2.4 esquematiza os campos elétricos nesta situação.

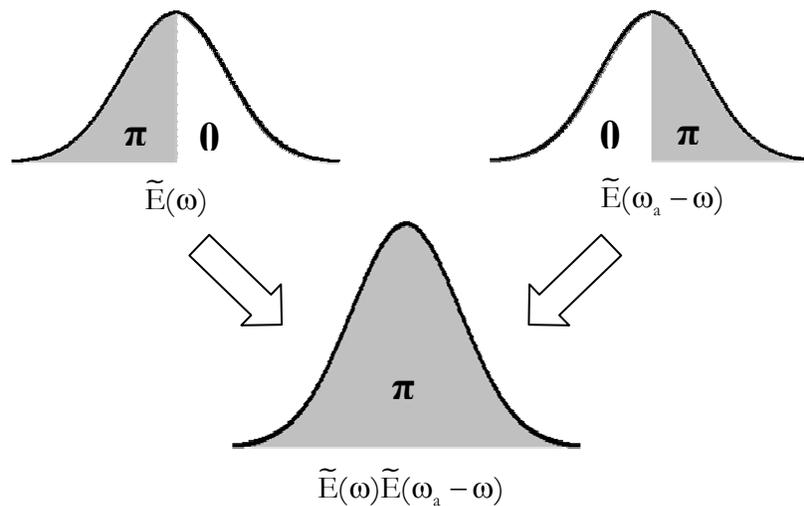


Figura 2.4: Representação esquemática dos campos elétricos que excitam a transição do nível fundamental para o nível mais excitado na situação de mínima interferência destrutiva. Neste esquema, a fase introduzida no pulso foi tal que metade de suas componentes espectrais possui uma fase de π e a outra metade não possui esta fase, fazendo com que o produto dos campos tenha sempre fase total π .

Nesta situação, o produto $\tilde{E}(\omega)\tilde{E}(\omega_a - \omega)$ sempre terá a mesma fase π . Uma vez que o que influencia na interferência é a diferença de fase entre os diversos termos deste produto, esta situação é equivalente à situação em que nenhuma componente do espectro recebe fase (extrema esquerda da Fig. 2.3) ou ainda à situação em que todos recebem a mesma fase (extrema direita da Fig. 2.3).

Os dois mínimos na absorção de dois fótons da Fig. 2.3 representam a situação de máxima interferência destrutiva entre as diversas contribuições de pares de fótons. Isto acontece quando a soma dos produtos $\tilde{E}(\omega)\tilde{E}(\omega_a - \omega)$ com fase total π se iguala à soma dos produtos com fase total nula, situação ilustrada na Fig. 2.5 a seguir.

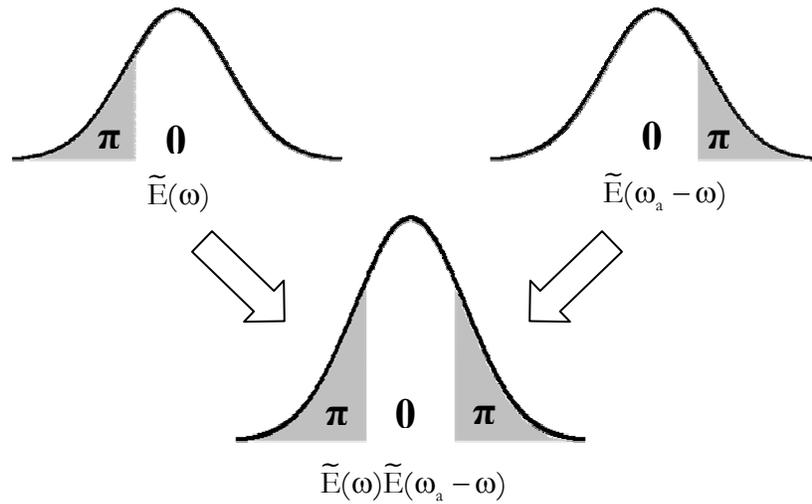


Figura 2.5: Representação esquemática dos campos elétricos que excitam a transição do nível fundamental para o nível mais excitado na situação de interferência destrutiva máxima. Neste esquema, a fase introduzida no pulso foi tal que aproximadamente um terço de suas componentes espectrais possuem uma fase de π , fazendo com que metade da soma dos termos do produto dos campos tenha fase total π e a outra metade não, gerando forte interferência destrutiva.

Com este exemplo, pode-se ver claramente que a manipulação da fase do campo elétrico do pulso interfere no resultado de uma transição de dois fótons sem ressonância com níveis intermediários.

2.2.2 – Transição de dois fótons com ressonância intermediária

No caso com ressonância intermediária, a amplitude de probabilidade correspondente ao nível 3 é descrita pela Eq. 2.29, rerepresentada abaixo:

$$c_3^R(t \rightarrow \infty) \approx -\frac{\mu_{21}\mu_{32}}{i2\pi\hbar^2} \left[i\pi\tilde{E}(\omega_{21})\tilde{E}(\omega_{32}) + \wp \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\tilde{E}(\omega)\tilde{E}(\omega_a - \omega)}{\omega_{21} - \omega} d\omega \right]. \quad (2.33)$$

Analisando a Eq. 2.33 percebe-se que o primeiro termo (termo ressonante) depende apenas das frequências de ressonância com a primeira e a segunda transição e o segundo termo (termo não ressonante) depende das demais frequências. A situação aqui é ainda mais complicada que na situação sem ressonância intermediária (Eq. 2.30) pois, além do termo ressonante ausente na primeira transição, há também no termo não ressonante um denominador dependente de ω que proporciona uma troca de sinal a este segundo termo ao ultrapassar a frequência de ressonância com a primeira transição ω_{21} . Baseando-se no exemplo do caso sem ressonância intermediária, pode-se perceber analisando a Eq. 2.33 que a manipulação da fase do campo elétrico do pulso também altera a transição de dois fótons neste sistema. Porém, a análise desta situação é um pouco mais complexa e será feita em mais detalhes no capítulo 5 ao aplicar-se este modelo à situação experimental.

Conclui-se, então, que a manipulação da fase do campo elétrico do pulso que perturba o sistema pode alterar as probabilidades de uma transição de dois fótons sem e com ressonância com um nível intermediário. Pode-se, portanto, utilizar este artifício para realizar controle coerente em sistemas deste tipo.

Este tipo de controle coerente é feito neste trabalho nas transições 5S-7S e 5S-5P-5D de átomos de Rubídio e resultados experimentais e teóricos mostrando isto serão apresentados nos capítulos 4 e 5, seguidos de conclusões no capítulo 6. O próximo capítulo será responsável por introduzir a teoria de propagação de pulsos ultracurtos por meios dispersivos e também por descrever o Sintetizador de Fourier, explicando como este aparato funciona e mostrando um experimento de calibração do mesmo em conjunto com a teoria que o descreve.

Capítulo 3

Manipulação da Fase Óptica de Pulsos Ultracurtos

Ao longo dos últimos anos, inúmeros métodos de modelagem de pulsos ultracurtos têm sido desenvolvidos, permitindo que se gere pulsos de formatos cada vez mais complexos. A necessidade de se criar pulsos ultracurtos com formas arbitrárias vem da grande aplicação que estes possuem em áreas como espectroscopia resolvida no tempo, comunicações ópticas de alta velocidade [27,28], física de altos campos e controle coerente de sistemas atômicos e moleculares [16-18,21]. Atualmente, a mais popular destas técnicas envolve o uso de um compressor de pulsos de par de grades e de uma máscara de amplitude e /ou fase compondo um sistema, denominado aqui de Sintetizador de Fourier (SF) devido a sua capacidade de sintetizar novos pulsos utilizando-se de sua transformada de Fourier para tal.

O compressor de pulsos de par de grades [26] é um aparato experimental composto por duas grades de difração e duas lentes arranjadas sobre um mesmo eixo espacial, formando um telescópio de magnificação um. Este compressor de pulsos tem várias utilidades, dependendo de como as grades estejam dispostas. Em sua configuração mais usual, ele é usado para compensar dispersão na velocidade de grupo de pulsos ultracurtos.

Está-se interessado aqui, porém, no uso deste aparato para moldar pulsos ultracurtos. Isto pode ser feito usando-se em conjunto com este aparato, um objeto que manipule de alguma maneira a amplitude e /ou a fase do campo elétrico. O mais versátil destes objetos utilizado hoje em dia é o modulador espacial de luz (SLM – “spatial light modulator”). Este objeto consiste, em geral, de uma placa de cristal líquido programada por computador, composta de vários pixels que podem ter sua tensão controlada individualmente. Com o SLM, podem-se construir pulsos de inúmeros formatos com boa precisão [29,30]. Porém, o alto custo deste aparato muitas vezes torna seu uso inviável. Como substituição a este tipo de modulador pode-se usar, por exemplo, fendas e meios materiais para moldar a amplitude e a fase destes pulsos. Esta alternativa é bem

mais viável, porém limita um pouco a forma das funções de amplitude e fase a serem aplicadas devido à dificuldade de se criar meios materiais de formas mais complexas.

O trabalho desenvolvido nesta tese envolve o uso de técnicas de modelagem de pulsos para realizar o controle coerente temporal parcial em duas transições dos átomos de Rubídio. O Sintetizador de Fourier serve aqui como importante ferramenta para possibilitar a alteração da fase de um de dois pulsos incidentes sobre o sistema atômico estudado. Para alterar a fase do campo elétrico, um meio material é introduzido no compressor de pulsos. Uma descrição detalhada deste sistema de manipulação de pulsos será feita neste capítulo e uma calibração experimental será apresentada. Antes, porém, uma breve introdução sobre pulsos ultracurtos e sua propagação em meios materiais será feita, com o intuito de esclarecer o funcionamento do Sintetizador de Fourier.

3.1 – Propagação de pulsos ultracurtos em meios materiais

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

$$E(t) = A(t)e^{-i[\omega_1 t + \phi(t)]} . \quad (3.1)$$

O termo $A(t)$ deste campo elétrico representa a envoltória do pulso. Esta envoltória pode assumir diversos formatos como, por exemplo, o de uma função gaussiana, uma secante hiperbólica, etc. Por simplicidade, a envoltória dos pulsos tratados aqui será representada por uma função gaussiana:

$$E(t) = E_0 e^{-at^2} e^{-i[\omega_1 t + \phi(t)]} , \quad (3.2)$$

onde $a = \frac{2 \ln(2)}{T_p^2}$ e T_p é a largura temporal à meia altura da intensidade do pulso.

O fator multiplicando $A(t)$ na equação 3.1 representa a parte oscilatória do campo elétrico. O termo $e^{-i\omega_L t}$ introduz uma oscilação de frequência óptica ω_L na envoltória do pulso. A fase $\phi(t)$, por sua vez, pode depender do tempo de diversas formas.

A frequência instantânea do campo elétrico é conhecida como [33]

$$\omega_i(t) \equiv \frac{d\phi_T(t)}{dt} , \quad (3.3)$$

onde $\phi_T(t) = \omega_L t + \phi(t)$ é a fase total do campo elétrico.

Como caso particular, vai-se considerar a princípio uma dependência quadrática com t na fase $\phi(t)$:

$$\phi(t) = bt^2 . \quad (3.4)$$

O parâmetro b deste termo quadrático introduz uma variação linear em t na frequência instantânea deste campo elétrico, como pode ser visto na equação 3.5:

$$\omega_i(t) = \omega_L + 2bt . \quad (3.5)$$

Diz-se que um pulso possuindo esta dependência quadrática com o tempo na fase total do campo tem uma varredura linear de frequência, também conhecida como “chirp”. Neste trabalho, considera-se que os pulsos que saem do laser não têm “chirp” e, portanto, $b = 0$. O campo elétrico destes pulsos pode então ser escrito como

$$E(t) = E_0 e^{-2\ln(2)\frac{t^2}{T_p^2}} e^{-i\omega_L t} . \quad (3.6)$$

Por se estar tratando aqui de pulsos simétricos e bem comportados, a frequência ω_L será referida como frequência central do pulso do laser, pois esta é a frequência correspondente ao maior valor do campo elétrico do pulso no domínio espectral, como será visto mais adiante.

Pulsos são ditos limitados por transformada de Fourier quando o produto $\Delta f_p T_p$ é mínimo, sendo Δf_p a largura de banda em frequência do espectro do pulso. O valor deste produto depende de diversos fatores. Um deles, por exemplo, é a presença ou não de “chirp”. Outro é a forma da envoltória do pulso. Se esta for gaussiana, por exemplo, este produto vale [33]

$$\Delta f_p T_p = \frac{2 \ln(2)}{\pi} \sqrt{1 + \left(\frac{b}{a}\right)^2} \approx 0,44 \sqrt{1 + \left(\frac{b}{a}\right)^2} . \quad (3.7)$$

No caso estudado aqui, $b = 0$ e, portanto, $\Delta f_p T_p = 0,44$, o que indica que os pulsos tratados aqui são limitados por transformada.

A intensidade instantânea é dada pelo módulo quadrado do campo elétrico no instante t

$$I(t) = |E(t)|^2 = E_0^2 e^{-4 \ln(2) \frac{t^2}{T_p^2}} . \quad (3.8)$$

Como mencionado no capítulo 2, o campo elétrico no domínio temporal e o campo elétrico no domínio espectral estão relacionados entre si pela transformada de Fourier e sua inversa através das seguintes relações (Eqs. 2.5 e 2.6):

$$E(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(\omega) e^{-i\omega t} d\omega \quad e \quad (3.9)$$

$$\tilde{E}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} E(t) e^{i\omega t} dt . \quad (3.10)$$

Sendo a transformada de Fourier de uma gaussiana também uma gaussiana, pode-se escrever

$$\tilde{E}(\omega) = \tilde{E}_0 e^{-2 \ln(2) \left(\frac{\omega - \omega_c}{\Delta \omega_p} \right)^2} , \quad (3.11)$$

onde $\Delta\omega_p$ é a largura de banda espectral do pulso em radianos por segundo. Observe que este campo elétrico está centrado na frequência central ω_L , como havia sido mencionado anteriormente.

Quando um pulso gaussiano propaga-se por um meio material de comprimento z ele adquire um termo exponencial com relação à constante de propagação $\beta(\omega)$ da seguinte maneira:

$$\tilde{E}(\omega, z) = \tilde{E}(\omega, z=0)e^{i\beta(\omega)z} = \tilde{E}_0 e^{-2\ln(2)\left(\frac{\omega-\omega_L}{\Delta\omega_p}\right)^2} e^{i\beta(\omega)z} . \quad (3.12)$$

A constante de propagação $\beta(\omega)$ pode ser expandida em série de Taylor em torno da frequência central do laser

$$\beta(\omega) = \beta(\omega_L) + (\omega - \omega_L) \left[\frac{d\beta(\omega)}{d\omega} \right]_{\omega=\omega_L} + \frac{(\omega - \omega_L)^2}{2} \left[\frac{d^2\beta(\omega)}{d\omega^2} \right]_{\omega=\omega_L} + \dots . \quad (3.13)$$

O primeiro termo desta expansão determina o atraso de fase dado por

$$t_\phi = \frac{\beta(\omega_L)z}{\omega_L} \quad (3.14)$$

e também a velocidade de fase da onda:

$$v_f = \frac{\omega_L}{\beta(\omega_L)} . \quad (3.15)$$

O segundo termo, por sua vez, está relacionado ao atraso de grupo por

$$t_g(\omega) = \beta'(\omega)z \quad (3.16)$$

e à velocidade de grupo da onda neste meio por:

$$v_g(\omega) = \frac{1}{\beta'(\omega)} = \frac{d\omega}{d\beta} . \quad (3.17)$$

Com esta definição de velocidade de grupo, pode-se perceber que a segunda derivada da constante de propagação no terceiro termo da Eq. 3.13 está relacionada à dispersão na velocidade de grupo $DVG \equiv \frac{dv_g}{d\omega}$ por

$$\frac{d^2\beta}{d\omega^2} = \frac{d}{d\omega} \left(\frac{1}{v_g(\omega)} \right) = \frac{-1}{v_g(\omega)^2} DVG . \quad (3.18)$$

Considerando que o meio tenha índice de refração complexo $n(\omega)$ dado por

$$n(\omega) = n_R(\omega) + in_I(\omega) . \quad (3.19)$$

pode-se escrever

$$\beta(\omega) = \frac{n_R(\omega)\omega}{c} , \quad (3.20)$$

onde c é a velocidade da luz no vácuo.

Analisando as equações 3.12, 3.19 e 3.20 pode-se perceber que ao propagar um campo elétrico em um meio material está-se introduzindo uma fase neste campo. Esta fase pode ser moldada adequadamente de acordo com a parte real $n_R(\omega)$ do índice de refração do meio e com a espessura z deste meio. A parte imaginária $n_I(\omega)$ do índice de refração é responsável pela absorção do campo pelo meio, a qual não está incluída na Eq. 3.12, mas entraria nesta equação de maneira semelhante à constante de propagação. A passagem do pulso por um meio dispersivo é, portanto, uma maneira simples de introduzir uma fase extra em seu campo elétrico, sendo esta a maneira escolhida para manipular a fase do campo elétrico dos pulsos neste trabalho.

3.2 – Compressor de pulsos de par de grades

Para manipular a fase do campo elétrico dos pulsos experimentalmente, a maioria dos grupos de pesquisa utiliza um compressor de pulsos de par de grades como artefato para

dispersar espacialmente as componentes de frequência do pulso. Este aparato experimental consiste de um par de grades de difração e de um par de lentes formando um telescópio de magnificação um.

Neste trabalho, cada uma destas grades possuía 1200 linhas /mm e cada uma das lentes possuía a mesma distância focal $f = 10$ cm. Como mencionado anteriormente, este aparato serve para diversas finalidades. Uma delas é a de compensar dispersões na velocidade de grupo do pulso, o que significa compensar o seu “chirp”. Para que isto ocorra, as grades devem estar separadas de uma distância superior a $4f$, introduzindo “chirp” positivo, ou inferior a $4f$, introduzindo “chirp” negativo. Caso não se queira introduzir nenhum “chirp”, estas grades devem estar separadas de exatamente quatro vezes a distância focal das lentes. Nesta configuração, apresentada na Fig. 3.1, as lentes devem estar distanciadas de f da grade mais próxima.

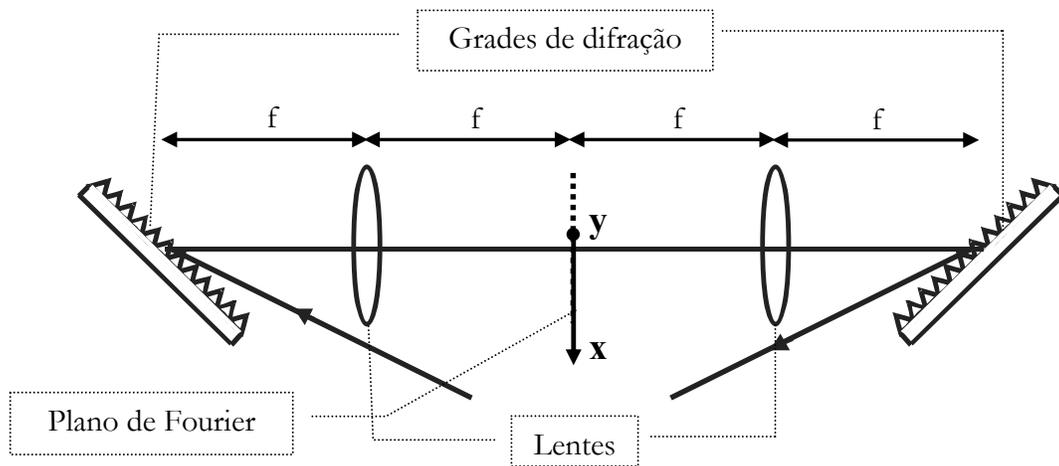


Figura 3.1: Compressor de pulsos de par de grades na configuração de “chirp” nulo.

Quando um pulso de laser atinge a primeira grade deste aparato ele se dispersa, sendo cada uma de suas componentes de frequência difratadas para uma direção distinta, como pode ser visualizado na figura 3.2.

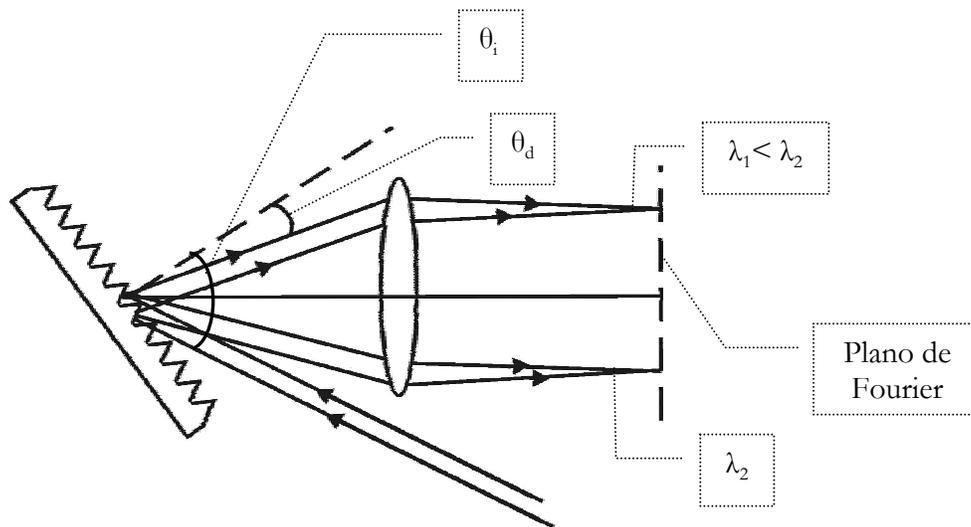


Figura 3.2: Esquema demonstrando o papel da primeira grade e da primeira lente no Sintetizador de Fourier.

A direção de cada um destes raios é ditada pela equação de difração da grade

$$\text{sen}\theta_i + \text{sen}\theta_d = \frac{\lambda}{\Lambda_g} \quad , \quad (3.21)$$

onde Λ_g é o parâmetro de difração da grade, que neste caso vale (1/1200) mm. Os ângulos θ_i e θ_d são, respectivamente, os ângulos de incidência e difração dos raios de cada um dos comprimentos de onda contidos no espectro do pulso. Quando estes raios atingem a primeira lente eles são colimados e focalizados a uma distância f da mesma em pontos diferentes de um plano perpendicular ao eixo que conecta o centro das duas lentes, plano este conhecido como plano de Fourier. É neste plano que as componentes de frequência do pulso estão mais bem resolvidas espacialmente e é nele que cada componente de frequência do pulso é manipulada. A focalização de cada uma destas componentes não ocorre, porém, em um único ponto deste plano devido a efeitos de difração. Isto significa que cada componente de frequência é focalizada em uma região finita do plano de Fourier, o que acarreta modificações na função de fase, como será visto mais adiante.

Para compreender a relação linear entre a distância a este eixo e os comprimentos de onda do pulso neste plano de Fourier, imagine um raio que passa pelo centro de uma lente, como mostra a Fig. 3.3.

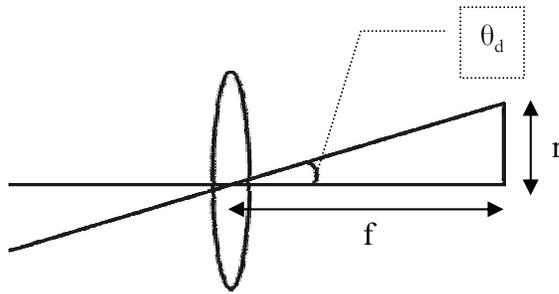


Figura 3.3: Esquema que ajuda a explicar a linearidade da distribuição de comprimentos de onda ao longo do plano de Fourier.

Por passar pelo centro da lente, este raio não sofre deflexão alguma. No plano focal da lente ele está a uma distância r do eixo da mesma, distância esta que pode ser relacionada ao ângulo θ por $r \approx f\theta$, dentro da aproximação paraxial. Uma vez que cada ângulo de difração está relacionado a um comprimento de onda do pulso pela equação 3.21, obtém-se uma relação linear entre r e λ

$$r \approx f\theta + \zeta \lambda , \quad (3.22)$$

onde ζ é uma constante que determina a inclinação da reta. Após este plano, os raios correspondentes a cada comprimento de onda atingem a segunda lente, a qual os direciona para a segunda grade, encarregada de reunir espacialmente todas as componentes de frequência, revertendo o trabalho executado pela primeira grade. Desta maneira, após o compressor, o pulso continua com suas frequências superpostas espacialmente. Pode-se encarar este sistema como um aparato experimental que realiza transformada de Fourier. A primeira grade e a primeira lente são responsáveis por fazer a transformada de Fourier direta do pulso, espalhando suas componentes espectrais espacialmente. O segundo par destas componentes, por sua vez, é responsável por fazer a transformada de Fourier inversa, reunindo as frequências espacialmente.

3.3 – Manipulação da fase com o uso do Sintetizador de Fourier

Para usar o compressor de pulsos de par de grades da seção 3.2 para manipular a fase dos pulsos faz-se uso de uma máscara de fase introduzida no plano de Fourier deste compressor.

A confecção de funções de fase complexas não foi viável neste trabalho devido à indisponibilidade de um SLM. Desta maneira, foi necessária a idealização de uma função simples, porém eficaz para o controle coerente. Optou-se, portanto, por uma função degrau devido à sua fácil implementação, a qual será descrita mais adiante. A seção 2.2 do capítulo anterior já apresentou um exemplo da eficácia desta função de fase ao se reproduzir teoricamente um trabalho realizado por D. Meschulach e Y. Silberberg [19]. Neste exemplo, este tipo de fase é introduzido num pulso ultracurto para realizar o controle coerente de uma transição de dois fótons sem ressonância intermediária. A proposta desta tese, no entanto, é um pouco mais complexa que este exemplo pois envolve a utilização de dois ao invés de apenas um pulso ultracurto. O controle coerente de uma transição de dois fótons sem e com ressonância intermediária é feita aqui através da manipulação da fase de um de dois pulsos excitando o sistema. A introdução deste segundo pulso neste controle coerente fornece mais um grau de liberdade ao sistema, criando novos caminhos quânticos, a serem discutidos mais adiante.

Como parâmetros experimentais para manipulação desta fase, usa-se o comprimento de onda λ_d , a partir do qual este degrau começa em relação ao espectro do pulso, e a amplitude desta função degrau, a qual determina a fase introduzida em algumas das componentes espectrais. A Fig. 3.4 ilustra bem este parâmetro λ_d .

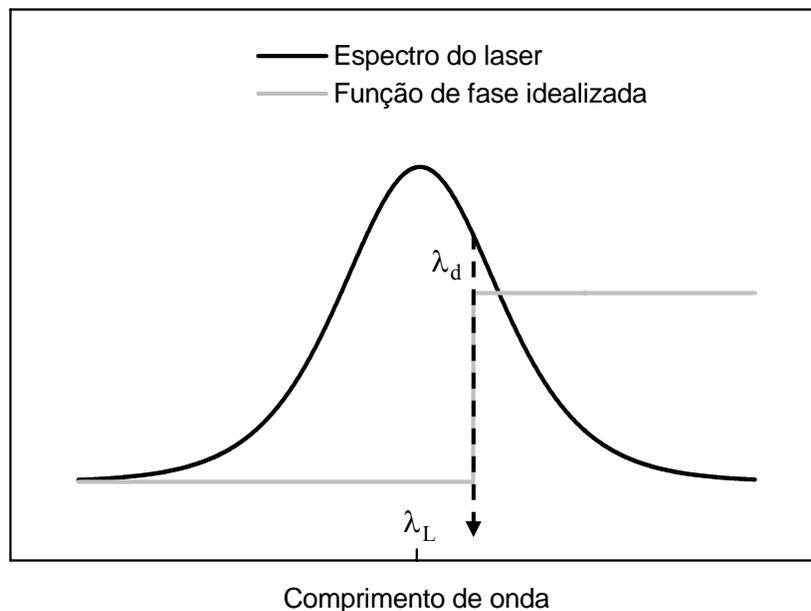


Figura 3.4: Fase no formato de uma função degrau (cinza) introduzida ao longo do espectro do pulso, apresentado em função dos comprimentos de onda (preto).

Pode-se associar ao comprimento de onda λ_d uma frequência ω_d correspondente, obtida através da relação

$$\omega_d = \frac{2\pi c}{\lambda_d} . \quad (3.23)$$

É bom lembrar que no caso da frequência, a função degrau mostrada na Fig. 3.4 fica invertida ao longo das ordenadas, uma vez que o comprimento de onda é inversamente proporcional à frequência. Assim, na maneira como está apresentada a função degrau os maiores comprimentos de onda e, conseqüentemente, as menores frequências do espectro recebem antes a fase extra proporcionada pelo degrau de fase.

Uma maneira simples de implementar esta fase experimentalmente é introduzindo um meio material no plano de Fourier do compressor de pulsos tal que somente as componentes de frequência inferiores à frequência ω_d passem por ele. Neste trabalho, um filme fino exerce este papel, depositado sobre uma lâmina de vidro de tal maneira que apenas metade dela é coberta por ele. A região da lâmina onde o filme se encontra corresponde à parte da função de fase diferente de zero estando sua posição, portanto, diretamente relacionada ao parâmetro ω_d .

