

Universidade Estadual de Campinas-Unicamp
Instituto de Física “Gleb Wataghin”

**Espectroscopia de Dupla Ressonância
Óptica em Cálcio**

Dissertação de Mestrado

Luciana Claudia Martins Ferreira Diogenes

Orientador: Prof. Dr. Flávio Caldas da Cruz

Banca Examinadora

Prof. Dr. Armando Mirage - IPEN

Prof. Dr. Daniel Pereira – UNICAMP/IFGW/ DEQ

FICHA CATALOGRÁFICA ELABORADA PELA
BIBLIOTECA DO IFGW - UNICAMP

D621e	<p style="text-align: center;">Diogenes, Luciana Claudia Martins Ferreira</p> <p style="text-align: center;">Espectroscopia de dupla ressonância óptica em cálcio / Luciana Claudia Martins Ferreira Diogenes. – Campinas, SP : [s.n.], 2004.</p> <p style="text-align: center;">Orientador: Flávio Caldas da Cruz. Dissertação (mestrado) - Universidade Estadual de Campinas, Instituto de Física “Gleb Wataghin”.</p> <p style="text-align: center;">1. Lasers. 2. Física atômica e molecular. 3. Espectroscopia atômica. 4. Cálcio. 5. Átomos. I. Cruz, Flávio Caldas da. II. Universidade Estadual de Campinas. Instituto de Física “Gleb Wataghin”. III. Título.</p>
-------	--

- **Título em inglês:** Double resonance optical spectroscopy in calcium
- **Palavras-chave em inglês (Keywords):**
 - 1. Lasers
 - 2. Atomic and molecular physics
 - 3. Atomic spectroscopy
 - 4. Calcium
 - 5. Atoms
- **Área de concentração:** Física atômica e molecular
- **Titulação:** Mestre em física
- **Banca examinadora:**
 - Prof. Flávio Caldas da Cruz
 - Prof. Armando Mirage
 - Prof. Daniel Pereira
- **Data da defesa:** 19.11.2004

Agradecimentos

Gostaria de expressar meus eternos agradecimentos ao meu orientador Prof. Flávio C. Cruz por me dar uma oportunidade de trabalhar em um grupo de pessoas que tornam a ciência brasileira um motivo de orgulho para nosso país, por todo o apoio na execução desse trabalho e pela amizade;

ao suporte financeiro da Fapesp, ao qual expresso minha gratidão;

aos professores do nosso grupo de pesquisa: Prof. Artêmio Scalabrin, Prof. Daniel Pereira, Profa. Elza Vasconcelos; ao técnico Jorge; aos colegas que um dia fizeram parte do grupo ou que ainda estão presentes: Daniela, David, Giovana, Haroldo, Leverson, Lucas, Ronaldo em especial, ao Davi, Reinaldo e ao Wictor pelas suas contribuições e pelo auxílio em todos os momentos deste trabalho;

ao técnico da oficina mecânica do IFGW João Batista e ao Prof. Armando Mirage do IPEN;

à secretária do DEQ: Myoko e às funcionárias da limpeza desse departamento;

aos meus amigos que estão comigo desde a graduação: Prof. Antônio Mansanares, Carina Alexandrino, Eliane Oliveira, Lázaro Padilha e Wanessa Gazzoni;

a todos os meus amigos e amigas aos quais sempre pude contar;

a minha mãe Telma, pelo zelo excessivo, pelo carinho e pelas horas de risos;

ao meu pai Pinheiro, por ser uma pessoa tão incentivadora, por todo seu amor e pela sua presença em todos os momentos;

e por fim,

a minha querida vovó Marieta, ao qual ofereço não apenas essa dissertação, mas todo o meu coração e minha alma...

Resumo

Este trabalho consiste em estudar a fraca transição $^1S_0-^3P_1$ do cálcio em um feixe atômico. Essa transição de intercombinação em 657 nm é promissora para um padrão unificado de comprimento, tempo e frequência. A sua detecção óptica diretamente é dificultada por ser uma transição fraca, i.e, com baixa taxa de espalhamento ($\gamma \approx 2000 \text{ s}^{-1}$). Como o cálcio possui uma forte transição ($^1S_0-^1P_1$) que compartilha o mesmo nível fundamental com essa transição fraca, podemos observar que quando dois lasers estão acessando ambas as transições o sinal de fluorescência da transição $^1S_0-^1P_1$ sofre uma mudança à medida que o laser em 657 nm aproxima-se da ressonância com a transição $^1S_0-^3P_1$. Uma simulação foi realizada visando obter as populações de cada um dos três níveis envolvidos em função da dessintonia e intensidade dos lasers.

Abstract

This work consists of a study of the weak $^1S_0-^3P_1$ calcium transition in an atomic beam. This intercombination transition at 657 nm is a promising unified standard of length, time and frequency. Direct optical detection requires is difficult because it is a weak transition ($\gamma \approx 2000 \text{ s}^{-1}$). However since calcium has a strong transition ($^1S_0-^1P_1$) which shares the ground state with this weak transition, we can observe that the fluorescence from the $^1S_0-^1P_1$ transition is modified when a laser at 657 nm is tuned to resonance with the weak intercombination transition. A simulation was carried out to obtain the populations of these three levels as function of the lasers detuning and intensity.

Índice

Capítulo 1 Introdução

1.1 Introdução-----	01
1.2 As primeiras idéias de dupla ressonância -----	03
1.3 Organização da tese-----	04

Capítulo 2 Sistema experimental

2.1 Sistema experimental-----	06
2.2 Calibração da frequência dos lasers de diodo e Ti:Safira duplicado-----	08
2.3 Lasers utilizados -----	10
2.3.1 Laser de Ti:Safira duplicado em frequência-----	10
2.3.1.1 Componentes ópticos do laser de Ti:Safira-----	13
2.3.1.1.1 Diodo óptico-----	13
2.3.1.1.2 Filtro birrefringente-----	14
2.3.1.1.2.1 Birrefringência-----	14
2.3.1.1.2.2 O filtro birrefringente-----	17
2.3.2 Laser de diodo -----	18

Capítulo 3 Resultados espectroscópicos

3.1 A técnica de modulação-----	19
3.2 Observações experimentais-----	20
3.3 Resultados experimentais -----	22
3.4 Largura de linha -----	24

Capítulo 4 Simulação dos espectros via matriz densidade

4.1 Introdução-----	27
4.2 Matriz densidade para sistemas de níveis Tipo V sem efeito Doppler-----	27
4.3 Cálculo das populações sem efeito Doppler-----	33
4.4 Cálculo das populações com efeito Doppler -----	43

4.5 Simulando o experimento -----	45
Capítulo 5 Conclusão	
5.1 Conclusão-----	49
Apêndices	
Comentários-----	51
A.1 Programa para obter as equações de taxa-----	52
A.2 Programa para obter as populações dos níveis 1S_0 , 3P_1 e 1P_1 sem efeito Doppler -----	53
B.1 Estudo de dupla ressonância em lâmpadas de catodo oco-----	54
B.1.1 Introdução-----	54
B.2 Caracterização do laser de Argônio-----	56
B.3 Espectro de fluorescência da lâmpada -----	57
B.4 A lâmpada de catodo oco-----	62
B.4.1 A descarga na lâmpada-----	63
B.4.1.1 A lâmpada de dois eletrodos planos-----	63
B.4.1.2 A descarga “glow” normal -----	65
B.4.1.3 Otimização da pressão na lâmpada de catodo oco -----	66
C.1 Probabilidade de transições de intercombinação -----	68
Referências bibliográficas-----	73

Capítulo 1

Introdução

1.1 Introdução

O Cálcio é um dos elementos mais abundantes na Terra e pertence à coluna IIA da tabela periódica, ou seja, o grupo dos alcalinos terrosos. O isótopo mais abundante ^{40}Ca (96,97%) possui algumas características físicas importantes como ter o spin nuclear nulo. Sendo assim, não possui estrutura hiperfina. Seus dois elétrons na camada de valência dão origem a uma série de estados singletos e tripletos onde as transições intra-série têm uma alta probabilidade de transição. Um exemplo é a transição $^1\text{S}_0 - ^1\text{P}_1$ que é muito eficiente para usar a pressão de radiação, fazendo o controle de movimento dos átomos [1]. Atualmente é possível encontrar muitos grupos em todo o mundo que fazem aprisionamento de átomos usando armadilhas magneto-ópticas em metais alcalinos. Armadilhas com alcalinos terrosos apresentam dificuldades técnicas maiores, pois os lasers que acessam suas transições estão na região do violeta e ultravioleta e elas têm uma intensidade de saturação elevada, exigindo lasers potentes para saturá-las. Além disso, os pontos de ebulição dos metais do grupo IIA são muito maiores que a dos metais alcalinos devido a ligação metálica ser bem mais forte, garantindo a dureza desses elementos [2]. Por isso, é necessário a construção de um forno para a vaporização e os metais alcalinos terrosos são estudados em forma de um feixe atômico. O nosso grupo de pesquisa, o grupo de “Lasers e Aplicações” do IFGW da Unicamp, é um dos poucos grupos do mundo que possui uma armadilha de Cálcio [3-6].

As transições singletos-tripletos, como por exemplo a $^1\text{S}_0 - ^3\text{P}_1$, possuem uma largura natural muito pequena e em primeira aproximação são ditas proibidas.

Os três primeiros níveis de mais baixa energia do Cálcio são os estados metaestáveis 3P com $J=0, 1$ e 2 (fig.1.1). A transição do estado fundamental ao 3P_1 é proibida por spin, e ao 3P_0 ou ao 3P_2 além de serem proibidas por spin, também são proibidas por dipolo elétrico. Com essa dupla proibição medir a fluorescência dessas duas transições torna-se impossível. Podemos ver isso na fig. (1.1), onde é mostrado o valor da taxa de decaimento de cada transição [7]. O tempo de vida ($1/\gamma$) de 1S_0 - 3P_0 é cerca de 81253 anos, aproximadamente 14 vezes mais que a meia vida do isótopo radioativo ^{14}C que é de 5730 anos [8].

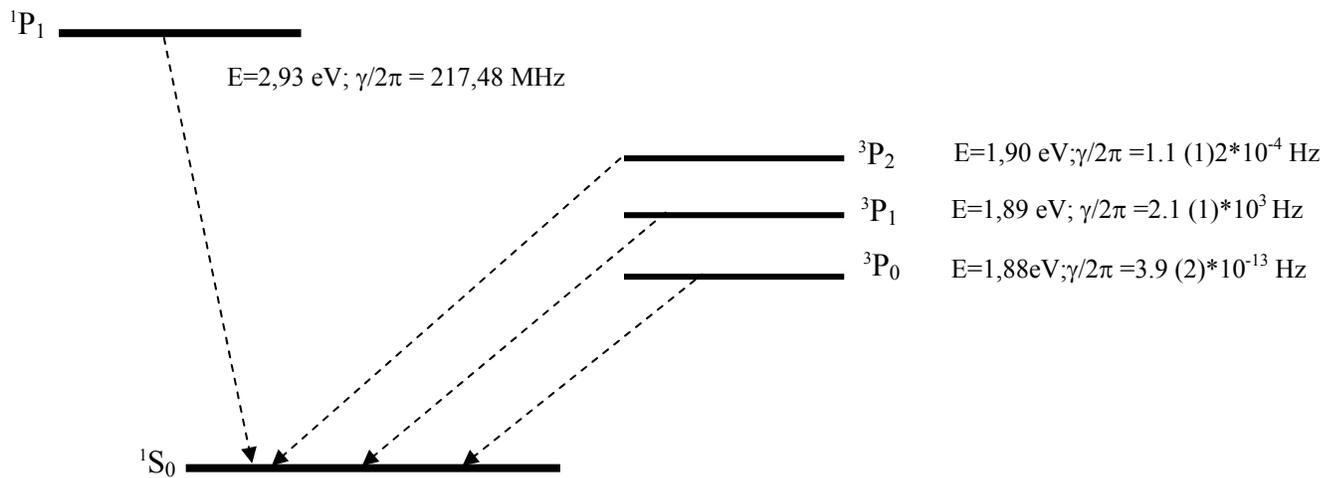


Fig. 1.1: Diagrama de níveis indicando os três primeiros estados excitados do Cálcio. A energia e a taxa de decaimento estão indicados ao lado de cada nível.

A transição 1S_0 - 3P_1 é conhecida como “transição de relógio” [9] por ser considerada uma ótima candidata a padrão óptico de tempo, comprimento e frequência. Por isto, ela será estudada neste trabalho. Essa transição é acessada na região óptica por um laser vermelho em 657 nm. Por ela ser fraca e estreita sua detecção requer o uso de técnicas especiais em feixes atômicos ou armadilhas. Essa transição já havia sido detectada anteriormente na Unicamp, em lâmpadas de catodo-odo [10]. Essas lâmpadas produzem uma densidade alta de átomos de Cálcio por processo de colisões (“sputtering”) com o gás em seu interior. Os átomos opticamente excitados para o nível 3P_1 são ionizados por colisões ou transferem sua energia a um elétron aumentando a corrente. Detectar esse sinal elétrico é muito mais sensível nesse caso porque o sinal óptico (fluorescência) é um sinal muito fraco devido a

um número pequeno de fótons emitidos por segundo e detectados em um pequeno ângulo sólido (fotodetector). Infelizmente, as lâmpadas não foram utilizadas neste trabalho devido a problemas na descarga e por isso escolhemos o feixe atômico para este estudo de dupla ressonância. A vantagem é que o sinal detectado não inclui alargamento Doppler de primeira ordem quando lasers são usados na direção transversal ao feixe atômico e também não possui alargamento colisional, diferentemente da lâmpada onde as linhas espectrais são alargadas pelo efeito Doppler e por colisões entre os átomos de Cálcio e do gás. O modo de detecção, conhecido como “electron shelving” [11], consiste em utilizar a forte transição $^1S_0-^1P_1$ e medir sua fluorescência quando o laser ressonante a $^1S_0-^3P_1$ é sintonizado em comprimento de onda. Por compartilharem o mesmo nível fundamental 1S_0 , o sinal de fluorescência se altera quando um dos lasers é sintonizado.

1.2 As primeiras idéias de dupla ressonância

Em 1975, o físico Hans Dehmelt já era conhecido por aprisionar íons individuais em armadilhas. Ele pensou que um elétron poderia “saltar” para um nível metaestável e ficar lá por longo tempo antes de retornar ao seu nível fundamental [11-14]. Desse modo, períodos escuros e claros ocorreriam. Baseado nesse esquema, Dehmelt achou que seria capaz de medir com grande precisão o tempo de vida de um nível metaestável. Considere o arranjo proposto por Dehmelt (fig. (1.2)):

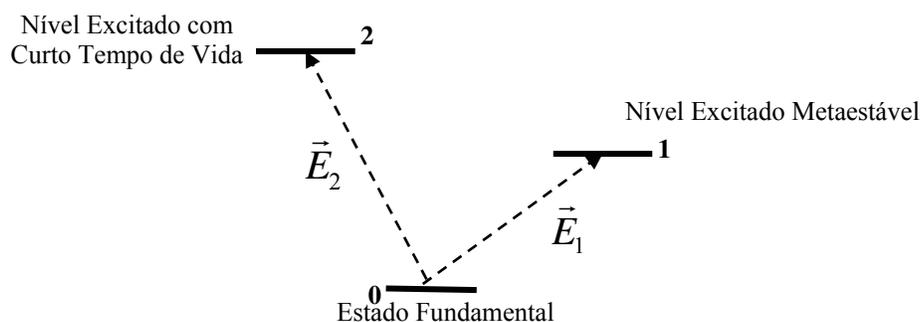


Fig. 1.2: Esquema proposto por Dehmelt para observar uma transição fraca (0-1) através da detecção de uma transição forte (0-2).

Neste chamado sistema V, 0 é o nível fundamental, 1 e 2 são os estados excitados. O tempo de vida do nível 1 é da ordem de segundos e o do nível 2 de nanosegundos. No esquema de

Dehmelt, quando ambas as transições são excitadas por campos \vec{E}_1 e \vec{E}_2 , a fluorescência da transição $0 \rightarrow 2$ seria afetada pela transição proibida $0 \rightarrow 1$. Quando \vec{E}_1 é desligado, fótons serão emitidos a uma taxa igual a $\gamma_2/2\pi$, onde $\gamma_2 = 1/\tau_2$ é a largura natural da transição $0 \rightarrow 2$. Porém, com \vec{E}_1 ligado, o elétron as vezes pode se encontrar “guardado na prateleira” 1 (“electron shelving”), de forma que a fluorescência se desliga pelo tempo de vida desse nível. De acordo com Dehmelt, este modelo possibilita uma maneira de detectar saltos quânticos individuais $0 \rightarrow 1$ com grande eficiência.

Alguns físicos desconfiaram da intuição semiclassical de Dehmelt e usaram a mecânica ondulatória para mostrar que não ocorreriam períodos escuros. Do ponto de vista quântico, pode-se questionar se a imagem de um elétron “guardado na prateleira” não é um pouco clássica demais. Para uma iluminação coerente, como o laser, o átomo deveria estar numa superposição dos três níveis de forma que o tempo todo haveria uma forte probabilidade de emissão de 0 para 2 . Fótons da transição $0 \rightarrow 1$ poderiam aparecer, mas a intermitência estaria ausente.

Apenas em 1986 experimentos mostraram que de fato períodos escuros eram observados. Mas, o que Dehmelt não previu é que nem sempre um período de escuridão termina com a emissão de um fóton emitido da transição $1 \rightarrow 0$, ou seja, os períodos escuros não seriam neste caso devido a absorção de um fóton do campo \vec{E}_1 sintonizado na transição “proibida”. E também fótons referentes ao decaimento da transição $1 \rightarrow 0$ poderiam aparecer sem criar períodos escuros.

1.3 Organização da Tese

O capítulo 2 mostra matematicamente como são calculadas as probabilidades de transições entre estados singletos e tripletos. Essas transições, como a 1S_0 - 3P_1 , são proibidas, segundo as regras de seleção.

No capítulo 3 nós descreveremos o experimento de dupla ressonância em um feixe atômico de Cálcio. Mostraremos o sistema experimental usado, além de um detalhamento sobre os dois lasers empregados no experimento.

No capítulo 4 os resultados são mostrados em forma de gráficos obtidos da parte experimental do capítulo 2 e em seguida analisados.

O capítulo 5 inclui uma simulação teórica das populações de um sistema de níveis tipo V. Pela equação de Liouville, pudemos simular as curvas experimentais obtidas.

No capítulo 6 são apresentadas as conclusões da tese.

Nos apêndices A1 e A2 são mostrados os programas das simulações do capítulo 5. No apêndice B1 descrevemos um experimento de dupla ressonância do Cálcio que poderia ser feito visando obter o espectro da transição 1S_0 - 3P_1 via sinal optogalvânico em uma lâmpada de catodo oco. No apêndice B2 mostramos matematicamente o procedimento para calcular a probabilidade de transição em transições de intercombinação.

Capítulo 2

Sistema experimental

2.1 Sistema experimental

Neste capítulo descreveremos os detalhes experimentais usados para detectar a transição $^1S_0-^3P_1$ do Cálcio via fluorescência da transição $^1S_0-^1P_1$ (fig.1.1) em um feixe atômico. Para a realização do experimento fizemos a montagem mostrada na fig. 2.1.

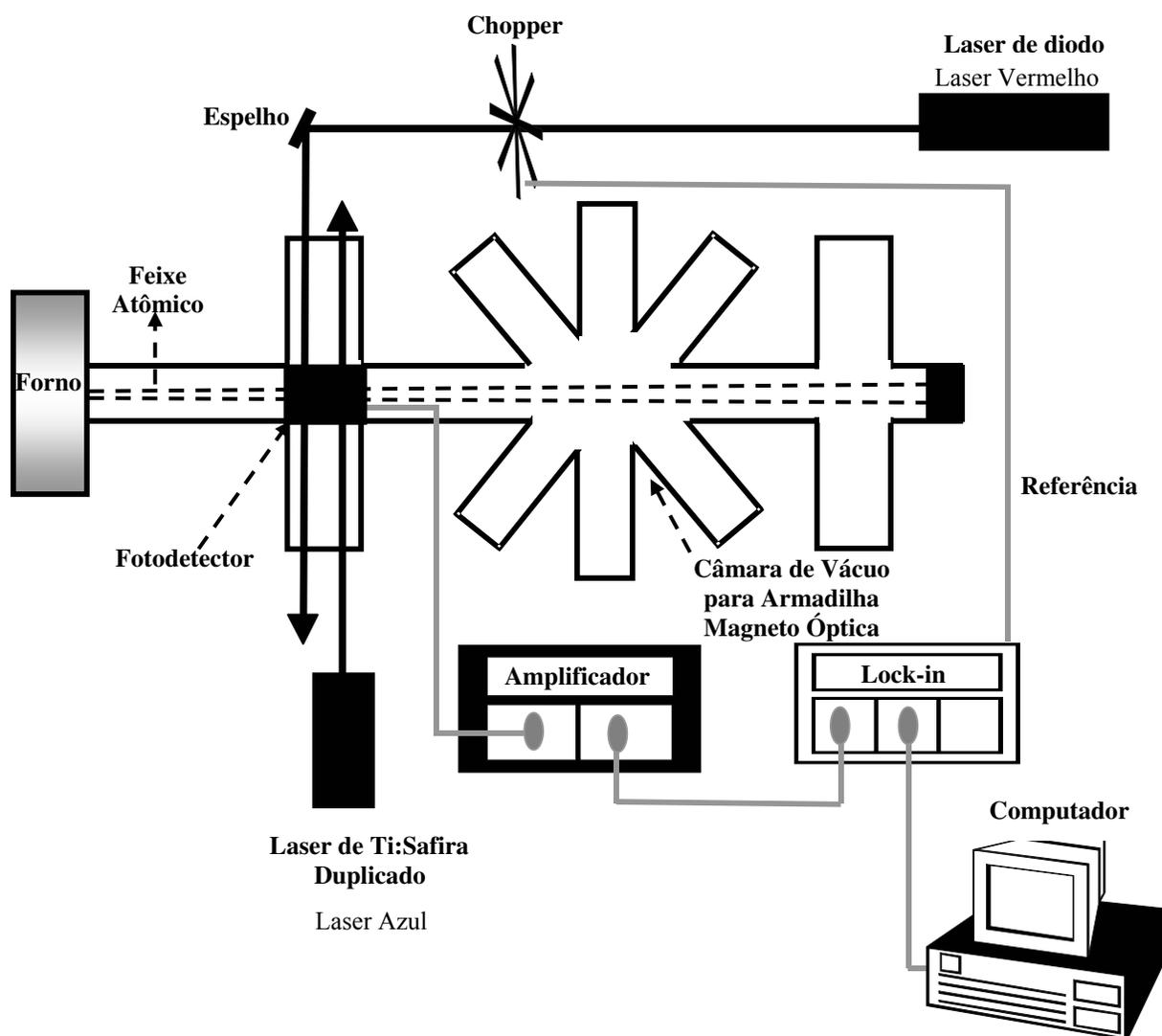


Fig.2.1: Montagem do sistema para espectroscopia de dupla ressonância. Linhas cinzas: cabos de conexão; linha pontilhada: feixe atômico de Cálcio e sua divergência.

Na fig. 2.1 a armadilha magneto-óptica, o laser e fotodetector são vistos de cima, enquanto que os aparelhos eletrônicos têm sua visualização frontal. Um forno aquece os átomos de Cálcio até aproximadamente 500°C e eles saem com uma certa divergência e uma parte desses átomos interage com um laser que emite luz vermelha (laser de diodo) modulado por um chopper e depois com um laser que emite luz azul (laser de Ti: Safira duplicado em frequência). A distância estimada para que a população no nível 3P_1 decaia a 1/e do valor inicial para o nível fundamental 1S_0 é de aproximadamente 27 cm, onde o tempo para esse decaimento é $1/\gamma_1$ e a velocidade estimada é de 700 m/s. A taxa de decaimento da transição 1S_0 - 3P_1 é simplesmente $\gamma_1/2\pi = 400$ Hz. Para valores abaixo de 27 cm, há um número maior de átomos no nível 3P_1 que vão interagir com o laser de Ti:Safira duplicado e irão reduzir a fluorescência da transição 1S_0 - 1P_1 .

Devido ao alargamento Doppler somente um subgrupo de átomos pode interagir com os lasers [15]. Ao sintonizarmos o laser vermelho, é feita uma escolha de átomos que vão ser excitados para o nível 3P_1 . Com o laser azul fixo no centro da ressonância, somente os átomos com componente de velocidade nula na direção do feixe irão interagir com ele. Assim, menos átomos são excitados para 1P_1 se o laser vermelho estiver atuando na transição 1S_0 - 3P_1 .

O laser vermelho modulado em amplitude faz com que a fluorescência da transição 1S_0 - 1P_1 também seja modulada. Ambos os sinais têm mesma frequência, mas apresentam fases diferentes. O sinal de fluorescência é captado por um fotodetector e então é amplificado. Com um “lock-in” uma detecção sensível a fase pode ser feita onde os sinais amplificado e de referência são enviados a ele, sendo a resposta analisada em um computador com o uso de um programa de aquisição de dados. Espalhamento de luz vermelha por causa de reflexões nas janelas ópticas contribui para o “background”. O espalhamento da luz azul não contribui para o “background”, pois esse feixe não está modulado.

O feixe azul tem um raio R de 0.2 cm e uma potência máxima de 40 mW. Sendo o parâmetro de saturação S dado por:

$$S = \frac{I}{I_s} = \frac{P}{\pi R^2 I_s} \quad (2.1)$$

onde $I_s = \pi hc / (3\lambda^3 \tau)$ é a intensidade de saturação (λ é o comprimento de onda associado à transição e τ é o tempo de vida do nível superior); I : Intensidade do laser.

Assim, o parâmetro de saturação máximo é 5.3 com $I_s = 60 \text{ mW/cm}^2$.

O laser vermelho apresenta uma largura de linha de aproximadamente 1 MHz. Por isso, numa estimativa grosseira é necessário multiplicar a eq. (2.1) por 400Hz/1MHz, que é a largura natural da transição $^1S_0-^3P_1$ dividida pela largura do laser. O raio estimado é da ordem de 0.1 cm e a intensidade de saturação $I_s = 1.9 \cdot 10^{-4} \text{ mW/cm}^2$. A potência máxima disponível é 10.2 mW. Portanto, o parâmetro de saturação máximo é de 683.8. Já o laser azul tem uma largura de alguns kHz, então, devido a sua estreita largura, não é preciso fazer as correções. A fig. (2.2) mostra os valores que podemos obter experimentalmente.

