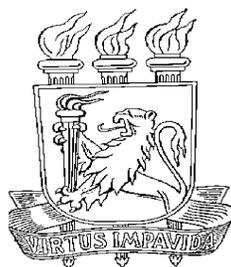


**TESE DE DOUTORADO**

**INTERAÇÃO COERENTE DE SISTEMAS ATÔMICOS COM  
TRENS DE PULSOS ULTRACURTOS**

Daniel Felinto Pires Barbosa



**UNIVERSIDADE FEDERAL DE PERNAMBUCO  
CENTRO DE CIÊNCIAS EXATAS E DA NATUREZA  
DEPARTAMENTO DE FÍSICA**

Recife, dezembro de 2002



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

*Interação coerente de sistemas atômicos com  
trens de pulsos ultracurtos*

*Daniel Felinto Pires Barbosa*

Tese apresentada ao Departamento de Física da Universidade Federal de Pernambuco, como parte dos pré-requisitos para a obtenção do título de Doutor em Ciências.

Orientadora:

*Profa. Sandra Sampaio Vianna*

Co-orientador:

*Prof. Lúcio Hora Acioli*



# Agradecimentos

Esta tese de doutorado é o resultado de quatro anos de trabalho. Ao longo desse período, foi fundamental a contribuição de muitas pessoas, às quais gostaria aqui de agradecer. Primeiramente, gostaria de agradecer à Professora Sandra por toda atenção que tem me dedicado nos últimos sete anos. Aprendi muito com esse convívio, que será sempre minha principal referência de boa orientação. Gostaria de agradecer também ao Professor Lúcio, que me co-orientou no doutorado e que muito me ensinou durante nossas inúmeras discussões. Sua presença foi constante e imprescindível em todas as partes desta tese. Gostaria de agradecer ainda ao Carlos, também aluno de doutorado, cuja participação foi decisiva para a realização de boa parte dos experimentos que apresentamos. O Professor Tabosa também foi fundamental para a realização dos experimentos de absorção saturada e gostaria de agradecê-lo por isso. Além de emprestar o laser utilizado no experimento, ele me esclareceu muitos detalhes do experimento. Neste sentido, também gostaria de agradecer ao aluno de doutorado Sergio, que discutiu comigo longamente vários pontos deste experimento. Outra ajuda muito importante que gostaria de agradecer foi a dada pelo Professor Anderson, que nos cedeu as instalações de seu laboratório para a realização de vários experimentos. Sou grato ainda às secretárias Linet e Ana, que sempre me guiaram de forma segura pelos meandros burocráticos. Além desses agradecimentos mais específicos, gostaria de agradecer ainda a todos os outros membros do grupo de ótica do departamento. Foram todos, sem exceção, sempre muito abertos para qualquer

discussão e procuraram ajudar ao máximo sempre que procurados. A convivência dentro deste grupo tem sido uma excelente experiência, servindo para mim de grande exemplo de espírito acadêmico. Finalmente, gostaria de agradecer aos meus pais, cujo apoio foi sempre fundamental muito além dos limites desta tese, e a Nara, por me ajudar a atravessar esses quatro longos anos sem perder o foco do que realmente importa.

# Resumo

Nesta tese, investigamos a atuação de trens de pulsos ultracurtos sobre sistemas atômicos de dois e três níveis para os quais os tempos de vida das transições são maiores que o período de repetição do laser. Realizamos experimentos que mostram que a acumulação de excitação no meio leva ao surgimento de novos batimentos em um sinal de controle temporal coerente obtido a partir de uma transição seqüencial de um vapor de rubídio, onde a fluorescência dos estados excitados é medida em função do atraso relativo entre dois pulsos de excitação. Oferecemos uma primeira explicação para esses resultados utilizando uma teoria analítica simplificada que leva em conta acumulação apenas na população do nível mais excitado. Em seguida, revisitamos o problema da interação coerente de um átomo de dois níveis com um longo trem de pulsos, considerando a existência de fases relativas entre os pulsos do trem. Obtivemos uma expressão analítica para o estado estacionário do sistema que é válida para qualquer área de pulso e para dessintonias bem maiores que a largura inhomogênea do meio. Ilustramos o efeito da acumulação de coerência num sistema de dois níveis com um experimento de absorção saturada em que um laser contínuo sonda a atuação de um laser de femtosegundos sobre o perfil Doppler de um vapor de rubídio. Finalmente, desenvolvemos uma teoria perturbativa para tratar o caso de um átomo de três níveis levando em conta acumulação em todas as populações e coerências, e discutimos o efeito da forma da envoltória do pulso sobre o processo de acumulação. Utilizamos então esta teoria para corroborar a expli-

cação simplificada que demos para nossos resultados relacionados ao controle temporal coerente.

# Abstract

In this thesis, we investigate the action of trains of ultrashort pulses on two- and three-level atomic systems for which the transition lifetimes are greater than the laser repetition period. We performed experiments that show that accumulation of excitation in the sample is responsible for the appearance of new beatings in a temporal-coherent-control signal from a sequential transition in rubidium vapor, where fluorescence from the excited levels is measured as a function of the delay between two excitation pulses. A first explanation for these results is given on the basis of a simplified analytical theory that considers accumulation only in the highest-level population. Next, we discuss the problem of coherent interaction between two-level atoms and a long train of pulses, taking into account the existence of relative phases between the pulses in the train. We deduce an analytical expression for the stationary state of the system, which is valid for arbitrary pulse areas and detunings much larger than the inhomogeneous linewidth of the sample. The effect of coherence accumulation in a two-level system is illustrated by performing a saturated absorption experiment in which a continuous laser probes the action of a femtosecond laser over the Doppler profile of a rubidium vapor. Finally, we develop a perturbative theory for three-level atoms, considering accumulation in all populations and coherences, and we use this theory to discuss the role of the pulse shape over the accumulation process. This theory is also used to corroborate the simplified explanation previously given to our results related to the technique of temporal coherent control.



# Índice

<b>1</b>	<b>Introdução</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Controle temporal coerente</b>	<b>11</b>
2.1	Transição de dois fótons: experimento e teoria . . . . .	13
2.2	Transição seqüencial . . . . .	26
2.2.1	pulsos $0\pi$ . . . . .	34
2.2.2	Primeira teoria . . . . .	42
2.3	Acumulação incoerente . . . . .	45
<b>3</b>	<b>Acumulação coerente num sistema de dois níveis</b>	<b>53</b>
3.1	Modelo . . . . .	57
3.2	Solução para um estado inicial arbitrário . . . . .	59
3.3	Estado estacionário da acumulação coerente . . . . .	62
3.4	Experimento de absorção saturada . . . . .	70
<b>4</b>	<b>Acumulação coerente num sistema de três níveis</b>	<b>79</b>
4.1	Modelo . . . . .	83
4.2	Solução para um estado inicial arbitrário . . . . .	84
4.2.1	Dedução das expressões para os vários $s_{ij}(t)$ . . . . .	86
4.2.2	O estado antes do próximo pulso . . . . .	91

4.3	Acumulação com diferentes formas de pulso . . . . .	93
4.3.1	Pulsos secante hiperbólicos . . . . .	95
4.3.2	Pulsos $0\pi$ . . . . .	104
4.4	Controle temporal coerente . . . . .	110
<b>5</b>	<b>Conclusão</b>	<b>121</b>
<b>A</b>	<b>Equações de Bloch para um sistema de três níveis</b>	<b>127</b>
<b>B</b>	<b>Relações úteis</b>	<b>131</b>
	<b>Bibliografia</b>	<b>135</b>

# Capítulo 1

## Introdução

Nos últimos anos, os lasers de femtosegundos têm se tornado ferramentas fundamentais para o desenvolvimento de importantes ramos da ciência. À medida que a largura temporal dos pulsos de laser iam diminuindo, passou a ser possível o estudo de fenômenos cada vez mais rápidos. Uma das conseqüências importantes deste processo foi a formulação e o aperfeiçoamento da idéia de controle coerente de reações químicas, que consiste em buscar privilegiar um dos possíveis produtos de uma reação através da iluminação da amostra com pulsos de laser projetados especificamente para esse fim [1]. Para a realização deste controle é essencial a utilização de pulsos com duração da ordem dos tempos característicos das reações estudadas, normalmente na escala de femtosegundos. Durante a última década, esta área se desenvolveu bastante no sentido de produzir técnicas que prometem um considerável impacto tecnológico [2]. É possível atualmente, por exemplo, controlar reações entre moléculas complexas [3] ou até mesmo funções biológicas [4] sem um conhecimento detalhado prévio da função de onda que descreve o sistema [2, 5].

Outro ramo em que os lasers de femtosegundos exercem um papel fundamental é em metrologia de frequências óticas [6]. Esta área tem passado por uma verdadeira revolução nos últimos cinco anos, desde que foi mostrado ser possível comparar frequências em

regiões bem separadas do espectro com o auxílio do pente de frequências de um laser de femtosegundos [7, 8]. Neste caso, é essencial um pulso ultracurto pela sua maior largura de banda, que pode chegar a cobrir todo o espectro visível, possibilitando a comparação entre frequências em toda esta região. Este novo conjunto de técnicas de metrologia já melhorou a precisão das medidas de frequência em vários sistemas, como  $\text{In}^+$  [9],  $\text{H}$  [10, 11],  $\text{Hg}^+$  [12, 13],  $\text{Ca}$  [12],  $\text{Cs}$  [14] e  $\text{I}_2$  [15]. As frequências dos padrões óticos do  $\text{Hg}^+$  e  $\text{Ca}$  foram medidas na Ref. [12] com precisão de cerca de uma parte em  $10^{15}$ , o que implica que estas são atualmente as medidas de maior precisão de frequências de transições óticas. Estas novas técnicas também estão levando rapidamente à construção de um relógio totalmente ótico que pode resultar em uma melhora de precisão na medida de diversas quantidades em todos os ramos da física [6, 13].

O tema desta tese se insere entre estes dois paradigmas atuais de aplicação dos lasers de femtosegundos. Vamos discutir aqui a interação coerente de sistemas atômicos com trens de pulsos ultracurtos. No nosso caso a interação coerente ocorre tanto entre o átomo e um único pulso do laser, como entre o átomo e o trem de pulsos como um todo. Os estudos sobre controle coerente usualmente se restringem à interação entre um único pulso do laser e o sistema quântico a ser controlado. Nesse sentido, vamos discutir várias consequências da extensão das idéias de controle coerente para a interação não apenas com um único pulso, mas agora com todo o trem de pulsos emitido pelo laser. Por outro lado, quando se discute interação com trens de pulsos, devemos considerar que o espectro do campo atuando no sistema assume agora a forma de um pente de frequências, não tendo mais o perfil suave característico do espectro de um pulso individual usual. Este pente de frequências é o mesmo que serve de base para as atuais aplicações em metrologia. O estudo de efeitos do pente de frequências do laser em meios atômicos pode levar, por exemplo, a novos esquemas de estabilização de fase em lasers de femtosegundos, que é uma parte essencial da instrumentação utilizada em metrologia [16].

---

No controle coerente de sistemas quânticos por pulsos de laser, o objetivo mais geral é descobrir a melhor forma do pulso que leve ao estado final desejado do sistema. As várias técnicas de controle coerente podem ser divididas com relação ao número de graus de liberdade disponíveis para a manipulação da forma do pulso. As técnicas mais simples, e por isso mesmo mais utilizadas, usam apenas poucos graus de liberdade. Um exemplo desse tipo é o chamado controle temporal coerente, em que combinações de pulsos ultracurtos de laser com atrasos relativos variáveis excitam o sistema. Neste caso, os únicos parâmetros modificados são os atrasos temporais relativos entre os pulsos. A versão mais comum desta técnica emprega apenas um par de pulsos. Um exemplo de técnica com muitos graus de liberdade é o chamado controle ótimo [17], em que uma máscara de cristal líquido junto com um par de grades são utilizados para manipular de forma arbitrária tanto a amplitude como a fase da envoltória de um pulso individual. Neste caso, o número de graus de liberdade para manipulação depende principalmente da definição espacial da máscara empregada.

A primeira parte do nosso trabalho, apresentada no Cap. 2, discute o controle temporal coerente de uma transição seqüencial, mais especificamente da transição  $5S \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 5D$  do rubídio. Utilizamos para tanto um trem de pulsos com largura temporal de cerca de 100 fs, vindo de um laser de Ti:safira com fase travada. O trem de pulsos excita o vapor de rubídio contido em uma célula aquecida. A densidade do vapor é estabelecida pela temperatura da célula. Nesse sistema, ao medir a fluorescência dos estados excitados como função do atraso relativos entre dois pulsos de excitação, observamos diversos tipos de batimentos: desde interferométricos (nas frequências óticas de todas as transições envolvidas no processo de excitação), passando por um batimento na diferença entre as frequências de excitação, até um batimento com período de vários picosegundos que varia com a densidade. Também observamos distorções da envoltória do pulso devido a efeitos de propagação, o que explica a variação do batimento com a

densidade.

A técnica de controle temporal coerente tem sido aplicada a uma grande variedade de sistemas, tais como átomos [18, 19], moléculas [20, 21, 22], e excitons em poços quânticos semicondutores [23]. A motivação para o controle varia de um sistema para o outro. Em moléculas, como já foi citado, existe o interesse no controle detalhado de reações químicas [3], enquanto que em semicondutores, uma das metas é o desenvolvimento de chaves óticas ultra-rápidas [23, 24]. Os sistemas mais simples, como átomos alcalinos e moléculas diatômicas, servem de protótipos: para eles, é possível desenvolver teorias que são mais fáceis de comparar com os dados experimentais.

No controle temporal coerente, a observação de batimentos interferométricos (com períodos de poucos femtosegundos) em átomos e moléculas diatômicas tem recebido muita atenção, pois eles estão diretamente conectados a interferências quânticas entre caminhos de excitação [18, 19, 21, 22, 25]. Uma extensão direta dessas observações interferométricas para poços quânticos em semicondutores pode ser encontrada na Ref. [26]. Para sistemas moleculares simples, também existe um grande número de medidas relativas à dinâmica de pacotes de onda vibracionais [20, 21, 22]. A maioria dos estudos com átomos e moléculas diatômicas, no entanto, foram realizados a baixas densidades óticas para evitar efeitos de propagação sobre os pulsos de laser. Neste contexto, nossos resultados do Cap. 2 já representam uma extensão da discussão do controle temporal coerente para um regime com altas densidades e incluindo efeitos de propagação. Os batimentos interferométricos observados por nós também possuem uma riqueza maior do que os comumente encontrados na literatura, pois eles vêm do jogo entre três diferentes transições atômicas, enquanto o mais comum é observar batimentos relativos a uma única transição.

A principal contribuição da investigação apresentada no Cap. 2 foi mostrar a necessidade de introduzir um novo elemento físico na explicação do sinal de con-

---

trole temporal coerente. Estamos nos referindo à acumulação de excitação no meio, originária do fato dos tempos de vida das populações e das coerências dos níveis atômicos serem maiores que o período de repetição do laser, de modo que o sistema nunca relaxa completamente entre dois pulsos consecutivos do laser. Para mostrar a necessidade de considerar este efeito, iniciamos este capítulo com a descrição dos nossos resultados obtidos para a transição de dois fótons  $5S \rightarrow 7S$ , em que o nível intermediário  $5P_{3/2}$  está completamente fora de ressonância. Estes resultados para uma transição de dois fótons já são conhecidos na literatura [18], que oferece uma boa explicação para as observações baseada na interação de um átomo com um único par de pulsos. No entanto, mostramos que a mesma abordagem teórica é insuficiente para explicar nossas observações para uma transição seqüencial.

A primeira explicação que oferecemos para os experimentos do Cap. 2 é baseada na acumulação apenas da população no nível  $5D$ , que tem o maior tempo de vida. A simplificação do tratamento foi realmente um dos principais motivos para considerarmos que apenas a população do nível com maior tempo de vida sobrevive entre dois tiros do laser. Esta teoria simples, no entanto, já é suficiente para explicar todas as principais características do nosso sinal. Mostramos com isso que o batimento que observamos na diferença entre as frequências das transições  $5S \rightarrow 5P_{3/2}$  e  $5P_{3/2} \rightarrow 5D$  se origina do jogo entre dois processos: a excitação por dois fótons a partir do nível fundamental, e a emissão estimulada na transição  $5P_{3/2} \rightarrow 5D$ . Esta emissão estimulada, obviamente, só é possível na medida em que alguma população sobrevive no nível  $5D$  de um pulso do laser para o outro.

Já ressaltamos no último parágrafo que a consideração de acumulação apenas de população no nível  $5D$  é uma simplificação da situação física dos experimentos do Cap. 2. Isto porque outras quantidades características do sistema atômico, como a coerência entre os níveis  $5S$  e  $5D$ , também devem passar por um processo de acumulação nas nossas

condições experimentais. Discutir acumulação nas coerências, no entanto, é razoavelmente mais complicado, pois devemos levar em consideração as precessões interferométricas das coerências, e como estas se articulam com a oscilação também interferométrica dos campos dos vários pulsos consecutivos que atingem o meio.

A investigação de efeitos de acumulação coerente em transições óticas já tem mais de vinte anos. Em 1977, Teets e colaboradores [27] já haviam descrito algumas de suas características mais básicas, e demonstraram a possibilidade de utilizar trens de pulsos curtos para realizar espectroscopia de alta resolução, onde as larguras de linha observadas são bem menores que o limite da transformada de Fourier dos pulsos individuais no trem. No domínio das frequências, a explicação para esse efeito vem do fato, já frisado acima, de que quando o tempo de relaxação da coerência é maior que o período de repetição dos pulsos, os átomos interagem com o pente de frequências do trem de pulsos, e não com o espectro de um pulso individual. A largura espectral de um dos dentes do pente é bem menor que a largura espectral de cada pulso, o que leva à possibilidade de realizar espectroscopia com resolução melhor que a determinada por um único pulso. Este conceito básico foi empregado em vários esquemas experimentais diferentes, como espectroscopia de dois fótons livre de efeito Doppler [27, 28], espectroscopia de polarização em vapores atômicos [29], absorção saturada em vapores moleculares [30], absorção linear num feixe atômico [31], e espectroscopia de dois fótons numa armadilha magneto-ótica [32]. Em todos esses experimentos, o pente de frequências do laser é variado, e um sinal livre de efeito Doppler é observado toda vez que um modo do laser fica ressonante com uma das frequências de transição do sistema. Outro conjunto de experimentos emprega campos magnéticos para modificar a separação de níveis do sistema, e um sinal é observado toda vez que uma das frequências de separação fica ressonante com um modo do laser [33, 34, 35]. Efeitos de acumulação coerente são também investigados na área de ressonância magnética nuclear desde a década de 1950, estando por trás da técnica

---

de Ressonância Magnética Nuclear de Estado Estacionário da Precessão Livre [36, 37].

Visando uma introdução mais compreensiva ao problema da acumulação de coerência atômica na transição seqüencial do Cap. 2, resolvemos abordar antes o seu análogo para um átomo de dois níveis. Este tratamento é apresentado no Cap. 3. Apesar de este ser um problema conhecido há vários anos, o tratamento do Cap. 3 resulta em várias contribuições originais. Mais especificamente, obtivemos uma solução analítica para o problema da excitação de átomos de dois níveis, alargados inhomogeneamente, por um trem de pulsos ultracurtos. Esta solução é válida para pulsos individuais de área arbitrária e para qualquer função envoltória real de curta duração. Também consideramos o efeito de diferenças de fase entre pulsos consecutivos, de modo a ser consistente com os modelos mais detalhados para o trem de pulsos emitido por um laser de Ti:safira com travamento de modos [7, 38]. A forma como esta fase é tratada no modelo possui um amplo embasamento em vários experimentos de caracterização do pente de freqüências desses lasers. A principal aproximação que fizemos foi considerar que cada pulso do trem é muito curto se comparado aos tempos de vida atômicos ou ao período de precessão livre da coerência. Esta, no entanto, é uma condição facilmente satisfeita para pulsos de fentosegundos. Os tratamentos teóricos anteriores para este problema normalmente fornecem apenas soluções perturbativas para áreas de pulso pequenas, ou soluções numéricas para áreas maiores [39, 40, 41, 42]. Até onde sabemos, todas as expressões analíticas obtidas anteriormente se restringem a situações bem específicas, como pulsos quadrados e dessintonia nula [39, 43]. Também ilustramos os efeitos de acumulação de coerência num sistema de dois níveis através de um experimento de absorção saturada em que um laser de Ti:safira de fentosegundos imprime o seu pente de freqüências no perfil Doppler de um vapor atômico.

A discussão da acumulação de coerência num sistema de três níveis, como o do Cap. 2, é apresentada no Cap. 4. Neste capítulo, introduzimos um tratamento teórico que fornece

a solução para o estado estacionário do sistema levando em conta acumulação em todas as populações e coerências. Este tratamento é válido para envoltórias arbitrárias, reais ou complexas, e para qualquer dessintonia. No entanto, ao contrário do tratamento do Cap. 3, as expressões do Cap. 4 foram deduzidas apenas para o regime perturbativo.

A descrição do sistema de três níveis, e mais especificamente da transição seqüencial, revela um quadro muito mais rico que para o caso de dois níveis apenas. Isto porque temos agora competição entre as diferentes transições. Para ilustrar esta competição, discutimos a excitação do sistema por trens de pulsos tipo secante hiperbólica e tipo  $0\pi$  [44, 45]. Mostramos então que a excitação por pulsos secante hiperbólica, o caso mais comum, leva a um domínio da primeira transição sobre o estado final do sistema. Este domínio é revelado pela periodicidade que o pente de freqüências imprime no perfil Doppler de um vapor atômico. Já a excitação por pulsos  $0\pi$ , o nosso caso experimental, leva ao domínio da transição de dois fótons. Esta discussão revela a importância da forma do pulso sobre o processo de acumulação, o que aponta para o interesse de se combinar as técnicas de controle coerente com as técnicas de manipulação detalhada do pente de freqüências do laser.

Um outro ponto importante é perceber que o processo de excitação por um trem de pulsos difere bastante da excitação por um único pulso. Por exemplo, a excitação por um trem de pulsos  $0\pi$  resulta numa inversão de população na segunda transição, o que não ocorre na excitação por um único pulso  $0\pi$ . No geral, as populações relativas nos vários níveis excitados variam bastante quando se compara a excitação de um pulso apenas com a de um trem de pulsos. Usualmente, os níveis atômicos mais altos, que seriam menos excitados por terem forças de osciladores menores, são privilegiados pelo fato de terem tempos de vida mais longos. Portanto, a própria discussão sobre controle coerente precisa levar em conta esses efeitos de acumulação para oferecer uma explicação adequada para as medidas com configurações experimentais em que eles ocorrem. Além

disso, esta generalização do problema de controle coerente para trens de pulsos pode oferecer outras alternativas para as atuais técnicas de controle.

Mencionamos anteriormente que a observação de efeitos no meio atômico que dependem do pente de frequências do laser pode ser interessante para as atuais aplicações em metrologia. Como um exemplo específico, sugerimos uma medida simples da fluorescência a partir de um vapor atômico em que é possível obter informação sobre um dos graus de liberdade do pente de frequências do laser, no caso a separação entre os dentes do pente, independentemente de outros graus de liberdade. Medidas desse tipo em sistemas atômicos podem eventualmente servir como uma alternativa para as atuais técnicas de retro-alimentação utilizadas para a estabilização de lasers de femtosegundos, como discutido na Ref. [16].

No Cap. 4 também fazemos a comparação entre os dados experimentais do Cap. 2 e a teoria com acumulação em todas as populações e coerências. Esta teoria representa uma generalização da anterior que considerava apenas acumulação na população do nível com o maior tempo de vida. Obtivemos um bom acordo, e confirmamos novamente com isso a necessidade de se levar em conta efeitos de acumulação para explicar os nossos experimentos.

Finalmente, no Cap. 5 tecemos nossas conclusões sobre o estudo apresentado ao longo da tese. Revisitamos, portanto, nossos principais resultados e indicamos alguns possíveis desenvolvimentos futuros.



# Capítulo 2

## Controle temporal coerente

Neste capítulo, iremos discutir uma série de resultados experimentais relativos ao controle temporal coerente de uma transição seqüencial num sistema de três níveis em cascata do rubídio. Utilizaremos a configuração mais simples para o controle temporal coerente, ou seja, um único par de pulsos. A transição seqüencial que iremos estudar é a  $5S \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 5D$ . No entanto, também analisaremos em detalhe a transição de dois fótons  $5S \rightarrow 7S$ , de modo a comparar seus resultados com os da transição seqüencial.

A análise relativa à excitação da transição  $5S \rightarrow 7S$  do rubídio é feita na seção 2.1. Nesta seção apresentamos o sistema experimental utilizado na maior parte dos nossos estudos, juntamente com uma teoria que explica muito bem os resultados experimentais obtidos para esta transição. Esta teoria é baseada na interação de um único par de pulsos com o átomo. Este estudo é análogo ao desenvolvido na Ref. [18] para o caso da transição  $6S \rightarrow 7D$  do cézio.

Na seção 2.2 são apresentados os nossos resultados experimentais para a transição seqüencial. Mostramos então que a excitação de uma transição seqüencial possui várias características bem distintas da excitação de uma transição de dois fótons direta. Uma dessas características, um batimento que varia com a densidade da amostra, é esclarecida

já na seção 2.2.1. Este batimento decorre de distorções da envoltória do pulso devido a efeitos de propagação no meio. No entanto, mesmo levando em conta a envoltória distorcida do pulso, observamos que a teoria da seção 2.1 (para a transição de dois fótons) não consegue explicar todas as características principais do sinal da transição seqüencial.

Uma explicação para os resultados da transição seqüencial é apresentada na seção 2.3, quando consideramos acumulação de população no nível  $5D$ . Nesta seção, descrevemos as modificações necessárias na teoria para levar em conta que alguma população sobrevive no nível mais excitado do sistema entre dois tiros consecutivos do laser. Esta teoria é comparada com os resultados experimentais da transição  $5S \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 5D$ .

Os resultados experimentais da seção 2.2 estão publicados no artigo intitulado "Temporal coherent control of a sequential transition in rubidium atoms" [46]. Uma explicação quantitativa para esses resultados foi dada apenas num artigo posterior intitulado "Accumulative effects in temporal coherent control" [47], que contém a análise da seção 2.3.

É pertinente aqui uma observação sobre a nomenclatura usada. O estudo de interferências quânticas em transições de dois fótons excitadas por pares de pulsos já tem algumas décadas. Um estudo de revisão sobre o tema pode ser encontrado, por exemplo, num artigo de M. M. Salour de 1978 [48]. O termo *controle temporal coerente* engloba atualmente o estudo da atuação de conjuntos de pulsos atrasados entre si em sistemas de níveis os mais variados, incluindo aí sistemas moleculares bem complexos. Nos últimos anos, este termo vem sendo usado também para designar os estudos em sistemas atômicos mais simples [18], de modo a sublinhar a conexão desses estudos com as investigações em sistemas moleculares. Decidimos manter esta nomenclatura tanto nos artigos como nesta tese para reforçar a conexão com os artigos mais recentes de outros grupos sobre o tema, e com a atual motivação para esses estudos, que é o controle coerente de sistemas quânticos.

## 2.1 Transição de dois fótons: experimento e teoria

Nesta seção discutiremos a excitação de um átomo de três níveis em cascata pelo campo de um par de pulsos do laser. Primeiramente, iremos obter expressões para o problema utilizando teoria de perturbação de segunda ordem. Em seguida, essas expressões serão empregadas na interpretação dos nossos resultados experimentais relativos à excitação de uma transição de dois fótons, em que o nível intermediário está fora de ressonância.

