



UNIVERSIDADE FEDERAL DA PARAÍBA
CENTRO DE CIÊNCIAS EXATAS E DA NATUREZA
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA

Michelle Oliveira de Araújo

INVESTIGAÇÃO EXPERIMENTAL E MODELO TEÓRICO
PARA O ÍNDICE DE REFRAÇÃO NÃO-LINEAR DA LINHA
 D_2 DO CÉSIO

João Pessoa
2013

Michelle Oliveira de Araújo

INVESTIGAÇÃO EXPERIMENTAL E MODELO TEÓRICO
PARA O ÍNDICE DE REFRAÇÃO NÃO-LINEAR DA LINHA
 D_2 DO CÉSIO

Dissertação apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Física da Universidade Federal da Paraíba, como requisito parcial para obtenção do título de Mestre em Física.

Universidade Federal da Paraíba

Área de concentração: Física Atômica e Molecular

Orientador: Marcos César Santos Oriá

Co-orientador: Thierry Marcelino Passerat de Silans

João Pessoa
2013

A663i Araújo, Michelle Oliveira de.
Investigação experimental e modelo teórico para o índice de refração não-linear da linha D_2 do césio / Michelle Oliveira de Araújo.- João Pessoa, 2013.
138f. : il.
Orientador: Marcos César Santos Oriá
Coorientador: Thierry Marcelino Passerat de Silans
Dissertação (Mestrado) – UFPB/CCEN
1. Física. 2. Z-scan. 3. Efeito Kerr. 4. Índice de refração não-linear. 5. Vapor atômico.

UFPB/BC

CDU: 53(043)



Universidade Federal da Paraíba
Centro de Ciências Exatas e da Natureza
Programa de Pós-Graduação *Stricto Sensu* em Física

DECLARAÇÃO DE TITULAÇÃO
Mestrado

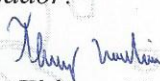
A Comissão Examinadora que abaixo assina este documento, reunida no dia 23 de julho de 2013, na Sala de Reuniões do Departamento de Física do Centro de Ciências Exatas e da Natureza da Universidade Federal da Paraíba, APROVA **Michelle Oliveira de Araújo** na defesa de sua dissertação intitulada "*Investigação experimental e modelo teórico para o índice de refração não-linear da linha D2 do césio*".

João Pessoa, 23 de julho de 2013

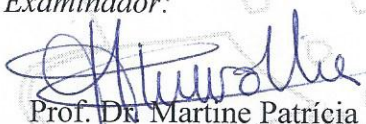
Orientador:


Prof. Dr. Marcos César Santos Oriá
(UFPB)

Co-orientador:


Prof. Dr. Thierry Marcelino Passerat de
Silans
(UFPB)

1º Examinador:


Prof. Dr. Martine Patricia Arlette
Chevrollier
(UFPB)

2º Examinador:


Prof. Dr. Marcelo Martinelli
(IFSC-USP)

Resumo

A resposta de um meio material à radiação incidente pode ser descrita em termos da susceptibilidade ótica desse meio. Em vapores atômicos, essa susceptibilidade depende fortemente da frequência da radiação e pode variar, em torno da ressonância, por várias ordens de grandeza. Quando um material é iluminado por um feixe de luz cujo campo elétrico é muito intenso, evidencia-se o efeito Kerr, ou seja, o próprio índice de refração do material varia linearmente com a intensidade do feixe laser. Para medir esse efeito não linear da polarização do material, existem varias técnicas na literatura. Uma das mais simples e precisa é a varredura z (z -scan). O z -scan consiste em deslocar o meio a ser estudado ao longo do eixo de um feixe laser focalizado. Mede-se então a transmitância através de uma abertura, em função da posição da célula. A partir dessa curva de transmitância, é possível determinar o índice de refração não linear do material.

Neste trabalho, investigamos a dependência espectral do índice de refração não linear do vapor atômico de césio. Realizamos experimentos com a técnica z -scan para várias dessintonizações na linha D_2 (comprimento de onda de 852 nm). O monitoramento da frequência do laser é feito através de uma montagem auxiliar de absorção saturada e de uma cavidade Fabry-Pérot. Utilizando relações simples entre n_2 e a transmitância na abertura, obtivemos um valor de n_2 para cada dessintonização.

Para interpretar os resultados experimentais, usamos o formalismo de matriz densidade para calcular teoricamente o n_2 . No cálculo dos elementos da matriz densidade, deve-se levar em consideração a distribuição de velocidades dos átomos. Iniciamos nosso modelo tratando os átomos como sistemas de dois níveis, com o objetivo de compreender os diferentes limites da integração em velocidade. Em seguida passamos para um modelo mais realista para a linha D_2 do Cs envolvendo um nível fundamental e três excitados. Mostramos que, para cada transição hiperfina, a coerência fundamental-excitada de terceira ordem depende de efeito de população dos estados excitados e da coerência criada entre eles.

Nossos resultados experimentais são, até onde sabemos, as primeiras medidas usando z -scan para a obtenção do índice de refração de vapor de césio. Os valores medidos de n_2 são condizentes com os nossos cálculos teóricos.

Palavras-chave: z -scan; efeito Kerr; índice de refração não-linear; vapor atômico; sistema de dois níveis; sistema de quatro níveis.

Abstract

The response of a material to an incident radiation can be described in terms of the susceptibility of the medium. In an atomic vapor, this susceptibility strongly depends on the frequency of the radiation and can vary over several orders of magnitude near the resonance. When a material is illuminated by light whose electric field is intense, the Kerr effect may become significant, showing a linear variation of the refractive index as a function of the intensity of the laser beam. Several techniques allow the measurement of this nonlinear effect. One of the simplest and most accurate is the z-scan technique. It consists in moving the medium to be probed along the axis of a focused laser beam. The transmittance through an aperture is measured as a function of the cell position and the obtained curve allows one to determine the nonlinear refractive index (n_2) of the material.

In this work, we investigate the nonlinear refractive index of a vapor of cesium atoms. We used the z-scan technique for various detunings around the Cs D_2 transition (wavelength at 852 nm). To monitor the frequency of the laser, we simultaneously used an auxiliary saturated absorption setup and a Fabry-Perot analyzer. Through simple relationships between n_2 and the aperture transmittance, we obtained a value for n_2 as a function of the laser detuning.

A theoretical model was developed to be compared to our experimental results. We used the density matrix formalism to calculate n_2 , taking into account the velocity distribution of the atoms in the calculation of the matrix elements. We started by treating the atoms as two-level systems, which allows us to test different limits of velocity integration. We then carried out a more realistic model for the D_2 line of Cs, considering one fundamental level and three excited levels. We showed that for each hyperfine transition, the third-order fundamental-excited coherence depends on the population of the excited states as well as on the coherence created between the excited levels.

To our knowledge, our experimental results are the first measurements of n_2 for a cesium vapor, using the z-scan technique. The measured values of n_2 are consistent with our theoretical calculations.

Key words: z-scan; Kerr effect; nonlinear refractive index; atomic vapor; two-level system; four-level system.

Conteúdo

1	Introdução geral	1
2	A técnica z-scan	4
2.1	Origem da não linearidade ótica	4
2.2	Expressão para n_2	6
2.3	Auto-focalização e auto-defocalização	7
2.4	Feixe gaussiano	8
2.4.1	Modo gaussiano fundamental	9
2.4.2	Intensidade e potência transmitida por uma abertura	11
2.5	Descrição experimental da técnica z-scan	12
2.6	Descrição teórica da técnica z-scan	13
3	Ótica não linear em um vapor atômico	18
3.1	Matriz densidade	19
3.1.1	Definição e propriedades do operador densidade	20
3.1.2	Expressão para a susceptibilidade em termos dos elementos da matriz densidade	21
3.2	Sistema de dois níveis: solução exata	21
3.2.1	Evolução temporal de $\hat{\rho}$ e termos de relaxação	24
3.2.2	Solução das equações diferenciais no estado estacionário e expressão para a susceptibilidade	25
3.2.3	Integração em velocidade e perfil Voigt	28
3.3	Sistema de dois níveis: solução com expansão em série da matriz densidade	30
3.3.1	Correções de ordem zero	33
3.3.2	Correções de 1ª ordem	33
3.3.3	Correções de 2ª ordem	34
3.3.4	Correções de 3ª ordem	35
3.4	Sistema de quatro níveis	35
3.4.1	Soluções de ordem zero	38
3.4.2	Soluções de 1ª ordem	39
3.4.3	Soluções de 2ª ordem	39
3.4.4	Soluções de 3ª ordem	39
4	Z-scan em vapor de césio: montagem experimental	42
4.1	O átomo de césio	43
4.2	Fonte laser	44
4.2.1	Laser semiconductor: estrutura física	47
4.3	Isolador ótico	48
4.4	Absorção saturada e cavidade Fabry-Pérot	49

4.4.1	Absorção saturada	49
4.4.2	Cavidade Fabry-Pérot	51
4.5	Lâmina de meia onda e polarizador	52
4.6	Fibra ótica e feixe gaussiano	54
4.6.1	Filtro espacial	56
4.7	Célula com vapor atômico	57
4.8	Transladador motorizado	58
4.9	Sistema com optoacoplador para a determinação da posição da célula . . .	60
5	Medidas z-scan em vapor atômico de césio	62
5.1	Caracterização do feixe laser utilizado	62
5.2	Medidas sistemáticas	64
5.3	Análise das medidas: normalização do sinal	66
5.3.1	Série de 87°C	67
5.3.2	Série de 60°C	77
5.4	Valores experimentais de n_2	84
5.4.1	Valores de n_2 não-saturados	93
5.5	Comparação com os modelos teóricos de dois e quatro níveis	95
6	Conclusão	102
	Apêndice	104
A	Equação de onda não-linear e redução à forma SVEA	104
B	A técnica da lâmina knife-edge	107
C	Expressão teórica para n_2 não-saturado	108
	Anexo	110
A	Programa para o cálculo de n_2	110
B	Artigo escrito para publicação	115
	Referências bibliográficas	129

Capítulo 1

Introdução geral

A formulação das principais teorias físicas é essencialmente linear, tais como as equações de Maxwell para descrever o Eletromagnetismo, a equação de Schrödinger para a Mecânica Quântica ou as leis de Newton para a Mecânica Clássica. Entretanto, vivemos em um mundo em que os efeitos não lineares são importantes, cujas manifestações não podem ser aproximadas por equações lineares [1]. O mesmo ocorre quando se deseja, de forma expressa, explorar respostas não lineares de sistemas físicos, químicos e até biológicos.

Há vários exemplos de efeitos não lineares em Física. Um exemplo bem simples é a lei de Hooke, que descreve a relação entre a força F exercida para “esticar” um material (como uma mola ou uma barra) em função da distância x que ele se desloca. Para pequenos deslocamentos, essa relação é linear, ou seja, $F = -kx$, onde k é uma constante que depende do material. Entretanto, à medida que a posição x aumenta consideravelmente, essa relação deixa de ser linear: entram em ação efeitos de deformação permanente do material e até mesmo uma possível ruptura do mesmo. Efeitos não lineares no eletromagnetismo, por exemplo, ocorrem quando um campo eletromagnético muito forte interage com um material. Um exemplo bem conhecido disso é a saturação da magnetização em um ferromagneto, que é alcançada quando a magnetização praticamente não varia mais em função do campo magnético, e a resposta do meio depende não apenas dos valores instantâneos das variáveis, mas da sua história (curva de histerese).

Uma maneira simples de descrever efeitos não lineares em um sistema físico é fazer uma expansão em série de potências nas grandezas para valores em geral maiores que os considerados no regime linear. Na termodinâmica temos um exemplo: a equação do gás ideal, que vale para baixas pressões, é expandida em série de potências da pressão para descrever um gás a pressões não tão baixas [2]. Na aerodinâmica, a força de atrito viscoso sobre um sistema mecânico, que é proporcional à velocidade no regime de baixas velocidades, é suposta proporcional à uma enésima potência da velocidade à medida que esta aumenta [3]. Ao supor uma expansão em série de potências, os coeficientes da expansão em geral são obtidos experimentalmente.

Ao interagir com a luz, um meio material responde ao campo elétrico da radiação através da polarização elétrica dos seus átomos. Para campos fracos, a relação entre a polarização atômica e o campo elétrico é linear, isto é, o deslocamento do centro de cargas negativas da nuvem eletrônica em relação ao núcleo positivo se dá de forma proporcional à amplitude do campo. Entretanto, para campos intensos, essa relação deixa de ser linear e então o meio passa a exibir fenômenos ditos não-lineares: tanto as propriedades da luz como as do meio modificam-se de modo que as equações de Maxwell na forma que as

conhecemos não são mais válidas. É este o objeto de estudo da Ótica Não Linear, ramo da Ótica Física que trata dos efeitos não lineares que surgem na matéria quando esta interage com a radiação [4].

O ponto de partida da Ótica Não Linear ocorreu em 1961 com a descoberta de um fenômeno chamado geração de 2º harmônico, por Franken *et al* [5]. Nele, uma luz monocromática incide em um material ótico e emerge com frequência duas vezes maior que a do campo incidente. Além deste fenômeno, muitos outros foram descobertos ao longo da segunda metade do século XX, tais como:

- *Geração de 3º harmônico*: uma luz monocromática incide em um material ótico e emerge com frequência três vezes maior que a do campo incidente;
- *Geração de soma de frequências*: dois feixes monocromáticos incidem em um material ótico e um único feixe emerge com frequência igual à soma das frequências dos feixes incidentes;
- *Geração de diferença de frequências, amplificação paramétrica ótica, oscilação paramétrica ótica* e muitos outros.

Foi observado que esses efeitos ocorrem em diversos tipos de materiais, desde sólidos, plasmas, cristais e líquidos. Note-se que essa fenomenologia coincide com o período de desenvolvimento de fontes lasers, posto que uma luz laser é suficientemente intensa para produzir efeitos não-lineares em materiais. É possível gerar intensidades relativamente altas devido às propriedades de coerência dessa radiação.

É interessante investigar efeitos não lineares em vapores atômicos. Além de ser o objeto de estudo da Física Atômica, os vapores atômicos são sistemas facilmente saturáveis e seus espectros de energia são fortemente ressonantes. Os fótons da luz laser podem possuir energia que coincida com a diferença de energia entre os níveis de energia do átomo, e a frequência em que isso ocorre é a frequência de ressonância do átomo¹. O interessante nos átomos são os efeitos não lineares na ressonância. Espectros atômicos de átomos possuem diversos níveis de energia e a luz laser redistribui as populações nesses níveis, modificando assim as propriedades do material em questão.

Devido às propriedades da isotropia e centro-simetria, um efeito não linear notável em um vapor atômico é o efeito Kerr, que ocorre quando o índice de refração n do meio passa a ser proporcional à intensidade da luz que nele se propaga. Ou seja, $n = n_0 + n_2 I$, onde n_0 é o índice de refração ordinário (linear). A consequência disso é um fenômeno chamado de auto-focalização: dependendo do sinal de n_2 , o meio se comporta como uma lente convergente ou divergente, e a luz que emerge dele apresentará focalização.

Para medir-se n_2 , muitas técnicas foram desenvolvidas na literatura, tais como a interferometria não linear [6] [7] e a mistura degenerada de quatro ondas [8]. Em 1990, Sheik-Bahae *et al.* [9] apresentaram a técnica de varredura z (z-scan), cuja aplicação demanda uma montagem experimental relativamente simples e cujos resultados em geral possuem alta precisão. Aplicando a técnica z-scan para sólidos, como por exemplo o BaF_2 e o $ZnSe$, foram encontrados valores para n_2 com precisão de até 1/300 da distorção da frente de onda.

Para vapores atômicos, o valor de n_2 foi medido para a linha D_2 do sódio [10] e rubídio [11] nas extremidades da ressonância. Ambos os vapores são constituídos por metais alcalinos, cuja estrutura atômica de átomo monoelétrônico é a mais simples dentre os átomos.

¹O análogo clássico para a frequência de ressonância atômica é a frequência de ressonância em um oscilador harmônico forçado.

Para interpretar os resultados experimentais, foram utilizados modelos teóricos que se baseiam em sistemas simples de dois níveis com alargamento Doppler não-homogêneo e integração de velocidades.

Nesta dissertação, utilizamos a técnica z-scan para medirmos o valor de n_2 para um vapor atômico térmico de césio, tanto próximo da ressonância na linha D_2 quanto para grandes dessintonizações. Analisamos nossos resultados utilizando um modelo de sistema de quatro níveis e mostramos que efeitos de população cruzada e coerência entre estados excitados melhoram o ajuste das medidas experimentais com os valores teóricos de n_2 .

Este trabalho está organizado da seguinte forma: no Capítulo 2, introduzimos idéias-chave da ótica não linear, bem como uma discussão sobre feixe lasers no modo gaussiano. Em seguida, apresentamos quantitativamente e qualitativamente a técnica z-scan. No Capítulo 3 apresentamos o modelo teórico para um sistema de quatro níveis, começando pela discussão de um modelo de sistema de dois níveis. No Capítulo 4 descrevemos a montagem experimental utilizada e no Capítulo 5 apresentamos todos os resultados obtidos e interpretações. Por fim, no Capítulo 6, fazemos conclusões e traçamos perspectivas acerca deste trabalho.

Capítulo 2

A técnica z-scan

O objetivo desta dissertação é apresentar medidas do índice de refração não linear para um vapor atômico de césio. Para essa medição, utilizamos uma técnica chamada varredura z (z-scan), que consiste na análise da transmitância de um material ao longo de um feixe de luz focalizado e espacialmente filtrado por uma abertura. Utilizamos um feixe laser gaussiano no modo fundamental, proveniente de uma fibra ótica monomodo.

Neste capítulo, começamos apresentando fundamentos gerais de ótica não linear, apresentamos em seguida a descrição de feixes lasers gaussianos e, por fim, descrevemos detalhadamente a técnica z-scan.

2.1 Origem da não linearidade ótica

A ótica não linear “estuda os fenômenos que ocorrem como consequência das modificações das propriedades do meio na presença de luz” [4]. De acordo com o eletromagnetismo clássico [12], quando um meio dielétrico é colocado na presença de um campo elétrico externo, seus átomos se polarizam, isto é, o átomo interage com o campo de modo que a força elétrica sobre a nuvem eletrônica devido ao campo (dada por $F = qE$) equilibra a força interna entre a nuvem e o núcleo do átomo (atração coulombiana) (Figura 2.1). Então, em primeira aproximação, essa interação dinâmica com a luz é instantânea e pode ser descrita em termos de um dipolo elétrico atômico. O momento de dipolo adquirido pelo átomo, quando sujeito a um campo elétrico externo, pode ser escrito como

$$\vec{p} = \alpha \vec{E} \quad (2.1)$$

onde α é uma constante chamada de polarizabilidade atômica.

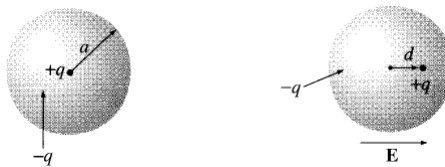


Figura 2.1: Átomo neutro (esquerda) e polarizado (direita), devido à ação do campo elétrico $\vec{E}$. A polarizabilidade atômica é da ordem de $10^{-30}m^3$ [12], portanto o deslocamento do centro de cargas negativo em relação ao núcleo positivo é da ordem de $10^{-10}m$.

O átomo torna-se assim um dipolo elétrico induzido. Como um meio dielétrico possui um número muito grande de átomos, convém caracterizá-lo por uma grandeza macroscópica chamada polarização, a qual é definida como o número de dipolos elétricos por unidade de volume. *Grosso modo*, um dielétrico é um dipolo macroscópico com “momento de dipolo” chamado de polarização.

Para meios lineares, homogêneos e isotrópicos (LHI), a relação entre a polarização e o campo elétrico externo é linear e definida através de

$$\vec{P} = \epsilon_0 \chi \vec{E} \quad (2.2)$$

onde χ é a susceptibilidade elétrica do meio.

Entretanto, para um campo elétrico muito forte, a relação entre $\vec{P}$ e $\vec{E}$ deixa de ser linear. Neste caso, uma maneira de estudar o comportamento não-linear do meio é supor que a polarização pode ser escrita como uma série de potências do campo elétrico,

$$P = \epsilon_0 \chi^{(1)} E + \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2 + \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3 + \dots \quad (2.3)$$

onde $\chi^{(1)}$ é o termo linear e os $\chi^{(i)}$, $i \geq 2$, são as correções não-lineares de ordem i^1 . Isto equivale a expandir a susceptibilidade χ da Eq. (2.2) como

$$\chi = \chi^{(1)} + \chi^{(2)} E + \chi^{(3)} E^2 + \dots \quad (2.4)$$

Quando o meio é um vapor atômico ou qualquer outro meio com simetria de inversão (dito centro-simétrico²), os termos pares da série são nulos. Ou seja, em primeira aproximação temos:

$$\chi = \chi^{(1)} + \chi^{(3)} E^2 \quad (2.5)$$

A primeira correção não linear é então de terceira ordem, $\chi^{(3)} E^2$. Este termo é proporcional à intensidade do campo elétrico. Ou seja, ele é proporcional à intensidade da luz laser.

O índice de refração n do material é definido por

$$n = \sqrt{1 + Re\chi} \quad (2.6)$$

Supondo $\chi \ll 1$, aproximamos $n = 1 + \chi/2$ e, substituindo (2.5), obtemos então

$$n = 1 + \frac{\chi}{2} = 1 + \frac{\chi^{(1)}}{2} + \frac{\chi^{(3)} E^2}{2} = n_0 + \bar{n}_2 E^2 \quad (2.7)$$

onde $n_0 = 1 + \frac{\chi^{(1)}}{2}$ e $\bar{n}_2 = \frac{\chi^{(3)}}{2}$.

É mais conveniente escrever n em função da intensidade da luz, uma vez que esta é proporcional ao quadrado do campo elétrico. Assim, sem perda de generalidade, podemos escrever

¹Retiramos os vetores porque o meio é homogêneo e isotrópico. Além disso, estamos assumindo que a polarização responde instantaneamente [4].

²Um meio centro-simétrico é um meio tal que, para cada ponto (x, y, z) , existe um ponto indistinguível $(-x, -y, -z)$. Em outras palavras, quando a direção do campo elétrico é invertida (ou seja, quando muda de sinal), a polarização também deve inverter. E isto acontece somente se $\chi^{(2i)} = 0$.

$$n(I) = n_0 + n_2 I \quad (2.8)$$

onde I é a intensidade da luz.

2.2 Expressão para n_2

Seja um vapor atômico interagindo com um campo eletromagnético monocromático. O vetor campo elétrico pode ser escrito como³

$$\vec{E}(t) = \frac{1}{2} \left(\vec{E}_0 e^{-i\omega t} + c.c. \right) \quad (2.9)$$

A polarização não linear de terceira ordem é, em módulo, igual ao terceiro termo da soma (2.3), ou seja,

$$P^{(3)} = \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3 \quad (2.10)$$

Substituindo (2.9) em (2.10), reescrevemos $P^{(3)}$ como

$$P^{(3)} = \frac{1}{2} \left[P^{(3)}(\omega) + P^{(3)}(3\omega) \right] \quad (2.11)$$

onde

$$P^{(3)}(\omega) = \frac{3\epsilon_0 \chi^{(3)}}{4} |E_0|^2 E_0 e^{-i\omega t} + c.c. \quad (2.12)$$

$$P^{(3)}(3\omega) = \frac{\epsilon_0 \chi^{(3)}}{4} |E_0|^3 e^{-3i\omega t} + c.c. \quad (2.13)$$

O termo $P^{(3)}(3\omega)$ é responsável por um fenômeno chamado geração de 3º harmônico, onde os átomos do vapor oscilam com frequência 3ω . Entretanto, a frequência gerada por ele (ultra-violeta) está fora da faixa de detecção, de modo que podemos desprezá-lo.

Logo, $P^{(3)} = \frac{1}{2} P^{(3)}(\omega)$, e a polarização total é então

$$P = P^{(1)} + P^{(3)} = \epsilon_0 \chi^{(1)} E + \frac{3\epsilon_0 \chi^{(3)}}{4} |E_0|^2 E \quad (2.14)$$

Comparando com a Eq. (2.2), obtemos a susceptibilidade total χ como

$$\chi = \chi^{(1)} + \frac{3}{4} \chi^{(3)} |E_0|^2 \quad (2.15)$$

Como $n = \sqrt{1 + \chi}$, temos que $n^2 = 1 + \chi$. Substituindo (2.15), obtemos

$$n^2 = 1 + \chi^{(1)} + \frac{3}{4} \chi^{(3)} |E_0|^2 = n_0^2 + \frac{3}{4} \chi^{(3)} |E_0|^2 \quad (2.16)$$

onde por definição $n_0 = \sqrt{1 + \chi^{(1)}}$ (cf. Eq. (2.6)).

³Na verdade, $\vec{E}(\vec{r}, t) = [\vec{E}_0 e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)} + c.c.]/2$. Conforme veremos no Capítulo 3, podemos fazer a aproximação de dipolo, a qual consiste em desprezar o termo $\vec{k} \cdot \vec{r}$.

Extraindo a raiz em ambos os lados da Eq. (2.16) e usando a aproximação $(1+x)^{1/2} = 1 + x/2$, obtemos

$$n = n_0 \left(1 + \frac{3\chi^{(3)}}{8n_0^2} |E_0|^2 \right) \quad (2.17)$$

A intensidade da luz para um campo monocromático é dada por⁴

$$I = \frac{n_0 c \epsilon_0}{2} |E_0|^2 \quad (2.18)$$

Substituindo (2.18) em (2.17), obtemos finalmente

$$n = n_0 + \frac{3\chi^{(3)}}{4n_0^2 c \epsilon_0} I \quad (2.19)$$

Comparando (2.19) com (2.8), vemos que a expressão de n_2 é dada por

$$n_2 = \frac{3\chi^{(3)}}{4n_0^2 c \epsilon_0} \quad (2.20)$$

onde n_0 é o índice de refração linear do vapor.

2.3 Auto-focalização e auto-defocalização

O índice de refração dado pela Eq. (2.8) depende da intensidade da radiação. E quando o perfil transversal da intensidade do feixe que ilumina o material não é uniforme, essa relação resulta em uma variação transversal do índice ao longo da propagação do feixe. Esse efeito é chamado auto-focalização (para $n_2 > 0$) ou auto-defocalização (para $n_2 < 0$) [4].

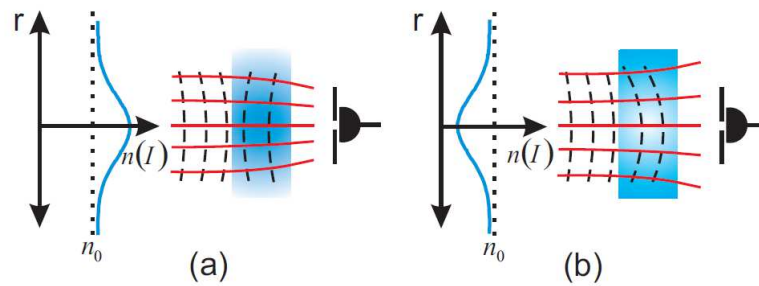


Figura 2.2: (a) Auto-focalização para $n_2 > 0$ e (b) auto-defocalização para $n_2 < 0$ produzida por um meio sobre um feixe de luz com intensidade $I(r) \propto e^{-\alpha r^2}$.

Para fixar as idéias, consideremos um material com $n_2 > 0$ e um feixe incidente de intensidade $I(r) \propto e^{-\alpha r^2}$ (perfil transversal gaussiano), onde r é a coordenada radial, medida a partir do eixo de propagação. A intensidade é máxima sobre o eixo central e diminui transversalmente. Como o índice de refração é inversamente proporcional à velocidade da radiação dentro do material, nas regiões de intensidade alta, onde o índice

⁴Como o campo está entrando na amostra, os efeitos não lineares ainda são insignificantes. Então $n = n_0$.

de refração total n é maior que nas regiões mais distantes do eixo de propagação, isso provoca uma dependência radial na velocidade da luz. O efeito de propagação que o material produz na luz é uma *distorção na frente de fase*: a fase do campo elétrico é distorcida e a luz emerge do material com um perfil convergente. Em outras palavras, o meio atua como uma lente convergente. Esse fenômeno é a auto-focalização e está esquematizado na Figura 2.2 (a).

Analogamente, se o material possui $n_2 < 0$, ocorrerá o efeito inverso. O material atuará como uma lente divergente e induzirá uma distorção de fase que fará o feixe emergir de forma divergente. Este efeito é chamado de auto-defocalização e está representado na Figura 2.2 (b).

2.4 Feixe gaussiano

As equações de Maxwell no espaço livre (isto é, na ausência de distribuições de cargas e correntes) dão origem a soluções ondulatórias para as componentes do campo eletromagnético $\vec{E}$ e $\vec{B}$. De fato, pode-se demonstrar que a equação de onda para o campo elétrico no espaço livre

$$\nabla^2 \vec{E}(\vec{r}, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E}(\vec{r}, t) = 0 \quad (2.21)$$

admite solução em forma de onda harmônica plana. Em particular, para a propagação na direção do eixo z , essa solução pode ser escrita como

$$\vec{E}(z, t) = \vec{E}_0 e^{i(kz - \omega t)} \quad (2.22)$$

onde $k = \omega/c$ e $\vec{E}_0$ é constante.

As ondas planas propagam-se por todo o espaço, isto é, em regiões não limitadas. Entretanto, ondas eletromagnéticas reais se propagam em regiões finitas do espaço. Em outras palavras, elas estão sujeitas a condições de contorno, ou a limitações impostas pela fonte da radiação. Um exemplo disso é um feixe laser colimado, que se propaga próximo ao eixo z e possui simetria cilíndrica⁵. Outro exemplo é o caso de fontes puntiformes que emitem ondas esféricas dentro de um dado ângulo sólido.

Seja então um feixe de luz propagando-se em uma região finita e na direção do eixo z . Para resolver a equação de onda nesta situação, podemos supor que a solução é uma onda *quase plana*, isto é

$$\vec{E}(x, y, z, t) = \vec{E}(x, y, z) e^{i(kz - \omega t)} \quad (2.23)$$

onde a amplitude $\vec{E}(x, y, z)$ da onda deve ser determinada.

O laplaciano em coordenadas cartesianas pode ser escrito como

$$\nabla^2 = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \quad (2.24)$$

⁵Fontes lasers geralmente possuem diâmetro da ordem de alguns milímetros e suas cavidades possuem simetria cilíndrica, ou seja, a luz laser produzida não é plana: seu campo elétrico se propaga no espaço governado pelo princípio de difração de Huygens-Fresnel.

Considerando apenas uma componente vetorial de $\vec{E}(x, y, z)$ [13], substituímos (2.23) e (2.24) em (2.21) para obter

$$\frac{\partial^2 E}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 E}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 E}{\partial z^2} + 2ik \frac{\partial E}{\partial z} = 0 \quad (2.25)$$

onde $E = E(x, y, z)$.

Agora fazemos a Aproximação de Envelope Lentamente Variável (*Slowly Varying Envelope Approximation* ou SVEA). Supondo que $E(x, y, z)$ varie lentamente na direção de propagação z , assumimos

$$\left| \frac{\partial^2 E}{\partial z^2} \right| \ll \left| 2k \frac{\partial E}{\partial z} \right| \quad (2.26)$$

Assim, obtemos

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) E + 2ik \frac{\partial E}{\partial z} = 0 \quad (2.27)$$

Se o feixe de luz propaga-se em sistemas com espelhos e lentes, que possuem simetria cilíndrica azimutal, reescrevemos o laplaciano em x e y da Eq. (2.27) em coordenadas cilíndricas r e z (desprezamos a coordenada ϕ devido à simetria azimutal). Obtemos então a equação para a amplitude de onda $E = E(r, z)$ em coordenadas cilíndricas no regime SVEA:

$$\frac{\partial^2 E}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial E}{\partial r} + 2ik \frac{\partial E}{\partial z} = 0 \quad (2.28)$$

2.4.1 Modo gaussiano fundamental

Para resolvermos a equação (2.28), propomos a solução *ad hoc* [13] para o campo elétrico

$$E(r, z) = E_0 \exp \left\{ -i \left[P(z) + Q(z) \frac{r^2}{2} \right] \right\} \quad (2.29)$$

onde E_0 é constante e as funções $P(z)$ e $Q(z)$ devem ser encontradas. Substituindo (2.29) em (2.28), obtemos

$$Q^2 r^2 + kr^2 \frac{dQ}{dz} + 2iQ + 2k \frac{dP}{dz} = 0 \quad (2.30)$$

Como a equação acima vale para todo $r \geq 0$, igualando-se os coeficientes independentes e dependentes de r^2 , obtemos duas equações diferenciais para $P(z)$ e $Q(z)$, a saber,

$$\frac{dQ}{dz} + \frac{Q^2}{k} = 0 \quad (2.31)$$

$$\frac{dP}{dz} + \frac{iQ}{k} = 0 \quad (2.32)$$

que são equações diferenciais de 1ª ordem não lineares. Resolvendo-as, obtemos

$$Q(z) = \frac{k}{z + Q_0} \quad (2.33)$$

$$P(z) = -i \ln \left(1 + \frac{z}{Q_0} \right) \quad (2.34)$$

onde Q_0 é uma constante de integração.

Escrevendo $Q_0 = iz_0$ com z_0 real [13] e substituindo $P(z)$ e $Q(z)$ em (2.29), obtemos

$$\exp[-iP(z)] = \frac{1}{1 + z/Q_0} = \frac{1}{1 - i(z/z_0)} = \frac{\exp[i \arctan(z/z_0)]}{\sqrt{1 + (z/z_0)^2}} \quad (2.35)$$

$$\exp\left[\frac{-iQ(z)r^2}{2}\right] = \exp\left[\frac{-ikr^2}{2(z + Q_0)}\right] = \exp\left[-\frac{r^2}{w^2(z)} - \frac{ikr^2}{2R(z)}\right] \quad (2.36)$$

onde $w(z)$, $R(z)$ e w_0 foram introduzidos como

$$w^2(z) = w_0^2 \left[1 + \left(\frac{z}{z_0} \right)^2 \right] \quad (2.37)$$

$$R(z) = z \left[1 + \left(\frac{z_0}{z} \right)^2 \right] \quad (2.38)$$

$$z_0 = \frac{kw_0}{2} = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \quad (2.39)$$

Substituindo (2.35) e (2.36) em (2.29), obtemos finalmente a amplitude do campo elétrico como

$$E(r, z) = E_0 \frac{w_0}{w(z)} \exp\left[-\frac{r^2}{w^2(z)}\right] \exp\left\{i \left[-\frac{kr^2}{2R(z)} + \arctan\left(\frac{z}{z_0}\right) \right]\right\} \quad (2.40)$$

que, combinada com a Eq. (2.23), fornece o campo elétrico total

$$E(r, z, t) = E_0 \frac{w_0}{w(z)} e^{-r^2/w^2(z)} \exp\left\{i \left[kz - \frac{kr^2}{2R(z)} + \arctan\left(\frac{z}{z_0}\right) \right]\right\} e^{-i\omega t} \quad (2.41)$$

com $w(z)$ e $R(z)$ dados pelas equações (2.37) e (2.38).

A equação anterior é chamada de campo elétrico gaussiano no modo fundamental. Isto porque a exponencial $e^{-r^2/w^2(z)}$ é uma exponencial gaussiana. Um feixe de luz com este campo elétrico é chamado de feixe gaussiano no modo fundamental⁶ e está representado na Figura 2.3.

O campo elétrico do feixe gaussiano é dividido em três partes: amplitude (termo $E_0(w_0/w)e^{-r^2/w^2}$), fase longitudinal (termo $\exp[i kz + i \arctan(z/z_0)]$) e fase radial (termo $\exp(-ikr^2/2R)$). A amplitude determina como a intensidade se distribui transversalmente. A fase longitudinal mostra que o feixe tem uma frente de onda plana (termo $\exp[i kz]$) com uma pequena correção (termo $\exp[i \arctan(z/z_0)]$). Já a fase radial mostra

⁶Pode-se demonstrar que existem outras soluções para a equação (2.28). Cada uma delas define um modo de propagação transversal para o campo eletromagnético no interior de uma cavidade.

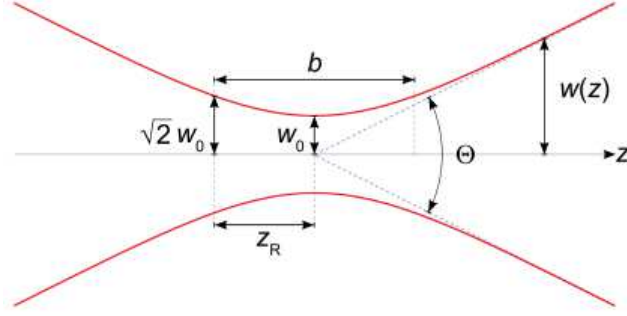


Figura 2.3: Esquema de um feixe gaussiano no modo fundamental, onde estão representados a cintura do feixe w_0 , o raio do feixe $w(z)$, o comprimento de Rayleigh z_R , o parâmetro confocal b e o ângulo de espalhamento total Θ .

como evoluem as frentes de onda (por exemplo, elas são planas para $z \approx 0$ e esféricas para $z \rightarrow \pm\infty$).

A Figura 2.3 representa o perfil de um feixe gaussiano no modo fundamental. Temos os seguintes parâmetros:

- $w(z)$ é o raio do feixe na posição z . Vemos que $w(z)$ é mínimo em $z = 0$ e aumenta à medida que $|z|$ aumenta.
- $R(z)$ é o raio de curvatura do feixe. Mede como a forma das frentes de onda variam em função de z . Próxima à $z = 0$, $R(z) = \infty$, ou seja, as frentes de onda são planas e, à medida que $|z| \rightarrow \pm\infty$, $R(z) \rightarrow z$, ou seja, as frentes de onda tornam-se esféricas.
- w_0 é chamado de cintura do feixe. É o valor mínimo de $w(z)$, obtido em $z = 0$.
- $z_R = z_0$ é chamado de comprimento de Rayleigh. Está relacionado com w_0 através da equação (2.39). Como veremos na próxima subseção, o comprimento de Rayleigh é o valor de z tal que a intensidade sobre o eixo z é a metade do valor em $z = 0$. A distância b é chamada parâmetro confocal, e vale $b = 2z_R$.
- Θ é o ângulo de espalhamento total do feixe. Definindo $\Theta = 2\theta$, onde θ é chamado de divergência do feixe, pode-se demonstrar [14] que $\theta = \frac{\lambda}{\pi w_0}$.

2.4.2 Intensidade e potência transmitida por uma abertura

A intensidade do feixe gaussiano no seu plano transversal (ou seja, em função de r para uma posição z) é dada por

$$I(r, z) = \frac{nc\epsilon_0 |E(r, z)|^2}{2} = I_0 \frac{w_0^2}{w^2} e^{-2r^2/w^2} \quad (2.42)$$

onde $I_0 = nc\epsilon_0 E_0^2/2 = I(0, 0)$ é a intensidade sobre o eixo de propagação na posição $z = 0$. Vemos que $I(r, z)$ tem um perfil gaussiano e depende do raio do feixe na posição z .

Calculando a intensidade no eixo z para $z = \pm z_0$, temos que

$$I(r = 0, z = \pm z_0) = I_0 \frac{w_0^2}{w^2(\pm z_0)} = \frac{I_0}{2} \quad (2.43)$$

ou seja, nas posições $z = \pm z_0$ a intensidade é a metade do seu valor máximo, que ocorre em $z = 0$. Em outras palavras, a intensidade do feixe diminui à medida em que nos afastamos da origem, de modo que em $z = \pm z_0$ ela se torna a metade do seu valor original.

Quando um feixe gaussiano atravessa uma abertura circular de raio r situada na posição z , a potência transmitida através da abertura é dada por

$$P(r, z) = \int_0^r I(r, z) 2\pi r dr = P_0(1 - e^{-2r^2/w^2}) = P_0 S \quad (2.44)$$

onde $S = 1 - e^{-2r^2/w^2}$ e $P_0 = \frac{\pi}{2} I_0 w_0^2$. Na verdade,

$$P_0 = \int_0^\infty I(r, z) 2\pi r dr \quad (2.45)$$

ou seja, P_0 é a potência total do feixe. Assim, o parâmetro S é a transmitância do feixe na abertura, pois pela Eq. (2.44) é a razão entre a potência transmitida e a potência total.

A intensidade sobre o eixo ($r = 0$) em função de z é

$$I(0, z) = \frac{I_0 w_0^2}{w^2} = \frac{2P_0}{\pi w^2(z)} \quad (2.46)$$

enquanto que a intensidade média do feixe na posição z (potência total do feixe sobre a sua área total) é

$$\langle I(z) \rangle = \frac{P_0}{\pi w^2(z)} \quad (2.47)$$

2.5 Descrição experimental da técnica z-scan

Para a medição do índice de refração não linear n_2 de um material sujeito a não-linearidades cúbicas, várias técnicas têm sido apresentadas na literatura [9]. Entretanto, todas elas alternam entre simples (sofisticada) montagem experimental e baixa (alta) precisão.

Em 1990, Sheik-Bahae *et al.* [9] desenvolveram uma técnica chamada de varredura z (z-scan). Tal método consiste em colocar-se uma amostra iluminada por um feixe gaussiano e medir-se a transmitância do feixe através de uma abertura em função da posição z da amostra (Figura 2.4).

Quando a amostra está longe do foco do feixe laser, a intensidade do feixe é fraca o suficiente para que efeitos não lineares sejam desprezíveis, mesmo sobre o eixo de propagação do laser. A transmitância do feixe pelo meio (razão entre a potência transmitida pelo meio quando este interage com a luz e a potência transmitida pelo meio quando este não interage com a luz) é praticamente constante. À medida que o meio se aproxima do foco do feixe, efeitos não-lineares tornam-se importantes, principalmente na região $-z_0 < z < z_0$, onde a intensidade do feixe aumenta consideravelmente.

Na realidade, o sinal de n_2 induzirá no material o efeito de auto-focalização ou auto-defocalização. E, à medida que a intensidade do feixe varia sobre o meio, a distorção de fase varia de modo que a transmitância em função da posição z é única, pois depende de n_2 e da espessura do material.

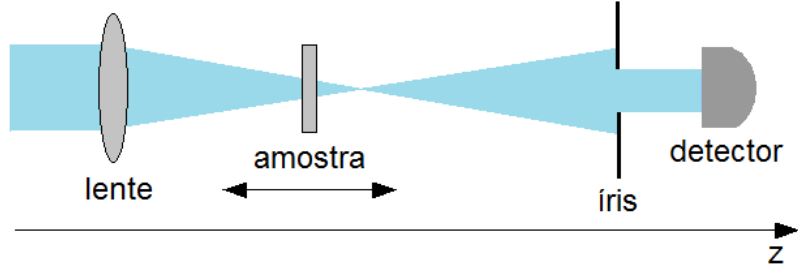


Figura 2.4: Esquema da montagem da técnica de varredura z (z-scan). A amostra a ser analisada move-se ao longo de um feixe laser gaussiano focalizado. A luz na saída da amostra passa por uma abertura antes de ser detectada.

2.6 Descrição teórica da técnica z-scan

Apresentamos agora uma descrição teórica da técnica z-scan baseada no artigo de Sheik-Bahae *et al.* [9]. Para isso, consideramos o esquema do z-scan representado na Figura 2.4.

Para um meio com não-linearidade cúbica, o índice de refração é dado por (cf. Eq. 2.8)

$$n(I) = n_0 + \Delta n \quad (2.48)$$

onde $\Delta n = n_2 I$. Supondo que o feixe incidente na amostra a ser analisada é um feixe gaussiano, seu campo elétrico pode ser escrito como (cf. Eq. 2.41)

$$E(z, r, t) = E_0 \frac{w_0}{w(z)} \exp \left[-\frac{r^2}{w(z)^2} - \frac{ikr^2}{2R(z)} - i\phi(z, t) \right] \quad (2.49)$$

onde o termo $\phi(z, t)$ contém todas as variações de fase. A Eq. (2.49) pode ser reescrita como

$$E(z, r, t) = E(z, r) \exp \left[-\frac{ikr^2}{2R(z)} - i\phi(z, t) \right] \quad (2.50)$$

onde

$$E(z, r) = E_0 \frac{w_0}{w(z)} e^{-r^2/w^2} \quad (2.51)$$

é a amplitude do campo elétrico. A intensidade é dada por (cf. Eq. 2.52)

$$I(z, r) = \frac{n_0 c \epsilon_0}{2} |E(z, r)|^2 = \frac{I_0 w_0^2}{w^2} e^{-2r^2/w^2} \quad (2.52)$$

com $I_0 = \frac{n_0 c \epsilon_0}{2} E_0^2$.

Supondo que a amplitude do feixe gaussiano não varie consideravelmente dentro da amostra, o campo que sai da mesma também terá um perfil gaussiano, semelhante à Eq. (2.50):

$$E_s(z, r, t) = E_s(z, r) \exp \left[-\frac{ikr^2}{2R(z)} \right] e^{i\Delta\phi} \quad (2.53)$$

onde $E_s(z, r)$ é a amplitude do campo na saída da amostra e $\Delta\phi$ é a distorção de fase sofrida pelo feixe dentro da amostra. Ambos devem ser determinados.

