

DISSERTAÇÃO DE MESTRADO

**MISTURA DE QUATRO ONDAS EM SISTEMAS ATÔMICOS
COM LUZ INCOERENTE**

José Ferraz de Moura Nunes Filho



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

Recife, julho de 2003



Universidade Federal de Pernambuco
Departamento de Física - CCEN
Programa de Pós-Graduação em Física

Cidade Universitária - 50670-901 Recife PE Brasil
Fone (++) 55 81) 3271-8449 / 8450 - Fax (++) 55 81) 3271-0359
http://www.df.ufpe.br/pg e-mail: posgrad@df.ufpe.br

DF

Parecer da Banca Examinadora de Defesa de Dissertação de Mestrado

José Ferraz de Moura Nunes Filho

MISTURA DE QUATRO ONDAS EM SISTEMAS ATÔMICOS COM LUZ INCOERENTE

A Banca Examinadora composta pelos Professores Sandra Sampaio Vianna (Presidente e Orientadora), Lucio Hora Acioli, Cid Bartolomeu de Araujo, todos da Universidade Federal de Pernambuco e Flavio Caldas da Cruz da Universidade Estadual de Campinas consideram o candidato:

() Aprovado com Distinção (X) Aprovado () Reprovado

Secretaria do Programa de Pós-Graduação em Física do Departamento de Física do Centro de Ciências Exatas e da Natureza da Universidade Federal de Pernambuco aos oito dias do mês de julho de 2003.

Sandra S. Vianna

Profa. Sandra Sampaio Vianna
Presidente

Cid Bartolomeu de Araujo

Prof. Cid Bartolomeu de Araujo
Membro

Lucio Hora Acioli

Prof. Lucio Hora Acioli
Membro

Flavio Caldas da Cruz

Prof. Flavio Caldas da Cruz
Membro

Esta dissertação é dedicada a minha irmã Sarah,
a meu irmão Marcelo, aos meus sobrinhos Rafael
e Shevah e em especial a minha mãe Maria.

Agradecimentos

À professora Sandra Sampaio Vianna pelos anos de orientação. Sua disciplina e organização foram fundamentais na minha formação científica e principalmente pelas conversas sobre o que se deseja como físico.

Ao professor Lúcio Hora Acioli, pela co-orientação ativa e inúmeras sugestões. Principalmente pelas interpretações físicas de vários resultados e pelos ensinamentos relativos à manipulação de softwares matemáticos.

Ao amigo Daniel Felinto, cuja participação ao longo de todo este trabalho teve valor inestimável. Não são só minhas as palavras quando digo que você é um exemplo a ser seguido tanto quanto físico quanto como pessoa.

Aos funcionários do Departamento de Física, em particular às secretárias Paula, Linet e Ana. A seu Ivo do setor de cópias, a seu Humberto do almoxarifado, a Ana e Joana da biblioteca e a todos que não foram citados, mas que de alguma forma ajudaram na realização deste trabalho.

Aos amigos Fernando Parisio, Marina Leite, Ana Maia e Henrique Gomes que apesar de distantes se fazem presentes nas memórias dos bons momentos compartilhados.

Aos amigos de luta da graduação e que agora no mestrado se mostraram mais presentes do que nunca, Wilton Araújo, Ailton Fernandes, Paulo Henrique, Eric Josef, Laércio Dias e Antônio Rodrigues. Obrigado ao amigo Pedro Hugo pelas discussões sobre filosofia que ajudam a quebrar um pouco a invariabilidade do cotidiano no df. A Jonas Gomes, pelo exemplo de ética e honestidade tão raras nos dias de hoje.

Aos amigos Marco César, Ivan Leite, Clessio Leão e Elisa Leite pelas inúmeras histórias vividas durante o período deste trabalho.

Aos amigos de infância Eduardo Ferraz, Rodrigo Lara, Saulo Jansen e Viviane Cirilo, pelos anos de convivência e pelos inúmeros ensinamentos através de exemplos práticos sobre o que deve e principalmente o que não deve ser feito em certas circunstâncias. À Roberta Jansen pelo apoio durante os anos de formação da “base”.

A Frederico Borges e Tarcísio Falcão pelo companheirismo, apoio nas horas difíceis e principalmente pelas discussões sobre a perversidade daquilo que move o mundo.

Gostaria de agradecer aos amigos Marco César, Ivan Leite, Tarcísio Falcão, Luís Maia e André Brandão pelo ano de 2001, sem sombra de dúvidas um ano a ser lembrado. Em particular, à Carolina Pedrosa por ter colaborado de forma definitiva para tornar 2001 um ano singular.

Finalmente, à CAPES e ao PRONEX, que suportaram a manutenção de nossas pesquisas.

Resumo

Neste trabalho investigamos a resposta do processo de Mistura de Quatro Ondas (MQO), resolvida no tempo, para um sistema atômico, devido à excitação por dois fótons, provenientes de pares de pulsos de um laser incoerente.

O sistema atômico, descrito por quatro níveis de energia, interage com feixes de frequências centrais ω_1 , ω_2 e ω_3 . O sinal gerado está associado a processos tais que $\omega_{\text{sinal}} = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$, quando os feixes de frequências ω_1 e ω_2 , responsáveis pela transição de dois fótons, apresentam um tempo de coerência (da ordem de alguns picossegundos) menor que a duração temporal do pulso.

A resposta do sistema é calculada usando o formalismo da matriz densidade, na aproximação de onda girante e no regime perturbativo. Para a obtenção da intensidade do sinal gerado são realizadas médias estatísticas sobre os campos incoerentes e sua visualização é feita através de simulações numéricas. O sinal de MQO, em função do atraso temporal entre os pares de pulsos, apresenta efeitos de interferência associados ao sistema atômico. Para atrasos menores que o tempo de coerência, podemos observar oscilações cujo período é determinado pela frequência central do laser, ω_1 . Para atrasos maiores que o tempo de coerência, obtemos oscilações associadas à transição de dois fótons, similares às franjas de Ramsey, mas no domínio temporal. Em ambos os casos a interferência é determinada pela fase relativa entre os diferentes caminhos quânticos induzidos pelos pares de pulsos. Também é possível observar um batimento associado à diferença de frequência entre os diversos níveis excitados no processo de MQO.

Em particular, simulamos o comportamento de um sistema físico real, o átomo de rubídio. Neste caso, os estados envolvidos na transição por dois fótons correspondem aos níveis de Rydberg *16d* e *18s*. A dependência do sinal gerado com os vetores de polarização dos campos incidentes mostra que os diferentes efeitos de interferência podem ser visualizados separadamente através da seleção dos caminhos que contribuem para o sinal.

Abstract

In this work we investigate the response of an atomic system to time-resolved Four Wave Mixing (FWM) process, including a two photon resonance that exploited by pairs of pulses from an incoherent laser.

The atomic system, described by four energy levels, interacts with beams of central frequency ω_1 , ω_2 e ω_3 . The generated signal is associated to process such that $\omega_{\text{signal}} = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$, when the beams of frequency ω_1 e ω_2 , which are responsible for the two photon transition, presents a coherence time (of order of picoseconds) smaller than the temporal duration of the pulse.

The system response is calculated using the density matrix formalism, in the rotating wave approximation and in the perturbative regime. In order to calculate the generated signal, statistical averages over the incoherent fields are realized and numerical simulations allow visualizing the obtained results. The FWM signal, as a function of the temporal delay between the pairs of pulses, present interference effects associated with the atomic system. For delays smaller than the coherence time, we observe oscillations with period determined by the laser central frequency, ω_1 . For delays larger than the coherence time, we obtain oscillations associated with the two photon transition, similar to the Ramsey fringes, but in the time domain. In both cases the interference is determined by the relative phase between the different quantum pathways induced by the pair of pulses. Is also possible to observe a beat note associated to the frequency difference between the several excited levels in the FWM process.

In particular, we have simulated the behavior of a real physical system, the rubidium atom. In this case, the involved states in the two photon transition correspond to the Rydberg levels $16d$ e $18s$. The signal dependency with polarization vectors of the incident fields can be visualized separately with the selection of the path which contributes to the signal.

ÍNDICE

Dedicatória

Agradecimentos

Resumo

Abstract

CAPÍTULO 1 – Introdução.....1

1.1 – Histórico.....2

1.2 – Médias estatísticas com luz incoerente.....11

1.3 – Franjas de Ramsey.....17

CAPÍTULO 2 – Mistura de quatro ondas em um sistema atômico de quatro níveis.....20

2.1 – Introdução.....21

2.2 – Coerência entre dois estados num sistema de quatro níveis.....23

2.3 – Tratamento perturbativo.....33

2.4 – Intensidade do sinal em função do atraso temporal entre os pulsos.....37

2.5 – Dependência do sinal de MQO com a polarização dos campos incidentes.....48

CAPÍTULO 3 – Cálculos numéricos.....56

3.1 – Introdução.....57

3.2 – Cálculo numérico para um sistema atômico hipotético.....58

3.3 – Cálculo numérico utilizando parâmetros do átomo de rubídio.....71

CAPÍTULO 4 – Conclusões e perspectivas.....	81
APÊNDICES.....	84
A.1 – Polarização como termo de fonte do campo eletromagnético.....	85
A.2 – Dependência das constantes de acoplamento com a polarização dos campos incidentes.....	86
A.3 – Detalhamento de alguns cálculos.....	93
a) Obtenção da equação (2.37).....	93
b) Cálculo das integrais da equação (2.50).....	94
REFERÊNCIAS.....	98

Capítulo 1

Introdução

1.1 - Histórico

Em 1859, o físico alemão Gustav Robert Kirchhoff e seu colaborador, o químico Robert Wilhelm Bunsen, deram início a um cuidadoso estudo dos espectros produzidos por diversos vapores quando aquecidos a uma chama proveniente de um bico de Bunsen. Os vapores aquecidos produziam um espectro de emissão, com raias brilhantes contra um fundo escuro. E mais ainda, a natureza dessas raias com brilho dependia dos elementos presentes no vapor. Cada elemento dava origem a um padrão próprio de raias brilhantes e a mesma raia na mesma posição nunca foi produzida por elementos diversos. O espectro de emissão servia como uma espécie de impressão digital dos elementos presentes no vapor incandescente e, assim, Kirchhoff e Bunsen criaram a técnica da espectroscopia. No ano seguinte, no decorrer dos seus estudos sobre os espectros produzidos por vários minerais, Kirchhoff e Bunsen se defrontaram com raias que não eram produzidas por qualquer elemento conhecido. Suspeitaram tratar-se de novos elementos, até então não descobertos e puderam comprovar rapidamente o fato pela análise química. Os novos elementos foram denominados *cesium* e *rubidium*, que em latim significam céu azul e vermelho, respectivamente. O cézio e o rubídio foram os primeiros elementos a serem descobertos espectroscopicamente, mas não foram de modo algum os últimos [01].

Desde o surgimento da espectroscopia essa técnica tem sido usada como uma ferramenta poderosa no nosso entendimento da natureza. Sua importância pode ser avaliada se levarmos em conta o número de prêmios Nobel que foram conferidos para trabalhos que contribuíram para o crescimento da técnica ou a utilizaram em desenvolvimento ou descobertas. A tabela 1.1 mostra alguns prêmios Nobel conferidos para trabalhos relacionados com a espectroscopia.

Nesta dissertação iremos estudar fenômenos ópticos não lineares em sistemas atômicos utilizando técnicas espectroscópicas. O desenvolvimento da óptica não linear foi motivado pela construção do laser, no início dos anos 60 por Maiman. A observação de um

processo de geração de segundo harmônico, feita por Franken em 1961 [02], foi o trabalho pioneiro nessa área. Tal efeito foi observado a partir da conversão de luz visível em radiação ultravioleta e a partir daí, vários outros efeitos não lineares foram observados, como a geração de soma e diferença de frequências, amplificação paramétrica, retificação da luz, entre outros.

Pesquisador (ano)	Contribuição
H. A. Lorentz e P. Zeeman (1902)	Descoberta da separação das linhas espectrais num campo magnético.
A. A. Michelson (1907)	Invenção do interferômetro, dispositivo de grande valor na instrumentação espectroscópica
J. Stark (1919)	Descoberta da separação das linhas espectrais num campo elétrico.
C. V. Raman (1930)	O primeiro a demonstrar o deslocamento de linhas espectrais devido ao espalhamento inelástico da luz (efeito Raman).
N. G. Basov, A. M. Prokhorov e C. H. Townes (1964)	Desenvolvimento do maser, uma fonte de microondas coerente, a qual levou ao desenvolvimento do laser.
R. S. Mulliken (1966) e G. Herzberg (1971)	Pelas suas contribuições à espectroscopia molecular.
A. Kastler (1966)	Pelo desenvolvimento do bombeamento óptico de átomos.
A. L. Schawlow (1981)	Por trabalhos no campo de espectroscopia laser.
N. Bloembergen (1981)	Por suas contribuições à óptica não linear.
H. G. Dehmelt e W. Paul (1989)	Pela invenção da armadilha de íons, uma importante ferramenta na pesquisa espectroscópica.
A. Zewail (1999)	Por estudos de transições de estados de reações químicas utilizando espectroscopia de femtosegundo.

Tabela 1.1: Histórico de alguns prêmios Nobel conferidos por trabalhos relacionados com espectroscopia óptica.

Os tratamentos teóricos dos efeitos não lineares surgiram após as primeiras observações experimentais. Em 1962, Armstrong e colaboradores [03] discutiram as interações de ondas eletromagnéticas num dielétrico não linear. Em 1964, Bloembergen e Shen [04] introduziram o formalismo da matriz densidade, com efeitos de saturação e tratamento perturbativo, resultando num melhor entendimento dos processos não lineares.

Em um meio isotrópico, como um vapor atômico, o processo não linear de Mistura de Quatro Ondas (MQO) é o mais intenso. Este processo é um exemplo de geração de soma e diferença de frequências, o qual ocorre a partir da interação de um meio não linear com três ondas eletromagnéticas, sendo gerada uma quarta onda, com uma frequência que é uma combinação linear das frequências das ondas incidentes. Neste trabalho vamos analisar a resposta de um sistema atômico à excitação por dois fótons, provenientes de pares de pulsos de um laser incoerente, para o processo de MQO. O sistema atômico, descrito por quatro níveis de energia, interage com feixes de frequências centrais ω_{1c} , ω_{2c} e ω_{3c} , sendo $\omega_{1c} = \omega_{2c}$, pois os feixes correspondentes a essas frequências são provenientes do mesmo laser. O sinal gerado está associado a processos tais que $\omega_{\text{sinal}} = \omega_{1c} + \omega_{2c} - \omega_{3c}$. Os feixes de frequências ω_{1c} e ω_{2c} têm um tempo de coerência T_c (da ordem de alguns picossegundos) que é menor do que a duração temporal do pulso T_p e são responsáveis pela transição de dois fótons no processo estudado. Pares de pulsos do laser incoerente, com atraso temporal variável, interagem com o sistema atômico. A resposta do sistema é calculada usando o formalismo da matriz densidade, na aproximação de onda girante e no regime perturbativo. Para a obtenção da intensidade do sinal gerado são realizadas médias estatísticas sobre os campos incoerentes. A intensidade do sinal de MQO, em função do atraso temporal entre os pares de pulsos, apresenta efeitos de interferência para o sistema de quatro níveis atômicos. Para atrasos menores que o tempo de coerência T_c , podemos observar oscilações cujo período é determinado pela frequência central do laser, ω_{1c} . Para atrasos maiores que o tempo de coerência T_c , obtemos oscilações associadas à transição de dois fótons, similares às franjas de Ramsey, mas no domínio temporal. Em

ambos os casos a interferência é determinada pela fase relativa entre os diferentes caminhos quânticos induzidos pelos pares de pulsos.

Um dos trabalhos pioneiros sobre a interferência devida a diferentes caminhos quânticos induzidos em um sistema por feixes de lasers foi realizado por Bloembergen [05], em 1965. Nesse trabalho, um meio Raman interage com um laser monocromático, de frequência ω_1 , sendo gerados dois campos com duas frequências distintas: $\omega_2 = \omega_1 - \omega_{if}$ e $\omega_3 = \omega_1 + \omega_{if}$, onde ω_{if} é a frequência de transição entre os níveis i e f , conforme pode ser visto na figura 1.1. Neste caso o nível final $|f\rangle$ pode ser acessado através de dois caminhos ópticos distintos, sendo um caminho devido ao laser e ao campo de frequência ω_2 , enquanto o outro caminho é devido ao laser e ao campo de frequência ω_3 . Os efeitos verificados para esse tipo de sistema são uma acentuada redução do ganho óptico para os campos gerados, devido a uma interferência destrutiva que ocorre entre os dois caminhos quânticos acessíveis ao sistema.

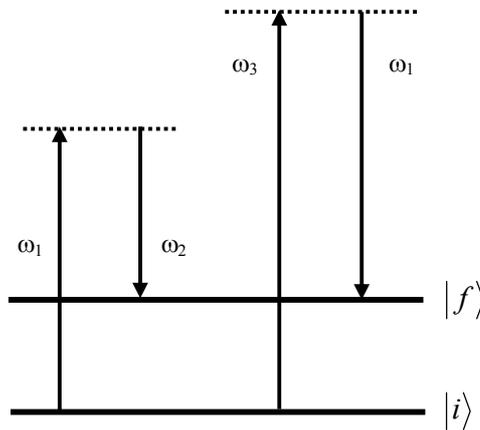


Figura 1.1: Níveis de energia utilizados para exemplificar o efeito de interferência entre caminhos ópticos distintos.

Mais recentemente o estudo da interferência entre diferentes caminhos quânticos que competem entre si tornou-se uma área de pesquisa bastante ativa. Em 1982, Jackson e colaboradores [06] obtiveram cancelamento da ionização multifotônica, através de efeitos de interferência entre um processo de três fótons de um laser e o seu terceiro harmônico, que levam a um estado comum do xenônio.

Efeitos de interferência em sistemas atômicos com muitos níveis energéticos têm permitido a observação de vários fenômenos interessantes, tais como: transparência induzida por laser [07 – 08], laser sem inversão de população [09], aumento do índice de refração atômico [10]. Além disso, efeitos de interferência têm sido usados para o controle coerente de reações químicas [11]. Em física da matéria condensada interferências entre processos de absorção de um e dois fótons podem ser usados para gerar correntes de elétrons com spins polarizados [12 – 13].

Em nosso estudo estaremos sempre tratando com pares de pulsos de um laser de banda larga, portanto será necessário empregar técnicas espectroscópicas que utilizam luz incoerente. A motivação para o desenvolvimento de técnicas espectroscópicas com este tipo de radiação foi devido a três fatores principais: à época em que foi concebida, lasers gerando pulsos de até 30 fs, i. e., pulsos ultracurtos, já eram disponíveis, mas eram caros e complexos. Além disto, o comprimento de onda central de emissão desses lasers era restrito à região do espectro entre 615 e 625 nm, devido à limitação imposta pela combinação adequada do meio de ganho com o absorvedor saturável. Isto limitava muito o intervalo de comprimentos de onda no qual o material podia ser estudado. Devido ao surgimento dos osciladores paramétricos ópticos estas dificuldades foram removidas. Porém ainda existe um obstáculo intrínseco aos pulsos ultracurtos, devido ao alargamento temporal causado pela dispersão do pulso em componentes ópticos e/ou na amostra, o que diminui a resolução temporal do sistema.

Um exemplo de uma técnica espectroscópica que utiliza pulsos ultracurtos foi desenvolvida por Zewail. Esta técnica se chama espectroscopia de estados transitórios no domínio de femtossegundos e consiste em monitorar o estado criado por um pulso ultra

curto no estágio inicial de fotodissociação de uma molécula. Isto é feito medindo a fluorescência induzida em um dos átomos da molécula, após a excitação por um pulso de prova temporalmente atrasado, para diferentes comprimentos de onda. Esta técnica tem sido utilizada na investigação de várias moléculas (ver referências [14 – 17]) e tem possibilitado um melhor entendimento da dinâmica de femtossegundo de algumas reações elementares.

O trabalho pioneiro fazendo uso de luz incoerente para a espectroscopia resolvida no tempo, que até então era feita utilizando-se pulsos ultracurtos, cuja duração tinha que ser menor do que os tempos de relaxação investigados para que estes pudessem ser medidos, foi o de Vasil'eva e colaboradores [18]. Eles propuseram o uso da técnica de auto difração com luz incoerente, após perceberem que se os feixes incidentes na amostra não forem coerentes, o padrão de interferência na região de interação não é estacionário, isto é, as posições dos máximos e dos mínimos variam com o tempo, porém o período do padrão permanece constante. Se o tempo de relaxação da amostra for pequeno em comparação com o tempo que caracteriza o padrão interferométrico não estacionário, então a intensidade da luz difratada é grande. Entretanto se o tempo de relaxação da amostra for grande, a intensidade da luz difratada irá decair com o tempo e isto pode então servir como uma medida do tempo de relaxação.

Asaka e colaboradores [19] estudaram o fenômeno do eco de fótons acumulado usando luz coerente e incoerente. Neste último caso, mostraram que a resolução temporal é determinada pelo tempo de coerência, t_c do campo de excitação e não pela duração do pulso, t_p . Teoricamente previram, para o caso em que o tempo de coerência é muito menor do que o tempo de relaxação da polarização induzida, um sinal da forma $I(\tau) \propto \exp(-4\tau/T_2)$, onde τ é o atraso relativo entre dois feixes gêmeos em um esquema de auto difração e T_2 é o tempo de defasamento óptico. Por outro lado Beach e Hartmann [20] usaram fontes de luz térmica (incoerente) para demonstrar o eco de fótons num regime em que não há superposição temporal entre as intensidades dos lasers incidentes em uma amostra de vapor de sódio.

O estabelecimento das bases teóricas da espectroscopia transiente em processos de mistura degenerada de quatro ondas ressonante, no limite perturbativo, para um sistema de dois níveis, ocorreu em 1984 com o trabalho de Morita e Yajima [21]. Um dos aspectos mais interessantes desse trabalho foi a observação de que a luz incoerente comporta-se como um único pulso de duração t_c numa medida de auto-correlação. Isto gera a expectativa de que a radiação incoerente desempenhe o mesmo papel de um pulso ultracurto em espectroscopias não lineares usando técnicas de correlação. Baseados nesse fato sugeriram a interpretação da luz incoerente como uma série de pulsos ultracurtos aleatórios, de forma que o processo de mistura de quatro ondas pode ser entendido como um conjunto de numerosos processos de mistura de quatro ondas causados por combinações de três pulsos.

Morita e colaboradores analisaram o fenômeno de propagação coerente de luz incoerente e de baixa intensidade através de um meio ressonante [22]. Neste trabalho foi demonstrado que o pico de coerência da correlação cruzada entre a luz que se propaga no meio e a inicial, através da geração de segundo harmônico, reproduz a mesma oscilação específica que o comportamento, em tempo real, de um pulso curto e coerente que se propaga através do mesmo meio.

A utilização de luz incoerente tem permitido a observação de vários fenômenos interessantes do ponto de vista da óptica não linear, como por exemplo: estudos de tempo de defasamento em vapores atômicos [23], interferência transiente utilizando mistura de quatro ondas com luz incoerente [24], mistura de quatro ondas com defasamento temporal utilizando luz incoerente intensa [25], entre outros.

Uma nova técnica de bombeamento e prova foi proposta em 1986 por Tomita e colaboradores [26]. Esta consiste no uso de pulsos incoerentes, ao invés de pulsos limitados por transformada de Fourier, utilizados na antiga técnica de bombeamento e prova. Com esta técnica, Tomita mostrou que fazendo uso da correlação da intensidade da luz temporalmente incoerente, é possível medir o tempo de relaxação longitudinal de um

estado atômico, com a resolução temporal sendo dada pelo tempo característico da correlação da intensidade dos campos de excitação independentemente da largura do pulso.

Estes trabalhos nos mostram que as técnicas que fazem uso de luz incoerente se revelaram bastantes úteis no estudo da óptica não linear, uma vez que a construção e a operação de lasers de nanossegundos são mais simples do que o uso de fontes de pulsos ultracurtos. Além dessa facilidade os resultados obtidos, através de técnicas que utilizam luz incoerente, se mostraram tão significativos quanto os obtidos com pulsos ultracurtos. Exemplos da utilização de técnicas envolvendo luz incoerente na investigação da dinâmica de diversos sistemas podem ser encontrados na literatura. Podemos citar como exemplo o estudo realizado por Acioli e colaboradores [27] no qual foi analisada a não linearidade não ressonante em vidros dopados com semicondutores através da técnica de auto difração com luz incoerente. Em um outro trabalho Kozich e colaboradores utilizam a técnica de MQO interferométrica com luz incoerente para o estudo da relaxação de populações de níveis atômicos [28].

As facilidades oferecidas pelas técnicas de luz incoerente geram ao mesmo tempo algumas dificuldades. Em alguns casos, devido ao aparecimento do pico de coerência e/ou de uma componente de fundo constante no sinal, o que se deseja medir fica encoberto por estes artefatos. Para a obtenção de uma boa relação sinal/ruído é necessário ajustar a largura espectral do laser. Além disso, como as técnicas espectroscópicas com luz incoerente empregam lasers de pulsos com duração da ordem de nanossegundos, a energia dos feixes é necessariamente maior do que a dos feixes de pulsos ultracurtos, mas com a mesma potência de pico. Os efeitos térmicos em experimentos com luz incoerente podem ter maior influência, portanto, do que em experimentos com pulsos ultracurtos.

Um exemplo de uma técnica que foi desenvolvida com pulsos ultracurtos, mas que também pode ser executada utilizando-se luz incoerente é o controle temporal coerente. Nesta técnica, uma seqüência de dois pulsos temporalmente atrasados é usada para excitar dois caminhos quânticos distintos. A fase da interferência é relacionada ao atraso temporal entre os dois pulsos. Ao variarmos este atraso relativo entre os pulsos

obtemos padrões interferométricos que variam com uma frequência muito alta. Estes padrões correspondem às franjas de Ramsey, modulados por uma envoltória lenta devida à interferência entre os possíveis caminhos quânticos acessíveis ao sistema. Tal fenômeno foi estudado por Blanchet e colaboradores [29], em um sistema onde eram utilizados pulsos ultracurtos para excitar os diferentes caminhos quânticos. O meio utilizado foi o césio e foram explorados os estados $6s-7d$, excitados por uma transição de dois fótons.

Em um outro trabalho Meshulach e Silberberg mostraram que o controle temporal coerente, pode ser utilizado para amplificar ou cancelar a probabilidade de transição, por absorção de fótons, entre níveis atômicos [30]. O princípio utilizado nesse estudo consiste no fato de que a interferência entre o sistema atômico e o feixe incidente depende da distribuição espectral da fase do feixe. Ao controlarmos a distribuição de fase, portanto, podemos controlar o resultado da interação entre o sistema atômico e o feixe incidente.

Recentemente Silberberg e colaboradores mostraram que, moldando a fase de um pulso ultracurto de 100 fs de duração, pode-se obter um sinal de largura de linha estreita, a partir de uma espectroscopia Raman anti-Stokes coerente (CARS) [31]. A resolução espectral obtida dessa forma é maior em uma ordem de magnitude que a conseguida através do sinal CARS de um pulso limitado por transformada de Fourier.

Neste trabalho vamos estudar um processo de MQO, resolvida no tempo, utilizando luz incoerente. Vamos observar a intensidade do sinal de MQO em função do atraso relativo entre os campos incoerentes que incidem sobre o sistema. Além disso, vamos estudar a dependência do sinal gerado com os vetores de polarização dos campos incidentes. Ao variarmos as polarizações desses campos podemos selecionar os diferentes caminhos que contribuem para o sinal, permitindo distinguir as diferentes interferências que ocorrem no sistema. Os cálculos e resultados analíticos estão descritos no capítulo 2. No capítulo 3 apresentamos os resultados de cálculos numéricos envolvendo o sistema em estudo. No capítulo 4 apresentamos as conclusões do trabalho apresentado e perspectivas de futuros estudos relacionados com o tema apresentado nessa dissertação.

Finalmente, nos apêndices detalhamos algumas passagens que não foram feitas no corpo da dissertação com o intuito de tornar a leitura mais compreensível, também são apresentados alguns tópicos relacionados com o tema em estudo.

1.2 – Médias estatísticas com luz incoerente

O objetivo do estudo dessa dissertação é determinar os fenômenos que ocorrem quando dois pulsos de luz, provenientes da mesma fonte (um laser de corante), interagem com um sistema atômico, em função do atraso temporal entre os mesmos. Por estarmos tratando com luz incoerente, a amplitude e a fase dos campos de cada um dos feixes varia aleatoriamente. A intensidade instantânea da luz num determinado ponto também irá variar. Devemos então utilizar médias estatísticas para podermos comparar nossos resultados com medidas experimentais, onde tais médias são realizadas no processo de medição.

