

ESTUDO DE PROCESSOS DE RADIAÇÃO
NUMA MICROCAVIDADE DO TIPO FABRY-PEROT

por

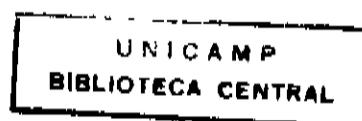
GLÓRIA REGINA JACOBVITZ

Orientador: Prof. Dr. Carlos Henrique de Brito Cruz
Prof. Francesco De Martini

Este exemplar corresponde
à redação final da Tese
defendida pela aluna GRJ
e aprovada pela comissão julgadora
10/Jan/90

Tese de Doutorado apresentada ao
Instituto de Física Gleb Wataghin
Universidade Estadual de Campinas

Setembro de 1989



CLASSIF.

AUTOR.

V. EX.

TOMBO BCI/ 11614

IF

I. FÍSICA - UNICAMP

n.º classif. TUNICA 4

n.º autor JISC

..... ed. v. ex.

n.º tombo TD/772

19-04-20

M

L

CM 000186595

Este trabalho contou com o apoio financeiro do
CNPq, CAPES e International Center for Theoretical Physicist (ICTP).

Aos meus pais.

BANCA EXAMINADORA:

- Dr. Carlos Henrique Brito Cruz (orientador - IFGW)
- Dr. Francesco De Martini (Università di Roma I - Italia)
- Dr. Arturo Lezama (PUC-RJ)
- Dr. Mario Eusebio Foglio (IFGW)
- Dr. José Antonio Roversi (IFGW)
- Dr. Jarbas Caiado de Castro Neto (IFQSC-São Carlos)
- Dr. Alvin Elliot Kiel (IFGW)

AGRADECIMENTOS

Ao Brito pela paciência, valiosas discussões, apoio, amizade e pela confiança no meu trabalho.

A Francesco De Martini per le idee, la fiducia, la amicizia e la oportunita che mi a dato di realizzare questo lavoro.

A Paolo Mataloni per la pazienza, fiducia, le faticose discussione, aiuti, consigli, amicizia, cumplicita. en fine per "tutto" che abbiamo fatto insieme.

A Sandro Giacomini e Giorgio per la pazienza e presteza nella parte tecnica de questo lavoro e per le risade che ci siamo fatti.

A Gianfranco Innocenti per haverme fatto capire la microcavitá, con tutti i suoi capricci....

A Silvia Di Fonzo, Stefan Gotsch, Karl Heinz Strobl, Federico Lama, Michele Maroco e Danniele Mura che in differente epoca me hanno aiutato nell lavoro sperimentale.

A "Agripina", che volta in tantto faceva la brava bambina...

A Tutti voi e in piu ; a il G-24 (Marco, Giorgio, "lo Yuppie", Antonela, Maximo....), Marchesini, Stefano Wabnitz, Angela, Augusto, Loredana e Renata Gaddini, chi hanno fatto con che Roma diventasse cosí bella per me.

A Roudney Loudon for the helpfull discussion and for the great help in the development of the analitic calculations in the chapter 4,

Ao Rubens, Prof. Hugo Fragnito e Prof. Alvin Kiel pelas valiosas discussões.

A os experts em ASYST Valéria, Míriam e Hugo; e aos motoristas, Franklin, Tsuda e Telma, e ao Ossamu; por estarem sempre dispostas a me ajudar e pela amizade,

Ao Charles do desenho pela rapidez e eficiência,

A Anderson, por ter compartilhado tudo.

Conteúdo

1	Introdução	1
2	O processo de emissão espontânea	6
3	Trabalhos experimentais sobre emissão espontânea anômala	14
3.1	Interpretação da variação do tempo de vida da emissão espontânea na presença de contorno eletromagnético	24
3.1.1	Teoria clássica	24
3.1.2	Teoria Quântica	26
4	Cavidade microscópica Fabry - Perot	31
4.1	Pre-requisitos para construção da microcavidade Fabry - Perot	32
4.2	Montagem da microcavidade	34
4.3	Molécula fluorescente	37
4.4	Bombeamento óptico periódico	38
4.5	<i>Finesse</i>	40
5	Emissão espontânea na microcavidade	45
5.1	Influência das dimensões microscópicas da cavidade	46
5.2	Teoria eletrodinâmica quântica da emissão espontânea	48
5.3	Cálculo da taxa de emissão espontânea aplicando as condições de contorno eletromagnéticas	50
5.4	Configuração do experimento	62
6	Ação laser na cavidade microscópica	71
6.1	Transição da emissão espontânea para emissão estimulada com limiar “zero”	71

6.2	Analogia entre o laser próximo do limiar e a transição de fase de segunda ordem	73
6.3	Tratamento quântico da emissão espontânea de muitos átomos acoplados a um único modo	79
6.4	Configuração do experimento	83
7	Conclusão	93

Lista de Figuras

2.1	Princípio da derivação da equação dinâmica atômica	11
3.1	Tempo de decaimento do complexo de Európio entre espelhos de ouro a uma distância d dos espelhos. Os círculos representam os dados experimentais. A linha cheia e tracejada, representam dados teóricos de $\tau_M^a(d)/\tau_M^a(\infty)$, onde $\tau_M^a(d)$ é o tempo de vida da fluorescência na cavidade e $\tau_M^a(\infty)$ no espaço livre. O fator q representa as diferentes eficiências quânticas moleculares consideradas [2].	15
3.2	Intensidade da emissão espontânea em função do parâmetro de ressonância do espaço- k , o ângulo de incidência do feixe laser em relação a normal ao espelho. A Figura menor mostra a montagem do sistema, que é constituído por um prisma e uma lâmina de Rubi de espessura L [3].	16
3.3	Sinal do incremento da emissão espontânea devido a presença da cavidade Fabry-Perot milimétrica. A linha pontilhada mostra a situação na qual a cavidade está fora da ressonância, enquanto que a linha cheia mostra a situação em que ela é ressonante. O número médio de átomos na cavidade é respectivamente 3.5, 2, 1.3 nas curvas a, b e c. A curva a e c correspondem a transição $23S \rightarrow 22P_{3/2}$ e a c a $23S \rightarrow 22P_{1/2}$ [5].	17
3.4	Amortecimento do tempo do ciclotron em relação a frequência [6].	18
3.5	Sinal do tempo de vida do átomo de Rydberg que se move num <i>gap</i> entre os espelhos, em relação ao comprimento de onda da emissão espontânea na região de <i>cut-off</i> da cavidade. O sinal provem de átomos excitados detectados na saída da cavidade. O comprimento de onda atômico é variado através de um campo elétrico aplicado aos átomos. O aumento do tempo de vida do sinal ocorre quando $\lambda/2d$ é 1, devido a inibição da emissão espontânea [9].	20
3.6	Espectro da transição $5D_{5/2} \rightarrow 26F$ registrada com o laser L_1 em A e B. Em B se ve a inibição do tempo de vida da emissão espontânea [11].	21

3.7	Transmissão do estado excitado através do tunel em relação ao ângulo θ entre o campo magnético e a normal ao espelho. A linha sólida indica a teoria normalizada para uma taxa de contagem máxima [11].	22
3.8	Taxa de contagem de fótons da luz transmitida pelo espelho da cavidade, em função da sintonização da cavidade. As curvas <i>a</i> e <i>e</i> mostram a emissão devido a presença da cavidade, as <i>b</i> e <i>f</i> mostram a emissão no espaço livre, a <i>c</i> mostra a emissão em presença da cavidade mas com o laser fora de sintonia com a ressonância atômica, e a curva <i>d</i> mostra o ajuste teórico [12].	23
3.9	Possíveis fases do dipolo oscilante no método da imagem [28].	25
3.10	Processo de emissão espontânea de um átomo situado na frente de um espelho. O átomo se encontra a uma distância z do espelho. Na Figura (a) o átomo irradia livremente. Na Figura (b) ele é estimulado a emitir p[ela sua imagem virtual [25].	27
4.1	Razão entre a intensidade transmitida e incidente I^t/I^i em função da diferença de fase δ	33
4.2	Interferômetro Fabry - Perot micrométrico visto de cima [8].	34
4.3	Interferômetro Fabry - Perot micrométrico. Nesta Figura mostramos a montagem do interferômetro, assim como o laser de HeNe utilizado para alinhamento e o laser de excitação [8].	35
4.4	Estrutura da molécula de Rubreno	38
4.5	Espectro de absorção da molécula de Rubreno em solução com álcool etílico	39
4.6	Curva de transmissão do espelho de entrada [8]	41
4.7	Curva de transmissão do espelho de saída	41
4.8	Curva experimental da intensidade transmitida pela nossa cavidade em $\lambda_c = 0.63\mu m$, em função da separação entre os espelhos. Desta curva se obtém a <i>finesse</i> real da microcavidade através da relação entre a distância entre dois picos de intensidade sucessivos e a largura da franja a meia altura ($FSR/\Delta d$). Desta Figura observamos que no nosso instrumento o fator $F=15$	42
5.1	Distribuição de modos numa cavidade Fabry - Perot, onde os vetores de onda partem da posição da molécula em relação ao espelho. A termos de cálculo a emissão é dividida em duas direções, já que ela tem iguais probabilidades de ocorrer em qualquer uma das duas. Dividimos também o vetor de onda em dois k_+ para aquele que se propaga na direção de $-\infty \rightarrow +\infty$ e k_- para aqueles na direção contrária.	51
5.2	Polarização dos vetores de onda incidentes e refletidos.	52

5.3	Orientação do dipolo atômico paralelo (1) e perpendicular (2) a x , em relação ao sistema de coordenadas.	53
5.4	Variação da taxa de emissão espontânea normalizada (Γ_c/Γ_0) em relação a distância entre os espelhos. A curva tracejada representa a taxa de emissão do dipolo orientado paralelamente ao eixo x (Γ_1), a pontilhada o dipolo orientado perpendicularmente em relação a x (Γ_2), e a inteira a taxa de emissão total ($\Gamma_T = [2\Gamma_1 + \Gamma_2]/3$). A taxa de emissão é integrada em todas as possíveis direções $0 \leq \theta \leq \pi/2$	58
5.5	Variação da taxa de emissão em relação a distância entre espelhos d , quando os átomos só podem emitir numa única direção. Observamos que $\Gamma_1 \gg \Gamma_2$ em $d = \lambda_e/2$	59
5.6	Variação do tempo de decaimento da emissão espontânea em relação a distância entre espelhos d , quando os átomos podem emitir em todas as direções. Observamos que $\tau_1 \gg \tau_2$ em $d \simeq 0$, o que confirma o efeito de inibição mesmo numa condição não ideal (emissão em todas as direções).	60
5.7	Variação do tempo de decaimento da emissão espontânea do dipolo orientado paralelamente em relação a distância entre espelhos d , quando os átomos são restritos a uma determinada direção ($0 \leq \theta \leq 0.18$).	61
5.8	Variação da taxa de emissão em relação a distância entre espelhos d quando a diferença de fase introduzida pelos espelhos é $\phi_1 = \phi_2 = \pi/2$. Neste caso a curva é periódica em $d = n\lambda_e/2$	61
5.9	Configuração do experimento	62
5.10	Sinal de emissão espontânea no espaço livre	65
5.11	Sinal da emissão espontânea inibida quando $d < \lambda_e/2$	66
5.12	Sinal do incremento da emissão espontânea quando $d = \lambda_e/2$	66
5.13	Variação medida experimentalmente entre a energia do sinal emitido espontaneamente ($V.ns$) e a posição da molécula excitada em relação ao espelho. A posição é modificada através da variação no ângulo de incidência do feixe de excitação em relação a normal ao espelho (θ). Os círculos mostram a curva na situação de inibição, e as cruzes na situação de incremento.	67
5.14	Relação entre a taxa de emissão e a posição da molécula excitada em relação ao espelho, obtida da simulação. A linha tracejada representa a taxa de emissão relativa ao dipolo orientado paralelamente em relação ao eixo x (Γ_1), a pontilhada o dipolo orientado perpendicularmente (Γ_2), e a cheia representa a taxa de emissão total ($(2\Gamma_1 + \Gamma_2)/3$)	68

5.15	Relação entre a taxa de emissão espontânea e a distância entre os espelhos. A linha cheia resulta dos dados experimentais (V/29), enquanto que a tracejada resulta da simulação teórica	69
6.1	Forma do pulso de bombeio (positivo) e de emissão (negativo), para $d = \lambda_e/2$.	73
6.2	Configuração da primeira montagem realizada para verificação da emissão estimulada onde a taxa de repetição do pulso de excitação é de 3 Hz.	84
6.3	Ação laser numa microcavidade com dimensão $d = \lambda_e/2$ (a) e $d = 5\lambda_e$ (b). A intensidade mostrada em $d = 5\lambda_e$ deve ser multiplicada por um fator 10. . . .	86
6.4	Montagem da experiência para verificação do efeito laser, a alta frequência de repetição (20 Hz).	87
6.5	Intensidade de emissão em relação a intensidade de excitação quando a distâncias entre espelhos $d = \lambda_e/2$	89
6.6	Intensidade de emissão em relação a intensidade de excitação quando a distância entre espelhos $d = 20\lambda_e/2$	89
6.7	Intensidade de emissão em relação a intensidade de excitação quando a distância entre espelhos $d = 30\lambda_e/2$	90
6.8	Intensidade de emissão em relação a intensidade de excitação para tres diferentes distâncias entre espelhos. Os quadradinhos representam $d = \lambda_e/2$, os círculos cheios $d = 20\lambda_e/2$ e os círculos vazios $d = 30\lambda_e/2$	91

Capítulo 1

Introdução

Desde o tempo em que Einstein enunciou pela primeira vez a existência da emissão espontânea pensou-se que, uma vez que a radiação e a matéria estejam em equilíbrio térmico os átomos excitados devem necessariamente irradiar. A emissão espontânea era tratada como um processo inerente a matéria. Este ponto de vista não leva em conta o fato que a emissão espontânea não é uma propriedade do átomo isolado e sim do *sistema átomo-vácuo*. Como existe uma infinidade de estados de vácuo disponíveis para o fóton ser irradiado, a emissão espontânea é irreversível. Se por sua vez estes estados são modificados por condições de contorno eletromagnéticas, por exemplo, pondo os átomos excitados dentro de uma cavidade com separação entre espelhos da ordem do comprimento de onda de emissão ($d \sim \lambda_e$); eles podem ser desacoplados (superacoplados) do vácuo, não podendo assim irradiar e a emissão espontânea pode ser fortemente inibida (podendo irradiar com um único modo, sendo assim incrementada).

Este efeito de modificação da emissão espontânea devido ao contorno eletromagnético foi mostrado pela primeira vez por Purcell em 1946 [1] na região da rádio frequência. A verificação do efeito na região óptica só ocorreu na década de 1970 devido a dificuldades experimentais em se trabalhar a estas dimensões ($d \sim \lambda_{visivel} \sim 0.6\mu$), e nível de intensidade, redudidíssimos. Por meio do desenvolvimento de novas técnicas ópticas e atômicas, tornou-se possível controlar e manipular a emissão espontânea.

Vários experimentos foram realizados onde se mostra que a emissão espontânea pode ser virtualmente inibida ou incrementada [1-11]. Recentes descobertas sobre a interação átomo-vácuo pertencem a um novo campo de física atômica e óptica quântica chamada *Eletrodinâmica Quântica em Cavidades* [2].

Este trabalho tem como finalidade o estudo de processos de radiação num tipo particular de contorno eletromagnético; uma cavidade ativa do tipo Fabry-Perot, constituída de espelhos planos, com separação entre eles da ordem do comprimento de onda de emissão das

moléculas excitadas. Por meio desta cavidade estudamos a inibição e o incremento da emissão espontânea na região do visível ($\lambda_e = 0.63\mu m$), onde este segundo efeito é quase inexistente uma vez que nestas condições a emissão espontânea se transforma em estimulada.

Um fator essencial da emissão espontânea no espaço livre é que o átomo pode irradiar em qualquer modo que satisfaça a lei da conservação da energia e momento. A probabilidade da emissão de um fóton por unidade de tempo, o coeficiente A de Einstein, é proporcional a densidade de modos disponíveis para o fóton emitido ocupar. A estrutura dos modos pode ser drasticamente alterada numa cavidade cujas dimensões são da ordem do comprimento de onda de emissão (λ_e). Numa situação onde a distância entre espelhos $d < \lambda_e/2$, nenhum modo longitudinal é permitido numa cavidade do tipo Fabry-Perot, para este comprimento de onda. Se por sua vez o diâmetro dos espelhos $L \gg d$, nos aproximamos da condição de uma cavidade infinita e a emissão espontânea via modos transversais teoricamente se aproxima de zero. Portanto neste tipo de cavidade os modos de radiação são praticamente eliminados e o átomo não pode emitir, uma vez que não há modos disponíveis para ocupação, e seu tempo de emissão se torna teoricamente infinito.

Neste trabalho foi observado pela primeira vez o efeito de inibição da emissão espontânea no domínio do tempo, na região espectral do visível. Este efeito foi observado devido as dimensões da microcavidade utilizada, que permitia que se realizasse uma eficiente seleção de modos. Observamos uma inibição no processo de emissão espontânea que resultava no aumento do tempo de vida da fluorescência de um fator 3 em relação ao espaço livre [12].

Se por sua vez a distância entre espelhos é $d = \lambda_e$, só um modo é permitido na cavidade para este comprimento de onda, todos os fótons emitidos só possuem este modo para ocupação, portanto todas as moléculas excitadas só podem irradiar neste modo. Esta condição apresenta um comportamento de emissão muito particular onde o primeiro fóton emitido espontaneamente *estimula* os outros a emitirem. Como só um modo é permitido para ocupação, todos os outros fótons irão emitir num estado ocupado em vez de num estado de vácuo, portanto não são fótons de emissão espontânea. Em outras palavras o primeiro fóton provoca uma transição de fase do regime de emissão espontânea, para o regime de emissão estimulada. Nestas condições observamos que a microcavidade se comporta como um laser de limiar quase zero e altíssimo ganho [13], o que se torna um instrumento bastante interessante para utilização como dispositivo eletroóptico devido a suas dimensões e eficiência.

Esta dissertação foi dividida em cinco capítulos. Os dois primeiros são de caracter introdutório, depois descreveremos a microcavidade e nos dois ultimos apresentaremos detalhes experimentais, os resultados obtidos e um modelo teórico que descreve o efeito observado de inibição da emissão espontânea, e do comportamento da microcavidade como um laser de "limiar zero".

No segundo capítulo faremos uma breve histórico das teorias que descrevem o processo da emissão espontânea; desde a sua definição até as teorias atuais. A emissão espontânea

pode ser descrita dentro do contexto clássico, semi-clássico, estocástico e quântico, porém só no último este processo aparece de maneira natural. Faremos uma breve discussão das duas interpretações principais no âmbito da eletrodinâmica quântica. Uma interpretação atribui a emissão espontânea à interação do átomo excitado com a *flutuação do campo de vácuo* e a outra atribui à interação do átomo com seu próprio campo “*radiation-reaction*”.

No terceiro capítulo serão descritos alguns experimentos sobre Eletrodinâmica Quântica em Cavidades, onde foi observada a modificação da emissão espontânea em diversas situações. Veremos que estes experimentos em sua maioria foram realizados na região do infra-vermelho e microondas, e o efeito foi observado por meio de medidas de intensidade de emissão. No fim do capítulo descreveremos as diversas interpretações, clássicas e quânticas, que explicam a modificação da emissão espontânea resultante da presença do contorno eletromagnético.

No quarto capítulo faremos uma descrição detalhada da cavidade microscópica. Na secção 4.1 apresentaremos os pré-requisitos para a construção da microcavidade de modo que se torna possível a detecção da modificação na emissão espontânea. Na secção 4.2 descreveremos detalhadamente a montagem da microcavidade. Na secção 4.3 apresentaremos os critérios adotados na escolha da molécula. Na secção 4.4 discutiremos a importância em se utilizar a técnica de *bombeamento óptico periódico*, e finalmente na secção 4.5 discutiremos os problemas relativos à *finesse* da cavidade.

No quinto capítulo faremos um estudo, experimental e teórico, do processo da emissão espontânea quando esta ocorre numa condição de contorno eletromagnético particular; dentro de uma cavidade microscópica com distância entre espelhos de $d = \lambda_c/2 = 0.315\mu m$ e diâmetro $L=3cm$. Na secção 5.1 mostraremos a influência das dimensões microscópicas da cavidade sobre o processo de emissão. Na secção 5.2 desenvolveremos a teoria eletrodinâmica quântica da emissão espontânea no formalismo de Heisenberg. Na secção 5.3 faremos o cálculo da taxa de emissão espontânea, aplicando as condições de contorno eletromagnéticas impostas pela nossa microcavidade e apresentaremos os resultados da simulação numérica deste experimento. Na secção 5.4 apresentaremos detalhadamente a configuração do experimento. Na secção 5.5 discutiremos os resultados experimentais obtidos e faremos uma comparação com os resultados da simulação numérica.

No sexto capítulo, mostraremos como a microcavidade atua como um laser de limiar praticamente zero, devido a presença de um só modo permitido para os fótons emitidos ocuparem. Na secção 6.1 mostraremos como ocorre a transição da emissão espontânea em emissão estimulada. Na secção 6.2 faremos uma analogia entre o laser próximo ao limiar e o processo de transição de fase de segunda ordem. Na secção 6.3 desenvolveremos um tratamento quântico da emissão espontânea de muitos átomos acoplados a um único modo, de onde chegaremos a expressão do ganho nestas condições. Na secção 6.4 descreveremos em detalhe a configuração deste experimento, onde apresentaremos as duas montagens realizadas para comprovação do efeito e apresentaremos os resultados obtidos por cada uma delas.

No último capítulo apresentaremos as conclusões obtidas deste experimento e as perspectivas de experimentos futuros.

Bibliografia

- [1] E.M.Purcell, *Phys. Rev.*, **69**, 681,(1946)
- [2] S.Haroche and D.Kleppner, *Physics Today* **42**, (1/1989).
- [3] K. H. Drexhage, *Progress in optics* E.Wolf, North Holland, Amsterdam, (1974), vol.XII, p.165.
- [4] D. Kleppner, *Phys. Rev. Lett.*, **47**, 233, (1981).
- [5] P. Goy, J. M. Raimond, M. Gross, S. Haroche, *Phys. Rev. Lett.* , **50**, 1903 (1983).
- [6] G. Gabrielsen, H. Dehmelt, *Phys. Rev. Lett.*, **55**, 67, (1985).
- [7] R. G. Hulet, E. S. Hilfer and D. Kleppner, *Phys. Rev. Lett.*, **55**, 2137, (1985).
- [8] W. Jhe, A. Anderson, E. A. Hinds, D. Meschede and L. Moi, *Phys. Rev. Lett.*, **58**, 666, (1987).
- [9] D. J. Heinzen, J. J. Childs, J. E. Thomas and M. S. Feld, *Phys. Rev. Lett.*, **58**,1320, (1987)
- [10] R. G. Hulet, D. Kleppner, *Phys. Rev.Lett.*, **51**, 1430,(1983).
- [11] F. De Martini, *Phys. Lett.*, **A115**, 421,(1986).
- [12] F. De Martini, G. Innocenti, G. Jacobovitz, P. Mataloni, *Phys. Rev. Lett.*, **59**. 2955, (1987).
- [13] F. De Martini and G. Jacobovitz,*Phys. Rev. Lett.*, **60**, 1711, (1988).

Capítulo 2

O processo de emissão espontânea

Neste capítulo faremos um resumo histórico, da evolução do formalismo que descreve o processo de emissão espontânea. Primeiro mostraremos qual o motivo que impede o aparecimento da emissão espontânea no formalismo clássico e semi-clássico normal. Depois mostraremos como evoluíram os formalismos, de modo que todos eles apresentam resultados semelhantes áqueles da eletrodinâmica quântica.

Em 1917 foi publicado um trabalho de Einstein [1] sobre a interação da radiação eletromagnética e o átomo. Neste artigo Einstein formulou uma nova demonstração da lei de Planck e com isso definiu dois novos conceitos: a emissão espontânea e a emissão estimulada. A teoria exposta é baseada nos postulados de absorção e emissão de fótons pelo átomo. Estes postulados podem ser justificados pela mecânica quântica. Mas, à parte a quantização dos níveis de energia, a mecânica quântica não foi utilizada por Einstein de maneira explícita. Para um sistema de átomos com dois estados de energia E_i e E_f (com $E_i > E_f$) numa cavidade, ele deduz a seguinte relação :

$$\frac{A_i^f}{B_i^f} = \frac{\hbar\omega^3}{\pi^2 c^3} \quad (2.1)$$

onde A_i^f é o coeficiente de emissão espontânea de um fóton do estado de energia E_i para o estado E_f , B_i^f é o coeficiente de emissão induzido pela mesma transição, e ω é a frequência de transição.

A partir deste trabalho, foram realizados vários trabalhos teóricos nos quais se procurava descrever a emissão espontânea por meio de outros formalismos, se utilizando de outras teorias. Sem um tratamento específico tanto a teoria clássica quanto a semiclássica falham ao descrever este processo. Só através do formalismo quântico esta descrição aparece naturalmente.

Na teoria clássica a interação de uma distribuição de carga com a radiação eletromagnética é completamente descrita pelas equações de Maxwell - Lorentz . O movimento da partícula com carga e é governado pelo campo que atua sobre ela. De acordo com a lei de Lorentz:

$$\frac{d\mathbf{p}_e}{dt} = e[\mathbf{E}(\mathbf{r}_e, t) + \frac{\mathbf{v}_e}{c} \times \mathbf{B}(\mathbf{r}_e, t)] \quad (2.2)$$

O campo é determinado pela solução das equações de Maxwell na qual a corrente da partícula atua como fonte [2]:

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{c} \int \frac{[\mathbf{J}_T] d^3r'}{|\mathbf{r}' - \mathbf{r}|} + \mathbf{A}^H(\mathbf{r}', t) \quad (2.3)$$

onde $[\mathbf{J}_T]$ é a parte transversa retardada da corrente total \mathbf{J} e \mathbf{A}^H é a solução homogênea, independente da corrente \mathbf{J} . Da Equação 2.3 podemos ver que se não há carga no universo, $\mathbf{A}^H = 0$, e a Equação 2.3 é utilizada para calcular o campo na Equação 2.2, a força que movimenta a partícula é resultante do acoplamento da partícula com seu próprio campo. Das equações de Lorentz se vê que, uma vez que um elétron não pode escapar de si mesmo, ele nunca poderá estar numa região livre de campo. Portanto são necessárias correções impostas pela presença de seu próprio campo, mesmo quando em movimento livre [3]. Esta dedução representa no formalismo clássico o *campo de vácuo* da eletrodinâmica quântica, no sistema átomo- *campo de vácuo*. Para se obter a emissão espontânea através do formalismo clássico, o átomo é tratado como um oscilador harmônico e a emissão espontânea surge devido ao termo de amortecimento. Este termo é incluído de maneira fenomenológica na equação, devido ao fato que uma carga acelerada irradia e esta radiação causa uma perda de energia [4]. Este amortecimento radiativo (perda de energia) foi reconhecido por Slater [5] como sendo intimamente ligado a emissão espontânea introduzida na eletrodinâmica por Einstein.

Na ausência de campo eletromagnético, a hamiltoniana de interação descrita pela teoria semiclássica ($H_i = e D \cdot E_0 \cos wt$) se anula onde D é o dipolo atômico. Portanto a princípio, esta teoria não inclui o processo de emissão espontânea. Porém, como ela descreve o processo de emissão estimulada, por meio da Equação 2.1 se pode encontrar uma expressão correta para o coeficiente A de Einstein (probabilidade por unidade de tempo que o átomo irá decair espontaneamente emitindo um fóton de energia $\hbar\omega$) [6]. O problema é resolvido através da teoria eletrodinâmica quântica, tanto no formalismo de Heisenberg quanto no de Schrodinger. Nesta teoria a emissão espontânea surge diretamente, sem que seja preciso acrescentar termos de amortecimento, e as correções radiativas são calculadas com maior facilidade [3].

Em 1926, Schrodinger [6,7,8] resolve o problema da interação radiação-átomo por meio da mecânica ondulatória. O problema não é mais tratado como transição entre estados estacionários, mas sim como momento de dipolo induzido num sistema atômico, por meio de um campo externo. Desta maneira o problema é resolvido de maneira semiclássica, ou seja,

o campo de radiação é tratado classicamente e o sistema atômico quanticamente. Com os postulados da mecânica ondulatória ele obtem de maneira correta o coeficiente de emissão estimulada, mas não consegue descrever a emissão espontânea.

Em 1927, Dirac [9] formula uma teoria que descreve a emissão da radiação, e a reação do campo de radiação sobre o sistema que emite. Esta teoria é baseada na cinemática e dinâmica não relativista. Nesta teoria ele trata a interação da radiação com a matéria quanticamente, levando em conta que as variáveis dinâmicas, na multiplicação, não obedecem as leis de comutação. Desta maneira consegue descrever tanto o coeficiente da emissão espontânea como o da emissão estimulada.

Seguindo a linha de Dirac, Weiskopf e Wigner indagaram sobre a resolução espectral da linha de emissão, uma vez que o espectro de uma linha de emissão tem largura proporcional ao inverso do tempo necessário para o átomo emitir [4]. Através de um modelo para calcular a largura de linha do espectro atômico, eles relacionaram a forma de linha espectral da emissão (Lorentziana) com a probabilidade de decaimento exponencial da emissão espontânea. Este modelo falha ao dar uma descrição do desvio da linha que acompanha o decaimento [2].

Uma nova visão do fenômeno de emissão espontânea foi dada por Jaynes e Stroud [10], os quais descreveram a emissão espontânea no formalismo semiclássico (teoria "neoclássica" da eletrodinâmica, segundo Ackerhalt et.al. [3]), na qual inclui o efeito do campo de radiação do átomo agindo de volta nele mesmo. O átomo é descrito pela velha interpretação da mecânica quântica de Schrodinger (sem a segunda quantização), e o campo eletromagnético não é quantizado. Eles empregam este formalismo para o problema de um único átomo de dois níveis interagindo com um campo monocromático. As equações são resolvidas sem recorrer a aproximações ou a teoria de perturbação dependente do tempo. A teoria apresentada por eles difere da eletrodinâmica quântica em se tratando do tempo de decaimento. Nesta descrição, calculando a emissão espontânea sem levar em conta o Lamb shift, se o átomo está no estado excitado ele deveria permanecer para sempre neste estado até que uma pequena perturbação induzisse o decaimento. Isto significa que se átomos isolados pudessem ser bombeados muito próximos do estado excitado, deveria ser observado experimentalmente um atraso antes da emissão espontânea começar. É como se o átomo estivesse num estado de equilíbrio metastável. Em eletrodinâmica quântica, o decaimento espontâneo ocorre imediatamente. Levando em conta o Lamb shift, chegam a resultados onde a radiação emitida é modulada em frequência, o que difere de eletrodinâmica quântica na qual a frequência emitida é constante.

Em seguida a este trabalho Nesbet [11] propõe um novo postulado de semiquantização. A teoria proposta por Jaynes não descrevia corretamente os experimentos. Ela previa, por exemplo, iguais intensidades para a linha "Stokes" e "anti-Stokes" no espalhamento Raman. Com a semiquantização há uma concordância entre teoria e experimento sem que haja a necessidade de quantizar o campo eletromagnético. Nesta teoria o campo é expresso

explicitamente em termos da sua fonte, o átomo, e o seu campo eletromagnético constitui um sistema dinâmico quântico único em vez de dois sistemas acoplados. O campo é um operador, explicitamente expresso em termos das variáveis dinâmicas da fonte, e opera dentro do espaço de Hilbert da fonte [12]. O campo de Schrodinger que representa o átomo é quantizado (segunda quantização) enquanto que o campo de Maxwell não.

Seguindo a mesma aproximação que Nesbet, o campo é assumido parte da “fonte” atômica e é expresso diretamente em termos das variáveis da “fonte”, mas seguindo um tratamento estritamente quântico, a emissão espontânea é tratada novamente no formalismo da mecânica quântica por Lama et.al. [12]. No ponto de vista da eletrodinâmica quântica o átomo excitado faz uma transição para baixo e gera um campo eletromagnético que reage de volta no átomo. Como o sistema é fechado, a energia não pode escapar, portanto ela oscila entre o átomo e o campo. No ponto de vista adotado neste trabalho, o átomo e seu campo não têm uma existência separada, mas juntos formam um sistema quântico irreduzível o qual é completamente representado no espaço de Hilbert. O comportamento da evolução do sistema fechado, consistindo de um átomo de dois níveis e seu campo numa cavidade, apresentam resultados similares a aqueles preditos pela eletrodinâmica quântica convencional. Como no tratamento semiclássico, nesta teoria o único operador opera dentro do espaço de Hilbert da fonte do dipolo atômico, mas os resultados e a aproximação utilizada são diferentes. A teoria semiclássica prevê uma oscilação da excitação atômica no tempo, só que ela decai a zero num campo externo nulo. Na ausência de um campo externo, os estados inicial e final do dipolo atômico permanecem estáveis. Neste tratamento um átomo de dois níveis excitado irá decair num espaço vazio, o que se assemelha a eletrodinâmica quântica. Esta teoria falha no cálculo do desvio dos níveis, num modelo de átomo de dois níveis.

Por fim existe a teoria estocástica desenvolvida nos trabalhos de Marshall [13], Boyer [14,15,16] e La Pena-Auerbach et.al. [17]. A Eletrodinâmica estocástica tenta reportar para a mecânica clássica os resultados da mecânica quântica. A mecânica quântica surgiu da incapacidade da mecânica clássica em tratar a radiação do corpo negro. Segundo os pesquisadores da teoria estocástica o falimento da mecânica clássica surge devido as aproximações utilizadas pela mesma. Boyer [15] deriva a lei da radiação de Planck para radiação do espectro de energia do corpo negro, sem utilizar o formalismo da teoria quântica. Além das idéias usuais da teoria clássica ele assume a invariância de Lorentz para o espectro da radiação de temperatura zero, e daí deriva o espectro de densidade de energia eletromagnética de ponto zero. Marshall [13] mostra que assumindo tanto a mecânica clássica quanto a eletrodinâmica clássica, um “ensemble” de osciladores harmônicos carregados podem ser indistinguíveis. Ele estuda o “ensemble” estatístico do oscilador harmônico clássico, o qual é estacionário no tempo, e cuja função de distribuição da posição e momento são aquelas correspondentes a um oscilador quanto-mecânico no seu estado fundamental. Se a partícula oscilante é carregada, então para manter a distribuição estacionária um campo eletromagnético aleatório deve estar sempre

presente. A distribuição de intensidade do campo de radiação é calculada, e resulta igual ao campo de vácuo da eletrodinâmica quântica.

No âmbito da eletrodinâmica quântica, dois são os pontos de vista que explicam o processo de emissão espontânea, baseados no formalismo de Heisenberg. De uma parte se defende que a emissão espontânea deriva da *flutuação do campo de vácuo* o qual *estimula* o átomo excitado a emitir [18,19]. De outra parte se defende que a emissão espontânea resulta da interação do elétron com seu próprio campo, denominada *radiation-reaction* [20,2,21]. Esta interpretação é construída em base as idéias clássicas da reação da radiação. Muitos são os que concordam que as duas interpretações são “dois lados da mesma moeda” [22], e que as respectivas contribuições para os processos físicos, não podem ser determinados separadamente [22,23,24].

As equações do movimento de Heisenberg, para o campo e para as variáveis atômicas, são derivadas da Hamiltoniana do sistema átomo-campo. A equação para o campo se assemelha a equação do movimento de um oscilador harmônico dirigido pelo termo da fonte atômica. Isto leva a expressão do campo total que é a soma dos dois termos:

$$E = E_c + E_f \quad (2.4)$$

O campo livre E_c corresponde à solução homogênea da equação do campo sem levar em conta a fonte atômica, e equivale ao campo de vácuo quando nenhum fóton está presente. O “campo da fonte” E_f é o campo gerado pela fonte atômica (solução inhomogênea da equação do campo).