Se o comprimento L da amostra é muito menor que o comprimento de Rayleigh z_0 (amostra fina), a amplitude $E(z, r)$ do campo elétrico na Eq. (2.50) não variará muito à medida que o feixe atravessa a amostra. Podemos então usar o regime SVEA para determinar como $E(r, z)$ e a distorção de fase $\Delta\phi$ evoluem. Pode-se demonstrar (ver Apêndice A) que a Eq. (2.26), juntamente com uma equação análoga para a derivada temporal, é equivalente ao seguinte par de equações diferenciais:

$$\frac{d}{dz'} |E(r, z')| = -\frac{\alpha}{2} |E(r, z')| \quad (2.54)$$

$$\frac{d}{dz'} \Delta\phi = k\Delta n \quad (2.55)$$

onde α é a absorção linear e z' é a posição dentro da amostra, que vai de 0 a L . Resolvendo (2.54) e (2.55), obtemos as soluções

$$|E(r, z = L)| = |E(r, z = 0)| e^{-\alpha L/2} \quad (2.56)$$

$$\Delta\phi = \Delta\phi_0(z, t) e^{-2r^2/w^2} \quad (2.57)$$

com $\Delta\phi_0(z, t)$ definido por

$$\Delta\phi_0(z, t) = \frac{\Delta\Phi_0}{1 + z^2/z_0^2} \quad (2.58)$$

$$\Delta\Phi_0 = kn_2 I_0 L_{eff} \quad (2.59)$$

$$L_{eff} = \frac{1 - e^{-\alpha L}}{\alpha} \quad (2.60)$$

(na equação para $\Delta\phi$ foram desprezadas as variações gaussianas). Assim, a amplitude do campo elétrico $E_s(r, z)$ na saída da amostra ($z = L$) é dada pela Eq. (2.56), ou seja,

$$E_s(r, z) = E(r, z) e^{-\alpha L/2} \quad (2.61)$$

e, substituindo (2.61) em (2.53), obtemos o campo total na saída da amostra:

$$E_s(z, r, t) = E(r, z) \exp \left[-\frac{ikr^2}{2R(z)} \right] e^{-\alpha L/2} e^{i\Delta\phi} \quad (2.62)$$

com $\Delta\phi$ dado pela Eq. (2.57).

O termo $e^{i\Delta\phi}$ da Eq. (2.62) contém uma exponencial de uma exponencial. Para evitar complicações, expandimos esse termo em uma série de Taylor [15]:

$$e^{i\Delta\phi} = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{(i\Delta\phi)^m}{m!} = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{(i\Delta\phi_0)^m}{m!} e^{-2mr^2/w^2} \quad (2.63)$$

Portanto, o campo que emerge da amostra é dado por

$$E_s(r, z, t) = E_0 \frac{w_0}{w(z)} \exp \left[-\frac{r^2}{w(z)^2} - \frac{ikr^2}{2R(z)} \right] e^{-\alpha L/2} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{(i\Delta\phi_0)^m}{m!} e^{-2mr^2/w^2} \quad (2.64)$$

que, rearranjado, torna-se finalmente

$$E_s(r, z, t) = E(r=0, z) e^{-\alpha L/2} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{(i\Delta\phi_0)^m}{m!} \exp \left[-\frac{r^2}{w_m^2} - \frac{ikr^2}{2R_m} \right] \quad (2.65)$$

onde $E(r=0, z) = E_0 \frac{w_0}{w}$ e $w_m^2 = \frac{w^2}{2m+1}$.

O termo dentro do somatório pode ser interpretado como uma soma de feixes gaussianos, cada um com raio w_m , que decresce à medida que m aumenta.

Todos os modos gaussianos se propagam até a abertura. Supondo que a mesma está a uma distância d da saída da amostra e definindo $g = 1 + d/R$, o campo elétrico $E_a(r, z, t)$ na abertura é dado por [16]

$$E_a(r, z, t) = E(r=0, z) e^{-\alpha L/2} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{(i\Delta\phi_0)^m}{m!} \frac{w_{0m}}{w_m} \exp \left[-\frac{r^2}{w_m^2} - \frac{ikr^2}{2R_m} + i\theta_m \right] \quad (2.66)$$

onde

$$w_m^2 = w_{0m}^2 \left(g^2 + \frac{d^2}{d_m^2} \right) \quad (2.67)$$

$$R_m = d \left(1 - \frac{g}{g^2 + d^2/d_m^2} \right) \quad (2.68)$$

$$\theta_m = \arctan \left(\frac{d/d_m}{g} \right) \quad (2.69)$$

$$d_m = \frac{kw_{0m}^2}{2} \quad (2.70)$$

Se a abertura é circular de raio r_a , a potência transmitida por ela é (cf. Eq. 2.44)

$$P_a = \int_0^{r_a} I_a(r) 2\pi r dr \quad (2.71)$$

onde $I_a(r)$ é a intensidade do feixe na abertura, que é dada por

$$I_a = \frac{nc\epsilon_0}{2} |E_a(r)|^2 \quad (2.72)$$

Para normalizar a Eq. (2.71), dividimo-la pela potência transmitida pela abertura se não houvesse amostra⁷. Essa potência é igual a SP_0 (cf. Eq. 2.44).

⁷Experimentalmente, podemos normalizar (2.71) pela potência transmitida pela amostra desde que a mesma não interaja com o campo.

Assim, a transmitância z-scan normalizada através da abertura é então

$$T(z) = \frac{P_a}{SP_0} \quad (2.73)$$

Pode-se demonstrar [9] que, para $d \gg z_0$ (propagação a campo distante), $|\Delta\Phi_0| \ll 1$ (pequenas distorções de fase) e $S = 0$ (abertura pequena), a Eq. (2.73) pode ser reescrita como finalmente 8

$$T(x) = 1 - \frac{4\Delta\Phi_0 x}{(x^2 + 1)(x^2 + 9)} \quad (2.74)$$

onde $x = z/z_0$.

Podemos obter uma relação entre a distância vertical pico-vale ΔT_{p-v} e o comprimento de Rayleigh z_0 . Calculando os pontos críticos da Eq. (2.74), isto é, fazendo $\frac{dT}{dx} = 0$, obtemos $x_{1,2} = \pm \sqrt{\frac{\sqrt{52} - 5}{3}} \approx \pm 0,858$, o que dá uma diferença $\Delta z = z_2 - z_1$ em torno de

$$\Delta z \simeq 1,7z_0 \quad (2.75)$$

Substituindo os valores $x_{1,2}$ em (2.74) e tomando a diferença entre eles, obtemos a distância vertical pico-vale, da ordem de

$$\Delta T_{p-v} = 0,406|\Delta\Phi_0| \quad (2.76)$$

que vale para $S = 0$. Cálculos numéricos mostram que essa relação é precisa para $|\Delta\Phi_0| \leq \pi$.

Foi verificado experimentalmente que, quando S aumenta, o coeficiente 0,406 diminui. Através de cálculos numéricos foi obtida a relação

$$\Delta T_{p-v} = 0,406(1 - S)^{0,25}|\Delta\Phi_0| \quad (2.77)$$

ainda para $|\Delta\Phi_0| \leq \pi$.

Uma vez que ΔT_{p-v} é mensurável, podemos obter $\Delta\Phi_0$ através da Eq. (2.77). Podemos também determinar $\Delta\Phi_0$ fazendo um ajuste teórico do sinal z-scan normalizado com a expressão (2.74). Uma vez determinado $\Delta\Phi_0$, determinamos experimentalmente n_2 através da Eq. (2.59), ou seja,

$$n_2 = \frac{\Delta\Phi_0}{kI_0L_{eff}} \quad (2.78)$$

onde I_0 é a intensidade do feixe antes de entrar na amostra. Da Eq. (2.46), obtemos

$$I_0 = \frac{2P_0}{\pi w_0^2} \quad (2.79)$$

e, usando $k = \frac{2\pi}{\lambda}$, obtemos n_2 em função da potência total do feixe medida antes da amostra:

$$n_2 = \frac{\lambda \Delta \Phi_0 w_0^2}{4P_0 L_{eff}} \quad (2.80)$$

A Eq. (2.80) permite determinar n_2 a partir de medidas experimentais usando a técnica z-scan. No próximo capítulo vamos obter expressões teóricas baseadas no modelo de átomo de dois e quatro níveis.

Capítulo 3

Ótica não linear em um vapor atômico

Neste capítulo apresentamos o modelo teórico utilizado para interpretarmos nossos resultados experimentais. Podemos verificar que o modelo adequado para interpretar nossas medidas é um sistema atômico de quatro níveis, com um fundamental e três excitados. Porém, por questões didáticas, começaremos discutindo um modelo usando um sistema de 2 níveis.

Nosso objetivo é encontrar uma expressão teórica para o índice de refração não linear n_2 . Para isso consideramos a interação entre um conjunto de átomos neutros de um vapor atômico e uma radiação constituída por um campo elétrico monocromático. Adotamos uma visão semi-clássica para o problema, ou seja, o átomo é tratado quanticamente e a luz é tratada classicamente¹.

De acordo com o Capítulo 2, a expressão para a polarização não linear para um vapor atômico é dada por (Eq. 2.2)

$$P = \epsilon_0 \chi E \quad (3.1)$$

cuja susceptibilidade efetiva, expandida até a terceira ordem, pode ser expressa como (Eq. 2.15)

$$\chi = \chi^{(1)} + \frac{3}{4} \chi^{(3)} |E_0|^2 \quad (3.2)$$

O índice de refração do vapor, incluindo o primeiro termo não-linear, pode ser escrito como (Eq. 2.8)

$$n(I) = n_0 + n_2 I \quad (3.3)$$

onde I é a intensidade da luz e n_2 é dado pela Eq. 2.20). Conforme veremos neste capítulo, a susceptibilidade de 3ª ordem é um número complexo, e é a parte real que está relacionada aos efeitos dispersivos do campo no material. Portanto, n_2 é dado por

$$n_2 = \frac{3}{4n_0^2 c \epsilon_0} \text{Re} \chi^{(3)} \quad (3.4)$$

¹A luz é tratada classicamente pois o feixe laser é muito intenso, isto é, contém uma grande quantidade de fótons.

3.1 Matriz densidade

Quando descrevemos um sistema quântico, costumamos escrever o seu hamiltoniano utilizando a equação de Schrödinger, para a qual determinamos as autoenergias e as autofunções. A função de onda $|\psi\rangle$ permite obter o conjunto de grandezas físicas desse sistema. Quando o sistema físico é composto por um conjunto de N componentes idênticos, a equação de Schrödinger só descreverá o sistema completamente se cada componente tiver a mesma função $|\psi\rangle$ [17]. O que ocorre, porém, se cada componente do sistema puder assumir funções de ondas diferentes?

Para entendermos a necessidade do formalismo de matriz densidade, exemplificamos sua aplicação com o bem conhecido experimento de Stern-Gerlach (Figura 3.1). Nele, um feixe colimado de átomos neutros proveniente de um forno passa por um orifício e é defletido por um campo magnético estático e não-uniforme em uma direção, de modo que o feixe é separado em dois, devido à interação magnética $\vec{\mu} \cdot \vec{B}$. Um dos feixes emergentes possui seus átomos com spin na mesma direção do campo magnético (spin “up”) e o outro feixe possui átomos com spin na direção contrária (spin “down”).

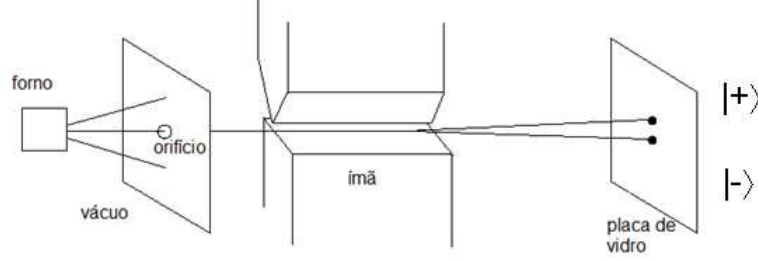


Figura 3.1: Esquema do experimento de Stern-Gerlach. Um feixe atômico é defletido por um campo magnético não-uniforme, produzindo dois estados de spin que são separados no anteparo de detecção.

Antes de passar pelo ímã, cada átomo do feixe possui spin numa direção aleatória. Tal spin, $|\chi\rangle$, pode ser escrito como [17]

$$|\chi\rangle = \cos\left(\frac{\theta}{2}\right) |+\rangle + e^{i\phi} \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) |-\rangle \quad (3.5)$$

onde os valores de θ e ϕ variam para cada átomo e são tais que $0 \leq \theta \leq \pi$ e $0 \leq \phi \leq 2\pi$. Após o ímã, todos os átomos de um dos feixes possui spin $|+\rangle$, enquanto que todos os átomos do outro feixe possui spin $|-\rangle$.

Cada um dos dois feixes que sai da região do campo $\vec{B}$ constitui então um ensemble puro, pois todos os seus átomos são caracterizados pelo mesmo vetor de estado ($|+\rangle$ ou $|-\rangle$). Para este tipo de sistema, apenas o formalismo da Mecânica Quântica tal como conhecemos dos cursos introdutórios é suficiente para uma descrição completa. Entretanto, o feixe que entra no ímã constitui um ensemble misto: cada átomo está em um estado diferente definido pela Eq. (3.5), de modo que todo o conjunto de átomos forma um ensemble estatístico. Devido a colisões térmicas entre os átomos do forno, não há superposição de estados (coerência) no sistema. Para tratar sistemas deste tipo, as leis da Mecânica Quântica tal como conhecemos seriam trabalhosas, pois precisaríamos determinar a função de onda para cada átomo do sistema, o que é impraticável.

Da mesma forma que os átomos do forno no experimento de Stern-Gerlach, um conjunto de átomos em um vapor atômico é um sistema estatístico, pois nele há também colisões entre eles e não há coerência no sistema. Para tratar sistemas desse tipo, usamos o formalismo de matriz densidade. Tal formalismo é adequado porque, apesar de ser um formalismo quântico, sua idéia é baseada em conceitos da Mecânica Estatística. A matriz densidade é o análogo clássico da função densidade de probabilidades: ela contém todas as informações possíveis para os estados quânticos do sistema em questão [18].

3.1.1 Definição e propriedades do operador densidade

Seja um sistema quântico formado por N componentes onde uma fração N_i de componentes pode assumir uma função de onda $|\psi_i\rangle$, $i = 1, 2, \dots, n$. O operador densidade é definido por

$$\hat{\rho} = \sum_{i=1}^n P_i |\psi_i\rangle \langle \psi_i| \quad (3.6)$$

onde P_i é a probabilidade de encontrarmos uma componente no estado $|\psi_i\rangle$.

O valor esperado de um observável físico A é, por definição,

$$\langle A \rangle = \sum_n P_n \lambda_n \quad (3.7)$$

onde os λ_n são os autovalores do operador $\hat{A}$ correspondente na base $|\psi_n\rangle$. Ou seja,

$$\lambda_n = \langle \psi_n | \hat{A} | \psi_n \rangle \quad (3.8)$$

Utilizando a relação de completeza

$$\hat{1} = \sum_n |\psi_n\rangle \langle \psi_n| \quad (3.9)$$

(onde $\hat{1}$ é o operador identidade) e as expressões (3.6) e (3.8), podemos reescrever a Eq. (3.7) como

$$\langle A \rangle = \text{tr}(\hat{A}\hat{\rho}) \quad (3.10)$$

ou seja, o valor esperado de um observável em um ensemble misto é o traço do produto entre o operador densidade e o operador correspondente ao observável.

Conforme já apresentamos anteriormente, neste trabalho resolveremos o problema que envolve um vapor atômico (ensemble misto) interagindo com um campo eletromagnético monocromático. É suficiente resolver apenas o problema de um único átomo (ensemble puro) com o formalismo da matriz densidade e afirmar que o resultado final vale para todo o sistema em questão. Uma vez que todos os átomos (componentes) do vapor atômico (sistema estatístico em questão) são equivalentes entre si, a solução em matriz densidade para este único átomo descreverá estatisticamente o sistema como um todo².

Para um ensemble puro, o único vetor de estado possível para o sistema é $|\psi\rangle$. Então a definição (3.6) reduz-se a

²Estamos considerando que o vapor de átomos interagindo com a radiação eletromagnética forma um sistema fechado.

$$\hat{\rho} = |\psi\rangle \langle\psi| \quad (3.11)$$

É fácil ver que para esse ensemble puro, tem-se as propriedades $\hat{\rho} = \hat{\rho}^\dagger$ (o operador densidade é hermitiano) e $tr(\hat{\rho}) = 1$ (o traço do operador densidade é unitário). Por exemplo, se o operador densidade pode ser escrito como uma matriz 2 x 2,

$$\hat{\rho} = \begin{pmatrix} \rho_{00} & \rho_{01} \\ \rho_{10} & \rho_{11} \end{pmatrix} \quad (3.12)$$

as duas propriedades anteriores implicam nas relações

$$\rho_{00} + \rho_{11} = 1 \quad (3.13)$$

$$\rho_{01} = \rho_{10}^* \quad (3.14)$$

ou seja, dos quatro elementos da matriz densidade, apenas dois são independentes. Como em geral os termos de coerência são números complexos, temos então três variáveis independentes (por exemplo, ρ_{11} , $Re\rho_{10}$ e $Im\rho_{10}$).

3.1.2 Expressão para a susceptibilidade em termos dos elementos da matriz densidade

Para um vapor atômico, o valor esperado para a polarização é escrito como

$$\langle P \rangle = N \langle \mu \rangle \quad (3.15)$$

onde N é a densidade atômica (número de átomos por unidade de volume) e $\langle \mu \rangle$ é o valor esperado do momento de dipolo elétrico de cada átomo, dado por $\langle \mu \rangle = tr(\hat{\rho}\hat{\mu})$. Como veremos na próxima seção, o operador dipolo elétrico na forma matricial é dado por

$$\hat{\mu} = \begin{pmatrix} 0 & \mu_{01} \\ \mu_{10} & 0 \end{pmatrix} \quad (3.16)$$

o que nos permite escrever a polarização como

$$\langle P \rangle = N(\mu_{01}\rho_{10} + \mu_{10}\rho_{01}) = N(\mu_{01}\rho_{10} + c.c.) \quad (3.17)$$

Na próxima seção encontraremos os elementos da matriz densidade e substituiremos na equação anterior para determinarmos a polarização e finalmente o valor de n_2 , dado por (3.4).

3.2 Sistema de dois níveis: solução exata

Apresentamos agora o modelo do sistema de dois níveis para um átomo com 1 elétron ativo que interage com um campo eletromagnético monocromático [19] [20]. Um átomo excitado por uma radiação eletromagnética pode ser tratado como um sistema de dois

níveis, pois, dentre todos os níveis atômicos de transições possíveis, apenas dois deles possuem energias tais que a frequência de ressonância entre eles é próxima da frequência do campo em questão [21].

Sejam $|0\rangle$ e $|1\rangle$ os autoestados fundamental e excitado, respectivamente, com energias E_0 e E_1 , e admitimos que eles possuam paridade oposta. Sejam ω_0 a frequência de ressonância (dada pela diferença de energia entre os níveis dividido por $\hbar$, onde $\hbar = h/2\pi$ e h é a constante de Planck) do átomo e ω a frequência do campo eletromagnético (Figura 3.2).

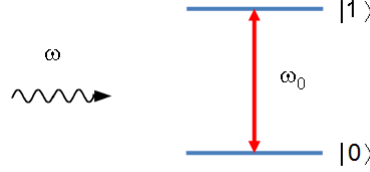


Figura 3.2: Sistema de dois níveis, onde $|0\rangle$ representa o estado fundamental e $|1\rangle$ o excitado. A radiação tem frequência ω e a energia de separação entre os níveis é $\hbar\omega_0$.

O hamiltoniano total do sistema é

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}(t) \quad (3.18)$$

onde $\hat{H}_0$ é o hamiltoniano do átomo e $\hat{V}(t)$ é o hamiltoniano da interação do átomo com o campo eletromagnético.

Como $|0\rangle$ e $|1\rangle$ formam uma base ortonormal, podemos escrever $\hat{H}_0$ como

$$\hat{H}_0 = E_0 |0\rangle \langle 0| + E_1 |1\rangle \langle 1| = \hbar\omega_0 |1\rangle \langle 1| \quad (3.19)$$

onde na última igualdade escolhemos um referencial onde $E_0 = 0$ e $E_1 = \hbar\omega_0$.

O campo eletromagnético monocromático pode ser escrito como

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} \left[\vec{E}_0 e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)} + \vec{E}_0^* e^{-i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)} \right] \quad (3.20)$$

Na aproximação de dipolo³, o campo eletromagnético é escrito como

$$\vec{E}(t) = \frac{1}{2} \left[\vec{E}_0 e^{-i\omega t} + \vec{E}_0^* e^{i\omega t} \right] \quad (3.21)$$

e o operador momento de dipolo elétrico é

$$\hat{\vec{\mu}} = \vec{\mu}_{01} |0\rangle \langle 1| + \vec{\mu}_{10} |1\rangle \langle 0| \quad (3.22)$$

onde $\vec{\mu}_{10} = \vec{\mu}_{01}^*$ e, pela definição de momento de dipolo,

³A aproximação de dipolo consiste em desprezar o termo $\vec{k} \cdot \vec{r}$ na expressão do campo elétrico $\vec{E}$. Isto porque $|\vec{k}|$ é inversamente proporcional ao comprimento de onda da luz (dado em nm) e $|\vec{r}|$ é da ordem do raio de Bohr (dado em ångströms). Assim, $\vec{k} \cdot \vec{r} \ll 1$.

$$\vec{\mu}_{01} = \langle 0 | \vec{\mu} | 1 \rangle = -e \langle 0 | \vec{r} | 1 \rangle = -e \int \psi_0^*(\vec{r}) \vec{r} \psi_1(\vec{r}) dV \quad (3.23)$$

A integral em (3.23) é calculada em todo o espaço. Os termos $\vec{\mu}_{00}$ e $\vec{\mu}_{11}$ são nulos, pois os integrandos correspondentes são funções ímpares.

Assim, na aproximação de dipolo, o hamiltoniano de interação $\hat{V}$ é dado por [22]

$$\begin{aligned} \hat{V}(t) &= -\hat{\vec{\mu}} \cdot \vec{E} = -\frac{1}{2} (\vec{\mu}_{01} |0\rangle \langle 1| + \vec{\mu}_{01}^* |1\rangle \langle 0|) \cdot (\vec{E}_0 e^{-i\omega t} + \vec{E}_0^* e^{i\omega t}) = \\ &= -\frac{\hbar}{2} (\tilde{\Omega}^* e^{-i\omega t} + \Omega^* e^{i\omega t}) |0\rangle \langle 1| - \frac{\hbar}{2} (\Omega e^{-i\omega t} + \tilde{\Omega} e^{i\omega t}) |1\rangle \langle 0| \end{aligned} \quad (3.24)$$

onde definimos $\hbar\Omega = \vec{\mu}_{10} \cdot \vec{E}_0$ e $\hbar\tilde{\Omega} = \vec{\mu}_{10} \cdot \vec{E}_0^*$. O termo Ω possui unidade de frequência e é conhecido como *frequência de Rabi*. É diretamente proporcional à amplitude do campo elétrico da radiação.

Em geral, sistemas com hamiltonianos dependentes do tempo não possuem solução exata. A solução é obtida recorrendo-se a métodos de aproximação, como, por exemplo, a teoria de perturbações dependente do tempo. Entretanto, podemos simplificar $\hat{V}(t)$ utilizando uma aproximação conhecida como *aproximação de ondas girantes*.

Para isso, fazamos uma mudança de referencial dada pelo operador unitário [23]

$$\hat{U} = e^{i\hat{H}_0 t/\hbar} = e^{i\omega_0 t|1\rangle\langle 1|} = |0\rangle\langle 0| + e^{i\omega_0 t}|1\rangle\langle 1| \quad (3.25)$$

Assim, $\hat{V}(t)$ no novo referencial (denotado por $\hat{V}'$) é

$$\hat{V}' = \hat{U} \hat{V} \hat{U}^\dagger \quad (3.26)$$

que fornece

$$\hat{V}'(t) = -\frac{\hbar}{2} [\tilde{\Omega}^* e^{-i(\omega+\omega_0)t} + \Omega^* e^{i\delta t}] |0\rangle\langle 1| - \frac{\hbar}{2} [\Omega e^{-i\delta t} + \tilde{\Omega} e^{i(\omega+\omega_0)t}] |1\rangle\langle 0| \quad (3.27)$$

onde $\delta = \omega - \omega_0$ é chamada de dessintonização do sistema.

O novo hamiltoniano $\hat{V}'(t)$ contém termos que oscilam com frequências $\omega + \omega_0$ e $\omega - \omega_0$. Agora fazamos a aproximação de ondas girantes: se a frequência ω do campo não estiver muito longe da frequência de ressonância ω_0 , então $|\omega - \omega_0| \ll \omega + \omega_0$, de modo que as exponenciais $e^{\pm i(\omega+\omega_0)t}$ oscilam muito rapidamente comparadas às exponenciais $e^{\pm i\delta t}$, que oscilam lentamente. Então aproximamos o termo de maior frequência pelo seu valor temporal médio,

$$e^{\pm i(\omega+\omega_0)t} \approx 0 \quad (3.28)$$

Ou seja, na aproximação de ondas girantes,

$$\hat{V}'(t) = -\frac{\hbar\Omega^*}{2} e^{i\delta t} |0\rangle\langle 1| - \frac{\hbar\Omega}{2} e^{-i\delta t} |1\rangle\langle 0| \quad (3.29)$$

Voltando ao referencial original, obtemos finalmente o hamiltoniano de interação

$$\hat{V}(t) = \hat{U}^\dagger \hat{V}' \hat{U} = -\frac{\hbar\Omega^*}{2} e^{i\omega t} |0\rangle \langle 1| - \frac{\hbar\Omega}{2} e^{-i\omega t} |1\rangle \langle 0| \quad (3.30)$$

Portanto, o hamiltoniano total do sistema é dado por

$$\hat{H}(t) = \hbar\omega_0 |1\rangle \langle 1| - \frac{\hbar\Omega^*}{2} e^{i\omega t} |0\rangle \langle 1| - \frac{\hbar\Omega}{2} e^{-i\omega t} |1\rangle \langle 0| \quad (3.31)$$

3.2.1 Evolução temporal de $\hat{\rho}$ e termos de relaxação

A evolução temporal de um operador é dada pela equação de Heisenberg [17]. Para o operador densidade $\hat{\rho}$, a equação de Heisenberg correspondente é

$$\frac{d\hat{\rho}}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}, \hat{\rho}] \quad (3.32)$$

Uma vez que o hamiltoniano do sistema está escrito nas bases $|0\rangle$ e $|1\rangle$, podemos reescrevê-lo em notação matricial para substituir na Eq. (3.32). Assim, para a matriz densidade $\hat{\rho}$, temos que

$$\hat{\rho} = \begin{pmatrix} \rho_{00} & \rho_{01} \\ \rho_{10} & \rho_{11} \end{pmatrix} \quad (3.33)$$

com as relações (3.13) e (3.14). Da mesma forma, para $\hat{H}$,

$$\hat{H} = \begin{pmatrix} 0 & V_{10}^* \\ V_{10} & \hbar\omega_0 \end{pmatrix} \quad (3.34)$$

onde definimos $V_{10} = -\frac{\hbar\Omega}{2} e^{-i\omega t}$. Substituindo (3.33) e (3.34) em (3.32), obtemos as equações diferenciais [4]

$$\dot{\rho}_{11} = \frac{i}{\hbar} (V_{10}\rho_{01} - V_{01}\rho_{10}) \quad (3.35)$$

$$\dot{\rho}_{10} = -i\omega_0\rho_{10} + \frac{i}{\hbar} V_{10}(\rho_{11} - \rho_{00}) \quad (3.36)$$

$$\dot{\rho}_{00} = -\dot{\rho}_{11} \quad (3.37)$$

$$\dot{\rho}_{01} = \dot{\rho}_{10}^* \quad (3.38)$$

onde apenas as duas primeiras são independentes.

Os termos ρ_{00} e ρ_{11} da matriz densidade (3.33) são chamados de termos de população, pois representa a fração de átomos nos estados fundamental e excitado, respectivamente. Já os termos ρ_{01} e ρ_{10} são chamados de termos de coerência entre os estados fundamental e excitado, pois indicam se o sistema está ou não em uma superposição de estados [4].

Até então consideramos que o átomo interage apenas com o campo elétrico. Tal interação é responsável pelos processos de absorção e emissão estimulada [24]. Entretanto, o átomo também interage com estados do campo do vácuo, uma vez que o mesmo está

em atividade quântica constante⁴. Essa interação produz o decaimento das populações e da coerência através de um processo chamado de emissão espontânea [25].

Para levar em conta o decaimento por emissão espontânea, acrescentemos *ad hoc* os chamados termos de relaxação nas equações de evolução do sistema. Denotando por $\Gamma = 1/\tau$ a taxa de decaimento espontâneo do nível excitado para o fundamental, onde τ é o tempo de vida do estado excitado e T_2 o tempo de relaxação da coerência, pode-se demonstrar [25] que $T_2 = 2\tau$. Ou seja, os termos de população decaem com uma taxa Γ e os termos de coerência com $\Gamma/2$. Assim, as Eqs. (3.35) e (3.36) tornam-se

$$\dot{\rho}_{11} = \frac{i}{\hbar}(V_{10}\rho_{01} - V_{01}\rho_{10}) - \Gamma\rho_{11} \quad (3.39)$$

$$\dot{\rho}_{10} = -i\omega_0\rho_{10} + \frac{i}{\hbar}V_{10}(\rho_{11} - \rho_{00}) - \frac{\Gamma}{2}\rho_{10} \quad (3.40)$$

Sem campo externo ($\Omega = 0$ e portanto $V_{01} = V_{10} = 0$), é fácil ver que $\dot{\rho}_{11}$ e $\dot{\rho}_{10}$ decaem exponencialmente e tornam-se constantes (nulos) após um intervalo de tempo muito maior que τ .

3.2.2 Solução das equações diferenciais no estado estacionário e expressão para a susceptibilidade

Para resolver as equações (3.39) e (3.40), façamos a seguinte mudança de variáveis⁵

$$\sigma_{10}(t) = \rho_{10}(t)e^{i\omega t} \quad (3.41)$$

$$\sigma_{11}(t) = \rho_{11}(t) \quad (3.42)$$

Substituindo (3.41) e (3.42) em (3.39) e (3.40), obtemos

$$\dot{\sigma}_{10} = \left(i\delta - \frac{\Gamma}{2}\right)\sigma_{10} + \frac{i\Omega}{2}(\rho_{11} - \rho_{00}) \quad (3.43)$$

$$\dot{\rho}_{11} = \frac{i}{2}(\Omega^*\sigma_{10} - \Omega\sigma_{01}) - \Gamma\rho_{11} \quad (3.44)$$

De acordo com a Segunda Lei da Termodinâmica, o sistema físico evolui para um estado estacionário. Ou seja, no equilíbrio $\dot{\sigma}_{10} = 0$ e $\dot{\rho}_{11} = 0$ e daí

$$\left(i\delta - \frac{\Gamma}{2}\right)\bar{\sigma}_{10} + \frac{i\Omega}{2}(\bar{\rho}_{11} - \bar{\rho}_{00}) = 0 \quad (3.45)$$

$$\frac{i}{2}(\Omega^*\bar{\sigma}_{10} - \Omega\bar{\sigma}_{01}) - \Gamma\bar{\rho}_{11} = 0 \quad (3.46)$$

que pode ser reescrito como

$$\bar{\sigma}_{10} = -\frac{\Omega(\bar{\rho}_{11} - \bar{\rho}_{00})(\delta - i\Gamma/2)}{2\delta^2 + \Gamma^2/4} \quad (3.47)$$

⁴De acordo com a teoria quântica de campos, o vácuo contém flutuações quânticas, devido à criação e a aniquilação de pares partícula e anti-partícula.

⁵As expressões (3.41) e (3.42) para a mudança de variáveis levam ao mesmo referencial dado pelo operador unitário da Eq. (3.25), onde o hamiltoniano do sistema é dado pela Eq. (3.29).

$$-Im(\Omega^* \bar{\sigma}_{10}) = \Gamma \bar{\rho}_{11} \quad (3.48)$$

Resolvendo o sistema de equações acima para $\bar{\sigma}_{10}$ e $\bar{\rho}_{11}$ e usando $\bar{\rho}_{11} - \bar{\rho}_{00} = 2\bar{\rho}_{11} - 1$, obtemos as soluções

$$\bar{\rho}_{11} = \frac{\Omega^2/\Gamma^2}{1 + \frac{4\delta^2}{\Gamma^2} + \frac{2\Omega^2}{\Gamma^2}} \quad (3.49)$$

$$\bar{\sigma}_{10} = \frac{\Omega}{\Gamma} \frac{2\delta/\Gamma - i}{1 + \frac{4\delta^2}{\Gamma^2} + \frac{2\Omega^2}{\Gamma^2}} \quad (3.50)$$

A polarização é dada pelas Eqs. (3.17) e (3.1):

$$P = N\mu_{01}\bar{\rho}_{10} + c.c. = N\mu_{01}\bar{\sigma}_{10}e^{-i\omega t} + c.c. \quad (3.51)$$

$$P = \frac{\epsilon_0 \chi E_0}{2} e^{-i\omega t} + c.c. \quad (3.52)$$

Igualando-se os termos correspondentes de (3.51) e (3.52), a susceptibilidade não-linear é, portanto, [4]

$$\chi = -\frac{2}{\Gamma} \frac{N|\mu_{01}|^2}{\epsilon_0 \hbar} \frac{2\delta/\Gamma - i}{1 + 4\delta^2/\Gamma^2 + 2\Omega^2/\Gamma^2} \quad (3.53)$$

Usando a definição de intensidade de saturação [20]

$$\frac{I}{I_S} = \frac{2\Omega^2}{\Gamma^2} = \frac{2}{\Gamma^2} \frac{|\mu_{01}|^2 |E_0|^2}{\hbar^2} \quad (3.54)$$

onde I_S é a intensidade de saturação do vapor⁶, podemos reescrever χ como

$$\chi = -\frac{2}{\Gamma} \frac{N|\mu_{01}|^2}{\epsilon_0 \hbar} \frac{2\delta/\Gamma - i}{1 + 4\delta^2/\Gamma^2 + I/I_S} \quad (3.55)$$

As partes real e imaginária de χ são, respectivamente,

$$Re\chi = -\frac{4}{\Gamma^2} \frac{N|\mu_{01}|^2}{\epsilon_0 \hbar} \frac{\delta}{1 + 4\delta^2/\Gamma^2 + I/I_S} \quad (3.56)$$

$$Im\chi = \frac{2}{\Gamma} \frac{N|\mu_{01}|^2}{\epsilon_0 \hbar} \frac{1}{1 + 4\delta^2/\Gamma^2 + I/I_S} \quad (3.57)$$

que estão representados graficamente na Figura 3.3, para diferentes valores da razão I/I_S .

A parte real de χ está relacionada à dispersão da luz no meio, enquanto que a parte imaginária de χ está relacionada à absorção da luz pelo meio. Vemos que os perfis absorptivos e dispersivos, além de serem funções da dessintonização, dependem da largura de linha Γ do nível excitado e da intensidade da luz I incidente em relação à intensidade de saturação (alargamento por potência).

⁶Intuitivamente, a intensidade de saturação é o valor que a intensidade da luz deve ter para que uma quantidade considerável de átomos no estado fundamental vá para o estado excitado. Se $I = I_S$, por exemplo, metade da população estará no estado excitado pela Eq. (3.49).

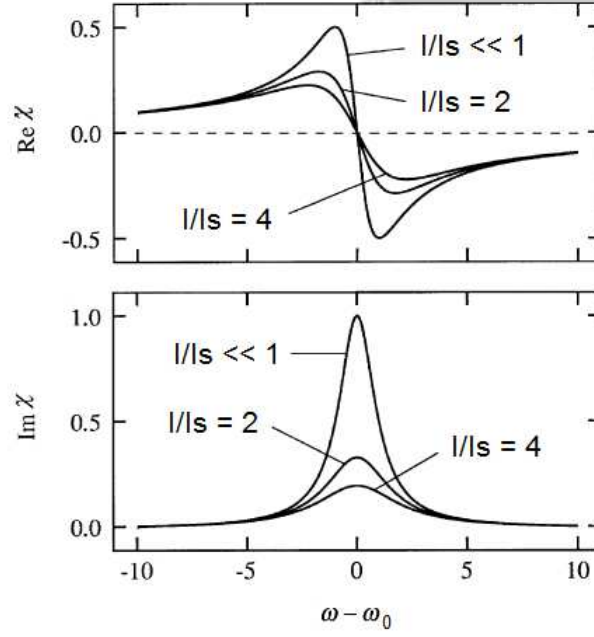


Figura 3.3: Partes real e imaginária da susceptibilidade em função da dessintonização $\omega - \omega_0$. Há três gráficos para valores diferentes da razão I/I_S .

Para encontrarmos $Re\chi^{(3)}$ e conseqüentemente n_2 pela Eq. (3.4), precisamos expandir $Re\chi$ em série de potências do campo eletromagnético e comparar o resultado com a parte real da Eq. (3.2), que é

$$Re\chi = Re\chi^{(1)} + \frac{3}{4}Re\chi^{(3)}|E_0|^2 \quad (3.58)$$

Para isso, reescrevemos (3.56) como

$$Re\chi = -\frac{4}{\Gamma^2} \frac{N|\mu_{12}|^2}{\epsilon_0 \hbar} \frac{\delta}{1 + 4\delta^2/\Gamma^2} \left(1 + \frac{I/I_S}{1 + 4\delta^2/\Gamma^2} \right)^{-1} \quad (3.59)$$

e expandimos o termo entre parênteses em série na condição

$$\frac{I/I_S}{1 + 4\delta^2/\Gamma^2} \ll 1 \quad (3.60)$$

o que equivale a baixas intensidades e/ou altas dessintonizações. Obtemos, portanto:

$$Re\chi = -\frac{4N|\mu_{01}|^2}{\Gamma^2 \epsilon_0 \hbar} \frac{\delta}{1 + 4\delta^2/\Gamma^2} + \frac{4N|\mu_{01}|^2}{\Gamma^2 \epsilon_0 \hbar} \frac{\delta}{(1 + 4\delta^2/\Gamma^2)^2} \frac{I}{I_S} + \dots \quad (3.61)$$

Comparando (3.61) com (3.58) e substituindo (3.54), obtemos finalmente as partes reais das susceptibilidades de 1ª e 3ª ordem:

$$Re\chi^{(1)} = -\frac{4N|\mu_{01}|^2}{\Gamma^2 \epsilon_0 \hbar} \frac{\delta}{1 + 4\delta^2/\Gamma^2} \quad (3.62)$$

$$Re\chi^{(3)} = \frac{32N|\mu_{01}|^4}{3\epsilon_0 \hbar^3} \frac{\delta/\Gamma^4}{(1 + 4\delta^2/\Gamma^2)^2} \quad (3.63)$$

O próximo termo da série (3.61) é a parte real da susceptibilidade de quinta ordem, que é proporcional a

$$Re\chi^{(5)} \propto \frac{\delta/\Gamma}{(1 + 4\delta^2/\Gamma^2)^3} \left(\frac{I}{I_S}\right)^2 \quad (3.64)$$

Convém fazermos duas interpretações físicas sobre as Eqs. (3.63) e (3.64):

- *O sinal de n_2 depende do sinal da dessintonização δ .* Para dessintonizações para o vermelho ($\delta < 0$), temos $n_2 < 0$ e verifica-se no vapor atômico o efeito de auto-defocalização. Já para dessintonizações para o azul ($\delta > 0$), temos $n_2 > 0$ e ocorre no vapor o efeito de auto-focalização.
- *A susceptibilidade de quinta ordem pode ser desprezada em relação à de terceira ordem.* A condição (3.60) para baixas intensidades do campo incidente implica que o termo $Re\chi^{(5)}$ é muito menor que $Re\chi^{(3)}$ (Eqs. 3.61 e 3.64). Conforme veremos no Capítulo 5, verificamos experimentalmente que para altas intensidades ocorre saturação do vapor. Entretanto, longe da ressonância podemos trabalhar com uma intensidade mais alta, porque para altas dessintonizações ($|\delta| \gg 1$) podemos ver que $Re\chi^{(3)}$ cai proporcionalmente a $1/\delta^3$, enquanto que $Re\chi^{(5)}$ cai proporcionalmente a $1/\delta^5$. Ou seja, $Re\chi^{(5)}$ cai muito mais rápido que $Re\chi^{(3)}$. Assim, o índice de refração n contém apenas contribuições não-lineares de 3ª ordem no regime de baixas intensidades e grandes dessintonizações.

Usando (3.4), obtemos finalmente a expressão teórica para o índice de refração n_2 para um sistema de dois níveis:

$$n_2 = \frac{8N|\mu_{01}|^4}{n_0^2 c \epsilon_0^2 \hbar^3} \frac{\delta/\Gamma^4}{(1 + 4\delta^2/\Gamma^2)^2} \quad (3.65)$$

Conforme veremos no Capítulo 5, para um vapor atômico diluído, temos como boa aproximação $n_0 = 1$. Então a expressão para n_2 é

$$n_2 = \frac{8N|\mu_{01}|^4}{c \epsilon_0^2 \hbar^3} \frac{\delta/\Gamma^4}{(1 + 4\delta^2/\Gamma^2)^2} \quad (3.66)$$

3.2.3 Integração em velocidade e perfil Voigt

Até agora consideramos a interação de um átomo em repouso com o campo eletromagnético da radiação. Entretanto, em um vapor atômico térmico contido em um recipiente, todos os átomos se movem e suas velocidades obedecem à distribuição de velocidades de Maxwell-Boltzmann. Isto deve ser considerado no cálculo da susceptibilidade e consequentemente no valor de n_2 .

Em um vapor atômico térmico contido em um recipiente, todos os átomos se movem e suas velocidades obedecem à distribuição de velocidades de Maxwell-Boltzmann. Devido ao efeito Doppler, cada átomo “vê” a radiação com uma frequência diferente, a qual depende da velocidade do átomo na direção do feixe laser.

Seja um conjunto de átomos em um recipiente e seja v a componente da velocidade do átomo na direção de propagação do campo radiativo. O átomo em verá o campo com uma frequência ω' dada por

$$\omega' = \omega_0 + kv \quad (3.67)$$

onde ω_0 é a frequência do campo se o átomo estivesse em repouso e k é o módulo do vetor de onda. Em palavras, a frequência de ressonância do átomo não será mais ω_0 , e sim ω' que depende da velocidade do átomo conforme a Eq. (3.67).

Assim, a dessintonização, que era dada por $\delta = \omega - \omega_0$ para o átomo em repouso, para o átomo em movimento será dada por δ' tal que

$$\delta' = \omega - \omega' = \omega - \omega_0 - kv = \delta - kv \quad (3.68)$$

Portanto, devemos fazer a mudança $\delta \rightarrow \delta' = \delta - kv$ na equação para a parte real da susceptibilidade de terceira ordem, Eq. (3.63). Fazendo isso, obtemos

$$Re\chi^{(3)}(\delta') = Re\chi_v^{(3)} = \frac{32N|\mu_{01}|^4}{3\epsilon_0\hbar^3} \frac{\delta'/\Gamma^4}{(1 + 4\delta'^2/\Gamma^2)^2} \quad (3.69)$$

com $\delta' = \delta - kv$.

A distribuição de Maxwell-Boltzmann para a componente v da velocidade do átomo na direção de propagação da radiação é dada por [26]

$$W(v) dv = \frac{N}{u\sqrt{\pi}} \exp\left(-\frac{v^2}{u^2}\right) dv \quad (3.70)$$

onde $W(v)$ é a densidade de átomos com componente de velocidade v e u é a velocidade mais provável [27], dada por

$$u = \sqrt{\frac{2k_B T}{M}} \quad (3.71)$$

onde T é a temperatura do vapor atômico e M a massa do átomo.

A susceptibilidade total do vapor será a soma das susceptibilidades para cada átomo à velocidade v . Mas a quantidade de átomos à velocidade v é ponderada por $W(v)$. Assim, a susceptibilidade total $Re\chi^{(3)}$ é a soma do produto $W(v)Re\chi_v^{(3)}$ para todas as velocidades possíveis, ou seja,

$$\begin{aligned} Re\chi^{(3)} &= \int_{-\infty}^{\infty} W(v) Re\chi_v^{(3)} dv = \\ &= \frac{32N^2|\mu_{12}|^4}{3\sqrt{\pi}\epsilon_0\hbar^3 u \Gamma^4} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-v^2/u^2} \frac{\delta - kv}{[1 + 4(\delta - kv)^2/\Gamma^2]^2} dv \end{aligned} \quad (3.72)$$

Essa integral de velocidade é denominada na literatura por perfil Voigt [27] [28].

A integral anterior não pode ser resolvida analiticamente. Conforme veremos no Capítulo 5, calculamo-la através de um método de integração numérica em um programa de computador escrito em linguagem de programação C.

3.3 Sistema de dois níveis: solução com expansão em série da matriz densidade

Apresentaremos agora a solução do sistema de dois níveis através de um método de aproximação que consiste na expansão em série da matriz densidade [4]. Tal método será o utilizado para resolver o sistema de 4 níveis, uma vez que as equações exatas são demasiadamente difíceis de se resolver. Mostraremos que este método é excelente porque reproduz os mesmos resultados obtidos de forma analítica para o sistema de 2 níveis.

Em geral, principalmente quando o hamiltoniano $\hat{H}$ depende do tempo, a Eq. (3.32) não pode ser resolvida exatamente. Entretanto, se $\hat{H}$ pode ser escrito como $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}(t)$, onde $\hat{H}_0$ é o hamiltoniano não-perturbado (no caso, o hamiltoniano do átomo) e $\hat{V}(t)$ uma perturbação (no caso, o hamiltoniano da interação entre o átomo e o campo eletromagnético da luz), então, tal como no método de teoria de perturbações [24], escrevemos $\hat{H}$ como

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \lambda \hat{V}(t) \quad (3.73)$$

onde $\lambda < 1$ é um parâmetro arbitrário que indica o “tamanho” da perturbação $\hat{V}(t)$.

