Universidade Estadual de Campinas

Instituto de Física "Gleb Wataghin"

Departamento de Eletrônica Quântica Grupo de Lasers e Aplicações

Tese de Doutorado

ACÚMULO COERENTE DE EXCITAÇÃO NA TRANSPARÊNCIA Eletromagneticamente Induzida por um Trem de Pulsos Ultracurtos

Por

ANTONIO AUGUSTO SOARES

Tese apresentada ao Instituto de Física "Gleb Wataghin" para a obtenção do título de Doutor em Ciências.

Este exemplar corresponde à redação final da Tese de Doutorado defendida pelo aluno Antonio Augusto Soares e aprovada pela Comissão Julgadora.

Campinas, 4 de dezembro de 2009

Prof. Dr. Luís Eduardo Evangelista de Araujo

FICHA CATALOGRÁFICA ELABORADA PELA BIBLIOTECA DO IFGW - UNICAMP

Soares, Antonio Augusto

Acúmulo coerente de excitação na transparência eletromagneticamente induzida por um trem de pulsos ultracurtos / Antonio Augusto Soares. -- Campinas, SP: [s.n.], 2009.

Orientador: Luís Eduardo Evangelista de Araujo. Tese (doutorado) - Universidade Estadual de Campinas, Instituto de Física "Gleb Wataghin".

1. Transparencia induzida eletromagneticamente.

 Acumulo coerente.
 Trens de pulsos ultracurtos.
 Araujo, Luís Eduardo Evangelista de. II. Universidade Estadual de Campinas. Instituto de Física "Gleb Wataghin".
 Título.

(smcc/ifgw)

- **Título em inglês:** Coherent accumulation of excitation in the electromagnetically induced transparency by an ultrashort pulse train
- Palavras-chave em inglês (Keywords):
 - 1. Electromagnetically induced transparency
 - 2. Coherent accumulation
 - 3. Ultrashort pulse train
- Área de concentração: Física Atômica e Molecular
- Titulação: Doutor em ciências
- Banca examinadora:
 - Prof. Luís Eduardo Evangelista de Araujo Prof. Kaled Dechoum Prof. Luís Gustavo Marcassa Prof. José Antonio Roversi
 - Prof. Flávio Caldas da Cruz
- Data da defesa: 04.12.2009
- Programa de Pós-Graduação em: Física

ii

So11a



Secretaria de Pós-Graduação - Tel: (19) 3521-5305 FAX: (19) 3521-4142 MEMBROS DA COMISSÃO JULGADORA DA TESE DE DOUTORADO DE **ANTONIO AUGUSTO SOARES – RA 001058,** APRESENTADA E APROVADA AO INSTITUTO DE FÍSICA "GLEB WATAGHIN" DA UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS, EM 04/12/2009.

COMISSÃO JULGADORA: Prof. Dr. Luís Eduardo Evangelista de Araujo - DEQ/IFGW/UNICAMP Flor Cold 20 C Prof. Dr. Flávio Caldas da Cruz – DEQ/IFGW/UNICAMP Prof. Dr. José Antonio Roversi – DEQ/IFGW/UNICAMP Kunid agalin Prof. Dr. Kaled Dechoum – IF/UFF Prof. Dr. Luís Gustavo Marcassa - IFSC/USP

iii

iv

Dedicatória

Para meus pais

José Geraldo Soares e Helena de Oliveira Soares.

v

vi

AGRADECIMENTOS

rimeiramente quero agradecer imensamente a meus pais José Geraldo Soares e Helena de Oliveira Soares pela excelente base, incentivo e incondicional apoio ao longo desses anos.

Sou muito grato ao Prof. Luís E. E. de Araujo, meu orientador, por ter me guiado durante esses anos de doutorado, pela seriedade com que sempre me orientou e contribuiu para a realização deste trabalho.

Agradeço também a meus irmãos Jussara, Diego e Miguel pelo incentivo e pela ajuda que diversas vezes se fez necessária.

Agradeço aos grandes e sempre amigos Ricardo José Missori e Pablo Parmezani Munhoz, pela amizade, companheirismo e apoio.

Agradeço imensamente o precioso e indispensável apoio do pessoal da CPG/IFGW e à CAPES pelo apoio financeiro.

Por fim, agradeço aos colegas da Universidade Federal de São Carlos - Campus Sorocaba pela compreensão e colaboração na reta final do desenvolvimento desta tese. Em especial agradeço à Ana Lúcia Brandl, Sérgio Dias de Campos, Magda Peixoto, Wladimir Seixas e Térsio G. de S. Cruz. viii

Resumo

esta tese apresentamos um estudo teórico da interação coerente entre trens de pulsos ultracurtos e sistemas atômicos simples de dois e três níveis, este último na configuração Λ .

Primeiramente avaliamos a situação em que um trem de pulsos ultracurtos não só sonda um sistema de três níveis na configuração Λ , mas também leva o átomo à configuração do átomo vestido. Nessas condições estudamos o efeito do acúmulo coerente de excitação na transparência eletromagneticamente induzida (EIT) experimentada pelo trem de pulsos ultracurtos. Mostramos que os parâmetros do trem de pulsos (área do pulso, diferença de fase entre pulsos consecutivos e período de repetição dos pulsos) determinam a dinâmica da formação da EIT. Em seguida estudamos os efeitos da propagação do trem de pulsos ultracurtos através de um meio atômico estendido, constituído por sistemas de dois e três níveis na configuração Λ . Mostramos que no caso em que o meio é constituído por sistemas de dois níveis a frequência central dos pulsos é rapidamente removida devido à propagação, prejudicando o efeito de acúmulo coerente. Já para o meio constituído por sistemas de três níveis o efeito acumulativo é observado e coerência é transferida ao meio, levando a uma sobreposição linear entre os níveis fundamentais, sobreposição esta que está associada à formação da EIT. Após um número suficientemente grande de pulsos o meio se torna transparente aos pulsos subsequentes que se propagam sem sofrer alterações em seu perfil temporal e espectral.

Outra situação que estudamos nesta tese é aquela onde o sistema atômico é excitado por um campo contínuo monocromático levando o átomo à configuração do "átomo vestido". Este sistema é, então, investigado por um trem de pulsos ultracurtos. Neste caso mostramos que a utilização do trem de pulsos ultracurtos permite a realização de espectroscopia de alta resolução dos estados atômicos vestidos induzidos pelo campo contínuo monocromático. <u>x</u>____

Abstract

n this thesis we present a theoretical study about the coherent interaction between a train of ultrashort pulses with two- and three-level atomic systems, this last in the Λ configuration.

Firstly, we investigated the situation at which a train of ultrashort pulses not only probes the three-level system in the Λ configuration, but also drives the atom to its dressed configuration. Under these conditions, we studied the effects of the coherent accumulation of excitation on the electromagnetically induced transparency (EIT) of the train of ultrashort pulses. We showed that the pulse train parameters (area, repetition period, and phase between successive pulses) play a significant role in establishing EIT. Then, we study the effects of propagation through an extended sample of two- and three-level atoms. We showed that in the two-level case, absorption of the pulse's resonant frequency by the atoms quickly compromises the accumulation of excitation. In the three-level case, the accumulative effect occurs, and the pulse train transfers coherence between the two lower states of the atoms, driving population into a dark superposition state. Such a superposition is related to the EIT formation and after a large enough number of pulses, the medium becomes transparent to the driving pulses. Later pulses in the train propagate through the atomic medium with both their amplitude and temporal profile preserved.

Another configuration that we investigated in this thesis is that at which the atomic system is excited by a monochromatic cw laser that drives the atom to its dressed configuration. Such a system is then probed by an ultrashort pulse train. In this case, we showed that an ultrashort pulse train can be used to perform high-resolution spectroscopy of dressed atomic states. xii

Índice

Fie	Ficha catalográfica i			
Ca	Carta de aprovação iii			iii
De	edica	tória		\mathbf{v}
Ag	grade	ciment	os	vii
Re	esum	0		ix
Ał	ostrac	ct		xi
I	Fun	Idamei	ntos	1
1	Intr	odução		3
2	Ope	erador o	lensidade e Campo eletromagnético	9
	2.1	Matriz	z densidade	9
		2.1.1	Introdução	9
		2.1.2	Matriz densidade para estados puros	10
		2.1.3	Matriz densidade para estados de mistura estatística	12
		2.1.4	Considerações finais para o operador densidade	14
	2.2	O carr	po eletromagnético	16
	2.3	Trem	de pulsos ultracurtos	21
3	Moo	delos at	ômicos simples e suas interações com campos coerentes	25
	3.1	Introd	ução	25
	3.2	O Har	niltoniano de interação na aproximação de dipolo	26

57

3.3	Átom	o de dois níveis	27
	3.3.1	Solução estacionária para o sistema de 2 níveis	34
	3.3.2	Solução transitória para o sistema de 2 níveis	37
3.4	Átom	o de três níveis e a transparência eletromagneticamente induzida	40
	3.4.1	Solução estacionária para o sistema de 3 níveis	45
	3.4.2	Solução transitória para o sistema de 3 níveis	49
3.5	EIT co	m pulsos ultracurtos	51
3.6	Acúm	ulo coerente	54

II Contribuições

4	Acú	Acúmulo coerente de excitação na transparência eletromagneticamente induzida de		
	um	trem de pulsos ultracurtos	59	
	4.1	Introdução	59	
	4.2	Sistema físico e equações de Bloch	60	
	4.3	Método iterativo	63	
	4.4	Dinâmica do acúmulo de coerência e população	65	
	4.5	Dinâmica dos estados claro e escuro	69	
	4.6	Conclusão	71	
5	Infl	uência da propagação no acúmulo coerente de excitação induzida por um trem de		
	puls	sos ultracurtos	73	
	5.1	Introdução	73	
	5.2	Propagação de um trem de pulsos ultracurtos em um sistema de 2 níveis	75	
		5.2.1 Resultados para o sistema de 2 níveis	79	
	5.3	Propagação de um trem de pulsos ultracurtos em um sistema de 3 níveis	83	
	5.3	Propagação de um trem de pulsos ultracurtos em um sistema de 3 níveis5.3.1 Resultados para o sistema de 3 níveis	83 85	
	5.3 5.4	Propagação de um trem de pulsos ultracurtos em um sistema de 3 níveis5.3.1Resultados para o sistema de 3 níveisConclusão	83 85 91	
6	5.3 5.4 Duk	Propagação de um trem de pulsos ultracurtos em um sistema de 3 níveis 5.3.1 Resultados para o sistema de 3 níveis Conclusão Conclusão >letos de Autler-Townes e transparência eletromagneticamente induzida investi-	83 85 91	

93

	6.1	Introdução	93
	6.2	Modelo atômico	95
	6.3	Equações de movimento	96
	6.4	Resultados	99
		6.4.1 Regime de Autler-Townes	100
		6.4.2 Regime de EIT	104
	6.5	Conclusões	109
7	Con	clusões	113
A	Dete	ecção optogalvânica do bombeamento óptico em um meio atômico aberto na con-	-
	figu	ração cascata	115
	A.1	Introdução	115
	A.2	Análise das colisões	117
	A.3	Conclusões	121
B	Prop	pagação de um pulso δ em um sistema de dois níveis	123
C	O m	étodo de Adams-Bashforth-Moulton	127
D	Expa	ansão de Magnus	133
Ε	Solu	ção analítica do vetor <u>R</u>(z, τ)	135
F	Arti	gos	137
Bi	bliog	rafia	139

xvi

LISTA DE FIGURAS

- 2.1 (a) Amplitude de um trem de pulsos (contendo 6 pulsos) versus o tempo, ambos em unidades arbitrárias. O período de repetição é T = 10 e $\sigma = 0.4$. (b) Amplitude espectral versus a frequência angular, ambos em unidades arbitrárias, mostrando a separação entre modos consecutivos ($2\pi/T$). Os modos do pente de frequências na figura (b) possuem um envelope gaussiano (linha tracejada). 23

3.5	Configurações de um sistema de três níveis acoplado por um laser forte de	
	frequência de Rabi Ω e investigado por um laser de prova fraco de frequência	
	de Rabi α : (a) configuração Λ (lambda), (b) configuração V e (c) configuração	
	cascata	41
3.6	Espectro de absorção do feixe de prova (a) e dispersão do meio atômico (b), em	
	unidades arbitrárias, para três diferentes intensidades do feixe de acoplamento:	
	$\Omega=0$ (linha preta); $\Omega=0.5\gamma$ (linha vermelha) e $\Omega=10.0\gamma$ (linha azul). Tanto	
	no gráfico (a) quanto no gráfico (b) as curvas para o caso em que $\Omega=0$ estão	
	multiplicadas por 2	47
3.7	Configuração do átomo vestido para o sistema de 3 níveis na configuração $\Lambda.$ O	
	detalhe mostra a separação Ω entre os dois novos níveis gerados ($ a_1 angle$ e $ a_2 angle$) devi-	
	do ao deslocamento Stark induzido pelo campo de acoplamento (não mostrado	
	na figura)	48
3.8	Curvas de absorção (a) e dispersão (b), em unidades arbitrárias, versus a dess-	
	intonia do campo de prova para o sistema de 3 níveis na configuração Λ para	
	três diferentes tempos de interação: $t = 10\gamma^{-1}$ (linha azul); $t = 50\gamma^{-1}$ (linha	
	vermelha) e $t = 200\gamma^{-1}$ (linha preta). Em ambas as curvas $\Omega = 0,5\gamma$	52
3.9	Em (a) é mostrada um representação esquemática dos níveis atômicos do sis-	
	tema de três níveis (85 Rb) interagindo com um trem de pulsos ultracurtos. (b)	
	apresenta a curva de transmissão do campo pulsado, em unidades arbitrárias,	
	versus a taxa de repetição dos pulsos ultracurtos. A taxa de repetição varia em	
	torno de 506 MHz que é um sexto da separação hiperfina entre os níveis atômicos	
	fundamentais. Reproduzido de [87].	53
3.10	Evolução temporal das populações intermediária ($ ho_{22}$) e excitada ($ ho_{33}$) devido à	
	interação do meio com um trem de pulsos ultracurtos ressonante com a transição	
	2 angle ightarrow 3 angle. As figuras (a) e (b) mostram, em diferentes escalas, a mesma evolução	
	temporal onde os círculos abertos se referem à solução iterativa utilizada pelos	
	autores. A linha contínua em (a) vem da integração direta das equações de Bloch	
	e em (b), para melhor visualização, são mostrados apenas 1 de cada 3 pulsos.	
	Reproduzido de [97]	56

4.1	Sistema de três níveis na configuração Λ , degenerado e excitado por um trem	
	de pulsos ultracurtos com a população igualmente distribuída entre os níveis	
	fundamentais (condição inicial). T é o período de repetição dos pulsos e T_1 é o	
	tempo de vida da população do nível excitado	60
4.2	Coerência entre os níveis fundamentais (ρ_{bc}) calculada com a solução iterativa	
	(símbolos) e numericamente (linha sólida) para 10 pulsos. O gráfico da solução	
	numérica corresponde à evolução da coerência entre os níveis fundamentais em	
	função do tempo em unidades do período de repetição dos pulsos. A área do	
	pulso é $\theta = \pi/50$, sua largura é $\sigma = 10^{-3}T$ e a diferença de fase entre pulsos	
	consecutivos é $\Delta \varphi = 0.$	65
4.3	Coerência entre os níveis fundamentais calculada através da solução iterativa	
	para diferentes valores da taxa de repetição dos pulsos. Os demais parâmetros	
	do trem de pulsos são os mesmos da figura 4.2 e, por questão de clareza, é	
	mostrado apenas 1 a cada 10 pulsos	66
4.4	(a) Coerência entre os níveis fundamentais para diferentes áreas dos pulsos. As	
	linhas tracejadas constituem apenas um guia visual e são apresentados os resul-	
	tados de apenas 1 a cada 10 pulsos. (b) Coerência entre os níveis fundamentais	
	e população do nível excitado para $\theta=\pi/15$ em função do número de pulsos,	
	calculadas através da solução iterativa. Em ambas as figuras $T=$ 0,10 T_1 e $\Delta arphi=$	
	0	67
4.5	Coerência entre os níveis fundamentais em função do número de pulsos cal-	
	culada através da solução iterativa para diferentes valores da diferença de fase	
	entre pulsos consecutivos com $\theta = \pi/15$ e $T = 0,10T_1$. As linhas tracejadas cons-	
	tituem apenas um guia visual e são apresentados os resultados de apenas 1 a	
	cada 10 pulsos	68
4.6	Populações dos estados claro ($\rho_{\rm CC}$) e escuro ($\rho_{\rm EE}$) plotadas em função do número	
	de pulsos com $\theta = \pi/15$, $T = 0,10T_1$ e $\Delta \varphi = 0$. As linhas tracejadas constituem	
	apenas um guia visual e são apresentados os resultados de apenas 1 a cada 10	

5.1	Representação esquemática para: (a) sistema de dois níveis e (b) sistema de três	
	níveis na configuração lambda (A), onde γ é a taxa de decaimento do nível ex-	
	citado, ambos interagindo com um trem de pulsos ultracurtos de período de	
	repetição T	74
5.2	Representação esquemática do meio atômico estendido, constituído de sistemas	
	de 2 níveis, sendo atravessado por um trem de pulsos ultracurtos de período de	
	repetição $T.$ A taxa de decaimento do nível excitado para o fundamental é γ e t_e	
	é o intervalo de tempo em que o campo efetivamente interage com o átomo	76
5.3	Inversão atômica em função do número de pulsos para quatro diferentes valores	
	da profundidade óptica ao longo do meio atômico: (a) $\mu z = 0$, (b) $\mu z = 58$ (ns) ⁻¹ ,	
	(c) $\mu z = 114 \text{ (ns)}^{-1} \text{ e (d) } \mu z = 226 \text{ (ns)}^{-1} \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots$	80
5.4	Evolução espacial para três diferentes pulsos do trem: pulso 1 (a), pulso 15 (b) e	
	pulso 300 (c). A figura apresenta, em unidades arbitrárias, a amplitude espectral	
	em função da profundidade óptica, com as frequências espectrais calculadas em	
	relação à ressonância atômica. Mostramos a inversão da população atômica nos	
	painéis laterais (em vermelho).	82
5.5	Representação esquemática do meio atômico estendido, constituído de sistemas	
	de 3 níveis na configuração lambda (degenerados), sendo atravessado por um	
	trem de pulsos ultracurtos de período de repetição T . A taxa de decaimento do	
	nível excitado para cada um dos níveis fundamentais é $\frac{\gamma}{2}$ e t_e é o intervalo de	
	tempo em que o campo efetivamente interage com o átomo	83
5.6	Perfis temporais e espectros de frequências para o pulso 1 [gráficos (a) e (c), res-	
	pectivamente] e pulso 2400 [gráficos (b) e (d), respectivamente] para 5 diferentes	
	valores da profundidade óptica (μz) ao longo do meio atômico. No plano lateral	
	dos gráficos c e d está plotada, em vermelho, a coerência entre os níveis atômicos	
	fundamentais em função da profundidade óptica no meio	86
5.7	(a) Perfis temporais do pulso 1 (linha azul tracejada) e do pulso 2400 (linha	
	contínua vermelha) em $\mu z = 6.4 \text{ (ps)}^{-1} \text{ com } \theta = \pi/15 \text{ e } T_1/T = 10$. A linha	
	preta pontilhada mostra o perfil do pulso (gaussiano) na entrada do meio	87

5.8	Coerência entre os níveis fundamentais versus o número de pulsos para 3 dife-
	rentes valores da profundidade óptica: $\mu z = 0$ (linha preta pontilhada); $\mu z =$
	3,2 (ps) $^{-1}$ (linha azul tracejada) e $\mu z=$ 6,4 (ps) $^{-1}$ (linha vermelha contínua) com
	$\theta = \pi/15 \text{ e } T_1 = 10T.$
5.9	Coerência entre os níveis fundamentais (em azul) e população do nível excitado
	(em vermelho) para $\mu z =$ 3,2 (ps) ⁻¹ com $\theta = \pi/15$, $T_1/T =$ 10 e $\Delta \varphi =$ 0. As três
	figuras centrais mostram os espectros de frequência, de três diferentes pulsos
	(600°, 900° e 1200°), para essa profundidade óptica
5.10	População dos estados claro ($ ho_{_{CC}}$) e escuro ($ ho_{_{EE}}$) em função do número de pulsos
	para 3 diferentes valores da profundidade óptica, com $\theta = \pi/15$, $T_1 = 10~T$ e
	$\Delta arphi = 0$. Para melhor visualização é mostrado apenas 1 a cada 40 pontos e a
	linha tracejada é um guia visual
6.1	(a) Sistema de três níveis na configuração lambda excitado por um campo con-
	tínuo de frequência de Rabi Ω e investigado por um trem de pulsos ultracurtos
	de frequência de Rabi $\alpha(t)$ e período de repetição T. Na figura é ilustrado o
	átomo em sua condição inicial, onde toda a população está localizada no nível
	fundamental que interage com o campo pulsado ($ b angle$). (b) Representação de um
	par de pulsos que constituem o trem: t_e é o tempo de efetiva interação do pulso
	com o átomo
6.2	População do nível excitado versus a dessintonia δ entre o campo pulsado e a
	transição $ b\rangle \to a\rangle$ para o caso em que $\Omega=$ 5,0 $\gamma,$ $T=$ 10 ns, $\theta=\pi/100$ e $\Delta\varphi=0.~$. 100
6.3	(a) População do nível excitado em função do número de pulsos com apenas um
	dos dubletos de Autler-Townes excitado pelo trem de pulsos com Ω = 5 γ e δ =
	2,5 γ . A linha tracejada é apenas um guia visual e o destaque mostra a evolução
	temporal completa da população do nível excitado entre os pulsos 30 e 35. A
	figura (b) mostra uma representação esquemática da configuração utilizada de
	forma que a linha azul representa os dubletos de AT e a linha reta vertical em

- 6.4 Representação esquemática da situação onde a separação dos dubletos de Autler-Townes coincide com um par dos dentes que constituem o pente de frequências gerado pelo trem de pulsos ultracurtos. Em (a) os dubletos estão separados por $\Omega = 2\pi/T$ e coincidem com os dentes localizados em $-\pi/T$ e π/T ($\delta = \pi/T$), em (b) $\Omega = 4\pi/T$ coincidindo com os dentes em $\pm 2\pi/T$ ($\delta = 0$) e em (c) $\Omega =$ $8\pi/T$ coincidindo com os dentes em $\pm 4\pi/T$ ($\delta = 0$). A dinâmica temporal da população do nível excitado para cada um dos casos é mostrado nas figuras a', b' e c', respectivamente, e seus destaques mostram uma ampliação da respectiva 6.5 Evolução temporal da população do nível fundamental (ρ_{bb}) nas mesmas condições da figura 6.4a. O destaque mostra uma ampliação da curva entre os pulsos 6.6 População do nível excitado versus a dessintonia δ entre o campo pulsado e a transição $|b\rangle \rightarrow |a\rangle$ para o caso em que $\Omega = 0.5\gamma$, T = 10 ns, $\theta = \pi/100$ e $\Delta \varphi = 0$. 105 6.7 População do nível excitado em função do número de pulsos no regime de EIT e na condição de ressonância ($\delta = 0$). Em (a) a área do pulso é fixa e igual a $\theta = \pi/100$ e em (b) a frequência de Rabi do campo de acoplamento é mantida fixa e igual a $\Omega = 0.5\gamma$. Em ambos os casos T = 10 ns, a diferença de fase entre pulsos consecutivos é nula ($\Delta \varphi = 0$), é mostrado apenas um a cada dois pulsos 6.8 População dos níveis fundamentais em função do número de pulsos com Ω = 0.5γ e na condição de ressonância ($\delta = 0$). A taxa de repetição dos pulsos é igual a T = 10 ns, a diferença de fase entre pulsos consecutivos é nula ($\Delta \varphi = 0$), é mostrado apenas um a cada dois pulsos e a linha tracejada é apenas um guia 6.9 Representação do espaço de Hilbert na base do átomo não perturbado ($|a\rangle$, $|b\rangle$ e $|c\rangle$) e na base do átomo vestido ($|+\rangle$, $|-\rangle$ e $|E\rangle$). Com apenas o campo de

- A.1 (a) Sistema de três níveis na configuração cascata (aberto) para o átomo de Ca acoplado por um laser de comprimento de onda 586 nm (amarelo) e investigado com um laser de comprimento de onda igual a 423 nm (azul). (b) Representação esquemática do experimento. Maiores detalhes do aparato experimental podem ser obtidos em [107].
- A.2 Sinal optogalvânico (\circ azul), transmissão (\Box preto) e fluorescência (\triangle vermelho), ambos em unidades arbitrárias, em função da dessintonia do campo de prova em relação à transição ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{1}P_{1}$. Ambas as curvas foram obtidas com um campo de acoplamento de intensidade 707 mW/cm² ($\Omega \approx 1,15\gamma_{1}$) e com campo de prova de intensidade 37 mW/cm² ($\alpha \approx 0,54\gamma_{1}$).
- B.1 Alterações no formato temporal de um pulso delta devido à propagação através de um meio estendido constituído por sistemas de dois níveis. A área do pulso é $\theta = \pi/100$ e, fazendo $\gamma = 1$, a profundidade ópitca é dada por $\mu z = 100. ... 125$

LISTA DE TABELAS

C.1 Fórmulas para 4 diferentes ordens para os métodos de múltiplos passos de Adams-Bashforth e Adams-Moulton e suas respectivas ordens de erro de truncagem. Por simplicidade de notação, $y_k = y(t_k)$ e $f_k = f[t_k, y(t_k)]...$ 130 Parte I

1

Fundamentos

1 INTRODUÇÃO

esde o desenvolvimento experimental do laser em 1960 por Theodore H. Maiman [1], o estudo de efeitos atômicos coerentes e suas aplicações tem crescido muito e novos fenômenos tais como: a transparência eletromagneticamente induzida, o aprisionamento coerente de população, a absorção eletromagneticamente induzida, dentre outros, têm sido descobertos.

Em 1976 Alzetta e colaboradores [2] e em 1978 Gray e colaboradores [3], usando técnicas de bombeamento óptico, induziram coerência atômica em vapor de sódio contido em uma célula. Com esse experimento eles observaram algumas modificações nas características do espectro de absorção e na dispersão do meio atômico devido à interação não linear deste com um campo eletromagnético externo. Essas alterações eram evidenciadas por uma sequência de linhas escuras ao longo da célula, característica da ausência de fluorescência e, por tal motivo, o efeito foi chamado de ressonância escura. O mecanismo físico por trás de tal efeito é o cancelamento da absorção de um campo ressonante com uma dada transição atômica, obtida induzindo-se a formação de coerência atômica em uma condição de ressonância de dois fótons. Esse efeito passou, algum tempo depois, a ser chamado de aprisionamento coerente de população (CPT, sigla em inglês para "coherent population trapping").

Nas últimas décadas vários trabalhos têm sido realizados e diversas aplicações vêm sendo propostas para efeitos atômicos coerentes tais como: aprisionamento de átomos [4], laser sem inversão de população [5], transparência eletromagneticamente induzida [6, 7], etc. Os mecanismos físicos por trás de todas essas possíveis aplicações relacionam-se entre si e, portanto, estão inseridos em uma mesma categoria de fenômenos físicos chamada de *coerência atômica* e *efeitos de interferência*. Consideremos um sistema atômico de três níveis no qual uma das transições, digamos $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$, seja excitada por um laser de modo que este induza o surgimento de uma coerência entre tais níveis atômicos. Se fizermos interagir com o átomo

um segundo laser, porém ressonante com a outra transição, isto é, $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$, obteremos a indução da coerência atômica também nesta transição. Devido ao fato de estas duas coerências estarem acopladas entre si por causa do nível atômico compartilhado ($|3\rangle$), efeitos de interferência atômica podem ser observados. Desta forma podemos obter interferência construtiva ou destrutiva no sinal da probabilidade de transição total de uma das duas possíveis transições atômicas ($|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ ou $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$).

Apesar de o fenômeno ter sido observado e estudado há algum tempo, foi somente em 1990, devido a Harris e colegas [7], que o termo transparência eletromagneticamente induzida (EIT, sigla em inglês para *"electromagnetically induced transparency"*) foi utilizado pela primeira vez. Tal efeito nada mais é do que o cancelamento da absorção de um campo de prova fraco, ressonante com uma dada transição atômica, quando se aplica um segundo campo eletromagnético forte (campo de acoplamento) ressonante com uma outra transição atômica mas que compartilhe um nível com a primeira transição. Assim, de acordo com o exposto no parágrafo anterior, EIT é um fenômeno que surge devido a efeitos de interferência atômica¹. Em outras palavras, EIT é o fenômeno físico no qual um meio outrora opaco a um dado comprimento de onda torna-se transparente. Nesta situação o campo de prova fraco propaga-se tendo sua absorção significativamente reduzida devido à presença do campo de acoplamento. Então, sob a luz da interferência atômica, EIT é o efeito que surge quando ocorre interferência atômica destrutiva entre as duas coerências atômicas induzidas pelos campos de prova e acoplamento. Assim, o fenômeno de EIT ocorre sob a condição de transição de dois fótons ou transição Raman.

Então, de acordo com os três últimos parágrafos, o fenômeno do aprisionamento coerente de população está relacionado às mudanças induzidas pelo campo nas variáveis atômicas. Quando nos referimos a CPT, olhamos para as características atômicas que são alteradas devido à presença do campo externo como, por exemplo, a ausência de fluorescência que está associada à não existência de população no nível atômico excitado. Por outro lado, quando falamos em transparência eletromagneticamente induzida olhamos, por exemplo, para a transmissão do campo de prova através de um meio atômico previamente preparado por outro campo externo, denominado campo de acoplamento. Além disso, EIT pode ser considerada

¹Há ainda a exigência de que a frequência de Rabi associada ao campo de acoplamento obedeça a uma certa relação com a taxa de decaimento espontâneo do estado excitado. Tal relação será discutida no capítulo 3.

um caso particular da CPT onde o campo de prova possui frequência de Rabi muito pequena quando comparada à frequência de Rabi do campo de acoplamento [8]. Uma revisão muito boa sobre os fenômenos de EIT e CPT pode ser obtida em [9,10].

Existem diversas aplicações do fenômeno de EIT. Por exemplo, Hahn e colaboradores [11], utilizando átomos de zinco, mostraram um exemplo de aplicação da janela de transparência para aumentar o efeito não linear de um meio outrora opaco. Na área da física de lasers, Kocharovskaya e Khanin [12] e Harris [13] demonstraram a possibilidade de se obter amplificação de um pulso laser sem inversão de população usando a técnica de EIT. Com esta técnica, a absorção estimulada de um dado estado fundamental pode ser reduzida sensivelmente quando comparada às emissões estimuladas de radiação pelo estado excitado para uma frequência em particular. Isso torna possível obter emissão do tipo laser sem a necessidade de inversão de população. Laser sem inversão de população em sistemas atômicos de três níveis foi demonstrado experimentalmente, por exemplo, em sódio (sistema atômico de 3 níveis na configuração V) [15]. Outra aplicação para o fenômeno de EIT aparece nas técnicas de separação isotópica a laser, que se baseia no fato de que diferentes isótopos de um dado elemento absorvem radiação em diferentes frequências. Melhorias no processo de separação isotópica entre dois diferentes isótopos de chumbo (²⁰⁷Pb e ²⁰⁸Pb) usando EIT foi proposto e demonstrado por Kasapi [16].

O fenômeno da EIT também tem sido aplicado na obtenção da redução da velocidade da luz para valores da ordem de dezenas de metros por segundo. Hau e colaboradores [17], utilizando EIT em gás ultra frio constituído de átomos de Ca, realizaram um experimento no qual obtiveram um pulso óptico se propagando a uma velocidade aproximadamente vinte milhões de vezes menor que a velocidade da luz no vácuo. Liu e colegas [18] levaram pulsos lasers ao completo repouso em uma nuvem de átomos frios de sódio aprisionados magneticamente. Desligando rapidamente o campo de acoplamento, o pulso de prova pode ser efetivamente parado de forma que a informação previamente contida em tal pulso fica "congelada" no interior do meio atômico por um tempo de até 1 ms. Hélet e colaboradores desenvolveram um tratamento teórico para descrever o fenômeno de EIT como um mecanismo para o armazenamento de informação quântica [19] e um outro estudo, também teórico, demonstrou a possibilidade do armazenamento de vários pulsos em um meio sob a condição de EIT [20]. Além do armazenamento de informações, o armazenamento de imagens e sua posterior recuperação tem sido estudado e demonstrado tanto do ponto de vista teórico [21] assim como experimental [22].

No campo da magnetometria, ressonâncias estreitas podem ser utilizadas para medidas de alta sensibilidade [23,24]. Fleischhauer e colaboradores [25] demonstraram que a redução do sinal devido ao alargamento por potência pode ser compensado em magnetômetros baseados em medidas de fase utilizando EIT. Outro trabalho recente propõe um método para magnetometria baseada no fenômeno de EIT explorando os estados de máxima polarização do átomo [26].

Usando o fenômeno da transparência eletromagneticamente induzida, Schimidt e Imamoglu [27] mostraram teoricamente a possibilidade de se obter não-linearidade óptica gigante. Tal efeito apresenta possível aplicação, por exemplo, na área da computação quântica para a realização de medidas não destrutivas e em portas lógicas quânticas. Kang e Zhu [28], utilizando um campo de baixa intensidade, mostraram experimentalmente que a coerência e a interferência apresentadas na EIT eliminam a susceptibilidade linear e, ao mesmo tempo, levam a um grande aumento da susceptibilidade não linear.

Bell e colaboradores [29] utilizaram a ressonância de EIT em Rb como referência para travar a frequência relativa de dois lasers na separação hiperfina dos níveis atômicos fundamentais. Ainda na área do travamento de frequências, Sargasyan e colaboradores [30] propuseram uma técnica para medir a estabilidade da frequência de um laser contínuo utilizando-o como laser de acoplamento no esquema de EIT tanto na configuração Λ como na configuração cascata.

Qi e colegas [31] observaram experimentalmente a EIT em um sistema molecular na configuração cascata através da detecção da fluorescência. Mostraram que a dependência existente entre a separação das linhas do nível excitado e a potência do campo pode ser utilizada como ferramenta no processo de medida de momentos de dipolos moleculares.

O advento do laser pulsado foi de grande importância para o desenvolvimento e estudo dos efeitos de coerência e interferência atômica, principalmente nas situações onde se deseja explorar transições de muitos fótons. Isso é possível devido à alta intensidade que esses pulsos podem apresentar, garantindo assim a observação de efeitos ópticos não lineares, uma vez que estes dependem da intensidade do campo aplicado. Pulsos de elevada potência de pico

6

1. INTRODUÇÃO

foram obtidos pela primeira vez através do uso de um laser de rubi pulsado em cuja cavidade se inseriu um elemento passivo (absorvedor saturável), favorecendo a oscilação do laser em regime de modos acoplados (*passive mode-locking*) [32]. Outra característica importante é a grande largura espectral que esses pulsos possuem². Essa propriedade faz com que uma série de transições possam ser estimulas simultaneamente por um mesmo pulso. Além disso, o fato de o espectro ser largo permite que um pulso se propague através de um conjunto de átomos sem que grande parte de sua energia seja absorvida, levando a um desvio da lei de Beer para a propagação [33, 34].

Graças às técnicas de travamento de modos (*mode locking*) foi possível a obtenção de lasers de pulsos ultracurtos com largura temporal da ordem de femtossegundos ou menos. Atualmente o estudo da metrologia óptica [35], da dinâmica de processos ultra-rápidos [36] e da espectroscopia de alta resolução [37,38], por exemplo, se utilizam desses lasers de pulsos ultracurtos.

A interação entre matéria e trens de pulsos ultracurtos constitui um tópico de grande interesse para uma vasta parcela da comunidade científica, pois fontes de luz coerente podem ser utilizadas para manipular os resultados da interação entre radiação e matéria através dos fenômenos de interferência atômica, tanto no domínio do tempo como no das frequências. Além disso, como será discutido no capítulo 3, dependendo das características atômicas (ou moleculares) e do trem de pulsos, efeitos de acúmulo de coerência e população podem ocorrer.

Uma das ideias desenvolvidas nesta tese é a utilização de trens de pulsos ultracurtos no estudo da dinâmica temporal da transparência eletromagneticamente induzida. Apesar de este efeito ser um fenômeno já extensivamente estudado, a grande maioria desses estudos tem sido feito no regime estacionário e, aqui, realizamos um estudo sistemático do ponto de vista transitório.

Esta tese está dividida da seguinte maneira: no capítulo 2 é feita uma revisão sobre as propriedades do operador densidade e suas aplicações no estudo da evolução temporal de sistemas quânticos. Também é apresentada uma discussão a respeito do campo eletromagnético, partindo das equações de Maxwell, passando pela aproximação de envelope lentamente variável e chegando até a equação de onda reduzida que será empregada no capítulo 5. Por fim,

²Esta característica será apresentada ao final do capítulo 2.

o capítulo 2 é fechado com uma apresentação das características temporais e espectrais de um trem de pulsos ultracurtos bem como algumas aplicações. No capítulo 3 é feita uma revisão de alguns dos fenômenos observados na interação de sistemas atômicos de dois e três níveis com campos eletromagnéticos externos. É apresentada de forma detalhada a inserção dos termos de decaimento espontâneo às equações de Bloch que descrevem a evolução temporal do sistema átomo-campo e, em seguida, o efeito da transparência eletromagneticamente induzida no regime estacionário é apresentado. A título de ilustração, também são discutidas algumas características transitórias para a interação da radiação eletromagnética tanto com um sistema de dois níveis assim como com um sistema de três níveis, este último na configuração Λ . A partir do quarto capítulo apresentamos nossas contribuições ao estudo dos fenômenos de interação entre átomo e campo. No capítulo 4 são apresentados nossos resultados acerca do estudo realizado sobre os efeitos do acúmulo coerente de excitação na transparência eletromagneticamente induzida de um trem de pulsos ultracurtos. No capítulo 5 discutimos nossos resultados sobre a influência da propagação no acúmulo coerente de excitação induzida por um trem de pulsos ultracurtos. O sexto capítulo é dedicado à apresentação dos resultados obtidos no estudo da dinâmica da interação de um trem de pulsos ultracurtos com um sistema de três níveis, também na configuração Λ , acoplado através de um laser contínuo monocromático. No sétimo e último capítulo são apresentadas as conclusões. O apêndice A também apresenta parte de nossas contribuições. Nele tratamos da detecção optogalvânica do bombeamento óptico de um sistema de 3 níveis (aberto) na configuração cascata, excitado e investigado por dois campos contínuos contra propagantes. Tais resultados são apresentados na forma de apêndice devido ao fato de tal trabalho se desviar um pouco do tema central desta tese. A relação dos artigos publicados que se originaram desta tese é apresentada no apêndice F.

2 Operador densidade e Campo eletromagnético

este capítulo revemos alguns conceitos importantes para a análise da interação do campo eletromagnético com o meio atômico. Primeiramente apresentamos o conceito do operador densidade e suas vantagens frente ao formalismo do vetor de estado no estudo de sistemas quânticos. Em seguida a equação de propagação de uma onda é derivada a partir das equações de Maxwell e, então, é apresentada a ideia da aproximação de envelope lentamente variável, chegando-se à equação de onda na forma reduzida. Por fim, discutimos as características de um trem de pulsos ultracurtos.

2.1 Matriz densidade

2.1.1 Introdução

Uma função de onda traz consigo a quantia máxima de informação permitida pela mecânica quântica sobre as propriedades do sistema físico que tal função de onda descreve [39]. Esta função de onda pode ser, por exemplo, uma auto-função de uma observável ou uma sobre-posição linear de auto-funções de uma dada observável. Porém, alguns sistemas que possuem uma quantidade elevada de graus de liberdade geralmente impossibilitam a construção de uma função de onda contendo todas as informações pertinentes a si. Assim, na prática, o estado do sistema não fica perfeitamente determinado e é necessário que recorramos a outros métodos que permitam estudar todas as informações do sistema quântico e que, ao mesmo tempo, seja uma ferramenta fácil de obter e de se utilizar. Um exemplo simples desta situação é o estado de polarização da luz proveniente de uma fonte natural ou átomos de um feixe emitido por um forno a uma temperatura T, de forma que a energia cinética dos mesmos é conhecida apenas estatisticamente [40]. Nessas condições se faz necessário incorporar ao formalismo as

informações incompletas que temos acerca do sistema, porém não é possível escrevermos um vetor de estado médio de onde sejamos capazes de obter todas as informações (observáveis) desejadas. Na verdade temos de associar a este sistema um operador médio que possua toda informação possível e permita a descrição de uma forma simplificada, mesmo quando tratamos de uma mistura estatística de estados. Esse operador médio que trataremos a seguir é o operador densidade.

Na falta de uma função de onda específica que descreva o sistema, podemos contornar a situação afirmando que o sistema tem probabilidade p_1 de estar no estado $|\Psi_1\rangle$, probabilidade p_2 de estar no estado $|\Psi_2\rangle$, e assim por diante. Dessa forma é de se esperar que:

$$p_1 + p_2 + \dots + p_N = \sum_{i=1}^N p_i = 1,$$
 (2.1)

e dizemos estar trabalhando com uma mistura estatística dos estados $|\Psi_1\rangle$, $|\Psi_2\rangle$, \cdots , $|\Psi_N\rangle$ - com respectivas probabilidades p_1 , p_2 , \cdots , p_N - que não é uma sobreposição linear de tais estados.