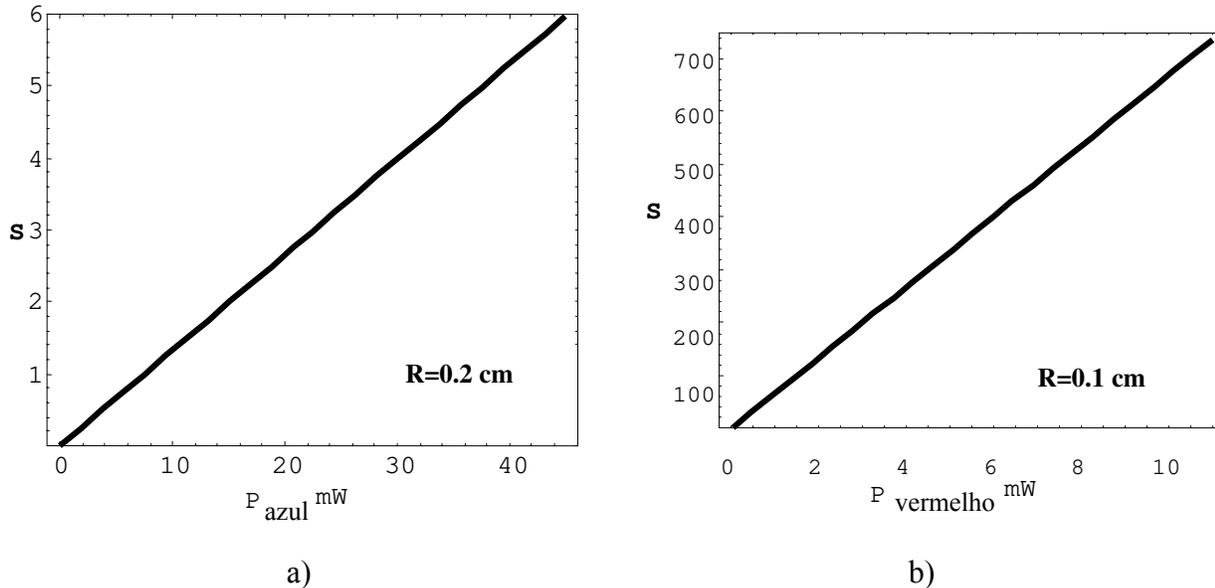


Fig. 2.2 : Parâmetro de saturação das transições $^1S_0-^1P_1$ a) e $^1S_0-^3P_1$ b) em função da potência P de um laser de Ti:Safira duplicado a) e em b) por um laser de diodo. Esses são os valores reais que podemos obter com os lasers usados nesse experimento. R é o raio de cada um dos feixes.

A largura de linha do laser azul é de aproximadamente 40 kHz [17], portanto desprezível em relação à largura da transição $^1S_0-^1P_1$.

2.2 Calibração da frequência dos lasers de diodo e Ti:Safira duplicado

Em espectroscopia a laser é necessário a determinação precisa dos níveis de energia atômicos ou moleculares mesmo se os níveis estiverem desdobrados por ações de campos externos como elétricos ou magnéticos. Isso exige um conhecimento preciso da frequência

do laser enquanto ele é sintonizado. A maioria dos lasers sintonizáveis mostram uma frequência ν (V) onde V é a tensão (por exemplo, uma rampa) do tipo [15]

$$\nu(V) = aV + b \quad (2.2)$$

onde V: voltagem aplicada no PZT que se acopla a um dos espelhos (usada para variar o comprimento da cavidade do laser); a, b: coeficientes angulares e lineares da reta, respectivamente.

Uma solução bastante precisa para conhecer o valor em MHz dada pela voltagem V, ou seja obter os valores da eq. (2.2), seria enviar uma parte do laser a um cristal eletro-óptico modulado por uma rádio-frequência (RF) de frequência f_{RF} e analisar as bandas laterais de modulação em frequência usando uma cavidade de Fabry-Perot de comprimento d fixo. O cristal varia seu índice de refração com a aplicação da RF criando picos de várias ordens (como em uma grade de difração). O intervalo entre os picos centrais de transmissão adjacentes da cavidade de Fabry-Perot $\delta\nu$ é chamado de free spectral range (FSR):

$$\delta\nu = \frac{c}{2nd} \quad (2.3)$$

onde n: índice de refração dentro da cavidade de Fabry-Perot; c: velocidade da luz $= 3 \cdot 10^8$ m/s no vácuo, d: comprimento da cavidade.

A cavidade de Fabry-Perot usada possui um comprimento d igual a 10 cm. Usando a eq. (2.4) o FSR da cavidade é exatamente 1,5 GHz para $n=1$.

A distância entre o pico central e a primeira banda lateral formada pela aplicação da RF é exatamente f_{RF} .

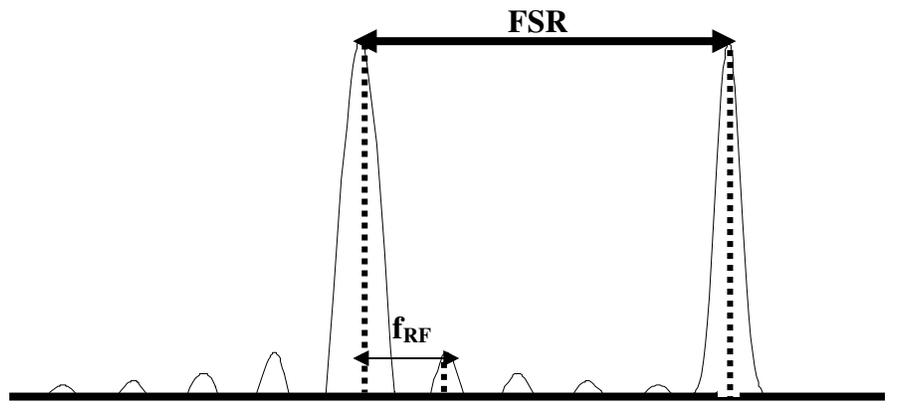


Fig. 2.3: Esquema mostrado na tela de um osciloscópio simulando os modos de uma cavidade de Fabry-Perot quando o feixe é anteriormente enviado a um cristal modulado com uma RF. A distância entre os picos centrais é o FSR da cavidade, e a distância entre o pico central e o de primeira ordem é exatamente f_{RF} .

A taxa V/s é dada pela subtração do valor máximo e mínimo de uma tensão tipo rampa dividida pelo tempo entre esses valores. Da fig. 2.3, encontramos através da separação em frequência entre o pico central e o de primeira ordem, o tempo levado na formação de ambos. Desse modo, a determinação do coeficiente em Hz/V sai de uma simples regra de três. O modelo para calibrar o laser vermelho foi exatamente esse. O valor de calibração para esse laser é de 221 MHz/V.

2.3 Lasers utilizados

Os lasers contínuos, sintonizáveis e monomodos são empregados em grande parte das pesquisas em espectroscopia atômica e molecular. Para o nosso estudo precisamos empregar dois lasers com as características descritas acima: uma fonte em 423 nm para acessar a forte transição ressonante $^1S_0-^1P_1$ e, outra em 657 nm que acessa a transição de intercombinação $^1S_0-^3P_1$, ambas do Cálcio.

2.3.1 Laser de Ti:Safira duplicado em frequência

Para acessar a transição $^1S_0-^1P_1$ do Cálcio um laser comercial de corante poderia ser empregado. Corantes como o carbostyryl 165 e coumarim 120 emitem num intervalo de 90 e 60 nm respectivamente que inclui 423 nm, sendo ambos bombeados por laser de Argônio em suas linhas UV. Mas, para cada 1,5 W de bombeio a potência de saída nessa linha é de aproximadamente 25 mW quando usado carbostyryl 165 e menos de 1 mW para o coumarim 120 (fig. 2.8) [16]. Além da potência laser de corante apresentar-se baixa, esses corantes têm uma pequena vida útil sendo necessária a troca frequente da solução.

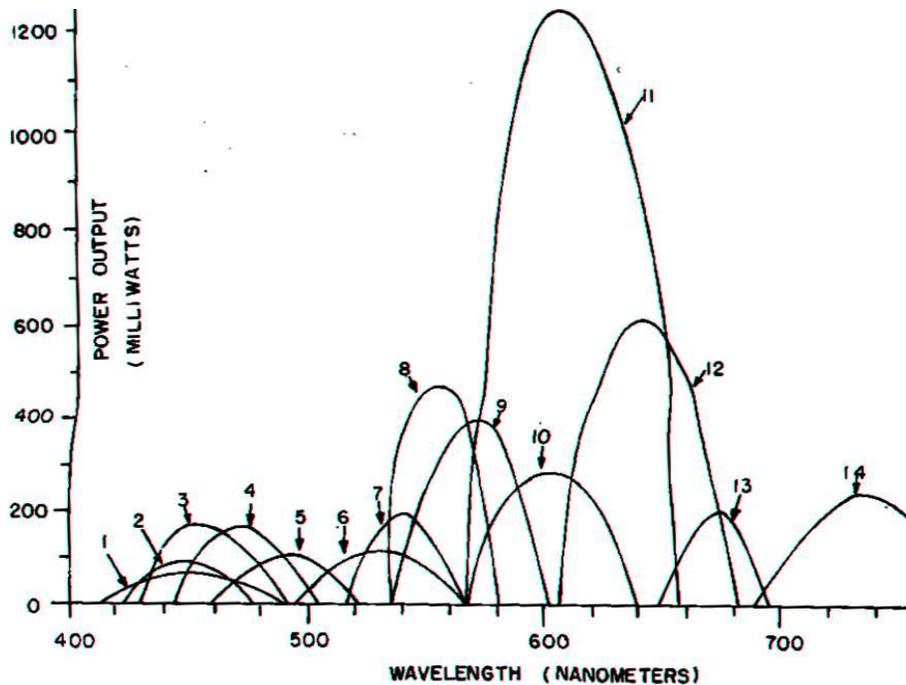


Fig.2.8: As curvas 1 e 2 representam a potência do lasers de corante que inclui o comprimento de onda capaz de acessar a transição $^1S_0-^1P_1$ do Cálcio (423 nm). O carbostyryl 165 é o corante usado na curva 1 e o coumarim 120 na curva 2. Em ambas as curvas foi usado um bombeio com laser de Argônio com potência de 1,5 W em suas linhas UV.

Lasers de diodo no azul também têm potências baixas e não seriam adequados a sua aplicação nesse experimento. Portanto, os lasers comerciais que acessam a transição $^1S_0-^1P_1$ do Cálcio de uma certa maneira não favorecem com grande êxito as exigências para espectroscopia e, portanto foi construído um laser de Ti:Safira duplicado em frequência que primeiramente foi empregado em resfriamento de átomos de Cálcio e agora usado no estudo de dupla ressonância.

A fig. 2.9 apresenta um diagrama do sistema que inclui o laser de Ti: Safira do tipo anel, a cavidade de duplicação e cavidade de referência.

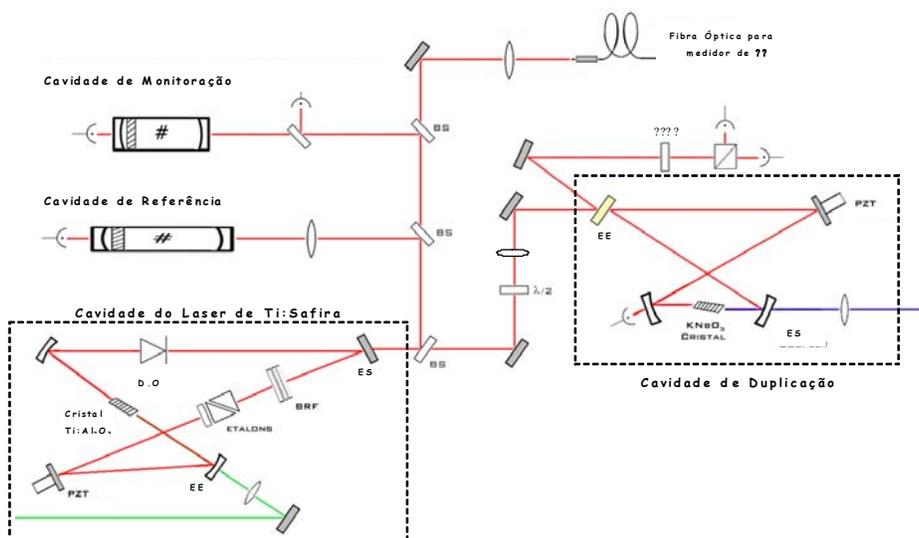


Fig.2.9: Esquema do laser de Ti:Safira duplicado em frequência usado no experimento de dupla ressonância. Linhas verdes: feixe do laser de bombeio Nd:YVO₄ em 532 nm (verde); linhas vermelhas: laser de Ti:Safira no infravermelho; linhas azuis: geração de laser em 423 nm (no azul); EE: espelho de entrada, ES: espelho de saída, PZT: espelhos acoplados em cerâmicas piezo-elétricas; $\lambda/2$: placa de meia onda; $\lambda/4$: placa de quarto de onda; BS: divisores de feixe; D.O: diodo óptico; BRF: filtro birrefringente [16].

A cavidade do laser é formada por dois espelhos planos e dois espelhos de 15 cm de raio de curvatura. Pelo alto interesse na transição $^1S_0-^1P_1$ do Cálcio, foram utilizados espelhos altamente refletivos (99,5%) com filmes de 150 nm largura de banda centrados em 846 nm. O espelho de saída ES transmite 2,3% de luz nesse comprimento de onda. O espelho EE possui uma transmissão de mais de 90% para um laser de Ar⁺ operando em regime multilinha ou para um laser de Nd:YVO₄ de frequência duplicada em 532 nm. Uma cerâmica piezo-elétrica PZT é colocada em um dos espelhos planos para sintonia da cavidade. Para evitar a propagação do feixe em dois sentidos um diodo óptico baseado no efeito de rotação de polarização de Faraday é introduzido favorecendo apenas um deles. O filtro birrefringente faz uma seleção mais grossa na extensa banda de emissão do elemento ativo. Para uma seleção mais fina, dois etalons são introduzidos na cavidade, um grosso (15 mm) e outro fino (700 μ m). Eles são responsáveis pela seleção mais fina dos modos. O etalon fino apresenta uma seleção mais larga sendo o grosso mais seletivo, devido a sua banda de seleção mais estreita. O etalon grosso é formado por dois prismas de Littrow com um deles acoplado em um PZT. Variando a tensão no PZT, o tamanho desse etalon é alterado e um novo modo é selecionado. Como alguns fatores podem influenciar a estabilidade em frequência como por exemplo a temperatura que dilata os espelhos aumentando ou diminuindo o tamanho da cavidade, uma cavidade de referência é usada

para estabilização em frequência. Uma outra cavidade com uma finesse menor também é introduzida somente para observação dos modos. Uma parte do feixe de saída é enviada a um “lambdameter” para medida do comprimento de onda. O cristal dentro da cavidade do laser é colocado de tal forma que esteja em ângulo de Brewster, para que toda luz incidente possa se propagar por ele. A banda de absorção abrange aproximadamente a faixa entre 400 a 650 nm. Cerca de 84% do laser de Argônio em regime multilinha e 79% do laser monomodo de Nd:YVO₄ duplicado em frequência (532 nm) é absorvido pelo cristal .

A sintonia fina do laser é obtida ajustando a posição do espelho plano que está colocado sobre o PZT através de uma voltagem aplicada nessa cerâmica. A sintonia grossa é obtida com um micrômetro acoplado ao suporte do filtro birrefringente.

O comprimento de onda desejado (423 nm) é obtido através do processo de geração de segundo harmônico sintonizando o Ti:Safira em 846 nm e o incidindo em um cristal de niobato de potássio (KNbO₃) localizado dentro de uma outra cavidade em anel. Essa nova cavidade é necessária para que se tenha mais potência do infravermelho incidindo no cristal, aumentando sua eficiência na geração de azul. O cristal de KNbO₃ é mantido acoplado em um suporte de cobre resfriado por uma pastilha Peltier para atingir a temperatura de casamento de fase. Ao passar uma corrente pelo Peltier há uma transferência de calor entre seus terminais e um deles esquenta enquanto o outro resfria. Por esse motivo, o lado do Peltier que resfria fica em contato com o suporte do cristal e, o outro lado é mantido em contato com uma base de cobre com água circulante para dissipação do calor.

Para manter a cavidade em ressonância com o laser aplicou-se a técnica de espectroscopia de polarização de Hänsch-Coulliaud [18].

2.3.1.1 Componentes ópticos do laser de Ti:Safira

2.3.1.1.1 Diodo óptico

O diodo óptico é um dispositivo que permite selecionar a direção da oscilação laser em uma cavidade em anel. No espelho de saída, podemos ver a transmissão de dois feixes com direções diferentes passando pelo mesmo ponto do espelho, como é mostrado na fig.2.10.

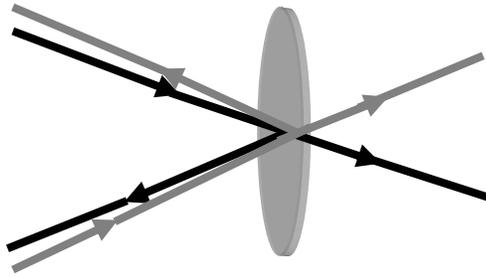


Fig. 2.10: No espelho de saída parte da luz sai da cavidade em duas direções.

Colocando-se um diodo óptico no sistema, podemos bloquear a transmissão de um dos feixes. Desse modo, toda a potência do feixe eliminado é transferida ao outro.

2.3.1.1.2 Filtro Birrefringente

2.3.1.1.2.1 Birrefringência

Em muitos materiais dielétricos como cristais, a onda incidente pode fazer com que a polarização macroscópica \vec{P} não seja somente [19]

$$\vec{P} = \epsilon_0 \vec{\chi} \vec{E} \quad (2.4)$$

onde \vec{E} : vetor campo elétrico da onda; $\vec{\chi}$: suscetibilidade elétrica do material.

A eq. (2.4) é usada para cristais isotrópicos, onde $\vec{P} // \vec{E}$. Para cristais que apresentam anisotropia, os dois vetores não são paralelos. Cada componente de \vec{P} depende das somas das três componentes de \vec{E} , isto é,

$$\begin{bmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{bmatrix} = \epsilon_0 \begin{bmatrix} \chi_{11} & \chi_{12} & \chi_{13} \\ \chi_{21} & \chi_{22} & \chi_{23} \\ \chi_{31} & \chi_{32} & \chi_{33} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix} \quad (2.5)$$

Caímos no caso de isotropia quando todos os termos da diagonal são iguais, e todos os outros termos são nulos.

Considerando-se que a onda se propaga em um meio de suscetibilidade $\vec{\chi}$ (onde $\vec{\chi}$ é um tensor):

$$\vec{\nabla} \times (\vec{\nabla} \times \vec{E}) + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = -\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} \quad (2.6)$$

Para uma onda plana monocromática

$$\vec{E} = \vec{E}_0 e^{i(\vec{k}\vec{r} - \omega t)} \quad (2.7)$$

temos:

$$\vec{k} \times (\vec{k} \times \vec{E}) + \frac{\omega^2}{c^2} \vec{E} = -\frac{\omega^2}{c^2} \vec{\chi} \vec{E} \quad (2.8)$$

Podemos abrir a eq. (2.8) e escrever os vetores em termos das componentes, considerando a matriz :

$$\vec{\chi} = \begin{bmatrix} \chi_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{22} & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{33} \end{bmatrix} \quad (2.9)$$

$$\begin{aligned} \left(-k_y^2 - k_z^2 + \frac{\omega^2}{c^2} \right) E_x + k_x k_y E_y + k_x k_z E_z &= -\frac{\omega^2}{c^2} \chi_{11} E_x \\ k_y k_x E_x + \left(-k_x^2 - k_z^2 + \frac{\omega^2}{c^2} \right) E_y + k_y k_z E_z &= -\frac{\omega^2}{c^2} \chi_{22} E_y \\ k_z k_x E_x + k_z k_y E_y + \left(-k_x^2 - k_y^2 + \frac{\omega^2}{c^2} \right) E_z &= -\frac{\omega^2}{c^2} \chi_{33} E_z \end{aligned} \quad (2.10)$$

Introduzindo-se:

$$\begin{aligned} n_1 &= \sqrt{1 + \chi_{11}} = \sqrt{K_{11}} \\ n_2 &= \sqrt{1 + \chi_{22}} = \sqrt{K_{22}} \\ n_3 &= \sqrt{1 + \chi_{33}} = \sqrt{K_{33}} \end{aligned} \quad (2.11)$$

podemos colocar a eq. (2.11) na forma matricial, onde E_x , E_y e E_z não serão nulos se:

$$\begin{vmatrix} \left(\frac{n_1\omega}{c}\right)^2 - k_y^2 - k_z^2 & k_x k_y & k_x k_z \\ k_y k_x & \left(\frac{n_2\omega}{c}\right)^2 - k_x^2 - k_z^2 & k_y k_z \\ k_z k_x & k_z k_y & \left(\frac{n_3\omega}{c}\right)^2 - k_x^2 - k_y^2 \end{vmatrix} = 0 \quad (2.12)$$

Essa solução apresenta superfícies tridimensionais no espaço do vetor de onda \vec{k} . Vamos supor uma onda que se propague no plano xy (sua polarização esta em z). O determinante reduz-se a:

$$\left[\left(\frac{n_3\omega}{c}\right)^2 - k_x^2 - k_y^2 \right] \left\{ \left[\left(\frac{n_1\omega}{c}\right)^2 - k_y^2 \right] \left[\left(\frac{n_2\omega}{c}\right)^2 - k_x^2 \right] - k_x^2 k_y^2 \right\} = 0 \quad (2.13)$$

cuja solução é um círculo

$$k_x^2 + k_y^2 = \left(\frac{n_3\omega}{c}\right)^2 \quad (2.14)$$

ou uma elipse

$$\frac{k_x^2}{(n_2\omega/c)^2} + \frac{k_y^2}{(n_1\omega/c)^2} = 1 \quad (2.15)$$

Caso a onda se propague no plano xz ou yz, temos também outros círculos ou elipses como solução. Sendo assim, a onda que se propaga no espaço tridimensional pode ter as suas superfícies tridimensionais no espaço do vetor de onda \vec{k} calculando-se as soluções para a mesma onda nos planos xy, xz e yz. Quando os valores de $|\vec{k}|$ coincidem, temos o chamado eixo óptico do cristal. Um cristal é chamado de uniaxial se possui somente um eixo óptico. Para isto, dois dos três índices de refração terão que ser iguais. As soluções serão uma esfera e um elipsóide. Caso os três índices sejam diferentes, ele terá dois eixos ópticos e será chamado de biaxial. As soluções para esse caso serão círculos e elipses que interceptam os três planos e as superfícies tridimensionais serão esferas e elipsóides não simétricos (deformados).

Por causa da anisotropia do meio, nós esperamos que para cada onda incidente (meio isotrópico) há duas ondas refratadas com duas diferentes direções e polarizações. Por exemplo, se o cristal for uniaxial e se o plano de incidência for paralelo ao eixo óptico, as duas superfícies \vec{k} interceptam o plano de incidência com um círculo e uma elipse e as ondas refratadas serão ondas TE (onda ordinária) e TM (onda extraordinária) (fig.2.11)[20].

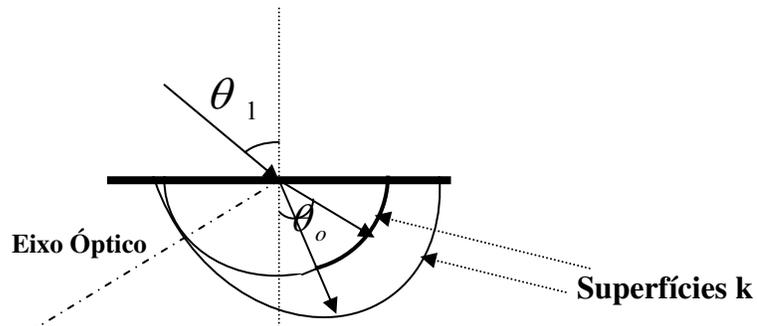


Fig.2.11: Vetores \vec{k} no cristal uniaxial com os ângulos de refração θ_e e θ_o , respectivamente para uma onda ordinária de polarização TE e uma onda extraordinária de polarização TM.

2.3.1.1.2.2 O filtro birrefringente

Considerando-se a teoria anterior, podemos agora entender a ação de um filtro birrefringente. Esse dispositivo é formado por um cristal birrefringente entre dois polarizadores.

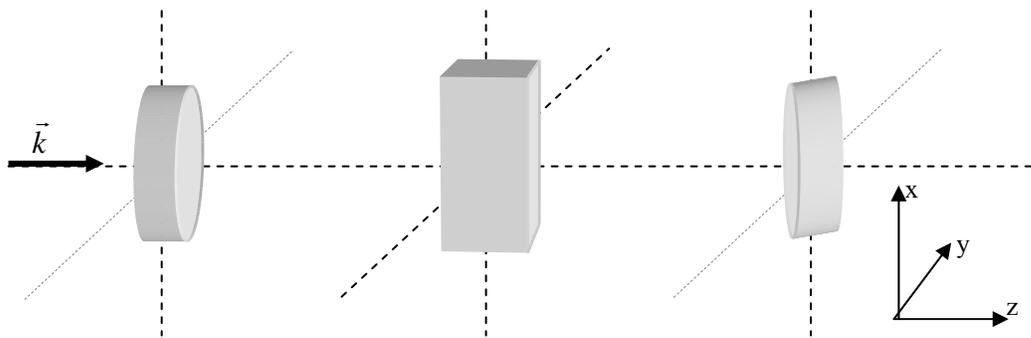


Fig.2.12: Dois polarizadores orientados em y para uma onda cuja polarização está no plano xy. O eixo óptico e o plano de incidência estão paralelos (plano xy).

Na fig. 2.12 o primeiro polarizador permitirá apenas que a componente y do campo elétrico seja transmitido. Após a penetração da onda no cristal uniaxial, por exemplo, teremos uma

dupla refração, onde duas ondas serão criadas, uma com polarização paralela ao plano de incidência e a outra perpendicular a esse plano [20]. A onda de polarização ortogonal ao plano não será transmitida pelo polarizador orientado em y enquanto a outra, terá apenas sua componente y transmitida. Portanto, essa atenuação da onda faz com que alguns modos do laser tenham suas intensidades atenuadas, e eles não sobrevivem na cavidade se essas perdas forem superiores as perdas da cavidade. Dessa maneira, o filtro faz a seleção de modos.