O método perturbativo [4] consiste em expandir a matriz densidade em potências de λ ,

$$\hat{\rho} = \hat{\rho}^{(0)} + \lambda \hat{\rho}^{(1)} + \lambda^2 \hat{\rho}^{(2)} + \dots \quad (3.74)$$

onde $\rho^{(0)}$ é a matriz densidade para o hamiltoniano não-perturbado e $\rho^{(i)}$, $i \geq 1$ são as correções de ordem i . Substituindo (3.73) e (3.74) em (3.32) e comparando os termos com mesma potência de λ , obtemos equações de Heisenberg para cada $\hat{\rho}^{(N)}$, a saber,

$$\frac{d}{dt} \hat{\rho}^{(0)} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}_0, \hat{\rho}^{(0)}] \quad (3.75)$$

$$\frac{d}{dt} \hat{\rho}^{(1)} = -\frac{i}{\hbar} ([\hat{H}_0, \hat{\rho}^{(1)}] + [\hat{V}, \hat{\rho}^{(0)}]) \quad (3.76)$$

$$\frac{d}{dt} \hat{\rho}^{(2)} = -\frac{i}{\hbar} ([\hat{H}_0, \hat{\rho}^{(2)}] + [\hat{V}, \hat{\rho}^{(1)}]) \quad (3.77)$$

ou, na forma geral,

$$\frac{d}{dt} \hat{\rho}^{(N)} = -\frac{i}{\hbar} ([\hat{H}_0, \hat{\rho}^{(N)}] + [\hat{V}, \hat{\rho}^{(N-1)}]) \quad (3.78)$$

A Eq. (3.78) é uma equação de ordem N para a matriz densidade de ordem N , que deve ser resolvida para $\rho^{(N)}$ em função de $\rho^{(N-1)}$.

No sistema de dois níveis, $\hat{H}_0$ e $\hat{V}$ são dados respectivamente por⁷

$$\hat{H}_0 = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & \hbar\omega_0 \end{pmatrix} \quad (3.79)$$

⁷Estamos agora denotando o estado fundamental por $|0\rangle$ e o excitado por $|1\rangle$.

$$\hat{V} = \begin{pmatrix} 0 & V_{10}^* \\ V_{10} & 0 \end{pmatrix} \quad (3.80)$$

A matriz densidade é dada por (3.12) com as relações (3.13) e (3.14) (ou as relações (3.37) e (3.38)). Substituindo (3.79) e (3.80) em (3.78), obtemos equações de evolução temporal dos termos da matriz densidade em ordem N :

$$\dot{\rho}_{10}^{(N)} = -\frac{i}{\hbar} \left[\hbar\omega_0 \rho_{10}^{(N)} + V_{10} \left(\rho_{00}^{(N-1)} - \rho_{11}^{(N-1)} \right) \right] \quad (3.81)$$

$$\dot{\rho}_{11}^{(N)} = -\frac{i}{\hbar} \left(V_{10} \rho_{01}^{(N-1)} - V_{01} \rho_{10}^{(N-1)} \right) \quad (3.82)$$

Substituindo $V_{10} = -\frac{\hbar\Omega}{2}e^{-i\omega t}$ e colocando-se à mão os termos de relaxação, obtemos

$$\dot{\rho}_{10}^{(N)} = -i\omega_0 \rho_{10}^{(N)} + \frac{i\Omega}{2}e^{-i\omega t} \left(\rho_{00}^{(N-1)} - \rho_{11}^{(N-1)} \right) - \frac{\Gamma}{2} \rho_{10}^{(N)} \quad (3.83)$$

$$\dot{\rho}_{11}^{(N)} = \frac{i}{2} \left(\Omega e^{-i\omega t} \rho_{01}^{(N-1)} - \Omega^* e^{i\omega t} \rho_{10}^{(N-1)} \right) - \Gamma \rho_{11}^{(N)} \quad (3.84)$$

E fazendo a mudança de variáveis

$$\rho_{10}^{(N)} = \sigma_{10}^{(N)} e^{-i\omega t} \quad (3.85)$$

$$\rho_{11}^{(N)} = \sigma_{11}^{(N)} \quad (3.86)$$

reescrevemos finalmente (3.83) e (3.84) como

$$\dot{\sigma}_{10}^{(N)} = \left(i\delta - \frac{\Gamma}{2} \right) \sigma_{10}^{(N)} - \frac{i\Omega}{2} \left(\rho_{11}^{(N-1)} - \rho_{00}^{(N-1)} \right) \quad (3.87)$$

$$\dot{\rho}_{11}^{(N)} = \frac{i}{2} \left(\Omega \sigma_{01}^{(N-1)} - \Omega^* \sigma_{10}^{(N-1)} \right) - \Gamma \rho_{11}^{(N)} \quad (3.88)$$

Agora vamos para as condições iniciais. Admitindo-se inicialmente um sistema com átomos no estado fundamental, as condições iniciais são

$$\rho_{00}(0) = 1 \quad (3.89)$$

$$\rho_{11}(0) = 0 \quad (3.90)$$

$$\rho_{10}(0) = \sigma_{10}(0) = 0 \quad (3.91)$$

$$\rho_{01}(0) = \sigma_{01}(0) = 0 \quad (3.92)$$

Podemos ainda obter uma importante relação entre as populações de ordem N . A partir de (3.74), podemos escrever as seguintes relações para os termos de população:

$$\rho_{00} = \rho_{00}^{(0)} + \lambda \rho_{00}^{(1)} + \dots \quad (3.93)$$

$$\rho_{11} = \rho_{11}^{(0)} + \lambda \rho_{11}^{(1)} + \dots \quad (3.94)$$

Somando as duas equações acima, obtemos

$$\rho_{00} + \rho_{11} = \rho_{00}^{(0)} + \rho_{11}^{(0)} + \lambda(\rho_{00}^{(1)} + \rho_{11}^{(1)}) + \dots \quad (3.95)$$

Como $\rho_{00} + \rho_{11} = 1$, a comparação dos dois membros da Eq. (3.95) para potências de λ permite-nos concluir as importantes relações entre as populações de ordem N :

$$\rho_{00}^{(0)} + \rho_{11}^{(0)} = 1 \quad (3.96)$$

$$\rho_{00}^{(i)} + \rho_{11}^{(i)} = 0, \quad i \geq 1 \quad (3.97)$$

A susceptibilidade é dada pela Eq. (3.15), onde $\langle \mu \rangle = \text{tr}(\hat{\mu}\hat{\rho})$. Substituindo em (3.15) a expansão para $\hat{\rho}$ da Eq. (3.74), obtemos

$$P = N[\text{tr}(\hat{\rho}^{(0)}\hat{\mu}) + \lambda \text{tr}(\hat{\rho}^{(1)}\hat{\mu}) + \dots] \quad (3.98)$$

ou seja, a polarização de ordem N é dada por

$$P^{(N)} = N \text{tr}(\hat{\rho}^{(N)}\hat{\mu}) = N(\mu_{01}\rho_{10}^{(N)} + c.c.) \quad (3.99)$$

Como

$$P^{(N)} = \epsilon_0 \chi^{(N)} E^N \quad (3.100)$$

então a igualdade entre as duas últimas expressões permite obter a susceptibilidade de ordem N .

No caso da susceptibilidade de 1ª ordem, temos $\epsilon_0 \chi^{(1)} E = N \text{tr}(\hat{\rho}^{(1)}\hat{\mu})$. Substituindo o campo elétrico dado pela Eq. (3.21), obtemos

$$\epsilon_0 \chi^{(1)} \frac{E_0}{2} e^{-i\omega t} + c.c. = N \mu_{01} \bar{\rho}_{10}^{(1)} + c.c. \quad (3.101)$$

Substituindo (3.85) para $N = 1$ e comparando os dois membros da Eq. (3.101), obtemos finalmente

$$\epsilon_0 \chi^{(1)} \frac{E_0}{2} = N \mu_{01} \bar{\sigma}_{10}^{(1)} \quad (3.102)$$

o que permite obter $\chi^{(1)}$ a partir de $\bar{\sigma}_{10}^{(1)}$. Analogamente, para a susceptibilidade de 3ª ordem, temos $P^{(3)} = N \text{tr}(\hat{\rho}^{(3)}\hat{\mu})$ e, fazendo um cálculo semelhante ao anterior, obtemos então

$$\frac{3}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)} \frac{|E_0|^2 E_0}{2} = N \mu_{01} \bar{\sigma}_{10}^{(3)} \quad (3.103)$$

o que permite obter $\chi^{(3)}$ a partir de $\bar{\sigma}_{10}^{(3)}$.

Devemos resolver as Eqs. (3.87) e (3.88) no estado estacionário para as ordens 0, 1, 2 e 3, utilizando as relações (3.96) e (3.97), e assim obtermos a susceptibilidade de 3ª ordem através da Eq. (3.103). Esperamos que os resultados coincidam com os fornecidos pela solução exata, dada pelas Eqs. (3.62) e (3.63).

3.3.1 Correções de ordem zero

Fazendo $N = 0$ nas Eqs. (3.87) e (3.88), obtemos

$$\dot{\sigma}_{10}^{(0)} = \left(i\delta - \frac{\Gamma}{2}\right) \sigma_{10}^{(0)} \quad (3.104)$$

$$\dot{\rho}_{11}^{(0)} = -\Gamma \rho_{11}^{(0)} \quad (3.105)$$

No estado estacionário, $\dot{\sigma}_{10}^{(0)} = 0$ e $\dot{\rho}_{11}^{(0)} = 0$, ou seja,

$$\left(i\delta - \frac{\Gamma}{2}\right) \bar{\sigma}_{10}^{(0)} = 0 \quad (3.106)$$

$$-\Gamma \bar{\rho}_{11}^{(0)} = 0 \quad (3.107)$$

cujas soluções são

$$\bar{\sigma}_{10}^{(0)} = 0 \quad (3.108)$$

$$\bar{\rho}_{11}^{(0)} = 0 \quad (3.109)$$

De (3.96), obtemos $\bar{\rho}_{00}^{(0)} = 1$, ou seja, em ordem zero (sem campo), as condições iniciais não se alteram.

Substituindo (3.108) nas Eqs. (3.99) e (3.100) para $N = 0$, obtemos

$$\chi^{(0)} = 0 \quad (3.110)$$

como era de se esperar.

3.3.2 Correções de 1ª ordem

Para $N = 1$, as Eqs. (3.87) e (3.88) são

$$\dot{\sigma}_{10}^{(1)} = \left(i\delta - \frac{\Gamma}{2}\right) \sigma_{10}^{(1)} - \frac{i\Omega}{2} (\rho_{11}^{(0)} - \rho_{00}^{(0)}) \quad (3.111)$$

$$\dot{\rho}_{11}^{(1)} = \frac{i}{2} (\Omega \sigma_{01}^{(0)} - \Omega^* \sigma_{10}^{(0)}) - \Gamma \rho_{11}^{(N)} \quad (3.112)$$

No estado estacionário,

$$\left(i\delta - \frac{\Gamma}{2}\right) \bar{\sigma}_{10}^{(1)} - \frac{i\Omega}{2} (\bar{\rho}_{11}^{(0)} - \bar{\rho}_{00}^{(0)}) = 0 \quad (3.113)$$

$$\frac{i}{2} (\Omega \bar{\sigma}_{01}^{(0)} - \Omega^* \bar{\sigma}_{10}^{(0)}) - \Gamma \bar{\rho}_{11}^{(1)} = 0 \quad (3.114)$$

Substituindo as soluções de ordem zero, obtemos

$$\left(i\delta - \frac{\Gamma}{2}\right) \bar{\sigma}_{10}^{(1)} + \frac{i\Omega}{2} = 0 \quad (3.115)$$

$$-\Gamma \bar{\rho}_{11}^{(1)} = 0 \quad (3.116)$$

cujas soluções são

$$\bar{\rho}_{11}^{(1)} = 0 \quad (3.117)$$

$$\bar{\sigma}_{10}^{(1)} = \frac{-i\Omega/2}{i\delta - \Gamma/2} = \frac{-\Omega/2}{\delta + i\Gamma/2} \quad (3.118)$$

Substituindo (3.118) em (3.102), obtemos, portanto, a susceptibilidade de 1ª ordem:

$$\chi^{(1)} = -\frac{N|\mu_{01}|^2}{\epsilon_0 \hbar} \frac{\delta - i\Gamma/2}{\delta^2 + \Gamma^2/4} \quad (3.119)$$

cuja parte real é

$$Re\chi^{(1)} = -\frac{4N|\mu_{12}|^2}{\Gamma^2 \epsilon_0 \hbar} \frac{\delta}{1 + 4\delta^2/\Gamma^2} \quad (3.120)$$

que corresponde à Eq. (3.62).

3.3.3 Correções de 2ª ordem

Para $N = 2$, as Eqs. (3.87) e (3.88) são

$$\dot{\sigma}_{10}^{(2)} = \left(i\delta - \frac{\Gamma}{2}\right) \sigma_{10}^{(2)} - \frac{i\Omega}{2} (\rho_{11}^{(1)} - \rho_{00}^{(1)}) \quad (3.121)$$

$$\dot{\rho}_{11}^{(2)} = \frac{i}{2} (\Omega \sigma_{01}^{(1)} - \Omega^* \sigma_{10}^{(1)}) - \Gamma \rho_{11}^{(2)} \quad (3.122)$$

Da condição (3.97), concluímos que, para $N \geq 1$,

$$\rho_{11}^{(N)} - \rho_{00}^{(N)} = 2\rho_{11}^{(N)} \quad (3.123)$$

No estado estacionário e substituindo as soluções de 1ª ordem, obtemos as soluções de 2ª ordem

$$\bar{\sigma}_{10}^{(2)} = 0 \quad (3.124)$$

$$\bar{\rho}_{11}^{(2)} = \frac{\Omega^2}{4\delta^2 + \Gamma^2} \quad (3.125)$$

A partir de (3.124) obtemos $\chi^{(2)} = 0$, como era de se esperar.

3.3.4 Correções de 3ª ordem

Para $N = 2$, as Eqs. (3.87) e (3.88) são

$$\dot{\sigma}_{10}^{(3)} = \left(i\delta - \frac{\Gamma}{2}\right) \sigma_{10}^{(3)} - \frac{i\Omega}{2} (\rho_{11}^{(2)} - \rho_{00}^{(2)}) \quad (3.126)$$

$$\dot{\rho}_{11}^{(3)} = \frac{i}{2} (\Omega \sigma_{01}^{(2)} - \Omega^* \sigma_{10}^{(2)}) - \Gamma \rho_{11}^{(3)} \quad (3.127)$$

No estado estacionário e substituindo-se as soluções de 2ª ordem, obtemos

$$\bar{\sigma}_{10}^{(3)} = \frac{i\Omega \bar{\rho}_{11}^{(2)}}{i\delta - \Gamma/2} = \frac{\Omega^3}{4} \frac{\delta - i\Gamma/2}{(\delta^2 + \Gamma^2/4)} \quad (3.128)$$

A parte real da susceptibilidade de 3ª ordem é dada por

$$Re\chi^{(3)} = \frac{2N|\mu_{10}|^4}{3\epsilon_0\hbar^3} \frac{\delta}{[(\Gamma^2/4)(1 + 4\delta^2/\Gamma^2)]^2} = \frac{32N|\mu_{12}|^4}{3\epsilon_0\hbar^3} \frac{\delta/\Gamma^4}{(1 + 4\delta^2/\Gamma^2)^2} \quad (3.129)$$

que corresponde à Eq. (3.63).

Podemos observar que os termos de ordem par da matriz densidade fornecem contribuições na população, enquanto que os termos de ordem ímpar contribuem para a susceptibilidade do sistema.

Mostramos que o método perturbativo, que consiste numa expansão em série da matriz densidade, permite-nos obter as mesmas soluções para o sistema de dois níveis. Na próxima seção utilizaremos esse método para resolver o complicado sistema de quatro níveis, que consiste em um estado fundamental e três excitados. Veremos que, no análogo do termo $\bar{\sigma}_{01}^{(3)}$ (dado pela Eq. (3.28)), aparecem contribuições das populações dos outros estados excitados e da coerência entre eles.

3.4 Sistema de quatro níveis

Ao considerar a separação dos níveis hiperfinos da linha D_2 do césio (Capítulo 4), um modelo mais realístico a ser considerado é um sistema de quatro níveis. Para a linha D_2 , as transições permitidas são $F = 4 \rightarrow F' = 3, 4, 5$. Desprezamos o decaimento entre os níveis $F' = 4, 3 \rightarrow F = 3$. A transição $F' = 5 \rightarrow F = 3$ não ocorre porque é proibida pelas regras de seleção de dipolo. Também são proibidas transições entre os níveis excitados $F' = 3, 4, 5$.

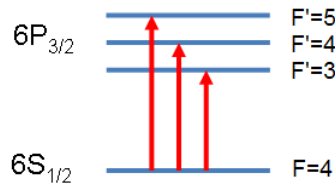


Figura 3.4: Sistema de 4 níveis.

Denotando por $|0\rangle$ o estado fundamental $F = 4$ e $|i\rangle$ cada um dos três estados excitados $F' = 3, 4, 5$, cada transição $F \rightarrow F'$ pode ser vista como uma transição entre um sistema de dois níveis. Nesta situação, o hamiltoniano a ser considerado equivale ao de uma soma de três sistemas de dois níveis. Ou seja,

$$\hat{H} = \sum_i \left(\hbar\omega_i |i\rangle \langle i| - \frac{\hbar\Omega_i^*}{2} e^{i\omega t} |0\rangle \langle i| - \frac{\hbar\Omega_i}{2} e^{i\omega t} |i\rangle \langle 0| \right) \quad (3.130)$$

onde $\Omega_i = \frac{\vec{\mu}_{i0} \cdot \vec{E}_0}{\hbar}$ é a frequência de Rabi para o i -ésimo estado excitado. $\hat{H}$ pode ser decomposto na forma $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}(t)$ com

$$\hat{H}_0 = \sum_i \hbar\omega_i |i\rangle \langle i| \quad (3.131)$$

$$\hat{V}(t) = - \sum_i \left(\frac{\hbar\Omega_i^*}{2} e^{i\omega t} |0\rangle \langle i| + \frac{\hbar\Omega_i}{2} e^{i\omega t} |i\rangle \langle 0| \right) = \sum_i (V_{0i} |0\rangle \langle i| + V_{i0} |i\rangle \langle 0|) \quad (3.132)$$

onde $V_{i0} = -\frac{\hbar\Omega_i}{2} e^{-i\omega t}$ e $V_{0i} = -\frac{\hbar\Omega_i^*}{2} e^{i\omega t} = V_{i0}^*$.

A matriz densidade para um sistema de 4 níveis, em ordem N , é dada por

$$\hat{\rho}^{(N)} = \begin{pmatrix} \rho_{00}^{(N)} & \rho_{01}^{(N)} & \rho_{02}^{(N)} & \rho_{03}^{(N)} \\ \rho_{10}^{(N)} & \rho_{11}^{(N)} & \rho_{12}^{(N)} & \rho_{13}^{(N)} \\ \rho_{20}^{(N)} & \rho_{21}^{(N)} & \rho_{22}^{(N)} & \rho_{23}^{(N)} \\ \rho_{30}^{(N)} & \rho_{31}^{(N)} & \rho_{32}^{(N)} & \rho_{33}^{(N)} \end{pmatrix} \quad (3.133)$$

Podemos denotar os elementos de $\hat{\rho}^{(N)}$ por $\rho_{00}^{(N)}$, $\rho_{ii}^{(N)}$, $\rho_{i0}^{(N)}$ e $\rho_{ij}^{(N)}$, onde $i, j = 1, 2, 3$. Temos:

- $\rho_{00}^{(N)}$ é a população do estado fundamental;
- $\rho_{ii}^{(N)}$ é a população de cada um dos três estados excitados;
- $\rho_{0i}^{(N)}$ é a coerência entre o estado fundamental e o i -ésimo estado excitado;
- $\rho_{ij}^{(N)}$ é a coerência entre os estados excitados i e j .

Para a matriz densidade sem expansão, as relações de vínculo são

$$\rho_{00} + \sum_i \rho_{ii} = 1 \quad (3.134)$$

$$\rho_{mn} = \rho_{nm}^*, \quad m, n = 0, i \quad (3.135)$$

Com a expansão em série dada por (3.74), as equações acima podem ser reescritas como

$$\rho_{00}^{(N)} + \sum_i \rho_{ii}^{(N)} = \begin{cases} 1, & N = 0 \\ 0, & N \neq 0 \end{cases} \quad (3.136)$$

$$\rho_{mn}^{(N)} = \rho_{nm}^{(N)*}, \quad m, n = 0, i \quad (3.137)$$

ou ainda

$$\dot{\rho}_{00}^{(N)} + \sum_i \dot{\rho}_{ii}^{(N)} = 0 \quad (3.138)$$

$$\dot{\rho}_{mn}^{(N)} = \dot{\rho}_{nm}^{(N)*}, \quad m, n = 0, i \quad (3.139)$$

Substituindo (3.130), (3.131), (3.132) e (3.133) em (3.78), obtemos as seguintes equações de evolução de ordem N para os elementos de $\hat{\rho}^{(N)}$:

$$\dot{\rho}_{00}^{(N)} = -\frac{i}{\hbar} \sum_i \left(V_{0i} \rho_{i0}^{(N-1)} - V_{i0} \rho_{0i}^{(N-1)} \right) \quad (3.140)$$

$$\dot{\rho}_{ii}^{(N)} = -\frac{i}{\hbar} \left(V_{i0} \rho_{0i}^{(N-1)} - V_{0i} \rho_{i0}^{(N-1)} \right) \quad (3.141)$$

$$\dot{\rho}_{i0}^{(N)} = -\frac{i}{\hbar} \left[\hbar \omega_i \rho_{i0}^{(N)} + V_{i0} \rho_{00}^{(N-1)} - \sum_j V_{j0} \rho_{ij}^{(N-1)} \right] \quad (3.142)$$

$$\dot{\rho}_{ij}^{(N)} = -\frac{i}{\hbar} \left[\hbar (\omega_i - \omega_j) \rho_{ij}^{(N)} + V_{i0} \rho_{0j}^{(N-1)} - V_{0j} \rho_{i0}^{(N-1)} \right] \quad (3.143)$$

Colocando-se à mão os termos de relaxação e substituindo-se os valores de V_{0i} e V_{i0} , obtemos finalmente as equações de evolução de ordem N para um sistema de 4 níveis:

$$\dot{\rho}_{00}^{(N)} = \frac{i}{2} \sum_i \left(\Omega_i^* e^{i\omega t} \rho_{i0}^{(N-1)} - \Omega_i e^{-i\omega t} \rho_{0i}^{(N-1)} \right) + \sum_i \Gamma_i \rho_{ii}^{(N)} \quad (3.144)$$

$$\dot{\rho}_{ii}^{(N)} = \frac{i}{2} \left(\Omega_i e^{-i\omega t} \rho_{0i}^{(N-1)} - \Omega_i^* e^{i\omega t} \rho_{i0}^{(N-1)} \right) - \Gamma_i \rho_{ii}^{(N)} \quad (3.145)$$

$$\dot{\rho}_{i0}^{(N)} = -i\omega_i \rho_{i0}^{(N)} + \frac{i}{2} \left[\Omega_i e^{-i\omega t} \rho_{00}^{(N-1)} - \sum_j \Omega_j e^{-i\omega t} \rho_{ij}^{(N-1)} \right] - \frac{\Gamma_i}{2} \rho_{i0}^{(N)} \quad (3.146)$$

$$\dot{\rho}_{ij}^{(N)} = -i(\omega_i - \omega_j) \rho_{ij}^{(N)} + \frac{i}{2} \left[\Omega_i e^{-i\omega t} \rho_{0j}^{(N-1)} - \Omega_j^* e^{i\omega t} \rho_{i0}^{(N-1)} \right] - \frac{\Gamma_i + \Gamma_j}{2} \rho_{ij}^{(N)} \quad (3.147)$$

Na Eq. (3.145), o último termo representa o decaimento espontâneo da população do i -ésimo estado excitado. A condição (3.138) resulta no último termo do segundo membro da Eq. (3.144). Na Eq. (3.146), o último termo representa o decaimento da coerência $\rho_{i0}^{(N)}$. Já na Eq. (3.147), a taxa de decaimento da coerência entre os estados excitados depende da taxa de decaimento de cada um deles em relação ao estado fundamental [29].

Fazendo a mudança de variáveis

$$\begin{aligned} \rho_{00}^{(N)} &= \sigma_{00}^{(N)} \\ \rho_{ii}^{(N)} &= \sigma_{ii}^{(N)} \\ \rho_{i0}^{(N)} &= \sigma_{i0}^{(N)} e^{-i\omega t} \\ \rho_{ij}^{(N)} &= \sigma_{ij}^{(N)} \end{aligned} \quad (3.148)$$

reescrevemos (3.144) a (3.147) como

$$\dot{\rho}_{00}^{(N)} = \frac{i}{2} \sum_i \left(\Omega_i^* \sigma_{i0}^{(N-1)} - \Omega_i \sigma_{0i}^{(N-1)} \right) + \sum_i \Gamma_i \rho_{ii}^{(N)} \quad (3.149)$$

$$\dot{\rho}_{ii}^{(N)} = \frac{i}{2} \left(\Omega_i \sigma_{0i}^{(N-1)} - \Omega_i^* \sigma_{i0}^{(N-1)} \right) - \Gamma_i \rho_{ii}^{(N)} \quad (3.150)$$

$$\dot{\sigma}_{i0}^{(N)} = \left(i\delta_i - \frac{\Gamma_i}{2} \right) \sigma_{i0}^{(N)} + \frac{i}{2} \left[\Omega_i \rho_{00}^{(N-1)} - \sum_j \Omega_j \sigma_{ij}^{(N-1)} \right] \quad (3.151)$$

$$\dot{\sigma}_{ij}^{(N)} = \left[-i(\omega_i - \omega_j) - \frac{\Gamma_i + \Gamma_j}{2} \right] \sigma_{ij}^{(N)} + \frac{i}{2} \left[\Omega_i \sigma_{0j}^{(N-1)} - \Omega_j^* \sigma_{i0}^{(N-1)} \right] \quad (3.152)$$

onde definimos $\delta_i = \omega - \omega_i$. As equações acima reproduzem as Eqs. (3.87) e (3.88) para o sistema de dois níveis quando fazemos $i = 1$ nas três primeiras e $i = j$ na última.

De forma análoga à seção anterior, substituímos $N = 0, 1, 2, 3$ e usamos (3.136) para resolver as Eqs. (3.149) a (3.152) no estado estacionário. Obtemos as soluções de ordens 0, 1, 2 e 3.

Para determinar a susceptibilidade de 3ª ordem, usamos a Eq. (3.98), com $\hat{\rho}^{(N)}$ dado por (3.133) e $\hat{\mu}$ dado por

$$\hat{\mu} = \begin{pmatrix} \mu_{00} & \mu_{01} & \mu_{02} & \mu_{03} \\ \mu_{10} & 0 & 0 & 0 \\ \mu_{20} & 0 & 0 & 0 \\ \mu_{30} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (3.153)$$

Os termos μ_{0i} , $i = 1, 2, 3$, representam os momentos de dipolo para as transições entre o estado fundamental $|0\rangle$ e cada um dos três estados excitados $|i\rangle$. Já os termos nulos representam as transições entre os estados excitados, as quais são proibidas pelas regras de seleção de dipolo (ver Capítulo 4).

ou seja, apenas os elementos μ_{0i} e $\mu_{i0} = \mu_{0i}^*$ são diferentes de zero. Assim, a polarização de terceira ordem é dada por

$$P^{(3)} = N \sum_i \left[\mu_{0i} \rho_{i0}^{(3)} + c.c. \right] \quad (3.154)$$

e igualamos à Eq. (3.100) para $N = 3$. O resultado é

$$\frac{3}{4} \epsilon_0 Re \chi^{(3)} \frac{|E_0|^2 E_0}{2} = N \sum_i \mu_{0i} Re \bar{\sigma}_{i0}^{(3)} \quad (3.155)$$

3.4.1 Soluções de ordem zero

As soluções de ordem zero são

$$\begin{aligned} \bar{\rho}_{ii}^{(0)} &= 0 \\ \bar{\sigma}_{i0}^{(0)} &= 0 \\ \bar{\sigma}_{ij}^{(0)} &= 0 \\ \bar{\rho}_{00}^{(0)} &= 1 \end{aligned} \quad (3.156)$$

como era de se esperar.

3.4.2 Soluções de 1ª ordem

As soluções de 1ª ordem são

$$\begin{aligned}\bar{\rho}_{00}^{(1)} &= 0 \\ \bar{\rho}_{ii}^{(1)} &= 0 \\ \bar{\sigma}_{i0}^{(1)} &= \frac{-i\Omega_i/2}{i\delta_i - \Gamma_i/2} = -\frac{\Omega_i}{2} \frac{\delta_i - i\Gamma_i/2}{\delta_i^2 + \Gamma_i^2/4} \\ \bar{\sigma}_{ij}^{(1)} &= 0\end{aligned}\tag{3.157}$$

e da 3ª equação concluímos que $\chi^{(1)} \neq 0$, semelhante ao caso do modelo de 2 níveis.

3.4.3 Soluções de 2ª ordem

Em 2ª ordem, temos para as três primeiras equações:

$$\bar{\rho}_{00}^{(2)} = -\sum_j \frac{\Omega_j^2}{4\delta_j^2 + \Gamma_j^2}\tag{3.158}$$

$$\bar{\rho}_{ii}^{(2)} = \frac{\Omega_i^2}{4\delta_i^2 + \Gamma_i^2}\tag{3.159}$$

$$\bar{\sigma}_{i0}^{(2)} = 0\tag{3.160}$$

Para a 4ª equação, substituímos $\bar{\sigma}_{0j}^{(1)}$ e $\bar{\sigma}_{i0}^{(1)}$ para obter

$$\begin{aligned}\bar{\sigma}_{ij}^{(2)} &= \frac{\Omega_i \Omega_j^*}{(\omega_i - \omega_j) - i\frac{\Gamma_i + \Gamma_j}{2}} \left[\frac{\delta_i - i\Gamma_i/2}{4\delta_i^2 + \Gamma_i^2} - \frac{\delta_j + i\Gamma_j/2}{4\delta_j^2 + \Gamma_j^2} \right] = \\ &= \Omega_i \Omega_j^* \frac{(\omega_i - \omega_j) + i(\Gamma_i + \Gamma_j)/2}{(\omega_i - \omega_j)^2 + (\Gamma_i + \Gamma_j)^2/4} \left[\frac{\delta_i - i\Gamma_i/2}{4\delta_i^2 + \Gamma_i^2} - \frac{\delta_j + i\Gamma_j/2}{4\delta_j^2 + \Gamma_j^2} \right]\end{aligned}\tag{3.161}$$

O termo $\bar{\sigma}_{ij}^{(2)}$ representa a coerência de 2ª ordem entre os estados excitados criada pela interação com o estado fundamental. Esse termo não é nulo e, como veremos, influenciará no termo $\bar{\sigma}_{i0}^{(3)}$ de 3ª ordem e conseqüentemente no valor de n_2 . No sistema de dois níveis, este termo é inexistente.

3.4.4 Soluções de 3ª ordem

Para as equações em $\dot{\rho}_{00}^{(3)}$, $\dot{\rho}_{ii}^{(3)}$ e $\dot{\sigma}_{ij}^{(3)}$, as soluções são nulas:

$$\begin{aligned}\bar{\rho}_{00}^{(3)} &= 0 \\ \bar{\rho}_{ii}^{(3)} &= 0 \\ \bar{\sigma}_{ij}^{(3)} &= 0\end{aligned}\tag{3.162}$$

Para a equação em $\dot{\sigma}_{i0}^{(3)}$ no estado estacionário, isolamos $\bar{\sigma}_{i0}^{(3)}$, o que fornece

$$\bar{\sigma}_{i0}^{(3)} = -\frac{1}{2} \frac{\delta_i - i\Gamma_i/2}{\delta_i^2 + \Gamma_i^2/4} \left[\Omega_i \bar{\rho}_{00}^{(2)} - \sum_j \Omega_j \bar{\sigma}_{ij}^{(2)} \right]\tag{3.163}$$

onde $\bar{\rho}_{00}^{(2)}$ é dado por (3.158) e $\bar{\sigma}_{ij}^{(2)}$ por (3.161). Substituindo $\bar{\rho}_{00}^{(2)} = -\sum_j \bar{\rho}_{jj}^{(2)}$, ficamos com

$$\bar{\sigma}_{i0}^{(3)} = \frac{1}{2} \frac{\delta_i - i\Gamma/2}{\delta_i^2 + \Gamma^2/4} \left[\Omega_i \sum_j \bar{\rho}_{jj}^{(2)} + \sum_j \Omega_j \bar{\sigma}_{ij}^{(2)} \right] \quad (3.164)$$

Podemos reescrever os dois somatórios dentro dos colchetes como

$$\sum_j \bar{\rho}_{jj}^{(2)} = \bar{\rho}_{ii}^{(2)} + \sum_{j \neq i} \bar{\rho}_{jj}^{(2)} \quad (3.165)$$

$$\sum_j \Omega_j \bar{\sigma}_{ij}^{(2)} = \Omega_i \bar{\rho}_{ii}^{(2)} + \sum_{j \neq i} \Omega_j \bar{\sigma}_{ij}^{(2)} \quad (3.166)$$

Substituindo (3.165) e (3.166) em (3.164), obtemos finalmente o termo de coerência em terceira ordem:

$$\bar{\sigma}_{i0}^{(3)} = \frac{1}{2} \frac{\delta_i - i\Gamma_i/2}{\delta_i^2 + \Gamma_i^2/4} \left[2\Omega_i \bar{\rho}_{ii}^{(2)} + \Omega_i \sum_{j \neq i} \bar{\rho}_{jj}^{(2)} + \sum_{j \neq i} \Omega_j \bar{\sigma}_{ij}^{(2)} \right] \quad (3.167)$$

com $\bar{\rho}_{ii}^{(2)}$ e $\bar{\rho}_{jj}^{(2)}$ dados por (3.159) e $\bar{\sigma}_{ij}^{(2)}$ dado por (3.161).

Analisando os termos dentro dos colchetes da Eq. (3.167), vemos que $\bar{\sigma}_{i0}^{(3)}$ para um sistema de 4 níveis não só depende da população do i -ésimo estado excitado correspondente (1º termo), mas também das populações dos outros dois estados excitados (2º termo). Além disso, $\bar{\sigma}_{i0}^{(3)}$ depende também da coerência criada entre os estados excitados (3º termo). Tanto o 2º como o 3º termo são contribuições ausentes na solução para o sistema de 2 níveis.

Para extrair a parte real de (3.167), escrevemos o termo complexo $\bar{\sigma}_{ij}^{(2)}$ como

$$\bar{\sigma}_{ij}^{(2)} = Re\bar{\sigma}_{ij}^{(2)} + iIm\bar{\sigma}_{ij}^{(2)} \quad (3.168)$$

onde, da Eq. (3.161),

$$Re\bar{\sigma}_{ij}^{(2)} = \frac{\Omega_i \Omega_j^*}{(\omega_i - \omega_j)^2 + (\Gamma_i + \Gamma_j)^2/4} \left[\frac{(\omega_i - \omega_j)\delta_i + (\Gamma_i + \Gamma_j)\Gamma_i/4}{4\delta_i^2 + \Gamma_i^2} - \frac{(\omega_i - \omega_j)\delta_j - (\Gamma_i + \Gamma_j)\Gamma_j/4}{4\delta_j^2 + \Gamma_j^2} \right] \quad (3.169)$$

$$Im\bar{\sigma}_{ij}^{(2)} = \frac{\Omega_i \Omega_j^*}{(\omega_i - \omega_j)^2 + (\Gamma_i + \Gamma_j)^2/4} \left[\frac{-(\omega_i - \omega_j)\Gamma_i/2 + (\Gamma_i + \Gamma_j)\delta_i/2}{4\delta_i^2 + \Gamma_i^2} - \frac{(\omega_i - \omega_j)\Gamma_j/2 - (\Gamma_i + \Gamma_j)\delta_j/2}{4\delta_j^2 + \Gamma_j^2} \right] \quad (3.170)$$

Substituindo (3.168) em (3.167), reescrevemos $\bar{\sigma}_{i0}^{(3)}$ como

$$\begin{aligned}
\bar{\sigma}_{i0}^{(3)} &= \frac{1}{2} \frac{\delta_i - i\Gamma_i/2}{\delta_i^2 + \Gamma_i^2/4} \left[2\Omega_i \bar{\rho}_{ii}^{(2)} + \Omega_i \sum_{j \neq i} \bar{\rho}_{jj}^{(2)} + \sum_{j \neq i} \Omega_j \left(\text{Re} \bar{\sigma}_{ij}^{(2)} + i \text{Im} \bar{\sigma}_{ij}^{(2)} \right) \right] = \\
&= \frac{1}{2} \frac{\delta_i - i\Gamma_i/2}{\delta_i^2 + \Gamma_i^2/4} \left[2\Omega_i \bar{\rho}_{ii}^{(2)} + \Omega_i \sum_{j \neq i} \bar{\rho}_{jj}^{(2)} \right] + \\
&+ \frac{1}{2} \frac{\delta_i}{\delta_i^2 + \Gamma_i^2/4} \sum_{j \neq i} \Omega_j \left(\text{Re} \bar{\sigma}_{ij}^{(2)} + i \text{Im} \bar{\sigma}_{ij}^{(2)} \right) - \\
&- \frac{1}{2} \frac{i\Gamma_i/2}{\delta_i^2 + \Gamma_i^2/4} \sum_{j \neq i} \Omega_j \left(\text{Re} \bar{\sigma}_{ij}^{(2)} + i \text{Im} \bar{\sigma}_{ij}^{(2)} \right) \quad (3.171)
\end{aligned}$$

Portanto, a parte real da coerência de terceira ordem entre o estado fundamental e o i -ésimo estado excitado é dada por

$$\begin{aligned}
\text{Re} \bar{\sigma}_{i0}^{(3)} &= \frac{1}{2} \frac{\delta_i}{\delta_i^2 + \Gamma_i^2/4} \left[2\Omega_i \bar{\rho}_{ii}^{(2)} + \Omega_i \sum_{j \neq i} \bar{\rho}_{jj}^{(2)} \right] + \\
&+ \frac{1}{2} \frac{\delta_i}{\delta_i^2 + \Gamma_i^2/4} \sum_{j \neq i} \Omega_j \text{Re} \bar{\sigma}_{ij}^{(2)} + \frac{1}{2} \frac{\Gamma_i/2}{\delta_i^2 + \Gamma_i^2/4} \sum_{j \neq i} \Omega_j \text{Im} \bar{\sigma}_{ij}^{(2)} \quad (3.172)
\end{aligned}$$

com $\bar{\rho}_{ii}^{(2)}$ e $\bar{\rho}_{jj}^{(2)}$ dados por (3.159), $\text{Re} \bar{\sigma}_{ij}^{(2)}$ dado por (3.169) e $\text{Im} \bar{\sigma}_{ij}^{(2)}$ dado por (3.170).

Como os cálculos anteriores foram desenvolvidos para átomos em repouso, devemos fazer uma integração em velocidade semelhante à Eq. (3.72), para levar em conta as velocidades dos átomos do sistema.

No Capítulo 5 apresentamos os resultados finais de n_2 integrados numericamente, tanto para o modelo de dois como para o de quatro níveis. Apresentamos também a comparação com os valores experimentais encontrados. Antes, descrevemos no Capítulo 4 a montagem experimental desenvolvida para a realização deste trabalho.

Capítulo 4

Z-scan em vapor de césio: montagem experimental

Neste capítulo descrevemos em detalhes todo o aparato experimental desenvolvido para a realização do experimento de z-scan no vapor atômico de césio. Utilizamos essa montagem para o estudo da não-linearidade na linha D_2 . Inicialmente discutiremos sobre o átomo utilizado (césio) e sua estrutura fina e hiperfina. Em seguida discutiremos a montagem experimental propriamente dita, incluindo alguns aspectos teóricos necessários.

A Figura 4.1 representa toda a montagem experimental desenvolvida para a realização deste trabalho. Todos os componentes (célula de césio, fonte laser, isolador ótico, absorção saturada, cavidade Fabry-Pérot, fibra ótica e célula) serão discutidos detalhadamente ao longo deste capítulo. O leitor deve referir-se a essa figura sempre que necessário.

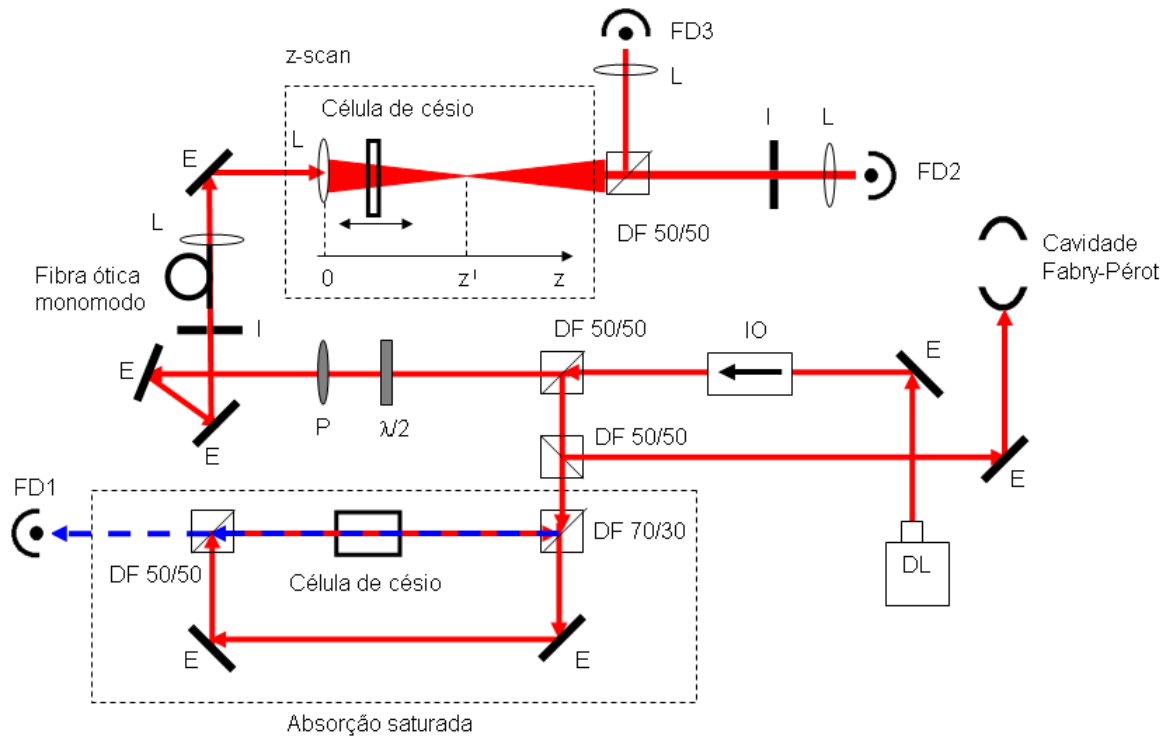


Figura 4.1: Montagem experimental utilizada. Legenda: DF: divisor de feixe, DL: diodo laser, E: espelho, FD: fotodetector, I: íris, IO: isolador ótico, $\lambda/2$: lâmina de meia onda, L: lente, P: polarizador.

4.1 O átomo de césio

O césio utilizado nos experimentos é o isótopo 100% naturalmente abundante ^{133}Cs . É um metal alcalino e líquido à temperatura ambiente, além de muito reativo com a água. O átomo de césio possui número atômico $Z = 55$ e contém apenas 1 elétron na camada de valência, de acordo com a distribuição eletrônica

$$1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 4s^2 3d^{10} 4p^6 5s^2 4d^{10} 5p^6 6s^1 = [\text{Xe}]6s^1$$

isto é, o elétron no nível $6s$ pode ser excitado para subníveis superiores.

Numa visão clássica, uma vez que o elétron gira em torno do núcleo do átomo, deveríamos *a priori* considerar apenas o momento angular orbital $\vec{L}$ do elétron em torno do núcleo do átomo. Entretanto, devemos também considerar os momentos angulares de spin do elétron e do núcleo, que originam, respectivamente:

- *Acoplamento spin-momento angular orbital:* no referencial do elétron, o núcleo orbita em torno do elétron. Isso produz um campo magnético que interage com o spin do elétron. O acoplamento spin-órbita origina a estrutura fina do átomo.
- *Acoplamento com o spin nuclear:* no referencial do núcleo, o elétron orbita em torno do núcleo. Isso produz um campo magnético que interage com o spin do núcleo. O acoplamento com o spin nuclear origina a estrutura hiperfina do átomo.

De acordo com a Mecânica Quântica [30], o momento angular $\vec{F}$ total do átomo é dado por

$$\vec{F} = \vec{L} + \vec{S} + \vec{I} = \vec{J} + \vec{I} \quad (4.1)$$

onde $\vec{L}$ é o momento angular orbital do elétron em torno do núcleo, $\vec{S}$ é o spin do elétron, $\vec{I}$ é o spin do núcleo e $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$. As regras de quantização para o quadrado do módulo desses vetores são

$$|\vec{J}|^2 = \hbar^2 j(j+1) \quad (4.2)$$

$$|\vec{L}|^2 = \hbar^2 l(l+1) \quad (4.3)$$

$$|\vec{S}|^2 = \hbar^2 s(s+1) \quad (4.4)$$

$$|\vec{F}|^2 = \hbar^2 F(F+1) \quad (4.5)$$

$$|\vec{I}|^2 = \hbar^2 I(I+1) \quad (4.6)$$

onde $s = 1/2$ (número quântico de spin do elétron). Já as condições de adição do momento angular resultam nas relações

$$j = l \pm \frac{1}{2}, \quad \text{com } j > 0 \quad (4.7)$$

$$F = j + I, j + I - 1, \dots, |j - I + 1|, |j - I| \quad (4.8)$$

Para o césio, o spin nuclear é $I = 7/2$. O elétron no nível $6s$ possui o número quântico $l = 0$, o que fornece $j = 1/2$ e $F = 3, 4$. Em notação espectroscópica¹, esse nível é escrito como $6S_{1/2}$. O próximo nível de transição, o primeiro estado excitado $6p$, possui número quântico $l = 1$, de onde $j = 1/2$ (o que resulta em $F = 3, 4$) e $j = 3/2$ (de onde obtemos $F = 2, 3, 4, 5$). Na notação espectroscópica, este nível é escrito como $6P_{1/2}$ e $6P_{3/2}$. O par de níveis $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$ é conhecido como a linha D_1 do césio, enquanto que a transição entre o par de níveis $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ é conhecida como a linha D_2 do césio, o qual representamos na Figura 4.2.