No que segue, os estados  $|1\rangle$ ,  $|2\rangle$  e  $|3\rangle$  se referem aos níveis fundamental, intermediário e mais excitado, respectivamente. O hamiltoniano do sistema é dado por  $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}(t)$ , onde  $\hat{H}_0 = \hbar\omega_{12}|2\rangle\langle 2| + \hbar\omega_{13}|3\rangle\langle 3|$  é o operador hamiltoniano do átomo livre e  $\hat{V}(t)$  é o potencial dependente do tempo que descreve a interação com o campo. Note que  $\omega_{12}$  é a frequência correspondente à energia da transição  $1 \rightarrow 2$ , enquanto  $\omega_{13}$  é a frequência da transição  $1 \rightarrow 3$ . Se  $|\Psi(t)\rangle$  representa o estado do sistema num instante  $t$  qualquer na representação de Schrödinger, então esse estado na representação de interação é dado por

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

onde a evolução temporal dos coeficientes  $c_i(t)$  é devida apenas à presença de  $\hat{V}(t)$ . Consideraremos o átomo inicialmente no estado fundamental, de modo que

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

A evolução temporal de  $|\Psi(t)\rangle_I$  é determinada pelo operador de propagação temporal na representação de interação [49]

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

onde

$$\hat{V}_I(t) = e^{i\hat{H}_0 t/\hbar} \hat{V}(t) e^{-i\hat{H}_0 t/\hbar} \quad (2.1)$$

é o potencial de interação na representação de interação. A grandeza que iremos sondar experimentalmente mais à frente é a população do nível 3. Sendo assim, iremos nos concentrar no cálculo de  $c_3(t)$ . Em termos do propagador temporal, este coeficiente é dado por

$$c_3(t) = \langle 3 | \Psi(t) \rangle_I = \langle 3 | \hat{U}_I(t) | \Psi(0) \rangle_I = \langle 3 | \hat{U}_I(t) | 1 \rangle. \quad (2.2)$$

Na aproximação de uma interação tipo dipolo elétrico, podemos escrever o potencial de interação entre o átomo e o campo como

$$\hat{V}(t) = -\mu_{12} E(t) |1\rangle\langle 2| - \mu_{23} E(t) |2\rangle\langle 3| + h.c., \quad (2.3)$$

onde  $\mu_{12}$  e  $\mu_{23}$  são os momentos de dipolo elétrico da primeira e da segunda transição, respectivamente.  $E(t)$  é o campo elétrico do laser. Na construção do potencial acima supomos também que os níveis 1 e 3 têm a mesma paridade, e que esta é oposta à do nível 2.

Consideraremos que o campo atuando no sistema é fraco, de modo que iremos aproximar  $c_3(t)$  pelo termo de mais baixa ordem na sua expansão em potências do campo. Substituindo as expressões para  $\hat{U}_I(t)$  e  $\hat{V}(t)$  na expressão para o coeficiente  $c_3(t)$ , obtemos então

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

onde  $\omega_{23} = \omega_{13} - \omega_{12}$  é a frequência da transição  $2 \rightarrow 3$ . O campo elétrico do pulso de laser pode ser escrito como

$$E(t) = \mathcal{E}(t) e^{i\omega_L t} + \mathcal{E}^*(t) e^{-i\omega_L t},$$

onde  $\omega_L$  é a frequência central do laser e  $\mathcal{E}(t)$  é a envoltória do pulso que varia lentamente quando comparada com  $\omega_L$ . Substituindo esta expressão em  $c_3(t)$  e utilizando a

aproximação de onda girante, obtemos

$$c_3(t) = -\frac{\mu_{12}\mu_{23}}{\hbar^2} \int_0^t dt' \int_0^{t'} dt'' e^{i\delta_{23}t'} \mathcal{E}^*(t') e^{i\delta_{12}t''} \mathcal{E}^*(t''), \quad (2.4)$$

com  $\delta_{12} = \omega_{12} - \omega_L$  e  $\delta_{23} = \omega_{23} - \omega_L$  sendo as dessintonias da frequência do laser com relação às frequências da primeira e da segunda transição, respectivamente. Note que, na aproximação de onda girante, podemos escrever  $E(t)$  simplesmente como

$$E(t) = \mathcal{E}(t) e^{i\omega_L t}. \quad (2.5)$$

O primeiro processo de excitação que iremos abordar no contexto da Eq. (2.4) será o da transição  $5S \rightarrow 7S$  por um par de pulsos de laser de cerca de 100 fs de duração e com frequência central ressonante por dois fótons. Um diagrama com os níveis envolvidos no processo está mostrado na Fig. 2.1. O comprimento de onda relativo à transição  $5S \rightarrow 7S$  é 380 nm. O comprimento de onda do laser é então  $\lambda_L = 760$  nm. Como estamos considerando pulsos de cerca de 100 fs, estes pulsos têm cerca de 6 nm de largura de banda. O nível intermediário mais próximo da frequência do laser é o  $5P_{3/2}$ , em 780 nm. Portanto, o laser está longe de qualquer ressonância com níveis intermediários, e podemos considerar a transição  $5S \rightarrow 7S$  como sendo puramente de dois fótons. Na discussão teórica que segue, os estados  $|1\rangle$ ,  $|2\rangle$  e  $|3\rangle$  representam os níveis  $5S$ ,  $5P_{3/2}$  e  $7S$ , respectivamente. A observação da excitação do estado  $7S$  se dá através da medida da fluorescência do sistema a partir do nível  $6P_{3/2}$  em 420 nm, na região do azul. A medida da fluorescência no azul é proporcional ao decaimento incoerente da população do nível  $7S$  e, portanto, proporcional à população excitada no nível  $7S$ .

A medida da fluorescência corresponde a uma integração da emissão espontânea do sistema durante um tempo muito longo, muito maior que a largura temporal do pulso. Neste caso, a contribuição para o sinal do rápido transiente que ocorre no átomo, enquanto o pulso está atuando sobre ele, pode ser desprezada quando comparada com a

contribuição do valor final que fica no meio após a passagem do pulso, e que decai lentamente com o tempo de vida da transição. A quantidade de interesse para nós é, portanto,  $c_3 = c_3(t \rightarrow \infty)$ .

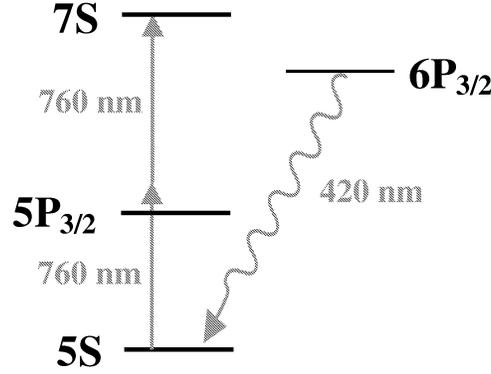


Figura 2.1: Diagrama com os níveis de energia relevantes para a investigação da transição de dois fótons  $5S \rightarrow 7S$ . Estão indicados também os comprimentos de onda do laser e da fluorescência observada.

Como explicitado anteriormente, estamos interessados no estudo de um sinal de controle temporal coerente obtido a partir da atuação de um par de pulsos sobre o meio. Este par de pulsos se origina da passagem de um único pulso do laser por uma linha de atraso. O campo elétrico referente a um par de pulsos com atraso temporal relativo  $\tau$  pode ser escrito como

$$E(t) = E_1(t) + E_1(t - \tau) = [\mathcal{E}_1(t) + e^{-i\omega_L\tau} \mathcal{E}_1(t - \tau)] e^{i\omega_L t}, \quad (2.6)$$

onde  $\mathcal{E}_1(t)$  é a envoltória do campo  $E_1(t)$ , e consideramos que a linha de atraso divide o pulso do laser em duas partes com a mesma amplitude. A envoltória  $\mathcal{E}(t)$  do par de pulsos é então dada por

$$\mathcal{E}(t) = \mathcal{E}_1(t) + e^{-i\omega_L\tau} \mathcal{E}_1(t - \tau). \quad (2.7)$$

Substituindo a Eq. (2.7) na Eq. (2.4), temos que a expressão final para  $c_3$ , no caso da

excitação por um par de pulsos, é dada por

$$c_3(\tau) = F(0) + e^{i\omega_{23}\tau} F(\tau) + e^{i\omega_{12}\tau} F(-\tau) + e^{i\omega_{13}\tau} F(0), \quad (2.8)$$

com

$$F(\tau) = -\frac{\mu_{12}\mu_{23}}{\hbar^2} \int_0^\infty dt' \int_0^{t'+\tau} dt'' e^{i\delta_{23}t'} e^{i\delta_{12}t''} \mathcal{E}_1^*(t') \mathcal{E}_1^*(t''). \quad (2.9)$$

Os quatro termos que aparecem na Eq. (2.8) representam a contribuição para a amplitude de probabilidade dos quatro possíveis caminhos de excitação do nível  $5S$  para o  $7S$ . Esses caminhos estão ilustrados na Fig. 2.2. Nesta figura, a seta cinza indica uma contribuição do primeiro pulso a atingir o meio, enquanto a seta preta indica uma contribuição do pulso atrasado de  $\tau$ . Portanto, o caminho (1) representa o termo  $F(0)$  e se refere a uma excitação em que os dois fótons vêm do primeiro pulso. O caminho (2) representa o termo  $e^{i\omega_{23}\tau} F(\tau)$  e se refere a uma excitação em que o primeiro fóton absorvido vem do primeiro pulso, e o segundo fóton do pulso atrasado. O caminho (3) representa o termo  $e^{i\omega_{12}\tau} F(-\tau)$  e se refere a uma excitação em que o primeiro fóton absorvido vem do pulso atrasado, e o segundo fóton do primeiro pulso. O caminho (4) representa o termo  $e^{i\omega_{13}\tau} F(0)$  e se refere a uma excitação em que os dois fótons vêm do pulso atrasado.

A função  $F(\tau)$  tem uma variação muito lenta quando comparada às oscilações interferométricas dos termos  $e^{i\omega_{12}\tau}$ ,  $e^{i\omega_{23}\tau}$  e  $e^{i\omega_{13}\tau}$ . Notemos que, para a transição que estamos considerando, temos  $\omega_{13}/2\pi = 789$  THz,  $\omega_{12}/2\pi = 405$  THz e  $\omega_{23}/2\pi = 384$  THz, que correspondem a períodos de 1.3 fs, 2.5 fs e 2.6 fs, respectivamente. Para ilustrar a forma da função  $F(\tau)$ , plotamos na Fig. 2.3 a sua variação com  $\tau$  para três diferentes situações de dessintonia com relação ao nível intermediário. Nesta figura, supomos uma envoltória tipo secante hiperbólica  $\mathcal{E}_1(t) \propto \text{sech}(1.763 t/T_p)$  com largura temporal  $T_p = 100$  fs. Consideramos ainda ressonância por dois fótons, de modo que  $\omega_{13} = 2\omega_L$  e  $\delta_{23} = -\delta_{12} = (\omega_{23} - \omega_{12})/2 = \Delta/2$ . A linha cheia na Fig. 2.3 corresponde

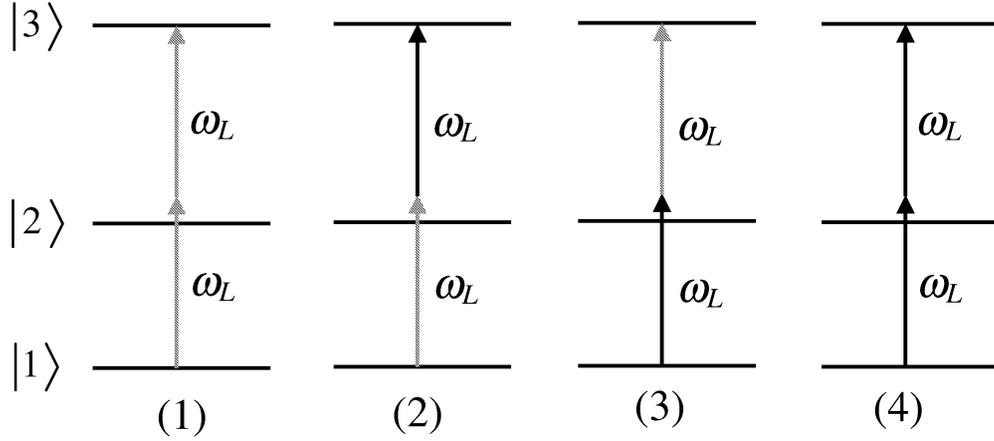


Figura 2.2: Possíveis caminhos de excitação, por um par de pulsos, do nível  $5S$  para o  $7S$ . A seta cinza representa uma excitação pelo primeiro pulso a atingir o meio, enquanto a seta preta representa uma excitação pelo pulso atrasado de  $\tau$ .

a  $\Delta/2 = 2\pi \times 10$  THz, que é o valor da dessintonia no caso da transição  $5S \rightarrow 7S$  do rubídio. Como já discutimos acima, esta dessintonia é bem maior que a largura de banda do laser, de cerca de 3 THz, de modo que o nível intermediário está completamente fora de ressonância. Vemos que, neste caso,  $F(\tau)$  corresponde simplesmente a um pico na origem, indo a zero para valores de  $|\tau|$  maiores ou da ordem de  $T_p$ . Já a linha tracejada corresponde ao caso hipotético em que consideramos  $\Delta = 0$ , ou seja, ressonância entre  $\omega_L$  e a frequência da primeira transição. Os outros parâmetros são mantidos fixos. Neste caso,  $F(\tau)$  tem a forma de uma função degrau, com um tempo de subida da ordem de  $T_p$ . A linha pontilhada mostra o caso intermediário, em que  $\Delta/2$  é da ordem da largura de banda do laser. Da Fig. 2.3 fica claro que, como afirmamos no início do parágrafo,  $F(\tau)$  varia numa escala de atraso temporal completamente diversa das frequências óticas das transições.

A partir da Eq. (2.8) é possível obter diretamente a expressão para a população  $\rho_{33}$  do nível 3:

$$\rho_{33}(\tau) = c_3(\tau)c_3^*(\tau) = |F(0) + e^{i\omega_{21}\tau}F(-\tau) + e^{i\omega_{32}\tau}F(\tau) + e^{i\omega_{31}\tau}F(0)|^2,$$

que pode ainda ser colocada na forma

$$\begin{aligned}
\rho_{33}(\tau) = & 2|F(0)|^2 + |F(\tau)|^2 + |F(-\tau)|^2 + [e^{-i(\omega_{32}-\omega_{21})\tau} F(-\tau)F^*(\tau) + c.c.] \\
& + \{e^{-i\omega_{21}\tau} [F(0)F^*(-\tau) + F^*(0)F(\tau)] + c.c.\} \\
& + \{e^{-i\omega_{32}\tau} [F(0)F^*(\tau) + F^*(0)F(-\tau)] + c.c.\} \\
& + 2|F(0)|^2 \cos(\omega_{31}\tau) .
\end{aligned} \tag{2.10}$$

Os vários termos que aparecem em  $\rho_{33}(\tau)$  podem ser interpretados de acordo com os caminhos que eles representam. O termo  $2|F(0)|^2$  representa a probabilidade de realiza-

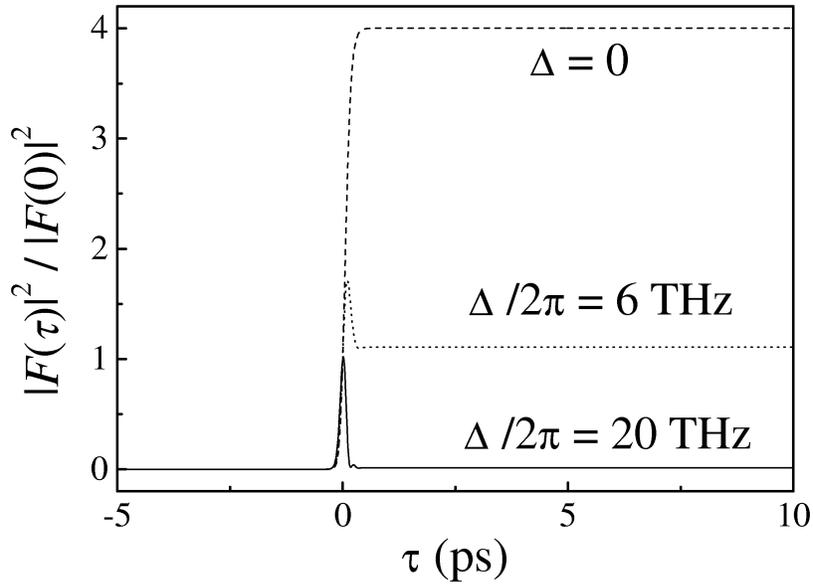


Figura 2.3: Função  $F(\tau)$  para uma envoltória tipo secante hiperbólica e três diferentes dessintonias com relação ao nível intermediário. A curva sólida corresponde a um nível intermediário não ressonante, como no caso da transição  $5S \rightarrow 7S$ . A curva tracejada corresponde à situação de ressonância com o nível intermediário, e a curva pontilhada corresponde a uma dessintonia da ordem da largura de banda do laser. Consideramos ainda  $T_p = 100$  fs.

ção dos caminhos de dois fótons (1) e (4), como rotulados na Fig. 2.2. Os termos  $|F(\tau)|^2$  e  $|F(-\tau)|^2$  dão as probabilidades de ocorrência dos caminhos de excitação seqüencial (2) e (3), respectivamente. Os outros termos se originam de interferências entre estes quatro caminhos. O quarto termo, por exemplo, vem da interferência entre os caminhos seqüenciais (2) e (3), e portando depende da diferença entre as duas freqüências de um fóton do sistema. Já o quinto e o sexto termos vêm da interferência dos caminhos seqüenciais (2) e (3) com os caminhos de dois fótons (1) e (4). O sétimo termo dá a interferência entre os dois caminhos de dois fótons. A existência dessas interferências está na própria essência da idéia de controle temporal coerente, já que elas possibilitam grandes modulações da população pela variação do atraso relativo  $\tau$ .

O sinal negativo ou positivo de  $\tau$  indica apenas a ordem com que os dois pulsos no par atingem o átomo. Como nossos dois pulsos são iguais, a expressão final para  $\rho_{33}$  tem que ser simétrica com relação a  $\tau$ , o que é o caso para a Eq. (2.10). No entanto, as funções  $F(\tau)$  e  $F(-\tau)$ , para valores de  $\tau$  longe da origem, levam a comportamentos bem distintos, como era de se esperar do caráter assimétrico com relação à origem das curvas tracejada e pontilhada na Fig. 2.3. Para  $\tau$  positivo, por exemplo,  $F(-\tau)$  está associado a processos chamados normalmente de "não-causais", ou seja, onde o átomo absorve primeiro um fóton do segundo pulso a atingir o meio e em seguida um fóton do primeiro pulso, que é o caminho (3) da Fig. 2.2. Neste caso, se os pulsos são bem localizados temporalmente e não se superpõem ( $|\tau| \gg T_p$ ), então este processo não é possível. Esta é a razão de  $F(\tau)$  ser nula para valores negativos de  $\tau$  distantes da origem. Este raciocínio é também o que está por trás da diferença de comportamento entre as situações de ressonância e não-ressonância com o nível  $|2\rangle$  mostradas na Fig. 2.3. No caso ressonante, o nível 2 guarda população excitada pelo primeiro pulso até que o segundo pulso atinja o meio. Isto faz com que o caminho (2) seja possível e indica que  $F(\tau) \neq 0$  mesmo com  $\tau \gg T_p$ . No caso não-ressonante, no entanto, o nível 2 não é populado, de

modo que nem o caminho "causal" (2) pode ser realizado, e temos  $F(\tau) = 0$  se  $\tau \gg T_p$ .

Utilizando a condição de ressonância por dois fótons  $\omega_{13} = 2\omega_L$ , e que resulta em  $\delta_{23} = -\delta_{12} = \Delta/2$ , a Eq. (2.10) pode ser reescrita como

$$\begin{aligned} \rho_{33}(\tau) = & 2|F(0)|^2 + |F(\tau)|^2 + |F(-\tau)|^2 + [e^{-i\Delta\tau} F(-\tau)F^*(\tau) + c.c.] \\ & + 4 \operatorname{Re} \{ e^{i\Delta\tau} [F(0)F^*(-\tau) + F^*(0)F(\tau)] \} \cos(\omega_L\tau) \\ & + 2|F(0)|^2 \cos(2\omega_L\tau) . \end{aligned} \quad (2.11)$$

Esta forma da expressão para  $\rho_{33}(\tau)$  possibilita uma análise ainda mais direta dos resultados experimentais, como será visto mais na frente.

Nosso aparato experimental está esquematizado na Fig. 2.4. Os pulsos de luz se originam de um laser de Ti:safira com 82 MHz de taxa de repetição e  $\lambda_L = 760$  nm. Eles têm cerca de 100 fs de duração e alguns nanojoules de energia. Os pares de pulsos são obtidos pela passagem por uma linha de atraso, cujos braços podem ter seus comprimentos,  $l_1$  e  $l_2$ , variados. Após a linha de atraso, o feixe passa por uma roda dentada e então atravessa uma célula de rubídio aquecida até a temperatura de 417 K, correspondendo a uma densidade de cerca de  $7 \times 10^{13}$  átomos/cm<sup>3</sup>. A célula tem 5 cm de comprimento e fica dentro de um forno. O feixe de laser é focalizado na entrada do forno por uma lente de 20 cm, de modo que seu foco se encontra no meio da célula. A cintura do feixe no foco é de cerca de 70  $\mu$ m. A fluorescência da célula é coletada num ângulo de 90° com relação à direção do laser, e analisada em um espectrômetro. Também temos a opção de coletar o sinal para frente. A intensidade da luz em 420 nm é medida por uma fotomultiplicadora e o sinal é enviado para um amplificador *lock-in*, que o remete então para o computador. A maior parte dos nossos experimentos consiste em medir a variação dessa intensidade no azul com o atraso relativo entre os pulsos.

A necessidade de variar ambos os braços da linha de atraso vem das duas diferentes es-

calas de atraso em que ocorrem as variações da população em  $7S$ : a escala dos batimentos interferométricos nas frequências óticas do sistema, e a escala em que  $F(\tau)$  varia. Num dos braços, portanto, temos um translador que controla o atraso com uma precisão de cerca de 0.67 fs, a qual é insuficiente para distinguir os batimentos interferométricos (de cerca de 1 fs), mas permite variar  $\tau$  em até dezenas de picosegundos. No outro braço, temos um alto-falante que gera vibrações rápidas em torno de um certo atraso fixo. O sinal aplicado ao alto-falante, que é uma senóide com frequência de 195 Hz, é utilizado para sincronizar um osciloscópio. Observando o centro da rampa de variação do atraso no osciloscópio, temos então um sinal que corresponde a várias varreduras consecutivas.

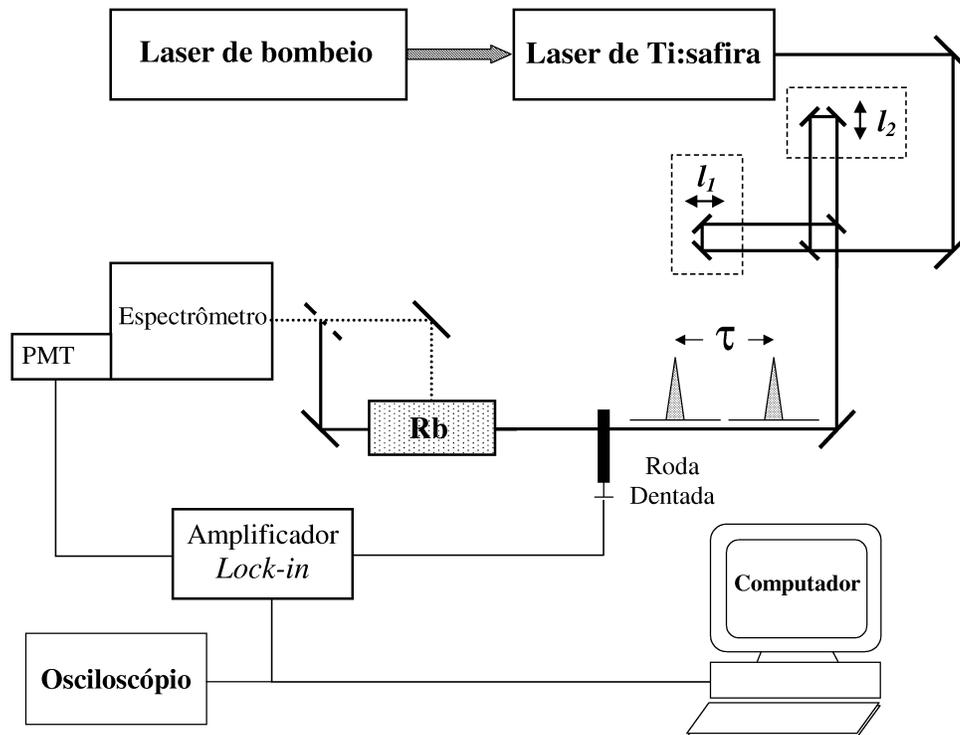


Figura 2.4: Aparato experimental. O espelho na frente do espectrômetro (tracejado) pode ser colocado ou removido, se quisermos coletar a emissão da célula para frente ou a  $90^\circ$ , respectivamente.

Utilizamos um osciloscópio que permite gravar a tela, de modo que é possível obter o resultado de uma única varredura devido à vibração do alto-falante. Esta varredura tem precisão suficiente para distinguir os batimentos interferométricos. Para diferenciar a variação de um dos braços com relação ao outro, vou me referir à variação do braço de precisão maior por  $d\tau$ , enquanto o braço de precisão menor terá a variação ainda denominada de  $\tau$ .

Nossos resultados da fluorescência coletada a  $90^\circ$  para uma varredura de mais de 30 ps com pouca precisão em  $\tau$  (passos com intervalos de 48 fs) estão mostrados na Fig. 2.5. O zero na escala vertical da figura corresponde ao zero de sinal. A curva, portanto, consiste simplesmente de um pico na origem dos atrasos superposto a um patamar. Este comportamento é facilmente entendido a partir da análise da Eq. (2.11). Primeiramente, no entanto, é bom perceber que a pouca precisão em  $\tau$  significa que nosso resultado representa uma média sobre as oscilações interferométricas. Esta média é efetuada diretamente pelo amplificador *lock in* durante a aquisição de dados e reforçada pela tirada consecutiva de várias curvas, sendo o resultado final uma média entre as curvas. A Fig. 2.5, por exemplo, representa uma média sobre dez curvas.

Teoricamente, é necessário realizar a média apenas sobre um período ótico, pois o seu valor se repete aproximadamente dentro de intervalos maiores. No experimento, estes intervalos são da ordem ou menores que o tamanho dos passos de  $\tau$  utilizados na varredura. Como a média de uma função cosseno sobre um período de oscilação é zero, temos então que os dois últimos termos da Eq. 2.11 não contribuem para o sinal da Fig. 2.5. Além disso, da Fig. 2.3, temos que a forma da função  $F(\tau)$  é simplesmente um pico na origem para o caso da transição  $5S \rightarrow 7S$  da Fig. 2.5. Segue que o único termo que contribui para o patamar observado é o primeiro e constante  $2|F(0)|^2$ . A Eq. (2.11) também nos diz que o pico em  $\tau = 0$  deve ter uma altura de  $6|F(0)|^2$ , levando a uma relação entre o pico e o patamar de 3, em bom acordo com o resultado experimental de

2.6 obtido a partir da Fig. 2.5.