Considere agora a equação atômica. A taxa de variação de um observável atômico $dG(t)/dt$, aparece como sendo proporcional ao produto dos operadores atômicos ($N(t)$) e do campo ($E(t)$);

$$\frac{dG(t)}{dt} \sim N(t)E(t) \quad (2.5)$$

Inserindo a Equação 2.4 em 2.5, nos leva à equação para o sistema mostrado na Figura 2.1. as contribuições de E_c e E_f para dG/dt pode ser interpretada como a taxa de variação:

$$\left(\frac{dG(t)}{dt}\right)_{fv} \sim N(t)E_c(t) \quad (2.6)$$

$$\left(\frac{dG(t)}{dt}\right)_{rr} \sim N(t)E_f(t) \quad (2.7)$$

relativa respectivamente à *flutuação do campo de vácuo* (fv) e a “*radiation-reaction*” (rr). Esta interpretação deriva da origem física do campo, ou seja, se ele resulta respectivamente do campo livre ou do campo atômico). A ambiguidade, se a emissão espontânea resulta do campo livre ou campo atômico, surge devido ao fato que estes dois operadores comutam. Portanto podem estar na *ordem normal*¹ $N(t)E(t)$, ou na *ordem não normal* $E(t)N(t)$. Mas E_c e E_f ,

¹Operadores destruição à direita e operadores criação a esquerda

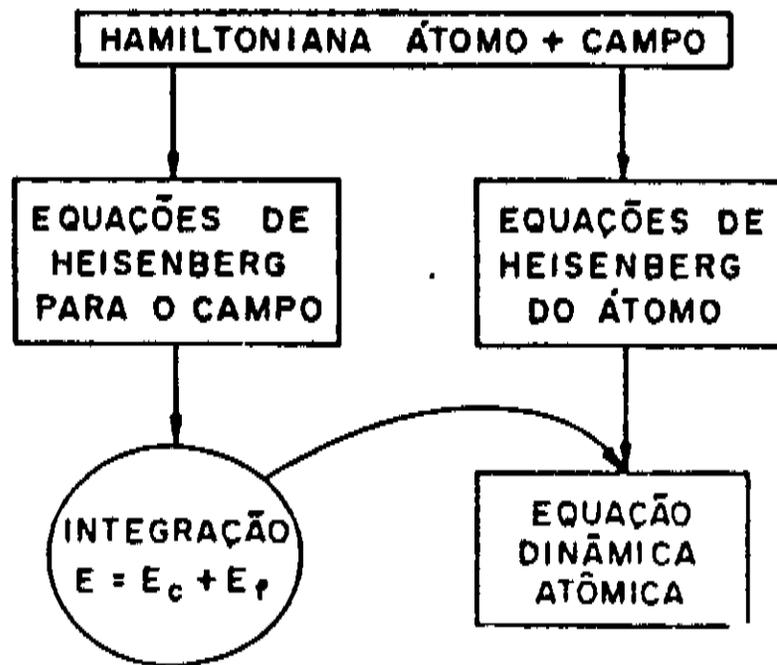


Figura 2.1: Princípio da derivação da equação dinâmica atômica

não comutam separadamente com $N(t)$. Portanto $E_c N(t)$ e $E_f N(t)$ diferem. Desta maneira, as duas Equações de taxa 2.6 e 2.7 dependem da ordem inicial entre os operadores $N(t)$ e $E(t)$, sendo a Equação de taxa total 2.5 independente desta ordem. Se a *ordem normal* é escolhida a contribuição do campo de vácuo se anula quando a media é realizada sobre os estados do vácuo do campo, e todas correções radiativas parecem resultar da *radiation-reaction*. Diferente ordem, leva à conclusão oposta. Portanto não se pode discernir entre as duas contribuições, e a escolha entre uma e outra é apenas uma questão de gosto. No nosso caso optamos pela *flutuação do campo de vácuo*.

No trabalho apresentado por Ackerhalt et. al. [20] se nota mais uma vez como o modo de tratar o problema influencia a interpretação. Para resolver o problema da emissão espontânea ele resolve as equações de Heisenberg para o campo eletromagnético e substitui a solução do campo, na equação do operador atômico em ordem normal. Nesta ordem ele verifica que a parte relativa à fonte atômica dirige o operador atômico. Se a ordem fosse invertida, ele comprovaria o contrário, ou seja, que o *campo de vácuo* dirige o operador atômico.

Enfim os dois modelos diferenciam basicamente, pelo fato de que o *campo de vácuo* é uma "força" já existente na cavidade, ou seja, que não foi gerada pela carga.

Vários trabalhos teóricos seguem os já apresentados, onde a precisão numérica é aumentada, por meio de cálculos mais sofisticados das correções radiativa. Estes trabalhos deram margem a vários experimentos que visavam conferir os efeitos descritos acima, que serão descritos no próximo capítulo.

Bibliografia

- [1] A. Einstein, *Phys. Zeit.*, **18**, 121, (1917).
- [2] L. Allen and J. H. Eberly, *Optical resonance and two - level atoms* **Cap.7**, pg.162, John Wiley & Sons, New York, 1975.
- [3] J. R. Ackerhalt e J. H. Eberly, *Phys. Rev. D*, **10**, 3350, (1974).
- [4] M. Sargent III, M. Scully, W. E. Lamb, *Laser Physics*, **cap.3**. Addison-Wesley Publishing Company, London, 1974.
- [5] Slater *Sources of quantum mechanics*, edited by B. L. Van Der Waerden, Dover, New York, p.12, 1968.
- [6] R. Loudon, *The quantum theory of light* **Cap.2** Clarendon Press - Oxford, second edition, 1983.
- [7] E. Schrodinger, *Ann. Physjk*, **81**, 109, (1926).
- [8] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu and F.Laloe, *Quantum mechanics*, John Willey & Sons, New York, (1977).
- [9] P. A. M. Dirac, *Proca. Roy. Soc.*, **A 114**, 243, (1927)
- [10] C. R. Stroud Jr. e E. T. Jaynes, *Phys. Rev. A*, **1**, 106, (1970)
- [11] R. K. Nesbet, *Phys. Rev. Lett.*, **27**, 553, (1971).
- [12] W. L. Lama e L. Mandel, *Phys. Rev. A*, **6**, 2247, (1972).
- [13] T. W. Marshall, *Proca. Roy. Soc.*, **A276**, 475, (1963).
- [14] T. H. Boyer, *Phys. Rev.*, **180**, 19, (1969).
- [15] T. H. Boyer, *Phys. Rev.*, **182**, 1374, (1969).

- [16] T. H. Boyer, *Phys. Rev. A*, **7**, 1832, (1973).
- [17] L. De La Pena-Auerbach e A. M. Cetto, *Phys. Lett*, **47A**, 183, (1974).
- [18] J. Dalibard, J. Dupont-Roc and C. Cohen-Tannoudji, *J. Physique*, **43**, 1617, (1982).
- [19] T. A. Welton, *Phys. Rev.*, **74**, 1157, (1948).
- [20] J. R. Ackerhalt, P. L. Knight and J. H. Eberly, *Phys. Rev. Lett.*, **30**, 456, (1973).
- [21] J. R. Ackerhalt and J. H. Eberly, *Phys. Rev.* , **D 10**, 3350, (1974).
- [22] I. R. Senitzky, *Phys. Rev. Lett.*, **31**, 955, (1973).
- [23] P. W. Milonni, J. R. Ackerhalt and W. A. Smith, *Phys. Rev. Lett.*, **31**, 958, (1973).
- [24] P. W. Milonni and W. A. Smith, *Phys. Rev.*, **A 11**, 814, (1975).

Capítulo 3

Trabalhos experimentais sobre emissão espontânea anômala

Neste capítulo faremos uma descrição dos trabalhos experimentais, precedentes ao nosso, que procuram estudar o mecanismo da emissão espontânea. Estes trabalhos, em sua maioria foram realizados na região espectral do infra-vermelho e microondas, e os efeitos foram analisados por meio de medidas de intensidade ou análise espectral.

Por meio de novas técnicas ópticas e atômicas, tornou-se possível controlar e manipular a emissão espontânea. Vários experimentos mostram que a emissão espontânea pode ser virtualmente eliminada. Neste capítulo faremos uma breve revisão dos trabalhos experimentais mais significativos relativos à manipulação da emissão espontânea quando esta é restrita, por condições de contorno eletromagnéticas. Por exemplo, por uma cavidade do tipo Fabry - Perot microscópica.

Em 1953, foi observado por Purcell [1] um incremento na probabilidade da emissão espontânea na transição do momento magnético nuclear, na região espectral da rádio frequência, numa cavidade ressonante a esta transição. Foi verificado que o tempo de fluorescência se reduz numa cavidade, de um valor teórico calculado no espaço livre $\tau_0 = 5.10^{21} s$, a um valor experimental da ordem de minutos com o incremento de um fator $f = 3Q\lambda^3/4\pi^2 V$, onde V é o volume da cavidade, Q seu fator de qualidade e λ o comprimento de onda de emissão. Desta maneira a taxa de emissão na cavidade (Γ_c) resulta:

$$\Gamma_c \propto \Gamma_0 Q \tag{3.1}$$

onde Γ_0 é a taxa de emissão espontânea no espaço livre.

Em 1970 Drexhage [2] observou a fluorescência de uma camada monomolecular de corante orgânico (complexo de Európio), depositado em filmes dielétricos sobre um espelho metálico, na região do vermelho. Ele observou alterações na taxa da emissão espontânea ao variar a

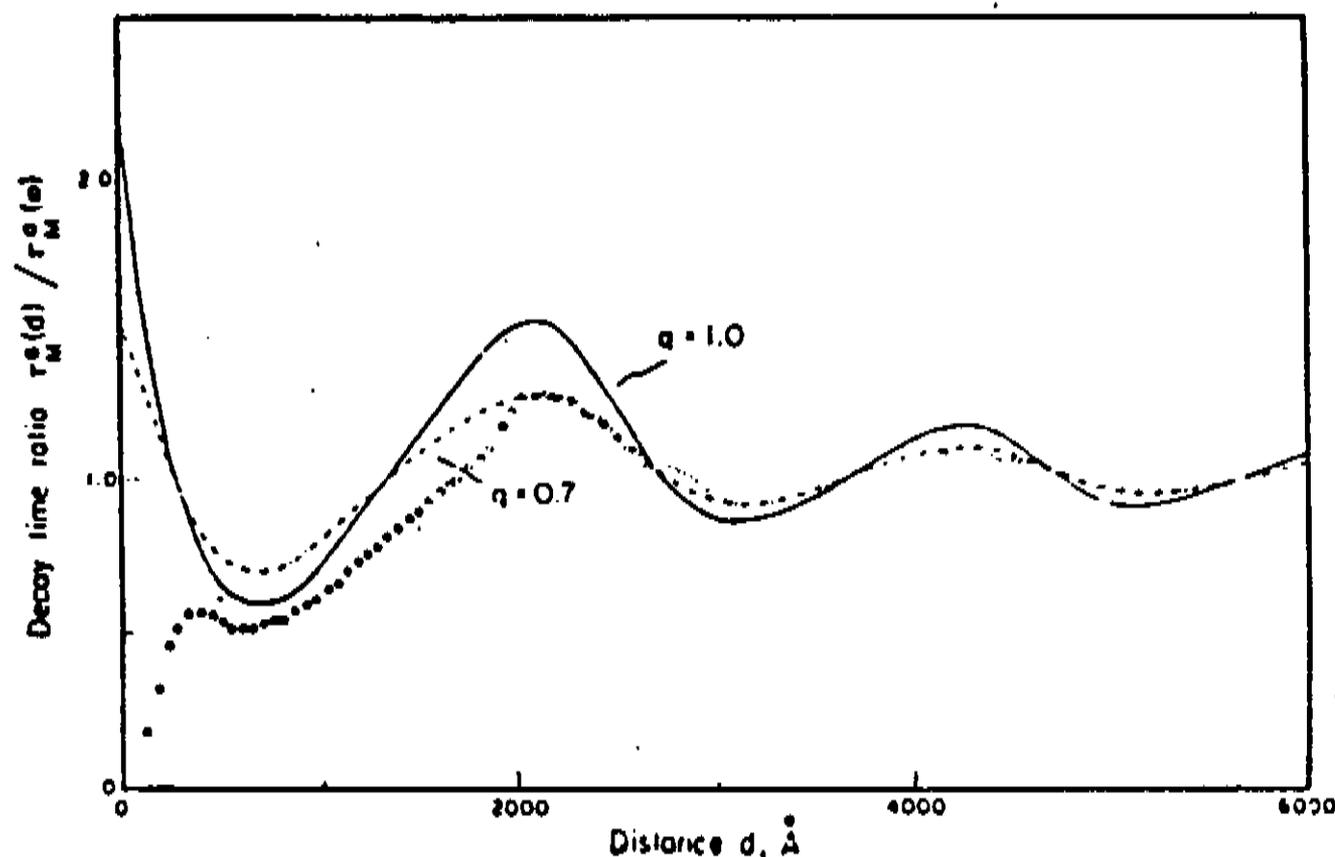


Figura 3.1: Tempo de decaimento do complexo de Európio entre espelhos de ouro a uma distância d dos espelhos. Os círculos representam os dados experimentais. A linha cheia e tracejada, representam dados teóricos de $\tau_M^a(d)/\tau_M^a(\infty)$, onde $\tau_M^a(d)$ é o tempo de vida da fluorescência na cavidade e $\tau_M^a(\infty)$ no espaço livre. O fator q representa as diferentes eficiências quânticas moleculares consideradas [2].

distância da molécula excitada em relação ao espelho (Figura 3.1). A influência do espelho sobre a molécula excitada, resulta da interferência entre o campo da fonte molecular (a molécula é considerada como sendo um dipolo oscilante) e este mesmo campo, refletido pelo espelho. Este efeito é visível para distâncias da ordem do comprimento de onda da radiação emitida. Devido a sua geometria aberta, ele não foi capaz de observar um maior efeito.

Nesta mesma linha, De Martini [3] realizou um experimento com deposição de estrato monomolecular cuja finalidade era a de estudar a propriedade espacial da emissão espontânea. Neste experimento ele mostra como a distribuição de energia do campo de vácuo influencia o processo da emissão espontânea de moléculas localizadas próximas ao espelho . Este experimento foi realizado com uma lâmina de cristal de rubi como meio ativo. O sistema é bombeado utilizando a técnica do ângulo de Wiener [4], obtida por meio da auto - interferência do feixe laser de bombeio, resultante da presença do espelho. Todo processo é baseado no casamento de fase estabelecido entre as franjas de interferência do pulso laser (franjas de Wiener), o qual modula a excitação das moléculas segundo sua posição em relação ao espelho, e a auto-interferência do campo de vácuo. Na Figura 3.2 são mostrados os resultados obtidos, onde ao variar o casamento de fase, se obtém uma correspondente variação do tempo de vida da emissão espontânea.

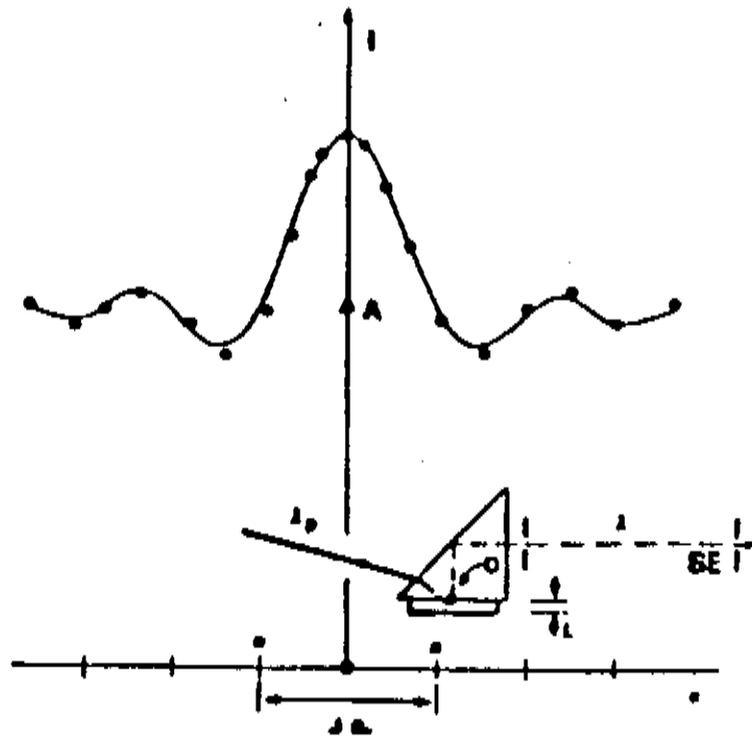


Figura 3.2: Intensidade da emissão espontânea em função do parâmetro de ressonância do espaço- k , o ângulo de incidência do feixe laser em relação a normal ao espelho. A Figura menor mostra a montagem do sistema, que é constituído por um prisma e uma lâmina de Rubi de espessura L [3].

Uma reedição do trabalho realizado por Purcell foi realizado por Goy, Raimond, Gross e Haroche [5]. Neste experimento, foi possível se estudar a emissão radiativa de praticamente um único átomo numa cavidade. O experimento foi realizado com átomos de Rydberg de sódio excitados numa cavidade supercondutora de Nióbio ressonante à frequência de 340 GHz. Foi estudada a transição do nível $23S \rightarrow 22P_{3/2}$ e $23S \rightarrow 22P_{1/2}$, onde com respectivamente $\nu_1 = 340,967$ GHz e $\nu_2 = 340,396$ GHz e comprimento de onda $\lambda_1 \simeq \lambda_2 \simeq 0,88$ mm. Neste experimento foi encontrado um incremento da emissão espontânea quando a linha de emissão estava em ressonância com a cavidade (Figura 3.3). Com este aparato eles obtiveram um incremento na taxa de emissão de $\Gamma_c/\Gamma_0 \simeq 5 \cdot 10^2$. Este incremento, quando o pulso de bombeio excitava 3.5 (a), 2 (b) e 1.3 (c) átomos, é mostrado na Figura 3.3. A linha pontilhada mostra a cavidade fora de ressonância (por meio do “efeito Stark”), enquanto que a cheia mostra a cavidade em ressonância.

A primeira comprovação da inibição da emissão espontânea foi realizada por Gabrielsen e Dehmelt [6,7,8]. Eles observaram o amortecimento da radiação de um elétron isolado em movimento ciclotron, submetido a um campo magnético. O movimento ciclotron decai por emissão espontânea da radiação de dipolo elétrico. Um potencial eletrostático fraco de quadrupolo é adicionado ao campo magnético de modo a formar uma “armadilha eletromagnética” (Penning trap). O elétron é confinado numa região pequena, quando comparada

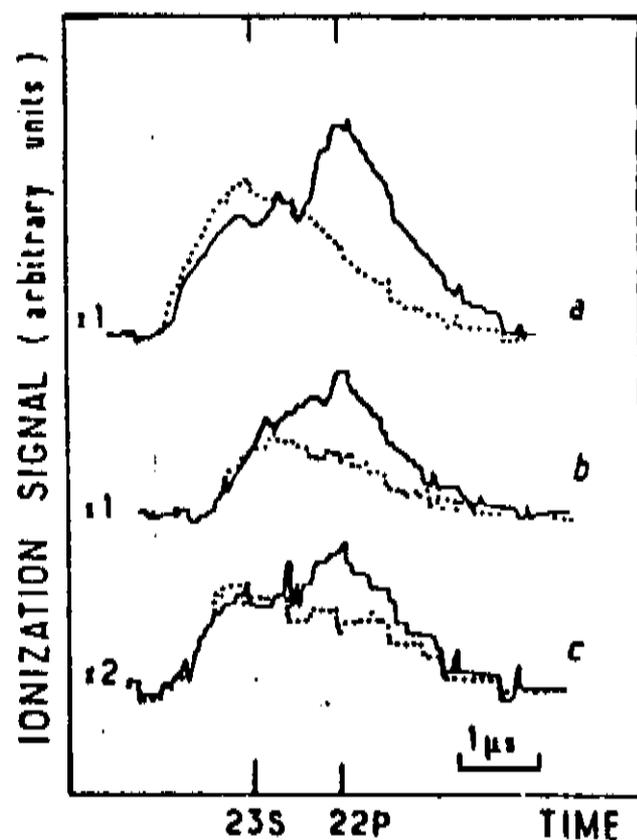


Figura 3.3: Sinal do incremento da emissão espontânea devido a presença da cavidade Fabry-Perot milimétrica. A linha pontilhada mostra a situação na qual a cavidade está fora da ressonância, enquanto que a linha cheia mostra a situação em que ela é ressonante. O número médio de átomos na cavidade é respectivamente 3.5, 2, 1.3 nas curvas a, b e c. A curva a e c correspondem a transição $23S \rightarrow 22P_{3/2}$ e a c a $23S \rightarrow 22P_{1/2}$ [5]

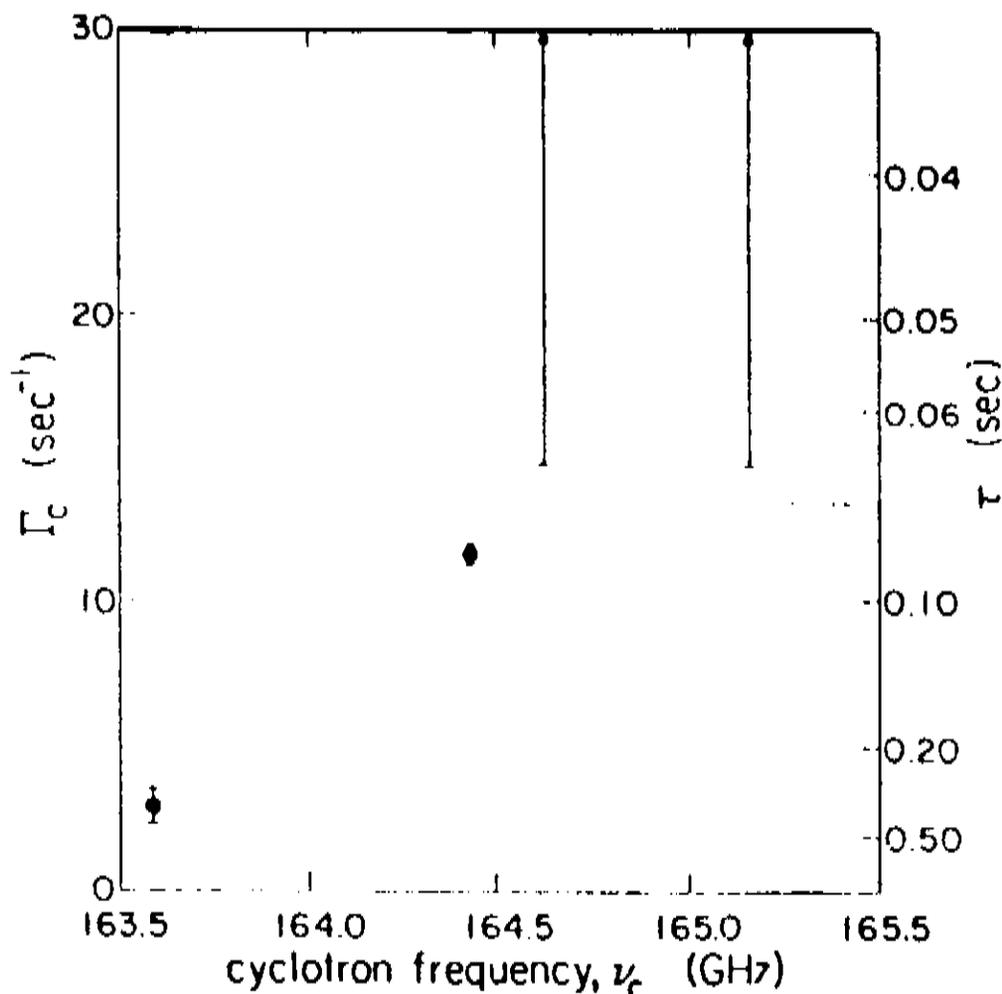


Figura 3.4: Amortecimento do tempo do ciclotron em relação a frequência [6].

com o comprimento de onda de emissão ($\lambda_e = 2mm$). A localização do elétron no centro da “armadilha” era monitorada movendo o mesmo, através de pequenas variações no potencial. Os eletrodos formam uma cavidade de microondas, com grande número de modos permitidos, e com dimensões menores que o comprimento de onda da radiação. Eles excitaram o movimento ciclotron com um campo de aproximadamente 164 GHz. A excitação ocorria durante 1 ms. O campo era então desligado, e o sistema de detecção ligado, com um pequeno atraso, por um tempo comparável à constante de amortecimento. Durante esta janela de observação, a energia média de excitação ciclotron foi medida. Esta energia diminui exponencialmente em função do tempo de atraso, num valor proporcional a 3 vezes o valor no espaço livre. Deste modo eles observaram a inibição da radiação de um elétron “ciclotron”. Na Figura 3.4 eles mostram a energia media da excitação ciclotron como função do tempo para dois diferentes campos magnéticos, que diferem entre si de 0.5%.

Em 1985 Hulet, Hilfer e Kleppner [9] observaram a inibição da emissão espontânea de um átomo de Rydberg em estado “circular”. O estado é denominado “circular” porque no limite clássico ele descreve um elétron numa orbita circular. Neste estado o elétron possui maior momento magnético, menor efeito Stark e maior tempo de vida radiativo [10]. Apenas uma transição magnética do tipo dipolo elétrico é disponível ($n \rightarrow n - 1; m \rightarrow m - 1$),

fazendo com que o estado circular seja uma boa aproximação de um sistema de dois níveis para estudos da eletrodinâmica de átomos em cavidade. A transição observada foi $(n=22, m-1=21) \rightarrow (n=21, m-1=20)$. O comprimento de onda é $\lambda_0 = 0.45$ mm, região de microondas. A regra de seleção $\Delta m = -1$ garante que a radiação é polarizada perpendicularmente ao eixo de quantização definido pelo campo elétrico aplicado. A condição de ressonância entre o átomo e a cavidade é obtida por meio de “efeito Stark” de segunda ordem (o estado circular não tem “efeito Stark” de primeira ordem).

A cavidade consiste de dois espelhos de alumínio com deposição de ouro, separados por espaçadores de quartzo. O detector de feixe atômico consiste de duas placas de cobre separadas de aproximadamente 0.5cm e ligeiramente giradas sobre um potencial de 1100V. Devido ao não paralelismo entre as placas, os átomos sentem um aumento no campo ao passarem entre elas. A taxa de ionização para os dois estados difere consideravelmente, de modo que a localização do campo ionizado determina o estado atômico. Átomos que emitiram espontaneamente são transferidos para um nível mais ligado que permanece não ionizado.

Os resultados obtidos são mostrados na Figura 3.5. O aumento na transmissão, quando $d = \lambda/2$, resulta da inibição da emissão espontânea. A diminuição para $\lambda/2d > 1.015$ resulta da ionização do campo entre os pratos que formam a cavidade.

Jhe, Anderson, Hinds, Meschede e Moi [11] realizaram mais uma vez a inibição da emissão espontânea e mostraram a sua anisotropia. Foi utilizado um átomo excitado (Cs em $5D_{5/2}$) tendo um tempo de vida na região de microsegundos ($\tau_0 = 1.6\mu s$), no infravermelho ($\lambda_0 = 3.49\mu m$) por meio de uma cavidade de dimensões da ordem de μ ($d = 1.1\mu m$). A região de inibição foi $5D_{5/2}$ a $6P_{3/2}$ a um comprimento de onda de $3.49\mu m$.

O Cs é excitado do estado fundamental por meio do laser L_1 sintonizado em 456 nm. Desta maneira 13% dos átomos são transferidos espontaneamente para o nível $5D_{5/2}$. A população do nível $5D_{5/2}$ é monitorada por um segundo laser L_2 que excita os átomos de $5D_{5/2}$ para o estado de Rydberg $26F$. Este estado é ionizado de modo que fazendo um campionamento em frequência com o laser L_2 , de $5D_{5/2} - 26F$ e registrando a taxa de contagem, se mede a população relativa dos vários sub-níveis hiperfinos F do estado $5D_{5/2}$. Os átomos se propagam através de um tunel por uma distância equivalente a 12.8 vezes o “tempo de vida” no espaço livre, do estado $5D_{5/2}$.

Quando o laser L_1 está na saída da cavidade (posição A), ele excita os átomos que passaram, sem serem excitados, pelo tunel e decaem no “espaço livre”. Quando invece está na entrada da cavidade (posição B), L_1 excita os átomos no nível $5D_{5/2}$ antes que eles entrem no tunel. Como o tunel $d < \lambda/2$ a emissão espontânea é inibida, e o tempo de vida aumentado. Desta maneira os átomos conseguem cruzar o tunel mantendo-se no estado no qual foram excitados. Este resultado é mostrado na Figura 3.6

Foi observado também que aplicando um pequeno campo magnético, de modo a variar a orientação do dipolo atômico, a emissão espontânea entre espelhos é anisotrópica. A Figura

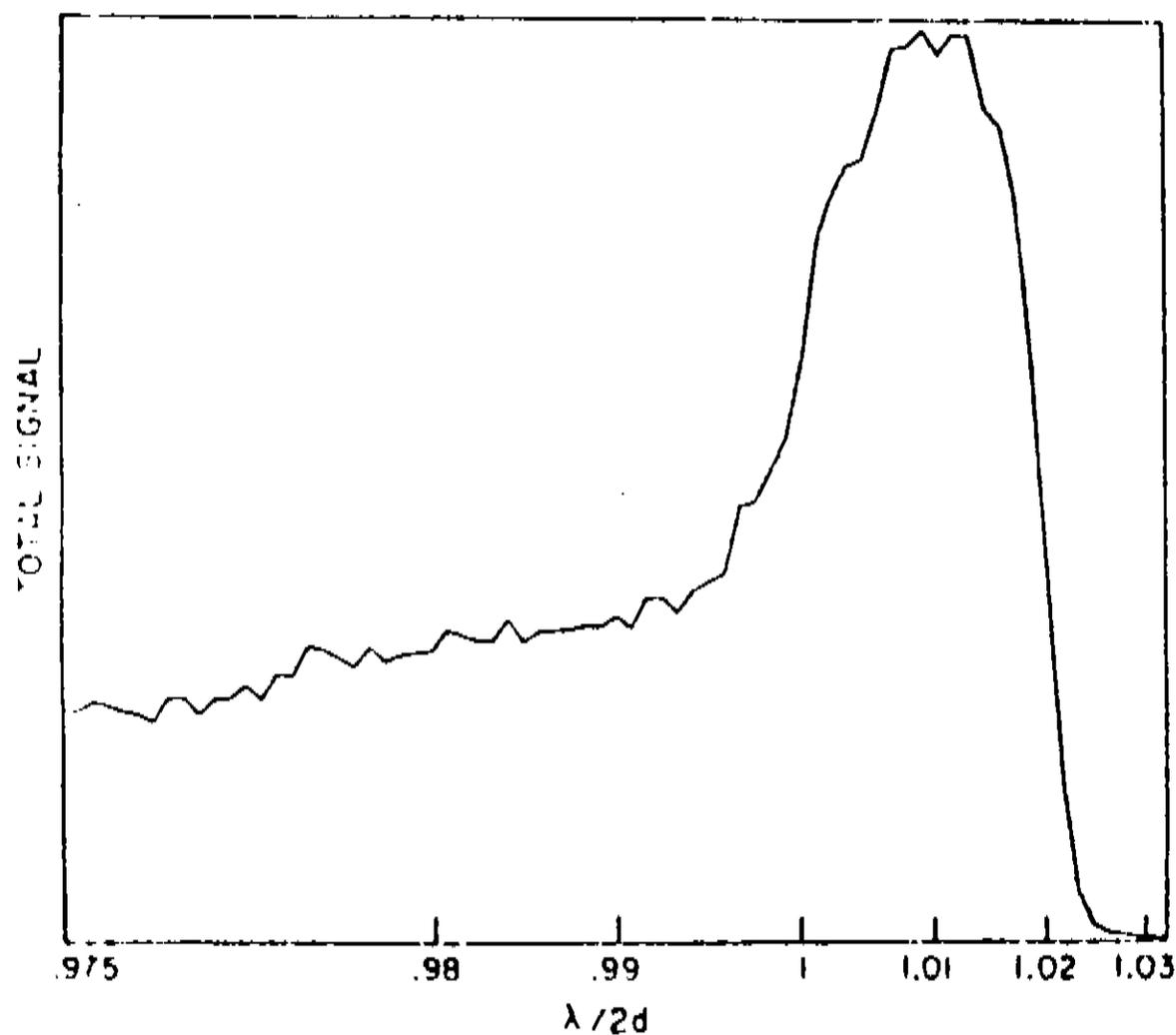


Figura 3.5: Sinal do tempo de vida do átomo de Rydberg que se move num *gap* entre os espelhos, em relação ao comprimento de onda da emissão espontânea na região de *cut-off* da cavidade. O sinal provem de átomos excitados detectados na saída da cavidade. O comprimento de onda atômico é variado através de um campo elétrico aplicado aos átomos. O aumento do tempo de vida do sinal ocorre quando $\lambda/2d$ é 1, devido a inibição da emissão espontânea [9].

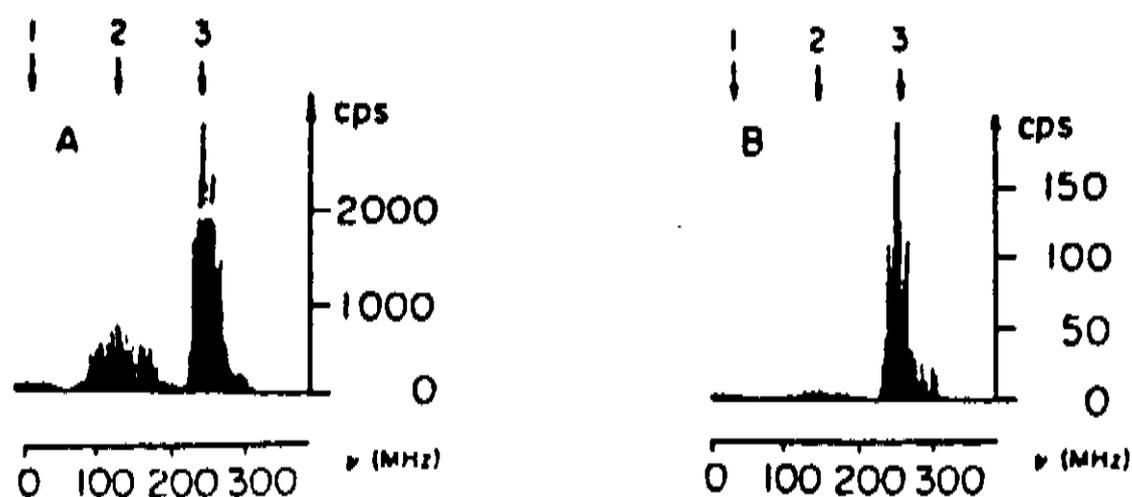


Figura 3.6: Espectro da transição $5D_{5/2} \rightarrow 26F$ registrada com o laser L_1 em A e B. Em B se ve a inibição do tempo de vida da emissão espontânea [11].

3.7 mostra o sinal da transmissão do estado excitado em função do ângulo que o campo magnético faz com a direção normal ao espelho.

Heinzen, Childs, Thomas e Feld [12] utilizaram uma cavidade com dimensões milimétricas para observar o comportamento da emissão espontânea no visível. Um feixe atômico de Ytterbio, com fluorescência em 556 nm foi excitado por um laser dentro da cavidade. A cavidade utilizada tinha os modos transversais degenerados de maneira que uma grande quantidade de modos são simultaneamente sintonizados [13]. A cavidade possuía espelhos confocais com largura de linha maior que a de transição atômica.

O campo na cavidade consiste de um par de ondas planas e um par de ondas esféricas muito focalizadas, com o átomo situado no foco. Desta maneira a distribuição do campo no átomo segue a área do foco no limite da difração, resultante da abertura dos espelhos circulares com raio $a = \lambda L / 2\pi b$, onde b é o diâmetro de abertura dos espelhos. Deste modo eles mostram que a taxa de emissão espontânea, no caso de um oscilador degenerado, independe de λ/L e depende unicamente do raio do espelho e seu ângulo sólido.

A Figura 3.8 mostra a taxa de fótons emitidos em relação à sintonização da cavidade.

A emissão foi detectada por meio da contagem de fótons. Foi observado um incremento de um fator 19 quando a cavidade é sintonizada com a transição atômica e uma inibição de um fator 42 quando a cavidade esta fora de sintonia.

O regime de Q (fator de qualidade) muito alto ($\mu_{if} E_{vac} Q \lambda^3 / v \hbar > 1$) manifesta um novo comportamento. A radiação permanece tanto tempo aprisionada na cavidade que existe uma probabilidade muito alta de que ela seja reabsorvida antes de se dissipar. A emissão

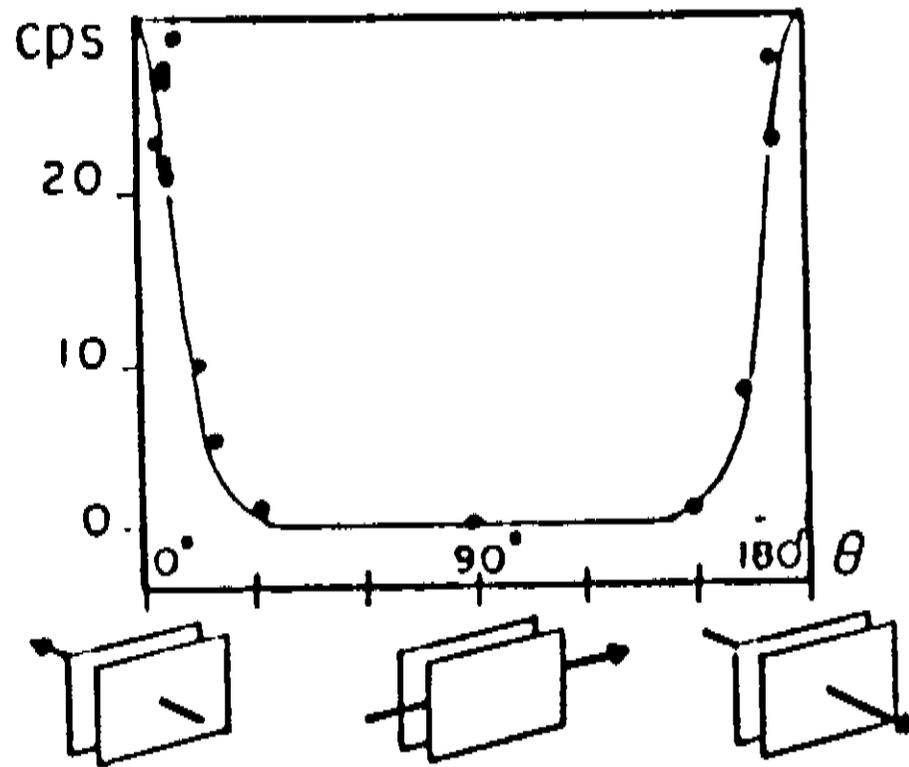


Figura 3.7: Transmissão do estado excitado através do tunel em relação ao ângulo θ entre o campo magnético e a normal ao espelho. A linha sólida indica a teoria normalizada para uma taxa de contagem máxima [11].