Nesta seção descrevemos brevemente alguns dos tópicos da estatística clássica de campos eletromagnéticos que serão úteis nos cálculos de médias envolvendo pulsos incoerentes, que irão aparecer ao longo desta dissertação. Iremos explorar as propriedades da coerência temporal (ou longitudinal), sem nos determos na questão da coerência espacial (ou transversal).

Na estatística clássica da luz, o campo eletromagnético é tratado como uma variável estocástica. Ao realizarmos alguma medida deste campo, supondo que o tempo de observação é suficientemente longo, estaremos obtendo uma média estatística, sobre todas as possíveis realizações do *ensemble*, considerando que o sistema seja ergódico. Uma quantidade muito útil na descrição do campo eletromagnético é a função de correlação, ou momento de segunda ordem. A importância da função de correlação pode ser evidenciada ao considerarmos a definição de espectro do campo. Se o campo num ponto fixo P , pode

ser representado por uma função real $E_r(t)$, seu espectro pode ser definido em termos da transformada de Fourier e sua inversa:

$$E_r(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} E(\omega) e^{-i\omega t} d\omega, \quad (1.1)$$

$$E(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} E_r(t) e^{i\omega t} dt. \quad (1.2)$$

Neste caso a densidade espectral é definida por:

$$S(\omega) = 2\pi |E(\omega)|^2. \quad (1.3)$$

Um campo que obedece as equações (1.1), (1.2) e (1.3) é chamado determinístico ou coerente. Quando $E_r(t)$ representa uma variável aleatória de um *ensemble* estacionário $\{E_r(t)\}$ esta definição de densidade espectral não é satisfatória devido a problemas com a convergência das transformadas de Fourier em (1.1) e (1.2). Para contornar estes problemas Wiener e Khintchine [32], definiram o espectro em termos da função de correlação complexa $\Gamma(\tau)$, dada por:

$$\Gamma(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} E(t+\tau) E^*(t) dt. \quad (1.4)$$

Ou, no caso de $E(t)$ representar uma variável aleatória:

$$\Gamma(\tau) = \langle E(t+\tau) E^*(t) \rangle, \quad (1.5)$$

onde $E(t)$ é chamado de sinal analítico, definido em termos das frequências positivas do campo $E_r(t)$ real:

$$E(t) = \int_0^{\infty} E(\omega) e^{-i\omega t} d\omega. \quad (1.6)$$

As definições da função de correlação dadas em (1.4) e (1.5), correspondem a situações distintas. A primeira é usada quando consideramos campos determinísticos e a segunda quando $E(t)$ representa uma variável aleatória. Neste caso o símbolo $\langle \dots \rangle$ representa uma média estatística.

O teorema de Wiener-Kintchine afirma que a densidade espectral $S(\omega)$ e a função de correlação $\Gamma(\tau)$ estão relacionadas através de uma transformada de Fourier. Podemos então escrever:

$$S(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \Gamma(\tau) e^{i\omega\tau} d\tau. \quad (1.7)$$

Para obter uma expressão para a função de correlação em termos da densidade espectral basta substituir a equação (1.6) na definição da função de correlação (1.5). Para um campo estocástico temos então:

$$\Gamma(\tau) = \int_0^{\infty} d\omega \int_0^{\infty} d\omega' \langle E(\omega) E^*(\omega') \rangle e^{-i\omega(t+\tau) + i\omega't}. \quad (1.8)$$

Em processos estacionários $\Gamma(\tau)$ não depende de t , sendo necessário para isto que:

$$\langle E(\omega)E^*(\omega') \rangle = S(\omega)\delta(\omega - \omega'). \quad (1.9)$$

Finalmente obtemos que:

$$\Gamma(\tau) = \int_0^{\infty} S(\omega)e^{-i\omega\tau} d\omega, \quad (1.10)$$

que é a relação complementar da equação (1.7) no teorema de Wiener-Kintchine.

Um outro teorema muito importante na óptica não linear é o teorema dos momentos Gaussianos ou teorema de Wick. Iremos enunciar o teorema sem prová-lo, para uma demonstração ver [33]. Seja $\{A_1(t), A_2(t), \dots, A_{2n}(t)\}$ um conjunto de variáveis aleatórias com distribuição Gaussiana. Podemos relacionar momentos pares de ordem superior aos momentos de segunda ordem através da relação:

$$M_{2n} = \sum_{p_i} p_i \prod_{\substack{i=1,2,\dots,n \\ j=n+1,\dots,2n}} \Gamma(t_i - t_j), \quad (1.11)$$

onde a somatória é sobre todas as permutações, p_i , dos índices $i = 1, 2, \dots, n$. Por exemplo o momento de ordem 4 pode ser escrito como:

$$\begin{aligned} \langle A_1(t_1)A_2(t_2)A_3^*(t_3)A_4^*(t_4) \rangle &= \langle A_1(t_1)A_2(t_2) \rangle \cdot \langle A_3^*(t_3)A_4^*(t_4) \rangle \\ &+ \langle A_1(t_1)A_3^*(t_3) \rangle \cdot \langle A_2(t_2)A_4^*(t_4) \rangle + \langle A_1(t_1)A_4^*(t_4) \rangle \cdot \langle A_2(t_2)A_3^*(t_3) \rangle. \end{aligned} \quad (1.12)$$

Do ponto de vista experimental a função de correlação de primeira ordem pode ser medida utilizando-se um interferômetro de Michelson, como ilustrado na figura 1.2.

A intensidade luminosa registrada pelo detector é dada por:

$$\begin{aligned} I &= \langle \vec{E} \cdot \vec{E}^* \rangle = \langle (\vec{E}_1 + \vec{E}_2) \cdot (\vec{E}_1^* + \vec{E}_2^*) \rangle \\ &= \langle |\vec{E}_1|^2 + |\vec{E}_2|^2 + 2\text{Re}(\vec{E}_1 \cdot \vec{E}_2^*) \rangle. \end{aligned} \quad (1.13)$$

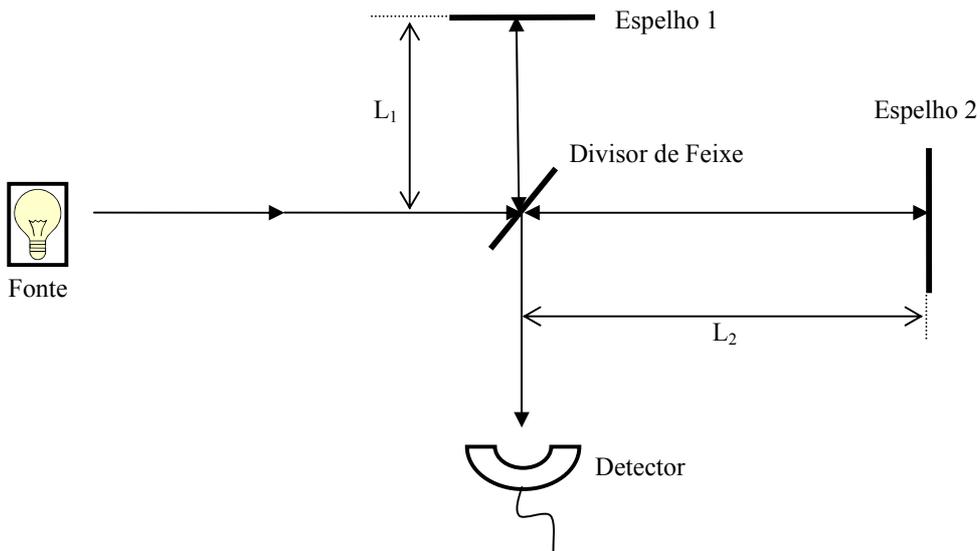


Figura 1.2: Interferômetro de Michelson. Os espelhos apresentados na figura são planos.

Nas discussões a seguir iremos supor que todos os campos são determinísticos de modo que as médias da equação (1.13) representam médias temporais, porém os resultados encontrados nas discussões podem ser generalizados para campos não determinísticos [34]. Também iremos assumir que todas as quantidades são estacionárias, no sentido da equação (1.9). Por conveniência consideramos todos os campos polarizados

na mesma direção, de forma que podemos esquecer sua natureza vetorial. Podemos então reescrever a equação (1.13) como:

$$I = I_1 + I_2 + 2 \operatorname{Re} \langle E_1(t-t_1) E_2^*(t-t_2) \rangle, \quad (1.14)$$

onde $I_i = \langle |E_i|^2 \rangle$ e $t_i = 2L_i/c$ é o atraso em cada braço do interferômetro, sendo c a velocidade da luz. Vamos chamar a diferença temporal devido à diferença de caminho óptico de τ , i. e., $\tau = t_2 - t_1$. Temos então que o termo de interferência pode ser escrito como $2 \operatorname{Re} \Gamma_{12}(\tau)$, onde $\Gamma_{12}(\tau)$ é a função definida em (1.5), com $\Gamma_{11}(0) = I_1$ e $\Gamma_{22}(0) = I_2$.

Podemos ainda definir uma função de correlação normalizada:

$$\gamma_{12}(\tau) = \frac{\Gamma_{12}(\tau)}{\sqrt{\Gamma_{11}(0)\Gamma_{22}(0)}} = \frac{\Gamma_{12}(\tau)}{\sqrt{I_1 I_2}}, \quad (1.15)$$

o que nos permite escrever a intensidade no detector como:

$$I = I_1 + I_2 + 2\sqrt{I_1 I_2} \operatorname{Re} \gamma_{12}(\tau). \quad (1.16)$$

Num padrão interferométrico, as franjas de interferência variam entre dois limites $I_{\max.}$ e $I_{\min.}$. De (1.16) podemos ver que esses limites são dados por: $I_{\max.} = I_1 + I_2 + 2\sqrt{I_1 I_2} \gamma_{12}(\tau)$ e $I_{\min.} = I_1 + I_2 - 2\sqrt{I_1 I_2} \gamma_{12}(\tau)$. A visibilidade das franjas V é definida por:

$$V = \frac{I_{\max.} - I_{\min.}}{I_{\max.} + I_{\min.}}. \quad (1.17)$$

Logo:

$$V = \frac{2\sqrt{I_1 I_2} |\gamma_{12}(\tau)|}{I_1 + I_2}. \quad (1.18)$$

Em particular se $I_1 = I_2$, temos:

$$V = |\gamma_{12}(\tau)|. \quad (1.19)$$

Ou seja, o grau de coerência é igual à visibilidade das franjas. No caso de coerência completa as franjas de interferência têm o maior contraste possível, o qual é igual a um. Enquanto que para a incoerência completa $|\gamma_{12}(\tau)| = 0$, o contraste é nulo, i. e., não existem franjas de interferência. Portanto ao medirmos a visibilidade das franjas de interferência num experimento utilizando o interferômetro de Michelson, estamos medindo o grau de coerência entre os feixes que participam desse experimento.

1.3 – Franjas de Ramsey

Devido à analogia existente entre o fenômeno estudado nesta dissertação e as franjas de Ramsey, essa seção será dedicada a uma breve discussão sobre esse assunto.

Na segunda metade da década de 40, Ramsey criou uma nova técnica espectroscópica de alta resolução. Nesta técnica um feixe de átomos interage com ondas de rádio em duas regiões espaciais distintas. Os átomos que passam através da primeira região são excitados de forma coerente. Se a coerência ainda existe quando os átomos excitados alcançam a segunda região, eles vão absorver ou emitir as ondas de rádio dessa região,

dependendo da coerência atômica estar em fase ou fora de fase com o campo da onda de rádio da segunda região. A absorção na segunda região aparece então como franjas de interferência à medida que a frequência da onda de rádio é varrida através da ressonância atômica. Essas franjas são conhecidas como franjas de Ramsey [35].

Essa técnica pode ser estendida para a espectroscopia óptica. Como o tempo de defasamento óptico de uma transição atômica é muito curto, devemos modificar a técnica a fim de podermos observar o padrão de interferência. Podemos utilizar dois pulsos de laser separados temporalmente, para excitar o mesmo grupo de átomos numa célula de vapor, por exemplo. O espectro de emissão do sistema depois do segundo pulso exibe as franjas de Ramsey.

As franjas de Ramsey dependem da correlação entre as fases dos dois pulsos. Se esses pulsos não tiverem correlação de fase, nenhuma franja pode ser observada. Além disso, se o tempo de decaimento da excitação provocada pelo primeiro pulso for menor que a separação temporal entre os pulsos, o padrão interferométrico desaparece. O efeito da falta de correlação, entre os dois pulsos, pode ser verificada, no espectro observado, através do alargamento entre dois picos consecutivos do padrão interferométrico e do decaimento do contraste das franjas.

Como exemplo vamos considerar um sistema de dois níveis excitado via uma absorção de dois fótons. Vamos supor que os pulsos que excitam o sistema tem como distribuição temporal uma delta de Dirac, isto equivale a dizer que os pulsos só interagem com o sistema atômico num instante de tempo determinado. Além disso vamos supor que a separação temporal entre os pulsos é τ . Em $t \leq 0$ o sistema está no estado $|1\rangle$, e em $t > 0$, o sistema está no estado:

$$|\psi\rangle = a(t)|1\rangle + b(t)|2\rangle, \quad (1.20)$$

supondo que podemos utilizar teoria de perturbação, então $a(t) \cong 1$, e $b(t)$ pode ser calculada através da equação de Schrödinger, ou seja:

$$i \frac{\partial}{\partial t} b(t) \cong A \exp[-i(2\omega - \omega_{12})t], \quad (1.21)$$

onde A é um coeficiente de acoplamento proporcional à transição de probabilidade pela transição por dois fótons. Considerando a distribuição temporal como uma delta de Dirac, chegamos a:

$$b(t) = \frac{A}{(2\omega - \omega_{12})} \exp[-i(2\omega - \omega_{12})t] \quad (1.22)$$

Para o pulso que interage com o sistema no instante $t + \tau$, temos:

$$b(t + \tau) = \frac{A}{(2\omega - \omega_{12})} \exp[-i(2\omega - \omega_{12})(t + \tau)] \quad (1.23)$$

Portanto o coeficiente $b(t)$, após os dois pulsos será:

$$b_{tot}(t) = b(t) + b(t + \tau)$$

$$b_{tot}(t) = \frac{A}{(2\omega - \omega_{12})} \exp[-i(2\omega - \omega_{12})t] \{1 + \exp[-i(2\omega - \omega_{12})\tau]\} \quad (1.24)$$

Numa medida da fluorescência de $|2\rangle$, detectamos um sinal proporcional a $|b_{tot}(t)|^2$ o qual será dado por:

$$|b_{tot}(t)|^2 = \frac{2A^2}{(2\omega - \omega_{12})^2} [1 + \cos(2\omega - \omega_{12})\tau] \quad (1.25)$$

Na figura 1.3 apresentamos um gráfico que mostra o comportamento de $|b_{tot}(t)|^2$, em função do atraso relativo entre os pulsos.

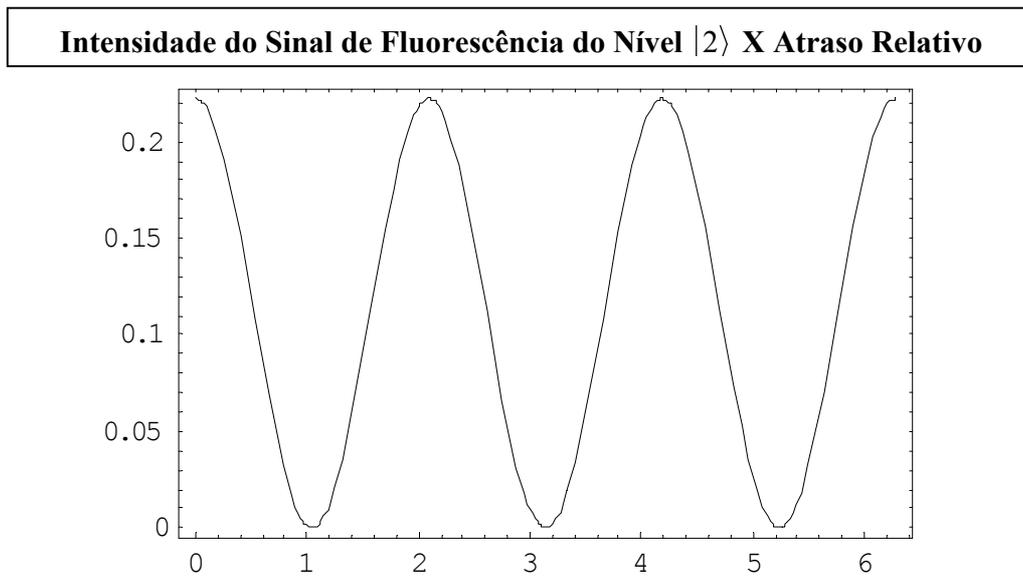


Figura 1.3: Gráfico apresentando as franjas de Ramsey. O eixo vertical foi normalizado pelo fator $2A^2$ da equação (1.25) e o eixo horizontal é o atraso relativo entre os pulsos.

Através do gráfico da figura 1.3 podemos observar o padrão interferométrico associado às franjas de Ramsey. Como veremos mais adiante esse padrão é semelhante ao encontrado no nosso estudo.

Capítulo 2
Mistura de quatro ondas em um
sistema atômico de quatro níveis

2.1 - Introdução

Neste capítulo analisamos o sinal gerado no processo de Mistura de Quatro Ondas (MQO) através do formalismo da matriz densidade, utilizando como modelo um átomo de quatro níveis, interagindo com três campos de lasers.

Inicialmente apresentamos as equações da matriz densidade para os três campos \vec{E}_1 , \vec{E}_2 e \vec{E}_3 que incidem sobre a amostra, supondo-os intensos e interagindo com a amostra no mesmo instante t . As expressões obtidas para as coerências e as populações do sistema são equações diferenciais acopladas e não apresentam solução analítica. Tratamos então os três campos de forma perturbativa. Assim, podemos obter uma expressão analítica para a suscetibilidade gerada na MQO.

Calculamos então a polarização. Neste cálculo introduzimos o atraso temporal entre os pulsos $\vec{E}(t)$ e $\vec{E}(t - \tau)$, que interagem com o sistema atômico nos instantes t e $t - \tau$, respectivamente. De posse da polarização macroscópica induzida no meio obtemos a intensidade do sinal de MQO, em função do atraso entre os pulsos $\vec{E}(t)$ e $\vec{E}(t - \tau)$. Para isso é necessária a realização de uma média de *ensemble* sobre os campos que incidem no meio, uma vez que estamos tratando com luz incoerente

Em uma etapa posterior analisamos a dependência do sinal gerado com os vetores de polarização dos campos incidentes, o que torna possível variar a fase relativa de cada caminho quântico acessível ao sistema, modificando o sinal como um todo e destruindo o termo que depende apenas da frequência central do laser de corante.

Estamos interessados em calcular a intensidade do sinal de MQO, em função do atraso relativo entre pares de pulsos contendo os campos \vec{E}_1 e \vec{E}_2 . Estes campos são provenientes do mesmo laser de corante (banda larga), porém com frequências centrais distintas, ω_1 e ω_2 , respectivamente. Os pares de pulsos, contendo os campos \vec{E}_1 e \vec{E}_2 , são gerados após a passagem do feixe do laser de corante por uma linha de atraso, permitindo

assim, o controle do atraso entre os pulsos. O sistema atômico de interesse é constituído de quatro níveis de energia, rotulados pelos kets de estado: $|a\rangle$, $|b\rangle$, $|c\rangle$ e $|d\rangle$ (Figura 2.1), sendo os estados $|a\rangle$, $|c\rangle$ e $|d\rangle$ de paridade oposta ao estado $|b\rangle$, onde o nível a é o estado fundamental do sistema.

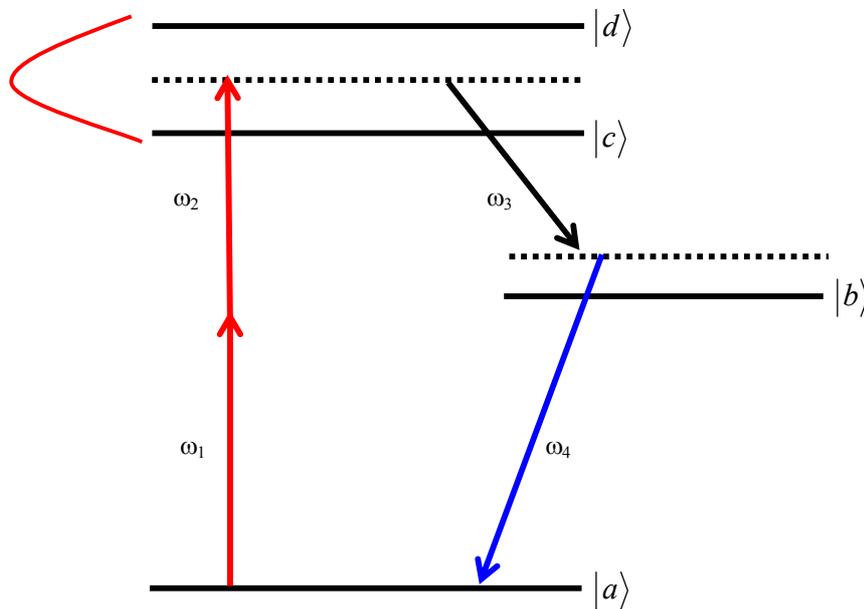


Figura 2.1: Esquema dos níveis de energia do sistema atômico e as frequências dos campos envolvidos.

O sinal de MQO é gerado através da interação, por dipolo elétrico, do sistema atômico com os campos $\vec{E}_1(\omega_1)$ e $\vec{E}_2(\omega_2)$, e um terceiro campo $\vec{E}_3(\omega_3)$, o qual tem largura de linha estreita e provém de um outro laser. Nos nossos cálculos iremos considerar que o alargamento *Doppler*, presente no sistema devido ao movimento dos átomos, é menor que a largura de banda dos campos presentes. O campo, $\vec{E}_1(\omega_1)$, não é ressonante por um fóton com os níveis excitados, estando próximo da ressonância na transição por dois fótons, entre o estado fundamental e os níveis c e d , sendo o mesmo válido para o campo $\vec{E}_2(\omega_2)$. As

freqüências ω_1 e ω_2 estão contidas dentro do espectro do laser de banda larga, de tal forma que ambas as ressonâncias por dois fótons com os estados c e d podem ser sondadas.

O campo $\vec{E}_3(\omega_3)$, de banda estreita, tem freqüência central próxima da transição por um fóton entre o nível b e os níveis c e d . O quarto campo $\vec{E}_4(\omega_4)$ presente no meio é gerado no processo de MQO, na freqüência $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$.

2.2 – Coerência entre dois estados num sistema de quatro níveis

Nesta seção iremos calcular a coerência induzida por campos eletromagnéticos que interagem com o sistema atômico descrito na figura 2.1. Nesse cálculo iremos considerar que os campos incidem sobre o sistema simultaneamente, isto é, interagem com o sistema no mesmo instante de tempo. Posteriormente essa condição será relaxada para podermos introduzir o atraso temporal entre pares de pulsos dos campos \vec{E}_1 e \vec{E}_2 .

Estamos interessados, portanto, em estudar os processos de interação do meio material com o campo eletromagnético total:

$$\vec{E}(z,t) = \sum_{l=1}^3 \frac{1}{2} \vec{u}_l [E_l(z,t) \exp[i(k_l z - \omega_l t)] + c.c.], \quad (2.1)$$

onde $\vec{k}_l = k_l \hat{z}$ é o vetor de onda dos campos que são copropagantes, ao longo da direção z , \vec{u}_l define o vetor de polarização dos campos e $E_l(z,t)$ representam as amplitudes dos campos elétricos.

Das equações constitutivas do meio e das equações de Maxwell, podemos verificar que a polarização gerada no meio irá servir como termo de fonte para o campo

eletromagnético (Apêndice A.1). Esse fenômeno é descrito pela equação de onda no sistema SI:

$$\left[\nabla^2 - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right] \vec{E} = \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2}. \quad (2.2)$$

A polarização macroscópica induzida no meio pode ser expandida em potências do campo dado em (2.1), o que é útil para a definição das suscetibilidades de ordem superior [35]:

$$\vec{P} = \varepsilon_0 (\chi^{(1)} : \vec{E} + \chi^{(2)} : \vec{E}\vec{E} + \chi^{(3)} : \vec{E}\vec{E}\vec{E} + \dots), \quad (2.3)$$

onde $\chi^{(n)}$ representa um tensor de ordem n e o símbolo “:” significa o produto tensorial.

Para meios isotrópicos, nos quais existe simetria de inversão, de modo que quaisquer grandezas físicas que dependam da posição têm o mesmo valor para \vec{r} ou para $-\vec{r}$, resulta que todas as suscetibilidades de ordem par anulam-se identicamente, restando apenas os termos ímpares da expansão (2.3). A partir disso vemos que em meios isotrópicos a suscetibilidade $\chi^{(3)}$ corresponde ao termo não linear de ordem mais baixa.

Como o campo incidente sobre o nosso sistema atômico, $\vec{E}(z, t)$, possui três frequências ópticas ω_i ($i = 1, 2, 3$), o termo de terceira ordem no campo irá conter combinações lineares possíveis do tipo $\omega_{lmn} = l \cdot \omega_1 + m \cdot \omega_2 + n \cdot \omega_3$, com l, m, n inteiros e $|l| + |m| + |n| = 3$.

Estamos interessados em estudar a polarização macroscópica gerada no meio cuja componente de frequência é $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$, de tal forma que esta polarização é dada por:

$$\vec{P}^{(3)}(\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3) = \chi^{(3)}(\omega_4) : \vec{E}_1(\omega_1) \vec{E}_2(\omega_2) \vec{E}_3^*(\omega_3), \quad (2.4)$$

onde utilizamos as transformadas de Fourier dos campos que aparecem no somatório da equação (2.1) para trabalharmos no domínio da frequência.

Iremos descrever o sistema atômico como um conjunto de N dipolos elétricos por unidade de volume, onde cada átomo tem um estado específico, $|i\rangle$, porém o conjunto de átomos constitui uma mistura estatística desses estados, cada um com peso estatístico w_i . O operador que permite uma descrição simples de uma mistura estatística de estados é o operador densidade $\hat{\rho}$, sendo definido como uma média ponderada sobre todos os subestados que compõem a mistura estatística:

$$\hat{\rho} = \sum_i w_i |i\rangle\langle i|. \quad (2.5)$$

Se \hat{A} for o operador correspondente a um dado observável físico, podemos calcular o seu valor esperado como [36]:

$$\langle \hat{A} \rangle = Tr(\hat{\rho}\hat{A}). \quad (2.6)$$

O operador densidade nos leva à definição da matriz densidade, a qual representa este operador numa base de autoestados convenientes ao problema em estudo. A matriz densidade é Hermiteana e sempre tem traço unitário. Os elementos diagonais, representados por $\rho_{nn}(t)$, são as probabilidades de encontrarmos o sistema no autoestado $|n\rangle$ e os elementos fora da diagonal, $\rho_{nm}(t)$, representam as coerências entre os estados $|n\rangle$ e $|m\rangle$ ($n \neq m$) [37]. De acordo com a equação (2.6), se quisermos calcular a polarização média do conjunto de dipolos que constituem o sistema em estudo, temos que tomar o traço do produto da matriz densidade pelo momento de dipolo, multiplicando o resultado pela densidade de dipolos.

A matriz densidade, por sua vez, tem sua dinâmica governada pela equação de Liouville:

$$\frac{\partial \hat{\rho}(t)}{\partial t} = \frac{i}{\hbar} [\hat{\rho}(t), \hat{H}], \quad (2.7)$$

onde $[\hat{\rho}(t), \hat{H}]$ é o comutador entre o operador densidade e o Hamiltoniano total do sistema [38].

O Hamiltoniano, na aproximação semiclássica (onde os campos são tratados de forma clássica e o sistema atômico é descrito quanticamente), pode ser escrito como:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{I}, \quad (2.8)$$

onde H_0 representa o Hamiltoniano total do sistema na ausência de campos e I descreve a interação por dipolo elétrico entre o átomo e o campo, sendo dado por:

$$\hat{I} = -\vec{\mu} \cdot \vec{E}(z, t), \quad (2.9)$$

onde $\vec{\mu}$ é o operador dipolo elétrico. O elemento de matriz da interação é dado por:

$$I_{ij} = \langle i | \hat{I} | j \rangle = -\frac{1}{2} \sum_{l=1}^3 [\mu_{ij}^{(l)} E_l(z, t) \exp[i(k_l z - \omega_l t)] + c.c.], \quad (2.10)$$

sendo $\mu_{ij}^{(l)} = \langle i | \vec{\mu} \cdot \vec{u}_l | j \rangle$, considerado real, sem perda de generalidade, o que pode ser feito, ajustando-se apropriadamente a fase das funções de onda dos níveis i e j .