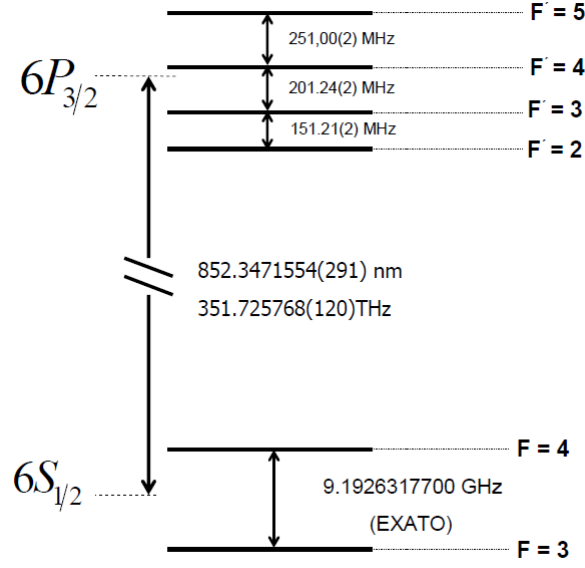


Figura 4.2: Linha D_2 do césio com a estrutura hiperfina para os níveis fundamentais e excitados. A transição $F = 3 \leftrightarrow F = 4$ é exata porque é utilizada para a definição do segundo.

4.2 Fonte laser

Já estava montada e disponível no laboratório uma fonte laser para ser utilizada nesse experimento [31]. O feixe laser colimado provém de um diodo laser semiconductor, o qual é alimentado por uma fonte de corrente e um sistema com controlador de temperatura. A fonte de corrente fornece uma corrente em torno de 80 mA para emitir $42,3 \text{ mW}$ de potência no comprimento de onda de $852,351 \text{ nm}$ (comprimento de ressonância da linha D_2 do césio) em modo contínuo. Já o controlador de temperatura estabiliza a temperatura através de um elemento Peltier integrado ao suporte comercial do laser.

O diodo laser é do tipo AlGaAs com heteroestrutura (modelo SDL-SPECIAL AV 222), possuindo uma estrutura integrada de estabilização dinâmica de frequência com refletores de Bragg do tipo DBR (Distributed Bragg Reflector) no chip semiconductor.

Após ser obtida a emissão de um feixe laser fortemente divergente, o mesmo foi colimado com o auxílio de uma lente objetiva plano-convexa, com 8 mm de distância focal. Para a colimação, a lente deve ser colocada numa posição tal que o foco do feixe de saída

¹A notação espectroscópica é nL_j , onde n representa a camada do elétron e L o subnível, além do número quântico j .

esteja no “infinito”. Na prática, procuramos garantir que o feixe estivesse bem colimado em distâncias de cerca de cinco metros.

O diodo laser com os elementos para o controle de temperatura e a lente objetiva foram montados em um suporte de alumínio simples, com poucas partes móveis, com o objetivo de garantir a estabilidade mecânica do sistema (Figura 4.3).

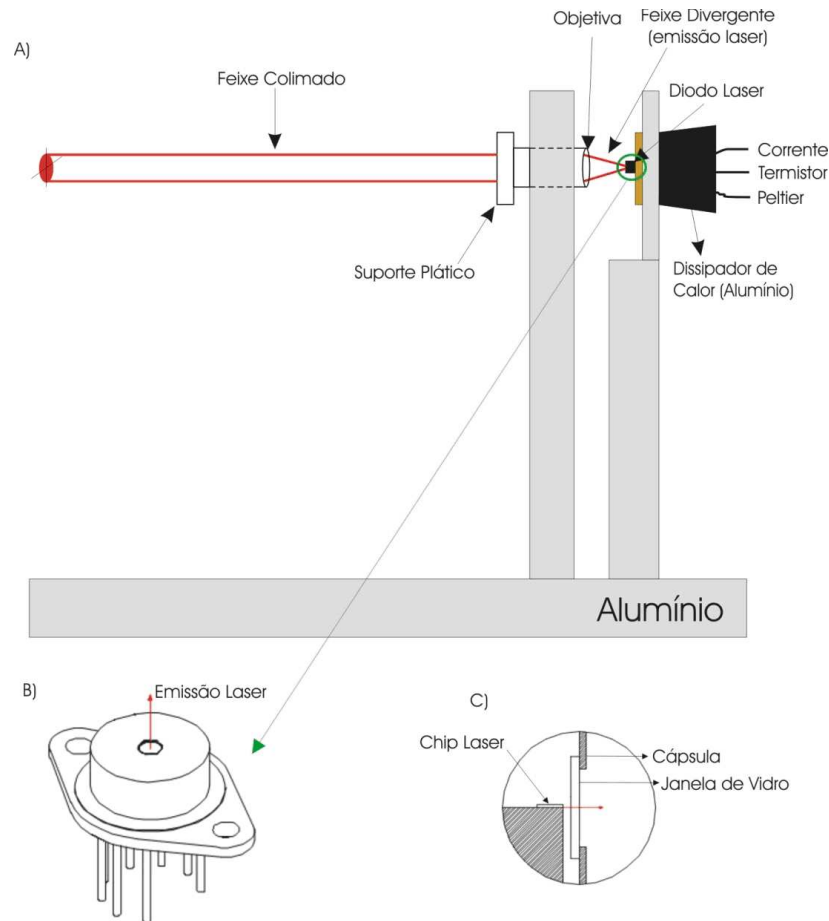


Figura 4.3: (a) Esquema do suporte de alumínio onde estão montados o diodo laser e os elementos para o controle de temperatura. (b) Diodo laser numa visão externa e (c) interna.

Após a colimação, o sistema foi isolado por uma caixa de acrílico (Figura 4.4), cujo objetivo é proteger o sistema de agentes externos, sobretudo de correntes de ar, que façam flutuar a temperatura e portanto a frequência do laser.

Apresentamos a seguir uma discussão sobre o funcionamento do laser semiconductor. Antes, comecemos apresentando a idéia geral de funcionamento de uma fonte laser.

A luz laser (*LASER = Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation*, amplificação da luz por emissão estimulada de radiação) foi desenvolvida nos anos 60 [32] a partir das idéias sobre emissão estimulada de Einstein. É uma luz bastante utilizada em laboratórios de ótica devido às suas propriedades especiais:

- *Monocromaticidade:* a luz laser é monocromática, isto é, possui comprimento de onda e frequência bem definidos;
- *Coerência:* todos os fótons da luz laser possuem a mesma fase;

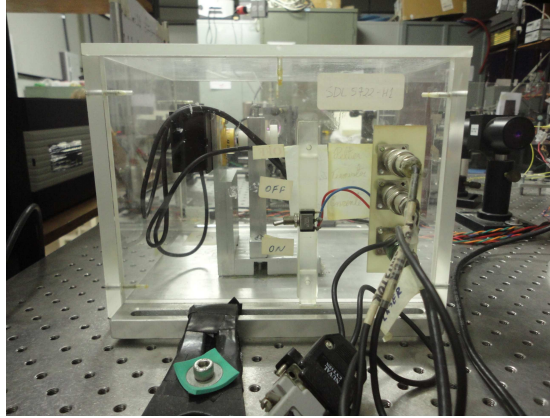


Figura 4.4: Fotografia da fonte laser utilizada. A montagem do laser está protegida por uma caixa de acrílico, isolando o sistema da poeira ambiente e de correntes de ar.

- *Direcionalidade*: uma vez colimada, a luz laser propaga-se paralelamente próxima ao eixo de propagação. A divergência está apenas determinada pelos limites da difração.

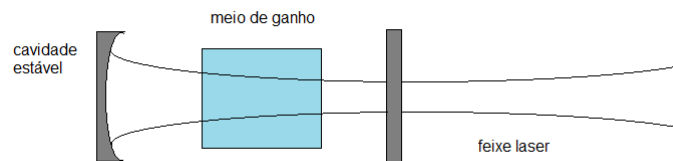


Figura 4.5: Esquema de uma fonte laser. A cavidade ótica, o meio de ganho e uma fonte externa de bombeio (não representada) são os elementos principais para o funcionamento de uma fonte laser.

Para produzir uma fonte laser (Figura 4.5), em geral são necessários três elementos:

- *Cavidade ótica estável*: a cavidade laser é uma cavidade ressonante formada por dois espelhos refletores (geralmente esféricos) dispostos de frente entre si, com o objetivo de confinar a radiação. A luz é refletida várias vezes nos espelhos e será amplificada por interferência construtiva se a cavidade obedecer a certas condições de estabilidade, as quais dependem dos raios de curvatura dos espelhos e da distância entre eles [33]. As sucessivas reflexões da luz produzirão ondas estacionárias dentro da cavidade: cada uma delas é denominada modo longitudinal [34] e possui apenas uma frequência permitida. Além dos modos longitudinais, há ainda os modos transversais, devido às condições de contorno impostas pelas paredes laterais da cavidade. No caso da cavidade laser, os modos transversais são os modos gaussianos TEM_{mn} , onde o modo gaussiano fundamental TEM_{00} é o de menor ordem entre eles.
- *Meio de ganho*: é o material a ser colocado dentro da cavidade, entre os espelhos. Seu objetivo é produzir a amplificação da luz através do processo de emissão estimulada. Os átomos do material em questão estão no estado fundamental e no estado excitado,

e a competição entre absorção e amplificação (perdas e ganho, respectivamente) determina se a luz laser será produzida. O tipo de meio de ganho determina o tipo de laser (por exemplo, no laser de He-Ne o meio de ganho é uma mistura dos gases nobres hélio e neônio). Inúmeros outros tipos, também líquidos e sólidos foram demonstrados e aplicados. Através da amplificação ótica, o meio de ganho e a cavidade produzirão radiação coerente.

- *Fonte externa de bombeio:* lasers necessitam de energia de uma fonte externa para manter o sistema fora do seu equilíbrio termodinâmico e assim garantir a inversão de população necessária para o funcionamento do laser. A inversão de população ocorre quando há mais átomos no estado excitado do que no fundamental. Esta condição é fundamental para que haja amplificação ótica [13], através da emissão estimulada.

Na próxima subseção discutiremos particularmente os lasers semicondutores, o tipo de laser utilizado neste trabalho.

4.2.1 Laser semicondutor: estrutura física

O laser semicondutor (ou diodo laser) é constituído por materiais semicondutores como meio de ganho em uma junção, de modo que o bombeio ótico é fornecido através da corrente elétrica nessa junção. O meio é essencialmente formado por duas camadas dopadas do tipo n (que contém excesso de elétrons) e p (que contém falta de elétrons, ou buracos) [35], que formam a junção p-n.

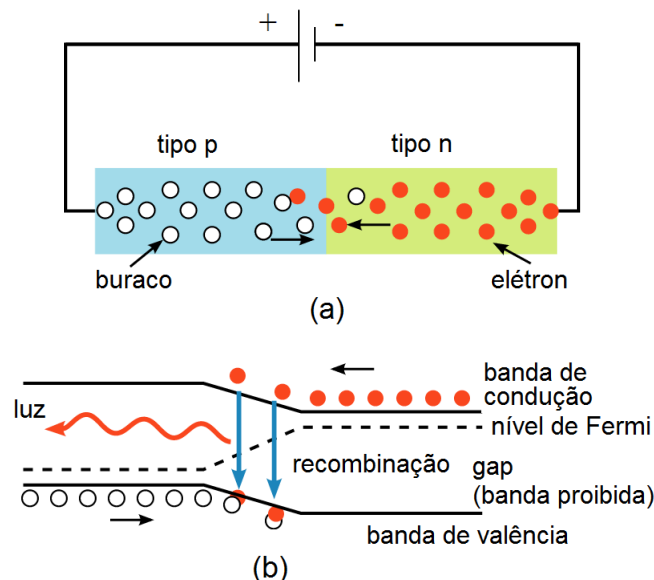


Figura 4.6: (a) Estrutura interna de um laser semicondutor. Os buracos e os elétrons são os portadores de carga e são injetados na região ativa devido a uma corrente elétrica externa. (b) Diagrama de banda para o laser semicondutor. Um elétron decai da banda de condução para a banda de valência e emite luz.

Entre as duas camadas existe uma região chamada de região ativa (ou região de depleção). Quando uma corrente elétrica é injetada no material, ela injeta buracos e elétrons

para a região ativa (Figura 4.6 (a)). Ao encontrar um buraco, o elétron ocupa o estado do buraco e emite um fóton espontaneamente (Figura 4.6 (b)).

A luz é confinada pelas superfícies laterais do cristal que revestem o meio de ganho. Tais superfícies possuem índice de refração maior que o do meio, de modo que o meio comporta-se como uma guia de onda para a radiação. A luz propaga-se no meio de ganho através da reflexão interna total (Figura 4.7 (a)). Já as extremidades do cristal são clivadas para formar uma cavidade ótica, de modo a permitir a amplificação da radiação através de reflexões sucessivas nas extremidades (Figura 4.7 (b)).

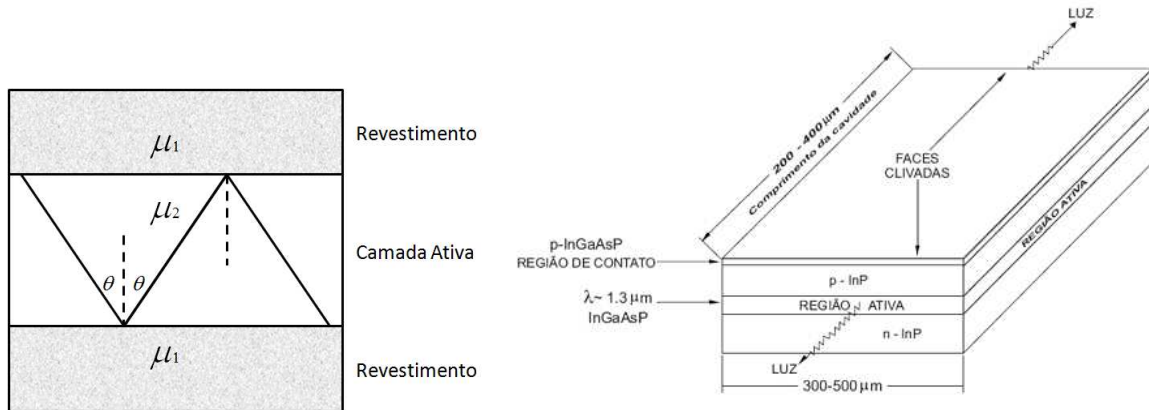


Figura 4.7: (a) Onda guiada em um laser semiconductor através da reflexão interna total. Os índices de refração são denotados por μ_1 e μ_2 e temos $\mu_1 < \mu_2$. (b) Esquema externo de um laser semiconductor. A luz é emitida pelas extremidades clivadas.

Na cavidade ótica, formam-se os modos longitudinais e transversais de propagação para o feixe laser [33]. Os modos longitudinais são os padrões de ondas estacionárias, devidos às sucessivas reflexões da radiação nas extremidades da cavidade. Já os modos transversais são os modos transversais elétrico e magnético gaussianos (modos TEM_{00}), impostos pelas condições de contorno das paredes laterais da cavidade. O feixe resultante, que se propaga ao sair da cavidade, é a combinação linear desses modos longitudinais e transversais [34]. Como queremos apenas o modo fundamental para a realização do experimento de z-scan, colocamos uma fibra ótica monomodo (seção 4.5) a fim de filtrar apenas esse modo.

4.3 Isolador ótico

Ao sair do meio laser, o feixe colimado passa por um isolador ótico, dispositivo ótico que impede que parte do feixe retorne ao meio de ganho após eventuais reflexões no experimento. O funcionamento de um isolador ótico é baseado no efeito Faraday, que é discutido a seguir.

O efeito Faraday é a propriedade de um material de girar a polarização da luz quando o mesmo é sujeito a um campo magnético. No isolador ótico (Figura 4.8), o comprimento do material é tal que a luz é girada de 45° , após entrar na direção do polarizador P_1 e sair na direção do polarizador P_2 . Essa é a direção de transmissão do isolador. No sentido inverso, a luz retorna na direção do laser. Se sua polarização for ortogonal à transmissão de P_2 ela é bloqueada, caso contrário ela é transmitida e girada de 45° na direção x , e assim é barrada por P_1 .

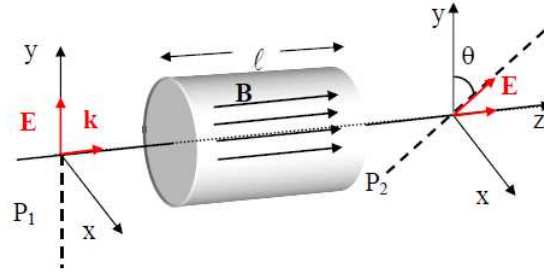


Figura 4.8: Esquema de um isolador ótico.

4.4 Absorção saturada e cavidade Fabry-Pérot

Após o isolador ótico, o feixe foi dividido em dois com o auxílio de um divisor de feixes. Um dos feixes alimenta o experimento z-scan propriamente dito e o outro feixe é direcionado para duas montagens auxiliares: uma absorção saturada e uma cavidade Fabry-Pérot. Ambas são usadas para fornecer referências em frequência do laser em relação às transições atômicas na linha D_2 do césio e um pente de frequências de intervalo de 1,5 GHz.

4.4.1 Absorção saturada

A absorção saturada [36] [37] é uma montagem auxiliar cujo objetivo é determinar precisamente a frequência de transição atômica entre dois níveis de um átomo livre de efeito Doppler. Através dela determinaremos as transições $F = 4 \rightarrow F' = 3, 4, 5$ na linha D_2 do césio.

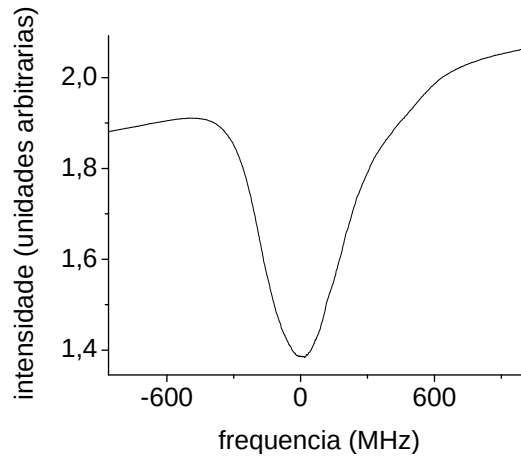


Figura 4.9: Espectro de absorção linear para o césio. O nível de intensidade fora de ressonância varia porque a varredura é feita através de corrente, o que resulta em uma pequena variação da intensidade do laser. A frequência é varrida variando-se a corrente da fonte laser, e a escala horizontal é estabelecida em frequência com o auxílio do espectro de intensidade da cavidade Fabry-Pérot (subseção 4.4.2.).

Um vapor de césio dentro de uma célula de vidro à temperatura ambiente pode ser visto como um gás ideal onde seus átomos se movem aleatoriamente. As componentes das suas velocidades seguem a distribuição de velocidades de Maxwell-Boltzmann. Quando o

sistema é iluminado por um feixe laser de frequência ω_L , ocorre o alargamento Doppler: devido ao efeito Doppler, cada átomo, cuja frequência de ressonância é ω_0 , vê o feixe com frequência ω dada por

$$\omega = \omega_L \left(1 \pm \frac{v}{c} \right) \quad (4.9)$$

Quando a frequência ω_L do laser é variada em torno de ω_0 , os átomos absorvem a radiação, pois cada um deles possui velocidade v tal que vêem a frequência do laser ressonante, isto é, $\omega = \omega_0$. Assim, o espectro completo de absorção será alargado, passando a ser dominado pela distribuição de velocidades de largura $\Gamma_D = \omega_L v/c = kv$. Esse espectro é chamado de absorção linear (Figura 4.9).

Uma vez que a largura da curva gaussiana é bem maior que a largura das transições permitidas $F = 4 \rightarrow F' = 3, 4, 5$ na linha D_2 do césio, então, para determinar essas últimas, a montagem da absorção saturada utiliza um sistema com dois feixes contra-propagantes (Figura 4.10) com mesma frequência ω_L (ou seja, provenientes da mesma fonte laser). Cada átomo então verá o feixe de bombeio com frequência $\omega_B = \omega_L \left(1 + \frac{v}{c} \right)$ e o feixe sonda com frequência $\omega_S = \omega_L \left(1 - \frac{v}{c} \right)$. Quando ω_L varia em torno de ω_0 , acontece o seguinte: se $\omega_L < \omega_0$, os átomos que se movem na direção do feixe sonda verão sua frequência maior, e se sua velocidade v é tal que $\omega_S = \omega_0$, a transição ocorre: eles absorvem o feixe sonda e essa absorção é detectada pelo fotodetector. Esses mesmos átomos se afastam do feixe de bombeio, então verão o mesmo com frequência $\omega_B < \omega_L < \omega_0$, ou seja, mais distantes ainda da ressonância. Uma situação análoga ocorre para o caso em que $\omega_L > \omega_0$.

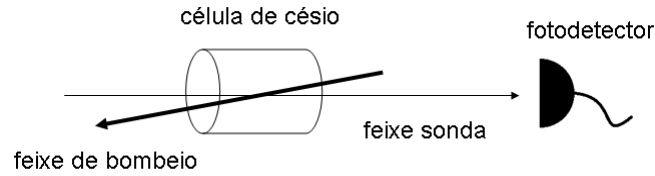


Figura 4.10: Montagem da absorção saturada, onde o césio é submetido a dois feixes contra-propagantes. O feixe de bombeio está inclinado para melhor visualização.

Entretanto, os átomos com velocidade $v = 0$ vêem os dois feixes com a mesma frequência $\omega_S = \omega_B = \omega_L$. E quando $\omega_L = \omega_0$, a alta intensidade do feixe de bombeio causa a transição dos átomos dessa classe de velocidade. Assim, tais átomos vão para o estado excitado e não absorvem o feixe sonda. Portanto, o feixe sonda é transmitido na frequência $\omega_L = \omega_0$, e assim aparece um pico nesta frequência no espectro da absorção linear.

Para átomos multiníveis, aparecem vários picos referentes a cada transição hiperfina possível. Entretanto, aparecem também picos de cruzamento de níveis (“crossover”). Os picos de crossover surgem devido à possibilidade de os átomos a uma dada velocidade v estarem ressonantes com ambos os feixes em duas transições diferentes.

Para fixar as idéias, sejam ω_1 e ω_2 duas frequências de transição do átomo, de modo que o mesmo vê o feixe sonda na frequência $\omega_S = \omega_1$ e o de bombeio na frequência $\omega_B = \omega_2$. Supomos que o átomo esteja se aproximando do feixe de bombeio. Como

$$\omega_B = \omega_L \left(1 + \frac{v}{c}\right) \quad (4.10)$$

$$\omega_S = \omega_L \left(1 - \frac{v}{c}\right) \quad (4.11)$$

somando as duas relações anteriores e isolando ω_L , obtemos

$$\omega_L = \frac{\omega_S + \omega_B}{2} = \frac{\omega_1 + \omega_2}{2} \quad (4.12)$$

A mesma relação acima é obtida para os átomos que se movem com velocidade v na direção do feixe sonda.

Em palavras, o feixe de bombeio satura a transição atômica nas frequências ω_1 e ω_2 , e isto acontece quando a frequência do feixe é dada pela Eq. (4.12). Portanto, para cada par de picos existe uma transição crossover cuja frequência é a metade das frequências entre as duas transições correspondentes.

Para o césio, há três níveis excitados na transição $F = 4 \rightarrow F' = 3, 4, 5$, de modo que aparecem três picos no espectro da absorção saturada e três picos de crossover. O espectro de absorção saturada para o césio está representado na Figura 4.11.

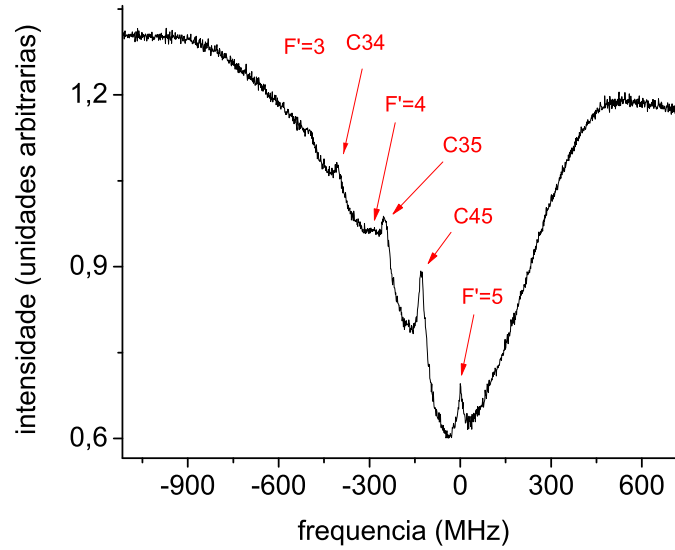


Figura 4.11: Espectro de absorção saturada do césio, visto em um osciloscópio. Os picos correspondem às transições $F = 4 \rightarrow F' = 3, 4, 5$ e aos crossovers C34, C35 e C45.

4.4.2 Cavity Fabry-Pérot

A cavidade Fabry-Pérot tem o objetivo de calibrar em frequência a varredura horizontal do osciloscópio. Isto permite controlar a dessintonização do laser.

A cavidade Fabry-Pérot é um interferômetro óptico que consiste de dois espelhos esféricos semi-refletores [13]. A luz incidente sofre múltiplas reflexões, de modo que os feixes transmitidos após os espelhos se somam e originam um padrão de interferência dado pela

função de Airy (Figura 4.12). Quando o fator de fase é otimizado, isto é, quando a distância entre os espelhos é um múltiplo semi-inteiro do comprimento de onda da radiação, a transmissão é máxima.

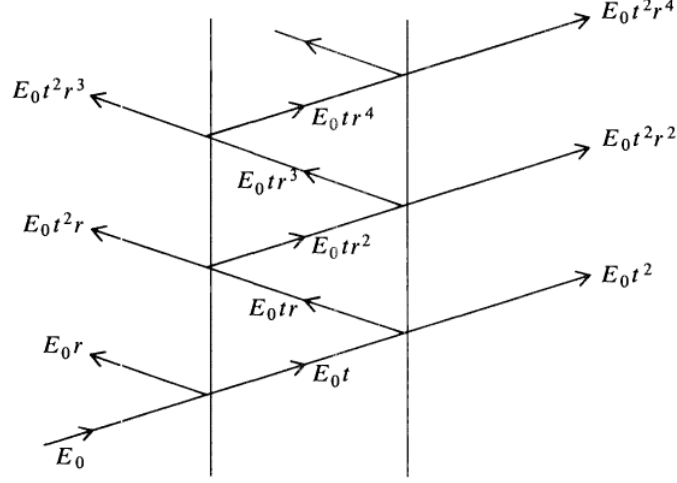


Figura 4.12: Múltiplas reflexões e transmissões de um feixe de luz entre dois espelhos. É indicada a fração do campo transmitido e refletido em cada interface: o coeficiente de reflexão da amplitude é r e o coeficiente de transmissão é t .

A cavidade Fabry-Pérot utilizada tem uma distância entre os picos de 1,5 GHz (Figura 4.13). A partir desse espectro, calibramos a escala do osciloscópio via regra de três: o intervalo em unidades arbitrárias entre os dois picos corresponde a 1,5 GHz. Como a frequência emitida pelo laser depende da corrente de alimentação, ao variarmos a corrente, a frequência varia, e os picos se deslocam. Através de regra de três, sabemos a fração da escala que devemos deslocar para uma dada dessintonização.

4.5 Lâmina de meia onda e polarizador

Antes de alimentar o experimento de z-scan propriamente dito, o feixe laser passa por uma lâmina de meia onda, por um polarizador e por uma fibra ótica monomodo. A lâmina de meia onda e o polarizador, dispostos um após o outro, possuem o objetivo de controlar a intensidade do feixe laser no experimento de z-scan. Já a fibra ótica possui a função de transmitir apenas o modo gaussiano fundamental. Nesta seção discutiremos a lâmina de meia onda e o polarizador, enquanto que na próxima seção discutiremos a fibra ótica monomodo.

O polarizador é uma espécie de filtro que transmite a luz com uma determinada polarização; no nosso caso, aquela cujo campo está oscilando em um plano paralelo à mesa. Já uma lâmina de meia onda é uma placa constituída por um cristal anisotrópico uniaxial. Tal cristal possui um eixo de simetria fixo denominado eixo ótico, com índice de refração n_E (conhecido na literatura como índice de refração extraordinário) e todos os eixos perpendiculares a esse eixo fixo possuem índice de refração n_O (conhecido na literatura como índice de refração ordinário) [39]. Quando um feixe de luz linearmente polarizado incide sobre o material, as componentes do campo elétrico paralela e perpendicular ao eixo ótico são refratadas com índices de refração n_E e n_O , respectivamente. Assim, a luz é

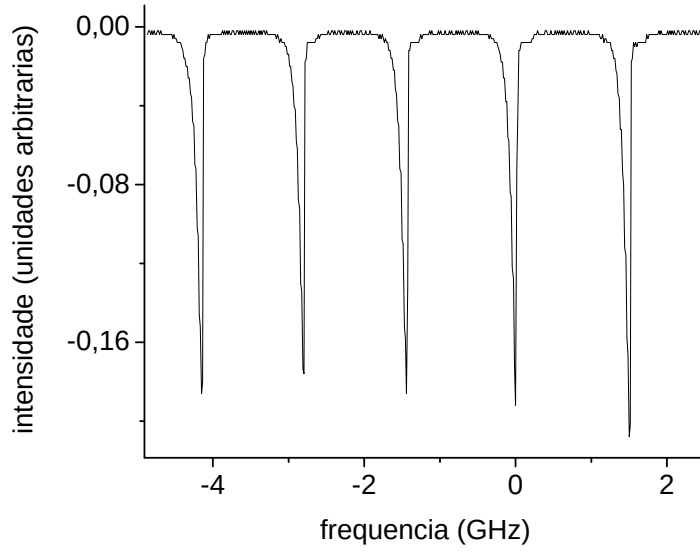


Figura 4.13: Espectro de transmissão do feixe laser após a cavidade Fabry-Pérot. Como o amplificador do fotodetector inverte o sinal, os picos aparecem invertidos.

dividida em dois feixes com polarizações lineares perpendiculares entre si. Esse fenômeno é chamado bi-refringência (Figura 4.14).

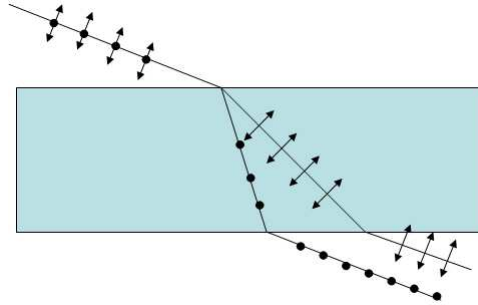


Figura 4.14: Separação dos feixes de luz em polarizações paralela e perpendicular ao atravessar um material bi-refringente.

Seja um cristal anisotrópico uniaxial com eixos ordinário e extraordinário e seja um feixe de luz incidente com polarização linear, como mostra a Figura 4.15. Para simplificar os cálculos, consideremos que o campo incidente forma um ângulo de 45° com o eixo x [13].

As componentes x e y do campo elétrico incidente são dadas por

$$E_x = E_0 e^{i(k_L z - \omega t)} \quad (4.13)$$

$$E_y = E_0 e^{i(k_R z - \omega t)} \quad (4.14)$$

onde $k_L = \frac{2\pi n_L}{\lambda_0}$ e $k_R = \frac{2\pi n_R}{\lambda_0}$ são os números de onda nas direções x e y , com n_L e n_R os índices de refração nessas direções, que podem ser ordinários ou extraordinários. O comprimento da lâmina é d , tal que na entrada da lâmina temos $z = 0$ e na saída $z = d$.

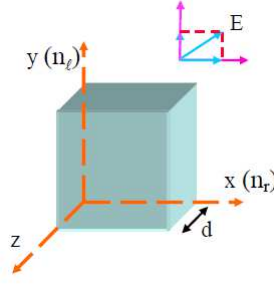


Figura 4.15: Luz polarizada linearmente incidente sobre uma lâmina bi-refringente.

A diferença de fase δ entre as componentes emergentes é dada por

$$\delta = (k_L - k_R)d = \frac{2\pi}{\lambda_0}(n_L - n_R)d = \frac{2\pi}{\lambda_0}\Delta \quad (4.15)$$

onde Δ é a diferença de caminho ótico, definida por $\Delta = (n_L - n_R)d$.

Para que os raios emergentes tenham polarização linear, a diferença de fase entre eles deve ser π . Portanto, a diferença de caminho ótico Δ deve ser

$$\Delta = \frac{\lambda_0}{2} \quad (4.16)$$

ou seja, o efeito total é que o campo elétrico incidente é girado de 90° para o ângulo de incidência de 45° , ou de 2θ , onde θ é o ângulo que a polarização faz com o eixo lento (ou rápido da lâmina). Uma lâmina desse tipo é chamada de lâmina de meia onda, cujo efeito total é girar a polarização linear de um campo elétrico incidente².

Ao colocarmos uma lâmina de meia onda e um polarizador dispostos um após o outro, o efeito total é reduzir a intensidade da luz incidente. A lâmina de meia onda possui a função de girar a polarização da luz, que é linear, uma vez que ela provém do isolador ótico com essa polarização. Ao passar pelo polarizador, apenas a componente do campo elétrico da direção do eixo do polarizador será transmitida. Portanto, girando-se a lâmina de meia onda, estamos girando a polarização linear da luz emergente, e assim modificamos a amplitude da componente paralela ao eixo do polarizador: para uma determinada posição da lâmina de meia onda, nenhuma luz é transmitida pelo polarizador, indicando que o campo elétrico da luz emergente é perpendicular ao eixo do polarizador. Girando-se a lâmina de meia onda de 90° em relação à posição de intensidade mínima, a luz transmitida pelo polarizador possui intensidade máxima, indicando que nesta direção o campo elétrico é paralelo ao eixo do polarizador.

4.6 Fibra ótica e feixe gaussiano

A fibra ótica monomodo possui a função de filtrar o modo fundamental gaussiano (TEM_{00}). O feixe, da maneira que sai da fonte laser, é uma combinação linear de vários modos longitudinais e transversais de propagação, e a fibra ótica monomodo possui o objetivo de transmitir apenas o modo gaussiano fundamental [34].

²Caso as componentes emergentes tenham uma diferença de fase de $\pi/2$, o que caracteriza uma luz com polarização circular, teríamos $\Delta = \lambda_0/4$. Uma lâmina deste tipo é chamada lâmina de quarto de onda, cujo efeito total é transformar luz com polarização linear em circular e vice-versa [13].

Foi utilizada uma fibra ótica monomodo da ThorLabs, código de referência PAF-X-5-B, distância máxima da cintura $4,3 \mu\text{m}$ e diâmetro da cintura na saída $0,86 \text{ mm}$ (Figura 4.16).

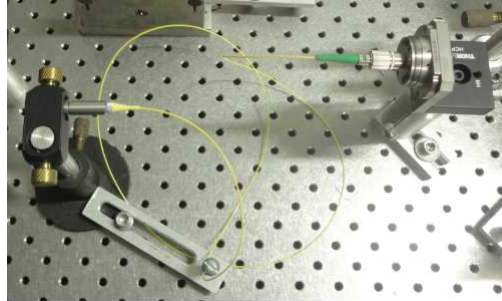


Figura 4.16: Fotografia da fibra ótica utilizada na montagem experimental.

O processo de alinhamento da fibra ótica no experimento está descrito a seguir.

Primeiramente devemos definir o eixo de propagação do feixe laser (eixo ótico). Isso é feito escolhendo-se dois pontos fixos e colimando o feixe entre eles (Figura 4.17). Usamos dois espelhos para aumentar os graus de liberdade e em seguida colocamos duas íris³, distantes uma da outra 1 m . Em seguida fixamos a altura das íris e ajustamos os espelhos de modo que o feixe fique colimado entre as duas íris.

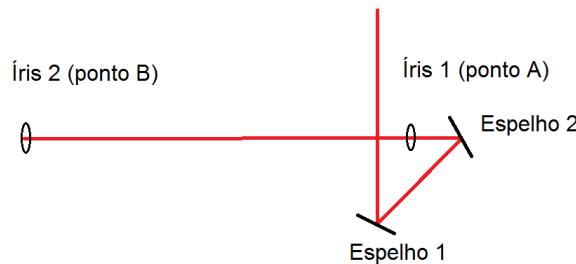


Figura 4.17: Definição de 2 pontos fixos A e B com o auxílio de dois espelhos e uma íris.

Em seguida, removemos a íris mais distante dos espelhos e colocamos a fibra ótica, de modo que sua entrada fique de frente para o feixe laser. Colocamos então uma câmera CCD na saída da fibra e ajustamos os graus de liberdade da entrada da fibra até vermos um brilho na saída. Daí substituímos a câmera por um medidor de potência e continuamos o ajuste dos graus de liberdade até que a potência medida esteja no valor desejado.

Medimos uma potência de entrada em torno de 12 mW e obtivemos a potência de 6 mW na saída da fibra, para uma corrente de 67 mA . O feixe laser na saída da fibra ótica está no modo gaussiano fundamental e é divergente, então colocamos uma lente de modo a colimá-lo.

Em uma montagem experimental anterior, havíamos usado um filtro espacial para filtrar o modo de menor ordem do feixe, ao invés da fibra ótica. O filtro apresentou problemas de desalinhamento constante, provavelmente devido a flutuações da temperatura do laboratório.

Convém aqui fazermos uma discussão sobre o filtro espacial, explicando o seu funcionamento e como foi alinhado.

³Na verdade, a primeira íris filtra os anéis de difração do feixe, permitindo que apenas sua parte central entre na fibra ótica.

4.6.1 Filtro espacial

O filtro espacial tem o objetivo de assegurar um perfil de feixe gaussiano no modo fundamental. É constituído por uma abertura (*pinhole*) colocada entre duas lentes (Figura 4.18), onde a primeira lente focaliza o feixe e a segunda lente torna o feixe novamente colimado.

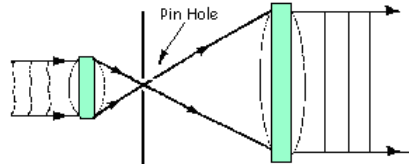


Figura 4.18: Estrutura do filtro espacial. Um feixe laser colimado, após passar por uma lente, converge e em seguida diverge. No ponto de convergência é colocado um pinhole.

O feixe proveniente da fonte laser contém vários modos de propagação, de modo que o mesmo não é uma onda plana⁴. Quando o feixe é focalizado pela primeira lente, o foco do feixe, ao invés de um ponto, será uma figura de difração (uma mancha circular brilhante rodeada por anéis de difração). Somente a luz no centro da mancha corresponde aproximadamente a uma onda plana [38], e o pinhole do filtro espacial deixa sobretudo essa “onda plana” passar. Pode-se demonstrar [40] que o padrão de difração corresponde a uma transformada de Fourier bi-dimensional da intensidade do feixe.

Para alinhar o filtro espacial, devemos coincidir os eixos óticos do filtro e do feixe laser. Para isto, devemos defini-los. O eixo ótico do laser foi definido da mesma forma já descrita para o alinhamento da fibra ótica (ver Figura 4.14). Já o eixo ótico do filtro espacial foi definido com o auxílio de uma lanterna e máscaras de papel (Figura 4.19 (a)). Retiramos a lente e o pinhole do filtro e fixamos com fita adesiva as máscaras de papel no suporte do filtro. Daí iluminamos com uma lanterna, posicionada distante o suficiente para que sua luz pareça colimada em relação ao filtro espacial. A luz da lanterna iluminará um dos papéis de modo que veremos um círculo de luz, e o centro deste círculo pertence ao eixo ótico do filtro espacial. Fazemos então um orifício no centro do círculo da folha de papel. Em seguida, repetimos o procedimento para a outra máscara de papel. O eixo ótico do filtro passa pelos dois orifícios centrais dos círculos.

Uma vez definidos os eixos óticos do feixe e do filtro espacial, o próximo passo é coincidi-los. Para isto, colocamos o filtro entre o feixe laser e ajustamos finamente os espelhos de modo que a luz laser passe pelos dois orifícios no papel e chegue à íris (Figura 4.19 (b)).

O próximo passo é retirar as máscaras de papel e colocar a lente do filtro espacial (Figura 4.19 (c)). A posição da lente deve ser ajustada de modo que o feixe continue chegando à íris. Em outras palavras, o feixe laser deve passar pelo eixo ótico da lente.

Por fim, colocamos o pinhole (Figura 4.19 (d)) e retiramos a íris. O pinhole utilizado possui 5 μm de diâmetro. Colocamos uma câmera CCD na saída do pinhole e ajustamos os graus de liberdade do pinhole até que vejamos um pequeno brilho no mesmo. Quando isto acontecer, retiramos a câmera e colocamos um medidor de potência, e continuamos ajustamos o pinhole até que a potência atinja o valor desejado.

⁴Nenhum feixe gaussiano é uma onda plana, e na verdade nenhum campo que se propaga em regiões finitas do espaço o é.

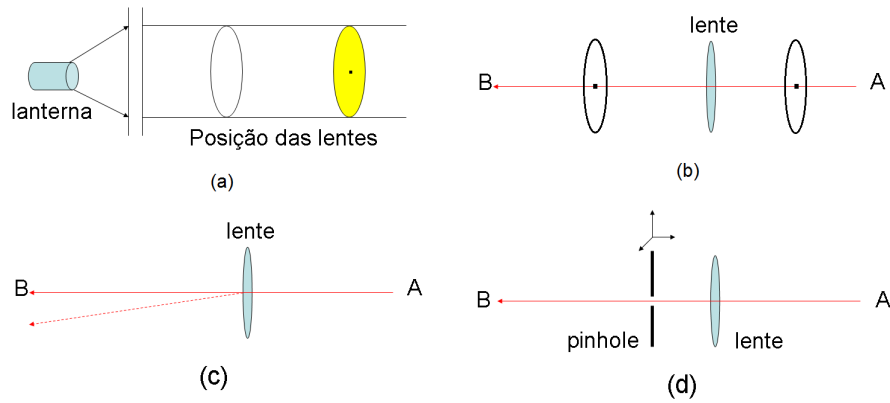


Figura 4.19: Procedimento de alinhamento do filtro espacial. (a) Definição de dois pontos fixos A e B com o auxílio de dois espelhos e uma íris. (b) Definição de um dos pontos do eixo óptico do filtro espacial com o auxílio de uma lanterna e uma máscara de papel (em amarelo). (c) Colocação da lente do filtro espacial. (d) Colocação do pinhole do filtro espacial.

4.7 Célula com vapor atômico

Após a fibra ótica, foi colocada uma lente convergente de 20 cm de distância focal para produzir um feixe gaussiano focalizado, e em seguida foi montado o experimento de z-scan propriamente dito. Tal aparato consiste de uma célula sobre um translador motorizado, que é o que discutimos nesta e na próxima seção.

Da mesma forma que a fonte laser, a célula utilizada no experimento também já estava pronta [31]. A célula onde o vapor de césio foi colocado consiste em um tubo de vidro em formato de L invertido (Figura 4.20). A parte inferior é o reservatório e a parte superior é o corpo da célula, com as janelas óticas. As dimensões do corpo da célula são 4 cm de comprimento, 2 cm de altura e 1 mm de espessura⁵.

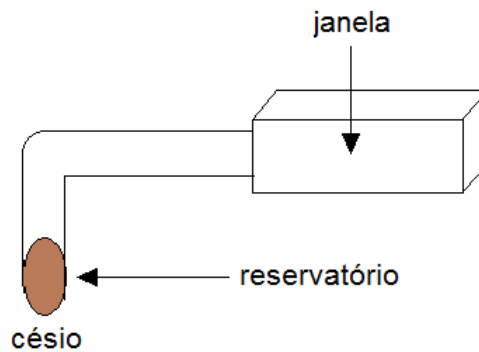


Figura 4.20: Esquema da célula utilizada no experimento. Uma gota de césio é colocada na parte inferior, o reservatório. O controle da temperatura dessa parte permite definir a pressão de vapor na célula.

⁵Conforme o capítulo 2, a espessura da célula deve ser muito menor que o comprimento de Rayleigh do feixe gaussiano, a fim de desprezarmos as variações do campo elétrico da luz dentro da célula. No capítulo 5, veremos que uma medida do comprimento de Rayleigh fornece o valor de 0,56 cm, o que satisfaz a hipótese considerada.

Para a preparação da célula [41], inicialmente foi feita uma limpeza cuidadosa e em seguida é feito vácuo em seu interior, com o auxílio de uma bomba de vácuo. Após um bombeio por vários dias e aquecimento da célula, foi introduzida na parte inferior uma gota de césio em fase condensada e na presença de gás nitrogênio, para evitar uma possível reação do césio com o vapor de água atmosférico.

Dois termopares foram colocados juntos à célula, um na região do reservatório e outro no “corpo” da mesma (Figura 4.21). Ambos permitem medir a temperatura nestes dois locais através da medida da tensão em seus terminais. A tensão medida entre os terminais dos termopares permite determinar a temperatura da célula através de uma tabela específica. Os termopares utilizados são do tipo K, Z-204, Nickel-Cromium vs Nickel-Aluminium, e a sua tabela de referência está disponível em [42].

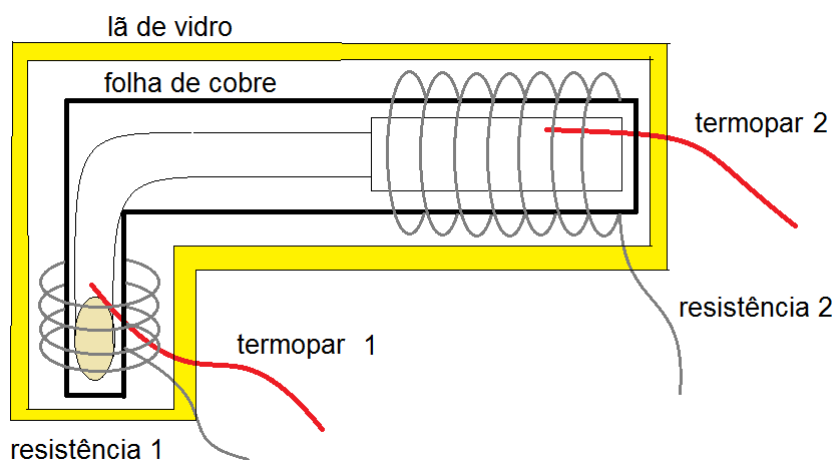


Figura 4.21: Esquema da estrutura interna do conjunto célula e forno. O papel alumínio e a fita de teflon não estão representados.