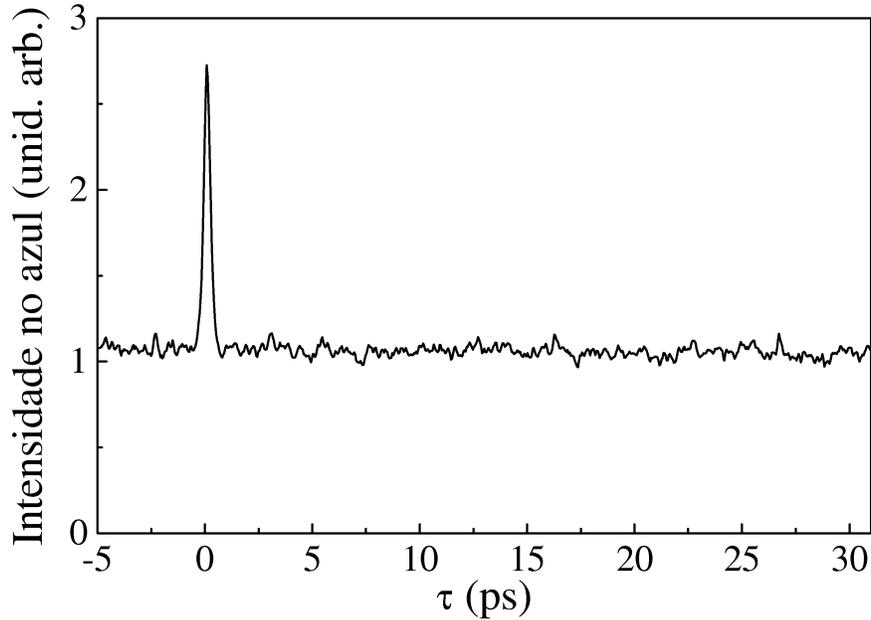


Figura 2.5: Variação da intensidade da fluorescência em 420 nm com o atraso relativo entre os pulsos para uma varredura longa do braço da linha de atraso que tem menor precisão temporal.

Os resultados para a varredura do atraso temporal com maior precisão estão mostrados na Fig. 2.6. Nesta figura, o quadro de cima se refere a uma varredura em torno da origem, com o outro braço da linha de atraso em  $\tau = 0$ . O quadro de baixo mostra uma varredura bem distante da origem, com o outro braço em  $\tau = 15$  ps. A escala horizontal de  $d\tau$  é a mesma nos dois casos. Vemos que fora da origem ( $\tau = 15$  ps) a frequência de oscilação interferométrica dobra com relação ao seu valor na origem. Este resultado também pode ser bem entendido a partir da Eq. 2.11. Note que os quatro primeiros termos desta equação não contribuem para a forma do sinal. Isto porque eles variam mais lentamente e podem ser considerados constantes na escala de variação de  $d\tau$  da Fig. 2.6. Os termos que contribuem são apenas os dois últimos, que representam oscilações interferométricas com frequências de  $\omega_L$  e  $2\omega_L$ . Em torno de  $\tau = 0$ , vemos

que o termo que oscila com  $\omega_L$  é quatro vezes maior que o termo que oscila com  $2\omega_L$ . Por conta disso, só percebemos a variação com  $\omega_L$  na origem. Observe que a relação entre as escalas verticais dos dois quadros está bem de acordo com esta análise. Fora da origem,  $F(\tau)$  se anula (como visto pela linha cheia da Fig. 2.3) e com ele o termo que oscila na frequência  $\omega_L$ . Só sobrevive o termo que varia com  $2\omega_L$  e que é multiplicado por  $|F(0)|^2$ . Este é então o termo medido no quadro de baixo da Fig. 2.6. A calibração da escala horizontal da Fig. 2.6 foi feita pela contagem dos períodos óticos (de duração  $2\pi/\omega_L$ ) presentes no quadro de cima da figura.

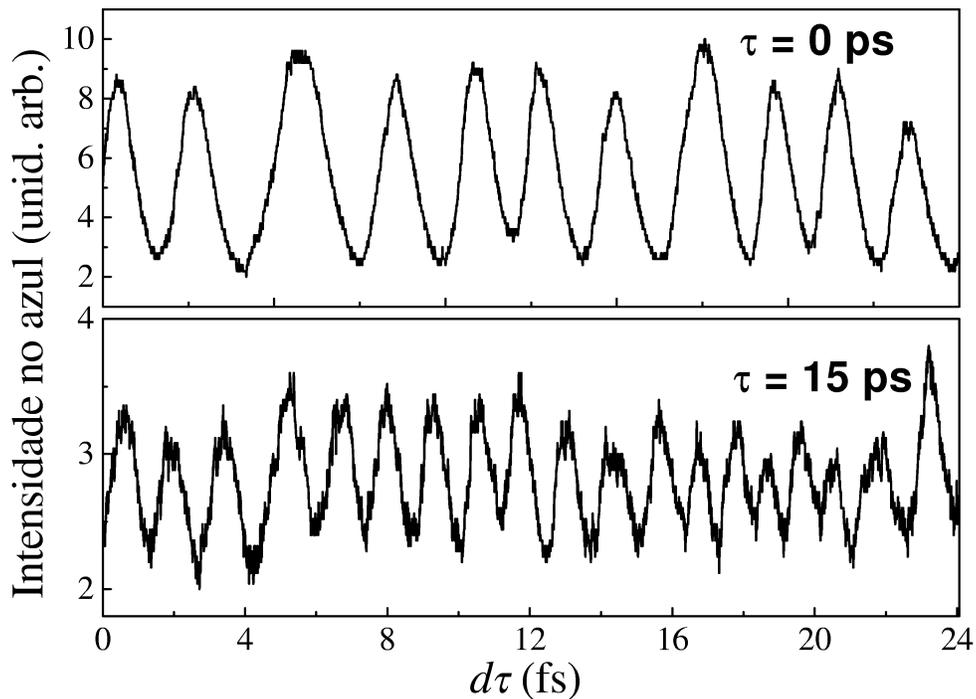


Figura 2.6: Variação da intensidade em 420 nm com o atraso relativo entre os pulsos para duas varreduras curtas do braço da linha de atraso que tem maior precisão temporal. As varreduras foram realizadas em torno de  $\tau = 0$  e  $\tau = 15$  ps.

Uma interpretação interessante para o resultado da Fig. 2.6 é fornecida por Blanchet *et. al.* [18]. A discussão dessa figura no último parágrafo está toda relacionada a uma expressão obtida a partir da teoria quântica. No entanto, o batimento em  $\omega_L$  pode ser

explicado também classicamente, e de forma bem simples. Ocorre que, na origem, os campos dos dois pulsos se superpõem, de modo que o batimento em  $\omega_L$  na população pode ser entendido como vindo de uma interferência clássica entre os campos elétricos dos dois pulsos. Fora da origem, no entanto, esta interpretação não faz sentido, pois os campos não se superpõem e o período de oscilação é o dobro do esperado para a interferência clássica. Podemos dizer então que fora da origem estamos observando uma interferência puramente quântica na população.

No geral, os resultados dessa seção reproduzem, para a transição  $5S \rightarrow 7S$  do rubídio, a discussão da Ref. [18] para a excitação da transição de dois fótons  $6S \rightarrow 7D$  do cério. Os parâmetros do laser que utilizamos são inclusive muito semelhantes aos utilizados nesta referência. A discussão teórica mais detalhada, incluindo a definição de  $F(\tau)$  e a discussão sobre os vários possíveis caminhos de excitação, pode ser encontrada na Ref. [22]. Uma generalização desta teoria é diretamente aplicável ao estudo da dinâmica de pacotes de onda vibracionais em moléculas [20, 21, 22].

## 2.2 Transição seqüencial

Vamos agora utilizar a análise da seção anterior para estudar a excitação por um par de pulsos ultracurtos da transição  $5S \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 5D$ . A frequência do laser para excitar o nível  $5D$  por dois fótons é 778 nm. Os pulsos são novamente da ordem de 100 fs. Note que agora o nível  $5P_{3/2}$  se encontra dentro da largura de banda do laser. Podemos considerar, portanto, que temos agora uma transição seqüencial, no lugar da transição de dois fótons pura da seção anterior. A observação do sistema continua a ser feita através da emissão em 420 nm. Na Fig. 2.7, plotamos um esquema dos níveis relevantes para o processo estudado nessa seção, junto com algumas das frequências envolvidas.

O aparato experimental utilizado é o mesmo da Fig. 2.4. O sinal coletado para frente,

na direção em que o laser se propaga, é bem mais intenso que o coletado lateralmente, de modo que vamos iniciar nossa discussão por ele. Na Fig. 2.8 plotamos nossos resultados para uma varredura longa, sem precisão interferométrica em  $\tau$ , variando a densidade do vapor.

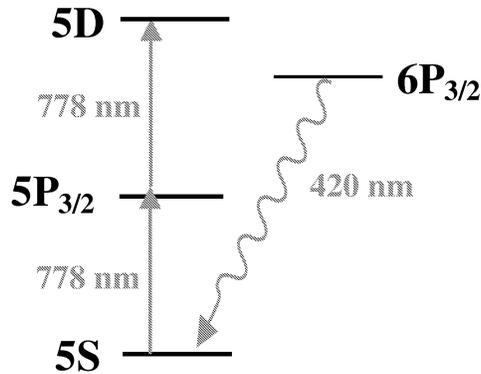


Figura 2.7: Diagrama com os níveis de energia relevantes para a investigação da transição seqüencial  $5S \rightarrow 5P_{3/2} \rightarrow 5D$ . Estão indicados também os comprimentos de onda do laser e da fluorescência observada.

Notamos então um comportamento bem mais complexo que o da Fig. 2.5 para uma transição de dois fótons pura. O sinal continua apresentando um máximo na origem. No entanto, também temos a presença de um batimento de cerca de 470 fs (que mantém-se constante em todas as densidades) e de uma envoltória do batimento que oscila com um período de vários picosegundos. O período da envoltória depende da densidade. Da curva superior para a inferior na Fig. 2.8, as densidades são  $5.2 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ ,  $2.8 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ ,  $7.6 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ ,  $5.2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$  e  $3.7 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ , respectivamente. Cada curva corresponde a uma única varredura, e o fundo constante foi subtraído.

O sinal para frente é mais intenso e mostra os vários batimentos característicos de forma mais clara que o sinal coletado a  $90^\circ$ . Uma comparação entre os sinais para frente e a  $90^\circ$  é mostrada na Fig. 2.9. No quadro (a), temos um sinal frontal, como na Fig. 2.8, para uma densidade de  $5.5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ . No quadro (b), temos um sinal lateral

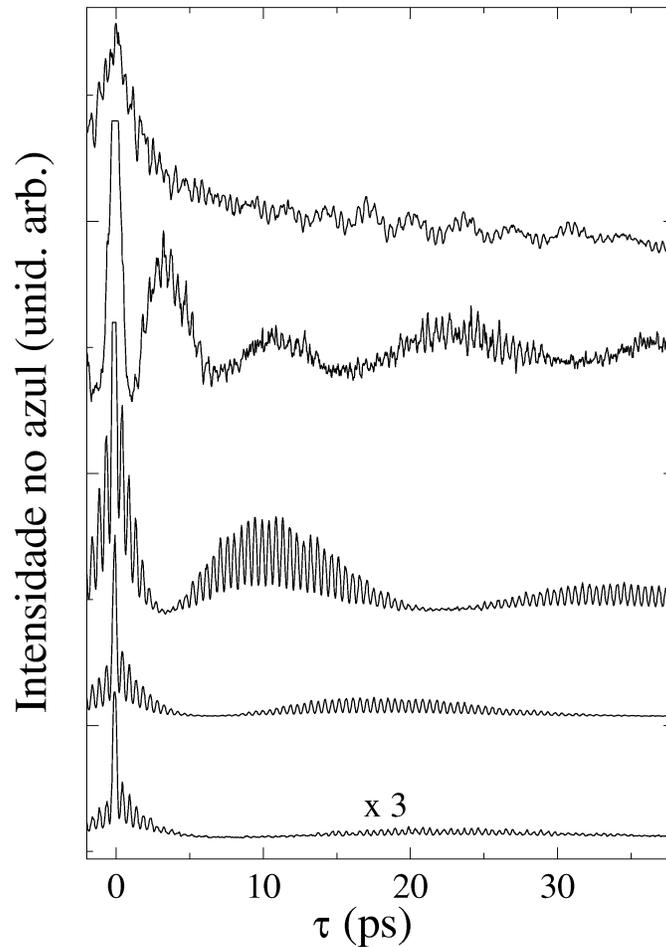


Figura 2.8: Intensidade da emissão em 420 nm para frente em função do atraso relativo entre os pulsos, para várias densidades da amostra de rubídio. De cima para baixo, as densidades utilizadas foram  $5.2 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ ,  $2.8 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ ,  $7.6 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ ,  $5.2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$  e  $3.7 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ , respectivamente.

nas mesmas condições experimentais do quadro (a). Em ambos os quadros, a curva é o resultado de uma única varredura. Como afirmamos anteriormente, a curva obtida a partir da emissão frontal mostra mais claramente as propriedades do sinal que discutimos acima. No entanto, todas as principais características do sinal estão também presentes na emissão lateral. No quadro (b), vemos tanto o batimento de 470 fs como a sua envoltória na escala de picosegundos. Como a curva obtida lateralmente é mais ruidosa e de modo

a visualizar melhor o batimento em 470 fs, plotamos no quadro interno da Fig. 2.9b uma média de três varreduras sobre um intervalo menor de variação do atraso. Neste quadro interno fica então bem mais clara a presença do batimento no sinal lateral.

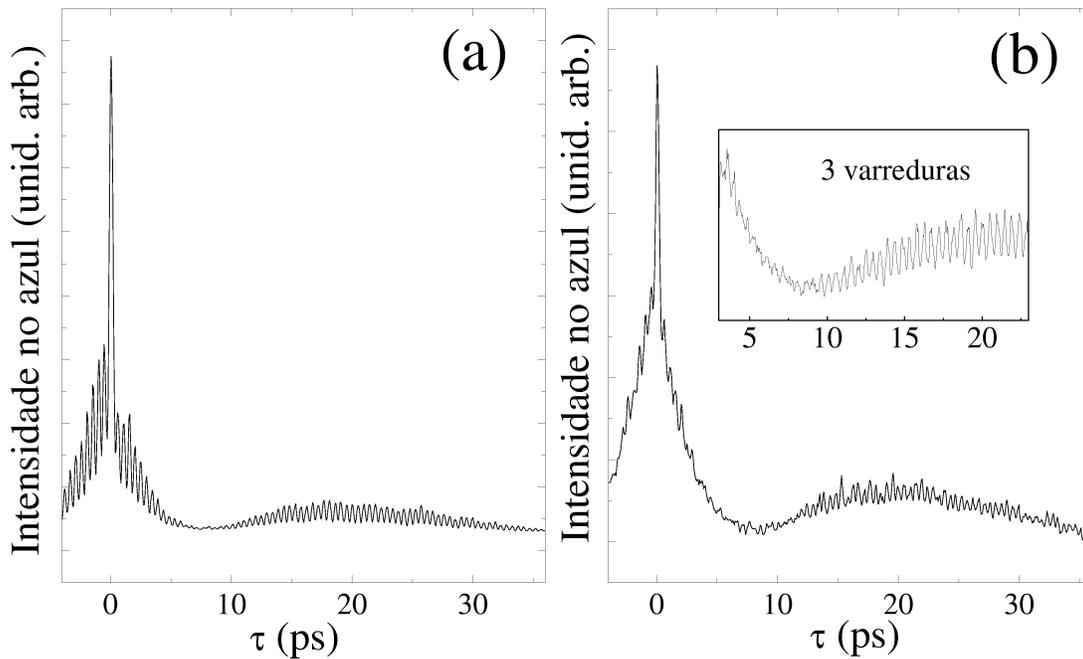


Figura 2.9: Intensidade do sinal em 420 nm em função do atraso relativo entre os pulsos. Em (a) temos o sinal para frente, enquanto que em (b) temos o sinal coletado a  $90^\circ$ . As curvas em (a) e (b) representam uma única varredura com densidade de Rb de  $5.5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ . No quadro interno de (b), temos uma média sobre três varreduras de uma região limitada da curva em (b).

O fato das principais características do sinal estarem presentes no sinal coletado a  $90^\circ$  é de extrema importância, pois este último é de interpretação bem mais simples. Ele vem da fluorescência do vapor e, portanto, reflete o decaimento incoerente da população do nível  $6P_{3/2}$ . Este decaimento, por sua vez, é proporcional à população do mesmo nível, que é proporcional à população do nível  $5D$ . O sinal no azul a  $90^\circ$ , portanto, reflete de forma mais direta a população do nível  $5D$ .

Por outro lado, o sinal frontal pode ter, misturado à fluorescência, a contribuição

de algum processo paramétrico que esteja ocorrendo no meio. Neste sentido, a comparação entre as Figs. 2.9a e 2.9b mostra que elas também possuem diferenças. No quadro (a), por exemplo, o pico na origem é mais acentuado e o primeiro máximo secundário aparece mais achatado. Através de um ajuste simples, percebemos que a curva na Fig. 2.9a parece refletir um ganho exponencial da curva na Fig. 2.9b. Não esperamos um ganho diretamente na emissão em 420 nm, pois achamos difícil a inversão de população com relação ao estado fundamental. No entanto, é possível a ocorrência de ganho na transição  $5D \rightarrow 6P_{3/2}$ , e que o campo amplificado desta transição participe de um processo paramétrico no meio que resulte na amplificação também da emissão em 420 nm na direção frontal [50, 51]. Nesta tese, no entanto, vamos procurar explicar apenas as características mais marcantes do sinal, ou seja, seus vários batimentos. Como estas características estão todas presentes na fluorescência, no que segue vamos lidar apenas com sinais obtidos lateralmente.

Para reforçar ainda mais a idéia de que a fluorescência em 420 nm reflete a população no nível  $5D$ , resolvemos medir também a fluorescência do nível  $5D$  para o nível  $5P_{3/2}$ , cujo comprimento de onda corresponde a 776 nm. Note que este valor é muito próximo do comprimento de onda central do laser, em 778 nm, e do comprimento de onda da transição  $5P_{3/2} \rightarrow 5S$ , em 780 nm. Além disso, a largura de banda do laser, de cerca de 6 nm, engloba ambas as transições. Um espectro da emissão lateral da célula nesta região de comprimentos de onda está mostrado na Fig. 2.10. Nele vemos claramente os dois picos relativos às fluorescências em 776 nm e 780 nm sobre uma suave elevação originária do espalhamento da luz do laser pela célula.

O fato da fluorescência da transição  $5D \rightarrow 5P_{3/2}$  ser maior que a da transição  $5P_{3/2} \rightarrow 5S$  parece indicar que temos uma inversão de população na transição de cima. Este resultado, porém, não pode ser considerado conclusivo neste sentido. A absorção da célula na transição  $5S \rightarrow 5P_{3/2}$  também é maior que na transição de cima, o que pode

levar à detecção de uma menor fluorescência mesmo com uma população maior no nível  $5P_{3/2}$  do que no nível  $5D$ . A Fig. 2.10 assinala também que o espectrômetro que usamos tem resolução suficiente para distinguir as duas fluorescências, e ainda dá uma noção da quantidade de luz do laser espalhada na direção lateral em relação às fluorescências.

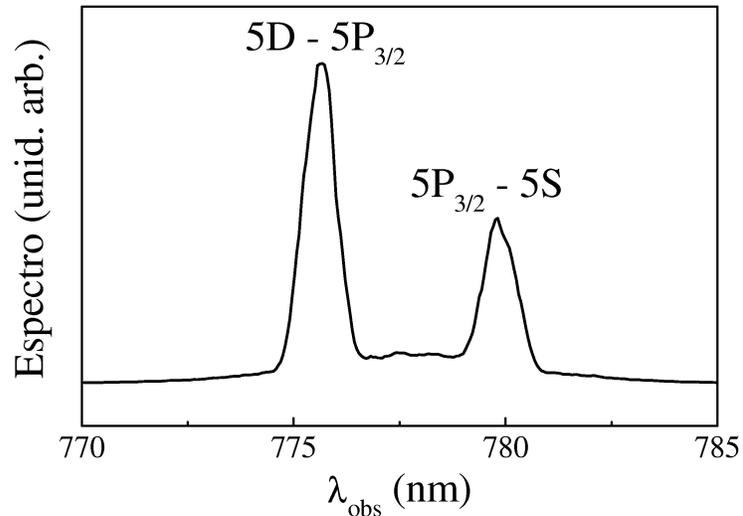


Figura 2.10: Espectro de emissão na região do infravermelho obtido lateralmente.

Os resultados da medida da fluorescência na região do infravermelho, para a varredura com menor precisão em  $\tau$ , estão mostrados na Fig. 2.11. Cada curva é uma média de três varreduras. A densidade do vapor é de  $8 \times 10^{12} \text{cm}^{-3}$ . Nos quadros (a) e (b), temos as medidas com o espectrômetro em 776 nm e 780 nm, respectivamente.

A Fig. 2.11a reflete, portanto, a fluorescência da transição  $5D \rightarrow 5P_{3/2}$  e é proporcional à população no nível  $5D$ . Como esperávamos, a fluorescência em 776 nm apresenta tanto o batimento em torno de 470 fs como a envoltória mais lenta. Para frisar a presença do batimento em 470 fs, plotamos no quadro interno da Fig. 2.11a o resultado da transformada rápida de Fourier da curva em (a), que mostra um pico na região de freqüências em que ocorre este batimento (a divisão do pico em dois é um artefato da transformada de Fourier que aparece devido ao maior ruído desta medida).

Já na Fig. 2.11b, obtida nas mesmas condições de (a), não é possível distinguir nem

o batimento em 470 fs (ver quadro interno), nem a envoltória lenta. Não podemos, no entanto, concluir daí que estas características não estão de forma alguma presentes no sinal em 780 nm, pois a relação sinal/ruído parece ter piorado bastante nesta situação. Como forma de checar se estamos realmente conseguindo separar as contribuições das duas transições, fizemos a mesma varredura da Fig. 2.11 com o espectrômetro em 778 nm. Neste caso, obtivemos apenas uma linha plana sem nem sequer o pico central, de modo que confirmamos que as curvas nos quadros (a) e (b) da Fig. 2.11 se referem realmente a efeitos em regiões espectrais separadas.

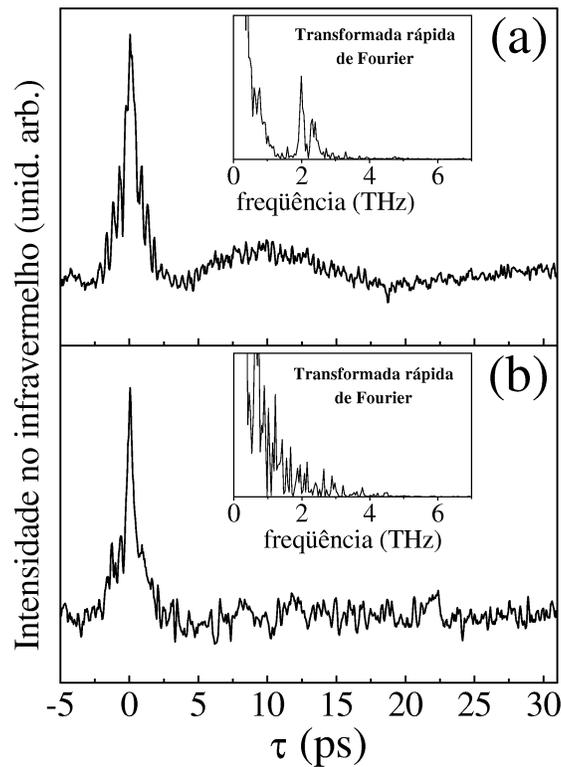


Figura 2.11: Intensidade da fluorescência em (a) 776 nm e (b) 780 nm em função do atraso relativo entre os pulsos. Cada curva representa uma média de três varreduras.

Na Fig. 2.12 plotamos os resultados para a fluorescência no azul (420 nm) a  $90^\circ$  tanto (a) de uma varredura longa de  $\tau$  como (b) de varreduras do atraso com precisão interferométrica. As curvas em (a) e (b) se referem à mesma densidade de  $7 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ .

A curva em (a) é uma média de 3 varreduras. Já as curvas em (b) se originam de uma única varredura para cada quadro. A Fig. 2.12a é análoga à Fig. 2.9b, só que agora incluímos o fundo constante e tiramos a transformada rápida de Fourier da curva. A transformada de Fourier é mostrada no quadro interno da Fig. 2.12 e revela de forma clara o batimento em torno de 470 fs. Através de uma análise das várias frequências envolvidas no problema, vemos que este valor equivale à diferença entre as frequências das transições  $5S \rightarrow 5P_{3/2}$  e  $5P_{3/2} \rightarrow 5D$ , que corresponde a um período de 473 fs.

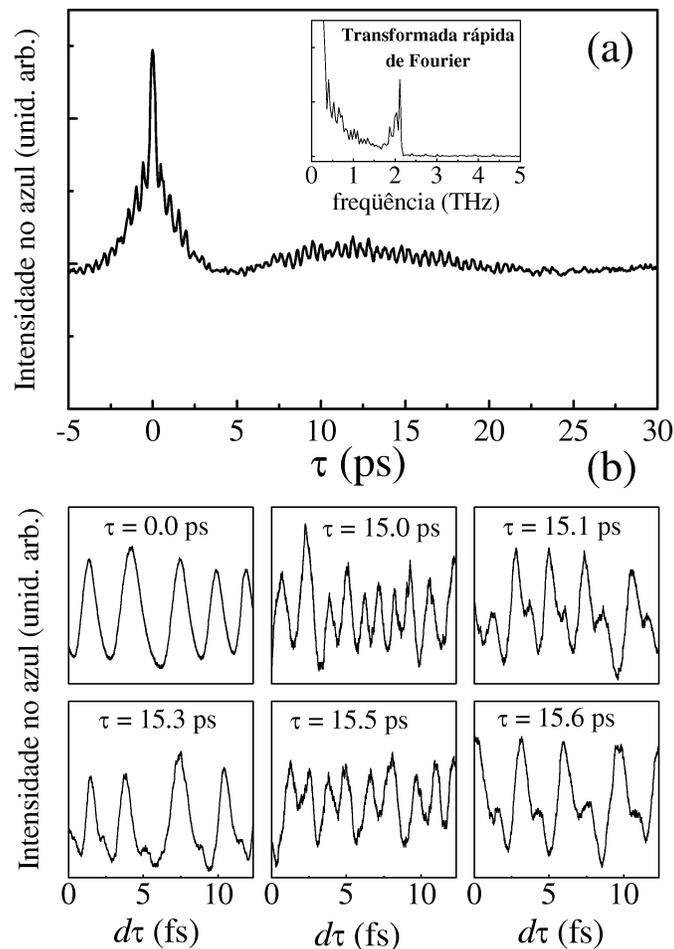


Figura 2.12: Intensidade da fluorescência em 420 nm em função do atraso relativo entre os pulsos. Em (a) temos uma varredura longa de  $\tau$ . Em (b) temos varreduras de  $d\tau$  com precisão interferométrica em torno de seis diferentes valores de  $\tau$ .

Os batimentos interferométricos do sistema são mostrados na Fig. 2.12b. Vemos nesta um comportamento que tem várias semelhanças e diferenças com o caso da transição de dois fótons pura, Fig. 2.6. Primeiramente, note que na origem dos atrasos ( $\tau = 0.0$ ) temos apenas um batimento com a frequência central do laser, e que surge uma componente com o dobro dessa frequência para valores de  $\tau$  distantes da origem ( $\tau \approx 15$  ps). Este comportamento é completamente análogo ao da Fig. 2.6.

A diferença nos batimentos interferométricos das transições sequencial e de dois fótons surge para a região de valores de  $\tau$  longe da origem. Primeiro, temos nesta região uma componente de frequência da ordem de  $\omega_L$  superposta à componente de  $2\omega_L$  e que não estava presente no caso da transição de dois fótons pura. Além disso, vemos que o padrão dos batimentos interferométricos se repete com um período de cerca de 500 fs. Este comportamento está de acordo com o fato de que existem duas frequências de um fóton no sistema (a da primeira e a da segunda transição) e que a diferença entre elas equivale a um período de 473 fs. Portanto, os batimentos nas frequências óticas dessas transições devem gerar um padrão que se repete com este período.

### 2.2.1 pulsos $0\pi$

Uma das principais características do sinal obtido para a transição sequencial é um batimento na escala de picosegundos que varia com a densidade do vapor. Este batimento se origina de distorções da envoltória do pulso devido à propagação no meio atômico. Com o objetivo de demonstrar esta idéia, realizamos experimentos de correlação cruzada para diferentes densidades e comparamos os resultados com a devida teoria de propagação linear.