Ao plano de Fourier, podem ser associadas duas coordenadas cartesianas x e y , as quais podem ser visualizadas na Fig. 3.1. Estas coordenadas determinam, respectivamente, as posições horizontal e vertical da lâmina, uma vez que esta está completamente contida neste plano. Nesta configuração, a coordenada x do filme determina quais componentes de frequência passarão pelo filme fino e quais componentes não passarão por ele, ou seja, que componentes de frequência receberão a fase extra e que componentes não a receberão, sendo x um importante parâmetro experimental. Da Eq. 3.20 deduz-se que esta ordenada pode ser associada diretamente ao comprimento de onda λ_d do espectro do pulso a partir do qual a fase começa a agir sobre ele. Em frequência, o valor de x está associado a ω_d , parâmetro este utilizado nos cálculos teóricos para ajustar corretamente a posição do degrau da fase ao longo do espectro, como será visto mais adiante.

3.4 – Calibração do Sintetizador de Fourier

Para que se pudesse determinar a relação direta entre x e λ_d , foi preciso que se fizesse um experimento de calibração do Sintetizador de Fourier. Para realizar esta calibração, foi introduzida uma cobertura opaca sobre parte do filme fino, como pode ser visualizado na figura 3.5. Neste experimento, bloqueia-se parte do espectro do pulso pela cobertura opaca e observa-se o espectro do pulso transmitido em função de diversas posições horizontais x da mesma.

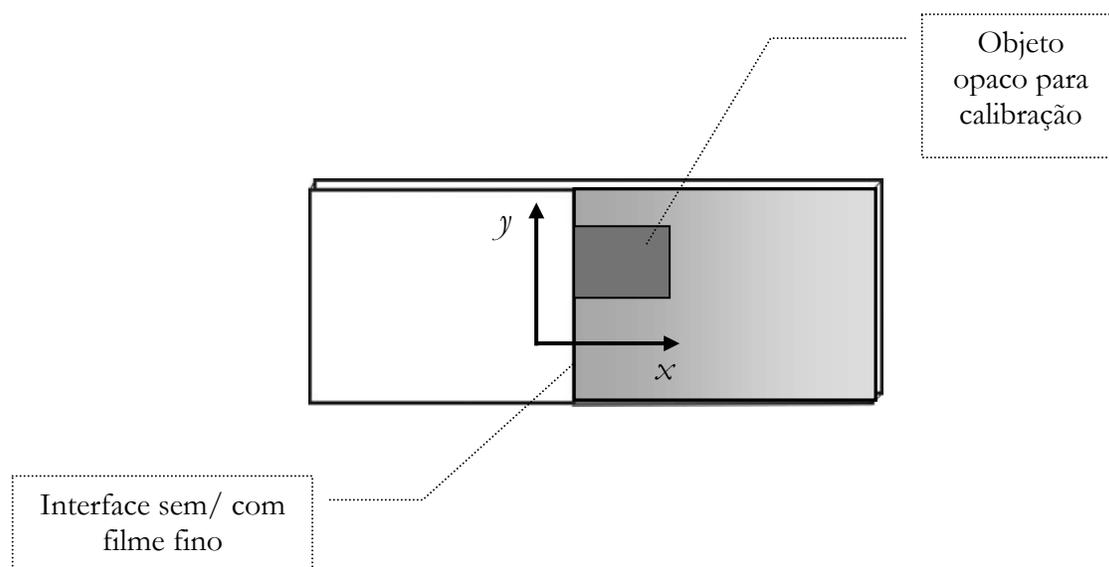


Figura 3.5: Lâmina com filme fino depositado em metade dela e com um objeto opaco introduzido para o experimento de calibração. A interface entre as regiões sem e com o filme fino representa a subida da função degrau de fase e, portanto, sua posição está relacionada ao parâmetro λ_d .

Os resultados experimentais e teóricos desta calibração podem ser visualizados na Fig. 3.6 a seguir:

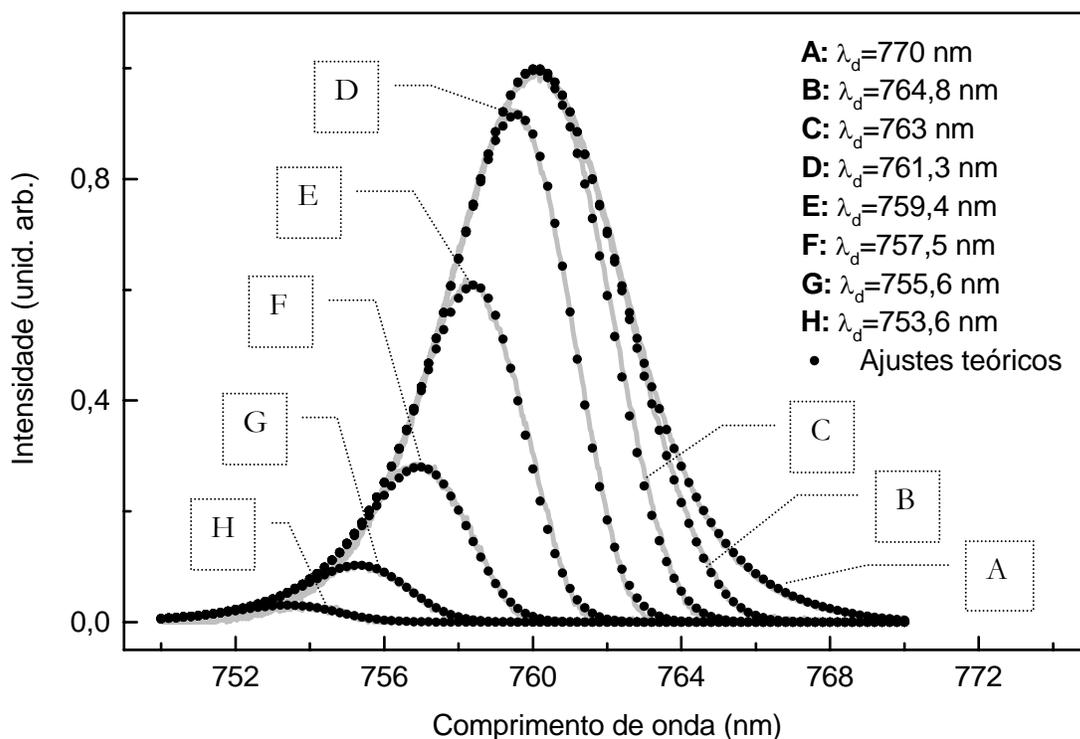


Figura 3.6: Dados experimentais (cinza) e ajustes teóricos (pontos pretos) da calibração do SF. Cada par de curvas experimental e teórica está associado a uma posição da lâmina no plano de Fourier e, portanto, a um valor do parâmetro λ_b .

Ao ajustar as curvas teóricas da calibração aos dados experimentais, determina-se um valor do parâmetro λ_d para cada posição x da lâmina. Esta relação entre os valores de λ_d obtidos com o ajuste teórico e os valores experimentais de x correspondentes pode ser vista na figura 3.7, onde se vê que a relação entre x e λ no plano de Fourier é realmente linear, indicando que a aproximação paraxial é válida neste caso.

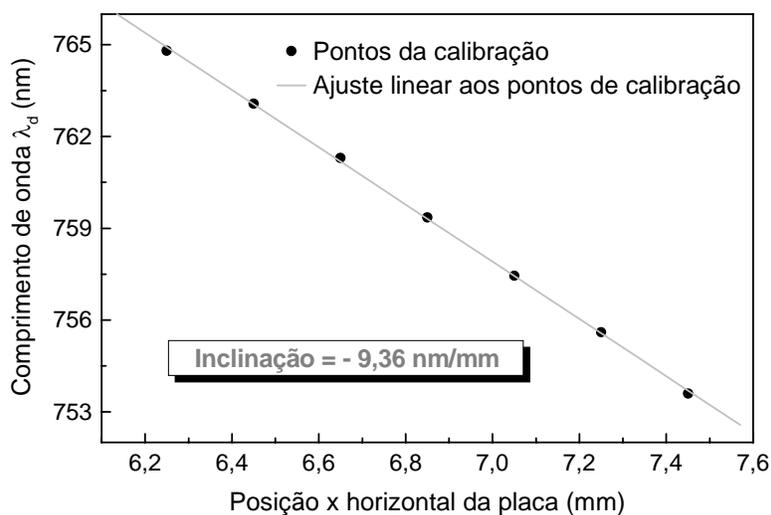


Figura 3.7: Relação entre λ_d e x obtida com a calibração.

Observando-se as curvas teóricas e experimentais da figura 3.6 percebe-se que o obstáculo não corta abruptamente o espectro do pulso. Isto pode ser explicado através dos efeitos de difração, que impedem que cada componente de frequência seja focalizada em apenas um ponto do plano de Fourier, suavizando o degrau da função de fase. Com base nesta observação, a função utilizada para ajustar estes espectros não poderia mais ser uma função degrau e sim uma função cuja subida fosse suave o suficiente para fornecer os espectros medidos. Existem algumas funções que exercem este papel, como por exemplo, uma tangente hiperbólica ou uma função erro. Escolheu-se aqui a função erro para ajustar os cortes em amplitude no espectro ocasionados pelo objeto opaco. Assumindo-se que a amplitude e a fase são afetadas pela difração de maneira semelhante, a função de fase adotada também foi uma função erro. Esta função de fase mais real pode ser visualizada na Fig. 3.8. O parâmetro σ' apontado no gráfico indica o quão abrupta é a função erro que representa a fase. Quanto menor o valor de σ' , mais próxima da função degrau está a função erro. Quando escrito em função da frequência, o parâmetro σ é o que determina o quão abrupta é a subida da função de fase.

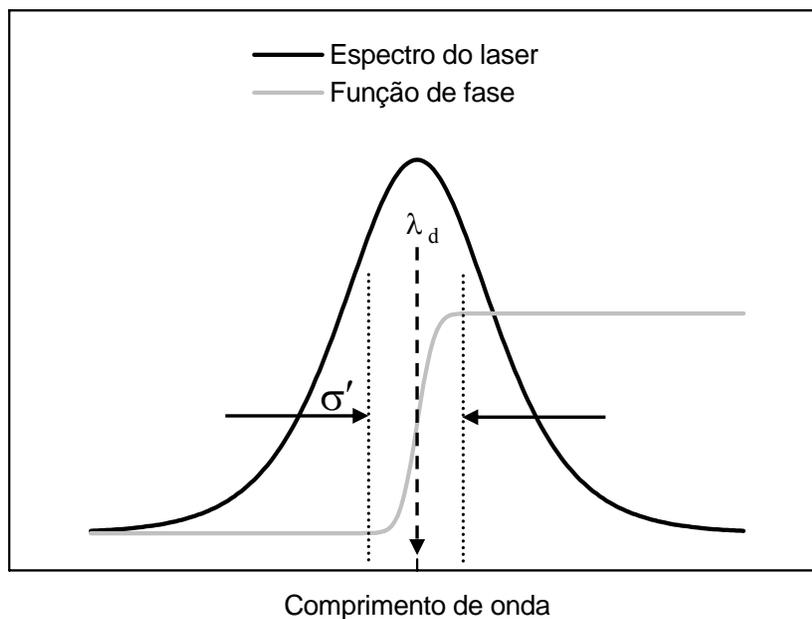


Figura 3.8: Fase (cinza) introduzida experimentalmente ao longo do espectro do pulso (preto). O parâmetro σ' determina o quão abrupta é a subida da função erro usada como modelo para a função de fase introduzida no sistema pelo filme fino.

Baseando-se na fase introduzida após a propagação de um pulso por um meio, caracterizada pela constante de propagação $\beta(\omega)$ apresentada na Eq. 3.17, e levando-se em conta que o parâmetro relevante é a diferença de fase entre as diferentes componentes de frequência, pode-se escrever a função de fase como

$$\varphi(\omega) = \text{FE} \left(\frac{\omega - \omega_d}{\sigma} \right) \frac{(n-1)\omega d}{2c}, \quad (3.24)$$

onde FE representa a função erro complementar, a qual é definida por

$$\text{FE}(\alpha) = 1 - \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^\alpha y^2 dy. \quad (3.25)$$

Na Eq. 3.24, $(n-1)$ representa a diferença entre os índices de refração do filme fino (n) e do ar (1). O parâmetro d representa a espessura do filme fino, a qual foi determinada após ajustes teóricos em cada um dos casos experimentais e comparadas aos valores experimentais obtidos por outros métodos quando disponíveis. Baseando-se na Eq. 3.12, o campo elétrico do pulso no domínio espectral após ter sua fase manipulada no compressor de pulsos pode ser escrito como

$$\tilde{E}(\omega) = \tilde{E}_0 e^{-2 \ln(2) \left(\frac{\omega - \omega_c}{\Delta\omega_p} \right)^2} e^{i\varphi(\omega)}. \quad (3.26)$$

Para explorar a transição 5S-7S, primeira abordada nesta tese, foi utilizada para produzir este filme uma mistura de diversos materiais, conhecida popularmente como esmalte transparente para unhas. A escolha deste material foi feita empiricamente de acordo com os materiais disponíveis no momento. Materiais como vidro, bálsamo do Canadá, filme plástico PVC e polímero PVA foram testados, apresentando o melhor resultado o esmalte para unhas. Como técnicas de deposição deste filme fino, foram testadas deposições por escorrimento, por spin coating e por pincelamento, apresentando esta última uma melhor qualidade óptica.

Para a segunda etapa da tese, referente à transição 5S-5P-5D, foram desenvolvidas novas lâminas pois percebeu-se que era necessário uma homogeneidade maior do filme fino para obter resultados experimentais mais precisos. Novas lâminas com deposições de dois materiais

diferentes, óxido de titânio e dióxido de silício, foram então gentilmente cedidas pela Oficina de Óptica do Instituto de Física da Universidade de São Paulo em São Carlos (USP - São Carlos). Estes dois tipos de filmes finos foram depositados com espessuras diferentes um do outro para que se obtivesse amplitude da função de fase adequada. Todos estes filmes foram considerados finos o suficiente para que se pudesse aproximar o índice de refração dos mesmos por um valor real, eliminando a parte absorviva e, portanto, assumindo-se que os mesmos não alteravam a amplitude do campo elétrico que passava por eles. Supôs-se também que dentro da largura de banda do pulso, o índice de refração não tinha uma dependência muito forte com a frequência, tendo sido aproximado por uma constante. No caso do filme de óxido de titânio este valor é de 2,2 e para o filme de dióxido de silício este valor é de 1,45. A espessura de ambos os filmes era da ordem de $0,3 \mu\text{m}$. No caso do esmalte para unhas, supôs-se que o índice de refração era igual ao do vidro, ou seja, $n = 1,5$, e ajustou-se teoricamente o valor de d , o qual era desconhecido, para que a conjunção destes dois parâmetros fornecesse a fase adequada para ajustar curvas teóricas aos dados experimentais de fluorescência e correlação cruzada da transição 5S-7S.

Neste capítulo introduziu-se o conceito de modelagem de pulsos ultracurtos e as técnicas utilizadas hoje em dia para realizá-la. Foi feita uma introdução do tratamento teórico destes pulsos de sua propagação por meios materiais. Em seguida foi feita uma discussão do Sintetizador de Fourier, aparato experimental utilizado neste trabalho para moldar a fase dos pulsos. Uma calibração deste aparato foi apresentada. Foram discutidas a escolha da função de fase introduzida nestes pulsos moldados e sua respectiva representação teórica e experimental. A função erro foi admitida como apropriada para representar esta função de fase introduzida experimentalmente pelo filme fino presente no SF.

Capítulo 4

Controle Temporal Coerente da Transição 5S-7S

O controle coerente é um tópico que desperta bastante interesse. Isto porque ele representa uma poderosa ferramenta para o controle de sistemas quânticos. Como toda pesquisa básica, o controle coerente deve ser inicialmente explorado em sistemas mais simples, para que estes sejam compreendidos e sirvam de modelo para sistemas mais complexos. Como exemplo de um sistema simples, podem-se citar os elementos químicos alcalinos. Dentre eles destacam-se o Rubídio e o Césio, mais comumente utilizados em controle coerente por apresentarem, dentre outras coisas, fácil manuseio e compatibilidade de suas transições com os comprimentos de onda de lasers bem difundidos, como por exemplo o Ti:safira. Tanto o Césio [16,21] quanto o Rubídio [17,18,20 ,22 ,23] já foram explorados em diferentes situações.

Neste trabalho os átomos de Rubídio servem mais uma vez de objeto de estudo. Será mostrado neste capítulo o controle coerente temporal parcial da sua transição 5S-7S. Esta transição é excitada por dois fótons, provenientes de dois pulsos de femtossegundos separados temporalmente de τ . O controle desta transição é feito através da manipulação da fase óptica de um destes dois pulsos incidentes sobre o sistema. Esta manipulação é realizada com a ajuda do Sintetizador de Fourier e o tratamento dado aqui às diferentes componentes de frequência consiste em introduzir uma nova fase a estas componentes de maneira a alterar o resultado da transição estudada. Esta fase é adicionada ao campo elétrico através da passagem do mesmo por um meio material como mencionado no capítulo 3.

Neste capítulo será feita ainda uma descrição do aparato experimental utilizado e em seguida serão apresentados resultados experimentais que mostram o controle parcial desta transição. Após os resultados experimentais, uma análise teórica dos mesmos será feita, a qual proverá curvas teóricas que serão ajustadas a estes dados.

Para controlar coerentemente a transição 5S-7S, esquematizada na figura 4.1, coloca-se o Rubídio no interior de uma célula de pìrex, na qual previamente é feito vácuo. Para criar um

vapor com os átomos, esta célula é colocada no interior de um forno, cuja temperatura, um dos parâmetros do experimento, permite controlar a densidade atômica.

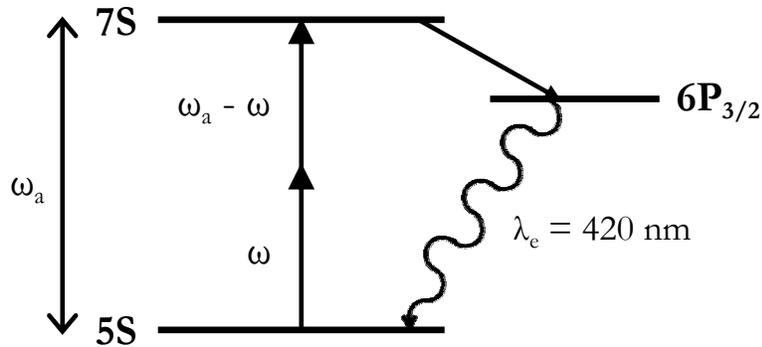


Figura 4.1: Esquema da transição 5S-7S, a qual não apresenta ressonâncias com níveis intermediários, apesar de estes existirem.

A frequência atômica ω_a da transição 5S-7S corresponde a um comprimento de onda de 380 nm. Para excitar esta transição, o laser é sintonizado a uma frequência correspondente à metade da transição atômica, ou seja, seu comprimento de onda central é 760 nm. A largura espectral do pulso do laser é ajustada para 6 nm, o que equivale a uma largura temporal de aproximadamente 140 fs. A transição para o nível intermediário 5P corresponde a um fóton de 780 nm, de onde se conclui, baseando-se na explicação fornecida na seção 2.2 do capítulo 2, que com esta largura de banda e com esta frequência central dos pulsos não há ressonância com o nível intermediário. A ausência de ressonância intermediária faz deste um sistema mais simples de ser estudado e, portanto, seu estudo neste trabalho precedeu o estudo da transição mais complexa, a transição 5S-5P-5D também dos átomos de Rubídio, a qual possui ressonância intermediária e será tratada no próximo capítulo.

4.1 – Descrição dos experimentos

Os pulsos ultracurtos utilizados no experimento são emitidos por um laser de Ti:Safira (Tsunami, Spectra Physics), cujos comprimento de onda central e largura espectral podem ser ajustados de acordo com as necessidades. Para a transição 5S-7S, o laser tinha as seguintes características:

Propriedades do laser na transição 5S-7S	
Comprimento de onda central	760 nm
Largura de banda	6 nm
Largura temporal	141 fs
Potência média	630 mW
Taxa de repetição dos pulsos	82 MHz

Tabela 4.1: Propriedades do laser quando usado para excitar a transição 5S-7S dos átomos de Rb.

O controle temporal coerente, assim como mencionado no capítulo 1, é feito usando-se dois pulsos atrasados temporalmente de τ para excitar o sistema atômico. Para produzir estes dois pulsos, um divisor de feixes (divisor de feixes 1) é colocado logo na saída do laser. O pulso que resulta da reflexão neste divisor de feixes será chamado de pulso 1 e o que refrata será chamado de pulso 2.

O primeiro pulso adquire um atraso variável relativo ao segundo ao passar por uma linha de atraso, conforme mostrado na Fig. 4.2. Um motor de passo de resolução 0,1 μm comandado por um equipamento (Newport Motion Controller MM2500) controla este atraso, recebendo comandos do computador durante os experimentos. O caminho que o pulso 1 segue é arranjado de tal forma que, quando o motor de passo está na origem (a meio caminho dos seus dois extremos), este pulso percorre o mesmo caminho óptico que o pulso 2. Desta maneira, andar com o motor de passo para frente e para trás corresponde, respectivamente, a adiantar ou atrasar o pulso 1 com relação ao pulso 2. Como será visto mais adiante, este τ experimental tem o sinal trocado com relação ao τ teórico de maneira que nos gráficos experimentais seu sinal será invertido para que haja concordância com a teoria. A escolha da mudança do sinal do atraso experimental se dá pela convenção de sinais de atraso adotadas neste trabalho: $\tau > 0$ indica

atraso positivo, ou seja, o pulso 1 chega depois e $\tau < 0$ indica atraso negativo, ou seja, o pulso 1 chega antes.

O segundo pulso, por sua vez, é manipulado através do Sintetizador de Fourier para receber uma fase extra que altera o resultado da transição em questão. Como descrito no capítulo 3, esta fase é introduzida por um filme fino depositado sobre uma lâmina. A posição horizontal x desta lâmina no plano de Fourier do SF representa outro importantíssimo parâmetro experimental pois é esta posição que vai determinar quais componentes de frequência vão ou não ser influenciadas pela fase extra introduzida pelo meio material. Vale lembrar que esta posição x da placa de fase é associada a um comprimento de onda λ_d e, conseqüentemente, a uma frequência ω_d do espectro do pulso 2.

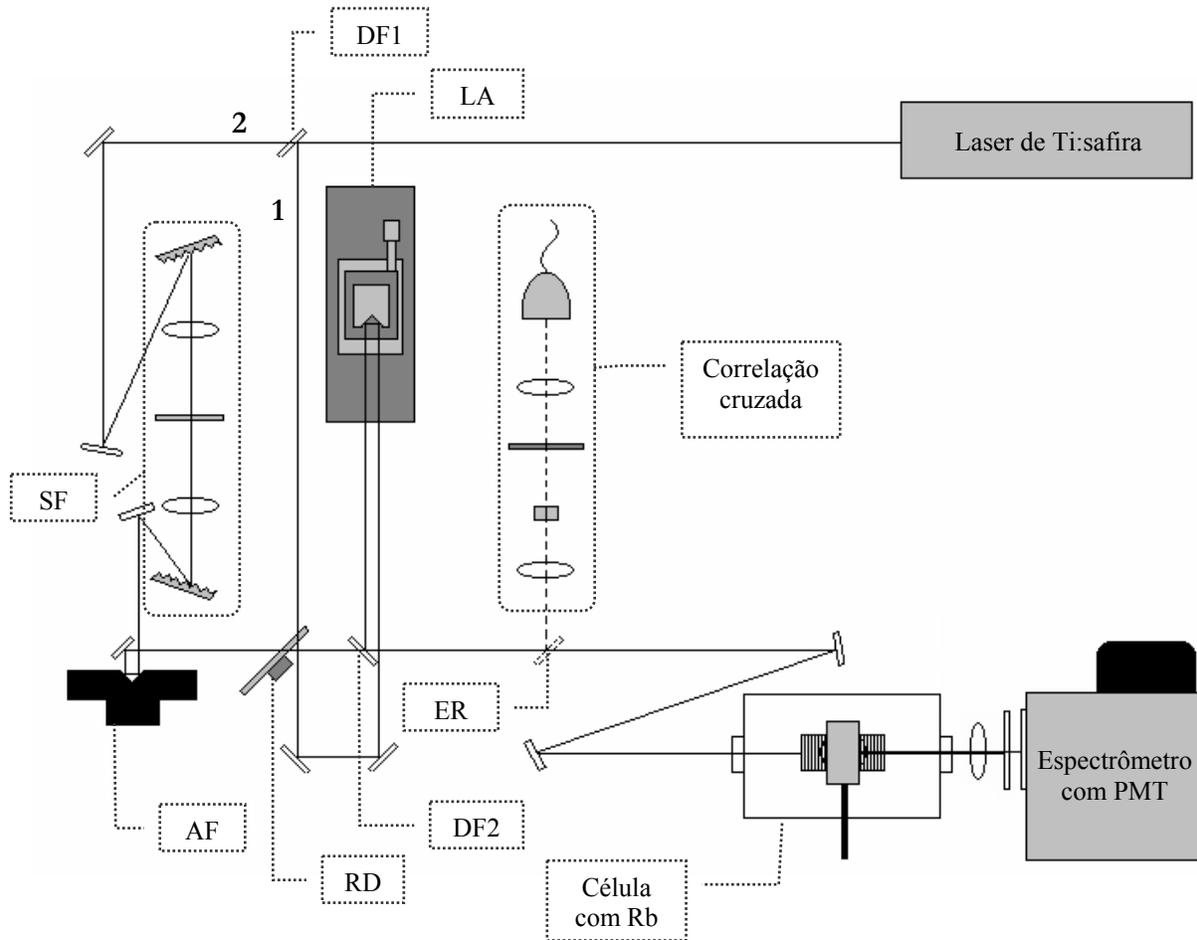


Figura 4.2: Montagem experimental feita para os experimentos de correlação cruzada colinear e de fluorescência. Os números 1 e 2 indicam os dois pulsos do experimento. DF – divisor de feixes; LA – linha de atraso (motor de passo com canto de cubo acoplado); SF – Sintetizador de Fourier; AF – alto-falante; RD – roda dentada; ER – espelho removível; PMT – fotomultiplicadora.

Após passarem pela linha de atraso e pelo SF, os pulsos 1 e 2 são superpostos no divisor de feixes 2 e, a partir daí, seguem sempre juntos. Nesta montagem experimental, há dois possíveis caminhos a serem seguidos pelos dois pulsos de acordo com a medida que se deseja realizar. A escolha de um ou outro caminho é feita colocando-se ou retirando-se o espelho removível da montagem, como pode ser visualizado na Fig. 4.2. A primeira possibilidade leva ao experimento de correlação cruzada. O segundo caminho, por sua vez, leva à célula contendo o vapor de Rubídio e, portanto, ao experimento mais importante, o de fluorescência. Estes dois experimentos sempre foram feitos em pares, um seguido ao outro, para que se obtivesse mais informação da manipulação do pulso 2. Por motivos de consistência, entre um e outro experimento de cada par apenas o espelho removível poderia ser alterado na montagem experimental.

A correlação cruzada é um experimento que tem por objetivo sondar a forma temporal de um dos dois pulsos envolvidos. Nela, um par de pulsos incide sobre um cristal gerador de 2º harmônico e o sinal produzido por ambos os pulsos é coletado em função do atraso temporal entre os mesmos. Quer-se aqui sondar a forma temporal do pulso manipulado no SF. Isto é feito com a ajuda do outro pulso, o pulso 1, cujo papel neste experimento é o de pulso sonda. Neste trabalho um cristal de BBO foi utilizado para gerar o 2º harmônico e um fotodiodo foi usado para coletar o sinal gerado. Este tipo de experimento pode ser feito com os pulsos alinhados em situação colinear ou não. Aqui, a montagem experimental obrigava que o alinhamento fosse colinear pois logo em seguida era feita uma medida de fluorescência que exigia esta colinearidade. Este detalhe experimental traz ao sinal de 2º harmônico uma interferência óptica, o que introduz um ruído indesejado aos dados experimentais, uma vez que só se está interessado na envoltória deste sinal. Para que se excluísse ao máximo este ruído interferométrico dos dados experimentais sem que se alterasse a envoltória do sinal gerado, foi introduzido no caminho do pulso 2 um alto-falante com amplitude e frequência adequadamente ajustadas.

O segundo e principal experimento consiste em observar a fluorescência emitida pelo vapor de átomos de Rubídio quando estes são excitados pelos pares de pulsos mencionados acima em função do atraso temporal entre eles. É importante frisar que neste experimento o pulso 1 não exerce mais o papel de pulso sonda, tendo este a mesma função que o pulso 2, que é o de excitar o sistema. Detecta-se a fluorescência perpendicular à direção de propagação do feixe emitida com comprimento de onda de 420 nm quando os átomos decaem espontaneamente do

nível $6P_{3/2}$ para o nível 5S, após terem decaído espontaneamente do nível 7S para o nível $6P_{3/2}$. Esta emissão também está representada na Fig. 4.1. Outra possibilidade seria a de coletar o sinal de fluorescência frontal emitido pelos átomos na direção de propagação dos feixes. Porém, este sinal é mais complexo de ser estudado e as características nas quais se está interessado estão também presentes no sinal transversal a esta direção [34]. Este sinal de fluorescência é uma medida direta da população do nível mais excitado do sistema e é através dele que será analisado o controle coerente temporal do sistema para as diferentes manipulações de fase feitas no pulso 2. Este sinal é coletado por uma lente situada acima de uma abertura superior do forno. Esta lente focaliza o sinal, o qual é em seguida refletido para um espectrômetro, onde o comprimento de onda adequado (420 nm) é selecionado e enviado a uma fotomultiplicadora acoplada a ele.