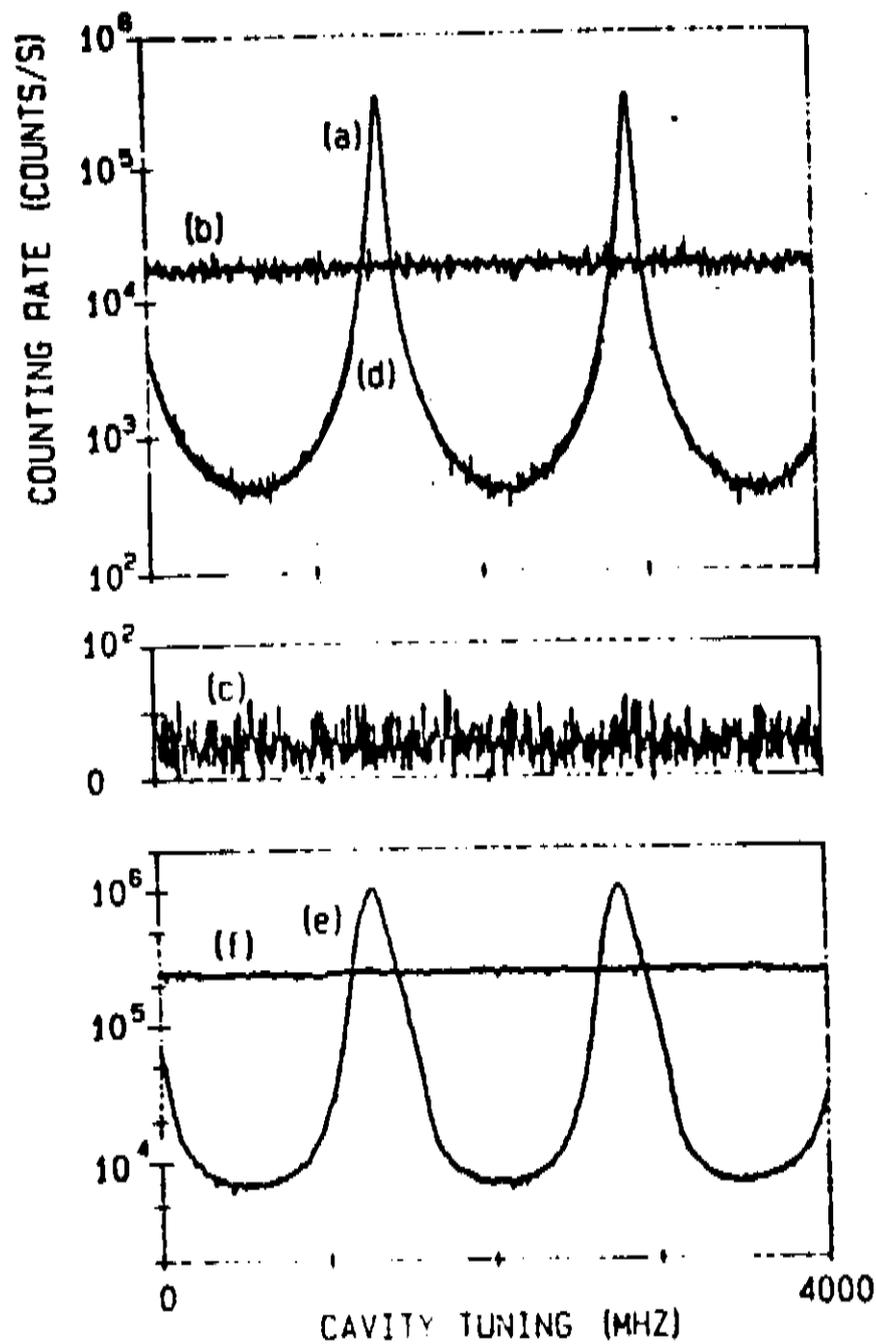


Figura 3.8: Taxa de contagem de fótons da luz transmitida pelo espelho da cavidade, em função da sintonização da cavidade. As curvas *a* e *e* mostram a emissão devido a presença da cavidade, as *b* e *f* mostram a emissão no espaço livre, a *c* mostra a emissão em presença da cavidade mas com o laser fora de sintonia com a ressonância atômica, e a curva *d* mostra o ajuste teórico [12].

espontânea se torna reversível quando o átomo e o campo trocam excitação a uma taxa $\Omega_{if} = D_{if}E_{vac}/\hbar$ (oscilação de Rabi). Este comportamento é resultante da interação de um átomo com o campo clássico monocromático. Nestas cavidades [14] o átomo interage com seu próprio campo de um fóton sem que seja necessária a aplicação de uma radiação externa.

Se a taxa de átomos que cruzam a cavidade excede a taxa de atenuação ω/Q , os fótons emitidos por cada átomo tem um tempo de vida tão longo que interagem com o próximo átomo. O acoplamento átomo-campo se torna forte o bastante para evoluir para um estado estável. Este sistema é um novo tipo de maser, o qual opera com um número muito pequeno de átomos e fótons. Com fluxos bastante pequenos de modo que praticamente se tenha um só átomo dentro da cavidade, se é capaz de gerar um maser de um fóton [15].

Vários outros trabalhos seguem onde se demonstra outros efeitos resultantes do acoplamento do átomo com a cavidade, tais como; maser de dois fótons [16], desvio na energia (frequency-pulling) [17]; estudo da dinâmica de relaxação de átomos vestidos quando perturbados por um reservatório de vácuo dependente da frequência [18] e outros.

3.1 Interpretação da variação do tempo de vida da emissão espontânea na presença de contorno eletromagnético

Várias interpretações clássicas [2,19,20,21] e quânticas [3,22,23,24,25,26,27], tentam explicar porque o tempo de vida da emissão espontânea muda em relação ao espaço livre, quando as moléculas estão a uma distância do espelho que é da ordem do comprimento de onda de emissão ($d \simeq \lambda_e$). Nesta secção falaremos rapidamente das várias interpretações que buscam explicar esta modificação resultante das condições de contorno eletromagnéticas. Primeiro descreveremos as interpretações clássicas e depois a quântica.

3.1.1 Teoria clássica

Segundo o formalismo da mecânica clássica, as interpretações mais citadas são basicamente três [28]: o “método da interferência” formulado por Drexhage [2], o “método da reflexão” de Kuhn [19] e o “método telegráfico” de Chance, Prock e Silbey [20]. Estes métodos se baseiam na interação entre a molécula excitada (assumidas como sendo dipolos oscilantes) e seu próprio campo de radiação refletido. As duas primeiras interpretações falham ao descrever o efeito a pequenas distâncias do espelho ($d \simeq 0.1\mu m$).

1. No método da interferência de Drexhage, a molécula é considerada como sendo um dipolo oscilante. Se a molécula é colocada próxima ao espelho, a uma distância da ordem do comprimento de onda da emissão, o campo elétrico emitido pela mesma

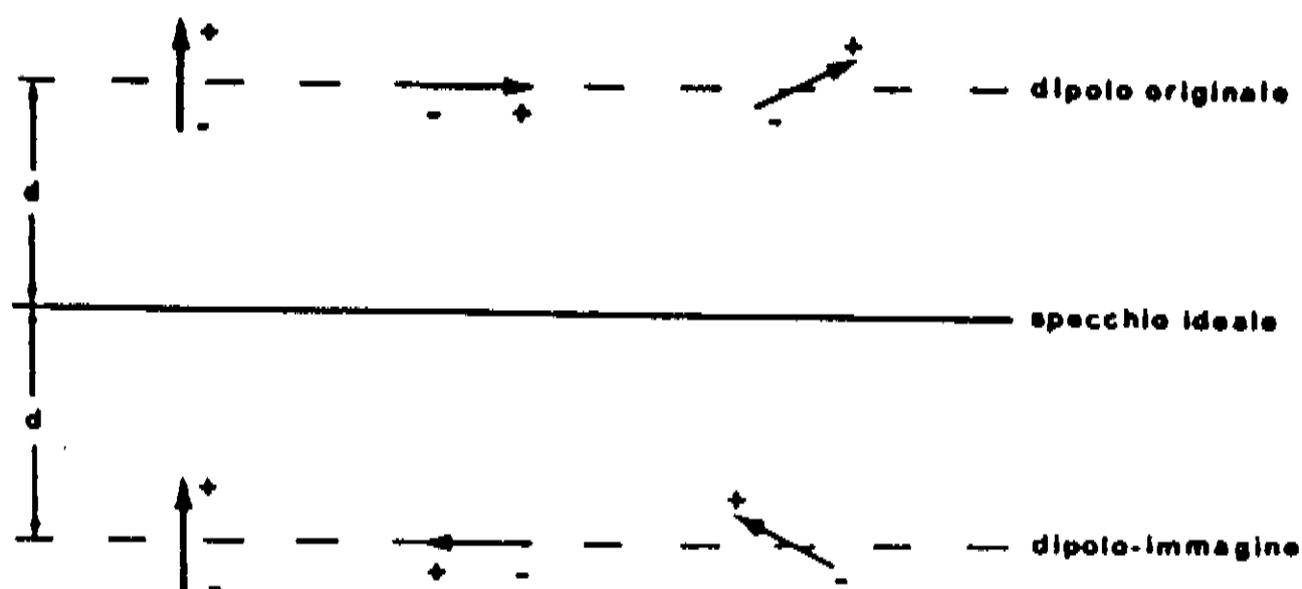


Figura 3.9: Possíveis fases do dipolo oscilante no método da imagem [28].

será constituído da superposição do campo do dipolo originário E_D e o campo deste dipolo refletido $E_{D'}$, que interferem construtivamente ou destrutivamente a depender da diferença de fase entre eles (Figura 3.9).

Como em todos os casos de interferência, a distribuição angular da radiação depende fortemente da distância da molécula em relação ao espelho, da orientação do dipolo, e das propriedades ópticas do espelho, tais como reflexão, desvio de fase e etc. A Figura 3.1 mostra os resultados experimentais em confronto com a previsão deste método. Se observa que esta teoria falha para pequenas distâncias $d < 0.03\mu m$.

2. Kuhn examinou este efeito usando a teoria da imagem ¹ Ele considera a molécula como sendo um dipolo oscilante e que após a reflexão o campo chega na molécula com um certo atraso. Este atraso provoca um desvio de fase, que por sua vez provoca uma variação no tempo de decaimento da emissão espontânea. A variação no tempo de decaimento resulta então da transferência de energia entre duas moléculas. Ou seja, considere que o campo da molécula excitada S induz uma outra molécula A a oscilar, por sua vez o campo induzido por A ao tornar em S diminui a oscilação de S. No caso de um espelho metálico ideal, o problema pode ser descrito como a transferência de energia entre a molécula excitada e o espelho, ou seja, como interação entre o oscilador e um oscilador virtual idêntico (sua imagem no espelho). Considere uma molécula S situada a uma

¹Vários trabalhos foram realizados para examinar o efeito da modificação da emissão espontânea através da teoria da imagem [22,23,24]. Esta teoria é uma aproximação da teoria eletromagnética da radiação do dipolo, devido à presença de um semi-espço parcialmente refletor (por exemplo um espelho). Neste método o espelho da cavidade é substituído por imagens virtuais, modificadas de modo a incluir de uma maneira aproximativa a transferência de energia entre uma molécula excitada e o espelho metálico.

distância x do espelho, oscilando em fase com o campo A de sua imagem no espelho. Em qualquer região do campo próximo, este é um campo de Coulomb corrigido pelo atraso causado devido a velocidade de propagação da luz de A . Este “eco” do campo chega em S com um atraso;

$$\Delta t = \frac{\text{distancia viajada pelo "eco"}}{\text{velocidade de propagacao}} = \frac{2d}{c}$$

e pode acelerar ou desacelerar o oscilador, resultando num tempo de emissão espontânea respectivamente menor (inibição) ou maior (incremento). Neste caso a emissão do quantum de luz é “estimulada” pelo próprio campo de radiação deste quantum.

3. Chance et. al. formularam matematicamente o problema de maneira análoga ao problema da radiação da antena em presença de uma superfície refletora. O campo elétrico refletido do dipolo é encontrado de maneira análoga ao problema da reflexão das ondas de rádio pela superfície da terra, com uma pequena modificação para incluir o problema de transferência de energia. Sua teoria resulta na teoria da imagem com um termo a mais de correção, o qual é importante para se calcular o efeito a pequenas distâncias.

Pode parecer estranho que a emissão espontânea de um átomo possa ser afetada pelo meio, se ele só pode sentir o que está em torno dele ao emitir um fóton [25]. Realmente, em tempos menores que o tempo de transito do átomo para ir e voltar do espelho, o átomo decai como se estivesse isolado. Mas em tempos maiores, existe a possibilidade de reabsorção e emissão, portanto o meio deve se tornar importante. Como o campo de radiação possui toda esta informação, ele é afetado pelo meio.

3.1.2 Teoria Quântica

São duas as principais interpretações segundo a eletrodinâmica quântica que explicam a inibição e o incremento da emissão espontânea em presença da condição de contorno; uma se baseia na interação do átomo excitado com a *flutuação do campo de vácuo* [29,30] e a outra na “*radiation-reaction*” [31,32].

1. A primeira explica a emissão espontânea como sendo resultante do acoplamento entre o átomo excitado e a *flutuação do campo de vácuo*, onde o campo de vácuo “estimula” o átomo excitado a emitir. Quando o átomo é posto a uma distância do espelho da ordem do seu comprimento de onda de emissão, devido ao efeito de interferência construtiva(destrutiva) resultante da reflexão do campo de vácuo pelo espelho, a emissão espontânea é modificada [3].
2. A segunda interpretação considera a modificação no tempo de vida da emissão espontânea através do método da imagem de Kuhn. Só que neste caso o tratamento é quântico e

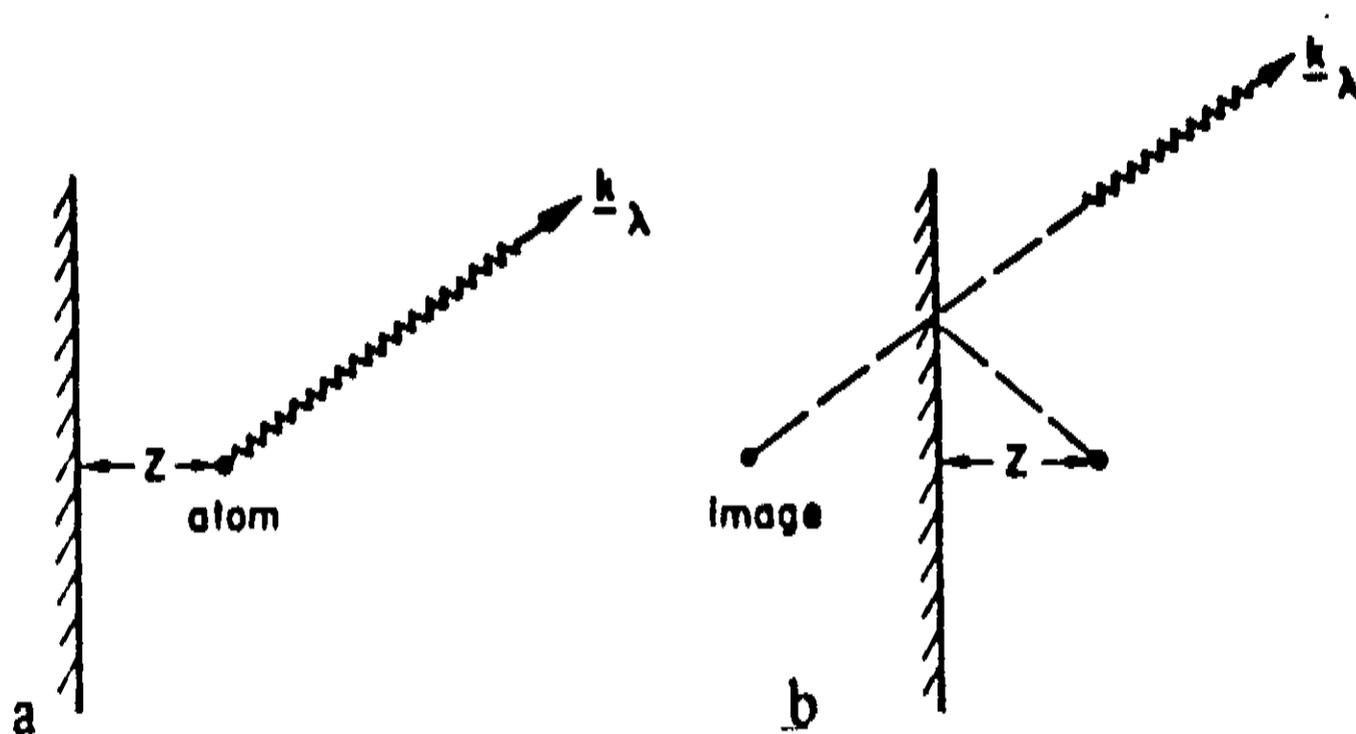


Figura 3.10: Processo de emissão espontânea de um átomo situado na frente de um espelho. O átomo se encontra a uma distância z do espelho. Na Figura (a) o átomo irradia livremente. Na Figura (b) ele é estimulado a emitir p[ela sua imagem virtual [25].

os espelhos são considerados ideais. Vendo o método da imagem quânticamente, existe a probabilidade de interferência entre dois processos [25]; (Figura 3.10); o átomo emite no modo $[k_s >$, sendo k o vetor de onda e s a polarização do modo da onda plana, sem reflexão no espelho. Da mesma maneira um fóton pode ser emitido no modo $[k_s >$ por reflexão no espelho e ser considerado como sendo emitido pela imagem fictícia do átomo.

O fóton não carrega informação sobre qual dos dois processos ocorreram. Deste modo a emissão pode ser descrita como um problema de dois átomos com completa incerteza sobre qual o átomo que foi excitado. Os estados iniciais que incorporam esta incerteza são,

$$[\Psi_{\pm} > = \frac{1}{\sqrt{2}} \{ [+ >_A [- >_I \pm [- >_A [+ >_I] \quad (3.2)$$

onde A(I) se refere ao átomo(imagem) e $[+ >$ ($[- >$) ao estado excitado(fundamental). A separação entre o átomo e a imagem é $2z$. O estado $[\Psi_+ >$ é utilizado se o dipolo é paralelo ao plano do espelho, o que corresponde a descrição clássica do dipolo com a fase oposta em relação a sua imagem. Este estado cooperativo descrito pela expressão 3.2 implica numa superradiância de Dicke [33] para $[\Psi_+ >$ (o tempo de vida é a metade) quando $z \rightarrow 0$, e uma subradiância para $[\Psi_- >$ (o sistema não decai) quando $z \rightarrow 0$.

Dois átomos separados por uma distância $2z$ decaem independentemente até o tempo $t=2z/c$, portanto o átomo decai como se estivesse no espaço livre até “ver” o espelho.

Ao analisar a emissão espontânea quando o átomo excitado é posto entre dois espelhos, eles propõem que a modificação na emissão espontânea resulta do efeito cooperativo do estado correlato do átomo com sua imagem associada. E este efeito de cooperação tem um segundo aspecto, pelo fato de todos os átomos só poderem emitir numa direção preferencial devido a presença da cavidade.

Bibliografia

- [1] E. M. Purcell, *Phys.Rev.* **69**, 681, (1946)
- [2] K. H. Drexhage. *Progress in optics* E.Wolf, North Holland, Amsterdam, (1974). vol.XII, p.165.
- [3] F. De Martini. *Phys.Lett.*, **A115**, 421, (1986)
- [4] M. Born and E. Wolf, *Principles of optics*. 6 ed., Pergamon Press, Oxford, 279. (1980).
- [5] P. Goy, J. M. Raimond, M. Gross, S. Haroche, *Phys. Rev. Lett.* , **50**, 1903, (1983).
- [6] G. Gabrielsen and H. Dehmelt, *Phys. Rev. Lett.*, **55**, 67, (1985).
- [7] L. S. Brown, G. Gabrielsen, K. Helmerson, and J. Tan, *Phys. Rev. Lett*, **55**, 44, (1985).
- [8] G. Gabrielsen, R. S. Van-Dyck, Jr., P. B. Schwinberg, and H. Dehmelt, *Am. Phys. Soc.*, **29**, 926, (1984).
- [9] R.G.Hulet, E.S.Hilfer, D.Kleppner, *Phys.Rev.Lett.*, **55**, 2137, (1985).
- [10] R. G. Hulet and D. Kleppner, *Phys. Rev.Lett.*, **51**, 1430, (1983).
- [11] W. Jhe, A. Anderson, E. A. Hinds, D. Meschede and L. Moi, *Phys. Rev. Lett.*, **58**, 666, (1987).
- [12] D. J. Heinzen. J. J. Childs, J. E. Thomas and M. S. Feld, *Phys. Rev. Lett.*, **58**, 1320, (1987)
- [13] A. Yariv, *Quantum Electronics* (Wiley, New York, 1975). 2nd ed., p.140.
- [14] S. Haroche and D. Kleppner, *Physics Today* **24** 1/1989).
- [15] D. Meschede, H. Walther and G. Muller *Phys. Rev. Lett.*, **54**, 551, (1985)
- [16] M. Brune, J. M. Raimond, P. Goy. L. Davidovich and S. Haroche, *Phys. Rev. Lett.*, **59**, 1899, (1987).
- [17] D. J. Heinzen and M. S. Feld, *Phys. Rev. Lett.*, **59**, 2623, (1987).
- [18] Y. Zhu, A. Lezama, T. Mossberg and M. Lewestein *Phys. Rev. Lett.*, **61**, 1946, (1988).

- [19] H. Kuhn, *J. Chem. Phys.*, **53**, 101,(1970).
- [20] R. R. Chance, A. Prock, R. Silbey, *J. Chem. Phys.*, **60**, 2744, (1974).
- [21] M. J. Stephen, *J. Chem. Phys.*, **40**, 669, (1964).
- [22] H. Morawitz, *Phys. Rev.*, **187**, 1792, (1969).
- [23] G. Barton, *Prog. Roy. Soc.A* , **320**, 251, (1970)
- [24] M. R. Philpot, *Chem. Phys. Lett.*, **19**, 435, (1973).
- [25] P. W. Miloni and P. L. Knight, *Opt. Commun.*, **9**, 119, (1973).
- [26] P. W. Milonni and P. L. Knight, *Phys. Rev. A*, **10**, 1096, (1974).
- [27] G. S. Agarwal, *Phys. Rev. A*, **12**, 1987, (1975).
- [28] G. Innocenti, Tese de laurea, Roma, (1987).
- [29] J. Dalibard, J. Dupont-Roc and C. Cohen-Tannoudji, *J. Phys*, **43**, 1617, (1982).
- [30] M. O. Scully and M. Sargent III, *Phys. Today*, **38**, march 1972.
- [31] P. Milonni, J.R.Ackerhalt, W. A. Smith, *Phys. Rev. Lett.*, **31**, 958, (1973).
- [32] J. R. Ackerhalt, P. L. Knight and J. H. Eberly, *Phys. Rev. Lett.*, **30**, 456, (1973).
- [33] R. H. Dicke, *Phys. Rev.*, **93**, 99, (154).

Capítulo 4

Cavidade microscópica Fabry - Perot

Neste capítulo descreveremos os detalhes da construção da microcavidade Fabry - Perot utilizada em nosso experimento, cuja finalidade era observar o processo de emissão de moléculas excitadas dentro da mesma.

Como demonstrado anteriormente por vários grupos [1,2] quando a molécula excitada se encontra a uma distância da ordem de seu comprimento de onda de emissão de um espelho, seu tempo de vida é alterado de maneira significativa. Por este motivo a cavidade foi construída com dimensões da ordem do comprimento de onda de emissão da molécula ($\lambda_e = 0.63\mu m$).

Por sua vez, a cavidade do tipo Fabry-Perot impõe condições de contorno que selecionam os modos de oscilação dentro da mesma. No nosso caso ela selecionará os modos do *campo de vácuo* que “estimularão” as moléculas excitadas a emitir, ou seja, selecionará os modos de emissão antes mesmo que o fóton seja emitido. Portanto controlando o número de modos permitidos dentro da mesma, podemos incrementar a intensidade da emissão.

A construção de uma cavidade deste gênero é bastante delicada, uma vez que a distância entre os espelhos será desta ordem de grandeza, e como qualquer outra cavidade, o alinhamento e estabilidade influenciam de modo fundamental na emissão. Na primeira seção descreveremos sucintamente o comportamento de um interferômetro do tipo Fabry-Perot e quais características serão necessárias para a realização do nosso experimento. Na segunda seção descreveremos detalhes técnicos da sua construção. Na terceira seção discutiremos sobre o critério na escolha da molécula fluorescente. Na quarta seção mostraremos como funciona a técnica de bombeamento ótico periódico. Na quinta seção caracterizaremos os espelhos e mostraremos as dificuldades técnicas para se obter uma boa *finesse* do instrumento e como melhorá-la por meios indiretos.

4.1 Pre-requisitos para construção da microcavidade Fabry - Perot

A distribuição de modos numa cavidade do tipo Fabry-Perot é descrita pela função de Airy, [3,4,5,6,7]

$$I = \frac{I^t}{I^i} = \frac{1}{(1 - \mathcal{R})^2(1 + \mathcal{F} \sin^2 \frac{\delta}{2})} \quad (4.1)$$

onde I^t é a intensidade transmitida, I^i a intensidade incidente,

$$\delta = 2knd \cos \theta = \frac{4\pi nd \cos \theta}{\lambda_e} \quad (4.2)$$

é a diferença de fase entre as ondas refletidas sucessivamente, e θ é o ângulo formado entre a normal ao espelho e o feixe incidente.

$\mathcal{R} = [r]^2$ é a reflexão dos espelhos,

o parâmetro \mathcal{F} é relacionado a *finesse* $\mathcal{F} = \frac{\pi\sqrt{F}}{2}$,

$\Delta\epsilon = 4/\sqrt{F}$ é a largura a meia altura das franjas.

Na Figura 4.1 mostramos a variação de I em função da diferença de fase δ , para θ constante.

Atraves da relação entre a separação das franjas adjacentes (FSR) e sua largura a meia altura se obtém a *finesse* real do instrumento $\mathcal{F} = FSR/\Delta\epsilon$ ¹. Nesta Figura vemos que I é máximo quando $\delta = 2m\pi$ onde $m=1,2,\dots$. Quando $\delta < 2m\pi \pm \Delta\epsilon/2$ não há modos permitidos na cavidade. Desta relação vemos que quanto maior a *finesse* do instrumento, menor $\Delta\epsilon$, e mais bem definida é a direção k da intensidade transmitida.

No nosso experimento, queremos operar na região onde os átomos só podem emitir num único modo k , o primeiro modo permitido pela função de Airy $\delta = 2\pi$. Desta maneira a cavidade incrementará a intensidade do efeito. Se a luz é monocromática e λ e θ são constantes, a intensidade transmitida varia em função da distância entre espelhos d . Neste caso o átomo só pode emitir num único modo quando $d = \lambda_e/2$. Quanto mais próxima de um *delta de Dirac* ($\Delta\epsilon \rightarrow 0$) forem as franjas da função de Airy (Figura 4.1), mais bem determinado será este modo assim como sua direção. Como analisamos o efeito numa direção bem determinada (k), quanto mais ($\Delta\epsilon \rightarrow 0$), maior será o número de fótons detectados. Considerando θ e λ_e constantes, a indeterminação em torno ao máximo de transmissão será

¹Como veremos mais adiante a *finesse* depende de outros fatores além da reflexão dos espelhos. Nesta relação já estão incluídos todos os fatores que contribuem para a *finesse*. Mostraremos na secção 3.3 que por meio desta relação se pode obter experimentalmente a *finesse* real do instrumento

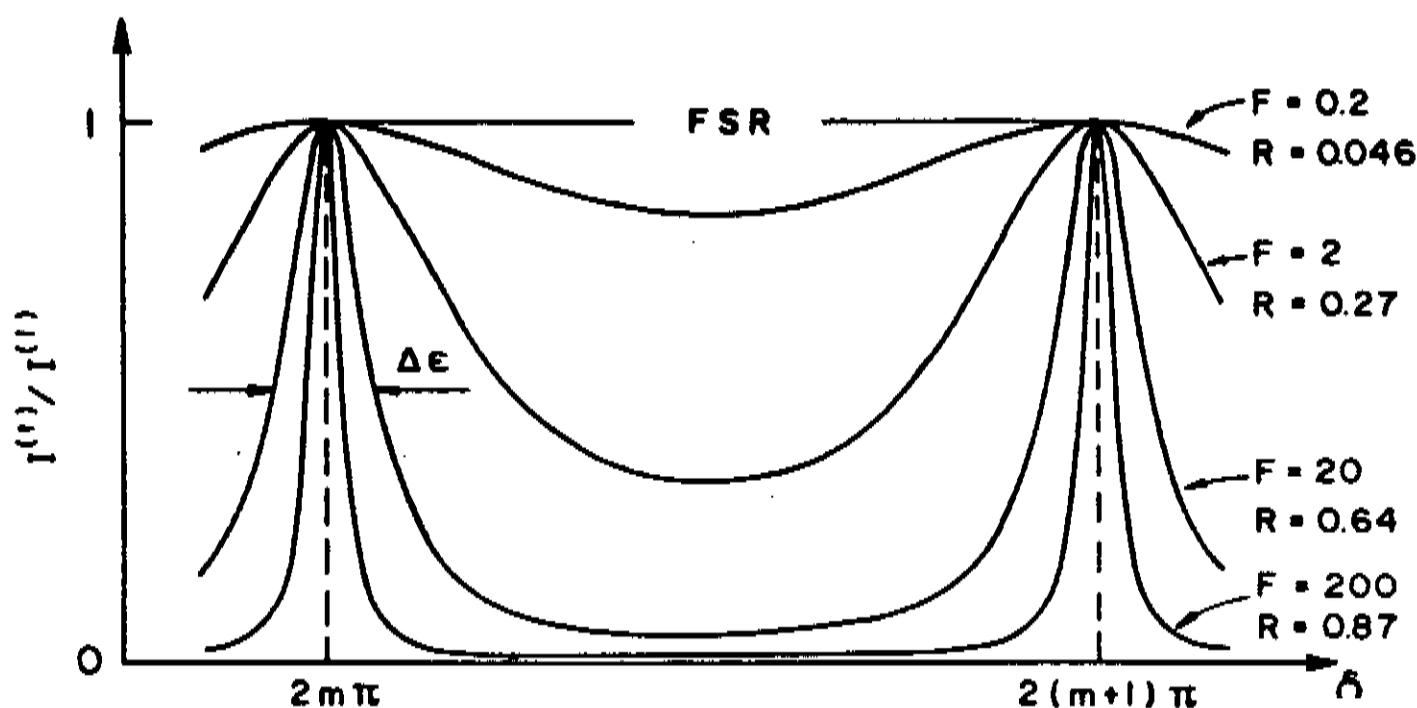


Figura 4.1: Razão entre a intensidade transmitida e incidente I^t/I^i em função da diferença de fase δ .

dada em função da distância entre espelhos d . Através da Equação 4.2 podemos obter a indeterminação $\Delta\epsilon$ em termos de d ; $\Delta d = \lambda_e \Delta\epsilon / 2\pi \cos\theta$. Esta relação determina qual a tolerância na indeterminação da distância entre espelhos, para que a transmissão ainda esteja em torno do máximo.

A imagem resultante da transmissão do Fabry - Perot, se resume em círculos claros, relativos a máxima transmissão ($m=1$), e escuros resultantes da mínima transmissão (Figura 4.3), com centro comum no ponto focal da luz transmitida, na direção normal aos espelhos. O fato dos círculos serem “perfeitos” vem do paralelismo entre os espelhos, e a espessura dos círculos, da *finesse* da cavidade. Cada círculo equivale a um máximo de transmissão da luz monocromática incidente com um mesmo ângulo θ . Uma seleção espacial de modos pode ser realizada por meio de um “pin-hole”, o qual “elimina” os círculos maiores que seu diâmetro.

Para satisfazer estes requisitos de seleção na emissão a microcavidade deve ser projetada de modo a apresentar as seguintes características:

1. Controle do movimento longitudinal entre os espelhos, para posiciona-los precisamente a uma distância $d = \lambda_e/2 \pm \Delta d$.
2. Alto valor de *finesse*. Como mostra a Figura 4.1, o estreitamento das franjas da função de Airy se obtém ao aumentar o valor da *finesse*. Como mostraremos na secção 3.3, a *finesse* depende, dentre outros fatores, do paralelismo entre os espelhos, sua planicidade e refletividade.

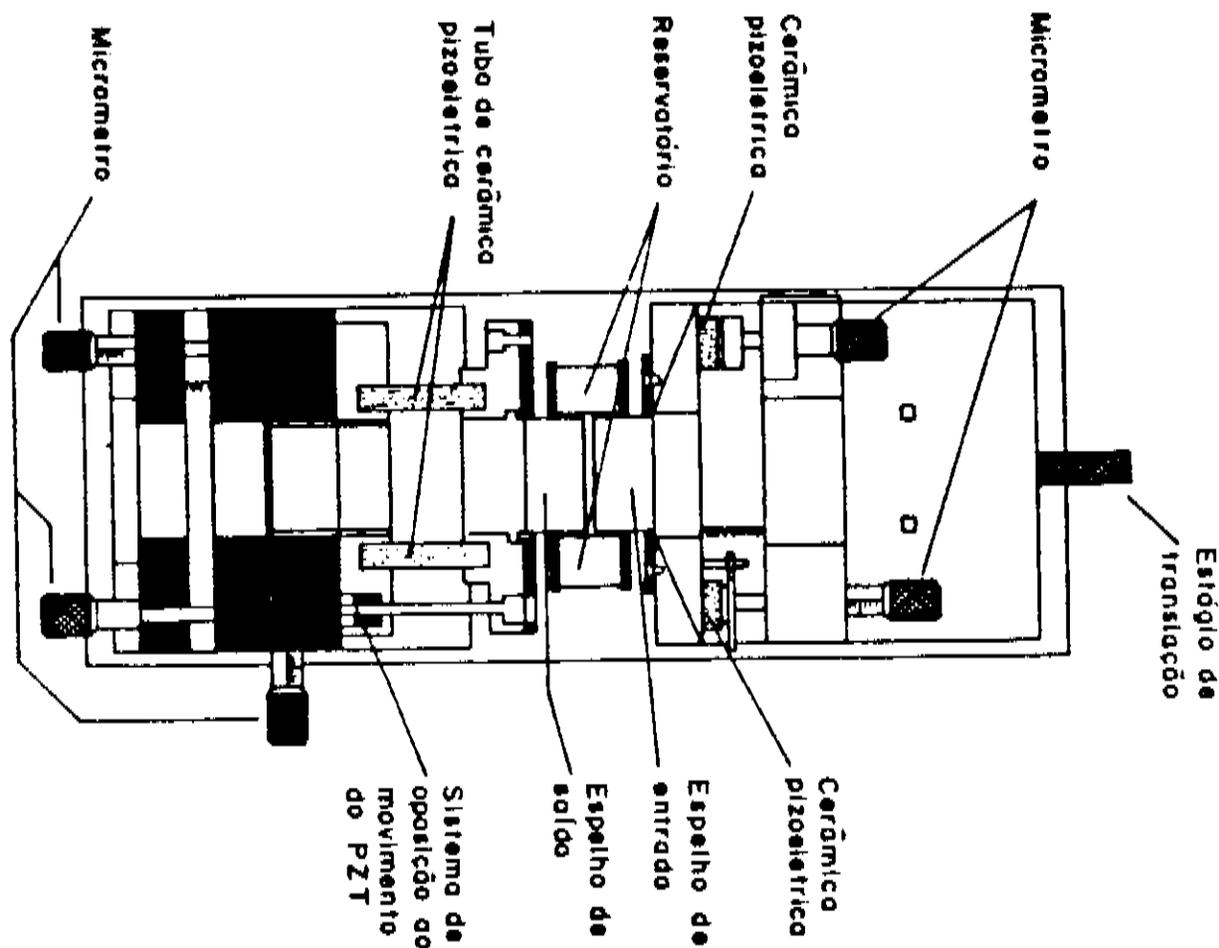


Figura 4.2: Interferômetro Fabry - Perot micrométrico visto de cima [8].

3. Para se controlar o paralelismo, a cavidade deve ter um controle bastante sensível do alinhamento, da ordem de Δd .

4.2 Montagem da microcavidade

A montagem da cavidade vista de cima é mostrada na Figura 4.2, nela mostramos todas as componentes que formam a mesma. Na Figura 4.3 vemos a cavidade em lateral. Nesta Figura mostramos o feixe de excitação que incide na mesma num certo ângulo em relação a normal ao espelho, deste modo são formadas as franjas de Wiener. O laser de He-Ne é utilizado para o alinhamento da mesma, por meio da visualização dos seus anéis de transmissão.