O esquema do experimento de correlação cruzada está mostrado na Fig. 2.13. Nele um pulso de referência passa por fora da célula, enquanto um pulso sonda atravessa a célula de rubídio de 5 cm de comprimento. O pulso de referência está atrasado de um

intervalo de tempo  $t_a$  com relação ao pulso sonda, sendo  $t_a$  controlado por uma linha de atraso. Após a célula os dois pulsos são superpostos, com o auxílio de uma lente, num cristal gerador de segundo harmônico. O segundo harmônico gerado pela presença conjunta dos dois pulsos é então coletado por uma foto-multiplicadora. Medimos com isso a intensidade  $I_{SH}$  do segundo harmônico à medida que  $t_a$  é variado. A intensidade do segundo harmônico está relacionada com a intensidade  $I_{ref}$  do pulso de referência e com a intensidade  $I_s$  do pulso de sonda através da relação

$$I_{SH}(t_a) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} I_{ref}(t - t_a) I_s(t) dt . \quad (2.12)$$

Conhecendo a forma do pulso de referência, podemos então detectar mudanças na forma do pulso de sonda através da observação de  $I_{SH}(t_a)$ .

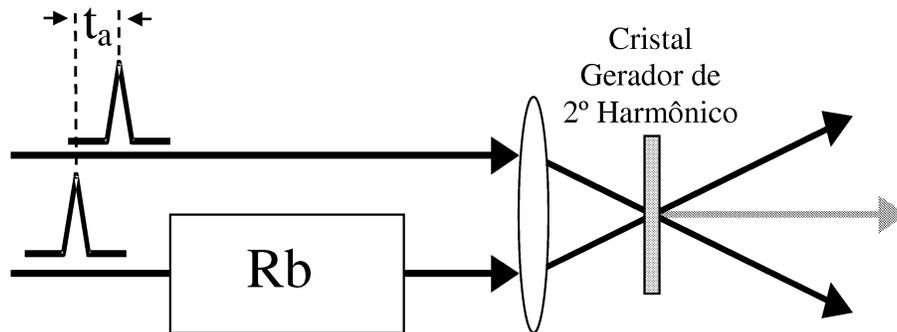


Figura 2.13: Experimento de correlação cruzada. O feixe de segundo harmônico observado está indicado em cinza.

Na Fig. 2.14a, plotamos os resultados da medida de correlação cruzada para diferentes densidades. Vemos claramente a evolução da distorção do pulso à medida que a densidade é aumentada. No quadro pequeno temos uma ampliação do fundo da curva de menor densidade, onde vemos uma envoltória de picosegundos semelhante à do sinal da Fig. 2.8. Também podemos notar a variação do período dessa oscilação com o aumento da densidade.

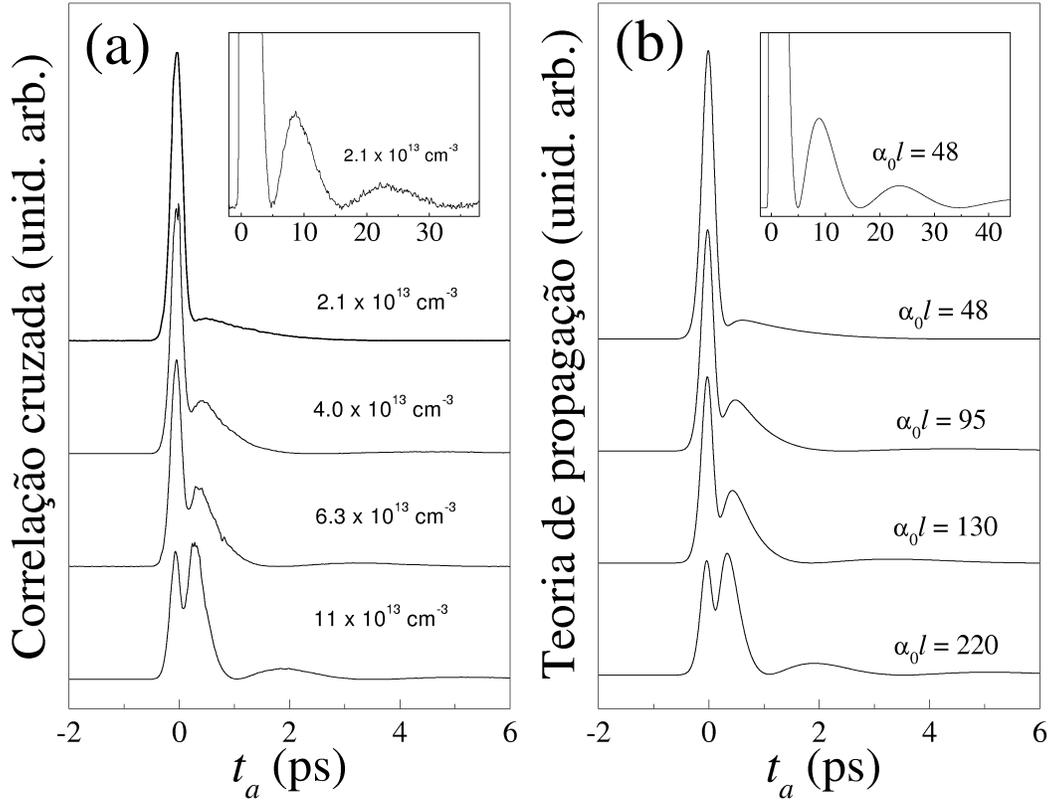


Figura 2.14: (a) Medidas de correlação cruzada e (b) resultados dos cálculos em função do atraso do feixe de referência para várias densidades atômicas. No quadro interno de (a) e (b), temos a expansão da curva com menor densidade. Quatro valores de  $\alpha_0 l$  foram usados nos cálculos, como indicado. Em (b), utilizamos  $T_p = 180$  fs para as larguras do pulso sonda, na entrada da célula, e do pulso de referência.

Para entender a origem das distorções apresentadas na Fig. 2.14, vamos nos deter no problema da propagação ressonante de um pulso num meio atômico formado por átomos de dois níveis. Um guia importante para os muitos fenômenos de distorção que ocorrem nesta situação é o teorema quântico da área [52, 53]. A área do pulso é uma quantidade proporcional ao módulo da integral da envoltória do pulso. Este teorema estabelece que, durante a propagação, o pulso tem a sua forma modificada até que atinge uma área igual a  $2n\pi$ , onde  $n$  é um número inteiro. O valor de  $n$  que corresponde a um pulso específico depende da sua área inicial e, conseqüentemente de sua intensidade inicial.

Áreas iniciais maiores conduzem a valores maiores de  $n$ . Pulsos fortes (com área maior que  $\pi$ ), portanto, estabilizam com áreas finitas. Este efeito de formação de sóliton num meio é conhecido como transparência auto-induzida [52, 53].

Pulsos fracos (com área menor que  $\pi$ ), por outro lado, evoluem para uma área de  $0\pi$ . A evolução do pulso neste regime tem dois limites principais, dependendo da relação entre a largura de banda do pulso  $\Delta\omega_L$  e a largura da linha atômica  $\Delta\omega_a$  (homogênea e inhomogênea). Se  $\Delta\omega_L$  é menor que  $\Delta\omega_a$ , então a evolução para uma área de  $0\pi$  é acompanhada da absorção de toda a energia do pulso pelo meio. Este é o limite clássico mais conhecido: a lei de Beer para o decaimento exponencial da energia do pulso à medida que este penetra no meio.

O outro limite ocorre quando  $\Delta\omega_L \gg \Delta\omega_a$ . Neste caso, o pulso passa apenas por pequenas variações de energia, devido à absorção da fração do espectro do pulso ressonante com a transição de um fóton. A evolução para uma área de  $0\pi$  ocorre agora de modo bem diferente. O pulso passa a desenvolver longas caudas oscilatórias com regiões de fases opostas, de modo que partes do pulso adicionam para a área enquanto outras partes subtraem, resultando numa área total de  $0\pi$  [44, 45]. Chamaremos de pulso  $0\pi$  um pulso neste regime: com área nula, mas energia finita. Neste caso, o pulso  $0\pi$  resulta numa excitação nula da transição de um fóton após a sua passagem. Para a população atômica, por exemplo, a parte do pulso que primeiro atinge a amostra excita os átomos, enquanto que a segunda parte os desexcita, e assim por diante. Isto resulta num comportamento oscilatório da população que termina com um valor desprezível. Na nossa situação experimental, temos uma amostra atômica densa interagindo com um pulso fraco, de modo que observamos a formação de pulsos  $0\pi$  no meio. Já que a largura de banda do laser é muito maior que a largura de linha da transição, temos a situação descrita neste parágrafo.

O problema da interação de pulsos de área pequena com um meio ressonante foi

matematicamente formulado por Crisp [44]. Esta teoria já foi comparada a vários experimentos [45, 54, 55], resultando sempre num acordo excelente. A teoria de Crisp é semiclássica, pois combina um campo clássico com as equações de Bloch para um átomo de dois níveis. Uma dedução alternativa e puramente clássica de suas expressões, utilizando um campo clássico e a teoria de Lorentz para a interação radiação-matéria, pode ser encontrada no livro do Allen e Eberly [53]. A teoria de Crisp estabelece que se  $\tilde{\mathcal{E}}(\omega)$  for a transformada de Fourier da envoltória do campo na entrada da célula

$$\tilde{\mathcal{E}}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \mathcal{E}(0, t) e^{i\omega t} dt ,$$

então a envoltória a uma distância  $l$  da entrada do meio é dada por

$$\mathcal{E}(l, t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\mathcal{E}}(\omega) \exp \left[ -i\omega \left( t - \frac{\eta l}{c} \right) - \alpha A(\omega) l \right] d\omega \quad (2.13)$$

onde  $\eta$  é um índice de refração constante sobre todo o espectro e  $A(\omega)$  dá a forma de linha da transição. Para um átomo de dois níveis  $\alpha = 2\pi N \mu_{12}^2 \omega_L / \hbar \eta c$ , com  $N$  sendo a densidade atômica e  $\mu_{12}$  o momento de dipolo elétrico da transição. Supondo um alargamento inhomogêneo devido apenas ao efeito Doppler, temos então que

$$A(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \Gamma_G} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\exp [ -(\delta_{12}^0 - \delta)^2 / 2\Gamma_G^2 ]}{\frac{1}{T_{12}} - i(\delta + \omega)} d\delta \quad (2.14)$$

onde  $\delta_{12}^0$  é a dessintonia  $\omega_{12} - \omega_L$  para o grupo de átomos em repouso no referencial do laboratório,  $\delta$  é a dessintonia extra vinda do alargamento inhomogêneo,  $T_{12}$  é o tempo de vida homogêneo da coerência, e  $\Gamma_G$  é a largura Doppler. O coeficiente de absorção do meio é dado por  $\alpha_0 = \alpha / \sqrt{2\pi} \Gamma_G$ .

Os resultados da teoria acima para a situação da Fig. 2.14a estão mostrados na Fig. 2.14b. Para gerar esta figura, consideramos  $\delta_{12}^0 = 0$ ,  $T_{12} = 53.4$  ns,  $\Gamma_G / 2\pi = 1$  GHz, e  $l = 5$  cm. O valor de  $T_{12}$  é aquele associado à transição  $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2}$  do rubídio, no caso de um alargamento homogêneo puramente radiativo. O valor de  $\Gamma_G$  representa um

alargamento efetivo da ordem das contribuições vindas dos vários níveis participantes da transição, o que será melhor explicado mais à frente. O campo inicial é dado por  $\mathcal{E}(t) = \mathcal{E}_0 \operatorname{sech}(1.763 t/T_p)$ , com  $T_p = 180$  fs. Note que  $\mathcal{E}_0$  pode ser colocado para fora das integrais, de modo que seu valor não é determinante para a forma do pulso. As curvas na Fig. 2.14b são o resultado de uma correlação cruzada, como na Eq. (2.12), em que  $I_s$  é dado pela Eq. (2.13) e  $I_{ref}$  é um pulso com a mesma forma do pulso sonda inicial. O ajuste com os dados experimentais foi feito através dos parâmetros  $\alpha_0$  e  $T_p$ . O parâmetro  $\alpha_0$  determina sozinho o período das oscilações, enquanto  $T_p$  modifica a forma do pulso em torno da origem.

Da teoria acima, vemos que se a área inicial do pulso for pequena, então sua forma final não depende da intensidade inicial do campo. Isto não ocorre, obviamente, na região não linear de excitação. Nesta região, a intensidade inicial do pulso é determinante para a sua forma final. Portanto, um modo de confirmar se estamos realmente observando a formação de pulsos  $0\pi$  no meio é diminuir a intensidade do feixe sonda e observar se a forma do pulso varia. O resultado de um teste desse tipo, onde a intensidade é variada por um fator de 10, está mostrado na Fig. 2.15. Vemos que a forma do pulso propagado não variou com a intensidade, confirmando portanto que estamos observando pulsos com áreas de  $0\pi$ . Os altos valores da densidade ótica  $\alpha_0 l$  na Fig. 2.14b indicam ainda que estamos bem dentro da região de parâmetros em que a área do pulso é nula.

Uma generalização da expressão (2.13) para um sistema de muitos níveis é obtida e testada experimentalmente na Ref. [54]. Nesta referência, os autores analisam a formação de pulsos  $0\pi$  devido à interação com a transição  $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{1/2}$  num vapor de rubídio. O sistema de níveis analisado é, portanto, muito semelhante ao que consideramos aqui. Os autores identificaram dois regimes principais de excitação. Para densidades baixas e intermediárias, a estrutura dos níveis hiperfinos se faz sentir na forma dos pulsos secundários gerados pela propagação. Observa-se, por exemplo, que não existe uma

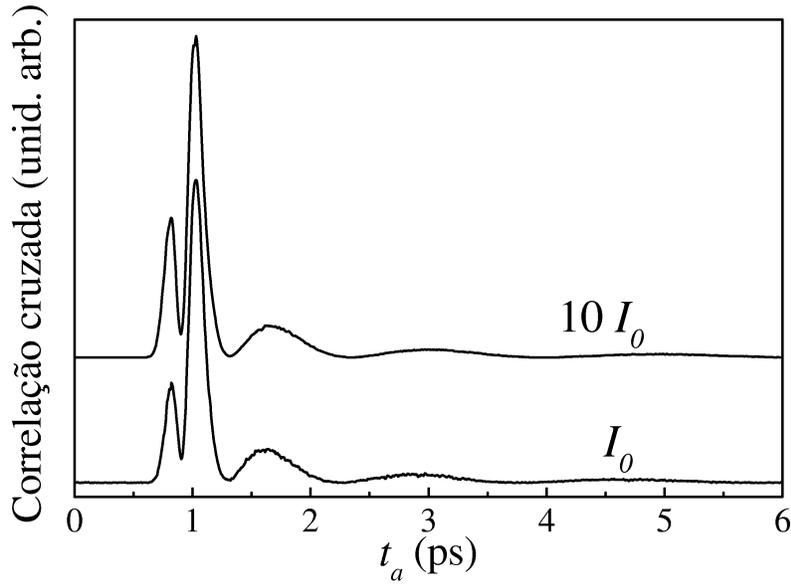


Figura 2.15: Medidas de correlação cruzada. A intensidade do campo na entrada do meio para a curva de cima é 10 vezes a intensidade  $I_0$  para a curva de baixo.

periodicidade bem definida no surgimento desses outros pulsos.

Já para o caso de uma amostra com alta densidade atômica, a região do espectro que é absorvida completamente na propagação engloba todas as linhas hiperfinas. Por conta disso, detalhes da estrutura hiperfina passam a não ter mais importância, e o sistema se comporta efetivamente como se tivesse apenas dois níveis. Neste regime, o aparecimento dos picos laterais ocorre com uma periodicidade bem definida. O modelo de dois níveis simplificado que adotamos nos cálculos da Fig. 2.14 apresenta um bom acordo porque experimentalmente estamos neste segundo regime, o de altas densidades. O valor efetivo de  $\Gamma_G$  reflete então apenas a ordem de grandeza da soma dos alargamentos inhomogêneos relativos às várias linhas. A grandeza que determina realmente a periodicidade dos pulsos laterais neste regime é apenas  $\alpha_0$ , o que foi imediatamente percebido por nós ao realizar o ajuste da teoria com os experimentos. Para frisar um pouco mais este ponto, plotamos na Fig. 2.16 o espectro teórico do pulso propagado para a curva de mais baixa densidade da Fig. 2.14b. No quadro principal da Fig. 2.16, vemos o espectro todo com a sua

parte central consumida devido à propagação. No quadro interno, temos uma ampliação da parte central e vemos que ela se estende por mais de 6 GHz, o que é suficiente para englobar praticamente toda a estrutura hiperfina da transição. Uma descrição da estrutura hiperfina da transição  $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2}$  pode ser encontrada na seção 3.4.

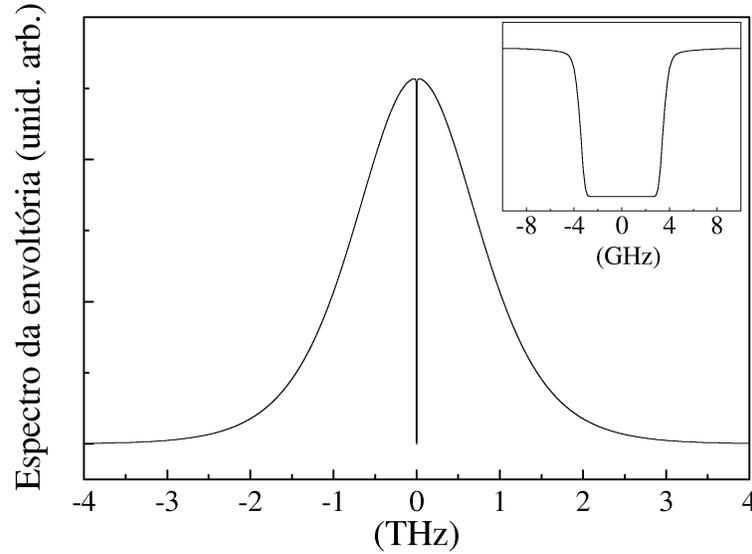


Figura 2.16: Espectro teórico,  $|\tilde{\mathcal{E}}(\nu)|^2$ , da envoltória após a propagação por 5 cm da amostra. Consideramos  $\alpha_0 l = 48$ . No quadro interno temos uma ampliação da região em torno da origem.

Finalmente, é bom lembrar que o campo considerado nos nossos experimentos está ressonante com uma transição atômica seqüencial. Ele excita, portanto, um sistema de três níveis, ao contrário dos dois níveis considerado na teoria acima. O momento de dipolo elétrico da primeira transição, no entanto, é consideravelmente mais forte que o da segunda. Além disso, como o campo é de baixa intensidade, existem mais átomos realizando a primeira transição do que a segunda. Isto faz com que a polarização macroscópica relativa à primeira transição exerça uma influência muito maior sobre o campo que a pequena polarização excitada na segunda transição. O pulso se propaga então como se estivesse interagindo apenas com a primeira transição, e a teoria de dois níveis se aplica bem ao nosso caso.

O comportamento transiente da população do nível 2 excitada por um pulso  $0\pi$  foi analisado em detalhe num artigo recente do grupo do Silberberg [55]. Este artigo cita o nosso trabalho [46] contendo os resultados desta seção, uma vez que podemos entender as oscilações de picosegundos que aparecem no nosso sinal como uma espécie de sondagem dessas oscilações transientes no nível  $5P_{3/2}$ . Na situação analisada na Ref. [55], porém, esta interpretação fica mais clara, pois eles utilizam um pulso sonda na segunda transição diferente do pulso utilizado para excitar a primeira transição. Como o pulso sonda não é ressonante com nenhuma transição a partir do estado fundamental e portanto não sofre efeitos de propagação, é possível tirar informações sobre a modificação do transiente da população no nível intermediário diretamente da distorção do sinal obtido a partir do terceiro nível.

### 2.2.2 Primeira teoria

Vamos agora procurar aplicar a teoria da seção 2.1 para explicar nossos resultados para uma transição seqüencial. Neste sentido, iremos analisar os resultados experimentais mostrados na Fig. 2.12 utilizando a Eq. (2.11) para  $\rho_{33}(\tau)$ . Primeiramente, devemos lembrar que  $\rho_{33}(\tau)$  depende de forma direta da função  $F(\tau)$ . Na Fig. 2.3 mostramos como esta função é afetada pela ressonância com o nível intermediário no caso de excitação por pulsos do tipo secante hiperbólica. O fato dos pulsos terem uma envoltória tipo  $0\pi$ , no entanto, também afeta bastante a função  $F(\tau)$ . Na Fig. 2.17, plotamos dois exemplos de funções  $F(\tau)$  distorcidas pela presença de pulsos  $0\pi$ . A diferença entre as curvas sólida e tracejada é apenas a densidade, que supomos dadas por  $\alpha_0 l = 21$  e  $\alpha_0 l = 42$ , respectivamente. O sinal experimental da Fig. 2.12 tem sua origem principal na região central da célula, onde se encontra o foco e o campo é mais intenso, de modo que consideramos  $l = 2.5$  cm em ambas as curvas da Fig. 2.17. Além disso, a partir do ajuste com os resultados experimentais que será discutido logo à frente, estabelecemos

$T_p = 140$  fs para a largura temporal do pulso na entrada da célula. Podemos notar claramente que as formas assumidas pela função  $F(\tau)$  com a variação da densidade têm as mesmas características da envoltória na escala de picosegundos que aparece nos resultados experimentais para a transição seqüencial.

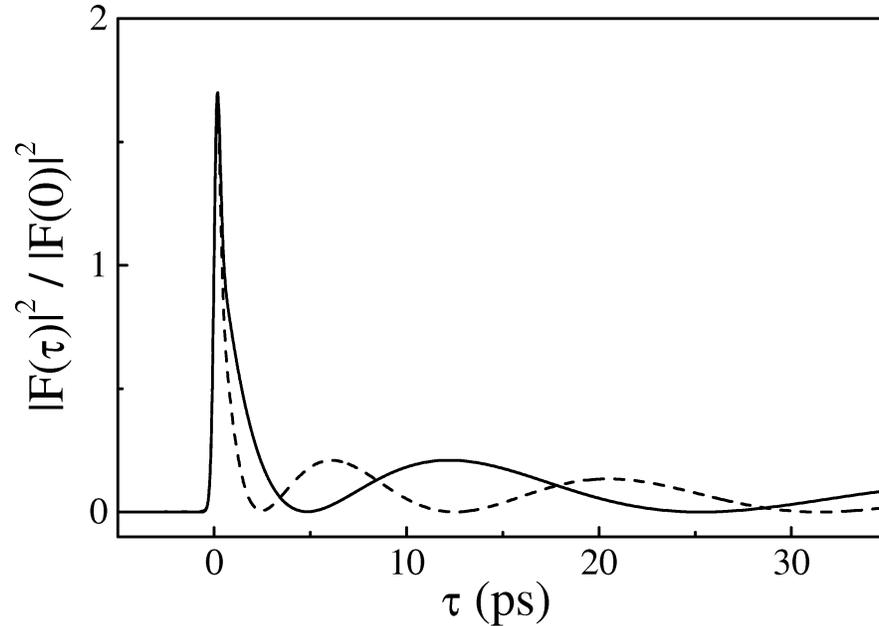


Figura 2.17: Funções  $F(\tau)$  para pulsos  $0\pi$  com  $\alpha_0 l = 21$ , para a curva sólida, e  $\alpha_0 l = 42$ , para a curva tracejada.

Como discutido na seção 2.1, a média num período ótico da Eq. (2.11) deveria fornecer a forma da curva experimental da Fig. 2.12a para uma varredura longa do atraso entre os pulsos. Observamos que a melhor comparação desta expressão com os resultados experimentais ocorre para uma densidade ótica de  $\alpha_0 l = 21$  e para  $T_p = 140$  fs. Utilizando estes valores e realizando a média num período ótico, obtivemos então a curva mostrada na Fig. 2.18. Notamos que o ajuste gera uma curva que tem semelhanças com a da Fig. 2.12a, mas também uma marcante diferença. Como semelhanças, podemos citar a envoltória de picosegundos e as relações dos picos entre si e com o fundo constante. No entanto, a Eq. (2.11) falha ao não prever a ocorrência do batimento em 473 fs.

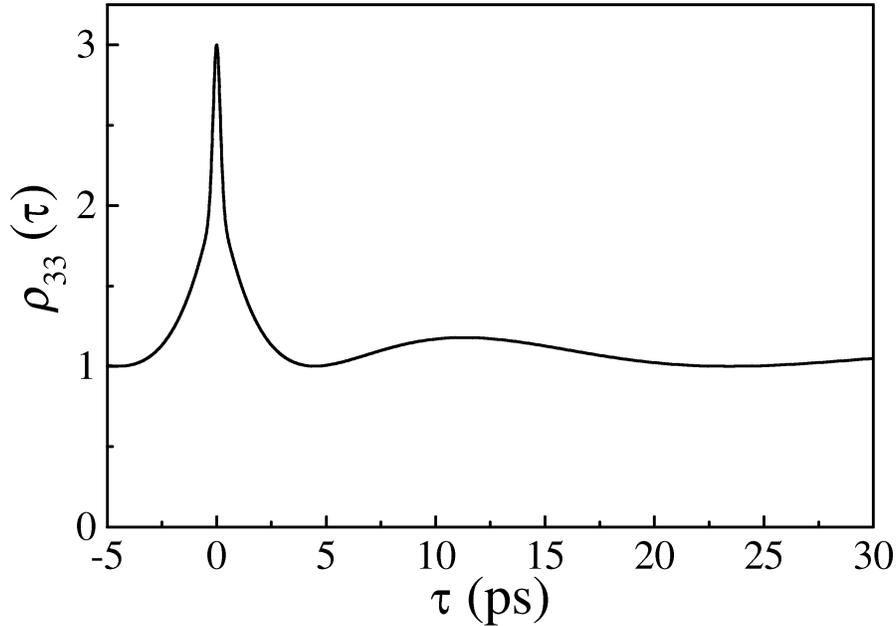


Figura 2.18: População no nível 3 variando com o atraso relativo entre os pulsos, para a excitação por um par de pulsos  $0\pi$ . A curva foi obtida fazendo uma média num período ótico da Eq. (2.11), e supondo  $\alpha_0 l = 21$  e  $T_p = 140$  fs.

É interessante observar que o quarto termo na Eq. (2.11) oscila com um período de  $2\pi/\Delta = 473$  fs. No entanto, este termo só é relevante em torno da origem, já que envolve uma multiplicação entre  $F(\tau)$  e  $F(-\tau)$ . Este fato pode também ser entendido lembrando que este termo representa a interferência entre os caminhos (2) e (3) da Fig. 2.2. Fazendo uma analogia com o experimento de dupla fenda de Young, temos que a visibilidade da interferência depende crucialmente dos dois caminhos de excitação terem pesos equivalentes. Se um caminho for muito mais provável que o outro, a visibilidade da interferência será baixa. O termo de interferência entre os caminhos (2) e (3) só contribui na origem porque estes caminhos são equivalentes apenas nesta região. Ao se afastar da origem no sentido de valores positivos de  $\tau$ , por exemplo, o caminho (2) se torna logo bem mais provável que o caminho (3), diminuindo desta forma em muito a visibilidade da interferência entre eles. Por conta disso, este termo da Eq. (2.11) não

consegue explicar os batimentos nas nossas curvas experimentais.

O fato da Eq. (2.11) falhar na explicação dos nossos resultados é de certa forma surpreendente. Esta teoria é muito comum na literatura [25, 18, 19, 22], e seus resultados estão comumente de acordo com os experimentos, como pudemos constatar quando analisamos a transição por dois fótons na seção 2.1. Além disso, as condições experimentais que utilizamos também são bem comuns. O mesmo tipo de laser, com taxa de repetição e frequências parecidas às que usamos, é encontrado em vários trabalhos relacionados ao controle coerente de átomos alcalinos ou moléculas diatômicas [18, 19, 22]. Mais na frente, voltaremos a esse ponto para discutir quais diferenças na nossa situação experimental, com relação a outros trabalhos da literatura, trouxeram à tona as limitações da teoria.