Se o sistema for representado por uma sobreposição linear desses estados $|\Psi_1\rangle$, $|\Psi_2\rangle$, ..., $|\Psi_N\rangle$, então a função de onda para tal sistema deve ser escrita da seguinte forma:

$$|\Psi\rangle = \sum_{i=1}^{N} c_i |\Psi_i\rangle, \qquad (2.2)$$

onde a probabilidade de obter o estado $|\Psi_i\rangle$ é dada por $|c_i|^2$.

Quando o estado do sistema físico é um estado de mistura estatística, geralmente não podemos observar interferências entre termos de diferentes estados. Por outro lado, para sistemas cujo estado é representado pela função de onda como a da equação (2.2), podemos observar efeitos de interferência entre diferentes estados individuais que compõem essa sobreposição, ou seja, podemos obter probabilidades do tipo $c_i c_i^*$.

2.1.2 Matriz densidade para estados puros

Seja um sistema físico qualquer cuja função de onda que o descreve em um determinado instante é dada por:

$$|\Psi(t)\rangle = \sum_{i} c_i(t) |a_i\rangle, \qquad (2.3)$$
onde o conjunto $\{|a_i\rangle\}$ constitui uma base ortonormal de um dado espaço de estados e, da condição de normalização de $|\Psi(t)\rangle$,

$$\sum_{i} |c_i(t)|^2 = 1.$$
(2.4)

Agora suponhamos que *O* seja uma observável do sistema em questão. Os elementos de matriz dessa observável são obtidos através de

$$\left\langle a_{i}\left|\hat{O}\right|a_{j}\right\rangle =O_{ij},$$
(2.5)

de modo que o valor médio da observável representada pelo operador \hat{O} no instante t é dado por:

$$\left\langle \hat{O} \right\rangle(t) = \left\langle \Psi(t) \left| \hat{O} \right| \Psi(t) \right\rangle = \sum_{ij} c_i^*(t) c_j(t) O_{ij}.$$
 (2.6)

Vemos então que a obtenção do valor médio de uma dada observável depende dos coeficientes $c_i(t)$'s através do produto $c_i^*(t)c_j(t)$ que nada mais são que os elementos de matriz do operador projetor sobre o *ket* $|\Psi(t)\rangle$, dado por $|\Psi(t)\rangle \langle \Psi(t)|$. De fato, da equação (2.3) temos que:

$$\langle a_j | \Psi(t) \rangle \langle \Psi(t) | a_i \rangle = c_i^*(t) c_j(t), \qquad (2.7)$$

que, por sua vez, nos permite introduzir o operador densidade definido através de:

$$\hat{\rho}(t) = |\Psi(t)\rangle \langle \Psi(t)|. \qquad (2.8)$$

O operador densidade acima definido pode ser representado na base $\{|a_i\rangle\}$ através de uma matriz denominada *matriz densidade* cujos elementos são dados por:

$$\rho_{ij}(t) = \langle a_i | \hat{\rho}(t) | a_j \rangle = c_i^*(t) c_j(t).$$
(2.9)

Uma vez determinado o operador densidade (ou matriz densidade) do sistema, estamos em condições de caracterizar o estado quântico em questão de modo a obter todas as informações físicas encerradas por tal operador. Algo que decorre de imediato é a comparação entre as equações (2.4) e (2.8). Esta comparação deixa evidente que a soma dos elementos da diagonal principal da matriz densidade (traço da matriz densidade) é igual à unidade, isto é,

$$Tr[\rho(t)] = \sum_{i} \rho_{ii}(t) = \sum_{i} |c_i(t)|^2 = 1.$$
(2.10)

Substituindo as equações (2.5) e (2.9) em (2.6) temos:

$$\left\langle \hat{O} \right\rangle(t) = \sum_{ij} \left\langle a_j \left| \hat{\rho}(t) \right| a_i \right\rangle \left\langle a_i \left| \hat{O} \right| a_j \right\rangle = \sum_j \left\langle a_j \left| \hat{\rho}(t) \hat{O} \right| a_j \right\rangle,$$
(2.11)

onde usamos $|a_i\rangle \langle a_i| = \hat{I}$. Esta última relação leva-nos a uma equação que, além de permitir o cálculo do valor médio de uma dada observável, também reflete a conservação de probabilidade, e é dada por:

$$\left\langle \hat{O} \right\rangle(t) = Tr\left[\hat{\rho}(t)\hat{O}\right].$$
 (2.12)

2.1.3 Matriz densidade para estados de mistura estatística

O estado de mistura estatística é caracterizado quando não possuímos informação suficiente para especificar um vetor de estado para o sistema, mas conhecemos as probabilidades p_n para cada um dos estados $|\Psi_n\rangle$.

Determinemos a probabilidade de encontrar o resultado o_n para uma dada observável O supondo que o estado do sistema seja $|\Psi_k\rangle$. Para obtermos tal probabilidade aplicamos o projetor $\hat{\Pi}(o_n) = |o_n\rangle \langle o_n|$ em $|\Psi_k\rangle$ como segue:

$$P_k(o_n) = \langle \Psi_k | \hat{\Pi}(o_n) | \Psi_k \rangle = Tr \left[\hat{\rho}_k \hat{\Pi}(o_n) \right].$$
(2.13)

A probabilidade total é obtida através da média dos $P_k(o_n)$ pesados com as respectivas probabilidades p_k de ocorrer $|\Psi_k\rangle$, isto é,

$$P(o_n) = \sum_k p_k P_k(o_n) = \sum_k p_k Tr\left[\hat{\rho}_k \hat{\Pi}(o_n)\right] = Tr\left[\sum_k p_k \hat{\rho}_k \hat{\Pi}(o_n)\right],$$
(2.14)

onde usamos a relação (2.12).

Da última parcela de (2.14) obtemos:

$$P(o_n) = Tr\left[\hat{\rho}\hat{\Pi}(o_n)\right],\tag{2.15}$$

onde

$$\hat{\rho} = \sum_{k} p_k \hat{\rho}_k = \sum_{k} p_k |\Psi_k\rangle \langle \Psi_k|$$
(2.16)

é o operador densidade para o estado de mistura estatística. Vemos então que o operador densidade para o estado de mistura estatística é uma média ponderada, pesada pelas respectivas probabilidades p_k de ocorrer o estado $|\Psi_k\rangle$, dos operadores densidade relativos a cada um dos estados puros $|\Psi_k\rangle$ que podem ocorrer ao sistema físico em questão.

Tomando o traço do operador densidade para o estado de mistura estatística temos:

$$Tr\left[\hat{\rho}\right] = Tr\left[\sum_{k} p_k \hat{\rho}_k\right] = \sum_{k} p_k Tr\left[\hat{\rho}_k\right] = \sum_{k} p_k = 1, \qquad (2.17)$$

ou seja, o traço do operador densidade é sempre igual à unidade, independente de ele descrever um estado puro [equação (2.10)] ou um estado de mistura estatística.

Novamente, sendo Ô uma observável do sistema em questão, seu valor médio é calculado através de:

$$\left\langle \hat{O} \right\rangle(t) = \sum_{k} p_k \left\langle \Psi_k(t) | \hat{O} | \Psi_k(t) \right\rangle.$$
 (2.18)

Agora tomemos o traço do operador densidade aplicado ao operador \hat{O} , isto é,

$$Tr\left[\hat{\rho}(t)\hat{O}\right] = \sum_{m} \langle \phi_{m} | \left(\sum_{k} p_{k} \hat{\rho}_{k} \hat{O}\right) | \phi_{m} \rangle$$
$$= \sum_{k} p_{k} \langle \Psi_{k}(t) | \hat{O} \sum_{m} | \phi_{m} \rangle \langle \phi_{m} | \Psi_{k}(t) \rangle$$
(2.19)

onde utilizamos o operador densidade para o estado de mistura estatística dado pela relação (2.16). Como $\sum_{m} |\phi_{m}\rangle \langle \phi_{m}|$ é o operador identidade, obtemos a seguinte relação:

$$Tr\left[\hat{\rho}(t)\hat{O}\right] = \sum_{k} p_k \left\langle \Psi_k(t) \right| \hat{O} \left| \Psi_k(t) \right\rangle, \qquad (2.20)$$

que é o mesmo resultado mostrado na equação (2.18), ou seja, no formalismo da matriz densidade, o valor médio de uma dada observável é obtido tomando-se o traço do produto entre o operador densidade e o operador referente à observável em questão, tanto para um estado de mistura estatística assim como para um estado puro.

Podemos ainda substituir o operador *O* pelo próprio operador densidade obtendo:

$$Tr\left[\hat{\rho}(t)^{2}\right] = \sum_{n} p_{n} \langle \Psi_{n}(t) | \left(\sum_{m} p_{m} |\Psi_{m}(t)\rangle \langle \Psi_{m}(t) | \right) |\Psi_{n}(t)\rangle$$

$$= \sum_{m,n} p_{m} p_{n} \langle \psi_{n}(t) |\Psi_{m}(t)\rangle \langle \Psi_{m}(t) |\Psi_{n}(t)\rangle$$

$$= \sum_{m,n} p_{m} p_{n} |\langle \Psi_{n}(t) |\Psi_{m}(t)\rangle|^{2}.$$
(2.21)

Para analisarmos o último resultado, precisamos olhar para a desigualdade de Cauchy-Schwarz que é dada por:

$$\left|\left\langle \Psi_{1}|\Psi_{2}\right\rangle\right|^{2} \leq \left\langle \Psi_{1}|\Psi_{1}\right\rangle \left\langle \Psi_{2}|\Psi_{2}\right\rangle.$$
(2.22)

Como os auto-vetores que representam nosso sistema são ortogonais, isto é, $\langle \psi_n(t) | \psi_n(t) \rangle = \langle \psi_m(t) | \psi_m(t) \rangle = 1$, obtemos então que:

$$Tr\left[\hat{\rho}(t)^2\right] \le 1. \tag{2.23}$$

Para o caso de um estado de mistura estatística a desigualdade é satisfeita e a igualdade é respeitada somente quando tratamos de um estado puro.

Por fim, a derivada da equação (2.16) em relação ao tempo é dada por:

$$\frac{d}{dt}\hat{\rho}(t) = \sum_{k} p_{k} |\Psi_{k}(t)\rangle \frac{d}{dt} \langle\Psi_{k}(t)| + \sum_{k} p_{k} \left(\frac{d}{dt} |\Psi_{k}(t)\rangle\right) \langle\Psi_{k}(t)|$$
(2.24)

e, da equação de Schrödinger, temos $\frac{d}{dt} |\Psi_n(t)\rangle = \frac{1}{i\hbar} \hat{H}(t) |\Psi_n(t)\rangle$ que substituída em (2.24) nos leva a:

$$\frac{d}{dt}\hat{\rho}(t) = -\frac{1}{i\hbar} \left(\sum_{k} p_k \left| \Psi_k(t) \right\rangle \left\langle \Psi_k(t) \right| \right) \hat{H}(t) + \frac{1}{i\hbar} \hat{H}(t) \left(\sum_{k} p_k \left| \Psi_k(t) \right\rangle \left\langle \Psi_k(t) \right| \right)$$
(2.25)

que resulta na equação de Liouville - von Neumann que descreve a evolução temporal do operador densidade (representação de Schrödinger) e é dada por:

$$\frac{d}{dt}\rho(t) = -\frac{i}{\hbar} \left[\hat{H}(t), \hat{\rho}(t) \right].$$
(2.26)

2.1.4 Considerações finais para o operador densidade

Como vimos, o formalismo do operador densidade constitui uma forte ferramenta na obtenção de informações acerca de um dado sistema físico, principalmente quando trata-se de um estado de mistura estatística. Outra vantagem que se pode ter quando se utiliza do formalismo do operador densidade é aquela relativa à descrição de subsistemas de um estado emaranhado, problema este recorrente em muitos estudos da óptica quântica.

Enquanto através do formalismo do vetor de estado só conseguimos, geralmente, descrever sistemas cujo estado quântico é um estado puro, o operador densidade também permite a descrição de sistemas cujo estado é representado por uma mistura estatística. De uma maneira geral, todas as quantias mensuráveis podem ser obtidas através do operador densidade.

Um estado puro pode ser encarado como um estado de mistura estatística quando todos os p_k 's da equação (2.16), exceto um deles que é igual à unidade, são nulos. Desta forma, há apenas um vetor de estado que é conhecido e bem definido. Obviamente, nessas condições a igualdade da equação (2.23) é satisfeita e concluímos que operador densidade relativo a um estado puro respeita a relação $\hat{\rho}(t)^2 = \hat{\rho}(t)$.

Em relação à evolução temporal do operador densidade para o estado puro, embora não tenha sido discutida, segue a mesma equação obtida para o caso de um estado de mistura estatística, equação (2.26), bastando fazer a substituição pelo respectivo operador densidade.

Outro ponto importante a se destacar é que as expressões que envolvem o operador densidade, ao contrário do formalismo de vetor de estado que apresentam relações quadráticas, são lineares. Além disso, dois estados dados por $|\Psi(t)\rangle$ e $e^{i\theta} |\Psi(t)\rangle$ e que descrevem o mesmo estado físico correspondem ao mesmo operador densidade. Portanto neste formalismo o conhecimento da fase é desnecessário.

Para finalizar, analisemos o significado físico dos elementos da matriz densidade. Seja uma base completa { $|u_n\rangle$ }, de forma que podemos expressar os componentes $[c_k(t)]_n$ de $|\Psi_k\rangle$ da seguinte forma:

$$[c_k(t)]_n = \langle u_n | \Psi_k \rangle.$$
(2.27)

Os elementos da diagonal principal da matriz densidade de acordo com a equação (2.16), são dados por:

$$\rho_{nn}(t) = \sum_{k} p_k [\rho_k]_{nn} = \sum_{k} p_k \left| [c_k(t)]_n \right|^2$$
(2.28)

onde, se $|\Psi_k\rangle$ é o estado do sistema, $|[c_k(t)]_n|^2$ é a probabilidade de que em uma dada medida, o sistema seja encontrado no estado $|u_n\rangle$. Assim $\rho_{kk}(t)$ representa a probabilidade de encontrar o sistema no estado $|u_n\rangle$ e, por isso, chamamos a essa quantia de **população** do estado $|u_n\rangle$.

Agora olhemos para os elementos não diagonais dados por:

$$\rho_{np}(t) = \sum_{k, n \neq p} p_k [c_k]_n [c_k]_p^*.$$
(2.29)

Esta última expressão representa a interferência entre os estados $|u_n\rangle$ e $|u_p\rangle$ que ocorre quando o estado $|\Psi_k\rangle$ é formado a partir de uma sobreposição coerente desses estados. Desta forma, devido à média ponderada por p_k , dizemos que $\rho_{np}(t)$ é a média de todos os efeitos de interferência que ocorrem no estado de mistura estatística. No caso de um estado puro o significado é equivalente, uma vez que apenas um dos pesos p_k é diferente de zero. Os elementos não diagonais da matriz densidade, representados por $\rho_{np}(t)$, são chamados de **coerências** e, assim como os termos das populações, dependem da base na qual são escritos.

Na discussão aqui realizada sobre o operador densidade e suas aplicações, em nenhum momento planejou-se esgotar o assunto. Desta forma, para um aprofundamento e discussões mais detalhadas, recomenda-se a consulta de alguns livros texto de mecânica quântica como, por exemplo, os das referências [40] e [41].

2.2 O campo eletromagnético

As quatro equações de Maxwell são consideradas como a base de todos os fenômenos elétricos e magnéticos permitindo, inclusive, o estudo da propagação de ondas eletromagnéticas em um dado meio. Na forma diferencial e no sistema MKS elas são [42]:

$$\nabla \times \vec{E}(\vec{r},t) = -\frac{\partial}{\partial t} \vec{B}(\vec{r},t); \qquad (2.30)$$

$$\nabla \times \vec{H}(\vec{r},t) = \vec{j}(\vec{r},t) + \frac{\partial}{\partial t} \vec{D}(\vec{r},t); \qquad (2.31)$$

$$\nabla \cdot \vec{D}(\vec{r},t) = \kappa(\vec{r},t) \tag{2.32}$$

e

$$\nabla \cdot \vec{B}(\vec{r},t) = 0. \tag{2.33}$$

Nas equações de Maxwell acima apresentadas $\kappa(\vec{r},t)$ é a densidade de carga¹ e $\vec{j}(\vec{r},t)$ é o vetor densidade de corrente. $\vec{E}(\vec{r},t)$ é o vetor campo elétrico que se relaciona com o vetor deslocamento $\vec{D}(\vec{r},t)$ via

$$\vec{D}(\vec{r},t) = \varepsilon_0 \vec{E}(\vec{r},t) + \vec{P}(\vec{r},t),$$
 (2.34)

onde $\vec{P}(\vec{r},t)$ é o vetor polarização e ε_0 é a permissividade elétrica do meio. $\vec{H}(\vec{r},t)$ representa o vetor intensidade magnética e está relacionado com o vetor indução magnética $\vec{B}(\vec{r},t)$ através

¹É praxe a utilização do símbolo " ρ " para representar tal quantia. Aqui trocaremos por " κ " para evitar confusão com a notação utilizada para a matriz densidade.

de:

$$\vec{B}(\vec{r},t) = \mu_0 \vec{H}(\vec{r},t) + \vec{M}(\vec{r},t), \qquad (2.35)$$

onde $\vec{M}(\vec{r},t)$ é o vetor magnetização e μ_0 é a permeabilidade magnética do meio.

A expressão (2.30) representa a lei de Faraday que está relacionada com a corrente elétrica induzida por um dado campo magnético variável. A equação (2.31) nada mais é que a lei de Ampère generalizada², já incluindo o termo do vetor deslocamento que a torna fisicamente consistente quando empregada para campos dependentes do tempo. Esta lei mostra que o campo magnético pode ser gerado por uma corrente elétrica e/ou por uma variação temporal do fluxo do campo elétrico. A lei de Coulomb é representada na equação (2.32) e a equação (2.33) é a Lei de Gauss do magnétismo cujo significado físico é o de que, diferentemente do caso elétrico, não existem monopolos magnéticos.

Nesta tese assumimos que o meio atômico com o qual o campo eletromagnético interagirá é neutro, assim, $\kappa(\vec{r}, t) = |\vec{j}(\vec{r}, t)| = 0.$

Calculando o rotacional em ambos os lados da equação (2.30) obtemos:

$$\vec{\nabla} \times \left[\vec{\nabla} \times \vec{E}(\vec{r},t)\right] = \vec{\nabla} \left[\vec{\nabla} \cdot \vec{E}(\vec{r},t)\right] - \nabla^2 \vec{E}(\vec{r},t) = -\frac{\partial}{\partial t} \vec{\nabla} \times \vec{B}(\vec{r},t).$$
(2.36)

Como trabalharemos na aproximação de dipolo elétrico³ e, assim, o campo eletromagnético induzido no meio atômico deve-se exclusivamente aos momentos de dipolo atômicos temos que $|\vec{M}(\vec{r},t)| = 0$. Assim, das equações (2.31), (2.34) e (2.35), temos:

$$\vec{\nabla} \times \vec{B}(\vec{r},t) = \mu_0 \frac{\partial}{\partial t} [\varepsilon_0 \vec{E}(\vec{r},t) + \vec{P}(\vec{r},t)], \qquad (2.37)$$

que substituída em (2.36) mais o fato de que $\vec{\nabla}[\vec{\nabla} \cdot \vec{E}(\vec{r},t)] = 0$, nos leva à seguinte expressão que descreve o comportamento do campo elétrico em um dado meio material:

$$-\nabla^2 \vec{E}(\vec{r},t) + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E}(\vec{r},t) = -\frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}(\vec{r},t), \qquad (2.38)$$

onde usamos o fato de que $(\mu_0 \varepsilon_0)^{-1} = c^2$.

Agora, escrevamos o campo que interage com o meio atômico como uma onda plana que se propaga exclusivamente na direção z, isto é,

$$\vec{E}(z,t) = \vec{E}_0(z,t)e^{i(\omega t - kz)},$$
(2.39)

²Ampère obteve está equação para cargas estáticas de tal modo que o segundo termo à direita da equação (2.31)

não aparecia. Tal termo foi derivado por Maxwell e é fundamental para descrever a radiação eletromagnética.

³Esta aproximação será discutida no próximo capítulo.

onde $k = 2\pi/\lambda$ é o vetor de onda, λ é o comprimento de onda, ω é a frequência angular do campo e $\vec{E}_0(z,t)$ é o envelope desse campo. Devido ao fato de o campo propagar-se apenas na direção z, podemos reescrever a equação (2.38) de uma forma simplificada, isto é,

$$-\frac{\partial^2}{\partial z^2}\vec{E}(z,t) + \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\vec{E}(z,t) = -\frac{1}{\varepsilon_0 c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\vec{P}(\vec{r},t).$$
(2.40)

Neste trabalho estamos interessados em campos cujos comprimentos de onda localizamse na região óptica do espectro eletromagnético. Nessa situação podemos assumir que o envelope do campo $[\vec{E}_0(z,t)]$ sofre variações em uma escala temporal (t_e) muito maior quando comparada àquela na qual o campo oscila (t_c) e, além disso, é espacialmente constante em dimensões comparadas ao diâmetro do átomo. Essa aproximação é conhecida como *aproximação de amplitude lentamente variável* que nos leva às seguintes relações para a variável espacial:

$$\left|\frac{\partial}{\partial z}\vec{E}_{0}(z,t)\right| \approx \left|\frac{\vec{E}_{0}(z,t)}{d}\right| << \left|\frac{2\pi}{\lambda}\vec{E}_{0}(z,t)\right| = \left|k\vec{E}_{0}(z,t)\right|,\tag{2.41}$$

onde *d* é a escala de comprimento na qual o campo varia espacialmente ($d >> \lambda$). A equação (2.41) implica em:

$$\left|\frac{\partial^2}{\partial z^2}\vec{E}_0(z,t)\right| << \left|k\frac{\partial}{\partial z}\vec{E}_0(z,t)\right| << \left|k^2\vec{E}_0(z,t)\right|.$$
(2.42)

Em relação à variável temporal temos:

$$\left|\frac{\partial}{\partial t}\vec{E}_{0}(z,t)\right| \approx \left|\frac{\vec{E}_{0}(z,t)}{\tau}\right| << \left|\frac{2\pi}{T_{0}}\vec{E}_{0}(z,t)\right| = \left|\omega\vec{E}_{0}(z,t)\right|,$$
(2.43)

que implica em:

$$\left|\frac{\partial^2}{\partial t^2}\vec{E}_0(z,t)\right| << \left|\omega\frac{\partial}{\partial t}\vec{E}_0(z,t)\right| << \left|\omega^2\vec{E}_0(z,t)\right|.$$
(2.44)

De maneira análoga obtemos a seguinte relação de desigualdade para a polarização atômica:

$$\left|\frac{\partial^2}{\partial t^2}\vec{P_0}(z,t)\right| << \left|\omega\frac{\partial}{\partial t}\vec{P_0}(z,t)\right| << \left|\omega^2\vec{P_0}(z,t)\right|,$$
(2.45)

significando que a variação das quantias atômicas é pequena durante um período óptico.

Para avaliarmos os efeitos dessa aproximação na equação de propagação de uma onda eletromagnética, calculemos as derivadas do campo apresentado na equação (2.39) em relação a z e t. Em relação à variável espacial temos:

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2}\vec{E}(z,t) = \left[\frac{\partial^2}{\partial z^2}\vec{E}_0(z,t) - 2ik\frac{\partial}{\partial z}\vec{E}_0(z,t) - k^2\vec{E}_0(z,t)\right]e^{i(\omega t - kz)},$$
(2.46)

derivando em relação ao tempo ficamos com:

$$\frac{\partial^2}{\partial t^2}\vec{E}(z,t) = \left[\frac{\partial^2}{\partial t^2}\vec{E}_0(z,t) + 2i\omega\frac{\partial}{\partial t}\vec{E}_0(z,t) - \omega^2\vec{E}_0(z,t)\right]e^{i(\omega t - kz)}$$
(2.47)

e, por fim, a derivada de ordem 2 da polarização fica:

$$\frac{\partial^2}{\partial t^2}\vec{P}(z,t) = \left[\frac{\partial^2}{\partial t^2}\vec{P}_0(z,t) + 2i\omega\frac{\partial}{\partial t}\vec{P}_0(z,t) - \omega^2\vec{P}_0(z,t)\right]e^{i(\omega t - kz)}.$$
(2.48)

Nas equações (2.46), (2.47) e (2.48) as derivadas de segunda ordem que aparecem do lado direito dos sinais de igualdade, por serem muito pequenas comparadas aos demais termos, podem ser desprezadas. Além disso, a derivada de primeira ordem da polarização na equação (2.48) também pode ser desprezada. Com essas aproximações, substituindo (2.46), (2.47) e (2.48) em (2.40) obtemos:

$$\left[-2ik\frac{\partial}{\partial z}\vec{E}_0(z,t) - k^2\vec{E}_0(z,t) - 2i\frac{\omega}{c^2}\frac{\partial}{\partial t}\vec{E}_0(z,t) + \frac{\omega^2}{c^2}\vec{E}_0(z,t)\right]e^{i(\omega t - kz)} = \mu_0\omega^2\vec{P}_0(z,t)e^{i(\omega t - kz)}.$$
(2.49)

Como $k = \omega/c$, o segundo e o quarto termos no colchete à esquerda da última equação se cancelam. Além disso, eliminando as exponenciais que aparecem em ambos os lados do sinal de igualdade e dividindo por -2ik obtemos a seguinte forma para a equação de onda:

$$\frac{\partial}{\partial z}\vec{E}_0(z,t) + \frac{1}{c}\frac{\partial}{\partial t}\vec{E}_0(z,t) = i\mu_0\frac{\omega^2}{2k}\vec{P}_0(z,t).$$
(2.50)

No capítulo 5 estudaremos os efeitos que o meio exerce sobre o formato do envelope de um trem de pulsos ultracurtos que se propaga em um meio atômico estendido. Assim, um tratamento que faça a derivada em relação ao tempo na equação (2.50) desaparecer é de grande valia. Isso pode ser obtido através de uma simples troca de variável de forma que o tempo passe a ser medido no referencial do campo propagante, isto é, se o observador se mover junto com o campo através do meio estendido. Fazemos isso trocando a variável espacial *z* por ζ e a temporal *t* pelo tempo local τ da seguinte maneira:

$$\zeta = z \tag{2.51}$$

e

$$\tau = t - \frac{z}{v_q}, \qquad (2.52)$$

onde v_q é a velocidade de grupo.

Com essas novas variáveis podemos definir as seguintes derivadas para envelope do campo:

$$\frac{\partial}{\partial z}\vec{E}_{0}(z,t) = \frac{\partial}{\partial \zeta}\vec{E}_{0}(z,t)\frac{\partial}{\partial z}\zeta + \frac{\partial}{\partial \tau}\vec{E}_{0}(z,t)\frac{\partial}{\partial z}\tau = \frac{\partial}{\partial \zeta}\vec{E}_{0}(z,t) - \frac{1}{v_{g}}\frac{\partial}{\partial \tau}\vec{E}_{0}(z,t)$$
(2.53)

e

$$\frac{\partial}{\partial t}\vec{E}_0(z,t) = \frac{\partial}{\partial \tau}\vec{E}_0(z,t).$$
(2.54)

Substituindo (2.53) e (2.54) em (2.50) e lembrando que agora estamos no referencial do campo propagante, obtemos:

$$\frac{\partial}{\partial \zeta} \vec{E}_0(z,\tau) = -i\mu_0 \frac{\omega^2}{2k} \vec{P}_0(z,\tau) \,. \tag{2.55}$$

A polarização que aparece na última equação é, na verdade, a resultante macroscópica dos momentos de dipolo induzidos pelo campo em cada átomo do meio e é dada por:

$$\vec{P}_0(z,t) = N\left\langle \vec{d} \right\rangle,$$
(2.56)

onde *N* é a densidade de átomos na região de interação com o campo eletromagnético e $\langle \vec{d} \rangle$ é a média dos momentos de dipolo. A última equação, reescrita no formalismo do operador densidade, de acordo com a equação (2.12), fica:

$$\vec{P}_0(\vec{r},t) = N \sum_{i \neq j} \vec{d}_{ij} \rho_{ij},$$
(2.57)

onde consideramos que os momentos de dipolo são paralelos à direção de propagação do campo eletromagnético. Assim reescrevemos a equação (2.50) como segue:

$$-\frac{\partial}{\partial\zeta}\vec{E}_0(z,t) = iN\mu_0\frac{\omega^2}{2k}\sum_{i\neq j}\vec{d}_{ij}\rho_{ij}.$$
(2.58)

Esta última expressão é a equação de onda em sua forma reduzida e permite-nos descrever o comportamento da propagação do campo eletromagnético através de um dado meio atômico. Ela será utilizada no capítulo 5 para o estudo da propagação do trem de pulsos no meio atômico estendido.

2.3 Trem de pulsos ultracurtos

Nas últimas décadas tem ocorrido uma rápida evolução na geração de pulsos ópticos ultracurtos. Na verdade, o próprio termo "ultracurto" tem sofrido alterações ano a ano à medida que tais pulsos tornam-se cada vez mais curtos, já apresentando-se na casa dos attossegundos [43,44].

O mecanismo básico por trás da geração de pulsos ultracurtos é o acoplamento de modos longitudinais de um laser. Nesse acoplamento faz-se com que os modos longitudinais oscilem com uma relação de fase fixa entre si de modo que a saída do laser acaba por apresentar uma modulação de amplitude. Tal modulação é resultado dos batimentos dos modos oscilantes outrora acoplados. O primeiro laser pulsado dessa natureza foi obtido através da inserção de um modulador de amplitude na cavidade de um laser de He-Ne [45]. Embora atualmente os períodos de repetição típicos para lasers pulsados de Ti:safira fiquem entre T = 1 ns (cavidade laser de 1 GHz) e T = 13 ns (cavidade laser de 80 MHz), fontes lasers com elevadas taxas de repetição, chegando a 10 GHz, têm sido desenvolvidas [46–48].

Pulsos lasers têm sido utilizados há mais de 30 anos em diferentes experimentos como, por exemplo, medidas de intervalos de frequências em Na [49], transições de um e dois fótons [35, 50,51] e no estudo com alta resolução temporal da dinâmica de moléculas excitadas [44,52,53]. Espectroscopia com resolução da ordem de KHz em átomos frios de rubídio, utilizando pentes de frequências obtidos com um laser de Ti:Safira, foi demonstrada por Fortier e colegas [46].

Diversos outros trabalhos experimentais têm sido feitos utilizando trens de pulsos ultracurtos. Udem e colaboradores utilizaram um pente de frequências criado através de um trem de pulsos ultracurtos de femtossegundos para medir frequências de transição em Hg⁺ e Ca [54]. Gerginov e colegas realizaram espectroscopia de alta resolução em um feixe de átomos de ¹³³Cs [51]. Fortier e colaboradores [55] realizaram espectroscopia sub-Doppler, com resolução da ordem de KHz, em átomo frios de Ca utilizando uma saída amplificada de um pente de frequências altamente estabilizado originado por um laser de femtossegundos. Essa combinação entre pentes de frequências altamente estabilizados e átomos frios possui potencial aplicação para a realização de estudos espectroscópicos em frequências de difícil acesso. Zinkstok e colegas [56] demonstraram experimentalmente que pentes de frequências podem ser amplificados e dobrados em frequência afim de se obter pulsos na região do ultravioleta (UV). Tais pulsos são fundamentais para se acessar transições necessárias para testes de teorias fundamentais como, por exemplo, eletrodinâmica quântica uma vez que não existem lasers cw capazes de acessar tais transições.

Outra área onde os trens de pulsos ultracurtos tem se mostrado uma promissora ferramenta é a do controle coerente. O controle coerente de sistemas atômicos e moleculares tem evoluído significativamente devido à incorporação de fontes laser de pulsos de femtossegundos permitindo, por exemplo, a transferência robusta de população através de técnicas de passagem adiabática [57], o controle coerente da transição de dois fótons [58, 59] e experimentos de foto-associação em átomos frios [60]. Propriedades transitórias do efeito de acúmulo coerente também têm sido estudadas por meio da utilização de trens de pulsos ultracurtos [61, 62].

O emprego de trens de pulsos ultracurtos em controle coerente de sistemas quânticos permitem, por exemplo, induzir um dado sistema interagente a um estado final específico em detrimento de outro estado final indesejado. No caso de reações químicas, a preparação coerente dos reagentes em estados específicos pode levar a um aumento significativo na relação entre o produto desejado e aquele indesejado [63, 64]. Além de um tratamento teórico [65], M. Wollenhaupt e colaboradores realizaram um experimento [66] . no qual pulsos intensos de femtossegundos foram usados para controlar a dinâmica eletrônica de átomos de potássio, configurando uma potencial aplicação em controle coerente de reações químicas através da utilização de lasers. Além disso, técnicas de controle quântico adaptativo utilizando lasers de femtossegundos já foram aplicadas para obter excitação molecular seletiva [67]. Judson e Rabitz [64] desenvolveram um método para "ensinar" uma sequência de pulsos laser a excitar um nível molecular específico. A partir de informações obtidas através de medidas experimentais, eles produziram pulsos com características que levaram à excitação de estados rotacionais específicos em moléculas diatômicas.

O controle coerente temporal, por exemplo, consiste na utilização de numa combinação de pulsos ultracurtos com atraso relativo variável empregados para excitar a amostra e é uma das técnicas mais simples utilizadas em controle coerente [68]. Tal técnica têm sido utilizada em diversos sistemas físicos. Em átomos foi utilizada por Bolchene e colegas em 1998 para a observação e controle em absorção de um fóton em K ($4s \rightarrow 4p$) e de dois fótons em Cs

 $(6s \rightarrow 7d)$ [68]. Em sistemas desordenados, essa técnica foi utilizada no estudo de pacotes de ondas em vidros de Te dopados com Er [69] e no estudo do comportamento oscilatório da população, spin e alinhamento do estado de éxcitons em semicondutores [70].

Os espectros desses trens de pulsos apresentam algumas características importantes e que serão necessárias na análise e discussão dos resultados a serem apresentados nesta tese, sendo bastante conveniente tratar de algumas propriedades neste momento. Para analisar tais características tomemos como exemplo o envelope de um campo elétrico oscilante consistindo de *N* pulsos de perfil gaussiano dado por:

$$f(t) = A \sum_{m=0}^{N} e^{-\pi (t - mT)^2 / \sigma^2},$$
(2.59)

onde *T* é o período de repetição dos pulsos e a largura a meia altura de cada pulso individual é $\Delta t = 2\sigma \sqrt{\ln 2/\pi}$ como ilustrado na figura 2.1a.

O espectro de frequências do envelope descrito por (2.59) é obtido através da transformada de Fourier de f(t) e é dado por:

$$S(\omega) = A \frac{\sigma}{\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(\omega\sigma)^2}{4\pi}} \frac{1 - e^{i\omega T(N+1)}}{1 - e^{i\omega T}}.$$
 (2.60)

Embora um único pulso desse trem possua um espectro de frequências bastante largo, o trem como um todo apresenta um espectro constituído de um "pente" de frequências.



Figura 2.1: (a) Amplitude de um trem de pulsos (contendo 6 pulsos) versus o tempo, ambos em unidades arbitrárias. O período de repetição é T = 10 e $\sigma = 0.4$. (b) Amplitude espectral versus a frequência angular, ambos em unidades arbitrárias, mostrando a separação entre modos consecutivos $(2\pi/T)$. Os modos do pente de frequências na figura (b) possuem um envelope gaussiano (linha tracejada).

Como podemos ver, o espectro representado pela equação (2.60), e mostrado na figura 2.1b, é formado de modos equidistantes separados em frequência por uma quantia igual a $2\pi/T$. A largura de cada um dos dentes desse pente de frequências é dada por $2\pi/N\sigma$, onde N é o número de pulsos que constitui o trem. Dessa forma, dependendo do número de pulsos que constitui o trem, os dentes desse pente de frequências podem ser extremamente estreitos, permitindo a realização de espectroscopia com resolução limitada apenas pela largura natural da linha de transição. Em outras palavras, uma vez que esses dentes são muito estreitos é possível a realização de espectroscopia de alta resolução. Por sua vez, a largura do espectro é determinada pela largura temporal de cada pulso individual. Assim, quanto mais curto for o pulso, mais largo será seu espectro de frequências. Por exemplo, um trem de pulsos cuja largura temporal de um pulso individual é igual a 10 fs, possuirá um espectro de frequências de largura igual a 100 THz.

MODELOS ATÔMICOS SIMPLES E SUAS INTERAÇÕES COM CAMPOS COERENTES

É inconcebível que a matéria bruta inanimada possa, sem a mediação de alguma coisa, que não é material, atuar sobre, e afetar outra matéria sem contato mútuo...

Isaac Newton

3.1 Introdução

este capítulo são apresentadas as principais características dos sistemas atômicos de dois e três níveis interagindo com campos eletromagnéticos externos. Esses dois sistemas atômicos, embora simples, constituem ferramentas indispensáveis para o estudo de sistemas físicos reais.

Primeiramente apresentamos o Hamiltoniano de interação na aproximação de dipolo. Em seguida é apresentado o tratamento para um átomo de 2 níveis interagindo com um campo eletromagnético contínuo e monocromático onde obtemos a matriz densidade que descreve o sistema interagente. Por fim fazemos uma revisão das principais características e fenômenos observados no processo de interação de um sistema de três níveis na configuração Λ com um par de campos eletromagnéticos monocromáticos e discutimos o efeito da transparência eletromagneticamente induzida.

3.2 O Hamiltoniano de interação na aproximação de dipolo

O Hamiltoniano de acoplamento que descreve a interação entre um elétron, de carga e e massa m, com um campo eletromagnético externo é dado por:

$$H = \frac{1}{2m} [\vec{p} - e \,\vec{A}(\vec{r_0} + \vec{r}, t)]^2 + e \,U(\vec{r}, t) + V(\vec{r}), \tag{3.1}$$

onde \vec{p} é o operador de momento linear, $A(\vec{r}_0 + \vec{r}, t)$ é o potencial vetor, $U(\vec{r}, t)$ é o potencial escalar, ambos devido ao campo externo, e $V(\vec{r})$ é o potencial eletrostático devido à interação do elétron - localizado na posição \vec{r}_0 - com o núcleo atômico.

Suponhamos que o átomo como um todo está imerso em uma onda eletromagnética plana descrita pelo potencial vetor $A(\vec{r_0} + \vec{r}, t)$ o qual, por sua vez, pode ser escrito da seguinte forma:

$$\vec{A}(\vec{r}_0 + \vec{r}, t) = \vec{A}(t) e^{i \, \vec{k} \cdot (\vec{r}_0 + \vec{r})}.$$
(3.2)

A expansão do termo exponencial na última equação nos permite reescrever o potencial vetor como:

$$\vec{A}(\vec{r}_0 + \vec{r}, t) = \vec{A}(t) e^{i \vec{k} \cdot \vec{r}_0} \left[1 + i \vec{k} \cdot \vec{r} - \frac{(\vec{k} \cdot \vec{r})^2}{2} + \dots \right].$$
(3.3)

Como o potencial vetor muda em uma escala de comprimento determinada pelo comprimento de onda λ ($|\vec{k}| = 2\pi/\lambda$), se λ é muito maior do que as dimensões atômicas, tanto o elétron quanto o núcleo do átomo experimentam essencialmente o mesmo potencial vetor, ou seja,

$$\vec{A}(\vec{r}_n, t) \approx \vec{A}(\vec{r}_0, t), \tag{3.4}$$

onde $\vec{r_n}$ representa a posição do núcleo. A situação acima descrita caracteriza a aproximação de dipolo e é equivalente a dizer que $\vec{k} \cdot \vec{r} \ll 1$. Desta forma, o termo entre colchetes do lado direito da equação (3.3) é aproximadamente igual a 1 e o potencial vetor se reduz a:

$$\vec{A}(\vec{r}_0 + \vec{r}, t) = \vec{A}(\vec{r}_0, t) = \vec{A}(t) e^{i \, \vec{k} \cdot \vec{r}_0}.$$
(3.5)

Com o potencial vetor já escrito na aproximação de dipolo, a equação de Schrödinger para a interação do átomo com o campo eletromagnético externo fica:

$$\left\{-\frac{p^2}{2m}\left[\nabla - \frac{i\,e}{\hbar}\vec{A}(\vec{r_0},t)\right]^2 + V(r)\right\}\Psi(\vec{r},t) = i\hbar\frac{\partial\Psi(\vec{r},t)}{\partial t}\,.\tag{3.6}$$

Agora, definindo uma nova função de onda dada por:

$$\varphi(\vec{r},t) = e^{\frac{i\,e}{\hbar}\vec{A}(\vec{r}_0,t)\cdot\vec{r}}\Psi(\vec{r},t),\tag{3.7}$$

substituindo-a na equação (3.6) e usando o fato de que $\vec{E}(\vec{r},t) = -\frac{\partial \vec{A}(\vec{r},t)}{\partial t}$, após um pouco de álgebra, obtemos uma forma mais simples para a equação de Schrödinger que é:

$$[H_0 + H_{int}(t)]\varphi(\vec{r}, t) = i\hbar \frac{\partial\varphi(\vec{r}, t)}{\partial t},$$
(3.8)

onde $H_0 = p^2/2m + V(r)$ é o Hamiltoniano para o átomo não perturbado, o Hamiltoniano de interação na aproximação de dipolo é $H_{int}(t) = -e \vec{r} \cdot \vec{E}(\vec{r}_0, t) = -\vec{d} \cdot \vec{E}(\vec{r}_0, t)$ e $\vec{d} = e \vec{r}$ representa o momento de dipolo elétrico do átomo. Esta aproximação para o Hamiltoniano de interação será utilizada ao longo deste trabalho.