Como descrito acima, um dos fatores primordiais é um controle sensível no movimento entre os espelhos, de modo a mantê-los alinhados. Para esta finalidade, os espelhos foram montados em suportes com ajustes, angular e longitudinal, micrométricos. O movimento angular ajusta o paralelismo, enquanto que o movimento longitudinal varia a distância entre os espelhos. O suporte do espelho de entrada possui além de ajuste mecânico (micrométrico), ajuste eletrônico que garante movimentos da ordem de angstrom. O ajuste mecânico é real-

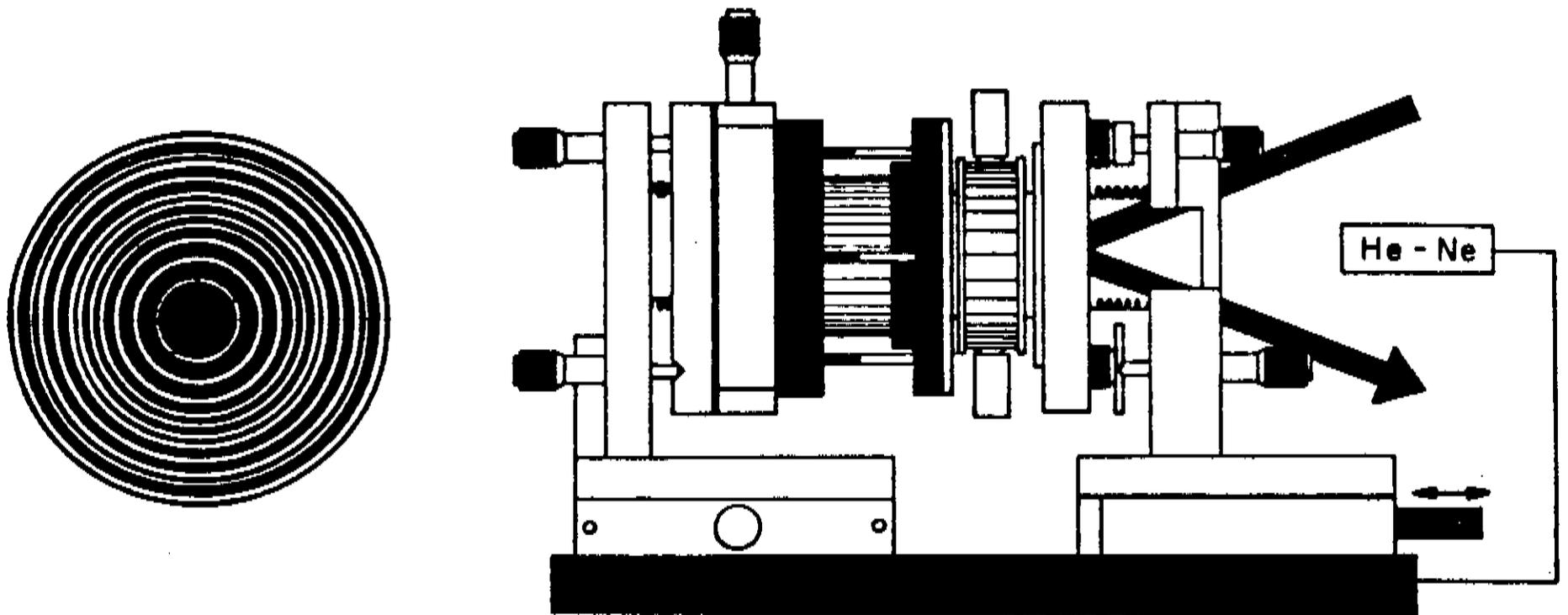


Figura 4.3: Interferômetro Fabry - Perot micrométrico. Nesta Figura mostramos a montagem do interferômetro, assim como o laser de HeNe utilizado para alinhamento e o laser de excitação [8].

izado por meio de micrometro e o eletrônico por meio de pastilhas piezoelétricas colocadas entre os micrometros e o suporte. Com este sistema podemos alinhar o paralelismo com precisão da ordem de angstroms.

Quanto ao deslocamento longitudinal entre os espelhos, o suporte do espelho de ingresso foi montado sobre um estágio de translação da Microcontrole (modelo UT50.20 PP) com passos de $0.1\mu m$, guiado por um controlador (Microcontrole, modelo TL 17 CA). Como a distância entre os espelhos deve ser da ordem de $\lambda_e/2 = 0.316\mu m$ e devido as características de nossa cavidade $\Delta d = 0.02\mu m$, este passo é muito longo.

Por este motivo utilizamos um cilindro piezoelétrico para fazer deslocamentos contínuo da ordem de Angstrom. Utilizamos um PZT da Phillips de 35 mm de diâmetro interno sistemado entre dois suportes de PVC. Estes suportes também servem como isolante para os outros elementos da cavidade. A uma tensão máxima de até 2500V o PZT produzia um deslocamento de até $0.65\mu m$ ($> 2 \times \lambda_e/2$). Os dois suportes são ligados entre si por um sistema que se opõe ao movimento do PZT, pois como o PZT operava em expansão, este sistema ajudava na compressão. De um lado o PZT era acoplado a um suporte angular micrométrico do tipo descrito acima, e do outro eram encaixados sucessivamente uma lente cilíndrica, com distância focal de 8.3 cm, e o espelho de saída da cavidade.

Para evitar queda na eficiência da emissão devido ao deterioramento do meio ativo (moléculas de corante diluídas em ethanol) um sistema de circulação renovava constantemente a solução. Como a solução deveria circular entre os dois espelhos, levando em conta que eles eram constantemente deslocados, utilizamos como reservatório um dedal de plástico fixado entre os espelhos e um suporte central, com diâmetro maior que o do espelho. Deste modo os espelhos se deslocavam livremente e sempre tinha solução entre eles. O fluxo era garantido por meio de dois tubos, de entrada e saída da solução. Para sermos seguros de que havia meio ativo entre os espelhos partíamos da condição em que os espelhos estavam bastante afastados de modo a vermos que havia solução entre eles, e daí então os aproximávamos. Este sistema de circulação tem que ser o mais estável possível. A distância entre espelhos é da ordem de microns e pequenas flutuações são capazes de provocar deslocamentos desta ordem, desalinhando assim a cavidade.

Para o tipo de medidas que realizamos a cavidade deve permanecer estável por mais de 1 s. Para evitar este tipo de problemas devido a vibrações resultante do sistema de bombeio, utilizamos dois reservatórios colocados em diferentes alturas em relação a microcavidade, um mais alto e outro mais baixo. Uma bomba peristáltica é responsável pelo bombeio da solução do reservatório mais baixo que a cavidade para o mais alto, e daí a solução circula por gravidade, num fluxo constante. A filtragem da solução é bastante importante pois uma vez que operamos a $d = 3\mu m$ qualquer impureza micrométrica altera os resultados, por este motivo, antes de ingressar na cavidade a solução é filtrada por uma membrana com poros de $2.2\mu m$ da Millipore.

A cavidade é montada num goniômetro, de modo a permitir um ajuste angular em relação ao feixe incidente. Sobre o goniômetro foi acoplado um Laser de HeNe da Spectra - Physics (modelo 133) com linha de emissão em $0.63\mu m$. Na Figura 4.3 mostramos como é montado o laser no sistema que forma a microcavidade. Este laser é utilizado como referência no alinhamento dos espelhos da cavidade, uma vez que ele irradia na mesma linha da emissão das moléculas. Para alinhar a cavidade incidimos o feixe laser espalhado, de modo a ocupar uma maior área do espelho, perpendicularmente em relação ao mesmo. Por meio de uma lâmina de vidro de espessura da ordem de milímetro controlávamos a olho os “anéis” transmitidos (Figura 4.3). Para centrá-los em relação ao eixo da lente, fazíamos ajustes com os controles angulares. Este controle visual permite um ajuste bastante preciso dentro das características de nosso espelho. O máximo erro visual que podemos cometer equivale a um deslocamento da ordem de 0.1μ , como $\Delta d = 0.2\mu m$ estamos dentro da indeterminação do modo na cavidade. Como queríamos trabalhar na situação onde apenas o primeiro modo era permitido na cavidade, a primeira curva na função de airy (Figura 4.1), deveríamos ver um único anel transmitido na Figura 4.3. Como não podíamos garantir a situação de $d=0$, partíamos da situação de espelhos separados. Aproximávamos os espelhos com o estágio de translação de 3 passos ($\approx 0.3\mu m \simeq \lambda_e/2$). Nesta posição movíamos o PZT translacional de $0.65\mu m (> \lambda_e)$ e víamos por quantos máximos a transmissão passava, contando quantos anéis apareciam e sumiam. Se víamos dois anéis, aproximávamos ainda os espelhos de $\lambda_e/2$ por meio do estágio de translação e repetíamos a operação com o PZT, até chegar a uma situação na qual movendo o PZT de λ_e víamos só um anel. Daí estávamos seguros de estar no primeiro máximo da curva de Airy, ou seja só um modo era permitido na cavidade para aquele comprimento de onda.

4.3 Molécula fluorescente

Nossa intenção era observar o aumento no tempo de decaimento da fluorescência devido a presença da cavidade. Para esta finalidade escolhemos com meio ativo um corante orgânico, o Rubreno (tetraphenilnaphaceno). Sua estrutura é mostrada na Figura 4.1.

Esta molécula possui tempo de fluorescência $\tau \simeq 14ns$. A opção por um corante, em especial o Rubreno, resulta de vários fatores:

- A facilidade em se obter uma espessura variável do meio ativo, da ordem do comprimento de onda de emissão. O que é bastante comodo, tendo em vista as dimensões da nossa cavidade.
- O tempo de vida da sua fluorescência ser bastante grande para um corante orgânico, o que facilita na detecção de sua variação. item Possui uma boa eficiência quântica (0.19) quando diluído em alcool etílico.

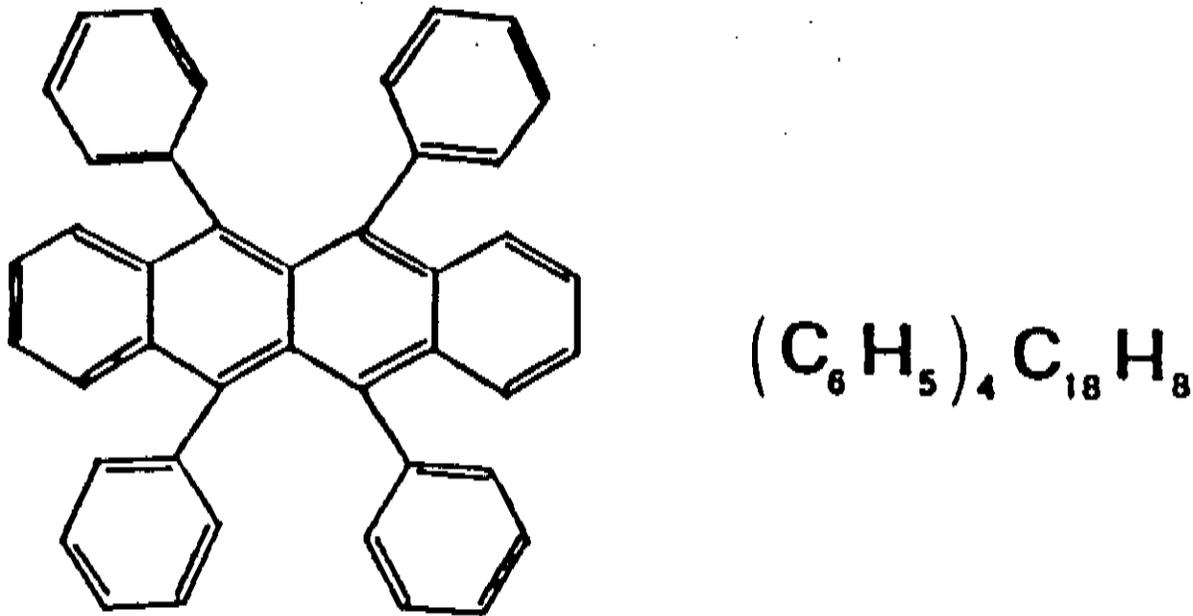


Figura 4.4: Estrutura da molécula de Rubreno

- Tem boa absorção em $0.53\mu\text{m}$, que é o comprimento de onda do laser que tínhamos disponível como fonte para a excitação do meio ativo, e boa emissão em $0.63\mu\text{m}$, que além de ser no visível, tem o mesmo comprimento de onda de emissão do laser de He-Ne, o que facilita simultaneamente no sistema de detecção e alinhamento. Seu espectro de absorção, quando em solução de $10^{-4}M/L$ (álcool etílico) é mostrado na Figura 4.5.

4.4 Bombeamento óptico periódico

A emissão espontânea pode ocorrer devido a distribuição do campo de vácuo que “estimula” as moléculas excitadas a emitir. Numa cavidade, o campo de vácuo auto-interfere devido a reflexões nos espelhos, formando assim ondas periódicas e estacionárias. A densidade de energia pertencente ao modo k , deve ser zero nos espelhos e proporcional a $\sin^2(k.z)$ ao longo da separação entre os espelhos (eixo z). Se esta cavidade é ativa, moléculas excitadas que se encontram espacialmente na posição z onde há um pico na franja de interferência do campo de vácuo, serão mais “estimuladas” a emitir espontaneamente, que aquelas localizadas nos nodos. Devido a este fato, se torna importante a modulação na distribuição das moléculas excitadas, de maneira que um maior número de moléculas interfiram construtivamente com o campo de vácuo e isto resulte numa maior intensidade de emissão.

Através da técnica das franjas de Wiener [3,6,9], se torna possível controlar a distribuição das moléculas excitadas em relação ao espelho. Esta técnica se baseia na auto-interferência do feixe de excitação resultante da presença do espelho. Quando um

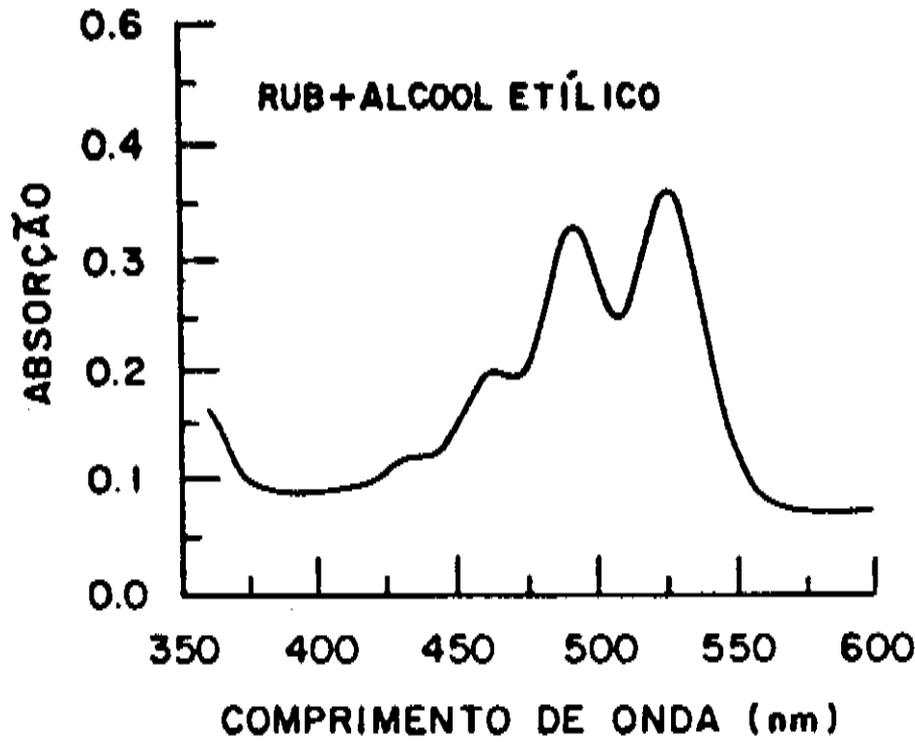


Figura 4.5: Espectro de absorção da molécula de Rubreno em solução com álcool etílico

feixe polarizado perpendicularmente em relação a normal ao espelho incide num meio , são formadas ondas periódicas ao longo do eixo z . Se o meio é ativo, as moléculas serão excitadas com o quadrado da amplitude do campo elétrico nos nodos das franjas, e zero nos anti-nodos, criando assim uma modulação na excitação ao longo do eixo z com período $T = m\lambda/2n$ [3]. Ao variar o ângulo de bombeio, a estrutura das franjas pode ser modificada, modificando assim a distribuição das moléculas excitadas dentro da cavidade.

Por sua vez, haverá uma máxima intensidade de emissão se a condição de ressonância entre o único modo permitido na cavidade ($d = \lambda_e/2$) e a distribuição da intensidade de bombeio, satisfaz a conservação do momento,

$$\frac{1}{k_e} = \frac{1}{k_b \cos \theta_b} \quad (4.3)$$

$$\frac{\lambda_e}{n(\lambda_e)} = \frac{\lambda_b}{n(\lambda_b)} \frac{1}{\cos \theta_b}$$

Onde k_b é o vetor propagação do feixe de bombeio, k_e o de emissão e θ_b o ângulo que o feixe de bombeio faz em relação a normal ao espelho. Este máximo de emissão ocorre porque um maior número de moléculas excitadas interferirão construtivamente com o campo de vácuo. Para calcularmos o ângulo θ_b , devemos levar em conta a geometria

particular do caminho ótico, a luz antes de excitar as moléculas passa por dois meios com diferentes índices, o ar e o vidro. Por meio da lei de snell [3] e levando em conta os índices de refração experimentais, obtemos para o ângulo de bombeio $\theta_b = 48^\circ$.

Para controlar o ângulo de incidência do feixe de bombeio na cavidade seguimos o seguinte procedimento. Posicionamos a cavidade, com a ajuda do goniômetro, de modo que o feixe de bombeio incida perpendicularmente em relação ao espelho (isso se verifica pela reflexão do feixe ao incidir no espelho) e paralelamente a mesa. O laser de HeNe gira em torno ao eixo da microcavidade, desta maneira giramos ele até que incida, paralelamente a mesa e perpendicularmente ao espelho, no mesmo ponto que o laser de bombeio. Este será fixado como o zero do ângulo. A partir daí giramos o HeNe de 48° e trazemos a cavidade para a posição do laser, de modo que o feixe do HeNe seja refletido sobre ele mesmo.

Portanto neste experimento a ação combinada de dois efeitos de interferência independentes, cria um padrão definido de radiação.

4.5 Finesse

A *finesse* da cavidade é determinada em sua maior parte pelas características do espelho, refletividade e planicidade. Primeiro caracterizaremos os espelhos, depois mostraremos a *finesse* real do instrumento, obtida experimentalmente nas condições de operação do experimento, e depois mostraremos porque teoricamente este valor é baixo e como otimizá-lo.

Os espelhos tinham as seguintes características:

- diâmetro $L=3\text{cm}$, que quando comparado a distância entre espelhos que operávamos ($d \simeq 0.315\mu\text{m}$), nos leva a aproximação de uma cavidade infinita onde os modos transversais eram praticamente eliminados;
- o espelho de entrada transmitia o feixe de excitação ($\lambda = 0.53\mu\text{m}$) e refletia $\mathcal{R} = 0.995$ no comprimento de onda de emissão ($\lambda_e = 0.63\mu\text{m}$). Sua curva de transmissão é mostrada na Figura 4.6;
- o espelho de saída refletia $\mathcal{R} = 0.999$ o feixe de excitação, formando assim as franjas de Wiener; e transmitiam $\mathcal{R} = 0.98$ no comprimento de onda de emissão, em modo a manter uma boa *finesse* e ao mesmo tempo permitir uma transmissão alta o bastante para ser detectada pelo nosso sistema de detecção. Sua curva de transmissão é mostrada na Figura 4.7;

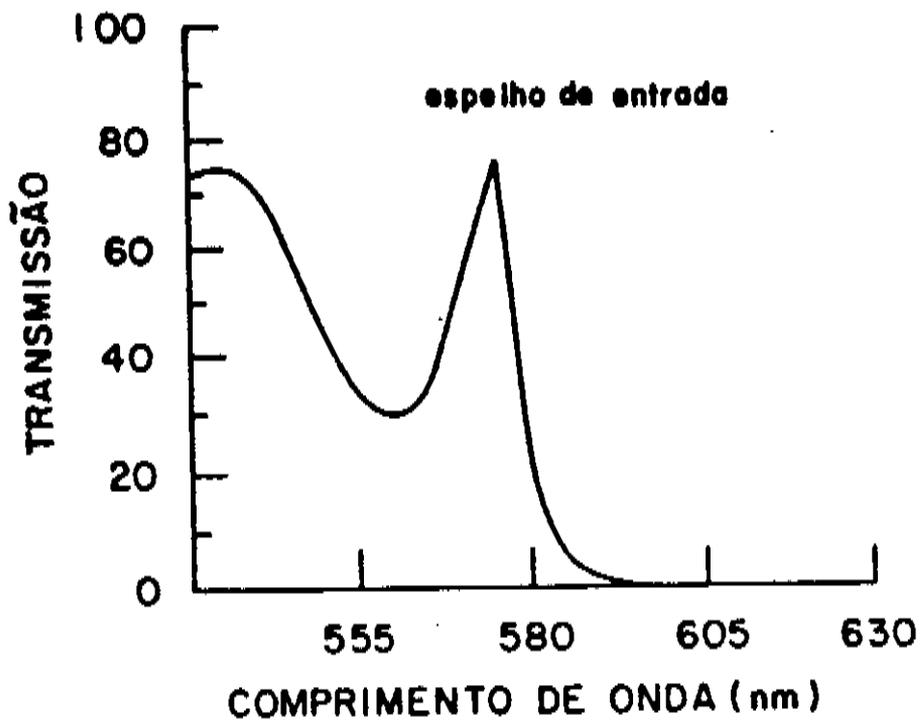


Figura 4.6: Curva de transmissão do espelho de entrada [8]

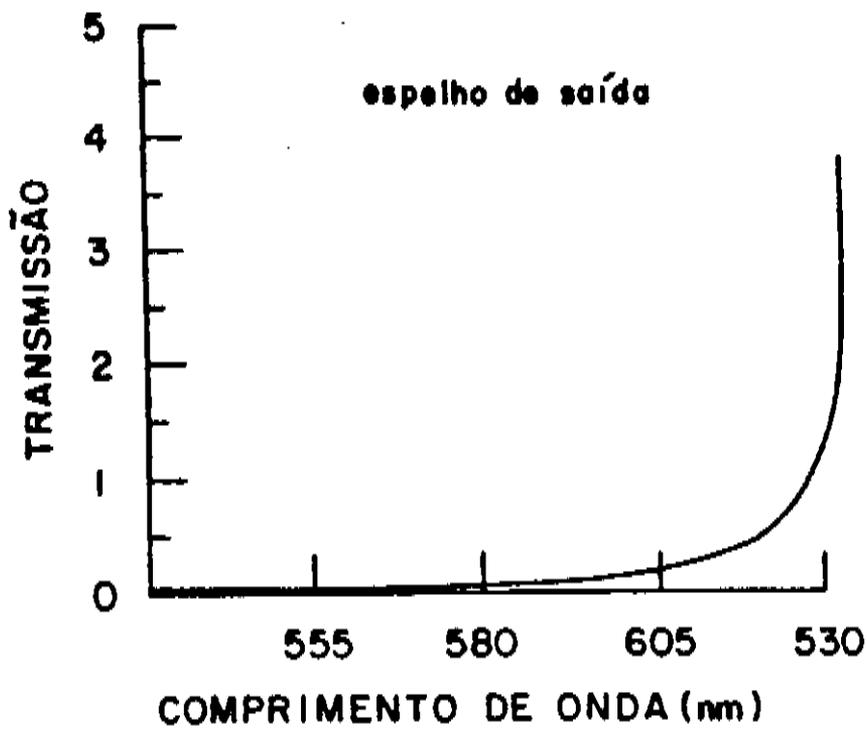


Figura 4.7: Curva de transmissão do espelho de saída

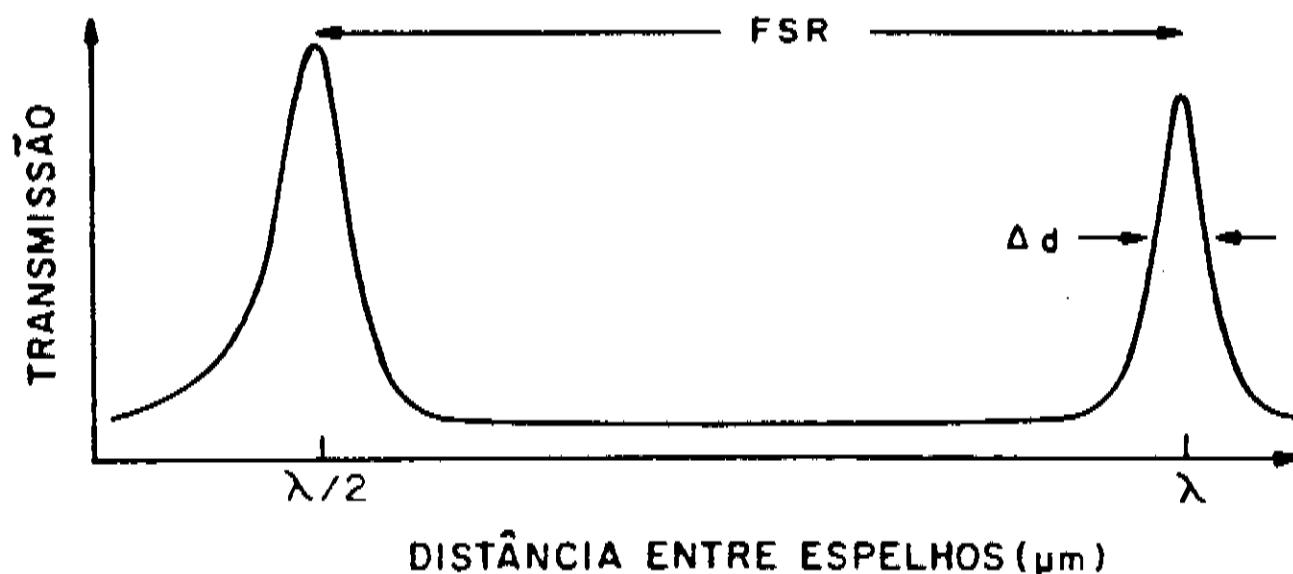


Figura 4.8: Curva experimental da intensidade transmitida pela nossa cavidade em $\lambda_e = 0.63\mu m$, em função da separação entre os espelhos. Desta curva se obtém a *finesse* real da microcavidade através da relação entre a distância entre dois picos de intensidade sucessivos e a largura da franja a meia altura ($FSR/\Delta d$). Desta Figura observamos que no nosso instrumento o fator $F=15$.

- como operávamos a uma distância entre espelhos de $3.2\mu m$ o espelho deveria ter uma planicidade bastante alta. Nossos espelhos eram especificados por uma planicidade dentro de $\lambda_e/20$.

Com estas características dos espelhos a *finesse* real para o comprimento de onda de emissão, nas condições em que se realiza o experimentos, é $F=91$. Esta medida foi realizada por meio da transmissão do laser de HeNe espalhado, em relação a distância entre os espelhos mostrada na Figura 4.8.

O movimento entre os espelhos é realizado por meio de uma rampa de tensão aplicada sobre o PZT, e com uma saída atenuada para o X de um gráfico XY, e no Y entrava o sinal transmitido pela cavidade e focalizado num “pin-hole” de $50\mu m$, que por sua vez era acoplado a uma fotomultiplicadora.

Mesmo a refletividade dos espelhos sendo bastante alta, o que resultaria teoricamente numa *finesse* $\mathcal{F} \simeq 200$, a *finesse* real é muito baixa. Isto ocorre porque ela depende também de outros parâmetros, como pode ser visto na expressão da *finesse* real do instrumento;

$$\frac{1}{\mathcal{F}} = \frac{1}{\mathcal{F}_r} + \frac{1}{\mathcal{F}_p} + \frac{1}{\mathcal{F}_{ph}} \quad (4.4)$$

onde \mathcal{F}_r é a *finesse* relativa a refletividade, \mathcal{F}_p a *finesse* relativa a planicidade e \mathcal{F}_{ph} aquela relativa a abertura do “pin-hole” no qual se analisa a transmissão. Através desta expressão vemos que a *finesse* mais baixa determina o valor da *finesse* total. No nosso caso a *finesse* relativa a planicidade dos espelhos é aquela que apresenta o valor mais baixo.²

Um modo indireto de selecionar o pico de transmissão, mesmo que perdendo um pouco em intensidade de sinal, é selecionando o pico da primeira curva da função de Airy espacialmente (Figura 4.1). Isto pode ser feito colocando uma lente com distância focal longa e um “pin-hole”, no limite da difração, no foco da lente. No nosso caso o limite da difração para o comprimento de onda de emissão era $20\mu m$.

²A *finesse* da planicidade é dada por $\mathcal{F}_p = M/2$ onde M é o desvio da planicidade, no nosso caso $M=20/2=10$. A *finesse* devido ao “pin-hole” é dada por $\mathcal{F}_{ph} = 4\lambda f^2/D^2 d \simeq 50.10^3$, onde λ é o comprimento de onda de emissão, f é a distância focal da lente, D o diâmetro do “pin-hole” e d a distância entre espelhos [5]. Destas relações vemos que a planicidade é a responsável pela baixa *finesse* do instrumento

Bibliografia

- [1] K. H. Drexhage, *Progress in Optics*. E. Wolf, North Holland, Amsterdam, 165, (1974).
- [2] H. Kuhn, *J. Chem. Phys.*, **53**, 101, (1970).
- [3] M. Born and E. Wolf, *Principles of optics*, **6 ed.**, Pergamon Press, Cap.7, Oxford, (1980).
- [4] G. Hernandez, *Fabry - Perot interferometers*, Cambridge, London.
- [5] W. S. Gornall, *Lasers and Application*, **47**, 47, (1983).
- [6] A. Kastler, *Appl. Opt.*, **1**, 17, (1962).
- [7] H. A. Macleod, *Thin film optical filters*, Adam Hilger LTDA, London, 88.
- [8] G. Innocenti, *Tese de Laurea*, Roma, 1987.
- [9] F. De Martini, *Phys. Lett. A*, **115**, 421, (1986).

Capítulo 5

Emissão espontânea na microcavidade

Neste capítulo descreveremos o processo da emissão espontânea numa cavidade Fabry-Perot microscópica. Desenvolveremos a teoria quântica que descreve o nosso experimento, mostraremos a configuração experimental, apresentaremos os resultados e faremos um confronto entre o experimento e a teoria. Na primeira secção mostraremos por que a taxa de emissão espontânea é incrementada quando ocorre no interior de uma cavidade óptica de dimensões da ordem do comprimento de onda da emissão. Na segunda secção descreveremos o processo de emissão espontânea no formalismo de Heisenberg, de onde obteremos a Equação que descreve o tempo de decaimento espontâneo. Em seguida (secção 3) calcularemos a distribuição de modos dentro de uma cavidade Fabry-Perot, e encontraremos a Hamiltoniana de interação átomo-campo para nosso caso particular. A partir daí (secção 4) substituiremos a Hamiltoniana de interação nas Equações encontradas segundo o formalismo de Heisenberg e resolveremos a integral do tempo de decaimento por simulação numérica. Na quinta secção descreveremos a configuração do experimento. Finalmente na última secção (secção 6) apresentaremos os resultados obtidos e faremos uma análise dos mesmos, comparando-os com os resultados da simulação.

Este experimento é substancialmente diferente dos trabalhos realizados anteriormente (citados no capítulo 2) devido à dimensão micrométrica da nossa cavidade ($d \leq \lambda_e$), e ao fato de estarmos medindo diretamente a variação temporal da emissão espontânea no domínio do tempo. Os experimentos realizados até então, mediam a variação temporal da emissão espontânea por meio da variação na probabilidade de emissão, ou seja, da intensidade do sinal emitido. A diferença entre os dois métodos de medida se torna clara se lembrarmos que existem dois processos ressonantes envolvidos que afetam a medida da intensidade de emissão espontânea na presença de uma cavidade. Um é a presença da estrutura ressonante, devido a presença de uma cavidade (interferômetro).

Quando um pulso é emitido (sai da cavidade), uma mudança ressonante na intensidade de emissão deve ser detectada, mesmo não havendo variação temporal no decaimento da emissão espontânea. Mesmo numa cavidade laser usual, onde $d \gg \lambda_e/2$ ainda existe um efeito ressonante na intensidade de emissão, porém neste caso o tempo de decaimento da emissão espontânea é igual áquele do espaço livre. O outro processo, é resultante da verdadeira inibição e incremento da emissão espontânea, que só pode ser realizada se a grande maioria dos modos de radiação que interagem com o átomo são confinados pela cavidade e daí então afetados pela ressonância. Como o primeiro efeito, de interferometria, pode mascarar o segundo, de real incremento e inibição da emissão espontânea, o melhor método para verificação do processo da emissão espontânea é através de medidas temporais de emissão espontânea.

O confinamento de modos por meio de contorno plano, só é realizável se a dimensão da cavidade é da ordem do comprimento de onda de emissão λ_e . A fim de verificar uma real variação temporal de emissão espontânea, foi construída uma cavidade do tipo Fabry-Perot com dimensões da ordem do comprimento de onda de emissão do átomo $d \simeq \lambda_e/2$ ($\lambda_e = 0.63\mu m$).

5.1 Influência das dimensões microscópicas da cavidade

O estado de um sistema quanto-mecânico, inicial ou final, dependente do tempo é descrito através da projeção do estado perturbado nos autoestados da Hamiltoniana não perturbada:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}' \quad (5.1)$$

Na teoria da perturbação dependente do tempo, \mathcal{H}' provoca a transição entre os autoestados não perturbados. Desta maneira, a taxa de transição do estado $|i\rangle$ para o $|f\rangle$ resulta:

$$\omega_{if} = \frac{2\pi}{\hbar} [M_{if}]^2 \rho_f \quad (5.2)$$

onde ρ_f é o número de estados finais por unidade de intervalo de energia no espaço de fase em $E = E_f$ e M_{if} é o elemento de matriz de transição. Portanto vemos que a emissão espontânea depende da distribuição de modos determinados por um contorno eletromagnético.

Se um átomo está no estado excitado com energia E_f , existe a probabilidade de ocorrer uma emissão radiativa com o átomo fazendo uma transição para o estado de mais baixa energia E_i . Pela relação quântica de Bohr, a frequência da radiação emitida $\omega/2\pi$ é dada por $\omega\hbar = E_f - E_i$. Se os dois estados do átomo têm elemento de matriz não nulo para o momento de dipolo, então a transição é permitida em primeira ordem, e a taxa de emissão espontânea é dada pela Equação 5.2:

$$\Gamma = \frac{\omega_{if}}{2\pi} = \frac{[\langle f | \mathcal{H}_{ra} | i \rangle]^2 \rho_f}{\hbar^2} \quad (5.3)$$

Onde \mathcal{H}_{ra} é a hamiltoniana de interação radiação-átomo.

Na emissão espontânea não há fótons no estado inicial e apenas um fóton, de vetor de onda \mathbf{k} e direção de polarização $\epsilon_{\mathbf{k}}$, no estado final [1].

No espaço livre a densidade de modos eletromagnéticos é:

$$\rho_0 = \frac{2 \cdot 4\pi\nu^2}{c^3} = 2 \cdot \frac{4\pi}{\lambda_e^2 c} \quad (5.4)$$

onde o 2 vem das duas possíveis polarizações e ν é a frequência de emissão.

Numa cavidade a densidade de modos é dada por:

$$\rho_c = \frac{2}{\Delta\nu V} = \frac{2Q\lambda_e}{cV} \quad (5.5)$$

onde $\Delta\nu = \nu/Q$ é a largura da banda de frequência de ressonância da cavidade, Q o fator de qualidade da cavidade e 2 a degenerescência dos modos [2].

A relação entre as Equações 5.5 e 5.4 nos dá:

$$\Gamma_c = \Gamma_0 \frac{Q\lambda_e^3}{4\pi V} \quad (5.6)$$

onde,

$$\Gamma_0 = \frac{8\pi^2\nu^2}{3\hbar\lambda_e^3\epsilon} \quad (5.7)$$

é a emissão espontânea no espaço livre.

Da Equação 5.6 podemos ver que se o volume da cavidade é da ordem comprimento de onda de emissão ao cubo $V = (\lambda_e/2)^3$ o processo de emissão espontânea é incrementado pelo fator de qualidade da mesma ($\Gamma_c = 2Q\Gamma_0/\pi$). Este fato se verifica quando ao menos

um modo é permitido na cavidade ($d = \lambda_c/2$), e diminui a medida em que o número de modos é aumentado. Fisicamente este fenômeno é interpretado como um incremento na flutuação do campo de vácuo, devido a presença da cavidade, na frequência de ressonância.

Poder-se-ia pensar que tudo seria mais simples se realizássemos uma cavidade na região da rádio frequência, onde havendo um comprimento de onda muito maior que o visível o volume da cavidade seria também muito maior e mais fácil de se operar. O que ocorre é que a taxa de emissão espontânea no espaço livre é menor, quanto maior for o comprimento de onda (ver Equação 5.7), o que resultaria num Γ_0 muito pequeno e conseqüentemente se torna muito difícil de se observar Γ_c .

5.2 Teoria eletrodinâmica quântica da emissão espontânea

Nesta seção desenvolveremos a teoria eletrodinâmica quântica da emissão espontânea numa cavidade na qual o fóton emitido espontaneamente só poderá ocupar um único modo permitido pela cavidade. Seguiremos o formalismo de Heisenberg, onde os operadores são dependentes do tempo, e daí obteremos a variação temporal do número de fótons ocupados no modo k . Consideraremos que a emissão espontânea é resultante do acoplamento entre o átomo excitado e a flutuação do campo de vácuo da eletrodinâmica quântica, onde o campo de vácuo excita o átomo a emitir. Estamos interessados na dinâmica de detecção, já que experimentalmente medimos a variação do tempo de decaimento molecular por meio de uma fotomultiplicadora. Nossa finalidade é resolver a equação de Heisenberg para o operador do campo ($\hat{O}_H = a^\dagger a$), que nos dá o número de fótons emitidos, e ver como ele evolui no tempo.