Finalmente, as curvas com precisão interferométrica da Fig. 2.12b podem ainda ser bem explicadas pela Eq. (2.11). Note que, uma vez que  $F(\tau)$  sobrevive para valores de  $\tau$  distantes da origem, o quinto termo desta equação leva a um batimento com frequência  $\omega_L$  superposto ao batimento em  $2\omega_L$  do sexto termo. Além disso, o quinto termo também têm uma variação mais lenta, com período de  $2\pi/\Delta = 473$  fs, que explica a mudança observada nos padrões de interferência dos quadros pequenos da Fig. 2.12b.

## 2.3 Acumulação incoerente

A solução que encontramos para o desencontro observado na última seção entre teoria e experimentos foi acrescentar mais um elemento físico à teoria da seção 2.1: a sobrevivência de excitação no meio atômico entre dois tiros do laser. Este efeito está claramente presente no sistema, pois o período  $T_R$  de repetição do laser é menor que os tempos de vida dos níveis atômicos envolvidos. Os tempos de vida dos níveis  $5D$ ,  $5P_{3/2}$  e  $7S$  são 241 ns, 26.7 ns e 99.0 ns, respectivamente [56]. Já  $T_R$  é de cerca de 13 ns. Portanto, os átomos de rubídio não conseguem relaxar completamente entre dois pulsos do laser.

A adaptação da teoria da seção 2.1, para levar em conta uma relaxação apenas parcial da função de onda do sistema entre dois pulsos, é bem direta. O primeiro passo é considerar que um pulso qualquer que atinja o meio irá encontrar o sistema não mais no estado fundamental, mas sim numa superposição arbitrária dos auto-estados do átomo

$$|\Psi(0)\rangle_I = c_1^0|1\rangle + c_2^0|2\rangle + c_3^0|3\rangle, \quad (2.15)$$

onde os  $c_i^0$  são amplitudes complexas que especificam o estado inicial. Segue daí que o  $c_3$  de equilíbrio, após a passagem do pulso, é dado agora por

$$\begin{aligned} c_3 &= c_3(t \rightarrow \infty) = \langle 3|\hat{U}_I(\infty)|\Psi(0)\rangle_I \\ &= c_1^0 \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^2 \int_0^\infty dt' \int_0^{t'} dt'' \langle 3|\hat{V}_I(t')|2\rangle \langle 2|\hat{V}_I(t'')|1\rangle \\ &\quad + c_2^0 \left(-\frac{i}{\hbar}\right) \int_0^\infty dt' \langle 3|\hat{V}_I(t')|2\rangle \\ &\quad + c_3^0 \left[ 1 + \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^2 \int_0^\infty dt' \int_0^{t'} dt'' \langle 3|\hat{V}_I(t')|2\rangle \langle 2|\hat{V}_I(t'')|3\rangle \right], \end{aligned} \quad (2.16)$$

onde consideramos novamente apenas a ordem mais baixa do campo. Note que, como não sabemos de antemão a ordem de grandeza de cada  $c_i^0$ , a aproximação de menor ordem no campo tem que ser feita de forma independente nas séries de potência que multiplicam cada um dos  $c_i^0$ .

Nosso objetivo, da mesma forma que na seção 2.1, é obter  $\rho_{33} = |c_3|^2$ . No entanto, vemos a partir da Eq. (2.16) que agora  $\rho_{33}$  depende de todos os elementos da matriz densidade inicial  $\rho_{ij}^0 = c_i^0 c_j^{0*}$ . Dessa forma, a expressão completa para  $\rho_{33}$  envolve nove termos. Uma teoria desse tipo, que considera acumulação em todos os elementos da matriz densidade, será desenvolvida no Cap. 4.

Por enquanto, iremos adotar uma abordagem simplificada do problema. Iremos considerar que os únicos termos da matriz densidade que sobrevivem de um pulso para o

outro são a população do nível 3 (o nível com maior tempo de vida) e, obviamente, a população do nível fundamental, ou seja, consideraremos que apenas  $\rho_{33}^0, \rho_{11}^0 \neq 0$ . Os motivos para esta aproximação são três. O primeiro é o fato de que estamos considerando a atuação de um pulso  $0\pi$ . Isto faz com que a população e as coerências relacionadas ao nível 2 possam ser desprezadas. Além disso, o tempo de vida do nível 2 é bem menor que o tempo de vida do nível 3, de modo que realmente uma parcela bem menor da população do nível 2 sobrevive até a chegada do próximo pulso, se comparada com a parcela do nível 3 que sobrevive. Voltaremos a este ponto no Cap. 4, onde confirmaremos que esta aproximação é bem razoável.

O segundo motivo da aproximação é realmente oferecer um tratamento simplificado do problema. Isto se refere principalmente à não consideração da acumulação na coerência  $\rho_{13}$ , já que o tempo de vida desta coerência é até maior que o tempo de vida da população  $\rho_{33}$ . No entanto, o problema de acumulação na coerência, e ainda mais num sistema de três níveis, é razoavelmente mais complicado do que tratar acumulação apenas na população. Este problema será abordado no restante desta tese, de modo que é interessante oferecer primeiro uma discussão simplificada.

O terceiro motivo é o fato de que este tratamento parcial do problema já leva à previsão do batimento em 473 fs. Isto indica que na acumulação apenas da população  $\rho_{33}$  já se encontra a razão fundamental do surgimento deste batimento. Desta forma, podemos ter uma noção dos elementos mínimos necessários para descrevermos este efeito.

Portanto, considerando apenas  $\rho_{33}^0$  e  $\rho_{11}^0$  como diferentes de zero, substituindo  $\rho_{11}^0 = 1 - \rho_{33}^0$ , e mantendo apenas os termos de menor ordem no campo, a população no terceiro nível logo após a passagem do pulso fica

$$\rho_{33} = \left| \left( -\frac{i}{\hbar} \right)^2 \int_0^\infty dt' \int_0^{t'} dt'' \langle 3 | \hat{V}_I(t') | 2 \rangle \langle 2 | \hat{V}_I(t'') | 1 \rangle \right|^2 + \rho_{33}^0 \left\{ 1 + \left[ \left( -\frac{i}{\hbar} \right)^2 \int_0^\infty dt' \int_0^{t'} dt'' \langle 3 | \hat{V}_I(t') | 2 \rangle \langle 2 | \hat{V}_I(t'') | 3 \rangle + c.c. \right] \right\},$$

que pode ser reescrita como

$$\begin{aligned}\rho_{33} &= C + \rho_{33}^0 \left[ 1 - \left| \frac{1}{\hbar} \int_0^\infty dt' \langle 2 | \hat{V}_I(t') | 3 \rangle \right|^2 \right] \\ &= C + \rho_{33}^0 (1 - S)\end{aligned}\quad (2.17)$$

onde  $C$  é o termo usual de segunda ordem (na intensidade do campo) que produz população no terceiro nível a partir da existente no primeiro nível, e  $S$  é um termo de primeira ordem que dá a redução da população inicial  $\rho_{33}^0$  ocasionada pela emissão estimulada entre os níveis 3 e 2.

No controle temporal coerente que estamos considerando aqui, os pulsos de laser são divididos em dois, de modo que a envoltória do pulso passa a ser dada pela Eq. (2.7). Utilizando está expressão para a envoltória do pulso e mais as Eqs. (2.1), (2.3) e (2.5), temos que  $C$  e  $S$  passam a ser funções de  $\tau$  da forma

$$C(\tau) = \left| F(0) + e^{i\omega_{21}\tau} F(-\tau) + e^{i\omega_{32}\tau} F(\tau) + e^{i\omega_{31}\tau} F(0) \right|^2, \quad (2.18)$$

e

$$S(\tau) = h_1 [1 + \cos(\omega_{32}\tau)], \quad (2.19)$$

onde

$$h_1 = 2 \left| \frac{\mu_{23}}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt' e^{-i\delta_{23}t'} \mathcal{E}_1(t') \right|^2. \quad (2.20)$$

Note que, como esperado para um termo de emissão estimulada, a integral em  $h_1$  é simplesmente o espectro do pulso na frequência da segunda transição. O termo  $C$  é igual à população excitada para o nível 3 sem considerar nenhum processo de acumulação, como dada pela Eq. (2.10).

Após a passagem do pulso, a população excitada no meio continua variando por conta do lento processo de decaimento incoerente. Levando em conta este decaimento, podemos utilizar a Eq. (2.17) para obter a população logo antes do próximo pulso em

função da população antes do pulso anterior. Para isso, chamemos  $\rho_{33}^j$  a população no nível 3 antes do  $j$ -ésimo pulso e  $T_{33}$  o tempo de vida desta população. Da Eq. (2.17), segue então que a população  $\rho_{33}^{j+1}$  é dada por

$$\rho_{33}^{j+1} = e^{-T_R/T_{33}} [C + \rho_{33}^j(1 - S)] . \quad (2.21)$$

Após um grande número de pulsos, a população do nível 3 deve atingir um estado estacionário. Nesta situação, vale uma condição de auto-consistência:  $\rho_{33}^{j+1} = \rho_{33}^j = \rho_{33}^f$ . Da Eq. (2.21), esta condição resulta então em

$$\rho_{33}^f = \frac{\gamma_{33}C(\tau)}{1 + \gamma_{33}S(\tau)} , \quad (2.22)$$

onde

$$\gamma_{33} = \frac{e^{-T_R/T_{33}}}{1 - e^{-T_R/T_{33}}} \quad (2.23)$$

é um fator de aumento devido ao processo de acumulação. Quando  $T_{33} \gg T_R$ , por exemplo,  $\gamma_{33}$  é simplesmente  $T_{33}/T_R$ , o número de pulsos que atingem o meio durante o tempo de relaxação do nível 3. Este fator de aumento é o mesmo que ocorre em outras teorias que envolvem processos de acumulação incoerente, como no caso dos estudos de ecos de fótons acumulados [57, 58]. Para o caso da transição seqüencial que queremos discutir aqui, temos  $T_{33} = 241$  ns, de modo que  $\gamma_{33} = 18$ .

A Eq (2.22) para  $\rho_{33}^f$  é então a que nos dá o valor da população do nível 3 no sistema atômico na presença do processo de acumulação. O limite mais simples desta equação ocorre quando  $\gamma_{33}S \ll 1$ . Neste caso,  $\rho_{33}^f = \gamma_{33}C(\tau)$  e o efeito de acumulação resulta apenas numa constante multiplicando a expressão comumente conhecida para a população. Esta é a situação, por exemplo, quando temos uma transição de dois fótons pura, de modo que  $S = 0$ , como nos estudos da seção 2.1 para o rubídio e das Refs. [18] e [22] para o césio. Neste limite, bastante freqüente, a teoria da seção 2.1 gera boas predições.

Quando  $\gamma_{33}S \gtrsim 1$ , por outro lado, a situação é bem diferente. O denominador da Eq. (2.22) leva a expressões para os termos interferométricos cuja média sobre um período ótico não se anula, de modo que elas dão origem a contribuições que oscilam com frequência  $\Delta = \omega_{23} - \omega_{12}$  enquanto os termos interferométricos estiverem presentes. Podemos observar isto claramente através do cálculo da média da Eq. (2.22). Neste caso, obtemos

$$\begin{aligned} \langle \rho_{33}^f \rangle_{\text{ótico}} &= h_2 \{ 2|F(0)|^2 + |F(\tau)|^2 + |F(-\tau)|^2 + h_3 \text{Re} [F^*(0)F(-\tau) + F(0)F^*(\tau)] \\ &+ \text{Re} \left[ 2F^*(-\tau)F(\tau) + \frac{h_3^2 |F(0)|^2}{2} + h_3 F^*(0)F(-\tau) + h_3 F(0)F^*(\tau) \right] \cos(\Delta\tau) \\ &+ \text{Im} [2F^*(-\tau)F(\tau) - h_3 F^*(0)F(-\tau) - h_3 F(0)F^*(\tau)] \text{sen}(\Delta\tau) \}, \end{aligned} \quad (2.24)$$

onde

$$h_2 = \frac{\gamma_{33}}{\sqrt{1 + 2\gamma_{33}h_1}}, \quad (2.25)$$

$$h_3 = 2 \frac{\sqrt{1 + 2\gamma_{33}h_1} - (1 + \gamma_{33}h_1)}{\gamma_{33}h_1}, \quad (2.26)$$

e  $\langle \dots \rangle_{\text{ótico}}$  denota a média num período ótico. Na Eq. (2.22), perceba que os termos com  $\cos(\Delta\tau)$  e  $\text{sen}(\Delta\tau)$  não mais se restringem a uma contribuição em torno da origem. É bom observar também que quando  $h_1 \rightarrow 0$ , a Eq. (2.22) dá simplesmente a média num período ótico de  $\gamma_{33}C(\tau)$ , como era de se esperar.

Na situação experimental da seção 2.2 (transição seqüencial), a medida da cintura do feixe no foco dá 70  $\mu\text{m}$ . A potência do laser na célula é de cerca de 100 mW, e para o momento de dipolo da segunda transição usamos  $\mu_{23} = 4.24 \times 10^{-30} \text{ C} \cdot \text{m}$  [59]. Para um pulso tipo secante hiperbólica na entrada da célula, estes valores de parâmetros resultam em  $h_1 \sim 0.05$  e  $\gamma_{33}h_1 \sim 0.9$ . Portanto, nossa situação experimental corresponde bem ao caso em que  $\gamma_{33}S \approx 1$ .

As curvas teóricas que correspondem à situação experimental da Fig. 2.12 estão mostradas na Fig. 2.19. Na Fig. 2.19a temos uma varredura com baixa resolução em

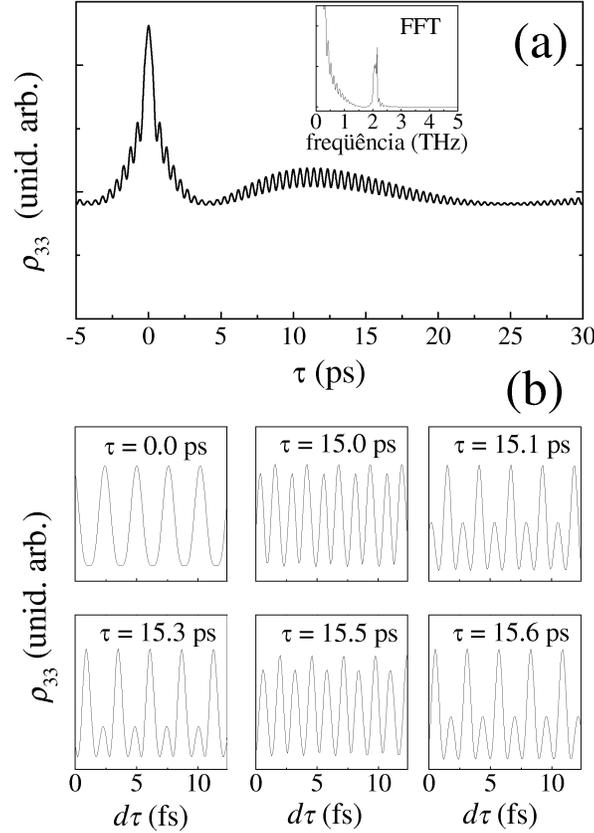


Figura 2.19: Variação da população do terceiro nível com o atraso relativo entre os pulsos, para a excitação por um par de pulsos  $0\pi$ . (a) Varredura com baixa resolução, como dada pela Eq. (2.24). O quadro interno mostra a transformada rápida de Fourier (FFT) da curva. (b) Varredura com alta resolução temporal para seis diferentes atrasos, como dada pela Eq. (2.22). Supomos  $\alpha_0 l = 21$ ,  $T_p = 140$  fs e  $h_1 = 0.017$ .

$\tau$ , e na Fig. 2.19b seis varreduras com alta resolução. A Fig. 2.19b vem de uma aplicação direta da Eq. (2.22). Já a Fig. 2.19a é obtida a partir da Eq. (2.24). O campo propagado é calculado utilizando a teoria da seção 2.2.1 para pulsos  $0\pi$ . O melhor ajuste aos dados experimentais foi conseguido com um pulso de largura temporal  $T_p = 140$  fs na entrada da célula, uma amplitude do campo elétrico tal que  $h_1 = 0.017$ , e uma densidade ótica de  $\alpha_0 l = 21$ , que são compatíveis com nossos parâmetros experimentais.

Para varreduras de baixa resolução, a comparação das curvas nas Figs. 2.19a e 2.12a mostra um bom acordo. A teoria prevê corretamente o batimento em 473 fs (quadro interno da Fig. 2.19a), a relação de amplitude entre o sinal que varia e o fundo constante, e a envoltória lenta que vem da propagação do pulso. A única discrepância maior que notamos é na largura do pico em torno de  $\tau = 0$ . Do estudo do Cap. 4, observamos que esta discrepância desaparece ao considermos a acumulação nas coerências.

Para as varreduras com alta resolução, obtivemos também um bom acordo entre a teoria (Fig. 2.19b) e os experimentos (Fig. 2.12b). A diferença entre o sinal em torno de  $\tau = 0$  e para valores de  $\tau$  muito maiores que a largura temporal dos pulsos a meia altura é predita corretamente, com a presença de uma componente com frequência  $2\omega_L$  neste último caso. Também é predita corretamente a variação do sinal nos quadros menores com passos de centenas de femtosegundos no atraso temporal.

Como já frisamos anteriormente, estas características dos batimentos de femtosegundos não dependem de nenhuma acumulação de população e podem ser inferidas diretamente da Eq. (2.11). A curva teórica com baixa resolução, por outro lado, tem uma forma que depende diretamente do processo de acumulação no nível 3, como pode ser inferido pela comparação das Fig. 2.19a e 2.18. A sua concordância com a observação experimental, portanto, confirma a adequação do tratamento dado até aqui. Comparações para outras densidades do vapor atômico também mostram um bom acordo com os resultados experimentais.

## Capítulo 3

# Acumulação coerente num sistema de dois níveis

Vimos no capítulo anterior que o processo de acumulação da excitação no meio atômico é responsável por modificações significativas de um sinal de controle temporal coerente. Esta constatação nos leva à necessidade de aprofundar o entendimento desses processos de acumulação, particularmente buscando entender as conseqüências da sobrevivência de coerência atômica entre pulsos consecutivos do laser. Obviamente, este estudo também tem como objetivo a generalização da teoria simplificada da seção 2.3. Esta generalização, no entanto, só será discutida no Cap. 4.

Neste capítulo, vamos abordar o problema da acumulação coerente no sistema mais simples em que ela ocorre: o átomo de dois níveis. Queremos com isso ganhar intuição física sobre este processo, antes de tratá-lo num sistema mais complicado, como o átomo de três níveis do capítulo anterior. Esta abordagem é essencial, pois veremos que apesar de este parecer um problema complicado à primeira vista, ele se presta a uma descrição qualitativa simples e bastante robusta. Esta descrição qualitativa pode então ser generalizada de forma bem direta para o caso de três níveis.

A interação entre um átomo de dois níveis e um trem de pulsos é um problema bastante básico. Por conta disso, já existem vários trabalhos que tratam do tema na literatura. Desses trabalhos, o mais aprofundado, tanto do ponto de vista teórico quanto experimental, foi o desenvolvido por E. Kruger [31, 42], publicado entre 1994 e 1995. No entanto, é possível encontrar artigos desde o final da década de 70 [60, 61] que abordam vários aspectos do problema.

Ainda assim, a análise desenvolvida neste capítulo apresenta várias novidades. A primeira está relacionada com o modelo para o trem de pulsos que atua sobre o átomo. Utilizamos aqui a descrição mais em voga atualmente para o trem de pulsos emitido por um laser de Ti:safira com travamento de modos [7, 38]. Essa descrição é a mesma que vem sendo empregada nos estudos de metrologia, e que já foi extensamente testada nesse contexto. Uma consequência importante de sua utilização é que nossas expressões teóricas passam a depender da fase relativa entre pulsos consecutivos do trem, e podemos com isso visualizar de forma clara a sua importância na interação com o sistema atômico. Esta fase relativa é um parâmetro fundamental para a caracterização e estabilização do pente de frequências dos lasers utilizados em metrologia.

A segunda novidade está relacionada com o caráter mais geral das nossas expressões teóricas. Estas valem para qualquer área de pulso e para dessintonias grandes o suficiente para abarcar, com muita folga, todo o perfil Doppler de um vapor atômico à temperatura ambiente. Em geral, os trabalhos anteriores ou se restringem ao regime perturbativo de excitação, ou desenvolvem cálculos numéricos para pulsos de área grande, ou deduzem teorias analíticas com áreas arbitrárias para situações bem específicas (a mais comum sendo considerar dessintonia nula) [39, 40, 41, 42, 43]. Na verdade, existe uma razão muito simples para esses trabalhos anteriores não deduzirem as expressões mais gerais deste capítulo: os pulsos considerados por eles eram mais longos. Os pulsos considerados nesses estudos tinham larguras de banda espectral menor ou da ordem do

---

alargamento inhomogêneo do meio estudado. Isto impossibilitava a aplicação de algumas das aproximações que utilizamos aqui, e que são muito bem justificadas para pulsos de femtosegundos.

Finalmente, também realizamos um estudo experimental para observar a atuação de um trem de pulsos ultracurtos sobre o perfil Doppler de um vapor atômico. Mais especificamente, realizamos um experimento de absorção saturada em que o feixe de bombeio contínuo foi substituído por um laser de femtosegundos. Dessa forma, o feixe de sonda da absorção saturada permite observar a atuação do laser de femtosegundos no meio. Além disso, como temos a opção de realizar conjuntamente a absorção saturada usual, obtemos com isso uma régua de frequências para analisar a atuação do trem de pulsos.

Este experimento não tem como objetivo testar a teoria deste capítulo, pois ele envolve a atuação de dois feixes sobre um átomo com muitos níveis, o que não corresponde às hipóteses da teoria. Ele também não acrescenta grandes novidades se comparado a experimentos anteriores [42]. O objetivo de sua realização aqui é apenas dar uma demonstração experimental extra, no contexto desta tese, dos efeitos de acumulação coerente que discutimos neste capítulo. Ainda assim, esse experimento apresenta algumas diferenças com relação aos experimentos anteriores discutidos na literatura, sendo a principal delas o fato do laser pulsado permanecer fixo. Desde os primeiros estudos de espectroscopia de alta resolução com lasers pulsados [27, 28], a grande maioria dos trabalhos varia o pente de frequências do laser e todos empregam apenas lasers pulsados no estudo. Nenhum trabalho, até onde sabemos, utiliza um laser contínuo para sondar a atuação do laser pulsado. Por conta disso, esses outros trabalhos não puderam sondar diretamente a atuação do laser sobre o perfil inhomogêneo do sistema. Eles precisam sempre utilizar alguma técnica para eliminar esta largura de linha inhomogênea (como espectroscopia de polarização [29] ou absorção saturada com lasers pulsados [30]) ou estudar sistemas onde

este alargamento seja desprezível (como numa armadilha magneto-ótica [32] ou num feixe atômico [31]).

Neste capítulo, a seção 3.1 estabelece nosso modelo para o trem de pulsos do laser e para a interação do átomo com o campo. Na seção 3.2, obtemos equações que descrevem a atuação de um único pulso do trem sobre o átomo num estado inicial arbitrário. Este é um passo essencial da teoria, pois se o sistema não relaxa completamente entre dois tiros do laser, um pulso arbitrário que atinge o meio pode encontrar o átomo, em princípio, em qualquer estado inicial. Em seguida, na seção 3.3, utilizamos estas equações para deduzir uma expressão auto-consistente para a população no estado excitado. Esta expressão dá o estado estacionário final do átomo após a interação de uma sucessão grande de pulsos com o meio. Este estado estacionário é então o responsável pela resposta do sistema para tempos de aquisição muito maiores que o tempo necessário para ele se estabelecer no meio.

A seção 3.3 é o centro deste capítulo. Nela vemos que, quando ocorre acumulação de coerência, a atuação do trem de pulsos sobre um meio alargado inhomogeneamente se dá através da impressão do pente de frequências do laser no perfil inhomogêneo do meio. Vemos também que este efeito não ocorre em uma situação de acumulação incoerente, como na seção 2.3. Além disso, na seção 3.3 ainda discutimos o regime não linear de excitação. Neste regime, notamos que a resposta do sistema é periódica com a área do pulso, um comportamento típico em várias teorias que discutem a excitação de um átomo de dois níveis por pulsos de luz [53]. No experimento de absorção saturada com o laser de femtosegundos, podemos observar diretamente o pente de frequências do trem de pulsos sendo impresso no perfil Doppler de um vapor de átomos de rubídio à temperatura ambiente. Este experimento é descrito na seção 3.4.

## 3.1 Modelo

Nosso tratamento para o problema começa considerando um átomo de dois níveis sob a ação do campo elétrico  $E(t)$  de um pulso de laser de frequência central  $\omega_L$ . O hamiltoniano do sistema é  $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{int}$ , onde  $\hat{H}_0 = \hbar\omega_{12}|2\rangle\langle 2|$  é o hamiltoniano do átomo livre. O acoplamento  $\hat{H}_{int} = -\mu_{12}E(t)|1\rangle\langle 2| + \text{h.c.}$  representa a interação do átomo com o campo, e  $\mu_{12}$  é o momento de dipolo da transição.

Neste capítulo, não utilizaremos o formalismo de amplitudes de probabilidade, como foi o caso no Cap. 2. Empregaremos desde de início um formalismo baseado na matriz densidade e nas equações de Bloch correspondentes [62, 63]. Na verdade, este tratamento é mais geral que o do capítulo anterior, pois permite discutir estados não puros do sistema e já incorpora desde o início os processos de relaxação incoerentes devidos à interação com o meio. Além disso, ao separar a descrição do meio em termos de populações e coerências se obtém uma imagem mais intuitiva da evolução temporal do sistema. A distinção entre tempo de vida da população e tempo de vida da coerência, por exemplo, permite descrever de forma simples, mas bem razoável, vários processos de relaxação que afetam de forma distinta estas grandezas.

Na aproximação de onda girante, as equações de Bloch que descrevem a evolução temporal do sistema de dois níveis interagindo com o campo são

$$\frac{\partial \rho_{22}}{\partial t} = \left[ i \frac{\mu_{12} \mathcal{E}^*(t)}{\hbar} \sigma_{12} + \text{c.c.} \right] - \frac{\rho_{22}}{T_{22}}, \quad (3.1a)$$

$$\frac{\partial \sigma_{12}}{\partial t} = i\delta\sigma_{12} + i \frac{\mu_{12} \mathcal{E}(t)}{\hbar} (2\rho_{22} - 1) - \frac{\sigma_{12}}{T_{12}}, \quad (3.1b)$$

onde  $\rho_{22}$  é a população do estado excitado,  $\sigma_{12} = \rho_{12}e^{-i\omega_L t}$  é a envoltória lentamente variável da coerência, e  $\delta = \omega_{12} - \omega_L$  é a dessintonia do laser com relação à transição atômica.  $T_{22}$  e  $T_{12}$  são os tempos de vida da população e da coerência, respectivamente, e  $\mathcal{E}(t) = E(t)e^{-i\omega_L t}$  é a envoltória do pulso de laser. A população do estado funda-

mental  $\rho_{11}$  foi eliminada das Eqs. (3.1) utilizando a condição de normalização. Como as equações de Bloch para um átomo de dois níveis são bem freqüentes na literatura [62, 64], não oferecemos aqui uma dedução delas. No entanto, no apêndice A oferecemos uma dedução das equações de Bloch para um sistema de três níveis, que pode ser facilmente particularizada para dar a dedução do caso de dois níveis (é só fazer  $\mu_{23} = 0$ ).