3.3 Átomo de dois níveis

Um dos sistemas mais fundamentais e simples em mecânica quântica é o sistema de dois níveis sem degenerescências. Algo que se pode descrever utilizando um espaço de Hilbert de duas dimensões. Utilizando esse sistema como ponto de partida, é possível expor e discutir de maneira detalhada as principais grandezas e propriedades físicas envolvidas no processo de interação da radiação com a matéria. Por exemplo, um sistema real que pode ser estudado do ponto de vista de um sistema de dois níveis é aquele no qual os dois níveis atômicos envolvidos são ressonantes (ou estão próximos da ressonância) com o campo aplicado e todos os demais níveis estão fortemente fora de sintonia com tal campo.

Embora simples, um sistema de dois níveis permite-nos obter informações essenciais acerca da interação entre átomo e campo eletromagnético. O bom conhecimento desse modelo atômico simplificado permite o estudo de situações mais complexas, tais como aquelas que envolvem um meio estendido destes sistemas interagindo com um dado campo, seja ele contínuo (cw) ou pulsado.

A aproximação mais comum para a interação entre átomos e o campo eletromagnético é a do tipo dipolo elétrico, já discutida na seção anterior, acoplando dois níveis de diferentes paridades. Nesta aproximação o Hamiltoniano de interação é:

$$H_{int} = -\vec{d} \cdot \vec{E}. \tag{3.9}$$

Esta aproximação é válida devido ao fato de os comprimentos de ondas típicos para frequências ópticas serem muito maiores que as dimensões atômicas¹ de tal forma que variações na amplitude do campo, durante a interação com o átomo, podem ser desprezadas ($kz = \frac{2\pi}{\lambda}z \ll 1$). Equivalentemente, podemos afirmar que o comprimento de onda do campo de excitação é muito maior que a separação média entre o elétron e o núcleo atômico [71].

A equação (3.9) corresponde à energia de um dipolo elétrico d inserido no campo elétrico \vec{E} assumindo que um único elétron é responsável pelo surgimento do momento de dipolo elétrico, porém isso pode ser facilmente generalizado para uma quantia maior de elétrons realizando-se uma soma sobre todos eles [72].

Ainda em relação à expressão (3.9), fica claro que um átomo que possua um momento de dipolo grande estará mais susceptível a perturbações devidas a um campo eletromagnético externo. Além disso, o produto escalar que aparece em tal expressão para o potencial de interação envolve um termo com $cos\theta$, onde θ é o ângulo entre o vetor momento de dipolo e o vetor polarização do campo. Desta forma, se esses vetores são paralelos ou antiparalelos a interação é maximizada.

Outra aproximação útil para este trabalho e que será utilizada ao longo do mesmo é aquela em que tratamos a interação entre átomo e campo do ponto de vista semiclássico. É claro que para se ter um tratamento rigoroso da interação radiação-matéria exige-se que a radiação seja tratada do ponto de vista quântico, isto é, pede-se a quantização do campo eletromagnético. Porém, em situações onde um campo eletromagnético suficientemente forte interage com o sistema atômico, é possível atacar o problema do ponto de vista semi-clássico, ou seja, o átomo é tratado sob a luz da mecânica quântica enquanto que o campo radiante é analisado classicamente [73].

A figura 3.1 mostra uma representação de um sistema de dois níveis interagindo com um campo clássico de frequência de Rabi Ω . A taxa de decaimento espontâneo do nível excitado para o fundamental é γ .

O vetor de estado que descreve tal sistema físico é dado por:

$$|\psi(t)\rangle = c_a(t) |a\rangle + c_b(t) |b\rangle, \qquad (3.10)$$

¹Para frequências ópticas temos $\lambda \approx 10^{-7}$ m enquanto que o diâmetro atômico é da ordem de 10^{-10} m.



Figura 3.1: Sistema de dois níveis interagindo com um campo monocromático com uma dessintonia δ em relação à transição atômica. A taxa de decaimento espontâneo do nível excitado ($|a\rangle$) para o fundamental ($|b\rangle$) é dada por γ .

onde $c_a(t)$ e $c_b(t)$ são as amplitudes de probabilidades (dependentes do tempo) de se encontrar o átomo no estado $|a\rangle$ ou $|b\rangle$, respectivamente.

Embora seja possível obter as equações de movimento para o sistema interagente utilizando a representação de Schrödinger (amplitudes de probabilidades), há uma forma mais adequada para se examinar este problema denominado formalismo da matriz densidade, apresentado no capítulo 2.

Quando tratamos da interação de um único átomo com o campo eletromagnético, o cálculo das amplitudes de probabilidade fornece um caminho rápido e relativamente simples de se obter a solução. Porém, quando desejamos examinar o comportamento de um grande número de átomos (um meio atômico estendido, por exemplo) interagindo com o campo, o cálculo das amplitudes de probabilidades se torna uma tarefa bastante complicada, uma vez que se-ria necessário calcular tais amplitudes para cada um dos átomos, tornando o procedimento numérico praticamente impossível para qualquer amostra macroscópica. Por outro lado, como através da matriz densidade nos valemos apenas das informações estatísticas e não do completo conhecimento do vetor de onda do sistema, podemos tratar um grande número de átomos interagindo com o campo com um custo computacional significativamente inferior.

A partir da equação (3.10) podemos escrever o operador densidade para o sistema de 2

níveis ilustrado na figura 3.1, isto é,

$$\hat{\rho} = (c_a(t) |a\rangle + c_b(t) |b\rangle)(c_a^*(t) \langle a| + c_b^*(t) \langle b|) = |c_a(t)|^2 |a\rangle \langle a| + c_a(t)c_b^*(t) |a\rangle \langle b| + c_b(t)c_a^*(t) |b\rangle \langle a| + |c_b(t)|^2 |b\rangle \langle b|, \qquad (3.11)$$

de onde podemos obter cada um dos elementos da matriz densidade fazendo $\rho_{ij} = \langle i | \hat{\rho} | j \rangle$ onde i(j) = a, b. Assim a matriz densidade fica:

$$\hat{\rho} = \begin{pmatrix} |c_a(t)|^2 & c_a(t)c_b^*(t) \\ c_b(t)c_a^*(t) & |c_b(t)|^2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \rho_{aa} & \rho_{ab} \\ \rho_{ba} & \rho_{bb} \end{pmatrix},$$
(3.12)

onde se observa que os elementos da diagonal principal são números reais que correspondem à probabilidade de a população atômica ser encontrada no nível excitado ou fundamental. Devido ao critério de normalização, a soma desses elementos na diagonal principal (o traço de $\hat{\rho}$) deve ser igual a 1. Os elementos de fora da diagonal principal são números complexos e representam a polarização atômica, pois estão relacionados à configuração de fase da função de onda. Assim, trabalhando nesse formalismo obtemos diretamente a resposta do meio atômico devido à presença do campo eletromagnético, isto é, a polarização atômica. Essa grandeza pode ser definida a partir do operador de momento de dipolo d_{ab} e da coerência atômica como segue:

$$P(z,t) = \rho_{ab} \, d_{ab} + c.c., \tag{3.13}$$

onde ρ_{ab} é um dos elementos da matriz densidade que representam a coerência atômica e *c.c.* denota o complexo conjugado.

O Hamiltoniano que descreve o átomo livre, isto é, ainda sem interagir com o campo eletromagnético pode ser escrito como:

$$\hat{H}_{0} = \hbar \omega_{a} \left| a \right\rangle \left\langle a \right| + \hbar \omega_{b} \left| b \right\rangle \left\langle b \right|, \qquad (3.14)$$

onde $\hbar\omega_a$ e $\hbar\omega_b$ representam as energias do nível excitado e do nível fundamental, respectivamente. A diferença de energia entre os dois níveis atômicos leva à relação $\omega_{ab} = \omega_a - \omega_b$ que é a frequência de transição entre o nível fundamental e o excitado.

O campo eletromagnético (clássico) que interage com esse sistema atômico possui frequência angular ω , uma dessintonia δ em relação à transição atômica ($\omega_{ab} - \omega = \delta$) e é dado por:

$$E(t) = \frac{1}{2} [E_0 e^{i\omega t} + c.c.], \qquad (3.15)$$

onde E_0 é a amplitude do campo.

O operador momento de dipolo atômico que aparece na equação (3.9) é um operador ímpar. Isso implica que, para os níveis atômicos que possuem paridade definida, os elementos de matriz deste operador são nulos, isto é $\langle a | d | a \rangle = \langle b | d | b \rangle = 0$, e

$$\hat{d} = d_{ab} \left| a \right\rangle \left\langle b \right| + d_{ba} \left| b \right\rangle \left\langle a \right|, \tag{3.16}$$

onde $d_{ab} = \langle a | d | b \rangle$ e $d_{ba} = \langle b | d | a \rangle$.

Partindo das equações (3.9), (3.15) e (3.16), podemos escrever - na base do átomo não perturbado - o Hamiltoniano de interação na aproximação de dipolo obtendo:

$$\hat{H}_{i} = -\frac{1}{2} \left[d_{ab} E_{0}^{*} e^{-i\omega t} |a\rangle \langle b| + d_{ba} E_{0}^{*} e^{-i\omega t} |b\rangle \langle a| \right] - \frac{1}{2} \left[d_{ab} E_{0} e^{i\omega t} |a\rangle \langle b| + d_{ba} E_{0} e^{i\omega t} |b\rangle \langle a| \right],$$
(3.17)

onde o operador $|a\rangle \langle b|$ leva o átomo para o seu nível excitado e $|b\rangle \langle a|$ retira o átomo do nível excitado levando-o ao nível fundamental. O primeiro operador tem uma evolução livre proporcional a $e^{i\omega_{ab}t}$ e o segundo a $e^{-i\omega_{ab}t}$. Na maioria dos casos de interesse, a radiação possui frequência próxima da ressonância atômica (em nosso sistema de dois níveis, ω_{ab}) de forma que a magnitude da dessintonia é pequena, isto é, $|\omega_{ab} - \omega| << \omega_{ab}$ e, portanto, $\omega_{ab} + \omega \sim 2\omega_{ab}$. Desta maneira, fazendo uma análise da equação (3.17), observa-se que o segundo e o terceiro termos à direita do sinal de igualdade oscilam com uma frequência igual a $2\omega_{ab}$, isto é, tais termos oscilam rapidamente e, portanto, podemos desprezá-los, adotando a aproximação de onda girante (RWA, sigla em inglês para *"Rotating Wave Approximation"*). Nessa aproximação o Hamiltoniano de interação que mistura os dois estados não perturbados de energia E_a e E_b pode ser reescrito mantendo-se apenas os termos de oscilação lenta, isto é,

$$\hat{H}_{i,RWA}(t) = -\frac{1}{2} \left[d_{ab} E_0^* e^{-i\omega t} \left| a \right\rangle \left\langle b \right| + d_{ba} E_0 e^{i\omega t} \left| b \right\rangle \left\langle a \right| \right]$$
(3.18)

e o Hamiltoniano total do sistema interagente fica dado por:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{i,RWA}(t), \tag{3.19}$$

onde a parte do Hamiltoniano que depende do tempo descreve a interação com o campo elétrico oscilante que perturba as auto-funções de \hat{H}_0 .

A evolução temporal para o sistema interagente pode ser obtida aplicando-se a equação de Liouville ou von Neumann dada por (2.26) que nada mais é do que uma equação de movimento para a matriz densidade, e é responsável pela evolução temporal do sistema interagente sem considerar os decaimentos de coerência e população devido a colisões e decaimentos espontâneos. A inserção desses efeitos sobre o sistema pode ser feita de forma fenomenológica levando à seguinte equação para a evolução do sistema:

$$\frac{d}{dt} \stackrel{\rho}{=} -\frac{i}{\hbar} [\underline{\underline{H}}, \underline{\rho}] - \frac{1}{2} \{\underline{\underline{\Lambda}}, \underline{\underline{\rho}}\} + \underline{\underline{B}}, \qquad (3.20)$$

onde o sublinhado duplo representa grandezas matriciais. O segundo termo do lado direito da equação acima descreve os decaimentos de população que ocorrem entre os níveis $|a\rangle e |b\rangle$, onde os elementos da matriz $\underline{\Lambda}$ são dados por:

$$\Lambda_{nm} = \left\langle n \left| \underline{\hat{\Lambda}} \right| m \right\rangle = \gamma_n \delta_{mn} \tag{3.21}$$

ou, na base no átomo não perturbado e na forma matricial,

$$\underline{\underline{\Lambda}} = \begin{pmatrix} \gamma & 0\\ 0 & 0 \end{pmatrix}. \tag{3.22}$$

Essa matriz reflete o fato de que a população do nível excitado ($|a\rangle$) decai com uma taxa $\Lambda_{aa} = \gamma$ para o nível fundamental ($|b\rangle$).

O terceiro termo à direita da equação (3.20) está associado a efeitos de aumento da população de um nível atômico em detrimento da de outro. No caso do sistema de dois níveis da figura 3.1, esse termo diz que a população do nível atômico fundamental ($|b\rangle$) é aumentada devido a uma diminuição da população do nível excitado ($|a\rangle$). Assim, como esse termo está associado a um aumento ou a uma diminuição de população de um dado nível atômico, $B_{ij} = 0$ para $i \neq j$, caso contrário temos:

$$B_{ii} = \sum_{i \neq k} A_{ik} |i\rangle \langle k |\rho| k\rangle \langle i|, \qquad (3.23)$$

onde A_{ik} são os elementos de matriz do operador \hat{A} que, na forma matricial, é dado por:

$$\underline{\underline{A}} = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ \gamma & 0 \end{pmatrix}. \tag{3.24}$$

Dessa forma, a matriz \underline{B} que aparece na equação (3.20) fica:

$$\underline{\underline{B}} = \gamma \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & \rho_{aa} \end{pmatrix}, \tag{3.25}$$

cuja interpretação é a de que a população do nível fundamental é aumentada devido à diminuição da população do nível excitado.

Substituindo (3.12), (3.22) e (3.25) na equação (3.20) obtemos as equações que descrevem as taxas de variação temporal para cada um dos elementos da matriz densidade, tais equações são:

$$\dot{\rho}_{aa} = \frac{i\Omega^*}{2} e^{-i\omega t} \rho_{ba} - \frac{i\Omega}{2} e^{i\omega t} \rho_{ab} - \gamma \rho_{aa} \quad ; \tag{3.26}$$

$$\dot{\rho}_{bb} = \frac{i\Omega}{2} e^{i\omega t} \rho_{ab} - \frac{i\Omega^*}{2} e^{-i\omega t} \rho_{ba} + \gamma \rho_{aa} \quad ; \tag{3.27}$$

$$\dot{\rho}_{ab} = \frac{i\Omega^*}{2} e^{-i\omega t} (\rho_{bb} - \rho_{aa}) - i\omega_{ab}\rho_{ab} - \frac{\gamma}{2}\rho_{ab}$$
(3.28)

e

$$\dot{\rho}_{ba} = \dot{\rho}_{ab}^* \quad , \tag{3.29}$$

onde $\Omega = 2dE/\hbar$ representa a frequência de Rabi² associada à transição atômica. Embora constituam um sistema de equações diferenciais lineares, as últimas quatro equações diferenciais apresentam coeficientes que dependem do tempo. É, então, desejável que procuremos reescrevê-las através de uma troca de variáveis no intuito de torná-las equações diferenciais lineares com coeficientes constantes. Isso pode ser feito introduzindo as chamadas variáveis lentas σ_{ij} que se relacionam com as variáveis atuais ρ_{ij} da seguinte maneira:

$$\rho_{aa} = \sigma_{aa}; \tag{3.30}$$

$$\rho_{bb} = \sigma_{bb}; \tag{3.31}$$

$$\rho_{ab} = \sigma_{ab} e^{-i\omega t} \tag{3.32}$$

e

$$\sigma_{ba} = \sigma_{ab}^* \quad . \tag{3.33}$$

²Esta frequência está relacionada às oscilações que são consequências da excitação coerente de um átomo por um campo eletromagnético monocromático, ressonante com a transição atômica. Essas oscilações podem ser derivadas, por exemplo, através de um tratamento quântico do átomo, baseado na probabilidade de transição em função do tempo.

Como se pode notar, esta transformação não afeta as populações atômicas, alterando apenas as coerências. Tal troca de variáveis leva-nos ao seguinte sistema de equações diferenciais lineares com coeficientes constantes:

$$\dot{\sigma}_{aa} = \frac{i\Omega^*}{2}\sigma_{ba} - \frac{i\Omega}{2}\sigma_{ab} - \gamma\sigma_{aa} \quad ; \tag{3.34}$$

$$\dot{\sigma}_{bb} = \frac{i\Omega}{2}\sigma_{ab} - \frac{i\Omega^*}{2}\sigma_{ba} + \gamma\sigma_{aa} \quad ; \tag{3.35}$$

$$\dot{\sigma}_{ab} = \frac{i\Omega^*}{2}(\sigma_{bb} - \sigma_{aa}) - \Gamma_{ab}\sigma_{ab}$$
(3.36)

e

$$\dot{\sigma}_{ba} = \dot{\sigma}_{ab}^* \quad , \tag{3.37}$$

onde $\Gamma_{ab} = (\gamma/2 + i\delta)$ e $\delta = \omega - \omega_{ab}$ é a dessintonia entre o campo e a transição atômica. Este último sistema de equações também pode ser escrito na forma matricial como segue:

$$\underline{\dot{\sigma}} = \underline{M} \cdot \underline{\sigma} + \underline{\sigma_0} \quad , \tag{3.38}$$

de modo que toda a informação acerca da evolução do sistema está contida em \underline{M} , $\underline{\sigma}$ e $\underline{\sigma_0}$ e as características da matriz \underline{M} dependem do sistema em questão.

3.3.1 Solução estacionária para o sistema de 2 níveis

Para se estudar as características estacionárias do sistema de dois níveis ilustrado na figura 3.1 é conveniente se fazer uma segunda mudança de variáveis dada por:

$$u = \sigma_{ab} + \sigma_{ba} = 2Re[\sigma_{ab}]; \qquad (3.39)$$

$$v = -i(\sigma_{ab} - \sigma_{ba}) = -2Im[\sigma_{ab}]$$
(3.40)

e

$$w = \sigma_{aa} - \sigma_{bb} = 2\sigma_{aa} - 1. \tag{3.41}$$

Com a definição dessas novas variáveis mais as equações (3.32) e (3.33), a equação (3.16) pode ser reescrita como:

$$d = d_{ab}[ucos(\omega t) - vsen(\omega t)], \qquad (3.42)$$

com $d_{ab} = d_{ba}$. Isso mostra que u é uma variável que oscila em fase com o campo de excitação, sendo assim responsável pela dispersão causada pelo meio e v oscila em quadratura com campo, sendo responsável pela absorção do campo pelo meio atômico. Em outras palavras, como pode ser observado das equações (3.39) e (3.40), a absorção é proporcional à parte imaginária dos elementos não diagonais da matriz densidade enquanto que a parte real é proporcional à dispersão do meio.

Aplicando essa mudança de variáveis às equações (3.34)-(3.37), após um pouco de álgebra obtém-se:

$$\dot{u} = -\frac{\gamma}{2} u + \delta v \,, \tag{3.43}$$

$$\dot{v} = -\delta u - \frac{\gamma}{2} v - \Omega w \tag{3.44}$$

e

$$\dot{w} = \Omega v - \gamma w - \gamma \,. \tag{3.45}$$

A partir dessas novas equações diferenciais com coeficientes constantes, e de acordo com a equação matricial (3.38), temos que:

$$\underline{\underline{M}} = \begin{pmatrix} -\frac{\gamma}{2} & \delta & 0\\ -\delta & -\frac{\gamma}{2} & -\Omega\\ 0 & \Omega & -\gamma \end{pmatrix}$$
(3.46)

e

$$\underline{\sigma_0} = \begin{pmatrix} 0\\ 0\\ -\gamma \end{pmatrix} . \tag{3.47}$$

Para o caso em que $\gamma = 0$, a matriz mostrada no lado direito da equação (3.46) é exatamente aquela que surge quando o problema é tratado no formalismo do vetor de Bloch como discutido em [73].

A solução estacionária para u, $v \in w$ é obtida fazendo-se $\underline{\dot{\sigma}} = 0$ em (3.38) e, em seguida, resolvendo para $\underline{\sigma}$, isto é,

$$\underline{\sigma} = -\underline{M}^{-1} \cdot \underline{\sigma_0},\tag{3.48}$$

onde \underline{M}^{-1} representa a matriz inversa de \underline{M} que é dada por:

$$\underline{\underline{M}}^{-1} = \begin{pmatrix} -\frac{2\gamma^2 + 4\Omega^2}{\gamma R} & -\frac{4\delta}{R} & \frac{4\delta\Omega}{\gamma R} \\ \frac{4\delta}{R} & -\frac{2\gamma}{R} & \frac{2\Omega}{R} \\ \frac{4\delta\Omega}{\gamma R} & -\frac{2\Omega}{R} & -\frac{\gamma^2 + 4\Omega^2}{\gamma R} \end{pmatrix},$$
(3.49)

com

$$R = \gamma^2 + 2\Omega^2 + 4\delta^2.$$
 (3.50)

Resolvendo o produto do lado direito da equação (3.48) chegamos às expressões estacionárias para a dispersão, absorção e inversão atômica para o sistema de dois níveis que são:

$$u = -2\delta \mathcal{L}(\delta); \tag{3.51}$$

$$v = \gamma \mathcal{L}(\delta) \tag{3.52}$$

e

$$w = 2\Omega \mathcal{L}(\delta) - 1, \qquad (3.53)$$

com

$$\mathcal{L}(\delta) = \frac{2\Omega}{\gamma^2 + 2\Omega^2 + 4\delta^2} \,. \tag{3.54}$$

A expressão para $\mathcal{L}(\delta)$ define o formato da linha de absorção (Lorentziana), cuja largura a meia altura é dada por:

$$\Delta\omega = \sqrt{\gamma^2 + 2\Omega^2}.\tag{3.55}$$

A figura 3.2 ilustra os resultados acima. Na condição de ressonância do campo com a transição atômica, a absorção [figura (a)] apresenta seu valor máximo enquanto que a dispersão do meio [figura (b)] possui sua maior taxa de variação (inclinação da curva). Já para grandes dessintonias do campo em relação à frequência (angular) da transição atômica, tanto a absorção quanto a dispersão apresentam valor nulo.

A figura 3.2a também mostra que o aumento de Ω (aumento da potência do campo de excitação) leva a um aumento na largura da linha de absorção de modo que, se desejamos observar uma curva de absorção com largura de linha natural, a intensidade do campo deve ser reduzida a um valor muito baixo. Ao não satisfazermos essa exigência obtemos uma linha mais larga que a natural devido à potência elevada do campo. Nessas condições temos um



Figura 3.2: Curvas de absorção (a) e dispersão (b), em unidades arbitrárias, versus a dessintonia para o sistema de 2 níveis excitado por um laser cw nas situações em que $\Omega = 0.1\gamma$ (linha preta) e $\Omega = 1.0\gamma$ (linha vermelha). Em ambas as figuras o resultado para $\Omega = 1.0\gamma$ está dividido por 3,4 para melhor visualização e comparação entre curvas com diferentes parâmetros.

alargamento por potência da linha de absorção, pois como se pode ver, a largura da linha de absorção (largura da linha à meia altura do ponto de máximo) é maior no caso em que Ω = 1,0 γ (linha vermelha) do que aquela apresentada no caso em que Ω = 0,1 γ (linha preta). Essa conclusão também pode ser obtida através de uma simples análise da equação (3.55).

3.3.2 Solução transitória para o sistema de 2 níveis

Até o momento apresentamos uma discussão da solução estacionária para o sistema de 2 níveis mostrado na figura 3.1. Uma vez que um dos objetivos deste trabalho é avaliar o comportamento transitório de alguns fenômenos da interação coerente entre matéria e radiação, é importante analisar alguns aspectos transitórios para este sistema de dois níveis e, para isso, seguiremos [74].

Com as equações de Bloch escritas de forma a possuir apenas coeficientes constantes como apresentadas nas equações (3.30)-(3.33), sua integração possui uma solução bastante geral. Ela é obtida através da soma de termos exponenciais da forma $e^{\lambda_i t}$ onde λ_i são os autovalores da matriz <u>M</u>, acrescida da solução estacionária (<u>x</u>_{est}) do problema, isto é,

$$\underline{x}(t) = \sum_{i} c_i \underline{L}_i e^{\lambda_i t} + \underline{x}_{est}, \qquad (3.56)$$

onde c_i são coeficientes determinados pelas condições iniciais e \underline{L}_i são os auto-vetores da matriz \underline{M} .

A análise dos autovalores de $\underline{\underline{M}}$ permite o conhecimento de uma grande parte das informações acerca do sistema interagente átomo-campo. Por exemplo, uma vez que a solução é constituída de uma soma de exponenciais cujos expoentes dependem dos λ_i 's, a parte real dos autovalores é que determina as taxas de decaimento das coerências e populações atômicas e, assim, o comportamento transitório associado a um dado auto-valor se manifesta em um tempo de interação dado por $\frac{1}{Re[\lambda_i]}$. Já a parte imaginária dos auto-valores define as frequências características do sistema, ou seja, está associada ao comportamento oscilatório dos decaimentos regidos por $Re[\lambda_i]$.

A obtenção das expressões para a absorção e a dispersão do meio através da equação (3.56) é um procedimento não muito simples devido ao processo de obtenção dos λ_i 's que são funções de δ , γ e Ω . Por esse motivo apresentamos a seguir as curvas obtidas a partir da solução das equações (3.43)-(3.45), determinadas através do software *Mathematica*, para diferentes parâmetros do sistema.

Podemos observar da figura 3.3a que para tempos curtos ocorrem oscilações, devidas à precessão do dipolo elétrico, tanto na curva de absorção quando na de dispersão. Com o evoluir do tempo tais oscilações desaparecem e para um tempo suficientemente grande o sistema atinge



Figura 3.3: Espectro de absorção (a) e de dispersão (b), em unidades arbitrárias, para o sistema atômico de dois níveis após três diferentes tempos de interação com o campo eletromagnético. Em ambas as figuras $\Omega = 0.1\gamma$ e $\Delta t = 1.0\gamma^{-1}$ (linha azul), $\Delta t = 2.0\gamma^{-1}$ (linha vermelha) e $\Delta t = 10\gamma^{-1}$ (linha preta).

seu estado estacionário com a linha de absorção apresentando seu formato Lorentziano característico como já mostrado na figura 3.2a (linha preta). Outra característica que se pode observar através da figura 3.3 (a) é a de que há uma relação entre a largura de linha ($\Delta \omega$) e o tempo de interação (Δt) que surge devido ao princípio da incerteza, isto é,

$$\Delta t \, \Delta \omega \ge 1. \tag{3.57}$$

Outra análise importante ainda no âmbito da situação transitória pode ser feita avaliandose a figura 3.4. Ela apresenta a absorção do campo pelo meio atômico em função do tempo para diferentes valores da dessintonia do campo com a transição atômica (δ) e da frequência de Rabi (Ω). Para o caso em que $\Omega \ll \gamma$ [figura (a)], se $\delta = 0,0$ a absorção segue um comportamento puramente exponencial até que o valor estacionário seja obtido. Isso se deve ao fato de, nessas condições, todos os autovalores de \underline{M} serem reais. Ainda nesse limite de intensidade do campo, mas com $\delta \neq 0$, existem auto-valores complexos. Sendo assim, a evolução temporal da absorção apresenta um comportamento oscilatório e, como já sabemos, o valor estacionário atingido é menor que aquele obtido no caso em que o campo é ressonante com a transição atômica. De uma forma geral, o valor estacionário da absorção é proporcional ao valor da dessintonia de modo que quanto mais afastado da ressonância o campo estiver, menor será o valor estacionário da absorção.

Para campos suficientemente intensos, mesmo que ressonantes com a transição atômica, a



Figura 3.4: Curvas de absorção do campo de excitação pelo sistema atômico de dois níveis, em unidades arbitrárias, em função do tempo de interação para duas diferentes intensidades do campo. Em (a) $\Omega = 0,1\gamma$, $\delta = 0$ (linha preta) e $\delta = 2\gamma$ (linha vermelha). Em (b) $\Omega = 10\gamma$ e $\delta = 0$.

evolução temporal da absorção apresenta comportamento oscilatório como pode ser observado na figura 3.4b devido ao fato de, nessa situação, \underline{M} apresentar pelo menos um auto-valor complexo. Devido a efeitos de saturação, a intensidade estacionária do sinal é menor que aquela observada para o caso de campos fracos ressonantes.

3.4 Átomo de três níveis e a transparência eletromagneticamente induzida

As primeiras medidas das alterações sofridas na absorção e dispersão do meio devido à interação não linear com campos ópticos foi realizada por Alzetta e colaboradores em 1976 [2]. Uma amostra de vapor de sódio foi excitada por meio de um laser cw de alta intensidade e submetida a um campo magnético não homogêneo. Ao longo da célula que continha o vapor observou-se ausência de fluorescência (linhas escuras) e esse efeito passou a ser chamado de *ressonância escura*.

Os resultados obtidos pelo grupo de Alzetta estão relacionados a um efeito posteriormente denominado aprisionamento coerente de população [75,76]. Nesse fenômeno coerente a população atômica é coerentemente bombeada para um novo estado atômico denominado *estado escuro* que não interage com o campo de excitação.

A transparência eletromagneticamente induzida é o fenômeno no qual um meio outrora opaco a um dado campo eletromagnético denominado campo de prova, devido à presença de um segundo campo com características específicas (campo de acoplamento), torna-se transparente ao primeiro. Os fundamentos da EIT foram propostos primeiramente por Kocharovskaya e Khanin em 1988 [12] e, independentemente, por Harris em 1989 [13].

Esse tipo de fenômeno é geralmente observado em sistemas atômicos de três níveis como os apresentados na figura 3.5. A situação em que o fenômeno da EIT pode ser observado é aquela na qual o campo de prova e o de acoplamento (com frequências de Rabi α e Ω , respectivamente) compartilham um nível atômico. O nível em comum determina a configuração do sistema de três níveis. Na figura 3.5a o nível compartilhado pelos dois campos envolvidos é o nível excitado e a configuração é denominada *lambda* (Λ), quando o nível em comum é o fundamental como mostrado na figura 3.5b, a configuração é denominada V e quando o nível



Figura 3.5: Configurações de um sistema de três níveis acoplado por um laser forte de frequência de Rabi Ω e investigado por um laser de prova fraco de frequência de Rabi α : (a) configuração Λ (lambda), (b) configuração V e (c) configuração cascata.

atômico comum é o intermediário, a configuração é dita cascata (figura 3.5c).

Nesta seção são exploradas algumas característica do sistema atômico de três níveis na configuração Λ (figura 3.5a) uma vez que é a configuração utilizada ao longo dos capítulos subsequentes desta tese. Também é possível observar o fenômeno de EIT nas configurações V [?] e cascata [?] porém não na definição estrita do fenômeno, devido ao fato de não ocorrer a formação de um estado escuro, embora se observe uma redução significativa na absorção.

O sistema atômico a ser discutido é o mostrado na figura 3.5a. Ele interage com dois campos eletromagnéticos clássicos e é fechado, de modo que a população é sempre conservada. Os níveis $|b\rangle$ e $|c\rangle$ são chamados de níveis fundamentais e $|a\rangle$ é o nível excitado. Os níveis $|b\rangle$ e $|a\rangle$ são acoplados pelo campo de prova de frequência de Rabi α enquanto que os níveis $|c\rangle$ e $|a\rangle$ estão acoplados através do campo de acoplamento cuja frequência de Rabi é Ω . Não há acoplamento entre os níveis fundamentais. Os níveis $|b\rangle$ e $|a\rangle$ estão separados em frequência (angular) por ω_{ab} enquanto que os níveis $|c\rangle$ e $|a\rangle$ estão separados por ω_{ac} .

A frequência (angular) dos feixes de acoplamento e prova são, respectivamente, $\omega_0 \in \omega$. Desta forma as dessintonias de cada um dos campos em relação à respectiva transição atômica são $\delta = \omega_{ab} - \omega$ (prova) e $\Delta = \omega_{ac} - \omega_0$ (acoplamento).

O Hamiltoniano para o átomo de três níveis na ausência dos campos de acoplamento e de

prova é:

$$\hat{H}_{0} = \hbar\omega_{a} \left| a \right\rangle \left\langle a \right| + \hbar\omega_{b} \left| b \right\rangle \left\langle b \right| + \hbar\omega_{c} \left| c \right\rangle \left\langle c \right| , \qquad (3.58)$$

onde ω_a , ω_b e ω_c são as frequências associadas às energias dos níveis $|a\rangle$, $|b\rangle$ e $|c\rangle$, respectivamente.

As amplitudes dos momentos de dipolo elétrico para as transições $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ e $|a\rangle \rightarrow |c\rangle$ são reais e obedecem a relação $d_{ab} = d_{ba}$ e $d_{ac} = d_{ca}$. Assim, na aproximação de dipolo elétrico e RWA o Hamiltoniano de interação, escrito na base do átomo não perturbado, fica:

$$\hat{H}_{i,RWA}(t) = -d_{ab} E_p \left(|a\rangle \langle b| + |b\rangle \langle a| \right) - d_{ac} E_c \left(|a\rangle \langle c| + |c\rangle \langle a| \right), \tag{3.59}$$

onde $E_p(E_c)$ é a amplitude do campo de prova(acoplamento).

O tratamento do sistema de três níveis será feito de maneira análoga àquela utilizada para descrever o sistema de dois níveis da seção anterior. As equações que descrevem a taxa de variação temporal dos elementos da matriz densidade são obtidas através da equação (3.20). Isso exige que as matrizes $\underline{\Lambda}$ [equação (3.22)] e \underline{A} [equação (3.24)] sejam reescritas de forma a englobarem os três níveis atômicos envolvidos, assim:

$$\underline{\underline{\Lambda}} = \begin{pmatrix} \gamma & 0 & 0 \\ 0 & \gamma_0 & 0 \\ 0 & 0 & \gamma_0 \end{pmatrix}$$
(3.60)

e

$$\underline{\underline{A}} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ \frac{\gamma}{2} & 0 & \gamma_0 \\ \frac{\gamma}{2} & \gamma_0 & 0 \end{pmatrix} .$$
(3.61)

O significado da matriz $\underline{\Lambda}$ é o de que a população do nível excitado decai a uma taxa igual a $\Lambda_{aa} = \gamma$ e as populações dos níveis fundamentais decaem a uma taxa $\Lambda_{bb} = \Lambda_{cc} = \gamma_0$. Já a partir do operador definido em (3.61), vemos que a população do nível $|b\rangle$ é aumentada a uma taxa $A_{ba} = \gamma/2$ devido a um decaimento da população do nível $|a\rangle$ o mesmo ocorrendo com a população do nível $|c\rangle$ a uma taxa $\Lambda_{ca} = \gamma/2$. Há ainda o aumento da população do nível $|b\rangle$ devido a uma diminuição daquela do nível $|c\rangle$ e vice versa, a uma taxa $A_{bc} = A_{cb} = \gamma_0$. No caso de átomos em movimento, devido a colisões e onde uma distribuição de velocidades deve ser assumida, γ_0 possui um valor significativo. No caso em que tratamos de átomos parados essa taxa apresenta valores desprezíveis em relação à γ . Embora nos próximos capítulos tratemos apenas da situação em que o átomo encontra-se parado, por questão de completeza, manteremos a taxa γ_0 no tratamento que daremos ao sistema de três níveis até o final desta seção.

Com essa nova matriz $\underline{\underline{A}}$ mais a equação (3.23) obtemos a nova matriz $\underline{\underline{B}}$ associada ao aumento da população de um nível em detrimento da de outro, isto é,

$$\underline{\underline{B}} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & \frac{\gamma}{2}\rho_{aa} + \gamma_0\rho_{bb} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{\gamma}{2}\rho_{aa} + \gamma_0\rho_{bb} \end{pmatrix}.$$
 (3.62)

A primeira linha desta última matriz é nula uma vez que somente os níveis $|b\rangle$ e $|c\rangle$ terão suas populações aumentadas devido a decaimentos espontâneos.

Os campos que interagem com o sistema atômico estão em fase e possuem amplitudes reais e constantes. Além disso, como trabalhamos na aproximação de dipolo, a estrutura espacial do campo não será levada em conta, assim:

$$E_c(t) = E_{c0}(e^{-i\,\omega_0\,t} + e^{i\,\omega_0\,t}) \tag{3.63}$$

e

$$E_p(t) = E_{p0}(e^{-i\,\omega\,t} + e^{i\,\omega\,t}). \tag{3.64}$$

Levando (3.58), (3.59), (3.60), (3.62), (3.63) e (3.64) na equação (3.20) obtemos as equações para as taxas de variação temporal dos elementos da matriz densidade que descreve o sistema de três níveis na configuração Λ interagindo com os campos de acoplamento (3.63) e de prova (3.64), a saber:

$$\dot{\rho}_{aa} = \frac{i \, d_{ab} E_p(t)}{\hbar} (\rho_{ba} - \rho_{ab}) + \frac{i \, d_{ac} E_c(t)}{\hbar} (\rho_{ca} - \rho_{ac}) - \gamma \rho_{aa} \,; \tag{3.65}$$

$$\dot{\rho}_{bb} = \frac{i \, d_{ab} E_p(t)}{\hbar} (\rho_{ab} - \rho_{ba}) + \frac{\gamma}{2} \rho_{aa} - \gamma_0 \rho_{bb} + \gamma_0 \rho_{cc} \,; \tag{3.66}$$

$$\dot{\rho}_{cc} = \frac{i \, d_{ac} E_c(t)}{\hbar} (\rho_{ac} - \rho_{ca}) + \frac{\gamma}{2} \rho_{aa} + \gamma_0 \rho_{bb} - \gamma_0 \rho_{cc} \,; \tag{3.67}$$

$$\dot{\rho}_{ab} = \frac{i\,d_{ab}E_p(t)}{\hbar}(\rho_{bb} - \rho_{aa}) + \frac{i\,d_{ac}E_c(t)}{\hbar}\rho_{cb} - i\omega_{ab}\rho_{ab} - (\frac{\gamma}{2} + \frac{\gamma_0}{2})\rho_{ab}\,,\tag{3.68}$$

$$\dot{\rho}_{ac} = \frac{i\,d_{ac}E_c(t)}{\hbar}(\rho_{cc} - \rho_{aa}) + \frac{i\,d_{ab}E_p(t)}{\hbar}\rho_{bc} - i\omega_{ac}\rho_{ac} - (\frac{\gamma}{2} + \frac{\gamma_0}{2})\rho_{ac} \tag{3.69}$$

e

$$\dot{\rho}_{cb} = \frac{i \, d_{ab} E_p(t)}{\hbar} \rho_{ca} + \frac{i \, d_{ac} E_c(t)}{\hbar} \rho_{ab} - i \omega_{cb} \rho_{cb} - \gamma_0 \rho_{cb} \,, \tag{3.70}$$

onde $\omega_{ab} = \omega_a - \omega_b$, $\omega_{cb} = \omega_c - \omega_b$ e $\omega_{ac} = \omega_a - \omega_c$ são as frequências de transição entre os respectivos níveis atômicos, $\rho_{ij} = \rho_{ji}^*$ para $i \neq j$ e $\rho_{aa} + \rho_{bb} + \rho_{cc} = 1$ uma vez que o sistema é fechado.