Para processar os sinais de correlação cruzada e de fluorescência é realizada uma detecção sensível à fase através de um amplificador “lock-in” (Stanford Research SR530), que processa o sinal do fotodiodo ou da fotomultiplicadora e os envia ao computador. Para que este aparelho colete o sinal correto e não inclua ruído ambiente é necessário que se module o sinal que se deseja coletar. Isto é feito com o uso de uma roda dentada, a qual permite modulação em duas frequências distintas. Como se está interessado aqui em observar apenas os sinais referentes à contribuição dos dois pulsos, modula-se cada pulso com uma frequência diferente e escolhe-se observar no “lock-in” apenas o sinal correspondente à soma destas frequências. Desta maneira, está-se eliminando um sinal de fundo que não depende do atraso entre os pulsos pois provém de cada pulso separadamente.

Tanto o aparelho controlador do motor de passo quanto o “lock-in” são gerenciados por um programa computacional na linguagem Qbasic desenvolvido e adaptado especialmente para estes experimentos. A comunicação do “lock-in” e do controlador do motor de passo com o computador é estabelecida através da porta GPIB. Na tentativa de eliminar ainda mais o ruído existente no sistema, fazem-se médias aritméticas dos sinais de fluorescência e correlação cruzada coletados consecutivamente. Em geral, eram feitas médias em 15 varreduras para o sinal de correlação cruzada e em 10 varreduras para os sinais de fluorescência.

4.2 – Resultados experimentais: transição 5S-7S do Rb

Como mencionado na seção anterior, foram feitos experimentos de correlação cruzada e fluorescência sempre aos pares para diversas posições horizontais x da placa de fase. Alguns destes pares estão mostrados nos gráficos da Fig. 4.3.

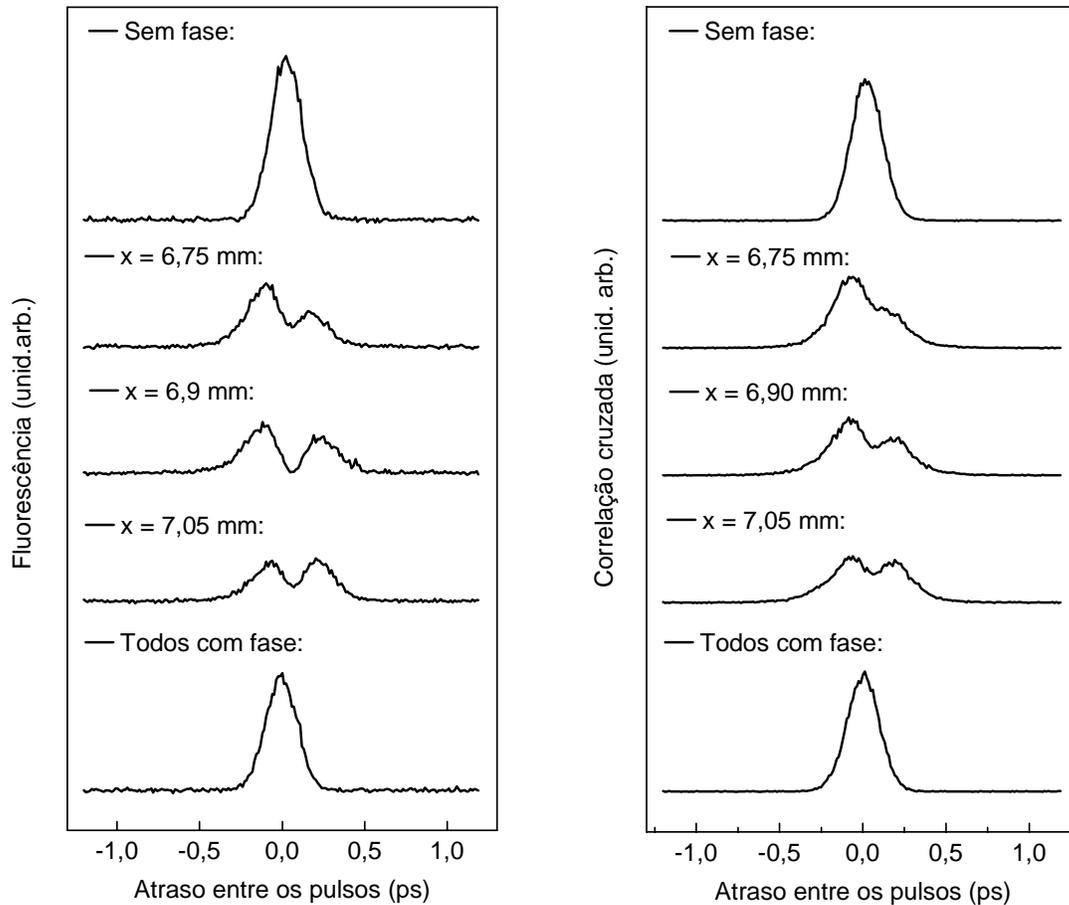


Figura 4.3: Gráficos experimentais de fluorescência (esquerda) e correlação cruzada (direita) em função do atraso relativo entre os pulsos. Cada par de correlação cruzada e fluorescência corresponde a uma posição da placa de fase ao longo do espectro e, portanto, a um comprimento de onda λ_d .

Os gráficos da esquerda e da direita representam, respectivamente, os sinais de fluorescência e correlação cruzada correspondentes a diversos valores da frequência ω_d que caracterizam a posição do degrau da função de fase. Pode-se ver nos gráficos acima que a

posição deste degrau ao longo do espectro do pulso 2 afeta não só a forma temporal deste pulso, como pode ser visto pela correlação cruzada, como também afeta a transição atômica 5S – 7S que o mesmo excita juntamente com o pulso 1, aparente na fluorescência. Examinando o gráfico de fluorescência correspondente a $x = 6,9$ mm, percebe-se que foi possível até mesmo eliminar a excitação da transição para determinado valor de τ . Estes resultados mostram que foi feito o controle coerente parcial desta transição através da manipulação da fase óptica de um dos pulsos incidentes sobre o sistema nesta transição atômica e a análise teórica destes resultados será feita na próxima seção.

4.3 – Análise teórica de uma transição de dois fótons sem ressonância intermediária

A transição 5S-7S dos átomos de Rb é abordada neste trabalho como uma transição de dois fótons que não apresenta ressonância com níveis intermediários. No capítulo 2, as expressões para a amplitude de probabilidade de transição para o estado mais excitado de um sistema de três níveis com e sem ressonância com o nível intermediário foram deduzidas utilizando-se teoria de perturbação dependente do tempo. Nesta seção, vai-se utilizar o resultado obtido para o caso sem ressonância intermediária (Eq. 2.30) como ponto de partida para deduzir a população do nível 7S do Rb com o intuito de descrever os resultados experimentais da seção anterior e explicar o controle coerente do sistema. No entanto, para que se compreenda melhor o efeito da fase no pulso 2, primeiramente será discutida a medida de correlação cruzada.

4.3.1 – Cálculo analítico da correlação cruzada

Conforme explicado na seção 4.2, a correlação cruzada é utilizada para sondar as deformações temporais do pulso manipulado utilizando o outro pulso como sonda, através do sinal de segundo harmônico gerado pela presença conjunta dos dois pulsos no cristal gerador de 2º harmônico. O resultado da medida é uma convolução das intensidades dos dois pulsos em função do atraso entre os mesmos. Se o pulso sonda tivesse largura temporal bem menor do que

a do pulso sondado, este experimento forneceria a forma exata do perfil temporal da intensidade do pulso que se quer sondar.

O sinal do segundo harmônico é produzido devido à não-linearidade de 2ª ordem $\chi^{(2)}$ do cristal gerador de 2º harmônico. Os fótons incidentes neste cristal produzem novos fótons que possuem o dobro da frequência (2º harmônico). Por ser esta uma não-linearidade de 2ª ordem, a intensidade deste sinal gerado é proporcional ao quadrado da intensidade do campo incidente. Uma vez que se está interessado no sinal gerado pelos dois pulsos simultaneamente, este sinal é proporcional a $I_1(t, \tau)I_2(t) = |E_1(t, \tau)|^2 |E_2(t)|^2$. Sendo o fotodiodo um detector lento comparado à duração do pulso e fazendo uma média em várias varreduras para eliminar os termos interferométricos pode-se então descrever o sinal de correlação cruzada por

$$C_c(\tau) \propto \int_{-\infty}^{\infty} |E_1(t, \tau)|^2 |E_2(t)|^2 dt . \quad (4.1)$$

onde cada um dos campos elétricos dos pulsos foi calculado fazendo-se a transformada de Fourier inversa do campo no domínio espectral utilizando-se a equação 3.10.

A equação acima será utilizada mais adiante para ajustar teoricamente os dados experimentais de correlação cruzada apresentados na seção 4.2.

4.3.2 – Cálculo analítico da absorção de dois fótons na transição 5S-7S do Rb

Para explicar as medidas de fluorescência, vai-se agora recorrer ao início desta tese, mais precisamente ao modelo de transição de dois fótons sem ressonância intermediária apresentado na seção 2.2. Neste modelo, os níveis fundamental, intermediário e final foram denominados 1, 2 e 3, respectivamente. Na analogia com a transição 5S-7S do Rb, o nível 1 corresponde ao nível 5S, o nível 2 corresponde ao nível 5P (o qual não é ressonante com o campo elétrico dos pulsos incidentes) e o nível 3 corresponde ao nível 7S. Sabe-se ainda deste modelo que a amplitude de probabilidade do sistema encontrar-se no nível 3 quando perturbado pelo campo elétrico $\tilde{E}(\omega)$ de um pulso incidente sem ressonância com o nível 2 é (Eq. 2.30):

$$c_3^{\text{NR}}(t \rightarrow \infty) \approx \frac{i\mu_{21}\mu_{32}}{2\pi\hbar^2 \left(\omega_{21} - \frac{\omega_a}{2}\right)} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(\omega)\tilde{E}(\omega_a - \omega)d\omega . \quad (4.2)$$

Diferentemente do capítulo 2, onde foi considerado que apenas um pulso incidia sobre o sistema, este campo elétrico $\tilde{E}(\omega)$ é agora a soma dos campos elétricos dos pulsos 1 e 2 que excitam o sistema. No domínio espectral pode-se então escrever este campo elétrico total como

$$\tilde{E}(\omega, \tau) = \tilde{E}_1(\omega, \tau) + \tilde{E}_2(\omega) , \quad \text{onde} \quad (4.3)$$

$$\tilde{E}_1(\omega, \tau) = \tilde{\varepsilon}(\omega)e^{i\omega\tau} \quad e \quad (4.4)$$

$$\tilde{E}_2(\omega) = \tilde{\varepsilon}(\omega)e^{i\varphi(\omega)} . \quad (4.5)$$

$\tilde{E}_1(\omega)$ e $\tilde{E}_2(\omega)$ são os campos elétricos dos pulsos 1 e 2, respectivamente. Está-se supondo que a amplitude $\tilde{\varepsilon}(\omega)$ do campo elétrico é a mesma para ambos os pulsos. Observe na expressão do campo $\tilde{E}_1(\omega)$ que o atraso temporal τ entra na exponencial com sinal positivo, contrariamente à contribuição de t na expressão 2.5, indicando que um valor positivo de τ ocasiona atraso ao pulso 1 e um valor negativo de τ ocasiona adiantamento do pulso 1 com relação ao pulso 2. Assim como feito no capítulo 3, a envoltória destes campos assume a forma de uma gaussiana e a fase $\varphi(\omega)$ na última equação assume a forma de uma função erro, lembradas nas equações abaixo:

$$\tilde{\varepsilon}(\omega) = \tilde{\varepsilon}_0 e^{-2\ln(2) \left(\frac{\omega - \omega_c}{\Delta\omega_p}\right)^2} , \quad (4.6)$$

$$\varphi(\omega) = \text{FE} \left(\frac{\omega - \omega_d}{\sigma} \right) \frac{(n-1)\omega d}{2c} . \quad (4.7)$$

Vale lembrar mais uma vez que o parâmetro ω_d na função de fase determina quais componentes de frequência do pulso serão afetadas pela fase e representa, portanto, um importante parâmetro dos cálculos, o qual é associado experimentalmente à posição x da placa

de fase. Na expressão de $\varphi(\omega)$, n é o índice de refração do filme fino, d é a espessura deste filme e c é a velocidade da luz no vácuo.

Ao substituir os campos elétricos na expressão de c_3^{NR} , pode-se perceber que surgem quatro termos diferentes devido ao produto $\tilde{E}(\omega)\tilde{E}(\omega_a - \omega)$. Cada um destes termos representa um caminho quântico possível a ser seguido pelo sistema, ou seja, cada par $\tilde{E}_i(\omega)\tilde{E}_j(\omega)$ representa um par de possíveis fótons a excitar este sistema, como ilustra a figura 4.4. Os sub-índices i e j denominam o pulso do qual cada fóton foi absorvido, seguindo sempre a notação adotada ao longo desta tese de que o pulso 1 possui o atraso temporal e o pulso 2 possui a fase extra. Se houvesse apenas um pulso excitando o sistema, como no exemplo descrito no capítulo 2, existiria apenas um destes caminhos quânticos.

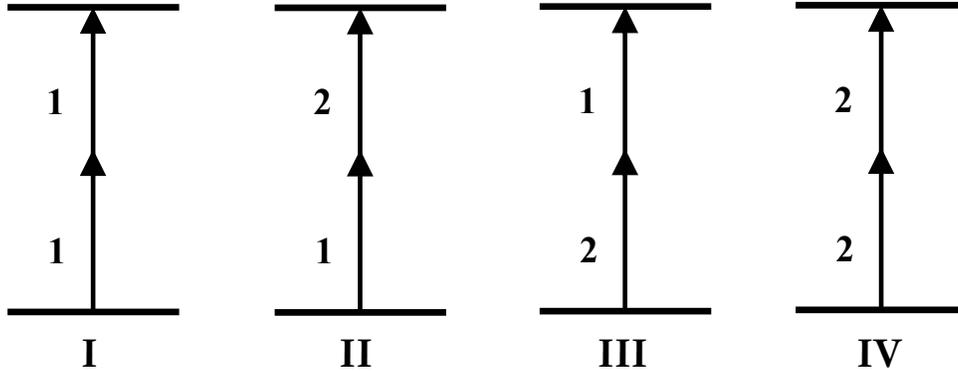


Figura 4.4: Os quatro possíveis caminhos quânticos para se chegar do nível fundamental ao nível mais excitado. Cada seta representa um fóton e o número ao lado de cada uma delas representa de qual pulso este fóton foi absorvido.

Para simplificar a compreensão do resultado final, c_3^{NR} será escrito em termos de funções que representam cada um destes quatro termos referentes às quatro possíveis combinações de fótons. Desta maneira, substituindo os campos elétricos na Eq. 4.2 pode-se escrever

$$c_3^{\text{NR}}(\tau) \approx e^{i\omega_a\tau}F_{11} + e^{i\omega_{21}\tau}F_{12}(\tau) + e^{i\omega_{32}\tau}F_{21}(\tau) + F_{22}, \quad (4.8)$$

onde as funções F_{11} , $F_{12}(\tau)$, $F_{21}(\tau)$ e F_{22} se referem, respectivamente, aos caminhos quânticos I, II, III e IV e estão definidas como

$$F_{11} = -\frac{1}{i2\pi\hbar^2} \frac{\mu_{21}\mu_{32}}{\omega_{21} - \frac{\omega_a}{2}} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\varepsilon}(\omega) \tilde{\varepsilon}(\omega_a - \omega) d\omega , \quad (4.9)$$

$$F_{12}(\tau) = -\frac{1}{i2\pi\hbar^2} \frac{\mu_{21}\mu_{32}}{\omega_{21} - \frac{\omega_a}{2}} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\varepsilon}(\omega) \tilde{\varepsilon}(\omega_a - \omega) e^{i(\omega - \omega_{21})\tau} e^{i\varphi(\omega_a - \omega)} d\omega , \quad (4.10)$$

$$F_{21}(\tau) = -\frac{1}{i2\pi\hbar^2} \frac{\mu_{21}\mu_{32}}{\omega_{21} - \frac{\omega_a}{2}} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\varepsilon}(\omega) \tilde{\varepsilon}(\omega_a - \omega) e^{-i(\omega - \omega_{21})\tau} e^{i\varphi(\omega)} d\omega \quad e \quad (4.11)$$

$$F_{22} = -\frac{1}{i2\pi\hbar^2} \frac{\mu_{21}\mu_{32}}{\omega_{21} - \frac{\omega_a}{2}} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\varepsilon}(\omega) \tilde{\varepsilon}(\omega_a - \omega) d\omega . \quad (4.12)$$

As funções F_{11} e F_{22} correspondem a caminhos quânticos referentes à absorção de dois fótons do pulso 1 e de dois fótons do pulso 2, respectivamente, e não dependem, portanto, da variável τ .

As funções $F_{12}(\tau)$ e $F_{21}(\tau)$, por sua vez, dependem deste atraso temporal e tendem a zero para valores de τ distantes da origem. Isto se deve ao fato de esta transição não apresentar ressonância intermediária e, conseqüentemente, requerer que os dois fótons que a compõem cheguem juntos ao sistema. Estas duas funções podem ser manipuladas matematicamente de tal forma que o quadrado de seus módulos sejam idênticos. Admita como exemplo a função $F_{12}(\tau)$. A partir da Eq. 4.10 pode-se fazer uma mudança de variável em seu integrando, substituindo a variável ω por $\omega_a - \omega'$. Com esta mudança de variável, a função $F_{12}(\tau)$ pode ser reescrita como:

$$F_{12}(\tau) = e^{i\omega_{32}\tau} \left[-\frac{1}{i2\pi\hbar^2} \frac{\mu_{21}\mu_{32}}{\omega_{21} - \frac{\omega_a}{2}} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\varepsilon}(\omega_a - \omega') \tilde{\varepsilon}(\omega') e^{-i\omega'\tau} e^{i\varphi(\omega')} d\omega' \right] . \quad (4.13)$$

Por outro lado, excluindo o fator $e^{i\omega_{21}\tau}$ da integral da Eq. 4.11 pode-se reescrever a função $F_{21}(\tau)$ da seguinte maneira:

$$F_{21}(\tau) = e^{i\omega_{21}\tau} \left[-\frac{1}{i2\pi\hbar^2} \frac{\mu_{21}\mu_{32}}{\omega_{21} - \frac{\omega_a}{2}} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\varepsilon}(\omega) \tilde{\varepsilon}(\omega_a - \omega) e^{-i\omega\tau} e^{i\varphi(\omega)} d\omega \right]. \quad (4.14)$$

Observando as equações 4.13 e 4.14, pode-se perceber que é possível escrever $F_{21}(\tau)$ em função de $F_{12}(\tau)$ pois estas diferem apenas de um fator exponencial complexo. Sendo assim, o quadrado do módulo destas duas funções é idêntico, como pode ser visualizado na Fig. 4.5 para a situação em que a fase introduzida é nula.

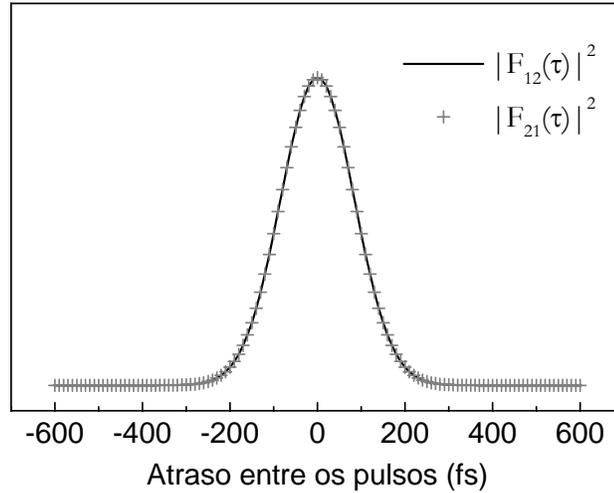


Figura 4.5: Módulo quadrado das funções $F_{12}(\tau)$ e $F_{21}(\tau)$ para a situação em que não há manipulação de fase dos campos elétricos.

Lembrando que a população de um determinado nível do sistema é dada pelo quadrado do módulo da amplitude de probabilidade de o sistema se encontrar neste nível, tem-se:

$$\rho_{33}(\tau) = \left| c_3^{\text{NR}}(\tau) \right|^2 = \left| e^{i\omega_a\tau} F_{11} + e^{i\omega_{21}\tau} F_{12}(\tau) + e^{i\omega_{32}\tau} F_{21}(\tau) + F_{22} \right|^2. \quad (4.15)$$

Utilizando as equações 4.13 e 4.14 para escrever $F_{21}(\tau)$ em função de $F_{12}(\tau)$, pode-se eliminar a dependência de $\rho_{33}(\tau)$ com uma destas funções. Assim:

$$\rho_{33}(\tau) = \left| e^{i\omega_a \tau} F_{11} + 2e^{i\omega_{21} \tau} F_{12}(\tau) + F_{22} \right|^2 . \quad (4.16)$$

Desenvolvendo o quadrado do módulo chega-se a 9 termos:

$$\begin{aligned} \rho_{33}(\tau) = & |F_{11}|^2 + 4|F_{12}(\tau)|^2 + |F_{22}|^2 + \\ & 2F_{11}F_{12}^*(\tau)e^{i\omega_{32}\tau} + F_{11}F_{22}^*e^{i\omega_a\tau} + 2F_{12}(\tau)F_{11}^*e^{-i\omega_{32}\tau} + \\ & 2F_{12}(\tau)F_{22}^*e^{i\omega_{21}\tau} + F_{22}F_{11}^*e^{-i\omega_a\tau} + 2F_{22}F_{12}^*(\tau)e^{-i\omega_{21}\tau} . \end{aligned} \quad (4.17)$$

Precisa-se agora fazer uma média da equação acima em um período óptico T , uma vez que os termos interferométricos foram excluídos na detecção experimental. Isto significa que é preciso resolver a seguinte integral:

$$\langle \rho_{33}(\tau) \rangle_{\text{óptico}} = \frac{1}{T} \int_0^T \rho_{33}(t + \tau) dt . \quad (4.18)$$

Cada uma das funções F_{ij} foi definida de forma a variar lentamente com o atraso temporal entre os pulsos de tal maneira que, dentro de um período óptico, esta variação pode ser considerada nula. Tirando estas funções da integral acima, sobram apenas integrais simples de constantes e funções seno e co-seno. Os termos da Eq. 4.17 que são proporcionais a exponenciais de frequências ópticas (ω_{21} , ω_{32} e ω_a) se anularão quando a média em um período óptico for calculada. Conseqüentemente, após esta média sobram apenas os quadrados dos módulos das funções F_{ij} . Os termos $|F_{11}|^2$ e $|F_{22}|^2$, por sua vez, não são observados experimentalmente porque o aparato experimental foi montado de tal maneira que somente termos envolvendo simultaneamente os pulsos 1 e 2 fossem detectados.

Assim, a população do nível 3 pode ser calculada como

$$\rho_{33}(\tau)_{\text{observada}} = 4|F_{12}(\tau)|^2 . \quad (4.19)$$

Desta forma, a dependência da população do nível 3 com a variável τ pode ser analisada observando-se apenas o comportamento da função $F_{12}(\tau)$, o que simplifica bastante a compreensão da física do problema.

4.4 – Ajuste teórico dos resultados experimentais de fluorescência e correlação cruzada da transição 5S-7S

As expressões das equações 4.1 e 4.19 foram utilizadas para ajustar curvas teóricas aos dados experimentais de fluorescência e correlação cruzada obtidos da transição 5S-7S do Rb. Para tanto, alguns parâmetros experimentais foram usados como parâmetros de ajuste. Dentre eles está a espessura d do filme fino, a qual determina a amplitude da função de fase, e a frequência ω_d , que determina onde o degrau desta função intercepta o espectro do pulso. Para estes ajustes, o índice de refração do material foi aproximado como sendo igual ao do vidro.

Uma vez escolhido, o mesmo parâmetro d era utilizado para toda uma série de experimentos de correlação cruzada e de fluorescência no qual se variava apenas a posição x da placa de fase, o que equivale a variar ω_d na teoria. A escolha deste parâmetro foi feita de tal maneira que as funções que representassem a correlação cruzada e a fluorescência fossem semelhantes aos gráficos experimentais.

Alguns dos gráficos experimentais de fluorescência e correlação cruzada apresentados na seção anterior podem ser vistos nas figuras 4.6, 4.7 e 4.8 em conjunto com as respectivas curvas teóricas.

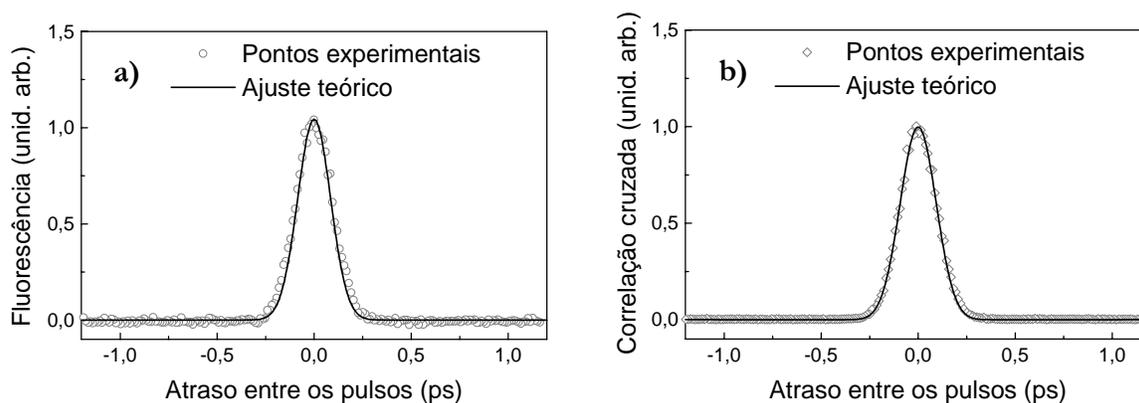


Figura 4.6: Gráficos unindo experimento (pontos) e teoria (linha) para fluorescência (a) e correlação cruzada (b) em função do atraso relativo entre os pulsos. Para este par, o valor teórico de ω_d era abaixo do menor valor contido no espectro do pulso, significando que nenhuma das componentes espectrais recebeu fase extra.

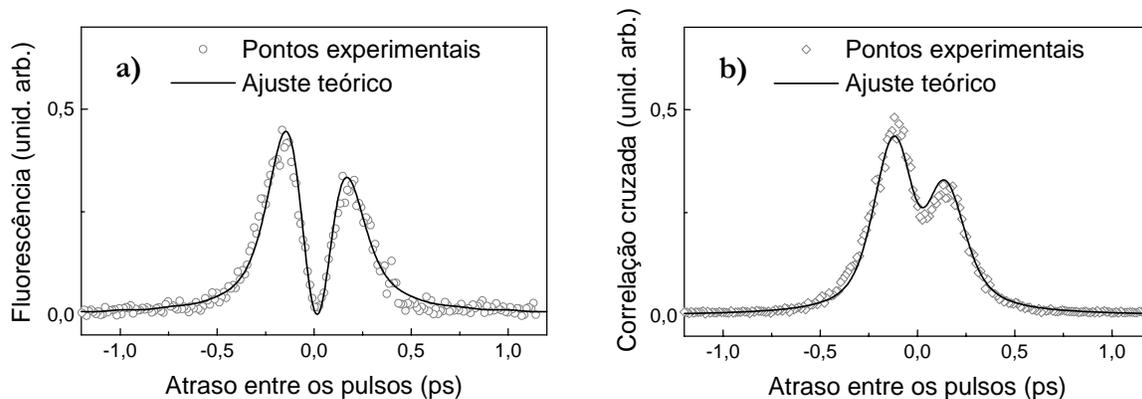


Figura 4.7: Gráficos unindo experimento (pontos) e teoria (linha) para fluorescência (a) e correlação cruzada (b) em função do atraso relativo entre os pulsos. Para este par, o valor teórico de ω_d correspondeu a metade da frequência necessária para ocorrer a transição, ou seja, $\omega_d = \omega_a / 2$, o que equivale a $\lambda_d = 760$ nm.