A matriz associada ao operador Hamiltoniano é dada por:

$$\hat{H} = \begin{pmatrix} H_a & \hbar V_{ab} & \hbar V_{ac} & \hbar V_{ad} \\ \hbar V_{ba} & H_b & \hbar V_{bc} & \hbar V_{bd} \\ \hbar V_{ca} & \hbar V_{cb} & H_c & 0 \\ \hbar V_{da} & \hbar V_{db} & 0 & H_d \end{pmatrix}, \quad (2.11)$$

onde H_i é o autovalor de energia do estado não perturbado $|i\rangle$, e $\hbar V_{ij} = I_{ij}$ são os elementos da matriz de interação. Note que os elementos de matriz I_{cd} e I_{dc} são nulos pois os estados envolvidos nessa transição possuem a mesma paridade e esse tipo de transição é proibida por dipolo elétrico. Os elementos de matriz não nulos são dados por:

$$\begin{aligned} V_{ba} &= -\frac{\mu_{ab} E_4^*}{2\hbar} \\ V_{ai} &= \frac{k_{ai} E_1 E_2}{2\hbar}, \quad (i = c, d) \\ V_{ib} &= -\frac{\mu_{ib} E_3^*}{2\hbar}, \end{aligned} \quad (2.12)$$

onde os campos que aparecem na equação (2.12) são os mesmos do somatório da equação (2.1) e \vec{E}_4 é o campo gerado pelo meio no processo de MQO. k_{ai} é a constante de acoplamento efetivo da transição por absorção de dois fótons, sendo dada por um somatório que leva em conta a contribuição de todos os níveis intermediários, entre o estado fundamental e o nível excitado i [39]:

$$k_{ai} = \frac{1}{2\hbar} \sum_l \frac{\mu_{al} \mu_{li}}{\sqrt{\omega_{il} - \omega_1} \sqrt{\omega_{il} - \omega_2}}, \quad (2.13)$$

onde ω_{il} é a frequência de Bohr entre os níveis i e l . A equação (2.13) representa a constante de acoplamento efetivo no caso de absorção de um fóton do campo \vec{E}_1 e outro fóton do campo \vec{E}_2 . Também podemos ter a absorção de 2 fótons do campo \vec{E}_1 , ou dois fótons do campo \vec{E}_2 .

Para calcular a evolução temporal do operador densidade, devemos usar as matrizes associadas aos operadores densidade e dipolo elétrico, como mostram as equações (2.7), (2.8) e (2.9). Essas matrizes são dadas por:

$$\hat{\rho} = \begin{pmatrix} \rho_{aa} & \rho_{ab} & \rho_{ac} & \rho_{ad} \\ \rho_{ba} & \rho_{bb} & \rho_{bc} & \rho_{bd} \\ \rho_{ca} & \rho_{cb} & \rho_{cc} & \rho_{cd} \\ \rho_{da} & \rho_{db} & \rho_{dc} & \rho_{dd} \end{pmatrix}, \quad \hat{\mu} = \begin{pmatrix} 0 & \mu_{ab} & 0 & 0 \\ \mu_{ba} & 0 & \mu_{bc} & \mu_{bd} \\ 0 & \mu_{cb} & 0 & 0 \\ 0 & \mu_{db} & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (2.14)$$

Na matriz associada ao operador dipolo elétrico, os elementos da diagonal principal são identicamente nulos, pois não existe dipolo elétrico permanente no sistema atômico. Os demais termos nulos, resultam do fato dos estados $|a\rangle$, $|c\rangle$ e $|d\rangle$ terem a mesma paridade, sendo oposta à do estado $|b\rangle$.

Note entretanto que a equação (2.7) não está completa. Quando o campo que incide sobre o sistema é “desligado” esperamos que tanto as coerências quanto as populações do sistema relaxem para seus valores de equilíbrio. No caso da coerência esse valor é zero, enquanto, no caso da população é um valor bem determinado que depende do estado em questão. As coerências tendem a zero à medida que a coerência de fase entre as N autofunções do conjunto de dipolos é perdida, devido à interação com o sistema que circunda o conjunto de dipolos, num tempo característico T_{ij} , ou equivalentemente, com uma taxa característica γ_{ij} , chamada taxa de relaxação da coerência ou taxa de relaxação transversal. Essas taxas introduzem termos de relaxação na forma:

$$\left(\frac{\partial \rho_{ij}}{\partial t} \right)_{rel.} = -\gamma_{ij} \rho_{ij}. \quad (2.15)$$

Já as taxas de relaxação das populações, ou taxas de relaxação longitudinais, podem ser descritas como:

$$\left(\frac{\partial \rho_{ii}}{\partial t} \right)_{rel.} = -\gamma_i \rho_{ii} + \sum_k \gamma_k \rho_{kk}. \quad (2.16)$$

Note que as taxas de relaxação longitudinais têm termos positivos. Isto se deve ao fato de níveis mais energéticos poder decair para o nível i , antes de atingirem o nível fundamental, ou seja, na equação (2.16) devemos ter $k > i$.

Levando em conta as taxas de relaxação das coerências e das populações podemos reescrever a equação (2.7) como:

$$\frac{\partial \hat{\rho}(t)}{\partial t} = \frac{i}{\hbar} [\hat{\rho}(t), \hat{H}] + \left(\frac{\partial \hat{\rho}(t)}{\partial t} \right)_{relaxação}. \quad (2.17)$$

O observável físico que estamos interessados em estudar é a polarização macroscópica induzida pelos campos incidentes no sistema. Para determiná-la devemos tomar a média do conjunto dos dipolos atômicos e multiplicá-la pela densidade de dipolos, i. e.:

$$\bar{P} \equiv N \langle \hat{\mu} \rangle = N [Tr(\hat{\rho} \hat{\mu})]. \quad (2.18)$$

Calculando o traço em (2.18), com o auxílio de (2.14), obtemos a forma geral para a polarização induzida no meio:

$$\bar{P} = N(\mu_{ab}\rho_{ba} + \mu_{bc}\rho_{cb} + \mu_{bd}\rho_{db} + c.c.). \quad (2.19)$$

Estamos interessados em estudar o sinal de MQO na frequência da onda gerada, i. e., $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$, então somente o termo proporcional a ρ_{ab} , na equação (2.19) irá contribuir. Devemos procurar, portanto, por esse elemento de matriz, para obtermos a intensidade média do sinal gerado:

$$\bar{I} \propto |\bar{P}|^2 = 4N^2 \mu_{ab}^2 |\rho_{ba}|^2. \quad (2.20)$$

Após algum algebrismo, utilizando as equações (2.15) e (2.17), chegamos às equações de movimento para os elementos da matriz densidade, com $i \neq j$:

$$\frac{\partial \rho_{ij}}{\partial t} = -i\omega_{ij}\rho_{ij} + \left(\frac{\partial \rho_{ij}}{\partial t} \right)_{rel.} + \frac{1}{i\hbar} [\hat{I}, \hat{\rho}]_{ij}. \quad (2.21)$$

Para $i = j$ o primeiro termo do lado direito da equação (2.22) é nulo e o termo de relaxação é dado por (2.16). Nos cálculos realizados para determinar as equações de movimento dos elementos da matriz densidade vamos utilizar a aproximação de onda girante, na qual se supõe que os termos de população variam lentamente no tempo, enquanto as coerências oscilam nas frequências ópticas dos campos que fazem a transição entre os níveis que dão origem à coerência. Dessa forma podemos fazer o seguinte *ansatz*:

$$\begin{aligned} \rho_{ii} &= \tilde{\rho}_{ii} & (i = a, b, c, d), \\ \rho_{ab} &= \tilde{\rho}_{ab} \exp\{i[\omega_4 t - k_4 z]\}, \\ \rho_{aj} &= \tilde{\rho}_{aj} \exp\{i[(\omega_1 + \omega_2)t - (k_1 + k_2)z]\}, \end{aligned}$$

$$\rho_{jb} = \tilde{\rho}_{jb} \exp\{i[k_3 z - \omega_3 t]\} \quad (j = c, d). \quad (2.22)$$

Os elementos da matriz do Hamiltoniano de interação variam rapidamente ao longo da direção de propagação dos campos, no nosso caso a direção z . Podemos escrever transformações análogas às expressões (2.22), a fim de separar as rápidas oscilações espaciais das oscilações temporais:

$$\begin{aligned} V_{ab} &= \tilde{V}_{ab} \exp\{i[\omega_4 t - k_4 z]\}, & \tilde{V}_{ab} &= -\frac{\mu_{ab} E_4^*}{2\hbar} \\ V_{aj} &= \tilde{V}_{aj} \exp\{i[(\omega_1 + \omega_2)t - (k_1 + k_2)z]\}, & \tilde{V}_{aj} &= \frac{k_{aj} E_1 E_2}{2\hbar} \\ V_{jb} &= \tilde{V}_{jb} \exp\{i[k_3 z - \omega_3 t]\}, & \tilde{V}_{jb} &= -\frac{\mu_{jb} E_3^*}{2\hbar} \quad (j = c, d), \end{aligned} \quad (2.23)$$

onde E_i , ($i = 1, 2, 3, 4$) são as amplitudes dos campos que variam lentamente no tempo.

Com essas transformações e utilizando a equação (2.22), obtemos um sistema de equações que relacionam quantidades que variam lentamente no tempo e no espaço:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \tilde{\rho}_{ab}}{\partial t} &= -[\gamma_{ab} + i(\omega_4 - \omega_{ab})] \tilde{\rho}_{ab} + i(\tilde{\rho}_{ac} \tilde{V}_{cb} - \tilde{V}_{ac} \tilde{\rho}_{cb} + \tilde{\rho}_{ad} \tilde{V}_{db} - \tilde{V}_{ad} \tilde{\rho}_{db}) e^{-i\Delta k \cdot z} + i\tilde{V}_{ab} (\tilde{\rho}_{aa} - \tilde{\rho}_{bb}), \\ \frac{\partial \tilde{\rho}_{ac}}{\partial t} &= -[\gamma_{ac} + i(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ac})] \tilde{\rho}_{ac} + i(\tilde{\rho}_{ab} \tilde{V}_{bc} - \tilde{V}_{ab} \tilde{\rho}_{bc}) e^{i\Delta k \cdot z} - i\tilde{V}_{ad} \tilde{\rho}_{dc} + i\tilde{V}_{ac} (\tilde{\rho}_{aa} - \tilde{\rho}_{cc}), \\ \frac{\partial \tilde{\rho}_{ad}}{\partial t} &= -[\gamma_{ad} + i(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ad})] \tilde{\rho}_{ad} + i(\tilde{\rho}_{ab} \tilde{V}_{bd} - \tilde{V}_{ab} \tilde{\rho}_{bd}) e^{i\Delta k \cdot z} - i\tilde{V}_{ac} \tilde{\rho}_{cd} + i\tilde{V}_{ad} (\tilde{\rho}_{aa} - \tilde{\rho}_{dd}), \\ \frac{\partial \tilde{\rho}_{cb}}{\partial t} &= -[\gamma_{cb} - i(\omega_3 - \omega_{cb})] \tilde{\rho}_{cb} + i(\tilde{\rho}_{ca} \tilde{V}_{ab} - \tilde{V}_{ca} \tilde{\rho}_{ab}) e^{i\Delta k \cdot z} - i\tilde{\rho}_{cd} \tilde{V}_{db} + i\tilde{V}_{cb} (\tilde{\rho}_{cc} - \tilde{\rho}_{bb}), \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial \tilde{\rho}_{db}}{\partial t} &= -[\gamma_{db} - i(\omega_3 - \omega_{db})]\tilde{\rho}_{db} + i(\tilde{\rho}_{da}\tilde{V}_{ab} - \tilde{V}_{da}\tilde{\rho}_{ab})e^{i\Delta k \cdot z} - i\tilde{\rho}_{dc}\tilde{V}_{cb} + i\tilde{V}_{db}(\tilde{\rho}_{dd} - \tilde{\rho}_{bb}), \\
 \frac{\partial \tilde{\rho}_{cd}}{\partial t} &= -[\gamma_{cd} + i(\omega_{ad} - \omega_{ac})]\tilde{\rho}_{cd} + i[(\tilde{\rho}_{ca}\tilde{V}_{ad} - \tilde{\rho}_{cb}\tilde{V}_{bd}) - (\tilde{V}_{ca}\tilde{\rho}_{ad} - \tilde{V}_{cb}\tilde{\rho}_{bd})]. \quad (2.24)
 \end{aligned}$$

As equações de movimento para as populações dos estados serão dadas por:

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial \tilde{\rho}_{aa}}{\partial t} &= \gamma_b \tilde{\rho}_{bb} + [i(\tilde{\rho}_{ab}\tilde{V}_{ba} + \tilde{\rho}_{ac}\tilde{V}_{ca} + \tilde{\rho}_{ad}\tilde{V}_{da}) + c.c.], \\
 \frac{\partial \tilde{\rho}_{bb}}{\partial t} &= (-\gamma_b \tilde{\rho}_{bb} + \gamma_c \tilde{\rho}_{cc} + \gamma_d \tilde{\rho}_{dd}) + [i(\tilde{\rho}_{ba}\tilde{V}_{ab} + \tilde{\rho}_{bc}\tilde{V}_{cb} + \tilde{\rho}_{bd}\tilde{V}_{db}) + c.c.], \\
 \frac{\partial \tilde{\rho}_{cc}}{\partial t} &= -\gamma_c \tilde{\rho}_{cc} + [i(\tilde{\rho}_{ca}\tilde{V}_{ac} + \tilde{\rho}_{cb}\tilde{V}_{bc}) + c.c.], \\
 \frac{\partial \tilde{\rho}_{dd}}{\partial t} &= -\gamma_d \tilde{\rho}_{dd} + [i(\tilde{\rho}_{da}\tilde{V}_{ad} + \tilde{\rho}_{db}\tilde{V}_{bd}) + c.c.], \\
 \tilde{\rho}_{aa} + \tilde{\rho}_{bb} + \tilde{\rho}_{cc} + \tilde{\rho}_{dd} &= 1.
 \end{aligned} \quad (2.25)$$

O fator exponencial $e^{i\Delta k \cdot z}$ nas equações (2.25) está relacionado à condição de casamento de fase, para o processo de MQO. O vetor Δk tem módulo igual a:

$$\Delta k = k_1 + k_2 - k_3 - k_4 = 2\pi \left(\frac{n_1}{\lambda_1} + \frac{n_2}{\lambda_2} - \frac{n_3}{\lambda_3} - \frac{n_4}{\lambda_4} \right). \quad (2.26)$$

Nos nossos cálculos iremos considerar que a condição necessária para o casamento de fase, i. e., $e^{i\Delta k \cdot z} \approx 1$, é sempre satisfeita.

O conjunto de equações (2.25) e (2.26) não é solúvel analiticamente, uma vez que as equações estão acopladas e são em grande número, não sendo possível obter uma

solução simples de ser analisada fisicamente. Nesta dissertação iremos sempre estar tratando com campos pouco intensos, desta forma podemos tratar perturbativamente os campos incidentes, o que irá simplificar o conjunto de equações, possibilitando obter soluções analíticas.

2.3 – Tratamento perturbativo

Vamos agora considerar que os campos \vec{E}_1 , \vec{E}_2 e \vec{E}_3 não sejam muito intensos de forma que podemos expandir perturbativamente os elementos da matriz densidade, nas diversas ordens (n, m, l) dos três campos incidentes:

$$\tilde{\rho}_{ij} = \sum_{n,m,l} \tilde{\rho}_{ij}^{(n,m,l)}. \quad (2.27)$$

A excitação dos níveis c e d pode se dar de três formas diferentes: ou por absorção de dois fótons do campo \vec{E}_1 , ou por absorção de dois fótons do campo \vec{E}_2 , ou por absorção de um fóton de cada campo. No que segue vamos considerar o caso da excitação por um fóton de cada campo, as expressões obtidas podem ser aplicadas aos outros dois casos. O campo \vec{E}_3 será tratado em primeira ordem pois apenas um fóton desse campo é absorvido no processo de MQO, em estudo.

Colocando os termos correspondentes a essa ordem perturbativa no conjunto de equações (2.24) e (2.25) e mantendo apenas os termos que serão necessários para o cálculo da coerência entre os estados $|a\rangle$ e $|b\rangle$, temos (para uma lista das demais equações ver [40]):

$$\begin{aligned}
\dot{\tilde{\rho}}_{ab}^{(1,1,1)} &= -[\gamma_{ab} + i(\omega_4 - \omega_{ab})]\tilde{\rho}_{ab}^{(1,1,1)} + i(\tilde{\rho}_{ac}^{(2,0)}\tilde{V}_{cb} - \tilde{V}_{ac}\tilde{\rho}_{cb}^{(0,0,1)} + \tilde{\rho}_{ad}^{(1,1,0)}\tilde{V}_{db} - \tilde{V}_{ad}\tilde{\rho}_{db}^{(0,0,1)}), \\
\dot{\tilde{\rho}}_{ac}^{(1,1,0)} &= -[\gamma_{ac} + i(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ac})]\tilde{\rho}_{ac}^{(1,1,0)} - i\tilde{V}_{ad}\tilde{\rho}_{dc}^{(0,0,0)} + i\tilde{V}_{ac}(\tilde{\rho}_{aa}^{(0,0,0)} - \tilde{\rho}_{cc}^{(0,0,0)}), \\
\dot{\tilde{\rho}}_{ad}^{(1,1,0)} &= -[\gamma_{ad} + i(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ad})]\tilde{\rho}_{ad}^{(1,1,0)} - i\tilde{V}_{ad}\tilde{\rho}_{cd}^{(0,0,0)} + i\tilde{V}_{ad}(\tilde{\rho}_{aa}^{(0,0,0)} - \tilde{\rho}_{dd}^{(0,0,0)}).
\end{aligned} \tag{2.28}$$

Nas equações acima, desprezamos o elemento da matriz de interação V_{ab} , pois consideramos que o sistema é formado por um vapor atômico de baixa densidade e pressão, no qual efeitos devido à propagação e absorção do campo gerado são desprezíveis.

Estamos calculando a coerência no regime estacionário, uma vez que o atraso entre os pulsos será introduzido posteriormente. Podemos, então, igualar todas as derivadas parciais a zero, no conjunto de equações (2.28), ficando com o seguinte sistema de equações:

$$\begin{aligned}
\tilde{\rho}_{ab}^{(1,1,1)} &= \frac{1}{[(\omega_4 - \omega_{ab}) - i\gamma_{ab}]}(\tilde{\rho}_{ac}^{(1,1,0)}\tilde{V}_{cb} - \tilde{V}_{ac}\tilde{\rho}_{cb}^{(0,0,1)} + \tilde{\rho}_{ad}^{(1,1,0)}\tilde{V}_{db} - \tilde{V}_{ad}\tilde{\rho}_{db}^{(0,0,1)}), \\
\tilde{\rho}_{ac}^{(1,1,0)} &= \frac{1}{[(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ac}) - i\gamma_{ac}]}[\tilde{V}_{ac}(\tilde{\rho}_{aa}^{(0,0,0)} - \tilde{\rho}_{cc}^{(0,0,0)}) - \tilde{V}_{ad}\tilde{\rho}_{dc}^{(0,0,0)}], \\
\tilde{\rho}_{ad}^{(1,1,0)} &= \frac{1}{[(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ad}) - i\gamma_{ad}]}[\tilde{V}_{ad}(\tilde{\rho}_{aa}^{(0,0,0)} - \tilde{\rho}_{dd}^{(0,0,0)}) - \tilde{V}_{ac}\tilde{\rho}_{cd}^{(0,0,0)}].
\end{aligned} \tag{2.29}$$

Note que no conjunto de equações (2.29), a coerência entre os estados $|c\rangle$ e $|d\rangle$ aparece como uma expansão de ordem zero em todos os campos incidentes. Na ausência de campo incidente essa coerência se anula, i. e., nenhuma correlação de fase existe entre as funções de onda desses estados. O mesmo acontece para as coerências entre os estados $|c\rangle$ e $|b\rangle$ e entre os estados $|d\rangle$ e $|b\rangle$. Temos então que:

$$\tilde{\rho}_{cd}^{(0,0,0)} = \tilde{\rho}_{cb}^{(0,0,1)} = \tilde{\rho}_{db}^{(0,0,1)} = 0. \quad (2.30)$$

Substituindo (2.30) no sistema de equações (2.29), obtemos:

$$\begin{aligned} \tilde{\rho}_{ab}^{(1,1,1)} &= \frac{1}{[(\omega_4 - \omega_{ab}) - i\gamma_{ab}]} \left(\tilde{\rho}_{ac}^{(1,1,0)} \tilde{V}_{cb} + \tilde{\rho}_{ad}^{(1,1,0)} \tilde{V}_{db} \right), \\ \tilde{\rho}_{ac}^{(1,1,0)} &= \frac{\tilde{V}_{ac}}{[(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ac}) - i\gamma_{ac}]}, \\ \tilde{\rho}_{ad}^{(1,1,0)} &= \frac{\tilde{V}_{ad}}{[(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ad}) - i\gamma_{ad}]}. \end{aligned} \quad (2.31)$$

Portanto, a coerência procurada nessa ordem de perturbação, é dada pela seguinte expressão:

$$\tilde{\rho}_{ab}^{(1,1,1)} = \frac{1}{[(\omega_4 - \omega_{ab}) - i\gamma_{ab}]} \left[\frac{\tilde{V}_{ac} \tilde{V}_{cb}}{[(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ac}) - i\gamma_{ac}]} + \frac{\tilde{V}_{ad} \tilde{V}_{db}}{[(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ad}) - i\gamma_{ad}]} \right]. \quad (2.32)$$

De posse da coerência podemos calcular a suscetibilidade de terceira ordem e a partir desta a polarização macroscópica na frequência ω_4 . A suscetibilidade será dada por:

$$\chi^{(3)} = \frac{N\mu_{ab}}{2\hbar^3 \varepsilon_0 [(\omega_4 - \omega_{ab}) - i\gamma_{ab}]} \left[\frac{k_{ac} \mu_{cb}}{[(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ac}) - i\gamma_{ac}]} + \frac{k_{ad} \mu_{db}}{[(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ad}) - i\gamma_{ad}]} \right], \quad (2.33)$$

onde k_{ac} e k_{ad} podem ser obtidos através da equação (2.13).

De acordo com a equação (2.4) a polarização gerada no meio devido à interação do sistema atômico com os lasers incidentes é dada por: $\vec{P}^{(3)}(\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3) = \chi^{(3)}(\omega_4) : \vec{E}_1(\omega_1)\vec{E}_2(\omega_2)\vec{E}_3^*(\omega_3)$. Entretanto os campos $\vec{E}_1(\omega_1)$ e $\vec{E}_2(\omega_2)$ são campos de largura de banda grande, i. e., existe uma distribuição de frequências nas quais estes campos podem oscilar. Assim, para o cálculo da polarização gerada, devemos levar em conta a contribuição dos diversos componentes de frequência destes campos, i. e., devemos integrar sobre a distribuição espectral de cada campo incidente. Como o campo $\vec{E}_3(\omega_3)$ tem uma largura de banda muito pequena se comparada com a dos campos $\vec{E}_1(\omega_1)$ e $\vec{E}_2(\omega_2)$, vamos considerar que sua distribuição espectral é dada por uma delta de Dirac. Desta forma a equação (2.5) pode ser reescrita como:

$$\vec{P}^{(3)}(\omega_4) = \iiint d\omega_1 d\omega_2 d\omega_3 \chi^{(3)} \vec{E}_1(\omega_1) \vec{E}_2(\omega_2) \vec{E}_3^*(\omega_3) \delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_3 - \omega_4) \delta(\omega_3 - \omega_3'), \quad (2.34)$$

onde $\delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_3 - \omega_4)$ é a função delta de Dirac que representa a conservação da energia no sistema.

Substituindo (2.33) em (2.34), temos:

$$\begin{aligned} \vec{P}^{(3)}(\omega_4) = & \frac{N}{2\hbar^3 \epsilon_0} \iiint d\omega_1 d\omega_2 d\omega_3' \frac{1}{[(\omega_4 - \omega_{ab}) - i\gamma_{ab}]} \left\{ \frac{K_c \vec{E}_1(\omega_1) \vec{E}_2(\omega_2) \vec{E}_3^*(\omega_3')}{[(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ac}) - i\gamma_{ac}]} \right. \\ & \left. + \frac{K_d \vec{E}_1(\omega_1) \vec{E}_2(\omega_2) \vec{E}_3^*(\omega_3')}{[(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ad}) - i\gamma_{ad}]} \right\} \delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_3 - \omega_4) \delta(\omega_3 - \omega_3'), \quad (2.35) \end{aligned}$$

onde definimos as constantes:

$$K_i = \mu_{ab} \mu_{ib} k_{ai}, \quad (i = c, d). \quad (2.36)$$

É importante notar que as constantes K_i são tensores que dependem do produto de quatro elementos de matriz de dipolo elétrico, $\mu_{ij}^{(l)} = \langle i | \vec{\mu} \cdot \vec{u}_i | j \rangle$, os quais carregam consigo a dependência com os vetores de polarização dos campos incidentes. Nesta seção iremos prosseguir os cálculos assumindo que as constantes K_i são obtidas na configuração em que todos os campos incidentes no sistema são paralelos. Devido a isso iremos modificar sua denominação passando a chamá-las de K_i'' . Na seção 2.4 iremos analisar o comportamento do sinal de MQO quando os campos que interagem com o sistema nos instantes t e $t - \tau$ têm polarizações perpendiculares. No apêndice A.2 fazemos uma breve discussão sobre a dependência das constantes K_i com a polarização dos campos que interagem com o sistema atômico.

2.4 – Intensidade do sinal em função do atraso entre os pulsos

Estamos interessados em obter a resposta do sistema atômico em função do atraso relativo entre os pares de pulsos que contêm os campos $\vec{E}_1(\omega_1)$ e $\vec{E}_2(\omega_2)$. Como explicado no início deste capítulo, estes pulsos são obtidos fazendo o feixe, proveniente do laser de corante, passar por um interferômetro de Michelson, do tipo apresentado na figura 1.1, a fim de obtermos dois pulsos defasados por um atraso τ . Temos então a presença dos campos $\vec{E}_1(\omega_1)$ e $\vec{E}_2(\omega_2)$ nos pulsos que interagem com o sistema atômico no instante de tempo t e no instante de tempo $t - \tau$.

Considerando que todos os campos presentes no sistema têm polarizações paralelas e escolhendo de forma arbitrária (pois o sistema é isotrópico) a direção y , podemos escrever os campos $\vec{E}_1(\omega_1)$ e $\vec{E}_2(\omega_2)$ como (ver Apêndice A.3a):

$$\vec{E}_1(\omega_1) = E(\omega_1) [1 + e^{-i\omega_1\tau}] \hat{y},$$

$$\vec{E}_2(\omega_2) = E(\omega_2)[1 + e^{-i\omega_2\tau}] \hat{y}. \quad (2.37)$$

O campo $\vec{E}_3(\omega_3)$ pode ser escrito como:

$$\vec{E}_3(\omega_3) = E(\omega_3) \hat{y}. \quad (2.38)$$

Devido ao fato de termos todos os campos com polarização ao longo da direção y , a polarização macroscópica induzida no meio também será ao longo desta direção, obedecendo às regras de simetria de meios isotrópicos (ver seção 2.5). Substituindo as equações (2.37) e (2.38) em (2.35) e fazendo a integração nas deltas de Dirac, obtemos:

$$P_y^{(3)}(\omega_4) = \frac{N}{2\hbar^3 \epsilon_0} \int d\omega_1 \frac{E(\omega_1)E(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)E^*(\omega_3)g(\omega_1, \omega_3 + \omega_4 - \omega_1, \tau)}{[(\omega_4 - \omega_{ab}) - i\gamma_{ab}]} \left\{ \frac{K_c''}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac}) - i\gamma_{ac}]} + \frac{K_d''}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad}) - i\gamma_{ad}]} \right\}, \quad (2.39)$$

onde definimos a função:

$$g(\omega_1, \omega_3 + \omega_4 - \omega_1, \tau) \equiv [1 + e^{-i\omega_1\tau}][1 + e^{-i(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)\tau}]. \quad (2.40)$$

Os dois termos na equação (2.39) podem ser interpretados como a contribuição de duas polarizações distintas: uma polarização devido ao “caminho quântico” que envolve os estados $|a\rangle \rightarrow |c\rangle \rightarrow |b\rangle$, que chamaremos de P_1 e a outra envolvendo os estados $|a\rangle \rightarrow |d\rangle \rightarrow |b\rangle$, denominada P_2 .