Em todos os experimentos dessa tese, utilizamos um laser de Ti:safira com modos travados. Qualquer descrição realista do trem de pulsos emitido por um laser desse tipo tem que levar em conta a existência de diferenças de fase entre dois pulsos consecutivos do laser [7, 38, 65]. Seguindo a Ref. [38] e considerando  $T_R$  como o período de repetição do laser, escrevemos esta diferença de fase como  $\Delta\Psi = \Phi_R + \omega_L T_R$ , onde  $\Phi_R$  é a fase não-linear adquirida pelo laser em uma volta na cavidade, e o segundo termo vem do retardo de grupo. O campo elétrico para o trem de pulsos é então:

$$\begin{aligned} E_T(t) &= \sum_{n=0}^{\infty} E(t - nT_R) e^{in\Delta\Psi} \\ &= \left[ \sum_{n=0}^{\infty} \mathcal{E}(t - nT_R) e^{in\Phi_R} \right] e^{i\omega_L t} = \mathcal{E}_T(t) e^{i\omega_L t}. \end{aligned} \quad (3.2)$$

A partir desta equação, fica claro que podemos aplicar a aproximação de onda girante para o trem todo, onde a envoltória que varia lentamente é agora  $\mathcal{E}_T(t)$  e não mais  $\mathcal{E}(t)$ .

De modo a esclarecer o papel dos parâmetros  $\Phi_R$  e  $T_R$ , notemos que a transformada de Fourier  $\tilde{E}_T(\omega)$  do trem de pulsos (3.2) é dada por

$$\tilde{E}_T(\omega) = \tilde{\mathcal{E}}(\omega + \omega_L) \sum_{n=0}^{\infty} e^{in[(\omega + \omega_L)T_R + \Phi_R]}, \quad (3.3)$$

onde  $\tilde{\mathcal{E}}(\omega)$  é a transformada de Fourier de  $\mathcal{E}(t)$ , definida por

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

O somatório na Eq. (3.3) faz o papel de um filtro de freqüência, que elimina qualquer componente de  $\tilde{\mathcal{E}}(\omega)$  para a qual  $(\omega + \omega_L)T_R + \Phi_R \neq -2N\pi$ , onde  $N$  é um inteiro e

o sinal negativo na sua frente foi colocado arbitrariamente para indicar que estamos trabalhando no espaço negativo de frequências. O espectro de  $E_T(t)$  consiste então num pente de modos separados de  $2\pi/T_R$  e centrados em  $-(\omega_L + \Phi_R/T_R)$ . A frequência absoluta do  $N$ -ésimo modo é dada por

$$\omega_N = \omega_L + \frac{2\pi N}{T_R} + \frac{\Phi_R}{T_R}. \quad (3.4)$$

Como ilustração, a Fig. 3.1 mostra a parte central do espectro de um trem de pulsos, onde vemos a estrutura de picos separados de  $2\pi/T_R$ . As linhas sólida e tracejada dão os resultados para  $\Phi_R = 0$  e  $\Phi_R = \pi/2$ , respectivamente. Como esperado da Eq. (3.4),  $\Phi_R \neq 0$  apenas translada as linhas espectrais de  $\Phi_R/2\pi T_R$ .

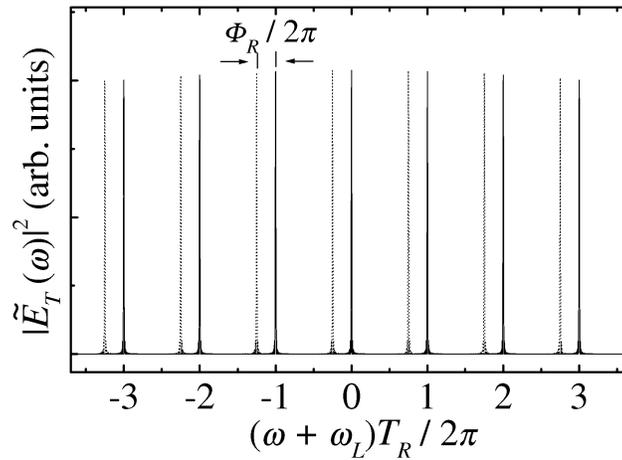


Figura 3.1: Parte central do espectro de um trem de pulsos. As linhas sólida e tracejada dão os resultados para  $\Phi_R = 0$  e  $\Phi_R = \pi/2$ , respectivamente.

## 3.2 Solução para um estado inicial arbitrário

Como na seção 2.3, o nosso objetivo aqui é encontrar o estado estacionário final do átomo após a interação com um número grande de pulsos do trem. Para isso, precisamos obter expressões que descrevam a excitação do sistema por um pulso qualquer do trem

a partir de um estado inicial arbitrário do átomo. O primeiro passo nesse sentido é reescrever as Eqs. (3.1) em sua forma integral:

$$\rho_{22}(t) = e^{-t/T_{22}} \rho_{22}^n + e^{-t/T_{22}} \int_0^t dt' e^{t'/T_{22}} \left[ \frac{i\mu_{12} \mathcal{E}_n^*(t')}{\hbar} \sigma_{12}(t') + \text{c.c.} \right], \quad (3.5a)$$

$$\begin{aligned} \sigma_{12}(t) &= e^{i\delta t - t/T_{12}} \sigma_{12}^n \\ &+ e^{i\delta t - t/T_{12}} \int_0^t dt' e^{-i\delta t' + t'/T_{12}} \frac{i\mu_{12} \mathcal{E}_n(t')}{\hbar} [2\rho_{22}(t') - 1], \end{aligned} \quad (3.5b)$$

onde  $\rho_{22}^n$  e  $\sigma_{12}^n$  especificam o estado do átomo antes do n-ésimo pulso do trem, cuja envoltória é dada por  $\mathcal{E}_n(t)$ .

Queremos utilizar as Eqs. (3.5) para estudar a excitação de um vapor de átomos alcalinos à temperatura ambiente por um trem de pulsos ultracurtos. Isto implica que os tempos de vida atômicos, tanto homogêneo quanto inhomogêneo, são bem maiores que a largura temporal do pulso. Tipicamente, os tempos de vida homogêneos são maiores que 25 ns e os tempos de defasamento inhomogêneos (devido ao efeito Doppler) maiores que 1 ns, enquanto a largura temporal do pulso é de cerca de 100 fs. Por conta disso, numa situação próxima de ressonância em que a precessão livre da coerência  $\sigma_{12}$  ocorre com um período da ordem do tempo de defasamento inhomogêneo, podemos realizar a seguinte aproximação dentro das integrais das Eqs. (3.5):

$$\mathcal{E}_n(t) e^{t/T_{22}} \approx \mathcal{E}_n(t) e^{-i\delta t + t/T_{12}} \approx \mathcal{E}_n(t). \quad (3.6)$$

Perceba-se que esta aproximação somente é possível porque, durante o tempo em que o pulso atua sobre o átomo, a variação dos fatores exponenciais pode ser completamente desprezada.

A partir da Eq. (3.2), vemos que a envoltória do n-ésimo pulso no trem é dada por  $\mathcal{E}_n(t) = \mathcal{E}(t) e^{in\Phi_R}$ , onde  $\mathcal{E}(t)$  é a envoltória do primeiro pulso ( $n = 0$ ) a atingir o meio. Como última aproximação, consideraremos  $\mathcal{E}(t)$  como sendo uma função real.

Esta aproximação é restritiva (com ela não podemos tratar, por exemplo, pulsos  $0\pi$ ), mas bem razoável, já que a forma de pulso mais comum gerada por um laser de Ti:safira com travamento de modos é uma função secante hiperbólica real [65].

Utilizando estas aproximações, as Eqs. (3.5) assumem a forma

$$\rho_{22}(t) = e^{-t/T_{22}} \rho_{22}^n + e^{-t/T_{22}} \left[ i e^{-in\Phi_R} \int_{-\infty}^t dt' \frac{\mu_{12} \mathcal{E}(t')}{\hbar} \sigma_{12}(t') + \text{c.c.} \right], \quad (3.7a)$$

$$\sigma_{12}(t) = e^{i\delta t - t/T_{12}} \sigma_{12}^n + i e^{i\delta t - t/T_{12} + in\Phi_R} \int_{-\infty}^t dt' \frac{\mu_{12} \mathcal{E}(t')}{\hbar} [2\rho_{22}(t') - 1], \quad (3.7b)$$

onde também aproveitamos o fato de que  $\mathcal{E}(t) = 0$  se  $t < 0$ , para substituir o limite inferior das integrais por  $-\infty$ .

Este sistema de equações pode ser resolvido iterativamente, e sua solução assume uma forma bastante simples se utilizarmos a seguinte relação obtida por sucessivas integrações por partes:

$$\left( \frac{\mu_{12}}{\hbar} \right)^n \int_{-\infty}^t dt_1 \mathcal{E}(t_1) \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \mathcal{E}(t_2) \cdots \int_{-\infty}^{t_{n-1}} dt_n \mathcal{E}(t_n) = \frac{1}{n!} \left[ \frac{\mu_{12}}{\hbar} \int_{-\infty}^t dt_1 \mathcal{E}(t_1) \right]^n. \quad (3.8)$$

Dessa forma, para tempos  $t$  muito maiores que  $T_p$ , de modo que podemos fazer  $t \rightarrow \infty$  no limite das integrais, as expressões para  $\rho_{22}(t)$  e  $\sigma_{12}(t)$  são dadas por

$$\rho_{22}(t) = e^{-t/T_{22}} \left\{ \sin^2 \frac{\theta}{2} + \cos \theta \rho_{22}^n + i \frac{\sin \theta}{2} (e^{-in\Phi_R} \sigma_{12}^n - e^{in\Phi_R} \sigma_{21}^n) \right\}, \quad (3.9a)$$

$$\begin{aligned} \sigma_{12}(t) = e^{i\delta t - t/T_{12} + in\Phi_R} & \left\{ -i \frac{\sin \theta}{2} + i \sin \theta \rho_{22}^n + \cos^2 \frac{\theta}{2} e^{-in\Phi_R} \sigma_{12}^n \right. \\ & \left. + \sin^2 \frac{\theta}{2} e^{in\Phi_R} \sigma_{21}^n \right\}, \end{aligned} \quad (3.9b)$$

onde

$$\theta = \frac{2\mu_{12}}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} \mathcal{E}(t) dt,$$

é a área do pulso [52, 53]. Estas são, portanto, as expressões que buscávamos para o estado do sistema excitado por um pulso ultracurto a partir de um estado inicial arbitrário.

### 3.3 Estado estacionário da acumulação coerente

Como discutimos no capítulo anterior, se o período de repetição do laser  $T_R$  é menor que os tempos de relaxação do sistema, o meio acaba por acumular excitação na forma de coerência e de população nos estados excitados. Depois de um número grande de pulsos, no entanto, o sistema atinge um estado estacionário que é repetido com um período de  $T_R$ . Esse estado pode ser obtido a partir das Eqs. (3.9) percebendo que o estado do sistema antes do  $(n+1)$ -ésimo pulso é dado por  $\rho^{n+1} = \rho(t = T_R)$  nessas equações. Assim, o estado estacionário deve ser determinado por uma condição de auto-consistência que relaciona  $\rho^{n+1}$  a  $\rho^n$ .

Esta condição, no entanto, não pode ser simplesmente  $\rho^{n+1} = \rho^n$ , como na teoria com acumulação incoerente da seção 2.3, já que existe uma diferença de fase de  $\Phi_R$  entre dois pulsos consecutivos. Esta diferença de fase faz com que a excitação não seja completamente periódica, de modo que a situação estacionária do sistema passa também a ter um componente não periódico. As condições de auto-consistência são então modificada para  $\rho_{22}^f = \rho_{22}^{n+1} = \rho_{22}^n$  e  $\sigma_{12}^{n+1} = e^{i\Phi_R} \sigma_{12}^n$ , onde a diferença de fase na coerência compensa a diferença de fase no campo. Note que a população e o módulo da coerência são ainda periódicos. Estas condições de auto-consistência foram obtidas a partir da análise das Eqs. (3.9), onde observamos que a diferença de fase na coerência era necessária para se obter uma repetição da população antes de cada pulso. Estas condições levam à seguinte expressão para a população:

$$\rho_{22}^f = \gamma_c \rho_{22}^s, \quad (3.10)$$

onde  $\rho_{22}^s = \sin^2(\theta/2)$  é a população excitada por um único pulso atuando no estado fundamental, e  $\gamma_c$  dá o fator de aumento do estado estacionário devido à acumulação

$$\gamma_c = \frac{e^{-T_R/T_{22}}(1+p)}{1 - p \cos \theta + e^{-T_R/T_{22}}(p - \cos \theta)}, \quad (3.11)$$

com

$$p = \frac{\cos(\delta T_R - \Phi_R)e^{-T_R/T_{12}} - e^{-2T_R/T_{12}}}{1 - \cos(\delta T_R - \Phi_R)e^{-T_R/T_{12}}}. \quad (3.12)$$

Para esclarecer o significado da Eq. (3.10) para  $\rho_{22}^f$ , a Fig. 3.2 compara uma integração numérica direta das equações de Bloch [Eqs. (3.1)] com o resultado obtido a partir da Eq. (3.10). Consideramos um trem de pulsos do tipo secante hiperbólica interagindo com um átomo inicialmente no estado fundamental. A função envoltória é então  $\mathcal{E}(t) = \mathcal{E}_0 \operatorname{sech}(1.763t/T_p)$ , onde  $\mathcal{E}_0$  é a amplitude de pico do pulso e  $T_p$  é a sua largura temporal a meia altura. As Eqs. (3.1) foram integradas usando um método Runge-Kutta de quarta ordem com passo adaptativo [66], e o resultado para  $\rho_{22}(t)$  é mostrado na curva sólida da Fig. 3.2. A curva tracejada dá a predição da Eq. (3.10) para a população final, e a curva pontilhada dá o valor de  $\rho_{22}^s$ . Note que, para a situação estacionária final, a curva tracejada sempre encontra a curva sólida logo antes de cada pulso. Para estas curvas, estabelecemos  $T_p = 100$  fs e  $T_R = 10$  ns, que são valores típicos para um laser de Ti:safira com modos travados. Para o sistema atômico, usamos  $T_{22} = 25$  ns e  $T_{12} = 2T_{22} = 50$  ns, que são também valores típicos para uma transição cíclica de um vapor de átomos alcalinos a baixas densidades, onde apenas processos de relaxação radiativos estão presentes. Os outros parâmetros foram  $\theta = \pi/20$ ,  $\delta = 0$ , e  $\Phi_R = 0$ .

Nas condições da Fig. 3.2, a acumulação leva a um fator de aumento de  $\gamma_c = 15.5$ , que é muito maior que o fator de aumento incoerente  $\gamma_{22} = e^{-T_R/T_{22}}/(1 - e^{-T_R/T_{22}}) = 2.0$  esperado das teorias para processos de acumulação que levam em conta apenas acumulação de população, como na seção 2.3 e na Ref. [58]. Este enorme fator de aumento é um efeito coerente. Para a área de pulso pequena da Fig. 3.2, quando  $e^{i\delta T_R} = 1$  e a fase de uma volta no laser é  $\Phi_R = 0$ , a coerência excitada por um pulso qualquer do trem é simplesmente adicionada à coerência excitada pelo pulso anterior. Isto leva a um forte aumento da coerência e, conseqüentemente, também da população. Este aumento pode ser entendido como uma interferência construtiva, já que as fases atrasadas no

tempo adquiridas pela coerência ao longo da sucessão de pulsos são análogas às fases atrasadas no tempo que resultam nas franjas de interferência num experimento de múltiplas fendas [33, 48]. Da periodicidade de  $\gamma_c$  com  $\delta$  e  $\Phi_R$ , vemos que a condição para tal interferência construtiva é  $\delta T_R - \Phi_R = 2N\pi$  ou, usando a definição (3.4),

$$\omega_{12} = \omega_N, \quad (3.13)$$

o que corresponde ao N-ésimo modo do laser estar ressonante com a transição atômica.

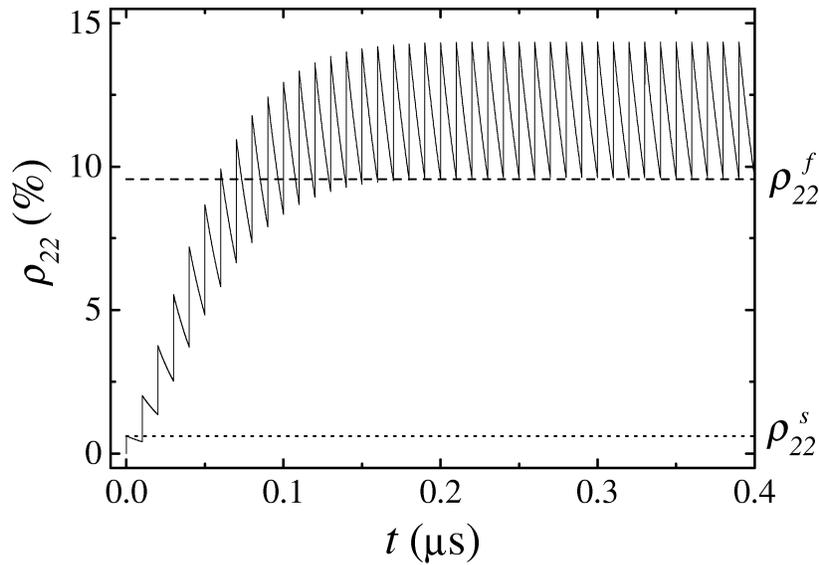


Figura 3.2: Evolução temporal da população do estado excitado. A curva sólida é obtida a partir de uma integração numérica direta das equações de Bloch. A curva tracejada dá o valor da população estacionária  $\rho_{22}^f$  ao final do processo de acumulação [Eq. (3.10)], e a curva pontilhada corresponde ao valor da população  $\rho_{22}^s$  excitada por um único pulso.

Para um grupo arbitrário de átomos, a condição (3.13) não é necessariamente satisfeita. A situação é então mais complexa, e pode levar a interferências construtivas ou destrutivas, dependendo do valor de  $\delta$ . Para um vapor de átomos alcalinos à temperatura ambiente, o alargamento Doppler inhomogêneo é usualmente muito maior que o

alargamento homogêneo. Os diferentes grupos de velocidade correspondem a diferentes dessintonias, e estão portanto em situações diferentes com respeito ao processo de acumulação. Isto está ilustrado na Fig. 3.3, onde a curva sólida dá a variação da população final  $\rho_{22}^f$  para os vários grupos de átomos (representados pela dessintonia  $\delta$ ) no vapor, pesada pelo perfil Doppler  $\exp(-\delta^2/2\delta_D^2)$ . Para a Fig. 3.3, consideramos  $\delta_D/2\pi = 0.2$  GHz, um valor comum para vapores alcalinos à temperatura ambiente. Os outros parâmetros da curva sólida são os mesmos da Fig. 3.2. Para simplificar, consideramos  $\omega_L$  ressonante com o grupo de átomos em repouso no referencial do laboratório, de modo que o perfil Doppler está centrado em  $\delta = 0$ . Note que  $T_p \ll \delta_D^{-1}$ , o que garante a validade das Eqs. (3.9) e (3.10) para todos os  $\delta$  considerados aqui.

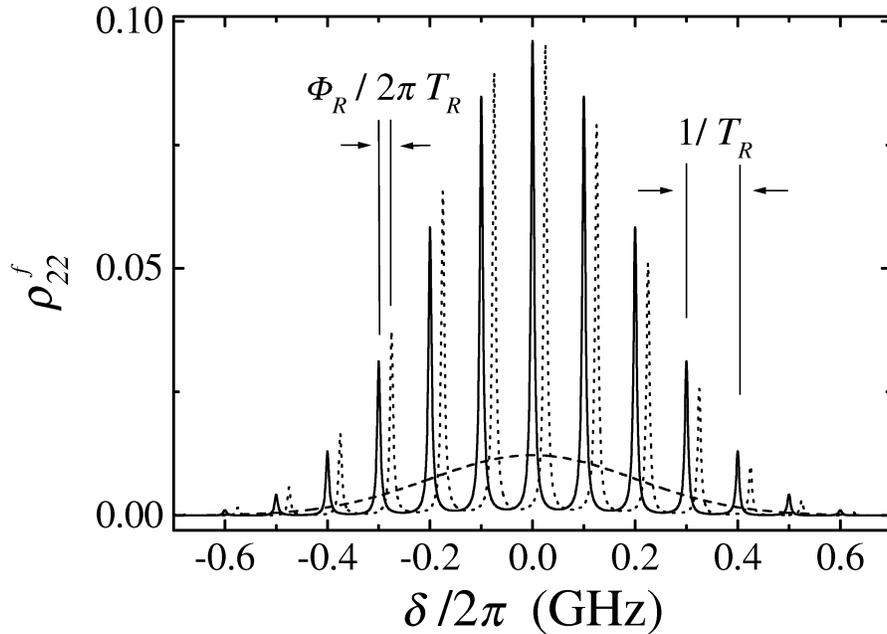


Figura 3.3: Variação da população  $\rho_{22}^f$  para os vários grupos de átomos no vapor, pesada pelo perfil Doppler com  $\delta_D/2\pi = 0.2$  GHz. As curvas sólida e pontilhada correspondem a  $\Phi_R = 0$  e  $\Phi_R = \pi/2$ , respectivamente. Os outros parâmetros são os mesmos usados na Fig. 3.2. A curva tracejada corresponde à situação com  $T_{12} = 1$  ns.

O efeito de uma fase  $\Phi_R \neq 0$  sobre a curva sólida da Fig. 3.3 é ilustrado pela curva pontilhada na mesma figura. Para esta curva, consideramos  $\Phi_R = \pi/2$ . Vemos então que a excitação no sistema sofre apenas uma translação de  $\Phi_R/2\pi T_R$  entre os vários grupos de átomos, a mesma translação sofrida pelo pente de frequências do laser (ver Fig. 3.1). Este comportamento é uma consequência direta da periodicidade de  $\rho_{22}^f$  com  $\delta T_R - \Phi_R$ , que por outro lado vem da periodicidade do trem de pulsos.

A estrutura de picos nas curvas sólida e pontilhada da Fig. 3.3 tem sua origem na condição de ressonância (3.13), que é satisfeita toda vez que  $\delta = (2N\pi + \Phi_R)/T_R$ . Esta figura também ilustra a transição de uma interferência construtiva para uma destrutiva à medida que  $\delta$  se distancia de um valor que satisfaz a condição (3.13). Para distinguir entre interferências construtivas e destrutivas, plotamos a curva tracejada na Fig. 3.3 com o resultado do mesmo cálculo, mas sem acumulação na coerência. Fazemos isso considerando  $T_{12} = 1$  ns na Eq. (3.10), o que leva a  $p \approx 0$  e  $\gamma_c \approx \gamma_{22}$  para áreas pequenas. Neste caso, a aproximação de pulsos curtos ( $T_p \ll T_{12}$ ) ainda é válida, mas a coerência não sobrevive de um pulso para o seguinte, pois  $T_{12} \ll T_R$ . A variação de  $\rho_{22}^f$  com  $\delta$  se torna então uma função suave com sua forma determinada apenas pelo perfil Doppler. De forma aproximada, podemos dizer então que a parte da curva sólida acima da curva tracejada na Fig. 3.3 está relacionada a interferências construtivas, enquanto que a parte abaixo da curva tracejada corresponde a interferências destrutivas.

No limite de áreas de pulso pequenas, a largura de cada pico dentro do perfil inhomogêneo é limitada pela largura de linha homogênea [42]. O comportamento para áreas de pulso arbitrárias é mostrado na Fig. 3.4. A principal mudança para áreas de pulso grandes é um aumento da largura dos picos, o que pode ser interpretado como um alargamento por potência. Em  $\theta = \pi$ , todos os picos se juntam num único perfil Doppler suave. Para áreas maiores que  $\pi$  mas menores que  $2\pi$ , o comportamento é o mesmo que para pulsos de áreas iguais a  $2\pi - \theta$ . Para áreas ainda maiores, o comportamento do

sistema simplesmente se repete a cada aumento de  $2\pi$  na área do pulso.

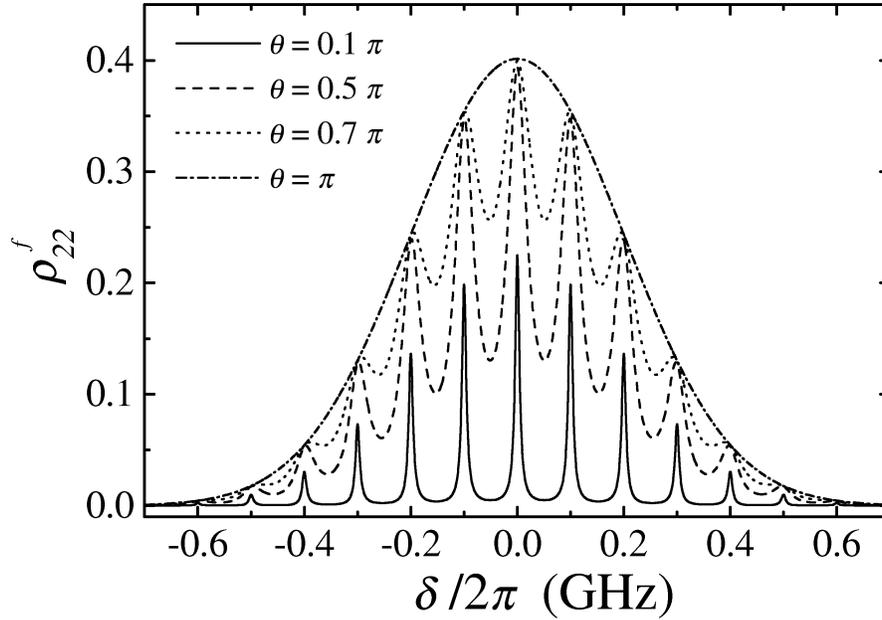


Figura 3.4: Variação da população  $\rho_{22}^f$  para os vários grupos de átomos, pesada pelo perfil Doppler e para várias áreas de pulso. Os outros parâmetros são os mesmos usados para a curva sólida na Fig. 3.3.

O desaparecimento da estrutura de picos para  $\theta = \pi$  vem do fato de que nenhuma coerência é excitada para esta área de pulso. Isto pode ser facilmente verificado a partir das Eqs. (3.9). Uma outra forma de ver esse resultado é seguindo o vetor de Bloch [64] que descreve a evolução temporal do estado do átomo de dois níveis. A dinâmica do vetor de Bloch sob a ação da seqüência de pulsos fornece uma visão geométrica da discussão desta seção. O ponto de partida para essa análise é o fato de que a parte coerente (excluindo os termos de relaxação) das equações de Bloch (3.1) pode ser colocada na forma da seguinte equação vetorial:

$$\frac{d\mathbf{r}}{dt} = \boldsymbol{\Omega} \times \mathbf{r} , \quad (3.14)$$

que é definida num espaço tridimensional com versores  $\hat{x}$ ,  $\hat{y}$  e  $\hat{z}$ , e onde

$$r_x = 2\text{Re}\sigma_{12} , \quad (3.15a)$$

$$r_y = -2\text{Im}\sigma_{12}, \quad (3.15b)$$

$$r_z = \rho_{22} - \rho_{11}, \quad (3.15c)$$

representam as três componentes do vetor de Bloch. O vetor  $\mathbf{\Omega}$  tem como componentes

$$\Omega_x = 2 \frac{\mu_{12} \text{Re } \mathcal{E}(t)}{\hbar}, \quad (3.16a)$$

$$\Omega_y = -2 \frac{\mu_{12} \text{Im } \mathcal{E}(t)}{\hbar}, \quad (3.16b)$$

$$\Omega_z = -\delta, \quad (3.16c)$$

de modo que ele descreve tanto a atuação do campo sobre o átomo como a precessão livre da coerência.

A aproximação (3.6), que equivale a desprezar a precessão livre da coerência durante a atuação do pulso, consiste agora em considerar  $\Omega_z \simeq 0$  enquanto o pulso atua sobre o átomo. Para simplificar, suporemos ainda  $\Phi_R = 0$ . Como consideramos apenas envoltórias reais na dedução das expressões desta seção, segue que  $\Omega_y \propto \text{Im } \mathcal{E}(t) = 0$ . O vetor  $\mathbf{\Omega}$  se situa, portanto, sobre o eixo  $x$ . Da forma da Eq. (3.14) e com estas considerações em mente, temos que a atuação do trem de pulsos sobre o átomo se dá através de uma sucessão de precessões impulsivas em torno do eixo  $x$ , intercaladas com períodos em que o sistema relaxa livremente.