Como as equações (3.65)-(3.70) apresentam coeficientes dependentes do tempo, assim como no estudo do sistema de dois níveis, é conveniente fazer a troca das variáveis ρ_{ij} pelas variáveis lentas dadas por:

$$\rho_{ab} = \sigma_{ab} e^{-i\,\omega\,t}\,;\tag{3.71}$$

$$\rho_{ac} = \sigma_{ac} e^{-i\,\omega_0\,t}\,;\tag{3.72}$$

$$\rho_{cb} = \sigma_{cb} e^{-i\left(\omega - \omega_0\right)t} \tag{3.73}$$

e

$$\rho_{ii} = \sigma_{ii} \,. \tag{3.74}$$

Com essa mudança de variáveis, obtemos:

$$\dot{\sigma}_{aa} = \frac{i\alpha}{2}(\sigma_{ba} - \sigma_{ab}) + \frac{i\Omega}{2}(\sigma_{ca} - \sigma_{ac}) - \gamma\sigma_{aa}; \qquad (3.75)$$

$$\dot{\sigma}_{bb} = \frac{i\alpha}{2}(\sigma_{ab} - \sigma_{ba}) + \frac{\gamma}{2}\sigma_{aa} - \gamma_0\sigma_{bb} + \gamma_0\sigma_{cc}; \qquad (3.76)$$

$$\dot{\sigma}_{cc} = \frac{i\Omega}{2}(\sigma_{ac} - \sigma_{ca}) + \frac{\gamma}{2}\sigma_{aa} + \gamma_0 \sigma_{bb} - \gamma_0 \sigma_{cc}; \qquad (3.77)$$

$$\dot{\sigma}_{ab} = -\Gamma_{ab}\sigma_{ab} + \frac{i\alpha}{2}(\sigma_{bb} - \sigma_{aa}) + \frac{i\Omega}{2}\sigma_{cb}; \qquad (3.78)$$

$$\dot{\sigma}_{ac} = -\Gamma_{ac}\sigma_{ac} + \frac{i\Omega}{2}(\sigma_{cc} - \sigma_{aa}) + \frac{i\alpha}{2}\sigma_{bc}$$
(3.79)

e

$$\dot{\sigma}_{cb} = -\Gamma_{cb}\sigma_{cb} - \frac{i\alpha}{2}\sigma_{ca} + \frac{i\Omega}{2}\sigma_{ab}, \qquad (3.80)$$

com as frequências de Rabi dos campos de acoplamento e prova dadas, respectivamente, por $\Omega = 2d_{ac}E_{c0}/\hbar \text{ e } \alpha = 2d_{ab}E_{p0}/\hbar \text{ e onde } \Gamma_{ab} = i\delta + \gamma/2 + \gamma_0/2, \Gamma_{ac} = i\Delta + \gamma/2 + \gamma_0/2 \text{ e}$ $\Gamma_{cb} = i(\delta - \Delta).$

3.4.1 Solução estacionária para o sistema de 3 níveis

O sistema de equações para os $\dot{\sigma}_{ij}$'s descrevem a evolução temporal do sistema interagente átomo-campo. O objetivo a partir de agora é determinar a coerência entre os níveis $|a\rangle e |b\rangle$, isto é, σ_{ab} no regime estacionário ($\dot{\sigma}_{ij} = 0$). As partes real e imaginária desta coerência, respectivamente, estão diretamente relacionadas à dispersão e à absorção do campo pelo átomo.

O tratamento que faremos a seguir considera que o campo de prova é suficientemente fraco de forma a não causar variações significativas nas populações atômicas (tratamento perturbativo). Assim, como apenas o campo de acoplamento influenciará na dinâmica das populações atômicas, consideremos primeiramente o caso em que o campo de prova não está presente, mantendo apenas o campo de acoplamento, e calculemos as populações atômicas no estado estacionário. Fazendo $\dot{\rho}_{ij} = 0$ e $\alpha = 0$ nas equações (3.75)-(3.80), temos:

$$0 = -\frac{i\Omega}{2} \left(\rho_{ac} - \rho_{ca}\right) - \gamma \sigma_{aa}^{0}; \qquad (3.81)$$

$$0 = \frac{\gamma}{2} \sigma_{aa}^{0} - \gamma_0 \sigma_{bb}^{0} + \gamma_0 \sigma_{cc}^{0}; \qquad (3.82)$$

$$0 = \frac{i\Omega}{2} \left(\rho_{ac} - \rho_{ca} \right) + \frac{\gamma}{2} \sigma_{aa}^{0} + \gamma_0 \sigma_{bb}^{0} - \gamma_0 \sigma_{cc}^{0};$$
(3.83)

$$0 = -\Gamma_{ab} \,\sigma_{ab} + \frac{i\Omega}{2} \,\sigma_{cb} \,; \tag{3.84}$$

$$0 = -\Gamma_{ca}\,\sigma_{ca} + \frac{i\Omega}{2}(\sigma_{cc}^0 - \sigma_{aa}^0) \tag{3.85}$$

e

$$0 = -\Gamma_{cb} \,\sigma_{cb} + \frac{i\Omega}{2} \rho_{ab} \,. \tag{3.86}$$

Resolvendo o último sistema de equações obtemos para σ_{aa}^0 , σ_{bb}^0 e σ_{cc}^0 :

$$\sigma_{aa}^{0} = \frac{2\gamma_0 \,\gamma_{ac} \,\Omega^2}{\gamma_{ac} \,\Omega^2 \left(6\gamma_0 + \gamma\right) + 8\gamma \,\gamma_0 \,|\Gamma_{ac}|^2} \,; \tag{3.87}$$

$$\sigma_{bb}^{0} = \left[1 + \frac{2\gamma |\Gamma_{ac}|^2}{\Omega^2 \gamma_{ac}} + \frac{\gamma}{2\gamma_0}\right] \sigma_{aa}^{0}$$
(3.88)

e

$$\sigma_{cc}^{0} = \left[1 + \frac{2\gamma \left|\Gamma_{ac}\right|^{2}}{\Omega^{2} \gamma_{ac}}\right] \sigma_{aa}^{0} , \qquad (3.89)$$

onde $\gamma_{ac} = \gamma_0/2 + \gamma/2$ e, da conservação de população, $\sigma_{aa}^0 + \sigma_{bb}^0 + \sigma_{cc}^0 = 1$.

O próximo passo é considerar a situação em que ambos os campos estão ligados. Como estamos trabalhando no regime perturbativo, ou seja, o campo de prova é fraco, as populações atômicas, mesmo na presença deste campo, apresentarão o mesmo valor obtido na análise anterior onde somente o campo de acoplamento estava ligado. Desta forma, as equações para as coerências e populações, no estado estacionário, ficam:

$$0 = -\frac{i\alpha}{2} \left(\sigma_{ab} - \sigma_{ba}\right) - \frac{i\Omega}{2} \left(\sigma_{ac} - \sigma_{ca}\right) - \gamma \sigma_{aa}^{0}; \qquad (3.90)$$

$$0 = \frac{\gamma}{2} \sigma_{aa}^{0} - \gamma_{0} \sigma_{bb}^{0} + \gamma_{0} \sigma_{cc}^{0} + \frac{i\alpha}{2} (\sigma_{ab} - \sigma_{ba}); \qquad (3.91)$$

$$0 = \frac{i\Omega}{2} (\sigma_{ac} - \sigma_{ca}) + \frac{\gamma}{2} \sigma_{aa}^{0} + \gamma_0 \sigma_{bb}^{0} - \gamma_0 \sigma_{cc}^{0}; \qquad (3.92)$$

$$0 = -\Gamma_{ab} \sigma_{ab} + \frac{i\Omega}{2} \sigma_{cb} - \frac{i\Omega}{2} \left(\sigma_{aa}^0 - \sigma_{bb}^0\right); \qquad (3.93)$$

$$0 = -\Gamma_{ca}\,\sigma_{ca} + \frac{i\Omega}{2}(\sigma_{cc}^0 - \sigma_{aa}^0) + \frac{i\alpha}{2}\,\sigma_{ac}$$
(3.94)

e

$$0 = -\Gamma_{cb}\,\sigma_{cb} + \frac{i\Omega}{2}\sigma_{ab} - \frac{i\alpha}{2}\,\sigma_{ca}\,. \tag{3.95}$$

Com este último conjunto de equações lineares, finalmente chegamos à coerência entre os níveis $|a\rangle$ e $|b\rangle$ dada por:

$$\sigma_{ab} = -\frac{2i\alpha}{4\Gamma_{ab}\Gamma_{cb} + \Omega^2} \left[\Gamma_{cb} \left(\sigma_{aa}^0 - \sigma_{bb}^0 \right) - \frac{\Omega^2}{4\Gamma_{ac}} \left(\sigma_{aa}^0 - \sigma_{cc}^0 \right) \right] \,. \tag{3.96}$$

A figura 3.6 mostra como se comportam as partes real e imaginária de σ_{ab} proporcionais, respectivamente, à dispersão e absorção.

Especificamente para o caso em que o campo de acoplamento está desligado ($\Omega = 0$) a equação para a coerência σ_{ab} fica dada por:

$$\sigma_{ab} = \frac{\alpha}{4} \left[\frac{\delta}{\gamma_{ac}^2 + \delta^2} + i \frac{\gamma_{ac}}{\gamma_{ac}^2 + \delta^2} \right].$$
(3.97)

De acordo com a parte imaginária da equação (3.96) e como pode ser observada na figura 3.6a (linha preta), a linha de absorção apresenta um perfil Lorentziano, e seu valor máximo ocorre quando o campo de prova está em ressonância com a transição $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ ($\delta = 0$), na situação em que o campo de acoplamento não está presente ($\Omega = 0$). Já na presença do campo de acoplamento ressonante com a transição $|a\rangle \rightarrow |c\rangle$ é possível observar o cancelamento total da absorção, ou seja, o campo de prova que - na ausência do campo de acoplamento - era


Figura 3.6: Espectro de absorção do feixe de prova (a) e dispersão do meio atômico (b), em unidades arbitrárias, para três diferentes intensidades do feixe de acoplamento: $\Omega = 0$ (linha preta); $\Omega = 0,5\gamma$ (linha vermelha) e $\Omega = 10,0\gamma$ (linha azul). Tanto no gráfico (a) quanto no gráfico (b) as curvas para o caso em que $\Omega = 0$ estão multiplicadas por 2.

absorvido pelo meio atômico agora experimenta um meio transparente, deixando de ser absorvido, e a transparência eletromagneticamente induzida é obtida.

O campo de acoplamento forte causa um desdobramento tanto do nível excitado quanto do nível fundamental $|c\rangle$ devido ao deslocamento Stark como ilustrado na figura 3.7, levando o átomo a uma configuração denominada *configuração do átomo vestido*.

Quando a intensidade do campo de acoplamento for tal que a separação entre os níveis vestidos de $|a\rangle$ for menor que a largura de linha ($\Omega < \gamma$), isto é, a separação em frequência entre os níveis $|a_1\rangle$ e $|a_2\rangle$ for menor que a taxa de decaimento do nível excitado não-vestido $(|a\rangle)$ para os fundamentais, o feixe de prova experimentará dois caminhos indistinguíveis para a transição $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$. Nessa situação ocorre o surgimento de uma interferência destrutiva entre os dois caminhos possíveis e a absorção do campo de prova pode ser completamente cancelada. Essa interferência destrutiva é máxima quando o campo de prova é colocado em ressonância com a transição $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ e diminui conforme sua frequência se aproxima da frequência de ressonância entre o nível fundamental $|b\rangle$ e um dos níveis excitados vestidos, isto é, $|a_1\rangle$ ou $|a_2\rangle$, quando a máxima absorção volta a ocorrer. Para valores de dessintonia do campo de prova que estão além da ressonância entre o nível fundamental $|b\rangle$ e diminui a do campo de prova de dessintonia do campo de prova que estão além da ressonância entre o nível fundamental $|b\rangle$ e um dos níveis excitados vestidos, isto é, $|a_1\rangle$ ou $|a_2\rangle$, quando a máxima absorção volta a ocorrer. Para valores de dessintonia do campo de prova que estão além da ressonância entre o nível fundamental $|b\rangle$ e ma que a frequência de compo de prova que estão além da ressonância entre o nível fundamental $|b\rangle$ e no nível fundamental $|b\rangle$ e $|a_1\rangle$ ou $|a_2\rangle$ a absorção começa a diminuir até desaparecer por completo (situação em que a frequência do campo de



Figura 3.7: Configuração do átomo vestido para o sistema de 3 níveis na configuração Λ . O detalhe mostra a separação Ω entre os dois novos níveis gerados ($|a_1\rangle \in |a_2\rangle$) devido ao deslocamento Stark induzido pelo campo de acoplamento (não mostrado na figura).

prova é muito afastada das duas possíveis transições de ressonância com o átomo vestido).

Já para o caso em que o campo de acoplamento leva a uma separação muito grande entre os novos níveis excitados, isto é $\Omega > \gamma$, são observados os dubletos de Autler-Townes [77]. Nessa situação o campo de prova não experimenta dois caminhos indistinguíveis como antes. Assim, neste regime, a diminuição na absorção do campo de prova deve-se apenas ao deslocamento Stark causado pelo campo de acoplamento forte. É importante ressaltar que nesta condição a diminuição na absorção no campo de prova não deve mais ser classificada como efeito de EIT uma vez que a interferência quântica - que define a EIT - deixa de ocorrer.

Outra propriedade importante a ser considerada é aquela que surge quando olhamos para a parte real de σ_{ab} e que está plotada na figura 3.6b. Nela vemos que na presença de um campo de acoplamento com intensidade tal que a separação entre os níveis desdobrados $|a_1\rangle$ ou $|a_2\rangle$ é menor que a largura de linha ($\Omega = 0.5\gamma$ linha vermelha), a inclinação da curva de dispersão em torno de $\delta = 0$ é, em módulo, muito maior quando comparada àquela onde o campo de acoplamento não está presente, linha preta).

A importância dessa propriedade reside no fato de que a velocidade de grupo de um pulso de luz em um meio atômico estendido ser inversamente proporcional à taxa de variação da dispersão do meio. Isso implica que uma elevada taxa de variação da dispersão em relação à frequência do campo leva a velocidades de propagação extremamente baixas sem que ocorra praticamente nenhuma absorção. Até o momento a menor velocidade de grupo registrada na literatura é de 17 m/s e deve-se ao grupo de L. V. Hau [17]. Velocidades da ordem de 90 m/s já foram observadas em amostras de vapor atômico de rubídio [78].

Em meios onde a redução da velocidade de um pulso é observada também é possível armazenar luz e, consequentemente, a informação nela contida como foi observado por Liu e colegas [18]. Nesse trabalho os autores demonstraram experimentalmente que informação óptica coerente pode ser armazenada em um meio atômico e, posteriormente, reobtida utilizando o efeito de EIT em uma nuvem de átomos de Na, devidamente resfriada e magneticamente aprisionada. Um protocolo de memória quântica também já foi experimentalmente obtido em 2004 por Julsgaard e colaboradores [79].

3.4.2 Solução transitória para o sistema de 3 níveis

Existem diversos trabalhos, tanto teórico como experimental [74, 80–82] sobre o comportamento transitório da EIT. Li e Xiao [80] estudaram o comportamento transitório da EIT, na configuração cascata, analisando o quão rápido o meio atômico se torna transparente ao campo de prova a partir do instante em que o campo de acoplamento é ligado. Eles verificaram que o tempo de resposta no qual o meio se torna transparente é limitado pela frequência de Rabi do campo de acoplamento. Tal resultado mostra que a passagem da condição de meio absorvedor para um meio transparente ocorre muito rapidamente, tornando um meio na condição de EIT útil em aplicações que envolvem, por exemplo, chaveamento óptico. Chen e colaboradores [81] chegaram à mesma conclusão que Li e Xiao, porém explorando um sistema de três níveis na configuração Λ .

Greentree e colegas [82] também estudaram, teórica e experimentalmente, o comportamento transitório da EIT. O experimento foi realizado em uma armadilha magneto-óptica contendo ⁸⁷Rb. O grupo observou diferentes propriedades transitórias tanto durante o intervalo de tempo logo após ligar o campo de acoplamento assim como durante o tempo imediatamente após o desligamento de tal campo. Os resultados obtidos são úteis, por exemplo, no estudo e interpretação da dinâmica de formação de destruição dos estados atômicos vestidos. Valente e colaboradores [74] também investigaram teórica e experimentalmente a evolução temporal do espectro de absorção do campo de prova em um sistema de dois níveis degenerado. Nesse trabalho fizeram um estudo comparativo entre as dinâmicas da formação da EIT e da absorção eletromagneticamente induzida (EIA, sigla em inglês para "*Electromagnetically Induced Absorp-tion*").

Nesta seção, seguindo novamente [74], apresentamos - de forma breve - uma solução analítica para tal problema. A solução analítica exata do conjunto de equações diferenciais (3.75)-(3.80) é bastante complicada devido à elevada quantidade de equações acopladas envolvidas. A fim de obter uma solução analítica dependente do tempo para a absorção do campo e a dispersão do meio, utilizaremos novamente uma abordagem perturbativa em relação ao campo de prova. A aproximação a ser utilizada é de primeira ordem em α de modo que a solução geral fica dada por:

$$\sigma(t) = \sigma^{(0)} + \sigma^{(1)} , \qquad (3.98)$$

onde $\sigma^{(0)}$ é a solução de ordem zero em α e $\sigma^{(1)}$ é a de primeira ordem.

Como o campo de prova é bastante fraco, o que equivale a dizer que $\Omega >> \alpha$, toda a população atômica é rapidamente transferida para o nível $|b\rangle$, assim:

$$\sigma_{bb}^{(0)} \approx 1 \tag{3.99}$$

e

$$\sigma_{aa}^{(0)} = \sigma_{cc}^{(0)} = \sigma_{ab}^{(0)} = \sigma_{ac}^{(0)} = \sigma_{cb}^{(0)} = 0.$$
(3.100)

Isto representa a solução estacionária do sistema no caso em que o campo de prova não está presente (aproximação de ordem zero em α). Logo equivale a dizer que o campo de acoplamento foi ligado em $t = -\infty$ e o campo de prova só foi acionado em t = 0. Com essas aproximações, as equações (3.78) e (3.80) se desacoplam das demais equações e ficam:

$$\dot{\sigma}_{ab}^{(1)} = -\Gamma_{ab}\sigma_{ab}^{(1)} + \frac{i\Omega}{2}\sigma_{cb}^{(1)} + \frac{i\alpha}{2}$$
(3.101)

e

$$\dot{\sigma}_{cb}^{(1)} = -\Gamma_{cb}\sigma_{cb}^{(1)} + \frac{i\Omega}{2}\sigma_{ab}^{(1)}, \qquad (3.102)$$

onde foram desprezados os termos do tipo $\alpha \sigma_{ij}^{(1)}$, pois são de ordem superior a 1 em α .

Analisando o primeiro termo à direita do sinal de igualdade na equação (3.101), vemos que a taxa de decaimento da coerência entre os níveis $|a\rangle$ e $|b\rangle$ é dada por $\gamma/2$ (pois consideramos o

átomo parado e, assim, $\Gamma_{ab} = i\delta + \gamma/2$) enquanto que a coerência entre os níveis fundamentais não apresenta um termo de decaimento (pois $\Gamma_{cb} = i\delta$). Desta forma, a coerência σ_{ab} atinge seu estado estacionário muito mais rapidamente que a coerência entre os níveis fundamentais. Uma vez que a coerência ótica atinge seu estado estacionário em um intervalo de tempo da ordem do tempo característico da coerência entre os níveis fundamentais, podemos utilizar a aproximação adiabática de modo que a evolução temporal de σ_{cb} ocorre com a coerência σ_{ab} já em seu estado estacionário, isto é, $\dot{\sigma}_{ab}^{(1)} \approx 0$. Assim, da equação (3.101), obtemos:

$$\sigma_{ab}^{(1)} = \frac{i}{2\Gamma_{ab}} \left(\alpha + \Omega \sigma_{cb}^{(1)} \right) \,. \tag{3.103}$$

Substituindo (3.103) em (3.102) obtemos a seguinte equação diferencial para $\sigma_{cb}^{(1)}$ que é dada por:

$$\dot{\sigma}_{cb}^{(1)} = -\left[\frac{4\Gamma_{ab}\Gamma_{cb} + \Omega^2}{4\Gamma_{ab}}\right]\sigma_{cb}^{(1)} - \frac{\Omega\alpha}{4\Gamma_{ab}},\tag{3.104}$$

cuja solução possui a forma:

$$\sigma_{cb}^{(1)} = \frac{\Omega \alpha}{\vartheta} \left[e^{-\frac{\vartheta}{4\Gamma_{ab}}t} - 1 \right], \qquad (3.105)$$

onde $\vartheta = 4\Gamma_{ab}\Gamma_{cb} + \Omega^2$. Substituindo (3.105) em (3.103) obtemos a forma final para a expressão de σ_{ab} em função do tempo e da dessintonia do campo de prova dada por:

$$\sigma_{ab}^{(1)} = \frac{i\,\alpha}{2\Gamma_{ab}} \left[1 + \frac{\Omega^2}{\kappa} \left(e^{-\frac{\vartheta}{4\Gamma_{ab}}t} - 1 \right) \right] \,. \tag{3.106}$$

A figura 3.8 mostra as curvas para a absorção e dispersão para diferentes tempos de interação entre átomo e campo. Assim como observado na figura 3.3 para o sistema de dois níveis, para tempos curtos - além do fato de a janela de transparência não estar completamente formada - ambos os espectros apresentam oscilações que diminuem à medida que o tempo de interação aumenta. Para tempos suficientemente longos, o estado estacionário é atingido e tais oscilações desaparecem.

3.5 EIT com pulsos ultracurtos

A transparência eletromagneticamente induzida também têm sido investigada com campos pulsados curtos [83,84] e ultracurtos [85,86]. Tais investigações tiveram como ponto de partida um trabalho teórico feito, em 1986, por Kocharovskaya e Khanin no qual mostraram que um



Figura 3.8: Curvas de absorção (a) e dispersão (b), em unidades arbitrárias, versus a dessintonia do campo de prova para o sistema de 3 níveis na configuração Λ para três diferentes tempos de interação: $t = 10\gamma^{-1}$ (linha azul); $t = 50\gamma^{-1}$ (linha vermelha) e $t = 200\gamma^{-1}$ (linha preta). Em ambas as curvas $\Omega = 0.5\gamma$.

trem de pulsos ultracurtos pode levar ao aprisionamento coerente de população quando interagindo com um sistema de três níveis na configuração Λ [6]. Eles mostraram, no regime estacionário, que se a taxa de repetição dos pulsos coincide com um subharmônico da frequência de separação entre os níveis atômicos fundamentais, um trem contendo pulsos de intensidade suficientemente grande pode causar a sobreposição coerente entre tais níveis do átomo, levando ao surgimento de um estado denominado "estado escuro". A população atômica é então transferida para esse novo estado, deixando de interagir com o campo, ou seja, a resposta óptica do meio muda completamente e observa-se, por exemplo, uma redução no sinal de absorção do campo de prova.

Um trabalho desenvolvido em 2005 por Sautenkov e colaboradores [87] estudou experimentalmente a propagação de um trem de pulsos ópticos produzidos por um laser de diodo *modelocked* em uma amostra de vapor de rubídio 85. Eles observaram o fenômeno de EIT quando a taxa de repetição dos pulsos coincidia com um subharmônico da separação hiperfina entre os níveis fundamentais como previsto teoricamente por Kocharovskaya. A figura 3.9a mostra uma representação esquemática (reprodução) do sistema estudado por Sautenkov. Trata-se de um sistema de três níveis na configuração Λ excitado por um trem de pulsos ultracurtos.

A figura 3.9b apresenta o resultado obtido pelo grupo. Ela mostra a transmissão do campo pulsado em função da taxa de repetição dos pulsos que é varrida em torno de 506 MHz. Este



Figura 3.9: Em (a) é mostrada um representação esquemática dos níveis atômicos do sistema de três níveis (⁸⁵Rb) interagindo com um trem de pulsos ultracurtos. (b) apresenta a curva de transmissão do campo pulsado, em unidades arbitrárias, versus a taxa de repetição dos pulsos ultracurtos. A taxa de repetição varia em torno de 506 MHz que é um sexto da separação hiperfina entre os níveis atômicos fundamentais. Reproduzido de [87].

valor é igual a um sexto da separação hiperfina entre os níveis atômicos fundamentais do átomo de rubídio 85. Ainda em relação à figura 3.9b, a curva indicada por b_1 apresenta a ressonância de EIT para o caso em que a potência do campo é igual a 0,2 mW. No intuito de reduzir os efeitos da potência do campo sobre a largura do sinal de EIT (alargamento por potência), o grupo reduziu a potência do campo para um valor igual a 0,05 mW e o resultado é apresentado na curva indicada por b_2 na figura 3.9b. Para mostrar a pequena diferença entre os sinais obtidos com as diferentes potências do campo, as amplitudes do sinal de transmissão foram normalizadas. Com isso o grupo concluiu estar realmente trabalhando no regime de baixa potência e o pequeno alargamento observado foi atribuído, principalmente, ao tempo de interação dos átomos com o campo pulsado.

Tanto em b_1 quanto em b_2 , podemos observar que quando a taxa de repetição dos pulsos coincide com um subharmônico da separação hiperfina dos níveis atômicos fundamentais (neste caso um sexto desse valor), o sinal de transmissão aumenta significativamente, indicando uma diminuição na absorção do campo pelo meio atômico. Nessa situação o trem de pulsos ultracurtos experimenta a transparência eletromagneticamente induzida.

Existem diversos outros estudos, tanto teóricos como experimentais, explorando a sobrepo-

sição coerente entre subníveis atômicos. Estudos experimentais têm sido realizados utilizandose Na [88] e Rb [89]. Brattke e colaboradores [89] observaram experimentalmente ressonância escura, com largura de linha inferior a 149 Hz, entre os níveis hiperfinos do rubídio utilizando um campo pulsado.

Do ponto de vista teórico, o aprisionamento coerente de população com um trem de pulsos ultracurtos já foi estudado também em um sistema de três níveis na configuração Λ onde o nível excitado foi substituído pelo contínuo [90].

3.6 Acúmulo coerente

Usualmente, níveis de energia em átomos possuem tempos de vida superiores a 10 ns enquanto que os períodos de repetição (intervalo de tempo entre dois pulsos consecutivos) dos lasers comumente utilizados são da ordem de 10 ns (100 MHz) ou menos. Isso faz com que efeitos de acúmulo de coerência e população sejam observados no meio atômico, pois antes que o decaimento da polarização atômica se dê por completo, outro pulso já excitará novamente a amostra. Dessa forma, a cada novo pulso o átomo ainda possuirá alguma população e coerência excitada em virtude do pulso anterior.

Temkin [91] realizou uma análise teórica do processo de excitação de um sistema de dois níveis através de uma sequência de pulsos ópticos mostrando que lasers pulsados podem ser utilizados no processo de bombeamento óptico de átomos. Vitanov e Knight [92] desenvolveram, na ausência de decaimentos, um tratamento analítico não perturbativo do processo de excitação do sistema de dois níveis interagindo com um trem de pulsos consecutivos e igualmente espaçados. Felinto e colaboradores [93] também obtiveram resultados teóricos analíticos para a interação de um trem de pulsos ultracurtos com um sistema de dois níveis. A situação explorada foi aquela em que o período de repetição dos pulsos é menor que o tempo de vida do nível excitado. Essa condição faz com que o átomo não tenha tempo suficiente para relaxar completamente entre um pulso e outro e, assim, observa-se o efeito de acúmulo de excitação pelo átomo. No campo das moléculas, Weiner e colaboradores [94] demonstraram o controle óptico do movimento de uma molécula através de um trem de pulsos de femtossegundos. Sequências de pulsos ultracurtos também já foram aplicados em excitação molecular multi-

fótons [95] e para se obter excitação seletiva de moléculas [96] dado que os modos do pente de frequências associado ao trem de pulsos são bastante estreitos, permitindo o acesso a transições específicas.

Os trabalhos citados no parágrafo anterior estudaram a interação coerente entre trens de pulsos ultracurtos com um átomo de dois níveis, porém existem vários outros que exploram sistemas de três níveis. Como exemplo podemos citar um trabalho desenvolvido por Stowe e colaboradores [62]. Nesse trabalho, utilizando um sistema de três níveis na configuração cascata, demonstraram experimentalmente o controle quântico coerente com alta resolução em átomos frios de Rb através da manipulação espectral da fase do pente de frequências associado a um trem de pulsos de femtossegundos. Observaram também a manifestação direta do processo de acúmulo coerente de excitação através da análise da resolução espectral em função do número de pulsos. Outro exemplo é trabalho feito por Marian e colegas [53] no qual fizeram um estudo espectroscópico de átomos de rubídio combinando as características de um trem de pulsos. Observaram tanto os efeitos de interferência assim como os de acúmulo coerente de excitação.

Também envolvendo um sistema de três níveis há outro trabalho desenvolvido por Felinto e colaboradores [97]. Nesse trabalho o grupo realizou um estudo teórico sobre os efeitos acumulativos em um sistema de três níveis na configuração cascata excitado por um trem de pulsos ultracurtos de femtossegundos. Os níveis fundamental, intermediário e excitado eram, respectivamente, $|1\rangle$, $|2\rangle$ e $|3\rangle$ e a largura de banda do pulso suficientemente grande para cobrir as transições $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ e $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$. A situação estudada foi aquela onde o tempo de relaxamento atômico é maior que o período de repetição do trem de pulsos ultracurtos e, assim, população e coerência podem se acumular no meio atômico.

A figura 3.10 mostra uma parte dos resultados obtidos por eles. Tanto na figura 3.10a assim como em 3.10b são apresentadas, em diferentes escalas, as populações dos níveis atômicos intermediário (ρ_{22}) e excitado (ρ_{33}). Em ambas as figuras os círculos abertos vem da solução iterativa utilizada pelos autores. Na figura 3.10a a linha contínua mostra o resultado obtido através da solução numérica das equações de Bloch para os elementos da matriz densidade. Como podemos observar, uma solução concorda muito bem com a outra.

As dinâmicas observadas para as populações do nível intermediário (ρ_{22}) e excitado (ρ_{33})



Figura 3.10: Evolução temporal das populações intermediária (ρ_{22}) e excitada (ρ_{33}) devido à interação do meio com um trem de pulsos ultracurtos ressonante com a transição $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$. As figuras (a) e (b) mostram, em diferentes escalas, a mesma evolução temporal onde os círculos abertos se referem à solução iterativa utilizada pelos autores. A linha contínua em (a) vem da integração direta das equações de Bloch e em (b), para melhor visualização, são mostrados apenas 1 de cada 3 pulsos. Reproduzido de [97].

ocorrem em diferentes escalas de tempo. Isso se deve à grande diferença do tempo de vida dos respectivos níveis atômicos. Mas, independente das diferentes dinâmicas dessas duas populações, após um número suficientemente grande de pulsos o estado estacionário é atingido por ambas.

Vemos então que o fato de o período de repetição dos pulsos ser menor que o tempo de vida do nível excitado permite que o efeito de acúmulo de coerência e população ocorra. Em outras palavras, no intervalo de tempo compreendido entre dois pulsos consecutivos, o meio atômico não relaxa por completo e tanto coerência como população vão se acumulando pulso a pulso.

Parte II

Contribuições

ACÚMULO COERENTE DE EXCITAÇÃO NA TRANSPARÊNCIA ELETROMAGNETICAMENTE INDUZIDA DE UM TREM DE PULSOS ULTRACURTOS

4.1 Introdução

A última seção do capítulo anterior discutimos algumas aplicações dos pulsos ultracurtos na observação de fenômenos atômicos coerentes. Outra aplicação de um trem de pulsos ultracurtos é no estudo transitório de fenômenos que ocorrem em uma escala de tempo muito curta de tal modo que não podem ser estudados sob a luz de campos contínuos. Um exemplo é a EIT, cuja a grande maioria dos estudos tem sido feitos no regime estacionário. Ao invés de utilizar um campo contínuo, se utilizarmos um trem de pulsos ultracurtos, é possível analisar o fenômeno de EIT do ponto de vista transitório, ou seja, podemos estudar experimentalmente a evolução temporal desse efeito e, assim, exercer maior controle sobre o mesmo.

Neste primeiro capítulo de nossas contribuições apresentamos um estudo teórico da dinâmica de um sistema de três níveis na configuração Λ , degenerado, e excitado por um trem de pulsos ultracurtos. Mostramos que os parâmetros do trem de pulsos (área de cada pulso, período de repetição e diferença de fase entre pulsos consecutivos) influenciam na dinâmica de formação da EIT. Mostramos ainda que o efeito de acúmulo coerente leva o meio atômico à condição de EIT devido ao surgimento da coerência entre os níveis fundamentais induzida pelo campo pulsado externo.

A motivação para o desenvolvimento dos estudos, cujos resultados são apresentados nesta tese, veio, principalmente, dos trabalhos desenvolvidos por Felinto e colaboradores [97] e por Sautenkov e colaboradores [87]. Como já discutido no capítulo anterior, este último observou experimentalmente a ressonância de EIT através da medida da transmissão do campo de prova, constituído de um trem de pulsos ultracurtos, através do meio atômico.

Diferentemente deste último trabalho, analisaremos diferentes variáveis atômicas tais como: coerência entre os níveis fundamentais, população do nível excitado, dentre outras. Embora quando se analisam tais variáveis atômicas seja usual utilizar o termo CPT, devido a [87], nos referiremos ao longo dos três capítulos de nossas contribuições, na maioria das vezes, ao termo EIT e não CPT.

4.2 Sistema físico e equações de Bloch

A figura 4.1 mostra uma representação esquemática do sistema físico interagente cuja dinâmica será discutida neste capítulo. O meio atômico é modelado através de um sistema de 3 níveis na configuração Λ degenerado. Inicialmente a população está igualmente distribuída entre os níveis fundamentais $|b\rangle \in |c\rangle$. O nível excitado $|a\rangle$ possui um tempo de vida dado por T_1 e decai a taxas iguais ($\Gamma = 1/2T_1$) para os níveis fundamentais.



Figura 4.1: Sistema de três níveis na configuração Λ , degenerado e excitado por um trem de pulsos ultracurtos com a população igualmente distribuída entre os níveis fundamentais (condição inicial). T é o período de repetição dos pulsos e T_1 é o tempo de vida da população do nível excitado.

Embora utilizemo-nos de um sistema de três níveis degenerado, os resultados que serão descritos a seguir também se aplicam a sistemas não degenerados como discutido em [6,87]. Para a situação não degenerada, como já citado anteriormente, há a exigência de que a taxa de repetição dos pulsos coincida com um subharmônico da frequência de separação entre os níveis atômicos fundamentais.

O estudo é feito do ponto de vista semi-clássico de forma que o trem de pulsos ultracurtos que interagirá com nosso sistema de três níveis é um campo clássico dado por:

$$E(t) = E_0 f(t) e^{-i\omega_L t} + c.c., (4.1)$$

na qual E_0 é uma amplitude real, f(t) é um envelope que varia lentamente com o tempo e contém informações sobre as características dos pulsos tais como sua forma, largura, etc e ω_L é a frequência central de cada um dos pulsos que constituem o trem.

A interação entre o sistema atômico e os pulsos ultracurtos é descrita pelo Hamiltoniano

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{int} + \hat{H}_{sp}, \tag{4.2}$$

onde

$$\hat{H}_0 = \hbar \omega_0 |a\rangle \langle a| \tag{4.3}$$

é o Hamiltoniano para o átomo livre e ω_0 é a frequência (angular) de ressonância entre qualquer um dos níveis fundamentais e o excitado;

$$\hat{H}_{int} = -dE(t)\left(|b\rangle\langle a| + |c\rangle\langle a|\right) + h.c.$$
(4.4)

representa a interação átomo-campo, onde assumimos que os elementos de matriz do momento de dipolo entre cada um dos níveis fundamentais e o nível excitado são iguais ($d = d_{ba} = d_{ca}$), reais e estão paralelamente alinhados com o vetor polarização do campo. Por fim,

$$\hat{H}_{sp} = -\frac{i\hbar}{T_1} |a\rangle \langle a| \tag{4.5}$$

foi adicionado fenomenologicamente para descrever os decaimentos espontâneos do nível excitado para os fundamentais uma vez que o sistema atômico é fechado.

Resolvendo nosso sistema na aproximação de onda girante (RWA), obtemos o seguinte conjunto de equações diferenciais de primeira ordem acopladas para os elementos da matriz densidade:

$$\dot{\rho}_{cc} = (1/2T_1)\rho_{aa} + 0.5[i\alpha^*(t)\rho_{ca} + c.c.];$$

$$\dot{\rho}_{aa} = -(1/T_1)\rho_{aa} + 0.5[i\alpha(t)(\rho_{ab} + \rho_{ac}) + c.c.];$$

$$\dot{\rho}_{ab} = -(1/2T_1)\rho_{ab} - 0.5i\alpha^*(t)(1 + \rho_{cb} - \rho_{cc} - 2\rho_{aa});$$

$$\dot{\rho}_{ac} = -(1/2T_1)\rho_{ac} + 0.5i\alpha^*(t)(\rho_{aa} - \rho_{cc} - \rho_{bc}) \mathbf{e}$$

$$\dot{\rho}_{bc} = -0.5i\alpha(t)\rho_{ac} + 0.5i\alpha^*(t)\rho_{ba},$$
(4.6)

onde $\alpha(t) = (2dE_0/\hbar)f_T(t)$ é a frequência de Rabi dependente do tempo. Os pulsos ultracurtos estão em ressonância com a transição atômica ($\omega_L = \omega_0$) e a população do nível fundamental $|b\rangle$ foi eliminada das equações (4.6) através da condição de normalização: $\rho_{aa} + \rho_{bb} + \rho_{cc} = 1$.

O envelope $f_T(t)$ para o trem de pulsos ultracurtos idênticos é dado por:

$$f_T(t) = \sum_{n=0}^{\infty} f(t - nT)e^{in\Delta\varphi},$$
(4.7)

na qual *T* é o período de repetição dos pulsos e $\Delta \varphi$ é a diferença de fase entre dois pulsos consecutivos [98]. Uma vez que utilizamos pulsos cuja largura temporal é muito menor que o período de repetição, não ocorre sobreposição entre pulsos consecutivos.

Estudamos o processo de acúmulo de excitação em função dos parâmetros do trem de pulsos a saber: período de repetição (*T*); diferença de fase entre pulsos consecutivos ($\Delta \varphi$) e a área de cada pulso individual (θ). Avaliamos como esses três diferentes parâmetros do trem de pulsos influenciam na dinâmica de formação da EIT.

Do ponto de vista experimental, nosso sistema se aplica, por exemplo, ao caso da excitação da transição $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{1/2}(D_1)$ do rubídio 87, cujo tempo de vida do nível excitado é de aproximadamente 28 ns, através de um laser Ti:Safira (*mode-locked*). Este laser fornece pulsos com períodos de repetição que vão tipicamente desde 1 ns até 13 ns. Assim, como o tempo entre pulsos consecutivos é menor que o tempo de vida do nível excitado ($T < \Gamma^{-1}$), população e coerência irão se acumular no meio a cada novo pulso, pois o mesmo não terá tempo suficiente para decair completamente entre dois pulsos.

Como a condição inicial do sistema atômico estudado é aquela na qual a população está igualmente distribuída entre os níveis fundamentais, temos que $\rho_{bb}(0) = \rho_{cc}(0) = 0,5$ e $\rho_{aa}(0) = 0$. Além disso não há coerência alguma no sistema, ou seja, $\rho_{ij}(0) = 0$ para $i \neq j$.

4.3 Método iterativo

Devido ao fato de trabalharmos com um campo pulsado, o sistema de equações diferenciais (4.6) apresenta coeficientes dependentes do tempo e uma solução através de um método numérico demandaria um tempo de processamento elevado. Esse problema torna-se um fator limitante principalmente quando se deseja estudar a situação de EIT onde, dependendo das características do trem de pulsos, se faz necessária uma grande quantidade de pulsos. Para contornarmos tal situação, seguimos Felinto e colegas [97] e desenvolvemos um método analíticoiterativo que nos permite fácil e rapidamente obter a solução para tal sistema de equações diferenciais. Este método exige que duas condições sejam assumidas:

- Os pulsos devem possuir área pequena de forma que cada pulso individual seja capaz de transferir apenas uma pequena parcela de coerência e população ao meio atômico.
- A excitação deve ocorrer no regime quasi-impulsivo, isto é, a largura temporal do pulso deve ser menor que qualquer tempo característico do sistema. Assim, durante a interação com o pulso, o sistema atômico não sofre qualquer evolução temporal significativa.