A intensidade do sinal de MQO será então dada por:

$$I \propto \int \left\langle \left| P_y^{(3)}(\omega_4) \right|^2 \right\rangle d\omega_4. \quad (2.41)$$

Na equação (2.41) realizamos uma integração na frequência de saída ω_4 , pois como os campos $\vec{E}_1(\omega_1)$ e $\vec{E}_2(\omega_2)$ são banda larga o campo $\vec{E}_4(\omega_4)$, gerado no processo de MQO, também possuirá uma distribuição espectral. Deste modo ao realizarmos a integração na variável ω_4 estamos garantindo que iremos considerar todas as contribuições da distribuição espectral do campo $\vec{E}_4(\omega_4)$. Além disso é necessário realizar uma média de conjunto sobre a polarização. Isto se deve ao fato de estarmos tratando com luz incoerente, de forma que os campos incoerentes presentes no sistema sofrem variações aleatórias na sua amplitude e na sua fase. A média estatística é então realizada para que possamos obter um sinal livre dessas variações aleatórias e que descreve estatisticamente o comportamento do nosso conjunto de N dipolos.

Podemos obter a intensidade do sinal de mistura de quatro ondas, em função do atraso relativo entre os campos, substituindo a equação (2.39) na equação (2.41):

$$I \propto \int \left\langle \left| P_1^{(3)}(\omega_4) \right|^2 + \left| P_2^{(3)}(\omega_4) \right|^2 + 2 \operatorname{Re} \left\{ P_1^{(3)}(\omega_4) [P_2^{(3)}(\omega_4)]^* \right\} \right\rangle d\omega_4, \quad (2.42)$$

onde:

$$P_1^{(3)}(\omega_4) = \frac{N}{2\hbar^3 \epsilon_0} \int d\omega_1 \left\{ \frac{E(\omega_1) E(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1) E^*(\omega_3) g(\omega_1, \omega_3 + \omega_4 - \omega_1, \tau)}{[(\omega_4 - \omega_{ab}) - i\gamma_{ab}]} \cdot \frac{K_c''}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac}) - i\gamma_{ac}]} \right\} \quad (2.43)$$

e:

$$P_2^{(3)}(\omega_4) = \frac{N}{2\hbar^3 \varepsilon_0} \int d\omega_1 \left\{ \frac{E(\omega_1)E(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)E^*(\omega_3)g(\omega_1, \omega_3 + \omega_4 - \omega_1, \tau)}{[(\omega_4 - \omega_{ab}) - i\gamma_{ab}]} \right. \\ \left. \cdot \frac{K_d''}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad}) - i\gamma_{ad}]} \right\} \quad (2.44)$$

Vamos calcular a primeira das integrais da equação (2.42):

$$I_1 = \frac{N}{2\hbar^3 \varepsilon_0} \int \frac{d\omega_4 (K_c'')^2 |E(\omega_3)|^2}{[(\omega_4 - \omega_{ab})^2 + \gamma_{ab}^2]} \iint d\omega_1 d\omega_1' \left\{ \frac{\langle E(\omega_1)E(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)E^*(\omega_1')E^*(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1') \rangle}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac})^2 + \gamma_{ac}^2]} \right. \\ \left. \cdot g(\omega_1, \omega_3 + \omega_4 - \omega_1, \tau) g^*(\omega_1', \omega_3 + \omega_4 - \omega_1', \tau) \right\}, \quad (2.45)$$

onde a média estatística é aplicada apenas nas amplitudes dos campos, $E(\omega_1)$ e $E(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)$, pois essas são as variáveis aleatórias presentes no sistema. Ao efetuarmos o produto $g(\omega_1, \omega_3 + \omega_4 - \omega_1, \tau) g^*(\omega_1', \omega_3 + \omega_4 - \omega_1', \tau)$, obtemos:

$$g(\omega_1, \omega_3 + \omega_4 - \omega_1, \tau) g^*(\omega_1', \omega_3 + \omega_4 - \omega_1', \tau) = \{4 + 4\cos[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)\tau] + 4\cos(\omega_1\tau) \\ + 2\cos[(\omega_3 + \omega_4)\tau] + 2\cos[(\omega_3 + \omega_4 - 2\omega_1)\tau]\}. \quad (2.46)$$

Posteriormente iremos observar que serão esses termos que irão gerar os efeitos que constituem o principal objetivo de análise dessa dissertação.

Como os campos $\vec{E}_1(\omega_1)$ e $\vec{E}_2(\omega_2)$ são provenientes de um laser de corante e, considerando que as interações entre o laser de bombeio e o meio ativo do laser de corante geram campos que possuem flutuações na amplitude, podemos falar sobre uma distribuição de probabilidade para as amplitudes dos campos $\vec{E}_1(\omega_1)$ e $\vec{E}_2(\omega_2)$. No processo de formação desses campos ocorre um número muito elevado de interações entre o laser de

bombeio e o meio ativo do laser de corante de forma que podemos utilizar o teorema do Limite Central [33] para dizer que as distribuições de probabilidade das amplitudes dos campos $\vec{E}_1(\omega_1)$ e $\vec{E}_2(\omega_2)$, i. e., $E(\omega_1)$ e $E(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)$ são Gaussianas. Assim, podemos utilizar o teorema dos momentos Gaussianos para calcular a função de correlação entre as amplitudes dos campos $\vec{E}_1(\omega_1)$ e $\vec{E}_2(\omega_2)$:

$$\begin{aligned} & \langle E(\omega_1)E(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)E^*(\omega'_1)E^*(\omega_3 + \omega_4 - \omega'_1) \rangle = \\ & = \langle E(\omega_1)E^*(\omega'_1) \rangle \langle E(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)E^*(\omega_3 + \omega_4 - \omega'_1) \rangle \\ & + \langle E(\omega_1)E^*(\omega_3 + \omega_4 - \omega'_1) \rangle \langle E(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)E^*(\omega'_1) \rangle. \end{aligned} \quad (2.47)$$

Na equação (2.47), o termo $\langle E(\omega_1)E(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1) \rangle \langle E^*(\omega'_1)E^*(\omega_3 + \omega_4 - \omega'_1) \rangle$ não aparece pois a função de correlação só é definida entre um valor real e um valor complexo [ver equação (1.5)].

Além disso para processos estacionários, já vimos que a seguinte relação se verifica:

$$\langle E(\omega)E(\omega') \rangle = S(\omega)\delta(\omega - \omega'), \quad (2.48)$$

onde $S(\omega)$ é a densidade espectral do campo em estudo. Temos então:

$$\begin{aligned} & \langle E(\omega_1)E(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)E^*(\omega'_1)E^*(\omega_3 + \omega_4 - \omega'_1) \rangle = \\ & = S(\omega_1)\delta(\omega_1 - \omega'_1)S(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)\delta(\omega_1 - \omega'_1) \\ & + S(\omega_1)\delta(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1 - \omega'_1)S(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)\delta(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1 - \omega'_1). \end{aligned} \quad (2.49)$$

Após substituirmos (2.49) em (2.45) e realizarmos a integral em ω'_1 , com o auxílio das funções delta, obtemos:

$$\begin{aligned}
I_1 = & \frac{N}{2\hbar^3 \varepsilon_0} \int d\omega_4 \frac{2(K_c'')^2 |E(\omega_3)|^2}{[(\omega_4 - \omega_{ab})^2 + \gamma_{ab}^2][(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac})^2 + \gamma_{ac}^2]} \\
& \cdot \int d\omega_1 S(\omega_1) S(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1) \{4 + 4 \cos[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)\tau] + 4 \cos(\omega_1\tau) \\
& + 2 \cos[(\omega_3 + \omega_4)\tau] + 2 \cos[(\omega_3 + \omega_4 - 2\omega_1)\tau]\}, \quad (2.50)
\end{aligned}$$

onde utilizamos o resultado do produto $g(\omega_1, \omega_3 + \omega_4 - \omega_1, \tau) g^*(\omega_1, \omega_3 + \omega_4 - \omega_1, \tau)$, que é dado em (2.46).

Vamos assumir que as densidades espectrais dos campos no nosso sistema são Gaussianas dadas por:

$$S(\omega) = \left[\frac{\pi}{2\alpha^2} \right]^{1/2} \exp \left[-\frac{(\omega - \omega_c)^2}{\alpha^2} \right], \quad (2.51)$$

onde ω_c é a frequência central do laser e α é uma constante definida por:

$$\alpha \equiv \frac{[4 \ln(2)]^{1/2}}{T_c}, \quad (2.52)$$

com T_c sendo o tempo de coerência do laser de corante.

Temos então que calcular as cinco integrais que aparecem na equação (2.50). Na solução dessas integrais iremos considerar que as frequências centrais dos campos $\vec{E}_1(\omega_1)$ e $\vec{E}_2(\omega_2)$ são iguais e que os tempos de coerência são os mesmos. Podemos fazer essa aproximação sem perda de generalidade, pois os feixes considerados no nosso estudo são provenientes do mesmo laser, sendo apenas divididos na linha de atraso para gerar o defasamento temporal entre eles. O cálculo das integrais fica então trivial, (mostramos um exemplo no Apêndice A.3b) e o resultado da primeira das integrais da equação (2.42) é dado por:

$$\begin{aligned}
I_1 = & \frac{N^2 \pi^{3/2} (K_c'')^2 |E(\omega_3)|^2}{2\alpha \hbar^6 \varepsilon_0^2} \int \frac{d\omega_4}{[(\omega_4 - \omega_{ab})^2 + \gamma_{ab}^2][(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac})^2 + \gamma_{ac}^2]} \\
& \cdot \exp\left[-\frac{(2\omega_{1c} - \omega_3 - \omega_4)^2}{4\alpha^2}\right] \left\{ 2 + 4 \exp\left[-\frac{\alpha^2 \tau^2}{4}\right] \cos\left[\frac{(\omega_3 + \omega_4)\tau}{2}\right] + \cos[(\omega_3 + \omega_4)\tau] + \exp[-\alpha^2 \tau^2] \right\}
\end{aligned} \tag{2.53}$$

Procedendo de forma análoga para os outros dois termos da equação (2.42), obtemos:

$$\begin{aligned}
I_2 = & \frac{N^2 \pi^{3/2} (K_d'')^2 |E(\omega_3)|^2}{2\alpha \hbar^6 \varepsilon_0^2} \int \frac{d\omega_4}{[(\omega_4 - \omega_{ab})^2 + \gamma_{ab}^2][(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad})^2 + \gamma_{ad}^2]} \\
& \cdot \exp\left[-\frac{(2\omega_{1c} - \omega_3 - \omega_4)^2}{4\alpha^2}\right] \left\{ 2 + 4 \exp\left[-\frac{\alpha^2 \tau^2}{4}\right] \cos\left[\frac{(\omega_3 + \omega_4)\tau}{2}\right] + \cos[(\omega_3 + \omega_4)\tau] + \exp[-\alpha^2 \tau^2] \right\}
\end{aligned} \tag{2.54}$$

e:

$$\begin{aligned}
I_3 = & \frac{N^2 \pi^{3/2} K_c'' K_d'' |E(\omega_3)|^2}{\alpha \hbar^6 \varepsilon_0^2} \int d\omega_4 \frac{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac})(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad}) - \gamma_{ac}\gamma_{ad}]}{[(\omega_4 - \omega_{ab})^2 + \gamma_{ab}^2][(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac})^2 + \gamma_{ac}^2][(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad})^2 + \gamma_{ad}^2]} \\
& \cdot \exp\left[-\frac{(2\omega_{1c} - \omega_3 - \omega_4)^2}{4\alpha^2}\right] \left\{ 2 + 4 \exp\left[-\frac{\alpha^2 \tau^2}{4}\right] \cos\left[\frac{(\omega_3 + \omega_4)\tau}{2}\right] + \cos[(\omega_3 + \omega_4)\tau] + \exp[-\alpha^2 \tau^2] \right\}
\end{aligned} \tag{2.55}$$

Esta última integral, I_3 , representa o termo de interferência entre os dois estados excitados c e d do sistema (uma discussão detalhada deste termo e dos efeitos associados a ele, no processo de MQO, devido a um único pulso, é apresentada na referência [40]).

A expressão final da intensidade do sinal de MQO é dada pela soma das equações (2.53), (2.54) e (2.55), e pode ser reescrita como:

$$I \propto \frac{N^2 \pi^{3/2} |E(\omega_3)|^2}{\alpha \hbar^6 \varepsilon_0^2} \int \frac{d\omega_4}{[(\omega_4 - \omega_{ab})^2 + \gamma_{ab}^2]} \exp\left[-\frac{(2\omega_{1c} - \omega_3 - \omega_4)^2}{4\alpha^2}\right] \{A \cdot B\}, \quad (2.56)$$

onde definimos:

$$A = \left\{ 2 + 4 \exp\left[-\frac{\alpha^2 \tau^2}{4}\right] \cos\left[\frac{(\omega_3 + \omega_4)\tau}{2}\right] + \cos[(\omega_3 + \omega_4)\tau] + \exp[-\alpha^2 \tau^2] \right\}, \quad (2.57)$$

e:

$$B = \left\{ \frac{(K_c'')^2}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac})^2 + \gamma_{ac}^2]} + \frac{(K_d'')^2}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad})^2 + \gamma_{ad}^2]} + \frac{2K_c'' K_d'' [(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac})(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad}) - \gamma_{ac}\gamma_{ad}]}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac})^2 + \gamma_{ac}^2][(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad})^2 + \gamma_{ad}^2]} \right\}. \quad (2.58)$$

Note que na equação (2.56) ainda temos que realizar a integração na frequência de saída, ω_4 , porém, devido à dependência com τ no integrando não é possível obter uma solução analítica. No capítulo 3 utilizaremos métodos numéricos para calcularmos essa integral. Entretanto, mesmo a partir deste resultado já podemos analisar alguns pontos interessantes. Nesta equação, a intensidade do sinal de MQO é função de uma integral na frequência de saída ω_4 , o que nos diz que temos uma superposição de termos que oscilam na frequência de cada transição. No nosso caso teremos três frequências, ω_{ac} , ω_{ad} e $(\omega_{ab} + \omega_3)$ correspondentes às ressonâncias com os níveis c , d e b .

Devemos então observar batimentos na diferença entre essas frequências, além das oscilações nas frequências de transição.

O fator B definido em (2.58) corresponde aos possíveis caminhos quânticos quando um único pulso interage com o sistema. O primeiro e segundo termos desse fator correspondem ao sistema ter seguido o caminho $|a\rangle \rightarrow |c\rangle \rightarrow |b\rangle$ ou $|a\rangle \rightarrow |d\rangle \rightarrow |b\rangle$, respectivamente. O terceiro termo corresponde ao efeito de interferência entre estes caminhos. Este termo surge devido ao fato de existirem dois caminhos quânticos indistinguíveis que podem ser seguidos para levar o sistema do estado $|a\rangle$ para o estado $|b\rangle$, de forma que não sabemos *a priori* qual dos níveis contribuirá para o sinal de MQO. Existindo duas vias indistinguíveis, a amplitude de probabilidade total será a soma das amplitudes de probabilidade dos caminhos $|a\rangle \rightarrow |c\rangle \rightarrow |b\rangle$ e $|a\rangle \rightarrow |d\rangle \rightarrow |b\rangle$, sendo o sinal observado dado pelo módulo ao quadrado dessa soma. Tal efeito foi discutido em detalhe por S. S. Vianna e colaboradores [41].

Vamos concentrar nossa análise na função A, definida na equação (2.57), a qual descreve os efeitos devido ao atraso relativo entre os pares de pulsos. O primeiro termo é uma componente de fundo que existirá para qualquer valor do atraso relativo τ . O último termo de A corresponde a uma Gaussiana cuja largura é proporcional ao tempo de coerência do laser que incide sobre o sistema. O segundo termo consiste numa oscilação na frequência óptica do laser incidente. Essa oscilação somente ocorrerá dentro do tempo de coerência desse laser, devido ao fator exponencial que multiplica o co-seno que caracteriza a oscilação. No terceiro termo temos uma oscilação no dobro da frequência do laser incidente e que ocorre para qualquer valor do atraso relativo τ .

Podemos explicar a oscilação na frequência do laser incidente através de uma analogia com um efeito clássico, no qual dois feixes, provenientes do mesmo laser mas com percursos ópticos diferentes, são colocados para interferir no mesmo ponto. Sabemos, da experiência com o interferômetro de Michelson, que ao medirmos a intensidade do sinal como função do tempo iremos observar franjas de interferência dentro do tempo de

coerência do laser com o qual realizamos o experimento. Isto se deve ao fato de que dentro do tempo de coerência os feixes guardam informações sobre a fase e a amplitude de cada um dos campos dos feixes, i. e., a função de correlação entre os campos dos dois feixes só é diferente de zero dentro do tempo de coerência e é esta correlação entre os campos que produz as franjas de interferência observadas. Por este motivo, iremos nos referir às oscilações na frequência do laser como oscilações “ópticas”.

Para explicar as oscilações no dobro da frequência do laser de corante vamos utilizar um método mais intuitivo. Suponha que temos dois pulsos idênticos, 1 e 2, copropagantes, incidindo no sistema com um ligeiro defasamento temporal, como mostra a figura 2.2.

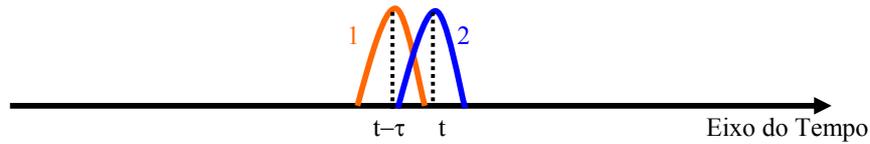


Figura 2.2: Representação esquemática dos campos $\vec{E}(t)$ e $\vec{E}(t - \tau)$ presentes no sistema em estudo.

A transição por dois fótons entre o estado $|a\rangle$ e um dos estados $|c\rangle$ ou $|d\rangle$, pode ocorrer de quatro formas diferentes: o sistema absorve dois fótons do pulso 1, ou, um fóton do pulso 1 e outro do pulso 2, nessa ordem, ou, um fóton do pulso 2 e outro do pulso 1, nessa ordem, ou, dois fótons do pulso 2. A representação dessas transições é feita na figura 2.3. A oscilação no dobro da frequência do laser incidente é o resultado de um efeito quântico. Cada uma das coerências, ρ_{ac} e ρ_{ad} , dos níveis excitados oscilam na frequência da sua transição, próximas do dobro da frequência do laser incidente. Como essas coerências têm tempo de relaxação maior que o tempo de coerência do laser que as produz, então podemos observar suas oscilações para atrasos relativos, τ , maiores que o tempo de coerência.

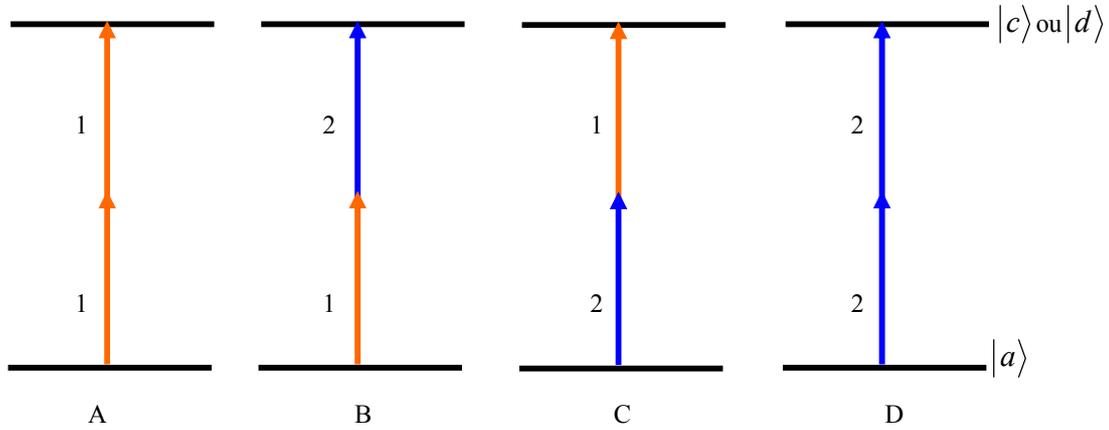


Figura 2.3: Representação das possíveis combinações de pares dos pulsos 1 e 2 que originam a transição de dois fótons.

Podemos distinguir as oscilações “ópticas” das oscilações quânticas através da análise no domínio temporal em que cada uma destas oscilações pode existir. As oscilações ópticas só existirão para valores do atraso relativo menores que o tempo de coerência do laser de corante, pois fora desse intervalo de tempo os campos presentes em cada pulso estão descorrelacionados e a sua interferência não produzirá oscilações. As oscilações quânticas existem para valores do atraso relativo entre os pulsos que são determinados pelo tempo de vida das coerências ρ_{ac} e ρ_{ad} , pois dependem apenas do fato de excitarmos estas coerências e isso pode ser alcançado através da absorção de dois fótons do campo 1 ou dois fótons do campo 2, como mostram as transições A e D da figura 2.3. Sendo cada uma das transições independente do atraso relativo entre esses campos temos que as oscilações quânticas existem independentemente do atraso τ ser maior ou menor que T_c . Entretanto para valores do atraso relativo tais que $\tau \leq T_c$ as interferências “ópticas” ocultam as interferências quânticas, isto se deve ao fato de a intensidade das primeiras serem muito maiores que a intensidade das segundas, o que pode ser verificado pelo fator 4 que multiplica o termo que caracteriza as oscilações “ópticas” na equação (2.57).

Um efeito semelhante tem sido estudado utilizando a técnica de Controle Temporal Coerente (CTC) [42]. Esta técnica consiste em, utilizando dois pulsos idênticos,

ultracurtos, criar no domínio temporal dois caminhos quânticos ligeiramente defasados no tempo. Esse atraso temporal é usado para controlar a fase da interferência. Esta técnica é semelhante à utilizada para fazer medidas de franjas de Ramsey [43 – 45], com a diferença que no CTC, as franjas de interferência são observadas no domínio temporal, enquanto que as franjas de Ramsey são observadas no domínio de frequências.

2.5 – Dependência do sinal de MQO com a polarização dos campos

Nesta seção iremos estudar o comportamento das oscilações presentes no sistema, para diferentes estados de polarização dos campos incidentes. Utilizando as propriedades de simetria do meio em estudo, iremos obter a intensidade do sinal de MQO para duas situações distintas. Na primeira consideramos que as polarizações dos pulsos que incidem sobre o sistema nos instantes t e $t - \tau$ são paralelas, sendo estas polarizações na mesma direção do campo \vec{E}_3 , o qual está presente no sistema em todo o intervalo de tempo considerado. No segundo caso considerado, os pulsos que incidem sobre o sistema atômico nos instantes t e $t - \tau$ têm polarizações perpendiculares, sendo que o pulso no instante $t - \tau$ está polarizado na mesma direção do campo \vec{E}_3 .

Por estarmos calculando um sinal de MQO, a suscetibilidade de interesse é a suscetibilidade de terceira ordem. Devido às propriedades de simetria pode-se mostrar que, em meios isotrópicos, os elementos do tensor que constituem a suscetibilidade de terceira ordem obedecem às regras do conjunto de equações (2.59) [46], o qual indica quais elementos do tensor suscetibilidade serão diferentes de zero e as relações entre eles. Nessas equações os três últimos índices sobrescritos indicam as polarizações dos campos que interagem com o meio e o primeiro índice sobrescrito indica a polarização do campo gerado pelo processo de MQO.

$$\begin{aligned}
 \chi^{xxxx} &= \chi^{yyyy} = \chi^{zzzz}, \\
 \chi^{yyzz} &= \chi^{zzyy} = \chi^{zzxx} = \chi^{xxzz} = \chi^{xxyy} = \chi^{yyxx}, \\
 \chi^{yzyz} &= \chi^{zyzy} = \chi^{zxzx} = \chi^{xzxz} = \chi^{xyxy} = \chi^{yxyx}, \\
 \chi^{yzzy} &= \chi^{zyyz} = \chi^{zxxz} = \chi^{xzzx} = \chi^{xyyx} = \chi^{yxyx}, \\
 \chi^{xxxx} &= \chi^{xxyy} + \chi^{yyxx} + \chi^{xyyx}.
 \end{aligned} \tag{2.59}$$

a) Polarizações Paralelas.

Consideramos inicialmente que os pulsos $\vec{E}(t)$ e $\vec{E}(t - \tau)$ têm polarizações paralelas ao longo da direção \hat{y} . Neste caso podemos escrever os campos $\vec{E}_1(\omega_1)$ e $\vec{E}_2(\omega_2)$ como:

$$\begin{aligned}
 \vec{E}_1(\omega_1) &= E(\omega_1)[\hat{y} + e^{-i\omega_1\tau} \hat{y}], \\
 \vec{E}_2(\omega_2) &= E(\omega_2)[\hat{y} + e^{-i\omega_2\tau} \hat{y}].
 \end{aligned} \tag{2.60}$$

Como o campo \vec{E}_3 é paralelo aos campos da equação (2.60), temos:

$$\vec{E}_3(\omega'_3) = E(\omega'_3)\hat{y}. \tag{2.61}$$

Note que as equações (2.60) e (2.61) são idênticas às equações (2.37) e (2.38). Então ao continuarmos com os cálculos iremos obter os resultados encontrados na seção 2.4. A intensidade do sinal de MQO será então dada pela equação (2.56). Devido à simetria do meio, se todos os campos têm polarizações paralelas, então para qualquer direção no plano xy o campo gerado também terá polarização ao longo da direção dos demais campos e o resultado será dado pela equação (2.56).

b) Polarizações perpendiculares.

Vamos agora considerar o caso em que as polarizações dos pulsos $\vec{E}(t)$ e $\vec{E}(t - \tau)$ são perpendiculares. Neste caso os campos \vec{E}_1 e \vec{E}_2 podem ser reescritos como:

$$\begin{aligned}\vec{E}_1(\omega_1) &= E(\omega_1)[\hat{x} + e^{-i\omega_1\tau}\hat{y}], \\ \vec{E}_2(\omega_2) &= E(\omega_2)[\hat{x} + e^{-i\omega_2\tau}\hat{y}].\end{aligned}\quad (2.62)$$

Continuamos considerando que a polarização do campo \vec{E}_3 é paralela à direção \hat{y} . Neste caso $g(\omega_1, \omega_3 + \omega_4 - \omega_1, \tau)$ será um tensor dado por:

$$g(\omega_1, \omega_3 + \omega_4 - \omega_1, \tau) = [\hat{x} + e^{-i\omega_1\tau}\hat{y}] : [\hat{x} + e^{-i(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)\tau}\hat{y}] : \hat{y}. \quad (2.63)$$

Esta expressão pode ser visualizada na figura 2.4. Como o pulso que interage com o sistema atômico no instante t tem polarização x e o pulso que interage com o sistema no instante $t - \tau$ tem polarização y , então existem quatro formas possíveis de excitar os níveis c ou d .

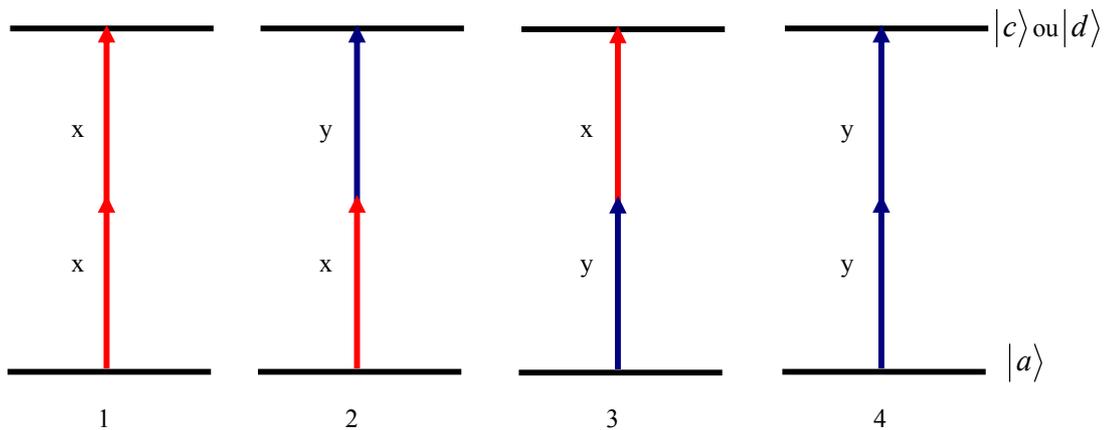


Figura 2.4: Transição por dois fótons mostrando a polarização dos campos. Em vermelho temos o pulso que interage com o sistema atômico no instante t e em azul o pulso que interage com o sistema no instante $t - \tau$.