2.3.2 Laser de diodo

O laser que usamos para acessar a transição $^1S_0-^3P_1$ é um laser de diodo da Hitachi com uma frequência central em 660 nm. A frequência do laser pode ser alterada variando o retorno óptico. Para a sintonia em frequência foi construída uma cavidade estendida tipo Littman visando estabelecer a oscilação monomodo. Nesse tipo de cavidade o feixe passa por uma lente colimadora e incide numa grade de difração em ângulo rasante. A grade é um elemento de seleção do comprimento de onda. O feixe de ordem zero seria o principal e a luz refletida de ordem um é enviada a um espelho que reflete novamente para o meio ativo que é um semicondutor formando a cavidade. O laser com a cavidade estendida é mostrado na fig.2.13.

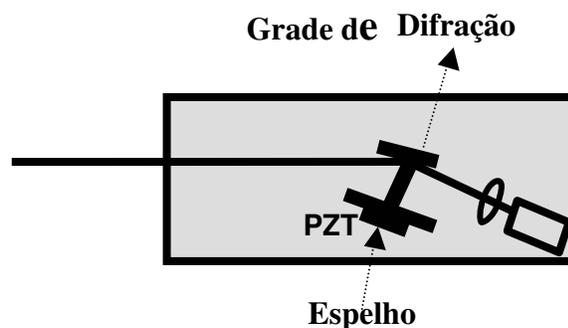


Fig. 2.13: Laser de diodo montado dentro de uma cavidade Littman.

Capítulo 3

Resultados espectroscópicos

3.1 A técnica de modulação

Espectro das transições que compartilham um mesmo nível podem ser vistos separadamente de outras transições com o uso da técnica OODR (Optical-Optical Double Resonance). Neste caso, dois lasers 1 e 2 incidentes em uma amostra têm suas amplitudes moduladas por um chopper, mas enquanto um é mantido fixo numa transição o outro é variado em frequência. A ref. [15] mostra uma aplicação dessa técnica em moléculas de NO_2 .

O modelo que empregamos para a obtenção das nossas medidas experimentais é bem parecido ao da ref.[15], mas ao invés de modularmos os dois lasers, apenas um deles foi modulado na frequência f_1 (laser vermelho = laser 1) e o sinal foi monitorado nesta frequência. O laser azul (laser 2) foi sintonizado em frequência na região da transição $^1\text{S}_0$ - $^1\text{P}_1$. Devido a sintonização desse laser não abranger a transição $^1\text{S}_0$ - $^3\text{P}_1$ então, em algumas medidas sintonizamos o laser vermelho ainda modulado enquanto o laser azul se manteve fixo no centro da ressonância. Desse modo, o espectro da transição de intercombinação também foi obtido.

O laser azul tem uma maior probabilidade de ser absorvido do que o vermelho, então, os dois lasers interagindo simultaneamente no Cálcio não iriam fazer a fluorescência ficar modulada. Desse modo, optamos em deixar os dois feixes separados, onde o feixe atômico passa primeiramente pelo vermelho sendo seguido pelo azul. Essa seria uma segunda diferença entre o método de detecção OODR que empregamos e ao da ref.[15].

3.2 Observações experimentais

Durante as nossas experiências, tentamos uma melhor otimização do sinal para começarmos a gravação dos gráficos: amplificação do sinal, constantes do lock-in, paralelismo entre os dois feixes, melhor posição para o fotodetector, etc. Um dos fatores que não conseguimos eliminar para obter um sinal mais puro é o da reflexão do laser vermelho pelas paredes da janela. Desse modo, o sinal que queríamos detectar era confundido pelo fotodetector com a luz vermelha espalhada pelas janelas. Comparando o sinal de referência com o sinal vindo do fotodetector, o lock-in via assim dois sinais com mesma frequência e fases diferentes. O laser vermelho ao passar pelo chopper tem um perfil de uma onda quadrada e, portanto, a fluorescência também fica modulada por uma função da mesma forma. Quando o laser vermelho é “ligado”, os átomos o absorvem e menos átomos vão ser promovidos para 1P_1 diminuindo a fluorescência. Com o feixe “desligado”, há aumento na fluorescência, pois todos os átomos estão no estado fundamental. A fluorescência do laser azul fica modulada com uma diferença de fase em relação à modulação do laser vermelho. Desse modo, podemos dizer que quando um sinal é “ligado”, o outro é “desligado”, como mostrado na fig. (3.1).

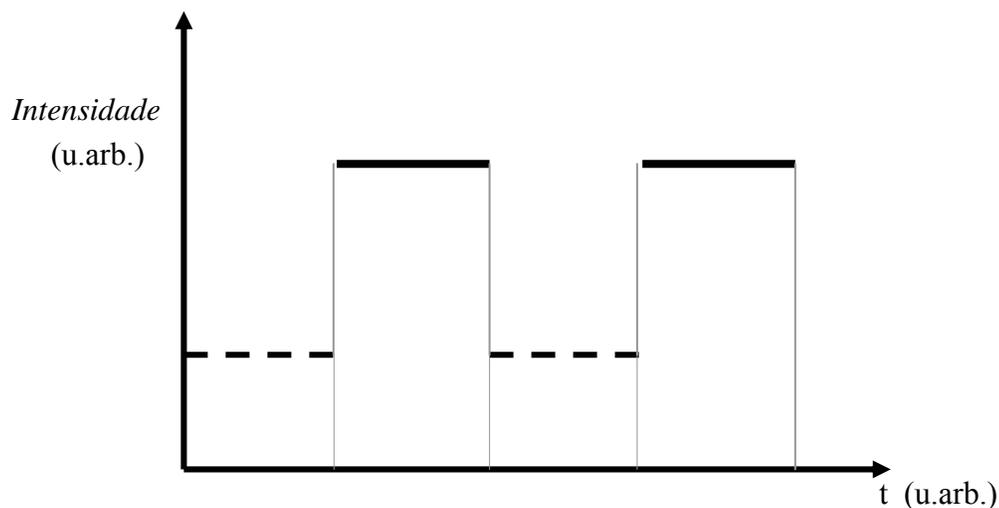


Fig.3.1: Linhas pontilhadas: intensidade de espalhamento do laser vermelho ao passar pelo chopper, linha preta: sinal de fluorescência da transição 1P_1 - S_0 . Ambos os sinais estão a meio comprimento de onda de diferença de fase.

Durante as nossas medidas observamos o aparecimento de um pico invertido que nos chamou a atenção (fig. 3.2). A intensidade desse pico era maior quando fazíamos refletir

mais luz colocando alguns papéis nas janelas para que o sinal de espalhamento captado pelo fotodetector fosse maior. O “background” que aparece na fig. 3.4 é devido a fluorescência máxima (o laser vermelho está com uma frequência muito longe da ressonância e os átomos não o absorvem) e da reflexão do laser vermelho, que é comparavelmente bem menor do que a fluorescência máxima.

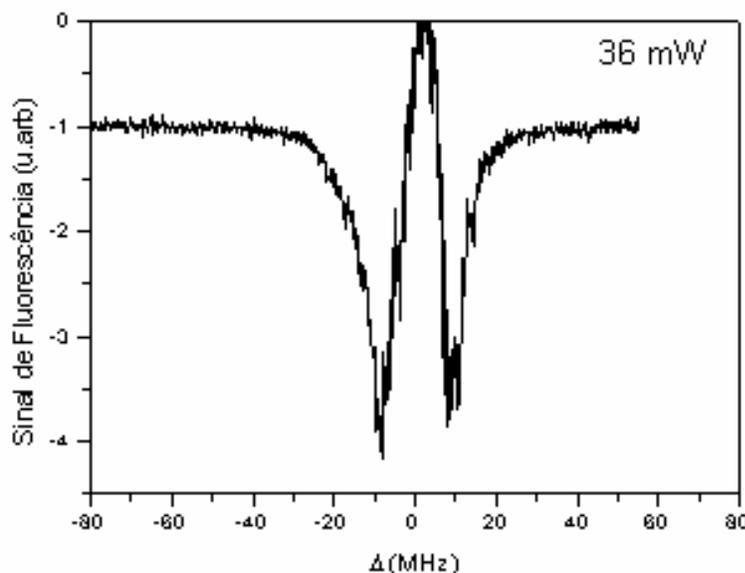


Fig.3.2: Fluorescência da transição $^1S_0-^1P_1$ quando o laser em 657 nm (Δ_1) é varrido e o laser em 423 nm (Δ_2) é mantido fixo. A curva começa decaindo até que se inverte formando um pico para cima. Tal pico aparece devido somente devido a configuração do lock-in.

A medida que o laser vermelho vai aproximando-se da ressonância a fluorescência do azul vai diminuindo. O espalhamento do laser vermelho que também é detectado passa a ter um valor maior nesse caso e a soma das duas funções que será o sinal detectado pelo fotodetector é trocada de sinal. Então, o lock-in inverte a resposta se for operado do modo de ajuste automático de fase para maximizar o sinal detectado. Isso justifica o aparecimento do pico que no início achamos que pudesse ser algum efeito de saturação, mas que se mostrou ser simplesmente um “artefato de medida”. Essa seção salienta os cuidados que devemos ter ao fazer esse tipo de experimento, pois uma interpretação errada poderia ser dada ao resultado final.

3.3 Resultados experimentais

Os gráficos mostrados nesta seção se referem aos dados obtidos da montagem experimental da fig. 2.1. A fluorescência da transição $^1S_0-^1P_1$ modulada devido ao laser vermelho que anteriormente passou por um chopper foi coletada por um fotodetector e o sinal enviado a um lock-in. Enquanto um laser foi mantido fixo, o outro foi sendo sintonizado. Na abcissa, usamos o valor de calibração descritos na seção 2.2 para o laser vermelho e subtraímos o valor desse eixo pelo centro do gráfico (ressonância) para colocarmos o sinal de fluorescência em função do detuning $\Delta = \omega_{Laser} - \omega_{Transição}$.

Procuramos manter em todas as medidas a potência do laser de diodo antes de passar pelo chopper em torno de 10 mW e variamos a potência do laser azul. Na fig. 3.3 sintonizamos o laser azul e o laser vermelho permaneceu no centro da ressonância na transição $^1S_0-^3P_1$, enquanto que na fig. 3.4 o laser azul estava fixo em 423 nm e o laser vermelho foi sintonizado.

Na fig. 3.3 variamos a frequência do laser azul e sua potência foi mantida em 6 mW, o que corresponde a um parâmetro de saturação S_2 igual a 0,79. Outras medidas também foram realizadas com a potência do laser igual a 32 mW, 8 mW, 6 mW, 3,8 mW, 2,5 mW, 1,3 mW e $420 \mu W$, o que corresponde a parâmetros de saturação S_2 iguais a 4,24, 1,06, 0,79, 0,50, 0,33, 0,17 e 0,06 respectivamente e S_1 fixo em 683,8 (10,2 mW) ou 670,46 (10 mW). Todos esses gráficos seguem o mesmo perfil da fig. 3.3, diferindo apenas na intensidade do sinal e na largura da linha.

A fig. 3.4 mostra o resultado quando o laser vermelho é sintonizado, isto é, o espectro da transição $^1S_0-^3P_1$. O gráfico apresenta uma largura por volta de 11,63 MHz, ou seja, houve um alargamento de aproximadamente 29 mil vezes comparado com a largura natural da transição que é de 400 Hz. A causa maior desse alargamento é o efeito Doppler residual devido a divergência do feixe atômico. É claro que temos alargamento colisional e por potência, mas estes alargamentos são pequenos comparados ao Doppler [15]. O alargamento Doppler residual proveniente da divergência do feixe atômico é dado por

$$\delta\nu = 7,1610^{-7} \nu_0 \sqrt{\frac{T}{M}} \sin \varepsilon \quad (3.1)$$

onde M é a massa atômica em u.m.a, ε é a divergência do feixe atômico em radianos, T é a temperatura em Kelvin, ν_0 é a frequência de ressonância. No nosso caso, $M=40$, $\varepsilon=8$ mrad, $T=773$ K, $\nu_0=456$ THz, o que nos dá um alargamento de 11,48 MHz e assim, o alargamento Doppler tem um fator maior de contribuição no gráfico da fig. 3.4 comparado aos outros tipos de alargamentos presentes.

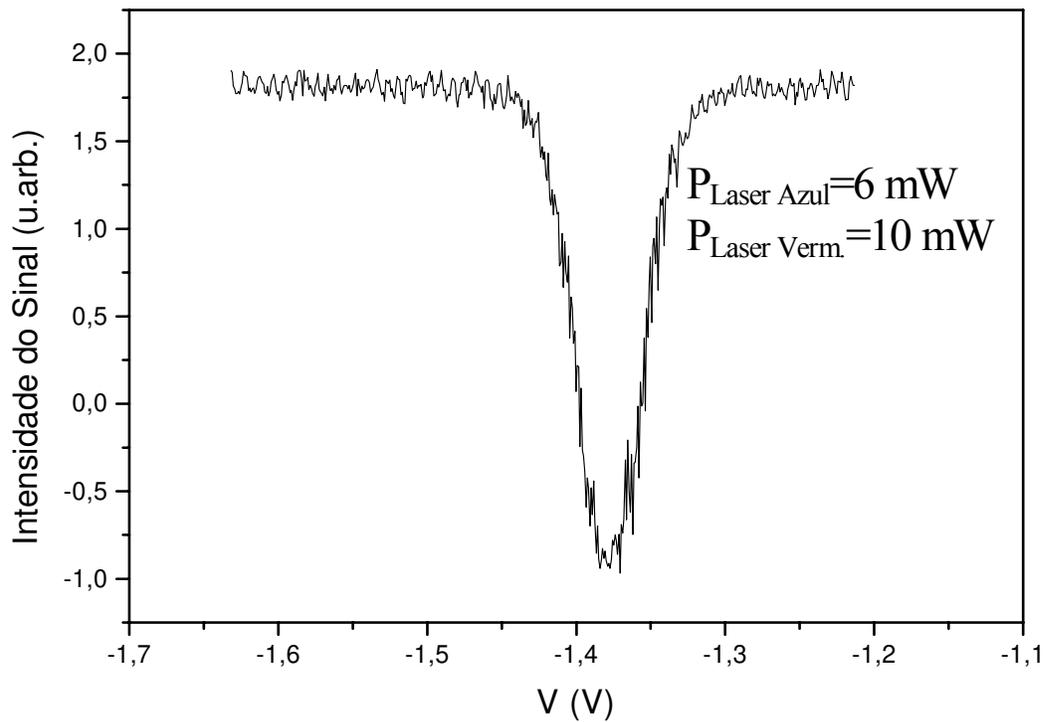


Fig.3.3 : Espectro da transição $^1S_0-^3P_1$ quando o azul é sintonizado e o laser vermelho é mantido fixo no centro da transição $^1S_0-^3P_1$ ($\Delta_1=0$). V é a tensão aplicada no PZT da cavidade do laser de Ti:Safira.

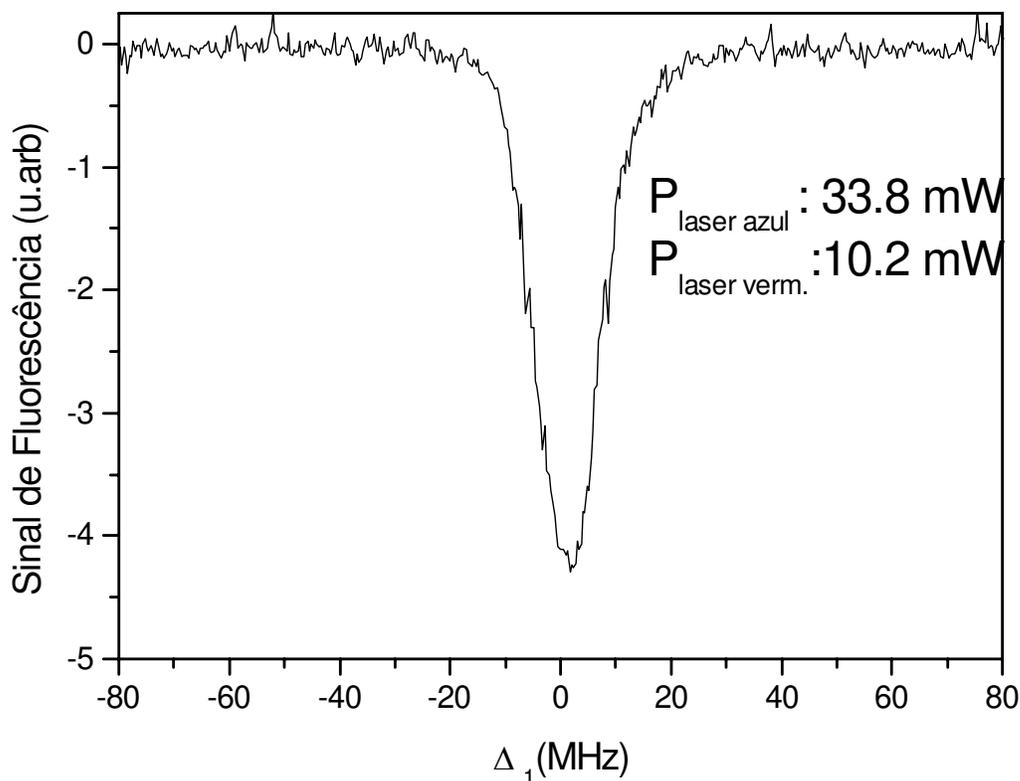


Fig.3.4 : Espectro da transição $^1S_0-^1P_1$ quando o laser vermelho é sintonizado e o laser azul é mantido fixo na transição $^1S_0-^1P_1$ ($\Delta_2=0$). Δ_1 é o detuning, isto é, a diferença entre a frequência do laser vermelho e a frequência da transição $^1S_0-^3P_1$.

3.4 Largura de linha

Variando também o parâmetro de saturação da transição $^1S_0-^1P_1$, pudemos medir a largura cheia a meia altura (FWHM – full width at half maximum) de cada uma das curvas que mostram o sinal de fluorescência. Com esses valores em mãos, construímos um gráfico de largura de linha em função de S_2 . Esse valor de largura de linha está em Volts devido a não termos calibrado a rampa de tensão que varre a cavidade de duplicação do laser azul em função da sintonia em MHz. Em cima desses pontos ajustamos uma reta cujos coeficientes angular e linear obtidos respectivamente são: $0,016 \pm 0,002$ e $0,052 \pm 0,003$. O gráfico linear é mostrado na fig. 3.5.

Alguns pontos foram eliminados, principalmente alguns que possuíam parâmetros de saturação mais elevados. O motivo é que o lock-in foi usado no modo de ajuste automático de fase e, portanto, a curva de fluorescência invertia seu sentido na região

próxima ao centro de ressonância, formando um pico invertido (fig.3.2). Com o programa Origin, tentamos colocar esse intervalo na sequência que deveria ser. Devido a curva de fluorescência gravada ser assimétrica, a reinversão do pico formado não se ajustava perfeitamente com o restante da curva, resultando em uma curva que não se ajustava bem a nossa curva de fit (uma Gaussiana) e, portanto o valor da largura a meia altura seria diferente do que se o lock-in estivesse na configuração correta (curvas sem dips).

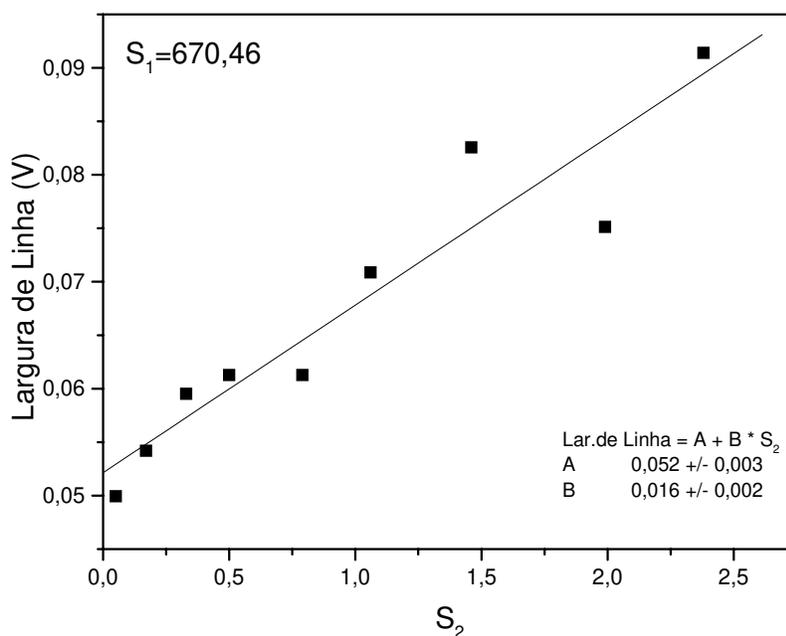


Fig. 3.5: Gráfico de largura de linha (V) x S_2 , onde S_1 e a frequência do laser vermelho são fixos e o laser azul é sintonizado.

Vamos ao segundo caso onde o laser vermelho é sintonizado. Obtemos algumas curvas que mostram esse sinal de fluorescência variando tanto S_1 como S_2 . O resultado é mostrado nas figs.3.6 e 3.7.

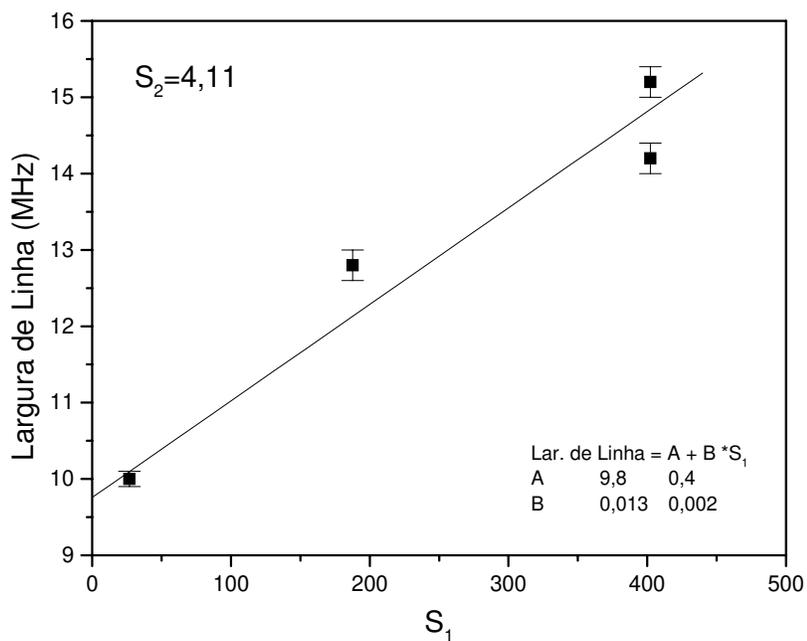


Fig.3.6: Gráfico de largura de linha (MHz) x S_1 , onde S_2 e a frequência do laser azul são fixos e o laser vermelho é sintonizado. O fit linear nos deu um coeficiente angular de 0,012 +/- 0,002 e coeficiente linear 9,8 +/- 0,4.

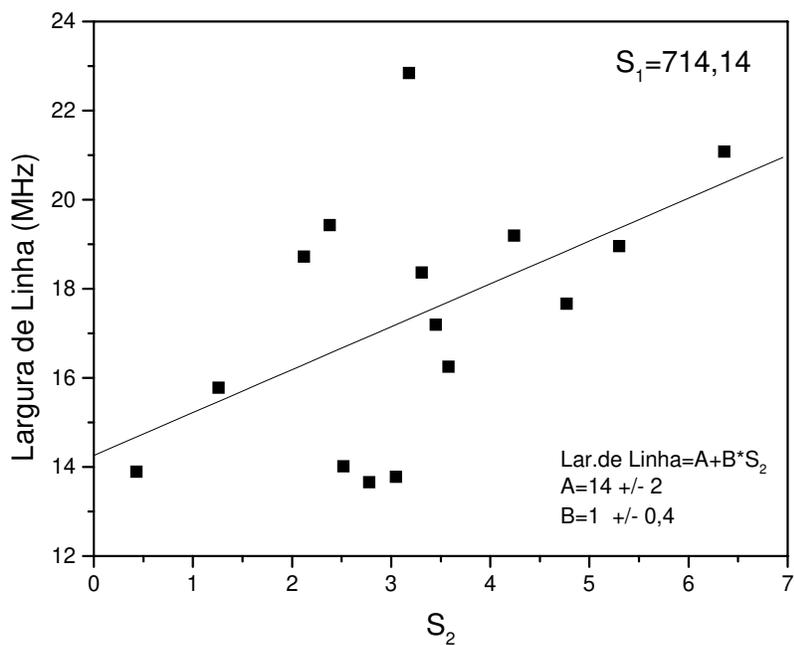


Fig.3.7: Gráfico de largura de linha (MHz) x S_2 , onde S_1 e a frequência do laser azul são fixos e o laser vermelho é sintonizado. O fit linear nos deu um coeficiente angular de 1 +/- 0,4 e coeficiente linear 14 +/- 2.

Capítulo 4

Simulação dos espectros via matriz densidade

4.1 Introdução

Uma simulação teórica para dar suporte à parte experimental do capítulo 2 é mostrada neste capítulo usando a formulação de matriz densidade. Desse modo poderemos obter quais seriam as populações de cada um dos níveis quando um dos dois lasers está fixo no centro de ressonância e o outro é sintonizado.

4.2 Matriz densidade para sistemas de níveis tipo V sem efeito Doppler

A evolução temporal da matriz densidade é dada pela equação de Liouville (eq.4.1) contendo um termo que descreve os processos de relaxação como transições induzidas por colisões e emissão espontânea [21-24]:

$$\left(\frac{\partial \rho}{\partial t}\right) = \frac{1}{i\hbar} [H, \rho] + \rho_{relaxação} \quad (4.1)$$

onde

$$H = H_0 + H_1 \quad (4.2)$$

H_0 é o Hamiltoniano atômico que satisfaz a equação de autovalor:

$$H_0 |m\rangle = E_m |m\rangle \quad m = 1, 2, 3 \quad (4.3)$$

e H_1 descreve a interação do campo elétrico da onda com o meio atômico. A matriz H na base de estados $|1\rangle$, $|2\rangle$ e $|3\rangle$ (fig. 1.2) é portanto:

$$H = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & \hbar\omega_{10} & 0 \\ 0 & 0 & \hbar\omega_{20} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 & \hbar V_{01} & \hbar V_{02} \\ \hbar V_{10} & 0 & 0 \\ \hbar V_{20} & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (4.4)$$

onde ω_{10}, ω_{20} : frequência das transições atômicas; \hbar : constante de Planck ($6.63 \cdot 10^{-34}$ J.s) dividida por 2π ; V_{ij} : elementos do Hamiltoniano de interação átomo-campo (eq. (4.5)):

$$\begin{aligned} V_{20} &= \tilde{V}_{20} e^{-i(\omega_2 t - k_2 z)} \\ V_{02} &= \tilde{V}_{02} e^{i(\omega_2 t - k_2 z)} \\ V_{10} &= \tilde{V}_{10} e^{-i(\omega_1 t - k_2 z)} \\ V_{01} &= \tilde{V}_{01} e^{i(\omega_1 t - k_2 z)} \end{aligned} \quad (4.5)$$

sendo

$$\begin{aligned} \tilde{V}_{20} &= \tilde{V}_{02} = V_2 \\ \tilde{V}_{10} &= \tilde{V}_{01} = V_1 \end{aligned} \quad (4.6)$$

onde V_i : frequência de Rabi de cada transição i .