A partir dessas condições, as equações diferenciais (4.6) podem ser diretamente integradas e, assim, obtemos um conjunto de equações para as populações e coerências atômicas que podem ser resolvidas iterativamente para cada novo pulso que atinge o meio. Integrando as equações (4.6) e eliminando os termos de ordem igual ou superior a θ^3 obtemos:

$$\begin{split} \rho_{cc}^{(n+1)} &= \rho_{cc}^{(n)} + \frac{1}{2} \rho_{aa}^{(n)} + \frac{1}{2} [ie^{in\Delta\varphi} (\rho_{ab}^{(n)} - \rho_{ac}^{(n)}) + c.c.]\theta + [1 + \frac{3}{2} (\rho_{bc}^{(n)} + \rho_{cb}^{(n)}) - 4\rho_{aa}^{(n)} + \rho_{cc}^{(n)}]\theta^{2} \\ &- \frac{1}{2} \left\{ \rho_{aa}^{(n)} + [ie^{in\Delta\varphi} (\rho_{ab}^{(n)} + \rho_{ac}^{(n)}) + c.c.]\theta + 2[1 + \rho_{bc}^{(n)} + \rho_{cb}^{(n)} - 3\rho_{ba}^{(n)}]\theta^{2} \right\} e^{-T/T_{1}}, \\ \rho_{aa}^{(n+1)} &= \frac{1}{2} \left\{ \rho_{aa}^{(n)} + [ie^{in\Delta\varphi} (\rho_{ab}^{(n)} + \rho_{ac}^{(n)}) + c.c.]\theta + 2[1 + \rho_{bc}^{(n)} + \rho_{cb}^{(n)} - 3\rho_{ba}^{(n)}]\theta^{2} \right\} e^{-T/T_{1}}, \\ \rho_{ab}^{(n+1)} &= \left\{ \rho_{ab}^{(n)} + ie^{-in\Delta\varphi} [2\rho_{aa}^{(n)} + \rho_{cc}^{(n)} - \rho_{cb}^{(n)} - 1]\theta + \frac{1}{2} [3\rho_{ab}^{(n)} + \rho_{ca}^{(n)} - 2e^{-2in\Delta\varphi} (\rho_{ba}^{(n)} + \rho_{ba}^{(n)}) + \rho_{ca}^{(n)} \right] \theta^{2} \right\} e^{-T/2T_{1}}, \\ \rho_{ac}^{(n+1)} &= \left\{ \rho_{ac}^{(n)} + \frac{1}{2} ie^{-in\Delta\varphi} [\rho_{aa}^{(n)} - \rho_{cc}^{(n)} - \rho_{bc}^{(n)}]\theta + \frac{1}{8} [2e^{-2in\Delta\varphi} (\rho_{ba}^{(n)} + \rho_{ca}^{(n)}) - (\rho_{ab}^{(n)} + 3\rho_{ac}^{(n)})]\theta^{2} \right\} e^{-T/2T_{1}} e \\ \rho_{bc}^{(n+1)} &= \rho_{bc}^{(n)} + \frac{1}{2} i[e^{-in\Delta\varphi} \rho_{ba}^{(n)} - e^{in\Delta\varphi} \rho_{ca}^{(n)}]\theta + \frac{1}{8} [3\rho_{aa}^{(n)} - 2\rho_{bc}^{(n)} - 1]\theta^{2}. \end{split}$$

Assim, como podemos observar nas equações iterativas (4.8), a evolução temporal das populações e coerências atômicas dependem dos parâmetros descritos anteriormente. $\rho_{ij}^{(n)} e \rho_{ij}^{(n+1)}$ são os elementos de matriz antes da excitação do *n*-ésimo e (n + 1)-ésimo pulso, respectivamente, de forma que o estado atômico antes do (n+1)-ésimo pulso é determinado pelo estado atômico antes do *n*-ésimo pulso.

Aplicando as equações iterativas sucessivas vezes obtemos a evolução temporal do sistema atômico calculada em intervalos de tempo iguais ao período de repetição dos pulsos, o que torna o procedimento computacional muito mais rápido quando comparado à resolução numérica.

Para verificar a eficiência e a qualidade de nossa solução iterativa consideramos um trem de pulsos ultracurtos contendo apenas 10 pulsos, cada um deles com formato gaussiano dado por:

$$\alpha(t) = \frac{\theta}{\sigma} \exp[-\frac{\pi t^2}{\sigma^2}], \qquad (4.9)$$

onde θ é a área e σ é largura de cada pulso individual que constitui o trem. Fizemos uma comparação com a resolução numérica do sistema de equações (4.6) obtida através do método Runge-Kutta de 4^a ordem (RK4) e apresentamos o resultado na figura 4.2.

O gráfico da solução numérica (linha contínua na figura 4.2) corresponde à evolução da coerência entre os níveis fundamentais em função do tempo em unidades do período de repetição dos pulsos. Os degraus observados se devem justamente a isso, pois a duração do pulso é muito menor que o período de repetição dos mesmos. A solução iterativa (símbolos na figura 4.2) calcula os elementos da matriz densidade imediatamente antes da excitação por um dado pulso.

No caso em que $T = 0,50T_1$, dois pulsos excitam o meio atômico durante o tempo de vida do nível excitado e para $T = 0,10T_1$ o meio é excitado por dez pulsos no mesmo intervalo de tempo. Como se pode observar na figura 4.2, há uma excelente concordância entre o método iterativo e a solução numérica de modo que podemos, com segurança, utilizar nosso método e aumentar o número de pulsos de acordo com as necessidades de nosso estudo.



Figura 4.2: Coerência entre os níveis fundamentais (ρ_{bc}) calculada com a solução iterativa (símbolos) e numericamente (linha sólida) para 10 pulsos. O gráfico da solução numérica corresponde à evolução da coerência entre os níveis fundamentais em função do tempo em unidades do período de repetição dos pulsos. A área do pulso é $\theta = \pi/50$, sua largura é $\sigma = 10^{-3}T$ e a diferença de fase entre pulsos consecutivos é $\Delta \varphi = 0$.

4.4 Dinâmica do acúmulo de coerência e população

Agora, de posse das equações iterativas e sabendo que as mesmas nos levam - em um tempo de processamento várias ordens de grandeza menor - aos mesmos resultados que RK4, aumentamos o número de pulsos que excitam o meio e estudamos o comportamento transitório da coerência e da população atômica variando cada um dos três parâmetros de nosso interesse.

O primeiro parâmetro que avaliamos é o período de repetição do trem de pulsos ultracurtos (*T*). A figura 4.3 mostra o comportamento da coerência entre os níveis fundamentais para três diferentes valores de *T*. Como podemos observar, para o caso em que 10 pulsos interagem com o átomo durante o seu tempo de vida do nível excitado, isto é, $T = 0,10T_1$ (\triangle), uma quantidade inferior a 300 pulsos já é suficiente para que a coerência total ($\rho_{bc} = -0,5$) entre os níveis fundamentais seja obtida. Para o caso em que $T = 0,25T_1$ (\circ), ou seja, 4 pulsos incidem sobre o meio no mesmo intervalo de tempo, são necessários mais de 300 pulsos para se atingir a coerência total. Por fim, quando apenas dois pulsos interagem com o átomo em um tempo de vida do nível excitado, isto é, $T = 0,50T_1$ (\bullet), mesmo após 400 pulsos tal coerência ainda não



Figura 4.3: Coerência entre os níveis fundamentais calculada através da solução iterativa para diferentes valores da taxa de repetição dos pulsos. Os demais parâmetros do trem de pulsos são os mesmos da figura 4.2 e, por questão de clareza, é mostrado apenas 1 a cada 10 pulsos.

foi atingida e mais pulsos são necessários.

Vemos que o acúmulo de coerência no meio atômico depende fortemente do período de repetição dos pulsos. Assim, quanto menor for esse período, mais rapidamente a coerência total é obtida, pois para períodos de repetição menores, o tempo que o átomo possui para sofrer relaxamento é menor. Em outras palavras, para valores menores de T o meio atômico tem menos tempo para decair e o acúmulo coerente de excitação se dá mais rapidamente, fazendo com que uma quantia significativamente menor de pulsos seja necessária para levar o meio à situação de EIT.

Outro parâmetro importante no processo de transferência de coerência do campo para o meio é a área θ dos pulsos. Avaliamos, então, a dinâmica temporal da coerência entre os níveis fundamentais e a população do nível excitado, em função da área do pulso, fixando o período de repetição em $T = 0,10T_1$ e a diferença de fase em $\Delta \varphi = 0$. A figura 4.4a mostra essa evolução temporal para três diferentes valores da área do pulso. Quando utilizamos um pulso relativamente forte (mas ainda suficientemente fraco de modo a permitir o uso de nossa solução iterativa) com área $\theta = \pi/15$ (\circ em vermelho) notamos que com aproximadamente 200 pulsos a coerência total entre os níveis atômicos fundamentais já é atingida. Para um pulso um pouco mais fraco [$\theta = \pi/50$, (\blacktriangle em verde)], a quantidade de pulsos vai para algo próximo a 400. Já para o caso em que o pulso é bem mais fraco [$\theta = \pi/100$ (\square em preto)], os 400 pulsos



Figura 4.4: (a) Coerência entre os níveis fundamentais para diferentes áreas dos pulsos. As linhas tracejadas constituem apenas um guia visual e são apresentados os resultados de apenas 1 a cada 10 pulsos. (b) Coerência entre os níveis fundamentais e população do nível excitado para $\theta = \pi/15$ em função do número de pulsos, calculadas através da solução iterativa. Em ambas as figuras $T = 0,10T_1$ e $\Delta \varphi = 0$.

que utilizamos ainda não são suficientes para se atingir $\rho_{bc} = -0.5$. Vemos então que quanto maior é a área do pulso, mais rapidamente a coerência máxima é atingida, pois mais coerência é transferida ao meio atômico por cada pulso individual.

Em uma escala diferente, a figura 4.4b mostra, além da coerência entre os níveis fundamentais (\circ em vermelho), a população do nível excitado (\blacklozenge em azul e escala à direita também em azul) em função do número de pulsos para o caso em que $\theta = \pi/15$ e $\Delta \varphi = 0$. Como podemos observar, inicialmente a população do nível excitado cresce, atingindo aproximadamente 32%, em seguida ela diminui e, com o aumento no número de pulsos, tende a zero indicando que o meio caminha para uma situação em que a absorção do campo desaparecerá conforme o tempo de interação aumenta. Vemos ainda que o evoluir da população do nível excitado para um valor nulo é acompanhado do evoluir da coerência entre os níveis fundamentais para -0,5.

Oscilações de Rabi são observadas na população do nível excitado. Essas oscilações não são da mesma natureza daquelas observadas quando se utiliza um laser contínuo para a excitação e também não são devidas às sobreposições entre pulsos consecutivos, pois a separação entre eles é três ordens de grandeza maior que sua largura temporal. Além disso, devido ao fato de a área de cada pulso ser pequena, pulsos individuais não conseguem induzir oscilações de Rabi. As oscilações de Rabi observadas na figura 4.4 são devidas, na verdade, a uma combinação entre

o processo de acúmulo coerente de excitação entre pulsos consecutivos e ao grande número de pulsos envolvidos.

A figura 4.5 mostra o comportamento da coerência entre os níveis fundamentais para 5 diferentes valores da diferença de fase entre pulsos consecutivos. Como podemos observar, para o caso em que os pulsos estão em fase, ou seja, $\Delta \varphi = 0$ (• em preto), a coerência máxima é atingida com um número relativamente pequeno de pulsos (≈ 200). Com $\Delta \varphi = \pi/20$ (o em vermelho) é possível notar que mais de 300 pulsos são necessários para que a coerência total seja obtida e com $\Delta \varphi = \pi/4$ (• em azul), mesmo com 400 pulsos tal coerência ainda não é obtida, situação que se agrava para $\Delta \varphi = \pi/2$ (◊ em rosa). Para uma diferença de fase igual a π [ou $(2k + 1)\pi$ com k inteiro] (• em verde) a coerência não evolui e mantém-se nula. Nesta última situação o n-ésimo pulso cancela o efeito do (n - 1)-ésimo e um par de pulsos consecutivos se comporta como um único pulso de área zero, isto é, um pulso que não é capaz de transferir coerência ou população ao meio atômico.

Vemos então que à medida que essa diferença de fase aumenta de 0 até π , o número de pulsos necessários para se obter a coerência total entre os níveis fundamentais também aumenta. Portanto, se desejamos obter coerência máxima entre os níveis fundamentais com o menor número possível de pulsos de excitação, devemos fazer com que a diferença de fase



Figura 4.5: Coerência entre os níveis fundamentais em função do número de pulsos calculada através da solução iterativa para diferentes valores da diferença de fase entre pulsos consecutivos com $\theta = \pi/15$ e $T = 0,10T_1$. As linhas tracejadas constituem apenas um guia visual e são apresentados os resultados de apenas 1 a cada 10 pulsos.

entre pulsos consecutivos seja nula ou um múltiplo inteiro de 2π .

4.5 Dinâmica dos estados claro e escuro

Como discutido no capítulo 3, uma sobreposição linear entre os níveis atômicos fundamentais é criada quando o meio atômico atinge coerência total entre tais níveis. Esta sobreposição dá origem a um estado denominado **estado escuro** [87] que é desacoplado dos pulsos de excitação. Concomitantemente há a formação de um outro estado, chamado de **estado claro**, que interage com os pulsos de excitação. Nesta seção fazemos uma análise da dinâmica das populações dos estados claro e escuro em função do número de pulsos.

Cada pulso que constitui o trem transfere uma pequena quantia de coerência para os níveis atômicos fundamentais levando, de forma acumulativa, à formação do estado escuro para onde cada um dos pulsos transfere uma pequena parcela da população atômica. Como este estado não interage com o campo, tal população permanece aprisionada e aumenta a cada novo pulso. Após toda a população ser transferida para esse estado escuro, o campo não mais é absorvido e os pulsos subsequentes experimentam a transparência eletromagneticamente induzida.

Para iguais probabilidades de transição dos níveis fundamentais para o excitado, o estado claro é definido como:

$$|C\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|b\rangle + |c\rangle) \tag{4.10}$$

e o estado escuro como:

$$|E\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|b\rangle - |c\rangle). \tag{4.11}$$

O primeiro interage com os pulsos enquanto que o último não o faz e a população do sistema que interage como campo eletromagnético é transferida por emissão espontânea para o estado escuro onde fica aprisionada, e o campo deixa de ser absorvido.

Com os vetores de estado para os estados claro e escuro escritos na forma que aparecem nas equações (4.10) e (4.11), respectivamente, torna-se simples definir os elementos da matriz densidade para as populações de cada um desses dois estados, isto é,

$$\rho_{CC} = \frac{1}{2}\rho_{bb} + \frac{1}{2}\rho_{cc} + Re(\rho_{bc})$$
(4.12)

e

70

$$\rho_{EE} = \frac{1}{2}\rho_{bb} + \frac{1}{2}\rho_{cc} - Re(\rho_{bc}).$$
(4.13)

Portanto, a partir dos resultados obtidos através das equações iterativas (4.8), também podemos obter a evolução temporal para os estados claro e escuro. A figura 4.6 apresenta nossos resultados para o comportamento destas duas populações em função do número de pulsos que excitam o átomo para o caso em que $\theta = \pi/15$, $T = 0.10T_1$ e $\Delta \varphi = 0$.

Como podemos observar, inicialmente ambos os estados - claro e escuro - encontram-se igualmente populados ($\rho_{CC} = \rho_{EE} = 0.5$). Com o aumento do número de pulsos a população do estado claro é opticamente bombeada para o estado escuro onde permanece aprisionada, já que este estado não se acopla aos pulsos de excitação. Assim, ocorre uma diminuição na população do estado claro e um consequente aumento na população do estado escuro é observado. Para uma quantia suficientemente grande de pulsos a população é integralmente transferida para o estado escuro e, nessa situação, o campo deixa de interagir com o meio atômico, dando lugar à EIT.

Devido ao decaimento espontâneo do nível excitado, conforme a população atômica é transferida do estado claro para o escuro, a população do nível excitado (ρ_{aa}) diminui. Isto fica evidente quando comparamos as figuras 4.4b e 4.6. Na figura 4.6 vemos, por exemplo, que com



Figura 4.6: Populações dos estados claro (ρ_{CC}) e escuro (ρ_{EE}) plotadas em função do número de pulsos com $\theta = \pi/15$, $T = 0,10T_1$ e $\Delta \varphi = 0$. As linhas tracejadas constituem apenas um guia visual e são apresentados os resultados de apenas 1 a cada 10 pulsos.

apenas 100 pulsos a população é quase que completamente transferida para o estado escuro, ficando apenas uma pequena parcela no estado claro. Por sua vez, na figura 4.4b vemos que com esta quantidade de pulsos, a população do nível excitado já apresenta um valor muito próximo de zero. Isto ocorre porque o campo não encontra mais população para excitar e, assim, deixa de alimentar o nível excitado.

Algumas oscilações de Rabi podem ser observadas na evolução temporal da população do estado claro, enquanto que para o estado escuro tais oscilações não ocorrem. Isso justifica-se pelo fato de que o estado escuro não interage com o campo enquanto que o estado claro o faz.

4.6 Conclusão

Neste capítulo apresentamos os resultados do estudo teórico que realizamos sobre a evolução temporal da transparência eletromagneticamente induzida, através do acúmulo coerente de população e coerência, causada por um trem de pulsos ultracurtos em um sistema de três níveis na configuração Λ .

Cada pulso individual que constitui o trem de pulsos cria uma pequena quantia de coerência entre os níveis fundamentais do átomo. Como trabalhamos no regime em que a taxa de repetição dos pulsos é maior que a taxa de decaimento do nível atômico excitado, esta coerência é acumulada a cada novo pulso até atingir seu estado estacionário de máxima coerência. Quando este estado é atingido, a absorção do campo deixa de ocorrer dando lugar à EIT. Isto indica que um trem de pulsos ultracurtos é uma ferramenta muito forte para o estudo experimental da EIT no regime transitório, pois permite acompanhar a formação dos estados claro e escuro bem como a evolução da população do nível excitado e a coerência entre os níveis fundamentais até que atinjam seus respectivos valores estacionários.

Devido ao acúmulo coerente, a formação do estado escuro e a consequente evolução temporal do aprisionamento coerente de população pode ser estudada experimentalmente através da medida da fluorescência do nível excitado em função do número de pulsos que excitam a amostra.

INFLUÊNCIA DA PROPAGAÇÃO NO ACÚMULO COERENTE DE EXCITAÇÃO INDUZIDA POR UM TREM DE PULSOS ULTRACURTOS

5.1 Introdução

qui apresentamos os resultados do estudo que realizamos sobre a influência da propagação no acúmulo coerente de excitação. Tal excitação é induzida através de um trem de pulsos ultracurtos que se propaga em um meio atômico estendido constituído de sistemas de 2 e 3 níveis, este último na configuração Λ . Para o caso em que o meio é constituído por sistemas de dois níveis, mostramos que mesmo para uma pequena distância de propagação o efeito de acúmulo coerente deixa de ocorrer. Já para o sistema de 3 níveis estudado, o acúmulo de população e coerência leva à formação de um estado escuro ao longo do meio para onde a população é transferida e, assim, os pulsos subsequentes passam a se propagar sem sofrer a influência do meio.

Quando tratamos de um único pulso fraco, isto é, pulsos que possuem área pequena, sua propagação através de um meio atômico pode ser descrita à luz da teoria da dispersão linear como descrito por Crisp [99] e o formato do pulso, ao longo do meio atômico, pode ser calculado explicitamente. Se o espectro desse pulso é muito mais largo do que a linha de ressonância (ou de forma equivalente, a duração temporal do pulso é muito menor do que o tempo de decaimento da coerência atômica), os efeitos de absorção e dispersão transformam o envelope do pulso em uma função oscilatória no tempo dado que apenas uma pequena parcela do espectro de frequências do pulso será removida pelos átomos. Nesse caso o pulso pode se propagar

por vários comprimentos de absorção meio adentro, desviando da lei de absorção de Beer. A propagação de um único pulso fraco [99] ou até mesmo um trem constituído de pulsos fracos [100] pode ser descrita analiticamente, pois a população do nível fundamental não muda significativamente (solução perturbativa), ou seja, o acúmulo coerente de excitação pode ser desprezado. No apêndice B é apresentada uma solução analítica para a propagação de um único pulso fraco, de formato delta, através de um meio atômico constituído de sistemas de dois níveis.

Diferentemente dos trabalhos acima citados, em nosso caso os efeitos de acúmulo coerente não são desprezados. Quando isto ocorre, cada novo pulso que incide sobre o meio atômico encontrará este em uma condição inicial diferente daquela encontrada por cada um dos pulsos anteriores. Além disso, a condição inicial encontrada por cada um dos pulsos não é necessariamente homogênea ao longo de todo o meio atômico, isto é, a condição atômica inicial que cada pulso individual encontrará ao longo da amostra depende da posição onde o átomo se encontra. Sendo assim, uma descrição totalmente analítica do problema não é possível e, para obtermos a solução de tal sistema, utilizamos um procedimento semi-analítico como descrevemos a seguir.

A figura 5.1 mostra uma representação esquemática dos dois sistemas estudados, e que serão discutidos neste capítulo.



Figura 5.1: Representação esquemática para: (a) sistema de dois níveis e (b) sistema de três níveis na configuração lambda (Λ), onde γ é a taxa de decaimento do nível excitado, ambos interagindo com um trem de pulsos ultracurtos de período de repetição *T*.

Na figura 5.1a temos um sistema de dois níveis enquanto que a figura 5.1b apresenta um sistema de três níveis na configuração Λ (degenerado), ambos interagindo com um trem de pulsos ultracurtos. A taxa de decaimento do nível excitado é γ , e *T* é o período de repetição dos pulsos.

Existem estudos anteriores acerca da propagação de um trem de pulsos porém em condições distintas das que exploramos aqui. Um deles, de 1979, avalia a propagação de um trem com grandes períodos de repetição dos pulsos (pulsos lentos) [101]. Tais períodos de repetição são maiores que o tempo de vida do nível excitado e, além disso, tais pulsos possuem largura temporal maior que o tempo de vida do nível excitado de forma que sua largura espectral é menor que a largura de linha natural da transição atômica envolvida. Outro, datado de 2002 [100], mostra que a relação de fase entre os pulsos permite o controle da dispersão na propagação de um trem cuja frequência de repetição é da ordem de THz.

5.2 Propagação de um trem de pulsos ultracurtos em um sistema de 2 níveis

Na figura 5.2 é ilustrada a situação na qual um trem de pulsos ultracurtos de período de repetição *T* se propaga através de um meio atômico constituído de sistemas de 2 níveis onde $|a\rangle$ é o nível excitado, que possui uma taxa de decaimento igual a γ , e $|b\rangle$ é o fundamental. O tempo de efetiva interação de cada pulso, ou seja, o tempo no qual o átomo efetivamente experimenta o campo é t_e .

Para um sistema de dois níveis - trocando a variável temporal pelo tempo local $\tau = t - \frac{z}{v_g}$, onde v_g é a velocidade de grupo do pulso - as equações de Bloch para os elementos da matriz densidade são:

$$\frac{\partial}{\partial \tau}\rho_{aa}(z,\tau) = -\gamma\rho_{aa}(z,\tau) + 0.5i\alpha(z,\tau)\rho_{ab}(z,\tau) - 0.5i\alpha^*(z,\tau)\rho_{ba}(z,\tau)$$
(5.1)

e

$$\frac{\partial}{\partial \tau}\rho_{ba}(z,\tau) = -\gamma\rho_{ba}(z,\tau) + 0.5i\alpha(z,\tau)(1-2\rho_{aa}(z,\tau)),\tag{5.2}$$

onde $\alpha(z,\tau) = 2E_0 d/\hbar$ é a frequência de Rabi dependente do tempo e da posição no meio, $E_0 = E_0(z,\tau)$ é a amplitude do campo elétrico aplicado e *d* é o módulo do momento de dipolo



Figura 5.2: Representação esquemática do meio atômico estendido, constituído de sistemas de 2 níveis, sendo atravessado por um trem de pulsos ultracurtos de período de repetição *T*. A taxa de decaimento do nível excitado para o fundamental é γ e t_e é o intervalo de tempo em que o campo efetivamente interage com o átomo.

considerado real e paralelamente alinhado com o campo. O elemento de matriz referente à população do nível excitado é $\rho_{aa}(z,\tau)$, $\rho_{ba}(z,\tau)$ é a polarização atômica e, sendo o sistema fechado, a população do nível fundamental é dada por $\rho_{bb}(z,\tau) = 1 - \rho_{aa}(z,\tau)$.

O trem de pulsos utilizado é constituído de N pulsos idênticos igualmente espaçados e, na entrada do meio, é dado por:

$$\alpha_{T}(0,\tau) = \sum_{m=0}^{N-1} \alpha(0,\tau - mT) e^{i \, m \, \Delta\varphi} \,, \tag{5.3}$$

onde $\alpha(0, \tau - mT)$ é o envelope (que varia lentamente com o tempo) do pulso, T é o período de repetição dos pulsos e a diferença de fase entre pulsos consecutivos é representada por $\Delta \varphi$. Não há sobreposição entre pulsos consecutivos pois, novamente, a largura temporal de cada pulso individual é muito menor que o período de repetição T.

Para o estudo de nosso sistema, como já citado na introdução deste capítulo, desenvolvemos um tratamento semi-analítico para a solução das equações acopladas de Maxwell-Bloch para cada pulso individual que se propaga através do meio. Neste tratamento as equações de Bloch são resolvidas analiticamente enquanto que a equação de Maxwell na forma reduzida,

$$\frac{\partial}{\partial z}\alpha(z,\tau) = 2i\mu\rho_{ba}(z,\tau),\tag{5.4}$$

e que nos dá as alterações causadas pelo meio sobre o envelope de cada pulso, é resolvida numericamente através do método de Adams-Bashforth-Moulton (ABM) de 4ª ordem que é um método de múltiplos passos¹. Na equação (5.4), $\mu = \omega_L \mathcal{N} d^2 / (\varepsilon_0 \hbar c)$ é a constante de acoplamento entre o campo e a polarização atômica, ω_L é a frequência central do pulso, \mathcal{N} é a densidade atômica, c é a velocidade da luz no vácuo e ε_0 é a permissividade do meio. Essas duas soluções, analítica e numérica, são iterativamente combinadas para descrever a evolução temporal e a propagação espacial do trem de pulsos.

A solução analítica das equações de Bloch é relativamente simples devido ao fato de podermos distinguir dois diferentes intervalos de tempo em cada período (*T*) compreendido entre um pulso e outro. Durante o pequeno tempo de efetiva interação do pulso com o sistema atômico ($0 \le \tau \le t_e$), podemos ignorar os efeitos de relaxamento da coerência e da população atômica. Em outras palavras, como o pulso é ultracurto, durante sua ação não há tempo suficiente para que ocorram alterações na coerência e na população atômica e qualquer evolução experimentada pelo átomo se dá, exclusivamente, devido à presença do pulso. Desta forma os termos de decaimento das equações (5.1) e (5.2) podem ser desprezados e as equações de Bloch que descrevem a evolução temporal do sistema interagente ficam:

$$\frac{\partial}{\partial \tau}\rho_{aa}(z,\tau) = 0.5i\alpha(z,\tau)\rho_{ab}(z,\tau) - 0.5i\alpha^*(z,\tau)\rho_{ba}(z,\tau)$$
(5.5)

e

$$\frac{\partial}{\partial \tau} \rho_{ba}(z,\tau) = 0.5i\alpha(z,\tau) [\rho_{aa}(z,\tau) + \rho_{bb}(z,\tau)].$$
(5.6)

Podemos reescrever as duas últimas equações em notação matricial, isto é,

$$\frac{\partial}{\partial \tau} \underline{R}(z,\tau) = -\underline{\underline{M}}(z,\tau) \cdot \underline{R}(z,\tau), \qquad (5.7)$$

onde $\underline{R}(z,\tau) = \begin{pmatrix} \rho_{aa}(z,\tau) & \rho_{bb}(z,\tau) & \rho_{ba}(z,\tau) & \rho_{ab}(z,\tau) \end{pmatrix}^T$ é o vetor quadri-dimensional da solução para os elementos da matriz densidade e

$$\underline{\underline{M}}(z,\tau) = \alpha(z,\tau)\underline{\underline{A}}, \qquad (5.8)$$

onde

$$\underline{\underline{A}} = 0,5 i \begin{pmatrix} 0 & 0 & +1 & -1 \\ 0 & 0 & -1 & +1 \\ +1 & -1 & 0 & 0 \\ -1 & +1 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$
(5.9)

¹No apêndice C é apresentada uma breve discussão sobre o método de Adams-Bashforth-Moulton.

é uma matriz independente do tempo e da posição.

A solução para a equação (5.7), onde τ_{0m} é o tempo inicial para o *m*-ésimo pulso, é dada por²:

$$\underline{R}(z,\tau) = e^{-\theta(z,\tau)\underline{A}} \cdot \underline{R}(z,\tau_{0m}),$$
(5.10)

onde $\theta(z,\tau) = \int_{\tau_{0m}}^{\tau} \alpha(z,s) ds$ é a área do *m*-ésimo pulso calculada na posição *z* e a condição inicial nessa posição é dada por $\underline{R}(z,\tau_{0m})$. No caso do primeiro pulso que chega ao meio atômico, a condição inicial é $\underline{R}(z,\tau_{00}=0) = \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 & 0 \end{pmatrix}^T$. Para o primeiro pulso, o produto que aparece no lado direito da equação (5.10) pode ser obtido explicitamente em função da área do pulso uma vez que a condição inicial é conhecida³. Para os demais pulsos que constituem o trem, como a condição inicial depende da variável *z* e muda a cada novo pulso que atravessa o meio, uma solução explícita não é mais possível e o procedimento iterativo se faz necessário.

O outro intervalo de tempo é aquele quando o pulso já se desligou, ou seja, $\tau_{0m} + t_e \leq \tau < \tau_{0m} + T$. Nesse período as excitações atômicas não ocorrem e os átomos ficam sujeitos somente aos decaimentos espontâneos. Nessa situação a evolução temporal do sistema é trivial e dada por:

$$\rho_{aa}(z,\tau) = \rho_{aa}(z,\tau_{0m} + t_e)e^{-\tau/T_1}$$
(5.11)

e

$$\rho_{ba}(z,\tau) = \rho_{ba}(z,\tau_{0m} + t_e)e^{-\tau/2T_1},$$
(5.12)

ou seja, nesse intervalo de tempo o sistema evolui livremente, pois não há mais o acoplamento entre os níveis atômicos devido à presença do campo.

Conhecido o comportamento do sistema nesses dois intervalos de tempo, a solução das equações acopladas de Maxwell-Bloch é obtida da seguinte forma:

- Todos os átomos que compõem o meio atômico são colocados na condição inicial $\underline{R}(z, \tau_{00} = 0) = \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 & 0 \end{pmatrix}^T$,
- Numericamente fazemos a propagação espacial para um pulso do trem através da equação de onda reduzida de Maxwell (5.4) mais a equação (5.10),

²No apêndice D é apresentada a expansão de Magnus que, devido ao fato de $[\underline{\underline{M}}(z,\tau), \int_{\tau_{0m}}^{\tau} \underline{\underline{M}}(z,s) ds] = 0$, justifica a solução dada pela equação (5.10).

³No apêndice E é apresentada uma solução analítica explicita do vetor $\underline{R}(z, \tau)$ para o primeiro pulso que excita o meio.

 Os elementos da matriz densidade que descrevem as populações e coerências ao longo do meio atômico são substituídos nas equações (5.11) e (5.12), determinando a condição inicial - dependente de *z* - para o próximo pulso.

Para verificar a validade de nosso procedimento semi-analítico, resolvemos o problema todo numericamente mantendo o método de ABM para a evolução espacial e utilizando Runge-Kutta de 4^a ordem para a evolução temporal e comparamos as duas soluções, obtendo o mesmo resultado para diferentes combinações dos parâmetros envolvidos.

5.2.1 Resultados para o sistema de 2 níveis

Na entrada do meio atômico, o trem de pulsos utilizado na excitação é constituído de pulsos ultracurtos com formato gaussiano, de largura σ = 200 fs e área θ = $\pi/8$, dados por:

$$\alpha(0,\tau) = (\theta/\sigma)e^{-\pi(\tau/\sigma)^2}.$$
(5.13)

Todos os pulsos possuem a mesma frequência central, estão em ressonância com a transição atômica e não há diferença de fase entre pulsos consecutivos ($\Delta \varphi = 0$). Os parâmetros utilizados em nossos cálculos são $T_1 = 28$ ns [tempo de decaimento do nível excitado característico do átomo de rubídio (⁸⁷Rb)] e período de repetição dos pulsos T = 1 ns. Com esses parâmetros, durante o tempo de vida do nível excitado, 28 pulsos incidem sobre a amostra. O tempo de efetiva interação entre um pulso e o meio é bastante pequeno e igual a $t_e = 20$ ps. É nesse intervalo que a equação (5.10) se aplica.

A profundidade óptica convencional é definida como $2\mu z/\gamma$ (ou μzT_2 , onde T_2 é o tempo de relaxamento da coerência atômica) e é uma grandeza adimensional. Como trabalhamos com pulsos ultracurtos, T_2 é muito maior do que a largura temporal de cada pulso individual. Assim, a profundidade óptica convencional pode assumir valores muito grandes mesmo para uma pequena propagação do pulso. Além disso, a partir do resultado demonstrado no Apêndice B, a grandeza que aparece na expressão para as modificações impostas pela propagação no formato temporal do pulso [equação (B.14)] é μz . Desta forma seguimos [34] e definimos a profundidade óptica como μz , com unidade de inverso de tempo. Por exemplo, para o caso em que $T_2 = 56$ ns, uma profundidade óptica igual a $\mu z = 1$ (ps)⁻¹ equivale a uma profundidade convencional igual a $\mu zT_2 = 5,6 \times 10^4$. A figura 5.3 mostra o comportamento da inversão atômica $[w(z, \tau) = \rho_{aa}(z, \tau) - \rho_{bb}(z, \tau)]$ imediatamente antes da excitação por um dado pulso, em função do número de pulsos, em quatro diferentes posições ao longo do meio.

Para $\mu z = 0$, isto é, quando o pulso incidente possui o formato gaussiano inicial e ainda não sofreu nenhuma influência do meio (figura 5.3a) os pulsos não só promovem a inversão atômica mas também induzem oscilações de Rabi na população. Como citado no capítulo anterior, essas oscilações são devidas à combinação entre o processo de acúmulo coerente a cada novo pulso e o grande número de pulsos que interagem com o átomo. Após um número



Figura 5.3: Inversão atômica em função do número de pulsos para quatro diferentes valores da profundidade óptica ao longo do meio atômico: (a) $\mu z = 0$, (b) $\mu z = 58$ (ns)⁻¹, (c) $\mu z = 114$ (ns)⁻¹ e (d) $\mu z = 226$ (ns)⁻¹.

grande de pulsos a taxa de excitação e de decaimento se equilibram e a inversão se estabiliza em um valor muito próximo de zero.

A figura 5.3b mostra o comportamento da inversão atômica para uma profundidade óptica um pouco além daquela relativa à entrada do meio $[\mu z = 58 \text{ (ns)}^{-1}]$. Como se pode notar, para uma quantidade pequena de pulsos que atravessam o sistema atômico (aproximadamente 12 pulsos), a excitação atômica praticamente não ocorre e a diferença de população entre o nível excitado ($|a\rangle$) e o fundamental ($|b\rangle$) apresenta um valor muito próximo de -1, ou seja, esses primeiros pulsos não conseguem promover a transferência de população para o nível excitado. Isso ocorre porque esses primeiros pulsos já interagiram com os átomos localizados nas posições anteriores a $\mu z = 58 \text{ (ns)}^{-1}$ e tiveram suas frequências centrais reduzidas. Desta forma a transferência de população para o nível excitado fica prejudicada, diminuindo a taxa de acúmulo coerente e mais pulsos são necessários para causar a inversão.

As figuras 5.3c e 5.3d mostram o resultado da inversão atômica para duas profundidades ópticas mais avançadas no meio atômico, sendo que a última mostra esse resultado para a posição $\mu z = 226 \text{ (ns)}^{-1}$. Nessas condições, como o caminho a ser percorrido pelos pulsos através dos átomos é maior, a frequência central de cada pulso é completamente removida de tal forma que os mesmos não interagem com o meio e, consequentemente, não se observa inversão de população. Na saída do meio, como indica a figura 5.3d, a população do nível excitado é praticamente nula, indicando que o pulso propagante não mais possui condições de excitar a população atômica. Nessa situação os pulsos que constituem o trem apenas perturbam o átomo.

A figura 5.4a mostra a evolução espacial do espectro do primeiro pulso que incide no meio atômico. Nesse caso, como o meio não apresenta nenhuma população no nível excitado, o mesmo só faz absorver a frequência central do pulso à medida que este avança meio adentro. Essa absorção também se reflete na inversão atômica como mostrado na figura 5.3 e no painel lateral (em vermelho na figura 5.4a). Devido à absorção da frequência central pelo átomo de uma dada posição, aquele localizado imediatamente depois apresenta uma inversão de população menor que o anterior e assim sucessivamente até que a inversão não mais ocorra (frequência central completamente removida do espectro).

A figura 5.4b mostra o espectro do 15º pulso para 5 diferentes profundidades ópticas ao

longo do meio atômico. Como se pode observar no painel lateral (em vermelho), a inversão atômica apresenta valores positivos para várias posições localizadas entre $\mu z = 0$ e $\mu z = 3,5$ (ns)⁻¹; em outras palavras, os átomos dessa região estão com a maior parte de sua população no nível excitado. Isso faz com que uma amplificação da frequência central do pulso seja observada devido aos decaimentos estimulados da população do nível excitado para o fundamental. Como a inversão atômica não ocorre para profundidades ópticas mais avançadas no meio, para $\mu z > 3,5$ (ns)⁻¹ os átomos estão com a maior parte de sua população no nível fundamental e a emissão estimulada deixa de ocorrer, dando lugar novamente à absorção da frequência central.

Já a figura 5.4c mostra o espectro do 300° pulso também em 5 diferentes profundidades ópticas do meio. Como se pode notar no painel em vermelho, não ocorre nenhuma inversão de população e, consequentemente, não há amplificação da frequência central do pulso. Por



Figura 5.4: Evolução espacial para três diferentes pulsos do trem: pulso 1 (a), pulso 15 (b) e pulso 300 (c). A figura apresenta, em unidades arbitrárias, a amplitude espectral em função da profundidade óptica, com as frequências espectrais calculadas em relação à ressonância atômica. Mostramos a inversão da população atômica nos painéis laterais (em vermelho).
outro lado, como este pulso encontra o meio já saturado pelos pulsos que o antecederam, ele consegue se propagar por uma distância da ordem de 20 vezes maior (observar que esta figura apresenta uma escala espacial diferente das demais) do que aquela propagada pelo primeiro pulso antes que sua frequência central seja completamente removida.

Aqui não apresentamos o perfil temporal do pulso, pois como a distância de propagação dos pulsos é pequena, não se observam variações significativas de formato entre um pulso e outro.

5.3 Propagação de um trem de pulsos ultracurtos em um sistema de 3 níveis

Quando se faz propagar um trem de pulsos ultracurtos através de um meio constituído por um conjunto de sistemas de três níveis na configuração Λ , como representado esquematicamente na figura 5.5, o efeito de acúmulo de população e coerência muda fortemente as características do meio conforme o número de pulsos propagados aumenta.

Para o sistema de três níveis na configuração Λ , mostrado na figura 5.1b, na aproximação de onda girante (RWA), as equações de Bloch que descrevem a evolução temporal dos elementos da matriz densidade são:



Figura 5.5: Representação esquemática do meio atômico estendido, constituído de sistemas de 3 níveis na configuração lambda (degenerados), sendo atravessado por um trem de pulsos ultracurtos de período de repetição *T*. A taxa de decaimento do nível excitado para cada um dos níveis fundamentais é $\frac{\gamma}{2}$ e t_e é o intervalo de tempo em que o campo efetivamente interage com o átomo.

$$\frac{\partial}{\partial \tau} \rho_{aa}(z,\tau) = -(1/T_1)\rho_{aa}(z,\tau) + 0.5[i\alpha(z,\tau)(\rho_{ab}(z,\tau) + \rho_{ac}(z,\tau)) + c.c.],
\frac{\partial}{\partial \tau} \rho_{bb}(z,\tau) = (1/2T_1)\rho_{aa}(z,\tau) + 0.5i\Omega[\rho_{ba}(z,\tau) - \rho_{ab}(z,\tau)]
\frac{\partial}{\partial \tau} \rho_{cc}(z,\tau) = (1/2T_1)\rho_{aa}(z,\tau) + 0.5[i\alpha^*(z,\tau)\rho_{ca}(z,\tau) + c.c.],
\frac{\partial}{\partial \tau} \rho_{ab}(z,\tau) = -(1/2T_1)\rho_{ab}(z,\tau) - 0.5i\alpha^*(z,\tau)[\rho_{cb}(z,\tau) - \rho_{aa}(z,\tau) + \rho_{bb}(z,\tau)], \quad (5.14)
\frac{\partial}{\partial \tau} \rho_{ac}(z,\tau) = -(1/2T_1)\rho_{ac}(z,\tau) + 0.5i\alpha^*(z,\tau)[\rho_{aa}(z,\tau) - \rho_{cc}(z,\tau) - \rho_{bc}(z,\tau)] e
\frac{\partial}{\partial \tau} \rho_{bc}(z,\tau) = -0.5i\alpha(z,\tau)\rho_{ac}(z,\tau) + 0.5i\alpha^*(z,\tau)\rho_{ba}(z,\tau),$$

onde, diferentemente do problema tratado no capítulo anterior, no qual a frequência de Rabi era uma função apenas do tempo, aqui ela também depende da posição ao longo do meio e é dada por $\alpha(z,\tau) = 2dE_0/\hbar \operatorname{com} E_0 = E_0(z,\tau)$ sendo a amplitude do campo elétrico aplicado. Os pulsos ultracurtos são sintonizados na ressonância atômica ($\omega_L = \omega_0$). Os momentos de dipolo da transição $|b\rangle \rightarrow |a\rangle$ e $|c\rangle \rightarrow |a\rangle$ são assumidos reais, alinhados com o campo e iguais, isto é, $d_{ba} = d_{ca} = d$. O primeiro pulso do trem encontra a amostra com todos os átomos na mesma condição inicial que é aquela onde a população está igualmente distribuída entre os níveis fundamentais e sem coerência alguma.