Utilizando o conjunto de equações (2.59), as quais estão relacionadas com a simetria do meio, obtemos que a polarização macroscópica gerada no meio terá duas componentes definidas por:

$$g(\omega_1, \omega_3 + \omega_4 - \omega_1, \tau) = [e^{-i\omega_1\tau} + e^{-i(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)\tau}] \hat{x} + [1 + e^{-i(\omega_3 + \omega_4)\tau}] \hat{y}. \quad (2.64)$$

Para obtermos a intensidade do sinal de MQO em função do atraso relativo entre os pulsos que interagem com o sistema nos instantes de tempo t e $t - \tau$, comecemos por reescrever a equação (2.36), desta vez explicitando a dependência das constantes K_i com a polarização dos campos:

$$K_i^{jklm} = \mu_{ab}^j \mu_{ib}^m k_{ai}^{kl}, \quad (i = c, d) \quad (2.65)$$

onde j é a direção da polarização do campo gerado no meio, m corresponde à polarização do campo \vec{E}_3 e k, l são as direções das polarizações dos outros campos. Para o caso 1 da figura 2.4 temos uma transição de dois fótons os quais são provenientes do pulso que interage com o sistema no tempo t , i. e., ambos os fótons têm polarização na direção x . Como estamos assumindo que a polarização do campo \vec{E}_3 será sempre na direção y temos:

$$K_i^{yxx} = \mu_{ab}^y \mu_{ib}^y k_{ai}^{xx}. \quad (2.66)$$

Na equação (2.66) utilizamos uma das relações do conjunto de equações (2.59) que nos diz que, se as polarizações dos três campos incidentes obedecem à configuração YXX o campo gerado será ao longo da direção \hat{y} . Procedendo de forma análoga para as situações 2, 3 e 4 apresentadas na figura 2.4, temos que as constantes de acoplamento efetivo, para cada situação são: K_i^{xyyx} , K_i^{xyxy} e K_i^{yyyy} , respectivamente.

Voltando ao cálculo da polarização, a equação (2.64) nos diz que o campo gerado no processo de MQO terá duas componentes uma ao longo da direção \hat{x} e a outra ao longo da direção \hat{y} . Temos então que as duas componentes da polarização macroscópica gerada no meio são dadas por:

$$P_x^{(3)}(\omega_4) = \frac{N}{2\hbar^3 \epsilon_0} \int d\omega_1 \frac{E(\omega_1)E(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)E^*(\omega_3)}{[(\omega_4 - \omega_{ab}) - i\gamma_{ab}]}$$

$$\left\{ \frac{[e^{-i\omega_1\tau} \cdot K_c^{xyxy} + e^{-i(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)\tau} \cdot K_c^{xyyx}]}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac}) - i\gamma_{ac}]} + \frac{[e^{-i\omega_1\tau} \cdot K_d^{xyxy} + e^{-i(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)\tau} \cdot K_d^{xyyx}]}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad}) - i\gamma_{ad}]} \right\}, \quad (2.67)$$

para a direção \hat{x} . Analogamente para a direção \hat{y} teremos:

$$P_y^{(3)}(\omega_4) = \frac{N}{2\hbar^3 \epsilon_0} \int d\omega_1 \frac{E(\omega_1)E(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)E^*(\omega_3)}{[(\omega_4 - \omega_{ab}) - i\gamma_{ab}]}$$

$$\left\{ \frac{[K_c^{yyxx} + e^{-i(\omega_3 + \omega_4)\tau} \cdot K_c^{yyyy}]}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac}) - i\gamma_{ac}]} + \frac{[K_d^{yyxx} + e^{-i(\omega_3 + \omega_4)\tau} \cdot K_d^{yyyy}]}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad}) - i\gamma_{ad}]} \right\}. \quad (2.68)$$

Para um meio isotrópico, as constantes de acoplamento efetivo que aparecem nas equações (2.67) e (2.68) não têm, necessariamente, uma relação entre si e por isso não podem ser fatoradas, como foi feito no caso de termos todos os campos com a mesma direção de polarização. Neste caso, o sinal gerado na MQO não deve apresentar nenhuma oscilação, seja “óptica” ou quântica, como também, nenhum batimento na diferença de frequência dos níveis envolvidos. Para tentarmos observar esses efeitos vamos considerar que a transição de dois fótons excita apenas um nível atômico ao invés de excitar dois níveis simultaneamente. Vamos também considerar que os níveis c e d correspondem aos níveis $18s$ e $16d$ do rubídio, respectivamente.

Para que estes efeitos estejam presentes no sinal de MQO, quando os pulsos com atraso relativo apresentam polarizações perpendiculares, é preciso que as transições

envolvidas no sistema levem a uma relação entre as diferentes constantes de acoplamento. Isto pode ser observado se analisarmos o caso em que o sistema atômico é um átomo de metal alcalino e os níveis c e d , correspondem a níveis ns e $n'd$, respectivamente. Também vamos considerar a situação em que cada nível, c ou d , é excitado separadamente. Neste caso, as constantes de acoplamento calculadas (ver apêndice A.2 e [38]) guardam as seguintes relações:

i) Para o nível ns :

$$K_{ns}^{yyyy} = K_{ns}^{yyxx}, \quad (2.69)$$

$$K_{ns}^{xyxy} = K_{ns}^{xyyx} = 0. \quad (2.70)$$

ii) Para o nível $n'd$:

$$\frac{3}{4}K_{16d}^{yyyy} = -\frac{3}{2}K_{16d}^{yyxx} = K_{16d}^{xyxy} = K_{16d}^{xyyx}. \quad (2.71)$$

Quando só o nível ns é excitado, a polarização gerada no meio é dada por:

$$P_x^{(3)}(\omega_4) = 0, \quad (2.72)$$

$$P_y^{(3)}(\omega_4) = \frac{N}{2\hbar^3 \epsilon_0} \int d\omega_1 \frac{E(\omega_1)E(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)E^*(\omega_3)K_d^{yyyy}}{[(\omega_4 - \omega_{ab}) - i\gamma_{ab}]} \cdot \left\{ \frac{[1 + e^{-i(\omega_3 + \omega_4)\tau}]}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad}) - i\gamma_{ad}]} \right\}. \quad (2.73)$$

Isto é, apenas a componente da polarização na direção do campo \vec{E}_3 é diferente de zero. Calculando a intensidade do sinal gerado, obtemos:

$$I_y \propto \frac{N^2 \pi^{3/2} |E(\omega_3)|^2 (K_d^{yyyy})^2}{\alpha \hbar^6 \varepsilon_0^2} \int \frac{d\omega_4}{[(\omega_4 - \omega_{ab})^2 + \gamma_{ab}^2]} \left\{ \exp \left[-\frac{(2\omega_{1c} - \omega_3 - \omega_4)^2}{4\alpha^2} \right] \cdot \frac{[1 + \cos(\omega_3 + \omega_4)\tau]}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad})^2 + \gamma_{ad}^2]} \right\}. \quad (2.74)$$

Verificamos que apenas a oscilação no dobro da frequência do laser de corante pode ser observada. Esta oscilação é evidenciada pelo termo $\cos[(\omega_3 + \omega_4)\tau]$. Tanto a oscilação na frequência do laser de corante como a contribuição do pico central (dentro de $\tau < T_c$) não aparecem na equação (2.74). Este resultado indica que quando os dois pulsos consecutivos têm polarizações perpendiculares é possível eliminar as oscilações “ópticas” que eram observadas no sinal de MQO quando todos os campos envolvidos tinham polarizações paralelas.

Quando apenas o nível $n'd$ é excitado pela transição de dois fótons, as equações (2.67) e (2.68) se reduzem a:

$$P_x^{(3)}(\omega_4) = \frac{N}{2\hbar^3 \varepsilon_0} \int d\omega_1 \frac{E(\omega_1)E(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)E^*(\omega_3)K_c^{xyxy}}{[(\omega_4 - \omega_{ab}) - i\gamma_{ab}]} \left\{ \frac{[e^{-i\omega_1\tau} + e^{-i(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)\tau}]}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac}) - i\gamma_{ac}]} \right\}, \quad (2.75)$$

e:

$$P_y^{(3)}(\omega_4) = \frac{N}{2\hbar^3 \varepsilon_0} \int d\omega_1 \frac{E(\omega_1)E(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)E^*(\omega_3)K_c^{yxxy}}{[(\omega_4 - \omega_{ab}) - i\gamma_{ab}]} \left\{ \frac{[1 - 2e^{-i(\omega_3 + \omega_4)\tau}]}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac}) - i\gamma_{ac}]} \right\}. \quad (2.76)$$

E a intensidade do sinal em cada direção é dada por:

$$I_x \propto \frac{N^2 \pi^{3/2} |E(\omega_3)|^2 (K_c^{xyxy})^2}{\alpha \hbar^6 \varepsilon_0^2} \int \frac{d\omega_4}{[(\omega_4 - \omega_{ab})^2 + \gamma_{ab}^2]} \exp\left[-\frac{(2\omega_{1c} - \omega_3 - \omega_4)^2}{4\alpha^2}\right] \cdot \frac{[1 + e^{-(\alpha\tau)^2}]}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac})^2 + \gamma_{ac}^2]}, \quad (2.77)$$

e na direção \hat{y} :

$$I_y \propto \frac{N^2 \pi^{3/2} |E(\omega_3)|^2 (K_c^{yyxx})^2}{2\alpha \hbar^6 \varepsilon_0^2} \int \frac{d\omega_4}{[(\omega_4 - \omega_{ab})^2 + \gamma_{ab}^2]} \exp\left[-\frac{(2\omega_{1c} - \omega_3 - \omega_4)^2}{4\alpha^2}\right] \cdot \frac{[5 - 4 \cos(\omega_3 + \omega_4)\tau]}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac})^2 + \gamma_{ac}^2]}. \quad (2.78)$$

Da equação (2.77) verificamos que nenhuma oscilação será observada. Entretanto o sinal apresenta um pico em torno do zero de atraso relativo entre os pulsos, o qual decai exponencialmente com o tempo de coerência do laser de corante. Na equação (2.78) temos uma componente de fundo constante e uma oscilação no dobro da frequência do laser incidente correspondendo à oscilação quântica.

Capítulo 3

Cálculos numéricos

3.1 - Introdução

Após termos calculado a intensidade do sinal de MQO, dada pela equação (2.56), devemos realizar a integração na frequência de saída, ω_4 , para podermos obter um gráfico da intensidade em função do atraso relativo entre os pulsos $\vec{E}(t)$ e $\vec{E}(t - \tau)$. Para tanto utilizaremos um software matemático que realizará uma varredura do atraso relativo entre esses campos e para cada valor desse atraso efetuará a integral em ω_4 . Assim teremos um cálculo numérico do resultado obtido em um experimento de MQO, resolvida no tempo, utilizando luz incoerente.

Primeiramente os parâmetros utilizados nos cálculos não correspondem a nenhum sistema atômico real. Tais parâmetros foram escolhidos com o objetivo de facilitar a análise dos resultados obtidos e tornar o tempo de máquina, i. e., o tempo necessário para a realização de cada uma das integrações numéricas, menor.

Em seguida, aplicaremos os resultados obtidos em um sistema físico real, o átomo de rubídio. Modificaremos os parâmetros atômicos de tal forma que os níveis a , b , c e d da figura 2.1 correspondam aos níveis $5s$, $6P_{3/2}$, $16d$ e $18s$ do rubídio, respectivamente. O estudo computacional realizado no rubídio se dividirá em duas partes. Na primeira parte vamos considerar que todos os campos presentes nas simulações têm polarizações ao longo da mesma direção. Nessa análise iremos levar em conta fatores que não foram considerados no caso do sistema atômico hipotético, como por exemplo, a diferença nas constantes de acoplamento das transições envolvidas. Na segunda parte vamos analisar o comportamento do vapor de rubídio quando os pulsos $\vec{E}(t)$ e $\vec{E}(t - \tau)$ têm polarizações perpendiculares. Para tanto iremos supor, assim como foi feito na seção 2.6 b), que a transição por dois fótons não excita simultaneamente os níveis $16d$ e $18s$, excitando apenas um dos níveis em questão. No caso de excitarmos o nível $18s$ o comportamento do sinal de MQO é dado pela equação (2.74), no caso de utilizarmos o nível $16d$ esse comportamento será descrito pelas equações (2.77) e (2.78).

3.2 – Cálculo numérico para um sistema atômico hipotético

Nesta seção iremos discutir, através de cálculos numéricos, os resultados obtidos quando consideramos que todos os campos incidentes sobre o sistema atômico possuem polarizações ao longo da mesma direção.

Apesar de não utilizarmos parâmetros que correspondam a um sistema campo/átomo real, neste primeiro cálculo, tentamos aproximá-los o máximo possível de uma situação realizável experimentalmente. Para isso consideramos que os campos \vec{E}_1 e \vec{E}_2 são provenientes de um mesmo laser de corante com banda larga. O laser deve ser banda larga pois queremos excitar simultaneamente dois níveis energéticos distintos. Esse tipo de laser pode ser construído e existem vários exemplos do mesmo na literatura [47]. Nas nossas análises iremos utilizar unidades de frequência e de comprimento que facilitem os cálculos do programa. As unidades escolhidas foram o radiano por femtossegundo para a frequência e o micrômetro para o comprimento, de forma que a frequência central do laser de corante é $\omega_1 = 3,12802$ rad/fs e o comprimento de onda central é $\lambda_1 = 0,602$ μm . Escolhemos um tempo de coerência curto, da ordem de 60 fs, para minimizar o valor do atraso relativo entre os campos, τ , necessário para a visualização dos fenômenos de interesse. O campo \vec{E}_3 que incide sobre o sistema tem um comprimento de onda igual a $\lambda_3 = 1,064$ μm , ($\omega_3 = 1,7698$ rad/fs), correspondendo ao modo fundamental de um laser de Nd:YAG.

Os valores considerados para as frequências das transições de interesse envolvendo os níveis a , b , c e d da figura 2.1 foram: $\omega_{ab} = 4,48032$ rad/fs, $\omega_{ac} = 6,24795$ rad/fs e $\omega_{ad} = 6,25231$ rad/fs. Destas, apenas a última, ω_{ad} , não corresponde à frequência de transição entre os níveis correspondentes do rubídio ($5s$ e $18s$). Para estes valores de frequência temos que a separação entre os níveis c e d nas unidades utilizadas é de 0,00436 rad/fs, o que corresponde a aproximadamente 23 cm^{-1} . Consideremos que as taxas de

relaxação das coerências dos níveis b , c e d são iguais entre si e têm como valor: $\gamma_{ab} = \gamma_{ac} = \gamma_{ad} = 2 \cdot 10^{-7} \text{ fs}^{-1}$. Mais uma vez escolhemos valores de parâmetros diferentes dos valores reais para podermos observar, num menor valor do atraso relativo, os fenômenos de interesse. Além disso uma outra simplificação foi feita, nesta consideramos que as constantes de acoplamento efetivo K_c'' e K_d'' , definidas na equação (2.36), são iguais e têm valor 1. Com esta simplificação a probabilidade de transição entre os níveis a e c é igual à probabilidade de transição entre a e d , possibilitando uma melhor visualização dos batimentos existentes.

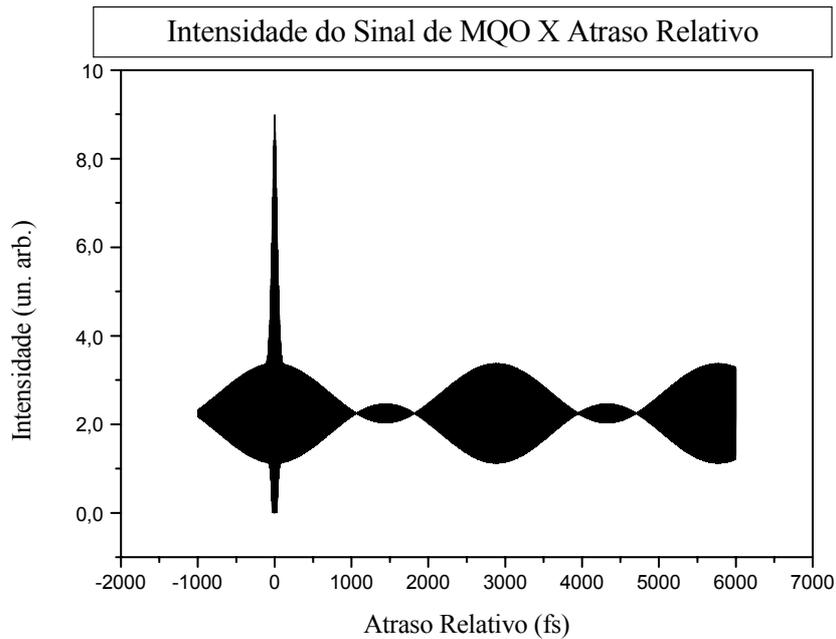


Figura 3.1: Gráfico da intensidade do sinal de MQO em função do atraso relativo.

Num primeiro cálculo utilizamos todos os termos da equação (2.56), para obtermos o comportamento mais geral do sistema em estudo. O resultado é apresentado na figura 3.1.

Nesta figura podemos observar o comportamento previsto pela equação (2.56). Temos a presença de um pico central cuja largura depende do tempo de coerência do laser de corante, devido à exponencial que contém a constante α , a qual é inversamente proporcional ao tempo de coerência deste laser, ver equação (2.52). Além disso, dentro desse pico central devemos observar oscilações numa frequência aproximadamente igual à frequência do laser de corante que incide sobre o sistema. Para valores do atraso relativo muito maiores que o tempo de coerência do laser de corante, $\tau \gg T_c$, observamos oscilações no dobro da frequência do laser de corante que incide no sistema. O batimento observado na figura 3.1 se deve às diferenças entre as frequências de ressonância do sistema atômico ($\omega_{ab} + \omega_3, \omega_{ac}, \omega_{ad}$). Na figura 3.1 podemos notar que o pico central é a região de maior intensidade no sinal de MQO. Também, podemos obter a razão entre o máximo do pico central e a média das oscilações nas regiões em que $\tau \gg T_c$ sendo essa razão igual a 4.

A partir da figura 3.1 podemos utilizar a largura do pico central para estimar o valor do tempo de coerência do laser de corante. Para isso fizemos uma ampliação de uma parte da figura 3.1 que vai de -80 a 80 fs, como mostra a figura 3.2. Tomando o atraso relativo necessário para que o pico central caia pela metade do seu valor em $\tau = 0$, encontramos $\tau_{1/2} = T_c$, i. e., a largura à meia altura do pico central é igual a duas vezes o tempo de coerência do laser de corante que interage com o sistema atômico. Na figura 3.2 podemos observar que o tempo necessário para que o sinal de MQO caia pela metade é, aproximadamente, 60 fs.

As frequências que estão presentes no sinal de MQO podem ser obtidas a partir da transformada de Fourier do gráfico apresentado na figura 3.1. O resultado se encontra na figura 3.3, onde são observados dois picos no espaço de frequências, próximos de 3,13 rad/fs e 6,26 rad/fs, i. e., um pico em torno da frequência central do laser de corante e o outro no dobro desse valor. Uma análise cuidadosa mostra que cada pico corresponde, na realidade, a três picos distintos, como exemplificado no detalhe da figura 3.3, o qual corresponde a uma amplificação em torno do valor 2π rad/fs. Estes três picos estão

associados ao sistema atômico em estudo: os dois primeiros correspondem às ressonâncias devido à transição de dois fótons entre os níveis a e c , e a e d , e o terceiro, corresponde à ressonância por três fótons da transição entre os níveis a e b . Estes picos em torno do valor 6,25 rad/fs correspondem então às frequências ω_{ac} , $(\omega_3 + \omega_{ab})$ e ω_{ad} , e são responsáveis pelo comportamento apresentado na figura 3.1 para valores de $\tau \gg T_c$.

Ampliação da Figura 3.1 Mostrando o Pico Central

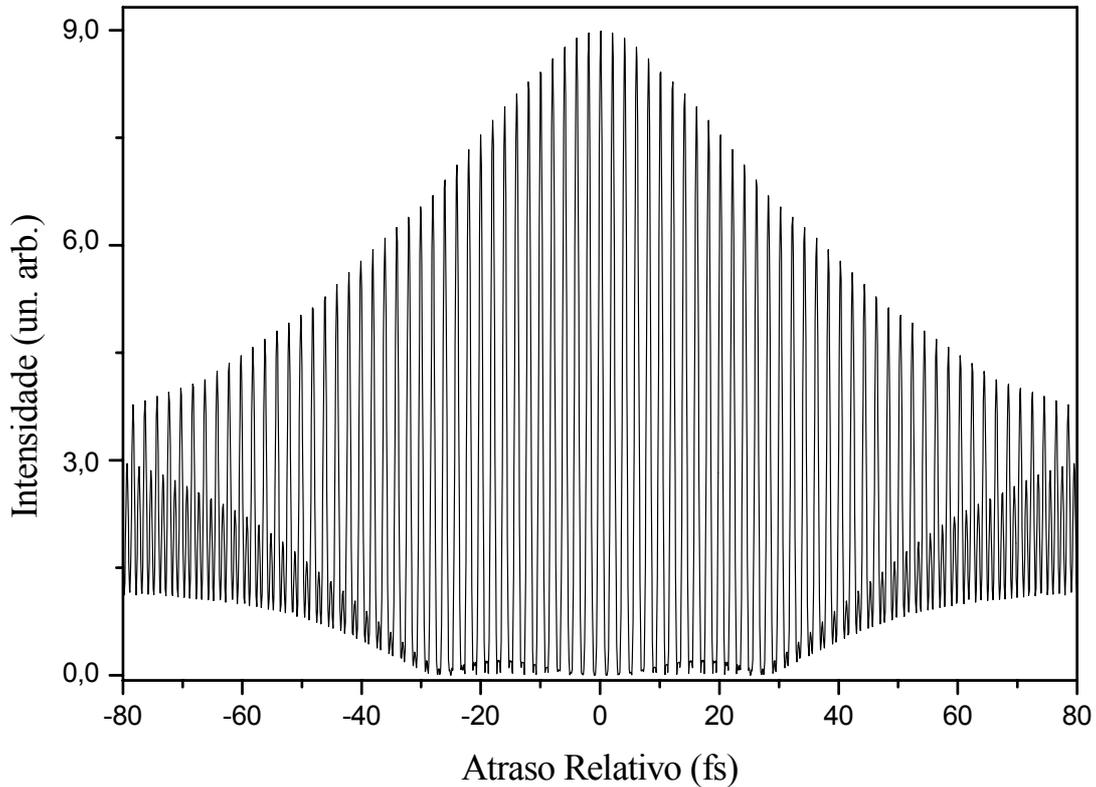


Figura 3.2: Ampliação da figura 3.1 na região do pico central. Podemos notar nessa figura as oscilações que caracterizam o sinal de MQO.

A resolução, obtida no espaço de frequências, com o método utilizado para obtermos a transformada de Fourier é dada por:

$$\Delta\nu \cong \frac{1}{T_m}, \quad (3.1)$$

onde $\Delta\nu$ é a separação entre dois pontos consecutivos no domínio espectral e T_m é o valor máximo da abscissa no domínio temporal. Note que, devido às separações entre as frequências utilizadas nas simulações serem da ordem de 10^{-4} fs^{-1} , foi necessário utilizarmos valores da ordem de 10^4 fs para o atraso relativo entre os pulsos $\vec{E}(t)$ e $\vec{E}(t - \tau)$, a fim de podermos separar as diversas frequências existentes no sinal de MQO.

Os batimentos na envoltória do sinal se devem às diferenças entre as frequências de ressonância do sistema. A diferença entre as frequências da transição de dois fótons, ω_{ac} e ω_{ad} , é igual a $4,36 \cdot 10^{-3} \text{ rad/fs}$ e corresponde a um batimento de período igual a 1441 fs. Pela figura 3.1 podemos verificar que esse é o período de dois picos adjacentes. As diferenças entre $(\omega_3 + \omega_{ab})$ e ω_{ad} e entre ω_{ac} e $(\omega_3 + \omega_{ab})$, são iguais a $2,19 \cdot 10^{-3} \text{ rad/fs}$, e são responsáveis pelo batimento de 2900 fs, entre máximos de mesma amplitude.

Transformada de Fourier de Figura 3.1

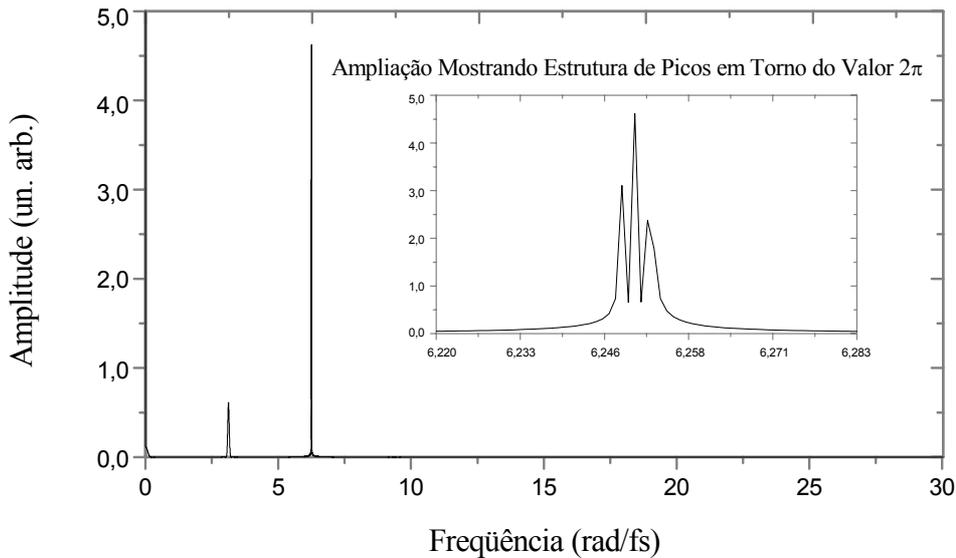


Figura 3.3: Gráfico da transformada de Fourier da função exibida na figura 3.1.

A diferença na intensidade dos picos em π e em 2π observados na figura 3.3 se deve ao fato de termos realizado a transformada de Fourier numa região em que as oscilações nas frequências em torno do valor 2π dominam o sistema, i. e., na figura 3.1 essas oscilações existem em todo o intervalo de tempo considerado, enquanto que as oscilações nas frequências em torno do valor π existem apenas para intervalos de tempo menores que o tempo de coerência do laser de corante.

A dependência da intensidade dos picos na transformada de Fourier com o intervalo temporal analisado é apresentada na figura 3.4. Nesta figura mostramos a transformada para o intervalo de -80 fs a 80 fs, e observamos uma relação entre as intensidades diferente da observada na figura 3.3. Isto se deve ao fato de termos restringido a região temporal para valores do atraso relativo entre os pulsos da ordem do tempo de coerência do laser de corante ($\tau \cong T_c$). De acordo com a equação (2.54), nessa região as oscilações na frequência central do laser de corante (oscilações “ópticas”) são mais intensas que as oscilações no dobro desta frequência (oscilações quânticas), por um fator 4.

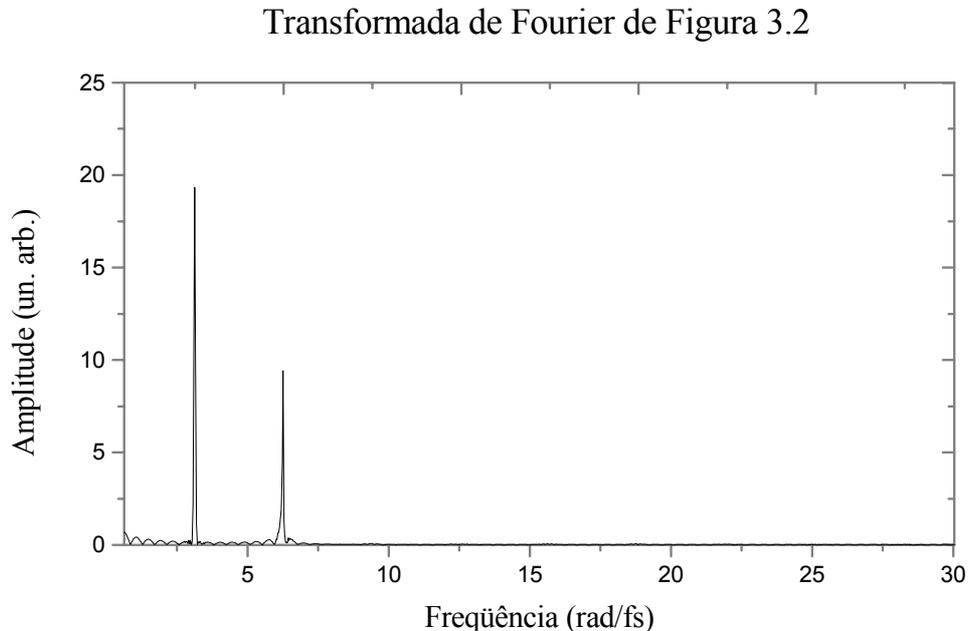


Figura 3.4: Transformada de Fourier da região entre -80 fs e +80 fs.

A figura 3.5 mostra, em escala ampliada, o comportamento do sinal de MQO, para duas regiões distintas do atraso entre os pulsos: $\tau \sim 0$ e $\tau \gg T_c$.