Em seguida, foi construído um forno para o aquecimento: toda a célula foi embrulhada com uma folha de cobre, em torno da qual foram enroladas duas resistências: uma no reservatório e outra no corpo da célula. As resistências são conectadas externamente a uma fonte de corrente, de modo que a corrente elétrica que passa por elas aquece a célula através do efeito Joule.

Por fim, o conjunto célula-forno é isolado termicamente do meio através de lã de vidro, papel alumínio e fita de teflon, os quais também permitem uma distribuição uniforme de temperatura nas regiões onde é feito o aquecimento.

Na realização de nossas medidas experimentais (ver Capítulo 5), a temperatura da janela da célula foi mantida superior à do reservatório. Mantivemos a diferença entre elas de no mínimo 20°C e no máximo 40°C.

4.8 Transladador motorizado

Para que se deslocasse ao longo da direção do feixe, a célula foi colocada em um translador motorizado (Figura 4.22). Tal equipamento contém um motor DC conectado a uma fonte de tensão e uma correia dentada que desloca uma base quadrada onde a célula foi colocada (Figura 4.23).

De acordo com [31], inicialmente foi utilizado um motor de passo como fonte de alimentação para o deslocamento da célula. Entretanto, verificou-se que o torque produzido

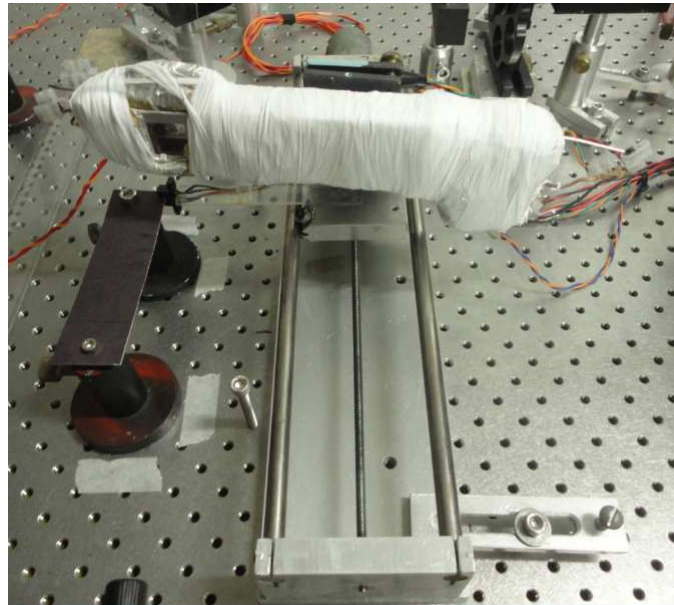


Figura 4.22: Fotografia do carrinho e da célula utilizados no experimento.

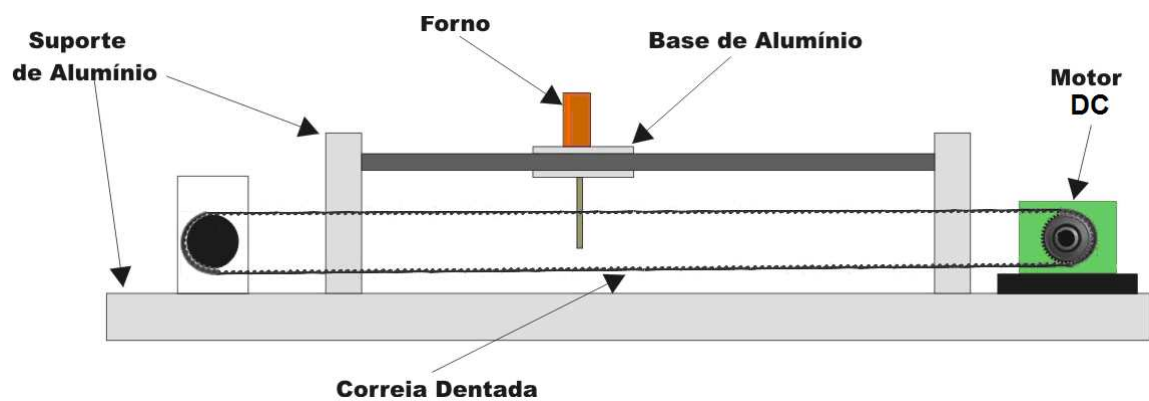


Figura 4.23: Transladador motorizado.

pelo mesmo gerava vibrações mecânicas que aumentavam a razão sinal/ruído.

Todo o sistema foi montado sobre um suporte de alumínio, que fica em contato com a mesa. O suporte foi construído grande o suficiente para minimizar efeitos mecânicos de vibração e tornar o deslocamento da célula o mais regular possível.

O motor DC foi conectado a um interruptor através de um circuito eletrônico, que permite alternar o sentido do movimento.

4.9 Sistema com optoacoplador para a determinação da posição da célula

Uma vez que a técnica z-scan consiste na medição do sinal de transmitância em função da posição da célula, então, para determinar esta última precisamente, foi montado um pequeno circuito eletrônico consistindo de um diodo emissor de luz (LED e fototransistor).

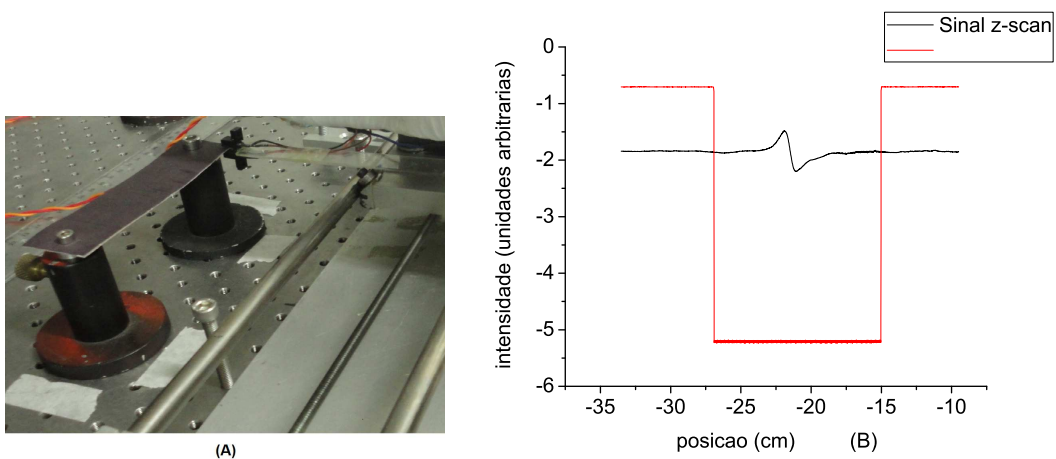


Figura 4.24: (a) Fotografia do LED e do cartão utilizados para a medida da posição da célula. (b) Gráfico de um sinal z-scan não normalizado (curva preta) e o pulso gerado pelo LED após o movimento da célula (curva vermelha).

O optoacoplador é constituído por um par diodo emissor de luz (LED) e um fototransistor.

(diodo e transistor) e possui um vão entre suas duas pequenas placas, por onde é emitida a luz. Quando a luz é bloqueada, o circuito eletrônico gera um sinal constante não-nulo no osciloscópio. Se a luz é desbloqueada, o sinal volta a ser nulo.

O LED foi colocado preso à base de alumínio onde foi colocada a célula (ver Figura 4.23). Sobre a mesa, foi colocado um cartão preto, de modo que o espaço entre as placas do LED passe pelo cartão com o movimento da célula (Figura 4.24 (a)). A posição das extremidades do cartão foi determinada com o auxílio de uma régua fixada à mesa. No osciloscópio, as extremidades do pulso gerado correspondem às extremidades do cartão, e assim podemos calibrar a escala do osciloscópio para a posição do LED e conseqüentemente da célula (Figura 4.24 (b)).

Após a célula, um divisor de feixe permite separar um feixe para medida de absorção não-linear e o outro para a dispersão não-linear. Para gerar o sinal de dispersão, colocamos uma íris entre o divisor de feixe e o fotodetector correspondente. A íris produzirá o sinal de z-scan, conforme o princípio dessa técnica [9].

No próximo capítulo apresentamos nossos resultados experimentais e a comparação com os modelos teóricos.

Capítulo 5

Medidas z-scan em vapor atômico de césio

Neste capítulo, apresentamos os resultados principais obtidos das medidas experimentais de varredura z (z-scan) em um vapor de césio. Além dos sinais z-scan experimentais, apresentamos os valores de n_2 obtidos e a comparação com os modelos teóricos de dois e de quatro níveis.

Começamos discutindo sobre a caracterização do feixe laser utilizado no experimento. Em seguida discutimos como foi feita a análise dos sinais obtidos e apresentamos as séries de medidas sistemáticas realizadas. Por fim, apresentamos os valores obtidos de n_2 e a comparação com os modelos teóricos. Mostramos que os resultados experimentais estão de acordo com o modelo teórico dentro da barra de erro do experimento.

5.1 Caracterização do feixe laser utilizado

Primeiramente fizemos uma caracterização do feixe laser utilizado no experimento, com o objetivo de determinar o valor da cintura mínima e do comprimento de Rayleigh. O feixe laser após a fibra ótica tem perfil gaussiano no modo fundamental. Para tal análise, usamos a técnica “knife-edge” (ver detalhes no Apêndice B).

Escolhemos 8 valores da posição z ao longo do eixo de propagação do feixe e para cada uma gravamos a curva da potência transmitida, como ilustrado na Figura 5.1. Em seguida ajustamos cada uma dessas curvas e obtivemos os valores da cintura w correspondentes.

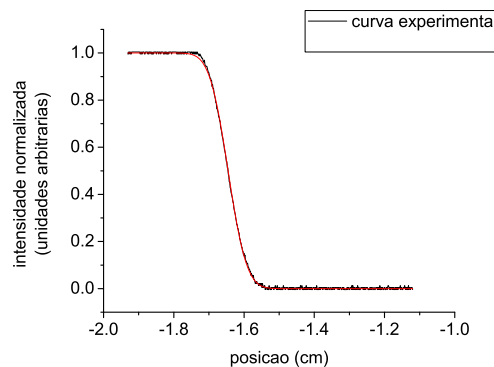


Figura 5.1: Perfil da intensidade normalizada em função da posição da lâmina. Medida feita para $z = 8$ cm.

z (cm)	w (cm)
5	0,09945
8	0,08308
11	0,06312
14	0,04376
17	0,0186
20	0,00429
23	0,02278
26	0,04434

Tabela 5.1: Valores do raio do feixe em função da posição z determinados com a técnica knife-edge.

A intensidade é definida como $I \propto e^{-r^2/w^2}$ na referência [43]. Para ajustar $w(z)$ com a intensidade definida na Eq. (2.42), que é proporcional a e^{-2r^2/w^2} , devemos multiplicar os w obtidos por $\sqrt{2}$ (Tabela 5.1). Em seguida, plotamos $w(z)$ versus z e fazemos um ajuste teórico com a própria função de definição do raio de um feixe gaussiano (Eq. 2.37),

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left[\frac{\lambda(z - z_0)}{\pi w_0} \right]^2} \quad (5.1)$$

onde λ é o comprimento de onda do feixe laser ($\lambda = 852,351$ nm), z_0 é a distância focal da lente convergente ($z_0 = 20$ cm) e w_0 é a cintura mínima do feixe, que é o que queremos (Figura 5.2).

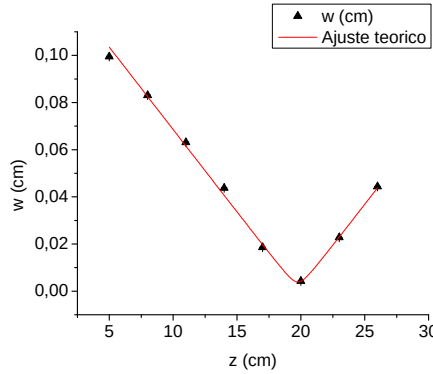


Figura 5.2: Ajuste teórico dos valores de w da Tabela 5.1 com a Eq. (5.1). A barra de erro para cada valor de w foi construída a partir do desvio padrão do respectivo ajuste teórico do perfil de intensidade. Esse desvio padrão é da ordem de 10^{-4} .

A partir do ajuste teórico, encontramos

$$w_0 = 39,4 \mu m \quad e \quad z_R = 0,56 \text{ cm} \quad (5.2)$$

com erro de ajuste teórico de 10^{-5} e 10^{-1} , respectivamente.

Para verificar se este valor está razoável, podemos calcular a cintura do feixe a partir da medida da transmitância S , dada por (ver Capítulo 2)

$$S = 1 - e^{-r^2/w^2}, \quad S = \frac{P}{P_0} \quad (5.3)$$

onde P é a potência transmitida pela abertura, P_0 é a potência total do feixe (potência de entrada na abertura), r é o raio da abertura e w o raio do feixe na abertura. Medimos $P = 0,94$ mW, $P_0 = 1,52$ mW e $r = 2$ mm, o que fornece $w = 2,88$ mm.

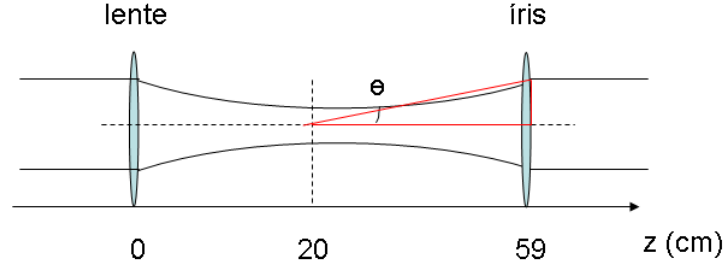


Figura 5.3: Aproximação de ótica geométrica para um feixe gaussiano propagando-se a campo distante.

Agora calculemos a cintura usando a aproximação de ótica geométrica (Figura 5.3). Como a distância d entre a íris e o foco do feixe é muito maior que o comprimento de Rayleigh z_R , aproximamos a divergência do feixe θ por $\tan \theta = \theta = \frac{w}{d}$ e igualamos com a definição $\theta = \frac{\lambda}{\pi w_0}$ (ver Capítulo 2, subseção 2.4.1). Obtemos

$$w_0 = \frac{\lambda d}{\pi w} \quad (5.4)$$

Substituindo os valores anteriores e usando $d = 59 - 20 = 39$ cm, obtemos

$$w_0 = 36,7 \mu m$$

o que é comparável em 8% com o valor fornecido pela técnica knife-edge.

5.2 Medidas sistemáticas

Foram realizadas duas séries de medidas sistemáticas para dois valores de densidades de vapor. Para isso, fixamos a temperatura do reservatório da célula: uma a 87°C e outra em torno de 60°C. A temperatura foi medida a partir da medida da voltagem entre os terminais dos termopares conectados à célula (ver Capítulo 4). A janela da célula foi mantida à temperatura superior a do reservatório, de forma que a diferença entre elas fosse de no mínimo de 20°C e no máximo 40°C. O objetivo desse gradiente de temperatura é evitar a condensação do césio no corpo da célula e conseqüentemente a formação de manchas escuras nas janelas da célula.

A temperatura de 87°C foi escolhida de forma a corresponder a uma densidade suficientemente alta para termos uma boa relação sinal/ruído, mas ainda dentro de uma faixa

onde os efeitos de pressão (alargamento por pressão na forma de linha) pudessem ser desprezados. Já a temperatura de 60°C foi escolhida como sendo menor que a anterior para tentar-se diminuir os efeitos de absorção, uma vez que esta diminui com a temperatura¹.

Para 87°C, a pressão e a densidade esperadas são $3,36 \times 10^{-7}$ atm e $6,28 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$, respectivamente. Já para 60°C, temos uma pressão de $4,61 \times 10^{-8}$ atm e densidade de $8,96 \times 10^{17} \text{ m}^{-3}$.

Para cada uma das séries, foram realizadas medidas sistemáticas variando-se dois parâmetros: a potência do laser na entrada da célula e a dessintonização da frequência. A potência do laser na entrada na célula foi obtida com um medidor de potência e ajustada com um atenuador preciso, constituído por uma lâmina de meia onda e um polarizador (ver Capítulo 4). Desta forma, garantimos que o alinhamento do laser não fosse modificado.

A dessintonização em relação ao centro da absorção foi ajustada através da corrente do laser e monitorada pelo deslocamento dos picos do Fabry-Pérot. Verificamos que a separação de 1,5 GHz entre dois picos do Fabry-Pérot correspondia a 25 sub-divisões de tempo na escala do osciloscópio, de modo que calibramos a escala do osciloscópio com este dado. A base de tempo é então mantida fixa. Aumentando-se a corrente do laser, o comprimento de onda do laser aumenta (de modo que sua frequência diminui). Medindo então quanto picos do Fabry-Pérot se deslocam e usando a escala calibrada, controlamos o quanto varremos em frequência.

Para evitar efeitos de “drift” da cavidade Fabry-Pérot, recalibramos a escala de intensidade para o valor inicial tomado como referência para cada medida. O “drift” é a taxa de variação de frequência com o tempo (MHz/min).

Um laser pode sair da ressonância com o passar do tempo, devido à flutuação da temperatura ambiente. Medimos então o “drift” da fonte laser, que é a variação de frequência do laser com o tempo (MHz/min), e obtivemos uma taxa de 11 MHz em 3,3 min. Como uma medida z-scan leva em média 30 segundos, a influência do drift do laser é desprezível.

As medidas sistemáticas foram feitas com deslocamentos em frequência para o vermelho ($\delta < 0$). A dessintonização foi medida a partir do pico da curva de absorção saturada que corresponde à transição $F = 4 \rightarrow F' = 5$ (pico de maior frequência; Figura 4.9).

Não fizemos medidas sistemáticas para o azul ($\delta > 0$), embora tenhamos gravado algumas curvas para algumas dessintonizações. Podemos afirmar que não são simétricas duas curvas z-scan para o vermelho e para o azul para o mesmo módulo da dessintonização, o que certamente resulta em valores distintos para n_2 . Isto ocorre simplesmente porque o modelo de quatro níveis não é simétrico, ao contrário do modelo de dois níveis. Observamos que a diferença entre os sinais z-scan para o azul e para o vermelho é mais acentuada quando estamos próximo à ressonância.

Para cada temperatura, potência e dessintonização, gravamos simultaneamente 3 curvas z-scan e 3 curvas de absorção não-linear. Fizemos duas curvas com o laser longe da ressonância atômica, com dessintonização em torno de 4,5 GHz para o vermelho, para que pudéssemos normalizar os sinais encontrados, evitando contribuições espúrias. Além disso, gravamos também a absorção linear em baixa potência para que pudéssemos determinar a densidade do césio, independentemente da medida com a temperatura do reservatório.

Próximo à ressonância (entre 0,6 e 1,0 GHz), trabalhamos num regime de baixas po-

¹A probabilidade de absorção é diretamente proporcional à densidade [4], e esta última é diretamente proporcional à pressão de vapor pela equação do gás ideal. Já a pressão de vapor é dada por $P[atm] = 10^{4,165 - 3830/T}$ [44]. Portanto, quando a temperatura diminui, a pressão de vapor diminui e isto faz com que a densidade diminua.

tências para evitar a saturação do vapor atômico. Longe da ressonância (a partir de 1,0 GHz), trabalhamos com potências maiores, uma vez que as contribuições da susceptibilidade de ordens superiores caem mais rapidamente que a susceptibilidade de terceira ordem (ver Capítulo 3).

A Tabela 5.2 resume os dados das duas séries de medidas realizadas, com os valores das temperaturas do reservatório, potências e dessintonizações para o vermelho.

<i>Temperatura</i>	<i>Potência</i>	<i>Dessintonização (GHz)</i>
$87 \pm 0,5 \text{ }^{\circ}\text{C}$	10 μW	0,6 a 0,9, passo 0,1
	50 μW	0,6 a 1,0, passo 0,1
	0,2 mW	0,6 a 1,4, passo 0,1
	0,5 mW	1,0, 1,1, 1,3, 1,5, 1,7 e 2,0
	1,0 mW	1,0, 1,1, 1,3, 1,5, 1,7 e 2,0
	4,0 mW	1,0, 1,1, 1,3, 1,5, 1,7 e 2,0
$60 \pm 2 \text{ }^{\circ}\text{C}$	10 μW	0,6 a 1,0, passo 0,1
	50 μW	0,6 a 1,0, passo 0,1
	0,5 mW	1,0, 1,1, 1,3, 1,5, 1,7 e 2,0
	1,0 mW	1,0, 1,1, 1,3, 1,5, 1,7 e 2,0
	2,0 mW	1,0, 1,0, 1,3, 1,5, 1,7 e 2,0

Tabela 5.2: Valores das temperaturas, potências e dessintonizações para o vermelho usados nas medidas sistemáticas z-scan.

5.3 Análise das medidas: normalização do sinal

Os sinais foram obtidos com um fotodetector e gravados em um osciloscópio digital, onde foram salvos em formato *csv* para análise com um programa gráfico de computador.

Conforme descrito no Capítulo 4, a determinação da posição da célula foi obtida através de um sistema eletrônico composto por um diodo emissor de luz (LED) (ver Capítulo 4). Quando a luz do LED é bloqueada, o circuito eletrônico emite um pulso no osciloscópio, o que permite calibrar a escala horizontal do mesmo em posição (ver Figura 4.22).

Para analisar os sinais obtidos, deve-se primeiramente fazer uma normalização, que consiste em dividir o sinal a ser analisado por outro sinal gravado fora da ressonância. O objetivo da normalização é retirar efeitos de imperfeições causadas quando a luz laser passa através da célula e outros elementos óticos (Figura 5.4).

Há uma diferença entre os sinais gravados perto e longe da ressonância atômica:

- *Sinais longe da ressonância:* Para os sinais obtidos longe da ressonância atômica (dessintonizações de 1,0 GHz a 2,0 GHz), os efeitos de absorção são pequenos, de modo que a normalização pela curva fora da ressonância torna satisfatória o ajuste teórico do sinal experimental.
- *Sinais próximos à ressonância:* Para os sinais próximos da ressonância (dessintonizações entre 0,6 e 1,0 GHz), os efeitos de absorção são predominantes, de modo que não é possível eliminá-los com a normalização. Para contornar esse problema, normalizamos esses sinais pela curva de absorção correspondente [11]. Apesar de não ser um procedimento preciso, este processo elimina os efeitos de absorção, tornando o sinal constante nas bordas e um perfil z-scan claramente visível.

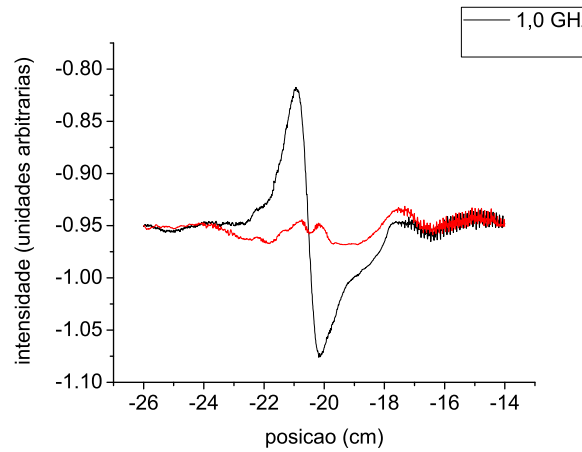


Figura 5.4: Sinal z-scan na ressonância (curva preta) e fora da ressonância (curva vermelha), ambos representados na mesma escala. Temperatura do reservatório 87°C, potência laser 0,5 mW.

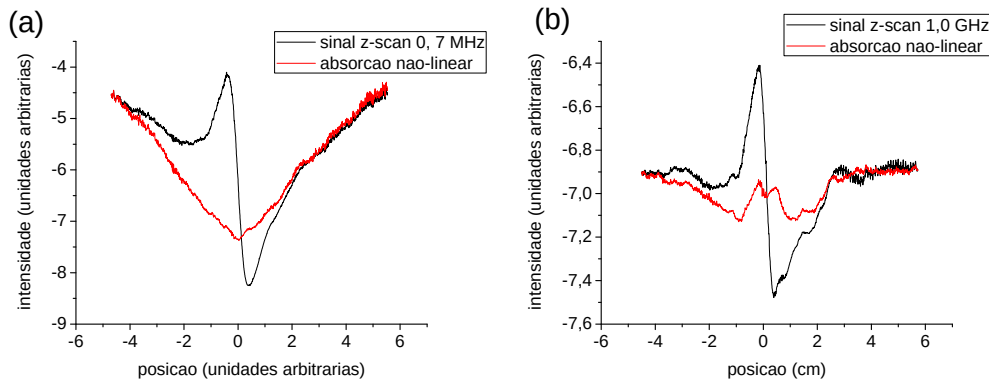


Figura 5.5: Sinal z-scan (curva preta) e sinal fora da ressonância (curva vermelha) para 0,7 GHz (a) e 1,0 GHz (b). Ambos estão representados na mesma escala. Temperatura 87°C, potência 0,2 mW.

A Figura 5.5 mostra a curva de absorção para um sinal a uma dessintonização de 0,7 GHz, portanto próximo à ressonância. Para um sinal com o laser a cerca de 1 GHz do centro da linha, longe da ressonância, os efeitos absorptivos são menos importantes. Vemos portanto que, no caso do sinal à 0,7 GHz, os efeitos de absorção aparecem claramente no sinal z-scan.

Nas próximas subseções apresentamos já normalizados todos os sinais z-scan obtidos em nossas medidas, conforme a discussão acima. Conforme já dissemos, há três medidas para cada dessintonização e potência, que permitem construirmos uma barra de erro. Essas três medidas são representadas pelas letras (a), (b) e (c). Primeiramente apresentamos a série de 87°C e em seguida a de 60°C, para as dessintonizações e potências da Tabela 5.2.

5.3.1 Série de 87°C

A Figura 5.6 representa as medidas para 87°C e 10 μ W de potência, para as dessintonizações de 0,6, 0,7, 0,8 e 0,9 GHz.

Os sinais desta série de $10\ \mu\text{W}$ foram normalizados pela curva de absorção. Verificamos que, ao dividir o sinal pela curva fora da ressonância, não aparecia um sinal z-scan satisfatório; então, dividimos o sinal pela curva de absorção. Apesar de não haver nenhum dado sobre a curva de absorção (já que a absorção medida é não-linear), aparentemente este procedimento resultou na visualização esperada de um perfil z-scan.

Vemos que, para as dessintonizações de 0,6, 0,7 e 0,8 GHz, não há um sinal z-scan reconhecível, ao contrário das três medidas para 0,9 GHz, que exibem um sinal z-scan claro em torno da posição -2 (unidades arbitrárias).

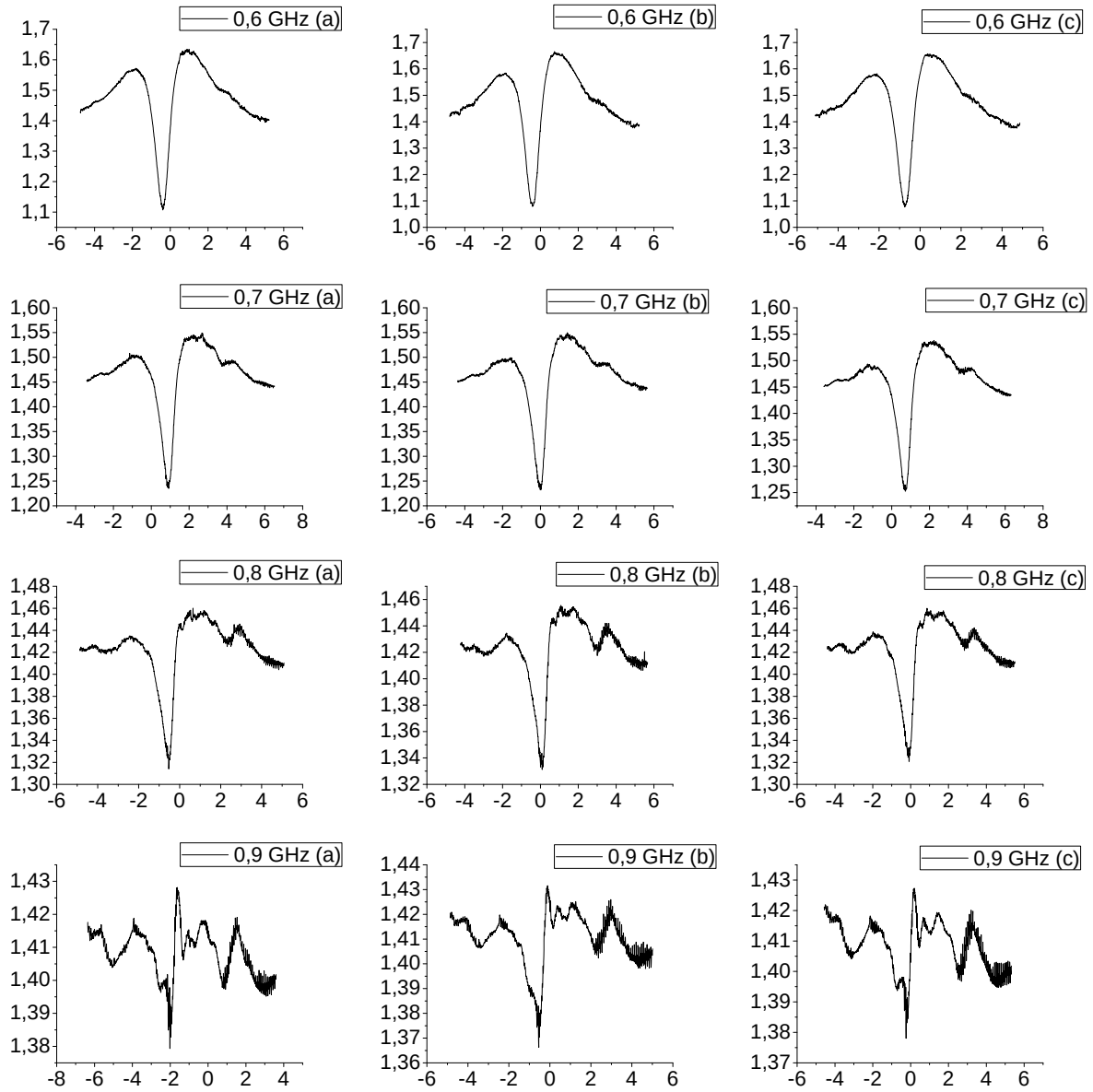


Figura 5.6: Sinais z-scan para 87°C e $10\ \mu\text{W}$, de 600 a 900 MHz. Os sinais foram normalizados pela curva de absorção correspondente.

A Figura 5.7 representa as medidas para 87°C a $50\ \mu\text{W}$ de potência para as dessintonizações de 0,6 a 1,0 GHz. Como as dessintonizações estão próximas à ressonância do sistema, os sinais apresentam efeitos de absorção.

Para esta série, as curvas foram normalizadas pelo sinal fora da ressonância porque esse procedimento resultou na visualização de um perfil z-scan nos sinais. Verificamos que a normalização pelas curvas de absorção não resultou na identificação de um sinal z-scan, e sim num sinal puramente absorptivo.

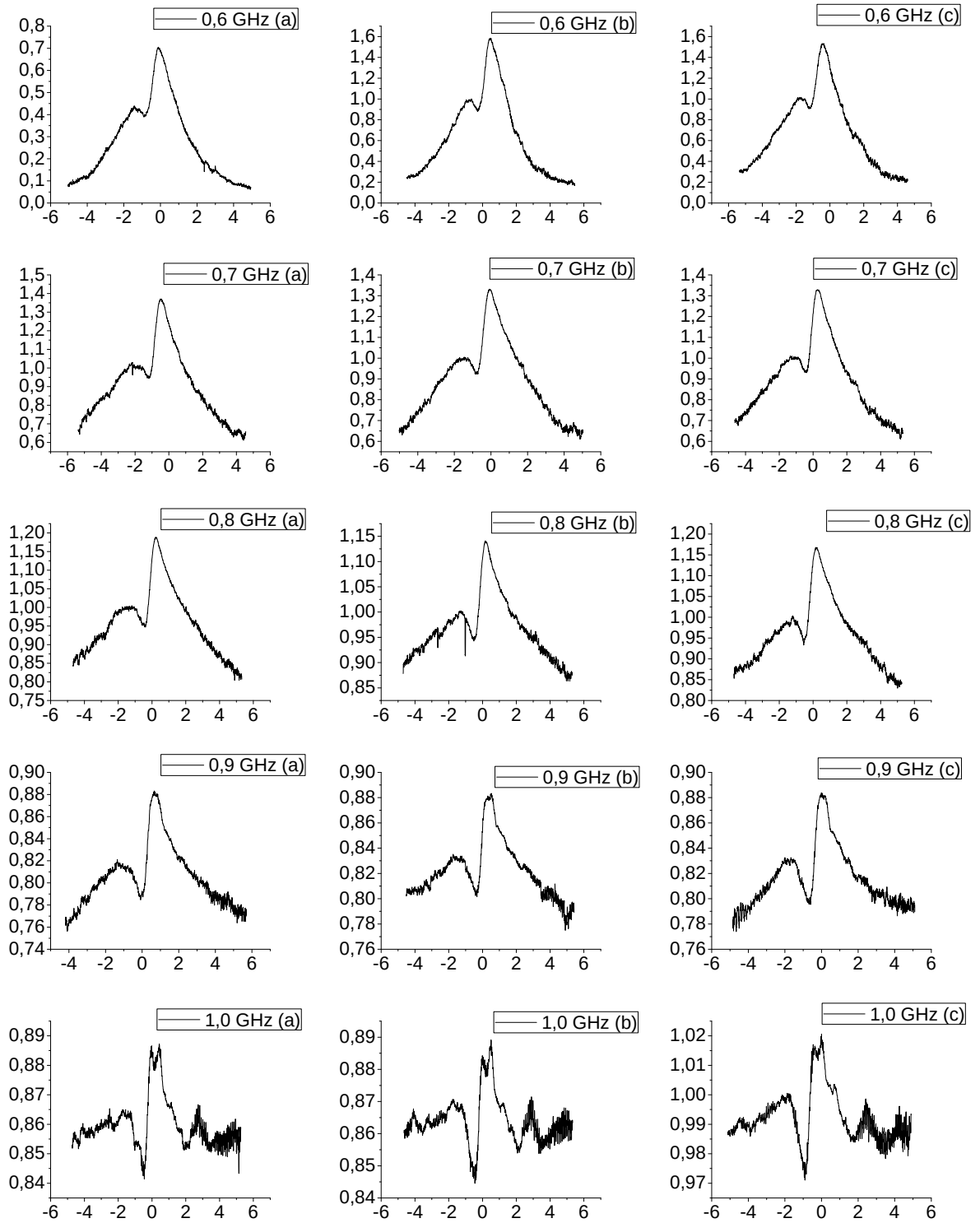


Figura 5.7: Sinais z-scan para 87°C e $50\ \mu\text{W}$, de 600 a 1000 MHz. Os sinais foram normalizados por uma curva fora da ressonância. Em todos os gráficos o eixo horizontal é a posição (unidades arbitrárias) e o eixo vertical é a tensão normalizada (V).

As Figuras 5.8 e 5.9 representam as medidas para 87°C a $0,2\text{ mW}$ para as dessintonizações de $0,6$ a $1,3\text{ GHz}$. Os sinais foram normalizados por curvas fora da ressonância.

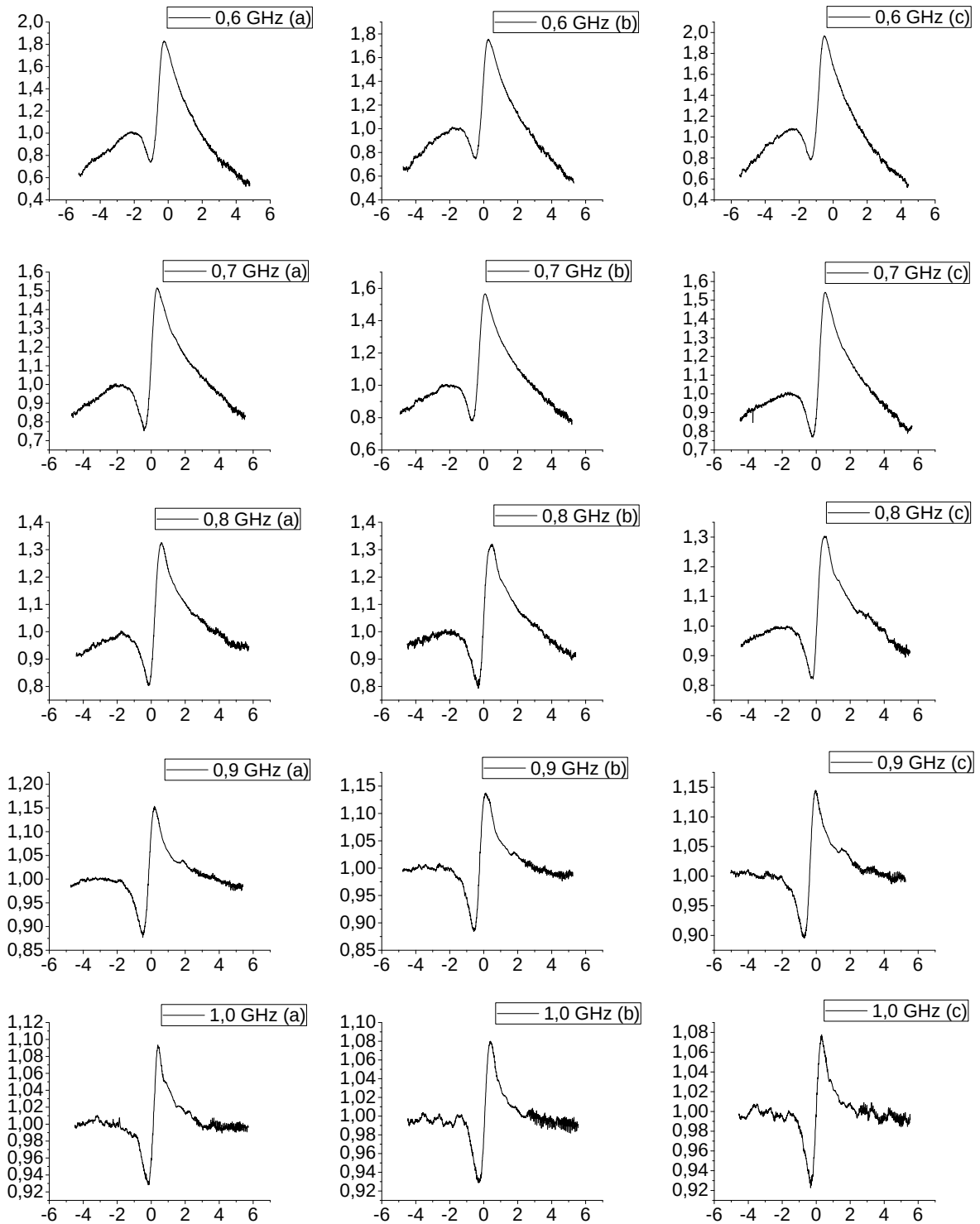


Figura 5.8: Sinais z-scan para 87°C a $0,2\text{ mW}$, de $0,6$ a $1,0\text{ GHz}$. Os sinais foram normalizados por uma curva fora da ressonância. Em todos os gráficos o eixo horizontal é a posição (unidades arbitrárias) e o eixo vertical é a intensidade (unidades arbitrárias).

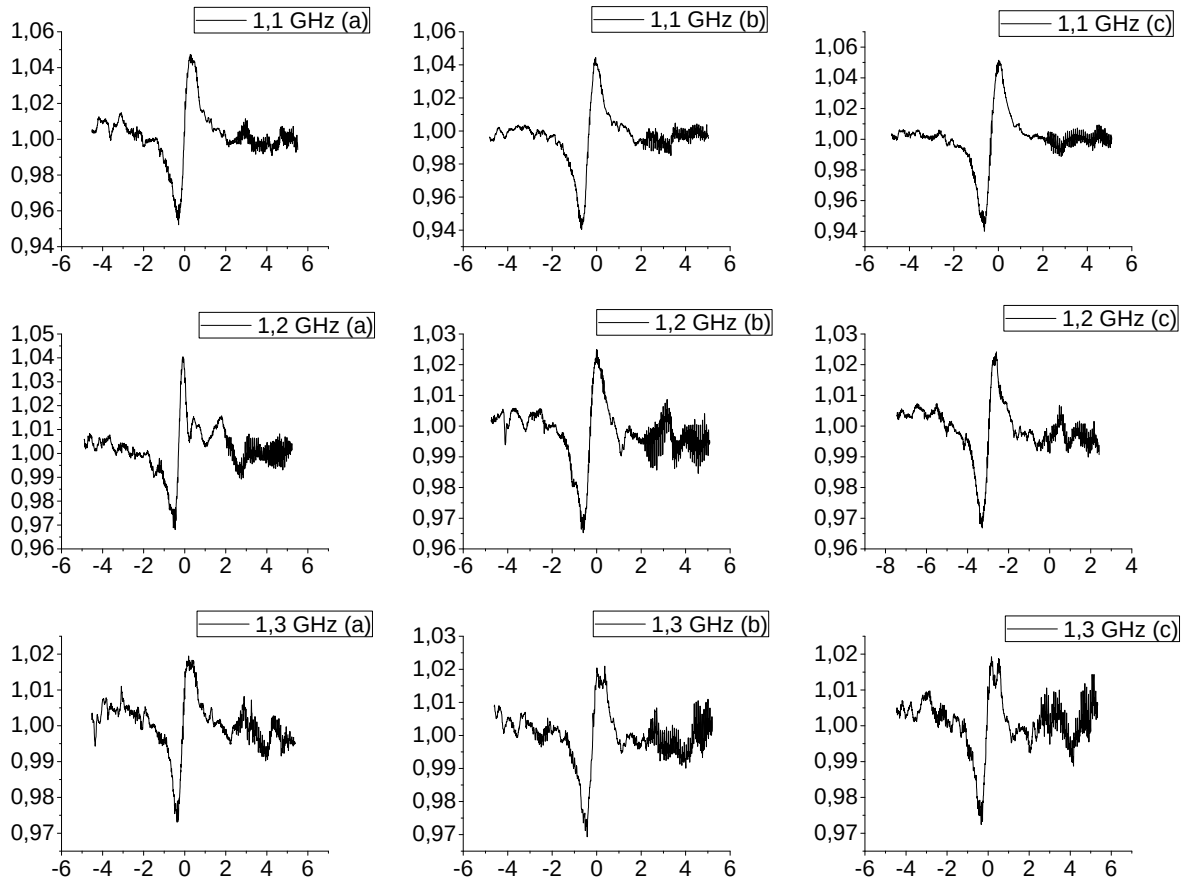


Figura 5.9: Sinais z-scan para 87°C e $0,2\text{ mW}$, de $1,1$ a $1,3\text{ GHz}$. Os sinais foram normalizados por uma curva fora da ressonância. Em todos os gráficos o eixo horizontal é a posição (unidades arbitrárias) e o eixo vertical é a intensidade (unidades arbitrárias).

Vemos que os efeitos de absorção predominam até em torno de $0,9\text{ GHz}$. A partir de $1,0\text{ MHz}$, a amplitude do sinal começa a diminuir, em virtude de o sistema estar cada vez mais afastado da ressonância. A partir de $1,3\text{ GHz}$, o sinal diminui bastante e torna-se da mesma ordem de grandeza do ruído, principalmente nas “asas”.

Conforme veremos na próxima seção, para as três séries de potências anteriores (10 , 50 e $200\text{ }\mu\text{W}$) o valor de n_2 foi calculado a partir da diferença de transmitância pico-vale, dada pela Eq. (2.77). Para os sinais às potências de $0,5$, $1,0$ e $4,0\text{ mW}$, foi feito um ajuste teórico com a função de transmitância $T(z)$ dada pela Eq. (2.74). Ou seja, as figuras que apresentaremos para essas três últimas potências já estão com as curvas do ajuste teórico.

As figuras 5.10 e 5.11 representam as medidas para 87°C a 0,5 mW para as dessintonizações de 1000 a 2000 MHz. Os sinais foram normalizados por curvas fora da ressonância.