Para estudarmos a propagação do trem de pulsos ao longo do meio constituído por sistemas de três níveis, também é necessário reescrever a equação de onda reduzida de forma a englobar a polarização atômica total, ou seja,

$$\frac{\partial}{\partial z}\alpha(z,\tau) = 2i\mu[\rho_{ba}(z,\tau) + \rho_{ca}(z,\tau)].$$
(5.15)

Para resolvermos as equações de Bloch, utilizamos o mesmo procedimento semi-analítico empregado para o sistema de 2 níveis. Durante o intervalo de tempo em que cada pulso interage com o meio atômico os átomos evoluem segundo a equação (5.10) bastando apenas a

0

substituição da matriz \underline{A} mostrada na equação (5.9) por:

$$\underline{\underline{A}} = 0,5i \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & +1 & -1 & +1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & +1 & -1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & +1 & -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & +1 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & +1 & 0 \\ -1 & 0 & +1 & +1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ +1 & 0 & -1 & 0 & +1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -1 & +1 & 0 & 0 & +1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ +1 & -1 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$
(5.16)

١

T

e com o vetor solução dado por:

$$\underline{R}(z,\tau) = \left(\rho_{aa} \quad \rho_{bb} \quad \rho_{cc} \quad \rho_{bc} \quad \rho_{cb} \quad \rho_{ac} \quad \rho_{ca} \quad \rho_{ab} \quad \rho_{ba}\right)^{T},$$
(5.17)

onde, por simplicidade, $\rho_{ij} = \rho_{ij}(z, \tau)$.

Para o intervalo de tempo compreendido entre o final da efetiva interação do *m*-ésimo pulso com o meio atômico e a chegada do próximo pulso, isto é $\tau_{0m} + t_e \leq \tau < \tau_{0m} + T$, os átomos experimentam apenas as emissões espontâneas e o comportamento temporal da população e das coerências atômicas é descrito por:

$$\rho_{aa}(z,\tau) = \rho_{aa}(z,\tau_{0m} + t_e)e^{-\tau/T_1}; \qquad (5.18)$$

$$\rho_{ba}(z,\tau) = \rho_{ba}(z,\tau_{0m} + t_e)e^{-\tau/2T_1}$$
(5.19)

e

$$\rho_{ca}(z,\tau) = \rho_{ca}(z,\tau_{0m} + t_e)e^{-\tau/2T_1}.$$
(5.20)

Neste caso também utilizamos pulsos de largura $\sigma = 200$ fs, com uma área $\theta = \pi/15$ e $T_1 = T_2/2 = 28$ ns. Para maximizar o processo de acúmulo coerente, a diferença de fase entre pulsos consecutivos é nula.

5.3.1 Resultados para o sistema de 3 níveis

Como citado na seção anterior, o perfil temporal de um pulso propagando em um meio estendido constituído por sistemas de 2 níveis não apresenta grandes modificações em seu formato, pois consideramos uma pequena distância de propagação. Já para um meio formado por sistemas de 3 níveis na configuração Λ , como consideramos uma distância de propagação muito maior, o formato temporal do pulso é completamente alterado à medida que este se propaga meio adentro. A figura 5.6a mostra o formato temporal do primeiro pulso para 5 diferentes profundidades ópticas ao longo do meio atômico.

Em $\mu z = 0$ é mostrado o pulso com seu formato gaussiano original, isto é, sem ainda ter interagido com o meio atômico. À medida que este pulso se propaga até atingir a profundidade óptica $\mu z = 6,4$ (ps)⁻¹ observa-se uma mudança expressiva em seu formato e um comportamento oscilatório, acompanhado de uma diminuição de sua amplitude, é observado.

Ainda avaliando as 5 curvas apresentadas na figura 5.6a, também é possível observar que, à medida que o pulso caminha no interior do meio, o valor de sua área vai diminuindo. Essa



Figura 5.6: Perfis temporais e espectros de frequências para o pulso 1 [gráficos (a) e (c), respectivamente] e pulso 2400 [gráficos (b) e (d), respectivamente] para 5 diferentes valores da profundidade óptica (μz) ao longo do meio atômico. No plano lateral dos gráficos c e d está plotada, em vermelho, a coerência entre os níveis atômicos fundamentais em função da profundidade óptica no meio.

alteração ocorrida no valor da área do pulso apresenta implicações no acúmulo coerente uma vez que quanto maior a área do pulso, mais rapidamente o acúmulo ocorre como discutido no capítulo 4. Desta forma, como a área do pulso diminui, mais pulsos são necessários para se atingir a coerência total entre os níveis atômicos fundamentais.

Diferentemente do primeiro pulso, para o 2400° pulso mostrado na figura 5.6b o perfil temporal já não apresenta grandes modificações à medida que o pulso propaga. Isso deve-se ao fato de que para a porção inicial do meio ($\mu z \leq 4,5 \text{ (ps)}^{-1}$) os átomos já terem sido coerentemente preparados pelos pulsos anteriores, isto é, tais pulsos criaram a sobreposição coerente entre os níveis fundamentais, o estado escuro já se formou, e a população atômica foi transferida para ele.

Com o objetivo de melhorar a comparação entre os perfis temporais do 1º e do 2400º pulso, plotamos na figura 5.7 esses dois pulsos para a profundidade óptica $\mu z = 6.4$ (ps)⁻¹. Como se pode observar, há uma grande diferença entre os perfis temporais do 1º pulso (linha tracejada azul) e do 2400º pulso (linha vermelha contínua). Enquanto este último apresenta um pequeno desvio em relação ao pulso gaussiano de entrada (linha preta pontilhada), o primeiro tem seu perfil temporal fortemente afetado pela propagação através do meio atômico.

Uma avaliação do ponto de vista dos espectros destes dois pulsos nos ajuda a compreender melhor o que ocorre com cada um deles à medida que propagam. O espectro do primeiro



Figura 5.7: (a) Perfis temporais do pulso 1 (linha azul tracejada) e do pulso 2400 (linha contínua vermelha) em $\mu z = 6.4$ (ps)⁻¹ com $\theta = \pi/15$ e $T_1/T = 10$. A linha preta pontilhada mostra o perfil do pulso (gaussiano) na entrada do meio.

pulso é bastante alterado pela propagação através do meio atômico como pode ser observado na figura 5.6c. Para uma pequena distância de propagação (não mostrada na figura) o meio já absorve por completo sua frequência central e a coerência entre os níveis fundamentais (painel lateral em vermelho na figura 5.6c) permanece praticamente nula em toda a extensão do meio, ou seja, como o pulso teve sua frequência central (ressonante) rapidamente removida pelo meio atômico, ele não mais é capaz de transferir coerência ao átomo. Por outro lado, quando o 2400° pulso atinge o meio, este último já se apresenta previamente preparado pelos pulsos anteriores e como pode ser observado no painel lateral (em vermelho) da figura 5.6d uma parcela significativa dos átomos que compõem o meio (até $\mu z \leq 4,5 \text{ (ps)}^{-1}$) já apresenta coerência máxima em módulo ($|\rho_{bc}| = 0.5$) entre seus níveis fundamentais. Este valor para a coerência está associada com o aprisionamento coerente de população no estado escuro. Nessas condições o meio atômico torna-se transparente ao campo e o 2400° pulso propaga através dele sem sofrer alterações em seu formato temporal e sem ter sua frequência central removida. Para $\mu z \ge 4,5$ (ps)⁻¹ os átomos ainda não atingiram coerência máxima entre seus níveis fundamentais e o campo (neste caso o 2400° pulso) passa a ter sua frequência central absorvida e, lentamente, seu formato temporal começa a se alterar.

A figura 5.8 mostra a coerência entre os níveis fundamentais, imediatamente antes da excitação por um dado pulso, para três diferentes posições ao longo do meio.



Figura 5.8: Coerência entre os níveis fundamentais versus o número de pulsos para 3 diferentes valores da profundidade óptica: $\mu z = 0$ (linha preta pontilhada); $\mu z = 3,2$ (ps)⁻¹ (linha azul tracejada) e $\mu z = 6,4$ (ps)⁻¹ (linha vermelha contínua) com $\theta = \pi/15$ e $T_1 = 10T$.

Como podemos observar, conforme os pulsos atravessam o meio atômico, o módulo da coerência entre os níveis fundamentais caminha em direção ao seu valor máximo. Esse valor para a coerência entre os níveis fundamentais indica que a sobreposição entre tais estados já se deu e, consequentemente, os estados claro e escuro já se formaram. Com o estado escuro obtido, a população é transferida para ele, deixando de interagir com o campo. Ainda em relação à figura 5.8, vemos que quão mais adentro do meio estamos, maior é o número de pulsos necessário para se obter a coerência máxima entre os níveis fundamentais.

Podemos observar alguns "degraus" na evolução da coerência entre os níveis fundamentais. Para discutirmos tal comportamento, tomemos como exemplo a profundidade óptica $\mu z = 3,2 \text{ (ps)}^{-1}$. A figura 5.9 mostra a evolução da coerência entre os níveis fundamentais e da população do nível excitado para essa profundidade óptica, bem como os espectros para 3 diferentes pulsos.

Como podemos observar, os pulsos relativos ao patamar de tais "degraus" (600° e 1200° pulsos, por exemplo) chegam a tal posição da amostra com sua frequência central removida quase que em sua totalidade e, consequentemente, não conseguem excitar uma quantia signi-



Figura 5.9: Coerência entre os níveis fundamentais (em azul) e população do nível excitado (em vermelho) para $\mu z = 3,2$ (ps)⁻¹ com $\theta = \pi/15$, $T_1/T = 10$ e $\Delta \varphi = 0$. As três figuras centrais mostram os espectros de frequência, de três diferentes pulsos (600°, 900° e 1200°), para essa profundidade óptica.

ficativa de população e coerência. Por outro lado, o 900º pulso atinge tal profundidade óptica ainda com uma parcela significativa de sua frequência central presente e, por isso, é capaz de excitar população e coerência. Para pulsos com essas características observa-se um aumento na população do nível excitado e uma queda acentuada na coerência entre os níveis fundamentais.

Assim, os "degraus" surgem devido à combinação das condições iniciais dos átomos localizados em $\mu z < 3,2 \text{ (ps)}^{-1}$ que podem ou não absorver por completo a frequência central dos pulsos.

Apresentamos na figura 5.10 as populações dos estados escuro e claro calculadas imediatamente antes da excitação e obtidas a partir das equações (4.11) e (4.10). Para $\mu z = 0$ (ps)⁻¹ (situação onde ainda não há propagação) os resultados são os mesmos obtidos no capítulo anterior (ver figura 4.6). Já para profundidades ópticas até $\mu z = 3,2$ (ps)⁻¹ vemos que com aproximadamente 1700 pulsos a população atômica já foi integralmente transferida do estado claro - que interage com o campo e logo pode causar absorção da frequência central do pulso - para o estado escuro que não mais interage com os novos pulsos. Para a profundidade óptica $\mu z = 6,4$ (ps)⁻¹ vemos que mesmo com 2400 pulsos o meio ainda apresenta população no estado claro e, assim, ainda é capaz de interagir com os pulsos.

Neste estudo da propagação do trem de pulsos ultra-curtos (no sistema de 3 níveis na



Figura 5.10: População dos estados claro (ρ_{CC}) e escuro (ρ_{EE}) em função do número de pulsos para 3 diferentes valores da profundidade óptica, com $\theta = \pi/15$, $T_1 = 10 T$ e $\Delta \varphi = 0$. Para melhor visualização é mostrado apenas 1 a cada 40 pontos e a linha tracejada é um guia visual.

configuração Λ) utilizamos, por questões numéricas, um trem de pulsos constituído por 2400 pulsos. Aumentando-se a quantidade de pulsos no trem, é possível observar o efeito da transparência eletromagneticamente induzida ao longo de todo o meio atômico. Atingindo tal situação, pulsos subsequentes irão propagar através da amostra sem interagir com a mesma e, consequentemente, terão seus perfis temporal e espectral inalterados.

5.4 Conclusão

Neste capítulo apresentamos os resultados relativos ao estudo da propagação de um trem de pulsos ultracurtos através de um meio atômico estendido constituído por sistemas de dois e três níveis na configuração lambda.

Em relação ao sistema de dois níveis, a absorção da frequência ressonante do pulso em relação à transição atômica faz com que o acúmulo coerente deixe de ocorrer após o pulso ter percorrido apenas uma pequena distância no interior do meio. A rápida absorção dessa frequência central permite a observação de oscilações de Rabi apenas em uma pequena região da amostra localizada entre a entrada e $\mu z = 58 \text{ (ns)}^{-1}$. Ao propagar-se por uma distância superior essas oscilações desaparecem, a inversão atômica deixa de ocorrer e para uma profundidade óptica de apenas 226 (ns)⁻¹, o único efeito do campo sobre o meio é uma pequena perturbação e os átomos permanecem em seus níveis fundamentais como pudemos observar através da figura 5.3.

A dinâmica da propagação não é a mesma para todos os pulsos uma vez que cada um deles encontra o meio atômico em uma condição inicial diferente e, além disso, dependente da posição do átomo na amostra. Isso faz com que enquanto alguns pulsos sofrem absorção de sua frequência central, outros acabam por ter sua frequência central amplificada devido à emissão estimulada.

Observamos também que efeitos de saturação podem ser induzidos sobre a amostra pelo campo de forma que este consegue propagar sem sofrer absorção em uma dada região localizada na porção inicial do meio.

Vemos então que, em se tratando de um sistema de dois níveis, para se obter resultados acumulativos significativos, deve-se evitar aquela situação onde ocorre propagação do pulso.

Para um meio atômico constituído de sistemas de três níveis na configuração lambda, devido ao efeito de acúmulo coerente, o trem de pulsos ultracurtos excita a coerência entre os níveis atômicos fundamentais. À medida que o número de pulsos aumenta, átomos localizados meio adentro também são coerentemente excitados e após um número suficientemente grande de pulsos a amostra estará excitada em toda sua extensão. Todos os átomos ao longo da amostra experimentam, então, uma sobreposição coerente entre os respectivos níveis fundamentais que dão origem - para cada átomo - ao estado escuro, desacoplado do campo externo, onde as populações atômicas são aprisionadas. Quando todo o meio estendido atinge tal configuração, os pulsos subsequentes irão se propagar ao longo do meio sem sofrer qualquer alteração em seu perfil temporal ou espectro de frequências.

DUBLETOS DE AUTLER-TOWNES E TRANSPARÊNCIA ELETROMAGNETICAMENTE INDUZIDA INVESTIGADOS VIA TREM DE PULSOS ULTRACURTOS

6.1 Introdução

As aplicações dos pulsos ultracurtos citadas na seção 2.3, o trem de pulsos não só investigava o sistema (campo de prova) assim como levava o átomo à sua configuração vestida, isto é, operava como campo de acoplamento também. Em ambos os experimentos, os pulsos eram sempre mantidos em ressonância com uma dada transição óptica enquanto que sua frequência de repetição é que era varrida, fazendo-se um estudo espectroscópico da estrutura hiperfina dos níveis atômicos fundamentais. Desta forma, a largura de linha do sinal é determinada pela taxa de decoerência entre os níveis hiperfinos fundamentais (γ_{bc}). Embora as larguras de linha observadas em tais experimentos sejam bastante estreitas, nenhuma delas apresentava característica subnatural, isto é, mais estreitas que γ_{bc} uma vez que este último valor está, geralmente, abaixo de 1 Hz.

Neste capítulo apresentamos os resultados obtidos em uma investigação teórica sobre a interação de um trem de pulsos ultracurtos com um sistema de três níveis na configuração Λ como mostrado na figura 6.1. Tal sistema atômico é excitado através de um laser de acoplamento contínuo e, como já discutido no capítulo 3, dependendo da frequência de Rabi do campo de acoplamento, um dubleto de Autler-Townes (AT) ou o efeito da transparência eletro-



Figura 6.1: (a) Sistema de três níveis na configuração lambda excitado por um campo contínuo de frequência de Rabi Ω e investigado por um trem de pulsos ultracurtos de frequência de Rabi $\alpha(t)$ e período de repetição T. Na figura é ilustrado o átomo em sua condição inicial, onde toda a população está localizada no nível fundamental que interage com o campo pulsado ($|b\rangle$). (b) Representação de um par de pulsos que constituem o trem: t_e é o tempo de efetiva interação do pulso com o átomo.

magneticamente induzida (EIT), com largura de linha subnatural, pode ser observado no regime estacionário.

Na aproximação de onda girante, o Hamiltoniano de interação entre o sistema atômico e o campo eletromagnético é dado por:

$$H_{int} = \frac{\hbar}{2} \begin{bmatrix} 0 & \Omega & 0 \\ \Omega & 2\delta & \alpha \\ 0 & \alpha & 2\delta \end{bmatrix},$$
(6.1)

onde o laser de acoplamento, de frequência de Rabi Ω , está em ressonância com a transição $|c\rangle \rightarrow |a\rangle$ e δ é a dessintonia do campo de prova, de frequência de Rabi α , em relação à transição $|b\rangle \rightarrow |a\rangle$. Em termos dos estados não perturbados, os auto-estados do Hamiltoniano de interação (6.1) são dados por [102]:

$$|+\rangle = \operatorname{sen}\Theta\operatorname{sen}\Phi|b\rangle + \cos\Phi|a\rangle + \cos\Theta\operatorname{sen}\Phi|c\rangle, \qquad (6.2)$$

$$|-\rangle = \operatorname{sen}\Theta\cos\Phi|b\rangle - \operatorname{sen}\Phi|a\rangle + \cos\Theta\cos\Phi|c\rangle$$
(6.3)

e

$$|E\rangle = \cos\Theta |b\rangle - \sin\Theta |c\rangle,$$
 (6.4)

onde os ângulos que misturam os estados atômicos não vestidos são definidos por tan $\Theta = \alpha/\Omega$ e tan $2\Phi = (\alpha^2 + \Omega^2)^{1/2}/\delta$. Vemos então que os estados $|\pm\rangle$ possuem componentes de todos os níveis do átomo não perturbado mas, diferentemente, o estado $|E\rangle$ não possui nenhuma contribuição do nível atômico excitado $|a\rangle$, sendo assim um estado escuro. Quando a população atômica é transferida para $|E\rangle$, não há a possibilidade de excitação para o nível $|a\rangle$. Uma das possibilidades para a evolução do sistema até que toda população esteja aprisionada em $|E\rangle$ é o bombeamento óptico levando a população ao nível excitado $|a\rangle$ que, em seguida, decai espontaneamente para $|E\rangle$ (CPT). Uma forma alternativa e muito mais rápida para o sistema evoluir para o estado $|E\rangle$ é a transparência eletromagneticamente induzida [10].

A auto energia do estado $|E\rangle$ é zero enquanto que os estados $|\pm\rangle$ possuem auto energias dadas por:

$$\epsilon_{\pm} = \delta \pm \frac{\hbar}{2} \sqrt{\delta^2 + \alpha^2 + \Omega^2}.$$
(6.5)

Quando o campo é quantizado, $|\pm\rangle$ e $|E\rangle$ combinados com o número de fótons constituem os estados vestidos do sistema átomo campo. Neste trabalho, eles correspondem aos estados vestidos semi-clássicos uma vez que trabalhamos na aproximação semi-clássica, isto é, não nos atemos ao número de fótons.

6.2 Modelo atômico

Abaixo apresentamos e discutimos o modelo atômico estudado bem como as características do trem de pulsos ultracurtos utilizado. A figura 6.1a mostra o sistema de três níveis na configuração Λ onde $|b\rangle$ e $|c\rangle$ são os níveis atômicos fundamentais e $|a\rangle$ é o nível excitado, o qual possuí um tempo de vida $T_1 = 1/\gamma = 28$ ns. A transição atômica $|c\rangle \rightarrow |a\rangle$ é acoplada por um laser contínuo que "veste" o átomo. Já a transição $|b\rangle \rightarrow |a\rangle$ é investigada através de um trem de pulsos ultracurtos, cuja frequência central de cada pulso individual é varrida em torno da respectiva ressonância. Portanto, diferentemente das configurações estudadas nos capítulos 4 e 5, onde o trem de pulsos não só investigava o sistema mas também era responsável por vestir o átomo, aqui os átomos são vestidos por um laser contínuo e apenas o campo de prova é constituído de um trem de pulsos ultracurtos.

Os pulsos que constituem o trem são idênticos, possuem um período de repetição T = 10

ns e interagem efetivamente com o átomo por um tempo t_e = 700 fs. Como a largura de cada pulso é algumas ordens de grandeza menor do que o período de repetição (o que equivale a escrever $t_E \ll T$), os pulsos são temporalmente bem espaçados, não ocorrendo sobreposição entre pulsos consecutivos. Além disso, como $T \ll T_1$ o átomo não possui, no intervalo entre pulsos, tempo suficiente para decair por completo e o efeito de acúmulo coerente ocorre.

Como apresentado e discutido no capítulo 3, independente do campo de prova, na situação em que a frequência de Rabi do campo de acoplamento é maior que a taxa de decaimento do nível excitado ($\Omega > \gamma$), o campo induzirá um desdobramento do tipo Stark no nível atômico excitado e o espectro de absorção passará a apresentar duas, e não mais uma, Lorentzianas de absorção (dubletos de Autler-Townes) como pode ser visto, por exemplo, na figura 3.6a (linha azul). Quando a relação entre a frequência de Rabi do campo de acoplamento e a taxa de decaimento do nível excitado é tal que $\Omega < \gamma$, a separação entre os níveis atômicos vestidos torna-se pequena o suficiente para gerar dois caminhos indistinguíveis para a absorção do campo de prova¹. Esses dois caminhos levam a uma interferência destrutiva e um cancelamento da absorção do campo de prova é observado quando este está em ressonância com a transição $|b\rangle \rightarrow |a\rangle$ ($\delta = 0$).

Neste trabalho observamos que a utilização do trem de pulsos ultracurtos permite estudar a dinâmica temporal da transferência da população atômica do nível fundamental para os estados atômicos vestidos induzidos pelo campo de acoplamento. Além disso, observamos uma largura de linha subnatural associada à ressonância de EIT. Ressonâncias do tipo EIT com largura de linha subnatural, que podem ser obtidas através de pulsos ultracurtos, poderão permitir melhorias nos estudos espectroscópicos para transições atômicas e moleculares. Alguns exemplos de aplicações de trens de pulsos ultracurtos foram apresentadas no final da seção 3.5.

6.3 Equações de movimento

Seguindo os passos apresentados no capítulo 3, as equações de Bloch para os elementos da matriz densidade do sistema interagente mostrado na figura 6.1a, já incluindo as taxas de

¹Aqui é equivalente dizer que a separação entre os níveis atômicos vestidos (Ω) é menor que a incerteza no tempo de vida do nível excitado.

decaimento, são dadas por:

$$\dot{\rho}_{aa}(t) = 0.5i\alpha(t)[\rho_{ba}(t) - \rho_{ab}(t)] + 0.5i\Omega[\rho_{ca}(t) - \rho_{ac}(t)] - \gamma\rho_{aa}(t);$$
(6.6a)

$$\dot{\rho}_{bb}(t) = 0.5i\alpha(t)[\rho_{ab}(t) - \rho_{ba}(t)] + 0.5\gamma\,\rho_{aa}(t); \tag{6.6b}$$

$$\dot{\rho}_{cc}(t) = 0.5i\Omega[\rho_{ac}(t) - \rho_{ca}(t)] + 0.5\gamma \,\rho_{aa}(t);$$
(6.6c)

$$\dot{\rho}_{ab}(t) = -\Gamma_{ab}\rho_{ab}(t) + 0.5i\alpha(t)[\rho_{bb}(t) - \rho_{aa}(t)] + 0.5i\Omega\,\rho_{cb}(t); \tag{6.6d}$$

$$\dot{\rho}_{ac}(t) = -\Gamma_{ac}\rho_{ac}(t) + 0.5i\Omega[\rho_{cc}(t) - \rho_{aa}(\tau)] + 0.5i\alpha(t)\rho_{bc}(t) \,\mathbf{e}$$
(6.6e)

$$\dot{\rho}_{cb}(t) = -\Gamma_{cb}\rho_{cb}(t) - 0.5i\alpha(t)\rho_{ca}(t) + 0.5i\Omega\rho_{ab}(t),$$
(6.6f)

onde $\Gamma_{ab} = \Gamma_{ba}^* = i \,\delta + \gamma/2$, $\Gamma_{ac} = \Gamma_{ca}^* = \gamma/2$ e $\Gamma_{cb} = \Gamma_{bc}^* = i \,\delta \mod \delta$ sendo a dessintonia da frequência central dos pulsos em relação à transição atômica $|b\rangle \rightarrow |a\rangle$. $\Omega = 2dE_{c0}/\hbar$ é a frequência de Rabi do campo de acoplamento, ressonante com a transição $|c\rangle \rightarrow |a\rangle$, e $\alpha(t) = (2dE_{p0}/\hbar)f_T(t)$ é a frequência de Rabi dependente do tempo do trem de pulsos. As equações (6.6) diferem daquelas apresentadas nos capítulos anteriores pelo fato de, aqui, existir um campo de acoplamento cw, acoplando o nível fundamental $|c\rangle$ com o excitado $|a\rangle$.

O trem de pulsos ultracurtos é constituído por pulsos idênticos e possui um envelope $\alpha_{Trem}(t)$ que varia lentamente dado por:

$$\alpha_{Trem}(t) = \sum_{n=0}^{\infty} \alpha(t - nT) e^{in\Delta\varphi},$$
(6.7)

na qual T = 10 ns é o período de repetição dos pulsos e $\Delta \varphi = 0$ é a diferença de fase entre dois pulsos consecutivos [98]. O perfil de cada um dos pulsos ultracurtos é gaussiano, possuí largura $\sigma = 100$ fs e é dado por:

$$\alpha(t) = \frac{\theta}{\sigma} e^{-\pi(t/\sigma)^2},\tag{6.8}$$

onde θ é a área de cada um dos pulsos.

A taxa de decaimento espontâneo do nível excitado $|a\rangle$ para os níveis fundamentais $|b\rangle$ e $|c\rangle$ é $\gamma = 2\pi \times 5,7$ MHz. Tal valor equivale a um tempo de vida do nível excitado próximo a 28 ns. Desta forma, o período de repetição dos pulsos ultracurtos é menor que o tempo de relaxamento do sistema atômico de tal modo que os átomos não possuem tempo suficiente para que, no intervalo entre pulsos, sua população e coerência relaxem por completo. Em

outras palavras, garantindo esta condição para o período de repetição dos pulsos - mais o fato de não existir diferença de fase entre pulsos consecutivos [61] - ocorrerá acúmulo de população e coerência no meio atômico a cada novo pulso que o atinge.

Para resolvermos o sistema de equações acopladas (6.6) distinguimos novamente dois intervalos de tempo, isto é, aquele onde o pulso efetivamente interage com o meio ($0 \le t \le t_e =$ 700 fs) e outro onde o pulso deixa de interagir com o meio e este fica sujeito somente aos efeitos causados pelo campo de acoplamento e pelos decaimentos espontâneos ($t_e < t \le T$). Durante o primeiro intervalo, como não é possível obter uma solução analítica para as equações (6.6), resolvemos o sistema numericamente através do método de Runge Kutta de 4^a ordem. Já no segundo intervalo acima citado, como o pulso deixa de interagir com o meio, o sistema (6.6) pode ser simplificado, se tornando:

$$\frac{\partial}{\partial t}\sigma_{aa}(t) = 0.5i\Omega[\sigma_{ca}(t) - \sigma_{ac}(t)] - \gamma\sigma_{aa}(t);$$
(6.9a)

$$\frac{\partial}{\partial t}\sigma_{bb}(t) = 0.5\gamma \,\sigma_{aa}(t); \tag{6.9b}$$

$$\frac{\partial}{\partial t}\sigma_{cc}(t) = 0.5i\Omega[\sigma_{ac}(t) - \sigma_{ca}(t)] + 0.5\gamma\,\sigma_{aa}(t); \tag{6.9c}$$

$$\frac{\partial}{\partial t}\sigma_{ab}(t) = -\Gamma_{ab}\sigma_{ab}(t) + 0.5i\Omega\,\sigma_{cb}(t); \tag{6.9d}$$

$$\frac{\partial}{\partial t}\sigma_{ac}(t) = -\Gamma_{ac}\sigma_{ac}(t) + 0.5i\Omega[\sigma_{cc}(t) - \sigma_{aa}(t)] \,\mathbf{e} \tag{6.9e}$$

$$\frac{\partial}{\partial t}\sigma_{cb}(t) = -\Gamma_{cb}\sigma_{cb}(t) + 0.5i\Omega\sigma_{ab}(t).$$
(6.9f)

Este último conjunto de equações constitui um sistema de equações diferencias de primeira ordem, acopladas, e com coeficientes constantes o qual pode ser resolvido analiticamente. A solução analítica é trivial e é obtida quando reescrevemos o sistema de equações (6.9) na seguinte forma:

$$\frac{\partial}{\partial t}\underline{R}(t) = -\underline{\underline{A}}' \cdot \underline{R}(t), \qquad (6.10)$$

onde a matriz $\underline{\underline{A}}'$ é constituída pelos coeficientes, independentes do tempo, do sistema de

equações diferenciais (6.9) e é dada por:

$$\underline{\underline{A}}' = \begin{pmatrix} \gamma & 0 & 0 & 0 & i\Omega/2 & 0 & 0 & -i\Omega/2 & 0 \\ +\gamma/2 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ +\gamma/2 & 0 & 0 & 0 & -i\Omega/2 & 0 & i\Omega/2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \Gamma_{ab} & 0 & 0 & 0 & -i\Omega/2 \\ i\Omega/2 & 0 & -i\Omega/2 & 0 & \Gamma_{ac} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \Gamma_{ba} & i\Omega/2 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & i\Omega/2 & \Gamma_{bc} & 0 & 0 \\ -i\Omega/2 & 0 & i\Omega/2 & 0 & 0 & 0 & \Gamma_{ca} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -i\Omega/2 & 0 & 0 & 0 & \Gamma_{cb} \end{pmatrix}.$$
(6.11)

Desta forma, a solução do sistema no intervalo de tempo em que o pulso deixa de agir sobre a transição $|b\rangle \rightarrow |a\rangle$, fica:

$$\underline{R}(t) = e^{-\underline{A'}t} \cdot \underline{R}(t_{0m}), \tag{6.12}$$

onde $\underline{R}(t_{0m})$ é a condição inicial encontrada pelo *m*-ésimo pulso que interage com o átomo e o vetor solução é dado por:

$$\underline{R}(t) = \begin{pmatrix} \rho_{aa}(t) & \rho_{bb}(t) & \rho_{cc}(t) & \rho_{ab}(t) & \rho_{ac}(t) & \rho_{ba}(t) & \rho_{bc}(t) & \rho_{ca}(t) & \rho_{cb}(t) \end{pmatrix}^{T}.$$
(6.13)

Resumindo, para obtermos as informações acerca do sistema imediatamente antes do próximo pulso, resolvemos numericamente para o primeiro intervalo de tempo considerado e utilizamos o resultado obtido em $t = t_e$ como condição inicial [$\underline{R}(t_{0m})$] para a solução analítica [equação (6.12)] que leva à nova condição inicial a ser experimentada pelo pulso seguinte. Esse procedimento é repetido iterativamente tantas vezes quanto for o número de pulsos que desejamos fazer interagir com o meio atômico.

6.4 Resultados

Apresentamos nesta seção os resultados que obtivemos para os dois regimes de acoplamento. Primeiramente discutimos os resultados para o caso em que $\Omega > \gamma$ no qual obtemos os dubletos de Autler-Townes e, em seguida, apresentamos nossos resultados para o regime de EIT, ou seja, para o caso em que $\Omega < \gamma$.

6.4.1 Regime de Autler-Townes

A figura 6.2 mostra o espectro de excitação, isto é, a população do nível excitado versus a dessintonia do campo de prova, no regime de acoplamento que nos permite observar os dubletos de AT com $\Omega = 5\gamma$ e $\theta = \pi/100$.

Nela vemos os dubletos de Autler-Townes, ou seja, duas Lorentzianas separadas pela frequência de Rabi do campo de acoplamento ($\Omega = 5\gamma$). Com apenas 3 pulsos (linha pontilhada) o trem de pulsos ainda não desenvolveu sua estrutura de pente de frequências e o campo de prova ainda não é capaz de resolver qualquer estrutura espectral. Por outro lado, a excitação causada por 10 pulsos (linha tracejada) já nos permite observar uma estrutura contendo dois picos. Conforme aumentamos o número de pulsos e, consequentemente a estrutura do pente de frequências vai se tornando mais pronunciada, os picos do dubleto de AT caminham para o estado estacionário. Com 100 pulsos (linha vermelha) os dubletos estão completamente formados e apresentam uma largura de linha igual a γ . O espectro apresentado foi obtido varrendo a dessintonia do campo de prova de uma quantia de 5γ em torno da ressonância. Tal quantia é menor que a separação em frequência dos dentes que constituem o pente de frequências ($\Delta \nu = 2\pi/T \approx 17, 5\gamma$), ou seja, os dubletos se formam na interação de apenas um dente do pente de frequências com o átomo vestido.

A dinâmica temporal de excitação é mostrada na figura 6.3a onde o caráter acumulativo da



Figura 6.2: População do nível excitado versus a dessintonia δ entre o campo pulsado e a transição $|b\rangle \rightarrow |a\rangle$ para o caso em que $\Omega = 5,0\gamma$, T = 10 ns, $\theta = \pi/100$ e $\Delta \varphi = 0$.



Figura 6.3: (a) População do nível excitado em função do número de pulsos com apenas um dos dubletos de Autler-Townes excitado pelo trem de pulsos com $\Omega = 5\gamma$ e $\delta = 2,5\gamma$. A linha tracejada é apenas um guia visual e o destaque mostra a evolução temporal completa da população do nível excitado entre os pulsos 30 e 35. A figura (b) mostra uma representação esquemática da configuração utilizada de forma que a linha azul representa os dubletos de AT e a linha reta vertical em preto representa o dente do pente de frequências.

excitação é facilmente observado. Nesta figura é apresentada a população do nível excitado imediatamente antes de cada pulso em função do número de pulsos. Ela foi obtida para o caso em que $\Omega = 5\gamma$ e fazendo $\delta = 2,5\gamma$ de modo que um dente do pente de frequências coincidisse com um dos dubletos de Autler-Townes, localizado em $+\Omega/2$, como mostra a figura 6.3b. Nesta situação vemos que cada pulso excita uma pequena parcela da população que aumenta a cada novo pulso, atingindo um estado de saturação com aproximadamente 100 pulsos. Como já observamos da análise da figura 6.2, essa é a quantia de pulsos necessária para que os dubletos estejam completamente formados.

O destaque da figura 6.3a mostra a evolução temporal completa da população atômica excitada entre os pulsos 30 e 35. Como podemos observar, no intervalo compreendido entre um pulso e outro observa-se um decaimento monotônico da população.

Ainda neste regime de acoplamento, a dinâmica da população do nível excitado muda sensivelmente quando fazemos com que dois dentes do pente de frequências, ao invés de apenas 1 como mostrado na figura 6.3b, sejam ressonantes com os dubletos de Autler-Townes. A figura 6.4 mostra nossos resultados para três diferentes situações onde dois dos dentes que constituem o pente de frequências coincidem com os dubletos. Nas figuras 6.4a, 6.4b e 6.4c mostramos as representações esquemáticas para essas três situações. Em cada um dos casos a curva em azul representa os dubletos de Autler-Townes e as linhas verticais em preto, cuja separação entre duas linhas adjacentes é de $2\pi/T$, representam os dentes do pente de frequências.

As figuras 6.4a', 6.4b' e 6.4c' mostram a dinâmica temporal da população do nível excitado obtidas para as três situações ilustradas nas figuras 6.4a, 6.4b e 6.4c, respectivamente. Como podemos ver, sempre que um pulso interage com o átomo ocorre um aumento abrupto da população do nível excitado, e podemos observar um comportamento oscilatório, com grande amplitude de oscilação, no intervalo de tempo compreendido entre dois pulsos consecutivos.

Em 6.4a e 6.4a' vemos o caso em que a frequência de Rabi do campo de acoplamento e consequentemente a separação dos dubletos de Autler-Townes - é dada por $\Omega = 2\pi/T$ e coincide com os dentes do pente de frequência localizados em $-\pi/T$ e π/T (para obtermos tal configuração é necessário que $\delta = -\pi/T$). Nesta situação a frequência de Rabi do campo de acoplamento é igual à separação em frequência dos dentes que constituem o pente e, no intervalo entre dois pulsos consecutivos, apenas uma oscilação é observada na população do nível excitado.

As figuras 6.4b e 6.4b' mostram o caso em que a frequência de Rabi do campo de acoplamento é o dobro da separação em frequência dos dentes do pente isto é, $\Omega = 4\pi/T$ ($\delta = 0$) e, assim, duas oscilações são observadas no intervalo entre dois pulsos consecutivos. Já para o caso ilustrado nas figuras 6.4c e 6.4c' a frequência de Rabi do campo de acoplamento é $\Omega = 8\pi/T$, ou seja, quatro vezes maior que a separação em frequência dos dentes do pente e quatro oscilações são observadas para a população excitada.

Vemos então que a frequência de oscilação da população do nível excitado no intervalo entre dois pulsos consecutivos é determinada pela separação dos dubletos de AT. Tais oscilações surgem do batimento quântico [116–118] entre os estados atômicos vestidos que foram induzidos pelo campo de acoplamento e coerentemente excitados pelo trem de pulsos ultracurtos.

A figura 6.5 mostra a evolução temporal da população do nível fundamental (ρ_{bb}) para o caso em que os dubletos estão separados por $\Omega = 2\pi/T$ e coincidem com os dentes localizados em $-\pi/T$ e π/T ($\delta = \pi/T$ - ver figura 6.4a e 6.4a'). Como podemos observar, sempre que um pulso interage com o átomo a população do nível fundamental $|b\rangle$ sofre uma diminuição e



103

Figura 6.4: Representação esquemática da situação onde a separação dos dubletos de Autler-Townes coincide com um par dos dentes que constituem o pente de frequências gerado pelo trem de pulsos ultracurtos. Em (a) os dubletos estão separados por $\Omega = 2\pi/T$ e coincidem com os dentes localizados em $-\pi/T$ e π/T ($\delta = \pi/T$), em (b) $\Omega = 4\pi/T$ coincidindo com os dentes em $\pm 2\pi/T$ ($\delta = 0$) e em (c) $\Omega = 8\pi/T$ coincidindo com os dentes em $\pm 4\pi/T$ ($\delta = 0$). A dinâmica temporal da população do nível excitado para cada um dos casos é mostrado nas figuras a', b' e c', respectivamente, e seus destaques mostram uma ampliação da respectiva curva entre os pulsos 30 e 35.

no intervalo entre os pulsos ela aumenta devido ao decaimento espontâneo do nível excitado $|a\rangle$. Nesse intervalo entre pulsos é possível observar uma oscilação completa da população



Figura 6.5: Evolução temporal da população do nível fundamental (ρ_{bb}) nas mesmas condições da figura 6.4a. O destaque mostra uma ampliação da curva entre os pulsos 30 e 35.

 ρ_{bb} . Essas oscilações ocorrem em um intervalo de tempo em que tal nível atômico não interage com nenhum campo, assim as oscilações observadas se devem a um decaimento oscilatório do nível excitado ligado a um fenômeno de interferência devido aos dois caminhos possíveis para a transição entre o nível excitado e o fundamental $|b\rangle$.

6.4.2 Regime de EIT

Na figura 6.6 apresentamos o espectro de excitação para o caso onde obtemos a transparência eletromagneticamente induzida propriamente dita, isto é, a frequência de Rabi do campo de acoplamento é menor que a largura de linha do nível excitado ($\Omega = 0.5\gamma$). Neste caso, mesmo com 10 pulsos (linha tracejada) ainda não é possível observar nenhum buraco no espectro de excitação. Com o aumento do número de pulsos (16 pulsos - linha preta) e a estrutura do pente de frequências começando a se manifestar, o buraco devido ao início da diminuição da absorção do campo pelo meio atômico começa a surgir no centro do pico de ressonância. Com 30 pulsos (linha azul) a estrutura dos dois picos é mais claramente visível e com 200 pulsos (linha vermelha) a janela de EIT está completamente formada, apresentando largura de linha subnatural e com a população do nível excitado indo a zero quando os pulsos são ressonantes com a transição $|b\rangle \rightarrow |a\rangle$.

De modo análogo ao caso onde o campo de prova também é constituído de um laser cw, a largura da ressonância de EIT é limitada pela potência do campo de acoplamento, isto é,



Figura 6.6: População do nível excitado versus a dessintonia δ entre o campo pulsado e a transição $|b\rangle \rightarrow |a\rangle$ para o caso em que $\Omega = 0.5\gamma$, T = 10 ns, $\theta = \pi/100$ e $\Delta \varphi = 0$.

pela frequência de Rabi Ω , e pela taxa de decoerência entre os níveis fundamentais γ_{bc} . Para baixas potências do campo de acoplamento, mas ainda em um regime tal que $\Omega >> \gamma_{bc}$, podemos desprezar a taxa de decaimento da coerência entre os níveis fundamentais e a largura do sinal de EIT possui apenas uma dependência linear em Ω [103]. Desta forma, se $\Omega << \gamma$ uma ressonância de EIT subnatural pode ser observada.