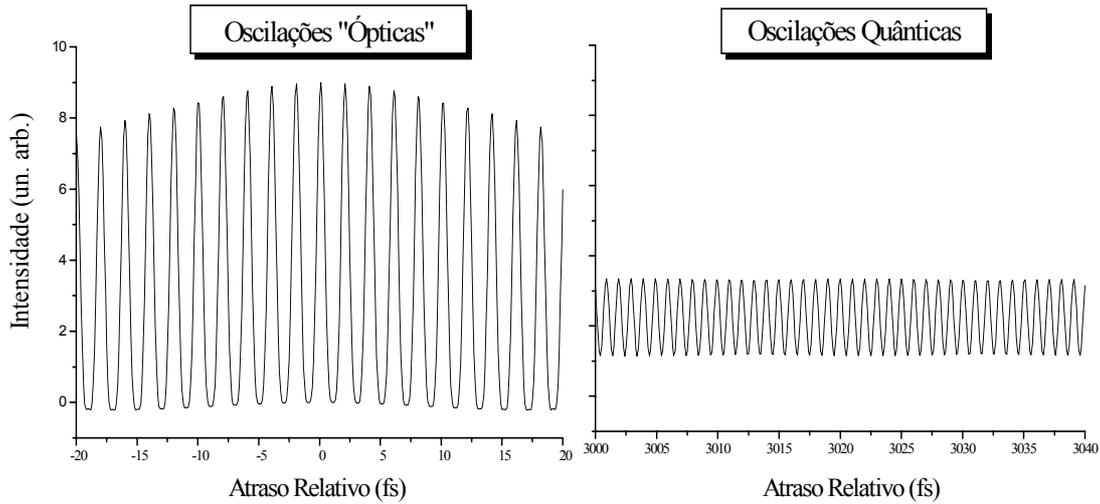


Figura 3.5: Comparação entre oscilações “ópticas” e quânticas presentes no sistema.

A primeira região corresponde a valores do atraso relativo entre os pulsos $\vec{E}(t)$ e $\vec{E}(t - \tau)$ que variam de -20 fs a +20 fs. Essa região está situada dentro do tempo de coerência do laser de corante e, devido à superposição temporal entre os pulsos $\vec{E}(t)$ e $\vec{E}(t - \tau)$, temos como resultado a interferência na frequência central do laser de corante ou interferências “ópticas”. Na segunda região o atraso relativo assume valores de 3000 fs a 3040 fs, ou seja, estamos numa região em que os efeitos associados com o tempo de coerência do laser de corante podem ser desprezados. Temos então uma oscilação no dobro da frequência central do laser, o que caracteriza uma oscilação quântica. É importante observar que as interferências quânticas existem para qualquer valor do atraso relativo, só não sendo possível visualizá-las na primeira região devido à maior amplitude das oscilações “ópticas”. O fato das oscilações quânticas existirem também para $\tau < T_c$ modifica a forma das oscilações “ópticas”, as quais, como podemos ver na da figura 3.5, não é uma função co-seno simples, apresentando os mínimos “achatados”.

Na figura 3.6 apresentamos uma região onde as interferências “ópticas” e quânticas existem simultaneamente e têm praticamente a mesma amplitude. Nesta figura notamos o decaimento da amplitude das oscilações “ópticas” e em conseqüência disso o sinal de MQO fica restrito à contribuição das oscilações quânticas. Podemos então resumir o comportamento na região de transição da seguinte forma: com o aumento gradativo do atraso temporal entre os pulsos $\vec{E}(t)$ e $\vec{E}(t-\tau)$, máximos devido às interferências quânticas aparecem entre os máximos associados às interferências ópticas.

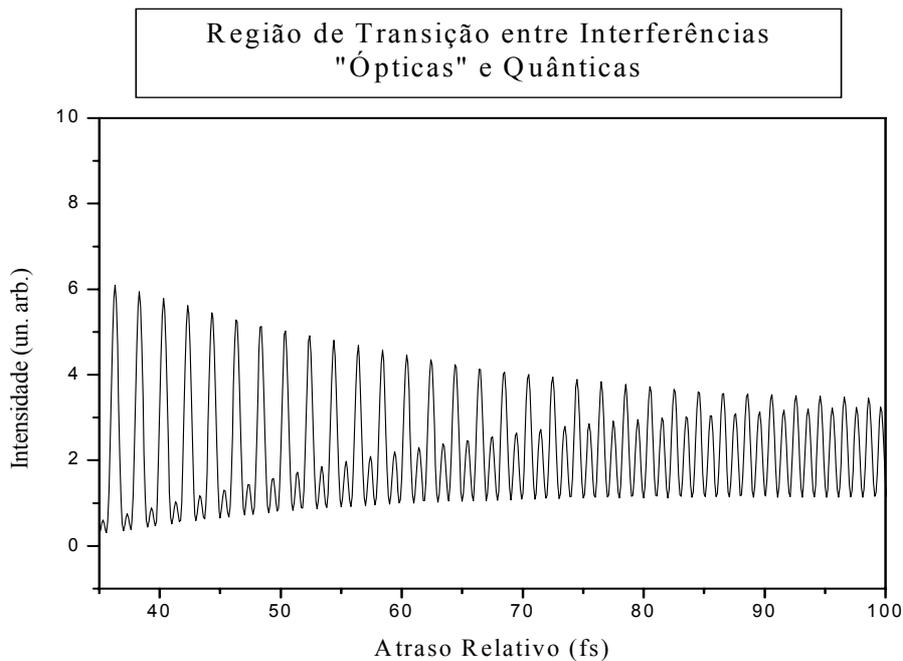


Figura 3.6: Ampliação da figura 3.1 em uma região de transição entre os padrões interferométricos que caracterizam as oscilações “ópticas” e quânticas.

Analisamos também o comportamento da intensidade do sinal de MQO com as taxas de relaxação das coerências dos níveis. Numa primeira abordagem aumentamos o

valor dessas taxas, de $2 \cdot 10^{-7} \text{ fs}^{-1}$ para $2 \cdot 10^{-2} \text{ fs}^{-1}$, em todos os níveis envolvidos no sistema. O resultado é apresentado na figura 3.7.

Neste caso podemos observar as mesmas características apresentadas na figura 3.1, i. e., um pico central que depende do tempo de coerência do laser de corante, batimentos nas diferenças das frequências presentes no meio e a ocorrência das oscilações “ópticas” e quânticas. Além disso podemos observar um claro decaimento na intensidade do sinal de MQO, devido ao aumento do valor das taxas de relaxação das coerências do sistema. Com esse aumento, as coerências dos níveis tendem a zero mais rapidamente, o que acarreta uma diminuição no sinal de MQO. Este efeito também está presente no gráfico da figura 3.1, porém por estarmos utilizando taxas de relaxação muito pequenas não é possível visualizá-lo dentro do intervalo de tempo considerado.

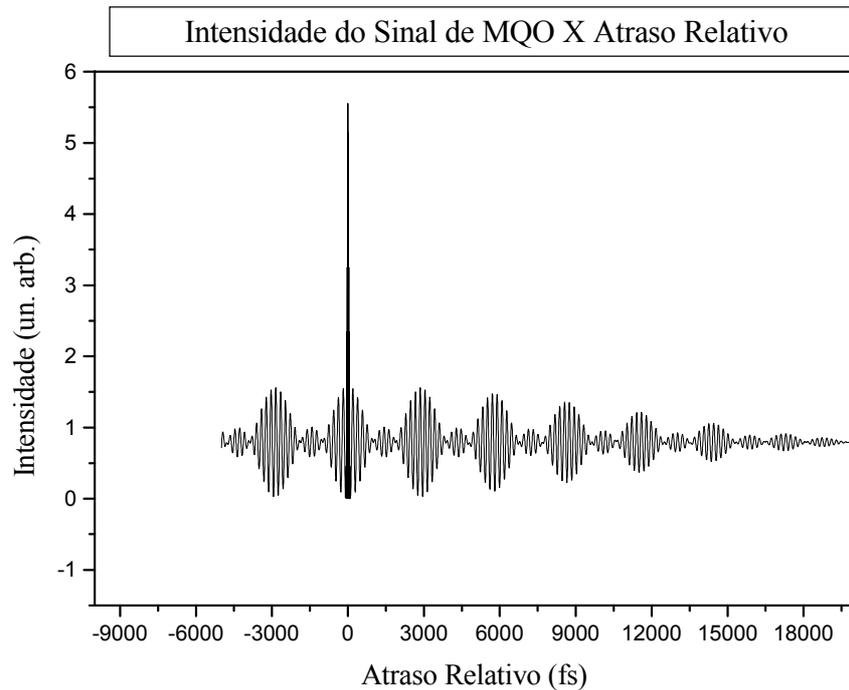


Figura 3.7: Comportamento do sinal de MQO para valores de taxas de relaxação das coerências muito elevados.

Podemos analisar a dependência do sinal de MQO através das expressões obtidas no capítulo 2. Pela equação (2.56) a parte do sinal que contém a dependência com as taxas de relaxação pode ser agrupada como:

$$\begin{aligned}
I_\gamma \propto \frac{2\pi^{3/2}|E(\omega_3)|^2}{\alpha} & \left\{ \int \frac{d\omega_4}{[(\omega_4 - \omega_{ab})^2 + \gamma_{ab}^2]} \cdot e^{-\frac{(2\omega_{1c} - \omega_3 - \omega_4)^2}{4\alpha^2}} \cdot \frac{(K_c^{//})^2}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac})^2 + \gamma_{ac}^2]} \right. \\
& + \int \frac{d\omega_4}{[(\omega_4 - \omega_{ab})^2 + \gamma_{ab}^2]} \cdot e^{-\frac{(2\omega_{1c} - \omega_3 - \omega_4)^2}{4\alpha^2}} \cdot \frac{(K_d^{//})^2}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad})^2 + \gamma_{ad}^2]} \\
& \left. + \int \frac{d\omega_4}{[(\omega_4 - \omega_{ab})^2 + \gamma_{ab}^2]} \cdot e^{-\frac{(2\omega_{1c} - \omega_3 - \omega_4)^2}{4\alpha^2}} \cdot \frac{2K_c^{//}K_d^{//}}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac})^2 + \gamma_{ac}^2][(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad})^2 + \gamma_{ad}^2]} \cdot \frac{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac})(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad}) - \gamma_{ac}\gamma_{ad}]}{[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac})^2 + \gamma_{ac}^2][(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ad})^2 + \gamma_{ad}^2]} \right\}. \quad (3.2)
\end{aligned}$$

Temos então a soma de três integrais no domínio espectral. Para obter a dependência temporal, e assim podermos comparar o comportamento dessas funções com o gráfico apresentado na figura 3.7, devemos obter a transformada de Fourier da equação (3.2). Note que em todas as integrais temos Lorentzianas no integrando. A transformada de Fourier de uma Lorentziana é dada por [48]:

$$TF \left[\frac{1}{a^2 + \omega^2} \right] = \frac{\sqrt{\pi/2} \cdot e^{-a|t|}}{a}, \quad (3.3)$$

onde TF significa que estamos tomando a transformada de Fourier e “a” é uma constante arbitrária.

Aplicando este resultado na equação (3.2) devemos obter exponenciais que decaem com o tempo, com a característica de que quanto maior for a taxa de relaxação da coerência mais rapidamente o sinal irá decair (note que as taxas de relaxação que aparecem na equação (3.2) fazem o papel da constante “a” na equação (3.3) e por isso o decaimento depende dessas taxas). Como nessa primeira simulação todas as taxas de relaxação tiveram

um valor muito elevado, o sinal como um todo apresenta um decaimento rápido como pode ser visto na figura 3.7.

Como um teste para a dependência do sinal de MQO com as taxas de relaxação das coerências vamos fazer a taxa de coerência entre os níveis a e b muito maior que as taxas de relaxação das coerências entre os níveis a e c ou a e d . O comportamento que devemos observar é que, como a taxa de relaxação entre os níveis a e b é muito grande, o sinal de MQO não deve apresentar a frequência correspondente à ressonância por três fótons, $(\omega_{ab} + \omega_3)$, pois o termo que possui a dependência com essa frequência apresenta um decaimento muito mais rápido que o decaimento dos termos correspondentes às frequências ω_{ac} e ω_{ad} . Devemos então obter um batimento na envoltória do sinal correspondente à diferença entre as frequências ω_{ac} e ω_{ad} . Os valores das taxas de relaxação nesse cálculo foram $\gamma_{ab} = 2 \cdot 10^{-2} \text{ fs}^{-1}$ e $\gamma_{ac} = \gamma_{ad} = 2 \cdot 10^{-7} \text{ fs}^{-1}$. O resultado se encontra na figura 3.8, cujo período de oscilação da envoltória é de aproximadamente 1445 fs.

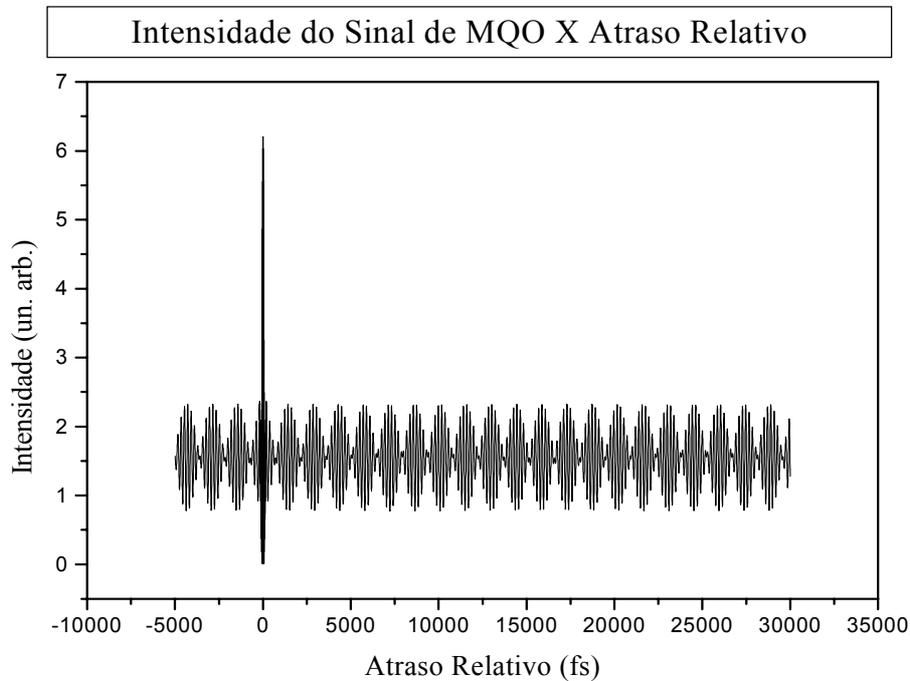


Figura 3.8: Comportamento do sinal de MQO para valor da taxa de relaxação da coerência entre os níveis a e b muito maiores que as demais taxas de relaxação das coerências presentes no sistema.

A transformada de Fourier deste sinal é apresentada na figura 3.9. Podemos notar que só dois picos estão presentes cujas frequências correspondem a ω_{ac} e ω_{ad} . Além disso a diferença entre estas frequências irá originar oscilações temporais de período igual a 1440 fs, resultado em perfeito acordo com o período das oscilações da envoltória da figura 3.8. Também podemos observar que a frequência associada à ressonância por três fótons, $\omega_{ab} + \omega_3$, não aparece no gráfico da transformada de Fourier confirmando a análise baseada nas taxas de relaxação das coerências dos diversos níveis presentes no sistema.

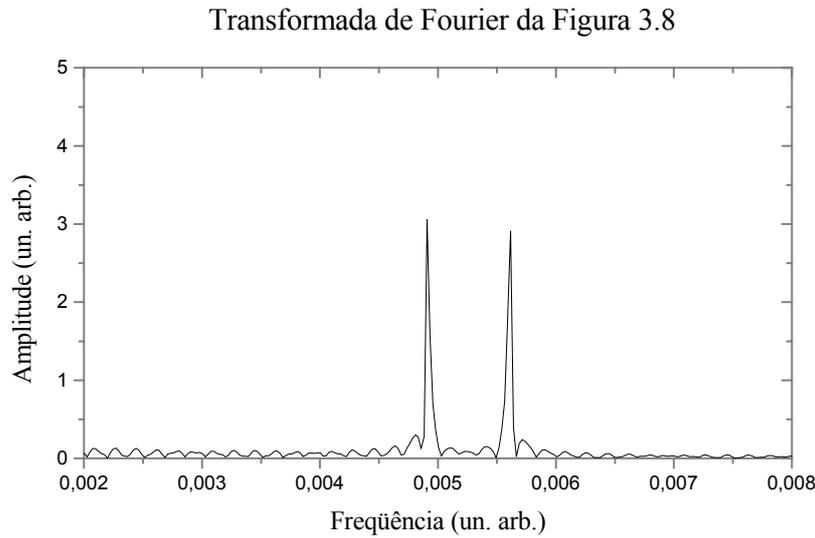


Figura 3.9: Transformada de Fourier da função mostrada na figura 3.8. Note os dois picos correspondentes às frequências ω_{ac} e ω_{ad} .

Analisamos, também, a situação em que as taxas entre os níveis a e c , e a e d são muito maiores que a taxa entre os níveis a e b . Os valores utilizados foram trocados em relação aos valores do cálculo apresentado na figura 3.8, i. e., $\gamma_{ac} = \gamma_{ad} = 2 \cdot 10^{-2} \text{ fs}^{-1}$ e $\gamma_{ab} = 2 \cdot 10^{-7} \text{ fs}^{-1}$. O resultado obtido é apresentado na figura 3.10 e sua transformada de Fourier na figura 3.11. A intensidade do sinal de MQO apresenta apenas uma frequência de oscilação, que corresponde à frequência de ressonância por três fótons, $\omega_{ab} + \omega_3$. Isto é esperado pois, como as taxas de relaxação da coerência para os demais níveis são muito grandes, os

termos que contêm as frequências relacionadas a esses níveis devem se aproximar de zero muito rapidamente. Neste caso, como só uma frequência sobrevive no sinal não observamos nenhum batimento. O detalhe na figura 3.10 mostra uma ampliação da região que vai de 13300 fs a 15050 fs.

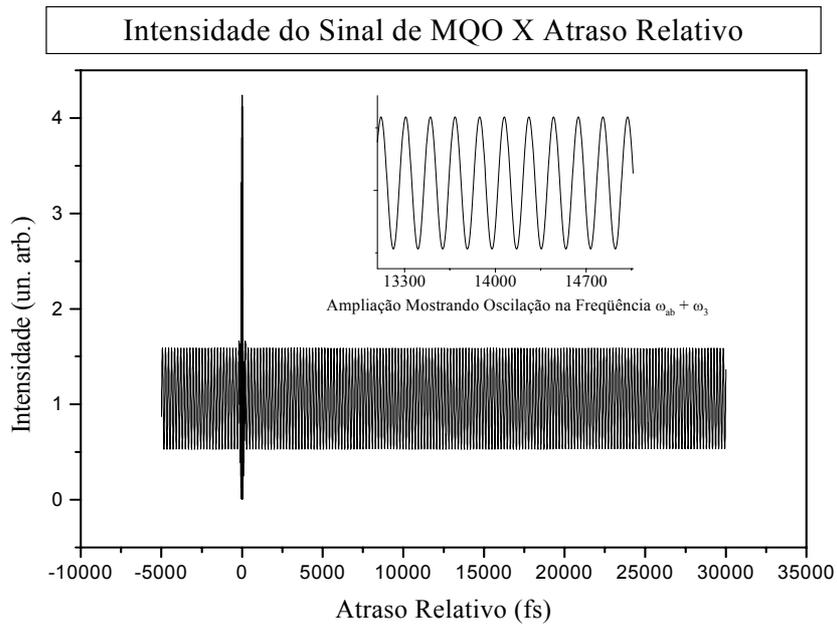


Figura 3.10: Comportamento do sinal de MQO para $\gamma_{ab} \ll \gamma_{ac}, \gamma_{ad}$.

Transformada de Fourier da Figura 3.10

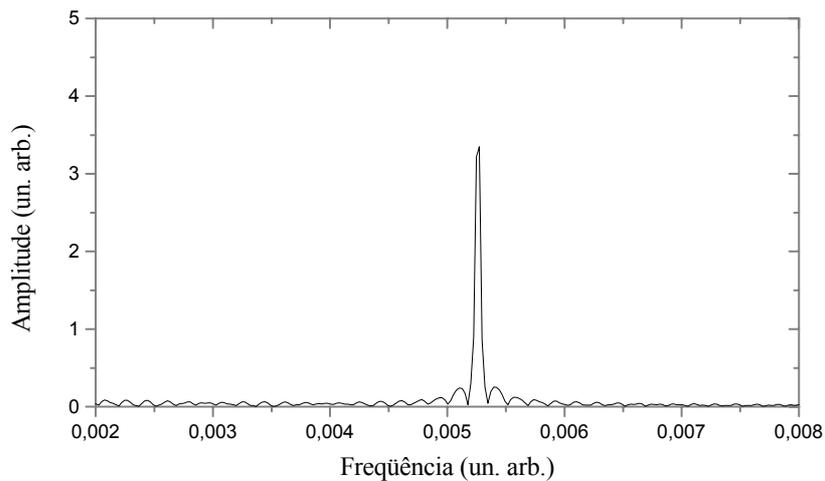


Figura 3.11: Transformada de Fourier da função mostrada na figura 3.10. Note que temos apenas uma frequência o que acarreta na ausência de batimentos na envoltória do sinal mostrado na figura 3.10.

3.3 – Cálculo numérico utilizando parâmetros do átomo de rubídio

Nesta seção calculamos o sinal de MQO gerado em um vapor de rubídio, em função do atraso relativo entre pares de pulsos de um laser banda larga. Nosso interesse é fazermos uma previsão do experimento que está em desenvolvimento no laboratório. Os valores das frequências de transição entre os diversos níveis do nosso sistema foram escolhidos de forma que os níveis a , b , c e d da figura 2.1 correspondam aos níveis $5s$, $6P_{3/2}$, $16d$ e $18s$ do rubídio, respectivamente. Nas unidades de frequência utilizadas em nossas simulações, i. e., o radiano por femtossegundo, essas frequência de transição são dadas por: $\omega_{ab} = 4,47950$ rad/fs, $\omega_{ac} = 6,24795$ rad/fs e $\omega_{ad} = 6,25065$ rad/fs [49]. Além disso as taxas de relaxação das coerências entre os diversos estados envolvidos no sistema também foram alteradas em relação ao valor utilizado na seção 3.1 para um valor que correspondesse ao átomo de rubídio. Os valores utilizados nas simulações foram: taxa de relaxação da coerência entre os níveis a e b , $\gamma_{ab} = 9,17431 \cdot 10^{-9}$ fs⁻¹, entre os níveis a e c , $\gamma_{ac} = 2,21 \cdot 10^{-10}$ fs⁻¹ e entre os níveis a e d , $\gamma_{ad} = 3,03 \cdot 10^{-10}$ fs⁻¹ [50].

Os parâmetros utilizados para caracterização do laser de corante, o qual gera os campos \vec{E}_1 e \vec{E}_2 do nosso sistema, são dados por: tempo de coerência 1400 fs, o que corresponde a uma largura de banda de aproximadamente 24 cm⁻¹ (garantindo assim que iremos excitar simultaneamente os níveis $16d$ e $18s$) e frequência central igual a $3,12465$ rad/fs. Os parâmetros do modo fundamental do laser de Nd:YAG, responsável pelo campo \vec{E}_3 , são os mesmos que os apresentados na seção anterior, i. e., $\omega_3 = 1,7698$ rad/fs ou $\lambda_3 = 1,064$ μ m e o tempo de coerência infinitamente grande, pois estamos considerando que o campo \vec{E}_3 tem como distribuição espectral uma delta de Dirac centrada em ω_3 .

Primeiramente vamos analisar o caso em que as polarizações dos campos que interagem com o átomo de rubídio são paralelas. Para esta configuração das polarizações dos campos os resultados analíticos se encontram na seção 2.5 item a), porém como

estamos trabalhando com o átomo de rubídio, mais especificamente com os níveis $16d$ e $18s$, temos que considerar as contribuições das partes angulares e radiais das constantes de acoplamento efetivo para os níveis em questão. Essas contribuições podem ser resumidas à multiplicação por fatores constantes na expressão (2.39) que nos dá a polarização macroscópica induzida no vapor de rubídio (para uma explicação mais detalhada ver apêndice A.2). Neste caso a razão entre K''_{16d} e K''_{18s} é de, aproximadamente, 3,36. O resultado obtido, levando em conta estas contribuições, é apresentado na figura 3.12.

Observamos que a visibilidade dos batimentos é muito pequena se comparada com a visibilidade no sistema atômico hipotético. Isto se deve ao fato das constantes de acoplamento efetivo terem valores distintos. Entretanto ainda é possível verificar a existência de dois batimentos na envoltória do sinal, o primeiro tem um período de, aproximadamente, 2350 fs, o que corresponde à diferença de frequência entre os níveis $16d$ e $18s$. O segundo com um período de, aproximadamente, 4715 fs, corresponde à diferença entre as frequências dos níveis $16d$ e $18s$ em relação à frequência de ressonância da transição por três fótons. Note que, 2350 fs corresponde a uma diferença de energia de $14,2 \text{ cm}^{-1}$, que é aproximadamente a separação entre os níveis $16d$ e $18s$. Na figura 3.13 ampliamos uma região para $\tau > T_c$ onde podemos visualizar melhor os dois batimentos presentes no sinal.

As frequências presentes no sinal podem ser obtidas através da transformada de Fourier da curva da figura 3.12, a qual é apresentada na figura 3.14. Podemos visualizar, com o auxílio da ampliação da figura 3.14, as três frequências que dão origem ao batimento duplo mostrado na figura 3.13. A diferença na amplitude dessas frequências se deve ao fato de termos introduzido as contribuições das partes angulares e radiais das constantes de acoplamento efetivo das transições entre os níveis $5s$ e $16d$, e $5s$ e $18s$. Pela figura 3.14 vemos que a frequência de ressonância com o nível $16d$ tem uma amplitude maior que as demais frequências presentes no sistema, e isto se deve ao fato de sua probabilidade de transição ser maior ($K''_{16d} = 3,36K''_{18s}$).

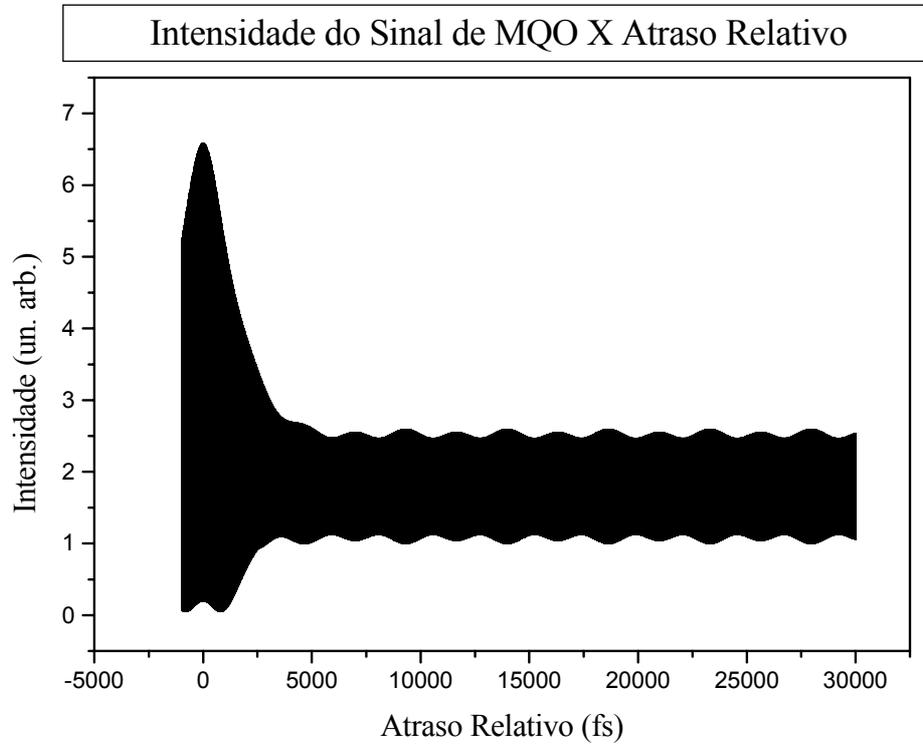


Figura 3.12: Simulação prevendo o comportamento do sinal de MQO em função do atraso relativo entre os pulsos $\vec{E}(t)$ e $\vec{E}(t - \tau)$ para um vapor atômico constituído de átomos de rubídio.