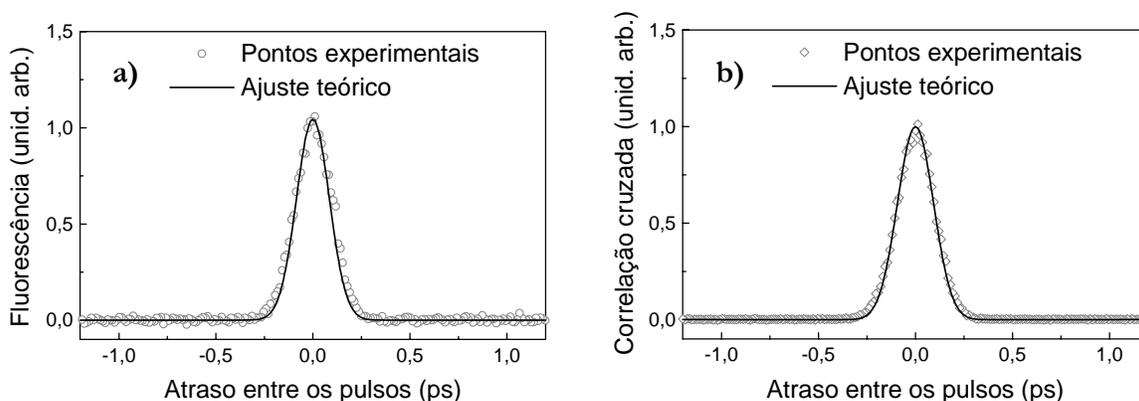


Figura 4.8: Gráficos unindo experimento (pontos) e teoria (linha) para fluorescência (a) e correlação cruzada (b) em função do atraso relativo entre os pulsos. Para este par, o valor teórico de ω_d era acima do maior valor contido no espectro do pulso, significando que todas as componentes espectrais receberam fase extra.

Para a série de gráficos acima, a espessura do filme fino que melhor ajustou os dados experimentais foi $d = 2,23 \mu\text{m}$, a qual corresponde a um degrau de fase de aproximadamente $2,93\pi$. Esta espessura não foi formalmente medida por outro método mas crê-se que ela seja realmente da ordem de poucos microns pois o deslocamento temporal das curvas experimentais obtidas quando todo o espectro não passa pelo filme e quando todo o espectro passa pelo filme indicam isso.

Cada par de gráficos de fluorescência e correlação cruzada está associado a um valor de ω_d , ou seja, está associado a uma posição x da lâmina ao longo do espectro. Para simplificar o ajuste teórico, aproximou-se a função de fase por uma função degrau, fazendo o parâmetro σ tender a zero e substituindo a dependência linear em ω por ω_L .

A Fig. 4.6 está relacionada a um valor de ω_d abaixo do menor valor contido no espectro do pulso, significando que nenhuma das componentes espectrais recebeu fase extra (x é tal que nenhuma parte do pulso passa pelo filme fino).

Na Fig. 4.8 o inverso acontece, ou seja, o valor de ω_d é maior do que o maior valor contido no espectro de tal maneira que todas as componentes espectrais do pulso contêm fase extra (x é tal que todo o pulso passa pelo filme fino).

Estas duas figuras apresentam gráficos semelhantes, indicando que o que realmente interessa é a diferença de fase entre as componentes de frequência e não a fase absoluta de cada uma destas frequências.

Os gráficos da Fig. 4.7, por sua vez, apresentam os resultados mais interessantes. Este par de gráficos está associado ao valor de ω_d igual à frequência central do laser, que no caso experimental também corresponde à metade da frequência correspondente à transição. Pode-se chegar a esta conclusão analisando a função $F_{12}(\tau)$ em detalhes. Esta função se assemelha muito à função da Eq. 2.30, diferindo apenas na distinção entre os campos elétricos. No capítulo 2, os campos elétricos eram provenientes de um único pulso, sendo, portanto, iguais. Os campos elétricos da função $F_{12}(\tau)$, por outro lado, são diferentes, havendo uma fase extra em apenas um deles e havendo também um atraso temporal inexistente no caso anterior.

Imagine, por exemplo, que a função de fase tem a forma de uma função degrau cuja amplitude vale π . Assim como discutido no capítulo 2, para que a população apresente um mínimo, basta que metade da soma do produto $\tilde{E}(\omega)\tilde{E}(\omega_a - \omega)$ (que no caso descrito aqui é igual a $\tilde{E}_1(\omega)\tilde{E}_2(\omega_a - \omega)$) tenha uma diferença de fase de π com relação à outra metade desta soma. No caso apresentado no capítulo 2, isto ocorria quando aproximadamente um terço das componentes de frequência apresentavam a fase extra e os outros dois terços não a possuíam.

Aqui, a situação é diferente pois agora tem-se dois pulsos, onde apenas um deles possui a fase extra. Assim, para que haja um mínimo na absorção de dois fótons é preciso que metade do espectro do pulso manipulado seja interceptado pela função de fase, como ilustra abaixo a Fig. 4.9.

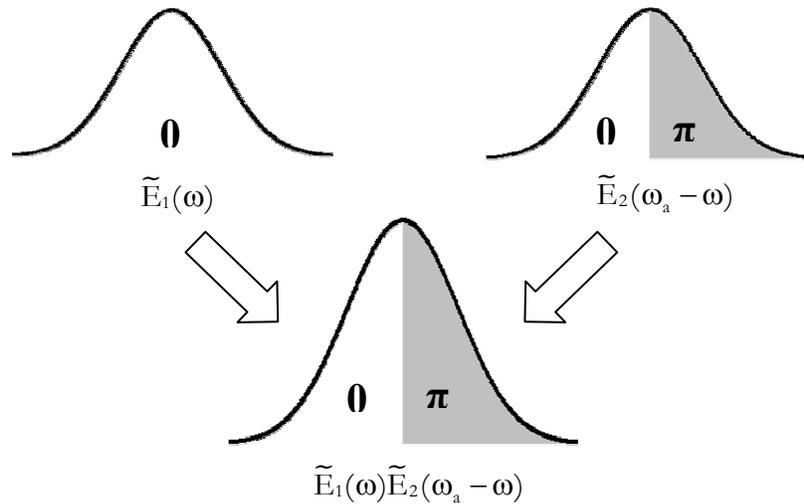


Figura 4.9: Representação esquemática dos campos elétricos que excitam a transição do nível fundamental para o nível mais excitado na situação de máxima interferência destrutiva. Nesta situação, metade das componentes espectrais do pulso 2 tem uma diferença de fase de π com respeito à outra metade do pulso, propiciando à metade da soma do produto dos campos uma diferença de fase de π em relação ao resto desta soma.

Na situação descrita pela Fig. 4.9, há um mínimo na população do nível mais excitado. Este mínimo, porém, depende do valor de τ pois este também se manifesta no campo elétrico na forma de uma fase. Na situação apresentada na Fig. 4.9, o valor de τ que apresenta este mínimo é $\tau = 0$ pois é uma diferença de fase de π entre as componentes de frequência que caracteriza a situação de máxima interferência destrutiva. O deslocamento do mínimo de absorção em função da amplitude do degrau pode ser visualizado na Fig. 4.10, onde a absorção de dois fótons para diferentes amplitudes da função de fase é apresentada.

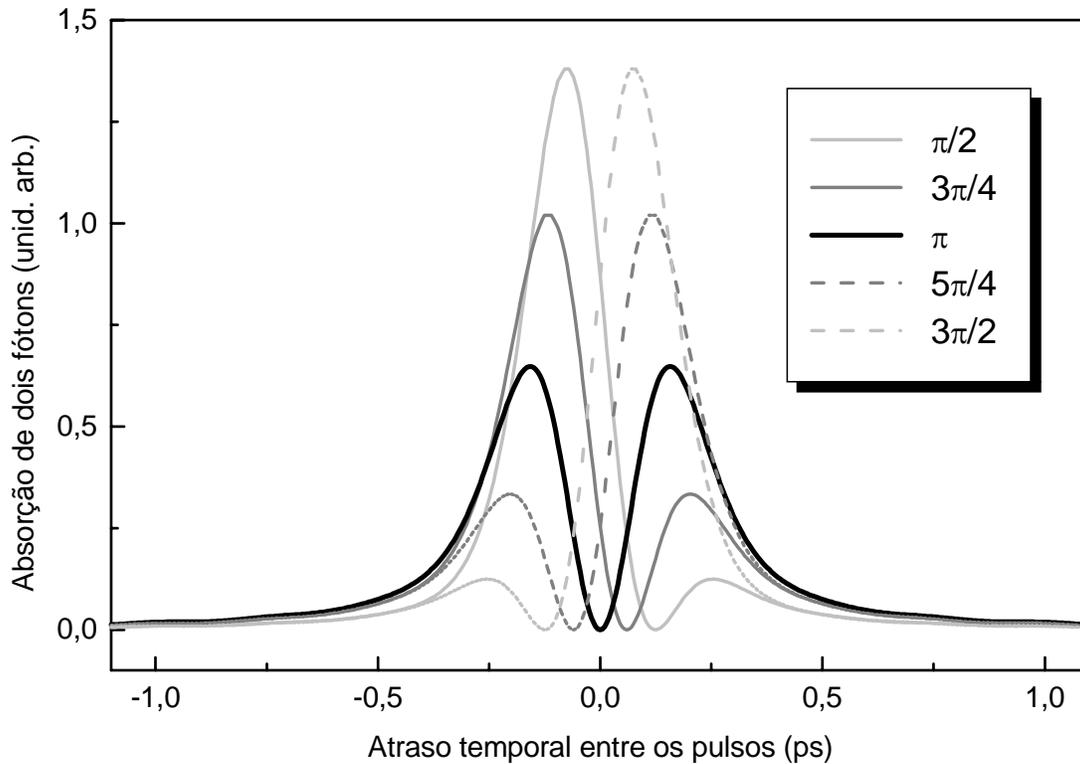


Figura 4.10: Gráfico da absorção de dois fótons quando $\lambda_d = \lambda_L$ para cinco diferentes valores da amplitude do degrau de fase. Quando esta amplitude vale π , o mínimo da absorção de dois fótons está localizado em $\tau = 0$.

Assim como mostra a figura 4.10, quando o degrau da função de fase tem amplitude diferente de π , há um deslocamento do zero da absorção de dois fótons. Isto ocorre porque agora é necessário, para que a interferência destrutiva seja máxima, que a fase extra introduzida seja complementada pela fase correspondente ao atraso temporal para que, juntas, somem π e anulem a transição para o nível mais excitado. Este foi o motivo utilizado para justificar o pequeno deslocamento para a direita do mínimo da fluorescência no gráfico apresentado na Fig. 4.7, tendo a fase amplitude igual a $2,93\pi$. Este valor de fase fornece para o parâmetro d o valor de $2,23 \mu\text{m}$, o qual acredita-se ser bastante próximo do valor real da espessura do filme fino, uma vez que a separação temporal entre curvas de correlação cruzada com o pulso passando ou não pelo filme fino nos fornece valores semelhantes.

Como mencionado anteriormente, nos ajustes teóricos apresentados aproximou-se a função de fase por uma função degrau fazendo-se σ tender a zero. Isto foi adotado para simplificar os ajustes e diminuir o número de variáveis do sistema. Em uma análise posterior mais detalhada, esta variável deve ser considerada, uma vez que ela também modifica a posição

do mínimo da transição ao longo do eixo temporal pois altera de uma maneira mais complexa a fase do produto $\tilde{E}_1(\omega)\tilde{E}_2(\omega_a - \omega)$.

Outro aspecto importante no ajuste dos gráficos experimentais é o valor de λ_d . Para valores deste parâmetro diferentes do comprimento de onda central do pulso, a interferência destrutiva nunca será máxima, uma vez que se considerou que o pulso é simétrico em relação ao eixo de frequências. Assim, para diferentes valores de λ_d a cavada na absorção de dois fótons diminui à medida em que este parâmetro se distancia de λ_L , até que nenhum ou todos os comprimentos de onda do pulso sofram a ação da manipulação da fase (casos correspondentes às figuras 4.6 e 4.8, respectivamente).

Ao fazer o ajuste da teoria ao experimento não se utilizou a relação entre a posição horizontal relativa da lâmina e a respectiva variação em comprimentos de onda ao longo do espectro obtida no experimento de calibração descrito no capítulo 3. Cada par de gráficos experimentais foi ajustado empiricamente com um valor de ω_d que melhor ajustava a curva teórica correspondente. Desta maneira, durante o ajuste teórico, cada valor de ω_d estava associado ao valor de x correspondente ao experimento do qual provieram os dados ajustados. A relação entre o valor de x experimental e o valor de λ_d correspondente ao ω_d do ajuste teórico é apresentada no gráfico da figura 4.11.

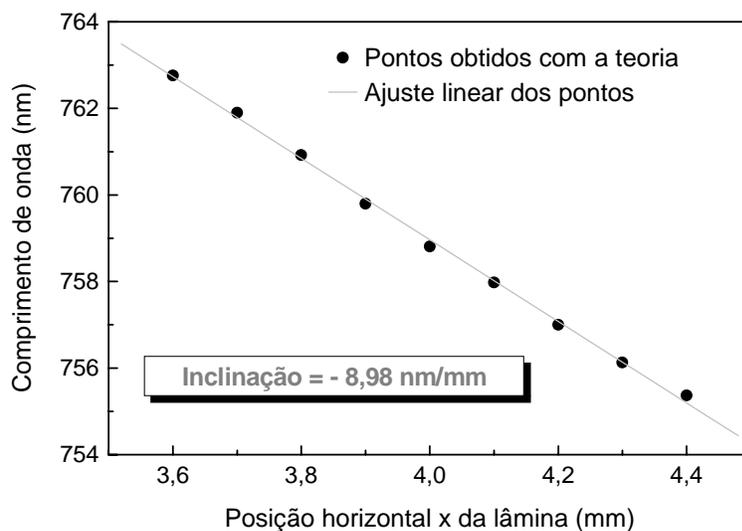


Figura 4.11: Gráfico dos comprimentos de onda correspondentes aos valores de ω_d utilizados na teoria para ajustar as curvas teóricas aos dados experimentais em função do valor experimental de x .

Examinando os valores da inclinação das curvas apresentados nas figuras 3.7 e 4.11 percebe-se que há apenas uma diferença de um pouco mais de 4% na relação entre λ_d e x de um caso para o outro. O fato de esta diferença ser pequena reforça a idéia de que a aproximação da função de fase por uma função degrau é boa neste caso.

Ao longo deste capítulo, mostraram-se resultados experimentais que comprovam o controle coerente temporal parcial da transição 5S-7S dos átomos de Rubídio utilizando-se um filme fino para manipular a fase dos campos elétricos de um de dois pulsos incidentes sobre o sistema. Para compreender como este controle coerente funciona, foram feitos cálculos analíticos que descreveram estes resultados experimentais. Através destes, uma análise teórica foi realizada, explicando o papel do atraso temporal e da amplitude da função de fase na absorção de dois fótons desta transição.

Capítulo 5

Controle Temporal Coerente da Transição 5S-5P-5D

Ao se propagarem por um meio atômico, ondas eletromagnéticas podem interagir com ele de diversas formas. Efeitos como transparência auto-induzida e compressão temporal de pulsos ultracurtos são exemplos de interação não-linear entre radiação e sistemas atômicos. Por outro lado, no regime linear, quando se trata da propagação de pulsos ultracurtos em meios ressonantes de altas densidades atômicas, importantes efeitos de propagação se manifestam na forma de absorção e dispersão, cujas presenças modificam o espectro e distorcem o perfil temporal do pulso propagado.

Neste capítulo, será abordado o controle temporal coerente parcial da transição 5S-5P-5D dos átomos de Rubídio, onde será estudada a interação entre os efeitos de propagação e os efeitos de manipulação de fase do campo elétrico. Estes efeitos de propagação já foram abordados teórica [41] e experimentalmente [42] em controle coerente de sistemas atômicos em uma situação bem diferente da abordada nesta tese. A transição 5S-5P-5D, esquematizada na figura 5.1, apresenta uma ressonância com o nível intermediário $5P_{3/2}$, a qual permite que efeitos de propagação linear se manifestem. Estes efeitos serão abordados teórica e experimentalmente nas seções 5.1 e 5.2 deste capítulo.

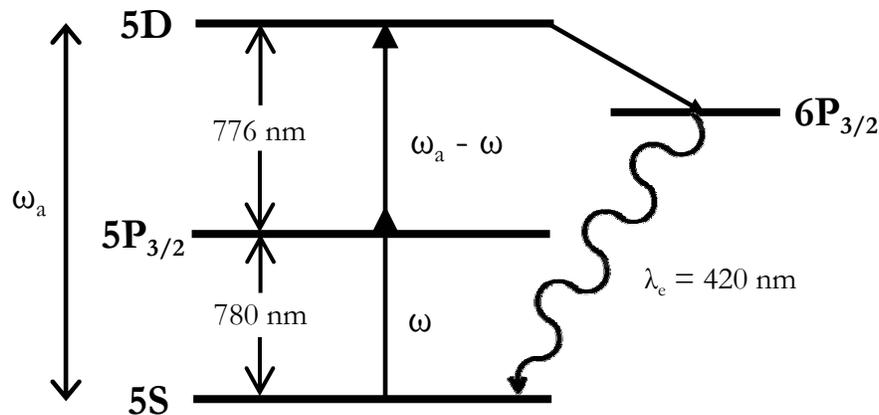


Figura 5.1: Esquema da transição 5S-5P-5D dos átomos de Rubídio.

O controle coerente desta transição será realizado da mesma maneira descrita anteriormente, ou seja, manipulando-se a fase de um dos dois pulsos que excitam o sistema. O tratamento teórico deste problema é semelhante ao realizado no capítulo 4, porém as expressões são um pouco diferentes devido à presença da ressonância, devendo o campo elétrico dos pulsos também ser alterado para incluir os efeitos de propagação.

A montagem experimental utilizada para explorar esta transição é a mesma descrita no capítulo 4. O que permite explorar uma ou outra transição é a sintonia do laser em torno de um ou outro comprimento de onda característico de forma que, mudando-se as características iniciais do laser, enfoca-se uma ou outra transição. Para a transição 5S-5P-5D explorada neste capítulo as principais características do laser são apresentadas na tabela 5.1 a seguir:

Propriedades do laser na transição 5S-5P-5D	
Comprimento de onda central	778 nm
Largura de banda	8 nm
Largura temporal	111 fs
Potência média	770 mW
Taxa de repetição dos pulsos	82 MHz

Tabela 5.1: Propriedades do laser ao se explorar a transição 5S-5P-5D dos átomos de Rubídio.

O comprimento de onda central do laser foi sintonizado para ser igual ao dobro do comprimento de onda para realizar a transição, o que equivale a ter uma frequência central ω_L correspondente à metade da frequência da transição atômica: $\omega_L = \frac{\omega_a}{2}$. Vale lembrar que $\omega_a = \omega_{21} + \omega_{32}$, onde ω_{21} corresponde à frequência de transição entre os níveis 5S e $5P_{3/2}$ (equivalente a $\lambda_{21} = 780\text{nm}$) e ω_{32} corresponde à frequência de transição entre os níveis $5P_{3/2}$ e 5D (equivalente a $\lambda_{32} = 776\text{nm}$). A separação entre o comprimento de onda correspondente à primeira transição e o comprimento de onda central do laser é, nesta situação, de 2 nm, o que o torna ressonante com o nível intermediário $5P_{3/2}$ ao se considerar uma largura de banda de 8 nm, de acordo com a discussão feita no capítulo 2 sobre ressonância.

Além dos efeitos de propagação descritos acima, a presença da ressonância com o nível intermediário $5P_{3/2}$ é também responsável por outro efeito perceptível na absorção de dois fótons: a acumulação de população. Felinto *et al.* [34-36] já explicaram que estes efeitos de acumulação de população são responsáveis por um batimento presente nas curvas de absorção de dois fótons. Apesar de não serem considerados nos cálculos deste capítulo, uma breve explicação dos mesmos será feita a seguir, tendo em vista que estes efeitos estão presentes nos resultados experimentais.

O sistema atômico é excitado por pares de pulsos ultracurtos que incidem em intervalos de cerca de 13 ns. Entre pares de pulsos subsequentes, os átomos não têm tempo suficiente para voltar ao estado fundamental pois o tempo de decaimento dos níveis mais excitados (cerca de 240 ns para o nível 5D e 27 ns para o nível $5P_{3/2}$) é superior ao tempo de chegada de outro par de pulsos. Desta forma, nem toda a população que foi promovida para os estados mais excitados encontra-se no estado fundamental quando um novo par de pulsos chega ao sistema, de maneira que não se pode mais considerar o estado inicial do sistema como sendo completamente composto de átomos no nível fundamental, como suposto nos capítulos 2 e 4, ou seja:

$$|\Psi(t=0)\rangle_I = c_1(t=0)|1\rangle + c_2(t=0)|2\rangle + c_3(t=0)|3\rangle \neq |1\rangle. \quad (5.1)$$

Quando novos pulsos chegam ao sistema e encontram parte da população no nível mais excitado, eles, além de propiciarem que mais átomos cheguem a este nível, também provocam emissão estimulada deste nível para o nível intermediário. Esta emissão estimulada se manifesta no sinal de absorção de dois fótons através de uma oscilação na frequência $\omega_{32} - \omega_{21}$, referente ao batimento entre as frequências ω_{21} do fóton absorvido pela primeira transição (5S-5P) e ω_{32} do fóton emitido pelo sistema quando este decai via emissão estimulada do nível 5D para o nível $5P_{3/2}$. Devido à complexa implementação desta acumulação de população nos cálculos teóricos, este efeito não será considerado neste capítulo, limitando a concordância entre teoria e experimento.

Porém, oscilações na frequência $\omega_{32} - \omega_{21}$ podem aparecer na absorção de dois fótons devido a outros fatores. Neste capítulo será mostrado que estas oscilações também podem surgir devido a interferências quânticas geradas por deformações temporais no perfil dos pulsos ocasionadas pela manipulação da fase do campo elétrico dos mesmos. Esta manipulação de fase é feita nesta transição exatamente da mesma maneira descrita no capítulo 4. Resultados experimentais e teóricos referentes à absorção de dois fótons serão apresentados nas seções 5.3 e 5.4 e uma comparação entre os mesmos será feita na seção 5.5.

5.1 – Teoria de propagação linear

Primeiramente, será apresentada a teoria de propagação linear de pulsos ultracurtos de baixa intensidade por meios atômicos densos. A presença desta propagação se manifesta no espectro dos pulsos e também em seus perfis temporais, os quais também serão calculados e apresentados nesta seção. Em seguida, a introdução da fase extra no campo elétrico do pulso será feita, e perfis temporais de um pulso propagado serão calculados em função do parâmetro ω_d desta função de fase para três diferentes densidades atômicas. Desta forma, os efeitos da propagação linear e da manipulação de fase serão avaliados através da modificação introduzida por eles no perfil temporal do pulso propagado.

5.1.1 – Teoria de propagação de pulsos de pequenas áreas em meios ressonantes

A teoria para explicar o fenômeno da propagação em meios ressonantes é conhecida há décadas [37,38]. Esta teoria envolve o teorema quântico da área, o qual diz que a área do pulso é modificada durante a propagação até atingir um valor igual a $2n\pi$, sendo n um número inteiro. O valor de n depende da área inicial de cada pulso e, por consequência, da sua intensidade inicial. Se a intensidade inicial do pulso é baixa (caso dos experimentos neste trabalho), $n = 0$ e a sua área evoluirá para uma área 0π . A área de um pulso pode ser calculada por:

$$\text{Área} = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\mu_{21} E(t, z)}{\hbar} dt, \quad (5.2)$$

onde $E(t, z)$ é o campo elétrico do pulso ao se propagar por uma distância z dentro do meio.

Em 1970, Crisp [37] apresentou uma teoria que descreve a propagação de pulsos de áreas pequenas em meios atômicos densos. Esta teoria será utilizada no presente trabalho para descrever os efeitos de propagação, uma vez que a situação experimental permite que se considere que a intensidade inicial dos pulsos é baixa o suficiente para que, após a propagação do mesmo pelo meio atômico denso, sua área atinja o valor 0π . A teoria de Crisp é semi-clássica pois une campos clássicos com as equações de Bloch para átomos de dois níveis. Uma dedução alternativa e puramente clássica das suas expressões, utilizando um campo clássico e a teoria de Lorentz para a interação radiação-matéria, pode ser encontrada no livro de Allen e Eberly [39].

De acordo com a teoria de Crisp, após propagar-se por um meio ressonante, a envoltória de um pulso de área pequena pode ser descrita por:

$$\varepsilon(t, z) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\varepsilon}(\omega) e^{-i\omega\left(t - \frac{nz}{c}\right) - \alpha B(\omega)z} d\omega, \quad (5.3)$$

onde $\tilde{\varepsilon}(\omega)$ é a envoltória do pulso sem propagação (gaussiana da equação 3.11), n é o índice de refração constante sobre todo o espectro, $B(\omega)$ é a forma da linha de transição e

$\alpha = \frac{2\pi N \mu_{21}^2 \omega_L}{\hbar n c}$ para um átomo de dois níveis, sendo N a densidade atômica do meio. Estes

parâmetros não serão tratados separadamente mas sim em conjunto na forma de $\alpha_0 z$, sendo

$\alpha_0 = \frac{\alpha}{\sqrt{2\pi}\Gamma}$ e sendo $\Gamma/2\pi$ a largura Doppler da transição, a qual vale cerca de 1 GHz.

De acordo com a Eq. 5.3, a área do pulso decai exponencialmente com a distância z percorrida no meio até que atinja valor nulo, sendo este pulso agora conhecido como pulso 0π . O fato da área do pulso decair exponencialmente com z não indica necessariamente que os pulsos perdem sua energia rapidamente. Na verdade, para pulsos curtos comparados com o tempo de relaxação transversal do meio (incluindo alargamento homogêneo), a envoltória do campo elétrico oscila entre valores positivos e negativos de tal maneira que o teorema da área é

satisfeito (a soma das áreas acima do eixo temporal é igual à soma das áreas abaixo dele) sem que os pulsos percam muita energia.

A forma de linha $B(\omega)$ da transição é dada por:

$$B(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\Gamma} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-\frac{\delta^2}{2\Gamma^2}}}{\frac{1}{T_{12}} - i(\delta - \omega)} d\delta, \quad (5.4)$$

sendo T_{12} o tempo de vida homogêneo da coerência, o qual vale 53,4 ns para a transição $5S_{1/2} - 5P_{3/2}$.

Na prática, todos os cálculos teóricos desta tese foram realizados num programa chamado Mathcad, o qual opera em ambiente Windows. Ao substituir a Eq. 5.4 na Eq. 5.3, o tempo de cálculo do campo no programa aumenta bastante pois agora tem-se que realizar integrações duplas. Para diminuir radicalmente este tempo de cálculo, foram feitos testes para substituir a forma de linha da Eq. 5.4 por uma mais simples sem que os resultados de correlação cruzada e fluorescência fossem alterados. A função mais simples que substituiu bem a forma de linha original foi uma Lorentziana:

$$B_L(\omega) = \frac{1}{\frac{1}{T_{12}} - i(\omega - \omega_{21})}. \quad (5.5)$$

As funções $B(\omega)$ e $B_L(\omega)$ diferem apenas na região em torno de ω_{21} , o que não interfere nos resultados de correlação cruzada e fluorescência pois a absorção e a alta oscilação do campo elétrico nesta região do espectro excluem as contribuições destas componentes espectrais, excluindo conseqüentemente as diferenças entre as duas funções. Desta forma, as características importantes à forma de linha original $B(\omega)$ também pertencem à função $B_L(\omega)$.

A forma de linha, seja ela representada por $B(\omega)$ ou por $B_L(\omega)$, possui uma parte real e outra imaginária, as quais dão origem a dois termos distintos importantes ao substituir-se esta função na equação 5.3. O termo que surge da parte real de $-\alpha B(\omega)z$ será responsável por uma absorção do espectro do pulso em torno da frequência ω_{21} da primeira transição e o que surge

da parte imaginária deste mesmo termo será responsável pela dispersão em torno desta mesma frequência. Estas partes real e imaginária da forma de linha são apresentadas na figura 5.2, onde as regiões antes da primeira linha tracejada e depois da segunda linha tracejada representam regiões de dispersão normal e a região entre as duas linhas tracejadas representa uma região de dispersão anômala, a serem explicadas um pouco mais adiante.

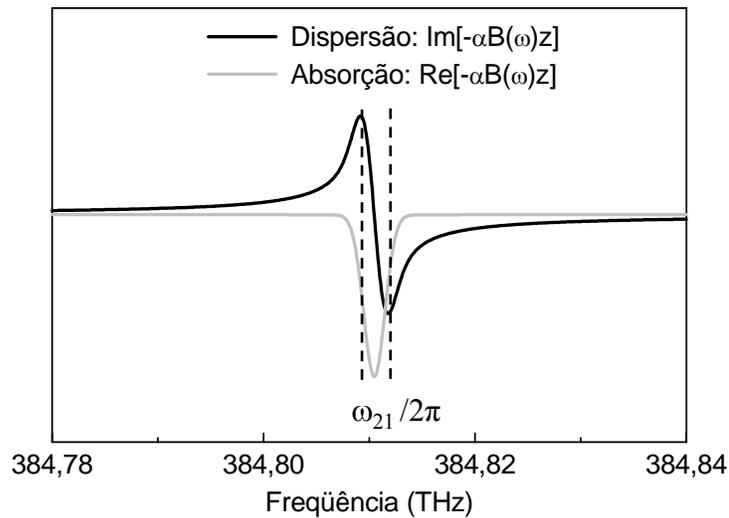


Figura 5.2: Partes real e imaginária da forma de linha para $\alpha_0 z = 25$ responsáveis, respectivamente, pela absorção e pela dispersão. As regiões antes da primeira e depois da segunda linha tracejada são regiões de dispersão normal e a região entre as duas linhas é uma região de dispersão anômala.