Na representação de Heisenberg, a dinâmica de acoplamento do campo com o átomo, é expressa pela Hamiltoniana não relativística escrita em termos do operador deslocamento atômico dependente do tempo ($\pi^\dagger(t)\pi(t)$) e operadores do campo ($a_{\mathbf{k}}^\dagger(t)a_{\mathbf{k}}(t)$) pertencentes ao único modo permitido na cavidade k . Utilizando a aproximação de onda girante, uma vez que a interação é fraca e consideramos que os operadores trocam uma unidade de excitação na interação, a Hamiltoniana será:

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}} &= \hat{\mathcal{H}}_E + \hat{\mathcal{H}}_R + \hat{\mathcal{H}}_{DE} \\ &= \hbar\omega_0 \hat{\pi}^\dagger \hat{\pi} + \sum_{ks} \hbar\omega_k \hat{a}_{ks}^\dagger \hat{a}_{ks} + i \sum_{ks} \hbar g_k [f_{ks} \hat{\pi}^\dagger \hat{a}_{ks} - f_{ks}^\dagger \hat{a}_{ks}^\dagger \hat{\pi}] \end{aligned} \quad (5.8)$$

sendo $\hat{\mathcal{H}}_E$ a Hamiltoniana atômica, $\hat{\mathcal{H}}_R$ a Hamiltoniana radiativa e $\hat{\mathcal{H}}_{DE}$ a Hamiltoniana de interação. Onde:

$\hbar\omega_0$ = energia de transição atômica,

$\hbar\omega_k$ = energia de transição da radiação,

$g_k = (\omega_k/2\epsilon_0\hbar V)^{1/2} \epsilon_{ks} \cdot \mu$ = coeficiente de acoplamento da interação radiação - átomo, onde ϵ_{ks} é o vetor polarização do campo e μ é o vetor dipolo elétrico,

f_{ks} = é o conjunto completo das funções dos modos permitidos pela cavidade na qual a radiação é quantizada. Numa cavidade cúbica infinita $f_{ks} = \exp(ik \cdot r)$ [3].

Na representação de Heisenberg a equação do movimento dos operadores são definidas por [4]:

$$i\hbar \frac{d}{dt} \hat{O}_H(t) = [\hat{O}_H(t), \hat{\mathcal{H}}] \quad (5.9)$$

Por meio das Equações 5.8 e 5.9 se chega a equação que expressa a conservação da energia:

$$\frac{d}{dt} \pi^\dagger \pi = \frac{-d}{dt} \sum_k a_k^\dagger a_k \quad (5.10)$$

onde podemos ver que a evolução temporal do operador atômico depende dos modos disponíveis para o fóton emitido ocupar (\sum_k). Mais uma vez é mostrado que a taxa de decaimento atômico depende substancialmente da distribuição de modos, portanto é influenciada pela presença da cavidade.

Seguindo o mesmo formalismo apresentado por Loudon [4], ou seja utilizando o método de soluções iterativas da equação do movimento, se chega a equação da taxa de decaimento da emissão espontânea, Equação 5.174 do Loudon [4]. Aplicando a Equação 5.10 na Equação 5.174 do Loudon obtemos:

$$\sum_k \frac{\langle 0[a_k^\dagger(t)a(t)_k]0 \rangle}{dt} = 2\pi \sum_{ks} [g_{ks} f_{ks}]^2 \langle 0[a_k^\dagger(t)a(t)_k]0 \rangle \delta(\omega_k - \omega_0). \quad (5.11)$$

Onde o somatório é sobre todos os modos disponíveis (k) e sob as duas polarizações possíveis (s). Esta equação mostra que partindo com o campo de radiação no estado de vácuo e o átomo excitado, a emissão da radiação decai a uma taxa $\sum_{ks} 2\pi [g_{ks} f_{ks}]^2$.

5.3 Cálculo da taxa de emissão espontânea aplicando as condições de contorno eletromagnéticas

Nesta secção calcularemos a distribuição dos modos de emissão de uma molécula, quando esta é localizada dentro de um interferômetro Fabry - Perot. Neste caso o Fabry - Perot seleciona os modos que o fóton emitido pode ocupar, antes da sua emissão. Portanto o ponto de partida do vetor de onda de emissão é a posição da molécula dentro da cavidade (z).

Na Figura 5.1 fazemos um esquema da cavidade. A cavidade é constituída por dois espelhos com refletividades r_1 e r_2 e transmissividade t_1 e t_2 . Os espelhos são separados por uma distância d e entre eles é posta uma molécula excitada, ao centro da cavidade ($z = d/2$). Para facilitar os cálculos, em vez de considerarmos que as ondas emitidas se propagam a partir da posição da molécula em relação ao espelho, consideraremos que as ondas vem do infinito ($\pm\infty$), e que são ondas planas. Esta aproximação pode ser feita uma vez que o tempo de formação do pulso de emissão é longo se comparado com o tempo de oscilação do dipolo. Como a emissão que parte de dentro da cavidade é espontânea, ela tem iguais probabilidades de ocorrer em todas as direções. Para facilitar os cálculos dividiremos em duas direções k_+ e k_- que serão integradas, portanto dividiremos o problema em duas partes, cada uma referente a uma direção de emissão.

O vetor de propagação k_- resulta da mudança de direção sofrida por k_+ ao refletir no espelho. Os vetores de propagação são definidos abaixo,

$$k_+ = k(\sin \theta \cos \phi, \sin \theta \sin \phi, \cos \theta) \quad (5.12)$$

$$k_- = k(\sin \theta \cos \phi, \sin \theta \sin \phi, -\cos \theta) \quad (5.13)$$

onde $0 \leq \theta \leq \pi/2$.

Consideraremos o campo elétrico linearmente polarizado, onde para cada direção de propagação o vetor elétrico tem iguais probabilidades de ser polarizado paralelamente ou perpendicularmente em relação ao plano de incidência no espelho (Figura 5.2), teremos as seguintes contribuições do vetor elétrico:

$$\varepsilon_{k_+}(1) = \varepsilon_{k_-}(1) = (\sin \phi, -\cos \phi, 0) \quad (5.14)$$

$$\varepsilon_{k_+}(2) = (\cos \theta \cos \phi, \cos \theta \sin \phi, -\sin \theta) \quad (5.15)$$

$$\varepsilon_{k_-}(2) = (\cos \theta \cos \phi, \cos \theta \sin \phi, \sin \theta) \quad (5.16)$$

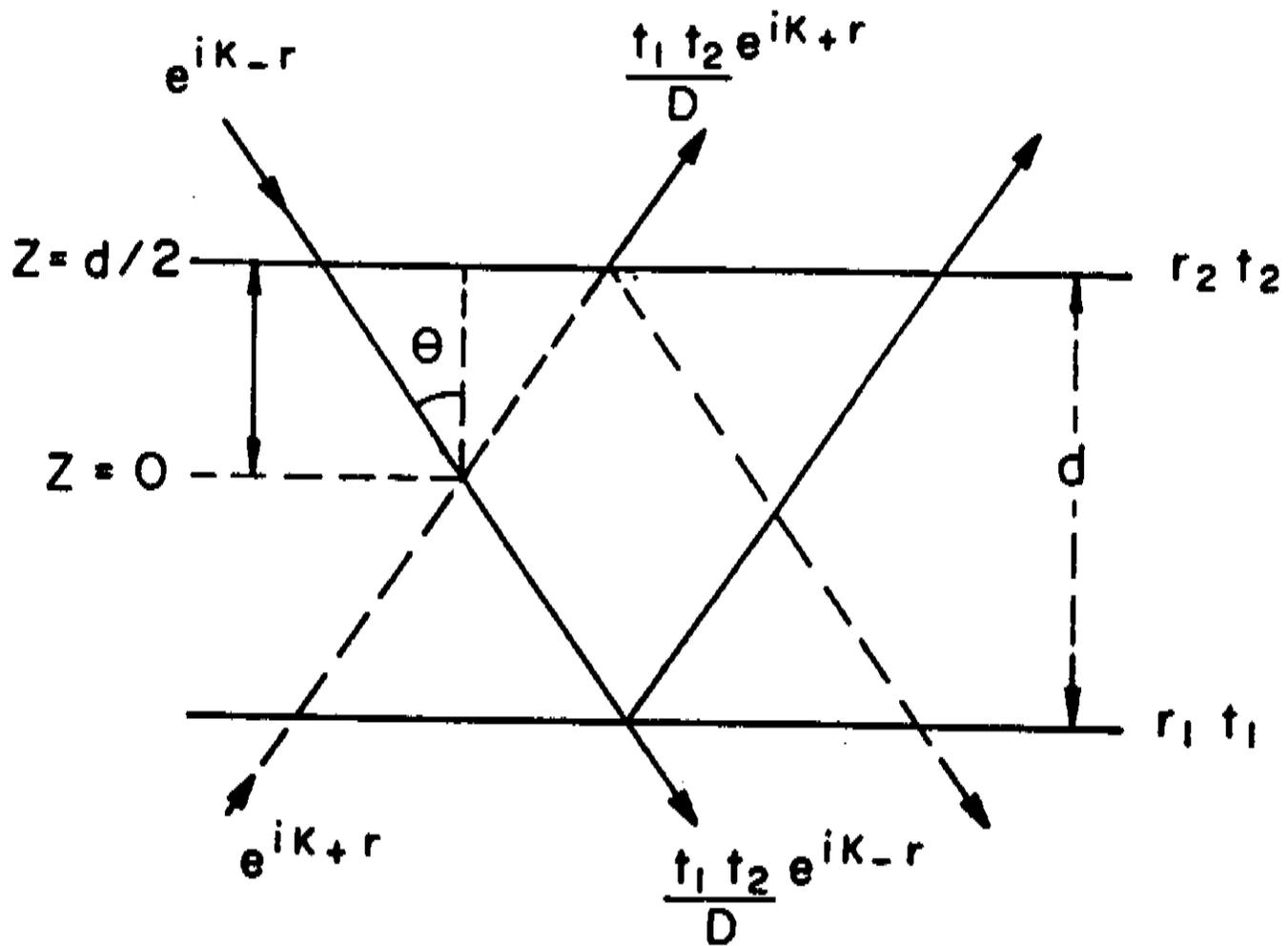


Figura 5.1: Distribuição de modos numa cavidade Fabry - Perot, onde os vetores de onda partem da posição da molécula em relação ao espelho. A termos de cálculo a emissão é dividida em duas direções, já que ela tem iguais probabilidades de ocorrer em qualquer uma das duas. Dividimos também o vetor de onda em dois k_+ para aquele que se propaga na direção de $-\infty \rightarrow +\infty$ e k_- para aqueles na direção contrária.

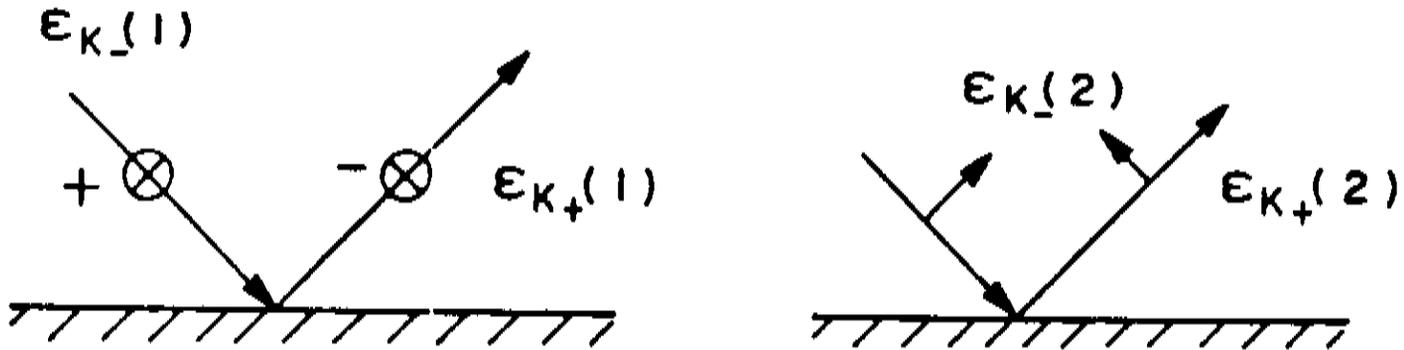


Figura 5.2: Polarização dos vetores de onda incidentes e refletidos.

Nosso referencial, o ponto de onde partem as ondas, é o centro do espelho (a posição da molécula em relação aos espelhos). Superpondo as ondas que vem da direção $-\infty$, e lembrando que cada uma delas se propagam em duas direções opostas (k_+ e k_-), elas contribuirão para a amplitude do campo dentro da cavidade com:

$$f_{k_+}^{-\infty} = \frac{t_1 e^{ik_+ \cdot r}}{D} \quad (5.17)$$

$$f_{k_-}^{-\infty} = \frac{t_1 r_2 e^{ik_- \cdot r + ikd \cos \theta + \varphi_2}}{D} \quad (5.18)$$

onde:

$$\begin{aligned} r &= [r]e^{i\varphi} \\ t &= [t]e^{i\varphi} \\ 1 &= [r]^2 + [t]^2 \\ D &= 1 - r_1 r_2 e^{2ikd \cos \theta + \varphi_1 + \varphi_2} \\ &= (1 - r_1 r_2)^2 [1 + F \sin^2(kd \cos \theta + \varphi_1 + \varphi_2)] \\ F &= \frac{(2\mathcal{F})^2}{\pi} \end{aligned}$$

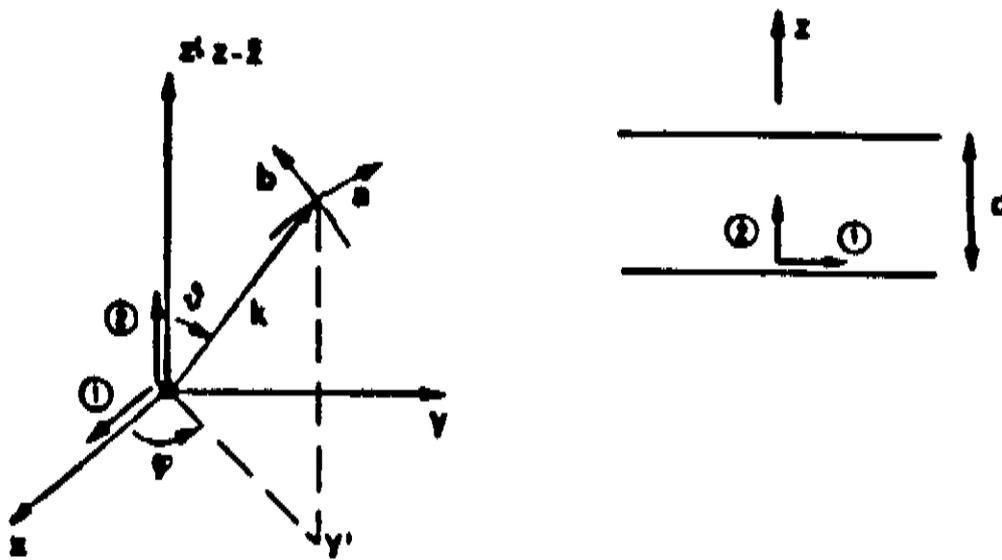


Figura 5.3: Orientação do dipolo atômico paralelo (1) e perpendicular (2) a x, em relação ao sistema de coordenadas.

(5.19)

onde D é a Função de Airy, \mathcal{F} é a finesse da cavidade, φ_i ($i = 1, 2$) é a mudança de fase sofrida durante as várias reflexões no espelho dielétrico de multiplas camadas utilizados na nossa cavidade.

Superpondo as ondas que vem de $+\infty$ e também levando em conta as duas contribuições (k_+ e k_-), teremos a seguinte distribuição de modos dentro da cavidade:

$$f_{k_-}^{+\infty} = \frac{t_2 e^{ik_- \cdot r}}{D} \quad (5.20)$$

$$f_{k_+}^{+\infty} = \frac{t_2 r_1 e^{ik_+ \cdot r + ikd \cos \theta + \varphi_1}}{D} \quad (5.21)$$

Por sua vez o dipolo atômico pode ter qualquer orientação. Nos consideraremos duas orientações, paralelamente ou perpendicularmente ao plano de incidência no espelho (Figura 5.3). Daqui por diante denominaremos de paralelo o dipolo orientado paralelamente ao eixo x e o inverso será denominado de perpendicular. O momento de dipolo atômico contribue com $\mu = \mu(\sin \alpha, 0, \cos \alpha)$.

Como transições reais só são possíveis para processos onde a energia é removida do campo eletromagnético, só a componente de destruição de fóton ($\hat{a}_{\mathbf{k}}$) da Hamiltoniana de interação contribui. Levando em conta as quatro possíveis distribuições de modos e as duas direções de polarização, obtemos a seguinte expressão:

$$\begin{aligned} \sum_{k,s} (g_{ks} f_{ks})^2 &= \sum_{k,s} \left(\frac{\hbar \omega_k}{2\epsilon_0 V} \right) \frac{1}{D^2} \times \\ &\quad \{ [\epsilon_{\mathbf{k}_+}(s) \cdot \mu t_1 e^{i\mathbf{k}_+ \cdot \mathbf{r}_0} + \epsilon_{\mathbf{k}_-}(s) \cdot \mu t_1 r_2 e^{i\mathbf{k}_- \cdot \mathbf{r}_0 + ikd \cos \theta + \phi_2}]^2 + \\ &\quad [\epsilon_{\mathbf{k}_-}(s) \cdot \mu t_2 e^{i\mathbf{k}_- \cdot \mathbf{r}_0} + \epsilon_{\mathbf{k}_+}(s) \cdot \mu t_2 r_1 e^{i\mathbf{k}_+ \cdot \mathbf{r}_0 + ikd \cos \theta + \phi_1}]^2 \} + h.c. \end{aligned} \quad (5.22)$$

Onde V é o volume da cavidade e ω_k a frequência do modo. O primeiro termo resulta da contribuição do vetor de onda vindo de $-\infty$ e o segundo do vetor de onda vindo de $+\infty$.

Considerando agora que a diferença de fase entre os dois vetores de onda é $(\mathbf{k}_+ - \mathbf{k}_-) \cdot \mathbf{r}_0 = 2kz \cos \theta$ [5]. Considerando também que o dipolo é paralelo ao eixo x (Figura 5.3) ou seja:

$$\begin{aligned} \epsilon_{\mathbf{k}_+}(1) \cdot \mu &= \epsilon_{\mathbf{k}_-}(1) \cdot \mu = \mu \sin \phi \\ \epsilon_{\mathbf{k}_+}(2) \cdot \mu &= \epsilon_{\mathbf{k}_-}(2) \cdot \mu = \mu \cos \theta \cos \phi. \end{aligned} \quad (5.23)$$

obtemos a taxa de emissão espontânea para o dipolo orientado *paralelamente*:

$$\begin{aligned} \Gamma_1 = \frac{1}{\tau_1} &= \frac{2\pi}{\hbar^2} \sum_k \frac{\hbar \omega_k}{2V\epsilon_0} \frac{1}{D^2} \times \\ &\quad \{ [t_1]^2 [1 + r_2 e^{ik(d-2z_0) \cos \theta + \phi_2}]^2 (\sin^2 \phi + \cos^2 \theta \cos^2 \phi) + \\ &\quad [t_2]^2 [1 + r_1 e^{ik(d+2z_0) \cos \theta + \phi_1}]^2 (\sin^2 \phi + \cos^2 \theta \cos^2 \phi) \} \times \\ &\quad \delta(\omega_k - \omega_0) \end{aligned} \quad (5.24)$$

Se o dipolo é *perpendicular* ao eixo x (paralelo a z na Figura 5.3):

$$\begin{aligned} \epsilon_{\mathbf{k}_+}(1) \cdot \mu &= \epsilon_{\mathbf{k}_-}(1) \cdot \mu = 0 \\ \epsilon_{\mathbf{k}_+}(2) \cdot \mu &= \epsilon_{\mathbf{k}_-}(2) \cdot \mu = -\mu \sin \theta. \end{aligned} \quad (5.25)$$

Quando o dipolo é orientado *perpendicularmente* ao eixo x a taxa de emissão espontânea será:

$$\frac{1}{\tau_2} = \Gamma_2 = \frac{2\pi}{\hbar^2} \sum_k \frac{\hbar\omega_k}{2V\epsilon_0} \frac{1}{D^2} \sin^2 \theta \times \\ \{ [t_1]^2 [1 + r_2 e^{ik(d-2z_0)\cos\theta + \varphi_2}]^2 + \\ [t_2]^2 [1 + r_1 e^{ik(d+2z_0)\cos\theta + \varphi_1}]^2 \} \times \delta(\omega_k - \omega_0) \quad (5.26)$$

Fazendo a aproximação que $kd \ll 1$ (quando $d \rightarrow 0$), e considerando que $\theta = \pi/4$. Por meio das Equações 5.24, 5.26, 5.23 e 5.25, obtemos a seguinte aproximação:

$\Gamma_1 \propto (1 + kd)$ = dipolo paralelo a normal ao espelho, e

$\Gamma_2 \propto (1 - kd)$ = dipolo perpendicular.

Desta aproximação se percebe que a taxa de emissão para o dipolo perpendicular é mínima absoluta quando $d=0$ e máxima quando $d \simeq \lambda_e$. Enquanto que para o dipolo paralelo a taxa de emissão é máxima absoluta quando $d=0$.

Este resultado parece ser contraditório, uma vez que o dipolo orientado perpendicularmente em relação ao eixo x não deveria sentir efeito ressonante. Este fato pode ser interpretado da seguinte maneira. Como o dipolo atômico é posto na frente do espelho, o campo elétrico é obtido através da superposição da onda incidente com a refletida (Figura 5.1). Deste modo, a distribuição angular da radiação é fortemente dependente da distância d em relação ao espelho e da orientação do dipolo. Se o dipolo é paralelo em relação a x , a onda incidente e a refletida têm a mesma fase e ocorre uma interferência construtiva. Se invés, o dipolo é perpendicular, a interferência é destrutiva. Quando $d \rightarrow 0$, não há mais reflexão nos espelhos, portanto a interferência que era sempre destrutiva para o dipolo perpendicular não ocorre e sua emissão é máxima [6.7]¹. Portanto na condição onde $d \rightarrow 0$, o tempo de vida da emissão espontânea é máximo para o dipolo orientado perpendicularmente, e mínimo (aproximadamente a metade daquele no espaço livre) para o orientado paralelamente.

Para calcular a taxa de emissão espontânea, transformaremos o somatório numa integral sobre os vetores de onda, uma vez que a princípio os fótons emitidos espontaneamente podem ocupar todos os modos possíveis:

$$\sum_k = \frac{V}{(2\pi)^3} \int d^3k \quad (5.27) \\ = \frac{V}{(2\pi)^3} \int_0^\infty \int_0^{\frac{\pi}{2}} \int_0^{2\pi} dk d\theta d\phi k^2 \sin \theta$$

¹ Nesta condição se pode formar um estado cooperativo entre os dipolos orientados paralelamente, e como $d < \lambda_e$ pode resultar numa superradiância [8]

O tempo de decaimento da emissão espontânea, derivada na secção anterior pela Equação 5.11, para o dipolo paralelo será:

$$\begin{aligned}
 \Gamma_1 = \frac{1}{\tau_1} &= \frac{\pi}{\epsilon_0 \hbar V} \frac{V}{(2\pi)^3} \int_0^\infty \int_0^{\frac{\pi}{2}} \int_0^{2\pi} dk d\theta d\phi k^2 \sin \theta \frac{1}{D^2} \mu^2 \\
 &\quad \{ [t_1]^2 [1 + r_2 e^{ik(d-2z_0) \cos \theta + \varphi_2}]^2 (\sin^2 \phi + \cos^2 \theta \cos^2 \phi) + \\
 &\quad [t_2]^2 [1 + r_1 e^{ik(d+2z_0) \cos \theta + \varphi_1}]^2 (\sin^2 \phi + \cos^2 \theta \cos^2 \phi) \} \times \\
 &\quad \delta(k - k_0) \\
 &= \frac{3}{8} (1 - r_1 r_2)^2 \Gamma_0 \int_{\frac{\pi}{2}}^\pi d\theta \frac{\sin \theta (1 + \cos^2 \theta)}{[1 + F \sin^2(kd \cos \theta + \varphi_1 + \varphi_2)]} \times \\
 &\quad \{ [t_1]^2 [1 + r_2 e^{ik(d-2z_0) \cos \theta + \varphi_2}]^2 + \\
 &\quad [t_2]^2 [1 + r_1 e^{ik(d+2z_0) \cos \theta + \varphi_1}]^2 \} \tag{5.28}
 \end{aligned}$$

Onde:

$$\Gamma_0 = \frac{\kappa_0^3 \mu^2}{3\pi \epsilon_0 \hbar}$$

é o tempo de vida da emissão espontânea no espaço livre (coeficiente A de Einstein).
 E $F = 4[r_1 r_2] / (1 - r_1 r_2)^2$ é proporcional a *finesse* $\mathcal{F} = \pi \sqrt{F} / 2$.

Analogamente, para o dipolo *perpendicular* (paralelo a z) a taxa de emissão espontânea será:

$$\Gamma_2 = \frac{1}{\tau_2} = \frac{3}{4}(1 - r_1 r_2)^2 \Gamma_0 \int_0^{\frac{\pi}{2}} d\theta \sin \theta \sin^2 \theta \frac{\{[t_1]^2 [1 - r_2 e^{ik(d-2z_0) \cos \theta + \varphi_2}]^2 + [t_2]^2 [1 - r_1 e^{ik(d+2z_0) \cos \theta + \varphi_1}]^2\}}{[1 + F \sin^2(kd \cos \theta + \varphi_1 + \varphi_2)]} \quad (5.29)$$

As integrais 5.29 e 5.28 nos mostram mais uma vez [2,9] que a taxa de emissão espontânea é proporcional a polarização do dipolo atômico, a distância da molécula em relação aos espelhos [6,10], à fase devido a reflexão dos espelhos dielétricos e a seleção de modos disponíveis para a emissão devido a presença da cavidade Fabry - Perot.

A fim de prevermos o comportamento do nosso experimento, realizamos uma simulação numérica destas equações para certas condições de contorno.

Nas simulações realizadas a seguir, utilizamos os seguintes valores experimentais:

$$F=15$$

$\phi_1 = \phi_2 = \pi =$ fase devido as multiplas reflexões no espelho multicamadas

$[r_1]^2 = \mathcal{R} = 0.98$ e $[r_2]^2 = \mathcal{R} = 0.96$, para as reflexões dos espelhos.

Na Figura 5.4 mostramos a simulação do comportamento da taxa de emissão normalizada (Γ/Γ_0) em relação à distância entre os espelhos (d). Variamos $0 \leq d \leq \lambda_e/2$ onde $\lambda_e/2 = 0.315 \mu m$. O ângulo θ mostrado na Figura 5.3, determina as possíveis direções de emissão. Nesta simulação consideramos que a molécula pode emitir em todas as direções já que a emissão é espontânea, as integrações 5.28 e 5.29 têm como limite $0 \leq \theta \leq \pi/2$. A curva tracejada representa a taxa de emissão do dipolo orientado paralelamente ao eixo x (Γ_1) (Figura 5.3), a pontilhada o dipolo orientado perpendicularmente em relação a x (Γ_2), e a inteira a taxa de emissão total ($\Gamma_T = [2\Gamma_1 + \Gamma_2]/3$).

Na Figura 5.4 nos observamos que quando $d \rightarrow 0$ a taxa de emissão do dipolo orientado perpendicularmente Γ_2 é maior que a taxa de emissão do dipolo orientado paralelamente (Γ_1) quando $d = \lambda_e/2$. A princípio o dipolo perpendicular não deveria sentir o efeito de ressonância da cavidade, o que torna este resultado inesperado. Este fato resulta de dois efeitos combinados:

1. Como mostrado na aproximação para $kd \ll 1$, quando $d \rightarrow 0$ a taxa de emissão para o dipolo orientado paralelamente deve apresentar um valor máximo absoluto em relação a sua emissão quando $d > 0$.

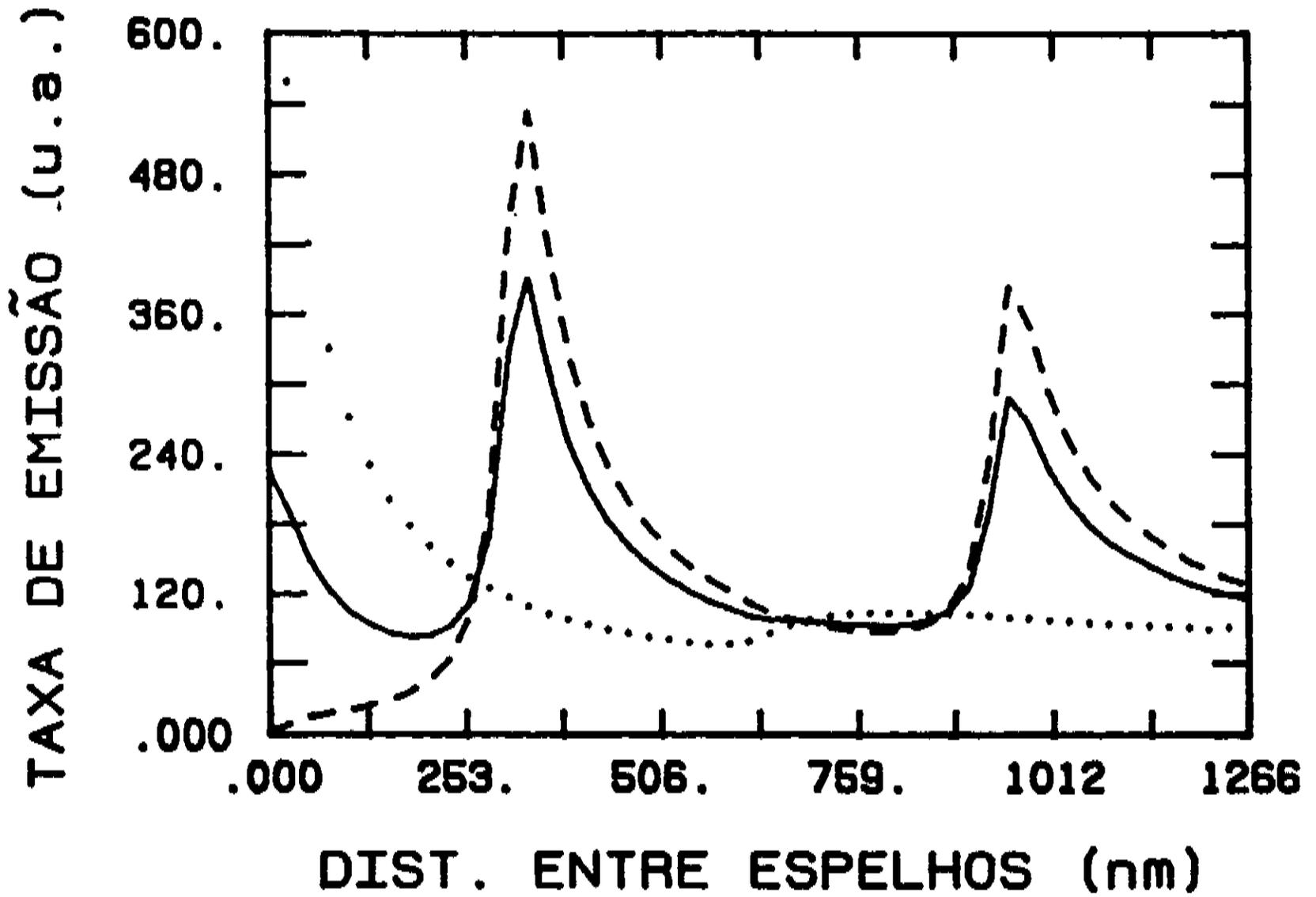


Figura 5.4: Variação da taxa de emissão espontânea normalizada (Γ_c/Γ_0) em relação a distância entre os espelhos. A curva tracejada representa a taxa de emissão do dipolo orientado paralelamente ao eixo x (Γ_1), a pontilhada o dipolo orientado perpendicularmente em relação a x (Γ_2), e a inteira a taxa de emissão total ($\Gamma_T = [2\Gamma_1 + \Gamma_2]/3$). A taxa de emissão é integrada em todas as possíveis direções $0 \leq \theta \leq \pi/2$

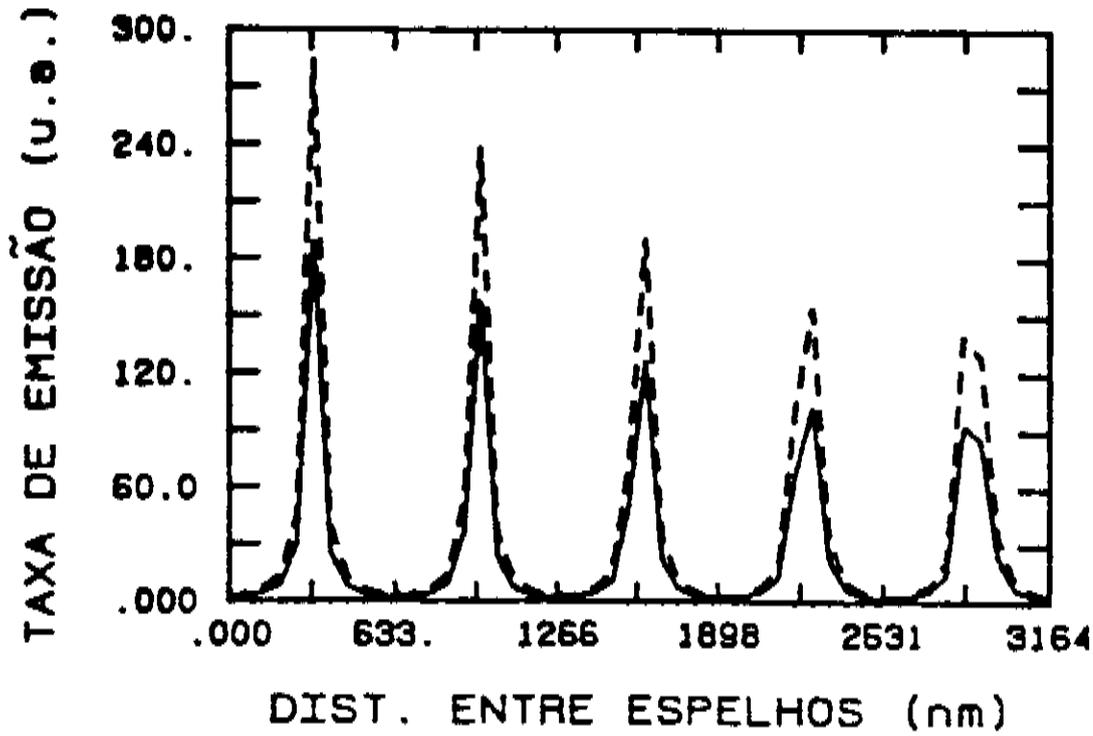


Figura 5.5: Variação da taxa de emissão em relação a distância entre espelhos d , quando os átomos só podem emitir numa única direção. Observamos que $\Gamma_1 \gg \Gamma_2$ em $d = \lambda_c/2$.

2. O intervalo de integração que escolhemos, $0 \leq \theta \leq \pi/2$, permite ao dipolo emitir em todas as direções, inclusive a transversal ($\theta = \pi/2$). Nesta direção a emissão do dipolo perpendicular é permitida enquanto que a do dipolo paralelo é inibida. Quando $d \simeq 0$ todos os átomos só podem emitir no modo transversal, pois não há modos longitudinais disponíveis. Fora isso, como mostrado no item acima, a emissão do dipolo perpendicular é máxima nesta condição, o que resulta numa taxa de emissão maior para esta orientação de dipolo.

Quando $d = \lambda_c/2$, só um modo com vetor k paralelo ao eixo da cavidade, é permitido. Este modo possui divergência angular $\theta \sim \frac{1}{\sqrt{F}} = 0.18$. Portanto simulando que os átomos só podem emitir nesta direção, ou seja, integrando apenas nesta direção ($0 \leq \theta \leq 0.18$), obtemos a Figura 5.5.

Esta Figura nos mostra que quando os átomos só podem emitir numa determinada direção, a taxa de emissão é muito maior para os átomos que sentem o efeito de confinamento de modos, como esperado. Desta Figura vemos que: quanto maior a *finesse*, mais restrita a uma única direção resulta a emissão dos átomos excitados, portanto maior será a taxa de emissão quando $d = \lambda_c/2$.