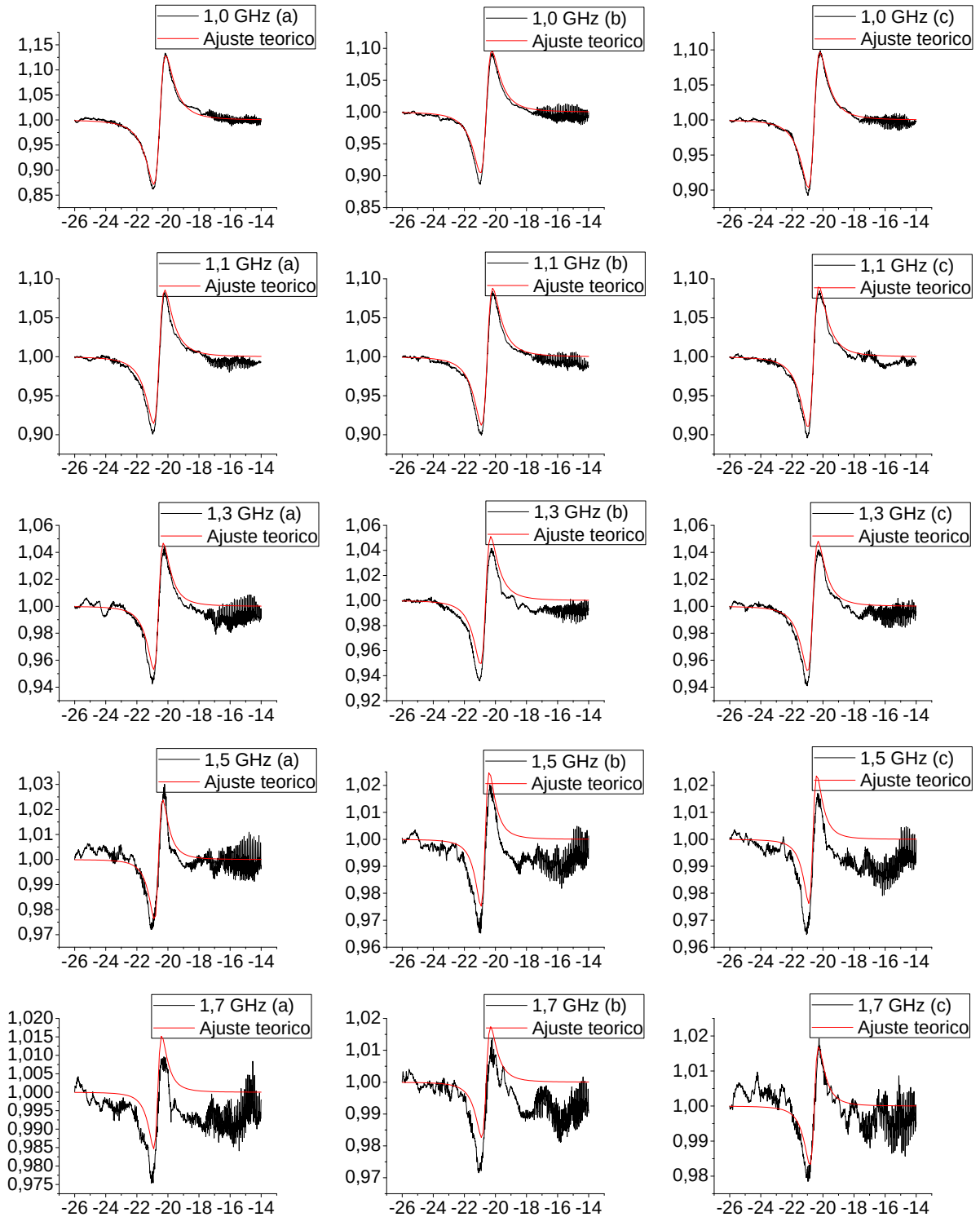


Figura 5.10: Sinais z-scan para 87°C e 0,5 mW, de 1,0 a 1,7 GHz. Os sinais foram normalizados pela curva fora da ressonância. Em todos os gráficos, o eixo horizontal é a posição (cm) e o eixo vertical é a intensidade (unidades arbitrárias).

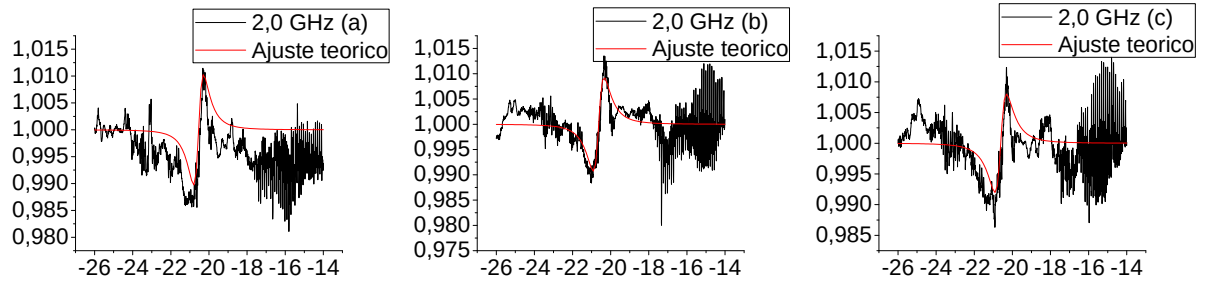


Figura 5.11: Sinais z-scan para 87°C , $0,5\text{ mW}$ e $2,0\text{ GHz}$. Os sinais foram normalizados pela curva fora da ressonância. Em todos os gráficos, o eixo horizontal é a posição (cm) e o eixo vertical é a intensidade (unidades arbitrárias).

Como era de se esperar, para alta potência o sinal z-scan é claramente visível (grande relação sinal/ruído) e diminui à medida que a dessintonização do sistema aumenta.

As Figuras 5.12 e 5.13 apresentam os sinais z-scan para 87°C e $1,0\text{ mW}$.

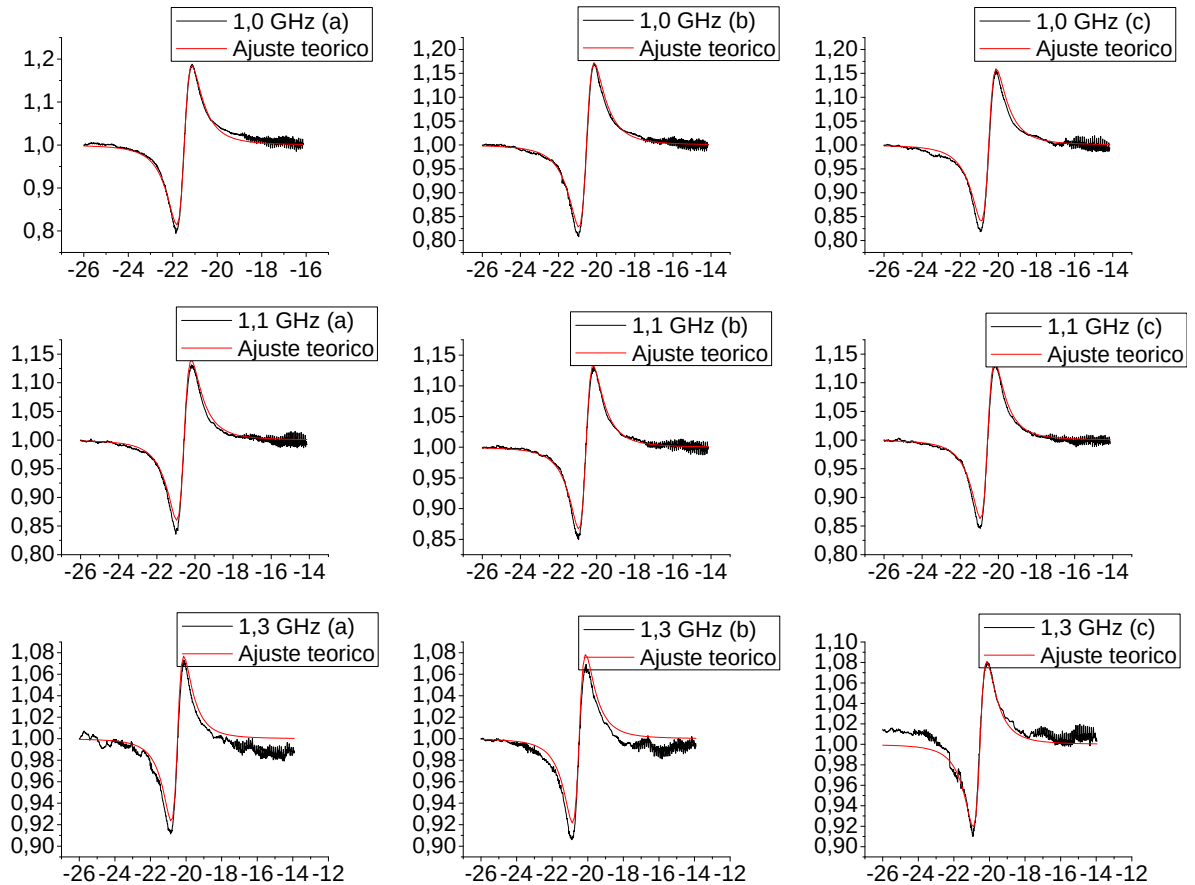


Figura 5.12: Sinais z-scan para 87°C e $1,0\text{ mW}$, de $1,0$ a $1,3\text{ GHz}$. Os sinais foram normalizados pela curva fora da ressonância. Em todos os gráficos o eixo horizontal é a posição z (cm) e o eixo vertical é a intensidade (unidades arbitrárias).

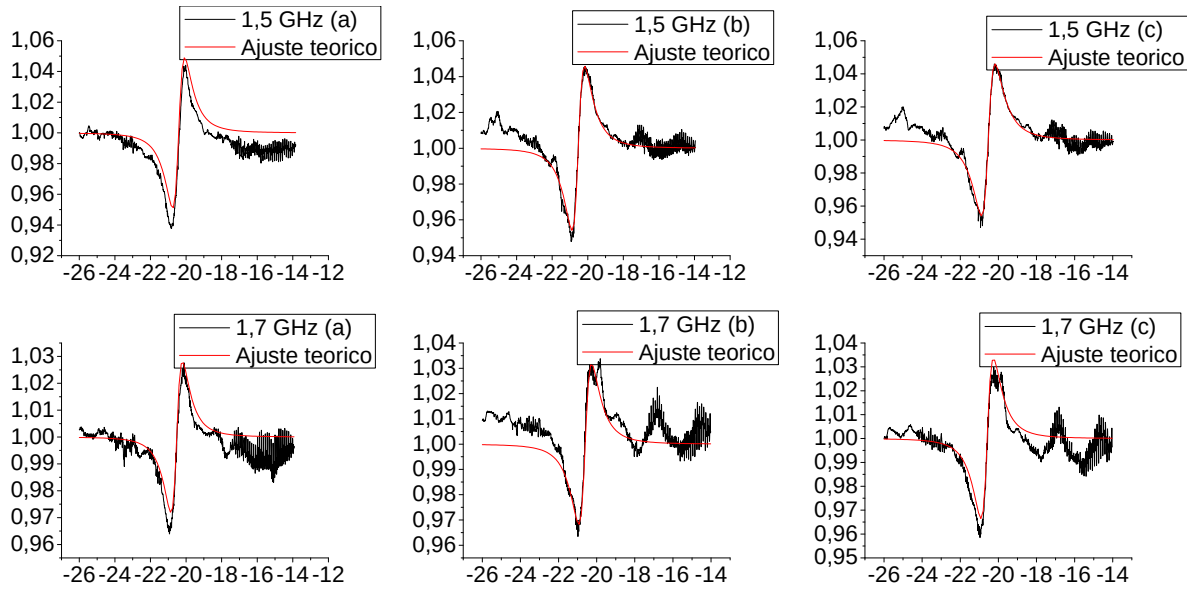


Figura 5.13: Sinais z-scan para 87°C e 1 mW, de 1,5 a 1,7 GHz. Os sinais foram normalizados pela curva fora da ressonância. Em todos os gráficos o eixo horizontal é a posição z (cm) e o eixo vertical é a intensidade (unidades arbitrárias).

As Figuras 5.14 e 5.15 apresentam os sinais z-scan para 4 mW.

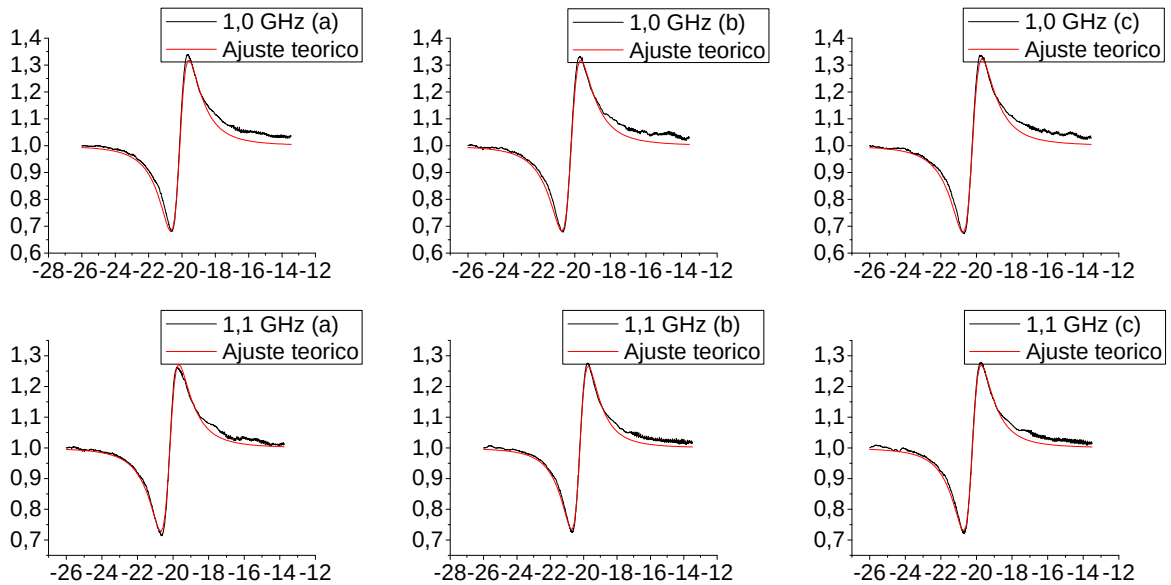


Figura 5.14: Sinais z-scan para 87°C e 4 mW, para 1,0 e 1,1 GHz. Os sinais foram normalizados pela curva fora da ressonância. Em todos os gráficos o eixo horizontal é a posição z (cm) e o eixo vertical é a intensidade (unidades arbitrárias).

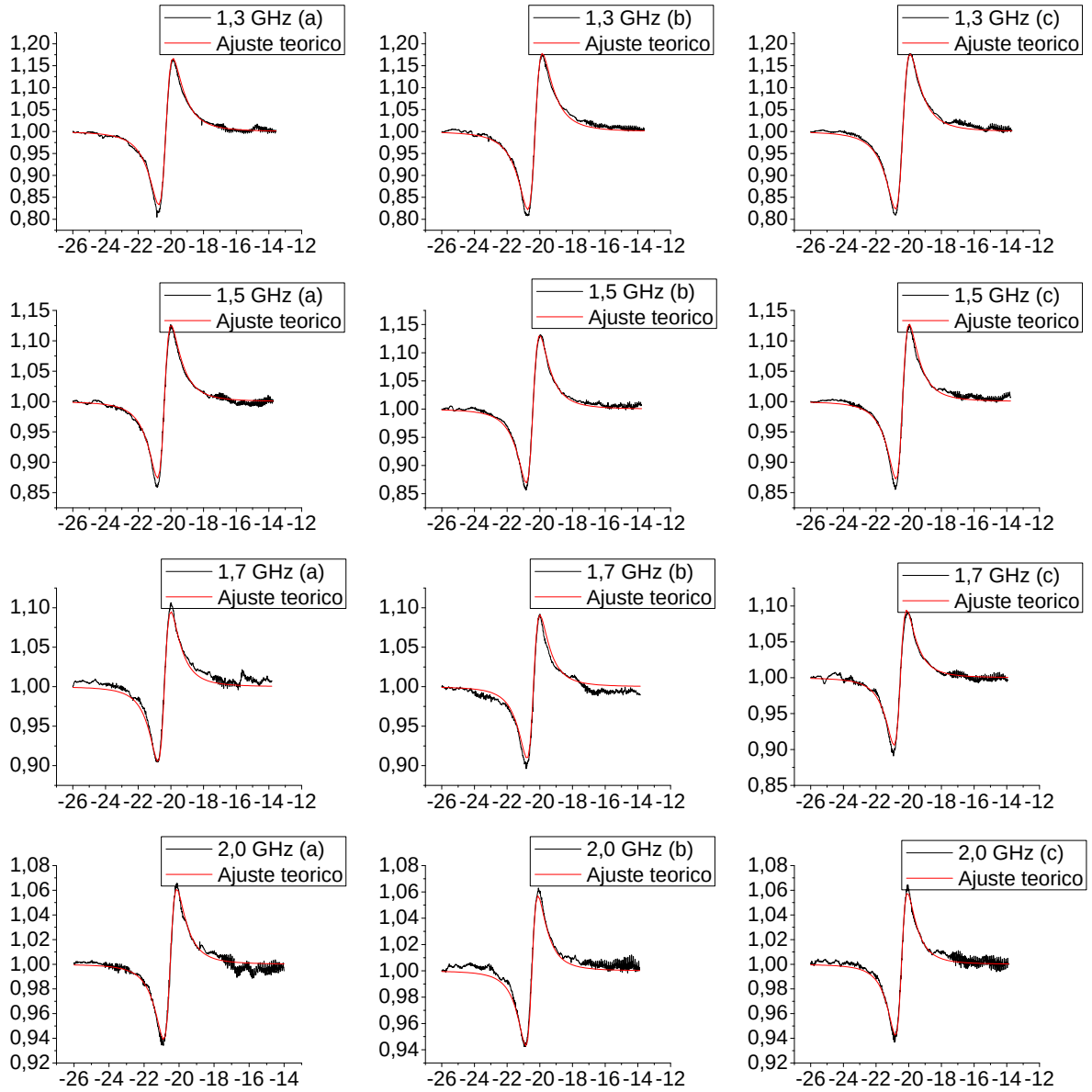


Figura 5.15: Sinais z-scan para 87°C e 4 mW, de 1,3 a 2,0 GHz. Os sinais foram normalizados pela curva fora da ressonância. Em todos os gráficos o eixo horizontal é a posição z (cm) e o eixo vertical é a intensidade (unidades arbitrárias).

5.3.2 Série de 60°C

Apresentamos a seguir os sinais z-scan normalizados obtidos para a temperatura de 60°C, para as dessintonizações e potências apresentados na tabela 5.2. Novamente, para as medidas com dessintonizações próximas à ressonância, o efeito de absorção é menor que o da série a 87°C, uma vez que a temperatura é menor.

Para os sinais a 10 μW de potência (Figura 5.16), a normalização foi feita da seguinte forma: dividimos o sinal z-scan e a absorção correspondente pela mesma curva fora da ressonância, para obter o sinal z-scan e a absorção normalizados. Em seguida dividimos um pelo outro. A razão deste procedimento é a mesma utilizada para os sinais de 10 μW a 87°C: este processo resulta na visualização de um sinal z-scan, ao invés de perfis puramente absorptivos.

Vemos que para as dessintonizações de 0,8 e 0,9 GHz o perfil z-scan típico do sinal é alterado, de modo que para essas medidas não foi possível extrair o valor de n_2 .

A Figura 5.17 apresenta os sinais a 50 μW de potência. O procedimento para a normalização desses sinais foi o mesmo para os sinais a 10 μW .

Da mesma forma que nos sinais a 10 μW , a partir de 800 MHz surge um pico na curva z-scan, de modo que não foi possível calcular o valor de n_2 .

Nas Figuras 5.18 e 5.19, temos as medidas para 0,5 mW. A partir de 1,7 GHz não há mais um perfil z-scan claro, tanto que para eles não foi possível fazer o ajuste teórico.

Nas Figuras 5.20 e 5.21 temos as medidas para 1,0 mW. Para a dessintonização de 2,0 GHz, o sinal z-scan não é mais visível e por isso não foi possível fazer o ajuste teórico.

Por fim, nas figuras 5.22 e 5.23 apresentamos os sinais z-scan normalizados para 2,0 mW. Da mesma forma que nas medidas a 0,5 mW, o sinal z-scan começa a desaparecer a partir de 1,7 GHz. Não foi possível fazer o ajuste teórico para os sinais a 1,7 e 2,0 GHz.

Na próxima seção apresentamos os valores de n_2 obtidos a partir dessas duas séries de medidas.

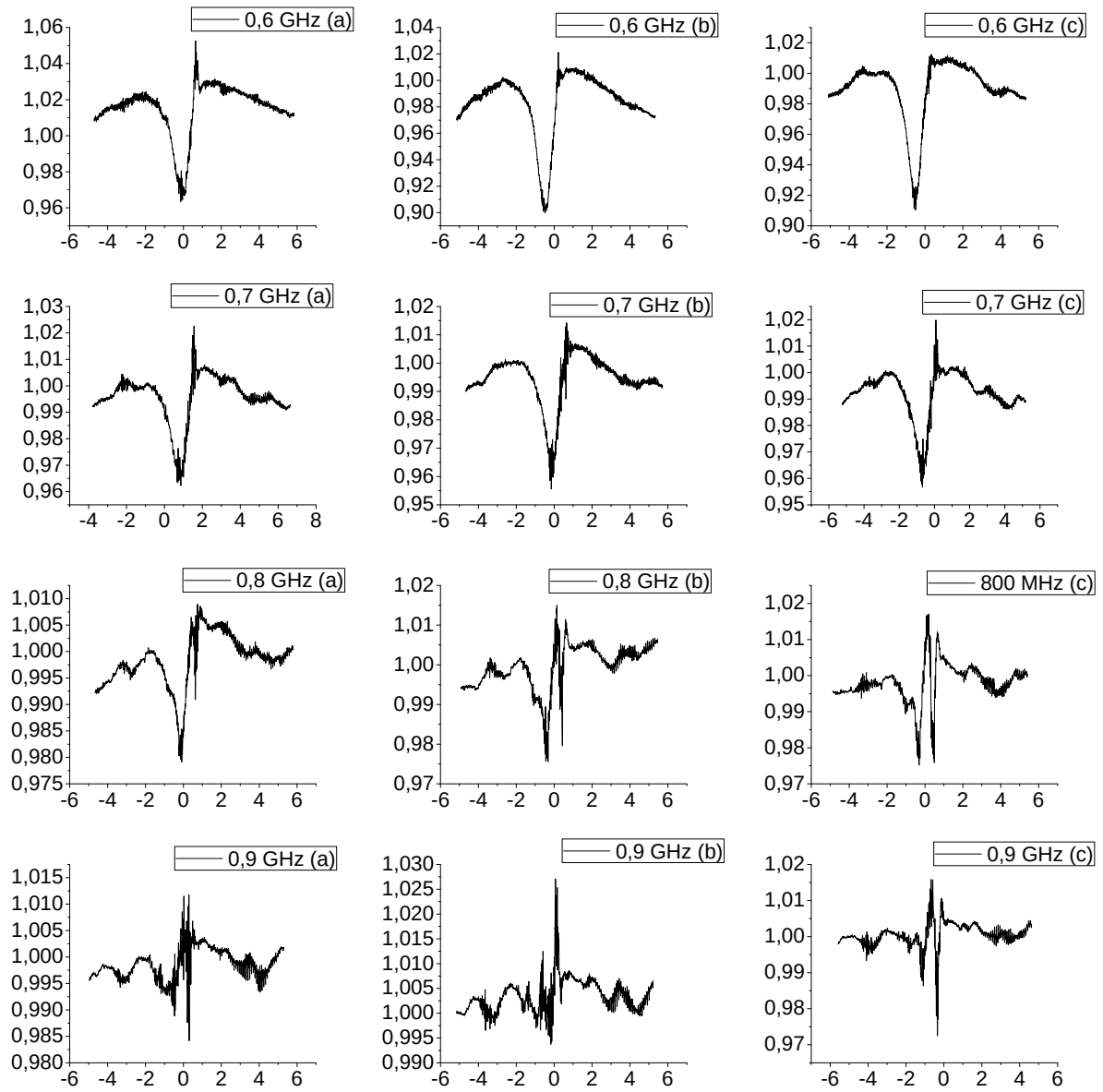


Figura 5.16: Sinais z-scan para 60°C e $10\ \mu\text{W}$, de 1,0 a 1,7 GHz. Os sinais foram normalizados pela curva fora da ressonância e pela absorção normalizada pela curva fora da ressonância. Em todos os gráficos, o eixo horizontal é a posição (unidades arbitrárias) e o eixo vertical é a intensidade (unidades arbitrárias).

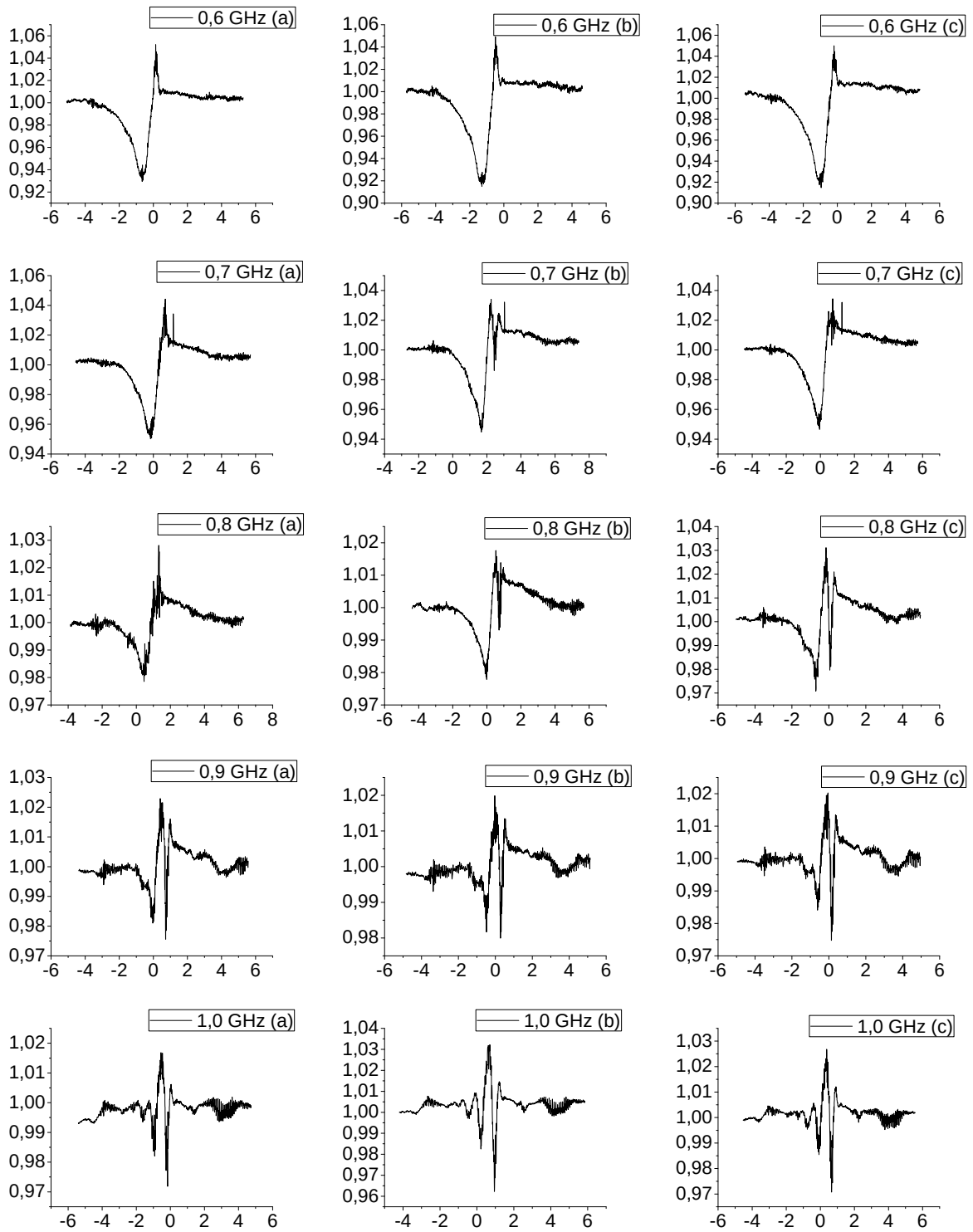


Figura 5.17: Sinais z-scan para 60°C e $50\ \mu\text{W}$, de 0,6 a 1,0 MHz. Os sinais foram normalizados pela curva fora da ressonância e pela absorção normalizada pela curva fora da ressonância. Em todos os gráficos, o eixo horizontal é a posição (unidades arbitrárias) e o eixo vertical é a intensidade (unidades arbitrárias).

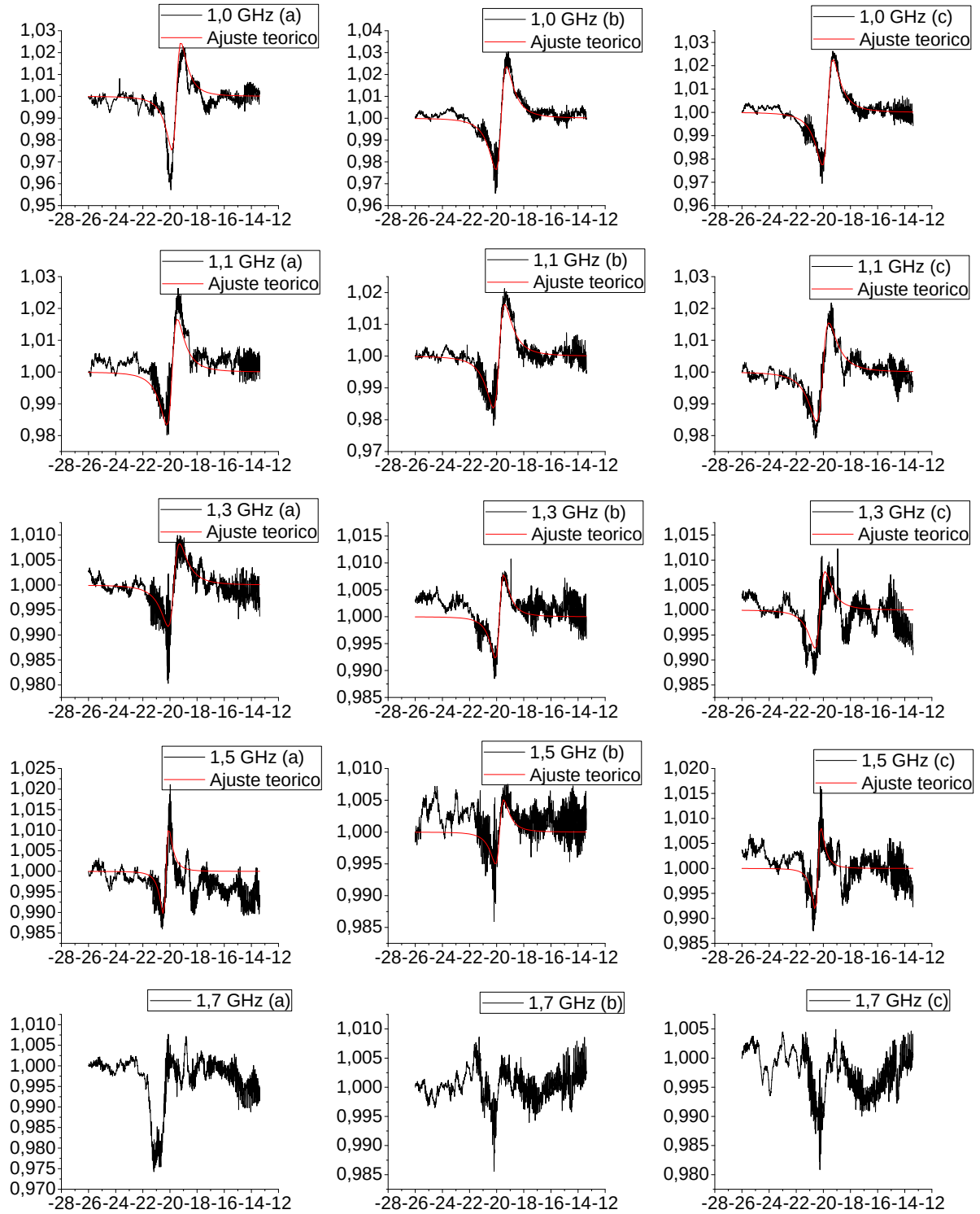


Figura 5.18: Sinais z-scan para 60°C e $0,5\text{ mW}$, de $1,0$ a $1,7\text{ GHz}$. Os sinais foram normalizados pela curva fora da ressonância. Em todos os gráficos, o eixo horizontal é a posição (cm) e o eixo vertical é a intensidade (unidades arbitrárias).

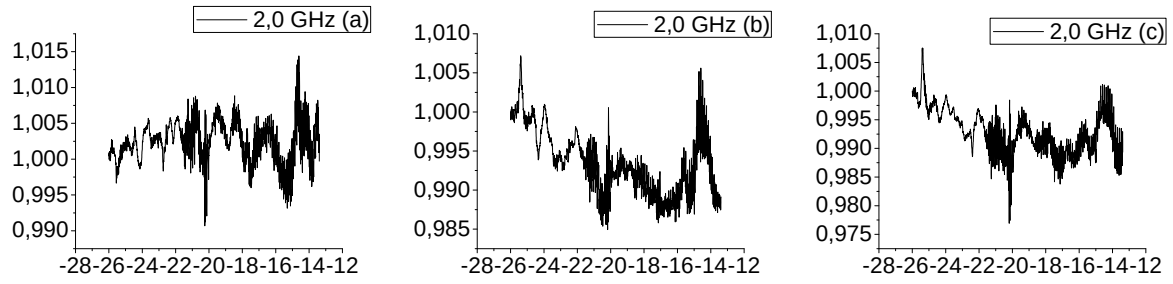


Figura 5.19: Sinais z-scan para 60°C , $0,5\text{ mW}$ e $2,0\text{ GHz}$. Os sinais foram normalizados pela curva fora da ressonância. Em todos os gráficos, o eixo horizontal é a posição (cm) e o eixo vertical é a intensidade (unidades arbitrárias).

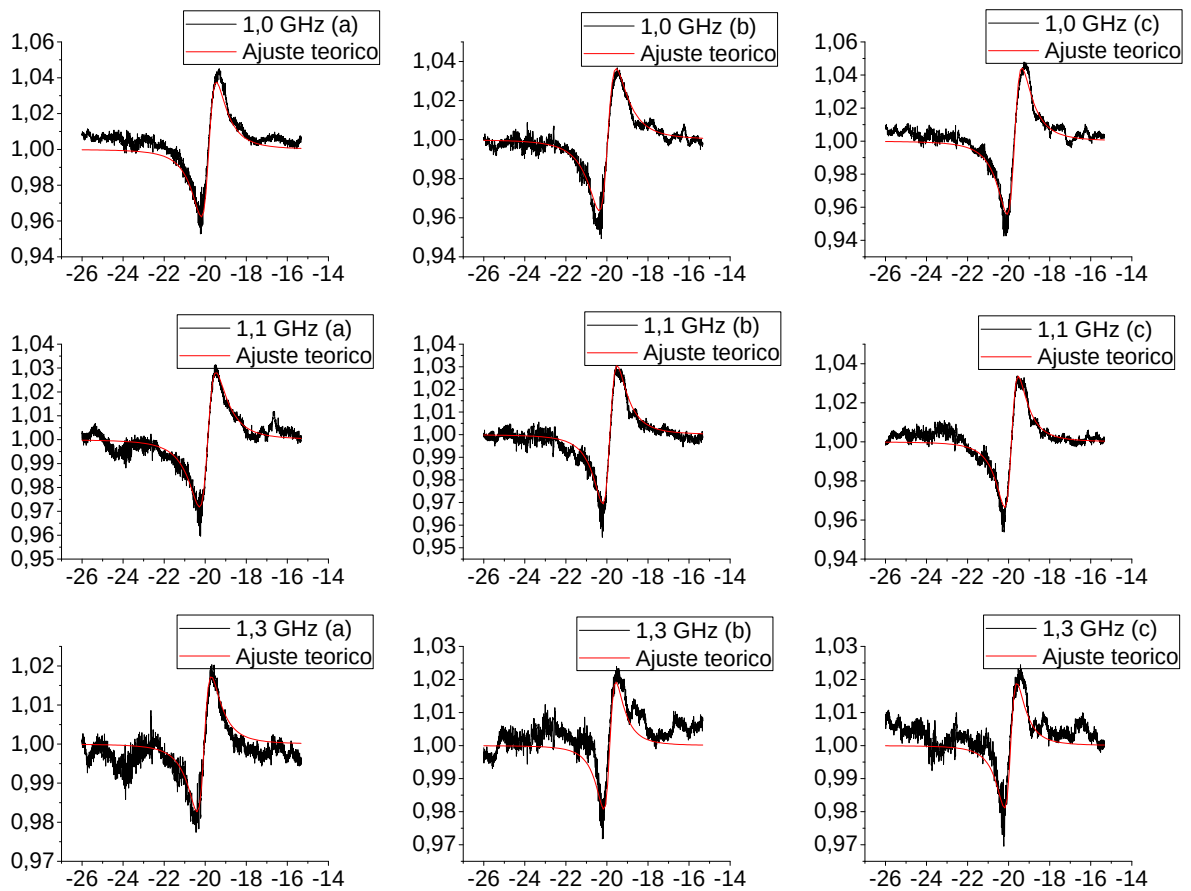


Figura 5.20: Sinais z-scan para 60°C e 1 mW , de $1,0$ a $1,3\text{ GHz}$. Os sinais foram normalizados pela curva fora da ressonância. Em todos os gráficos, o eixo horizontal é a posição (cm) e o eixo vertical é a intensidade (unidades arbitrárias).

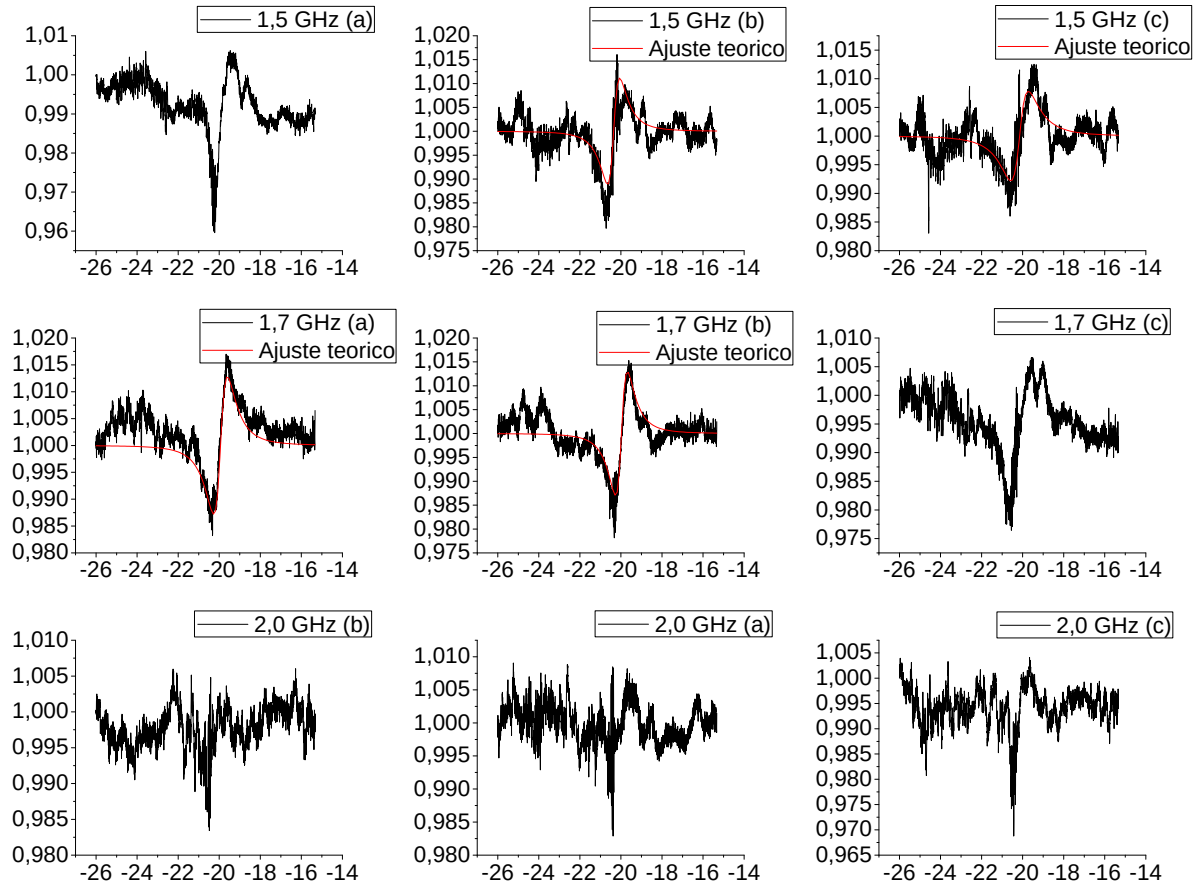


Figura 5.21: Sinais z-scan para 60°C e 1 mW, de 1,5 a 2,0 GHz. Os sinais foram normalizados pela curva fora da ressonância. Em todos os gráficos, o eixo horizontal é a posição (cm) e o eixo vertical é a intensidade (unidades arbitrárias).

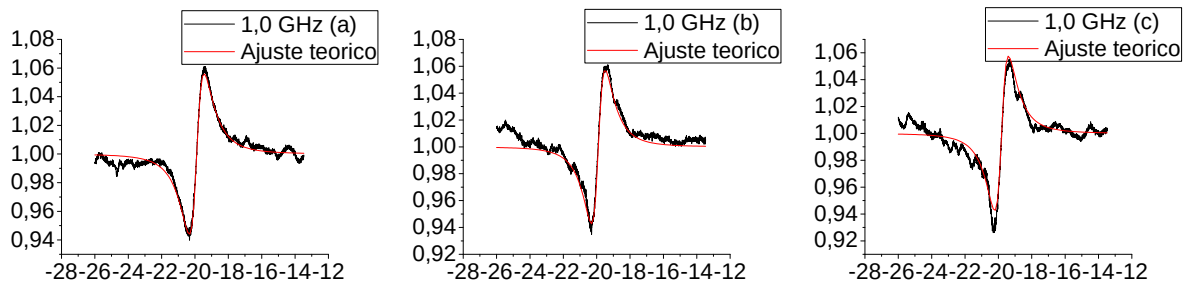


Figura 5.22: Sinais z-scan para 60°C , 2 mW e 1,0 GHz. Os sinais foram normalizados pela curva fora da ressonância. Em todos os gráficos, o eixo horizontal é a posição (cm) e o eixo vertical é a intensidade (unidades arbitrárias).

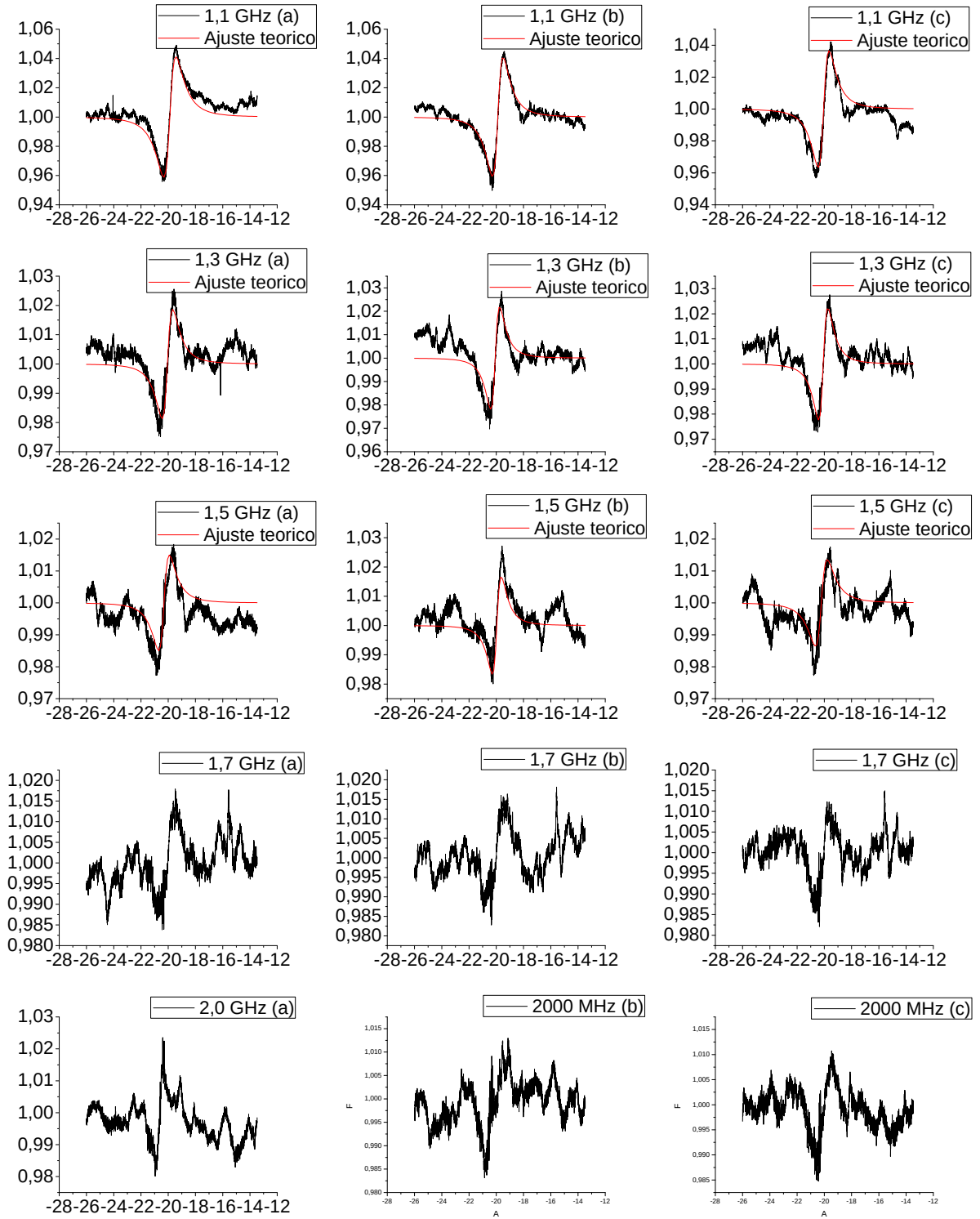


Figura 5.23: Sinais z-scan para 60°C e 2 mW, de 1,1 a 2,0 GHz. Os sinais foram normalizados pela curva fora da ressonância. Em todos os gráficos, o eixo horizontal é a posição (cm) e o eixo vertical é a intensidade (unidades arbitrárias).

5.4 Valores experimentais de n_2

Nesta seção apresentamos os valores de n_2 obtidos a partir das curvas z-scan da seção anterior, tanto para a série de 87°C como para a de 60°C.

A expressão experimental para n_2 é dada pela Eq. (2.78), a saber,

$$n_2 = 10^4 \times \frac{\lambda \Delta \Phi_0 w_0^2}{4 P_0 L_{eff}} \quad (cm^2/W) \quad (5.5)$$

onde λ é o comprimento de onda do laser, w_0 é a cintura do feixe laser gaussiano, P_0 é a potência do feixe laser na entrada da célula e L_{eff} é a espessura efetiva da célula, a qual consideramos igual à espessura L pois desprezamos a absorção não-linear α . Utilizamos $\lambda = 852,351$ nm (comprimento de onda de ressonância na linha D₂ do césio), $w_0 = 39,4 \mu m$ (técnica knife-edge, seção 5.1) e $L_{eff} = L = 1$ mm. O fator 10^4 aparece para que as unidades de n_2 sejam cm^2/W .