A matriz ρ é conhecida como matriz densidade, sendo representada em (4.7):

$$\rho = \begin{pmatrix} \rho_{00} & \rho_{01} & \rho_{02} \\ \rho_{10} & \rho_{11} & \rho_{12} \\ \rho_{20} & \rho_{21} & \rho_{22} \end{pmatrix} \quad (4.7)$$

onde os elementos da diagonal representam as populações de átomos em cada nível e os elementos não diagonais são chamados coerências .

Os processos de relaxação que consideramos incluem somente a emissão espontânea e excluimos as emissões induzidas por colisões. Desse modo os elementos de $\rho_{relaxação}$ são representados por:

$$\rho_{relaxaçãoij} = -\gamma_{ij} \rho_{ij} \quad (4.8)$$

com $\gamma_{ij} = \gamma_{ji}$ e

$$\rho_{relaxaçãoii} = -\gamma_i \rho_{ii} + \sum_k \gamma_k \rho_{kk} \quad (4.9)$$

Desse modo:

$$\rho_{relaxação} = \begin{pmatrix} \gamma_1 \rho_{11} + \gamma_2 \rho_{22} & -\gamma_{01} \rho_{01} & -\gamma_{02} \rho_{02} \\ -\gamma_{10} \rho_{10} & -\gamma_1 \rho_{11} + \gamma_2 \rho_{22} & -\gamma_{12} \rho_{12} \\ -\gamma_{20} \rho_{20} & -\gamma_{21} \rho_{21} & -\gamma_2 \rho_{22} + \gamma_1 \rho_{11} \end{pmatrix} \quad (4.10)$$

Os elementos de matriz densidade contêm termos que variam rapidamente no tempo. Esses termos rápidos podem ser removidos, expandindo cada elemento dessa matriz em séries de Fourier em $e^{\pm i n \omega t}$ e considerando apenas o primeiro termo e não as frequências múltiplas $n \omega$.

$$\begin{aligned} \rho_{00} &= \tilde{\rho}_{00} \\ \rho_{11} &= \tilde{\rho}_{11} \\ \rho_{22} &= \tilde{\rho}_{22} \\ \rho_{20} &= \tilde{\rho}_{20} e^{-i(\omega_2 t - k_2 z)} \\ \rho_{02} &= \tilde{\rho}_{02} e^{i(\omega_2 t - k_2 z)} \\ \rho_{21} &= \tilde{\rho}_{21} e^{-i((\omega_1 - \omega_2)t - (k_1 - k_2)z)} \\ \rho_{12} &= \tilde{\rho}_{12} e^{-i((\omega_2 - \omega_1)t - (k_2 - k_1)z)} \\ \rho_{10} &= \tilde{\rho}_{10} e^{-i(\omega_1 t - k_1 z)} \\ \rho_{01} &= \tilde{\rho}_{01} e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} \end{aligned} \quad (4.11)$$

onde $\tilde{\rho}_{ij} = \tilde{\rho}_{ij}(t)$.

Os elementos da matriz densidade da diagonal e os transformados (eq. 4.11) podem ser substituídos na eq.(4.1) dando um conjunto de nove equações independentes do tempo e de z :

$$\begin{aligned}
\dot{\rho}_{00} &= iV_1(\tilde{\rho}_{10} - \tilde{\rho}_{01}) + iV_2(\tilde{\rho}_{20} - \tilde{\rho}_{02}) \\
\dot{\rho}_{11} &= -iV_1(\tilde{\rho}_{10} - \tilde{\rho}_{01}) - \gamma_1 \rho_{11} \\
\dot{\rho}_{22} &= -iV_2(\tilde{\rho}_{20} - \tilde{\rho}_{02}) - \gamma_2 \rho_{22} \\
\dot{\tilde{\rho}}_{20} &= -(\gamma_{20} - i\Delta_2)\tilde{\rho}_{20} - iV_1\tilde{\rho}_{21} - iV_2(\rho_{22} - \rho_{00}) \\
\dot{\tilde{\rho}}_{02} &= -(\gamma_{20} + i\Delta_2)\tilde{\rho}_{02} + iV_1\tilde{\rho}_{12} + iV_2(\rho_{22} - \rho_{00}) \\
\dot{\tilde{\rho}}_{21} &= -(\gamma_{21} + i\Delta)\tilde{\rho}_{21} - iV_1\tilde{\rho}_{20} + iV_2\tilde{\rho}_{01} \\
\dot{\tilde{\rho}}_{12} &= -(\gamma_{21} - i\Delta)\tilde{\rho}_{12} + iV_1\tilde{\rho}_{02} - iV_2\tilde{\rho}_{10} \\
\dot{\tilde{\rho}}_{10} &= -(\gamma_{10} - i\Delta_1)\tilde{\rho}_{10} - iV_1(\rho_{11} - \rho_{10}) - iV_2\tilde{\rho}_{12} \\
\dot{\tilde{\rho}}_{01} &= -(\gamma_{10} + i\Delta_1)\tilde{\rho}_{01} + iV_1(\rho_{11} - \rho_{00}) + iV_2\tilde{\rho}_{21}
\end{aligned} \tag{4.12}$$

com:

$$\begin{aligned}
\gamma_{20} &= \frac{1}{2}(\gamma_2 + \gamma_0) = \frac{\gamma_2}{2} \\
\gamma_{10} &= \frac{1}{2}(\gamma_1 + \gamma_{10}) = \frac{\gamma_1}{2} \\
\gamma_{21} &= \frac{1}{2}(\gamma_2 + \gamma_1) \\
\Delta_1 &= \omega_1 - \omega_{10} \\
\Delta_2 &= \omega_2 - \omega_{20} \\
\Delta &= \Delta_2 - \Delta_1 \\
V_1 &= \frac{\mu_{10}E_1}{\hbar} = \sqrt{\frac{S_1}{2}}\gamma_1 \\
V_2 &= \frac{\mu_{20}E_2}{\hbar} = \sqrt{\frac{S_2}{2}}\gamma_2
\end{aligned} \tag{4.13}$$

onde γ_i : constante de decaimento em MHz que representa a soma das constantes de decaimento por emissão espontânea (largura de linha) e processos de colisões. No caso em que não há alargamento da linha por colisões, γ_i é a largura de linha natural; Δ_i : detuning; ω_1, ω_2 : frequência do laser 1 e 2, respectivamente; E_i : módulo do campo elétrico da onda incidente; μ_{ij} : momento de dipolo da transição ij; V_i : frequência de Rabi que pode ser determinada por valores tabelados de dipolos e pela intensidade do laser (potência por área), onde a intensidade é proporcional ao módulo do campo ao quadrado.

As eqs.(4.12) são usadas para um sistema sem relaxação no estado fundamental e na ausência dos lasers as populações dos níveis excitados são nulas. Temos ainda que o traço da matriz densidade é igual a unidade,

$$\begin{aligned}\tilde{\rho}_{00} + \tilde{\rho}_{11} + \tilde{\rho}_{22} &= 1 \\ \tilde{\rho}_{00} &= 1 - \tilde{\rho}_{11} - \tilde{\rho}_{22}\end{aligned}\quad (4.14)$$

Para simplificar, vamos considerar:

$$\begin{aligned}A_1 &= \frac{\gamma_2}{2} - i\Delta_2 & A_2 &= \frac{\gamma_2}{2} + i\Delta_2 \\ B_1 &= \frac{1}{2}(\gamma_2 + \gamma_1) + i\Delta & B_2 &= \frac{1}{2}(\gamma_2 + \gamma_1) - i\Delta \\ C_1 &= \frac{\gamma_1}{2} - i\Delta_1 & C_2 &= \frac{\gamma_1}{2} + i\Delta_1\end{aligned}\quad (4.15)$$

Substituindo as eqs. (4.14) e (4.15) em (4.12):

$$\begin{aligned}\dot{\rho}_{00} &= iV_1\tilde{\rho}_{10} - iV_1\tilde{\rho}_{01} + iV_2\tilde{\rho}_{20} - iV_2\tilde{\rho}_{02} \\ \dot{\rho}_{11} &= -iV_1\tilde{\rho}_{10} + iV_1\tilde{\rho}_{01} - \gamma_1\rho_{11} \\ \dot{\rho}_{22} &= -iV_2\tilde{\rho}_{20} + iV_2\tilde{\rho}_{02} - \gamma_2\rho_{22} \\ \dot{\tilde{\rho}}_{20} &= -iV_2\rho_{11} - 2iV_2\rho_{22} - A_1\tilde{\rho}_{20} - iV_1\tilde{\rho}_{21} + iV_2 \\ \dot{\tilde{\rho}}_{02} &= iV_2\rho_{11} + 2iV_2\rho_{22} - A_2\tilde{\rho}_{02} + iV_1\tilde{\rho}_{12} - iV_2 \\ \dot{\tilde{\rho}}_{21} &= -iV_1\tilde{\rho}_{20} - B_1\tilde{\rho}_{21} + iV_2\tilde{\rho}_{01} \\ \dot{\tilde{\rho}}_{12} &= iV_1\tilde{\rho}_{02} - B_2\tilde{\rho}_{12} - iV_2\tilde{\rho}_{10} \\ \dot{\tilde{\rho}}_{10} &= -2iV_1\rho_{11} - iV_1\rho_{22} - iV_2\tilde{\rho}_{12} - C_1\tilde{\rho}_{10} + iV_1 \\ \dot{\tilde{\rho}}_{01} &= 2iV_1\rho_{11} + iV_1\rho_{22} + iV_2\tilde{\rho}_{21} - C_2\tilde{\rho}_{01} - iV_1\end{aligned}\quad (4.16)$$

No apêndice A.1 é mostrado como se obtém essas equações de taxa usando o programa Mathematica, sem considerar o efeito Doppler.

A primeira equação em (4.16) pode ser eliminada devido a população do estado estacionário ser obtida das populações dos dois estados excitados e desse modo podemos escrever o sistema (4.16) como [24]:

$$\frac{d}{dt}\hat{\psi} = L\hat{\psi} + \hat{C} \quad (4.17)$$

onde o vetor $\hat{\psi}$ é definido como:

$$\hat{\psi} = \begin{pmatrix} \rho_{11} \\ \rho_{22} \\ \tilde{\rho}_{20} \\ \tilde{\rho}_{02} \\ \tilde{\rho}_{21} \\ \tilde{\rho}_{12} \\ \tilde{\rho}_{10} \\ \tilde{\rho}_{01} \end{pmatrix} \quad (4.18)$$

L é a matriz com os coeficientes dos elementos ρ_{ii} e $\tilde{\rho}_{ij}$ e \hat{C} é o vetor com os termos independentes de ρ_{ii} e $\tilde{\rho}_{ij}$, ou seja, termos constantes:

Para o caso estacionário, podemos escrever:

$$\hat{\psi} = -L^{-1}\hat{C} \quad (4.19)$$

onde

$$L = \begin{pmatrix} -\gamma_1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -iV_1 & iV_1 \\ 0 & -\gamma_2 & -iV_2 & iV_2 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -iV_2 & -2iV_2 & -A_1 & 0 & -iV_1 & 0 & 0 & 0 \\ iV_2 & 2iV_2 & 0 & -A_2 & 0 & iV_1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -iV_1 & 0 & -B_1 & 0 & 0 & iV_2 \\ 0 & 0 & 0 & iV_1 & 0 & -B_2 & -iV_2 & 0 \\ -2iV_1 & -iV_1 & 0 & 0 & 0 & -iV_2 & -C_1 & 0 \\ 2iV_1 & iV_1 & 0 & 0 & iV_2 & 0 & 0 & -C_2 \end{pmatrix} \quad (4.20)$$

$$\hat{C} = i \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ V_2 \\ -V_2 \\ 0 \\ 0 \\ V_1 \\ -V_1 \end{pmatrix} \quad (4.21)$$

Portanto, as populações de cada nível ρ_{00} , ρ_{11} e ρ_{22} que estão em função da frequência e potência dos lasers, são calculadas por uma maneira bem simples apenas usando uma notação vetorial. O software usado para esses cálculos, o Mathematica, demora um certo tempo para inverter a matriz L e optamos então por calcular por Cramer. A obtenção das equações das populações e do programa computacional para resolvê-las foi feita em parceria com o Wictor Magno, aluno de pós-doutorado do prof. Dr. Flávio C. Cruz. A estrutura do programa sem considerar o efeito Doppler está descrito no apêndice A.2.

4.3 Cálculo das populações sem efeito Doppler

As figuras mostradas nessa secção são simulações do comportamento das populações ρ_{00} , ρ_{11} e ρ_{22} ou seja, das populações atômicas dos níveis 1S_0 , 3P_1 e 1P_1 , respectivamente. Gráficos em 2D com um laser fixo e em 3D com dois lasers sendo sintonizados em frequência são analisados. Não consideramos o efeito Doppler em ambos os casos.

As figs. 4.2 a 4.9 são simulações de populações no estado estacionário dos níveis 1S_0 (linha verdes), 1P_1 (linha azuis) e 3P_1 (linha vermelha) sem considerar o efeito Doppler. Essa situação pode ser realizada experimentalmente em uma armadilha magneto-óptica (MOT), onde os átomos têm velocidades muito baixas. Nas fig. 4.2 a 4.5 sintonizamos somente o laser em 657 nm enquanto o outro está ressonante com a transição $^1S_0 - ^1P_1$.

Consideramos o parâmetro de saturação S_1 da transição $^1S_0 - ^3P_1$ igual a 10000 e variamos S_2 em 0,01, 0,1, 1 e 10.

Na fig. 4.2, S_2 é baixo (igual a 0,01) e então, não há um valor significativo de átomos no nível 1P_1 , ficando a maior parte da população concentrada no estado fundamental e em 3P_1 . Quando a frequência do laser está em ressonância no centro da transição $^1S_0 - ^3P_1$ ($\Delta_1/\gamma_2 = 0$), a população em 3P_1 fica com aproximadamente 50% dos átomos, assim como o estado fundamental. O nível 1P_1 nesse caso tem uma população próxima a zero.

Aumentando uma ordem de grandeza, $S_2 = 0.1$, e a intensidade do laser em 423 nm já é suficiente para aumentar a população do nível 1P_1 . Na ressonância, aproximadamente 30% dos átomos estão em 3P_1 , 60% em 1S_0 e 10% em 1P_1 conforme é mostrado na fig. 4.3.

Com $S_2 = 1$ (fig. 4.4) os níveis começam a sentir o efeito da alta potência do laser. Cada um dos níveis é desdobrado em dois. Esse desdobramento é conhecido como dubleto de Autler-Townes [25-27]. Ao aumentarmos a potência, o campo elétrico do laser separa cada vez mais os níveis, como num efeito Stark. O campo está ligado com a intensidade, que por sua vez, é proporcional a potência e assim, o efeito de aumento de potência pode ser refletido na separação dos níveis e no deslocamento dos picos. Ao sintonizar o laser, dois picos em ρ_{11} são observados em $\Delta_1/\gamma_2 = \pm 0,75$ onde 10% da população se concentra em 3P_1 e um dip ocorre em $\Delta_1/\gamma_2 = 0$. Devido a formação de dubletos, o laser fica ressonante com o primeiro dos dois níveis formados pelo desdobramento de 3P_1 em $\Delta_1/\gamma_2 = -0,75$. No gap entre os níveis, ρ_{11} sofre uma queda e na medida em que o laser vai se aproximando em frequência do segundo nível, a ressonância é atingida novamente e há formação de um segundo pico em $\Delta_1/\gamma_2 = 0,75$.

Na fig. 4.5, onde observamos os picos mais separados, $S_2 = 10$. Como falamos anteriormente, o aumento do parâmetro de saturação reflete-se na separação dos picos. Além do efeito de separação provocado pelo aumento de S_2 , é de se esperar também que aumente a população em 1P_1 . Veja na fig. 4.4 que no início 40% dos átomos estão nesse nível e agora na fig. 4.5, há 48%. Os picos ocorrem quando $\rho_{11} \approx 0,08$ em $\Delta_1/\gamma_2 = \pm 2,25$.

As figs. 4.6 e 4.7 são simulações das populações com o laser em 657 nm fixo e com uma sintonia contínua do laser em 423 nm. Assim como nas figs.4.1 a 4.4, S_1 foi fixado em 10000 e S_2 variado. Duas simulações foram obtidas usando $S_2 = 0,01$ e $S_2 = 10$, que são os

casos extremos quando o laser vermelho é sintonizado: antes da formação dos picos quando a população em 1P_1 ainda é muito pequena (fig.4.2) e quando os picos estão bem separados (fig.4.5).

Na fig.4.6, S_2 assume um valor pequeno, mas com a varredura do laser esse valor aumenta um pouco até chegar na ressonância da transição 1S_0 - 1P_1 , ou seja, $\Delta_2/\gamma_2 = 0$, onde vemos um pico com 2% da população no nível 1P_1 . Portanto, como na ressonância os átomos têm uma probabilidade maior de serem acessados para esse nível, é de se esperar que ocorra um dip em ρ_{11} , onde no início 48% da população atômica está em 3P_1 e ela cai para 46%. No estado fundamental praticamente a população não é alterada, ficando com aproximadamente 50% em toda a varredura do laser.

Na fig.4.7, S_2 é mil vezes maior que o valor usado na fig.4.6, portanto com esse valor mais alto os átomos podem acessar a transição 1S_0 - 1P_1 mais facilmente. Na ressonância, um pouco menos de 50% dos átomos se encontra em 1P_1 , 50% em 1S_0 e uma porcentagem pequena em 3P_1 .

Gráficos em 3D são mostrados nas figs. 4.8 e 4.9 com mesmos valores de S_1 e S_2 usados nas figs. 4.6 e 4.7. Cada população individualmente é mostrada em superfície, onde os detunings de ambos os lasers são variados simultaneamente.

Na fig. 4.8 está inclusa as fig. 4.2 e 4.6. Podemos ver que quando o vermelho é sintonizado e o laser azul é fixo em qualquer frequência do intervalo, a população ρ_{11} vai aumentando até um valor máximo, decaindo quando o laser vai saindo da ressonância. O laser azul não “rouba” a população do nível 3P_1 porque sua potência ainda está baixa, então pra qualquer Δ_2/γ_2 , não se nota diferença em ρ_{11} . Ao sintonizarmos o azul, a população só começa a ganhar valores significativos quando o laser vai atingindo a ressonância da transição vermelha. Já para ρ_{22} , o aumento de sua intensidade ao sintonizar o laser azul já seria de se esperar, mas mesmo com essa sintonia e o laser vermelho tendendo a ressonância, é claro que os átomos vão preferir o laser vermelho ao laser azul por causa de seu alto parâmetro de saturação. Por isso, observa-se uma queda da população. A população no estado fundamental ρ_{00} é retirada a medida que os dois lasers vão atingindo o centro de ressonância de cada transição. Ao sintonizarmos somente o vermelho, ρ_{00} vai sofrendo um decréscimo a medida que esse laser vai atingindo o centro da ressonância. Somente com

o azul ressonante, a população já começa com uma pequena queda. Realmente é uma pequena queda porque S_2 é baixo e a única causa que justifica os átomos irem para 1P_1 é quando $\Delta_2/\gamma_2 \rightarrow 0$. Ao sintonizar o azul o mesmo caso ocorre: com o azul aproximando-se do centro de ressonância, ρ_{00} é cada vez menor (embora não dê pra ver muita diferença devido S_2 ser pequeno). Se $\Delta_1/\gamma_2 \rightarrow 0$, ρ_{00} já começa com uma queda mais brusca, pois o laser vermelho está mais próximo da frequência de transição e tem um alto S_1 . Neste caso (sintonizando o azul e o vermelho fixo em uma frequência próxima da ressonância), tanto faz a frequência do laser azul, pois na competição entre os lasers, o vermelho é quem está levando a população para 3P_1 e o laser azul não está contribuindo para a retirada da população do nível fundamental.

Na fig. 4.9, onde ambos os parâmetros de saturação assumem valores mais altos, podemos ver a presença de “dips” em ρ_{11} . Esses dips aparecem pelo efeito da alta potência dos lasers, onde os níveis se desdobram em dois (dubletos de Autler-Townes). Ao sintonizamos o vermelho e fixamos o azul na ressonância, notamos dois picos com mesma intensidade. Com o azul saindo da ressonância, os picos começam a ter intensidades diferentes. Podemos explicar isso da seguinte maneira: Δ_2/γ_2 é positivo quando ω_2 é maior que ω_{02} e negativo se for menor. Vamos supor que $\omega_2 > \omega_{02}$. Então, os níveis serão separados com larguras diferentes, sendo a parte maior localizada mais para baixo. Então sintonizando o vermelho, primeiro o laser atingirá um nível com uma largura maior (Δ_1/γ_2 negativo) e depois o nível superior com menor largura (onde Δ_1/γ_2 é positivo). A fig. 4.1

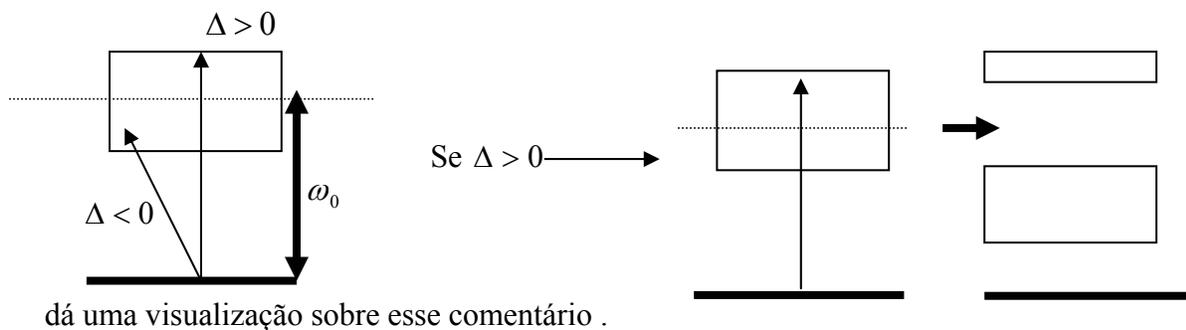


Fig.4.1: Desdobramento de um nível de acordo com o sinal do detuning.

Em ρ_{11} , podemos notar também que quanto maior Δ_2/γ_2 em módulo, apenas um pico é observado. No limite de ω_2 assumindo valores muito altos ou baixos, os níveis praticamente não se desdobram, mesmo a altas intensidades de ambos os lasers. Um pico de maior intensidade e próximo a ressonância (pois não se desdobram) aparece assumindo um valor de 0,5. Isso é devido ao laser azul não promover a ida dos átomos para o nível 1P_1 , e então, toda a população é conduzida para 3P_1 . Sabemos que para um sistema fechado e no limite do laser a altas intensidades, a população do nível fundamental e do excitado são iguais e valem 0,5 [9]. Em ρ_{22} , podemos ver que ao sintonizar o laser vermelho o gráfico tem duas quedas: uma pequena ($\Delta_2/\gamma_2, \Delta_1/\gamma_2$ positivos) e outra mais brusca (Δ_2/γ_2 positivo e Δ_1/γ_2 negativo). A queda pequena ocorre quando o laser vermelho atinge a ressonância do nível superior dos dubletos e assim, essa população que podeira estar em 1P_1 é levada para 3P_1 . A queda maior indica que o laser vermelho agora está próximo da ressonância do nível inferior. A população do nível fundamental ρ_{00} não assume agora o menor valor quanto mais Δ_1/γ_2 e Δ_2/γ_2 se aproximam de zero. Isso porque os níveis assumem valores diferentes de frequências.

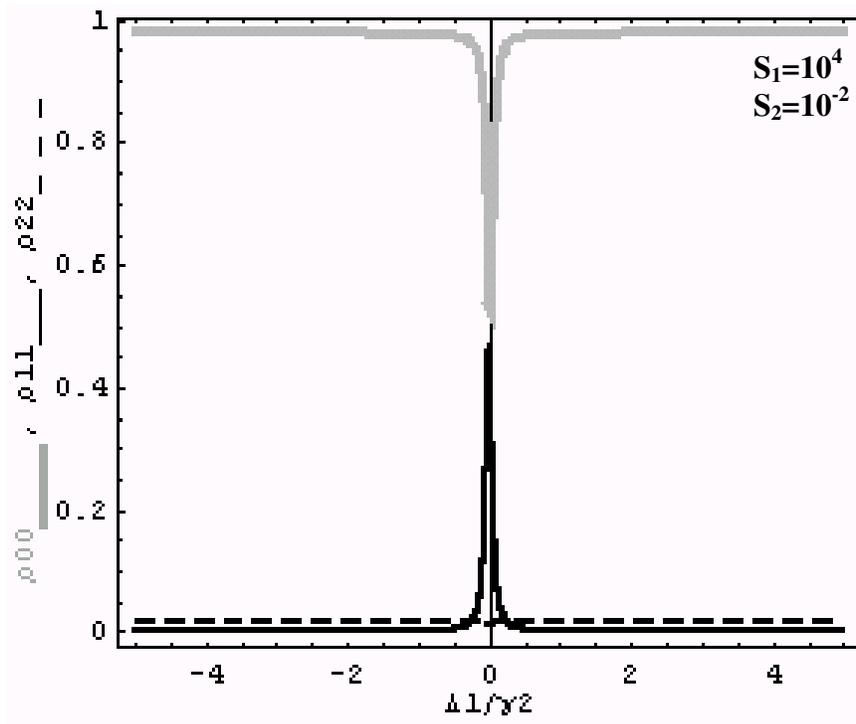


Fig. 4.2: Gráfico referente as populações ρ_{00}, ρ_{11} e ρ_{22} do átomo de Cálcio com os parâmetros de saturação especificados no gráfico, sintonizando o laser em 657 nm enquanto o de 423 nm é mantido fixo no centro da ressonância.