A evolução de um átomo inicialmente no estado fundamental sob a atuação de um trem de pulsos  $\pi$  é ilustrada na Fig. 3.5. Nesta figura, os vetores  $\mathbf{\Omega}_i$  representam o  $i$ -ésimo pulso atuando sobre o átomo. As setas em cinza indicam o estado do sistema antes de cada pulso, e o vetor  $\mathbf{r}$  em preto dá o estado após o pulso. Os quadros (a), (b), (c) e (d) descrevem a atuação dos quatro primeiros pulsos a atingir o átomo. Para pulsos  $\pi$ , esta atuação assume a forma de uma rotação de  $\pi$  em torno do eixo  $x$ . Note que o sistema relaxa entre dois pulsos consecutivos. Se logo após o primeiro pulso temos

$r_z = 1$ , logo antes do próximo pulso atingir o meio este valor se reduz para  $r_z \simeq 0.2$ . A sucessão de pulsos que atingem o átomo leva portanto a uma série de inversões de  $r_z$  em torno de  $r_z = 0$ , até que o sistema encontra a situação estacionária em que o estado antes de um pulso qualquer é igual ao estado antes do próximo pulso. A atuação de dois pulsos consecutivos do trem sobre o átomo, nesta situação, é mostrada nos quadros (e) e (f).

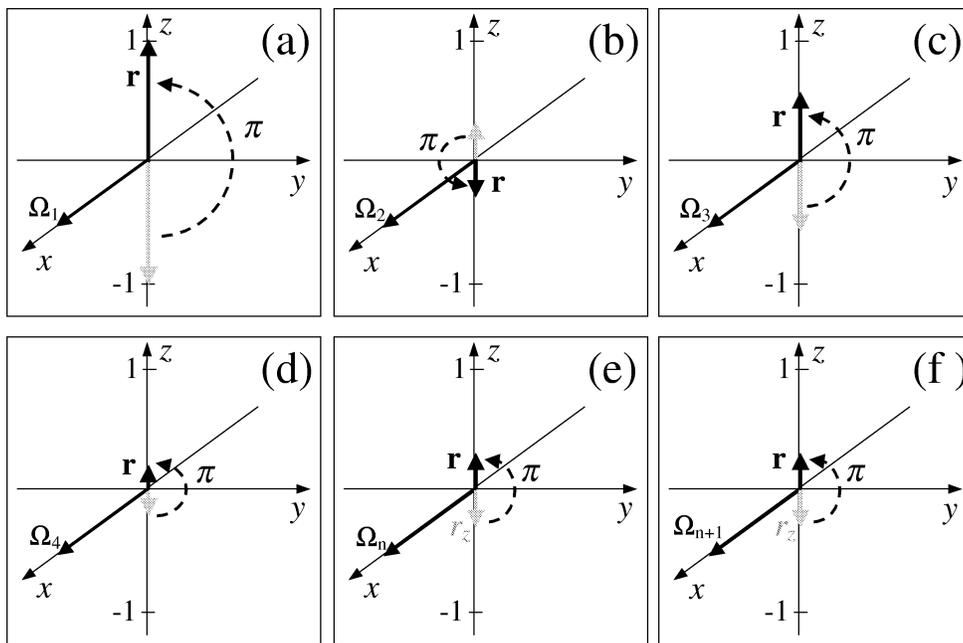


Figura 3.5: Evolução temporal do vetor  $\mathbf{r}$ , que descreve o estado do sistema, sob a ação de um trem de pulsos ultracurtos. O vetor  $\Omega_i$  descreve a atuação do  $i$ -ésimo pulso no trem. Os vetores em cinza fornecem o estado do sistema antes dos pulsos, enquanto os vetores  $\mathbf{r}$  em preto dão o estado após os pulsos. Consideramos o átomo inicialmente no estado fundamental. A atuação dos quatro primeiros pulsos do trem está mostrada nos quadros (a), (b), (c) e (d). A atuação de dois pulsos consecutivos sobre o sistema já no estado estacionário final está mostrada nos quadros (e) e (f), onde a componente  $r_z$  do estado antes de cada pulso (em cinza) é igual.

É importante perceber que a análise do parágrafo acima independe do valor de  $\delta$ , que determina a precessão livre da coerência entre dois pulsos do laser. Isto ocorre devido ao fato do pulso  $\pi$  não excitar nenhuma coerência ao atuar sobre o sistema, como pode ser constatado pela componente sempre nula de  $\mathbf{r}$  no plano  $xy$ . Como  $\delta$  não influencia o estado final do sistema quando este é excitado por um trem de pulsos  $\pi$ , segue que, neste caso,  $\rho_{22}^f$  depende de  $\delta$  apenas através do peso de cada grupo de átomos no perfil Doppler, o que gera a curva suave mostrada na Fig. 3.4. É importante sublinhar ainda que esse desaparecimento da estrutura de picos na excitação do sistema atômico por pulsos  $\pi$  já foi observado experimentalmente na Ref. [42], que comparou o resultado experimental com uma série de integrações numéricas das equações de Bloch, obtendo um bom acordo.

Na Fig. 3.5, o átomo não tinha inicialmente nenhuma coerência. Se ele tivesse alguma coerência inicial, a discussão seguiria de forma bem parecida, pois o pulso  $\pi$  deixa o módulo do vetor  $\mathbf{r}$  no plano  $xy$  (módulo da coerência) inalterado após a sua atuação. Esta componente no plano  $xy$ , no entanto, sempre diminui entre dois pulsos devido à relaxação, e acaba se anulando após um número grande de pulsos. A situação final sendo, portanto, novamente a ilustrada nos quadros (e) e (f) da Fig. 3.5.

### 3.4 Experimento de absorção saturada

Como uma ilustração para os efeitos de acumulação coerente discutidos acima, realizamos um experimento de absorção saturada em que o feixe de bombeio monocromático é trocado por um laser de Ti:safira de femtosegundos (Tsunami/Spectra Physics). Os parâmetros experimentais são próximos aos considerados na Fig. 3.3. O laser de Ti:safira emite um trem de pulsos com  $T_p \approx 100$  fs e uma taxa de repetição de 82 MHz. O laser está sintonizado em 780 nm e tem uma largura de banda de aproximadamente 6 nm. Sua potência média é de cerca de 500 mW, para uma cintura de feixe de 1.5 mm.

A amostra atômica é um vapor de rubídio confinado numa célula fechada à temperatura ambiente. Queremos estudar a excitação da transição  $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2}$ , cuja frequência é de cerca de 780.1 nm. Um esquema dos níveis de energia hiperfinos para esta transição está mostrado na Fig. 3.6. O alargamento Doppler é de cerca de 200 MHz à temperatura ambiente para cada transição hiperfina. Dos valores das frequências na Fig. 3.6 e do valor da largura Doppler, podemos constatar que a transição  $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2}$

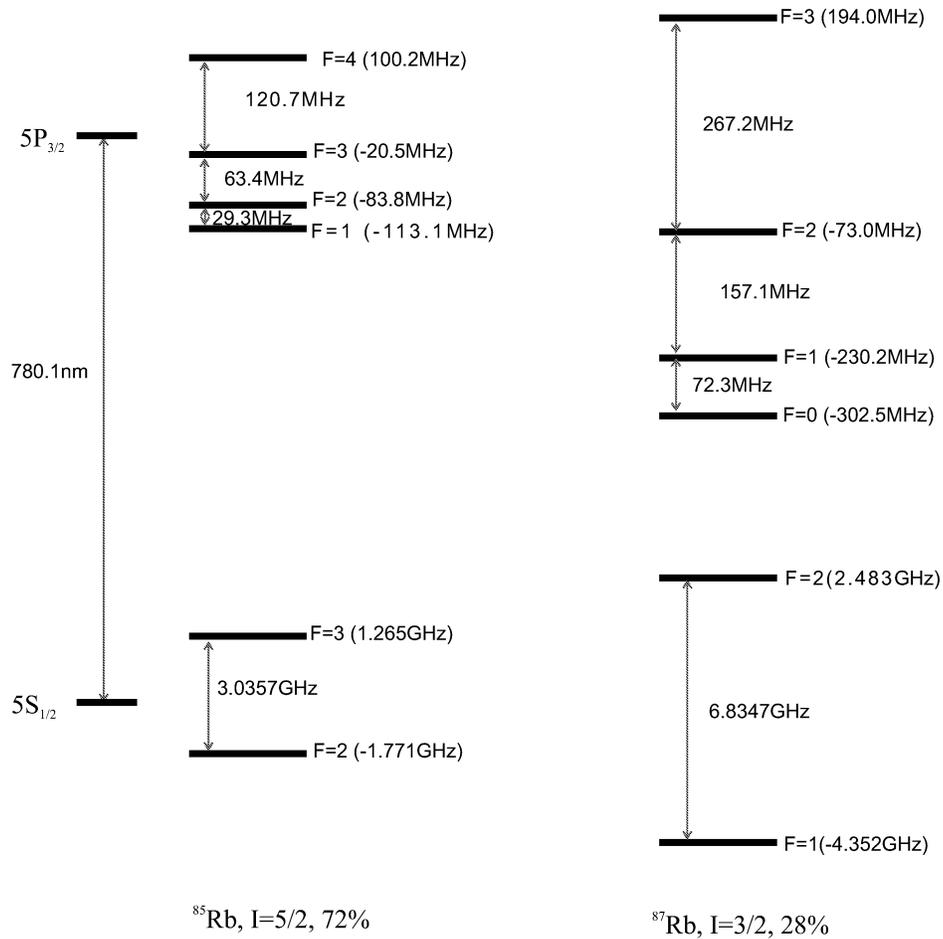


Figura 3.6: Níveis de energia hiperfinos da transição  $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2}$  do rubídio. A concentração natural relativa dos dois isótopos do rubídio é 72% de  $^{85}\text{Rb}$  e 28% de  $^{87}\text{Rb}$ .

apresenta quatro linhas de absorção. Cada uma dessas linhas conecta um dos estados fundamentais a um conjunto de três estados excitados, que têm os seus perfis Doppler sobrepostos um ao outro. Todas as linhas hiperfinas estão dentro de um intervalo de 0.02 nm em torno de 780.1 nm. A largura de banda dos pulsos de femtosegundos é então grande o suficiente para excitar todo o perfil Doppler de todas as transições hiperfinas.

Para sondar a ação do laser de femtosegundos sobre o sistema atômico, montamos um experimento de absorção saturada na mesma célula de vapor, utilizando um laser de diodo monocromático, e deixamos o feixe de bombeio da absorção saturada copropagante ao feixe do Ti:safira. Nosso aparato experimental para a absorção saturada padrão é completamente análogo ao descrito na Ref. [67]. O aparato completo do nosso experimento está mostrado na Fig. 3.7. Nele estão indicados também os dois pontos de bloqueio dos feixes. Quando o feixe do laser de Ti:safira está bloqueado, o experimento resulta numa absorção saturada usual. Quando o feixe de bombeio do laser de diodo está bloqueado, obtemos o sinal em que estamos interessados nesta seção.

O experimento de absorção saturada usual emprega dois feixes de laser monocromáticos de mesma frequência. Os dois feixes incidem de forma contra-propagante na célula de vapor, e um deles (o de bombeio) é muito mais intenso que o outro (o feixe de prova). O sinal observado indica a absorção do feixe de prova após a passagem pela célula. Devido ao efeito Doppler, no referencial de um grupo de átomos qualquer com velocidade finita, os dois feixes de laser têm frequências diferentes. Um deles tem frequência  $\omega_L - kv$  e o outro  $\omega_L + kv$ , onde  $k$  é o módulo do vetor de onda do laser e  $v$  é a componente da velocidade dos átomos na direção de propagação do laser. Por conta disso, se  $v \neq 0$ , então os dois feixes vão estar ressonantes com grupos de átomos distintos, e a absorção do feixe de prova ocorre como se o bombeio não estivesse presente. Já para o grupo de átomos com  $v = 0$ , os dois feixes atuam juntos sobre o mesmo grupo de átomos. Na situação em que a frequência do laser coincide com a frequência da transição para os

átomos parados, como o feixe de bombeio é bem mais intenso e satura o meio atômico, a absorção do feixe de prova sofre uma diminuição. Portanto, ao variarmos a frequência do laser, toda vez que ela coincidir com a de uma transição atômica veremos um buraco dentro do perfil de absorção linear usual. Este buraco tem uma largura da ordem da largura de linha natural da transição, de modo que sua observação possibilita uma medida de grande precisão da frequência da transição atômica e, eliminando efeitos de alargamento por potência, também da sua largura de linha natural.

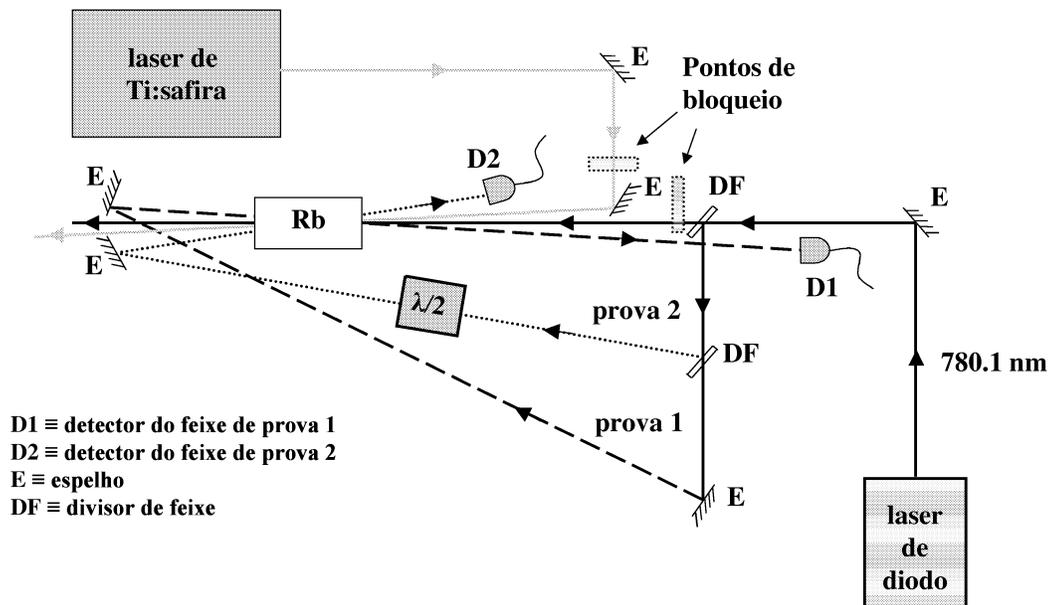


Figura 3.7: Aparato experimental para absorção saturada usual e com o laser de femtosegundos.

O laser de diodo que utilizamos para a absorção saturada é controlado por uma cavidade externa e está sintonizado em torno das linhas atômicas em 780.1 nm. Ele está indicado por linhas pretas na Fig. 3.7, enquanto o feixe do Ti:safira está representado por uma linha cinza. Antes de passar pela célula de vapor, o feixe do laser de diodo é dividido em três partes: feixe de bombeio (linha sólida preta), feixe de prova 1 (linha tracejada) e feixe de prova 2 (linha pontilhada). As potências médias dos feixes de bombeio, prova 1 e

prova 2 são 1.62 mW, 0.10 mW e 0.50 mW, respectivamente. A cintura do feixe de prova 1 é da ordem da cintura do feixe de Ti:safira. O feixe de prova 1 passa pela célula de forma contra-propagante ao laser de bombeio e incide depois no fotodetector 1. O sinal deste detector é então o sinal de absorção saturada propriamente dita. O feixe de prova 2 tem sua polarização girada com relação aos feixes de prova 1 e de bombeio, e passa pela célula sem se superpor espacialmente a esses outros feixes. Ele incide então sobre o fotodetector 2 e seu sinal dá simplesmente a absorção linear da célula. É interessante ter também o sinal de absorção linear para poder subtraí-lo do sinal de absorção saturada e, com isso, obter um sinal com fundo plano.

A cavidade externa do laser de diodo é formada por uma grade que envia de volta para o laser a ordem -1 de difração da luz do laser que incide sobre ela. A ordem 0 de difração é a saída do laser. Uma cerâmica piezoelétrica faz o controle fino da inclinação da grade, o que possibilita a variação da frequência do laser em cerca de 600 MHz em torno do seu comprimento de onda. A tensão na cerâmica é controlada utilizando uma rampa de tensão triangular, com frequência de 16 Hz, produzida por um gerador de função.

Os sinais dos fotodetectores vão para duas entradas de um osciloscópio digital, e observamos suas variações ao longo da rampa de tensão. O osciloscópio transmite diretamente a sua tela, utilizando uma placa GPIB e o programa de aquisição do próprio osciloscópio, para um computador, que então grava o sinal. Um exemplo dos sinais obtidos com o laser de Ti:safira bloqueado está mostrado na Fig. 3.8a, onde observamos as transições  $F = 2 \rightarrow F'$  do  $^{87}\text{Rb}$ . A curva tracejada plota a variação da intensidade do feixe de prova 2 ao longo da varredura de frequência do laser de diodo. Por representar um sinal de absorção linear, esta curva mostra apenas o perfil Doppler total resultante da superposição dos perfis Doppler das três transições possíveis nesta região:  $F = 2 \rightarrow F' = 1$ ,  $F = 2 \rightarrow F' = 2$  e  $F = 2 \rightarrow F' = 3$ . Já a curva cheia mostra a

variação da intensidade do feixe de prova 1, e portanto dá o sinal de absorção saturada, com o perfil inhomogêneo do meio cavado pela presença das várias transições. A curva tracejada é então multiplicada por uma constante ajustável e subtraída da curva cheia, sendo o resultado mostrado na Fig. 3.8b. Nesta última podemos visualizar melhor os vários picos que surgem no meio.

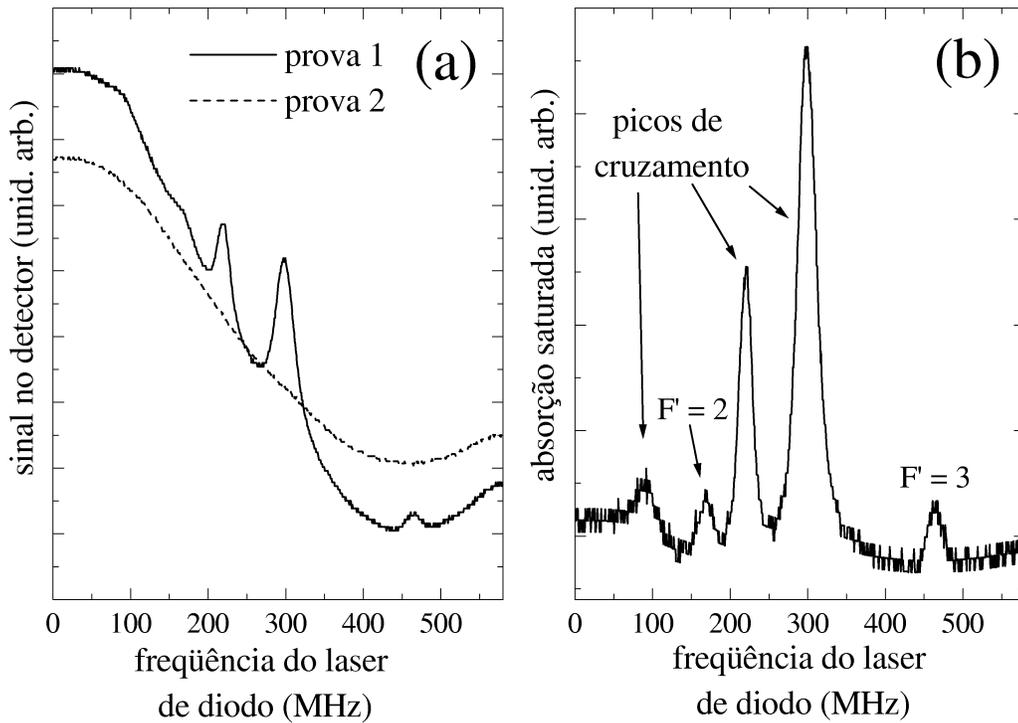


Figura 3.8: Sinal de absorção saturada da transição  $5S_{1/2}, F = 2 \rightarrow 5P_{3/2}, F'$  do  $^{87}\text{Rb}$ . (a) Transmissão dos feixes de prova 1 e 2 variando com a frequência do laser de diodo. (b) Subtração dos sinais dos dois feixes de prova, de modo a obter um sinal de absorção saturada com fundo plano.

Na Fig. 3.8b, estão indicados os picos relativos às transições para  $F' = 2$  e  $F' = 3$ . O pico para a transição  $F' = 1$  está fora da escala da figura. Os outros três picos são devidos a efeitos de cruzamento, em que o feixe de bombeio está ressonante com uma das transições enquanto o feixe sonda está ressonante com outra para um mesmo grupo de átomos com velocidade finita. Esses efeitos de cruzamento sempre ocorrem

em experimentos de absorção saturada envolvendo vários níveis com energias diferentes dentro do mesmo perfil inhomogêneo [67]. O eixo horizontal (com as frequências) da Fig. 3.8 foi calibrado a partir do conhecimento prévio da posição dos picos das transições (ver Fig. 3.6).

O efeito do trem de pulsos do laser de Ti:safira sobre o sistema atômico é mostrado na Fig. 3.9. Nesta figura plotamos três curvas experimentais. A primeira, quadro (a), dá o resultado de uma absorção saturada padrão em torno da transição  $F = 2 \rightarrow F' = 3$  do  $^{87}\text{Rb}$ , da mesma forma que na Fig. 3.8b. Para gerar esta curva, o laser de Ti:safira estava bloqueado. A segunda curva, no quadro (b), dá o resultado da mesma medida feita em (a), só que agora com os dois lasers de bombeio bloqueados. Desta forma, o quadro (b) mostra o fundo do sinal. Finalmente, no quadro (c) temos a mesma medida do quadro (a), só que agora com o laser de Ti:safira bombeando o sistema. Nesta última situação, o feixe de bombeio do diodo se encontra bloqueado. Estas três curvas foram obtidas em rápida sucessão, para minimizar deslocamentos da varredura de frequência do laser de diodo durante o período da medida.

A Fig. 3.9c mostra, portanto, que o laser de Ti:safira imprime uma estrutura periódica sobre o perfil Doppler do sistema atômico. Utilizando o conhecimento das posições dos picos na Fig. 3.9a, pudemos avaliar que o período desta estrutura é igual à taxa de repetição do laser: 82 MHz. Este resultado está em bom acordo com a discussão da seção 3.3, onde vimos que o efeito do trem de pulsos de um laser de femtosegundos sobre o sistema atômico consiste justamente na impressão do pente de frequências do laser no perfil Doppler do meio.

Esta estrutura periódica observada no experimento tem assim a mesma origem da estrutura da Fig. 3.3. No entanto, é bom ter em mente que a teoria da seção 3.3 é simplificada demais para explicar com qualquer detalhe os resultados do experimento desta seção. Nesse experimento, temos dois feixes (um contínuo e o outro pulsado) atuando

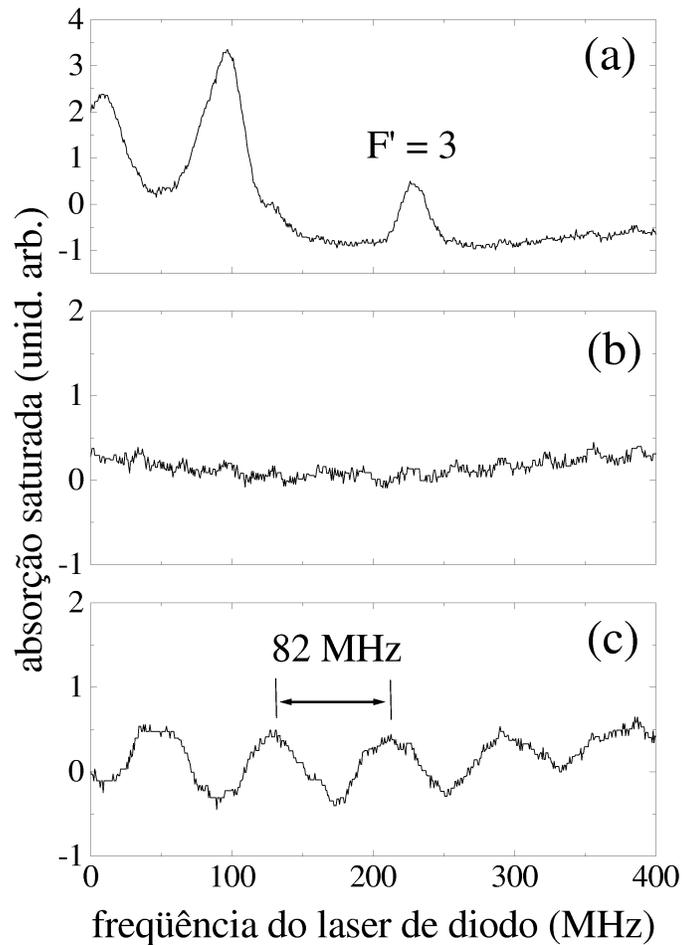


Figura 3.9: Variação do sinal de absorção saturada com a frequência do laser de diodo, nas situações em que (a) o bombeio é feito pelo próprio laser de diodo, (b) não há nenhum feixe de bombeio e (c) o bombeio é feito por um laser de Ti:safira com taxa de repetição de 82 MHz.

num sistema de muitos níveis. Enquanto a teoria da seção anterior considera apenas o feixe pulsado atuando num sistema de dois níveis. Como ressaltamos anteriormente, nossa intenção aqui foi apenas dar mais uma evidência experimental da presença desses efeitos no sistema atômico que estamos estudando, e particularmente mostrar de uma forma clara a impressão do pente de frequências do laser na excitação do meio.



# Capítulo 4

## Acumulação coerente num sistema de três níveis

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

## 4.1 Modelo

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

## 4.2 Solução para um estado inicial arbitrário

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

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

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

e os operadores

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

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

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

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

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

e

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

Solução para  $s_{33}$ 

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

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

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

Com estas observações em mente, continuamos as iterações:

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

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

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

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

### Solução para $s_{22}$

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

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

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

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

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

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

### Solução para $s_{13}$

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

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

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

obtemos finalmente

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

### Solução para $s_{23}$

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

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

### Solução para $s_{12}$

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

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

### 4.2.2 O estado antes do próximo pulso

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

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

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

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

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

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

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

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

onde

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

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

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

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

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

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

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

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

### 4.3 Acumulação com diferentes formas de pulso

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

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

O laser então está sintonizado em 778 nm, e consideraremos que seus pulsos têm uma largura temporal de  $T_p = 140$  fs. O período de repetição  $T_R$  do laser é de cerca de 13 ns. Os níveis  $5S$ ,  $5P_{3/2}$ , e  $5D$  são rotulados  $|1\rangle$ ,  $|2\rangle$ , e  $|3\rangle$ , respectivamente. Os tempos de vida dos níveis  $|2\rangle$  e  $|3\rangle$  são  $T_{22} = 26.7$  ns e  $T_{33} = 241$  ns [56]. Para o alargamento homogêneo, consideramos apenas processos radiativos, de modo que  $T_{12} = 2T_{22} = 53.4$  ns,  $T_{13} = 2T_{33} = 482$  ns, e  $T_{23} = [(2T_{22})^{-1} + (2T_{33})^{-1}]^{-1} = 48.1$  ns. Consideraremos também um alargamento inhomogêneo Doppler com largura de linha  $\delta_D/2\pi = 0.2$  GHz. A razão entre os momentos de dipolo da primeira e da segunda transição é  $\mu_{23}/\mu_{12} \simeq 0.2$  [59]. Em ambas seções 4.3.1 e 4.3.2 usaremos que a magnitude do campo elétrico é tal que  $\mu_{12}\mathcal{E}_0/\hbar = 0.2$  THz, onde  $\mathcal{E}_0$  é o valor de pico de  $\mathcal{E}(t)$  na entrada da célula de vapor. Além disso, a partir dos parâmetros dados acima, temos  $I_6(T_R) \simeq 0.07$ .