Vemos da Eq. (5.5) que o valor de n_2 depende do valor do parâmetro $\Delta \Phi_0$. Esse parâmetro foi determinado da seguinte forma:

Para os sinais à baixa potência (10 μW , 50 μW e 0,2 mW), o valor de $|\Delta \Phi_0|$ foi calculado a partir da Eq. (2.77), a saber,

$$\Delta T_{p-v} = 0,406 (1 - S)^{0,25} |\Delta \Phi_0| \quad (5.6)$$

onde ΔT_{p-v} é a diferença de transmitância pico-vale no sinal z-scan normalizado e S é a transmitância do feixe na abertura (íris), que é a razão entre a potência de saída P_{out} e de entrada P_{in} do laser na íris. Medimos $P_{out} = 0,94$ mW e $P_{in} = 1,52$ mW, o que fornece $S = 0,62$.

Já para os sinais à alta potência (0,5 mW, 1 mW, 2 mW e 4 mW), o valor de $|\Delta \Phi_0|$ foi determinado a partir do ajuste teórico do sinal z-scan com a Eq. (2.74), que é a função de transmitância normalizada:

$$T(x) = 1 - \frac{4 \Delta \Phi_0 x}{(x^2 + 1)(x^2 + 9)}, \quad x = \frac{z}{z_R} \quad (5.7)$$

onde z_R é o comprimento de Rayleigh. Deixamos z_R variar para obtermos um melhor ajuste teórico.

A grande maioria dos valores de z_R obtidos foram entre 0,35 e 0,47. Esses valores diminuem com a dessintonização e variam de forma indefinida com a potência.

A tabela a seguir apresenta os valores médios de z_R para cada dessintonização, potência e série de temperatura.

[tabela]

Apresentamos os valores de n_2 através de 7 tabelas, onde cada uma corresponde a uma potência utilizada, tanto para 87°C como para 60°C. Há três valores de n_2 para cada temperatura, potência e dessintonização, já que foram feitas 3 medidas para cada uma. Os valores de n_2 na seqüência em que aparecem nas tabelas correspondem, respectivamente, aos gráficos (a), (b) e (c) das figuras da seção anterior.

A Tabela 5.3 fornece o valor de n_2 para a potência de $10 \mu\text{W}$, tanto para 87°C como para 60°C . Recorrendo à figura 5.5, vemos um sinal z-scan apenas para a dessintonização de $0,9 \text{ GHz}$ na temperatura de 87°C . Então este foi o único valor de n_2 obtido.

Recorrendo à figura 5.16, vemos que os valores de n_2 para as medidas de $0,9 \text{ GHz}$ a 60°C estão ausentes devido à má qualidade do sinal z-scan correspondente (gráficos (b) e (c) para $0,9 \text{ GHz}$ da Figura 5.16).

Temperatura	Dessintonização (GHz)	ΔT_{p-v}	$ \Delta\Phi_0 $	$n_2 (cm^2/W)$
87°C	0,9	0,03215	0,10074	$3,3 \times 10^{-5}$
		0,04112	0,12885	$4,3 \times 10^{-5}$
		0,03130	0,09808	$3,2 \times 10^{-5}$
60°C	0,6	0,07850	0,24602	$8,1 \times 10^{-5}$
		0,20156	0,63165	$2,1 \times 10^{-4}$
		0,09768	0,30610	$1,0 \times 10^{-4}$
	0,7	0,05749	0,18016	$6,0 \times 10^{-5}$
		0,05618	0,17605	$5,8 \times 10^{-5}$
		0,05958	0,18670	$6,2 \times 10^{-5}$
	0,8	0,02833	0,08878	$2,9 \times 10^{-5}$
		0,03326	0,10423	$3,4 \times 10^{-5}$
		0,03549	0,11123	$3,7 \times 10^{-5}$
	0,9	0,01578	0,04946	$1,6 \times 10^{-5}$
		—	—	—
		—	—	—

Tabela 5.3: Valores experimentais de n_2 para a potência de $10 \mu\text{W}$.

A tabela 5.4 apresenta os valores de n_2 para a potência de $50 \mu\text{W}$. Vemos que para 1,0 GHz a 60°C , não foi possível extrair dois valores de n_2 , devido à má qualidade dos sinais correspondentes (gráficos (b) e (c) da figura 5.17).

Temperatura	Dessintonização (GHz)	ΔT_{p-v}	$ \Delta\Phi_0 $	$n_2 (cm^2/W)$
87°C	0,6	0,71337	2,23558	$1,5 \times 10^{-4}$
		0,69959	2,19240	$1,5 \times 10^{-4}$
		0,62096	1,94061	$1,3 \times 10^{-4}$
	0,7	0,42538	1,33308	$8,8 \times 10^{-5}$
		0,40673	1,27461	$8,4 \times 10^{-5}$
		0,39511	1,23821	$8,2 \times 10^{-5}$
	0,8	0,24143	0,75660	$5,0 \times 10^{-5}$
		0,19600	0,61422	$4,1 \times 10^{-5}$
		0,23377	0,73261	$4,8 \times 10^{-5}$
	0,9	0,11994	0,37587	$2,5 \times 10^{-5}$
		0,09419	0,29518	$2,0 \times 10^{-5}$
		0,10528	0,32994	$2,2 \times 10^{-5}$
	1,0	0,05293	0,16589	$1,1 \times 10^{-5}$
		0,04472	0,14015	$9,3 \times 10^{-6}$
		0,04601	0,14418	$9,5 \times 10^{-6}$
60°C	0,6	0,11052	0,34635	$2,3 \times 10^{-5}$
		0,12340	0,38671	$2,6 \times 10^{-5}$
		0,12688	0,39761	$2,6 \times 10^{-5}$
	0,7	0,08900	0,27890	$1,8 \times 10^{-5}$
		0,08757	0,27442	$1,8 \times 10^{-5}$
		0,08094	0,25364	$1,7 \times 10^{-5}$
	0,8	0,04437	0,13905	$9,2 \times 10^{-6}$
		0,03918	0,12277	$8,1 \times 10^{-6}$
		0,05870	0,18396	$1,2 \times 10^{-5}$
	0,9	0,03926	0,12303	$8,1 \times 10^{-6}$
		0,03240	0,10154	$6,7 \times 10^{-6}$
		0,03226	0,10110	$6,7 \times 10^{-6}$
	1,0	0,03319	0,10401	$6,9 \times 10^{-6}$
		—	—	—
		—	—	—

Tabela 5.4: Valores experimentais de n_2 para a potência de $50 \mu\text{W}$.

A tabela 5.5 apresenta os valores de n_2 para a potência de 0,2 mW. Para 1,3 GHz, os valores de n_2 variam muito. Isto é devido à má qualidade do sinal correspondente (figura 5.9).

Temperatura	Dessintonização (GHz)	ΔT_{p-v}	$ \Delta \Phi_0 $	$n_2 (cm^2/W)$
87°C	0,6	1,08396	3,39697	$5,6 \times 10^{-5}$
		0,99393	3,11481	$5,2 \times 10^{-5}$
		1,17759	3,69040	$6,1 \times 10^{-5}$
	0,7	0,75737	2,37348	$3,9 \times 10^{-5}$
		0,77819	2,43873	$4,0 \times 10^{-5}$
		0,76774	2,40598	$4,0 \times 10^{-5}$
	0,8	0,51950	1,62803	$2,7 \times 10^{-5}$
		0,51086	1,60094	$2,6 \times 10^{-5}$
		0,47105	1,47620	$2,4 \times 10^{-5}$
	0,9	0,26515	0,83096	$1,4 \times 10^{-5}$
		0,24665	0,77296	$1,3 \times 10^{-5}$
		0,24749	0,77559	$1,3 \times 10^{-5}$
	1,0	0,16089	0,50422	$8,3 \times 10^{-6}$
		0,14753	0,46233	$7,6 \times 10^{-6}$
		0,14890	0,46662	$7,7 \times 10^{-6}$
	1,1	0,08753	0,27431	$4,5 \times 10^{-6}$
		0,09817	0,30764	$5,1 \times 10^{-6}$
		0,10472	0,32818	$5,4 \times 10^{-6}$
	1,2	0,06944	0,21763	$3,6 \times 10^{-6}$
		0,05477	0,17163	$2,8 \times 10^{-6}$
		0,05434	0,17029	$2,8 \times 10^{-6}$
	1,3	0,04386	0,13744	$2,3 \times 10^{-6}$
		0,04786	0,14988	$2,5 \times 10^{-6}$
		0,44229	1,38607	$2,3 \times 10^{-5}$

Tabela 5.5: Valores experimentais de n_2 para a potência de 200 μ W.

As tabelas 5.6 e 5.7 apresentam os valores de n_2 para 0,5 mW.

Temperatura	Dessintonização (GHz)	$ \Delta\Phi_0 $	n_2 (cm^2/W)
87°C	1,0	0,63453	$4,2 \times 10^{-6}$
		0,47375	$3,1 \times 10^{-6}$
		0,47770	$3,2 \times 10^{-6}$
	1,0	0,42201	$2,8 \times 10^{-6}$
		0,43305	$2,9 \times 10^{-6}$
		0,44650	$3,0 \times 10^{-6}$
	1,3	0,23120	$1,5 \times 10^{-6}$
		0,25170	$1,7 \times 10^{-6}$
		0,23803	$1,6 \times 10^{-6}$
	1,5	0,11836	$7,8 \times 10^{-7}$
		0,12255	$8,1 \times 10^{-7}$
		0,11710	$7,7 \times 10^{-7}$
	1,7	0,07576	$5,0 \times 10^{-7}$
		0,08587	$5,7 \times 10^{-7}$
		0,08334	$5,5 \times 10^{-7}$
	2,0	0,05063	$3,3 \times 10^{-7}$
		0,04568	$3,0 \times 10^{-7}$
		0,03950	$2,6 \times 10^{-7}$

Tabela 5.6: Valores experimentais de n_2 para a potência de 0,5 mW para 87°C.

Para as dessintonizações de 1,7 e 2,0 GHz a 60°C, não foi possível extrair o valor de n_2 devido à má qualidade dos sinais correspondentes (figuras 5.18 e 5.19).

Temperatura	Dessintonização (GHz)	$ \Delta\Phi_0 $	n_2 (cm^2/W)
60°C	1,0	0,12160	$8,0 \times 10^{-7}$
		0,11670	$7,7 \times 10^{-7}$
		0,11220	$7,4 \times 10^{-7}$
	1,1	0,08229	$5,4 \times 10^{-7}$
		0,08066	$5,3 \times 10^{-7}$
		0,07655	$5,1 \times 10^{-7}$
	1,3	0,04098	$2,7 \times 10^{-7}$
		0,03830	$2,5 \times 10^{-7}$
		0,03790	$2,5 \times 10^{-7}$
	1,5	0,05089	$3,4 \times 10^{-7}$
		0,02498	$1,7 \times 10^{-7}$
		0,04071	$2,7 \times 10^{-7}$
	1,7	—	—
		—	—
		—	—
	2,0	—	—
		—	—
		—	—

Tabela 5.7: Valores experimentais de n_2 para a potência de 0,5 mW para 60°C.

As tabelas 5.8 e 5.9 apresentam os valores de n_2 para 1 mW.

Temperatura	Dessintonização (GHz)	$ \Delta\Phi_0 $	n_2 (cm^2/W)
87°C	1,0	0,91494	$3,0 \times 10^{-6}$
		0,84868	$2,8 \times 10^{-6}$
		0,78813	$2,6 \times 10^{-6}$
	1,1	0,68965	$2,3 \times 10^{-6}$
		0,65620	$2,2 \times 10^{-6}$
		0,67533	$2,2 \times 10^{-6}$
	1,3	0,37860	$1,3 \times 10^{-6}$
		0,38673	$1,3 \times 10^{-6}$
		0,39782	$1,3 \times 10^{-6}$
	1,5	0,24164	$8,0 \times 10^{-7}$
		0,22594	$7,5 \times 10^{-7}$
		0,22657	$7,5 \times 10^{-7}$
	1,7	0,13850	$4,6 \times 10^{-7}$
		0,15685	$5,2 \times 10^{-7}$
		0,16519	$5,5 \times 10^{-7}$

Tabela 5.8: Valores experimentais de n_2 para a potência de 1 mW para 87°C.

Temperatura	Dessintonização (GHz)	$ \Delta\Phi_0 $	n_2 (cm^2/W)
60°C	1,0	0,18592	$6,2 \times 10^{-6}$
		0,17938	$5,9 \times 10^{-7}$
		0,21481	$7,1 \times 10^{-7}$
	1,1	0,13903	$4,6 \times 10^{-7}$
		0,15061	$5,0 \times 10^{-7}$
		0,16561	$5,5 \times 10^{-7}$
	1,3	0,08539	$2,8 \times 10^{-7}$
		0,09512	$3,1 \times 10^{-7}$
		0,09334	$3,1 \times 10^{-7}$
	1,5	—	—
		0,54890	$1,8 \times 10^{-6}$
		0,03846	$1,3 \times 10^{-7}$
	1,7	0,06314	$2,1 \times 10^{-7}$
		0,06395	$2,1 \times 10^{-7}$
		—	—
	2,0	—	—
		—	—
		—	—

Tabela 5.9: Valores experimentais de n_2 para a potência de 1 mW a 60°C.

A 60°C e 1,5 GHz, vemos que não foi possível fazer o ajuste teórico do sinal (Figura 5.21, 1,5 GHz (a)). Já para os sinais a 2,0 GHz, não há um perfil z-scan bem definido.

As tabelas 5.10 e 5.11 apresentam os valores de n_2 para 2 mW.

Temperatura	Dessintonização (GHz)	$ \Delta\Phi_0 $	n_2 (cm^2/W)
60°C	1,0	0,27613	$4,6 \times 10^{-7}$
		0,28196	$4,7 \times 10^{-7}$
		0,28372	$4,7 \times 10^{-7}$
	1,1	0,20276	$3,4 \times 10^{-7}$
		0,20049	$3,3 \times 10^{-7}$
		0,17979	$3,0 \times 10^{-7}$
	1,3	0,09190	$1,5 \times 10^{-7}$
		0,10814	$1,8 \times 10^{-7}$
		0,11007	$1,8 \times 10^{-7}$
	1,5	0,07371	$1,2 \times 10^{-7}$
		0,08207	$1,4 \times 10^{-7}$
		0,06672	$1,1 \times 10^{-7}$

Tabela 5.10: Valores experimentais de n_2 para a potência de 2 mW, de 1000 a 1500 MHz.

Temperatura	Dessintonização (GHz)	ΔT_{p-v}	$ \Delta\Phi_0 $	n_2 (cm^2/W)
60°C	1,7	0,02376	0,07346	$1,2 \times 10^{-7}$
		0,02133	0,06684	$1,1 \times 10^{-7}$
		0,01976	0,06191	$1,0 \times 10^{-7}$
	2,0	0,02848	0,08925	$1,5 \times 10^{-7}$
		—	—	—
		0,01891	0,05927	$9,8 \times 10^{-8}$

Tabela 5.11: Valores experimentais de n_2 para a potência de 2 mW, para 1,7 e 2,0 MHz.

Por fim, a tabela 5.12 apresenta os valores de n_2 para 4 mW.

Temperatura	Dessintonização (GHz)	$ \Delta\Phi_0 $	n_2 (cm^2/W)
87°C	1,0	1,57363	$1,3 \times 10^{-6}$
		1,57010	$1,3 \times 10^{-6}$
		1,59794	$1,3 \times 10^{-6}$
	1,1	1,34323	$1,1 \times 10^{-6}$
		1,31311	$1,1 \times 10^{-6}$
		1,33242	$1,1 \times 10^{-6}$
	1,3	0,82335	$6,8 \times 10^{-7}$
		0,87778	$7,3 \times 10^{-7}$
		0,87234	$7,2 \times 10^{-7}$
	1,5	0,62156	$5,1 \times 10^{-7}$
		0,64589	$5,3 \times 10^{-7}$
		0,62935	$5,2 \times 10^{-7}$
	1,7	0,46850	$3,9 \times 10^{-7}$
		0,44835	$3,7 \times 10^{-7}$
		0,46376	$3,8 \times 10^{-7}$
	2,0	0,30130	$2,5 \times 10^{-7}$
		0,28118	$2,3 \times 10^{-7}$
		0,28521	$2,4 \times 10^{-7}$

Tabela 5.12: Valores experimentais de n_2 para a potência de 4 mW.

5.4.1 Valores de n_2 não-saturados

A rigor, os valores experimentais de n_2 apresentados na seção anterior deveriam ser os valores corretos para a constante de proporcionalidade do índice de refração não-linear. Entretanto, ao comparar tais valores com nossos modelos teóricos, notamos que os mesmos eram bem menores que os previstos teoricamente, o que nos fez levantar a hipótese de saturação do vapor atômico [11].

Conforme demonstrado no Capítulo 3, os modelos teóricos para n_2 valem no limite de baixas intensidades e altas dessintonizações (condição dada pela Eq. 3.60). Em particular, para baixas dessintonizações, o limite de baixas intensidades deve ser imposto, isto é, deveríamos realizar nossas medidas a intensidades muito menores que à intensidade de saturação do césio, que vale $I_S = 1 \text{ mW/cm}^2$. Portanto, a intensidade do feixe laser utilizado deve ser em torno de $I = 0,1 \text{ mW/cm}^2$. E isto fornece uma potência de (Eq. 2.46 para $w = w_0$)

$$P = 0,0024 \mu W$$

Entretanto, ao gravar os sinais z-scan a potências baixíssimas, verificamos que os mesmos apresentavam uma relação sinal/ruído muito pequena, ou seja, não é possível obter claramente o sinal z-scan. Para contornar este problema, resolvemos aumentar a intensidade e levar em conta que termos de ordem superiores poderiam aparecer na equação geral do índice de refração não-linear.

A Tabela 5.13 apresenta os valores para a relação I/I_S nas nossas medidas experimentais. Vemos que os valores de I/I_S são da ordem de

Apesar de termos realizado nossas medidas a potências maiores, é possível obter o índice de refração n_2 através da seguinte equação, que leva em consideração os efeitos de saturação (ver Apêndice C)

$$n_2(I) = \frac{n_2^{NS}}{1 + P/P_S(\delta)} \quad (5.8)$$

onde $n_2(I)$ é o valor saturado, n_2^{NS} é o valor não-saturado, P é a potência de entrada na célula e $P_S(\delta)$ é uma constante que depende da dessintonização δ .

Primeiramente, calculamos a média dos valores de n_2 referentes à mesma potência, temperatura e dessintonização para cada uma das tabelas apresentadas na seção anterior. Em seguida, organizamos esses valores médios em função da potência para uma mesma dessintonização. Por exemplo, na série de 87°C, para a dessintonização de 0,9 GHz temos valores de n_2 para as potências de 10 μW , 50 μW e 0,2 mW. Os valores médios de n_2 para cada potência são dados pela tabela a seguir:

Potência	n_2 médio (cm^2/W)
10 μW	$3,61297 \cdot 10^{-5}$
50 μW	$2,20743 \cdot 10^{-5}$
0,2 mW	$1,31186 \cdot 10^{-5}$

Tabela 5.13: Valores de n_2 médios para a dessintonização de 0,9 GHz, para a série de 87°C. Cada valor de n_2 é a média dos valores medidos correspondentes. Por exemplo, o valor de n_2 médio para a potência de 10 μW é a média dos três valores correspondentes apresentados na Tabela 5.3.

Em seguida plotamos n_2 em função da potência e fizemos um ajuste teórico com a Eq. (5.8). A Figura 5.24 representa o ajuste teórico para o exemplo dado. Tal ajuste forneceu um valor de n_2 não-saturado igual a

$$n_2^{NS} = 4,00143 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{W}$$

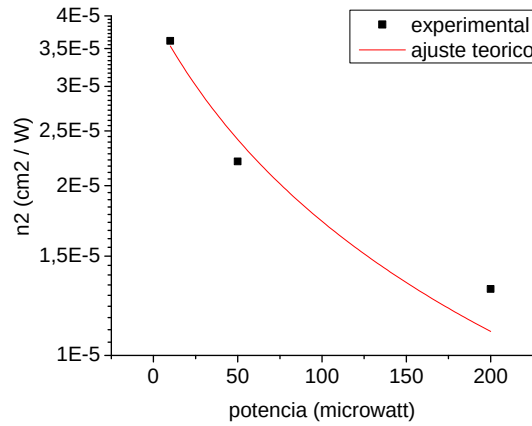


Figura 5.24: Ajuste teórico dos valores de n_2 da Tabela 5.13 em função da potência do laser.

Cada ajuste teórico então fornece um valor (constante) de n_2^{NS} , para uma dada dessintonização e temperatura. Assim, os valores de n_2 não-saturados são os valores de n_2 devidos puramente ao efeito Kerr, sem efeitos de saturação do vapor atômico.

A Tabela 5.14 apresenta os valores de n_2^{NS} obtidos das duas séries de temperaturas para cada dessintonização.

Dessintonização (GHz)	n_2^{NS} (cm^2/W) 87°C	n_2^{NS} (cm^2/W) 60°C
0,6	$2,7 \cdot 10^{-4}$	$3,5 \cdot 10^{-4}$
0,7	$1,4 \cdot 10^{-4}$	$1,3 \cdot 10^{-4}$
0,8	$6,3 \cdot 10^{-5}$	$8,1 \cdot 10^{-5}$
0,9	$4,0 \cdot 10^{-5}$	$2,4 \cdot 10^{-5}$
1,0	$4,6 \cdot 10^{-6}$	$9,9 \cdot 10^{-7}$
1,1	$3,7 \cdot 10^{-6}$	$6,8 \cdot 10^{-7}$
1,3	$1,9 \cdot 10^{-6}$	$3,3 \cdot 10^{-7}$
1,5	$8,7 \cdot 10^{-7}$	$2,1 \cdot 10^{-7}$
1,7	$5,7 \cdot 10^{-7}$	$1,1 \cdot 10^{-7}$
2,0	$3,1 \cdot 10^{-7}$	$1,2 \cdot 10^{-7}$

Tabela 5.14: Valores de n_2^{NS} para todas as medidas das séries de 87°C e 60°C.

Na próxima seção apresentamos o resultado da comparação entre os valores de n_2 da Tabela 5.14 com os modelos teóricos de sistema de dois e quatro níveis.

5.5 Comparação com os modelos teóricos de dois e quatro níveis

Para interpretar os resultados experimentais da seção anterior, adotamos o modelo de átomo de dois níveis da literatura e o átomo de quatro níveis desenvolvido neste trabalho. Ambos estão discutidos em detalhes no Capítulo 3.

O valor de n_2 é dado por (Eq. 3.4)

$$n_2 = \frac{3}{4c\epsilon_0} Re\chi^{(3)} \quad (5.9)$$

onde fizemos $n_0 = 1$, pois consideramos a aproximação de vapor diluído. Vemos que n_2 depende de $Re\chi^{(3)}$, que é dado por

$$Re\chi^{(3)} = \int_{-\infty}^{\infty} W(v) Re\chi_v^{(3)} dv \quad (5.10)$$

onde $W(v)$ é a distribuição de velocidades de Maxwell-Boltzmann, dada por (Eq. 3.69)

$$W(v) dv = \frac{N}{u\sqrt{\pi}} \exp\left(-\frac{v^2}{u^2}\right) dv, \quad u = \sqrt{\frac{2k_B T}{M}} \quad (5.11)$$

onde N é a densidade atômica (m^{-3}), v é a velocidade do átomo, u é a velocidade mais provável, T é a temperatura do vapor atômico e M a massa do átomo. A expressão para $Re\chi_v^{(3)} = Re\chi^{(3)}(\delta' = \delta - kv)$ depende do modelo utilizado.

Para o modelo de 2 níveis, $Re\chi_v^{(3)}$ é dado por (Eq. 3.63)

$$Re\chi^{(3)}(\delta') = \frac{32N|\mu_{01}|^4}{3\epsilon_0\hbar^3} \frac{\delta'/\Gamma^4}{(1 + 4\delta'^2/\Gamma^2)^2} \quad (5.12)$$

Para o modelo de quatro níveis, consideramos as taxas de decaimento entre os três níveis excitados iguais a Γ , ou seja, substituímos por Γ os termos Γ_i , Γ_j e $\Gamma_i + \Gamma_j$ nas Eqs. (3.155), (3.167), (3.172), (3.159), (3.169) e (3.170).

Assim, o valor de n_2 para o sistema de quatro níveis é dado por

$$\frac{3}{4}\epsilon_0 Re\chi^{(3)} \frac{E_0^3}{2} = N \sum_i \mu_{0i} Re\bar{\sigma}_{i0}^{(3)} \quad (5.13)$$

$$\bar{\sigma}_{i0}^{(3)} = \frac{1}{2} \frac{\delta_i - i\Gamma/2}{\delta_i^2 + \Gamma^2/4} \left[2\Omega_i \bar{\rho}_{ii}^{(2)} + \Omega_i \sum_{j \neq i} \bar{\rho}_{jj}^{(2)} + \sum_{j \neq i} \Omega_j \bar{\sigma}_{ij}^{(2)} \right] \quad (5.14)$$

onde

$$\begin{aligned} Re\bar{\sigma}_{i0}^{(3)} &= \frac{1}{2} \frac{\delta_i}{\delta_i^2 + \Gamma^2/4} \left[2\Omega_i \bar{\rho}_{ii}^{(2)} + \Omega_i \sum_{j \neq i} \bar{\rho}_{jj}^{(2)} \right] + \\ &+ \frac{1}{2} \frac{\delta_i}{\delta_i^2 + \Gamma^2/4} \sum_{j \neq i} \Omega_j Re\bar{\sigma}_{ij}^{(2)} + \frac{1}{2} \frac{\Gamma/2}{\delta_i^2 + \Gamma^2/4} \sum_{j \neq i} \Omega_j Im\bar{\sigma}_{ij}^{(2)} \end{aligned} \quad (5.15)$$

$$\bar{\rho}_{ii}^{(2)} = \frac{\Omega_i^2}{4\delta_i^2 + \Gamma^2} \quad (5.16)$$

$$\begin{aligned} Re\bar{\sigma}_{ij}^{(2)} &= \frac{\Omega_i \Omega_j^*}{(\omega_i - \omega_j)^2 + (\Gamma)^2/4} \left[\frac{(\omega_i - \omega_j)\delta_i + \Gamma^2/4}{4\delta_i^2 + \Gamma^2} - \right. \\ &\quad \left. - \frac{(\omega_i - \omega_j)\delta_j - \Gamma^2/4}{4\delta_j^2 + \Gamma^2} \right] \end{aligned} \quad (5.17)$$

$$\begin{aligned} Im\bar{\sigma}_{ij}^{(2)} &= \frac{\Omega_i \Omega_j^*}{(\omega_i - \omega_j)^2 + \Gamma^2/4} \left[\frac{-(\omega_i - \omega_j)\Gamma/2 + \Gamma^2\delta_i/2}{4\delta_i^2 + \Gamma^2} - \right. \\ &\quad \left. - \frac{(\omega_i - \omega_j)\Gamma/2 - \Gamma^2\delta_j/2}{4\delta_j^2 + \Gamma^2} \right] \end{aligned} \quad (5.18)$$

onde os δ_i na verdade são $\delta_i - kv$, para levar em conta a velocidade do átomo.

Notemos que o termo E_0^3 no primeiro membro da Eq. (5.14) é cancelado, pois o segundo membro também é proporcional a E_0^3 devido às frequências de Rabi, dadas por $\Omega_i = \frac{\mu_{i0}E_0}{\hbar}$. Além disso, cancelam-se também os fatores $\frac{1}{2}$ em ambos os membros de (5.13).

A Tabela 5.15 apresenta os valores utilizados para as constantes nas expressões para a susceptibilidade e n_2 .

A densidade N foi determinada a partir da lei do gás ideal onde a pressão é a pressão de vapor do césio, que é dada como função da temperatura através da expressão

<i>Constante</i>	<i>Símbolo</i>	<i>Valor utilizado</i>
Velocidade da luz	c	3×10^8 m/s
Permissividade elétrica	ϵ_0	$8,85 \times 10^{-12}$ F/m
Constante de Planck	h	$6,63 \times 10^{-34}$ J.s
Largura de linha natural	Γ	5,234 MHz
Constante de Boltzmann	k_B	$1,38 \times 10^{-23}$ J/K
Massa do átomo de Cs	M	$2,2 \cdot 10^{-25}$ kg
Elemento de matriz de dipolo na linha D_2	μ_{10}	$3,8 \cdot 10^{-29}$ C.m
Temperatura da janela	T	100°C
Densidade	N	$1,00 \times 10^{19} m^{-3}$ (série de 87°C) $2,41 \times 10^{18} m^{-3}$ (série de 60°C)

Tabela 5.15: Valores das constantes utilizadas no cálculo de n_2 teórico.

$P[atm] = 10^{4,165-3830/T}$ [44]. A temperatura em questão é a temperatura do reservatório da célula, e esta foi medida através de um ajuste teórico das curvas de absorção linear medidas à baixa potência. No ajuste teórico foi utilizada a lei de Beer-Lambert com a expressão para o coeficiente de absorção para um sistema de dois níveis [4]. Inicialmente estávamos determinando a temperatura através da medida da tensão entre os terminais dos termopares colocados no reservatório, de onde extraímos a temperatura através de uma tabela específica do termopar. Porém, uma análise posterior do sinal de absorção linear à baixa potência resultou em valores diferentes para a temperatura e conseqüentemente para a densidade.

Na medição da temperatura da janela com os termopares, encontramos os valores de 111°C (série de 87°C), 104°C, 84°C e 101°C (série de 60°C). Entretanto, o ajuste teórico da curva de absorção linear também fornece a temperatura do vapor. O valor encontrado com esse ajuste e utilizado nos cálculos é 100°C.

A Tabela 5.16 apresenta os valores da densidade e da temperatura do reservatório determinados com a curva de absorção linear à baixa potência. Tais valores para a densidade foram os utilizados nas expressões teóricas.

<i>Série</i>	<i>Temperatura do reservatório</i>	<i>Densidade</i>
87°C	$90^\circ\text{C} \pm 0,5^\circ\text{C}$	$1,00 \cdot 10^{19} m^{-3}$
60°C	$71^\circ\text{C} \pm 1^\circ\text{C}$	$2,41 \cdot 10^{18} m^{-3}$

Tabela 5.16: Valores para a temperatura do reservatório da célula e da densidade do vapor de césio determinados a partir da análise da curva de absorção linear à baixa potência.

Os valores dos elementos de matriz de dipolo μ_{0i} para as transições hiperfinas foram calculados através da expressão [44]

$$\mu_{i0} = \frac{1}{3} S_{0i} \mu_{10}$$

onde os S_{0i} são as forças relativas de cada transição e são dadas pela Tabela 5.17 [44].

A integral de convolução (5.11) não pode ser resolvida analiticamente. Para isto, foi feita uma integração numérica baseada no método da regra dos trapézios [45], escrito em linguagem de programação C (ver Anexo A).

Transição	Fator	Valor utilizado
$F = 4 \rightarrow F' = 5$	S_{03}	11/18
$F = 4 \rightarrow F' = 4$	S_{02}	7/24
$F = 4 \rightarrow F' = 3$	S_{01}	7/72

Tabela 5.17: Valores dos fatores de força relativa das transições $F = 4 \rightarrow F' = 3, 4, 5$ na linha D_2 do césio.

A Figura 5.25 apresentam o resultado da integração numérica acima, tanto em escala linear como logarítmica (Figura 5.25). A legenda é a seguinte:

- *2 níveis*: valor de n_2 fornecido pelo sistema de dois níveis;
- *termo 1*: valor de n_2 considerando apenas o 1º termo da Eq. (5.14);
- *termo 2*: valor de n_2 considerando apenas o 2º termo entre colchetes da Eq. (5.14);
- *termo 3*: valor de n_2 considerando apenas o 3º termo entre colchetes da Eq. (5.14);
- *4 níveis*: valor de n_2 fornecido pelo sistema de quatro níveis. É a soma dos termos 1, 2 e 3 anteriores.

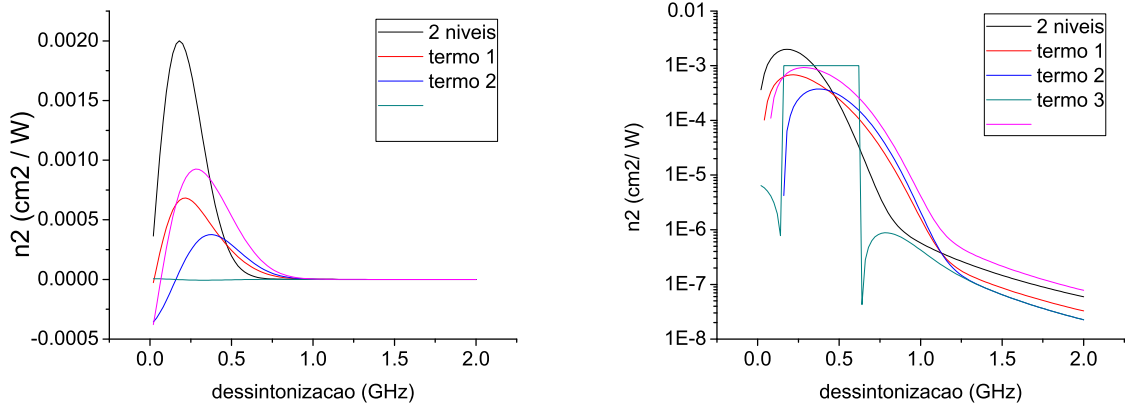


Figura 5.25: Curvas teóricas para n_2 (cm^2/W) em função da dessintonização (GHz). Os valores são fornecidos em uma escala linear (gráfico da esquerda) e logarítmica (gráfico da direita).

Vemos claramente as contribuições para n_2 fornecidas pelos dois modelos utilizados. Longe da ressonância (a partir de 1,0 GHz) os resultados dos dois modelos convergem. Entretanto, próximo à ressonância (entre 0,5 e 1,0 GHz), os valores dos dois modelos são bastante diferentes: o modelo de quatro níveis prevê valores bem maiores, que diferem até de quatro ordens de grandeza.

O “degrau” que aparece na curva do termo 3 na escala logarítmica aparece porque no trecho correspondente da escala linear a contribuição de n_2 é negativa. Portanto, o degrau não é compatível com o observado na escala linear devido à inversão do sinal.

Uma vez que as transições hiperfinas são muito próximas entre si em frequência (da ordem de centenas de MHz) e as três estão muito distantes em frequência do nível fundamental (da ordem de THz; ver Figura 4.2 do Capítulo 4), é de se esperar que próximo

à ressonância os três níveis hiperfinos tornem-se importantes para o valor de n_2 . Vemos isso claramente analisando a contribuição de cada termo da Eq. (5.12) para o valor total de n_2 . À medida que o sistema começa a ficar cada vez mais longe da ressonância, as três transições hiperfinas começam a se comportar como um único nível excitado, de modo que a aproximação de dois níveis torna-se a mais adequada.

Para a construção da barra de erro, foram levadas em conta as flutuações nos parâmetros medidos, como dessintonização, temperaturas do reservatório e da janela, potência do feixe laser na entrada da célula, densidade e, principalmente, o valor de $\Delta\Phi_0$ do ajuste teórico das curvas z-scan. Entretanto, tais cálculos são demasiadamente difíceis. Assim, resolvemos colocar na barra de erro a variação mais brusca entre esses parâmetros, que foi de 30 %. Assim, o valor experimental de n_2 possui um erro de 30 %.

A Figura 5.26 apresenta a comparação com os valores teóricos de n_2 não-saturados para a série de 87°C (Tabela 5.14).

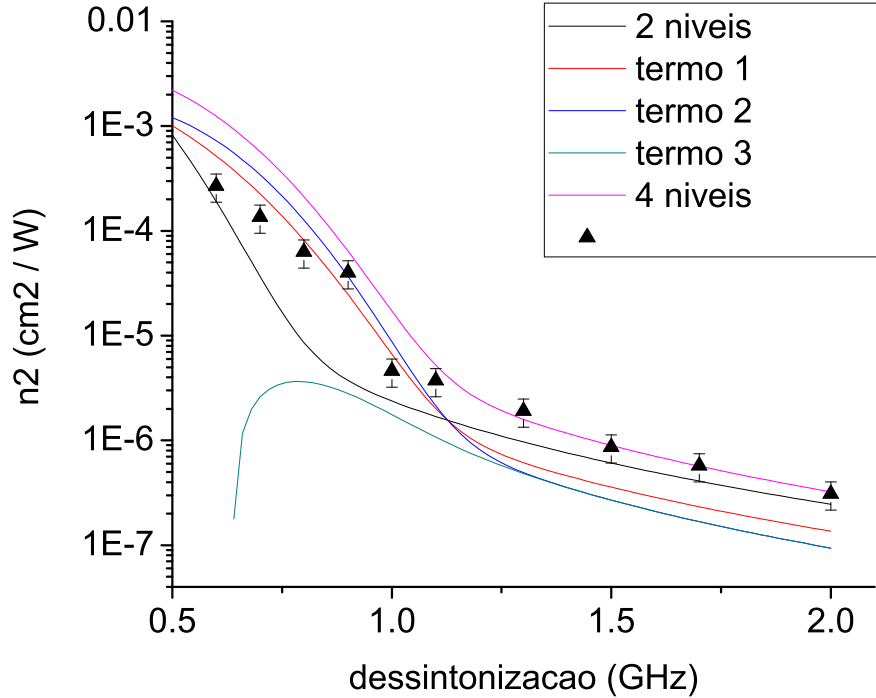


Figura 5.26: Comparação com os valores teóricos para a série de 87°C.

Uma vez que ambos os modelos teóricos foram elaborados no regime de baixas intensidades comparadas à intensidade de saturação ($I \ll I_S$) e/ou altas dessintonizações ($\delta \gg 1$), podemos levantar a hipótese de que ocorre saturação quando os valores de n_2 medidos não seguem as curvas teóricas. Em geral, quando ocorre saturação em um sistema físico, os valores experimentais são menores que os fornecidos teoricamente.

Para os pontos à baixa dessintonização, vemos claramente que os valores experimentais são diferentes dos valores teóricos esperados. Uma hipótese para explicar isso é que a expressão (5.8), que foi utilizada para o cálculo do valor de n_2^{NS} , não vale para baixas dessintonizações.

Para os valores a altas dessintonizações, vemos que provavelmente ocorre saturação para os dois pontos próximos a dessintonização de 1,0 GHz (5º e 6º pontos do gráfico completo): a potência utilizada nas medidas foi alta, de modo que a proximidade à ressonância dessas medidas não elimina o efeito de saturação. Para os demais pontos à alta dessintonização, os resultados experimentais ajustam-se muito bem à curva de quatro níveis do nosso modelo teórico, dentro da barra de erro. Vemos ainda que os dados experimentais se aproximam cada vez mais da curva de dois níveis à medida que a dessintonização se torna cada vez maior, o que é esperado.

A Figura 5.27 apresenta a comparação com os valores teóricos de n_2 não-saturados para a série de 60°C (Tabela 5.14).

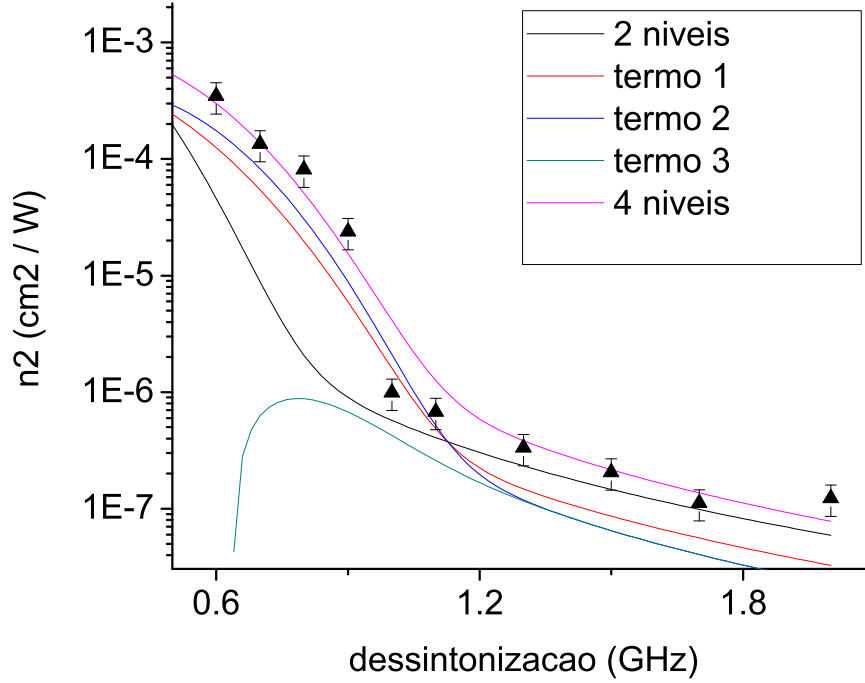


Figura 5.27: Comparação com os valores teóricos para a série de 60°C.

Próximo à ressonância, vemos que os valores de n_2 ajustam-se muito bem à curva teórica do modelo de quatro níveis, dentro da precisão da barra de erro, e discorda de até três ordens de grandeza da curva teórica do modelo de dois níveis. Uma vez que nesta série a temperatura do reservatório é menor, os efeitos de absorção são menores, e daí o sistema não satura nesta faixa de dessintonizações, ao contrário da série de 87°C.

Para alta dessintonização, vemos que os dois primeiros pontos (5º e 6º pontos do gráfico completo) estão no regime de saturação. Para os demais pontos, o efeito de saturação é eliminado pelo limite de alta dessintonização, o que permite uma melhor concordância com os valores do modelo de quatro níveis. Os resultados também concordam com o modelo de dois níveis, uma vez que ambos convergem no limite de altas dessintonizações.

Demonstramos portanto, que nosso modelo de quatro níveis é o mais adequado para descrever os efeitos de não-linearidades cúbicas em um vapor atômico de césio. No próximo capítulo resumimos as principais conclusões deste trabalho e apresentamos perspectivas futuras.

Capítulo 6

Conclusão

Em conclusão, apresentamos um estudo sistemático realizado em vapor atômico de césio térmico e medimos o valor do índice de refração não linear n_2 em função da dessintonização e da potência do feixe laser. Fizemos esse estudo através da bem conhecida técnica de varredura z (z -scan), que tem-se mostrado satisfatória e precisa em vários experimentos realizados, particularmente em sólidos.

Verificamos que um modelo teórico de átomo de dois níveis, apresentado na literatura, não era completo para interpretar nossos resultados, particularmente para pequenas dessintonizações do laser em relação ao centro da largura Doppler da linha D_2 . Nesse modelo, constatamos que os resultados teóricos e experimentais convergiam no regime de grandes dessintonizações, mas para pequenas dessintonizações eles diferiam em mais de três ordens de grandeza. Isto acontece porque o modelo de dois níveis despreza as três transições hiperfinas da linha D_2 , as quais se tornam importantes próximo à ressonância devido à proximidade em frequência entre elas (250 e 200 MHz). Entretanto, longe da ressonância é suficiente considerar um modelo de dois níveis, quando toda a estrutura do nível excitado pode ser representada por uma única transição de largura de convolução das linhas Doppler das três transições hiperfinas.

Para considerar as transições hiperfinas próximas à ressonância, usamos um modelo de átomo de quatro níveis, com um estado fundamental e três estados excitados. Tal modelo é mais geral porque leva em conta todos os níveis hiperfinos que participam da transição. Mostramos que na susceptibilidade de terceira ordem aparecem contribuições não presentes na solução para dois níveis, a saber, as populações de todos os níveis excitados e a coerência criada entre eles. O modelo de átomo de quatro níveis mostrou-se satisfatório, com uma boa concordância com os dados experimentais.

Portanto, investigamos o problema da não-linearidade Kerr de um vapor atômico no regime de pequenas e grandes dessintonizações. Calculamos o valor de n_2 para um vapor atômico através de medidas sistemáticas e resolvemos analiticamente o problema da interação não linear entre a radiação e um vapor atômico de césio dentro da linha D_2 . Esperamos que este modelo seja uma receita para o estudo de efeitos não-lineares em átomos alcalinos.

Perspectivas

Como perspectivas para trabalhos futuros, há *a priori* uma idéia proposta: a investigação sistemática da absorção não-linear em função da posição da célula. O objetivo

disto seria determinar o valor do coeficiente de absorção não-linear, ao invés do índice de refração não-linear realizado neste trabalho. Temos um modelo teórico esboçado e o próximo passo seria a realização de medidas experimentais para fazer a conseqüente comparação com o modelo em questão.

Publicações

Uma vez que este trabalho consistiu em um estudo original, com a medida da susceptibilidade não linear do césio, mais precisamente do índice Kerr n_2 , um artigo foi escrito para publicação (ver Anexo B).

Apêndice A

Equação de onda não-linear e redução à forma SVEA

Para demonstrarmos as Eqs. (2.54) e (2.55) para a propagação da amplitude $E(r, z)$ de um campo elétrico quase-plano em um meio material, comecemos fazendo uma discussão sobre a equação de onda não-linear. As equações de Maxwell para um campo eletromagnético que se propaga em um meio material livre de cargas e de correntes são dadas por

$$\begin{aligned}\vec{\nabla} \cdot \vec{D} &= 0 \\ \vec{\nabla} \cdot \vec{B} &= 0 \\ \vec{\nabla} \times \vec{E} &= -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \\ \vec{\nabla} \times \vec{H} &= \frac{\partial \vec{D}}{\partial t}\end{aligned}\tag{A.1}$$

onde $\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P}$ e $\vec{B} = \mu_0 \vec{H}$. Se a polarização $\vec{P}$ do material é linear e o meio é isotrópico, uma combinação das Eqs. A.1 resulta na bem conhecida equação de onda eletromagnética, aqui escrita para o campo elétrico:

$$\nabla^2 E - \mu_0 \epsilon \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = 0\tag{A.2}$$

Entretanto, se a polarização $\vec{P}$ do meio possui contribuições não-lineares, isto é, se ela pode ser escrita como [47] [48]

$$\vec{P} = \vec{P}_L + \vec{P}_{NL}\tag{A.3}$$

onde $\vec{P}_L$ é a polarização linear (ordinária) e $\vec{P}_{NL}$ a contribuição não-linear, a equação de onda da propagação do campo elétrico no material torna-se então

$$\nabla^2 E - \mu_0 \epsilon \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2}\tag{A.4}$$

que deve ser resolvida para E , dada uma expressão para P_{NL} em função de E .