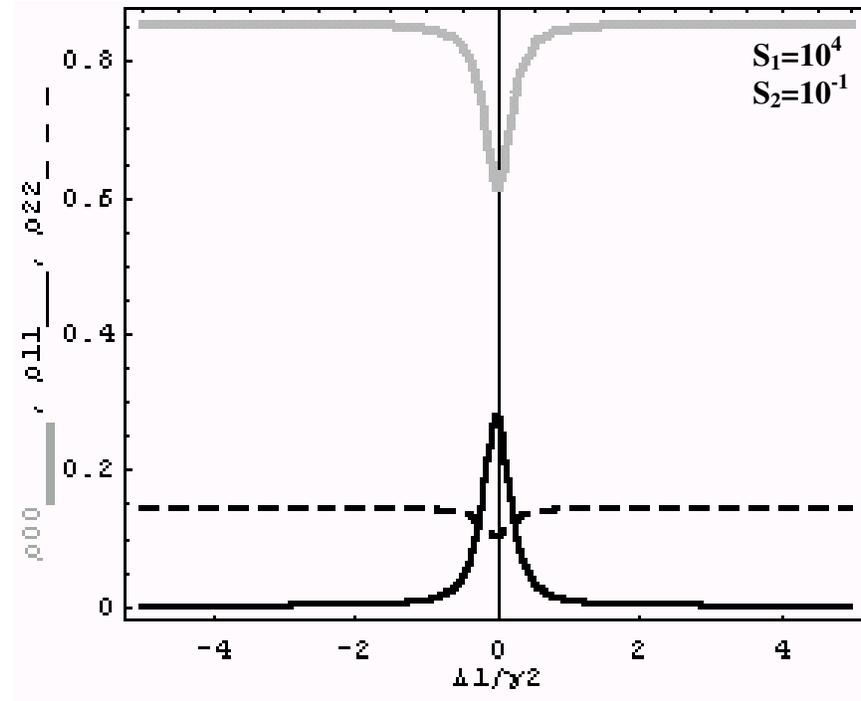


Fig.4.3: Gráfico referente as populações ρ_{00}, ρ_{11} e ρ_{22} do átomo de Cálcio com os parâmetros de saturação especificados no gráfico, sintonizando o laser em 657 nm enquanto o de 423 nm é mantido fixo no centro da ressonância.

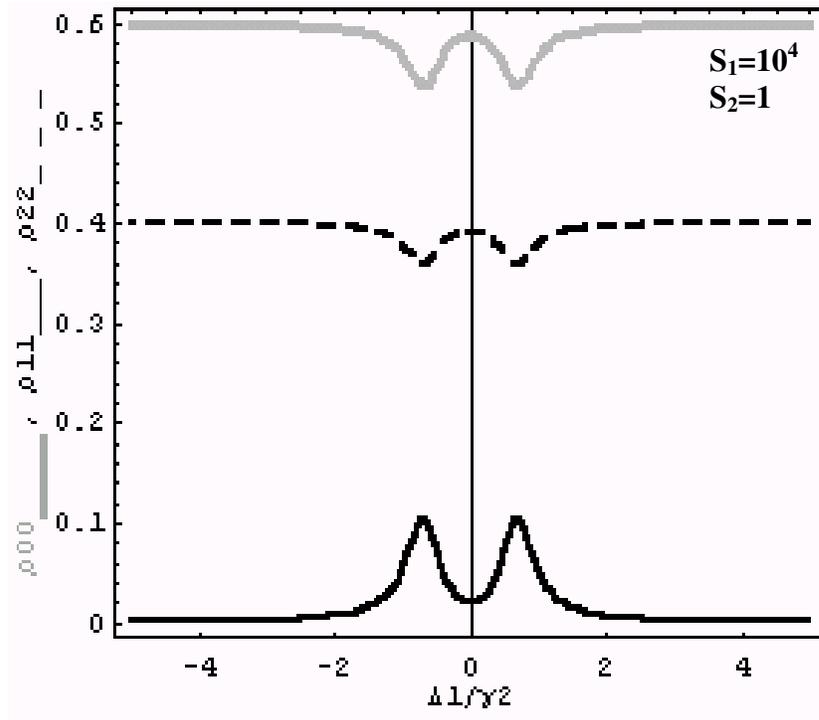


Fig. 4.4: Gráfico referente as populações ρ_{00}, ρ_{11} e ρ_{22} do átomo de Cálcio com os parâmetros de saturação especificados no gráfico, sintonizando o laser em 657 nm enquanto o de 423 nm é mantido fixo no centro da ressonância.

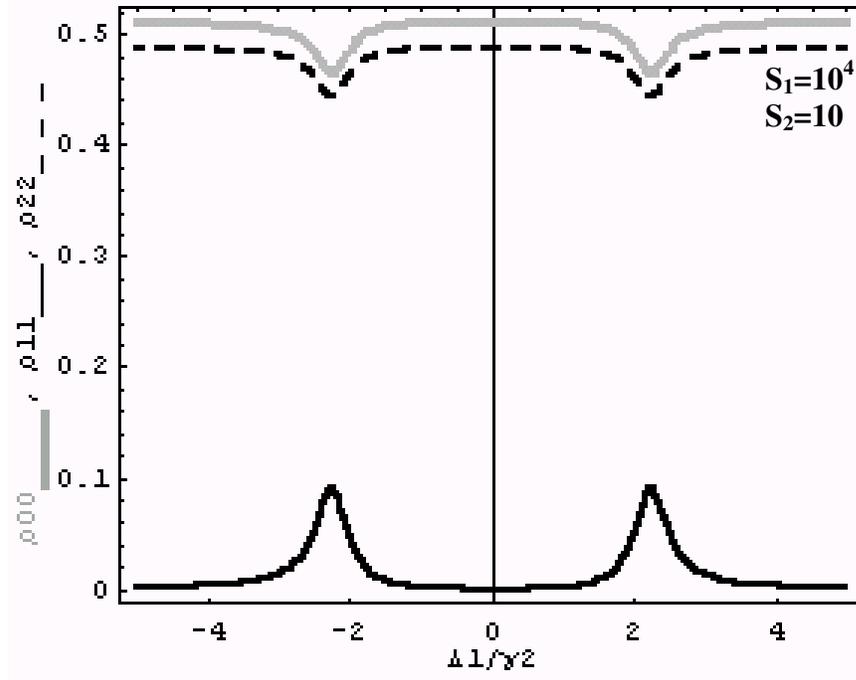


Fig. 4.5: Gráfico referente as populações ρ_{00}, ρ_{11} e ρ_{22} do átomo de Cálcio com os parâmetros de saturação especificados no gráfico, sintonizando o laser em 657 nm enquanto o de 423 nm é mantido fixo no centro da ressonância.

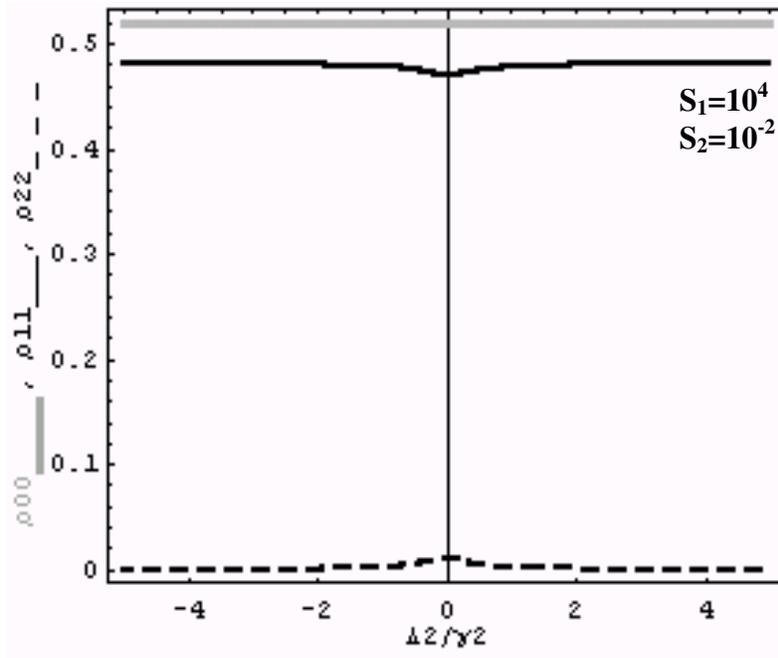


Fig. 4.6: Gráfico referente as populações ρ_{00}, ρ_{11} e ρ_{22} do átomo de Cálcio com os parâmetros de saturação especificados no gráfico, sintonizando o laser em 423 nm enquanto o de 657 nm é mantido fixo no centro da ressonância.

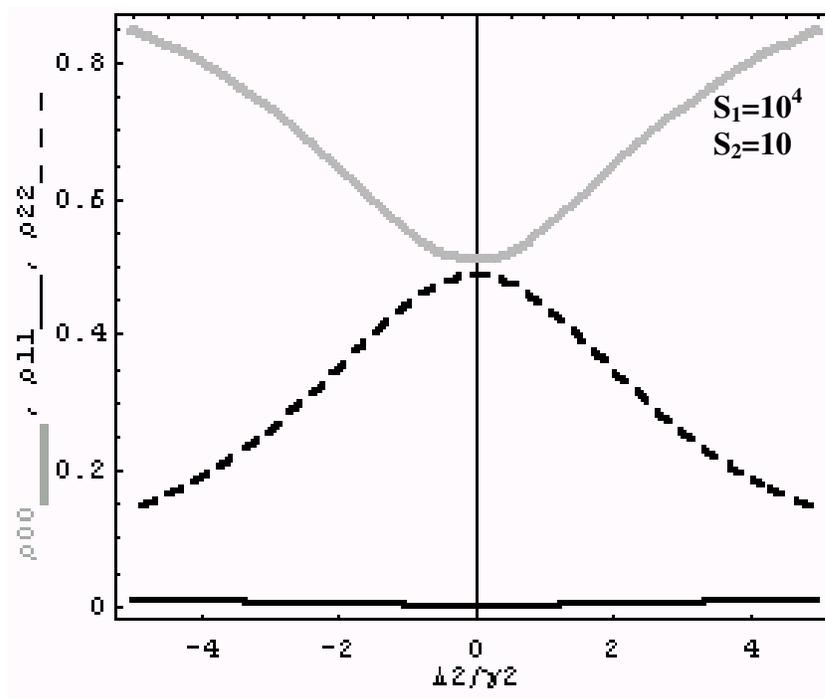


Fig. 4.7: Gráfico referente as populações ρ_{00}, ρ_{11} e ρ_{22} do átomo de Cálcio com os parâmetros de saturação especificados no gráfico, sintonizando o laser em 423 nm enquanto o de 657 nm é mantido fixo no centro da ressonância.

$$S_1=10^4$$

$$S_2=10^{-2}$$

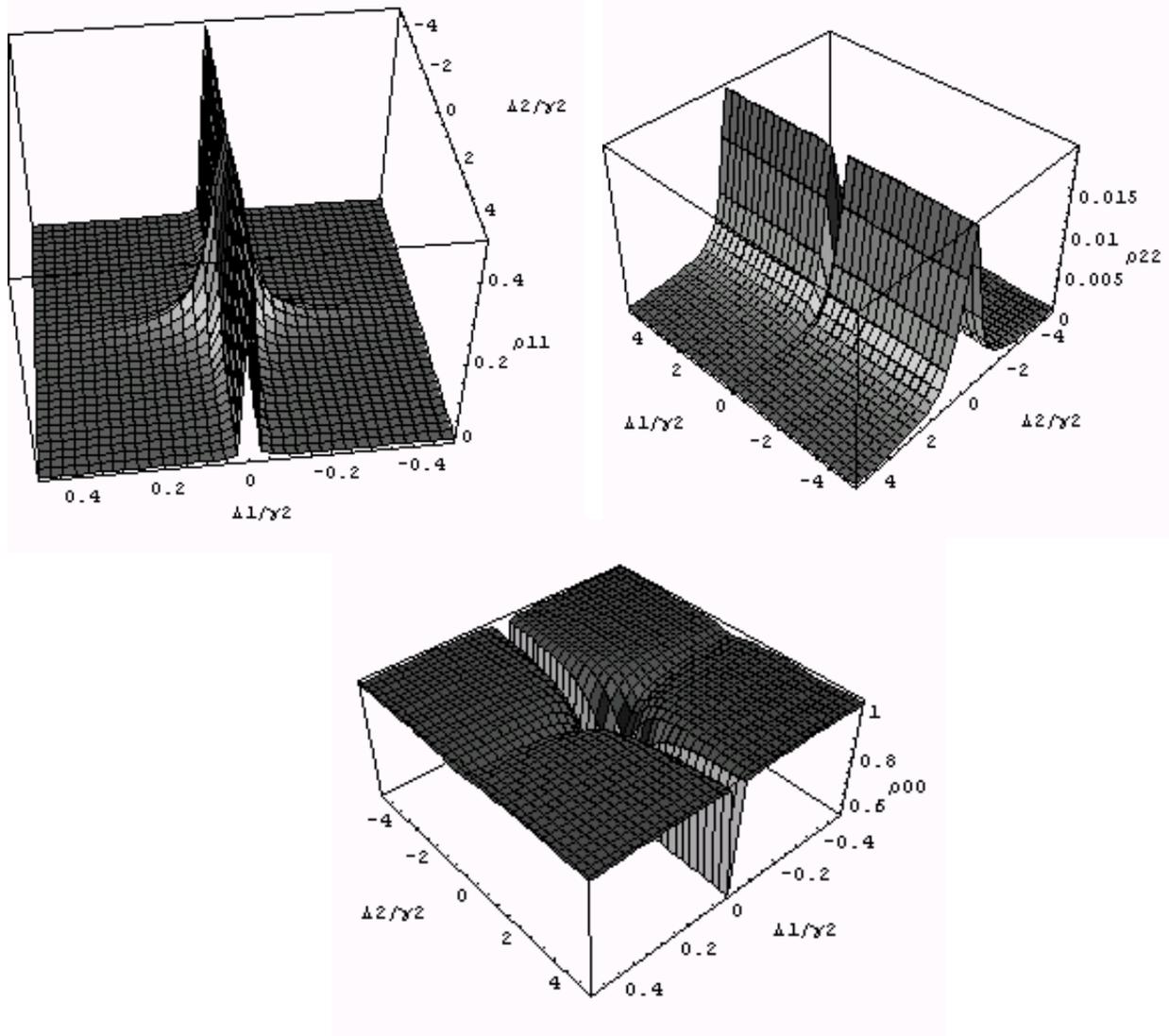


Fig.4.8: Gráfico referente as populações dos níveis 1S_0 , 3P_1 e 1P_1 correspondente a ρ_{00} , ρ_{11} e ρ_{22} respectivamente do átomo de Cálcio sintonizando os lasers em 423 nm e 657 nm.

$$S_1=10^4$$

$$S_2=10$$

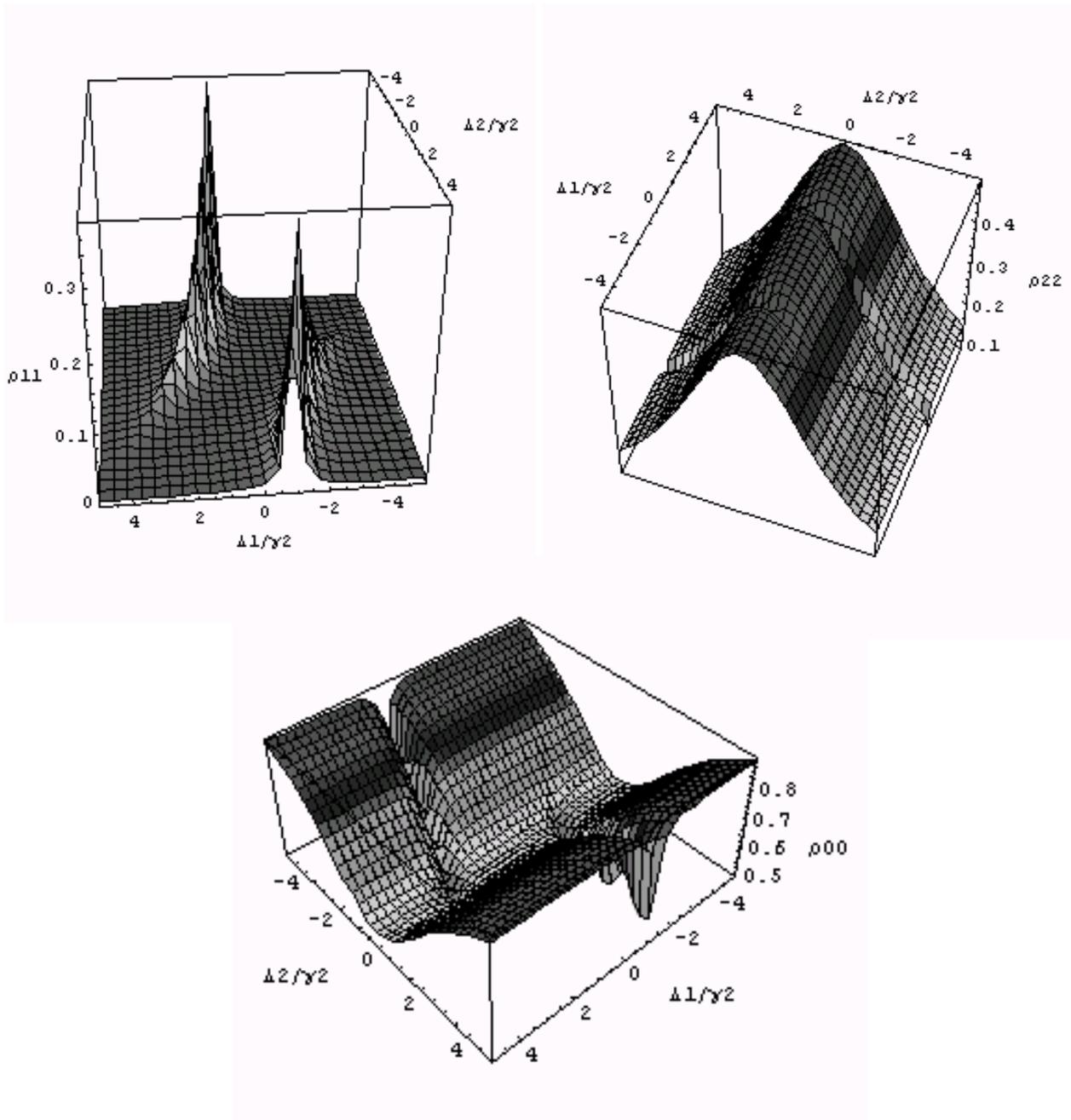


Fig.4.9: Gráfico referente as populações dos níveis 1S_0 , 3P_1 e 1P_1 correspondente a ρ_{00} , ρ_{11} e ρ_{22} respectivamente do átomo de Cálcio sintonizando os lasers em 423 nm e 657 nm.

4.4 Cálculo das populações com efeito Doppler

Podemos determinar como as populações são modificadas ao considerarmos o movimento cinético dos átomos. Em um feixe atômico existe uma distribuição de velocidades em cada direção espacial. Diferente de um gás, o feixe não possui uma distribuição Maxwelliana de velocidades [28], isto é, não apresenta um perfil Gaussiano, a não ser em alguns casos muito particulares. Vamos supor que nosso feixe atômico esteja enquadrado nesse caso particular onde os átomos de Cálcio saem de um forno com uma abertura muito maior que o caminho livre médio. Isto significa que os átomos sofrerão muitas colisões durante a passagem pela abertura. Adotando-se o eixo z como o eixo de propagação da onda (laser), a distribuição da velocidade em z pode ser escrita neste caso como [15]:

$$n(v_z) = \frac{N}{v_p \sqrt{\pi}} e^{-\left(\frac{v}{v_p}\right)^2} \quad (4.22)$$

sendo

$$v_p = \sqrt{\frac{k_B T_{\perp}}{M_a}} \quad (4.23)$$

onde N: número de moléculas total por volume, $k_B=1.38*10^{-23}$ J/K, $M_a=40*1.66*10^{-27}$ Kg, T_{\perp} : temperatura transversal.

No eixo x, temos uma distribuição Maxwelliana modificada:

$$n(v_x) = C e^{-\left(\frac{(v_x-u)}{2kT_{\parallel}}\right)^2} \quad (4.24)$$

onde τ_{\parallel} : temperatura translacional, u: velocidade do átomo, C: constante de normalização.

Se o laser está transversal ao feixe, a frequência de ressonância do átomo será modificada apenas pela distribuição em z (veja uma simulação na fig.4.10). As populações são encontradas apenas substituindo ω_{10} e ω_{20} por $\omega_{10} - kv_z$ e $\omega_{20} - kv_z$ nas eqs.(4.15) e as populações serão multiplicadas pelas gaussianas e integradas em v [29]. O efeito Doppler fará com que os picos sejam alargados. Podemos observar esse efeito comparando as figs.4.2 e 4.5 com as figs.4.11 e 4.12.

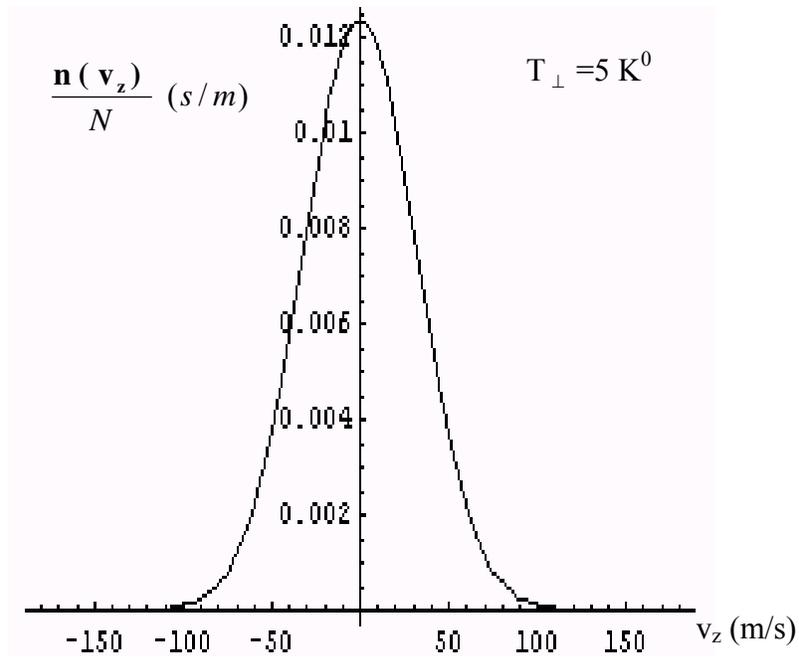


Fig. 4.10: Distribuição de velocidade na direção z a uma temperatura de 5°K.

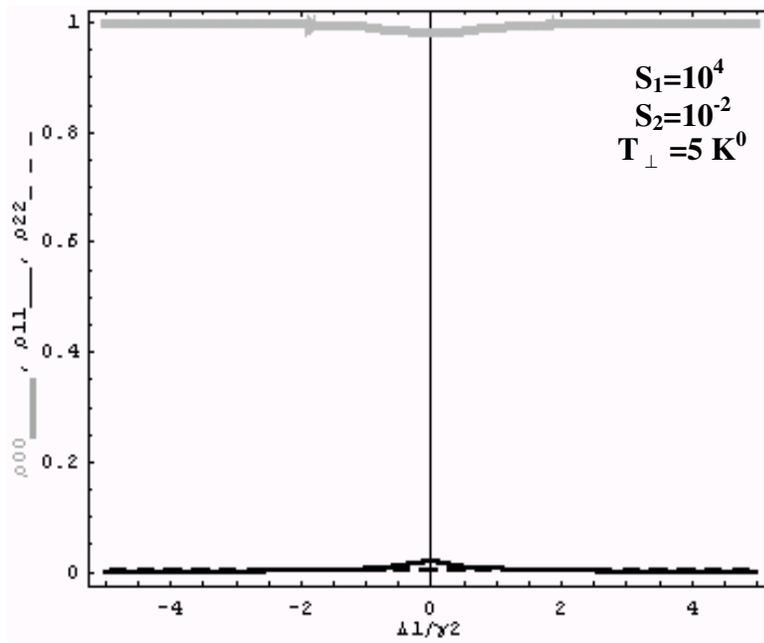


Fig. 4.11: Gráfico referente as populações ρ_{00} , ρ_{11} e ρ_{22} sob efeito Doppler em um feixe atômico com átomos de Cálcio com os parâmetros de saturação especificados no gráfico, sintonizando o laser em 657 nm enquanto o de 423 nm é mantido fixo no centro da ressonância.

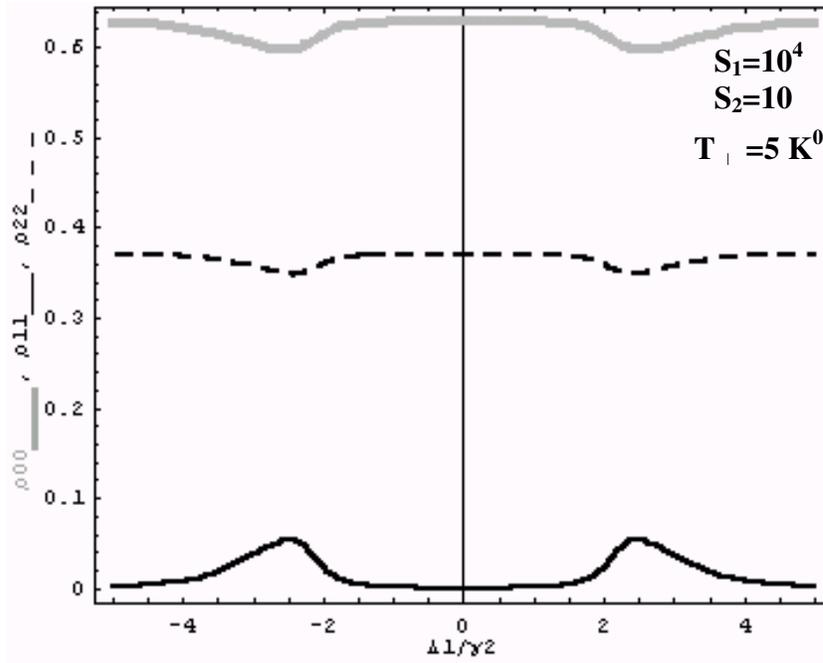


Fig. 4.12: Gráfico referente as populações ρ_{00} , ρ_{11} e ρ_{22} em um feixe atômico com átomos de Cálcio sob efeito Doppler com os parâmetros de saturação especificados no gráfico, sintonizando o laser em 657 nm enquanto o de 423 nm é mantido fixo no centro da ressonância.