Se  $\delta_{ij}^0$  representa as dessintonias para o grupo de átomos em repouso no referencial do laboratório, as dessintonias para um grupo de átomos arbitrário no perfil inhomogêneo podem ser escritas como  $\delta_{12} = \delta_{12}^0 - \delta$ ,  $\delta_{23} = \delta_{23}^0 - \delta$  e  $\delta_{13} = \delta_{13}^0 - 2\delta$ , onde  $\delta$  é o desvio Doppler com respeito à transição de um fóton e desprezamos a diferença (da ordem de  $10^{-3}\delta$ ) nos desvios Doppler da primeira e da segunda transição. Para simplificar, consideraremos  $\delta_{13}^0 = 0$ , o que significa que a frequência central do laser está precisamente ressonante por dois fótons com o grupo de átomos em repouso no referencial do laboratório. Isto nos permite escrever as dessintonias na forma

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

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

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

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

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

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

### 4.3.1 Pulsos secante hiperbólicos

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

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

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

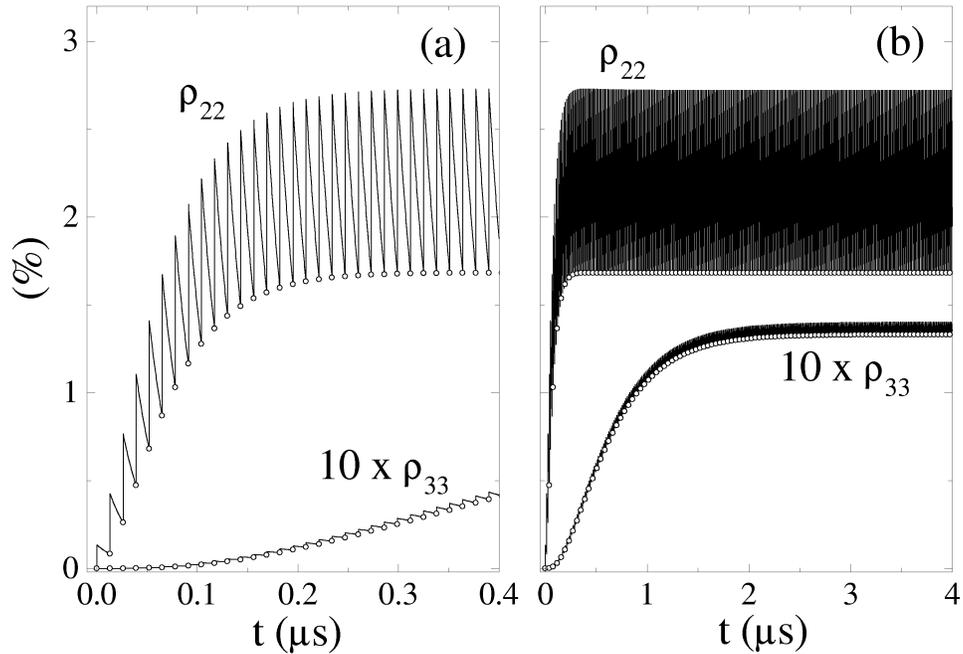


Figura 4.1: Evolução temporal das populações  $\rho_{22}$  e  $\rho_{33}$  a partir do estado fundamental. A linha sólida resulta de uma integração numérica direta das Eqs. (4.1). Os círculos abertos vêm de aplicações sucessivas das Eqs. (4.12). Os quadros (a) e (b) mostram diferentes escalas da mesma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

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

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

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

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

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

Usando a definição (3.4)

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

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

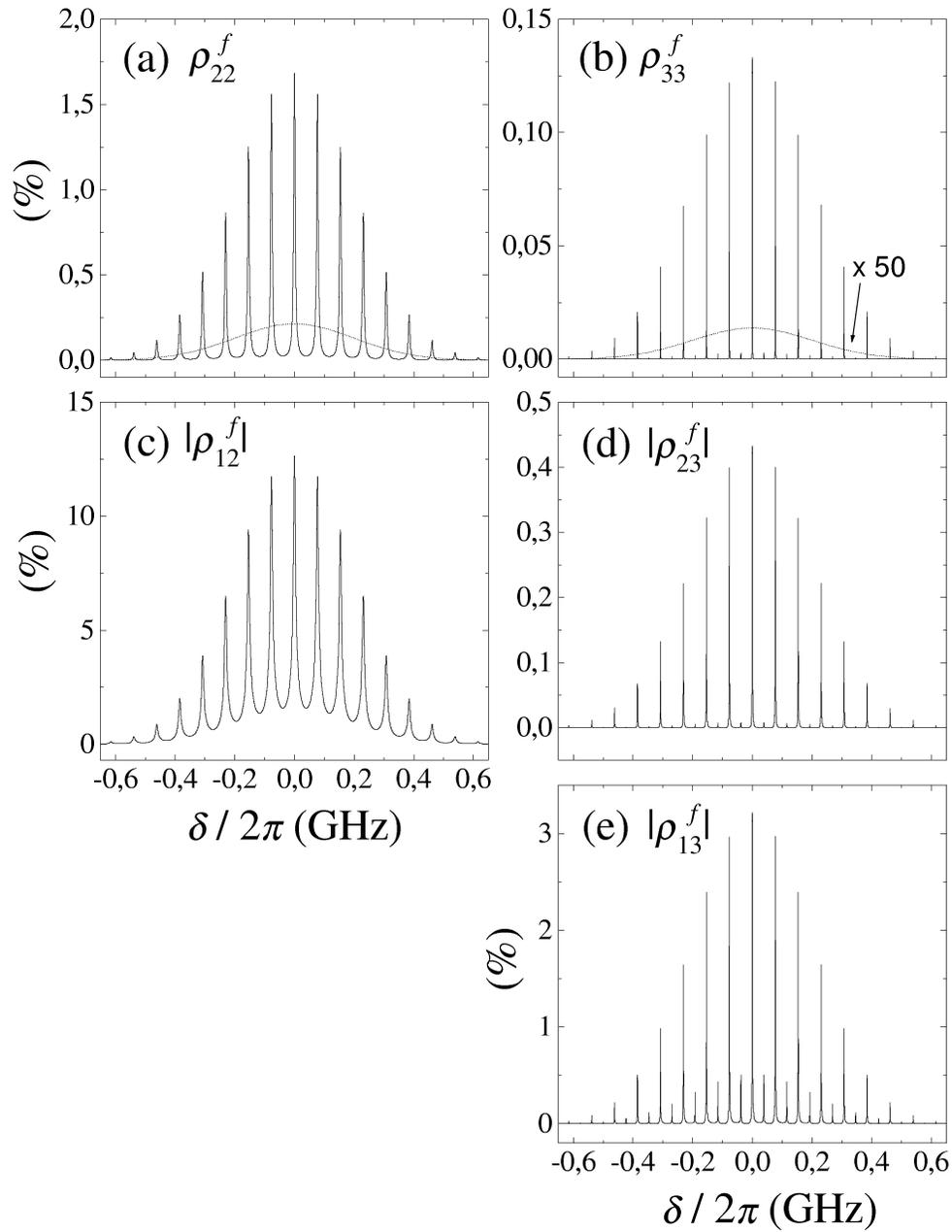


Figura 4.2: Estado estacionário do sistema para os vários grupos de átomos no perfil inhomôgeneo. Consideramos  $\Phi_R = 0$  e  $T_R = 13$  ns. Para a curva pontilhada, fizemos  $T_{12} = T_{23} = T_{13} = 1$  ns. No quadro (b), a curva pontilhada foi multiplicada por 50 para facilitar a visualização.

também ser escritas como

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

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

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

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

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

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

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

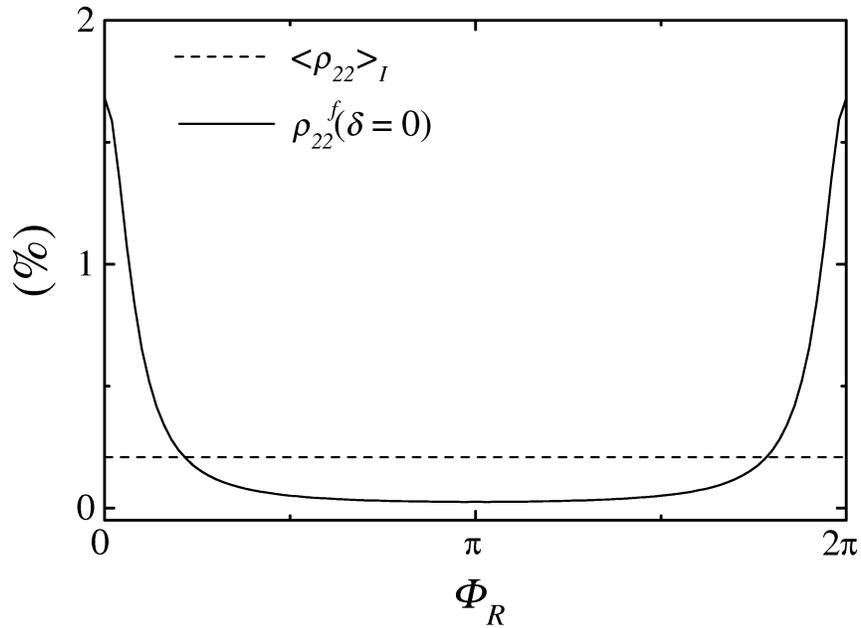


Figura 4.3: A curva sólida mostra a variação da população do nível 2 com  $\Phi_R$  para o grupo de átomos representado por  $\delta = 0$ . A curva tracejada mostra a dependência com  $\Phi_R$  da média da população do nível 2 sobre o perfil Doppler.

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

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

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

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

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

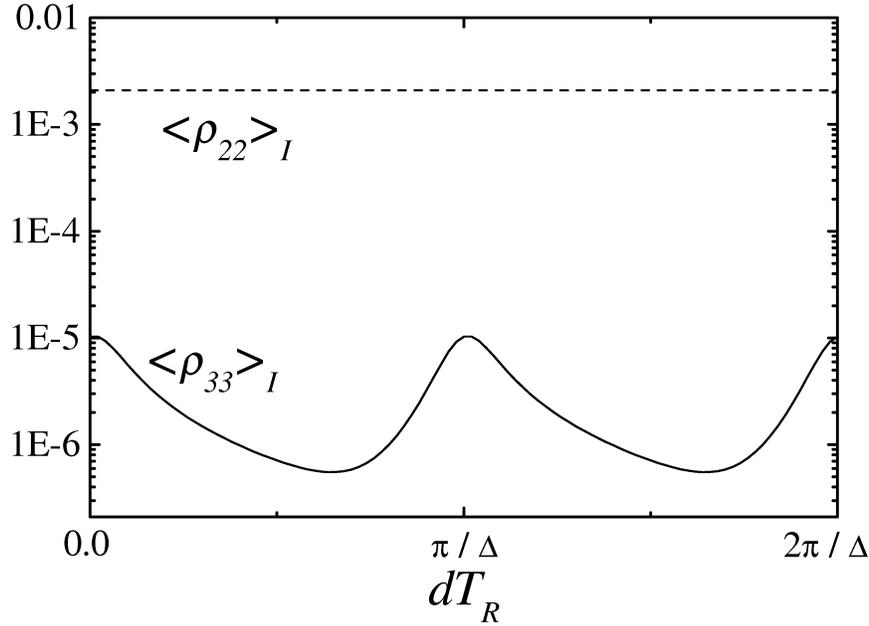


Figura 4.4: Variação da média das populações nos níveis 2 e 3 com uma pequena mudança na taxa de repetição do laser. A média foi feita sobre o perfil Doppler, e os outros parâmetros considerados foram os mesmos da linha sólida na Fig. 4.2, o que leva a  $\pi/\Delta = 473$  fs.

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

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

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

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

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

### 4.3.2 Pulsos $0\pi$

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

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

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

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

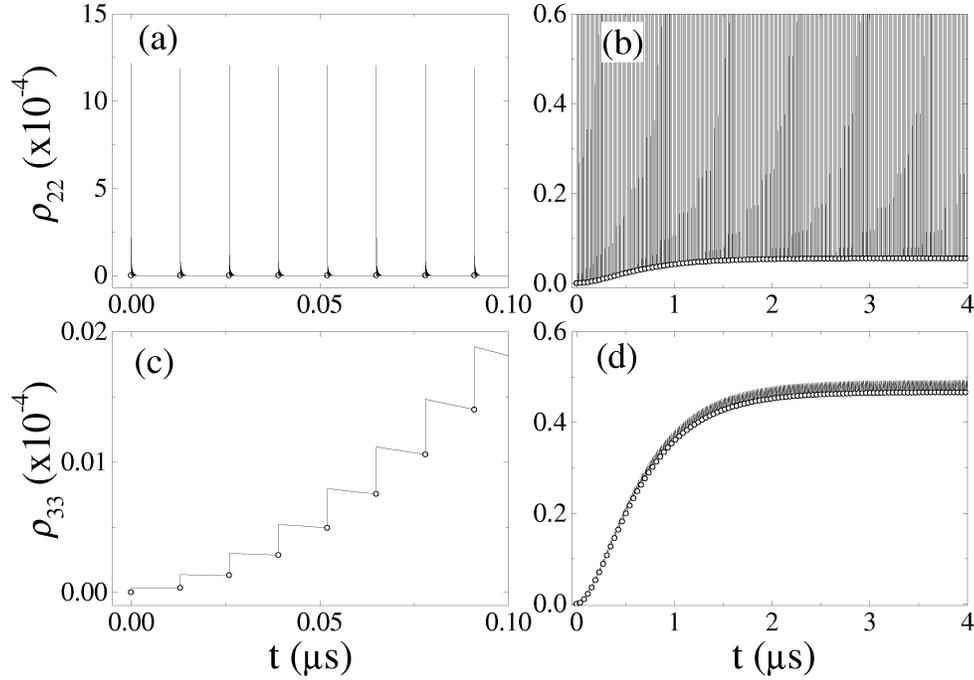


Figura 4.5: Evolução temporal das populações  $\rho_{22}$  e  $\rho_{33}$  a partir do estado fundamental sob a ação de um trem de pulsos  $0\pi$ . A linha sólida resulta de uma integração numérica direta das Eqs. (4.1). Os círculos abertos vêm de aplicações sucessivas das Eqs. (4.12). Os quadros (a)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

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

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

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

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

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

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

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

fóton é a dominante.

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

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

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

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

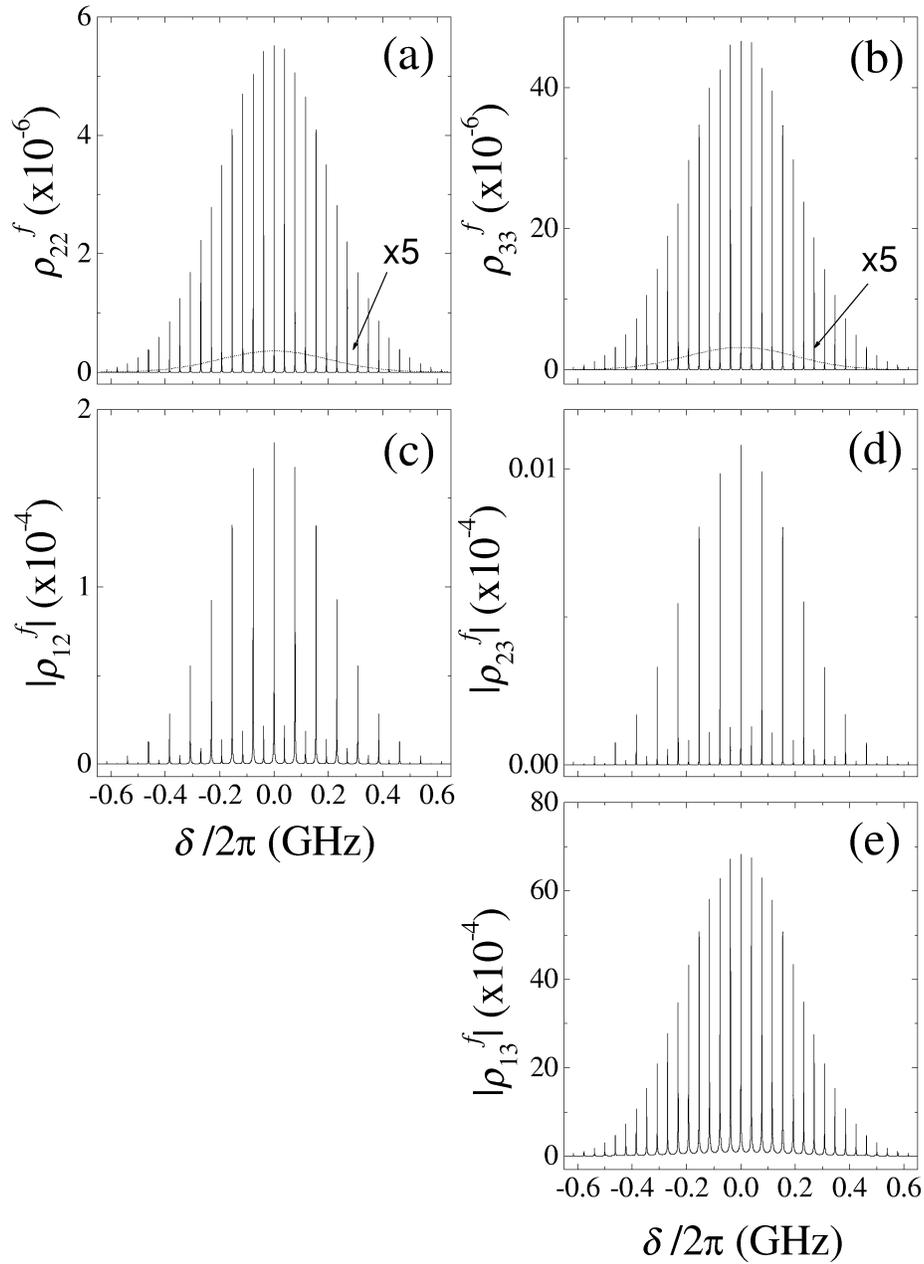


Figura 4.6: Estado estacionário do sistema excitado por um trem de pulsos  $0\pi$  para os vários grupos de átomos dentro do perfil inhomogêneo. Consideramos  $\alpha_0 l = 21$  e os outros parâmetros iguais aos da Fig. 4.1. Para a curva pontilhada, fizemos  $T_{12} = T_{23} = T_{13} = 1$  ns, e multiplicamos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

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

## 4.4 Controle temporal coerente

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

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

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

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

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

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

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

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

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

onde  $\tilde{E}_{n_1}(\delta)$  é a transformada de Fourier da envoltória  $\mathcal{E}_{n_1}(t)$  na frequência  $\delta$ , e  $F(\tau)$  é dada pela Eq. (2.9) com  $\mathcal{E}_{n_1}$  no lugar de  $\mathcal{E}_1$ . As funções  $G(\tau)$  e  $H(\tau)$  são dadas por

$$G(\tau) = \frac{\mu_{12}^2}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt \int_{-\infty}^{t+\tau} dt' \mathcal{E}_{n_1}(t) \mathcal{E}_{n_1}^*(t') e^{-i\delta_{12}t} e^{i\delta_{12}t'}, \quad (4.19a)$$

$$H(\tau) = \frac{\mu_{23}^2}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt \int_{-\infty}^{t+\tau} dt' \mathcal{E}_{n_1}(t) \mathcal{E}_{n_1}^*(t') e^{-i\delta_{23}t} e^{i\delta_{23}t'}, \quad (4.19b)$$

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

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

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

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

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

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

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

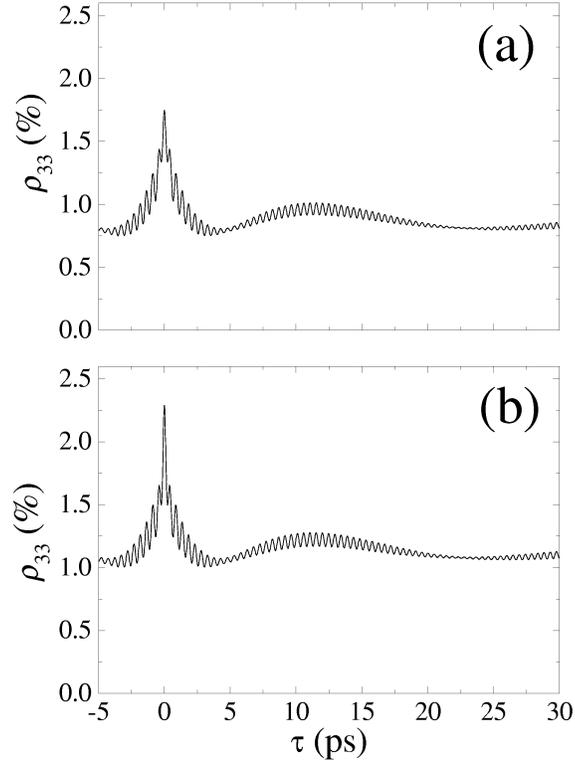


Figura 4.7: Variação da população  $\rho_{33}$  para uma varredura do atraso relativo entre os pulsos obtida a partir das Eqs. (4.12) com  $\delta = 0$ . Consideramos uma varredura com baixa resolução no atraso e pares de pulsos tipo  $0\pi$ , com  $T_p = 140$  fs,  $\alpha_0 l = 21$ ,  $\mu_{12}\mathcal{E}_0/\hbar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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

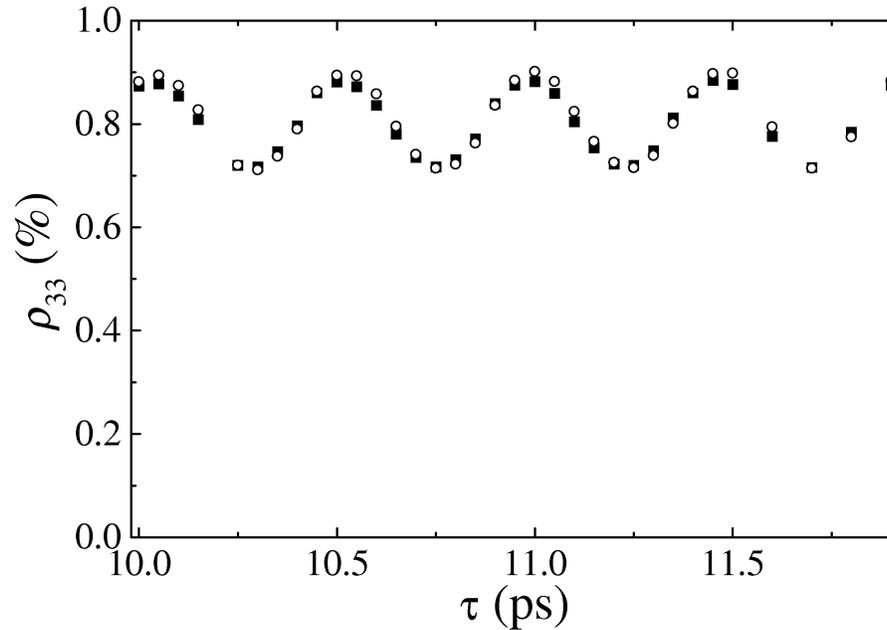


Figura 4.8: Variação da população do nível 3 com o atraso relativo entre os pulsos. Os parâmetros utilizados foram os mesmos da Fig. 4.7. Os círculos abertos foram obtidos com as Eqs. (4.12), enquanto os quadrados cheios foram obtidos com as equações de Bloch (4.1). Cada ponto é uma média entre os resultados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

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

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

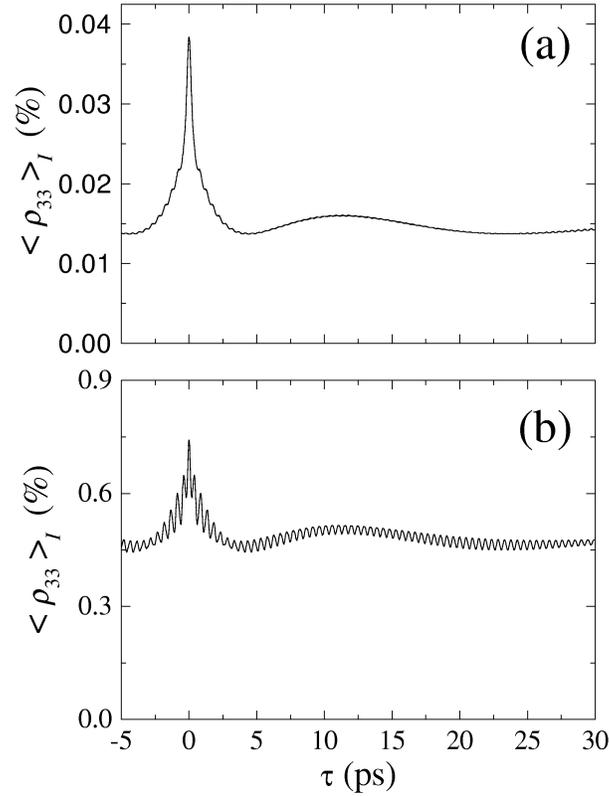


Figura 4.9: Média sobre o perfil Doppler da variação da população  $\rho_{33}$  com o atraso entre os pulsos do par, para (a)  $\mu_{12}\mathcal{E}_0/\hbar = 0.65$  THz e (b)  $\mu_{12}\mathcal{E}_0/\hbar = 1.7$  THz. Os outros parâmetros são os mesmos da Fig. 4.7b.

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

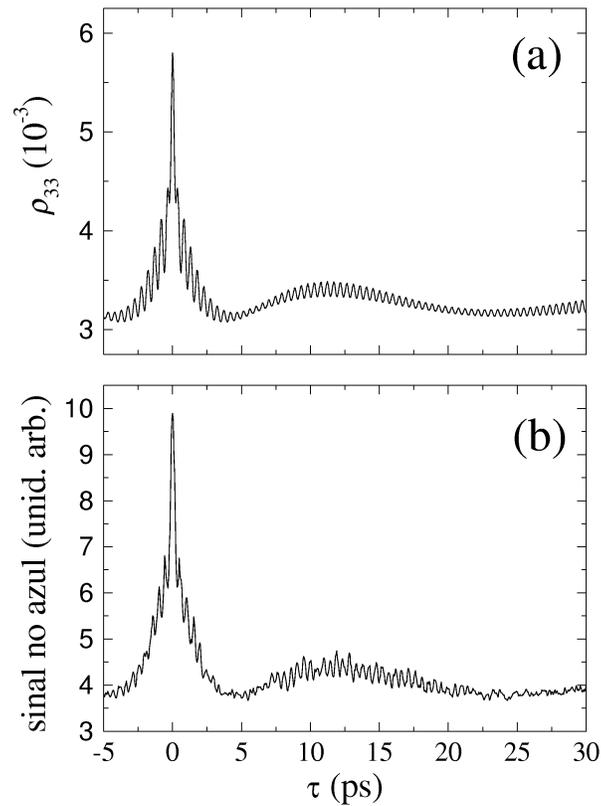


Figura 4.10: No quadro (a) temos a média sobre o perfil Doppler da população  $\rho_{33}$  como função do atraso entre os pulsos do par. Para esta curva, utilizamos  $\mu_{12}\mathcal{E}_0/\hbar = 1.4$  THz,  $a = 0.8$  e  $T_R = 13.0003$  ns. Os outros parâmetros foram os mesmos da Fig. 4.9b. No quadro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

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

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

# Capítulo 5

## Conclusão

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

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

da riqueza do nosso sistema e de suas inúmeras potencialidades.

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

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

---

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

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

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

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

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

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

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

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



# Apêndice A

## Equações de Bloch para um sistema de três níveis

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

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

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

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

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

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

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

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

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

onde

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

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

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

de onde segue que

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

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

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

e

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

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

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

ou ainda

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

# Apêndice B

## Relações úteis

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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



# Bibliografia

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

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

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

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

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

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

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

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