O efeito de absorção se reflete no espectro do pulso na forma de uma diminuição drástica da amplitude do campo elétrico em torno da frequência de ressonância com a primeira transição, como pode ser visto no gráfico da figura 5.3. A largura da cavada no espectro do pulso ocasionada pela absorção depende da densidade atômica do meio, a qual está experimentalmente ligada à temperatura em que se encontram os átomos de Rb [40]. O gráfico superior direito da figura 5.3 apresenta em pequena escala a região do espectro do pulso que sofre a absorção. Deste gráfico, pode-se observar que não apenas a frequência ω_{21} mas também um conjunto de frequências próximas a ela são afetadas pela absorção. Quanto maior for a densidade atômica, mais átomos cruzarão o caminho do pulso e mais absorção será feita, aumentando esta depressão no espectro. Aumentar esta densidade nos cálculos significa aumentar o fator $\alpha_0 z$. A figura 5.3 foi calculada para $\alpha_0 z = 25$, valor compatível com a temperatura de 130°C utilizada em alguns experimentos.

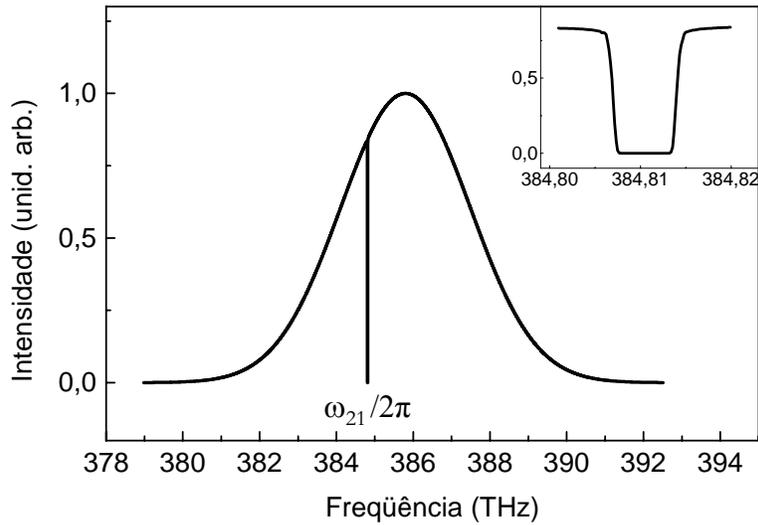


Figura 5.3: Espectro do pulso após sua propagação por um meio atômico denso para $\alpha_0 z = 25$. O efeito de absorção está evidenciado neste gráfico através da cavada em torno da frequência ω_{21} da primeira transição, apresentada em maiores detalhes no gráfico superior direito.

Voltando à figura 5.2, pode-se perceber que a característica principal que diferencia a região de dispersão anômala da região de dispersão normal é a troca de sinal da derivada da curva de dispersão, sendo este sinal negativo no primeiro caso e positivo no segundo. Esta troca de sinal é importante pois a derivada da curva de dispersão pode ser interpretada como um atraso temporal. Esta derivada é apresentada na figura 5.4 ($\alpha_0 z = 25$), onde esta troca de sinal é evidenciada e mais uma vez as regiões de dispersão normal e anômala estão separadas pelas linhas tracejadas.

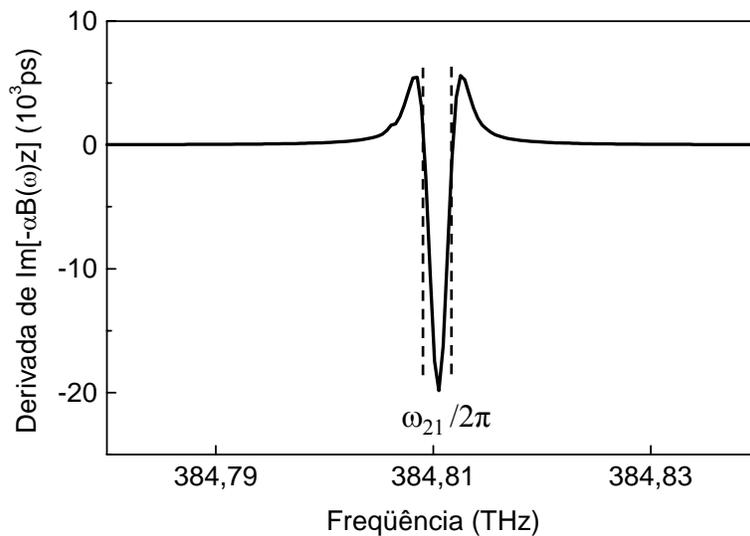


Figura 5.4: Derivada da parte imaginária da forma de linha para $\alpha_0 z = 25$, cujo sinal está diretamente relacionado com o atraso de grupo adquirido pelo pulso ao se propagar pelo meio. A região entre as linhas tracejadas representa a dispersão anômala, a qual adianta o pulso. As demais regiões representam a dispersão normal e introduzem um atraso positivo ao pulso.

Para explicar melhor a influência deste efeito no campo elétrico do pulso vai-se basear na definição de atraso de grupo introduzida no capítulo 3. Uma vez que o sinal detectado é função do atraso relativo τ entre os dois pulsos se está interessado em descrever um atraso de grupo relativo a esta variável. Do capítulo 4 tem-se que a dependência com τ do campo elétrico do pulso 1 no domínio espectral é dada por

$$\tilde{E}_1(\omega) = \tilde{\varepsilon}(\omega)e^{i\omega\tau} . \quad (5.6)$$

Da equação 5.3, pode-se escrever uma nova envoltória para o campo elétrico no domínio espectral do pulso propagado da seguinte maneira:

$$\tilde{\varepsilon}_p(\omega, z) = \tilde{\varepsilon}(\omega)e^{i\frac{n\omega z}{c} - \alpha B(\omega)z} , \quad (5.7)$$

O campo elétrico do pulso 1 propagado no domínio espectral pode então ser escrito por:

$$\tilde{E}_{1p}(\omega) = \tilde{\varepsilon}(\omega)e^{i\omega\tau}e^{i\frac{n\omega z}{c} - \alpha B(\omega)z} . \quad (5.8)$$

Reescrevendo a equação acima em termos das partes real e imaginária de $-\alpha B(\omega)z$:

$$\tilde{E}_{1p}(\omega) = \tilde{\varepsilon}(\omega)e^{-\text{Re}[\alpha B(\omega)z]}e^{i\left(\omega\tau + \frac{n\omega z}{c} + \text{Im}[-\alpha B(\omega)z]\right)} , \quad (5.9)$$

onde $\Delta\phi = \frac{n\omega z}{c} + \text{Im}[-\alpha B(\omega)z]$ é a fase introduzida pela propagação no meio.

Na equação acima pode-se ver claramente que a parte real de $-\alpha B(\omega)z$ é responsável por alterar o espectro do pulso (absorção) e a parte imaginária é responsável por alterar a fase do mesmo (dispersão). Baseando-se agora no cálculo de atraso de grupo apresentado na seção 3.1 do capítulo 3, pode-se definir o atraso de grupo como:

$$\tau_g(\omega) = \frac{d(\Delta\phi)}{d\omega} = \frac{nz}{c} + \frac{d(\text{Im}[-\alpha B(\omega)z])}{d\omega} . \quad (5.10)$$

O primeiro termo da equação 5.10 corresponde à parte constante do índice de refração do meio atômico e introduz um mesmo atraso de grupo positivo para todas as componentes

espectrais, uma vez que não depende de ω . Este atraso constante é o mesmo para ambos os pulsos e não altera, portanto, o perfil das medidas que dependam do atraso.

Desta forma, se o atraso de grupo $\tau_g(\omega)$ introduzido pela propagação for negativo, o que só pode ocorrer se a derivada da parte imaginária de $-\alpha B(\omega)z$ for negativa, o campo elétrico sofre uma deformação no sentido negativo do eixo dos τ e se for positivo a deformação é no sentido positivo deste eixo. Sendo assim, a dispersão normal promove apenas deformações no sentido positivo do eixo τ , apenas atrasando algumas componentes do campo elétrico, enquanto que a dispersão anômala pode provocar deformações no sentido negativo deste eixo, adiantando algumas componentes do campo elétrico. Deve-se observar na figura 5.2, no entanto, que as componentes do campo elétrico que sofreriam a dispersão anômala são excluídas do espectro do pulso pela absorção, de forma que a propagação introduz no pulso apenas atrasos positivos em relação a τ .

Desta forma, o efeito de dispersão causa uma deformação no perfil temporal do pulso, criando uma cauda oscilatória atrasada com respeito ao restante do pulso. O papel da absorção é, portanto, apenas o de excluir as componentes do campo com frequências em torno de ω_{21} e, conseqüentemente, excluir a dispersão anômala que ocasionaria o adiantamento de algumas componentes de frequência do campo.

O perfil temporal destes pulsos propagados é sondado através de um experimento de correlação cruzada não-colinear a ser descrito na próxima seção. Em teoria, este experimento corresponde a uma convolução entre um pulso propagado e outro sonda, o qual não se propagou pelo meio, descrito pela equação 4.1. Porém, na prática calculou-se estes perfis temporais usando-se apenas a intensidade do pulso propagado, dada por:

$$I(t) = |E(t)|^2. \quad (5.11)$$

Aqui, o campo $E(t)$ representa o pulso que se propaga pelo meio, o qual, por enquanto, não apresenta nenhuma manipulação de fase externa ($\varphi(\omega) = 0$). As figuras 5.5, 5.6 e 5.7 mostram três perfis temporais de pulsos propagados para três diferentes densidades atômicas:

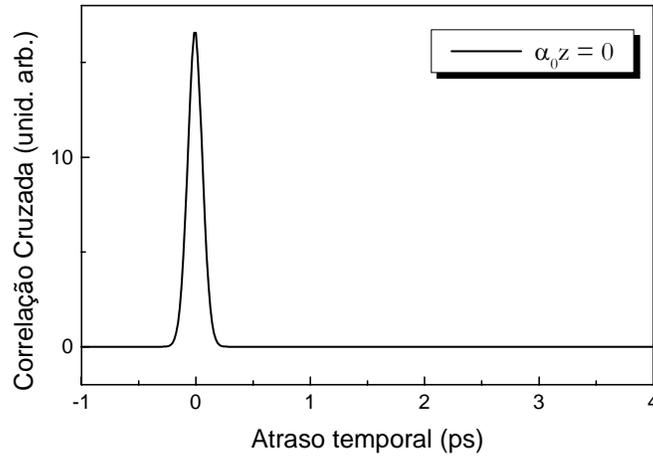


Figura 5.5: Perfil temporal teórico do pulso ao se propagar por um meio atômico com densidade muito baixa (relacionado experimentalmente com a temperatura ambiente).

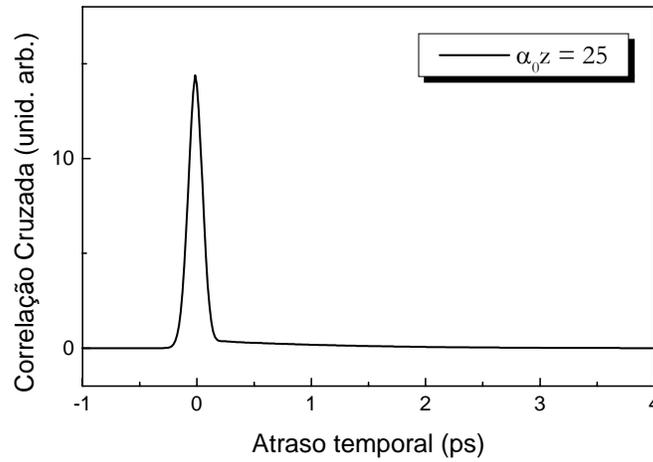


Figura 5.6: Perfil temporal teórico do pulso ao se propagar por um meio atômico com $\alpha_0 z = 25$ (relacionado experimentalmente à temperatura de 130°C , o que corresponde a uma densidade atômica de $3,4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$).

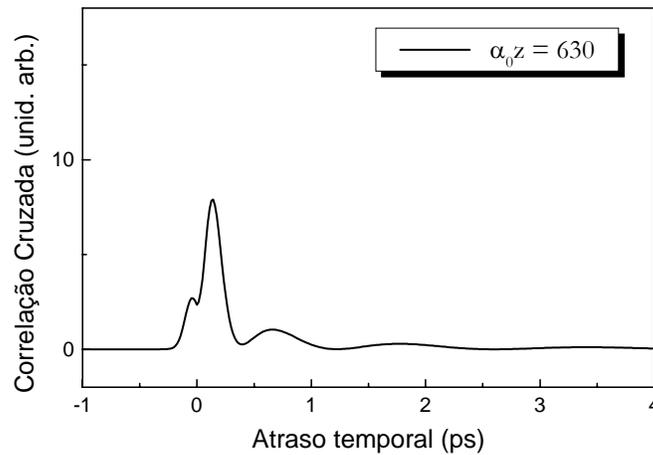


Figura 5.7: Perfil temporal teórico do pulso ao se propagar por um meio atômico com $\alpha_0 z = 630$ (relacionado experimentalmente à temperatura de 170°C , o que corresponde a uma densidade atômica de $2,4 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$).

O gráfico da figura 5.5 foi calculado para uma densidade muito baixa, não apresentando nenhum efeito de propagação. As figuras 5.6 e 5.7, por sua vez, foram calculadas para densidades mais altas, apresentando uma cauda no eixo temporal positivo para atrasos temporais da ordem de picossegundos devido à propagação pelo meio ressonante. Isto significa que, para estas densidades atômicas, algumas componentes de frequência se atrasaram com relação às demais devido à propagação no meio (dispersão normal).

5.1.2 – Efeitos da manipulação da fase no perfil temporal do pulso propagado

Na subseção anterior, foram calculados os efeitos de absorção e dispersão causados ao perfil temporal de um pulso de área pequena quando este se propaga por um meio atômico denso. Estes cálculos serão aproveitados nesta subseção, onde a manipulação da fase do campo elétrico será introduzida e os perfis temporais dos pulsos submetidos a esta manipulação e aos efeitos de propagação serão calculados.

A diferença dos cálculos da subseção anterior para esta subseção é a introdução da fase extra $\varphi(\omega)$ à envoltória da equação 5.7, que com esta fase extra representará o campo elétrico do pulso 2 propagado $\tilde{E}_{2p}(\omega, z)$:

$$\tilde{E}_{2p}(\omega, z) = \tilde{\varepsilon}(\omega) e^{-\alpha z \operatorname{Re}[B(\omega)]} e^{i\left(\varphi(\omega) + \frac{n\omega z}{c} + \operatorname{Im}[-\alpha B(\omega)z]\right)} \quad (5.12)$$

A fase total do campo elétrico do pulso 2 é, portanto, dada por:

$$\Delta\phi(\omega) = \varphi(\omega) + \frac{n\omega z}{c} + \operatorname{Im}(-\alpha B(\omega)z) \quad (5.13)$$

A presença de $\varphi(\omega)$ altera o perfil temporal do pulso, uma vez que este é alterado pelo atraso de grupo, o qual está ligado a $\Delta\phi$ pela equação 5.10. Atrasos de pulso negativos e positivos serão acrescentados, deformando o perfil temporal do pulso propagado. Quando o valor de ω_d se aproxima de ω_{21} , a declividade da função erro começa a interagir com a curva de

dispersão. É nesta situação que ocorre um maior cancelamento da dispersão normal da propagação, pois o atraso de grupo negativo introduzido por $\varphi(\omega)$ cancela parcialmente o atraso positivo introduzido pela propagação. Isto faz com que a interação entre os efeitos de propagação e os efeitos da fase externa sofram maior interação neste valor de ω_d . A derivada da função $\varphi(\omega)$ pode ser vista na figura 5.8:

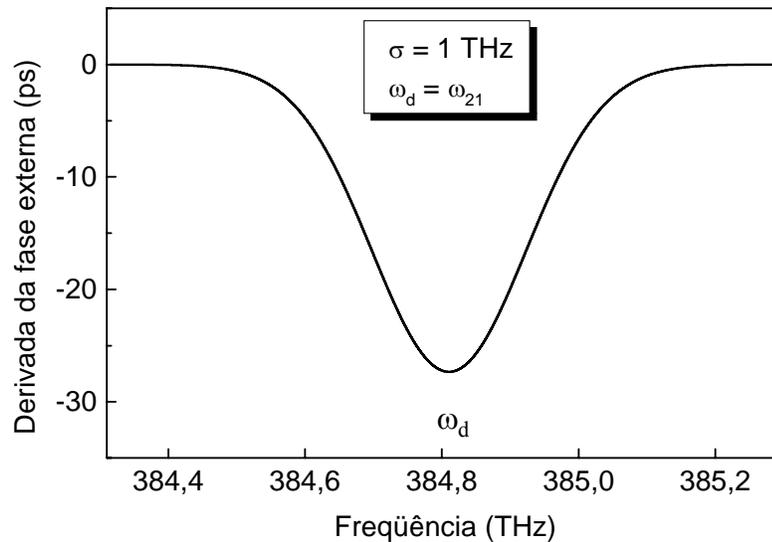


Figura 5.8: Derivada da fase extra $\varphi(\omega)$ introduzida pelo SF.

Vale ressaltar que a largura da curva da figura 5.8 para o valor de σ utilizado é da ordem de 100 vezes a largura da curva de absorção na temperatura mais estudada (130°C).

Para mostrar que esta fase externa também altera o perfil temporal do pulso e, conseqüentemente, altera as deformações no mesmo devido aos efeitos de propagação, foram calculadas três séries de perfis temporais, cada uma delas correspondente a uma densidade atômica, variando nos gráficos dentro de cada série apenas o valor de ω_d . Nestes cálculos, os valores de σ e d utilizados foram $\sigma = 1$ THz e $d = 6,8$ μm .

A primeira série, apresentada na figura 5.9 foi feita a uma temperatura nula, quando apenas as deformações devido à manipulação da fase estão presentes. A segunda e terceira séries, respectivamente apresentadas nas figuras 5.10 e 5.11, têm valores de $\alpha_0 z$ suficientemente altos para evidenciar os efeitos de propagação além dos efeitos da manipulação de fase.

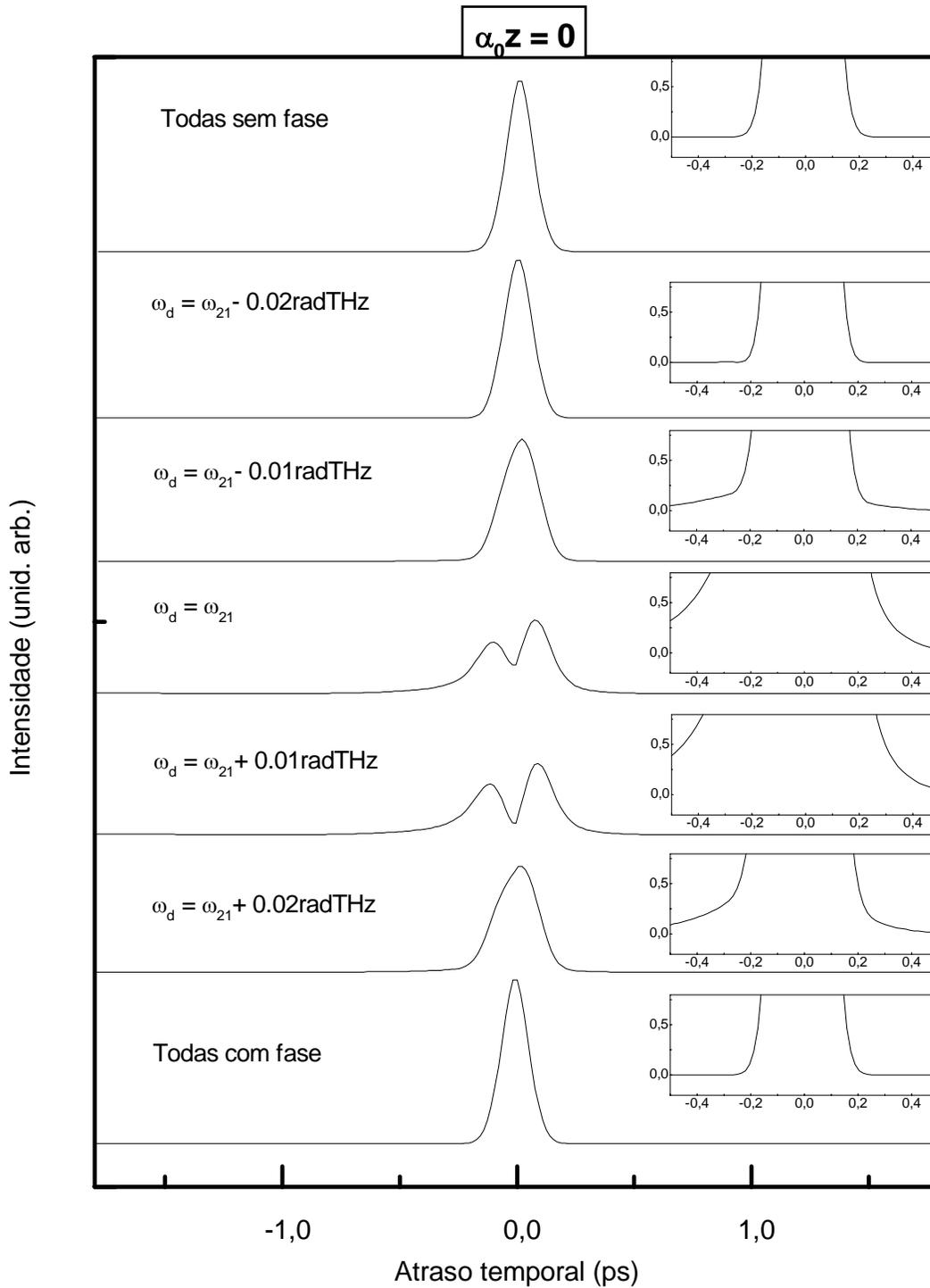


Figura 5.9: Série de perfis temporais teóricos (sem convolução) de um pulso sem efeitos de propagação ($\alpha_0 z = 0 \rightarrow T_0$ ambiente) para diversos valores de ω_d , sendo o primeiro e último gráficos correspondentes, respectivamente, a nenhuma componente possuir fase extra e todas as componentes receberem fase extra.

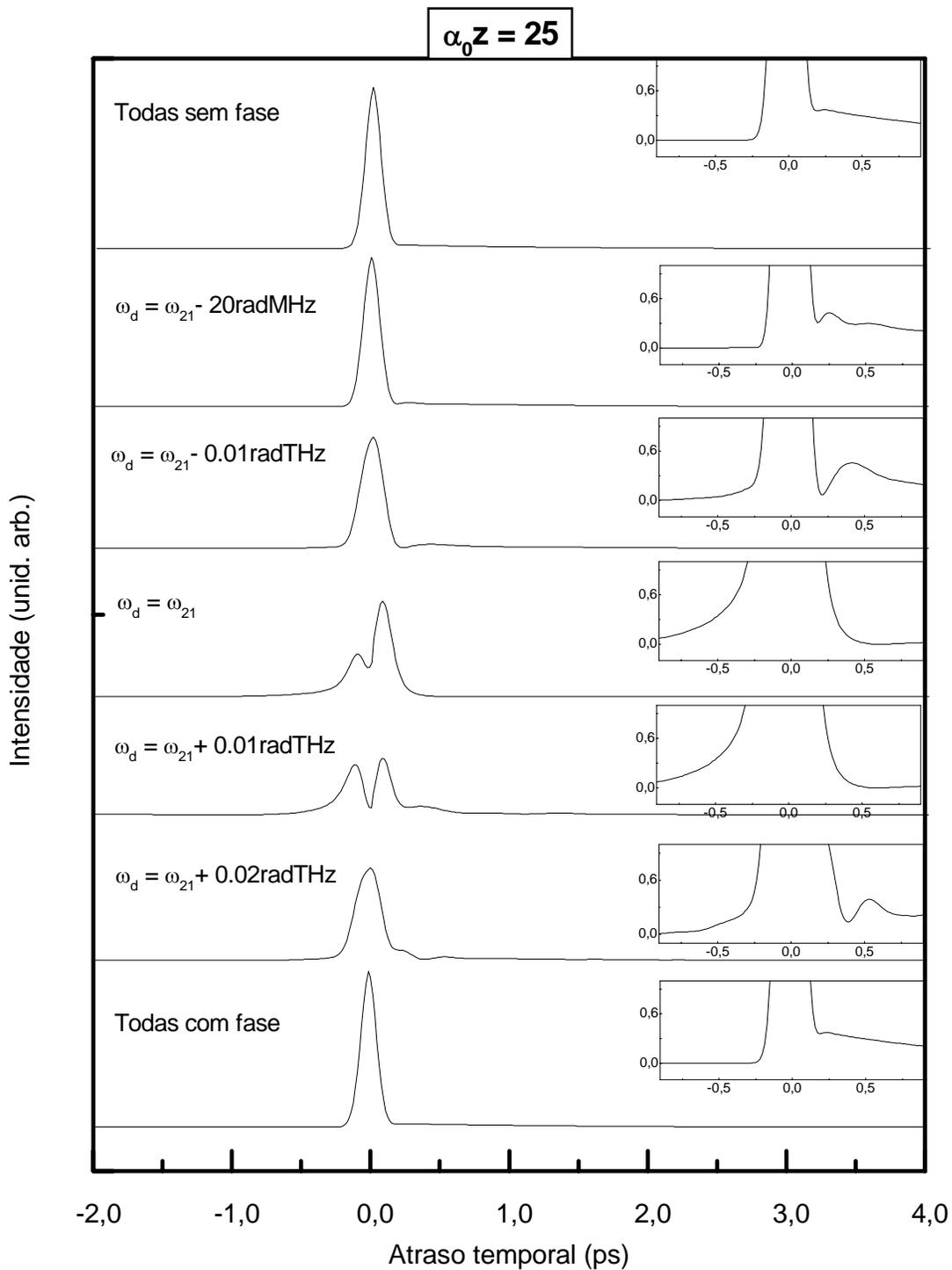


Figura 5.10: Série de perfis temporais teóricos (sem convolução) de um pulso com efeitos de propagação ($\alpha_0 z = 25 \rightarrow T_1 \approx 130^\circ\text{C}$) para diversos valores de ω_d , sendo o primeiro e último gráficos correspondentes, respectivamente, a nenhuma componente possuir fase extra e todas as componentes receberem fase extra.

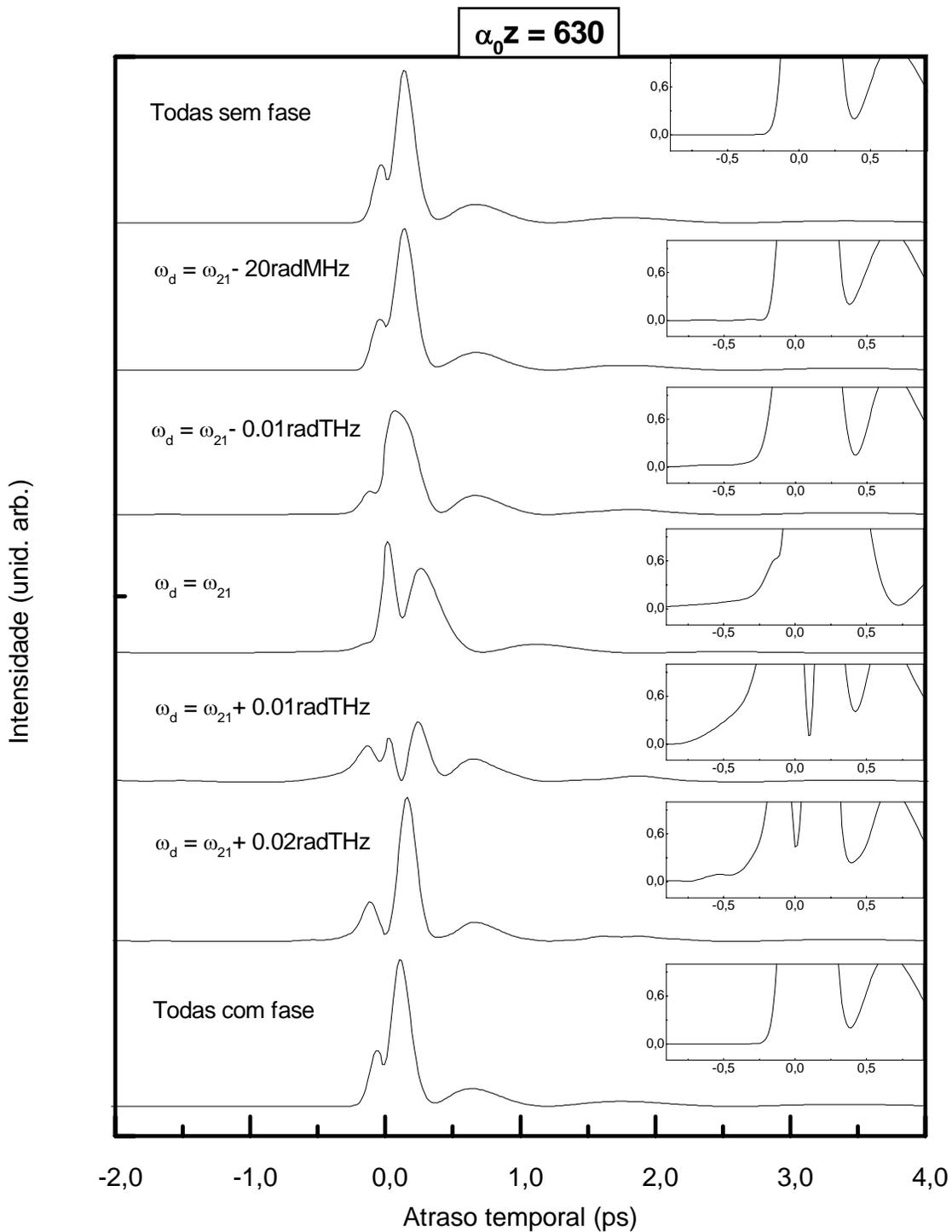


Figura 5.11: Série de perfis temporais teóricos (sem convolução) de um pulso com efeitos de propagação ($\alpha_0 z = 630 \rightarrow T_2 \approx 170^\circ\text{C}$) para diversos valores de ω_d , sendo o primeiro e último gráficos correspondentes, respectivamente, a nenhuma componente possuir fase extra e todas as componentes receberem fase extra.