4.5 Simulando o experimento

A simulação teórica e analítica do experimento mostrado no cap.2 é complexa e não fornece uma boa intuição física. Além de termos que escrever as soluções das oito equações diferenciais, teríamos que considerar a atuação do efeito Doppler no feixe atômico. Então, para facilitar a solução nos cálculos das populações em um regime transiente omitiremos o efeito Doppler e resolveremos as oito equações diferenciais pelo método numérico de Runge Kutta. Os átomos passam primeiro por um laser vermelho e depois pelo laser azul. Desse modo, a intensidade dos lasers ficam representadas por pulsos, do tipo função degrau, como mostrado na fig.4.13.

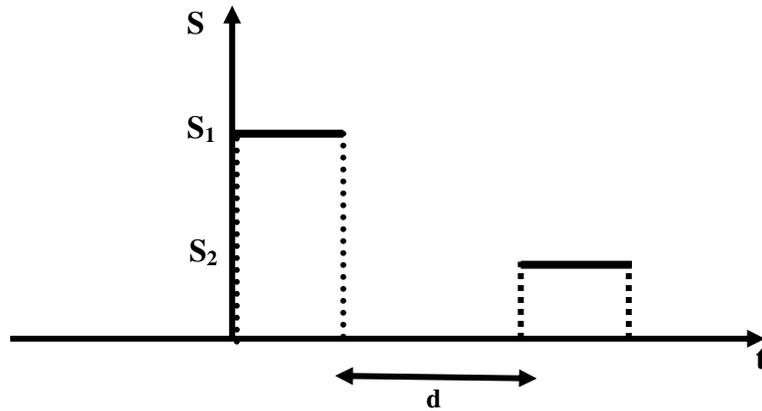


Fig. 4.13: Na simulação experimental ambos os lasers são tratados como "pulsos". Os pulsos representam o tempo de interação de cada laser com os átomos onde d é a distância espacial entre os lasers.

Considerando um feixe atômico ideal, ou seja, todos os átomos com velocidade de 700 m/s e $d=0,5 \text{ cm}$, o tempo entre os pulsos dos lasers é de $7 \mu\text{s}$. Aproximaremos esses pulsos degraus da fig.4.13 por funções semelhantes a Gaussianas, também separadas por $7 \mu\text{s}$ (separação entre os picos).

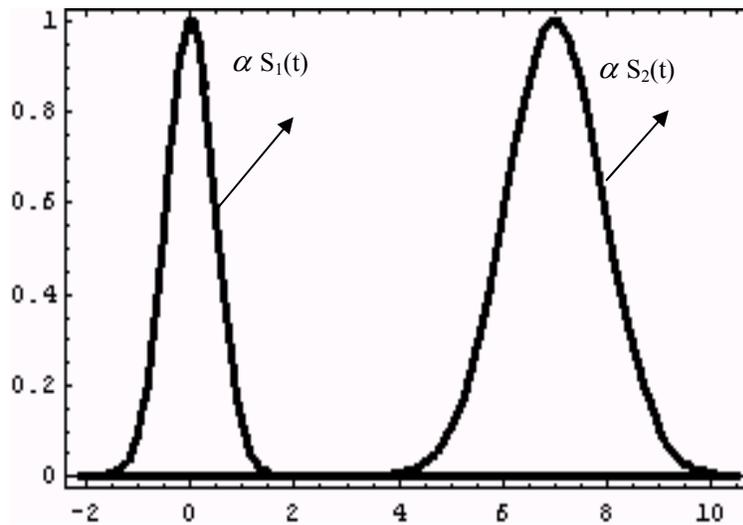


Fig. 4.14: Funções usadas para o modelo teórico simulando a intensidade do laser em 657 nm (primeiro pico) e do laser em 423 nm (segundo pico) variando no tempo.

Na fig.4.14 são mostradas duas funções $i_1(t)$ e $i_2(t)$, as quais são proporcionais aos parâmetros de saturação dependentes do tempo $S_1(t)$ e $S_2(t)$. As condições iniciais partem de $t=0 \mu\text{s}$. Consideramos que os "spots" tenham tamanhos de $R_1=0,1 \text{ cm}$, e $R_2=0,2 \text{ cm}$, então o tempo de interação do laser em 657 nm é de $1,43 \mu\text{s}$ e $5,71 \mu\text{s}$ para o de 423 nm .

As fig. 4.15 e 4.16 mostram as populações do nível 1P_1 obtidas considerando no tempo $t=7 \mu s$ onde a intensidade do laser em 423 nm é máxima .

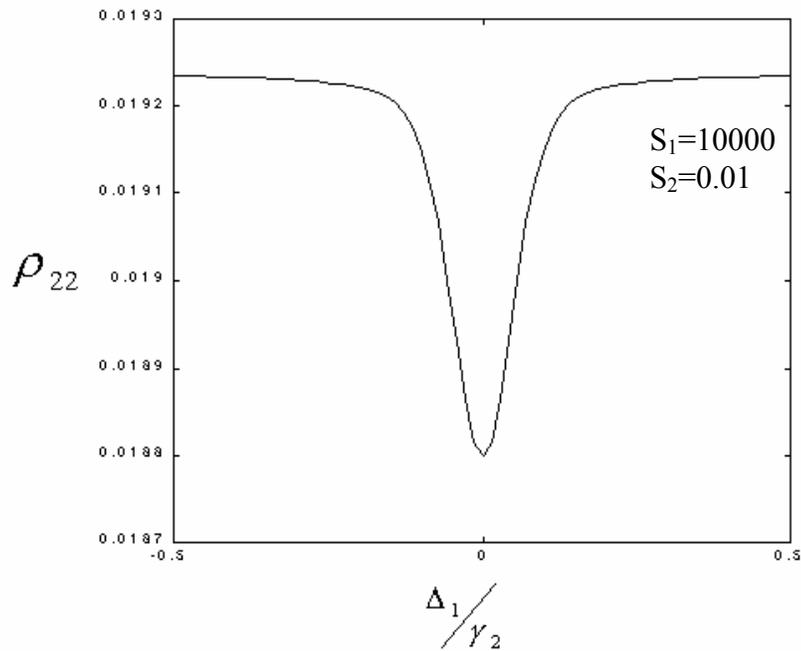


Fig.4.15: População do nível 1P_1 sintonizando o laser vermelho e fixando o azul no centro da ressonância da transição $^1S_0=^3P_1$.

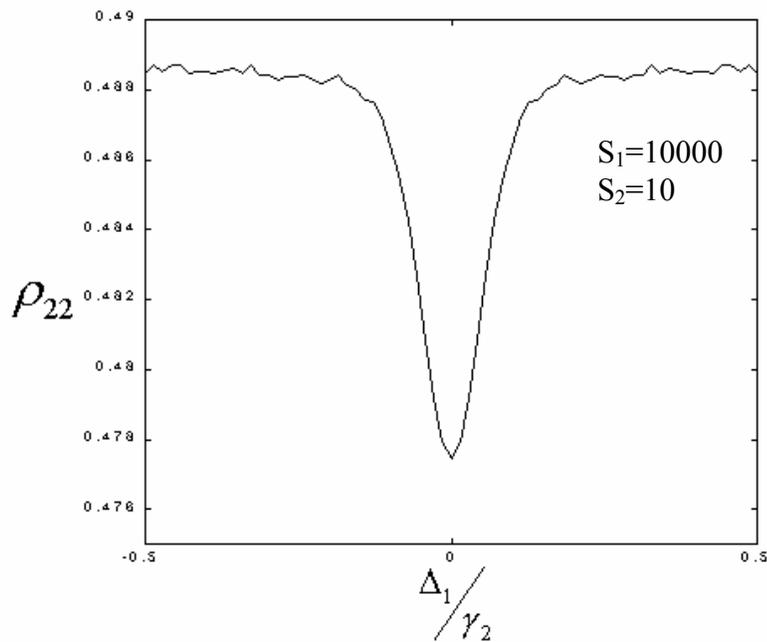


Fig.4.16: População do nível 1P_1 sintonizando o laser vermelho e fixando o azul no centro da ressonância da transição $^1S_0=^3P_1$.

Na fig. 4.15 podemos ver que a população do nível 1P_1 vai decrescendo a medida que o laser vermelho é sintonizado. Ao fixarmos o tempo de $7 \mu s$, um pouco mais de 1,92% dos átomos se encontram inicialmente no nível 1P_1 . Quando o laser vermelho vai entrando em ressonância no centro da transição, os átomos do nível fundamental migram para 3P_1 e em consequência, 1P_1 tem sua maior queda atingindo 1,88%.

Ao aumentarmos um pouco mais a potência do laser azul, ou seja, se aumentarmos S_2 , a população em 1P_1 assume um valor inicialmente maior (aproximadamente 48,8%) ao ser comparado a fig.4.15. Quando o laser vermelho está centralizado ($\Delta_1/\gamma_2=0$), aproximadamente 47,6% dos átomos permanecem em 1P_1 , ou seja, 1,2% de átomos a menos que o valor inicial.

Capítulo 5

Conclusão

5.1 Conclusão

Neste trabalho detectamos pela primeira vez em nosso laboratório a transição óptica de “relógio” do cálcio. Este é um passo fundamental para o desenvolvimento de um relógio atômico óptico baseado neste elemento.

O estudo de dupla ressonância do Cálcio nas transições $^1S_0-^1P_1$ e $^1S_0-^3P_1$ foi realizado teoricamente usando as equações de populações que saem da equação de Liouville com termos de relaxação (emissão espontânea) e experimentalmente medindo a fluorescência da transição $^1S_0-^1P_1$.

Conseguimos detectar num feixe atômico uma mudança na intensidade da fluorescência da transição $^1S_0-^1P_1$ quando um outro laser é usado para acessar $^1S_0-^3P_1$. Por ambas as transições compartilharem o mesmo nível, há uma variação na intensidade do sinal medido devido a alguns átomos estarem no nível excitado 3P_1 . As figs. 3.3 e 3.4 mostram experimentalmente a intensidade de fluorescência quando um laser está ressonante e o outro está sendo sintonizado. Em todas as nossas medidas, o laser de diodo (em 657 nm) teve praticamente sua potência fixa e assim, variamos somente a potência do laser de Ti:Safira duplicado em frequência (423 nm). Com o gráfico da fig. 3.4 obtido experimentalmente, podemos ver como a transição $^1S_0-^3P_1$ pode ser detectada indiretamente.

Pudemos simular o comportamento dos átomos de Cálcio livre do efeito Doppler. As fig. 4.2 a 4.5 mostram o caso em que o laser vermelho é sintonizado para quatro valores diferentes de S_2 . Utilizamos os valores mínimo e máximo de S_2 para simular as populações considerando o laser azul sendo agora variado em frequência. Os gráficos em 3D (figs. 4.8 e 4.9) são superfícies que revelam como é o comportamento dos diferentes ρ_{ii} $i = 0,1,2$ a medida em que os dois lasers vão sendo sintonizados.

Um feixe atômico com sua correspondente distribuição de velocidades foi usado para simular as populações no caso estacionário. Podemos ver que o efeito alarga os picos ao comparar a fig. 4.2 com 4.5 e 4.11 com 4.12.

Desse modo, pudemos analisar tanto experimentalmente quanto teoricamente a influência que uma transição causa em uma outra que compartilha um mesmo nível. Para simularmos o caso experimental deveríamos resolver as nove equações diferenciais que vêm das equações de Liouville para cada interação do feixe com o laser. Como por exemplo, os lasers teriam que ser tratados como “pulsos”, pois eles estão espacialmente separados e também considerar toda a dinâmica do sistema no tempo. O caso estacionário não poderia ser mais aplicado. Então fizemos uma solução numérica (método de Runge-Kutta) e desprezamos o efeito Doppler para calcular a população do nível 1P_1 sintonizando o laser vermelho e mantendo o laser azul no centro de ressonância da transição 1S_0 - 1P_1 .

Este trabalho será importante, em particular, para explorar o aspecto de interferometria atômica associado a espectroscopia de Ramsey [9] que consiste em uma sequência de pulsos $\pi/2$ com o laser vermelho no feixe atômico. Esse experimento será realizado em breve.

Outra perspectiva futura interessante deste trabalho seria explorar os efeitos coerentes na dupla ressonância com lasers em 423 nm e 657 nm, como por exemplo, a transparência induzida eletromagneticamente (EIT) no domínio óptico.

Apêndices

Comentários

No apêndice A1 apresentamos um programa feito no Mathematica, usado para calcular as equações de taxa (4.16) da seção 4.2, sem considerar o efeito Doppler. A obtenção dessas equações foi feita em parceria com Wictor Carlos Magno, pós-doutorando no grupo de Lasers e Aplicações.

No apêndice A2, mostramos outro programa no Mathematica onde aplica-se o uso da Regra de Cramer para calcular as populações no estado estacionário (seção 4.2), também sem o efeito Doppler.

A.1 Programa para obter as equações de taxa

```

Clear[V01, V02, V10, V20, V1, V2, H, ρ, ρr, dρdt, ρ21, ρ21til, ρ00til, ρ00, ρ12, ρ12til,
  k1, k2, ω1, ω2, ω20, ω10, z, V1til, V2til, Δ2, γ20];
V01 = V01til * Exp[i * (ω1 * t - k1 * z)];
V10 = V10til * Exp[-i * (ω1 * t - k1 * z)];
V02 = V02til * Exp[i * (ω2 * t - k2 * z)];
V20 = V20til * Exp[-i * (ω2 * t - k2 * z)];
V02til = V2;
V01til = V1;
V10til = V1;
V20til = V2;
H =  $\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & h * \omega_{10} & 0 \\ 0 & 0 & h * \omega_{20} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 & -h * V_{01} & -h * V_{02} \\ -h * V_{10} & 0 & 0 \\ -h * V_{20} & 0 & 0 \end{pmatrix}$ ; (*A segunda matriz é
ρ00 = ρ00til[t];
ρ11 = ρ11til[t];
ρ22 = ρ22til[t];
ρ01 = ρ01til[t] * Exp[i * (ω1 * t - k1 * z)];
ρ02 = ρ02til[t] * Exp[i * (ω2 * t - k2 * z)];
ρ10 = ρ10til[t] * Exp[-i * (ω1 * t - k1 * z)];
ρ20 = ρ20til[t] * Exp[-i * (ω2 * t - k2 * z)]; (* ρijtil está em função do tempo *)
ρ12 = ρ12til[t] * Exp[-i * ((ω1 - ω2) * t - (k1 - k2) * z)];
ρ21 = ρ21til[t] * Exp[-i * ((ω2 - ω1) * t - (k2 - k1) * z)];
ρ =  $\begin{pmatrix} \rho_{00} & \rho_{01} & \rho_{02} \\ \rho_{10} & \rho_{11} & \rho_{12} \\ \rho_{20} & \rho_{21} & \rho_{22} \end{pmatrix}$ ;
MatrixForm[ρ];
ρr =  $\begin{pmatrix} \gamma_1 * \rho_{11} + \gamma_2 * \rho_{22} & -\gamma_{01} * \rho_{01} & -\gamma_{02} * \rho_{02} \\ -\gamma_{10} * \rho_{10} & -\gamma_1 * \rho_{11} + \gamma_2 * \rho_{22} & -\gamma_{12} * \rho_{12} \\ -\gamma_{20} * \rho_{20} & -\gamma_{21} * \rho_{21} & -\gamma_2 * \rho_{22} + \gamma_1 * \rho_{11} \end{pmatrix}$ ;
dρdt =  $\frac{1}{i * h}$  (H.ρ - ρ.H) + ρr ; MatrixForm[dρdt] ;
(*Cuidado, o sinal de multiplicação entre duas matrizes é . e não * *)
i = Sqrt[-1];
Simplify[dρdt[[1, 1]]] (*elemento de matriz 11 dando o termo ρ00till*)
Simplify[dρdt[[3, 1]]] (*elemento de matriz 31 que o termo ρ20/dt. Temos que substituir
  ρ20 nesse elemento de matriz de dp/dt e derivá-lo no tempo,
  ficando exp(-i*ω2*t)*(dp20til/dt)-i*ω2*exp(-i*ω2*t)*ρ20til. Observe que somente
  esse termo tem a frequência do laser e então aparecerá o detuning nas equações *)
Δ2 = ω2 - ω20;
Simplify[Solve[D[ρ20, t] - dρdt[[3, 1]] == 0, D[ρ20til[t], t]]] (*Equação de taxa para ρ20til,
isto é dp20til/dt*)
Simplify[Solve[D[ρ12, t] - dρdt[[2, 3]] == 0, D[ρ12til[t], t]]] (*Equação de taxa para ρ12til,
isto é dp12til/dt*)

```

A.2 Programa para obter as populações dos níveis 1S_0 , 3P_1 e 1P_1 sem efeito Doppler

```

Clear[D2, ro11, ro22, M, Mro11, Mro22, V1, V2, S1, g1, g2, S2, g2, g1, D1, D2]
g1 = 0.000012;
g2 = 1;
D2 = 0;
S1 = 10000;
S2 = 0.01;
V1 :=  $\sqrt{\frac{S1}{2}}$  g1;
V2 :=  $\sqrt{\frac{S2}{2}}$  g2;
i =  $\sqrt{-1}$ ;

```

$$M = \begin{pmatrix}
 g1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & i*V1 & -i*V1 \\
 0 & g2 & i*V2 & -i*V2 & 0 & 0 & 0 & 0 \\
 i*V2 & i*2*V2 & (\frac{g2}{2} - i*D2) & 0 & i*V1 & 0 & 0 & 0 \\
 -i*V2 & -i*2*V2 & 0 & (\frac{g2}{2} + i*D2) & 0 & -i*V1 & 0 & 0 \\
 0 & 0 & i*V1 & 0 & \frac{g1*g2}{2} + i(D1 - D2) & 0 & 0 & -i*V2 \\
 0 & 0 & 0 & -i*V1 & 0 & \frac{g1*g2}{2} - i(D1 - D2) & i*V2 & 0 \\
 i*2*V1 & i*V1 & 0 & 0 & 0 & i*V2 & (\frac{g1}{2} - i*D1) & 0 \\
 -i*2*V1 & -i*V1 & 0 & 0 & -i*V2 & 0 & 0 & (\frac{g1}{2} + i*D1)
 \end{pmatrix};$$

$$Mro11 = \begin{pmatrix}
 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & i*V1 & -i*V1 \\
 0 & g2 & i*V2 & -i*V2 & 0 & 0 & 0 & 0 \\
 i*V2 & i*2*V2 & (\frac{g2}{2} - i*D2) & 0 & i*V1 & 0 & 0 & 0 \\
 -i*V2 & -i*2*V2 & 0 & (\frac{g2}{2} + i*D2) & 0 & -i*V1 & 0 & 0 \\
 0 & 0 & i*V1 & 0 & \frac{g1*g2}{2} + i(D1 - D2) & 0 & 0 & -i*V2 \\
 0 & 0 & 0 & -i*V1 & 0 & \frac{g1*g2}{2} - i(D1 - D2) & i*V2 & 0 \\
 i*V1 & i*V1 & 0 & 0 & 0 & i*V2 & (\frac{g1}{2} - i*D1) & 0 \\
 -i*V1 & -i*V1 & 0 & 0 & -i*V2 & 0 & 0 & (\frac{g1}{2} + i*D1)
 \end{pmatrix};$$

$$Mro22 = \begin{pmatrix}
 g1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & i*V1 & -i*V1 \\
 0 & 0 & i*V2 & -i*V2 & 0 & 0 & 0 & 0 \\
 i*V2 & i*V2 & (\frac{g2}{2} - i*D2) & 0 & i*V1 & 0 & 0 & 0 \\
 -i*V2 & -i*V2 & 0 & (\frac{g2}{2} + i*D2) & 0 & -i*V1 & 0 & 0 \\
 0 & 0 & i*V1 & 0 & \frac{g1*g2}{2} + i(D1 - D2) & 0 & 0 & -i*V2 \\
 0 & 0 & 0 & -i*V1 & 0 & \frac{g1*g2}{2} - i(D1 - D2) & i*V2 & 0 \\
 i*2*V1 & i*V1 & 0 & 0 & 0 & i*V2 & (\frac{g1}{2} - i*D1) & 0 \\
 -i*2*V1 & -i*V1 & 0 & 0 & -i*V2 & 0 & 0 & (\frac{g1}{2} + i*D1)
 \end{pmatrix};$$

$$ro11 = \frac{\text{Det}[Mro11]}{\text{Det}[M]};$$

$$ro22 = \frac{\text{Det}[Mro22]}{\text{Det}[M]};$$

```

Plot[{ro11, ro22, 1 - (ro11 + ro22)}, {D1, -5, 5}, PlotStyle -> {RGBColor[1, 0, 0], RGBColor[0, 0, 1], RGBColor[0, 1, 0]},
 AspectRatio -> 0.8, Frame -> True, RotateLabel -> True, FrameLabel -> {"Δ1/γ2", "ρ00, ρ11, ρ22"}]

```

B.1 Estudo de dupla ressonância em lâmpadas de catodo oco

B.1.1 Introdução

O estudo inicial desse trabalho de tese consistia em estudar a dupla ressonância 1S_0 - 3P_1 e 1S_0 - 1P_1 do Cálcio em lâmpadas de catodo oco usando um laser de corante em 657 nm e o laser de Ti:Safira duplicado em frequência em 423 nm descrito no cap.2. O sinal analisado seria agora a variação da impedância da lâmpada e não mais a fluorescência do nível 1P_1 . Por problemas de ruído na lâmpada, preferimos abandoná-las e por isso, utilizamos o feixe para o estudo em questão. Por já termos feito um estudo de como seria esse experimento, vamos descrever aqui os pontos principais.

Vamos enfatizar neste momento como seria o experimento envolvendo átomos de Cálcio em lâmpadas de catodo oco. Espectros Doppler já foram obtidos por um outro aluno do grupo na transição em 423 nm por detecção optogalvânica e óptica. Como falamos em capítulos anteriores, esperamos que na presença do laser em 657 nm a absorção em 423 nm seja atenuada.

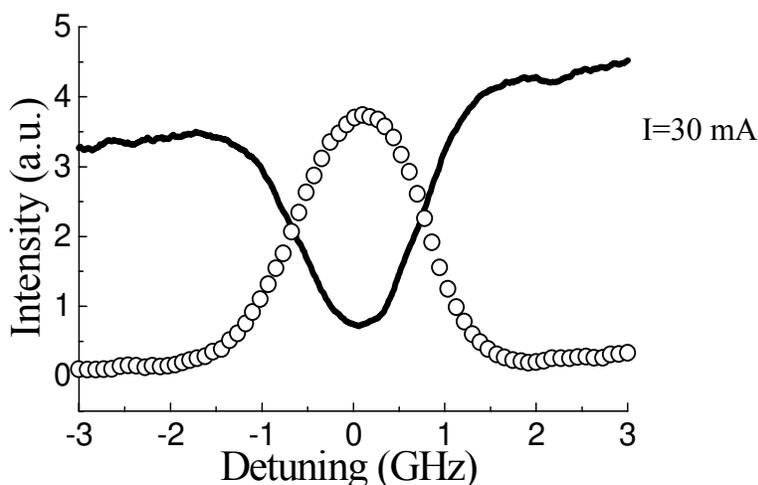
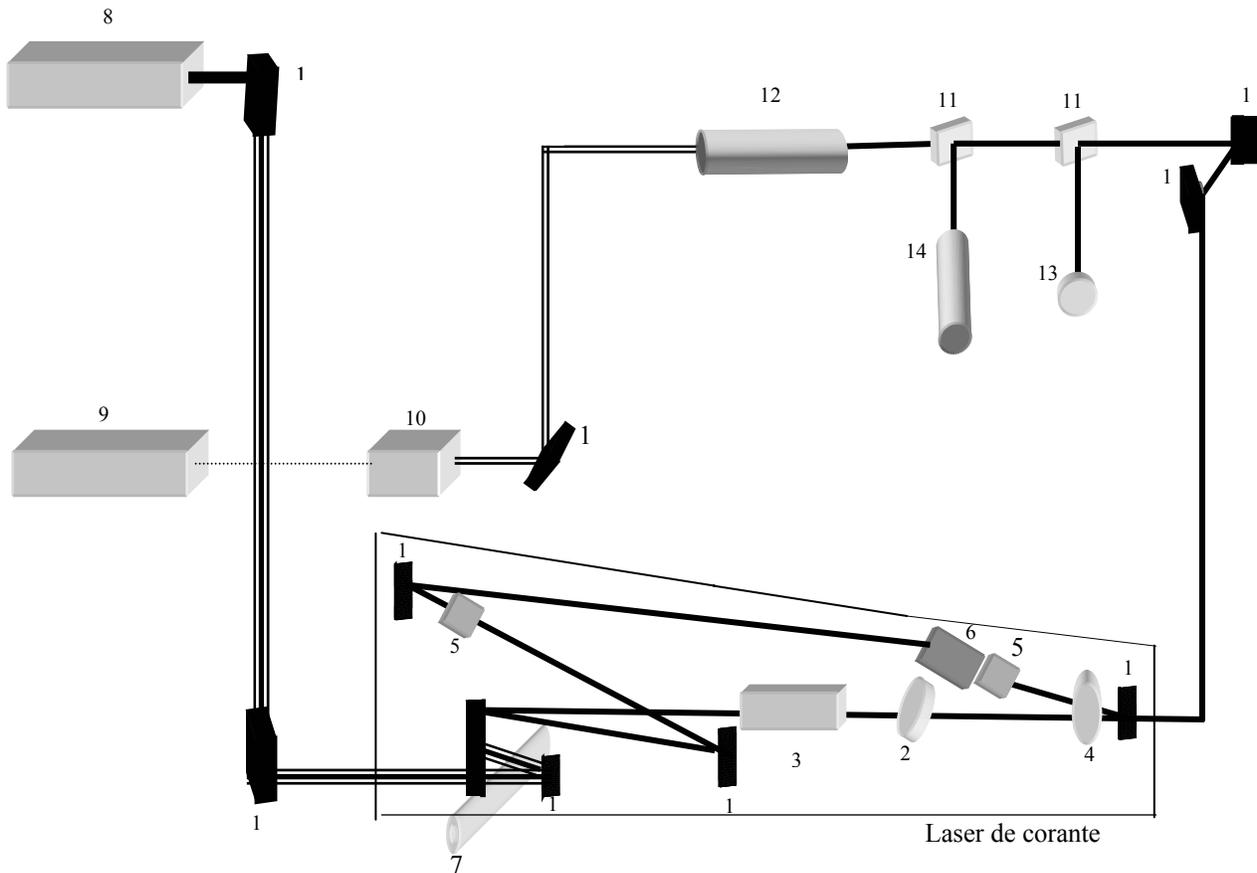


Fig. B.1: Espectro Doppler da transição em 423 nm. Linha cheia preta: Sinal Optogalvânico, Círculos: Sinal óptico detectado[9].