Na Figura 5.6 mostramos a variação no tempo de decaimento da emissão espontânea em relação a distância entre espelhos d . Consideramos que o átomo pode emitir em

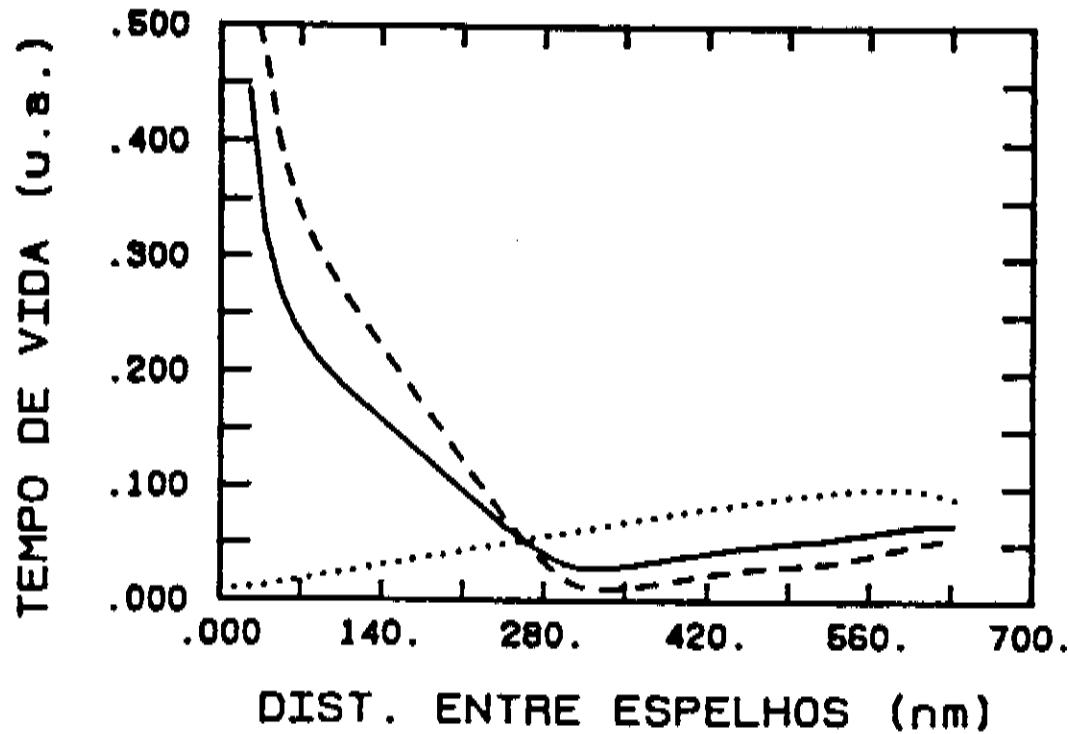


Figura 5.6: Variação do tempo de decaimento da emissão espontânea em relação a distância entre espelhos d , quando os átomos podem emitir em todas as direções. Observamos que $\tau_1 \gg \tau_2$ em $d \simeq 0$, o que confirma o efeito de inibição

todas as direções (integramos de $0 \leq \theta \leq \pi/2$). Mesmo assim, observamos um forte efeito de inibição da emissão. Vemos que o tempo de decaimento do dipolo paralelo $\tau_1 \rightarrow \infty$ quando $d \rightarrow 0$. Enquanto que quando $d=0$ o dipolo perpendicular decai num tempo mais curto que quando no espaço livre. Estes resultados concordam com aqueles apresentados em [6,7,9].

Na Figura 5.7 restringimos a direção da emissão fazendo $0 \leq \theta \leq 0.18$. Nesta Figura só graficamos o tempo de vida do dipolo paralelo. O dipolo orientado perpendicularmente não pode emitir nesta direção, portanto a probabilidade que a emissão ocorra é zero (taxa de emissão é igual a zero), e o seu tempo de vida tende a infinito.

Poderíamos estranhar o fato da curva não ser periódica em $d=n\lambda_e/2$, como se esperaria de um interferômetro Fabry-Perot. Como mostram as equações 5.28 e 5.29 a probabilidade de emissão não é oscilante somente devido a função de Airy, ela depende de varios outros parâmetros tais como fase, distância e refletividade dos espelhos e da posição da molécula em relação a eles; portanto sua periodicidade depende da combinação de todos estes fatores. Se a diferença de fase introduzida pelos espelhos é $\phi_1 = \phi_2 = \pi/2$, por exemplo, a Figura 5.6 nos mostra que ela é periódica com $n\lambda_e/2$.

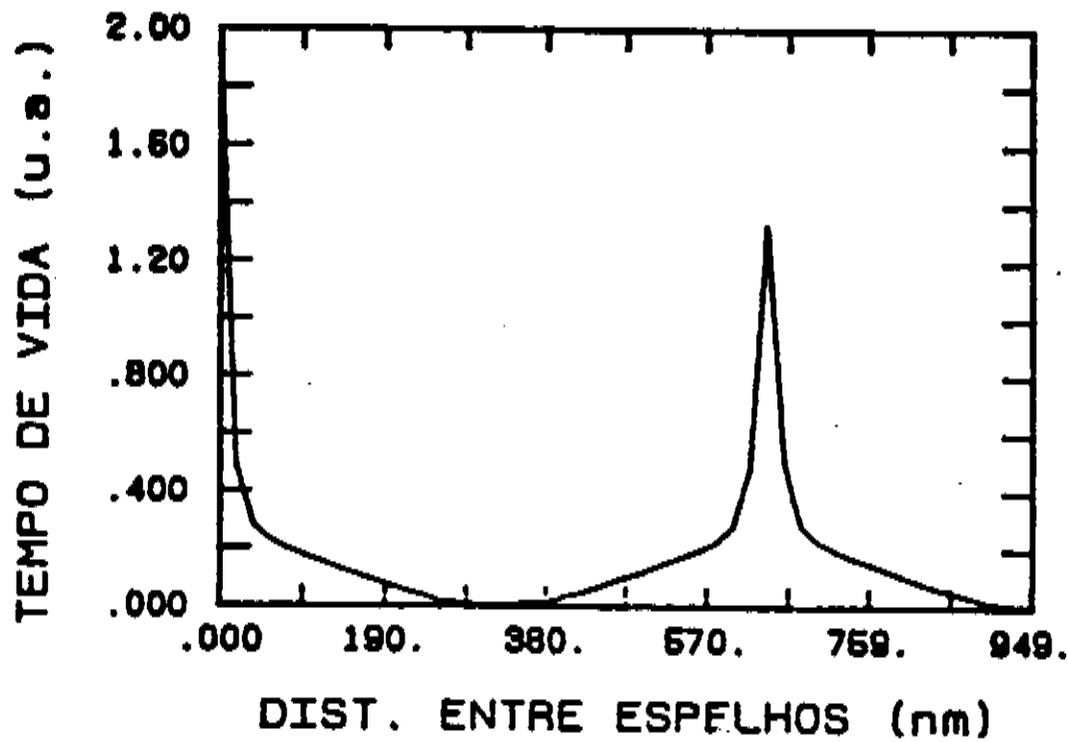


Figura 5.7: Variação do tempo de decaimento da emissão espontânea do dipolo orientado paralelamente em relação a distância entre espelhos d , quando os átomos são restritos a uma determinada direção ($0 \leq \theta \leq 0.18$).

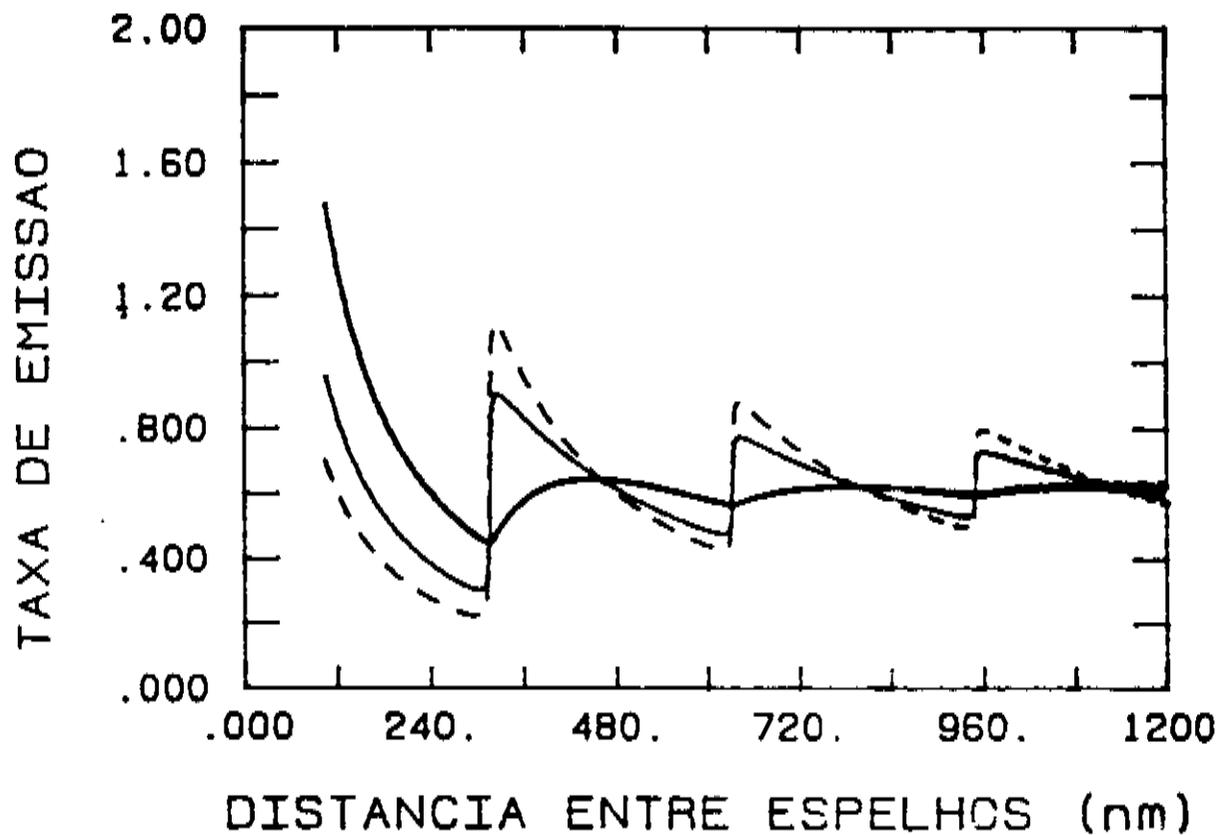


Figura 5.8: Variação da taxa de emissão em relação a distância entre espelhos d quando a diferença de fase introduzida pelos espelhos é $\phi_1 = \phi_2 = \pi/2$. Neste caso a curva é periódica em $d = n\lambda_e/2$.

que levantava o feixe deveria ser feito de modo a conserva-la. Esta montagem era constituído de um prisma que invertia de 90° a direção do feixe e de um espelho dicróico que refletia o feixe verde ($\lambda_b = 0.53\mu m$) na direção da microcavidade, e transmitia o sinal infra-vermelho em ($\lambda = 1.06\mu m$); o que era cômodo uma vez que utilizavamos o feixe no infra-vermelho como sinal de "trigger". O sinal de infra-vermelho era detectado por um foto diodo rápido (IT modelo TF1850), tempo de saída 100 ps. Entre a cavidade e o filtro havia ainda um polarizador que selecionava o feixe polarizado perpendicularmente ao plano de incidência. Após ser selecionada através do polarizador, a radiação incide no espelho formando um ângulo θ_b em relação à normal do espelho. Esta radiação de excitação é transmitida através do espelho de ingresso e refletida pelo espelho de saída, formando assim as franjas de interferência, segundo a teoria de Wiener descrita na Sec 4.5. Como explicado nesta secção ao variarmos o ângulo θ , selecionávamos a posição das moléculas excitadas em relação aos espelhos. Observamos que quando $\theta = 48^\circ$, excitamos as moléculas localizadas em $z = \lambda_e/4$, há um máximo de emissão. Este máximo ocorre devido a superposição entre a distribuição das moléculas excitadas pelo método de Wiener e a auto-interferência do campo de vácuo devido a presença do espelho. A radiação de florescência da molécula é transmitida parcialmente através do espelho de saída e revelada por meio do instrumento de medida.

O sistema de medida é apresentado na Figura 5.9. Este sistema é constituído de um cabo de fibra óptica (secção 1 mm) o qual guia a radiação transmitida pela cavidade até o fotocatodo da fotomultiplicadora (Quantacom C 31034A da RCA, ganho 10^6 para $\lambda_e = 0.63\mu$ e tempo de resposta de 1.5ns). Antes de entrar no fotocatodo, a radiação passa por dois filtros interferenciais (da Oriel) centrados em $\lambda_e = 0.63\mu$ o que resulta numa banda passante $\Delta\lambda_e = 8\text{Å}$. Com o auxílio do filtro, mesmo perdendo em sinal ganhavamos no incremento do efeito, pois selecionamos ainda mais a frequência de emissão.

O sinal resultante da fotomultiplicadora é enviado para o sistema da LeCroy formado por um sistema para aquisição de dados, um digitador da forma de onda (Le Croy modelo 6880, 1.3GHz de largura de faixa) para detecção e o software "Waveform catalyst" também da LeCroy (modelo 6900) para memorização do sinal por meio de um microcomputador. Com este sistema cada sinal vinha discretizado em 10016 pontos, que são registrados em intervalos de até 742 ps numa frequência de repetição de 1HZ. O sinal era registrado por meio de uma impressora. Por meio deste sistema obtinhamos para cada pulso emitido a sua forma tempo-al detalhada.

Devido à sensibilidade da microcavidade, como discutido no Cap.3, qualquer pequeno detalhe influenciava no efeito de incremento da emissão espontânea. Note bem que quanto à inibição da emissão espontânea nenhum efeito externo jogava a favor, uma vez que se não estavamos em inibição causada por ausência de modos disponíveis para os

fótons ocuparem, o tempo de vida que poderíamos obter era no máximo aquele do espaço livre. Mas para sermos seguros da nossa situação de apenas um modo ($\lambda_e = 0.63\mu m$) presente na cavidade, como sabíamos que nesta condição o tempo de vida da emissão espontânea é um pouco menor, ou igual, àquele do espaço livre, partíamos da situação de incremento e daí encurtavamos a cavidade até que $d < \lambda_e/2$.

O alinhamento da cavidade era regulado por meio da visualização dos anéis transmitidos pela cavidade com ajuda do laser de HeNe, conforme descrito na secção 4.1 (Figura 4.3). Observamos que quando $d < \lambda_e$ a cavidade era particularmente estável devido a tensão superficial gerada pela solução de corante. Para $d < \lambda_e/2$ ocorria a eliminação dos modos na cavidade. Esta cavidade pode ser considerada como sendo infinita, uma vez a distância entre os espelhos ($d \simeq 0.315\mu m$) é muito menor que o diâmetro dos espelhos ($L=3$ cm). Mesmo assim sempre existe um pouco de propagação do tipo “guia de onda” paralela aos espelhos, e com polarização ortogonal a eles. Estes modos não são afetados pela ressonância da cavidade (pois a cavidade seleciona a direção de emissão) e sua emissão mostrou ser bem fraca, o que concorda com os dados teóricos apresentados pela simulação mostrada na secção anterior. As medidas eram realizadas variando lentamente, na frequência do laser (1Hz), a distância entre os espelhos, através do PZT; e registrando para cada variação de d , ou seja para cada pulso laser de bombeio, o sinal emitido.

Vários fatores dificultavam a obtenção das medidas nas condições ideais, tais como:

1. Vibrações devido ao fluxo do meio ativo, ou de fatores externos.
2. Não homogeneidade da solução, ou mesmo do fluxo (presença de bolhas de ar).
3. Como a frequência de repetição do laser de bombeio era de 1 Hz, ao movermos o PZT a cavidade deveria passar por $d = \lambda_e/2$ no exato momento em que chegava o pulso de bombeio.
4. Instabilidade na intensidade do laser de bombeio, que ao aumentar podiam excitar as moléculas a emitirem estimuladamente.

Devido a estes fatores, para estarmos seguros de que as condições experimentais eram ideais, registravamos uma sequência de 68 pulsos. Estes pulsos eram selecionados de modo que na situação de incremento da emissão espontânea, sua duração deveria ser maior que 2ns e menor que 14 ns e a intensidade deveria se reproduzir sem grandes variações. Em situação de inibição, a duração do pulso deveria ser maior que 14 ns.

Os dados das Figuras 5.11 e 5.12 foram selecionados da maneira descrita acima. Estas Figuras mostram a evidência experimental da variação do tempo de vida da emissão espontânea devido a sintonia da cavidade com a frequência de emissão. A Figura 5.10 mostra o tempo de vida da emissão espontânea no espaço livre.

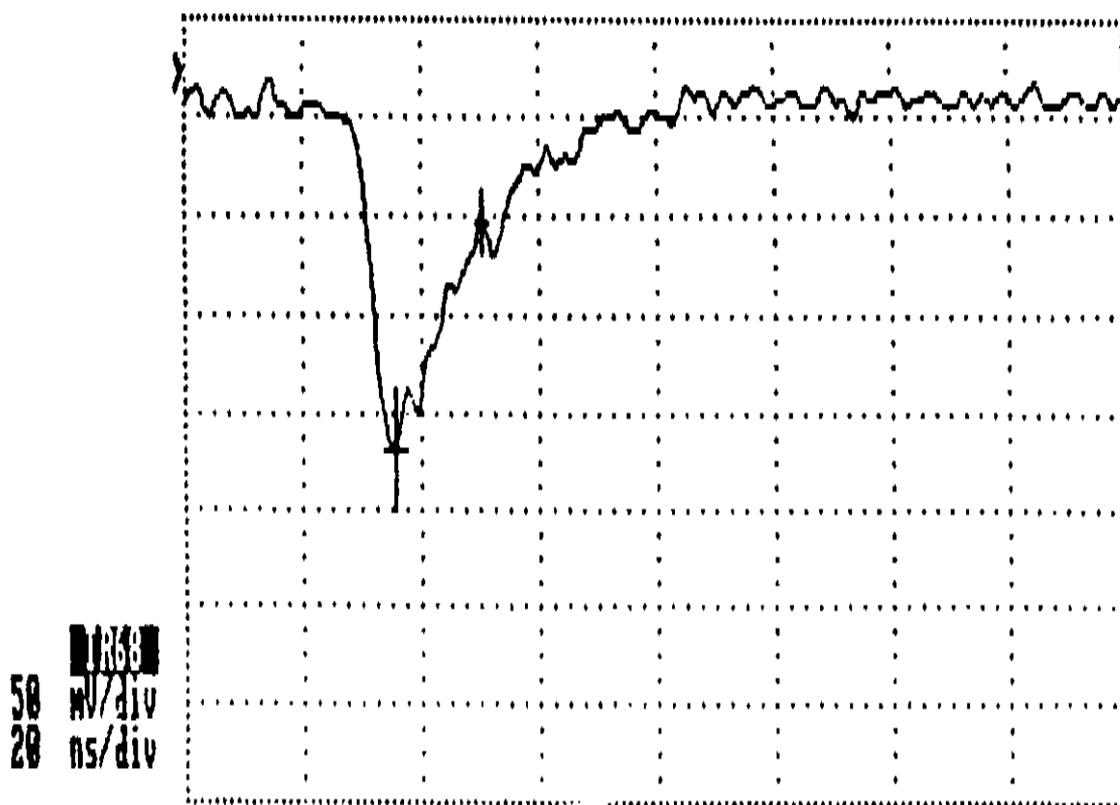


Figura 5.10: Sinal de emissão espontânea no espaço livre

A Figura 5.11 mostra a inibição do tempo de vida da emissão espontânea quando $d < \lambda_e/2$.

A Figura 5.12 mostra o efeito de incremento na taxa de emissão espontânea, e um encurtamento no seu tempo de vida, quando $d = \lambda_e/2$. O tempo de vida nesta condição é igual a duração do pulso de bombeio, este fato será explicado no capítulo seguinte.

Observamos um encurtamento do tempo de vida da fluorescência para $\lambda_e = 0.63\mu m$ de até um fator 6 com relação a este tempo de vida no espaço livre τ_0 , e um alongamento de até um fator 3. Ao passar da situação de máximo incremento da taxa de emissão $d = \lambda_e/2$ para máxima inibição do tempo de fluorescência a energia do pulso (V.s) diminui de até um fator 4. Teoricamente numa condição ideal a energia do pulso deveria se manter a mesma para diferentes valores de d , ao menos da diferença causada pela variação no volume de meio ativo. Como o corante possui uma larga banda de fluorescência (banda centrada em $\lambda_e = 0.59\mu$, $\Delta\lambda_e = 0.62\mu$), quando a cavidade inibi a emissão em $\lambda_e = 0.63\mu$ as moléculas tendem a desexcitar em $\lambda < \lambda_e$, provocando um “vazamento” da fluorescência, que resulta numa perda de sinal.

Na Figura 5.13 mostramos como varia a área do pulso de emissão espontânea (Volts.segundos) ao deslocarmos a posição da molécula excitada em relação ao espelho. Os valores no eixo x indicam de quanto deslocada é a posição da molécula em relação à posição $z=0$ (Figura 5.1). Isto é realizado experimentalmente variando o ângulo de incidência do feixe de bombeio, porém mantendo a mesma situação experimental (potencia de

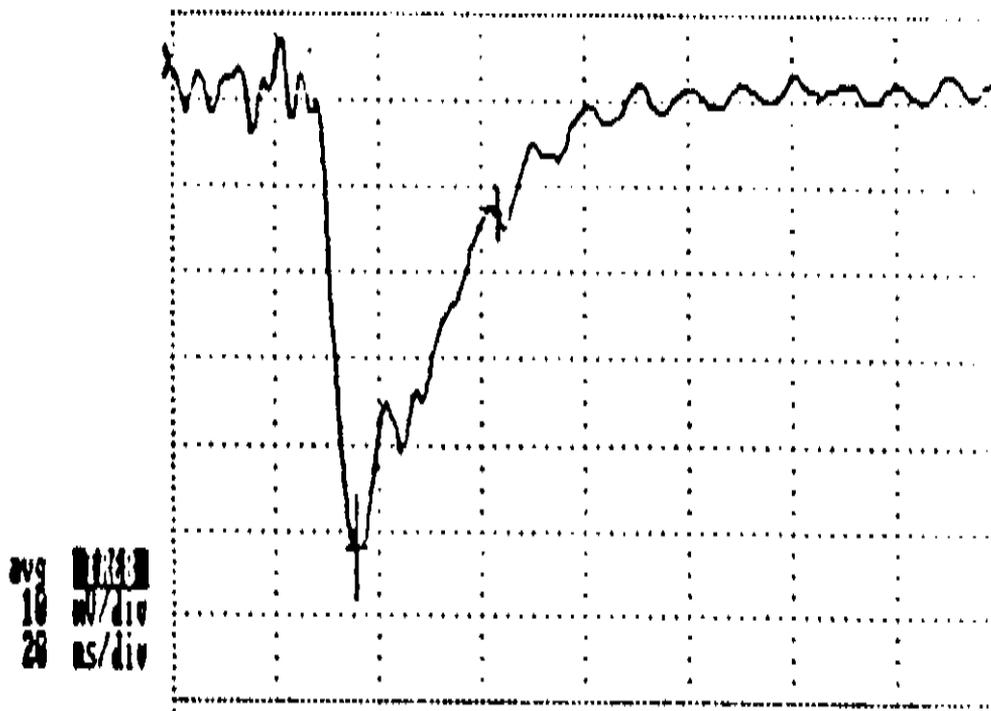


Figura 5.11: Sinal da emissão espontânea inibida quando $d < \lambda_e/2$

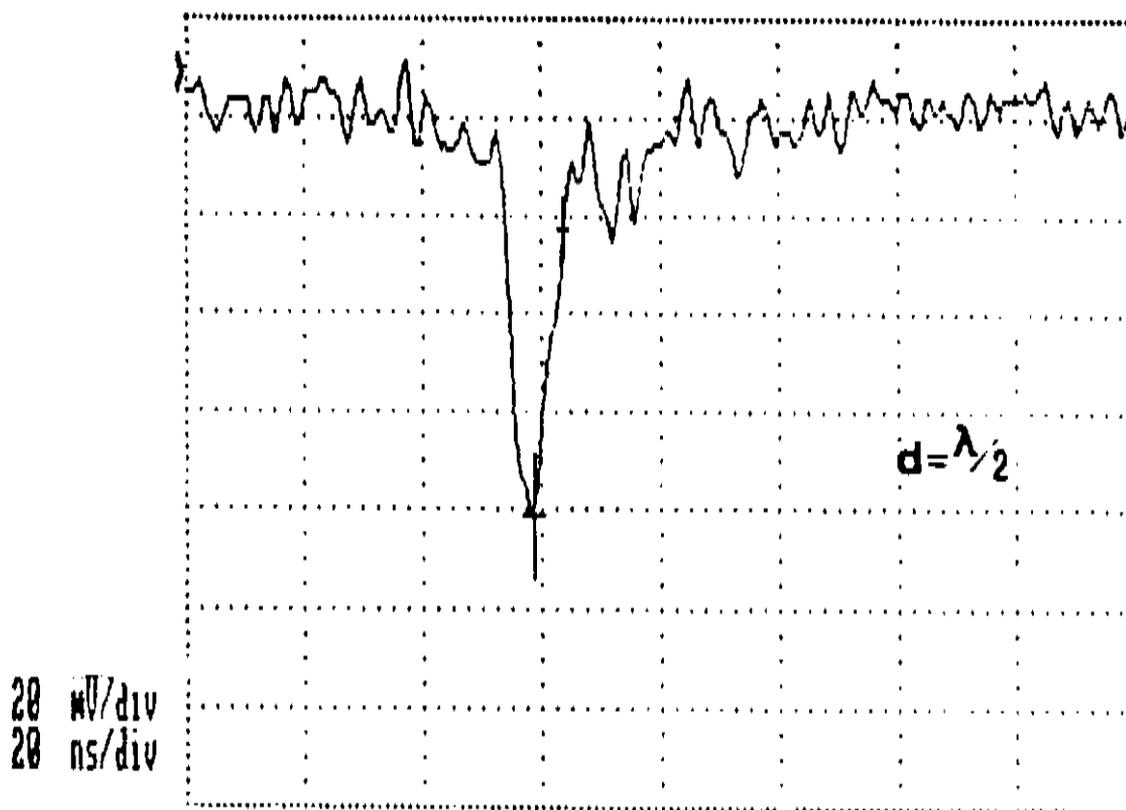


Figura 5.12: Sinal do incremento da emissão espontânea quando $d = \lambda_e/2$

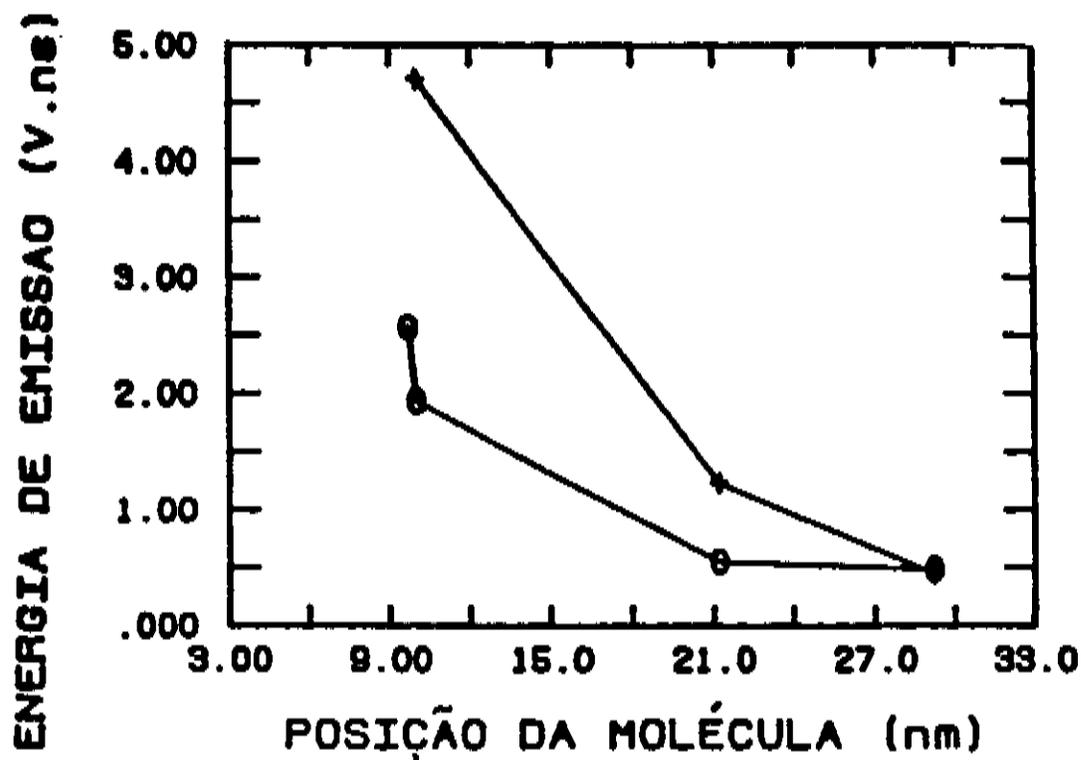


Figura 5.13: Variação medida experimentalmente entre a energia do sinal emitido espontaneamente (V.ns) e a posição da molécula excitada em relação ao espelho. A posição é modificada através da variação no ângulo de incidência do feixe de excitação em relação a normal ao espelho (θ). Os círculos mostram a curva na situação de inibição, e as cruzes na situação de incremento.

bombeio, d , posição do feixe de bombeio em relação ao centro do espelho e etc). Estes dados foram obtidos de uma média de 50 pulsos, uma vez que qualquer pequena instabilidade variava o alinhamento e com isso as condições de emissão. A curva com o círculo descreve a situação em que o tempo de emissão espontânea é inibido, enquanto que aquela com a cruz mostra a situação em que é incrementado. Mesmo sendo uma medida aproximada, realizada com uma média sobre 50 pulsos, podemos ver que ao variar a posição da molécula em relação ao espelho, o tempo de vida varia de até (neste caso) $1/4$ em inibição, e de $1/1.6$ na situação de incremento. Notem que as curvas são deslocadas, o que mostra que a área não se conserva ao passarmos da situação de “incremento” para o de inibição. Isto ocorre devido ao “vazamento” da fluorescência na situação de inibição. Mesmo assim elas apresentam o mesmo andamento em relação a posição da molécula.

Na Figura 5.14 mostramos a simulação teórica da variação da taxa de emissão espontânea ao variarmos a posição da molécula em relação ao espelho (z). Observamos que a emissão é máxima quando o número máximo de moléculas excitadas estão posicionadas ao centro do espelho, $z=0$. Vemos que a simulação vai de acordo com os resultados

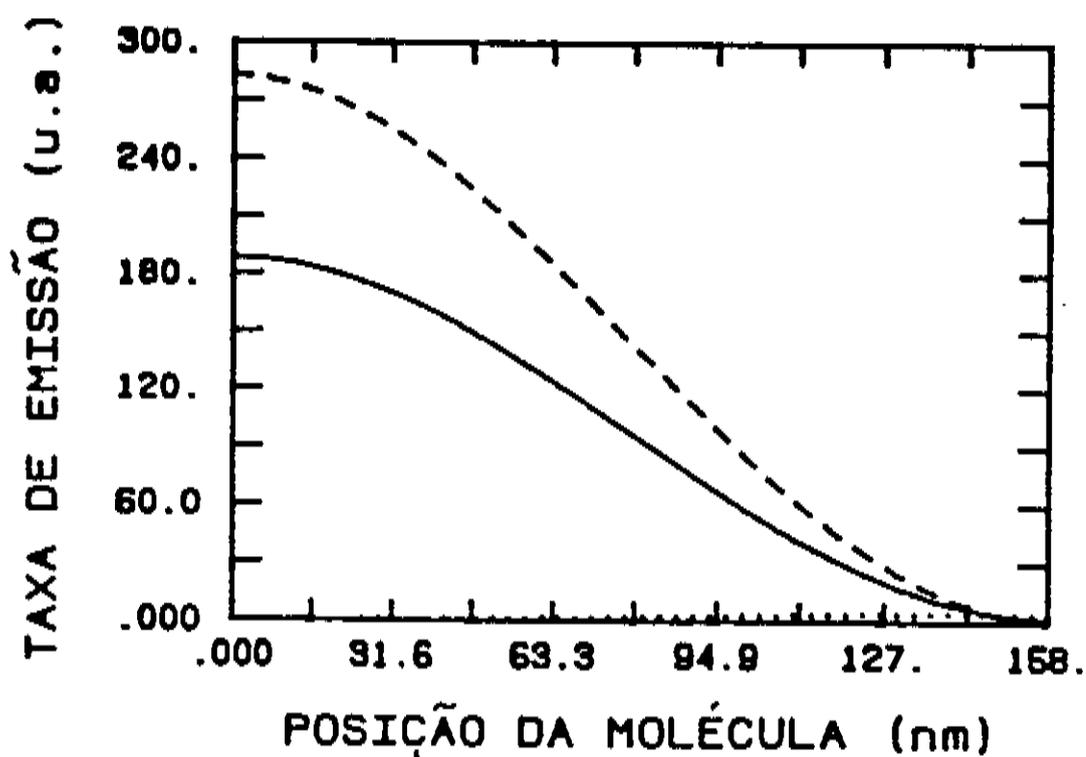


Figura 5.14: Relação entre a taxa de emissão e a posição da molécula excitada em relação ao espelho, obtida da simulação. A linha tracejada representa a taxa de emissão relativa ao dipolo orientado paralelamente em relação ao eixo x (Γ_1), a pontilhada o dipolo orientado perpendicularmente (Γ_2), e a cheia representa a taxa de emissão total $((2\Gamma_1 + \Gamma_2)/3)$

experimentais apresentados na Figura 5.13.

Na Figura 5.15 mostramos a variação na taxa de emissão espontânea ao variarmos a distância entre os espelhos de até $10\lambda_e$. A linha contínua equivale a curva experimental, enquanto a tracejada resulta da simulação. Para obtermos estes resultados os espelhos eram deslocados com passos de $0.1\mu m$, por meio do estágio de translação. O sinal de emissão era analisado através do osciloscópio digital (Le Croy - modelo 9400, 250MHz), o qual simultaneamente registrava 9 pulsos de emissão no canal A e os respectivos pulsos de bombeio no canal B, deste modo tínhamos controle sobre a intensidade normalizada de emissão. O sinal era integrado na entrada do osciloscópio por meio de uma resistência de $1M\Omega$, já que o osciloscópio tinha tempo de subida de $3ns$ e não estávamos interessados no tempo de vida e sim na taxa de emissão. A partir daí selecionávamos para cada posição dos espelhos, o pulso com máxima intensidade normalizada. Não devemos esquecer que o sinal emitido era focalizado na fibra com $1mm$ de diâmetro, portanto mesmo aumentando d continuávamos selecionando poucos modos. Esta medida não é muito precisa, uma vez que ao variar a distância entre os espelhos variamos o volume do meio ativo e mesmo realinhando a cavidade para cada medida não se pode ser 100% seguro que as condições de alinhamento se mantêm iguais. Esta curva nos mostra qual

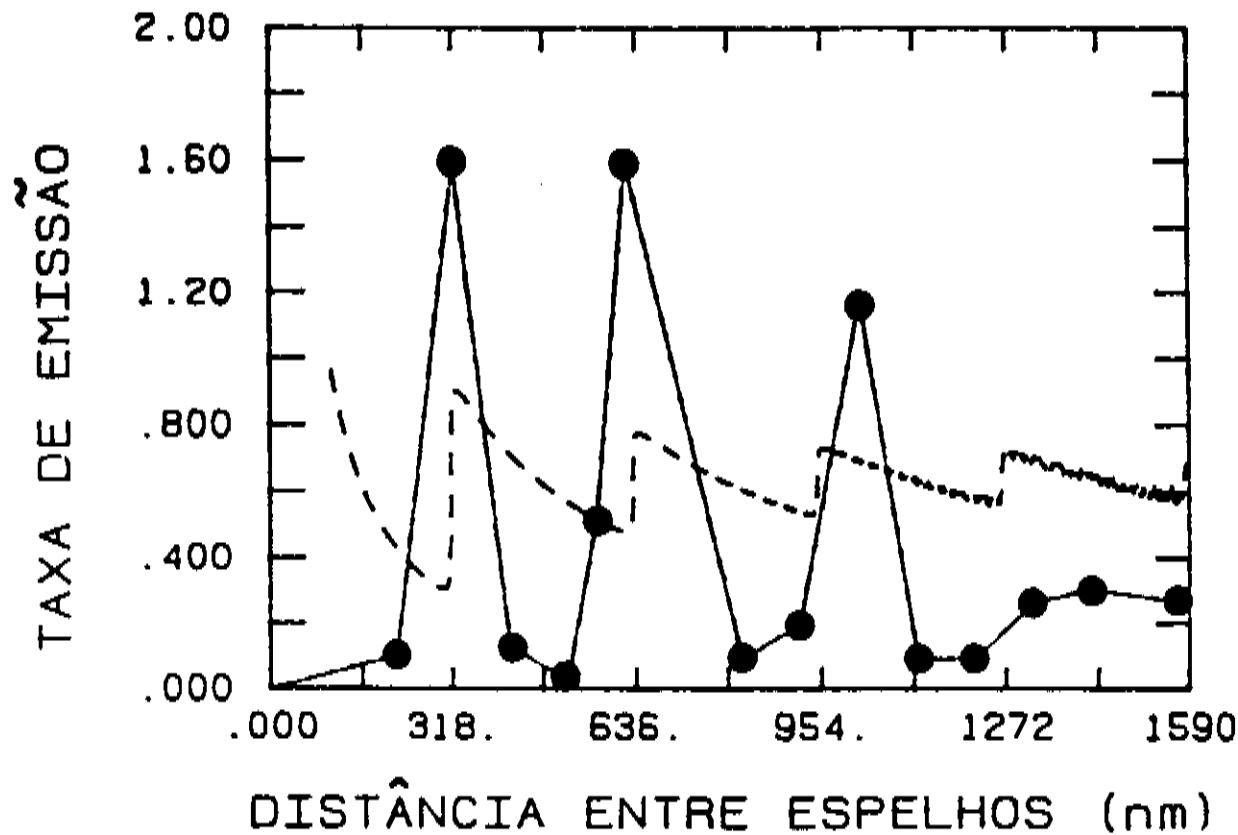


Figura 5.15: Relação entre a taxa de emissão espontânea e a distância entre os espelhos. A linha cheia resulta dos dados experimentais representados pelos círculos cheios ($V/29$), enquanto que a traçada resulta da simulação teórica.

o andamento da taxa de emissão espontânea. A Figura 5.15 nos mostra que a taxa é máxima para $d = \lambda_e/2$ e que decai ao aumentarmos d , mesmo sendo aumentado o volume do meio ativo. A curva traçada mostra a simulação desta situação considerando a fase introduzida pelos espelhos $\phi_1 = \phi_2 = \pi/2$.