No primeiro gráfico de todas as séries, o valor de ω_d é pequeno o suficiente para que nenhuma componente espectral do pulso seja alterada pela função de fase, o que indica que nenhum efeito da manipulação de fase pode ser visualizado, sendo estes gráficos, portanto, idênticos aos das figuras 5.5, 5.6 e 5.7. Nestas três séries de gráficos teóricos é bastante perceptível a influência da fase no perfil temporal do pulso. Dentre as deformações ocasionadas pela presença da fase $\varphi(\omega)$, deve-se destacar a presença de partes do pulso em atrasos temporais negativos da ordem de centenas de femtossegundos, fato este mais evidente nas ampliações da região central dos gráficos, apresentadas no canto direito dos mesmos. É importante salientar que estes gráficos teóricos não devem ser comparados individualmente com os gráficos experimentais a serem apresentados na próxima seção.

5.2 – Resultados experimentais do perfil temporal

Para sondar os efeitos de propagação introduzidos no perfil temporal do pulso ao se propagar pelo meio ressonante, foram feitos experimentos de correlação cruzada para diferentes densidades atômicas. Este experimento é realizado com dois feixes, alinhados em situação paralela, porém não colinear, com um deles passando pelo meio atômico e o outro não. Esses dois feixes incidem em um cristal de BBO (0,1 mm de espessura) gerador de 2º harmônico e o sinal gerado pela interação dos dois pulsos é coletado em função do atraso τ entre eles. A figura 5.12 abaixo mostra a montagem experimental.

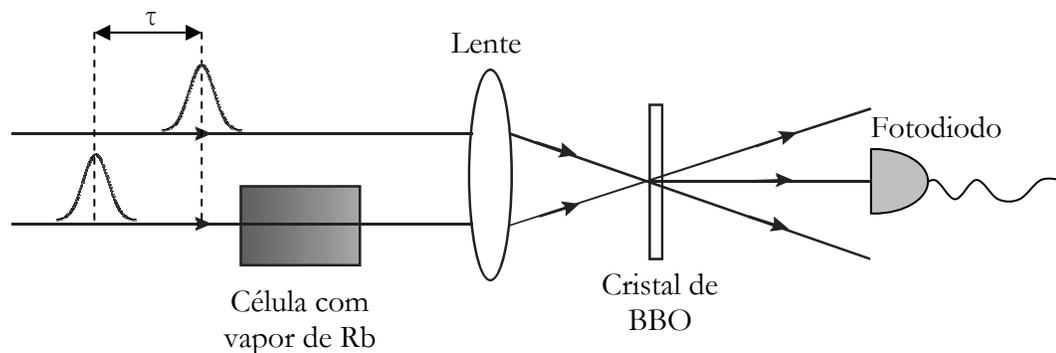


Figura 5.12: Esquema do experimento de correlação cruzada não colinear realizado para sondar o perfil temporal do pulso após propagar-se pelo vapor atômico de Rb.

Mais uma vez, um dos feixes serviu como sonda para analisar o perfil temporal do pulso que interagiu com o meio atômico. Os resultados deste experimento de propagação são apresentados nas figuras 5.13, 5.14 e 5.15, onde três séries de gráficos foram obtidas para três diferentes densidades atômicas. Os gráficos dentro de cada série diferem um do outro apenas pelo valor de x , ou seja, pela posição do espectro do pulso em que a função de fase o intercepta.

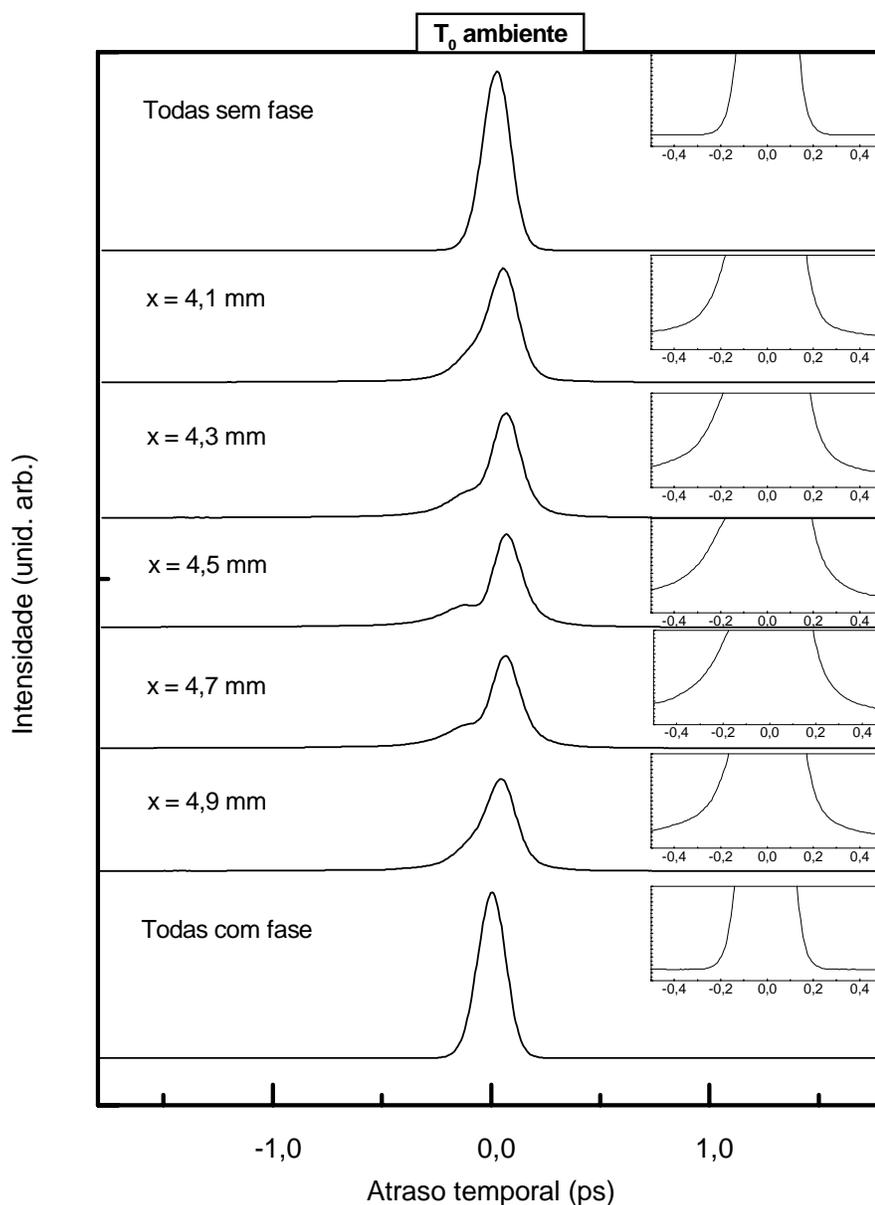


Figura 5.13: Série de gráficos experimentais de correlação cruzada que fornecem uma forma aproximada do perfil temporal do pulso propagado na situação em que os átomos estão à temperatura ambiente (a ser comparada com a série da figura 5.9 em que $\alpha_0 z = 0$). O primeiro gráfico apresenta a situação em que todas as componentes espectrais estão sem a fase extra ($\omega_d \ll \omega_L$) e o último gráfico representa a situação oposta ($\omega_d \gg \omega_L$).

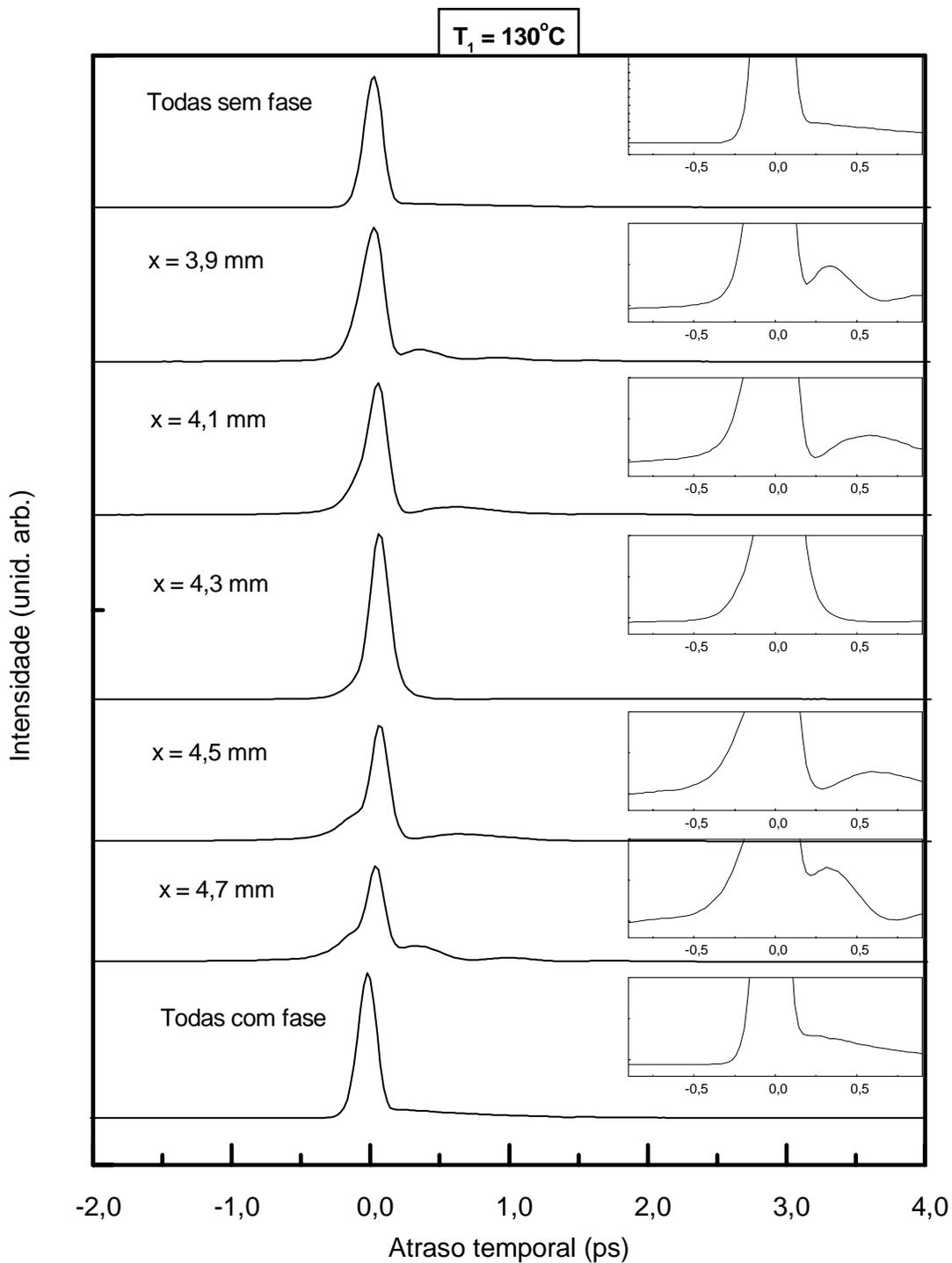


Figura 5.14: Série de gráficos experimentais de correlação cruzada que fornecem uma forma aproximada do perfil temporal do pulso propagado na situação em que os átomos estão à $T_1 \approx 130^\circ\text{C}$ (densidade atômica $N = 3,4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$, a ser comparada com a série da figura 5.10 em que $\alpha_0 z = 25$). O primeiro gráfico apresenta a situação em que todas as componentes espectrais estão sem a fase extra ($\omega_d \ll \omega_L$) e o último gráfico representa a situação oposta ($\omega_d \gg \omega_L$).

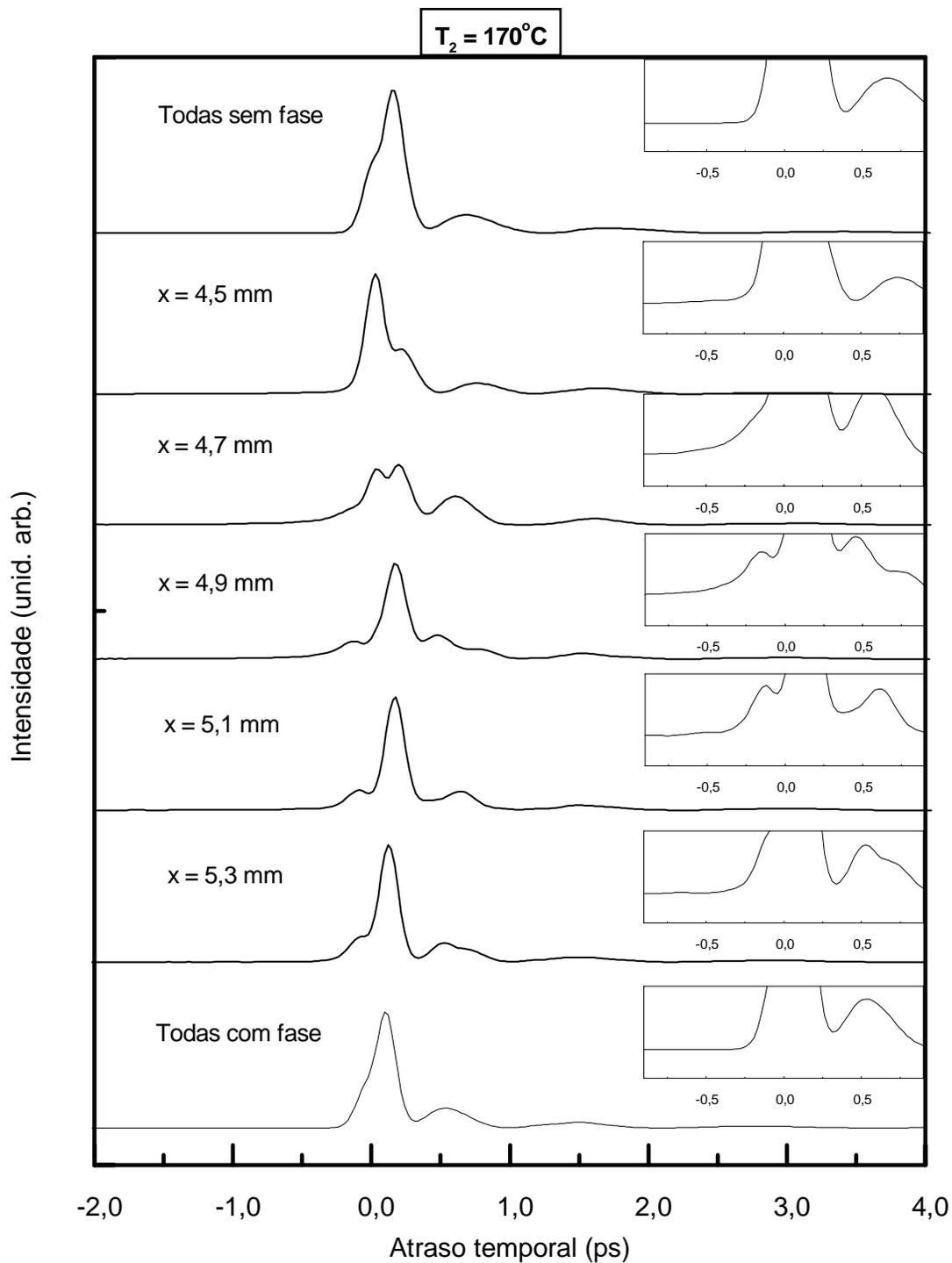


Figura 5.15: Série de gráficos experimentais de correlação cruzada que fornecem uma forma aproximada do perfil temporal do pulso propagado na situação em que os átomos estão à $T_1 \approx 170^\circ\text{C}$ (densidade atômica $N = 2,4 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$, a ser comparada com a série da figura 5.11 em que $\alpha_0 z = 630$). O primeiro gráfico apresenta a situação em que todas as componentes espectrais estão sem a fase extra ($\omega_d \ll \omega_L$) e o último gráfico representa a situação oposta ($\omega_d \gg \omega_L$).

A série apresentada na figura 5.13 foi adquirida à temperatura ambiente ($T_0 \approx 25^\circ\text{C}$) e não contém efeitos de propagação, apresentando apenas os efeitos da manipulação da fase. Esta figura serve, portanto, para ajudar a compreender a manipulação de fase por si só e um correspondente teórico foi apresentado na figura 5.9. As séries apresentadas nas figuras 5.14 e 5.15 foram obtidas, respectivamente, a temperaturas $T_1 \approx 130^\circ\text{C}$ e $T_2 \approx 170^\circ\text{C}$ e apresentam ambos os efeitos. O primeiro gráfico de todas as séries corresponde à situação de ausência de fase pois ω_d é pequeno o suficiente para não interceptar nenhuma componente espectral, apresentando, portanto, apenas os efeitos da propagação. O último gráfico destas séries corresponde à situação em que ω_d é grande o suficiente para que todas as componentes de frequência recebam a fase extra e equivale à situação em que nenhuma delas recebe esta fase, uma vez que são as variações de fase ao longo do espectro do pulso que alteram o perfil temporal do mesmo.

A figura 5.14 foi obtida com a célula aquecida a aproximadamente 130°C , o que equivale a uma densidade de $3,4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$. Esta série é a mais interessante de todas pois na situação em que $x = 4,3 \text{ mm}$ verifica-se um caso curioso de interação entre os efeitos de propagação e os efeitos de manipulação da fase. Neste gráfico, conseguiu-se através da manipulação da fase óptica uma quase anulação dos efeitos de propagação para qualquer valor de τ longe da origem. Este evento também pode ser observado teoricamente no gráfico da figura 5.10 correspondente a $\omega_d = \omega_{21}$. Este efeito se refletirá também na absorção de dois fótons, como será visto nas próximas seções.

A figura 5.15 apresenta também a interação entre os efeitos de propagação e de manipulação da fase óptica. Porém, neste caso, obtido a uma temperatura de 170°C , a qual corresponde a uma densidade de aproximadamente $2,4 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$, não se conseguiu um efeito de quase anulação para qualquer valor de τ como ocorreu no caso anterior. Ao invés disso, conseguiu-se aqui mudar o período de oscilação da cauda introduzida pela propagação, alterando também a posição e amplitude destes picos. Esta variação no período de oscilação da cauda também foi observada teoricamente na série apresentada na figura 5.11.

As séries teóricas das figuras 5.9, 5.10 e 5.11 foram calculadas variando-se ω_d de forma regular porém diferente do parâmetro experimental x apresentado nas curvas experimentais das figuras 5.13, 5.14 e 5.15. Isto foi feito apenas com o intuito de ter-se uma noção da evolução das deformações provocadas por $\varphi(\omega)$ em função deste parâmetro, não devendo-se comparar individualmente cada gráfico de ambas as séries, mas sim as séries como um todo.

Na comparação das séries teóricas com suas correspondentes séries experimentais, pode-se perceber que as reentrâncias nos perfis temporais teóricos são mais pronunciadas que nos perfis temporais experimentais. Esta discrepância pode ser atribuída em parte ao fato de que calculou-se apenas a intensidade do pulso propagado e não sua convolução com um pulso sonda. Esta convolução, apresentada na expressão 4.1, representaria com maior fidelidade os resultados experimentais, como visto no capítulo 4 ao comparar-se nos gráficos de correlação cruzada 4.6(b), 4.7(b) e 4.8(b). Feitas estas considerações, a comparação de cada série de gráficos experimentais com a sua série teórica correspondente permite concluir que o avanço da fase ao longo do espectro do pulso está descrito razoavelmente na teoria.

É importante ressaltar que a diferença absoluta nas escalas de valores de x apresentadas nos gráficos experimentais não significa nada, pois a cada experimento feito perde-se a origem do eixo x devido a fatores externos, como, por exemplo, realinhamento do laser. Desta maneira, o que importa realmente é a variação relativa do parâmetro x .

5.3 – Resultados experimentais: transição 5S-5P-5D

Devido aos efeitos de propagação, as curvas de absorção de dois fótons neste sistema não mais localizam-se apenas em torno de $\tau = 0$ como aconteceu na situação sem ressonância intermediária. Aqui, surgem picos laterais cujas posições no eixo temporal variam de acordo com a densidade atômica do meio. Estes picos laterais podem ser visualizados na figura 5.16, onde a absorção de dois fótons experimental é apresentada para duas diferentes densidades atômicas. Nesta figura, os gráficos na região superior direita apresentam a absorção de dois fótons apenas em torno de $\tau = 0$ para fornecer uma melhor avaliação do pico central. No gráfico superior

direito correspondente à temperatura de 130°C , fica evidente a presença de oscilação de período 473 fs, referentes ao batimento entre as frequências ω_{32} e ω_{21} devido à acumulação da população no nível mais excitado. Como mencionado anteriormente, este fenômeno não será incluído na teoria, estando a curva teórica correspondente livre destas oscilações.

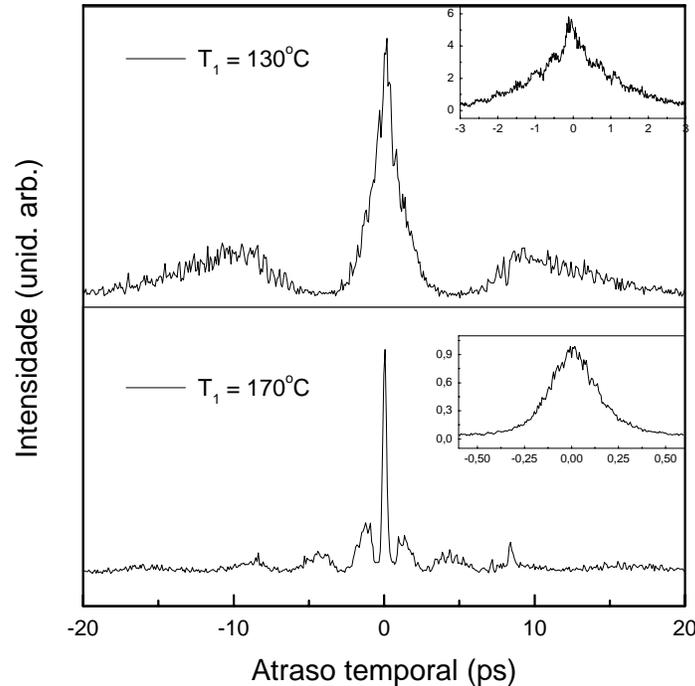


Figura 5.16: Sinal de fluorescência da transição 5S-5P-5D para duas diferentes temperaturas da célula.

Quando é feita a manipulação de fase do campo elétrico, não apenas o pico central mas também os picos laterais sofrem alterações em função desta fase. Isto pode ser confirmado nos resultados experimentais das figuras 5.17 e 5.18, as quais mostram séries de gráficos cuja diferença entre eles é o valor de x e cuja diferença entre as séries é a temperatura da célula, a qual vale $T_1 \approx 130^{\circ}\text{C}$ para a figura 5.17 e $T_2 \approx 170^{\circ}\text{C}$ para a figura 5.18.

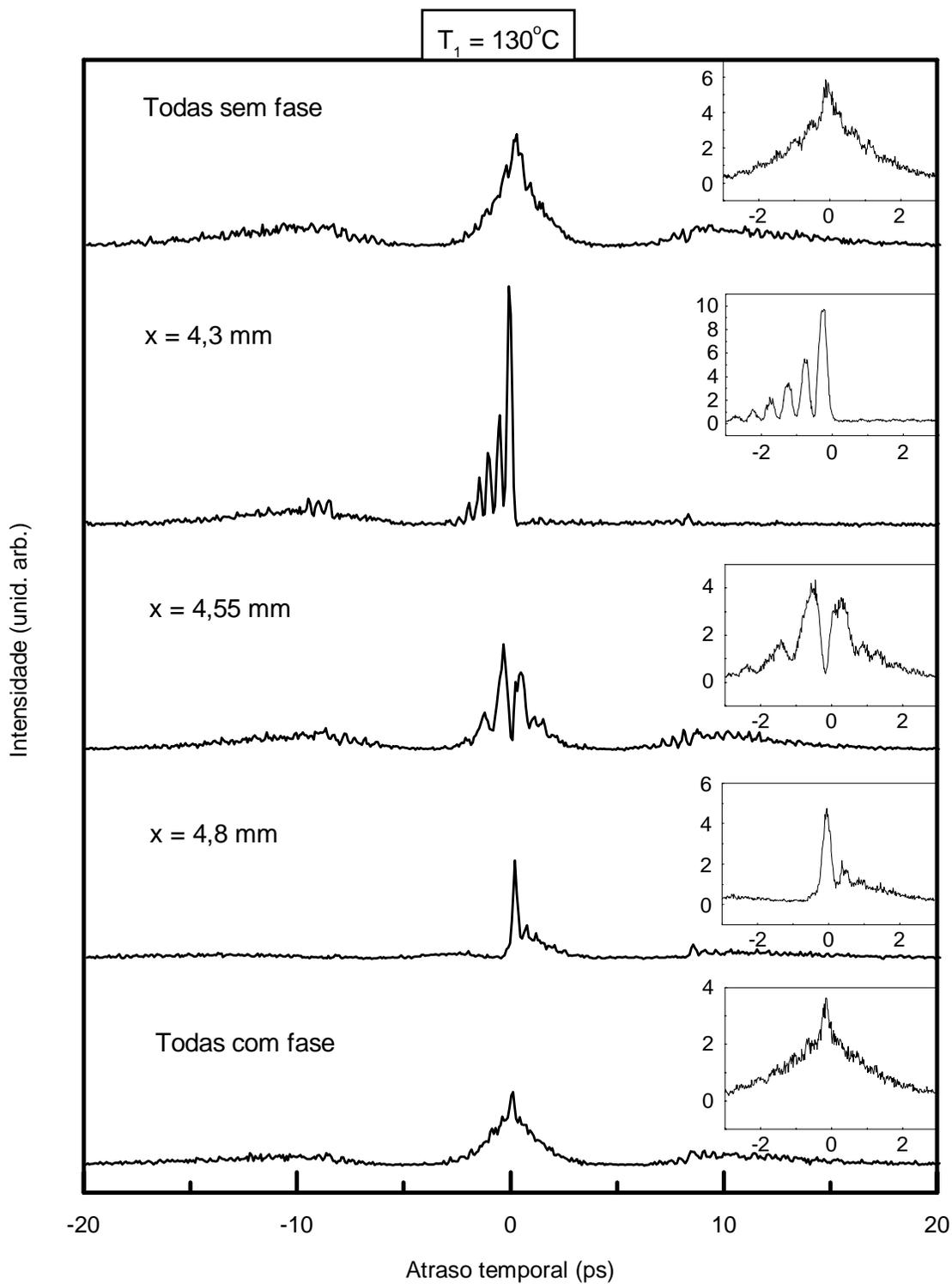


Figura 5.17: Sinal de fluorescência da transição 5S-5P-5D à $T_1 = 130^\circ\text{C}$ para cinco valores diferentes de x . O primeiro gráfico apresenta a situação em que todas as componentes espectrais estão sem a fase extra ($\omega_d \ll \omega_L$) e o último gráfico representa a situação oposta ($\omega_d \gg \omega_L$).