Considere o diagrama de níveis da fig.(1.1), onde indicamos explicitamente as transições de nosso interesse. A montagem experimental que utilizaríamos neste trabalho é mostrada na fig.(B.2)



- 1: Espelhos
 - 2: Filtro Birrefringente
 - 3: Etalons (Fino e Grosso)
 - 4: Placa em Ângulo de Brewster
 - 5: Romboedro
 - 6: Diodo Óptico
 - 7: Fluxo Contínuo de Corante DCM diluído em Álcool Benzílico e Etileno Glicol
 - 8 : Laser de Argônio operando em multilinha
 - 9 : Laser de Ti:Safira
 - 10 : Cavidade Duplicadora
 - 11 : Divisores de Feixe (“Beam- Splitters”)
 - 12 : Lâmpada de Catodo-Oco
 - 13 : Feixe enviado por fibra até um wavemeter
 - 14 : Cavidade Fabry-Perot para análise
- Linhas: Triplas: feixe do laser de Ar^+ operado em multilinha , Pontilhadas: feixe do laser Ti:Safira. Dunlas: feixe do Ti:Safira duplicado em frequência

Fig.B.2.: Montagem óptica experimental usada no experimento envolvendo dupla ressonância em átomos de Cálcio evaporados em uma lâmpada de catodo oco.

Na fig. (B.2) mostramos dois lasers, um de Ti:Safira duplicado em frequência (423 nm) e outro de corante (657 nm) os quais incidem nos átomos de Cálcio evaporados por processo de “sputtering” na lâmpada de catodo-oco. Podemos fixar a frequência do laser de corante e varrer a frequência do laser de Ti:Safira duplicado em frequência. O laser de corante é bombeado por um laser de Ar^+ operando em multilinhas. O interior do laser de corante está sendo mostrado pela fig.(B.2). Temos ainda uma parte do laser de corante sendo enviada para um “lambdameter”, para leitura de comprimento de onda, e para uma cavidade de Fabry-Perot, para controle dos modos. O laser de Ti:Safira duplicado em frequência já foi descrito no cap.2.

B.2 Caracterização do laser de Argônio

Pudemos caracterizar o laser de Ar^+ pelos valores medidos no seu painel de controle, variando-se a potência do laser operando em multilinhas. Futuramente, as medidas serão refeitas para analisarmos o perfil de desgaste do tubo (fig.(B.3)).

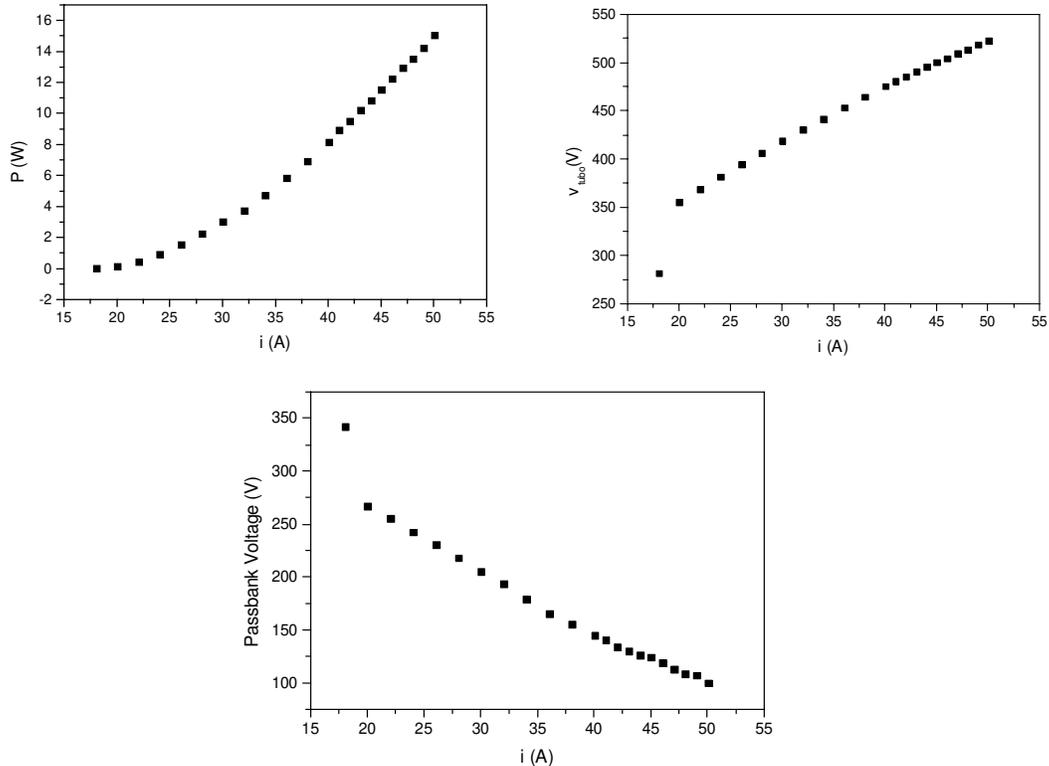


Fig.B.3: Potência e tensão em função da corrente no tubo do laser de Ar^+ em regime multilinha.

B.3 Espectro de fluorescência da lâmpada

Para observarmos as linhas de emissão do Cálcio na lâmpada, realizamos duas varreduras no espectro: uma de 400 a 593,34 nm e a outra de 550 a 740 nm. Para isto, utilizamos um espectrômetro que contém espelhos, três fendas e duas grades de difração. A luz que queremos decompor entra por uma das fendas que tende a selecionar o ângulo de incidência na primeira grade já que a luz da lâmpada entra com ângulos em todas as direções. A fim de uma seleção mais fina no ângulo, o feixe torna a passar por uma outra grade e é logo enviado pela fenda de saída. Nesta última fenda, introduzimos um fotodetector. O sinal recebido foi enviado a um amplificador SR 570 (10 nA/V) onde o analisamos por um osciloscópio digital Tektronix. O espectrômetro possui um painel de controle que faz o movimento eletrônico das grades controlando, dessa forma, a velocidade de varredura. Para obtermos os espectros, selecionamos no próprio espectrômetro o comprimento de onda inicial. Ligamos o osciloscópio e a partir de 10 s acionamos o painel de controle do espectrômetro já ajustado em um certo valor de velocidade de sintonização, cronometrando o tempo. Como não temos uma conexão direta entre o painel e o osciloscópio, esse intervalo de 10 s é o tempo suficiente para podermos acionar o painel. Quando visualizamos o comprimento de onda final determinado, acionamos o osciloscópio para bloquear o sinal e a partir de então, gravamos o espectro em um disquete no próprio osciloscópio. Os dados foram abertos no programa “Origin”. Na coluna onde foi registrado o tempo, desconsideramos os pontos nos primeiros 10s e somamos o tempo inicial a toda coluna para colocar o eixo temporal na origem. A partir de uma equação linear do tipo

$$\lambda = \lambda_{inicial} + \alpha t \quad (B.1)$$

podemos achar o coeficiente angular conhecendo-se os comprimentos inicial e final além do tempo total de contagem desconsiderando-se, é claro, os 10 s.

A lâmpada utilizada para o espectro é constituída de um anodo e um catodo, ambos de Cálcio, preenchida com Argônio a pressão de 1 Torr, 23 mm de comprimento e 4,2 cm de diâmetro. Ela foi construída pelo Dr. Armando Mirage do IPEN-SP.

Os espectros foram comparados com os espectros obtidos anteriormente por um aluno do grupo. A lâmpada utilizada por ele para sua pesquisa difere um pouco da qual

usamos aqui. Ela possui além do catodo de Cálcio, dois anodos de Titânio, com Argônio a pressão de 2,6 Torr, 22 cm de comprimento e 3,5 cm de diâmetro. A lâmpada foi mantida a 50 mA enquanto a nossa ficou em 85 mA. Esperávamos obter semelhança entre os espectros comparados. De fato, para alguns picos isso ocorreu. Uma maior semelhança seria obtida se refizéssemos os espectros com uma varredura mais lenta.

Com os espectros anteriormente já obtidos (fig.(B.4) e (B.5)), tentamos identificar além das linhas do Cálcio que foram mostradas, quais seriam as prováveis linhas de emissão que apareciam. Identificamos na lâmpada usada por ele, linhas do Argônio I e Argônio II. Um pico em 412,9 da fig. (B.4) nm aparece sem identificação.

Na fig.(B.7) aparece um pico entre 675,4 nm e 696,54 nm com o valor de 686,9 nm. Considerando-se que a molécula de oxigênio O₂ tenha um linha em 686,7, terá uma possível chance de ser a molécula citada, considerando-se os desvios nas medidas. Nossos espectros foram calibrados pelo pico de 422,7 nm na fig.(B.4) e pelo pico de 616,2 nm na fig.(B.5). Mesmo com essa calibração, os picos posteriores são ficaram bem calibrados e não conseguimos identificar as linhas com precisão. Um fato que nos chamou a atenção, foi uma imensa banda que apareceu no espectro referente a fig.(B.7). Provavelmente, isso deve-se ao fato de conter moléculas dentro da lâmpada, como por exemplo água. As moléculas por terem bandas bem mais largas que os átomos, emitem um espectro mais contínuo.

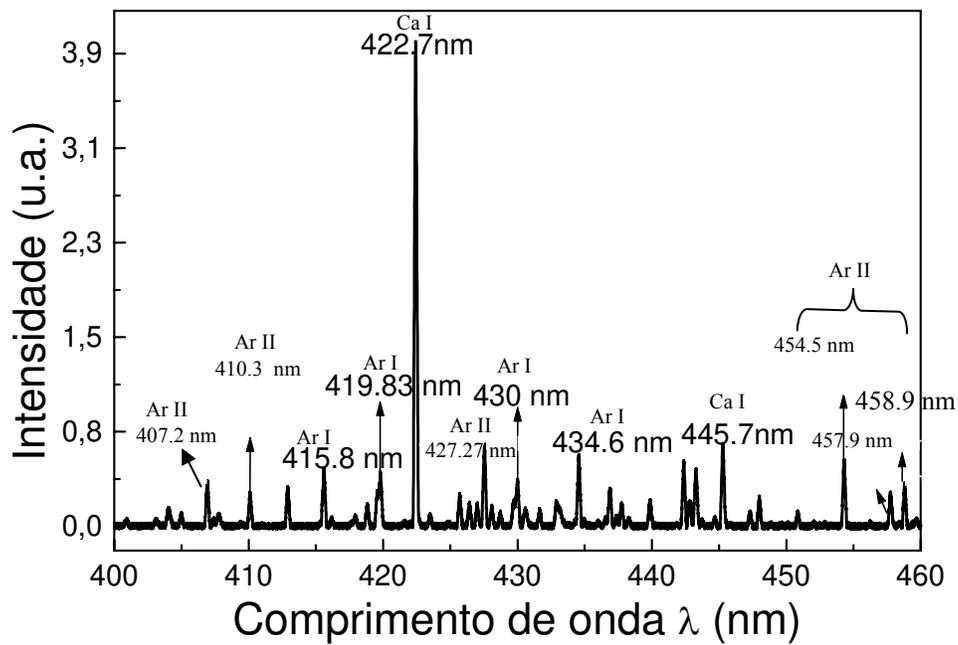


Fig. B.4: Espectro de 400 a 460 nm obtido em [30].

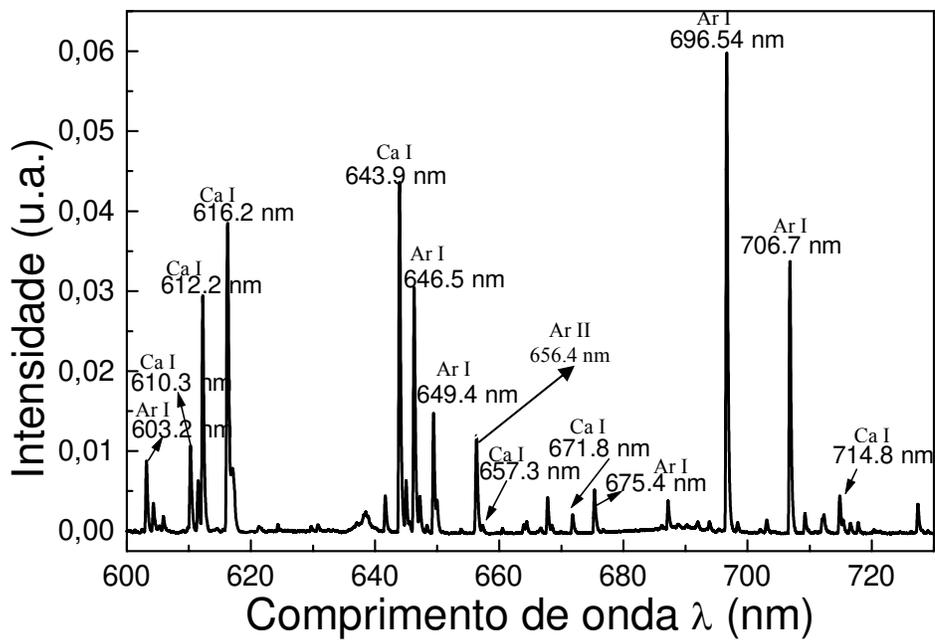


Fig. B.5: Espectro de 600 a 730 nm obtido em [30].

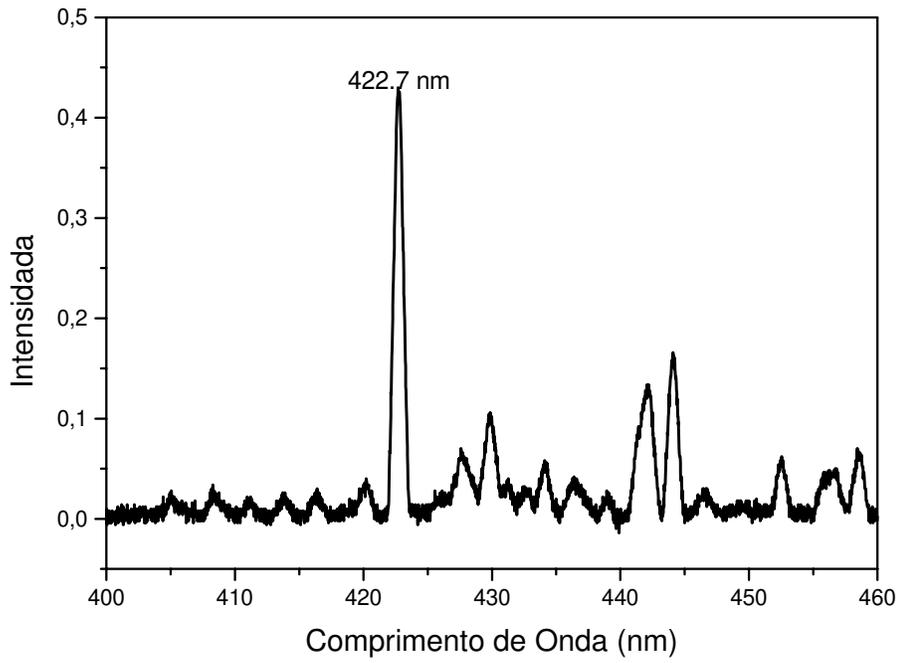


Fig.B.6: Espectro de 400 a 460 nm obtidos neste trabalho. A linha marcada refere-se ao Cálcio.

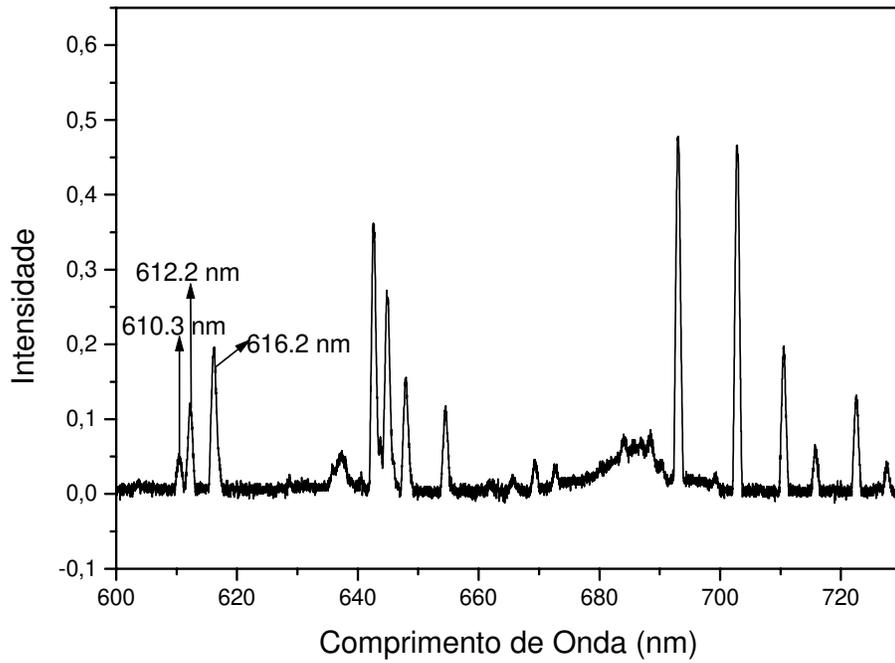


Fig.B.7: Espectro de 600 a 730 nm obtidos nesse trabalho. As linhas marcadas referem-se ao Cálcio.

Elemento	Comprimento de Onda (nm)	Transição Correspondente
Ar II	407.2	$4p\ ^4D - 5s\ ^4P$ ou $4s'\ ^2D - 4p'\ ^2D^0$
Ar II	410.3	$4p\ ^4D^0 - 5s\ ^4P$ $4p\ ^4D^0 - 5s\ ^2P$
Ar I	415.8	$4s\ [1\ \frac{1}{2}]^0 - 5p\ [1\ \frac{1}{2}]$
Ar I	419.83	$4s\ [1\ \frac{1}{2}]^0 - 5p\ [1\ \frac{1}{2}]$
Ca I	422.7	$4s^2\ ^1S - 4p\ ^1P^0$
Ar II	427.7	$4s'\ ^2D - 4p'\ ^2P^0$
Ar I	430	$4s\ [1\ \frac{1}{2}]^0 - 5p\ [2\ \frac{1}{2}]$
Ar I	434.6	$4s'\ [1\ \frac{1}{2}]^0 - 5p'\ [1\ \frac{1}{2}]$
Ca I	445.7	$4p\ ^3P^0 - 4d\ ^3D$
Ar II	454.5	$4s\ ^2P - 4p\ ^2P^0$
Ar II	457.9	$4s\ ^2P - 4p\ ^2S^0$
Ar II	458.9	$4s'\ ^2D - 4p'\ ^2F^0$
Ar I	603.2	$4p\ [2\ \frac{1}{2}] - 5d\ [3\ \frac{1}{2}]^0$
Ca I	610.3	$4p\ ^3P^0 - 5s\ ^3S$
Ca I	612.2	$4p\ ^3P - 5s\ ^3S$
Ca I	616.2	$4p\ ^3P - 5s\ ^3S$
Ca I	643.9	$3d\ ^3D - 4p'\ ^3F^0$
Ar I	646.6	$4p\ [1\ \frac{1}{2}] - 5d\ [1\ \frac{1}{2}]^0$
Ar I	649.4	$4p\ [2\ \frac{1}{2}] - 4d'\ [1\ \frac{1}{2}]^0$
Ar II	656.4	$3\ d''\ ^2D - (3P_2)\ 4f\ [4]^0$
Ca I	657.3	$4s^2\ ^1S - 4p\ ^3P^0$
Ca I	671.8	$3d\ ^1D - 4p'\ ^1P^0$
Ar I	675.4	$4p'\ [1\ \frac{1}{2}] - 5d\ [1\ \frac{1}{2}]^0$
Ar I	696.54	$4s\ [1\ \frac{1}{2}]^0 - 4p'\ [1\ \frac{1}{2}]$
Ar I	706.7	$4s\ [1\ \frac{1}{2}]^0 - 4p'\ [1\ \frac{1}{2}]$
Ca I	714.8	$3d\ ^1D - 4p'\ ^1D^0$

Tabela B.1: Transições observadas pelo espectro das figs. (B.6) e (B.7) [31]

B.4 Lâmpada de Catodo-Oco

Por vaporizar metais, inclusive os de alto ponto de fusão sem a necessidade do metal ser submetido a um forno para ser aquecido a altas temperaturas, a descarga de catodo oco torna-se extremamente útil para diversos tipos de pesquisa como espectroscopia ótica de absorção, emissão e optogalvânica; química analítica e construção de lasers. Dentro do plasma podemos encontrar tanto os átomos do metal como o do gás “buffer” em seus estados fundamentais e nos mais diversos estados de excitação.

Essas lâmpadas (fig. (B.8)) são constituídas de um catodo cilíndrico ou de duas placas metálicas finas separadas por uma distância d . Na nossa pesquisa, utilizamos o catodo cilíndrico¹. Os elétrons são emitidos pelo catodo com velocidade perpendicular a superfície e são acelerados pelo lado oposto do catodo. Como a lâmpada está envolvida numa atmosfera com Argônio ou Criptônio, esses elétrons colidem com estes átomos, excitando-os e ionizando-os. Ao atingirem a região próxima ao catodo oposto, os elétrons são refletidos. Dessa maneira, os elétrons ficam confinados entre as placas. Os íons do gás são atraídos pelo catodo, e colidem com este, arrancando os átomos da superfície (“sputtering”), no nosso caso, o Cálcio. Os átomos de Cálcio são excitados e ionizados dentro do plasma e esses íons também são atraídos pelo catodo aumentando mais o processo de “sputtering”.

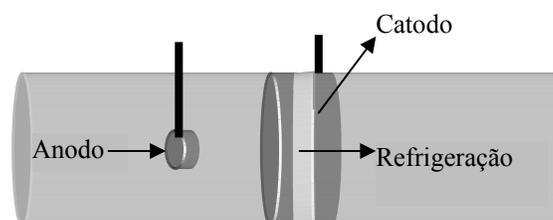


Fig. B.8: Lâmpada de catodo oco.

A alteração na corrente da descarga pode ser explicada por dois motivos. O primeiro deles é que o aumento da corrente com a introdução de um laser ressonante faz os átomos de Cálcio serem excitados tornando mais fácil esses átomos serem ionizados por processos de colisão. Outros pesquisadores, já consideraram que os átomos de Cálcio excitados podem transferir suas energias aos elétrons através de colisões inelásticas, aumentando a

¹ As lâmpadas foram construídas pelo Dr. Armando Mirage do IPEN-SP.

velocidade destes e por isso, aumentando a corrente no circuito. Atualmente, esses dois processos são considerados .

Uma fonte de corrente DC foi conectada à lâmpada que foi mantida sob refrigeração com um fluxo de água. Um resistor de *ballast* é conectado em série com a lâmpada para manter estável a descarga elétrica. Variações da impedância da lâmpada induzidas pela absorção de um laser modulado em amplitude são detectadas em fase por um lock-in. O capacitor introduzido no circuito tem a finalidade de bloquear a componente DC da corrente. O feixe de laser foi modulado em amplitude por um *chopper* antes da lâmpada e o sinal de referência deste *chopper* foi enviado diretamente ao lock-in. Uma das lâmpadas que seriam usadas tem um catodo de Titânio, dois anodos cilindricos dispostos simetricamente em relação ao catodo, 20 cm de comprimento, 3 cm de diâmetro e preenchida com Argônio a um pressão de aproximadamente 1 Torr.

B.4.1 A descarga na lâmpada

Nesta seção, descreveremos o comportamento de uma lâmpada com dois eletrodos.

B.4.1.1 lâmpada de dois eletrodos planos

Temos em nosso laboratório três lâmpadas do tipo catodo-oco confeccionadas pelo Dr. Armando Mirage do IPEN-SP. Todas possuem um catodo cilíndrico e um ou dois anodos em forma anelar para possibilitar a penetração do laser. Mostraremos adiante um modelo de como ocorre o processo de passagem de corrente dentro de uma lâmpada constituída por um catodo e um anodo planos.

Para entendermos o funcionamento da descarga, iremos mostrar como a corrente varia com a tensão aplicada entre os dois eletrodos, isto é, i (V) a pressões de aproximadamente 1 Torr.

Uma descarga em um campo DC pode ser classificada como: descarga não auto-sustentável e descarga auto-sustentável [32-35]. Os regimes de operação podem ser melhor descritos separados por faixas de corrente (fig. (B.9)).

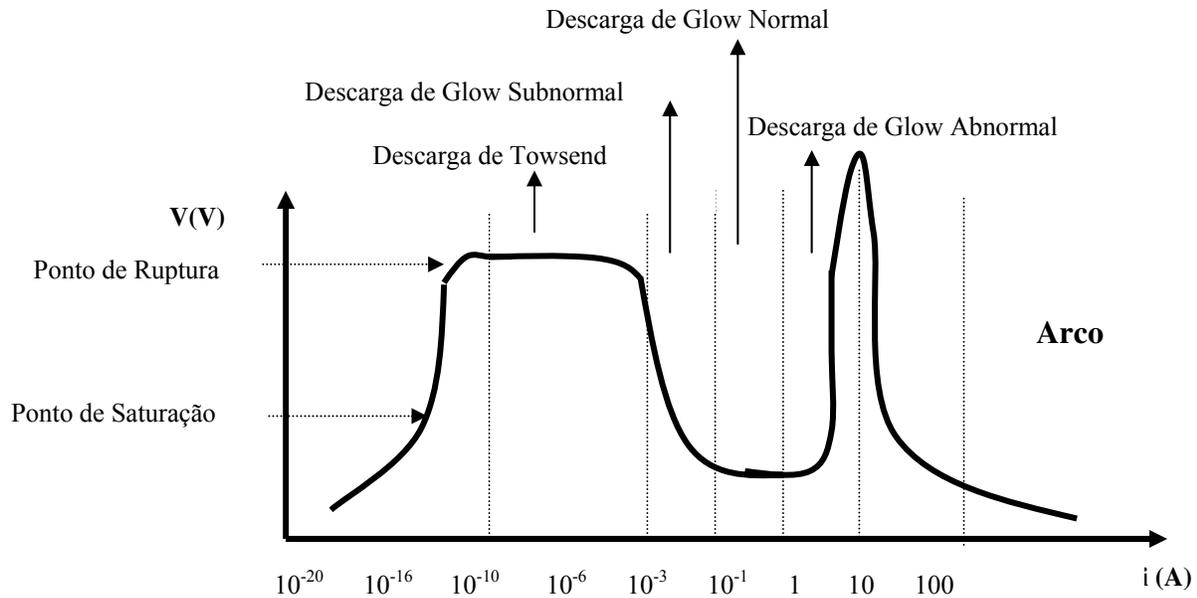


Fig. B.9: Curva $V(i)$ para uma descarga gasosa entre dois eletrodos planos.