Os valores da taxa de emissão não são os mesmos, pois nas nossas condições experimentais é quase impossível prever o valor real da taxa de emissão. Porém mais uma vez estas curvas nos mostram que o andamento da curva experimental concorda com a simulação teórica. Os picos de emissão estão deslocados em relação àqueles da simulação devido a indeterminação na posição dos espelhos. Esta indeterminação ocorre uma vez que o estágio de translação, devido a resistências impostas pelo sistema que forma a cavidade, não responde precisamente ao comando; e por iniciarmos a medida com os espelhos o mais próximos possíveis, que não equivalem necessariamente a $d=0$.

Bibliografia

- [1] E. A. Power, *Introductory Quantum Electrodynamics*, American Elsevier Publishing Company, INC., NY, (1965).
- [2] D. Kleppner, *Phys. Rev. Lett.*, **47**, 233, (1981).
- [3] L. Allen and J. H. Eberly, *Optical resonance & two-level atoms*, **Cap.7**, J. Wiley & Sons Inc., (1975).
- [4] R. Loudon, *The quantum theory of light*, **Cap.5**, Claredon Press - Oxford, second edition, 197,(1983).
- [5] M. Born e E. Wolf, *Principles of Optics*, (Pergamon Press, New York), **6th ed**, 281, (1980).
- [6] K. H. Drexhage, *Progress in Optics* Ed. El Wolf (North-Holland, Amsterdam 1974), **12**, 67.
- [7] H. Morawitz, *Phys Rev.*, **187**, 1792, (1969).
- [8] P. W. Milonni and P. L. Knight, *Phys. Rev. Lett. A*, **10**, 1096, (19874).
- [9] H. Kuhn, *J. Chem. Phys.*, **53**, 101, (1970). G.Hernandez *Fabry - Perot interferometers* Cambridge University Press, Cambridge, London.
- [10] R. R. Chance, A. Prock and R. Silbey, *J. Chem. Phys.*, **60**, 2744, (1974).
- [11] C. H. de Brito Cruz. E. Palange e F. De Martini, *Opt. Commun.* **39**, 331 (1981)
- [12] S.Giacomini, G. Innocenti, P. Mataloni e F. De Martini, *Appl. Opt.* **26**, 3179 (1987)

Capítulo 6

Ação laser na cavidade microscópica

Neste capítulo analisaremos a transição da situação de emissão espontânea, para a de emissão estimulada, para baixíssimas potências de excitação, numa microcavidade Fabry-Perot. Este fato ocorre, devido à presença de apenas um único modo disponível para acoplamento do campo com o átomo, o que resulta num máximo incremento da emissão espontânea. Mostraremos que quando $d = \lambda_e/2$, a eficiência de transição é tão alta que o “laser” não apresenta região de limiar, para potências de bombeio tão baixas quanto o limite dos aparelhos de detecção. Como este é um sistema de muitos átomos, o primeiro fóton emitido espontaneamente induz a emissão estimulada dos outros átomos excitados na cavidade.

Na primeira secção discutiremos esta situação de transição particular. Na segunda secção faremos um tratamento quântico desta situação, e encontraremos a expressão para o ganho. Na terceira secção faremos uma analogia entre esta situação e o problema de transição de fase de segundo ordem. Na quarta secção descreveremos a montagem experimental. Na quinta secção apresentaremos os resultados, e faremos uma analogia com os resultados experimentais da emissão espontânea “anómala” (apresentada no capítulo.4), e da emissão estimulada, discutida acima.

6.1 Transição da emissão espontânea para emissão estimulada com limiar “zero”

Nesta secção discutiremos como se dá a transição da emissão espontânea para emissão estimulada, numa cavidade onde só um modo de radiação é permitido. Do ponto de vista tradicional, a emissão espontânea contribui de maneira estocástica aleatória e incoerente para o processo de emissão. Teoricamente, não deveria haver nenhum fóton

no estado inicial e um fóton com vetor de onda \mathbf{k} e direção de polarização “s” no estado final [1]. Neste experimento apresentamos uma situação particular. Temos um sistema de N átomos mas apenas *um modo* \mathbf{k} disponível para ocupação. Apesar de, num problema de muitos átomos, cada átomo excitado poder ser influenciado durante seu decaimento pelo campo dos outros átomos, num problema de “um modo”, só um destes N átomos pode emitir “espontaneamente” em \mathbf{k} .

Assuma que sobre excitação pulsada, uma molécula homogeneamente alargada em λ_c e largura de linha $\Delta\lambda_c = \lambda_c\Delta\nu/\nu$, colocada numa microcavidade, emite um fóton de fluorescência no tempo $t = t_0$. Suponha também que este é o único fóton presente na cavidade. Se $\hat{m}_k = \hat{a}_k^\dagger a_k$ é o operador número de fótons por modo \mathbf{k} , a análise quântica aplicada a interação átomo-campo, espessa a taxa de crescimento do autovalor de \hat{m}_k através de,

$$\frac{d}{dt}m_k = G(1 + m_k) \quad (6.1)$$

onde G é o fator de ganho da emissão. Portanto a emissão do primeiro fóton em $t = t_0$ destrói o estado de vácuo ($m_k = 0$), por um tempo de coerência $t_c = \Delta\lambda/\lambda_c$. Como não há outros modos disponíveis além de \mathbf{k} , qualquer outro fóton emitido na cavidade dentro de t_c é emitido num “estado ocupado”. Portanto não é um fóton emitido espontaneamente (no estado de vácuo), mas sim “estimuladamente”, em fase e na direção do primeiro fóton emitido [2].

Olhando este processo numa outra perspectiva, podemos dizer que a redução da dimensionalidade do espaço amostral de modos, leva a um único grau de liberdade (um só modo presente na cavidade), enquanto que a eliminação dos modos estatísticos na cavidade, leva ao estabelecimento de um estado coletivo no meio se mais de *um* átomo decai radiativamente dentro de t_c . Portanto a transformação de qualquer decaimento emitido espontaneamente num processo coletivo de emissão estimulada, resulta na ausência de perdas por fluorescência e daí a um ganho altíssimo de emissão estimulada. No contexto da teoria de transição de fase, a microcavidade se comporta como um sistema amostral estatístico que faz uma transição ordem-desordem a um valor extremamente alto da temperatura crítica. Com esta descrição, observamos que a única maneira de se obter o processo de emissão espontânea, mesmo a baixo nível de excitação, numa cavidade como a nossa é por meio de um só átomo excitado presente na mesma (armadilha atômica). Deste conceito, concluímos que o sinal que vimos no capítulo.4 de máximo incremento, na verdade era um pulso de emissão estimulada. Na Figura 6.1 mostramos o pulso de excitação (pulso positivo) e o de emissão obtidos por meio da montagem apresentada no capítulo título 4. Foi observado que a forma do pulso de bombeio é semelhante à do pulso de emissão, assim como sua duração; o que indica que este é um pulso de emissão

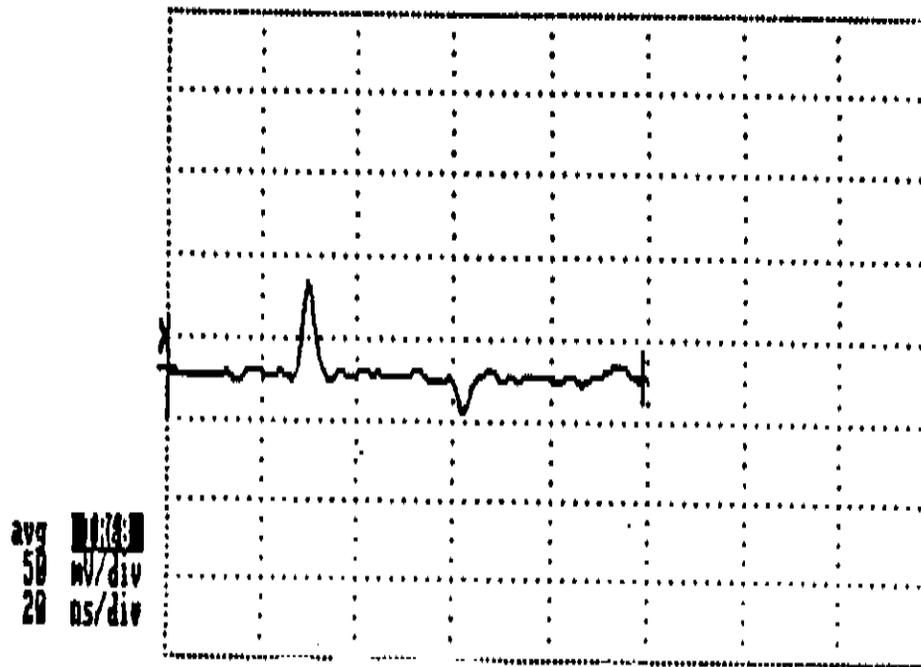


Figura 6.1: Forma do pulso de bombeio (positivo) e de emissão (negativo), para $d = \lambda_e/2$.

estimulada e não de emissão espontânea. Podir-se-ia pensar em superradiação, mas acreditamos que devido a duração do pulso de emissão, o qual é igual ao de bombeio, nosso caso está mais próximo da emissão estimulada ¹

6.2 Analogia entre o laser próximo do limiar e a transição de fase de segunda ordem

Nesta seção discutiremos sobre a analogia existente entre as características de um laser próximo ao limiar, e a transição de fase de segunda ordem.

Matematicamente, o ponto da transição de fase de segunda ordem, é um ponto de singularidade das quantidades termodinâmicas. O estado do sistema varia continuamente, porém a simetria no ponto de transição é descontínua, e a qualquer instante podemos dizer a qual das duas fases o sistema pertence. Os parâmetros molares (entropia molar, volume molar e etc.) são contínuos mas suas derivadas são descontínuas [6]. Um exemplo de transição de fase de segunda ordem é quando há transição do estado de ordem para o de desordem, seguido da mudança de simetria. Nesta transição a simetria de uma fase é maior que a simetria da outra fase, ou seja, possui todos os elementos de simetria

¹Em 1954 Dicke[3] enfatizou que mesmo a emissão espontânea incoerente da EQD pode gerar uma fluorescência proporcional a N^2 em vez de N [4]. Isto ocorre porque os átomos são fortemente acoplados pela sua interação comum com o campo elétrico ressonante. Deste modo não é possível tratar a interação entre o campo e um átomo independente. Este efeito é resultante do alinhamento de fase entre os vários dipolos elétricos, gerado pela própria emissão espontânea [5].

da outra fase e mais algum. No ponto de transição de fase de primeira ordem, corpos com dois diferentes estados estão em equilíbrio e a simetria das duas fases podem não estar relacionadas. Enquanto que na transição de fase de segunda ordem os estados das duas fases são os mesmos no ponto de transição e a simetria das duas fases são relacionadas. Como na transição de fase de segunda ordem não há mudanças descontínuas no ponto de transição, as funções termodinâmicas do corpo (entropia, energia, volume e etc.) variam continuamente no ponto de transição. Portanto a transição de fase de segunda ordem não é acompanhada de uma evolução ou absorção de calor, diferindo da transição de fase de primeira ordem [7].

A mudança de simetria na transição de fase de segunda ordem resulta na mudança do ordenamento do cristal. O conceito de ordem surge se o número de pontos da rede que podem ser ocupados pelos átomos excede o número destes átomos [7]. Considere um cristal completamente ordenado com os pontos da rede ocupados por certos átomos. Quando o cristal é desordenado alguns daqueles átomos vão ocupar outros pontos. Se a probabilidade de haver o mesmo número de átomos ocupando os pontos da rede, no caso do cristal ordenado e desordenado, é a mesma, e nos dois casos a situação das redes são geometricamente idênticas; aparece um novo elemento de simetria, portanto a simetria da rede é aumentada, e o cristal é desordenado.

Embora a descrição da radiação laser é um problema de estatística longe do equilíbrio, neste caso é considerado que existe um equilíbrio termodinâmico local [8].

A analogia entre o laser próximo ao limiar e o ferromagnetismo, já foi bastante discutida anteriormente [5,8,9,12,13]. Nesta secção faremos um breve resumo da teoria, e mostraremos porque um sistema como o nosso, onde só um modo de oscilação é permitido, é ideal para se observar os resultados do efeito cooperativo, que gera a transição de fase.

Geralmente se analisa as propriedades de um sistema, decompondo o mesmo em vários subsistemas. Em muitos casos, estas propriedades não podem ser explicadas como mera superposição aleatória dos efeitos dos subsistemas. É como se os subsistemas cooperassem, um com os outros, de uma maneira bastante regular. O comportamento do sistema como um todo, as vezes apresenta mudanças características, que podem ser descritas como transição de um estado de ordem para outro de desordem (transição de fase de segunda ordem). Este comportamento se apresenta, por exemplo, em materiais ferromagnéticos, onde cada spin vê o campo magnético médio relativo a todos os outros spins, se alinhando de acordo e produzindo assim um campo magnético médio (magnetização macroscópica).

De maneira analoga, se observa o efeito cooperativo no laser. Na análise do comportamento laser, cada átomo desenvolve um dipolo o qual irradia no campo eletromagnético,

devido a presença de todos os outros átomos. A semelhança entre as propriedades macroscópicas do laser e a do ferromagnetismo, sugerem a identificação do campo elétrico com o parâmetro de ordem do ferromagnetismo, e a inversão da população atômica, com a temperatura do ferromagnetismo [5,8,9]. A base desta semelhança se deve também ao fato que, tanto o comportamento do campo de radiação do laser quanto o do ferromagneto, são tratados através de teorias do campo auto-consistentes [9].

Para enfatizar a analogia entre a transição de fase num ferromagneto [10] e um laser perto da região de limiar, é incluída na teoria laser o efeito produzido pela injeção de um sinal externo, que no ferromagnetismo corresponde a um campo magnético externo aplicado. A magnetização média de um ferromagneto isotrópico, quando calculado na ausência de um campo magnético externo, é nula, uma vez que todas as possíveis direções são igualmente prováveis. Quando um campo externo é aplicado, a simetria é quebrada, e o campo médio não é mais nulo. De modo semelhante, o campo elétrico médio do laser no estado-estável é também nulo. Quando um sinal externo com fase bem definida é aplicado, a média do campo elétrico apresenta um valor não nulo.

Descreveremos inicialmente a análise do comportamento laser. Para esta finalidade é utilizada a Equação de Fokker-Planck 6.2 [5,9], onde foi incluído o efeito do sinal externo S que representa a quebra de simetria:

$$\frac{\partial P}{\partial t} = \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial a} \left[\left(\mathcal{A} - \frac{\nu}{Q} - B[a]^2 \right) a P + \mathcal{A} \frac{\partial}{\partial a^\dagger} P + 2SP \right] + c.c. \quad (6.2)$$

P é a densidade de probabilidade do sistema estar no estado a . $\mathcal{A} = 2\tau_a g^2 \gamma^2$ é a emissão espontânea, sendo τ_a o número de átomos injetados por segundo, g a constante de acoplamento átomo-campo, e γ o tempo de interação atômica. $B = 4[g/\tau]^2 \mathcal{A}$ é o coeficiente de auto-saturação, sendo τ a constante de decaimento da emissão espontânea e S é o sinal externo aplicado.

A solução no estado estável, no limite $S \rightarrow 0$ é dada pela equação:

$$P(a, a^\dagger) = N \exp \left\{ \frac{4}{\mathcal{A}} \left[\frac{1}{4} (\mathcal{A} - C) [a]^2 - \frac{1}{8} B [a^4 + \frac{1}{2} (a + a^\dagger)] \right] \right\} \quad (6.3)$$

onde N é a constante de normalização e $P(a, a^\dagger)$ representa a densidade de probabilidade de achar o campo elétrico correspondente a "a"; e sendo $A = a\sigma$, $B = b\sigma$, e $C = c\sigma_c$, onde σ representa a inversão de população e σ_c é a inversão de população de limiar.

Por meio da Equação 6.2, se obtém a equação do movimento para o operador campo elétrico,

$$\frac{d}{dt} \langle E \rangle = \frac{1}{2} (A - C) \langle E \rangle - \frac{1}{2} B \langle E^3 \rangle + 2S. \quad (6.4)$$

No estado estacionário ($dE/dt=0$), as propriedades do laser no limite semiclássico são dadas pela expressão,

$$(A - C) \langle E \rangle - B \langle E \rangle^3 + 2S = 0 \quad (6.5)$$

Na condição de limiar ($A=C$):

$$\langle E \rangle = \left(\frac{2S}{B}\right)^{\frac{1}{3}} = \left(\frac{2S}{b\sigma_c}\right)^{\frac{1}{3}} \neq 0 \quad (6.6)$$

Quando não há injeção de sinal externo ($S = 0$), as soluções do estado estacionário são:

$\langle E \rangle = 0$ se $\sigma - \sigma_c < 0$ (abaixo do limiar)

$\langle E \rangle = \left[\frac{a}{b}(\frac{\sigma - \sigma_c}{\sigma})\right]^{\frac{1}{2}}$ se $\sigma - \sigma_c > 0$ (acima do limiar)

A polarização recíproca é definida por $\partial \langle E \rangle / \partial S$, quando ($S = 0$):

$$\begin{aligned} \frac{\partial \langle E \rangle}{\partial S} &= [a\frac{1}{2}(\sigma_c - \sigma)]^{-1} \text{ para } \sigma < \sigma_c \\ \frac{\partial \langle E \rangle}{\partial S} &= [a(\sigma_c - \sigma)]^{-1} \text{ para } \sigma > \sigma_c \end{aligned} \quad (6.7)$$

Para fazermos uma analogia com o problema do ferromagnetismo consideraremos um sistema com N átomos magnéticos por unidade de volume, e assumindo que cada átomo possui momento magnético μ , se pode definir a magnetização média $\langle M \rangle$, a qual é uma função da temperatura T e do campo magnético externo H . No caso de spins que não interagem,

$$\langle M \rangle = N\mu \tanh\left(\frac{\mu H}{kT}\right) \quad (6.8)$$

onde a energia livre $F(M)$ é dada por meio da aproximação de Landau [7] para a transição de fase de segunda ordem,

$$F(M) = F(0) + C(T - T_c)M^2 + DT M^4 + HM \quad (6.9)$$

Onde os termos de terceira ordem não são considerados devido a problemas de simetria. A expansão é truncada no termo de quarta ordem por que a magnetização é pequena perto do limiar (T_c), onde T_c é a temperatura de Curie (temperatura crítica). C e D são constantes, e H é um sinal externo aplicado, que está para M assim como S está para o campo elétrico E .

A distribuição de probabilidade para q é dada por:

$$P(M) = N \exp\left[-\frac{F(M)}{kT}\right], \quad (6.10)$$

onde N é a constante de normalização. Desta Equação se vê que o valor mais provável para o parâmetro de ordem é determinado pela condição de que F seja mínimo.

Quando $H=0$, a relação entre M e T é dada por:

$$\begin{aligned} \langle M \rangle &= 0 \text{ para } T \geq T_c \\ \langle M \rangle &= \left(\frac{C}{D}\right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{T_c - T}{T}\right)^{\frac{1}{2}} \text{ para } T \leq T_c. \end{aligned} \quad (6.11)$$

Esta expressão é idêntica àquela para o laser, mostrada por 6.2. Como M é o parâmetro de ordem do ferromagnetismo, e a magnetização M está para a transição ferromagnética, assim como E está para o laser perto do limiar, o campo externo injetado E , é o parâmetro de ordem que causa a quebra de simetria no laser. A situação de estado estável depende de $(\sigma_c/\sigma) - 1$ no laser, do mesmo modo em que no ferromagnetismo depende de $1 - (T_c/T)$. Portanto, tanto o laser quanto a transição de fase de segunda ordem, podem ser consideradas como sendo um sistema de "feedback" positivo, onde o ganho é menor que 1 abaixo do limiar (acima do ponto crítico), e maior que 1 acima do limiar (abaixo do ponto crítico).

A relação entre M e H para $T = T_c$ é dada por;

$$\langle M \rangle = \left(\frac{dH}{dT_c}\right)^{\frac{1}{3}} \quad (6.12)$$

Que é análoga a Equação 6.6. 1.º caso do laser perto do limiar.

A dependência da suscetibilidade $\chi = \partial \langle M \rangle / \partial H$, com a temperatura, quando $H = 0$, é dada por:

$$\begin{aligned} \chi = \left.\frac{\partial \langle M \rangle}{\partial H}\right|_0 &= [c(T - T_c)]^{-1} \text{ para } T \geq T_c \\ \chi = \left.\frac{\partial \langle M \rangle}{\partial H}\right|_0 &= [c(T_c - T)]^{-1} \text{ para } T \leq T_c \end{aligned} \quad (6.13)$$

Portanto, devido a analogia desta expressão com 6.8, se conclui daqui que no ferromagnetismo a suscetibilidade depende de T assim como a polarização, no caso do laser, depende de σ .

A Tabela I 6.2, faz um resumo da comparação realizada acima entre o sistema laser próximo ao limiar e o ferromagnetismo [9].

QUANTIDADE	LASER	FERROMAGNETISMO
Parâmetro de ordem	E	M
Variável do reservatório	σ	T
Mecanismo de quebra de simetria	σ_c S	T_c H
Suscetibilidade (campo zero)	$\chi = \left. \frac{\partial E}{\partial S} \right]_{S=0}$	$\chi = \left. \frac{\partial M}{\partial H} \right]_{H=0}$
Potencial termodinâmico	$G(E) = -\frac{A}{2}(\sigma - \sigma_c)E^2 + \frac{B}{4}\sigma E^4 - SE \cos\phi + G_0$	$F(M) = -\frac{C}{2}(T - T_c)M^2 + \frac{D}{4}TM^4 - HM + F_0$
Distribuição estatística	$P(E) = \exp(-G(E)/k_c\sigma)$	$P(M) = \exp\left(\frac{-F(M)}{k_b T}\right)$

Com esta analogia concluímos que se pode tratar o sistema laser perto do limiar, em analogia a transição de fase de segunda ordem no modelo de campo médio [7]. Um outro ponto deve ainda ser mencionado; o porque da necessidade de se utilizar uma microcavidade para se observar este fenômeno.

Esta resposta é explicada no trabalho publicado por Haken [8]. Ele demonstra que se o princípio adiabático ²é aplicável, os átomos são forçados a obedecer imediatamente a um único parâmetro de ordem. No caso do laser próximo ao limiar o parâmetro de ordem é a amplitude do único modo do campo presente na cavidade. Portanto, no nosso caso, o primeiro fóton emitido espontaneamente é o parâmetro de ordem que gera uma transição de fase da emissão espontânea para a emissão estimulada. Esta transição de fase resulta do efeito cooperativo entre todos os átomos excitados presentes na cavidade. Mesmo se um número de modos maior fosse permitido pela cavidade, os átomos continuariam obedecendo a um único parâmetro de ordem, ou seja, a só um dos tantos modos permitidos pela cavidade, portanto o efeito é menor. Por este motivo o efeito não é detectável numa cavidade laser normal.

²Quando o tempo de relaxação do momento de dipolo atômico é menor que o tempo de relaxação inerente ao parâmetro de ordem, que neste caso é a amplitude do modo do campo

6.3 Tratamento quântico da emissão espontânea de muitos átomos acoplados a um único modo

Nesta secção calcularemos, por meio do formalismo quântico, a emissão espontânea de muitos átomos, mas apenas um modo disponível para o fóton se acoplar, que é a condição de contorno imposta pela presença da microcavidade. De maneira análoga ao tratamento do Capítulo 4, utilizaremos o formalismo de Heisenberg.

O operador número de fótons no modo \mathbf{k} é dado por:

$$\hat{n}_k(t) = \hat{a}_k^\dagger(t)\hat{a}_k(t) \quad (6.14)$$

onde $\hat{a}_k(t)$ é composto da parte relativa ao vácuo e a fonte [11].

$$\hat{a}_k(t) = \hat{a}_k^v(t) + \hat{a}_k^f(t) \quad (6.15)$$

Portanto o número médio de fótons emitidos sobre o modo \mathbf{k} é dado por

$\langle \hat{m}_k(t) \rangle = \langle m_k [a_k^\dagger a_k] m_k \rangle$, onde $[m_k] = [vacuo] [\phi_N]$ representa o produto dos estados, do campo de vácuo e dos N átomos.

Da equação do movimento de Heisenberg [11], só que aqui não foi aplicada a aproximação de onda girante, se obtem:

$$-\frac{d}{dt}a^\dagger(t)a(t) = \sum_i g_k (\pi_i^\dagger E_k^0(t) f_{ki} + f_{ki}^* E_k^0(t) \pi_i) - 2 \sum_i (g_k f_{ki})^2 (\pi_i^\dagger \pi_i) (\Delta_- + \Delta_+) \quad (6.16)$$

onde:

$$E_k^0 = a_k(0) \exp(-i\omega_k t) - a_k^\dagger(0) \exp(-i\omega_k t), \quad (6.17)$$

$$\Delta_- = \pi [\delta(\omega_k - \omega)] + i \left[\frac{P}{(\omega_k - \omega)} \right] \quad (6.18)$$

$$\Delta_+ = \pi [\delta(\omega_k + \omega)] + i \left[\frac{P}{(\omega_k + \omega)} \right] \quad (6.19)$$

e g_k e f_k , são as constantes de acoplamento que expressam respectivamente a contribuição entre as orientações do vetor dipolo elétrico e polarização, e os efeitos de

ressonância provocados pela presença da cavidade. Esta Equação mostra a variação temporal do número médio de fótons emitidos no modo k . Para calcularmos o valor máximo do número de fótons emitidos derivamos mas uma vez a Equação 6.17 em relação a t , e obtemos:

$$\begin{aligned} \frac{d^2}{dt^2} a_k^\dagger a_k &= - \sum_i g_k f_k \frac{d}{dt} (\pi_i^\dagger E_k^0 + E_k^0 \pi_i) - \\ & 2 \sum_i (g_k f_{ki})^2 \frac{d}{dt} (\pi_i^\dagger \pi_i) (\Delta_- + \Delta_+). \end{aligned} \quad (6.20)$$

Onde, derivando o primeiro termo da Equação 6.17, obtemos:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} [\pi^\dagger E_k^0 + E_k^0 \pi] &= i(\omega_k - \omega) [\pi^\dagger a(t) + a^\dagger(t) \pi] - \\ & 2g_k f_k [2\pi^\dagger \pi - 1] (E_k^0 \cdot E_k^0) - \\ & 2g_k f_k E_k^0 [2\pi^\dagger \pi - 1] E_k^0. \end{aligned} \quad (6.21)$$

Utilizando as regras dos comutadores se obtém que $E_k^0 \cdot E_k^0 = -(1 + 2a(t)a^\dagger(t))$. Aplicando a Equação 6.15 em 6.22, e levando em conta que em $t=0$ o campo está no estado de vácuo, e com isso,

$$\langle 0[a]0 \rangle = \langle 0[a^\dagger]0 \rangle = 0 \quad (6.22)$$

portanto o primeiro termo da Equação 6.21 é nulo, e o segundo termo resulta com a expressão:

$$\begin{aligned} (2) &= g_k f_k [2\pi^\dagger \pi - 1] + \sum_i g_k f_k [2\pi^\dagger \pi - 1] a_k a_k^\dagger - \\ & (g_k f_k)^2 [2\pi^\dagger \pi - 1] [a_k^\dagger \pi \Delta_- - \pi^\dagger a_k \Delta_+] + \mathcal{O}(\varepsilon^\infty) \end{aligned} \quad (6.23)$$

Resolvendo o último termo da Equação 6.22 e lembrando que neste caso o operador π não comuta com $a(t)$ devido aos termos cruzados existentes na Equação 6.15, se obtém:

$$\begin{aligned} (3) &= g_k f_k a^\dagger [2\pi^\dagger \pi - 1] (a - a^\dagger) - g_k f_k a a^\dagger \\ & 2(g_k f_k)^2 [\pi a^\dagger \Delta_- - a \pi^\dagger \Delta_+] + 2(g_k f_k)^2 \pi E_k^0 \end{aligned} \quad (6.24)$$

Aplicando as Equações 6.23 e 6.24 na Equação 6.21, e lembrando a relação 6.22 para, $t=0$ obtemos:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}[\pi^\dagger E_k^0 + E_k^0 \pi] &= g_k f_k [2\pi^\dagger \pi - 1] - \\ &2(g_k f_k)^2 [\pi a^\dagger \Delta - a \pi^\dagger \Delta] + \mathcal{O}(\varepsilon^\infty) \end{aligned} \quad (6.25)$$

Por sua vez [11],

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \pi^\dagger \pi &= \sum_k g_k f_k [\pi^\dagger E_k^0 + \pi E_k^0] - \\ &\sum_k (g_k f_k)^2 [2\pi^\dagger \pi - 1] (\Delta_- + \Delta_+) \end{aligned} \quad (6.26)$$

Aplicando as Equações 6.26 e 6.27 na Equação 6.21 obtemos,

$$\frac{d^2}{dt^2} a_k^\dagger a_k = -2 \sum_i (g_k f_k)^2 [2\pi_i^\dagger \pi_i - 1] \quad (6.27)$$

Como pela conservação da energia,

$$\frac{d}{dt} a^\dagger a = \frac{d}{dt} \sum_i \pi_i^\dagger \pi_i \quad (6.28)$$

e considerando ,

$$\hat{\sigma} = \frac{1}{N} \sum_i [\pi_i^\dagger \pi_i - \frac{1}{2}] \quad (6.29)$$

como sendo o operador “inversão de população”, obtemos:

$$- \frac{d}{dt} a^\dagger a = N \frac{d\hat{\sigma}}{dt} \quad (6.30)$$

Aplicando as relações 6.29 e 6.30 em 6.27 obtemos :

$$\frac{d^2 \sigma}{dt^2} - 4 \sum_i (g_k f_k)^2 \sigma = 0 \quad (6.31)$$

que nos dá, finalmente, o coeficiente do ganho:

$$G = \sum_k 4(g_k f_k)^2 \quad (6.32)$$

onde o N aparece do somatório ($\sum_i \rightarrow N$) sobre o número de átomos excitados, e z é a distância entre a molécula e o espelho.

Como neste caso a emissão é estimulada, a orientação dos dipolos atômicos seguem o campo do feixe de bombeio. Portanto, o fóton emitido tem direção e fase equivalentes àquela do campo que o estimulou. Como no nosso caso o feixe de bombeio vem de $-\infty$, seguindo o procedimento realizado no capítulo.4, a distribuição de modos será dada pelas Equações 4.16 e 4.17, e $(g_k f_k)^2$ pelo primeiro termo da Equação 4.21. Como a polarização do feixe de bombeio é perpendicular a normal do espelho, portanto determinada, não há somatório sobre s . Deste modo a do ganho resulta:

$$G = (g_k f_k)^2 = \sum_k \left(N \frac{\hbar \omega_k}{2\epsilon V} \frac{1}{D^2} \times \{ [t_1]^2 [\epsilon_{k+} \cdot \mu + \epsilon_{k-} \cdot \mu r_2 e^{ik(d-2z_0) \cos \theta + \phi_2}]^2 \} \right) \quad (6.33)$$

Aplicando a Equação 4.23, obtemos

$$G = 4N \frac{\hbar \omega_k}{2\epsilon V} \cdot \int_{\pi/2}^0 k dk d\phi \sin \theta d\theta \frac{F}{R(1 + F \sin^2(kd \cos \theta))} \epsilon \cdot \mu \times \{ [t_1]^2 [1 + r_2 e^{ik(d-2z_0) \cos \theta + \phi_2}]^2 \} \quad (6.34)$$

Em valores absolutos já se pode ter uma noção que a Equação do ganho é praticamente análoga a Equação que descreve a taxa de emissão espontânea no capítulo.4, a menos do fator 4 e do número de átomos excitados N . No caso da emissão espontânea, teoricamente, deveria haver nenhum fóton no estado inicial e um fóton com vetor de onda k e direção de polarização (aleatória) “ s ” no estado final, dentro do tempo de coerência [1]. Quando se trata um problema de muitos átomos, é esperado que N átomos emitam num único modo, pois cada átomo excitado pode ser influenciado durante seu decaimento pelos campos dos outros átomos [4] e portanto observamos o incremento na emissão espontânea. Como no nosso caso não existem outros modos, além do k , disponíveis, qualquer outro fóton emitido na cavidade dentro do tempo de coerência é emitido num estado ocupado. Portanto é um fóton coerente com o fóton de excitação que equivale a um fóton emitido estimuladamente.

6.4 Configuração do experimento

Nesta secção, descreveremos de forma detalhada a configuração do experimento. Neste experimento nossa intenção era observar a emissão estimulada, nas condições de contorno particulares impostas pela presença da microcavidade. Para fazermos esta medida, deveríamos verificar:

1. Que o pulso de emissão era semelhante ao pulso de bombeio, espacialmente e temporalmente.
2. A relação entre as intensidades do pulso de bombeio e de emissão, e ver se seu comportamento é exponencial ou linear numa escala monolog, deste modo determinando se a emissão é espontânea ou estimulada.
3. Qual a condição de ganho máximo, ao variar as condições de contorno das moléculas no interior do interferómetro, por exemplo variando a distância entre espelhos e a posição da molécula excitada em relação ao espelho.

Neste caso foram realizadas duas montagens com diferentes frequências de excitação. Na primeira as moléculas eram excitadas a uma frequência de repetição de 3 Hz, e na outra a 20 Hz. Aumentando a frequência de repetição da excitação fomos capazes de otimizar o sistema de aquisição e revelação de dados. Estas montagens têm configuração semelhante àquela do experimento anterior.

A primeira montagem, onde operávamos a 3Hz, é mostrada na Figura 6.2.

As modificações em relação à montagem descrita no capítulo 4, são mencionadas abaixo:

1. Como a concentração máxima que conseguimos alcançar foi de $10^{-3} M/L$, e o volume total na cavidade era de $V \simeq 10^{-10} m^3$ resolvemos bombear a maior área possível. Não podíamos bombear toda a área do espelho porque devemos incidir o feixe de bombeio num certo ângulo, devido ao casamento de momento entre a radiação incidente e a de emissão (secção.3.5). Para permitir uma maior entrada do feixe expandido, o suporte do espelho tinha um sulco na lateral para permitir uma maior liberdade no movimento angular (Figura 4.3). Deste modo a dimensão do feixe é limitada a 8 mm de diâmetro. Com estas dimensões eramos capazes de excitar $\simeq 10^{17}$ moléculas.
2. Para variar a intensidade do sinal de bombeio, nesta montagem, fazíamos o feixe de bombeio atravessar filtros cinza de diferentes espessuras antes de incidir na microcavidade.
3. Quando operávamos com $d > \lambda_e/2$, mais de um modo era permitido na cavidade. Como a emissão espontânea ocorre em todas as direcções permitidas pela cavidade,

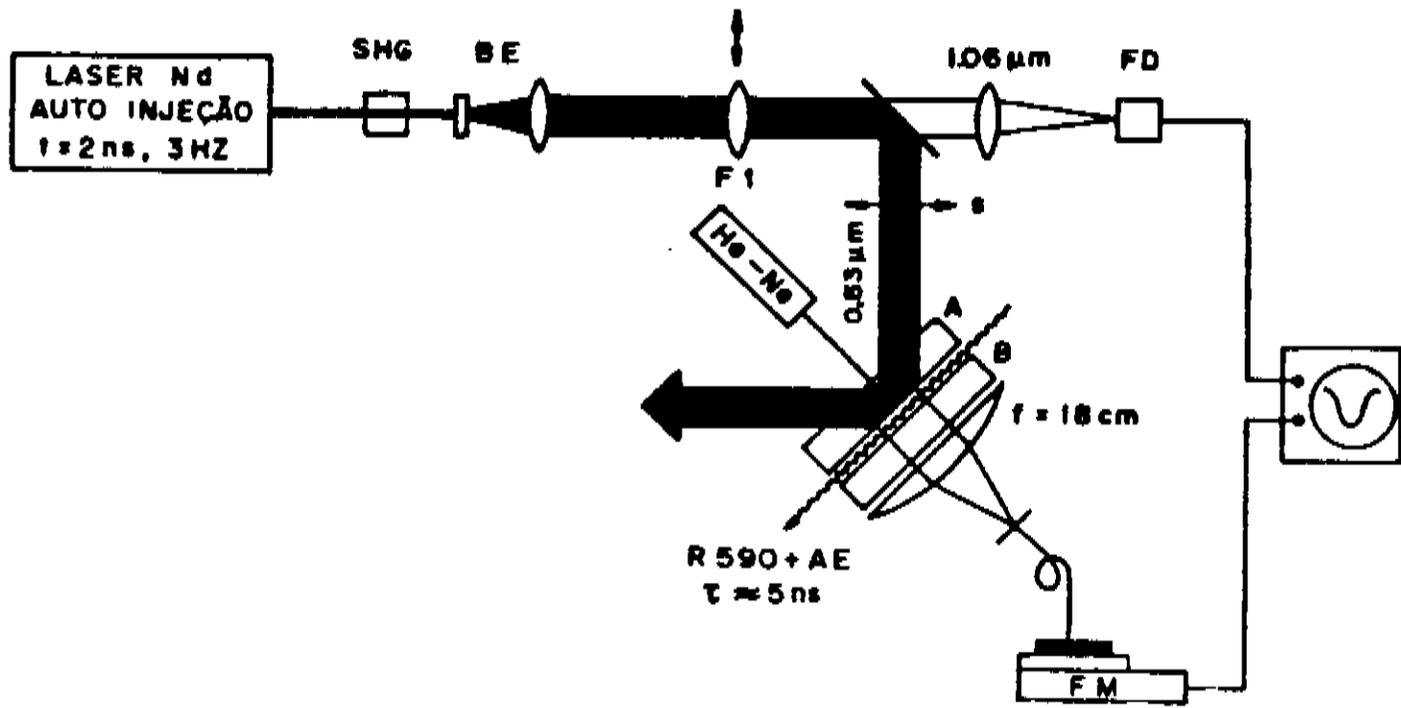


Figura 6.2: Configuração da primeira montagem realizada para verificação da emissão estimulada onde a taxa de repetição do pulso de excitação é de 3 Hz.

enquanto que a estimulada segue a direção do pulso de excitação, para selecionar a emissão estimulada da emissão espontânea colocamos a fibra que guia o sinal a fotomultiplicadora, a 50 cm do foco da lente. Deste modo a emissão espontânea que era mais fraca e em todas as direções permitidas por “d”, se dispersava.