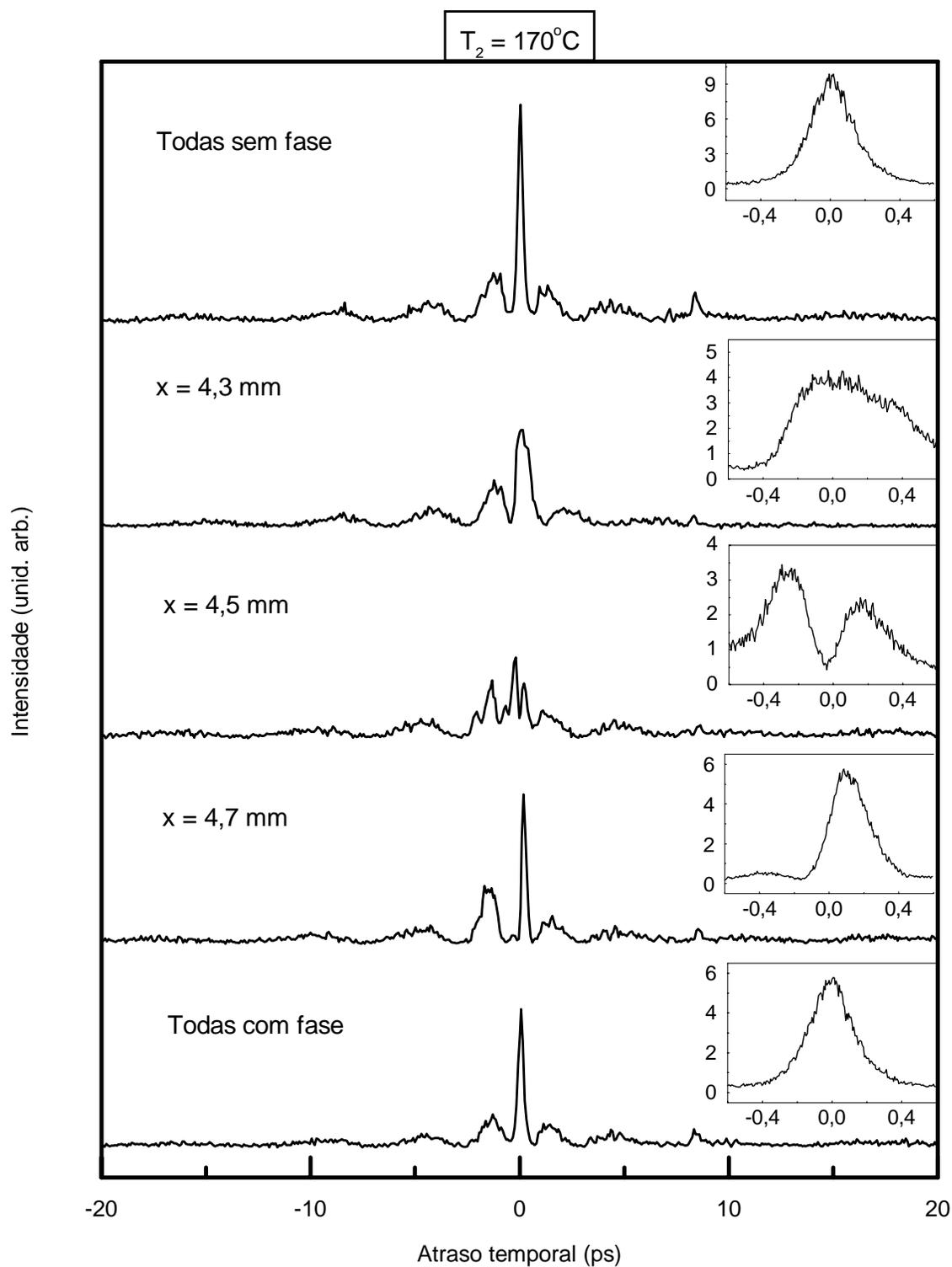


Figura 5.18: Sinal de fluorescência da transição 5S-5P-5D à $T_1 = 170^\circ\text{C}$ para cinco valores diferentes de x . O primeiro gráfico apresenta a situação em que todas as componentes espectrais estão sem a fase extra ($\omega_d \ll \omega_L$) e o último gráfico representa a situação oposta ($\omega_d \gg \omega_L$).

Na análise da figura 5.17, é importante a observação de três situações particulares, referentes aos gráficos em que $x = 4,3$ mm, $x = 4,55$ mm e $x = 4,8$ mm. O gráfico correspondente a $x = 4,55$ mm (correspondente em teoria a $\omega_d = \omega_L$) apresenta um efeito semelhante ao observado na transição 5S-7S: uma quase anulação da transição de dois fótons próxima de $\tau = 0$. No entanto, os gráficos correspondentes a $x = 4,3$ mm e $x = 4,8$ mm (correspondentes em teoria a $\omega_d = \omega_{21}$ e $\omega_d = \omega_{32}$, respectivamente) apresentam situações intrigantes em que um dos picos laterais praticamente se anula, juntamente com a metade do pico central mais próxima. Estas situações somente serão explicadas com o auxílio do conceito de atraso de grupo, discutida na seção 5.1 e a ser desenvolvida e aplicada a esta situação nas seções 5.4 e 5.5.

É importante observar que as três situações particulares mencionadas acima não têm análogos na figura 5.18. Isto indica que o desaparecimento dos picos laterais para as situações particulares em que $x = 4,3$ mm e $x = 4,8$ mm foi uma casualidade. Coincide que para a temperatura $T_1 = 130^\circ\text{C}$ os efeitos de propagação que geram os picos laterais são em parte praticamente anulados pela fase externa aplicada ao pulso.

Os resultados das figuras 5.17 e 5.18 evidenciam que realizou-se o controle coerente parcial da transição 5S-5P-5D através da manipulação da fase do campo elétrico, alcançando-se situações bastante diferentes da situação de pura propagação, alterando fortemente as deformações proporcionadas por este efeito.

5.4 – Análise teórica de uma transição de dois fótons com ressonância intermediária

A transição 5S-5P-5D é abordada aqui como uma transição de dois fótons que apresenta ressonância com o nível intermediário $5P_{3/2}$. A análise teórica desta transição será feita se baseando nos cálculos apresentados no capítulo 2, onde foi calculada a amplitude de probabilidade $c_3^R(\tau)$ de encontrar o sistema no nível 3 mais excitado. Fazendo analogia da

situação real do sistema com as denominações do capítulo 2, o nível 5S corresponde ao nível 1, o nível $5P_{3/2}$ ao nível 2 e o nível 5D ao nível 3.

Os sinais de correlação cruzada colinear obtidos consecutivamente aos sinais de fluorescência, em situação semelhante àquela descrita no capítulo 4, não serão calculados aqui pois seguem exatamente o mesmo raciocínio dos calculados no capítulo 4, mudando-se apenas os parâmetros referentes à fase. Mais informativos que estes são os sinais de correlação cruzada não-colinear de propagação, já apresentados em teoria e experimento nas seções 5.1 e 5.2. Esta seção é, portanto, destinada a calcular a absorção de dois fótons com ressonância intermediária para explicar as características principais dos resultados experimentais de fluorescência apresentados na seção 5.3.

Baseando-se nos cálculos do capítulo 2 (Eq. 2.33) tem-se:

$$c_3^R(\tau) \approx \frac{i\mu_{21}\mu_{32}}{2\pi\hbar^2} \left[i\pi\tilde{E}(\omega_{21})\tilde{E}(\omega_{32}) + \oint \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\tilde{E}(\omega)\tilde{E}(\omega_a - \omega)}{\omega_{21} - \omega} d\omega \right]. \quad (5.14)$$

É importantíssimo lembrar que agora a envoltória do campo elétrico é descrita pela equação 5.7, pois esta inclui a absorção e a dispersão introduzidas pela propagação.

Considerando a absorção da frequência da primeira ressonância pelo meio, $\tilde{E}(\omega_{21})$ pode ser considerado nulo de maneira que pode-se reescrever a Eq. 5.14 como

$$c_3^R(\tau) \approx \frac{i\mu_{21}\mu_{32}}{2\pi\hbar^2} \left[\oint \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\tilde{E}(\omega)\tilde{E}(\omega_a - \omega)}{\omega_{21} - \omega} d\omega \right]. \quad (5.15)$$

Assim como no capítulo 4, ao substituir-se os campos elétricos na equação acima pela soma dos campos elétricos dos dois pulsos $\tilde{E}(\omega) = \tilde{E}_1(\omega) + \tilde{E}_2(\omega)$ aparecerão novamente quatro termos, cada um deles representando um caminho quântico possível ao sistema. Para facilitar a análise física do problema, vai-se mais uma vez escrever a população em termos de funções diretamente ligadas a cada um destes caminhos quânticos. A população do nível mais excitado deste sistema é então representada por:

$$\rho_{33}(\tau) = \left| c_3^R(\tau) \right|^2 = \left| f_{11}e^{i\omega_a\tau} + f_{12}(\tau)e^{i\omega_{21}\tau} + f_{21}(\tau)e^{i\omega_{32}\tau} + f_{22} \right|^2, \quad (5.16)$$

onde f_{11} , $f_{12}(\tau)$, $f_{21}(\tau)$ e f_{22} representam os caminhos quânticos I, II, III e IV apresentados na Fig. 4.4 e estão definidas como

$$f_{11} \approx \frac{i\mu_{21}\mu_{32}}{2\pi\hbar^2} \left[\oint \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\tilde{\mathcal{E}}(\omega, z)\tilde{\mathcal{E}}(\omega_a - \omega, z)}{\omega_{21} - \omega} d\omega \right], \quad (5.17)$$

$$f_{12}(\tau) \approx \frac{i\mu_{21}\mu_{32}}{2\pi\hbar^2} \left[\oint \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\tilde{\mathcal{E}}(\omega, z)\tilde{\mathcal{E}}(\omega_a - \omega, z)e^{i(\omega - \omega_{21})\tau} e^{i\varphi(\omega_a - \omega)}}{\omega_{21} - \omega} d\omega \right], \quad (5.18)$$

$$f_{21}(\tau) \approx \frac{i\mu_{21}\mu_{32}}{2\pi\hbar^2} \left[\oint \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\tilde{\mathcal{E}}(\omega, z)\tilde{\mathcal{E}}(\omega_a - \omega, z)e^{-i(\omega - \omega_{21})\tau} e^{i\varphi(\omega)}}{\omega_{21} - \omega} d\omega \right], \quad (5.19)$$

$$f_{22} \approx \frac{i\mu_{21}\mu_{32}}{2\pi\hbar^2} \left[\oint \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\tilde{\mathcal{E}}(\omega, z)\tilde{\mathcal{E}}(\omega_a - \omega, z)e^{i\varphi(\omega)} e^{i\varphi(\omega_a - \omega)}}{\omega_{21} - \omega} d\omega \right]. \quad (5.20)$$

Diferentemente das funções $F_{12}(\tau)$ e $F_{21}(\tau)$ apresentadas no capítulo 4, as funções $f_{12}(\tau)$ e $f_{21}(\tau)$ não têm o quadrado de seus módulos iguais pois não existe mudança de variável que as faça serem escritas uma em função da outra diferindo apenas de uma exponencial complexa. Isto dificulta a análise da física do problema por tornar a expressão para a população do nível 3 mais complexa.

Para facilitar a compreensão do problema, vai-se imaginar a situação em que a fase introduzida é nula. Olhando para as equações 5.17 e 5.20 percebe-se que as funções f_{11} e f_{22} se tornam idênticas nesta condição. Observando agora as equações 5.18 e 5.19, pode-se perceber também que as funções $f_{12}(\tau)$ e $f_{21}(\tau)$ se tornam iguais na situação de fase nula ao substituir em uma delas a variável τ por $-\tau$, indicando que nesta situação de ausência de manipulação de fase, $f_{12}(\tau)$ é a reflexão de $f_{21}(\tau)$ em torno do eixo vertical. Este fato é evidenciado na Fig. 5.19 abaixo, onde os módulos quadrados das funções $f_{12}(\tau)$ e $f_{21}(\tau)$ são apresentados na situação em que $\varphi(\omega) = 0$ e $\alpha_0 z = 25$.

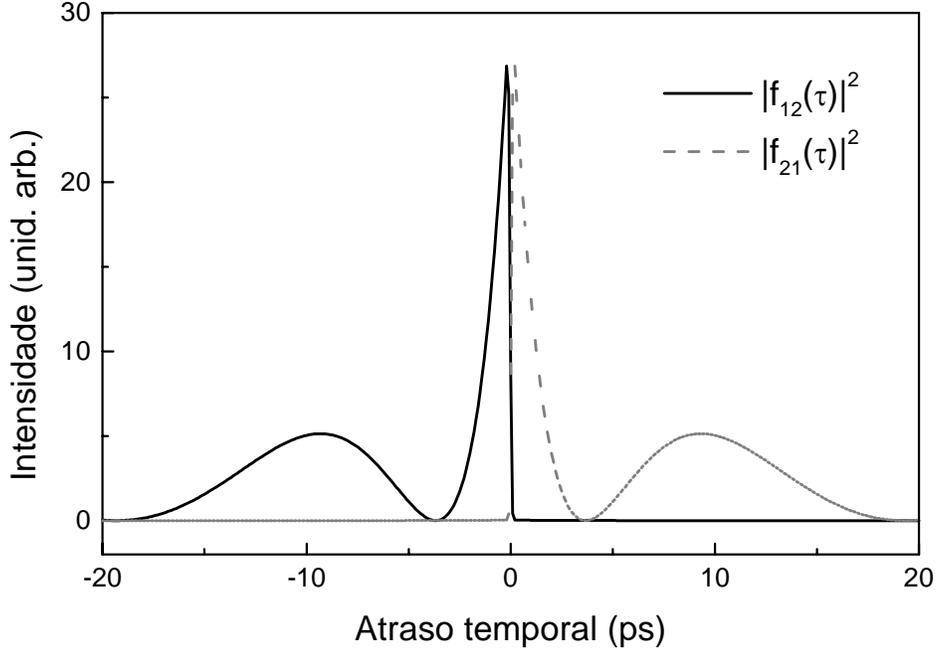


Figura 5.19: Módulo quadrado das funções $f_{12}(\tau)$ e $f_{21}(\tau)$ na situação em que $\varphi(\omega) = 0$ e $\alpha_0 z = 25$.

É importante perceber no gráfico acima que uma das funções só existe para $\tau \geq 0$ e a outra só existe para $\tau \leq 0$, fato atribuído à causalidade. A função $f_{12}(\tau)$ representa o caminho quântico em que o primeiro fóton é absorvido do primeiro pulso e o segundo fóton é absorvido do segundo pulso. Portanto, pensando em termos de causalidade, se o segundo pulso chegar muito antes do primeiro pulso este caminho quântico não é possível. O inverso ocorre com a função $f_{21}(\tau)$, onde a chegada antecipada do pulso 1 impossibilita este caminho quântico.

Porém, quando $\varphi(\omega) \neq 0$ a situação se altera pois agora $f_{12}(\tau) \neq f_{21}(-\tau)$ e também $f_{11} \neq f_{22}$. Deve-se então escrever a população em termos destas quatro funções. Desenvolvendo o quadrado do módulo da Eq. 5.16 obtém-se

$$\begin{aligned}
 \rho_{33}(\tau) = & |f_{11}|^2 + |f_{12}(\tau)|^2 + |f_{21}(\tau)|^2 + |f_{22}|^2 + \\
 & + f_{11}f_{12}^*(\tau)e^{i\omega_{32}\tau} + f_{11}f_{21}^*(\tau)e^{i\omega_{21}\tau} + f_{11}f_{22}^*e^{i\omega_a\tau} + \\
 & + f_{12}(\tau)f_{11}^*e^{-i\omega_{32}\tau} + f_{12}(\tau)f_{21}^*(\tau)e^{-i(\omega_{32}-\omega_{21})\tau} + f_{12}(\tau)f_{22}^*e^{i\omega_{21}\tau} + \\
 & + f_{21}(\tau)f_{11}^*e^{-i\omega_{21}\tau} + f_{21}(\tau)f_{12}^*(\tau)e^{i(\omega_{32}-\omega_{21})\tau} + f_{21}(\tau)f_{22}^*e^{i\omega_{32}\tau} + \\
 & + f_{22}f_{11}^*e^{-i\omega_a\tau} + f_{22}f_{12}^*(\tau)e^{-i\omega_{21}\tau} + f_{22}f_{21}^*(\tau)e^{-i\omega_{32}\tau} .
 \end{aligned} \tag{5.21}$$

Assim como no capítulo 4, é necessário que se tire uma média num período óptico, uma vez que os termos interferométricos foram excluídos da detecção experimental. Assim, deve-se fazer

$$\langle \rho_{33}(\tau) \rangle_{\text{óptico}} = \frac{1}{T} \int_0^T \rho_{33}(t + \tau) dt . \quad (5.22)$$

Mais uma vez, as funções f_{ij} foram definidas tal que variassem lentamente dentro de um período óptico, o que indica que estas podem ser excluídas da integração acima. Nesta média, termos que oscilam com frequências ópticas (ω_{21} , ω_{32} e ω_a) se anulam, restando apenas os termos constantes e os termos proporcionais a $\omega_{32} - \omega_{21}$. Lembrando que apenas o sinal contendo simultaneamente contribuições do pulso 1 e do pulso 2 é coletado, pode-se reescrever a Eq. 5.21 como

$$\begin{aligned} \rho_{33}(\tau)_{\text{calculada}} &= |f_{12}(\tau)|^2 + |f_{21}(\tau)|^2 + f_{12}(\tau)f_{21}^*(\tau)e^{-i(\omega_{32}-\omega_{21})\tau} + f_{21}(\tau)f_{12}^*(\tau)e^{i(\omega_{32}-\omega_{21})\tau} \\ &= |f_{12}(\tau)|^2 + |f_{21}(\tau)|^2 + 2 \operatorname{Re} \left[f_{12}(\tau)f_{21}^*(\tau)e^{-i(\omega_{32}-\omega_{21})\tau} \right] . \end{aligned} \quad (5.23)$$

É importante salientar que o terceiro termo da equação 5.23 representa a interferência quântica entre os caminhos quânticos II e III apresentados previamente na figura 4.4. O gráfico de $\rho_{33}(\tau)_{\text{calculada}}$ é apresentado na figura 5.20 na situação em que $\varphi(\omega) = 0$ e $\alpha_0 z = 25$.

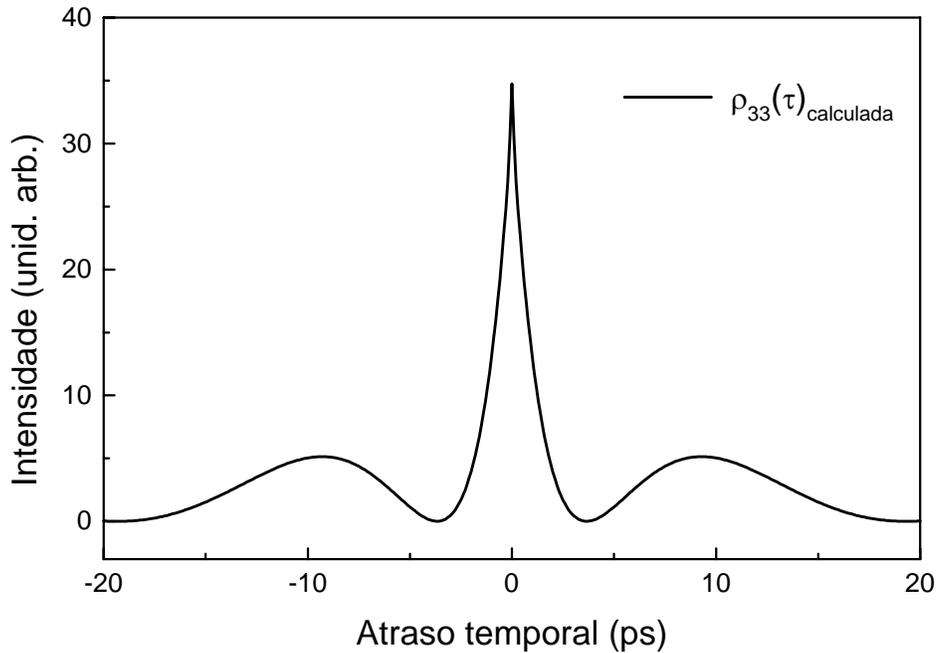


Figura 5.20: $\rho_{33}(\tau)_{\text{calculada}}$ na situação em que $\varphi(\omega) = 0$ e $\alpha_0 z = 25$.

Para analisar a física deste problema, deve-se então compreender bem como se comportam as funções $f_{12}(\tau)$ e $f_{21}(\tau)$ quando são variados os parâmetros que caracterizam a função de fase $\varphi(\omega)$. A primeira simplificação imaginada foi a de novamente aproximar a função de fase por uma função degrau, fazendo σ tender a zero. Isto, porém, não justifica o desaparecimento dos picos laterais nos gráficos experimentais da figura 5.17 correspondentes a $x = 4,3$ mm e $x = 4,8$ mm. Esta afirmação é feita baseando-se na análise da equação 5.19. Está-se interessado em uma situação em que a função $\rho_{33}(\tau)_{\text{calculada}}$ seja praticamente nula para valores de $\tau > 0$ e também para $\tau < 0$ quando determinados valores de ω_d forem atingidos. Analisando cuidadosamente a equação 5.23, percebe-se que para alcançar isto com uma função de fase na forma de um degrau, deve-se matematicamente anular (ou quase anular) uma das funções $f_{ij}(\tau)$. Porém, para que isto ocorra para todo valor de τ positivo ou negativo, é necessário que a fase tenha uma dependência com a variável τ que permita uma interferência destrutiva para qualquer valor da função $\rho_{33}(\tau)_{\text{calculada}}$ antes ou depois da origem do eixo temporal. Imaginado-se a função de fase como uma função degrau, a fase não apresenta dependência nenhuma com a variável τ , indicando que esta descrição da função de fase deve ser descartada.

Para valores não nulos de σ , um novo leque de possibilidades se abre. Neste caso a derivada da fase em relação a ω torna-se finita para diversos valores de ω , possibilitando assim um atraso de grupo dependente da frequência $\tau_g(\omega)$. Este atraso permite que a função $\rho_{33}(\tau)_{\text{calculada}}$ seja nula (ou quase nula) para vários valores de τ sem que as funções $f_{ij}(\tau)$ desapareçam. Para ilustrar esta idéia, observe a figura 5.20 a seguir, na qual os três termos da equação 5.23 estão apresentados separadamente para $\sigma = 1\text{THz}$ e $d = 6,8 \mu\text{m}$, sendo $\omega_d = \omega_{21}$ e sendo o degrau de fase decrescente tal que sua derivada é sempre negativa.

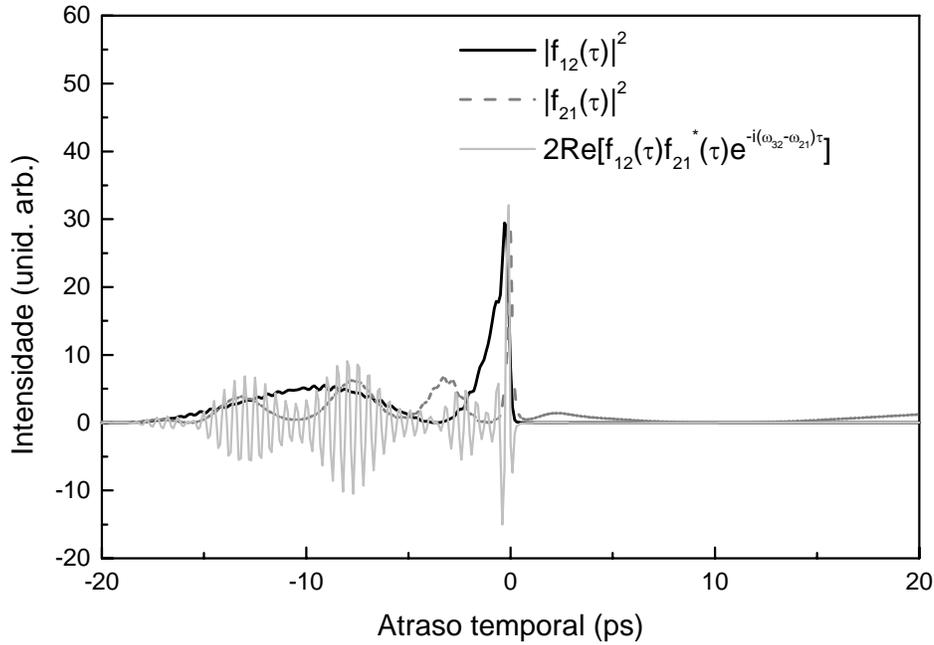


Figura 5.21: Gráficos dos três termos da equação 5.23 na situação em que $\omega_d = \omega_{21}$ e $\alpha_0 z = 25$.

Observando a figura 5.21, percebe-se que a função $f_{21}(\tau)$, antes só existente para valores de τ positivos, passa a ser diferente de zero para $\tau < 0$ devido ao atraso de grupo negativo introduzido pela fase externa. Isto permite que a interferência quântica se manifeste mais explicitamente, existindo para valores de atraso temporal distantes da origem. Percebe-se também nesta figura que a função $f_{21}(\tau)$ foi drasticamente reduzida para $\tau > 0$.

Ao se examinar a soma destes três termos, apresentada na figura 5.22, vê-se que esta deformação da função $f_{21}(\tau)$ se manifesta na amplitude do pico central, a qual aumenta de cerca de 100% comparado à situação sem fase extra, e em oscilações na frequência $\omega_{32} - \omega_{21}$ proporcionadas pela interferência entre os dois possíveis caminhos quânticos.

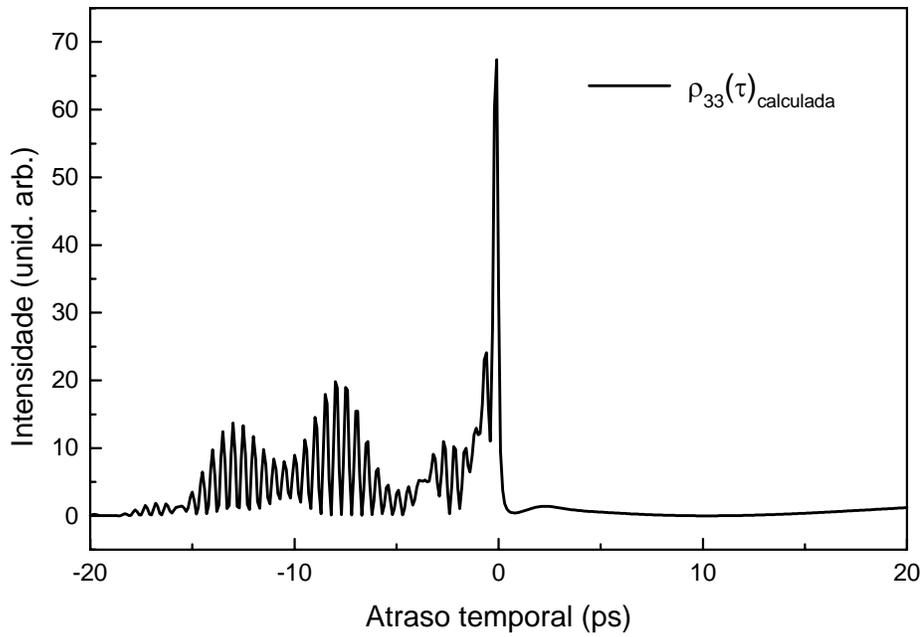


Figura 5.22: $\rho_{33}(\tau)_{\text{calculada}}$ na situação em que $\omega_d = \omega_{21}$ e $\alpha_0 z = 25$.

Ainda com os mesmos parâmetros de $\varphi(\omega)$, alterando-se apenas o valor de ω_d para se igualar a ω_{32} , constróem-se teoricamente os gráficos da figura 5.23, na qual o pico lateral da esquerda tem sua amplitude drasticamente reduzida.

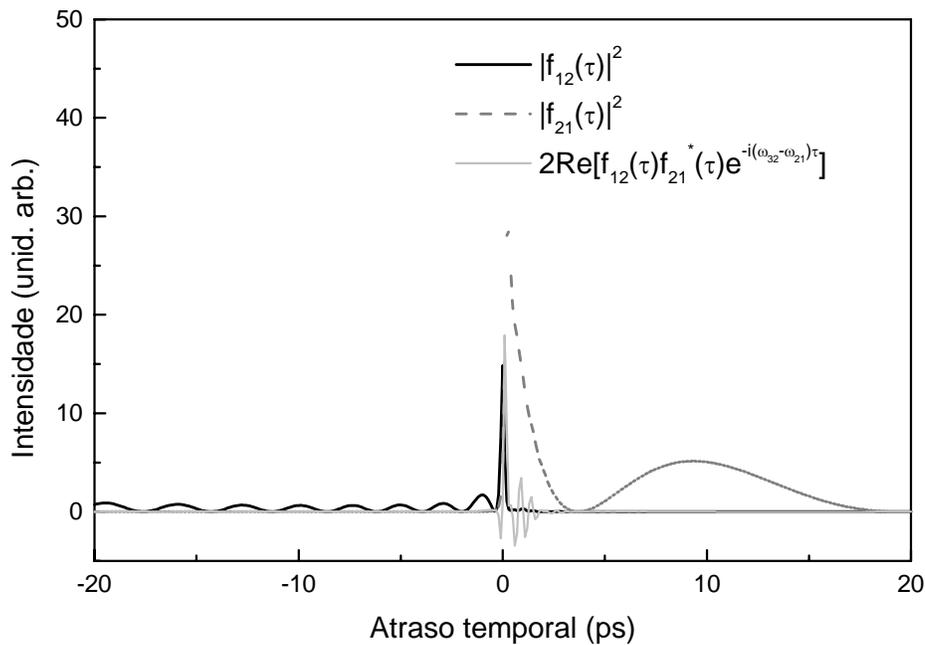


Figura 5.23: Gráficos dos três termos da equação 5.23 na situação em que $\omega_d = \omega_{32}$ e $\alpha_0 z = 25$.