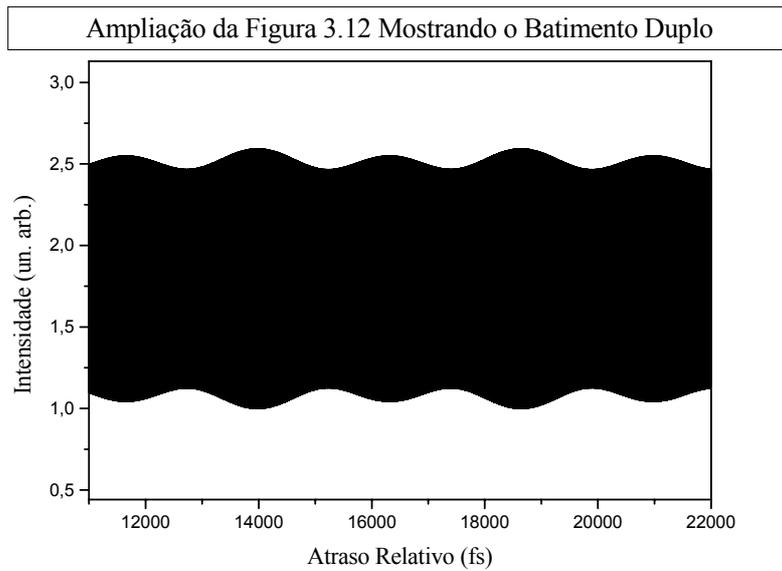


Figura 3.13: Ampliação da figura 3.12, na região de 11000 a 22000 fs, mostrando o batimento duplo.

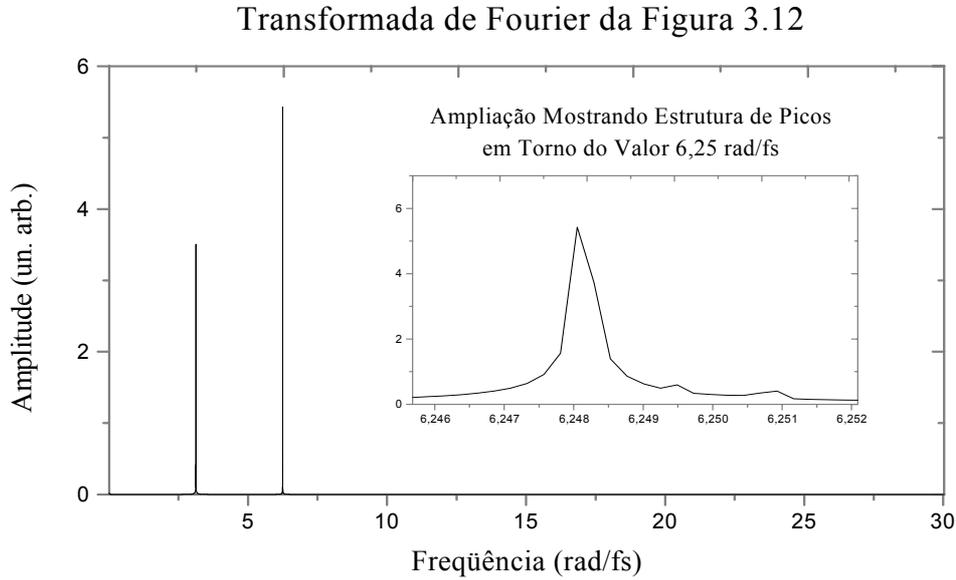


Figura 3.14: Transformada de Fourier da figura 3.12, com ampliação mostrando a estrutura do pico em torno do valor 6,25 rad/fs.

Vamos agora analisar o caso onde as polarizações dos pulsos $\vec{E}(t)$ e $\vec{E}(t-\tau)$ são perpendiculares. Neste caso, como foi visto na seção 2.5, para podermos visualizar as oscilações “ópticas” e quânticas se faz necessário excitar apenas um nível de cada vez, i. e., excitamos, primeiramente, apenas o nível $16d$ e depois apenas o nível $18s$.

Para o nível $16d$ a onda gerada no processo de MQO terá componentes ao longo das direções x e y , as quais devem ser analisadas separadamente. No caso de “seleccionarmos” a direção y no processo de medida, iremos obter um sinal dado pela equação (2.78) e cujo comportamento se encontra na figura 3.15. Nesta figura é apresentada uma ampliação do gráfico na região que vai de 11660 fs a 11673 fs para podermos visualizar a oscilação que ocorre para qualquer valor de τ , além disso podemos observar um batimento na envoltória do sinal e a não existência do pico central. Este batimento se deve à diferença entre as frequências ω_{16d} e $(\omega_{6p} + \omega_3)$ que estão presentes no sistema, o que pode ser verificado através da transformada de Fourier apresentada na figura 3.16.

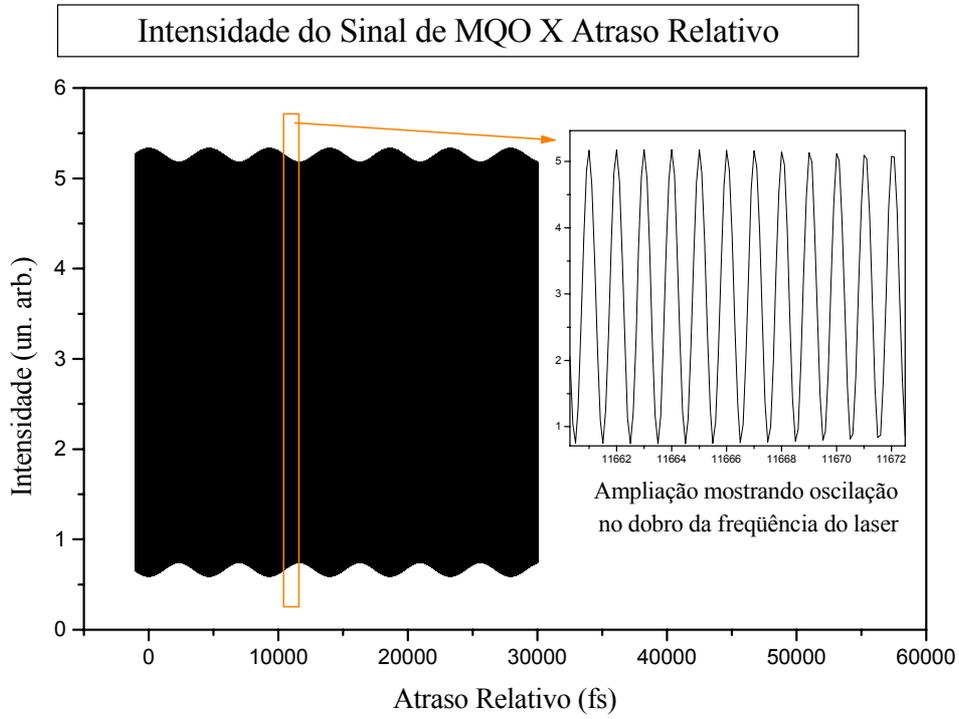


Figura 3.15: Intensidade do sinal de MQO em função do atraso relativo para a direção y e no caso em que apenas o nível $16d$ é excitado com polarizações perpendiculares entre os pulsos $\vec{E}(t)$ e $\vec{E}(t - \tau)$.

Transformada de Fourier da Figura 3.15

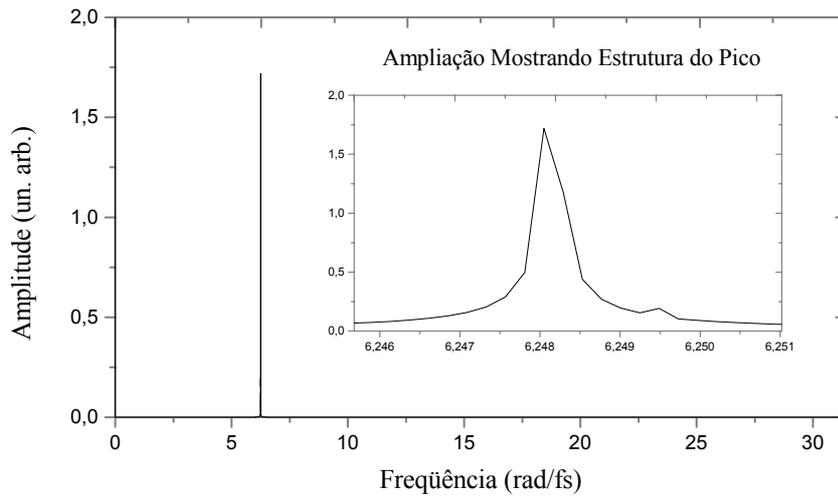


Figura 3.16: Transformada de Fourier da intensidade de MQO para a direção y e quando apenas o nível $16d$ é excitado.

Quando realizamos a medida da intensidade do sinal de MQO para a onda gerada que se propaga ao longo da direção x , obtemos o gráfico apresentado na figura 3.18.

Neste caso temos apenas o pico central e uma componente de fundo sem a presença de qualquer oscilação, seja ela quântica ou “óptica”. O único parâmetro do sistema em estudo que pode ser obtido através da análise desse gráfico é o tempo de coerência do laser de corante, que é igual à metade da largura à meia altura do pico central.

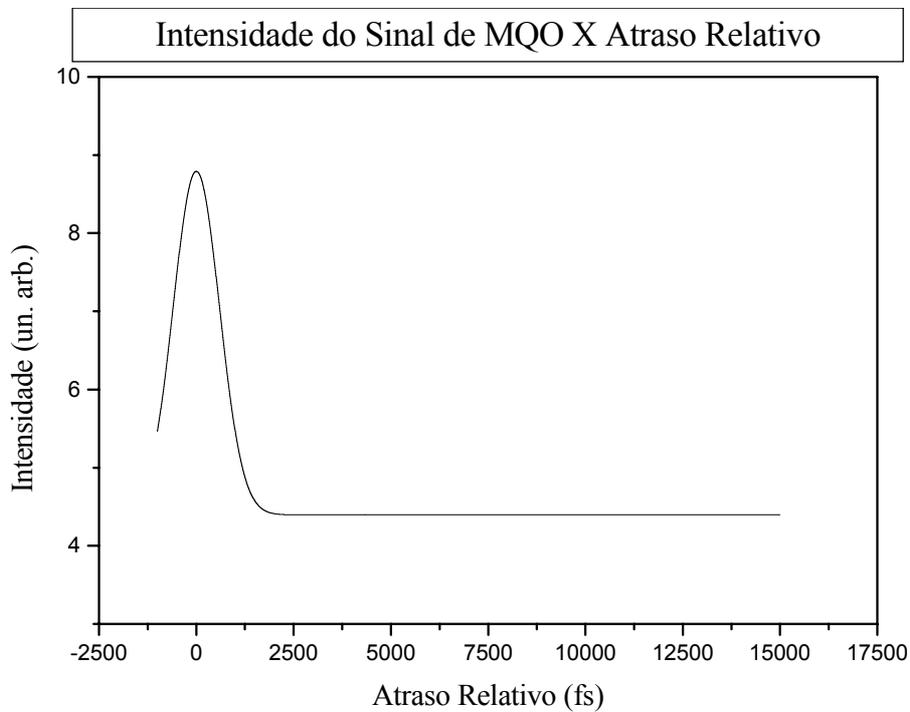


Figura 3.18: Intensidade do sinal de MQO em função do atraso relativo para a direção x no caso em que apenas o nível $16d$ é excitado com polarizações perpendiculares entre os pulsos $\vec{E}(t)$ e $\vec{E}(t - \tau)$.

Para o nível $18s$ a onda gerada no processo de MQO só terá polarização paralela à do campo \vec{E}_3 , no nosso caso direção y . A intensidade do sinal de MQO será então dado pela equação (2.74) e um gráfico dessa equação, em função do atraso relativo entre os pulsos $\vec{E}(t)$ e $\vec{E}(t - \tau)$, é apresentado na figura 3.19.

O comportamento do sinal de MQO da figura 3.19 é análogo ao apresentado na figura 3.15. Isto se deve ao fato de que nas equações que geraram essas figuras temos apenas a presença das oscilações quânticas. A diferença entre essas duas frequências gera o batimento observado. Ao realizarmos a transformada de Fourier, apresentada na figura 3.20, encontramos estas duas frequências. Ao compararmos as figuras 3.16 e 3.20 podemos notar que o pico correspondendo à frequência $(\omega_{6P} + \omega_3)$ tem uma amplitude menor que os picos correspondentes às frequências ω_{16d} e ω_{18s} . Isto se deve ao fato de a taxa de relaxação da coerência do nível $6P_{3/2}$ ser maior que as taxas dos níveis $16d$ e $18s$, o que acarreta um decaimento mais rápido da dependência do sinal de MQO com essa frequência.

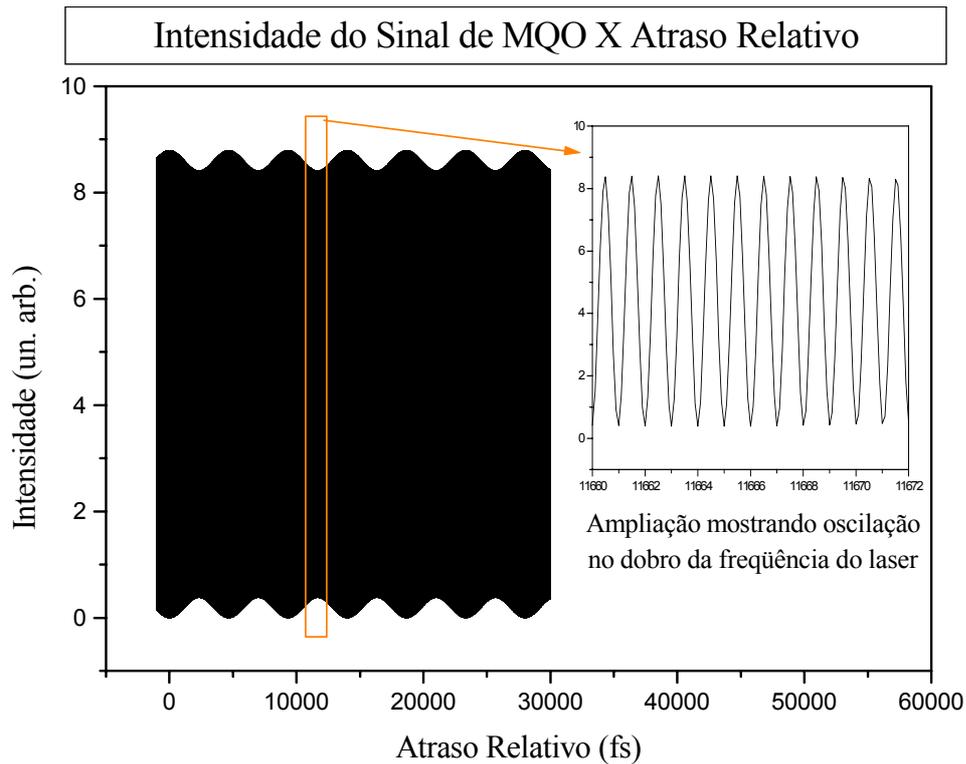


Figura 3.19: Intensidade do sinal de MQO em função do atraso relativo para a direção y e no caso em que apenas o nível $18s$ é excitado com polarizações perpendiculares entre os pulsos $\vec{E}(t)$ e $\vec{E}(t - \tau)$.

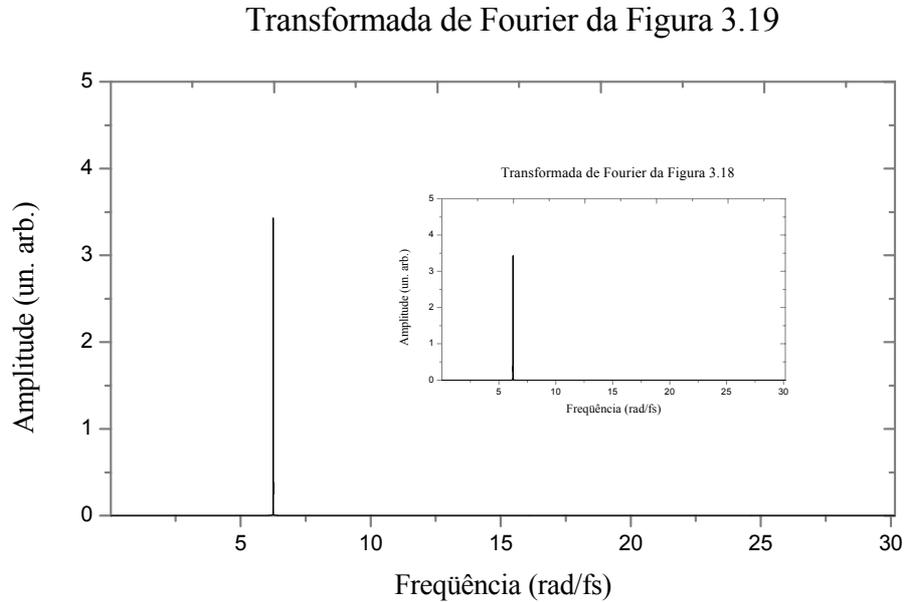


Figura 3.20: Transformada de Fourier da intensidade de MQO para a direção y quando apenas o nível $18s$ é excitado.

Com os resultados das simulações apresentados nesse capítulo somos capazes de prever o comportamento do sistema quando da realização de um experimento de MQO, resolvida no tempo, utilizando luz incoerente. Neste caso, a resposta do sistema reflete a dinâmica das transições envolvidas. Em particular poderemos observar a existência e a separação entre as oscilações “ópticas” e quânticas bem como os batimentos nas diferenças de energia dos níveis que constituem o sistema atômico.

Para o caso de um sistema físico real vimos que a inclusão da dependência das partes radial e angular das constantes de acoplamento efetivo leva a uma diminuição da visibilidade dos batimentos no sinal de MQO. Entretanto, as interferências “ópticas” e quânticas continuam visíveis e podem ser analisadas separadamente dependendo da polarização dos campos incidentes.

Podemos verificar as previsões teóricas apresentadas nos cálculos numéricos desenvolvidos nessa seção através da montagem de um sistema experimental como o apresentado na figura 3.21. O meio não linear a ser utilizado é o vapor de rubídio, contido numa célula selada, cuja temperatura pode ser controlada. Nesse sistema um laser de corante é excitado pelo segundo harmônico de um laser de Nd: YAG. O meio ativo do laser, i. e., o corante é escolhido de modo que podemos sintonizar a sua frequência de operação para que a transição entre os níveis $5s$ e $16d$ ou $18s$ do átomo de rubídio ocorra por absorção de dois fótons. A cavidade do laser de corante é feita de modo a termos um laser com uma largura de banda capaz de excitar simultaneamente os níveis $16d$ e $18s$ do rubídio. A separação entre esses níveis é de aproximadamente 14 cm^{-1} .

Posteriormente o feixe do laser de corante passa por um interferômetro de Michelson, onde se dá o atraso relativo entre os pares de pulsos. O braço móvel desse interferômetro é controlado por um motor de passo cuja resolução temporal é de $0,14 \text{ fs}$, de modo que podemos resolver todos os fenômenos descritos, as oscilações ópticas e as oscilações quânticas, cujos períodos são 2 fs e 1 fs , respectivamente.

Uma placa de meio comprimento de onda, placa $\lambda/2$, é colocada antes do interferômetro de Michelson a fim de controlarmos as intensidades relativas de cada um dos braços. O interferômetro é construído com polarizadores, divisores de feixe, de forma a termos polarizações cruzadas entre os pulsos que interagem com o sistema atômico nos instantes t e $t - \tau$. Para a análise quando os pulsos têm polarizações paralelas utilizamos outro polarizador posicionado na saída do interferômetro. Um terceiro polarizador permite definir a polarização do terceiro feixe de laser no processo de MQO. Este feixe corresponde ao modo fundamental de um laser de Nd: YAG e é quase ressonante com a transição entre os níveis $16d$ (ou $18s$) e $6P_{3/2}$.

Os três feixes co-propagantes são focalizados na célula e o sinal de MQO é gerado com comprimento de onda de aproximadamente 420 nm , correspondendo à transição entre os níveis $6P_{3/2}$ e $5s$. A intensidade do sinal gerado é estudada em função do atraso relativo entre os pulsos.

Capítulo 4

Conclusões e perspectivas

4.1 – Conclusões e perspectivas

Neste trabalho estudamos a resposta do processo não linear de MQO, resolvida no tempo, para um sistema atômico, devido à excitação por dois fótons, provenientes de pares de pulsos de um laser incoerente através de cálculos numéricos que visam simular o resultado experimental.

Para um sistema de quatro níveis, calculamos a polarização gerada na interação com os campos incidentes, utilizando o formalismo da matriz densidade, em ordem mais baixa de perturbação. Devido às flutuações na amplitude dos campos incoerentes foram realizadas médias estatísticas, considerando uma densidade espectral gaussiana para os campos. A resposta temporal do meio foi analisada introduzindo um atraso relativo entre pares de pulsos do laser incoerente e, a distribuição espectral do feixe gerado foi considerada através da integração em frequências, da intensidade do sinal de MQO.

Numa primeira etapa, os cálculos numéricos foram realizados utilizando parâmetros atômicos de um sistema hipotético, o que nos permitiu investigar as diferentes contribuições para a dinâmica das transições envolvidas no processo não linear, bem como, a dependência do sinal gerado com as taxas de relaxação do meio.

Diferentes oscilações estão presentes no sinal de MQO resolvida no tempo. Uma das oscilações é caracterizada por ter a mesma frequência do laser incoerente e ocorre para atrasos entre pares de pulsos menores que o tempo de coerência deste laser. Estas oscilações podem ser associadas a uma interferência entre dois caminhos da transição por dois fótons, a qual, por não envolver nenhum nível intermediário, fica limitada pelo tempo de coerência do laser. Uma interpretação mais simples é baseada numa analogia com a interferência observada num experimento com o interferômetro de Michelson. Uma outra oscilação é caracterizada por ter frequência igual ao dobro da frequência do laser incoerente e pode ocorrer para atrasos maiores que o seu tempo de coerência. Neste caso as

oscilações estão associadas à interferência entre dois caminhos quânticos: a absorção de dois fótons no instante t e a absorção de dois fótons no instante $t - \tau$. Por envolver transições ressonantes estas oscilações são limitadas pelos tempos de vida dos níveis do meio. Também verificamos um batimento que ocorre na envoltória do sinal de MQO. Este batimento surge devido às diferenças entre as diversas frequências de ressonância do meio atômico.

Com o interesse na realização de experimentos que apresentam os efeitos discutidos acima, desenvolvemos as simulações numéricas para um vapor de átomos de rubídio, envolvendo os estados $16d$, $18s$ e $6P_{3/2}$. Todos os batimentos estão presentes, embora o batimento na envoltória do sinal tenha uma visibilidade menor que no caso do sistema atômico hipotético. Analisamos o comportamento para o caso em que as polarizações dos pulsos que interagem com o sistema nos instantes t e $t - \tau$ são perpendiculares. Observamos que nesta situação a oscilação na frequência do laser incoerente é destruída.

Como continuidade deste trabalho a proposta é a realização do experimento para verificarmos se as análises teóricas e numéricas descrevem satisfatoriamente o comportamento de um sistema físico real. Para isso um sistema experimental está sendo preparado.

Apêndices

A.1 – Polarização como termo de fonte do campo eletromagnético

Neste apêndice iremos analisar como um material submetido a um campo eletromagnético responde a esse estímulo externo. Podemos modelar nosso material como um conjunto neutro de partículas carregadas, os elétrons e os íons. Quando o material é submetido a um campo eletromagnético, essas partículas se movem. Se o material considerado for um dielétrico, como são a maior parte dos materiais analisados no escopo da óptica não linear, então as nuvens eletrônicas possuem certa mobilidade. Desta maneira, durante a presença do campo há um deslocamento de cargas em relação às posições de equilíbrio, resultando na indução de dipolos microscópicos, os quais por sua vez originam uma polarização macroscópica no material. Devido à massa dos íons ser muito maior do que a da nuvem eletrônica, suas inércias não permitem acompanhar as oscilações do campo. Sendo assim, a contribuição relevante para a oscilação dos momentos de dipolo é dada pelas nuvens eletrônicas. Estes dipolos oscilantes então re-emitem radiação na frequência em que oscilam [51]. Isto pode ser facilmente visto se utilizarmos as equações de Maxwell para o campo eletromagnético:

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = \rho, \quad (\text{A1.1})$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0, \quad (\text{A1.2})$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}, \quad (\text{A1.3})$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \vec{J}. \quad (\text{A1.4})$$

As relações constitutivas são dadas por:

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P}, \quad (\text{A1.5})$$

$$\vec{B} = \mu_0 (\vec{H} + \vec{M}), \quad (\text{A1.6})$$

onde \vec{P} é a polarização elétrica do meio, ε_0 é a permissividade elétrica do vácuo e μ_0 é a permeabilidade magnética do vácuo. Se o material não for magnético ($\vec{M} = 0$), tomando o rotacional de (A1.3) e usando (A1.4), (A1.1) e (A1.2), obtemos (no S. I.):

$$\vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{E}) - \vec{\nabla}^2 \vec{E} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \vec{D}}{\partial t^2} - \mu_0 \frac{\partial \vec{J}}{\partial t}. \quad (\text{A1.7})$$

Se o material não possuir cargas livres, $\rho = 0$, $\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = 0$ e $\vec{J} = 0$. Então, de (A1.7) temos:

$$\vec{\nabla}^2 \vec{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2}. \quad (\text{A1.8})$$

Desta forma a polarização do meio serve como termo de fonte para o campo eletromagnético. O material respondendo ao estímulo do campo, altera o próprio campo.

A.2 – Dependência das constantes de acoplamento com a polarização dos campos incidentes

Como foi visto capítulo 2, a suscetibilidade $\chi^{(3)}$ depende em quarta ordem dos elementos de matriz do operador dipolo elétrico, $\mu_{ij}^{(l)} = \langle i | \vec{\mu} \cdot \vec{u}_l | j \rangle$, que carregam consigo a dependência com os vetores de polarização dos campos incidentes.

Na absorção de dois fótons, a constante de acoplamento efetivo k_{ai} definida em (2.13), terá a contribuição de vários estados intermediários entre os níveis a e i , sendo o conjunto de todas as possíveis transições representado pelo nível virtual n' .

Sem perda de generalidade, vamos assumir que o nosso modelo de quatro níveis é dado pelo sistema apresentado na figura A.1, onde o nível de mais baixa energia corresponde ao estado fundamental $|n_1s\rangle$. O nível virtual n' , da transição por dipolo elétrico, será necessariamente um estado do tipo $|n_2p\rangle$, devido à regra de seleção existente para esse tipo de transição. Iremos considerar que os níveis de Rydberg c e d , apresentados na figura 2.1 sejam dados pelos estados atômicos $|n_3d\rangle$ e $|n'_3s\rangle$, respectivamente, com $n_3' > n_3$. Finalmente, o nível intermediário b é assumido ser um estado $|n_4p\rangle$.

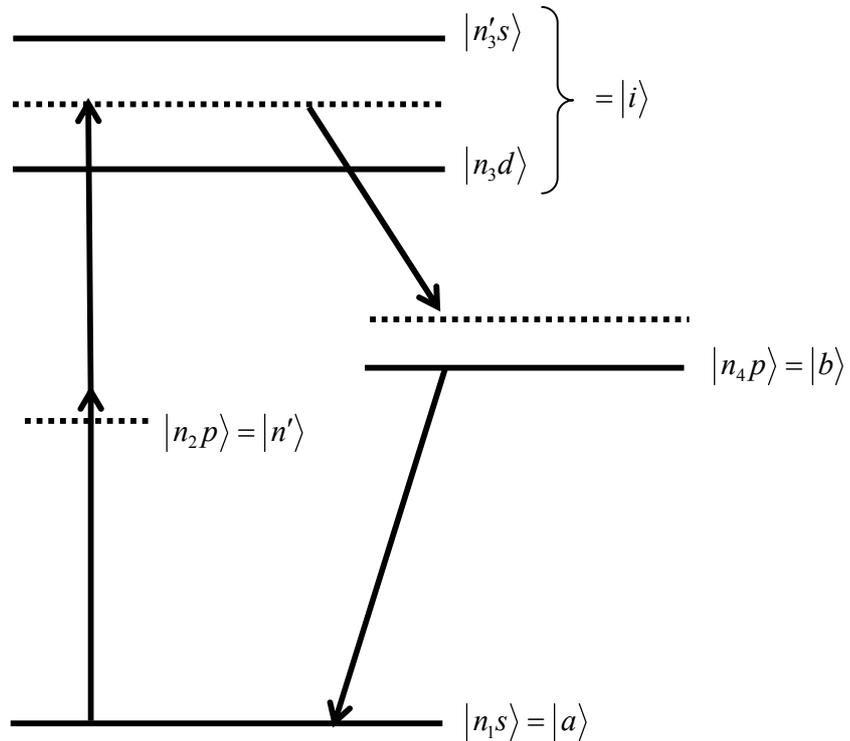


Figura A.1: Esquema mostrando os níveis atômicos e a nomenclatura que será utilizada neste apêndice.