4. Como primeiras provas, observávamos o processo de emissão estimulada utilizando o sistema que digitava a forma de onda da LeCroy, descrito na secção (4.4). Variávamos a distância entre espelhos d , e para cada pulso de bombeio registrávamos simultaneamente num diskete a forma do pulso de bombeio e o de emissão estimulada (ver Figura 6.1). A partir destes dados era feita a curva de ganho. Este método de medição é desnecessário para uma medida do gênero, onde o que importa não é a forma do sinal mas sim sua intensidade, uma vez que somos seguros experimentalmente que é um sinal estimulado (mesma duração e direção do pulso de bombeio). Para sermos seguros que o sinal era estimulado, observamos que a largura temporal do pulso de emissão coincidia com o pulso de bombeio, praticamente independentemente do nível de excitação molecular. Este sistema de aquisição de dados restringe a frequência de operação a 1Hz, e cada sinal leva aproximadamente um segundo para ser detectado e registrado. Estes fatores resultam num tempo de aquisição muito longo, uma vez que devemos pegar vários sinais de diferentes intensidades. A cavidade se mantém alinhada por $\simeq 1s$ quando se opera a distâncias entre espelhos $d < \lambda_e/2$. Nesta condição onde $d \gg \lambda_e/2$ ~espaço livre a tensão superficial do líquido é bem menor, e a cavidade se desalinha com maior facilidade, portanto para cada variação de intensidade

tinhamos que reajustar o alinhamento da cavidade. Este reajuste no alinhamento podia implicar numa variação das condições em que foram realizadas as medidas anteriores; por exemplo ao movimentar os espelhos não eramos mais seguros que o alinhamento tornou a ser idêntico e se o volume do meio ativo foi variado. Para sobrepujar estes problemas fazíamos uma amostragem de vários dados.

Por este motivo decidimos utilizar o osciloscópio digital dual 125 MHz da Le Croy (modelo 9400), com tempo de saída de 3ns, aquisição de memória de 8 bit por canal, segmentados em 8, 15, 62, 125 ou 250 blocos. Este osciloscópio possui o comando "sequence" através do qual ele registra (no display do osciloscópio e na memória interna), na frequência do trigger um certo número de sinais (determinados pelos blocos), simultaneamente em ambos os canais. Os dados registrados podem ser elaborados tanto manualmente, por meio dos controles existentes no display, quanto digitalmente, uma vez que ele possui interface RS232C e GPIB. Como o tempo de saída do osciloscópio era de 3 ns e ele colocava um ponto a cada 10 ns, devido a sua taxa de conversão, o osciloscópio não era capaz de registrar o pulso de emissão estimulada ($T_e = 2ns$). Como discutido acima o que nos interessava era a intensidade do pulso e não sua forma. Por isso integramos com uma resistência de $1M\Omega$ os dois sinais, bombeio e emissão, e para um mesmo intervalo de tempo, o zero sendo determinado pelo sinal de trigger, pegávamos o valor da intensidade de ambos os sinais.

Nesta situação as medidas eram realizadas com os mesmos cuidados de alinhamento já citados no capítulo.4. Neste caso variávamos a distância entre espelhos por meio do estágio de translação, e por meio do PZT nos fixávamos no ponto de máxima emissão (determinado pelo sinal de intensidade visto do osciloscópio). A distância entre os espelhos era determinada por meio da visualização dos anéis de interferência. Partíamos da situação de apenas um máximo ($d = \lambda_e/2$), e para cada máximo que atingíamos por meio do estágio de translação acrescentávamos $d = d + \lambda_e/2$.

A Figura 6.3.a mostra os resultados obtidos por esta técnica de detecção. Para $d = \lambda_e/2$, partíamos de uma intensidade de emissão no limite do ruído de fundo da fotomultiplicadora (5 mV) e mesmo assim não víamos a região de transição do regime linear (emissão espontânea) para o exponencial (emissão estimulada). Na Figura 6.3.b, a transição para $d = 5\lambda_e$ é mostrada. Neste caso se vê a região de transição, e apesar do volume da população ativa ser maior nesta situação, o ganho é menor quando comparado com $d = \lambda_e/2$. Isto ocorre devido ao aparecimento de modos transversais, e das condições de confinamento de modos precárias quando $d > \lambda_e/2$.

O fato de não detectarmos a transição se deve ao fato de nossa cavidade não ser perfeita, ou seja:

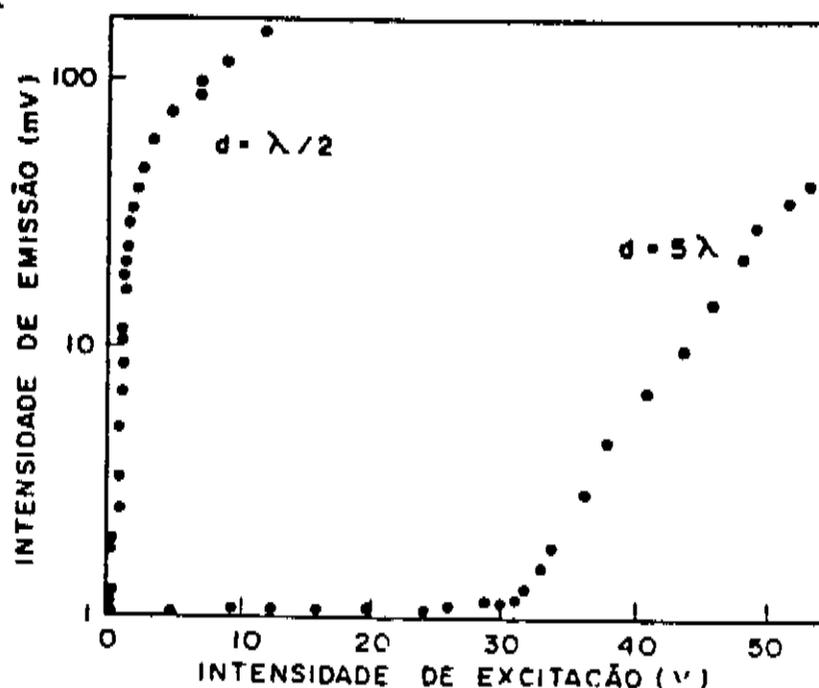


Figura 6.3: Ação laser numa microcavidade com dimensão $d = \lambda_e/2$ (a) e $d = 5\lambda_e$ (b). A intensidade mostrada em $d = 5\lambda_e$ deve ser multiplicada por um fator 10.

1. Existe sempre a presença de modos radiais tipo “guia de onda” se propagando na direção paralela aos espelhos, com polarização ortogonal a eles. Mesmo que esses modos não são afetados pela ressonância da cavidade e são fracamente excitados na situação $d = \lambda_e/2$, como observado experimentalmente e mostrado na simulação teórica (secção.4.4).
2. O corante possui um largo espectro de emissão (Figura 4.6), e nosso efeito só ocorre para aquele comprimento de onda que é metade da distância entre espelhos. O pulso de emissão deve ser visto no tempo de coerência do modo k na cavidade, para que o efeito detectado seja resultante da presença de apenas um modo permitido para ocupação. O tempo de coerência do modo k determinado por $d = \lambda_e/2$ é da ordem de femtosegundos. O sinal é analisado por meio de um sistema que consiste de dois filtros interferenciais, centrados em $0.63\mu m$ com banda passante de $\Delta\lambda = 8\text{Å}$, o que resulta num tempo de coerência $t_c = \Delta\lambda/\lambda_e c \simeq ps$. Portanto nosso sistema de detecção é “alargado inhomogeneamente”, não estamos analisando só um modo de emissão.
3. Fazendo uma estimativa teórica, devemos ver na região de transição $\simeq 30$ fótons estimulados, o que está no limite do nosso sistema de detecção.

Com a finalidade de obtermos um maior número de dados para um mesmo alinhamento, realizamos uma outra montagem que nos permitia operar a uma frequência de até 20 Hz (Figura 6.4).

As mudanças realizadas foram as seguintes:

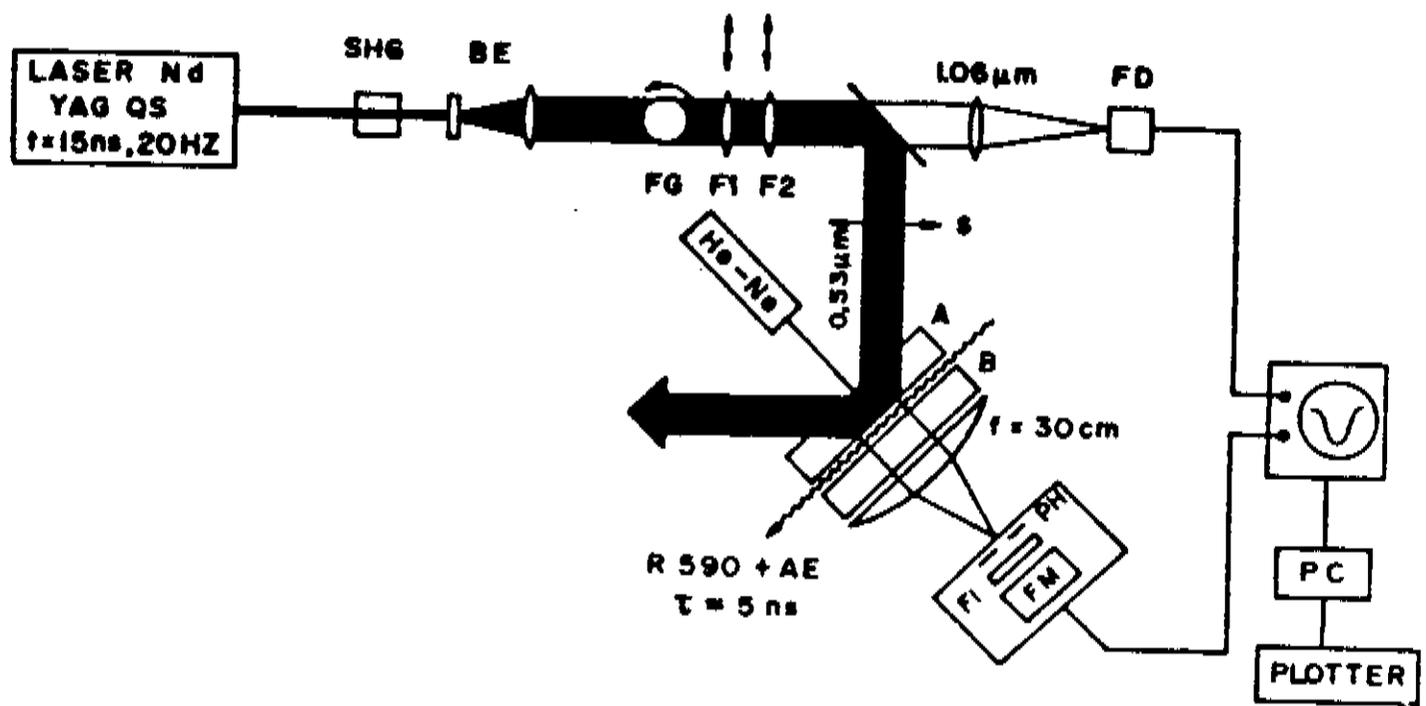


Figura 6.4: Montagem da experiência para verificação do efeito laser, a alta frequência de repetição (20 Hz).

1. Utilizamos como fonte de excitação um laser de NdYAG da Kigre (modelo YM-15) em "Q-switching" acoplado a um cristal de KDP, em modo a realizar a converção do sinal de infra vermelho em verde. Para 12.8 J de energia de flash a uma repetição de 5 Hz, os pulsos emitidos tinham potência de pico de até 150 KW para $t=20$ ns em $0.53\mu m$. A máxima repetição que o laser operava durante a medição, sem que atingisse uma temperatura muito alta, era 3 Hz. Como nos interessava opera-lo numa frequência mais alta, devido ao curto tempo de estabilidade do alinhamento da cavidade, fizemos duas modificações. Trocamos o cabo BNC (esquentava a nível de fusão), que levava alta tensão ao flash, por cabo tipo RG8 com conexão do tipo PETS, e colocamos dois ventiladores sobre as duas junções da alta tensão com o flash. Com estas modificações fomos capazes de operar a 20 Hz.
2. Para que a variação em intensidade do feixe de excitação fosse contínua puzemos um filtro cinza circular (round broadband beamsplitter da Newport Corporation), cujo coeficiente de transmissão se atenuava linearmente no círculo, acoplado a um motor que o fazia girar a 2 RPM. Para aumentar o intervalo de atenuação do filtro, dois outros filtros cinzas de diferentes atenuações eram colocados a mais durante a medida. Deste modo o intervalo de atenuação era aumentado de um fator 3.
3. O sinal de emissão, ao passar pelo sistema de fibras ópticas que o guiava a fotomultiplicadora, era atenuado de um fator 10. Para evitar qualquer tipo de perdas desnecessária, construímos um suporte para o tubo da fotomultiplicadora

em modo a manter-la na mesma altura da cavidade, o que possibilitava que o sinal fosse detectado ao sair da cavidade.

4. Pusemos uma lente de distância focal de 30 cm acoplada ao espelho de saída, que focalizava o sinal emitido num "pin-hole" de $20\mu\text{m}$ acoplado a entrada da fotomultiplicadora. Deste modo selecionávamos espacialmente o modo k equivalente ao primeiro máximo da Função de Airy (o círculo central dos anéis de transmissão). Desta maneira, mesmo quando operávamos com distâncias entre os espelhos $d > \lambda_e/2$, a qual permitia emissão num número $n > 1$ de modos, observávamos sempre o mesmo único modo.
5. Como estávamos interessados em ver o ponto de transição da emissão espontânea para emissão estimulada, o que representava um sinal de emissão a nível do ruído da fotomultiplicadora (0.5 mV), foi adaptado ao conector da fotomultiplicadora um amplificador, que amplificava o sinal de um fator 10 (ganho final 10^7), um *emitter follower* que reduzia a impedância do circuito, e um RC que integrava o sinal.
6. O sistema de revelação era o mesmo que o anterior, o sinal resultante da fotomultiplicadora era analisado por um dos dois canais do osciloscópio, enquanto que o sinal do laser de excitação servia como sinal de referimento e trigger. Só que neste caso o osciloscópio era comandado através de um computador. O software desenvolvido, fazia com que o osciloscópio partisse em modo "sequence" pegando até 250 pulsos, simultaneamente de emissão num canal e de excitação no outro, por giro do filtro. Estes dados eram gravados em disketes e elaborados após as medições. Eramos limitados pelo computador em até 500 pulsos. O software de elaboração de dados tinha as seguintes funções:
 - Selecionar os pulsos em intensidades máximas e mínimas, as quais eram limitadas pela escala de intensidade escolhida para operação
 - Traçar a curva linear e exponencial da intensidade de excitação em relação a intensidade de emissão
 - Calcular a margem de erro, por meio de uma média de pontos determinados previamente.

Deste modo obtivemos as curvas mostradas nas Figura 6.5, 6.6 e 6.7. Nestas Figuras mostramos o ganho quando a distância entre espelhos era respectivamente $\lambda_e/2$, $20\lambda_e/2$ e $30\lambda_e/2$. As três curvas foram realizadas numa mesma escala, porém logicamente as condições não são as mesmas. Quando $d = 30\lambda_e/2$ o volume do meio ativo é 30 vezes maior que quando $d \simeq \lambda_e/2$, e existem muito mais modos transversais. Mesmo assim o ganho é aproximadamente duas vezes maior quando $d \simeq \lambda_e/2$ ($G=2.24$) que quando $d = 30\lambda_e/2$ ($G=1.34$). Considerando o aumento do volume do meio ativo o ganho para $d \simeq \lambda_e/2$ é 60 vezes maior que para $d = 30\lambda_e/2$.

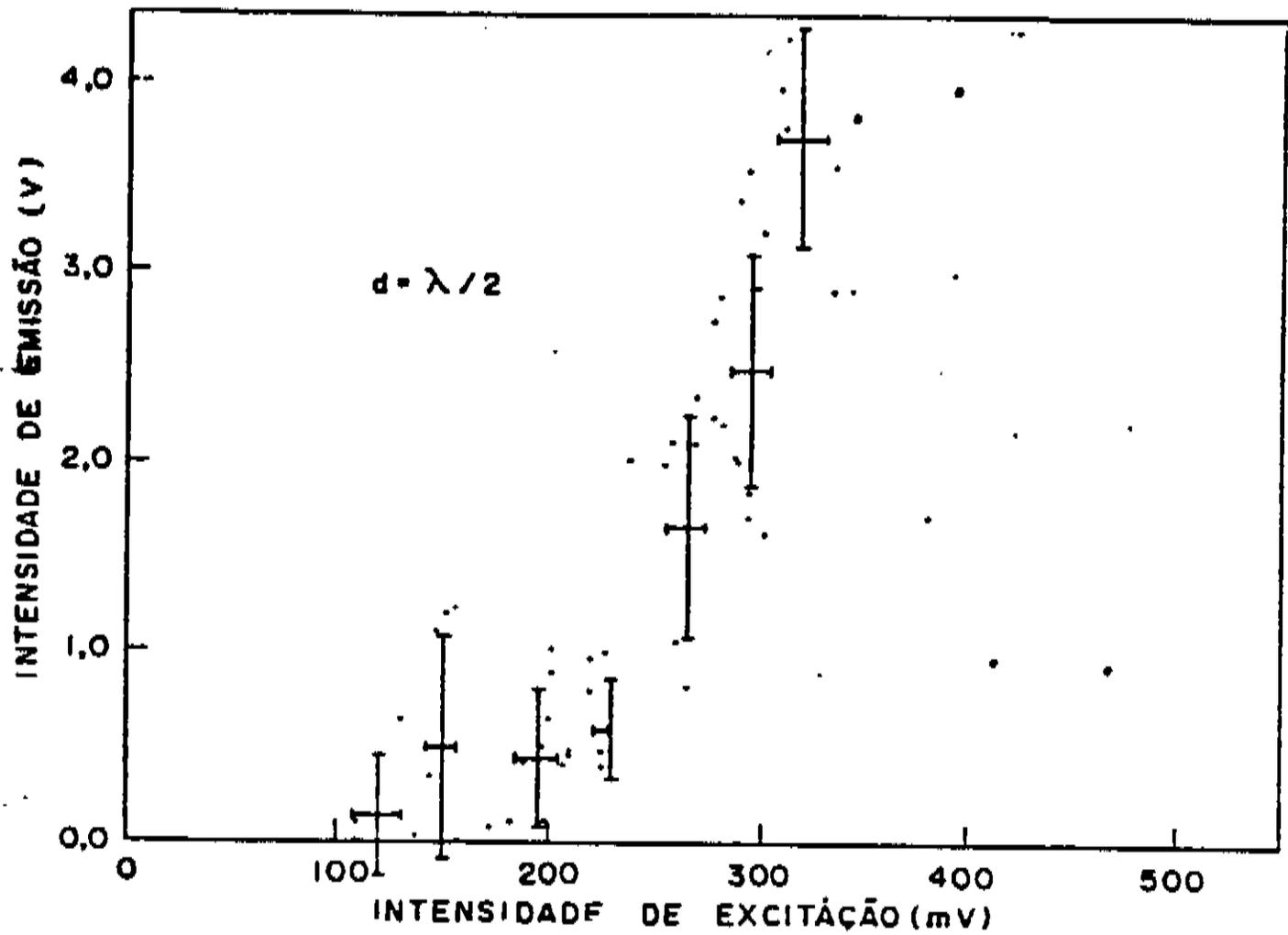


Figura 6.5: Intensidade de emissão em relação a intensidade de excitação quando a distância entre espelhos $d = \lambda_e/2$.

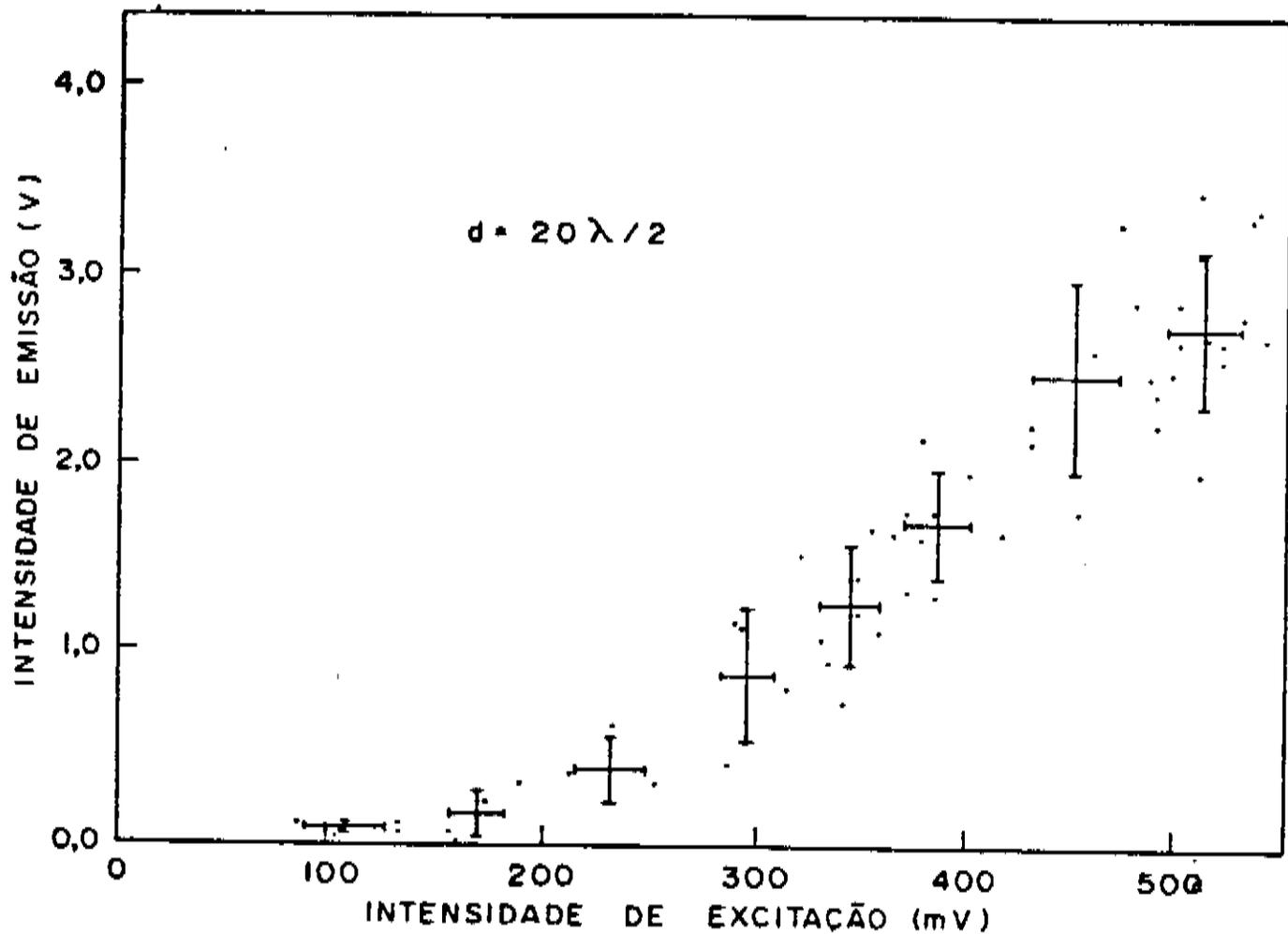


Figura 6.6: Intensidade de emissão em relação a intensidade de excitação quando a distância entre espelhos $d = 20\lambda_e/2$.

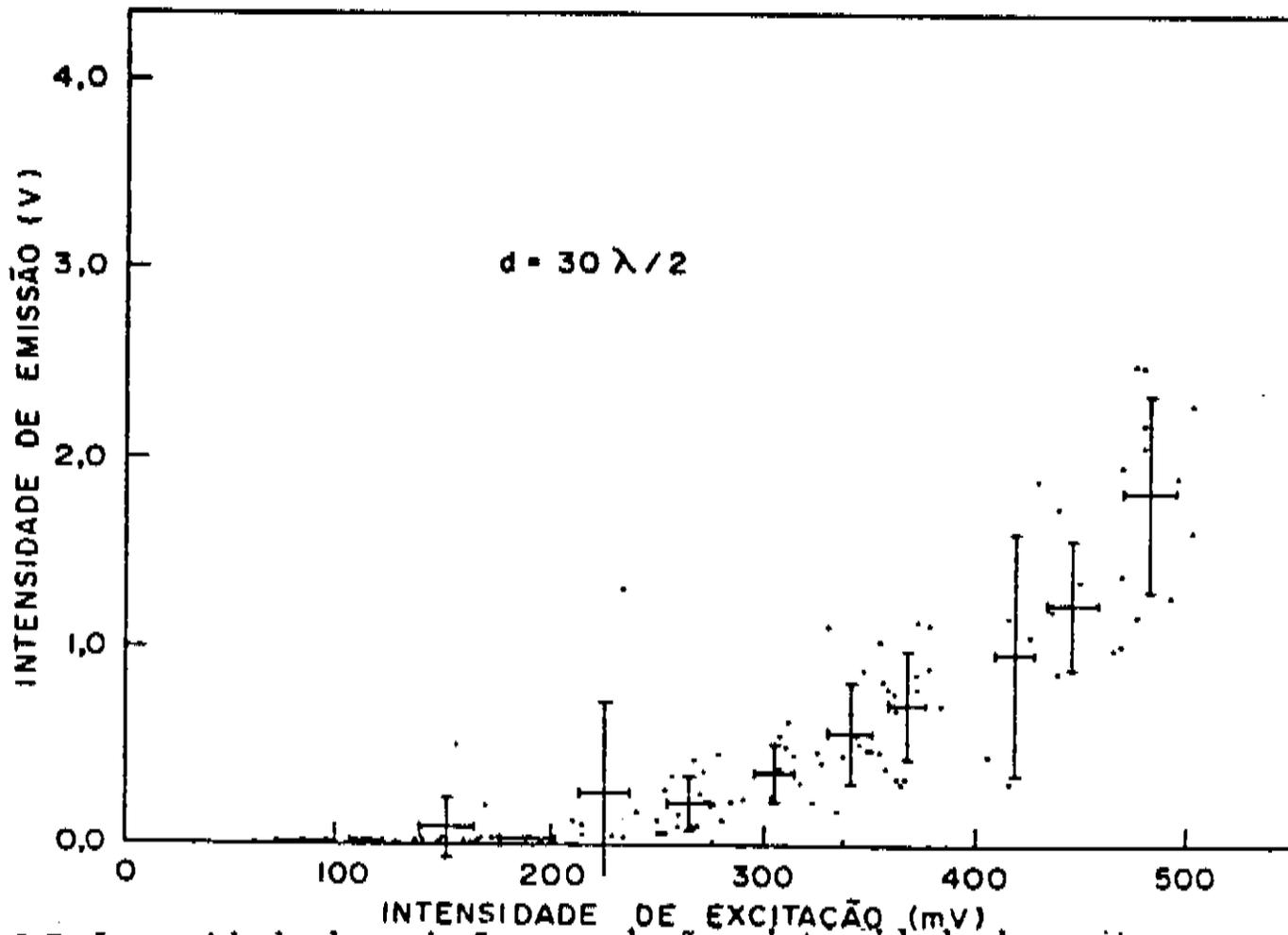


Figura 6.7: Intensidade de emissão em relação a intensidade de excitação quando a distância entre espelhos $d = 30\lambda_c/2$

Na Figura 6.8 mostramos as tres curvas de intensidade de emissão para diferentes distâncias entre espelhos sobrepostas. Desta Figura podemos ver claramente que a intensidade de excitação necessária para que ocorra a transição do regime linear para o exponencial quando $d = \lambda_c/2$, é 2 vezes maior que quando $d = 30\lambda_c/2$. Considerando o aumento no volume de meio ativo, a intensidade deve ser 60 vezes maior.

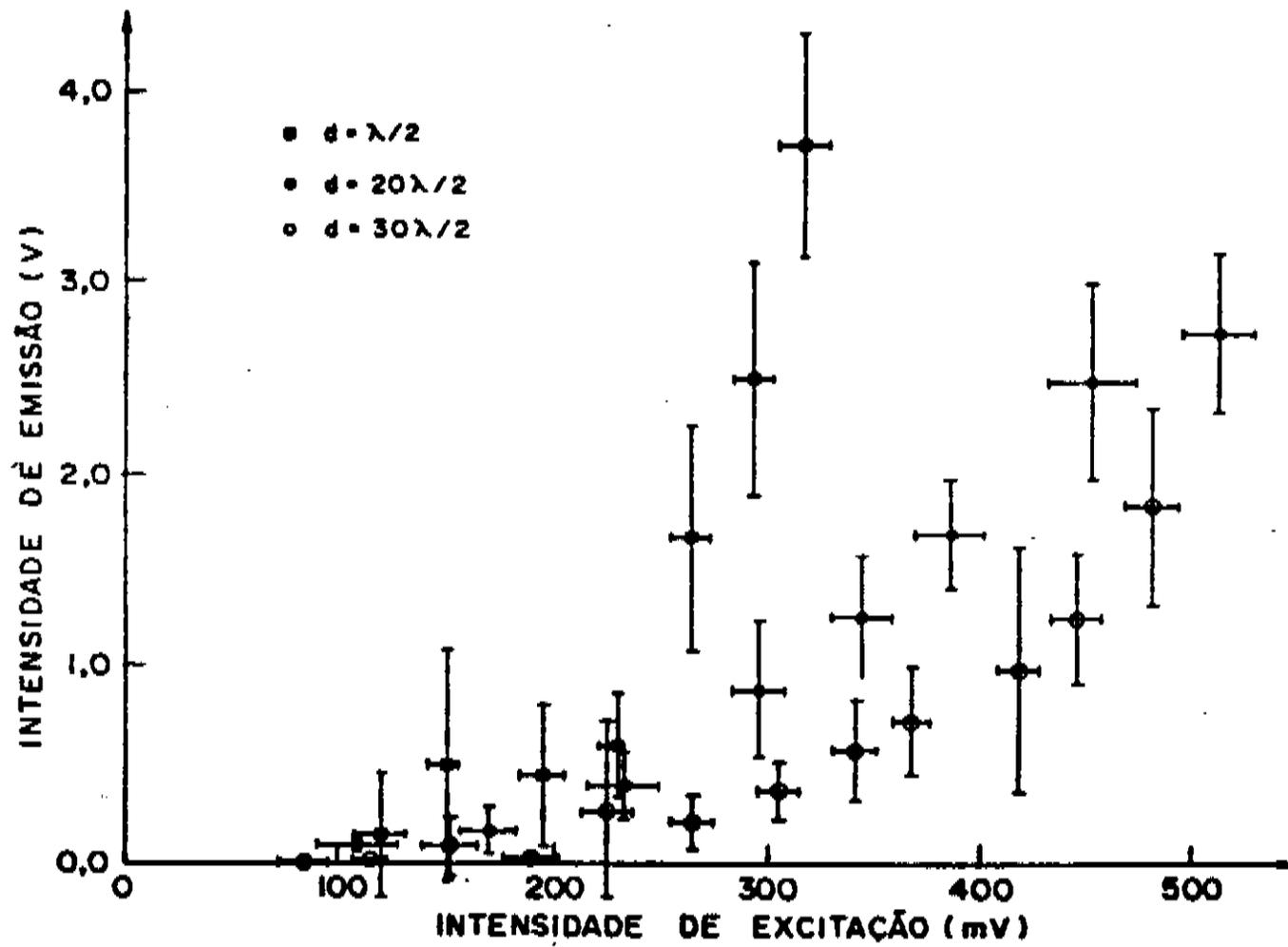


Figura 6.8: Intensidade de emissão em relação a intensidade de excitação para tres diferentes distâncias entre espelhos. Os quadradinhos representam $d = \lambda_e/2$, os círculos cheios $d = 20\lambda_e/2$ e os círculos vazios $d = 30\lambda_e/2$

Bibliografia

- [1] E. A. Power, *Introductory Quantum Electrodynamics*, Elsevier, New York, (1965).
- [2] F. De Martini and G. R. Jacobovitz, *Phys. Rev. Lett.*, **60**, 1711, (1988).
- [3] R. H. Dicke, *Phys. Rev.*, **93**, 99, (1954).
- [4] L. Allen and J. H. Eberly, *Optical resonance & two-level atoms*, John Wiley & Sons, NY, (1975).
- [5] M. Sargent III, M. Scully and W. E. Lamb Jr, *Laser Physics*, Addison -Wesley publishing company, (1974).
- [6] H. B. Callen, *Thermodynamics*, John Wiley & Sons, NY, (1960).
- [7] L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Statistical Physics*, Pergamon Press, Oxford, Cap. XIV, (1959).
- [8] H. Haken, *Rev. Mod. Phys.*, **47**, 67, (1975).
- [9] V. DeGiorgio and M.O. Scully, *Phys. Rev. A*, **2**, 1170, (1970).
- [10] C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics*, **3 ed**, John Wiley & Sons Inc., New York, (1967).
- [11] R. Loudon, *The quantum theory of light*, **Ed.2** Clarendon Express, Oxford, eq.5.172, (1983).
- [12] R. Graham, *Phys. Rev. Lett.*, **31**, 1479, (1973)
- [13] J.C. Goldstein, M.O. Scully and P.A. Lee, *Phys. Lett.*, **26A**, 317, (1971).

Capítulo 7

Conclusão

Neste trabalho foram estudados processos fundamentais de emissão de fótons quando na presença de um único modo de radiação, dentro do contexto da eletrodinâmica quântica. Para esta finalidade foi construída uma microcavidade ativa do tipo Fabry-Perot, onde a distância entre espelhos é da ordem do comprimento de onda de emissão das moléculas $d \simeq \lambda_e/2 = 0.315\mu m$. Esta cavidade atua como um contorno eficaz no confinamento dos modos de radiação ($L = 3cm \gg d = 0.315\mu m$), selecionando até um único modo de radiação eletromagnético.

Com nossas condições experimentais fomos capazes de mostrar diretamente no domínio do tempo a inibição da emissão espontânea quando a distância entre espelhos $d < \lambda_e/2$. Este efeito resulta num aumento do tempo de vida da fluorescência de um fator 3 em relação àquele no espaço livre. Mostramos também que a emissão depende da posição da molécula excitada em relação ao contorno eletromagnético. Desenvolvemos uma teoria, no formalismo da eletrodinâmica quântica de Heisenberg, que descreve o comportamento experimental observado.

Observamos que na condição onde só um modo é permitido ($d = \lambda_e/2$), o processo de incremento da emissão espontânea é praticamente inexistente. Nesta condição o primeiro fóton emitido espontaneamente provoca uma quebra de simetria no sistema, fazendo com que toda emissão espontânea se transforme em emissão estimulada. Deste modo a fluorescência não é mais uma fonte de perdas, e o ganho é aumentado drasticamente. Nestas condições a microcavidade atua como um laser com limiar praticamente zero, e um ganho bastante elevado teoricamente $\simeq 10^5 cm/kW$, a baixíssimos níveis de excitação. Experimentalmente observamos um fator de ganho de até 10, devido as condições experimentais de detecção.

Os resultados apresentados acima ocorrem devido ao forte confinamento do campo de vácuo, portanto podem ser estendidos para todas as situações onde o campo de vácuo

é a origem do processo de emissão espontânea; por exemplo em espalhamento Raman e Brillouin, e osciladores paramétricos. Como a distância entre espelhos desta cavidade é da ordem do comprimento de onda de emissão, não é necessário que haja casamento de fase, o que resulta numa situação interessante para estudos de fenômenos não lineares. A microcavidade poderá ter também grande importância tecnológica devido as suas propriedades não usuais de limiar zero, dimensões reduzidas e alto ganho mesmo a baixíssimo níveis de excitação. Estas propriedades são atrativas para dispositivos de óptica integrada, em miniaturização de elementos ópticos ativos em estruturas semicondutoras integradas.

Uma eficiência maior no confinamento de modos pode ser conseguida através de uma microcavidade tridimensional, porém com nossas condições experimentais já fomos capazes de obter um confinamento de modos bom o bastante para que os efeitos de modificações no processo de emissão fossem detectados. Estas fontes de perda não interferem no efeito, mas é lógico que eliminando teríamos um efeito muito mais pronunciado.

UNIDADE	IF
PROC.	
DOAÇÃO, PREÇO ESTIMATIVO	02150,00
DATA	05.03.90