Até $\approx 10^{-10}$ A: Nesse intervalo, os elétrons emitidos do catodo (elétrons primários) não ganham energia suficiente do campo para excitar e muito menos para ionizar o gás. Portanto, não há luminosidade presente na descarga. Se uma baixa voltagem é aplicada entre os eletrodos, somente um instrumento supersensível consegue medir uma corrente com valor tão baixo. Essa corrente é gerada, por exemplo, por raios cósmicos. Se introduzimos uma fonte de raio X, ou qualquer fonte para ionizar o gás, o aumento de tensão, leva a um aumento de corrente. O anodo tende a atrair cada vez mais os elétrons até que todos eles sejam coletados. Esse é o ponto de saturação. Após esse ponto, mesmo a um grande aumento na tensão, a corrente varia muito pouco, permanecendo quase constante. Prosseguindo com o aumento, a corrente passa a variar mais rapidamente devido a energia que os elétrons ganham no campo, e assim, passa a ionizar o gás por colisões (ponto de ruptura). A partir daí, a descarga passa a ser sustentável. Desligando-se a fonte de raio X, observa-se ainda uma passagem de corrente devido a produção de cargas por impacto dos elétrons e átomos do gás.

Descarga de Townsend: As densidades eletrônicas e iônicas são praticamente desprezíveis, e quase não há distorção do campo elétrico. Ele permanece praticamente constante e portanto a voltagem fica constante.

Descarga “glow” subnormal: Nessa região, o aumento de corrente leva a uma queda brusca da voltagem.

Descarga “glow” normal: A voltagem entre os eletrodos é mantida constante e a descarga apresenta luminosidade. Por isso recebe o nome de descarga ”glow” (luminosidade) normal. Nesse tipo de descarga, a densidade de corrente no catodo permanece constante com o aumento de corrente. Isso ocorre quando a descarga não cobriu toda a superfície do catodo e um aumento de corrente leva a uma expansão da carga sobre a superfície, até que essa fique totalmente coberta.

Descarga “glow” abnormal: Nessa região, o aumento de corrente eleva a tensão.

Arco: A densidade de corrente é muito alta e constante, mesmo com o aumento de corrente. Os eletrodos ficam extremamente aquecidos e a descarga apresenta linhas de espectro de emissão do material do catodo, ao contrário da descarga anormal, onde as linhas de emissão do gás são predominantes .

B.4.1.2 A descarga “glow” normal

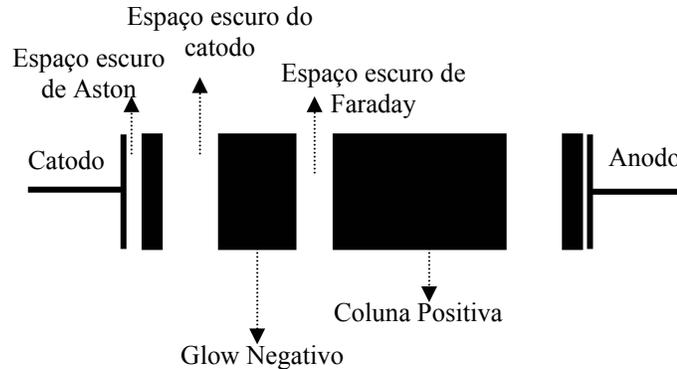


Fig. B.10: Distribuição espacial das zonas claras e escuras na descarga de glow [25,29].

A fig. (B.10) mostra um diagrama contendo as regiões escuras e claras em uma lâmpada. Após iniciada a descarga, os elétrons que são emitidos do catodo são acelerados na direção perpendicular a superfície catódica e a medida em que se dirige ao anodo, sua energia vai aumentando. As colisões dos elétrons com os átomos do gás fazem com que este seja excitado, e então aparece uma fraca luminosidade após a região escura de Aston. Após essa passagem, os elétrons ganham energia superior a energia de excitação do gás, mas inferior a sua energia de ionização. Portanto, uma região escura aparece (espaço escuro do catodo).

Ao chegar no glow negativo, o elétron bastante energético pode fazer ionização, e assim altas densidades eletrônicas e iônicas aparecem em comparação com as outras camadas. No espaço escuro de Faraday os elétrons já perderam quase toda sua energia e não existem processos de excitação ou ionização, mas eles obtêm energia suficiente para esses processos. Saindo dessa região, aparece a coluna positiva, onde o gás é excitado e ionizado, e uma luminosidade aparece. No fim da coluna positiva, os elétrons saem com baixa energia e depois de percorrerem o espaço escuro do anodo adquirem velocidade suficiente para excitar e ionizar o gás em frente ao anodo, o qual fica coberto por uma luminosidade de pequena espessura.

B.4.1.3 Otimização da pressão na lâmpada de catodo oco

A faixa de operação de pressão em uma lâmpada de catodo-oco cilíndrico pode ser estimada calculando-se o valor mínimo e máximo. Para isto, vamos considerar a função que associa o livre caminho médio do elétron com a densidade atômica :

$$\lambda_m = \frac{1}{N_M \sigma} \quad (\text{B.2})$$

onde N_M :Número de átomos por volume; σ : Secção de choque do gás buffer $= 4\pi R^2$.

A pressão mínima pode ser determinada considerando que pelo menos ocorra uma colisão numa distância D entre os átomos do gás e um elétron primário, isto é,

$$\lambda_m = D \quad (\text{B.3})$$

onde D: diâmetro do cilindro.

A secção de choque do átomo do gás buffer pode ser calculada pelo raio atômico dado. Pela eq.(B.2) encontramos N_m , e com esta grandeza podemos encontrar o número de moles n e substituir na eq. (B.2)

$$P = \frac{nRT}{V} \quad (\text{B.4})$$

onde p: pressão (atm); R= 0,00821 atm mol⁻¹K⁻¹; T: temperatura (K); V: volume (l).

Com o aumento da pressão, surge no centro da descarga uma região escura onde o comprimento do “glow” negativo passa a ser D/2. Esse é o ponto escolhido para a pressão

máxima. Nessa distância o elétron perde toda sua energia através de colisões com o gás. Supondo uma queda de tensão aproximada na lâmpada em condições normais e dividindo isso pelo potencial de ionização do gás, podemos saber quantos choques seria possível e determinamos λ_m (fig. (B.11)).

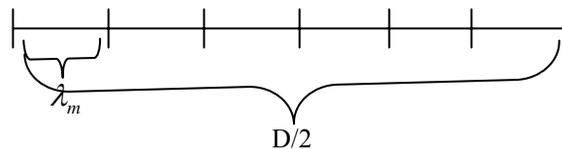


Fig. B.11: Determinado o livre caminho médio.

Mais uma vez, podemos determinar o número de moles n pela densidade atômica N_m e encontrar a pressão pela eq. (B.4).

Temos lâmpadas de Argônio e Criptônio em nosso laboratório. Vamos estimar os valores mínimos e máximos de pressão para as lâmpadas de 3 cm de diâmetro contendo Argônio. O Argônio possui um raio atômico igual a $0,98 \text{ \AA}$. Portanto, $\sigma = 3,16 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2$. Na pressão mínima, $\lambda_m = 0,3 \text{ cm}$. Aplicando-se a eq.18, $N = 1,1 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$. Então, pela eq. (B.4), a pressão em atm convertida para Torr é de $p = 0,3 \text{ Torr}$. No limite superior, supomos ser 200V quando começa a aparecer o anel luminoso. Sendo 15,7 V o potencial de ionização do Argônio, temos 12 choques, o que dá um valor de 0,012 cm para λ_m . Da eq. (B.2), $N = 2,17 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. A pressão encontrada é 9 Torr. Nossa lâmpada de Argônio de somente um anodo, é preenchida a uma pressão de 1Torr e tem 2,3 cm de diâmetro. Enquanto que a de dois anodos tem 3,5 cm e é preenchida a 2,6 Torr.

C.1 Probabilidade de transições de intercombinação

Transições entre estados singletos e tripletos (transições de intercombinação) não poderiam ser possíveis pois violariam a regra de seleção $\Delta S = 0$ [36]. Mas, experimentalmente algumas linhas provenientes dessas transições são observadas. Na verdade as regras de seleção são para serem vistas como uma primeira aproximação. As linhas que aparecem são muito fracas comparadas com as outras emitidas pelos átomos ou moléculas. A razão do aparecimentos dessas linhas podem ser explicadas teoricamente se levado em consideração a interação spin-órbita. A interação spin – órbita é uma interação magnética que acopla o momento angular de spin de cada elétron opticamente ativo com seu próprio momento angular orbital [36]. Vamos considerar os seguintes níveis eletrônicos da fig. (2.1):

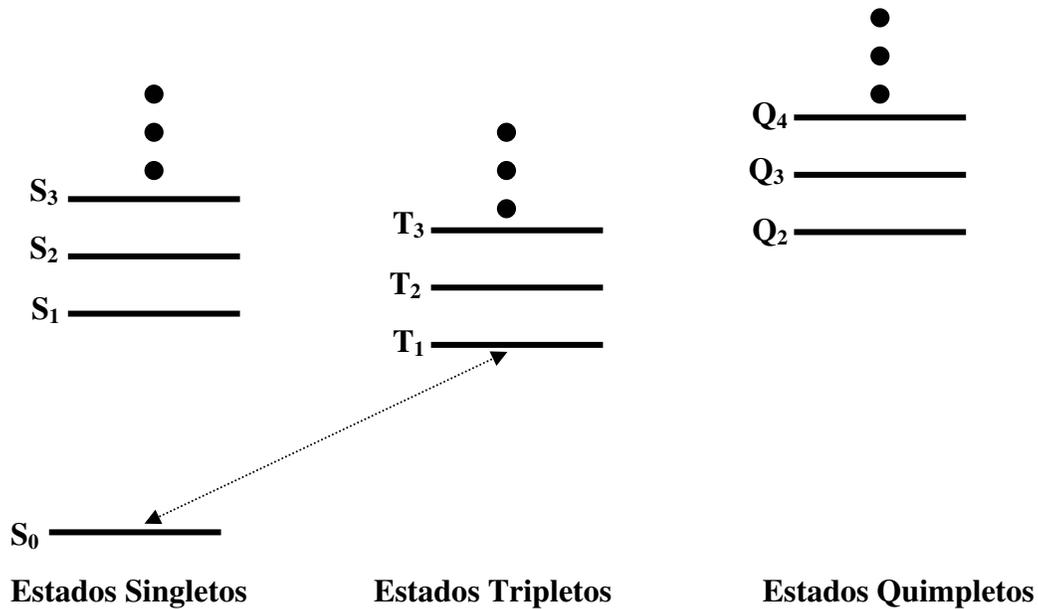


Fig.C.1: Diagrama de energia com níveis singletos, tripletos e quimpletos [37].

Nosso interesse está em calcular a probabilidade da transição $T_1 \rightarrow S_0$ [37]. Usaremos T_k^r para denotar a função de onda do k -ésimo estado tripleto com componente r , onde r indica o valor de M_S . Para um estado tripleto $M_S = 0, \pm 1$. O símbolo Q_l^s representa o l -ésimo estado quinteto em sua componente s . Os valores de s para um estado quimpleto são

$s=M_s = 0,\pm 1,\pm 2$. A r -ésima componente de T_1 usando uma aproximação de primeira ordem é escrita como:

$$T_1^r = T_1^r + \sum_k \frac{\langle S_k | H' | T_1^r \rangle}{E(T_1) - E(S_k)} \bullet S_k + \sum_l \sum_{s=-2}^2 \frac{\langle Q_l^s | H' | T_1^r \rangle}{E(T_1) - E(Q_l)} \bullet Q_l^s + \sum_m \sum_{t=-1}^1 \frac{\langle T_m^t | H' | T_1^r \rangle}{E(S_0) - E(T_m)} \bullet T_m^t \quad (C.1)$$

onde H' = Hamiltoniano de acoplamento spin-órbita definido como

$$H' = \sum_i A_i \mathbf{l}_i \bullet \mathbf{s}_i \quad (C.2)$$

onde \mathbf{s} : operador de momento angular de spin, \mathbf{l} : operador de momento angular orbital.

É necessário resolver três equações em (C.1), onde $r=0,\pm 1$. Para S_0 , temos:

$$S_0^r = S_0^r + \sum_m \sum_{t=-1}^1 \frac{\langle T_m^t | H' | S_0^r \rangle}{E(S_0) - E(T_m)} \bullet T_m^t \quad (C.3)$$

Na eq. (2.3) omitimos os termos com Q_l^s . Primeiramente, os termos que envolvem os estados quípletos são considerados insignificantes já que eles não se misturam com estados singletos. Podemos desprezá-los em eq. (2.1) também, além dos termos T_m^t . A eq. (C.1) com essas aproximações fica:

$$T_1^r = T_1^r + \sum_k \frac{\langle S_k | H' | T_1^r \rangle}{E(T_1) - E(S_k)} \bullet S_k \quad (C.4)$$

A probabilidade de transição $T_1 \rightarrow S_0$ é dada por:

$$\frac{8\pi^3}{3h^2} \sum_r \left| \langle S_0^r | e\mathbf{r} | T_1^r \rangle \right|^2 \quad (C.5)$$

onde $e\mathbf{r}$ é o operador momento de dipolo. Quando o acoplamento spin-órbita não é considerado (como na regra de seleção), os termos com H' são nulos e na eq.(C.5) usamos $S_0^r = S_0$ e $T_1^r = T_1^r$. Como $\mathbf{r}=\mathbf{r}_1+\mathbf{r}_2$ é uma função simétrica na troca de dois elétrons a integral de $-\infty$ a $+\infty$ de uma função antissimétrica e duas simétricas resulta em uma antissimétrica, dando um valor nulo para a probabilidade de transição. Desse modo, a transição entre estados singletos e tripletos não ocorrerá mesmo.

O tempo de vida do estado tripleto τ_p^0 depende da probabilidade de transição (eq.(C.5)). Desse modo,

$$\frac{1}{\tau_p^0} = \frac{64\pi^4 \nu^3}{3hc^3} \sum_r \left| \langle S_0' | \mathbf{er} | T_1^{r'} \rangle \right|^2 \quad (C.6)$$

Sendo M o momento de dipolo da transição:

$$M(T_1^{r'}, S_k') = \langle T_1^{r'} | \mathbf{er} | S_k' \rangle \quad (C.7)$$

então, podemos substituir as eqs.(C.2) e (C.3):

$$M(T_1^{r'}, S_0') = \sum_k \frac{\langle S_k' | H' | T_1^{r'} \rangle}{E(T_1) - E(S_k)} \bullet M(S_0, S_k) + \sum_l \sum_m \frac{\langle T_m^t | H' | S_0 \rangle}{E(S_0) - E(T_m)} \bullet M(T_1^r, T_m^t) \quad (C.8)$$

A eq. (1.8) pode ser usada em (1.5). Mostraremos o valor dos termos com H', onde

$$\begin{aligned} H' &= H_1' + H_2' \\ &= H_{x1}' + H_{y1}' + H_{z1}' + H_{x2}' + H_{y2}' + H_{z2}' \\ &= H_x' + H_y' + H_z' \\ &= \sum_i^n A_i l_{xi} s_i + \sum_i^n A_i l_{yi} s_i + \sum_i^n A_i l_{zi} s_i \end{aligned} \quad (C.9)$$

Temos que:

$$\begin{aligned} \psi_{\text{função espacial}} &= \begin{cases} \psi_{\text{simétrica}} = a_1 b_2 + a_2 b_1 \\ \psi_{\text{antisimétrica}} = a_1 c_2 + a_2 c_1 \end{cases} \\ \psi_{\text{função de spin}} &= \begin{cases} \psi_{\text{simétrica}} = \alpha_1 \beta_2 + \alpha_2 \beta_1 \\ \psi_{\text{antisimétrica}} = \begin{cases} \alpha_1 \alpha_2 \\ \alpha_1 \beta_2 + \alpha_2 \beta_1 \\ \beta_2 \beta_1 \end{cases} \end{cases} \end{aligned} \quad (C.10)$$

Nem todas as funções de spin podem combinar com funções espaciais. As auto funções totais devem ser antissimétricas. As combinações que podem ocorrer são descritas na tab.(C.1)

$\Psi_{\text{função espacial}}$	$\Psi_{\text{função de spin}}$	$\Psi_{\text{auto função total}}$	Ocorrência
Simétrica	Simétrica	Simétrica	Não ocorre
Simétrica	Antissimétrica	Antissimétrica	Sistema Singlete
Antissimétrica	Simétrica	Antissimétrica	Sistema Triplete
Antissimétrica	Antissimétrica	Simétrica	Não ocorre

Tab.C.1: Simetria das auto funções totais [38].

A auto função total é dada por:

$$\Psi_{\text{auto função total}} = \Psi_{\text{função espacial}} \cdot \Psi_{\text{função de spin}} = \begin{cases} S_k \\ T_j^{+1}, T_j^0, T_j^{-1} \end{cases} \quad (\text{C.11})$$

As auto funções que aparecem em eq. (2.8) de acordo com a tab. [C.1] são escritas como:

$$\begin{aligned} S_k &= \left(\frac{1}{2}\right)(a_1 b_2 + a_2 b_1)(\alpha_1 \beta_2 - \alpha_2 \beta_1) \\ T_j^{+1} &= \left(\frac{1}{2}\right)^{1/2} (a_1 c_2 - a_2 c_1) \alpha_1 \alpha_2 \\ T_1^0 &= \left(\frac{1}{2}\right)(a_1 c_2 - a_2 c_1)(\alpha_1 \beta_2 + \alpha_2 \beta_1) \\ T_1^{-1} &= \left(\frac{1}{2}\right)^{1/2} (a_1 c_2 - a_2 c_1) \beta_1 \beta_2 \end{aligned} \quad (\text{C.12})$$

As funções de spin (α e β) e os operadores de spin (s_z, s_x, s_y, s^2) de um elétron são caracterizados pelas propriedades das eqs. (C.13):

$$\begin{aligned} \langle \alpha | \beta \rangle = \langle \beta | \alpha \rangle &= 0 & s_z \alpha &= (\hbar/2) \alpha & s_z \beta &= -(\hbar/2) \beta \\ \langle \beta | \beta \rangle = \langle \alpha | \alpha \rangle &= 1 & s_x \alpha &= (\hbar/2) \beta & s_x \beta &= (\hbar/2) \alpha \\ & & s_y \alpha &= (i \hbar/2) \beta & s_y \beta &= (-i \hbar/2) \alpha \\ & & s^2 \alpha &= (3\hbar^2/4) \alpha & s^2 \beta &= (3\hbar^2/4) \beta \end{aligned} \quad (\text{C.13})$$

Com essas propriedades os elementos de matriz do operador H' que aparecem na equação do cálculo de tempo de vida do nível triplete, podem ser encontrados. Na tab.(C.2) é mostrado o resultado desses cálculos.

Componente de H'	$\langle S_k H' T_j^1 \rangle$	$\langle S_k H' T_j^0 \rangle$	$\langle S_k H' T_j^{-1} \rangle$
H'_x	$\left(\frac{1}{2}\right)^{1/2} \langle b H'_{1x} c \rangle$	0	$-\left(\frac{1}{2}\right)^{1/2} \langle b H'_{1x} c \rangle$
H'_y	$\left(\frac{1}{2}\right)^{1/2} i \langle b H'_{1y} c \rangle$	0	$\left(\frac{1}{2}\right)^{1/2} i \langle b H'_{1y} c \rangle$
H'_z	0	$-\langle b H'_{1z} c \rangle$	0

Tab.C.2: Elementos da matriz H' entre estados singletos e tripletos [37].

Referências Bibliográficas

- [1] Metcalf H.J, van der Straten P, “Laser cooling and trapping ”, Springer-Verlag, New York, (1999).
- [2] Mahan B. R., Myers R. J., 1995, “Química, um curso universitário”, Editora Edgard Blucher Ltda.
- [3] Cavasso Filho R. L, Scalabrin A., Pereira D., Cruz F. C., “Observing negligible collision trap losses: the case of alkaline-earths”, *Phys. Rev. A*, **27**, (2003), 021402.
- [4] Cavasso Filho R. L, Magno W. C., Manoel D. A., Scalabrin A., Pereira D., Cruz F. C., “Deceleration, trapping, and two-photon cooling of calcium atoms”, *J. Opt. Soc. Am.*, **20**, (2003).
- [5] Cavasso Filho R. L, Manoel D. A., Ortega D. R., Scalabrin A., Pereira D., Cruz F. C., “On-axis calcium magneto-optical trap loaded with a focused desaccelerating laser”, *App. Phys. B*, **78**, (2004), 49.
- [6] Cavasso Filho R. L, Manuel D. A., Ortega D. R., Scalabrin A., Pereira D., Cruz F. C., “Calcium Magneto-Optical Trap Loaded from a Desaccelerated Atomic Beam”, *Braz. J. Phys.*, **33**, (2003), 360.
- [7] Santra R., Christ K. V., Greene C. H., “Properties of metastable alkaline-earth metal atoms calculated using an accurate effective core potential”, *Phys. Rev. A*, **69**, (2004), 042510-1.
- [8] Halliday D., Resnick R., Walker J., “Fundamentos de Física 4 Ótica e Física Moderna”, 4^o edição, editora LTC, (1995).

- [9] Oates C. W., Bondu F., Fox R. W., Holberg L., “A diode-laser optical frequency standard based on laser-cooled Ca atoms: Sub-kilohertz spectroscopy by optical shelving detection”, *Eur. Phys. J. D*, **7**, (1999), 449.
- [10] Cavasso R. L., Mirage A., Scalabrin A., Pereira D., Cruz F. C., “Laser Spectroscopy of Calcium in hollow cathode discharges”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **18**, (2001), 1922.
- [11] Nägerl H. C., Roos Ch., Rohde H., Leibfried D., Eschner J., Schmidt-Kaler F., Blatt R., “Addressing and Cooling of Single Ions in Paul Traps”, *Fortschr. Phys.*, **48**, (2000), 623.
- [12] Porrati M., Putterman S., “Wave-function collapse due to null measurement: The origin of intermittent atomic fluorescence”, *Phys. Rev. A*, **36**, (1987), 929.
- [13] Porrati M., Putterman S., “Coherent intermittency in the resonant fluorescence of a multilevel atom”, *Phys. Rev. A*, **39**, (1989), 3010.
- [14] Averbukh I. Sh, “Electron shelving in a lattice system”, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, **23**, (1990), 2185.
- [15] Demtröder W., “Laser Spectroscopy, Basic Concepts and Instrumentation”, Springer-Verlag, 2^o edição, (1981).
- [16] Johnsston T. F., Brady R. H., Proffitt W., “Powerful single-frequency ring dye laser spanning the visible spectrum”, *Appl. Opt*, **21**, (1982), 2307.
- [17] Onisto H. J., Cavasso R. L., Scalabrin A., Pereira D., Cruz F. C., “Frequency doubled and stabilized all-solid-state Ti:sapphire lasers”, *Opt. Engineering*, **41**, (2002), 1122.

- [18] Hänsch T. W, Couillaud B., “Laser frequency stabilization by polarization spectroscopy of a reflecting reference cavity”, *Opt. Commun.*, **35**, (1980), 441.
- [19] Saleh B. E., Teich M. C., “Fundamentals of Photonics”, A Wiley Interscience publication, (1991).
- [20] Fowles G. R., “Introduction to Modern Optics”, 2nd edition, Dover Publications, New York, (1989).
- [21] Wei C., Manson N. B., Martin J. P. D., “Experimental investigations of absorption and dispersion profiles of a strongly driven transition: V-shaped three-level system with a strong probe”, *Phys. Rev. A* , **51**, (1995), 1438.
- [22] Zhou P., Swain S., “Ultranarrow Spectral Lines via Quantum Interference” , *Phys. Rev. Lett.*, **77**, (1996), 3995.
- [23] Tannoudji C.C., Diu B., Laloë F., “Quantum Mechanics” , Vol. I e II, Hermann, Paris France, (1977).
- [24] Rooijackers W., Hogervorst W., Vassen W., “Laser Cooling, friction, and diffusion in a three-level cascade system”, *Phys. Rev. A* , **56**, (1997), 3083.
- [25] Boyd R. W., “The Impact of Charles H. Townes on Linear Optics”, *J. on Selected Topics in Quantum Electronics*, **6**, (2000), 881.
- [26] Zanthier J.V., Skornia C., Agarwal G. S., Walther H., “ Quantum coherence in a single ion due strong excitation of a metastable transition”, *Phys. Rev. A*, **63**, (2000), 013816-1.
- [27] Wielandy S., Gaeta A. L., “Investigation of electromagnetically transparency in the strong probe regime”, *Phys. Rev. A*, **58**, (1998), 2500.

- [28] Greenland P. T., Laudert M. A., Wort D. J. H., “Atomic beam velocity distributions”, *Appl.Phys*, **18**, (1985), 1223.
- [29] Boon J. R., Zekou E., McGloin D., Dunn M. H., “Prediction of inversionless gain in a mismatched Doppler-broadened medium”, *Phys. Rev. A*, **58**, (1998), 2560.
- [30] Cavasso-Filho R. L., Tese de doutorado defendida no Inst. Física (IFGW) da Unicamp sob orientação do Prof.Dr. Flávio C. Cruz, (2002).
- [31] Striganov A.R., Sventitskii N. S., “Tables of Spectral Lines of Neutral and Ionized Atoms”, New York- Washington, (1968).
- [32] Raizer Y. P., “Gas Discharge Physics”, 2^o edição, Springer.
- [33] Barbieri B., Beverini N., “Optogalvanic Spectroscopy”, *Rev. Mod. Phy*, **62**, (1990), 603.
- [34] Engel A. V. ., “Ionized Gases”, 2^o edição, Oxford at the Clarendon Press, (1965).
- [35] Kunhardt E. E., Luessen L. H., “Electrical Breakdown and Discharges in Gases”, Plenum Press, New York, (1983).
- [36] Eisberg R., Resnick R., “Física Quântica”, Editora Campus, (1979).
- [37] McGlynn S. P., Azumi T., Kinoshita M., “Molecular Spectroscopy of the Triplet State”, (1969).
- [38] Herzberg G., “Atomic spectra and atomic structure”, (1994).