Comparando as figuras 6.6 e 3.8a podemos observar um comportamento similar da evolução temporal da ressonância de EIT. Em ambas as curvas tal sinal apresenta algumas oscilações durante sua evolução temporal, oscilações estas que desaparecem quando a situação estacionária é atingida.

A figura 6.7a mostra a população do nível excitado em função do número de pulsos ultracurtos do campo de prova para 4 diferentes intensidades do campo de acoplamento (Ω), mas ambas no regime de EIT, isto é, $\Omega < \gamma$. As quatro situações apresentadas são para o caso em que o campo de prova é ressonante com a transição $|b\rangle \rightarrow |a\rangle$, assim um dente do pente de frequências é ressonante com tal transição. Como podemos observar em ambas as situações, inicialmente a população do nível atômico excitado aumenta com o número de pulsos, com cada pulso excitando uma pequena parcela da população. Essa população vai se acumulando até atingir um valor máximo e, em seguida, diminui com o número de pulsos. Para o caso em que $\Omega = 0.5\gamma$ (círculos abertos em vermelho), a excitação máxima é obtida após a interação do



Figura 6.7: População do nível excitado em função do número de pulsos no regime de EIT e na condição de ressonância ($\delta = 0$). Em (a) a área do pulso é fixa e igual a $\theta = \pi/100$ e em (b) a frequência de Rabi do campo de acoplamento é mantida fixa e igual a $\Omega = 0,5\gamma$. Em ambos os casos T = 10 ns, a diferença de fase entre pulsos consecutivos é nula ($\Delta \varphi = 0$), é mostrado apenas um a cada dois pulsos e a linha tracejada é apenas um guia visual.

meio atômico com apenas 14 pulsos. Até esta quantidade de pulsos o espectro de excitação mostrado na figura 6.6 apresenta um único pico sem a estrutura característica da ressonância de EIT. Quando a população começa a diminuir (após o 14º pulso), um buraco começa a se formar no centro do espectro e com aproximadamente 200 pulsos a população do nível excitado se anula. Essa quantia de pulsos é exatamente aquela com a qual o espectro de excitação mostrado na figura 6.6 torna-se completamente resolvida.

Como não é possível obter uma solução analítica para um pulso arbitrário que interage com o meio, não temos uma expressão que nos mostre uma dependência quantitativa da dinâmica de excitação em função da frequência de Rabi do campo de acoplamento. Porém uma análise qualitativa pode ser feita através da figura 6.7a. Como podemos ver, quanto mais intenso é o campo de acoplamento, mais rapidamente o átomo deixa de interagir com o trem de pulsos ultracurtos. Isso ocorre devido ao fato de que quanto maior o valor de Ω , menor é a influência do campo de prova na formação do estado escuro e menos pulsos são necessários para levar o átomo a tal estado. Outra observação qualitativa que podemos obter da figura 6.7a é que a excitação atômica máxima diminui com o aumento de Ω . Isso ocorre porque para uma área (θ) e uma taxa de repetição (T) fixas, a taxa de acúmulo de excitação também permanece fixa, e como a EIT é obtida em um tempo mais curto para maiores intensidades do campo de acoplamento, há menos tempo para que a população se acumule. Tal conclusão pode ser confirmada através da figura 6.7b que também mostra a população do nível excitado em função do número de pulsos, mas com a intensidade do campo de acoplamento fixa e igual a $\Omega = 0.5\gamma$ e 3 diferentes valores da área do pulsos (intensidade do pulso). Como podemos observar, no limite de pequenas áreas, o número de pulsos necessários para se atingir excitação máxima independe da área do pulso. Porém, quanto maior a área do pulso, maior é o valor da população máxima excitada uma vez que a taxa de acúmulo é maior para pulsos de maior intensidade.

A figura 6.8 mostra as populações do níveis atômicos $|b\rangle$ (círculos em azul) e $|c\rangle$ (quadrados em vermelho) em função do número de pulsos para o caso em que $\Omega = 0.5\gamma$ e $\delta = 0$. Vemos que a população atômica transferida para o nível $|c\rangle$ atinge um valor máximo de aproximadamente 3,1% sem passar pelo nível excitado $|a\rangle$ cuja população máxima é de aproximadamente 0,35% como podemos observar através da figura 6.7a (círculos em vermelho). Nessas condições, após aproximadamente 200 pulsos quase toda a população atômica está aprisionada no nível $|b\rangle$ e novos pulsos que vierem a interagir com o átomo não transferirão população para os níveis $|a\rangle$ e $|c\rangle$. Em outros termos, o átomo estará em um estado escuro - que não interage com os pulsos do campo de prova - formado predominantemente pelo nível fundamental $|b\rangle$ e uma pequena contribuição do nível fundamental $|c\rangle$.



Figura 6.8: População dos níveis fundamentais em função do número de pulsos com $\Omega = 0.5\gamma$ e na condição de ressonância ($\delta = 0$). A taxa de repetição dos pulsos é igual a T = 10 ns, a diferença de fase entre pulsos consecutivos é nula ($\Delta \varphi = 0$), é mostrado apenas um a cada dois pulsos e a linha tracejada é apenas um guia visual.

Uma outra forma de se analisar o comportamento das populações atômicas, e que permite uma melhor compreensão sobre a dinâmica de excitação, é seguindo o vetor de onda $|\psi\rangle$ no espaço de Hilbert como mostrado na figura 6.9. Inicialmente, quando apenas o campo de acoplamento está ligado, fazendo com que o ângulo de mistura Θ seja nulo, tanto o vetor de onda $|\psi\rangle$ assim como o eixo $|b\rangle$ e o vetor $|E\rangle$ estão mutuamente alinhados uns aos outros como ilustrado na figura 6.9. A excitação pelo primeiro pulso do trem aumenta o ângulo de mistura Θ , rotacionando o vetor $|E\rangle$ em um plano perpendicular ao eixo $|a\rangle$. Essa rotação é muito pequena pois $\theta = \pi/100$. Porém com o aumento do número de pulsos a frequência de Rabi total do campo de prova aumenta e ocorre um "acúmulo de rotações" do vetor $|E\rangle$ levando a um aumento no ângulo de mistura. No caso representado pelos círculos em vermelho na figura 6.7a onde $\Omega = 0.5\gamma$, após 14 pulsos a interação entre o átomo e o campo de prova começa a diminuir e a rotação do vetor $|E\rangle$ diminui até parar quando a EIT é atingida. Devido ao fato de a EIT ocorrer em um tempo muito curto, a rotação experimentada pelo vetor $|E\rangle$ é pequena de modo que sua projeção ao longo do eixo $|c\rangle$ também é pequena. Isto justifica o fato de a população transferia para o nível $|c\rangle$ ser muito menor quando comparada àquela que permanece no nível $|b\rangle$, fazendo com que a contribuição de $|c\rangle$ ($\approx 3\%$) seja muito menor que a de $|b\rangle$ ($\approx 97\%$) na formação de $|E\rangle$.

O vetor de estado $|\psi\rangle$ pode seguir o vetor $|E\rangle$ adiabaticamente se a seguinte condição for



Figura 6.9: Representação do espaço de Hilbert na base do átomo não perturbado ($|a\rangle$, $|b\rangle$ e $|c\rangle$) e na base do átomo vestido ($|+\rangle$, $|-\rangle$ e $|E\rangle$). Com apenas o campo de acoplamento ligado, $|\psi\rangle$ está paralelamente alinhado com $|E\rangle$ (os vetores são mostrados em diferentes tamanhos para melhor visualização).

satisfeita [102]:

$$\left|\frac{\dot{\alpha}\Omega - \alpha\dot{\Omega}}{\alpha^2 + \Omega^2}\right| \ll \sqrt{\alpha^2 + \Omega^2}.$$
(6.14)

Em nosso caso, onde o campo de acoplamento é contínuo (cw), tal condição fica:

$$|\dot{\alpha}\Omega| \ll (\alpha^2 + \Omega^2)^{3/2}.$$
 (6.15)

Porém, como o campo de prova é constituído de um trem de pulsos ultracurtos, a condição (6.15) não é satisfeita para todos os instantes de duração do pulso. Isso faz com que $|E\rangle$ não seja seguido adiabaticamente por $|\psi\rangle$ e este último caminhará com um atraso em relação ao primeiro. Desta forma $|\psi\rangle$ irá desenvolver um movimento de precessão em torno de $|E\rangle$ levando ao surgimento de uma projeção sobre $|\pm\rangle$. Como resultado, uma pequena parcela da população será transferida para o nível não perturbado $|a\rangle$. Quanto menor o valor de Ω , maior será o atraso do vetor $|\psi\rangle$ em relação a $|E\rangle$ e maiores serão suas projeções sobre $|\pm\rangle$ e, consequentemente, maior será a população transitória transferida para o nível $|a\rangle$ como já havíamos concluído através da análise da figura 6.7a. Quando a EIT está plenamente formada (regime estacionário), a precessão do vetor $|\psi\rangle$ em torno de $|E\rangle$ desaparece e o vetor $|\psi\rangle$ volta a se alinhar paralelamente ao vetor $|E\rangle$.

6.5 Conclusões

Apresentamos os resultados obtidos no estudo teórico que realizamos sobre o processo de interação de um trem de pulsos ultracurtos com um sistema atômico de três níveis na configuração Λ excitado por um campo contínuo monocromático.

Diferentemente dos trabalhos discutidos nos capítulos 4 e 5, neste estudo trabalhamos em um regime tal que o campo de acoplamento é muito mais intenso quando comparado ao campo de prova ($\Omega \gg \alpha$). Desta forma a transferência da população atômica para o estado escuro ($|E\rangle$) ocorre de forma coerente, contrastando com as situações estudadas nos capítulos 4 e 5 onde tal transferência se dava através de bombeamento óptico. Além disso, embora tenhamos considerado um sistema atômico simples, de três níveis, degenerado e na configuração lambda, este modelo é bastante similar àqueles utilizados no estudo e descrição da transparência eletromagneticamente induzida nos casos onde ambos os campos, de prova e de acoplamento, são contínuos [103].

Mostramos que um trem de pulsos ultracurtos pode ser utilizado para se fazer espectroscopia de alta resolução em átomos vestidos, bem como permite o monitoramento da dinâmica de excitação de tais estados.

Mostramos ainda que com um número suficientemente grande de pulsos ultracurtos, mesmo sendo cada pulso individual fraco, é possível chegar ao estado estacionário para a excitação onde, dependendo da relação entre a frequência de Rabi do campo de acoplamento e a taxa de decaimento espontâneo do nível excitado, obtemos os dubletos de Autler-Townes ou EIT com largura de linha subnatural.

Os dubletos de Autler-Townes são coerentemente excitados quando fazemos coincidir a taxa de repetição dos pulsos com um sub-harmônico da frequência de Rabi do campo de acoplamento. Nesta condição batimentos quânticos entre os estados atômicos vestidos podem ser observados na evolução temporal da população do nível excitado.

Como citado anteriormente, utilizamos a condição de que apenas um dente do pente de frequências, associado ao trem de pulsos ultracurtos, era ressonante com a transição $|b\rangle \rightarrow |a\rangle$. Para tando o trem de pulsos possuía uma taxa de repetição de 100 MHz, que é próxima à separação hiperfina do nível excitado de átomos alcalinos como, por exemplo, é o caso do rubídio. Com essa taxa de repetição, em átomos alcalinos reais, mais de um dente do pente de frequências podem coincidir com diferentes nível excitados hiperfinos, levando a um desvio dos resultados que obtivemos em nosso estudo teórico. Por outro lado, pentes de frequências associados a trens de pulsos ultracurtos com taxas de repetição superiores a 1 GHz já foram experimentalmente demonstrados [46,104,105]. Desta forma, em uma possível implementação experimental de nossa proposta, tais coincidências já podem ser contornadas utilizando tais trens de pulsos como campo de prova.

O fato de o espectro de frequências de um trem de pulsos ultracurtos apresentar uma estrutura de "pente", com cada um dos dentes podendo ser muito estreito, permite aplicações em espectroscopia de alta resolução em sistemas atômicos e/ou moleculares. Em medidas de momentos de dipolo, ressonâncias do tipo EIT com largura de linha subnatural, obtidas através de um trem de pulsos ultracurtos, tornariam-se bastante importantes nas situações onde lasers cw com largura de banda estreita não existem [56]. Outra possível aplicação seria no processo de travamento de frequências, tornando-as mais estáveis dada a pequena largura de linha apresentada na ressonância de EIT obtida através de um trem de pulsos ultracurtos [106].

7 CONCLUSÕES

esta tese de doutorado realizamos uma investigação teórica da dinâmica da interação entre trens de pulsos ultracurtos e sistemas de dois e três níveis, este último na configuração lambda.

No capítulo 4 apresentamos os resultados do estudo sobre o efeito do acúmulo coerente na formação da transparência eletromagneticamente induzida de um trem de pulsos ultracurtos. Concluímos que cada pulso que constitui o trem transfere ao átomo uma pequena parcela de coerência e população que, devido ao fato de a taxa de repetição dos pulso ser maior que o a largura de linha do estado excitado, se acumula de pulso para pulso. Esse efeito de acúmulo coerente de excitação leva o átomo a atingir coerência total entre seus estados fundamentais, coerência esta que indica a formação de um estado escuro, sobreposição coerente de tais estados atômicos fundamentais. A população atômica é então transferida para este novo estado e deixa de interagir com os demais pulsos que venham a interagir com o meio. Em outras palavras, os pulsos subsequentes experimentam a transparência eletromagneticamente induzida. Mostramos com este trabalho que a dinâmica temporal da formação do estado escuro bem como do aprisionamento coerente de população poderia ser experimentalmente estudada a partir da medida da fluorescência do estado excitado em função do número de pulsos que excitam a amostra.

No capítulo 5 discutimos a influência da propagação do trem de pulsos ultracurtos em um meio atômico estendido constituído por átomos de 2 e três níveis. Analisamos o efeito da propagação no processo de acúmulo coerente de excitação induzida pelo trem de pulsos ultracurtos. Concluímos que em sistemas de dois níveis ocorre uma rápida absorção da frequência central do pulso, ressonante com a transição atômica, mesmo para uma pequena distância de propagação. Essa "perda" rápida da frequência central prejudica o efeito de acúmulo coerente e após uma pequena distância de propagação os pulsos apenas perturbam os átomos.

Verificamos também que nem todos os pulsos possuem a mesma dinâmica temporal desvio

ao fato de encontrarem o meio atômico em diferentes condições iniciais, pois estas dependem da posição do átomo ao longo do meio. Isso justifica o fato de alguns pulsos apresentarem amplificação de sua frequência central devido ao processo de emissão estimulada induzidas pelos próprios pulsos. Além disso, também observamos que efeitos de saturação são induzidos na amostra, levando a um equilíbrio entre excitação e decaimento de forma que novos pulsos passam a se propagar sem sofrer absorção.

Na propagação do trem de pulsos em um meio estendido constituído de sistemas de três níveis na configuração lambda, observamos a ocorrência do efeito de acúmulo coerente. Cada um dos pulsos excita uma pequena parcela da coerência atômica entre os níveis fundamentais, levando ao surgimento dos estados claro e escuro ao longo da amostra. Como a população atômica é transferida, pulso a pulso, para o estado escuro, ela deixa de interagir com pulsos subsequentes e estes, por sua vez, propagam-se através do meio atômico sem sofrer absorção devido à transparência eletromagneticamente induzida.

Nos capítulos 4 e 5 o campo pulsado não só excitava, mas também investigava o meio atômico. Diferentemente dessa situação, no capítulo 6 estudamos a dinâmica de interação de um sistema de três níveis na configuração lambda mas com a diferença de que a excitação era feita através de um campo contínuo. Esse campo contínuo acoplava a transição $|c\rangle \rightarrow |a\rangle$ levando o átomo à configuração do átomos vestido - enquanto que o trem de pulsos ultracurtos operava como campo de prova, investigando a transição $|b\rangle \rightarrow |a\rangle$.

Após um número suficientemente grande de pulsos a excitação atinge seu estado estacionário onde ou os dubletos de Autler-Townes ou a transparência eletromagneticamente induzida - com largura de linha subnatural - são completamente resolvidos.

Mostramos então que é possível realizar espectroscopia de alta resolução desses estados atômicos vestidos através de um trem de pulsos ultracurtos bem como podemos monitorar o comportamento da dinâmica da população do estado excitado. Mostramos ainda que ao fazermos coincidir a separação de um dado par de dentes do pente de frequências com a separação dos dubletos de Autler-Townes podemos induzir batimentos quânticos dos estados atômicos vestidos.

DETECÇÃO OPTOGALVÂNICA DO BOMBEAMENTO ÓPTICO EM UM MEIO ATÔMICO ABERTO NA CONFIGURAÇÃO CASCATA

A.1 Introdução

qui apresento e discuto os resultados que obtivemos sobre a influência das colisões no bombeamento óptico de um sistema de 3 níveis (aberto) na configuração cascata, excitado e investigado por dois campos contínuos, como mostra a figura A.1a.

A motivação para este trabalho veio dos resultados experimentais obtidos por uma colega no laboratório de nosso grupo de pesquisa. Apresento tais resultados na forma de apêndice



Figura A.1: (a) Sistema de três níveis na configuração cascata (aberto) para o átomo de Ca acoplado por um laser de comprimento de onda 586 nm (amarelo) e investigado com um laser de comprimento de onda igual a 423 nm (azul). (b) Representação esquemática do experimento. Maiores detalhes do aparato experimental podem ser obtidos em [107].

devido ao fato deste trabalho desviar um pouco do assunto central de minha tese de doutorado.

Em tal trabalho experimental [107] foi realizada uma espectroscopia de duas cores na transição $(4s^2) {}^1S_0 \rightarrow (4s4p) {}^1P_1 \rightarrow (4p^2) {}^1D_2$ do átomo de cálcio em um gás constituído de átomos neutros.

O sistema atômico investigado é mostrado na figura A.1a e consiste de um sistema na configuração cascata, aberto, excitado por dois campos contrapropagantes fortes. O campo de acoplamento, cujo comprimento de onda é $\lambda_c = 586$ nm, é ressonante com a transição atômica $(4s4p)^1P_1 \rightarrow (4p^2)^1D_2$ e o campo de prova, cujo comprimento de onda central é $\lambda_p = 423$ nm, é varrido em torno da ressonância com a transição $(4s^2)^1S_0 \rightarrow (4s4p)^1P_1$. O tempo de vida do nível atômico intermediário $[(4s4p)^1P_1]$ é $\gamma_1 = 2\pi \times 34$ MHz e a taxa de decaimento do nível excitado $(4p^2)^1D_2$ para o intermediário $(4s4p)^1P_1$ é $\gamma_2 = 2\pi \times 11$ MHz. O nível excitado também decai, a uma taxa de $\gamma_3 = 2\pi \times 0,18$ MHz [108], para o nível $(4s5p)^1P_1$ (não mostrado na figura) que, por sua vez, decai para o nível metaestável $(3d4s)^1D_2$ (também não mostrado na figura). Este último nível possui um tempo de vida muito maior do que o tempo de difusão dos átomos para fora da região de interação com os campos, tornado o sistema aberto.

Geralmente este tipo de experimento é realizado em células de vapor atômico, porém o cálcio possui uma pressão de vapor muito baixa à temperatura ambiente dificultando a utilização de tal dispositivo, pois seria necessário aquecer o mesmo a temperaturas muito altas afim de obtermos uma quantidade de átomos razoável. Assim, a solução encontrada foi utilizar uma lâmpada de catodo oco (HCL, sigla em inglês para *"hollow-cathode lamp"*) - mostrada em vermelho na figura A.1b - alimentada de átomos de cálcio através de um cilindro de cálcio em seu interior. Este dispositivo, preenchido com criptônio que atua como um gás de amortecimento (*"buffer gas"*), é capaz de produzir uma nuvem de átomos de cálcio cuja densidade pode ser controlada variando-se a corrente elétrica que atravessa o cilindro. Maiores detalhes técnicos acerca do experimento podem ser obtidos em [107].

Além da detecção de natureza não óptica que é a optogalvânica, o experimento também permitiu, através do fotodetector PD_1 , a medida da fluorescência do meio e, através do fotodetector PD_2 , da absorção do campo de prova (detecções estas de natureza óptica).

A figura A.2 mostra os resultados experimentais obtidos para o sinal optogalvânico (\circ azul), transmissão (\Box preto) e fluorescência (\triangle vermelho) em função da dessintonia do campo de



Figura A.2: Sinal optogalvânico (\circ azul), transmissão (\Box preto) e fluorescência (\triangle vermelho), ambos em unidades arbitrárias, em função da dessintonia do campo de prova em relação à transição ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{1}P_{1}$. Ambas as curvas foram obtidas com um campo de acoplamento de intensidade 707 mW/cm² ($\Omega \approx$ 1,15 γ_{1}) e com campo de prova de intensidade 37 mW/cm² ($\alpha \approx 0.54\gamma_{1}$).

prova em relação à transição $|b\rangle \rightarrow |a\rangle$ na situação em que $\Omega \approx 1,15\gamma_1$ e $\alpha \approx 0,54\gamma_1$.

Apesar da grande similaridade dos sinais ópticos com aqueles da transparência eletromagneticamente induzida, o sinal optogalvânico é um elemento que nos permite mostrar que, na verdade, o sinal observado era devido ao bombeamento óptico e não à EIT.

As mudanças de velocidade devido às colisões (VCC, sigla em inglês para "Velocity Changing Collisions") dos átomos de cálcio com o gás de amortecimento limitam a resolução da espectroscopia sub-doppler em HCL [109]. Além disso, tais colisões transferem os átomos de uma classe de velocidade para outra, retirando e colocando os átomos em ressonância com os campos de acoplamento e de prova. Bjorkholm e colegas mostraram que as VCC's podem reduzir significativamente os efeitos do bombeamento óptico [110].

A.2 Análise das colisões

Para analisarmos a influência das VCC's nos resultados experimentais, resolvemos numericamente as equações de Bloch semiclássicas para os elementos da matriz densidade no regime estacionário. Geralmente as VCC's são modeladas considerando que para os elementos diagonais da matriz densidade as colisões resultam em mudanças de velocidades e uma consequente redistribuição da população atômica através das diferentes classes de velocidades. Assim, para as populações atômicas temos:

$$\left[\frac{\partial}{\partial t}\rho_{ii}(v,t)\right]_{col} = -\Gamma_{ii}(v)\rho_{ii}(v,t) + \int dv' W_{ii}(v'\to v)\rho_{ii}(v',t),\tag{A.1}$$

onde $W_{ii}(v' \to v)$ é o "kernel" que descreve o tipo de colisão envolvida e a taxa de colisões é representada por $\Gamma_{ii}(v) = \int W_{ii}(v' \to v) dv'$. O primeiro termo do lado direito da equação A.1 representa a população que é retirada da classe de velocidades ressonante com o campo devido às colisões e o segundo termo dá conta da população atômica que é levada para a classe de velocidades que é ressonante com o campo devido a outras colisões. Os efeitos das VCC's nos elementos não diagonais da matriz densidade levam a uma interrupção de fase e são modelados por:

$$\left[\frac{\partial}{\partial t}\rho_{ij}(v,t)\right]_{col} = -\gamma^c_{ij}(v)\rho_{ij}(v,t), \qquad (A.2)$$

onde $\gamma_{ij}^c(v)$ é a taxa de alargamento homogêne
o devido às colisões.

Colisões fortes, que levam a uma rápida termalização após poucas colisões, ocorrem sempre que a razão entre a massa do átomo ativo e a massa do átomo de amortecimento é menor ou igual a 1 [111]. No caso do experimento realizado, tal razão é $m_{Ca}/m_{Kr} \approx 0,48$. Para situações como esta, onde as colisões podem ser consideradas fortes, a probabilidade de um átomo ter uma dada velocidade após uma colisão independe da velocidade que possuía antes de tal colisão [112]. Desta forma:

$$W_{ii}(v' \to v) \approx W_{ii}(v) = \Gamma_0 f(v), \tag{A.3}$$

onde $f(v) = e^{-v^2/u^2}/(u\sqrt{v})$ é a distribuição de velocidades de Maxwell-Boltzman e a velocidade mais provável para os átomos é $u = \sqrt{2k_BT/m}$. Nessas condições, as equações de Bloch semiclássicas, na aproximação de onda girante, para os elementos da matriz densidade que
descrevem a interação do campo com os átomos são dadas por:

$$\begin{split} \dot{\rho}_{bb} &= -0.5i\alpha(\rho_{ab} - \rho_{ba}) + \gamma_{1}\rho_{aa} - \Gamma_{0}\rho_{bb} + \int W(v')\rho_{bb}(v')dv' - (r_{a} + r_{b})\rho_{bb} - r(\rho_{bb} - \rho_{bb}^{0}); \\ \dot{\rho}_{aa} &= -0.5i\Omega(\rho_{ca} - \rho_{ac}) - 0.5i\alpha(\rho_{ab} - \rho_{ba}) - \gamma_{1}\rho_{aa} + \gamma_{2}\rho_{cc} - \Gamma_{0}\rho_{aa} + \int W(v')\rho_{aa}(v')dv' \\ &+ r_{a}\rho_{bb} - r_{b}\rho_{aa} - r(\rho_{bb} - \rho_{bb}^{0}); \\ \dot{\rho}_{cc} &= -0.5i\Omega(\rho_{ac} - \rho_{ca}) - \gamma_{2}\rho_{cc} - \gamma_{3}\rho_{cc} - \Gamma_{0}\rho_{cc} + \int W(v')\rho_{cc}(v')dv' + r_{c}\rho_{bb} - r\rho_{cc}; \\ \dot{\rho}_{ab} &= -\Gamma_{ab}\rho_{ab} - 0.5i\alpha(\rho_{bb} - \rho_{aa}) - 0.5i\Omega\rho_{cb} - r\rho_{ab} - \gamma_{ab}^{c}\rho_{ab}; \\ \dot{\rho}_{ca} &= -\Gamma_{ca}\rho_{ca} - 0.5i\Omega(\rho_{aa} - \rho_{cc}) - 0.5i\alpha\rho_{cb} - r\rho_{ca} - \gamma_{ca}^{c}\rho_{ca} \mathbf{e} \\ \dot{\rho}_{cb} &= -\Gamma_{cb}\rho_{cb} - 0.5i\Omega\rho_{ab} + 0.5i\Omega\rho_{ca} - r\rho_{cb} - \gamma_{cb}^{c}\rho_{cb}, \end{split}$$

onde $\Gamma_{ab} = 0.5\gamma_1 + i(\delta + \vec{k}_p \cdot \vec{v})$, $\Gamma_{ca} = 0.5(\gamma_1 + \gamma_2 + \gamma_3) + i(\Delta + \vec{k}_c \cdot \vec{v})$ e $\Gamma_{cb} = 0.5(\gamma_2 + \gamma_3) + i[\delta + \Delta + (\vec{k}_p + \vec{k}_c) \cdot \vec{v}]$; δ é a dessintonia do campo de prova e $\Delta = 0$ a dessintonia do campo de acoplamento. Os vetores de onda dos campos de prova e acoplamento são, respectivamente, \vec{k}_p e \vec{k}_c . r_a e r_c são taxas de bombeamento incoerente através das quais a população é transferida aos níveis $|a\rangle$ e $|c\rangle$, respectivamente, devido às colisões. A taxa de difusão dos átomo para fora da região de interação com o feixe laser é r e é muito maior do que a taxa de decaimento do nível excitado $|c\rangle$. Na ausência dos campos e das colisões os átomos estão todos no nível fundamental e distribuídos por todas as classes de velocidades de forma que $\rho_{bb}^0 = f(v)$. As frequências de Rabi para os campos de acoplamento e prova são, respectivamente, $\Omega = 2\mu_{ca}E_c/\hbar$ e $\alpha = 2\mu_{ba}E_p/\hbar$.

Obtemos a população do nível intermediário $|a\rangle$ integrando $\rho_{aa}(v, \delta)$ através de todas as velocidades possíveis para o átomo, isto é,

$$P_{aa}(\delta) = \int_{-\infty}^{\infty} \rho_{aa}(v,\delta) dv.$$
(A.5)

A partir dos parâmetros conhecidos, ajustando as frequências de Rabi e as taxas de colisão $(\gamma_{ij}^c \in \Gamma_0)$ reproduzimos os resultados experimentais como mostrado na figura A.3a.

Os círculos cheios representam os resultados experimentais para fluorescência que é proporcional à população do nível $|a\rangle$. A linha sólida azul mostra a população do nível intermediário calculada através da equação (A.5) em função da dessintonia do campo de prova (δ). Como podemos observar, há um bom acordo entre os resultados teórico e experimental



Figura A.3: (a) Sinal obtido experimentalmente para a fluorescência azul (• preto) já apresentado na figura A.2 e a população calculada para o nível intermediário (linha sólida em azul) em função da dessintonia do campo de prova. As frequências de Rabi ajustadas para os campos de prova e acoplamento são, respectivamente, $\alpha = 1,0\gamma_1$ e $\Omega = 2,0\gamma_1$. A linha tracejada em azul mostra a mesma população calculada para um sistema fechado ($\gamma_3 = 0$). (b) Fluorescência amarela, em unidades arbitrárias, detectada experimentalmente para o campo amarelo (linha sólida em preto) e a população calculada para o nível excitado $|c\rangle$ (linha tracejada em azul) em função da dessintonia do campo de acoplamento.

e uma diminuição na população do nível excitado é observada na situação de ressonância do campo de prova com a transição $|b\rangle \rightarrow |a\rangle$. Além disso, a largura de linha do espectro calculado também está de acordo com o resultado experimental. Entretanto, nossos cálculos reproduzem os resultados experimentais somente quando fazemos todas as taxas colisionais iguais a zero. Mesmo para pequenos valores de tais taxas, a profundidade do "dip" fica significativamente diminuída, desviando dos resultados obtidos experimentalmente.

Na ausência de colisões, no caso em que fazemos $\gamma_3 = 0$, isto é, tornamos nosso sistema fechado, o "dip" observado para a população do nível intermediário é fortemente reduzido como podemos observar na figura A.3a (linha azul tracejada). Nossos cálculos apresentam bom acordo com os resultados experimentais para $\gamma_3 = 0,005$, ou seja, uma leve abertura no sistema é responsável pela considerável diminuição da população do nível excitado na condição de ressonância do campo de prova com a transição $|b\rangle \rightarrow |a\rangle$.

Embora o sinal observado nos remeta intuitivamente à situação de EIT (uma vez que ocorre diminuição da absorção do campo de prova na ressonância deste com a respectiva transição), nossos cálculos também permitem mostrar o contrário. Resolvendo as equações de taxa para o sistema aberto obtemos a população do nível intermediário e reproduzimos os resultados

experimentais, mostrando que as coerências atômicas não possuem influência sobre os resultados. Outra evidência a favor do bombeamento óptico e contra a EIT pode ser vista na figura A.3b. O resultado apresentado nessa figura é para o caso onde o campo de prova (azul) é mantido fixo na ressonância com a transição $(4s^2) {}^1S_0 \rightarrow (4s4p) {}^1P_1$ enquanto que o campo de acoplamento (amarelo) é varrido em torno da transição $(4s4p) {}^1P_1 \rightarrow (4p^2) {}^1D_2$ (ver figura A.1). Como podemos observar, a população calculada para o nível excitado, bem como a fluorescência medida para o campo de acoplamento, não se anulam na condição de ressonância, efeito que deveria ocorrer caso se tratasse de EIT.

A.3 Conclusões

Fizemos uma análise das colisões entre os átomos do gás de amortecimento e os átomos ativos (Ca) nas mudanças de velocidade sofridas por estes últimos e consequente alteração na curva, por exemplo, de absorção do campo de prova. Verificamos que tais colisões não possuem efeito algum sobre o sinal de absorção experimentalmente detectado. Na realidade o sinal medido deve-se ao fato de tratarmos de um sistema aberto ($\gamma_3 \neq 0$) como ficou evidente da análise da figura A.3a.

Obtivemos resultados teóricos que estão de acordo com os experimentais tanto no que diz respeito à população intermediária calculada através das equações de taxa, assim como no que diz respeito à população do nível excitado. A primeira deixou evidente que as coerências atômicas não exercem efeito significativo no sinal observado e a segunda mostra que, na condição de ressonância do campo de prova com a transição $|b\rangle \rightarrow |a\rangle$, há população sendo transferida para o nível atômico excitado. Esses dois fatos nos permitem concluir que estamos diante de um efeito de bombeamento óptico e não de transparência eletromagneticamente induzida.

B Propagação de um pulso δ em um sistema de dois níveis

m estudo sobre a propagação de pulsos de área pequena através de um meio atômico ressonante foi realizada e publicada em 1970 por M. D. Crisp [99]. Em tal artigo o autor apresenta soluções analíticas para diferentes formatos de pulsos e uma solução numérica para o caso de um pulso de formato Gaussiano.

Como já discutido no capítulo 5, é possível se obter uma solução analítica para o formato de um pulso que se propaga em um meio atômico estendido desde que trabalhemos no regime de excitação fraca. Para um pulso com formato delta na entrada do meio atômico, a equação (5.3) fica

$$\alpha(0,t) = \theta \,\delta(t),\tag{B.1}$$

onde θ é a área do pulso. Tomando a transformada de Fourier da equação (5.2), substituindo Γ por γ e resolvendo para a polarização atômica temos:

$$\tilde{\rho}_{ba}(z,\nu) = \frac{0.5 \, i \, \tilde{\alpha}(z,\nu) [1-2 \, \tilde{\rho}_{aa}(z,\nu)]}{\gamma + 2\pi \, i \, \nu}.\tag{B.2}$$

No regime de excitação fraca o nível excitado permanece sem população significativa, toda população se mantém no nível fundamental e $\rho_{aa}(t) = \tilde{\rho}_{aa}(\nu) \approx 0$. Com esta aproximação, substituindo (B.2) na transformada de Fourier da equação (5.4) ficamos com a seguinte equação diferencial:

$$\frac{\partial}{\partial z}\tilde{\alpha}(z,\nu) = \frac{0,5\,i\,\tilde{\alpha}(z,\nu)}{\gamma - 2\pi\,i\,\nu} = \tilde{\beta}(\nu)\tilde{\alpha}(z,\nu),\tag{B.3}$$

onde

$$\tilde{\beta}(\nu) = \frac{\mu}{\Gamma - 2\pi \, i \, \nu} \tag{B.4}$$

é uma função que depende apenas da frequência ν e, portanto, a solução da equação (B.3) assume a forma:

$$\tilde{\alpha}(z,\nu) = \tilde{\alpha}(0,\nu) e^{-\beta(\nu)z}.$$
(B.5)

Assim, a solução para $\alpha(z,t)$ é obtida tomando-se a transformada de Fourier inversa do último resultado, ou seja,

$$\alpha(z,t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{\alpha}(0,\nu) \, e^{-\tilde{\beta}(\nu)z} \, e^{-2\,\pi\,i\,\nu\,t} \tag{B.6}$$

ou, utilizando-se $e^{-\beta(\nu)z} = \sum_{l=0}^{\infty} \frac{z^l}{l!} \beta^l(\nu)$,

$$\alpha(z,t) = \sum_{l=0}^{\infty} \frac{z^l}{l!} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{\alpha}(0,\nu) \,\tilde{\beta}^l(\nu) \, e^{-2\,\pi\,i\,\nu\,t}. \tag{B.7}$$

Do teorema da convolução temos que a transformada de Fourier da convolução entre duas funções é igual ao produto da transformada dessas funções [113], isto permite-nos reescrever a equação (B.7) como segue:

$$\alpha(z,t) = \sum_{l=0}^{\infty} \frac{z^l}{l!} \int_{-\infty}^{+\infty} \alpha(0,t') \,\beta_l(t-t') \,dt', \tag{B.8}$$

com

$$\beta_l(t-t') = \mu^l \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{1}{(\gamma - 2\pi i\nu)^l} e^{-2\pi i\nu t} d\nu,$$
(B.9)

onde utilizou-se a equação (B.4). Mas

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{1}{(\gamma - 2\pi i\nu)^l} e^{-2\pi i\nu t} d\nu = \frac{t^{l-1}}{\Gamma(l)} e^{-\gamma t}$$
(B.10)

onde, aqui, $\Gamma(l)$ representa a função gamma. Com isso reescrevemos a equação (B.8) na forma:

$$\alpha(z,t) = \sum_{l=0}^{\infty} \frac{(\mu z)^l}{l!} \int_{-\infty}^{+\infty} \alpha(0,t') \, \frac{(t-t')^{l-1}}{(l-1)!} \, e^{-\gamma(t-t')} \, dt'. \tag{B.11}$$

Substituindo (B.1) em (B.11), torna-se simples resolver a última integral e:

$$\alpha(z,t) = \sum_{l=0}^{\infty} \frac{(\mu z)^l}{l!} \frac{t^{l-1}}{l-1} e^{-\gamma t}.$$
(B.12)

A soma que aparece na última equação pode ser identificada como uma função de Bessel de primeira ordem e, finalmente,

$$\alpha(z,t) = -e^{-\gamma t} \sqrt{\frac{\mu z}{t}} J_1[2\sqrt{\mu z t}].$$
(B.13)

Esta última expressão fornece as alterações sofridas no envelope do pulso devido à presença do meio atômico. Portanto, o formato total do pulso em função da posição no meio (z) e

do tempo (*t*) é obtida através da sobreposição do pulso de entrada (função delta) com as modificações dadas pela equação (B.13), isto é,

$$\alpha_T(z,t) = \theta\{\delta(t) - H(t)e^{-\gamma t}\sqrt{\frac{\mu z}{t}}J_1[2\sqrt{\mu z t}]\},\tag{B.14}$$

onde H(t) é a função degrau de Heaviside.

A figura B.1 mostra $\alpha(z, t)$ para o caso em que um pulso delta de área $\theta = \pi/100$ propaga-se através de um meio atômico estendido. A situação apresentada é para o caso em que fizemos $\gamma = 1$ e a profundidade óptica é $\mu z = 100$. Como se pode observar, o perfil temporal do pulso é fortemente afetado pela propagação e um comportamento oscilatório é observado.



Figura B.1: Alterações no formato temporal de um pulso delta devido à propagação através de um meio estendido constituído por sistemas de dois níveis. A área do pulso é $\theta = \pi/100$ e, fazendo $\gamma = 1$, a profundidade ópitca é dada por $\mu z = 100$.

С Оме́торо de Adams-Bashforth-Moulton

S métodos de Euler, Runge-Kutta e Taylor são chamados de *método de passo único* uma vez que eles utilizam apenas um ponto anterior para calcular o seguinte, somente o ponto y_k é necessário para se calcular y_{k+1} . O método de Adams-Bashforth-Moulton (ABM) de ordem *m* necessita dos *m* pontos anteriores para calcular o próximo, sendo assim tal método é chamado de método de *múltiplos passos*. A vantagem deste último método é que o erro local¹ pode ser determinado e, assim, um termo de correção pode ser adicionado ao resultado, aumentando a precisão. Ainda é possível determinar se o passo utilizado é suficientemente pequeno para se obter a precisão desejada de forma que podese evitar a utilização de um passo demasiadamente pequeno e, consequentemente, aumentar desnecessariamente o tempo de processamento.

Método ABM de 2^a ordem

Nosso objetivo aqui é resolver o problema de valor inicial dado por:

$$\frac{dy}{dt} = f\left[t, y(t)\right],\tag{C.1}$$

onde *t* pertence ao intervalo $a \le t \le b$ e com y(a) = k, a condição inicial do problema. Para tanto, façamos a integral da equação (C.1) desde t_k até t_{k+1} obtendo:

$$y(t_{k+1}) = y(t_k) + \int_{t_k}^{t_{k+1}} f[t, y(t)]dt,$$
(C.2)

com k = 0, 1, ..., n-1. Como não conhecemos y(t), não podemos calcular a integral da equação (C.2). Temos então que procurar por um polinômio interpolador $[p_{m-1}(t)]$ que passe pelos

¹Erro ao final de cada passo do processo.

pontos $\{t_k, f[t_k, y(t_k)]\}$, $\{t_{k-1}, f[t_{k-1}, y(t_{k-1})]\}$, ..., $\{t_{k-m+1}, f[t_{k-m+1}, y(t_{k-m+1})]\}$, onde $y(t_k)$ são as aproximações previamente obtidas para y(t).

Para ilustrar o restante do procedimento, olhemos para o caso de segunda ordem (m = 2). Neste caso o polinômio interpolador [$p_1(t)$] é a equação de reta que passa pelos pontos [$t_{k-1}, f(t_{k-1}, y_{k-1}]$ e [$t_k, f(t_k, y_k]$ dada por:

$$p_1(t) = B + At, \qquad (C.3)$$

onde o passo é dado por $h = t_{k+1} - t_k = t_k - t_{k-1}$.