Observe que, na figura 5.23, a função $f_{12}(\tau)$ manteve-se essencialmente nula para $\tau > 0$. Por outro lado, ela se espalhou pelo eixo temporal negativo, tornando sua amplitude ao longo de $\tau < 0$ próxima de zero. De fato, esta função não deveria avançar sobre o eixo positivo de τ pois o atraso introduzido pela declividade na função de fase é sempre negativo. Observe que neste caso, a amplitude máxima do pico central aumentou apenas cerca de 15%. Observe também que não apareceram as oscilações presentes na figura 5.22 pois quase não houve interceção entre as funções $f_{ij}(\tau)$, impedindo que a interferência quântica se manifestasse para valores de τ distantes da origem. A população final do nível 3 observada é então apresentada na figura 5.24.

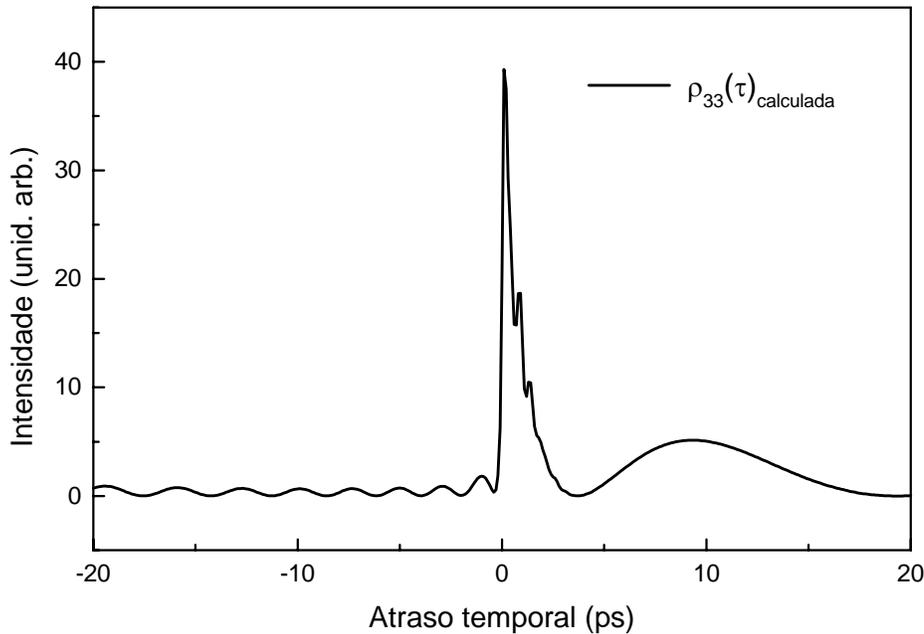


Figura 5.24: $\rho_{33}(\tau)_{\text{calculada}}$ na situação em que $\omega_d = \omega_{32}$ e $\alpha_o z = 25$.

Por fim, a última situação interessante a ser descrita é aquela em que os dois picos laterais estão presentes mas há uma redução considerável do pico central em torno de $\tau = 0$. Esta situação está apresentada nas próximas duas figuras, nas quais os três termos da equação 5.24 são apresentados separadamente (Fig. 5.25) e somados (Fig. 5.26). Como era de se esperar, esta situação corresponde a $\omega_d = \omega_L$, o que pode ser intuído reavaliando os resultados obtidos no capítulo 4.

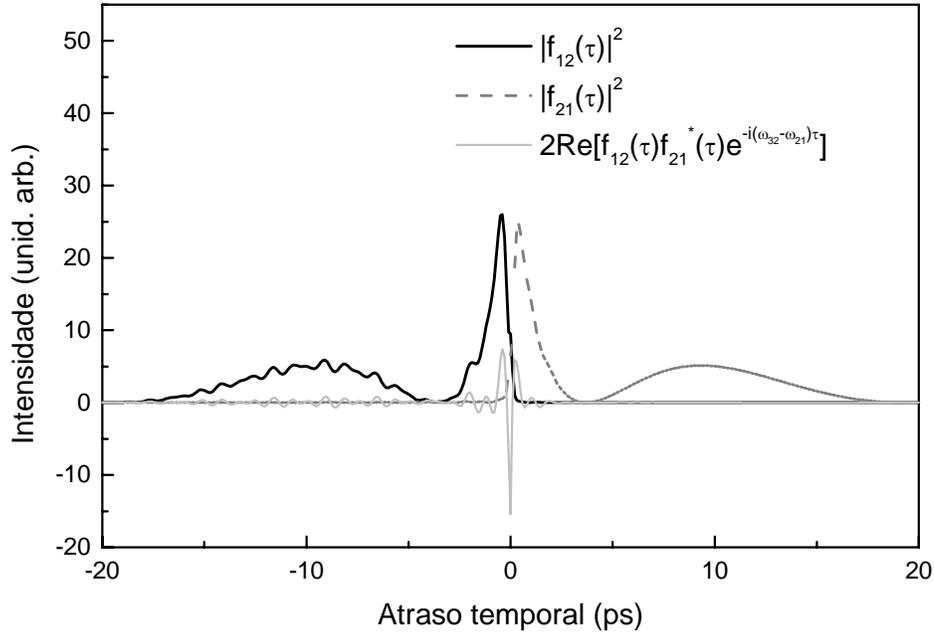


Figura 5.25: Gráficos dos três termos da equação 5.23 na situação em que $\omega_d = \omega_L$ e $\alpha_0 z = 25$.

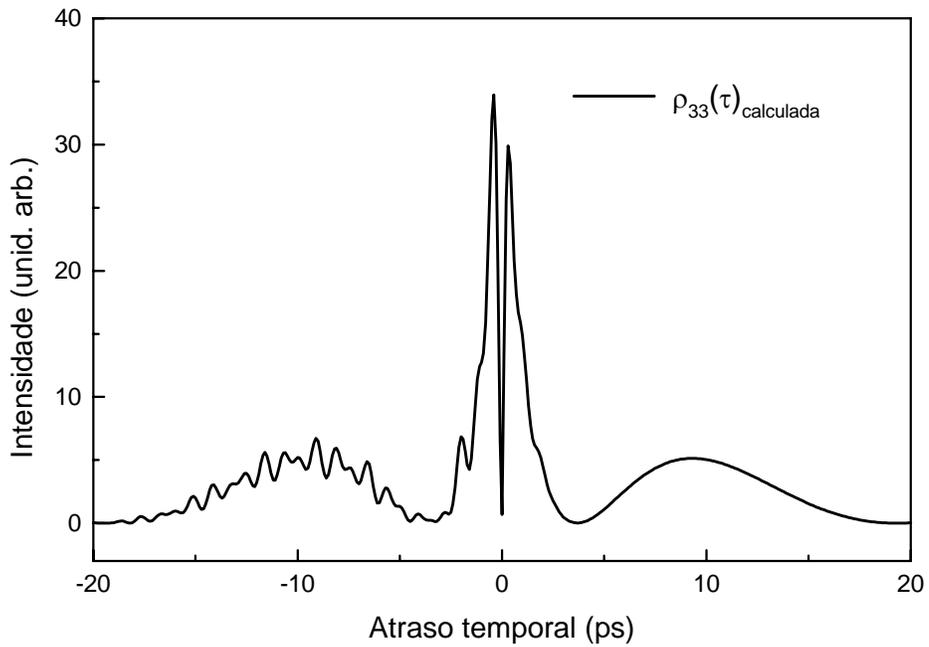


Figura 5.26: $\rho_{33}(\tau)_{calculada}$ na situação em que $\omega_d = \omega_L$ e $\alpha_0 z = 25$.

Observe que, mesmo nesta situação ainda há uma pequena deformação da função $f_{21}(\tau)$ para o eixo negativo dos τ , evidenciada no termo do produto entre os $f_{ij}(\tau)$.

Caso se resolvesse inverter a função de fase fazendo-a crescente ao longo do espectro do pulso, obtería-se, seguindo o raciocínio desta seção, curvas que são a reflexão das curvas das últimas seis figuras em torno do eixo vertical. Isto aconteceria porque o atraso de grupo neste caso seria sempre positivo, deformando as funções $f_{ij}(\tau)$ em direção ao eixo positivo dos τ .

5.5 – Transição 5S-5P-5D: comparação entre teoria e experimento

Na seção 5.3 foram apresentados resultados experimentais da transição 5S-5P-5D dos átomos de Rubídio e um modelo para descrevê-los foi apresentado na seção 5.4. Aqui vai-se comparar as características principais entre experimento e teoria para analisar se a teoria desenvolvida na seção anterior se adequou aos resultados experimentais obtidos. A teoria só foi calculada para ser comparada aos dados experimentais apresentados na figura 5.17 pois foram nestes resultados que apareceram as situações mais interessantes e apenas estes resultados serão discutidos nesta última seção.

Vale lembrar que no modelo da seção anterior não foram incluídos todos os efeitos que se sabe existir por questões de simplicidade. Portanto, as oscilações presentes na curva experimental apresentada no gráfico superior direito da figura 5.16 não aparecem na teoria e surgem experimentalmente devido ao efeito de acumulação de população no nível mais excitado.

A característica mais marcante da figura 5.17 foi o desaparecimento dos picos laterais nos gráficos em que $x = 4,3$ mm e $x = 4,8$ mm. Este desaparecimento foi creditado na seção anterior ao atraso de grupo introduzido pela função de fase e curvas teóricas semelhantes foram apresentadas na seção 5.4 nas figuras 5.20, 5.21, 5.22 e 5.23. Na análise das curvas teóricas das figuras 5.22 e 5.24, uma diferença de cerca de 75% entre os valores máximos do pico central é apresentada. Nas curvas da figura 5.17 em que $x = 4,3$ mm e $x = 4,8$ mm algo semelhante também é observado, onde a diferença entre os picos é de cerca de 80%.

Outro aspecto importante são as oscilações em 473 fs, visíveis na curva experimental correspondente a $x = 4,3$ mm da figura 5.17, e também aparente no resultado teórico apresentado na figura 5.22. Estas oscilações têm a mesma frequência que as oscilações provenientes do acúmulo da população no nível mais excitado. Agora, porém, aparecem devido ao atraso de grupo introduzido pela fase externa, que permite uma maior interseção entre as funções $f_{ij}(\tau)$ no caso em que $\omega_d = \omega_{21}$, e uma menor interseção no caso em que $\omega_d = \omega_{32}$. No primeiro caso, portanto, a interferência quântica se manifesta de forma mais clara que no segundo, conforme observado nos resultados experimentais obtidos para $x = 4,3$ mm, e $x = 4,8$ mm, respectivamente, na figura 5.17. Esta assimetria também está presente nas figuras 5.22 e 5.24.

O valor $\omega_d = \omega_{21}$ correspondente a $x = 4,3$ mm pode ser compreendido pelo argumento de cancelamento de atraso de grupo positivo apresentado anteriormente, onde foi proposto que, para este valor de ω_d , a deformação proveniente da propagação seria mais cancelada. O valor $\omega_d = \omega_{32}$ pode ser então entendido examinando-se a equação 5.19, onde vê-se que o degrau de fase, a dispersão e a absorção do campo do pulso 2 estão agora situados em torno de $\omega_a - \omega_{21} = \omega_{32}$. Estes valores de ω_d podem ser de certa forma reforçados experimentalmente ao se comparar a distância em x (0,5mm) entre os dois gráficos experimentais mais interessantes com a distância em λ_d ($\lambda_{32} - \lambda_{21} = -4\text{nm}$) dos gráficos teóricos correspondentes. Estas separações fornecem a relação de -8 nm / mm entre λ_d e x , a qual está suficientemente próxima da relação de $-8,98$ nm / mm apresentada na figura 4.11 para se chegar à conclusão de que teoria e experimento se reforçam.

Por fim, comparando-se o terceiro gráfico da figura 5.17 com o gráfico da figura 5.26 percebe-se que as características principais presentes no resultado experimental também estão presentes no cálculo teórico.

Esta concordância qualitativa entre teoria e experimento faz crer que o modelo criado é adequado para descrever qualitativamente as características principais dos resultados experimentais, indicando que a função de fase pode ser representada por uma função erro. Com

esta função de fase simples, resultados relativamente complexos e, muitas vezes, surpreendentes foram atingidos, indicando que o controle temporal coerente é uma poderosa ferramenta que pode ser implementada experimentalmente de maneira simples, porém eficaz. Como mencionado, o valor de σ utilizado na teoria foi de $\sigma = 1$ THz. O valor teórico de d utilizado, por outro lado, foi bastante distante da realidade ($d_{\text{teórico}} \approx 6,8 \mu\text{m}$ e $d_{\text{experimental}} \approx 0,3 \mu\text{m}$). Esta discrepância foi creditada à incerteza quanto ao formato real da função de fase.

Os resultados experimentais da seção 5.3 confirmam que o controle temporal coerente parcial do sistema foi realizado com sucesso, criando situações diversas de decréscimo e acréscimo da absorção de dois fótons para determinados valores e até faixas do eixo temporal. Com este modelo, pode-se planejar que situações experimentais gerar, possibilitando futuramente que se controle coerentemente um sistema atômico de maneiras mais complexas.

Capítulo 6

Conclusões

Neste trabalho realizou-se o controle coerente temporal parcial das transições 5S-7S e 5S-5P-5D de átomos de Rubídio através da manipulação da fase de pulsos de femtossegundos que excitaram o sistema atômico.

As transições 5S-7S e 5S-5P-5D foram excitadas por dois fótons provenientes de dois pulsos distintos, tendo apenas um deles sua fase óptica manipulada. Para compreender como se comporta a população do nível mais excitado nestas duas transições pela presença de um campo elétrico externo foi estudada teoria de perturbação de segunda ordem. Pesquisas sobre controle coerente foram feitas na literatura e dois exemplos de sistemas que usam teoria de perturbação de primeira e segunda ordem foram mencionados, servindo um deles de exemplo simplificado para o problema da transição 5S-7S.

A manipulação da fase de um dos pulsos excitando o sistema foi feita através da introdução de um filme fino no caminho óptico deste pulso. Este meio material introduziu a fase extra ao campo elétrico do pulso e uma teoria para descrever a influência devido à sua propagação em meios materiais foi apresentada no capítulo 3. Admitiu-se nesta teoria que o filme fino era transparente, simplificação esta que não influenciou perceptivelmente no resultado teórico.

Esta maneira escolhida para introdução da fase impôs a necessidade da separação espacial das componentes espectrais do pulso manipulado, uma vez que se queria ter a liberdade de manipular cada frequência individualmente. Esta separação foi realizada com a utilização de uma conhecida montagem experimental composta de um par de grades e um par de lentes, à qual se adicionou o filme fino. Este conjunto de componentes foi denominado aqui de Sintetizador de Fourier devido à sua propriedade de alterar a forma do pulso utilizando-se da sua transformada de Fourier. Este aparato experimental foi descrito no terceiro capítulo desta tese. Neste capítulo ainda foi apresentado um resultado experimental de calibração, o qual forneceu

uma relação entre o parâmetro experimental x e o parâmetro teórico ω_d , responsáveis por determinar que região do espectro era afetada pela função de fase. Este experimento também ilustrou um fato já previsto de que a função de fase não tinha uma descida brusca de função degrau, sendo esta melhor descrita por uma função erro. Esta conclusão não foi levada em consideração no capítulo seguinte, pois a aproximação simplificada de função degrau explicava bem os resultados experimentais da transição 5S-7S. Porém, no estudo da transição 5S-5P-5D este fato teve repercussões drásticas, sendo os resultados experimentais desta transição apenas explicados com a consideração de suavização da função degrau.

A principal diferença entre as transições 5S-7S e 5S-5P-5D é a possibilidade de ressonância com um nível intermediário, representado pelo nível $5P_{3/2}$ ressonante com a segunda mas não com a primeira destas transições. Sem esta ressonância, o tratamento do problema se torna bem mais simples e a análise física do mesmo pôde ser feita diretamente analisando-se a contribuição da fase externa no campo elétrico do pulso manipulado.

A transição 5S-7S foi abordada no capítulo 4 desta tese, onde resultados experimentais de fluorescência apresentados para diversos valores do parâmetro x apontaram a influência desta fase externa na absorção de dois fótons e indicaram que a manipulação desta fase proporcionou o controle coerente parcial desta transição. Em conjunto com estes dados, foram também apresentados resultados experimentais de correlação cruzada, os quais forneceram uma idéia do perfil temporal do pulso alterado para diversos valores de x . Cálculos teóricos baseados em teoria de perturbação de segunda ordem foram desenvolvidos com a aproximação de uma função degrau representando a fase. Esta escolha foi feita para simplificar a análise física do problema e os ajustes teóricos aos gráficos experimentais apresentados neste capítulo confirmam que esta aproximação é válida no estudo desta transição. Uma relação entre os parâmetros x (experimental) e λ_d (teórico) foi obtida após o ajuste do modelo teórico aos gráficos experimentais e uma comparação com a relação obtida anteriormente no experimento de calibração confirma que a teoria se adequou bem à realidade experimental.

O estudo da transição 5S-5P-5D, por sua vez, mostrou-se bastante complexo devido à presença da ressonância com o nível intermediário 5P. Esta ressonância foi responsável pela introdução de diversos outros efeitos não presentes na primeira transição abordada neste

trabalho. Dentre estes efeitos, destacam-se os efeitos de acumulação de população e de propagação.

Os efeitos de acumulação de população foram brevemente descritos na introdução do capítulo 5, porém não foram incluídos no modelo teórico devido à sua complexa implementação matemática. No entanto, estes efeitos puderam ser claramente observados nos resultados experimentais de fluorescência, os quais apresentaram uma oscilação de período 473 fs característica deste fenômeno.

Por outro lado, o efeito de propagação foi estudado ao longo deste trabalho e sua teoria foi descrita no início do capítulo 5 para a situação de pulsos ultracurtos de baixas intensidades, caso que se aplicou ao trabalho desenvolvido aqui. Nas duas primeiras seções deste capítulo, foram apresentados gráficos teóricos e experimentais que descreveram o perfil temporal do pulso ao se propagarem pelo meio atômico ressonante. Percebe-se nestes gráficos que a propagação por um meio atômico denso proporciona ao pulso propagado o desenvolvimento de uma cauda, atrasada com relação ao pico original do pulso, a qual oscila com períodos cada vez menores na medida em que a densidade do meio é aumentada.

Nestas seções, também são apresentados perfis temporais de pulsos que sofrem influência apenas da manipulação de fase, já mostrados através da correlação cruzada do capítulo 4, e também de ambos os efeitos de propagação e fase extra. Pode-se perceber, através da teoria e do experimento, que o perfil temporal do pulso, já deformado pelos efeitos de propagação, é bastante distorcido pela presença da fase externa. Esta distorção observada gera inclusive situações em que faixas grandes do perfil temporal antes existentes devido à propagação praticamente desaparecem.

Esta forte influência da fase externa nas deformações ocasionadas pela propagação também é evidenciada nas curvas de absorção de dois fótons desta transição, apresentados em teoria e experimento nas seções 5.3 e 5.4. Nestas curvas, não apenas o pico central é afetado pela manipulação da fase mas também os picos laterais, cujas existências se devem aos efeitos de propagação.

Observando-se os resultados apresentados neste capítulo 5 fica claro que o controle temporal coerente parcial da transição 5S-5P-5D foi atingido. Com a manipulação da fase dos campos elétricos, alcançou-se experimental e teoricamente situações em que um de dois destes picos laterais de propagação praticamente desapareceu. Estes quase cancelamentos dos picos de propagação foram creditados ao aparecimento de um atraso de grupo negativo introduzido pela derivada da função de fase externa, o qual só assumiu valores finitos ao se considerar que a função de fase tinha seu degrau suavizado. Este atraso fez com que partes do pulso fossem adiantadas com relação a outras partes do mesmo, fazendo com que absorções que deveriam acontecer num atraso temporal positivo passassem a acontecer num atraso temporal negativo. Este modelo que usa atraso de grupo como motivador do desaparecimento destes picos laterais é reforçado pela comparação de algumas características particulares entre teoria e experimento, apresentada na seção 5.5. Os resultados apresentados neste capítulo 5 fazem crer que a manipulação de fase do campo elétrico pode, ao menos parcialmente, cancelar os efeitos introduzidos pela propagação, mostrando ser esta uma importantíssima ferramenta no controle coerente de sistemas quânticos.

A concordância entre teoria e experimento não foi perfeita. Para que isto ocorra, um conhecimento da forma real da função de fase introduzida pelo filme fino deve ser obtido. A descrição mais adequada da passagem de um pulso pelo Sintetizador deve ser feita, considerando-se o tratamento não apenas no domínio espectral, mas também no domínio espacial [43,44], de forma a levar em conta de uma maneira mais apropriada os efeitos de difração. Com estas medidas as discrepâncias entre o valor teórico da espessura do filme fino e o valor real do mesmo surgidas na análise da transição 5S-5P-5D devem desaparecer. Deve-se também incluir nos cálculos o acúmulo da população no nível mais excitado para que as oscilações em 473 fs observadas experimentalmente possam ser adequadamente descritas na teoria. Acredita-se que a introdução destes fatores permita uma maior concordância entre experimento e teoria, proporcionando um maior realismo ao modelo teórico e permitindo que se preveja com maior precisão situações experimentais de interesse.

Bibliografia

1. Maria Göppert-Mayer. Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen. *Ann Phys (Leipzig)*, **9**:273-294 (1931). Versão em inglês: *Selected papers on multiphoton excitation microscopy*, Masters (2003).
2. E. P. Ippen. Principles of passive mode locking. *Appl. Phys. B*, **56**: 159-170 (1994).
3. Bernard Couillaud e Vittorio Fossati-Bellani. Modelocked lasers and ultrashort pulses, *Lasers and Applications*, janeiro de 1985:79-83, fevereiro de 1985:91-94.
4. T. W. Hänsch e H. Walther. Laser spectroscopy and quantum optics, *Rev. of Mod. Phys.*, **71** (2): S242-S252 (1999).
5. M. Bellini, A. Bartoli e T. W. Hänsch. Two-photon Fourier spectroscopy with femtosecond light pulses. *Opt. Lett.*, **22** (8): 540-542 (1997).
6. Th. Udem, R. Holzwarth e T. W. Hänsch. Optical frequency metrology, *Nature*, **416**: 233-237 (2002).
7. Steven T. Cundiff e Jun Ye. Colloquium: Femtosecond optical frequency combs, *Rev. of Mod. Phys.*, **75**:325-342 (2003).
8. M. Niering, R. Holzwarth, J. Reichert, P. Pozasov, Th. Udem, M. Weitz e T. W. Hänsch. Measurement of the hydrogen 1S-2S transition frequency by phase coherent comparison with a microwave cesium fountain clock, *Phys. Rev. Lett.*, **84** (24): 5496-5499 (2000).
9. C. A. C. Bosco, A. Azevedo e L. H. Acioli. Laser-wavelength dependence of the picosecond ultrasonic response of a NiFe/NiO/Si structure, *Phys. Rev. B*, **66**: 125406 (2002).
10. C. -K. Sun, F. Vallée, L. H. Acioli, E. P. Ippen e J. G. Fujimoto. Femtosecond-tunable measurement of electron thermalization in gold, *Phys. Rev. B*, **50** (20):15337-15348 (1994).

11. Richard S. Judson e Herschel Rabitz. Teaching lasers to control molecules, *Phys. Rev. Lett.*, **68** (10): 1500-1503 (1992).
12. Bern Kohlrer, Vlaslav V. Yakovlev, Jianwei Che, Jeffrey L. Krause, Michael Messina, Kent R. Wilson, Nikolaus Schwentner, Robert M. Whitnell e Yijing Yan. Quantum control of wave packet evolution with tailored femtosecond pulses, *Phys. Rev. Lett.* **74** (17): 3360-3363 (1995).
13. Richard N. Zare. Laser control of chemical reactions, *Science*, **279**: 1875-1879 (1998).
14. David C. Clary. Quantum theory of chemical reaction dynamics, *Science*, **279**: 1879-1882 (1998).
15. A. Assion, T. Baumert,* M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle, G. Gerber. Control of chemical reactions by feedback-optimized phase-shaped femtosecond laser pulses, *Science*, **282**: 919-922 (1998).
16. D. Meshulach e Y. Silberberg. Coherent quantum control of two-photon transitions by a femtosecond laser pulse. *Nature*, **396** (19):239-242 (1998).
17. 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** (1):47-50 (2001).
18. N. Dudovich, D. Oron e Y. Silberberg. Coherent transient enhancement of optically induced resonant transitions. *Phys. Rev. Lett.*, **88** (12):123004 (2002).
19. D. Meschukach e Y. Silberberg. Coherent quantum control of multiphoton transitions by shaped ultrashort optical pulses, *Phys. Rev. A*, **60** (2): 1287-1292 (1999).
20. R. Netz, A. Nazarkin e R. Sauerbrey. Observation of selectivity of coherent population transfer induced by optical interference. *Phys. Rev. Lett.*, **90** (6):063001 (2003).
21. V. Blanchet, C. Nicole, M. Aziz Bouchene e B. Girard. Temporal coherent control in two-photon transitions: from optical interferences to quantum interferences. *Phys. Rev. Lett.*, **78** (14):2716-2719 (1997).

22. J. Degert, W. Wohlleben, B. Chatel, M. Motzkus e B. Girard. Realization of a time-domain Fresnel lens with coherent control. *Phys. Rev. Lett.*, **89** (20):203003 (2002).
23. D. Felinto, L. H. Acioli e S. S. Vianna. Temporal coherent control of a sequential transition in rubidium atoms. *Opt. Lett.*, **25** (12): 917-919 (2000).
24. Xiao-hong Song, Shang-qing Gong, Wei-feng Yang, Shi-qi Jin, Xun-li Feng e Zhi-zhan Xu. Coherent control of spectra effects with chirped femtosecond laser pulse, *Opt. Comm.*, **236**: 151-157 (2004).
25. H. Zeng e H. Xu. Quantum controllable optical selective resonant excitation in a dense medium. *Phys. Rev. A*, **69**:043803 (2004).
26. O. E. Martinez. 3000 times grating compressor with positive group velocity dispersion: application to fiber compensation in 1.3-1.6 μm region. *IEEE*, **QE-23** (1) (1987).
27. A. M. Weiner, J. P. Heritage e J. A. Salehi. Encoding and decoding of femtosecond pulses, *Opt. Lett.*, **13** (4): 300-302 (1988).
28. A. M. Weiner, D. E. Leaird, D. H. Reitze e E. G. Paek. Spectral holography of shaped femtosecond pulses, *Opt. Lett.*, **17** (3): 224-226 (1992).
29. A. M. Weiner. Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators, *Rev. Sci. Instrum.*, **71** (5): 1929-1960 (2000).
30. A. M. Weiner, D. E. Leaird, J. S. Patel e J. R. Wullert. Programmable femtosecond pulse shaping by use of a multielement liquid-crystal phase modulator, *Opt. Lett.*, **15** (6): 326-328 (1990).
31. J. P. Heritage, A. M. Weiner e R. N. Thurston. Picosecond pulse shaping by spectral phase and amplitude manipulation, *Opt. Lett.*, **10** (12): 609-611 (1985).
32. J. J. Sakurai. *Modern Quantum Mechanics*, Addison-Wesley (1995).
33. Anthony E. Siegman. *Lasers*, University Science Books (1986).

34. D. Felinto. *Tese de doutorado: Interação coerente de sistemas atômicos com trens de pulsos ultracurtos*. Departamento de Física, UFPE (2002).
35. D. Felinto, C. A. C. Bosco, L. H. Acioli e S. S. Vianna. Accumulative effects in temporal coherent control. *Phys. Rev. A*, **64**: 063413 (2001).
36. 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**: 69-73 (2003).
37. M. D. Crisp. Propagation of small-area pulses of coherent light through a resonant medium, *Phys. Rev. A*, **1** (6):1604-1611 (1970).
38. Joshua E. Rothenberg, D. Grischkowsky e A. C. Balant. Observation of the formation of 0π pulse, *Phys. Rev. Lett.*, **53** (6): 552-555 (1984).
39. L. Allen e J. H. Eberly. *Optical resonance and two-level atoms*. Dover (1987).
40. A. Gallagher e E. L. Levis. Determination of the vapor pressure of rubidium by optical absorption, *JOSA*, **63** (7): 864-869 (1973).
41. Mohamed Aziz Bouchene. Phase control of dispersion effects for an ultrashort pulse train propagating in a resonant medium, *Phys. Rev. A*, **66**: 065801 (2002).
42. M. Jacquy, S. Bonhommeau e M. A. Bouchene. Experimental demonstration of phase control of dispersion effects for an ultrashort pulse train propagating in a resonant medium, *Opt. Lett.*, **28** (14): 1272-1274 (2003).
43. A. G. Kostenbauder. Ray-pulse matrices: a rotational treatment for dispersive optical systems, *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, **26** (6): 1148-1157 (1990).
44. Sol P. Dijaili, Andrew Dienes e Jhon Stephen Smith. ABCD matrices for dispersive pulse propagation, *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, **26** (6): 1158-1164 (1990).