Com a expressão da coerência (2.32) podemos obter a polarização macroscópica induzida no meio, na frequência de interesse:

$$P(\omega_1 + \omega_2 - \omega_3) = \frac{N\mu_{ab}}{[(\omega_4 - \omega_{ab}) - i\gamma_{ab}]} \left[\frac{\tilde{V}_{ac}\tilde{V}_{cb}}{[(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ac}) - i\gamma_{ac}]} + \frac{\tilde{V}_{ad}\tilde{V}_{db}}{[(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ad}) - i\gamma_{ad}]} \right]. \quad (\text{A2.1})$$

Os elementos da matriz de transição devem ser tratados como o produto de quatro elementos de matriz do operador dipolo elétrico \hat{Q}_1 , de forma que:

$$\tilde{V}_{ai}\tilde{V}_{ib}\mu_{ba} \propto \sum_{b,i,n'} \langle a|\hat{Q}_1|b\rangle \langle b|\hat{Q}_1|i\rangle \langle i|\hat{Q}_1|n'\rangle \langle n'|\hat{Q}_1|a\rangle = K_i^{jklm}, \quad (\text{A2.2})$$

onde os estados a, n', i, b correspondem aos estados da figura A.1 e o somatório indica que devemos somar sobre os diversos subníveis m_l possíveis..

Vamos desprezar a interação entre o momento angular total do átomo e o spin do elétron. Nessa aproximação podemos descrever o sistema atômico através dos números quânticos $\{n, l, m_l\}$ o que equivale a dizer que os operadores: Hamiltoniano (H), momento angular total do átomo (L^2) e o momento angular do átomo ao longo da direção z (L_z), comutam entre si, sendo seus autovalores um conjunto de números quânticos que fornecem toda a informação necessária sobre o sistema. Além disso podemos descrever um estado genérico do sistema, $|k\rangle$, a partir desses autovalores:

$$|k\rangle = |n, l, m_l\rangle. \quad (\text{A2.3})$$

Podemos então escrever os estados que participam do somatório apresentado na equação (A2.2) como:

$$\begin{aligned}
 |a\rangle &= |n_1 s\rangle \Rightarrow |n_1, l_1; m_1\rangle = |n_1, 0; 0\rangle, \\
 |n'\rangle &= |n_2 p\rangle \Rightarrow |n_2, l_2; m_2\rangle = |n_2, 1; \pm 1, 0\rangle, \\
 |i\rangle &= \begin{cases} |n_3 d\rangle \Rightarrow |n_3, l_3; m_3\rangle = |n_3, 2; \pm 2, \pm 1, 0\rangle \\ |n'_3 s\rangle \Rightarrow |n'_3, l'_3; m'_3\rangle = |n'_3, 0; 0\rangle \end{cases}, \\
 |b\rangle &= |n_4 p\rangle \Rightarrow |n_4, l_4; m_4\rangle = |n_4, 1; \pm 1, 0\rangle.
 \end{aligned} \tag{A2.4}$$

Podemos expandir o potencial elétrico em fatores, denominados multipólos elétricos [36]. Os operadores que representam esses fatores são dados por:

$$Q_p^q(\vec{r}) = e \sqrt{\frac{4\pi}{2p+1}} r^p Y_p^q(\theta, \phi), \tag{A2.5}$$

onde e representa a carga eletrônica, r a coordenada radial, θ o ângulo polar, ϕ o ângulo azimutal e Y_p^q são harmônicos esféricos.

Cada fóton absorvido pelo átomo possui um quantum de momento angular. Esse quantum de momento angular pode apresentar três estados diferentes de polarização: σ^+ ($q = +1$), σ^- ($q = -1$) e polarização π ($q = 0$). Portanto para descrevermos a interação entre um fóton e um sistema atômico, por dipolo elétrico, devemos ter $p = 1$ e $q = 0, \pm 1$.

As componentes cartesianas do operador dipolo elétrico são dadas por [36]:

$$\begin{aligned}
 Q_1^x &= \frac{1}{\sqrt{2}} [Q_1^{-1} - Q_1^1], \\
 Q_1^y &= \frac{i}{\sqrt{2}} [Q_1^{-1} + Q_1^1], \\
 Q_1^z &= Q_1^0.
 \end{aligned} \tag{A2.6}$$

No nosso sistema, cujo eixo de propagação é o eixo z sendo que este eixo também representa o eixo de quantização do momento angular, somente as polarizações σ^+ ou σ^- podem existir, sendo a polarização π proibida, pois a luz é um campo eletromagnético transversal.

O elemento de matriz do operador dipolo elétrico pode ser calculado utilizando-se o teorema de Wigner-Eckart [52]:

$$\langle k | Q_1^q | j \rangle = \langle nlm | Q_1^q | n'l'm' \rangle = \langle l', 1; m', q | l, m \rangle \cdot \frac{\langle nl || Q_1 || n'l' \rangle}{\sqrt{2l+1}}, \quad (\text{A2.7})$$

onde o primeiro termo do lado direito é o coeficiente de Clebsch-Gordan e depende apenas da geometria, ou de como o sistema está orientado em relação ao eixo de quantização z, o segundo fator representa o elemento de matriz reduzido, o qual não depende do índice q, i. e., é independente da polarização dos campos incidentes, estando atrelado à parte radial das funções de onda dos estados k e j .

O elemento de matriz reduzido pode ser escrito da seguinte forma:

$$\langle nl || Q_1 || n'l' \rangle = e\sqrt{2l+1} \langle l', 1; 0, 0 | l, 0 \rangle \cdot \langle nl | r | n'l' \rangle. \quad (\text{A2.8})$$

Na expressão (A2.8), o elemento radial de dipolo envolverá as funções de onda radiais dos estados acoplados pela interação de dipolo elétrico, sendo dado pela seguinte equação:

$$\langle nl | r | n'l' \rangle = \int_0^\infty R_{nl}^* r R_{n'l'} r^2 dr, \quad (\text{A2.9})$$

onde R_{nl} é a função de onda do estado atômico $|n, l, m_l\rangle$.

Os coeficientes de Clebsch-Gordan, $\langle l_1, l_2; m_1, m_2 | l, m \rangle$ obedecem a duas regras de seleção, as quais quando não são simultaneamente satisfeitas, implicam na nulidade desses coeficientes:

$$|l_1 - l_2| \leq l \leq l_1 + l_2, \quad m_1 + m_2 = m. \quad (\text{A2.10})$$

Portanto, nas expressões (A2.7) e (A2.8) temos as seguintes regras de seleção:

$$|l' - 1| \leq l \leq l' + 1 \text{ e } m = m' + q. \quad (\text{A2.11})$$

Temos, então, que os elementos da matriz de transição, que aparecem na equação (A2.2), podem ser escritos como produtos de coeficientes de Clebsch-Gordan e dos elementos de matriz radial, e, devem ser somados sobre todos os caminhos possíveis entre os estados iniciais e finais.

Para o átomo de rubídio, cujos resultados são apresentados no capítulo 3, todos os coeficientes necessários foram calculados e são relacionados abaixo:

i) Polarizações paralelas

$$K_{16d}^{yyyy} = \frac{2}{3} \cdot \frac{2}{15} \cdot \langle c \rangle \quad (\text{A2.12})$$

$$K_{18s}^{yyyy} = \frac{1}{9} \cdot \langle d \rangle \quad (\text{A2.13})$$

ii) Pulso $\vec{E}(t)$ perpendicular ao pulso $\vec{E}(t - \tau)$

$$K_{16d}^{yyxx} = -\frac{1}{3} \cdot \frac{2}{15} \cdot \langle c \rangle \quad (\text{A2.14})$$

$$K_{18s}^{yyxx} = \frac{1}{9} \cdot \langle d \rangle \quad (\text{A2.15})$$

Os símbolos $\langle c \rangle$ e $\langle d \rangle$ representam a parte radial dos elementos de matriz que conectam os diversos níveis do nosso sistema através da interação de dipolo elétrico, sendo dados por:

$$\langle c \rangle = \langle 5s | r | 6P_{3/2} \rangle \langle 6P_{3/2} | r | 16d \rangle \langle 16d | r | n_2p \rangle \langle n_2p | r | 5s \rangle, \quad (\text{A2.16})$$

$$\langle d \rangle = \langle 5s | r | 6P_{3/2} \rangle \langle 6P_{3/2} | r | 18s \rangle \langle 18s | r | n_2p \rangle \langle n_2p | r | 5s \rangle. \quad (\text{A2.17})$$

No caso específico do átomo de rubídio, descrito no capítulo 3, temos que:

$$\frac{\langle c \rangle}{\langle d \rangle} = 4,2. \quad (\text{A2.18})$$

A expressão para a intensidade do sinal de MQO utilizada nas simulações da seção 3.3 é:

$$I^{(l)} \propto \left| \frac{1}{9} \cdot \frac{\langle d \rangle}{D_d} + \frac{2}{3} \cdot \frac{2}{15} \cdot \frac{\langle c \rangle}{D_c} \right|^2, \quad (\text{A2.19})$$

onde o índice indicando paralelo na intensidade do sinal de MQO indica que todos os campos incidentes no sistema possuem polarização ao longo da mesma direção. Os símbolos nos denominadores são dados por:

$$D_c = [(\omega_4 - \omega_{ab}) - i\gamma_{ab}] \cdot [(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ac}) - i\gamma_{ac}], \quad (\text{A2.20})$$

$$D_d = [(\omega_4 - \omega_{ab}) - i\gamma_{ab}] \cdot [(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{ad}) - i\gamma_{ad}]. \quad (\text{A2.21})$$

A.3 – Detalhamento de alguns cálculos

a) Obtenção da equação (2.37).

Na seção 2.2 afirmamos, sem provar, que podemos escrever um campo eletromagnético formado por dois campos que possuem um defasamento temporal τ , como:

$$\vec{E}_T(\omega) = \vec{E}(\omega)[1 + e^{-i\omega\tau}]. \quad (\text{A3a.1})$$

O campo eletromagnético total no domínio temporal pode ser escrito como um pulso que interage com o sistema no instante $t - \tau$ e outro no instante t , i. e.:

$$\vec{E}_T(t) = \vec{E}(t) + \vec{E}(t - \tau). \quad (\text{A3a.2})$$

Para escrever o campo da equação (A3a.2) no domínio espectral vamos tomar sua transformada de Fourier:

$$\vec{E}_T(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \vec{E}_T(t) e^{-i\omega t} dt. \quad (\text{A3a.3})$$

Substituindo (A3a.2) em (A3a.3), temos:

$$\vec{E}_T(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} [\vec{E}(t) + \vec{E}(t - \tau)] e^{-i\omega t} dt. \quad (\text{A3a.4})$$

Tomando a transformada de Fourier mais uma vez, nesta oportunidade para escrevermos os campos que aparecem no domínio temporal em (A3a.4) no domínio espectral, vem:

$$\vec{E}_T(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \left[\int_{-\infty}^{\infty} \vec{E}(\omega') e^{i\omega' t} d\omega' + \int_{-\infty}^{\infty} \vec{E}(\omega'') e^{i\omega''(t-\tau)} d\omega'' \right] e^{-i\omega t} dt. \quad (\text{A3a.5})$$

Reagrupando os termos da equação (A3a.5) ficamos com:

$$\vec{E}_T(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \vec{E}(\omega') e^{i(\omega' - \omega)t} d\omega' dt + \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \vec{E}(\omega'') e^{i(\omega'' - \omega)t} e^{-i\omega''\tau} d\omega'' dt. \quad (\text{A3a.6})$$

A função delta de Dirac pode ser definida como:

$$\delta(x - x') = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{i(x-x')} dx. \quad (\text{A3a.7})$$

Substituindo (A3a.7) em (A3a.6), temos:

$$\vec{E}_T(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \vec{E}(\omega') \delta(\omega - \omega') dt + \int_{-\infty}^{\infty} \vec{E}(\omega'') e^{-i\omega''\tau} \delta(\omega - \omega'') dt. \quad (\text{A3a.8})$$

Fazendo as integrações no tempo, obtemos finalmente a equação (A3a.1):

$$\vec{E}_T(\omega) = \vec{E}(\omega) + \vec{E}(\omega) e^{-i\omega\tau} = \vec{E}(\omega) [1 + e^{-i\omega\tau}]. \quad (\text{A3a.9})$$

b) Cálculo das integrais da equação (2.50).

Na seção 2.4 encontramos a seguinte expressão para um dos termos que contribuem para a intensidade do sinal de MQO:

$$\begin{aligned}
 I_1 = & \int d\omega_4 \frac{2K_c^2 |E(\omega_3)|^2}{[(\omega_4 - \omega_{ab})^2 + \gamma_{ab}^2][(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac})^2 + \gamma_{ac}^2]} \\
 & \cdot \int d\omega_1 S(\omega_1) S(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1) \{4 + 4 \cos[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)\tau] + 4 \cos(\omega_1\tau) \\
 & + 2 \cos[(\omega_3 + \omega_4)\tau] + 2 \cos[(\omega_3 + \omega_4 - 2\omega_1)\tau]\}. \quad (\text{A3b.1})
 \end{aligned}$$

Note que todas as integrais da expressão (A3b.1) são similares de forma que ao calcularmos uma, podemos obter as demais por analogia. Vamos calcular então a segunda das integrais da equação (A3b.1):

$$\begin{aligned}
 I_{12} = & \int d\omega_4 \frac{2K_c^2 |E(\omega_3)|^2}{[(\omega_4 - \omega_{ab})^2 + \gamma_{ab}^2][(\omega_3 + \omega_4 - \omega_{ac})^2 + \gamma_{ac}^2]} \\
 & \cdot \int d\omega_1 S(\omega_1) S(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1) 4 \cos[(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)\tau]. \quad (\text{A3b.2})
 \end{aligned}$$

Vamos calcular apenas a integral em ω_1 na expressão (A3b.2). Substituindo a expressão para a densidade espectral dos campos incidentes, equação (2.55), na expressão (A3b.2), obtemos:

$$\begin{aligned}
 I_2 = & \int d\omega_1 \left\{ \exp\left[-\frac{(\omega_1 - \omega_{1c})^2}{2\alpha^2}\right] \exp\left[-\frac{(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1 - \omega_{1c})^2}{2\alpha^2}\right] \right. \\
 & \left. \cdot \left[\frac{\exp[i(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)\tau] + \exp[-i(\omega_3 + \omega_4 - \omega_1)\tau]}{2} \right] \right\}. \quad (\text{A3b.3})
 \end{aligned}$$

Definindo:

$$\omega_5 \equiv \omega_3 + \omega_4 - \omega_{1c}. \quad (\text{A3b.4})$$

Temos:

$$I_2 = \int d\omega_1 \left\{ \exp\left[-\frac{(\omega_1 - \omega_{1c})^2}{2\alpha^2}\right] \exp\left[-\frac{(\omega_5 - \omega_1)^2}{2\alpha^2}\right] \right. \\ \left. \cdot \left[\frac{\exp[i(\omega_5 + \omega_{1c} - \omega_1)\tau] + \exp[-i(\omega_5 + \omega_{1c} - \omega_1)\tau]}{2} \right] \right\}. \quad (\text{A3b.5})$$

Podemos rescrever o produto das duas primeiras exponenciais que aparecem em (A3b.5), como:

$$\exp\left[-\frac{(\omega_1 - \omega_{1c})^2}{2\alpha^2}\right] \exp\left[-\frac{(\omega_5 - \omega_1)^2}{2\alpha^2}\right] = \exp\left[-\frac{(\omega_{1c} - \omega_5)^2}{4\alpha^2}\right] \exp\left[-\frac{[\omega_1 - (\omega_{1c} + \omega_5)/2]^2}{\alpha^2}\right]. \quad (\text{A3b.6})$$

Temos então:

$$I_2 = \frac{1}{2} \exp\left[-\frac{(\omega_{1c} - \omega_5)^2}{4\alpha^2}\right] \int d\omega_1 \exp\left[-\frac{[\omega_1 - (\omega_{1c} + \omega_5)/2]^2}{\alpha^2}\right] \\ \cdot \left\{ \exp\left[-i\left(\omega_1 - \frac{(\omega_{1c} + \omega_5)}{2}\right)\tau\right] \exp[i(\omega_{1c} + \omega_5)\tau] + \exp\left[i\left(\omega_1 - \frac{(\omega_{1c} + \omega_5)}{2}\right)\tau\right] \exp[-i(\omega_{1c} + \omega_5)\tau] \right\} \quad (\text{A3b.7})$$

Definindo:

$$u \equiv \omega_1 - \left(\frac{\omega_{1c} + \omega_5}{2}\right). \quad (\text{A3b.8})$$

Substituindo (A3b.8) na equação (A3b.7) e completando os quadrados obtemos:

$$I_2 = \exp\left[-\frac{(\omega_{1c} - \omega_5)^2}{4\alpha^2}\right] \left\{ \exp\left[\frac{i(\omega_{1c} + \omega_5)\tau}{2}\right] \int du \exp\left[-\left(\frac{u}{\alpha} + \frac{i\alpha\tau}{2}\right)^2\right] \exp\left[-\frac{\alpha^2\tau^2}{4}\right] \right. \\ \left. + \exp\left[\frac{-i(\omega_{1c} + \omega_5)\tau}{2}\right] \int du \exp\left[-\left(\frac{u}{\alpha} - \frac{i\alpha\tau}{2}\right)^2\right] \exp\left[-\frac{\alpha^2\tau^2}{4}\right] \right\}. \quad (\text{A3b.9})$$

Fazendo a mudança de variável:

$$x \equiv \frac{u}{\alpha} \pm \frac{i\alpha\tau}{2}, \quad (\text{A3b.10})$$

onde o sinal positivo se aplica na primeira das integrais da equação (A3b.9) e o sinal negativo na segunda integral. Temos então:

$$I_2 = \exp\left[-\frac{(\omega_{1c} - \omega_5)^2}{4\alpha^2}\right] \exp\left[-\frac{\alpha^2\tau^2}{4}\right] \left\{ \exp\left[\frac{i(\omega_{1c} + \omega_5)\tau}{2}\right] \int dx e^{-x^2} \right. \\ \left. + \exp\left[\frac{-i(\omega_{1c} + \omega_5)\tau}{2}\right] \int dx e^{-x^2} \right\}. \quad (\text{A3b.11})$$

Recuperando as variáveis iniciais, obtemos o resultado final da integral:

$$I_2 = 2\alpha\sqrt{\pi} \exp\left[-\frac{(2\omega_{1c} - \omega_3 - \omega_4)^2}{4\alpha^2}\right] \exp\left[-\frac{\alpha^2\tau^2}{4}\right] \cos\left[\frac{(\omega_3 + \omega_4)\tau}{2}\right]. \quad (\text{A3b.12})$$

Referências

- [01] – “*The Universe: From Flat Earth to Quasar*”. I. Asimov. Walker and Company, New York (1966).
- [02] – “Generation of optical harmonics”, P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, G. Weinreich. *Phys. Rev. Lett.* **7** (4), 118 (1961).
- [03] – “Interactions between light waves in a nonlinear dielectrics”, J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, P. S. Pershan, *Phys. Rev.* Vol. **127**, 1918 (1962).
- [04] – “Quantum-theoretical comparison of nonlinear susceptibilities in parametric media, laser, and raman lasers”, N. Bloembergen, Y. R. Shen, *Phys. Rev.* Vol. **133**, No. 1A, A37 (1964)
- [05] – “Nonlinear Optics”, N. Bloembergen. *Frontiers in Physics Lecture Note Series* (Benjamin Cummings, Reading, MA), Secs. 2-5, 4-5 e 5-10 (1965).
- [06] – “Interference effects between different optical harmonics”, D. J. Jackson, J. J. Wynne, *Phys. Rev. Lett.* Vol. **49**, No. 8, 543 (1982).
- [07] – “Nonlinear optical process using eletromagnetically induced transparency”, S. E. Harris, J. E. Field, A. Imamoglu, *Phys. Rev. Lett.* Vol. **64**, No. 10, 1107 (1990).
- [08] – “Observation of electromagnetically induced transparency”, J. K. Boller, A. Imamoglu, S. E. Harris, *Phys. Rev. Lett.* Vol. **66**, No. 20, 2563 (1991).
- [09] – “Lasers without inversion: interference of lifetime-broadened resonances”, S. E. Harris, *Phys. Rev. Lett.* Vol. **62**, No. 9, 1033 (1989).

- [10] – “Enhancement of the index of refraction via quantum coherence”, M. O. Scully, Phys. Rev. Lett. Vol. **67**, No. 14, 1855 (1991).
- [11] – “Coherence chemistry: controlling chemical reactions with lasers”, P. Brumer, M. Shapiro, Acc. Chem. Res. Vol. **22**, 407 (1989)
- “Alternate schemes for the coherent laser control of chemical reactions”, D. J. Gauthier, J. Chem. Phys. Vol. **99**, No. 3, 1618 (1993)
- “Coherent control of multiphoton driven processes: a laser-induced catalyst”, W. R. Garret, Y. Zhu, J. Chem. Phys. Vol. **106**, 2045 (1997)
- [12] – “Optically injected spin currents in semiconductors”, R. D. R. Bhat, J. E. Sipe, Phys. Rev. Lett. Vol. **85**, No. 25, 5432 (2000)
- [13] – “Coherent control of an optically injected ballistic spin-polarized current in bulk GaAs”, J. Appl. Phys. Vol. **91**, No. 7, 4382 (2002).
- [14] – “Femtosecond real-time dynamics of photofragment-trapping resonances on dissociative potential energy surfaces”, M. J. Rosker, T. S. Rose, A. H. Zewail, Chem. Phys. Lett. Vol. 146, No. 3,4, 175 (1988).
- [15] – “Molecular state evolution after excitation with an ultra-short laser pulse: a quantum analysis of NaI and NaBr dissociation”, V. Engel, H. Metiu, R. Almeida, R. A. Marcus, A. H. Zewail. Chem. Phys. Lett. Vol. 152, No. 1, 1 (1988)
- [16] – “Femtosecond real-time probing of reactions IV. The reactions of alkali halides”, T. S. Rose, M. J. Rosker, A. H. Zewail, J. Chem. Phys. **91** (12), 7415 (1989).

- [17] – “Femtosecond reaction dynamics in macroclusters. Effect of solvation on wave-packet motion”, E. D. Potter, Q. Liu, A. H. Zewail, *Chem. Phys. Lett.* Vol. 200, No. 6, 605 (1992).
- [18] – “Examination of ultra rapid relaxation in a medium by space-time modulation of the perturbing light”, M. A. Vasil’eva, V. I. Malyshev, A. V. Masalov, P. S. Antsiferov, *Bull Nat. Acad. Sci. USSR, Phys. Series* **46** (6), 1203 (1982).
- [19] – “Accumulated photon echoes with incoherent light in Nd⁺³ doped silicate glass”, S. Asaka, H. Nakatsuka, M. Fujiwara, M. Matsuoka, *Phys. Rev. A* **29** (4), 2286 (1984).
- [20] – “Incoherent photon echoes”, R. Beach, S. R. Hartmann, *Phys. Rev. Lett.* **53** (7), 663 (1984).
- [21] – “Ultrahigh time resolution coherent transient spectroscopy with incoherent light”, N. Morita, T. Yajima, *Phys. Rev. A* **30** (5), 2525 (1984).
- [22] – “Coherent propagation effect of incoherent light”, N. Morita, K. Torizuka, T. Yajima, *J. Opt. Soc. Am. B.* Vol. **3**, No. 4, 548 (1986).
- [23] – “Studies of picosecond collisional dephasing in atomic sodium vapor using broadband with transient four-wave mixing”, J. E. Golub, T. W. Mossberg, *J. Opt. Soc. Am. B.* Vol. **3**, No. 4, 554 (1986).
- [24] – “Ultrahigh-frequency interference beats in transient, incoherent-light four-wave mixing”, J. E. Golub, T. W. Mossberg, *Opt. Lett.* Vol. **11**, No. 7, 431 (1986).

[25] – “Time-delayed four-wave mixing using intense incoherent light”, R. Beach, D. DeBeer, S. R. Hartmann, *Phys. Rev. A* **32** (6), 3467 (1985).

[26] – “Ultrafast pump-probe measurement using intensity correlation of incoherent light”, M. Tomita, M. Matsuoka, *J. Opt. Soc. Am. B*. Vol. **3**, No. 4, 560 (1986).

[27] – “Femtosecond dynamics of semiconductor-doped glasses using a new source of incoherent light”, L. H. Acioli, A. S. L. Gomes, J. M. Hickman, Cid B. de Araújo, *Appl. Phys. Lett.* **56** (23), 2279 (1990).

[28] – “Stimulated effects in population relaxation in interferometric four-wave mixing experiments”, V. Kozich, L de S. Menezes, Cid B. de Araújo, *Opt. Lett.* **26** (5), 262 (2001).

[29] – “Temporal coherent control in two-photon transitions: from optical interferences to quantum interferences”, V. Blanchet, C. Nicole, M. A. Bouchene, B. Girard, *Phys. Rev. Lett.* Vol. **78**, No. 14, 2716 (1997).

[30] – “Coherent quantum control of two-photon transitions by a femtosecond laser pulse”, D. Meshulach, Y. Silberberg, *Nature*. Vol. **396**, 239 (1998).

[31] – “Narrow-band coherent anti-Stokes Raman signals from broad-band pulses”, D. Oron, N. Dudovich, D. Yelin, Y. Silberberg, *Phys. Rev. Lett.* Vol. **88**, No. 6, 63004 (2002).

[32] – “*Introduction to Quantum Optics*”, H. M. Nussenzveig, Gordon and Breach Science Publishers, New York (1973).

[33] – “*A Modern Course in Statistical Physics*”, L. E. Reichl, John Wiley and Sons, New York (1998).

- [34] – “Não-Linearidades Ópticas em Vidros com Nanocristais de Cd(S.Se)”, L. H. Aciolli. Tese de Doutorado, Departamento de Física da Universidade Federal de Pernambuco, Recife (1989).
- [35] – “*The Principles of Nonlinear Optics*”, Y. Shen, John Wiley and Sons, New York (1984).
- [36] – “*Quantum Mechanics*”, C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, F. Laloë, John Wiley and Sons, New York, Vol. 1 (1977).
- [37] – “*The Principles of Statistical Mechanics*”, R. C. Tolman, Dover, New York (1979).
- [38] – “*Modern Quantum Mechanics*”, J. J. Sakurai, Addison-Wesley, New York (1994).
- [39] – “Report No. 91”, A. Gusmán, Max-Planck Institute for Quantum Optics, Garching, Germany (1984).
- [40] – “Interferência na Mistura de Quatro Ondas Envolvendo Estados de Rydberg”, W. C. Magno, Tese de Mestrado, Departamento de Física da Universidade Federal de Pernambuco, Recife (1998).
- [41] – “Polarization dependence and interference in four-wave mixing with rubidium Rydberg atoms”, S. S. Vianna, P. Nussenzeig, W. C. Magno, J. W. R. Tabosa, Phys. Rev. A, Vol. **58**, No. 4, 3000 (1998).
- [42] – “Temporal coherent control induced by wave packet interferences in one and two photon atomic transitions”, M. A. Bouchene, V. Blanchet, C. Nicole, N. Melikechi, B. Girard, H. Ruppe, S. Rutz, E. Schreiber, L. Wöste, J. Eur. Phys. D **2**, 131-141 (1998).

- [43] – “Ramsey fringes in atomic Rydberg wave packets”, L. D. Noordam, D. L. Duncam, T. F. Gallagher, *Phys. Rev. A*, Vol. **45**, No. 7, 4734 (1992).
- [44] – “Optical Ramsey fringes with traveling waves”, C. Bordé, C. Salomon, S. Avrillier, A. Van Lerberghe, C. Bréant, *Phys. Rev. A*, Vol. **30**, No. 4, 1836 (1984).
- [45] – “Fluorescence-detected wave packet interferometry: time resolved molecular spectroscopy with sequences of femtosecond phase-locked pulses”, N. F. Scherer, R. J. Carlson, A. Matro, M. Du, A. J. Ruggiero, V. R. Rochin, J. A. Cina, G. R. Fleming, S. A. Rice, *J. Chem. Phys.* **95** (3) 1487, (1991).
- [46] – “*Nonlinear Optical Phenomena*”, P. N. Butcher, Bulletin 200, Ohio State University (1965).
- [47] – “Collision-assisted second-harmonic generation from Rydberg atoms”, S. S. Vianna, C. B. de Araújo, *Phys. Rev. A*, Vol. **44**, No. 1, 733 (1991).
- [48] – “*Table of Integrals, Series, and Products*”, I. S. Gradshteyn, I. M. Ryzhik, Academic Press, New York (1980).
- [49] – “National Standard Reference Data System”, No. 35, Vol. **II** (1971).
- [50] – “Radiative process in Rydberg atoms”, W. P. Spencer, Ph.D. thesis, MIT (1976).
- [51] – “*Introduction to Eletrodynamics*”, D. J. Giffiths, Prentice Hall, New Jersey (1989).
- [52] – “*Modern Quantum Mechanics*”, J. J. Sakurai, Addison-Wesley, New York (1994).