Calculando $p_1(t)$ em $t = t_{k-1}$ e t_k ficamos com o seguinte sistema de equações:

$$\begin{cases}
At_k + B = p_1(t_k) \\
At_{k-1} + B = p_1(t_{k-1}).
\end{cases}$$
(C.4)

A partir deste sistema de equações obtemos as seguintes relações para *A* e *B*:

$$A = \frac{p_1(t_k) - p_1(t_{k-1})}{h}$$
(C.5)

e

$$B = \frac{p_1(t_{k-1})t_k - p_1(t_k)t_{k-1}}{h}.$$
 (C.6)

Substituindo (C.3) no lugar de f[t, y(t)] em (C.2) e fazendo a integral ficamos com:

$$y(t_{k+1}) = y(t_k) + \frac{A}{2}(t_{k+1}^2 - t_k^2) + B(t_{k+1} - t_k).$$
(C.7)

Substituindo (C.5) e (C.6) em (C.7), após um pouco de álgebra, chegamos à seguinte expressão que permite calcular o valor de y no instante t_{k+1} a partir do conhecimento dos valores de y em t_{k-1} e t_k :

$$y(t_{k+1}) = y(t_k) + \frac{3h}{2} f[t_k, y(t_k)] - \frac{h}{2} f[t_{k-1}, y(t_{k-1})].$$
(C.8)

A expressão (C.8) é conhecida como fórmula de Adams-Bashforth de 2^a ordem. Trata-se de uma fórmula explicita pata $y(t_{k+1})$ em termos de $y(t_k)$ e $y(t_{k-1})$.

A figura C.1a ilustra os dois pontos iniciais necessários para calcular o próximo através do método de Adams-Bashforth. Como se pode ver, o terceiro ponto é obtido através de uma extrapolação.



Figura C.1: (a) Dois pontos iniciais necessários para a aplicação do método de múltiplos passos de Adams-Bashfort de 2^a ordem e (b) Dois pontos iniciais necessários para a aplicação do método de Adams-Moulton de 2^a ordem.

Uma variação do método de Adams-Bashforth é obtida quando usamos os pontos $[t_k, y(t_k)]$ e $[t_{k+1}, y(t_{k+1})]$ e interpolamos um segundo polinômio $[q_1(t) = \alpha t + \beta$, por exemplo] obtendo, de forma análoga, uma expressão denominada fórmula de Adams-Moulton de segunda ordem dada por:

$$y(t_{k+1}) = y(t_k) + \frac{h}{2}f[t_k, y(t_k)] + \frac{h}{2}f[t_{k+1}, y(t_{k+1})], \qquad (C.9)$$

que é uma fórmula implícita uma vez que $y(t_{k+1})$ aparece em ambos os lados do sinal de igualdade. A figura C.1b mostra uma ilustração dos pontos envolvidos no método de Adams-Moulton e, como se pode observar, nesse método é utilizada uma interpolação.

De maneira análoga, este método pode ser estendido para outras ordens, bastando trocar os polinômios interpoladores. É óbvio que para ordens superiores é necessário o conhecimento de um número maior de pontos para que o procedimento possa ser iniciado. A tabela C.1 mostra as fórmulas para diferentes ordens.

É possível mostrar que o erro de truncamento para as fórmulas de Adams-Bashforth e Adams-Moulton de 4ª ordem , são, respectivamente, dadas por:

$$\epsilon_{AB} \approx \frac{251}{720} h^5 \tag{C.10}$$

e

$$\epsilon_{AM} \approx -\frac{19}{720} h^5 \,. \tag{C.11}$$

k	Adams-Bashforth	Adams-Moulton	Erro
1	$y_{k+1} = y_k + hf_k$	$y_{k+1} = y_k + hf_k$	$O(h^2)$
2	$y_{k+1} = y_k + \frac{h}{2}(3f_k - f_{k-1})$	$y_{k+1} = y_k + \frac{h}{2}(f_{k+1} + f_k)$	$O(h^3)$
3	$y_{k+1} = y_k + \frac{h}{12}(23f_k - 16f_{k-1} + 5f_{k-2})$	$y_{k+1} = y_k + \frac{h}{12}(5f_{k+1} + 8f_k - f_{k-1})$	$O(h^4)$
4	$y_{k+1} = y_k + \frac{h}{24}(55f_k - 59f_{k-1} + 37f_{k-2} - 9f_{k-3})$	$y_{k+1} = y_k + \frac{h}{24}(9f_{k+1} + 19f_k - 5f_{k-1} + f_{k-2})$	$O(h^5)$

Tabela C.1: Fórmulas para 4 diferentes ordens para os métodos de múltiplos passos de Adams-Bashforth e Adams-Moulton e suas respectivas ordens de erro de truncagem. Por simplicidade de notação, $y_k = y(t_k)$ e $f_k = f[t_k, y(t_k)]$.

Assim, das equações para os erros das duas fórmulas, é possível notar que o método de Adams-Bashforth apresenta um erro de truncamento maior que o apresentado pelo método de Adams-Moulton, embora a ordem seja a mesma $[O(h^5)]$. Assim, se usamos a segunda, o erro será menor, mas o tempo de processamento será maior uma vez que envolve um cálculo implícito. Por outro lado, se usamos a primeira o processamento é mais rápido, porém o erro de truncamento será maior. Uma forma de obter, ao mesmo tempo, velocidade e maior precisão é fazendo uma combinação dos dois métodos, dando então origem ao que chamamos método de Adams-Bashforth-Moulton. Iniciamos o procedimento conhecendo os pontos $y(t_{k-3})$, $y(t_{k-2})$, $y(t_{k-1}) e y(t_k)$ e calculamos o valor de $y(t_{k+1})$ que,por sua vez, nos permite calcular o valor de $f[t_{n+1}, y(t_{n+1})]$ que nos levará a um valor corrigido para $y(t_{k+1})$. Dessa forma, o método de Adams-Bashforth prevê (*predictor*) o valor de $y(t_{k+1})$ enquanto que o método de Adams-Moulton corrige (*corrector*) este valor.

Para a aplicação de métodos de múltiplos passos, como vimos acima, é necessário calcular previamente os m valores de y(t). Esses valores podem ser obtidos, por exemplo, através de algum método de passo único e que apresente acurácia equivalente àquela que se espera obter junto ao método de múltiplos passos. Outra possibilidade é utilizar o mesmo método de múltiplos passos desde o início, porém começando com a ordem 1 (menor possível) e obtendo o segundo ponto, em seguida aumenta-se uma ordem e obtém-se o terceiro ponto e assim sucessivamente até se chegar ao número de pontos iniciais necessários para se iniciar o processo com a ordem máxima desejada.

Ainda no intuito de otimizar o procedimento computacional, ainda há a opção de se tra-

balhar com um algoritmo que permita a variação do tamanho do passo de acordo com o erro que se está obtendo. Uma discussão acerca da mudança no tamanho dos passos para o método ABM de 4^a ordem pode ser obtida em [114].

D EXPANSÃO DE MAGNUS

Wilhelm Magnus propôs em 1954 [115] uma solução para o problema de valor inicial dado pela seguinte equação diferencial linear de primeira ordem:

$$\underline{X}'(t) = \underline{B}(t) \cdot \underline{X}(t), \tag{D.1}$$

onde $\underline{\underline{B}}(t)$ é uma matriz de coeficientes com dimensão $n \times n$, $\underline{X}(t)$ é o vetor solução de dimensão n e a condição inicial é representada pelo vetor $\underline{X}(t_0) = \underline{X}_0$.

A proposta feita por Magnus envolve, na verdade, uma solução aproximada para o problema e é dada por:

$$\underline{X}(t) = e^{[\underline{\Omega}(t,t_0)]} \cdot \underline{X}_0, \tag{D.2}$$

onde

$$\underline{\underline{\Omega}}(t,t_0) = \sum_{k=1}^{\infty} \underline{\underline{\Omega}}_k(t,t_0)$$
(D.3)

é conhecida como Expansão de Magnus e cujos três primeiros termos são dados por:

$$\underline{\underline{\Omega}}_{\underline{1}}(t) = \int_{0}^{t} \underline{\underline{B}}(t_{1})dt_{1};$$

$$\underline{\underline{\Omega}}_{\underline{2}}(t) = \frac{1}{2}\int_{0}^{t} dt_{1}\int_{0}^{t_{1}} [\underline{\underline{B}}(t_{1}), \underline{\underline{B}}(t_{2})]dt_{2} \mathbf{e}$$

$$\underline{\underline{\Omega}}_{\underline{3}}(t) = \frac{1}{6}\int_{0}^{t} dt_{1}\int_{0}^{t_{1}} dt_{2}\int_{0}^{t_{2}} ([\underline{\underline{B}}(t_{1}), [\underline{\underline{B}}(t_{2}), \underline{\underline{B}}(t_{3})]] + [\underline{\underline{B}}(t_{3}), [\underline{\underline{B}}(t_{2}), \underline{\underline{B}}(t_{1})]])dt_{3}.$$
(D.4)

A interpretação destas equações é relativamente simples: $\underline{\Omega_1}(t)$ coincide com o caso onde n = 1 e tanto B(t) quanto a solução X(t) são funções escalares de uma única variável. Quando n > 1 e queremos obter uma solução exponencial para o sistema de equações diferenciais representado por (D.1), o expoente precisa ser corrigido. Os demais termos da expansão de Magnus fornecem tal correção.

No problema tratado no capítulo 5, as equações (5.5) e (5.6) constituem um sistema de equações diferenciais homogêneas de primeira ordem com coeficientes dependentes do tempo.

Embora haja uma dependência temporal dos coeficientes, quando tal sistema é escrito em sua forma matricial como mostrado na equação (5.7), é possível notar que a matriz dos coeficientes dependentes do tempo $\underline{M}(z, \tau)$ respeita a seguinte relação de comutação:

$$[\underline{\underline{M}}(z,\tau), \int_{\tau_{0m}}^{\tau} \underline{\underline{M}}(z,s)ds] = 0,$$
(D.5)

onde τ_{0m} é o tempo inicial para o *m*-ésimo pulso a interagir com o meio atômico estendido.

Assim, para resolvermos nosso sistema de equações diferenciais basta reconhecer que, em nosso caso, $\underline{\underline{B}}(t) = \underline{\underline{M}}(z, \tau)$. Fazendo tal substituição para o primeiro termo da expansão de Magnus (k = 1), temos:

$$\underline{\underline{\Omega}}_{\underline{1}}(t) = \int_{0}^{\tau} \underline{\underline{M}}(z, t_{1}) dt_{1} = \theta(z, \tau) \underline{\underline{A}},$$
(D.6)

onde <u>A</u> é dada por (5.9) e $\theta(z, \tau)$ é a área do pulso. Para o segundo termo (k = 2) temos:

$$\underline{\underline{\Omega}}_{\underline{2}}(t) = \frac{1}{2} \int_0^\tau dt_1 \int_0^{t_1} [\underline{\underline{M}}(z,t_1), \underline{\underline{M}}(z,t_2)] dt_2 = \frac{1}{2} \int_0^\tau dt_1 [\underline{\underline{M}}(z,t_1), \int_0^{t_1} \underline{\underline{M}}(z,t_2) dt_2] = 0, \quad (D.7)$$

pois o comutador à direita do último sinal de igualdade se anula. Desta forma vemos que todos os termos da expansão de Magnus, exceto o primeiro, são nulos levando à seguinte solução para a equação (5.7):

$$\underline{R}(z,\tau) = e^{-\theta(z,\tau)\underline{A}} \cdot \underline{R}(z,\tau_{0m}).$$
(D.8)

$\mathbf{E} \quad \frac{\mathbf{Solução analítica do vetor}}{\underline{R}(z,\tau)}$

primeiro pulso a interagir e se propagar no meio atômico encontra este último com todos os seus átomos no nível fundamental de forma que podemos obter uma solução analítica explicita, em função da área do pulso dada por $\theta(z, \tau)$, para a equação (5.10).

A exponencial da matriz <u>A</u> multiplicada por $\theta(z, \tau)$ pode ser obtida, por exemplo, através da aplicação do teorema de Cayley-Hamilton¹, e resulta em:

$$\exp\left[-\theta(z,\tau)\underline{\underline{A}}\right] = \begin{pmatrix} 1+\cos\theta & 1-\cos\theta & -i\sin\theta & i\sin\theta\\ 1-\cos\theta & 1+\cos\theta & i\sin\theta & -i\sin\theta\\ -i\sin\theta & i\sin\theta & 1+\cos\theta & 1-\cos\theta\\ i\sin\theta & -i\sin\theta & 1-\cos\theta & 1+\cos\theta \end{pmatrix}, \quad (E.1)$$

onde $\theta = \theta(z, \tau)$. Assumindo a condição inicial onde a população atômica está toda no nível fundamental e onde não há nenhuma coerência entre os níveis atômicos, isto é, [$\underline{R}(z, \tau_{00} = 0) = (0, 1, 0, 0)^T$], ao longo de toda a amostra, podemos resolver a equação (5.10) obtendo:

$$\underline{R}(z,\tau) = \begin{pmatrix} \rho_{aa} \\ \rho_{bb} \\ \rho_{ba} \\ \rho_{ab} \end{pmatrix} = 0.5 \begin{pmatrix} 1 - \cos[\theta(z,\tau)] \\ 1 + \cos[\theta(z,\tau)] \\ i \, \operatorname{sen}[\theta(z,\tau)] \\ i \, \operatorname{sen}[\theta(z,\tau)] \end{pmatrix}.$$
(E.2)

Assim, da equação (E.2) podemos determinar a inversão atômica como uma função de z e t dada por:

$$w = \rho_{aa}(z,\tau) - \rho_{bb}(z,\tau) = -\cos\,\theta(z,\tau),\tag{E.3}$$

¹Uma boa referência sobre este método para calcular a exponencial de uma matriz, assim como outras propriedades relativas à solução de sistemas lineares, pode ser obtida em [119].

que está de acordo com a solução de Rabi para a excitação de um átomo dois níveis sem decaimento por um pulso de área θ [73].

F Artigos

Abaixo segue uma lista dos artigos que se originaram desta tese de doutorado, na mesma ordem em que o respectivo trabalho foi discutido no corpo da tese, de tal forma que a ordem cronológica não foi respeitada. Tais artigos são:

- 1. "Coherent accumulation of excitation in the electromagnetically induced transparency of an ultrashort pulse train." Publicado em *Phys. Rev. A*, v. 76, p. 043818, 2007.
- 2. "Influence of propagation on the coherent accumulation of excitation induced by an ultrashort pulse train." Publicado em *Phys. Rev. A*, v. 80, p. 013832, 2009.
- 3. "Autler-Townes doublet and electromagnetically-induced-transparency resonance probed by an ultrashort pulse train." Submetido para *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*.
- 4. "Optogalvanic detection of velocity-selective optical pumping in an open, cascade atomic medium." Publicado em *Opt. Comunn.*, v. 281, p. 626, 2008.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] MAIMAN, T. H. Stimulated Optical Radiation in Ruby. Nature, v. 187, p. 493, 1960.
- [2] ALZETTA, G. ET AL. An experimental method for the observation of R. F. transitions and laser beat resonances in oriented Na vapor. *Il Nuovo Cimento B*, v. 36, p. 5, 1976.
- [3] GRAY, H. R.; WHITLEY, R. M.; STROUD JR., C. R. Coherent trapping of atomic populations. *Opt. Lett.*, v. 3, p. 218, 1978.
- [4] METCALF, H.; VAN DER STRATEN, P. Laser Cooling and Trapping. New York: Springer-Verlag, 1999.
- [5] KOCHAROVSKAYA, O. A.; MAURI, F.; ARIMONDO, E. Laser without population inversion and coherent trapping. *Opt. Commun.*, v. 84, p. 393, 1991.
- [6] KOCHAROVSKAYA, O. A.; KHANIN, YA. I. Population trapping and coherent transillumination of a three-level medium by a periodic train of ultrashort pulses. *Sov. Phys. JETP*, v. 63, p. 945, 1986.
- [7] HARRIS, S. E.; FIELD, J. E.; IMAMOGLU, A. Nonlinear optical processes using electromagnetically induced transparency. *Phys. Rev. Lett.*, v. 64, p. 1107, 1990.
- [8] LAUPRÊTRE, T. Observation of electromagnetically induced transparency and slow light in the dark state - bright state basis. *Opt. Express*, v. 77, p. 14999, 2009.
- [9] ARIMONDO, E. Coherent population trapping in laser spectroscopy. *Progress in Optics*, v. 35, p. 259, 1996.
- [10] FLEISCHHAUER, M.; IMAMOGLU, A.; MARANGOS, J. P. Electromagnetically induced transparency: Optics in coherent media. *Rev. Mod. Phys.*, v. 77, p. 633, 2005.

- [11] HAHN, H. H.; KING, D. A.; HARRIS, S. E. Nonlinear generation of 104.8-nm radiation within an absorption window in zinc. *Phys. Rev. Lett.*, v. 65, p. 2777, 1990.
- [12] KOCHAROVSKAYA, O. A.; KHANIN, YA. I. Coherent amplification of an ultrashort pulse in a 3-level medium without a population-inversion. *JETP Lett.*, v. 48, p. 630, 1988.
- [13] HARRIS, S. E. Lasers without inversion: Interference of lifetime-broadened resonances. *Phys. Rev. Lett.*, v. 62, p. 1033, 1989.
- [14] PADMABANDU, G. G. ET AL. Laser oscillation without population inversion in a sodium atomic beam. *Phys. Rev. Lett.*, v. 76, p. 2053, 1996.
- [15] ZIBROV, A. S. ET AL. Experimental demonstration of laser oscillation without population inversion via quantum interference in Rb. *Phys. Rev. Lett.*, v. 75, p. 1499, 1995.
- [16] KASAPI, A. Enhanced isotope discrimination using electromagnetically induced transparency. *Phys. Rev. Lett.*, v. 77, p. 1035, 1996.
- [17] HAU, L. V. ET AL. Light speed reduction to 17 metres per second in an ultracold atomic gas. *Nature*, v. 397, p. 594, 1999.
- [18] LIU, C. ET AL. Observation of coherent optical information storage in an atomic medium using halted light pulses. *Nature*, v. 409, p. 490, 2001.
- [19] HÉLET, G. ET AL. Characterization of electromagnetically-induced-transparency-based continuous-variable quantum memories. *Phys. Rev. A*, v. 77, p. 012323, 2008.
- [20] ZHU, S. ET AL. Reversible storage of multiple light pulses in the EIT atomic medium. *Chin. Phys. Lett.*, v. 1, p. 680, 2003.
- [21] ZHAO, L. ET AL. Image storage in hot vapors. *Phys. Rev. A*, v. 77, p. 041802(R), 2008.
- [22] SHUKER, M. ET AL. Coherent storage of 3D light fields in atomic vapor. Optics & Photonics News, v. 19, p. 39, 2008.
- [23] SCULLY, M. O.; FLEISCHHAUER, M. High-sensitivity magnetometer based on indexenhanced media. *Phys. Rev. Lett.*, v. 69, p. 1360, 1992.

- [24] STAHLER, M.; ET AL. Picotesla magnetometry with coherent dark states. *Europhys. Lett.*, v. 54, p. 323, 2001.
- [25] FLEISCHHAUER, M.; MATSKO, A. B.; SCULLY, M. O. Quantum limit of optical magnetometry in the presence of ac Stark shifts. *Phys. Rev. A*, v. 62, p. 013808, 2000.
- [26] FISCHER, R.; ET AL. Atomic magnetometry with maximally polarized states. *Opt. Express*, v. 17, p. 16776, 2009.
- [27] SCHIMIDT, H.; IMAMOGLU, A. Giant Kerr nonlinearities obtained by electromagnetically induced transparency. *Opt. Lett.*, v. 21, p. 1936, 1996.
- [28] KANG, H.; ZHU, Y. Observation of large Kerr nonlinearity at low light intensities. *Phys. Rev. Lett.*, v. 91, p. 093601, 2003.
- [29] BELL, S C.; ET AL. Laser frequency offset locking using electromagnetically induced transparency. *Appl. Phys. Lett.*, v. 90, p. 171120, 2007.
- [30] SARGSYAN, A.; ET AL. Efficient technique for measuring laser frequency stability. Eur. Phys. J. Appl. Phys., v. 48, p. 20701, 2009.
- [31] QI, J.; ET AL. Measurement of transition dipole moments in lithium dimers using electromagnetically induced transparency. *Phys. Rev. Lett.*, v. 88, p. 173003, 2002.
- [32] MOCKER, H. W.; COLLINS, R. J. Mode competition and self-locking effects in a Qswitched ruby laser. *Appl. Phys. Lett.*, v. 7, p. 270, 1965.
- [33] ARLT, A. ET AL. Coherent pulse propagation and the dynamics of Rydberg wave packets. *Phys. Rev. Lett.*, v. 76, p. 4774, 1997.
- [34] SWEETSER, J. N.; WALMSLEY, I. A. Linear pulse propagation in stationary and nonstationary multilevel media in the transient regime. *J. Opt. Soc. Am. B*, v. 13, p. 601, 1996.
- [35] UDEM, T.; HOLZWATH, R.; HANSCH, T. W. Optical frequency metrology. *Nature*, v. 416, p. 233, 2002.

- [36] NIERING, M. ET AL. Measurement of the Hydrogen 1S- 2S Transition Frequency by Phase Coherent Comparison with a Microwave Cesium Fountain Clock. *Phys. Rev. Lett.*, v. 84, p. 5496, 2000.
- [37] BELLINI, M.; BARTOLI, A.; HÄNSCH, T. W. Two-photon Fourier spectroscopy with femtosecond light pulses. Opt. Lett., v. 22, p. 540 1997.
- [38] HANSCH, T. W.; WALTHER, H. Laser spectroscopy and quantum optics. *Rev. Mod. Phys.*, v. 71, p. S242, 1999.
- [39] WEISSBLUTH, M. Atoms and Molecules. New York: Academic Press, 1978.
- [40] COHEN-TANNOUDJI, C.; DIU, B.; LALOË, F. Quantum mechanics. New York: John Wiley & Sons, 1977.
- [41] SAKURAI, J. J. Modern Quantum Mechanics. New York: Addison-Wesley, 1995.
- [42] JACKSON, J. D. Classical Electrodynamics. New York: John Wiley & Sons, 1998.
- [43] VARJÚ, K. ET AL. Reconstruction of attosecond pulse trains using an adiabatic phase expansion. *Phys. Rev. Lett.*, v. 95, p. 243901, 2005.
- [44] NOMURA, Y. ET AL. Attosecond phase locking of harmonics emitted from laserproduced plasmas. *Nature Phys.*, v. 5, p. 124, 2009.
- [45] HARGROVE, L. E.; FORK, R. L.; POLLAK, M. A. Locking of HeNe laser modes induced by synchronous intracavity modulation. *Appl. Phys. Lett.*, v. 5, p. 4, 1964.
- [46] FORTIER, T. M.; BARTELS, A.; DIDDAMS, S. A. Octave-spanning Ti:sapphire laser with a repetition rate>1 GHz for optical frequency measurements and comparisons. *Opt. Lett.*, v. 31, p. 1011, 2006.
- [47] BARTELS, A.; ET AL. Spectrally resolved optical frequency comb from a self-referenced 5 GHz femtosecond laser. Opt. Lett., v. 32, p. 2553, 2007.
- [48] BARTELS, A.; HEINECKE, D.; DIDDAMS, S. A. Passively mode-locked 10 GHz femtosecond Ti:sapphire laser. Opt. Lett., v. 33, p. 1905, 2008.

- [49] ECKSTEIN, J. N.; FERGUSON, A. I.; HÄNSCH, T. W. High-resolution two-photon spectroscopy with picosecond light pulses. *Phys. Rev. Lett.*, v. 40, p. 847, 1978.
- [50] BAKLANOV, E. V.; CHEBOTAEV, V. P. Two-photon absorption of ultrashort pulses in a gas. Sov. J. Quantum Electron., v. 7, p. 1252, 1977.
- [51] GERGINOV, V. ET AL. High-resolution spectroscopy with a femtosecond laser frequency comb. Opt. Lett., v. 30, p. 1734, 2005.
- [52] QUÉRÉ, F. Attosecond plasma optics. Nature Phys., v. 5, p. 93, 2009.
- [53] MARIAN, A. ET AL. United time-frequency spectroscopy for dynamics and global structure. *Science*, v. 306, p. 2063, 2004.
- [54] UDEM, TH.; ET AL. Absolute frequency measurements of the Hg⁺ and Ca optical clock transitions with a femtosecond laser. *Phys. Rev. Lett.*, v. 86, p. 4996, 2001.
- [55] FORTIER, T. M.; ET AL. Kilohertz-Resolution spectroscopy of cold atoms with an optical frequency comb. *Phys. Rev. Lett.*, v. 97, p. 163905, 2006.
- [56] ZINKSTOK, R. TH. ET AL. Frequency comb laser spectroscopy in the vacuum-ultraviolet region. *Phys. Rev. A*, v. 73, p. 061801, 2006.
- [57] BROERS, B.; VAN LINDEN VAN DEN HEUVELL, H. B.; NOORDAM, L. D. Efficient population transfer in a three-level ladder system by frequency-swept ultrashort laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, v. 69, p. 2062, 1992.
- [58] MESHULACH, D.; SILBERBERG, Y. Coherent quantum control of two-photon transitions by a femtosecond laser pulse. *Nature*, v. 396, p. 239, 1998.
- [59] CHATEL, B. ET AL. Competition between sequential and direct paths in a two-photon transition. *Phys. Rev. A*, v. 68, p. 041402, 2003.
- [60] SALZMANN, W. ET AL. Coherent control with shaped femtosecond laser pulses applied to ultracold molecules. *Phys. Rev. A*, v. 73, p. 023414, 2006.

- [61] SOARES, A. A.; ARAUJO, L. E. E. Coherent accumulation of excitation in the electromagnetically induced transparency of an ultrashort pulse train. *Phys. Rev. A*, v. 76, p. 043818, 2007.
- [62] STOWE, M. ET AL. High Resolution Atomic Coherent Control via Spectral Phase Manipulation of an Optical Frequency Comb. *Phys. Rev. Lett.*, v. 96, p. 153001, 2006.
- [63] RICE, S. A. Molecular dynamics: Optical control of reactions. Nature, v. 403, p. 496, 2000.
- [64] JUDSON, R. S.; RABITZ, H. Teaching lasers to control molecules. *Phys. Rev. Lett.*, v. 68, p. 1500, 1992.
- [65] WOLLENHAUPT, M.; BAUMERT T. Ultrafast strong field quantum control on K2 dimers. J. of Photochem. and Photobiology A: Chemistry, v. 180, p. 248, 2006.
- [66] WOLLENHAUPT, M. ET AL. Quantum control by ultrafast dressed states tailoring. *Chem. Phys. Lett.*, v. 419, p. 184, 2006.
- [67] BRIXNER, T. ET AL. Photoselective adaptive femtosecond quantum control in the liquid phase. *Nature*, v. 414, p. 57, 2001.
- [68] BOUCHENE, M. A. ET AL. Temporal coherent control induced by wave packet interferences in one and two photon atomic transitions. *Eur. Phys. J. D*, v. 2, p. 131, 1998.
- [69] YU-QIONG, L. ET AL. Temporal Coherent Control in Er³⁺-Doped Telluride Glass. Spectroscopy and Spectral Analysis, v. 26, p. 1392, 2006.
- [70] RENUCCI, P. ET AL. Temporal coherent control in semiconductor quantum structures. *Phys. Stat. Sol. A*, v. 178, p. 373, 2000.
- [71] BARNETT, S. M.; RADMORE, P. M. Methods in theoretical quantum optics. New York: Oxford University Press, 1997.
- [72] FOOT, C. J. Atomic Physics. New York: Oxford University Press, 2005.
- [73] ALLEN, L.; EBERLY, J. H. Optical resonance and two-level atoms. New York: Dover, 1987.

- [74] VALENTE, P.; FAILACHE, H.; LEZAMA, A. Temporal buildup of electromagnetically induced transparency and absorption resonances in degenerate two-level transitions. *Phys. Rev. A*, v. 67, p. 013806, 2003.
- [75] WHITLEY, R. M.; STROUD JR., C. R. Double optical resonance. *Phys. Rev. A*, v. 14, p. 1498, 1976.
- [76] ARIMONDO E.; ORRILS, G. Non-absorbing atomic coherences by coherent 2-photon transitions in a 3-level optical-pumping. *Lett. Nuovo Cimento*, v. 17, p. 333, 1976.
- [77] AUTLER, S. H.; TOWNES, C. H. Stark effect in rapidly varying fields. *Phys. Rev.*, v. 100, p. 703, 1955.
- [78] KASH, M. M. ET AL. Ultraslow group velocity and enhanced nonlinear optical effects in a coherently driven hot atomic gas. *Phys. Rev. Lett.*, v. 82, p. 5229, 1999.
- [79] JULSGAARD, B. ET AL. Experimental demonstration of quantum memory for light. Nature, v. 432, p. 482, 2004.
- [80] LI, Y.-Q.; XIAO, M. Transient properties of an electromagnetically induced transparency in three-level atoms. *Opt. Lett.*, v. 20, p. 1489, 1995.
- [81] CHEN, H. X. ET AL. Observation of transient electromagnetically induced transparency in a rubidium Λ system. *Phys. Rev. A*, v. 58, p. 1545, 1998.
- [82] GREENTREE, A. D. ET AL. Resonant and off-resonant transients in electromagnetically induced transparency: Turn-on and turn-off dynamics. *Phys. Rev. A*, v. 65, p. 053802, 2002.
- [83] ARKHIPKIN, V. G.; TIMOFEEV, I. V. Electromagnetically induced transparency; writing, storing, and reading short optical pulses. *JETP Lett.*, v. 76, p. 66, 2002.
- [84] YAVUZ, D. D. Spatial Raman solitons in far-off resonant atomic systems. *Phys. Rev. A*, v. 75, p. 031801(R), 2007.
- [85] KOZLOV, V. V.; EBERLY, J. H. Ultrashort pulses in phaseonium: the interplay between SIT and EIT. *Opt. Comm.*, v. 179, p. 85, 2000.

- [86] ARAUJO, L. E. E. Coherent population trapping in ultrashort pulsed excitation of multilevel systems. *Phys. Rev. A*, v. 69, p. 013408, 2004.
- [87] SAUTENKOV, A. ET AL. Electromagnetically induced transparency in rubidium vapor prepared by a comb of short optical pulses. *Phys. Rev. A*, v. 71, p. 063804, 2005.
- [88] MLYNEK, J. ET AL. High-resolution coherence spectroscopy using pulse trains. *Phys. Rev.* A, v. 24, p. 1099, 1981.
- [89] BRATTKE, S.; KALLMANN, U.; HARTMANN, W. -D. Coherent dark states of rubidium 87 in a buffer gas using pulsed laser light. *Eur. Phys. J. D*, v. 3, p. 159, 1998.
- [90] KUSNETSOVA, E.; KOLESOV, R.; KOCHAROVSKAYA, O. Coherent population trapping via a continuum with a train of ultrashort pulses. *Phys. Rev. A*, v. 74, p. 033804, 2006.
- [91] TEMKIN, R.J. Excitation of an atom by a train of short pulses. *J. Opt. Soc. Am. B*, v. 10, p. 830, 1993.
- [92] VITANOV, N. V.; KNIGHT, P. L. Coherent excitation of a two-state system by a train of short pulses. *Phys. Rev. A*, v. 52, p. 2245, 1995.
- [93] FELINTO, D. ET AL., Coherent accumulation in two-level atoms excited by a train of ultrashort pulses. *Opt. Commun.*, v. 215, p. 69, 2003.
- [94] WEINER, A. M. ET AL. Femtosecond multiple-pulse impulsive stimulated Raman scattering spectroscopy. *J. Opt. Soc. Am. B*, v. 8, p. 1264, 1991.
- [95] DIELS, J. -C; BESNAINOU, S. Multiphoton coherent excitation of molecules. J. Chem. Phys., v. 85, p. 6347, 1986.
- [96] WARREN, W. S.; ZEWAIL, A. H. Optical multiple pulse sequences for multiphoton selective excitation and enhancement of forbidden transitions. *J. Chem. Phys.*, v. 78, p. 3583, 1983.

- [97] FELINTO, D., ACIOLI, L. H.; VIANNA, S. S. Accumulative effects in the coherence of three-level atoms excited by femtosecond-laser frequency combs. *Phys. Rev. A*, v. 70, p. 043403, 2004.
- [98] XU, L. ET AL. Route to phase control of ultrashort light pulses. Opt. Lett., v. 21, p. 2008, 1996.
- [99] CRISP, M. D. Propagation of Small-Area Pulses of Coherent Light through a Resonant Medium. *Phys. Rev. A*, v. 1, p. 1604, 1970.
- [100] BOUCHENE, M. A. Phase control of dispersion effects for an ultrashort pulse train propagating in a resonant medium. *Phys. Rev. A*, v. 66, p. 065801, 2002.
- [101] NEWBOLD, M. A.; SALAMO, G. J. Effects of Relaxation on Coherent Continuous-Pulse-Train Propagation. *Phys. Rev. Lett.*, v. 42, p. 887, 1979.
- [102] BERGMANN, K.; THEUER, H.; SHORE, B. W. Coherent population transfer among quantum states of atoms and molecules. *Rev. Mod. Phys.*, v. 70, p. 1003, 1998.
- [103] LI, Y. -Q.; XIAO, M. Observation of quantum interference between dressed states in an electromagnetically induced transparency. *Phys. Rev. A*, v. 51, p. 4959, 1995.
- [104] NOGUEIRA, G. T.; CRUZ, F. C. Efficient 1 GHz Ti:sapphire laser with improved broadband continuum in the infrared. *Opt. Lett.*, v. 31, p. 2069, 2006.
- [105] NOGUEIRA, G. T. ET AL. Broadband 2.12 GHz Ti:sapphire laser compressed to 5.9 femtoseconds using MIIPS. Opt. Express, v. 16, p. 10033, 2008.
- [106] MOON, H. S. ET AL. Laser frequency stabilizations using electromagnetically induced transparency. *Appl. Phys. Lett.* v. 84, p. 3001, 2004.
- [107] ARAUJO, L. E. E. ET. AL. Optogalvanic detection of velocity-selective optical pumping in an open, cascade atomic medium. *Opt. Comunn.*, v. 281, p. 626, 2008.
- [108] VAECK, N.; GODEFROID, M.; HANSEN, J. E. MCHF oscillator strength and lifetime calculations in neutral calcium. J. Phys. B: At. Mol. Phys., v. 24, p. 361, 1991.

- [109] CRUZ, F. C. ET AL. Optogalvanic sub-Doppler spectroscopy in titanium. J. Phys. B: Atom. Mol. Opt. Phys., v. 27, p. 5851, 1994.
- [110] BJORKHOLM, J. E.; LIAO, P. F.; WOKAUN, A. Distortion of on-resonance twophoton spectroscopic line shapes caused by velocity-selective optical pumping. *Phys. Rev. A*, v. 26, p. 2643, 1982.
- [111] LIAO, P. F.; BJORKHOLM, J. E.; BERMAN, P. R. Effects of velocity-changing collisions on two-photon and stepwise-absorption spectroscopic line shapes. *Phys. Rev. A*, v. 21, p. 1927, 1980.
- [112] QUIVERS JR., W. W. Production of highly polarized vapors using laser optical pumping with velocity-changing collisions. *Phys. Rev. A*, v. 34, p. 3822, 1986.
- [113] GASKILL, J. D. Linear systems, Fourier transforms, and optics. New York: John Wiley, 1978.
- [114] MATHEWS, J. H.; FINK, K. K. Numerical methods using Matlab. Upper Saddle River: Prentice-Hall, 2004.
- [115] MAGNUS, W. On the exponential solution of differential equations for a linear operator. *Comm. Pure and Appl. Math.*, v. 7, p. 649, 1954.
- [116] HAROCHE, S. High resolution laser spectroscopy. Berlin: Springer, 1976.
- [117] HEGERFELDT, G. C.; PLENIO, M. B. Coherence with incoherent light: A new type of quantum beat for a single atom. *Phys. Rev. A*, v. 47, p. 2186, 1993.
- [118] PERSICO, F. Quantum beats from dressed three-level atoms. *Opt. Commun.*, v. 44, p. 143, 1983.
- [119] BERNSTEIN, D. S. Matrix Mathematics: Theory, Facts, and Formulas with Application to Linear Systems Theory. Princeton: Princeton University Press, 2005.
- [120] DOLLING, G. ET AL. Simultaneous negative phase and group velocity of light in a metamaterial. *Science*, v. 312, p. 892, 2006.
- [121] UDEM, TH.; ET AL. Absolute frequency measurements of the Hg⁺ and Ca optical clock transitions with a femtosecond laser. *Phys. Rev. Lett.*, v. 86, p. 4996, 2001.

- [122] LUKIN, M. D.; IMAMOGLU, A. Nonlinear Optics and Quantum Entanglement of Ultraslow Single Photons. *Phys. Rev. Lett.*, v. 84, p. 1419, 2000.
- [123] PETROSYAN, D.; KURISKI, G. Symmetric photon-photon coupling by atoms with Zeeman-split sublevels. *Phys. Rev. A*, v. 65, p. 033833, 2002.
- [124] LUKIN, M. D. ET AL. Quantum interference effects induced by interacting dark resonances. *Phys. Rev. A*, v. 60, p. 3225, 1999.
- [125] YE, C. Y. ET AL. Unexpected Doppler-free resonance in generalized double dark states. *Phys. Rev. A*, v. 65, p. 043805, 2002.
- [126] WANG, J. ET AL. Bichromatic electromagnetically induced transparency in cold rubidium atoms. *Phys. Rev. A*, v. 68, p. 063810, 2003.
- [127] XIANG-MING, H. ET AL. Amplitude and phase control of trichromatic electromagnetically induced transparency. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., v. 38, p. 683, 2005.
- [128] RISKEN, H.; VOLLMER, H. D. A polynomial expansion method for solving the laser Fokker-Planck equation. Z. Phys. B: Condens. Matter, v. 39, p. 339, 1980.
- [129] FICEK, Z.; FREEDHOFF, H. S. Resonance-fluorescence and absorption spectra of a two-level atom driven by a strong bichromatic field. *Phys. Rev. A*, v. 48, p. 3092, 1993.
- [130] FROHNMEYER, T. ET AL. Mapping molecular dynamics (Na₂) in intense laser fields: another dimension to femtochemistry. *Chem. Phys. Lett.*, v. 312, p. 447, 1999.
- [131] FELINTO, D. ET AL. Accumulative effects in temporal coherent control. *Phys. Rev. A*, v. 64, p. 063413, 2001.
- [132] PE'ER, A. ET AL. Precise Control of Molecular Dynamics with a femtosecond frequency comb. *Phys. Rev. Lett.*, v. 98, p. 113004, 2007.
- [133] TEETS, R.; ECKSTEIN, J. N.; HANSCH, T. W. Coherent two-photon excitation by multiple light pulses. *Phys. Rev. Lett.*, v. 38, p. 760, 1977.
- [134] HEBERLE, A. P.; BAUMBERG, J. J.; KOHLER, K. Ultrafast coherent control and destruction of excitons in Quantum Wells. *Phys. Rev. Lett.*, v. 75, p. 2598, 1995.

- [135] HESSELINK, W. H.; WIERSMA, D. A. Picosecond photon echoes stimulated from an accumulated grating. *Phys. Rev. Lett.*, v. 43, p. 1991, 1979.
- [136] ALBER, G.; ZOLLER, P. Laser excitation of electronic wave packets in Rydberg atoms. *Phys. Rep.*, v. 199, p. 231, 1991.
- [137] GARRAWAY, B. M.; SUOMINEM, K. -A. Wave packet dynamics in molecules. *Con*temporary Physics, v. 43, p. 97 2002.
- [138] ALBER, G.; RITSCH, H.; ZOLLER, P. Generation and detection of Rydberg wave packets by short laser pulses. *Phys. Rev. A*, v. 34, p. 1058, 1986.
- [139] WARREN, W. S. ET AL. Coherent control of quantum dynamics: The dream is alive. *Science*, v. 259, p. 1581 1993.
- [140] ARAUJO, L. E. E. Propagation of ultrashort pulses in multilevel systems under electromagnetically induced transparency. *Phys. Rev. A*, v. 73, p. 053821, 2006.
- [141] AKIMOV, A. V. ET AL. Bichromatic spectroscopy of coherent population trapping resonances with phase-locked fields. J. Raman Spectrosc., v. 36, p. 123, 2005.
- [142] QI, J. ET AL. Measurement of Transition Dipole Moments in Lithium Dimers Using Electromagnetically Induced Transparency. *Phys. Rev. Lett.*, v. 88, p. 173003, 2002.
- [143] MARANGOS, J. P. Electromagnetically induced transparency. J. Mod. Opt., v. 45, p. 471, 1998.
- [144] IMAMOGLU, A.; HARRIS, S. Lasers without inversion: interference of dressed lifetime-broadened states. *Opt. Lett.*, v. 14, p. 1344, 1989.
- [145] ZHU, Y. ET AL. Resonance fluorescence of two-level atoms under strong bichromatic excitation. *Phys. Rev. A*, v. 41, p. 6574, 1990.
- [146] ASHKIN, A. Trapping of Atoms by Resonance Radiation Pressure. *Phys. Rev. Lett.*, v. 40, p. 729, 1978.
- [147] METCALF, H.; VAN DER STRATEN P. Cooling and trapping of neutral atoms. *Phys. Rep.*, v.244, p. 203, 1994.