Consideramos uma solução de A.4 do tipo onda quase-plana, isto é,

$$E = E_0(z, t)e^{i(kz - \omega t)}\tag{A.5}$$

e que o meio apresenta apenas não-linearidades de 3ª ordem, isto é,

$$P_{NL} = \frac{3}{4}\epsilon_0\chi^{(3)}|E_0|^2E = P_0e^{i(kz-\omega t)} \quad (\text{A.6})$$

$$P_0 = \frac{3}{4}\epsilon_0\chi^{(3)}|E_0|^2E_0 \quad (\text{A.7})$$

onde substituímos A.5 em A.6 para obter A.7. A substituição de A.5 e A.6 em A.4 leva à seguinte equação diferencial para a amplitude E_0 :

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 E_0}{\partial z^2} + 2ik\frac{\partial E_0}{\partial z} - k^2E_0 - \mu_0\epsilon \left(\frac{\partial^2 E_0}{\partial t^2} - 2i\omega\frac{\partial E_0}{\partial t} - \omega^2E_0 \right) = \\ = \mu_0 \left(\frac{\partial^2 P_0}{\partial t^2} - 2i\omega\frac{\partial P_0}{\partial t} - \omega^2P_0 \right) \end{aligned} \quad (\text{A.8})$$

que deve ser resolvida para E_0 , com P_0 dado por A.7.

Em geral, a Eq. A.8 é difícil de ser resolvida por ser uma equação diferencial parcial de 2ª ordem nas variáveis z e t . Entretanto, podemos fazer a chamada Aproximação de Envelope Lentamente Variável (*Slowly Varing Envelope Approximation*, ou redução à forma SVEA), onde supomos que E_0 varie lentamente com z e t . Em outras palavras, assumimos

$$|k^2E_0| \gg \left| k\frac{\partial E_0}{\partial z} \right| \gg \left| \frac{\partial^2 E_0}{\partial z^2} \right| \quad (\text{A.9})$$

$$|\omega^2E_0| \gg \left| \omega\frac{\partial E_0}{\partial t} \right| \gg \left| \frac{\partial^2 E_0}{\partial t^2} \right| \quad (\text{A.10})$$

De forma análoga para P_0 , escrevemos também

$$|\omega^2P_0| \gg \left| \omega\frac{\partial P_0}{\partial t} \right| \gg \left| \frac{\partial^2 P_0}{\partial t^2} \right| \quad (\text{A.11})$$

Com as condições A.9 a A.11, reescrevemos A.8 como

$$\frac{\partial E_0}{\partial z} + \sqrt{\mu_0\epsilon}\frac{\partial E_0}{\partial t} = \pm \frac{i\omega}{2}\sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon}}P_0 \quad (\text{A.12})$$

A Eq. A.12 é uma equação de onda não-linear de 1ª ordem para a amplitude E_0 .

Levando em conta a distorção de fase sofrida pelo campo elétrico ao se propagar em um meio com não-linearidade cúbica, a amplitude E_0 pode ser escrita como

$$E_0 = \sqrt{I(z)}e^{i\Delta\phi(z)} \quad (\text{A.13})$$

onde $I(z)$ é a intensidade da luz e $\Delta\phi$ é a distorção de fase. Tanto $I(z)$ como $\Delta\phi$ devem ser determinados através da Eq. A.12. Substituindo A.13 em A.12 e usando A.7, obtemos

$$\frac{\partial}{\partial z}\sqrt{I} + i\sqrt{I}\frac{\partial}{\partial z}\Delta\phi = \pm \frac{i\omega}{2}\sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon}}\frac{3}{4}\epsilon_0\chi^{(3)}|E_0|^2\sqrt{I} - \frac{\alpha(I)}{2}\sqrt{I} \quad (\text{A.14})$$

onde o termo $-\frac{\alpha(I)}{2}\sqrt{I}$ foi colocado à mão, para levar em conta o decaimento da amplitude devido à absorção não-linear do meio.

Tomando a parte real de A.14, obtemos

$$\frac{\partial}{\partial z}\sqrt{I} = -\frac{\alpha}{2}\sqrt{I} \quad (\text{A.15})$$

ou seja,

$$\frac{\partial}{\partial z}|E_0| = -\frac{\alpha}{2}|E_0| \quad (\text{A.16})$$

que corresponde à Eq. (2.54). Já a parte imaginária de A.14 dá

$$\frac{\partial}{\partial z}\Delta\phi = \frac{\omega}{2}\sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon}}\frac{3}{4}\epsilon_0\chi^{(3)}|E_0|^2 \quad (\text{A.17})$$

Substituindo as Eqs. (2.18) e (2.20) do Capítulo 2 e usando a relação $v = \frac{\omega}{k} = \frac{c}{n_0}$, obtemos finalmente

$$\frac{\partial}{\partial z}\Delta\phi = kn_2I \quad (\text{A.18})$$

que corresponde à Eq. (2.55).

Apêndice B

A técnica da lâmina knife-edge

A técnica “ponta de lâmina” (do inglês “knife-edge”) [43] é uma montagem experimental simples cujo objetivo é caracterizar um feixe laser gaussiano no modo fundamental, isto é, determinar o valor da cintura w_0 e conseqüentemente o comprimento de Rayleigh z_R .

Tal técnica consiste em seccionar o feixe laser com uma lâmina finíssima numa direção perpendicular à direção de propagação (Figura B.1). À medida que a lâmina intercepta o feixe, sua potência transmitida diminui e esta redução é medida em função da posição da lâmina.

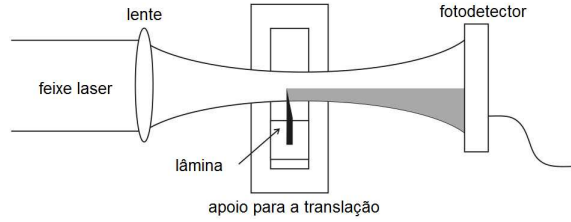


Figura B.1: Esquema que ilustra a técnica knife-edge: uma lâmina secciona transversalmente o feixe laser e a potência transmitida é gravada por um fotodetector.

Uma vez gravada a curva da potência transmitida, o próximo passo é normalizar o sinal e fazer um ajuste teórico com uma função analítica cujo gráfico se assemelhe ao perfil medido. A função que utilizamos, de acordo com [43], é

$$f(s) = \frac{1}{1 + \exp(a_1 s + a_3 s^3)}, \quad s = \frac{\sqrt{2}(x - x_0)}{w(z)} \quad (\text{B.1})$$

onde x é a posição da lâmina em relação a uma posição x_0 arbitrária e $w(z)$ é o raio do feixe na posição z do eixo de propagação do feixe. As constantes a_1 e a_3 são fixas e dadas por

$$a_1 = -1,597106847 \quad e \quad a_3 = -7,0924013 \times 10^{-2} \quad (\text{B.2})$$

O ajuste teórico com a função B.1 permite obter o valor de $w(z)$ na posição z .

Apêndice C

Expressão teórica para n_2 não-saturado

Conforme o Capítulo 2, o índice de refração para um material com não-linearidade cúbica possui um termo proporcional à intensidade do campo elétrico incidente. Entretanto, para altas intensidades, devemos levar em conta os termos seguintes da referida expansão em série. O próximo termo é uma correção em quinta ordem proporcional ao quadrado da intensidade, ou seja,

$$n = n_0 + n_2 I + n_4 I^2 + \dots \quad (\text{C.1})$$

De acordo com o Capítulo 3, a condição dada pela Eq. (3.60), a saber,

$$\frac{I/I_S}{1 + 4\delta^2/\Gamma^2} \ll 1 \quad (\text{C.2})$$

é válida para altas intensidades desde que estejamos no regime de altas dessintonizações. Neste regime, as susceptibilidades de terceira e quinta ordem tornam-se proporcionais a

$$Re\chi^{(3)} \propto \frac{1}{\delta^3} \frac{1}{I_S} \quad (\text{C.3})$$

$$Re\chi^{(5)} \propto \frac{1}{\delta^5} \frac{1}{I_S^2} \quad (\text{C.4})$$

Como $n_2 \propto Re\chi^{(3)}$ e $n_4 \propto Re\chi^{(5)}$, então, substituindo C.3 e C.4 em C.1, obtemos

$$\begin{aligned} n &\propto n_0 + \frac{1}{\delta^3} \frac{I}{I_S} + \frac{1}{\delta^5} \frac{I^2}{I_S^2} = \\ &= n_0 + n_2 I \left(1 + \frac{1}{\delta^2} \frac{I}{I_S} \right) = \\ &= n_0 + n_2 \left(1 + \frac{I}{I_S(\delta)} \right) I \end{aligned} \quad (\text{C.5})$$

onde na última igualdade definimos $I_S(\delta) = I_S \delta^2$ como uma espécie de intensidade de saturação dependente da dessintonização δ .

Se não houvesse saturação, teríamos

$$n = n_0 + n_2^{NS} I \quad (\text{C.6})$$

onde n_2^{NS} é o índice de refração não-saturado, definido puramente como uma constante. Por outro lado, se fizermos $I \ll I_S$ em C.5, obtemos C.6. Portanto, a comparação entre as Eqs. C.5 e C.6 sugere a definição

$$n_2 = \frac{n_2^{NS}}{1 + I/I_S} \quad (\text{C.7})$$

ou seja, o índice de refração $n_2 = n_2(I)$ medido a altas intensidades é na realidade uma função da intensidade I e de n_2^{NS} , que é o índice de refração no limite de baixas intensidades. Em outras palavras, além de haver contribuições de ordem superior, o valor de n_2 dado pela Eq. C.1 não é mais puramente constante, de modo que o n_2 medido obedece a uma relação de saturação [49].

Como a intensidade é proporcional a potência do feixe, podemos reescrever C.7 como

$$n_2(P) = \frac{n_2^{NS}}{1 + P/P_S} \quad (\text{C.8})$$

onde P é a potência do feixe de luz ao entrar no vapor e P_S é uma constante chamada de potência de saturação. Portanto, sabendo experimentalmente como n_2 varia com P para uma dada dessintonização, podemos determinar n_2^{NS} através de um ajuste teórico com a Eq. C.8.

Anexo A

Programa para o cálculo de n_2

```
// Programa para o cálculo de  $n_2$  com um sistema de 4 níveis
// Criado pelo Prof. Thierry, dezembro de 2012

#include <math.h>
#include <stdio.h>
#include <iostream>
#define SWAP(a,b) {temp=(a);(a)=(b);(b)=temp;}

// Definindo os arquivos para leitura externa

int main(void)
{
    FILE      *arq,*arq2,*arqP;
    arq=fopen("n2 tres niveis integrado.dat","w");
    arq2=fopen("teste.dat","w");
    arqP=fopen("População.dat","w");

    // Definindo as variáveis físicas

    float G,m,d,hbar,v,WV,e,c,N,Lorentz;
    float ww,f,f3,f4,f5,G0,R,Ec,W03,W04,W05;
    float I,c03,c04,c05,m03,m04,m05;
    float k,T,u,CtauChi3a,CtauChi3b,CtauChi3c,CtauChi3;
    float auxChi3a1,auxChi3a2,auxChi3c1,auxChi3c2,auxChi31,auxChi32,
    auxChi3b1,auxChi3b2;
    float CtauChi03,CtauChi04,CtauChi05;
    float auxChidois1,auxChidois2,CtauChidois;
    float auxChi031,auxChi032,auxChi041,auxChi042,auxChi051,auxChi052;
    float R1p03,R1p04,R1p05,I1p03,I1p04,I1p05;
    float R2p33,R2p44,R2p55,CR2p34,CR2p45,CR2p35,R2p34,R2p45,R2p35;
    float CI2p34,CI2p45,CI2p35,I2p34,I2p45,I2p35;
    float R3p03a,CR3p03b,R3p03b,R3p05a,CR3p05b,R3p05b,R3p04a,
    CR3p04b,R3p04b;
    float R3p03c,R3p04c,R3p05c;
```

```

float auxChiPop1,auxChiPop2,CtauChiPop;
float auxT1,auxT2,CtauT;

// Parametros do sistema atomico + campo

G=5.234E6; // Largura natural
I=1E3;
Ec=sqrt(I/(2*8.85E-12*3E8));
m=3.8E-29; // Elemento da matriz de dipolo (sistema de dois níveis)
hbar=6.3E-34;
c03=sqrt(7./72./3.); // S_0i
c04=sqrt(7./24./3.);
c05=sqrt(11./18./3.);
m03=c03*m; // mi_0i
m04=c04*m;
m05=c05*m;
f5=0.; // Dessintonização em relação à transição F'=5
f4=-251.09E6; // Dessintonização de F'=5 a F'=4
f3=-452.38E6; // Dessintonização de F'=5 a F'=3
e=8.85E-12; // Permissividade elétrica
c=3E8; // Velocidade da luz
N=2.41E18; // N=2.41E18 para T = 71°C, N=1.0088E19 para T = 90°C
W03=m03*Ec/hbar; // Frequências de Rabi
W04=m04*Ec/hbar;
W05=m05*Ec/hbar;

// Para a distribuição de velocidades
k=1./(852.347E-9);
T=273.+100.; // Temperatura da janela
u=sqrt(2.*1.3806E-23*T/(1.66E-27*132.9));
printf("%e %e %e\n",k,k*u,W05);
system("pause");

// Dessintonização de -2 GHz a 0
// Valores iniciais para as variáveis da integração numérica

for(ww=-2.0E9;ww<0.0E9;ww+=20.0E6)
{ printf("%e\n",ww);

CtauChi3a=0; CtauChi3b=0; CtauChi3=0;
auxChi3a2=0; auxChi32=0; auxChi3b2=0;
CtauChi3c=0;
auxChi3c2=0;
CtauChidois=0;
auxChidois2=0;

CtauChi03=0; CtauChi04=0; CtauChi05=0;
auxChi032=0; auxChi042=0; auxChi052=0;

```

```

CtauChiPop=0; auxChiPop2;
CtauT=0; auxT2;

// Alargamento Doppler

for(v=-4000.0;v<=4000.0;v=v+0.1)
{
    f=ww-k*v;

// Parte real das coerências de ordem 1

    R1p03=m03/hbar*(f3-f)/((f3-f)*(f3-f)+G*G/4.);
    R1p04=m04/hbar*(f4-f)/((f4-f)*(f4-f)+G*G/4.);
    R1p05=m05/hbar*(f5-f)/((f5-f)*(f5-f)+G*G/4.);

// Parte imaginária das coerências de ordem 1

    I1p03=-m03/hbar*G/2.*1./((f3-f)*(f3-f)+G*G/4.);
    I1p04=-m03/hbar*G/2.*1./((f4-f)*(f4-f)+G*G/4.);
    I1p05=-m03/hbar*G/2.*1./((f5-f)*(f5-f)+G*G/4.);

// Termos de população de ordem 2

    R2p33=W03*W03*1./((f3-f)*(f3-f)+G*G/4.);
    R2p44=W04*W04*1./((f4-f)*(f4-f)+G*G/4.);
    R2p55=W05*W05*1./((f5-f)*(f5-f)+G*G/4.);

// Termos de coerências excitadas de ordem 2

    CR2p34=(f3-f4)*(f4-f)/((f4-f)*(f4-f)+G*G/4.)+G*G/4.*1./
    ((f4-f)*(f4-f)+G*G/4.)-(f3-f4)*(f3-f)/((f3-f)*(f3-f)+
    G*G/4.)+G*G/4.*1./((f3-f)*(f3-f)+G*G/4.);
    R2p34=W03*W04/(((f3-f4)*(f3-f4)+G*G/4))*(CR2p34);

    CR2p35=(f3-f5)*(f5-f)/((f5-f)*(f5-f)+G*G/4.)+G*G/4.*1./
    ((f5-f)*(f5-f)+G*G/4.)-(f3-f5)*(f3-f)/((f3-f)*(f3-f)+G*G/4.)+
    G*G/4.*1./((f3-f)*(f3-f)+G*G/4.);
    R2p35=W03*W05/(((f3-f5)*(f3-f5)+G*G/4))*(CR2p35);

    CR2p45=(f4-f5)*(f5-f)/((f5-f)*(f5-f)+G*G/4.)+G*G/4.*1./
    ((f5-f)*(f5-f)+G*G/4.)-(f4-f5)*(f4-f)/((f4-f)*(f4-f)+G*G/4.)+
    G*G/4.*1./((f4-f)*(f4-f)+G*G/4.);
    R2p45=W05*W04/(((f4-f5)*(f4-f5)+G*G/4))*(CR2p45);

    CI2p34=-(f3-f4)*G/2.*1./((f4-f)*(f4-f)+G*G/4.)+(f4-f)*G/2.*1./
    ((f4-f)*(f4-f)+G*G/4.)-(f3-f4)*G/2.*1./((f3-f)*(f3-f)+
    G*G/4.)-(f3-f)*G/2.*1./((f3-f)*(f3-f)+G*G/4.);

```



```

I2p34=W03*W04/(((f3-f4)*(f3-f4)+G*G/4))*(CI2p34);

CI2p35=-(f3-f5)*G/2.*1/((f5-f)*(f5-f)+G*G/4.)+(f5-f)*G/2.*1./
((f5-f)*(f5-f)+G*G/4.)-(f3-f5)*G/2.*1./((f3-f)*(f3-f)+
G*G/4.)-(f3-f)*G/2.*1/((f3-f)*(f3-f)+G*G/4.);
I2p35=W03*W05/(((f3-f5)*(f3-f5)+G*G/4))*(CI2p35);

CI2p45=-(f4-f5)*G/2.*1/((f5-f)*(f5-f)+G*G/4.)+(f5-f)*G/2.*1./
((f5-f)*(f5-f)+G*G/4.)-(f4-f5)*G/2.*1./((f4-f)*(f4-f)+
G*G/4.)-(f4-f)*G/2.*1/((f4-f)*(f4-f)+G*G/4.);
I2p45=W05*W04/(((f4-f5)*(f4-f5)+G*G/4))*(CI2p45);

// Termos de coerência de ordem 3

R3p03a=-2.*m03/hbar*(f3-f)/((f3-f)*(f3-f)+G*G/4.)*R2p33;
R3p03c=-1./((f3-f)*(f3-f)+G*G/4.)*((f3-f)/hbar*(m04*R2p34+m05*
R2p35)-G/2.*(m04/hbar*I2p34+m05/hbar*I2p35));
R3p03b=-m03/hbar*(f3-f)/((f3-f)*(f3-f)+G*G/4.)*(R2p44+R2p55);

R3p04a=-2.*m04/hbar*(f4-f)/((f4-f)*(f4-f)+G*G/4.)*R2p44;
R3p04c=-1./((f4-f)*(f4-f)+G*G/4.)*((f4-f)/hbar*(m03*R2p34+m05*
R2p45)-G/2.*(-m03/hbar*I2p34+m05/hbar*I2p45));
R3p04b=-m04/hbar*(f4-f)/((f4-f)*(f4-f)+G*G/4.)*(R2p33+R2p55);

R3p05a=-2.*m05/hbar*(f5-f)/((f5-f)*(f5-f)+G*G/4.)*R2p55;
R3p05c=-1./((f5-f)*(f5-f)+G*G/4.)*((f5-f)/hbar*(m03*R2p35+m04*
R2p45)+G/2.*(m03/hbar*I2p35+m04/hbar*I2p45));
R3p05b=-m05/hbar*(f5-f)/((f5-f)*(f5-f)+G*G/4.)*(R2p44+R2p33);

// Distribuição de Maxwell-Boltzmann
// Cálculo de n2

WV=1./(sqrt(3.14)*u)*exp(-v*v/(u*u));

auxChidois1=WV*1./(32.*e*e*c)*N*pow(sqrt(1/3.)*m,4)/pow
(hbar/6.24,3)*f/pow(G,4)/((1+4*f*f/(G*G))*(1+4*f*f/(G*G)));
CtauChidois+=0.5*(auxChidois1+auxChidois2)*0.1;
auxChidois2=auxChidois1;

auxChi031=WV*1./4*1/(e*e*c)*N*(m03*R3p03a);
CtauChi03+=0.5*(auxChi031+auxChi032)*0.1;
auxChi032=auxChi031;

auxChi041=WV*1./4*1/(e*e*c)*N*(m04*R3p04a);
CtauChi04+=0.5*(auxChi041+auxChi042)*0.1;
auxChi042=auxChi041;

auxChi051=WV*1./4*1/(e*e*c)*N*(m05*R3p05a);

```

```

    CtauChi05+=0.5*(auxChi051+auxChi052)*0.1;
    auxChi052=auxChi051;

// Integração em velocidade

    auxChi3a1=WV*1./4*1/(e*e*c)*N*(m03*R3p03a+m05*R3p05a+m04*R3p04a);
    CtauChi3a+=0.5*(auxChi3a1+auxChi3a2)*0.1;
    auxChi3a2=auxChi3a1;

    auxChi31=WV*1./4*1/(e*e*c)*N*(m03*(R3p03a+R3p03b+R3p03c)+
    m05*(R3p05a+R3p05b+R3p05c)+m04*(R3p04a+R3p04b+R3p04c));
    CtauChi3+=0.5*(auxChi31+auxChi32)*0.1;
    auxChi32=auxChi31;

    auxChi3b1=WV*1./4*1/(e*e*c)*N*(m03*(R3p03b)+m05*(R3p05b)+m04*(R3p04b));
    CtauChi3b+=0.5*(auxChi3b1+auxChi3b2)*0.1;
    auxChi3b2=auxChi3b1;

    auxChi3c1=WV*1./4*1/(e*e*c)*N*(m03*(R3p03c)+m05*(R3p05c)+m04*(R3p04c));
    CtauChi3c+=0.5*(auxChi3c1+auxChi3c2)*0.1;
    auxChi3c2=auxChi3c1;

// Termos de população fundamental em ordem 2

    auxChiPop1=(-R2p33-R2p44-R2p55)*WV;
    CtauChiPop+=(auxChiPop1+auxChiPop2)*0.1;
    auxChiPop2=auxChiPop1;

}

Lorentz=-m*m*m*m*pow(sqrt(1/3.),4)*N/(2*c*e*e*hbar*hbar*hbar)*1./pow(ww,3);

    fprintf(arqP,"%e %e %e\n",ww/1E6,CtauChiPop,CtauT);
    fprintf(arq,"%e %e %e %e %e %e %e\n",ww/1E6,Lorentz,CtauChidois,
    CtauChi3a/(Ec*Ec),CtauChi3b/(Ec*Ec),CtauChi3c/(Ec*Ec),CtauChi3/(Ec*Ec));
// ATENÇÃO: VALORES DE n2 EM m2/W
}
fclose(arq);
fclose(arq2);
fclose(arqP);

    return 0;
}

```

Anexo B

Artigo escrito para publicação

Measurement of the Kerr nonlinear refractive index of Cs vapor

Michelle O. Araújo, Hugo L. D. de S. Cavalcante, Marcos Oriá, Martine Chevrollier and Thierry Passerat de Silans.*

*Laboratório de Espectroscopia Ótica, DF-CCEN,
Cx. Postal 5086 - Universidade Federal da Paraíba,
58051 - 900 João Pessoa - PB, BRAZIL*

Romeu Castro, Danieverton Moretti.
*UAF, Universidade Federal de Campina Grande,
58051-970 Campina Grande, PB, Brazil*

(Dated: May 29, 2013)

Abstract

Atomic vapors are systems well suited for nonlinear optics studies but very few direct measurements of their nonlinear refractive index have been reported. Here we use the z-scan technique to measure the Kerr coefficient, n_2 , for a Cs vapor. Our results are analyzed through a four-level model, and we show that coherence between excited levels as well as cross-population effects contribute to the Kerr-nonlinearity.

PACS numbers: 32.70.Jz; 42.65.Jx; 42.65.Hw; 32.10.-f; 42.65.-k.

*Electronic address: thierry@otica.ufpb.br

I. INTRODUCTION

Atomic vapors are systems well suited for studies of optical nonlinearities. First of all, they are easy to saturate, which enables the observation of nonlinear effects with low intensity continuous-wave laser light [1, 2]. At the same time, atomic vapors are damage-free which is important, for instance, for filamentation studies [3]. Second, as the resonances are sharp the nonlinear parameters can be easily modified by finely tuning the frequency near or across a resonance [4]. This allows to play with the relative contributions of linear and nonlinear effects by changing the laser wavelength. Third, atomic systems allow for a variety of level schemes exploring fine, hyperfine and Zeeman levels such as: two-level systems [5], Λ three-level schemes [4], double- Λ four-level schemes [6, 7], five-level schemes [8] and so on. Fourth, in most experiments, when one can ignore radiation trapping and collisional effects, atomic vapors behave as locally saturable media and are thus easy to model [9].

As atomic vapors are isotropic media the first nonlinear contribution to the polarization is a third-order term in the electric field ($\chi^{(3)}E^3$), in the dipole approximation [10]. The third-order susceptibility $\chi^{(3)}$ is responsible for phenomena such as EIT [4], four-wave mixing [11], third-harmonic generation [12], self-focusing and self-trapping effects [13, 14]. Those phenomena are expected to have applications, for instance, in correlated photons generation [15], nondemolition measurement [16] and generation of optical solitons [2]. In this article, we are interested in the self-focusing of a light beam, which originates from the real part of the third-order susceptibility and results in a Kerr-like term in the medium refraction index: $n = n_0 + n_2 I$. Self-focusing was observed in the early seventies [14]. The change from self-focusing to self-defocusing behavior when one scans the laser frequency through an atomic resonance has recently been used to generate an error signal for frequency stabilization [17, 18].

A very simple and easy-to-implement technique to measure the Kerr coefficient, n_2 , is the well known z-scan technique [19]. Despite the potential of atomic samples for self-focusing study, very few direct experimental measurements of n_2 have been carried on. The z-scan technique was used to probe Na [20] and Rb [21, 22] vapors and for clouds of cold Cs [5]. To our knowledge, no measurements have been made exploring the D2 line of hot Cs

vapors, on which we report in this article. As alkali atomic vapors have sharp resonances, with linewidths of a few MHz for cold atomic clouds to hundreds of MHz for Doppler-broadened resonances, the behavior of n_2 with detuning is rich and accessible to lasers with relatively narrow tuning ranges. This makes atomic systems qualitatively different from solid-state and liquid systems, these two last exhibiting nonlinear properties varying weakly with frequency. In [20] are reported measurements in a sample of Na vapor, carried out far from central resonance. In this limit, n_2 has a well-known behavior $n_2 \sim 1/\delta^3$ [14], where δ is the frequency detuning. Experimental results for detunings of a few Doppler widths from Rb resonance [21] indicate that a model of velocity-integration of the resonant lineshape, simulated by the derivative of a Gaussian function, is more adequate than the $1/\delta^3$ behavior. There are no reports on the observation of the two regimes of detuning in the same system. Moreover, the expressions used in [20, 21] are derived from a two-level model. However, as the CS $6P_{3/2}$ hyperfine sublevel spacing is close to the Doppler width of the D2 transition, one has to consider a four-level system in order to get a more realistic description. In this article we measure n_2 for a hot Cs vapor in both the close-to- and the far-from-resonance regimes and develop a four-level model, consisting in one ground and three excited levels, and show that cross-population and excited coherence terms give important contributions to the n_2 value. The experimentally measured n_2 values are shown to be much more consistent with this four-level theory.

II. THEORETICAL MODELS

Self-focusing of a laser beam in a nonlinear medium is a third-order nonlinear effect, i.e., it is induced by the intensity-dependent term in the refractive index $n = n_0 + n_2 I$. The Kerr coefficient, n_2 , is related to the third-order susceptibility, $\chi^{(3)}$ by [23]:

$$n_2 = \frac{3}{4n_0^2\epsilon_0 c} \Re \chi^{(3)}, \quad (1)$$

where n_0 is the intensity-independent refractive index ($n_0 \approx 1$ for a dilute vapor), ϵ_0 is the vacuum permittivity and c is the speed of light in vacuum.

The third-order susceptibility can be calculated, using the density matrix formalism, as:

$$\chi^{(3)} = \frac{N}{3E_0^3\epsilon_0} \sum_j \left(\mu_{j0}\rho_{0j}^{(3)} + \mu_{0j}\rho_{j0}^{(3)} \right), \quad (2)$$

where $|j\rangle$ denotes the excited states, $|0\rangle$ denotes the ground state, N is the atomic density, E is the electric field amplitude and $\mu_{0j} = \langle 0 | \hat{\mu} | j \rangle$ is the ground-excited electric dipole matrix element. In (2), the density matrix has been expanded in a series of powers of E : $\rho = \sum_i \rho^{(i)}$ and $\rho_{0j}^{(3)}$ is the ground-excited coherence term that has a cubic dependence with E .

For an atomic vapor, one has to integrate the velocity-dependent coherence term, $\rho_{0j}(v)$, over the Maxwell-Boltzmann velocity distribution, $W(v)$, to take into account the Doppler shift induced by the atomic motion. Thus,

$$\rho_{0j} = \int dv W(v) \rho_{0j}(v). \quad (3)$$

In the following, we will calculate the Kerr coefficient first for a general two-level system, and then for the specific Cs D2 line, for which we take into account one hyperfine ground state and three hyperfine excited levels.

A. Two-level system

We write a Hamiltonian for a closed two-level system in the rotating-wave and dipole approximations, which is given by:

$$H = \hbar\omega_j |j\rangle \langle j| - \hbar\Omega_j e^{i\omega t} |0\rangle \langle j| - \hbar\Omega_j e^{-i\omega t} |j\rangle \langle 0|, \quad (4)$$

where $\hbar\omega_j$ is the energy of the excited state $|j\rangle$ (the ground state is taken at zero energy), $\Omega_j = \mu_{0j}E/\hbar$ is the Rabi frequency and ω is the field frequency.

For an atom with velocity component v along the beam axis, it is well known that the real part of the susceptibility can be written as [23]:

$$\Re\chi_v = \frac{4N\mu_{0j}}{E\epsilon_0} \frac{\Omega_j \delta_v / \Gamma^2}{\left(1 + \frac{4\delta_v^2}{\Gamma^2} + \frac{8\Omega_j^2}{\Gamma^2}\right)^2}, \quad (5)$$

where $\delta_v = \omega - \omega_j - kv = \delta - kv$, k is the wavenumber and Γ is the homogeneous linewidth. For a weak light intensity one can expand the expression (5) and obtain [24]:

$$\Re\chi_v^{(3)} = \frac{32N\mu_{0j}^4}{3\epsilon_0\hbar^3} \frac{\delta_v/\Gamma^4}{\left(1 + \frac{4\delta_v^2}{\Gamma^2}\right)^2}, \quad (6)$$

which gives the contribution to the third-order susceptibility from atoms in each class of velocity. To sum the contributions of all the atoms of the vapor, one integrates (6) over the Maxwell-Boltzmann distribution of atomic velocities:

$$\Re\chi^{(3)} = \int dv \Re\chi_v^{(3)} W(v). \quad (7)$$

Notice that $\chi^{(3)}$ has a strong spectral dependence around the frequency of atomic transitions. Therefore, we will now consider two asymptotic regimes for the velocity integration: i) close to resonance, and under the condition $\Gamma \ll \Gamma_D$ (Γ_D is the Doppler width), and ii) far from resonance.

Close to resonance, the main contribution to the integral (7) comes from the classes of velocity for which the detuning is given by $\delta_v = \pm\Gamma/\sqrt{12}$ in the atomic reference frame (maximum of expression (6)). Thus, n_2 is proportional to the difference of population densities for which $\delta - kv = \pm\Gamma/\sqrt{12}$. Therefore, n_2 is proportional to the derivative of a Gaussian lineshape [21]:

$$n_2(\text{cm}^2/\text{W}) = 10^4 \times \frac{8\pi^{7/2}\mu_{0j}^4 N}{3\alpha_0^2 \hbar^3} \frac{2\pi\delta}{\Gamma(ku)^3} e^{-4\pi^2\delta^2/(ku)^2}, \quad (8)$$

where u is the width of the atomic velocity distribution.

For a radiation tuned far from atomic resonance, all velocity classes that have a sizable population comply with the condition $|\delta_v| \gg 0$. Thus, the contribution of all the atoms is essentially nonresonant, and all the velocity classes contribute in the same way (weighted by the population density) to the integral (7). The Kerr coefficient is then given by the far-from-resonance limit of expression (6) and exhibits the well known δ^{-3} behavior ($\delta_v \gg \Gamma_D$) [20, 21]:

$$n_2(\text{cm}^2/\text{W}) = 10^4 \times \frac{\mu_{0j}^4 N}{2\alpha_0^2 \hbar^3 \delta^3}. \quad (9)$$

To obtain n_2 in the intermediate detuning range, one has to integrate equation (7). In order to compare the obtained result with the two asymptotic expressions (8) and (9), we show in figure 1 the $n_2(\delta)$ curve numerically calculated from (7), for a large detuning range on the blue side of the resonance, together with the close and far from resonance asymptotic curves. Similar results are obtained on the red side of the resonance since $\chi^{(3)}$ has an antisymmetric lineshape with detuning in a two-level model. To our knowledge, previous

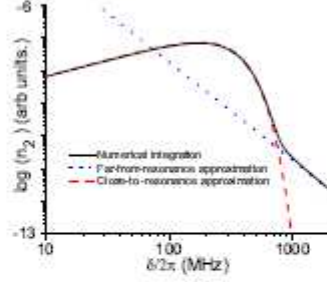


FIG. 1: (Color online) Calculated n_2 values as a function of the laser detuning and the close- (dashed) and far-from-resonance (dots) asymptotic behavior, in a log-log scale.

measurements of n_2 have been limited to one of the asymptotic regimes [20, 21], and no one has explored all the detuning range. The observation of the Kerr coefficient in a large range of detunings is one of the accomplishments reported in this article.

B. Multi-level system

The cesium D2 transition has multiple excited hyperfine levels, whose energy splitting is of the same order of the Doppler width. As a consequence, this hyperfine structure must be taken into account in the n_2 lineshape calculation. On the other hand, the splitting between fundamental hyperfine levels is much larger than typical laser linewidth and the Doppler width of the D2 transition, so that we only take one ground state into account. Therefore, we consider cesium atoms as closed four-level systems consisting of one fundamental hyperfine level and three dipole-accessible excited hyperfine levels of the D2 transition (see Figure 2a). The Hamiltonian considered here is a generalization of the Hamiltonian written above (eq. 4) for the two-level system:

$$H = \hbar \sum_j \omega_j |j\rangle \langle j| - \sum_j [\hbar \Omega_j e^{i\omega t} |0\rangle \langle j| - \hbar \Omega_j e^{-i\omega t} |j\rangle \langle 0|], \quad (10)$$

and their expansion in powers of I is not straightforward. To gain a direct insight into $\chi^{(3)}$, we consider a perturbative expansion of the density matrix elements $\rho = \sum_l \rho^{(l)}$, and calculate

$\chi^{(3)}$ using (2). The steady-state solutions for this third-order density matrix ground-excited coherence are given by:

$$\rho_{0j}^{(3)} = \frac{-i\delta_j - \Gamma/2}{\delta_j^2 + \Gamma^2/4} \left[2i\Omega_j\rho_{jj}^{(2)} + i\sum_{l \neq j} \Omega_j\rho_{ll}^{(2)} + i\sum_{l \neq j} \Omega_l\rho_{lj}^{(2)} \right] \quad (11)$$

Analyzing the contribution to n_2 (eq. 1) of the first term inside the brackets in equation (11), we notice that it simply consists in the summation of three independent two-level systems. Since the electric dipole moments are different for every hyperfine transition, the resulting lineshape is slightly asymmetric, as depicted in Figure 2. The $F = 4 \rightarrow F' = 5$ contribution dominates because of its larger dipole moment, since n_2 scales as μ^4 . This first term is the index effect of population exchange between the ground state and the excited level $|j\rangle$ and we call it the *self-population* contribution. The change in population in the other excited states is at the origin of the second term inside the brackets in equation (11) and we call it the *cross-population* contribution. This term results from the ground state depopulation and enhances the n_2 values, modifying the lineshape towards a more symmetric shape than the self-population term. The third term inside the brackets in equation (11) comes from a coherence build-up between excited states [25], and its relative contribution to n_2 is greater at large detunings (see Figure 2c).

In the far-from-resonance asymptotic regime all terms in equation (11) scale as δ^{-3} and one obtains back the same n_2 values given by expression (9). In this limit, the self-population contributes one-half of the signal while the cross-population and the excited coherence terms contribute one-fourth each.

III. EXPERIMENT

We measured the Kerr nonlinearity of a hot Cs vapor with a setup of the well known x -scan technique [19]. The experimental configuration is shown in Fig. (3). We collimate a Gaussian beam of diameter 3 mm at the output of a monomode fiber. This beam is then focused by a 20-cm-focal-lens and detected in the far field after the focal point. The shape of the beam and its diameter are checked all along the beam path using the knife-edge technique [26, 27]. An aperture is placed before the detector to spatially filter the

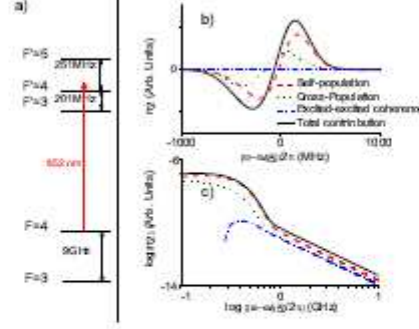


FIG. 2: (Color online) a) Schematic representation of the relevant sub-levels of the Cs $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 6P_{3/2}(F' = 3, 4, 5)$ transition (out of scale). b) Calculated values of n_2 using the ground-excited coherence from the four-level model (equation 11). The contributions of the self-population (red, dashed), cross-population (dots, green) and the coherence between excited levels (dot-dashed, blue) are shown, together with the total Kerr coefficient (solid, dark). c) Same as b) for blue-detuned frequencies relative to Cs $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 6P_{3/2}(F' = 5)$ transition, in log-log scale.

beam. The far-from-resonance aperture transmittance is $S = 0.6$. When a 1-mm-thick cell containing Cs vapor is displaced along the beam across the focal point, the light intensity transmitted through the aperture is modified due to the self-focusing/defocusing effects in the vapor. The cell thickness is shorter than the Rayleigh length (~ 5 mm) so that beam shaping due to the propagation in the vapor is negligible. The aperture transmittance as a function of the cell position z , relative to the focal point, is given by [19]:

$$T = 1 - \frac{4 \Delta\Phi_0 x}{(x^2 + 9)(x^2 + 1)}, \quad (12)$$

where $x = z/z_R$, z_R is the Rayleigh length and $\Delta\Phi_0$ is the on-axis phase shift at focal point [19, 21].

Fitting equation (12) to the experimental curve one obtains the Kerr coefficient through:

$$n_2 = \frac{\lambda}{2\pi I_0 L} \Delta\Phi_0 \quad (13)$$

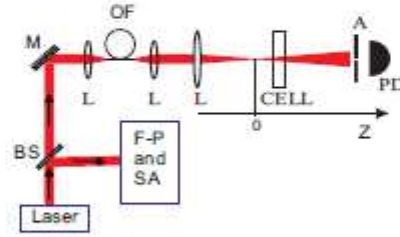


FIG. 3: (Color online) Experimental setup. The laser beam passes through a single-mode optical fiber to generate a fundamental Gaussian profile. After the fiber, the beam passes through a 20-cm-focal lens and is detected in the far field region after a circular aperture, placed at 39 cm from the focus point. A Cs vapor cell of thickness 1 mm is scanned along the beam path (z -axis). A Fabry-Perot interferometer (F-P) and a saturated absorption (SA) set-up allow to monitor the laser frequency. OF is an optical fiber, L are lenses, M is a mirror, BS is a beamsplitter and PD is a photodetector.

where λ is the light beam wavelength, L is the cell thickness and I_0 is the light intensity at focal point. The on-axis phase shift is proportional to the peak-to-peak amplitude of the transmission signal (ΔT) [19],

$$\Delta\Phi_0 = \Delta T / [0.406 (1 - S)^{0.25}]. \quad (14)$$

IV. EXPERIMENTAL RESULTS

For the slightly heated Cs vapor we used ($T \approx 70^\circ\text{C}$, $N = 2.4 \times 10^{12} \text{ atoms/cm}^3$), the Doppler width is $\Gamma_D \sim 2\pi \times 250 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$. We have measured n_2 for red detuning $|\delta| \geq 2\pi \times 600 \times 10^6 \text{ s}^{-1} = 2.4 \Gamma_D$ relative to the cyclic hyperfine transition. The intensity transmitted through the aperture is affected by defects of the moving elements. Thus, we have normalized the z -scan signal at the frequencies of interest by the z -scan signal at a

frequency detuned 4 GHz to the red side of the resonance. Furthermore, for the range of detuning from 600 MHz to 800 MHz, the nonlinear absorption is not negligible and we have further normalized the signal of the aperture transmission by an open-aperture signal. This procedure showed to be enough to obtain good values of n_2 , even though, for a rigorous approach one should take in account the attenuation of the intensity through the vapor for those frequencies (the linear absorption ranges from 40% for $\delta = 2\pi \times 600 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ to 10% for $\delta = 2\pi \times 800 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$) [22].

In figure 4 we show two typical normalized z-scan curves obtained when the laser is detuned to the red side (Fig. 4a) or to the blue side (Fig. 4b) of the resonance. Note that, typically, a change of a few percent in the aperture transmission is obtained. For red detunings ($n_2 < 0$), the medium is self-defocusing and, as a consequence, the aperture transmission is increased when the cell is before the focal point and diminished when the cell is beyond it (Fig. 4a). Conversely, for blue-detuned laser frequencies ($n_2 > 0$), the medium is self-focusing and a decrease followed by an increase of the signal is observed when the cell goes through the laser focus (Fig. 4b). The signals were fitted using equation (12) and the fit parameters allow to obtain values of n_2 .

For the equations (12) to (14) the condition $\Delta\Phi_0 \ll 1$ must be fulfilled [19]. In our experiment the maximum value of $\Delta\Phi_0$ is 0.4 which gives good measured n_2 values. Ideally, one should use low-intensity beams to avoid higher order effects in the refractive index expansion ($n_4 I^2$). Nevertheless, as n_2 decreases rapidly with detuning, the signal-to-noise ratio becomes small for low-intensity beams ($\Delta\Phi_0 \propto n_2 I \rightarrow 0$). We have thus repeated the measurements for a few intensity values and fitted the measured $n_2(I)$ by a saturation law $n_2(I) = n_2^{ns}/(1 + I/I_S)$, where n_2^{ns} is the desired non-saturated Kerr coefficient value and I_S is the detuning-dependent saturation intensity, which is kept as a fit parameter.

We have repeated the z-scan measurements for a variety of detunings and plotted the respective values of n_2^{ns} as a function of δ in Figure 5. Two asymptotic regimes are clearly identified: for small detunings, n_2^{ns} follows the derivative of a Gaussian lineshape, while, for large detunings, a δ^{-3} dependence is observed. In Figure 5, we also show the theoretical values of n_2 , calculated from the ground-excited coherence given by equation (11), as well

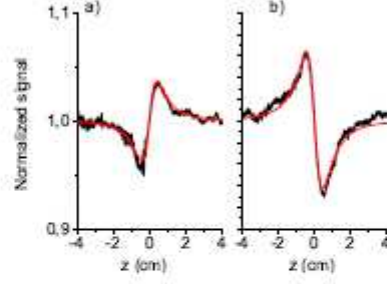


FIG. 4: (Color online) Z-scan curve for (a) red detuning, $\omega - \omega_{45} = -2\pi \times 1000 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ and $N = 2.8 \times 10^{12} \text{ atoms/cm}^3$; (b) blue detuning, $\omega - \omega_{45} = 2\pi \times 600 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ and $N = 2.4 \times 10^{12} \text{ atoms/cm}^3$. The red curves are calculated from equation (12) giving the best fits to the experimental curves.

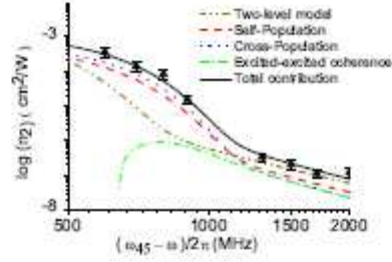


FIG. 5: (Color online) Values of n_2 for red detuned frequencies relative to $F = 4 \rightarrow F' = 5$ transition, and $T = 70^\circ \text{C}$ ($N = 2.4 \times 10^{12} \text{ atoms/cm}^3$). Triangle: experimental data. Other curves: different contributions to the theoretical calculation (see equations (2) and (11)) together with the Kerr coefficient calculated for a two level model $F = 4 \rightarrow F' = 5$. The error bars are estimated to be 30% of n_2^{ns} values.

as the particular contribution of each term separately. The experimental values fit well with the total n_2 value, showing that considering simply a summation of independent two-level models is not enough to accurately calculate n_2 .

The ratio between measured n_2^{ns} values and the vapor atomic densities ranges from

$n_2/N = 1.5 \times 10^{-16} \text{ cm}^5/\text{W}$ for detunings of the order of two Doppler widths to $n_2/N = 5 \times 10^{-20} \text{ cm}^5/\text{W}$ for large detunings. The obtained values are comparable to the ones obtained in [21] for a Rb vapor, $n_2/N = 10^{-19} \text{ cm}^5/\text{W}$ for a detuning of 1 GHz.

V. CONCLUSION

We have measured the Kerr coefficient for a Cs vapor for a large range of frequencies. The obtained n_2^{ex} values vary over four decades as a function of the laser detuning. The experimental results clearly show two asymptotic regimes: a lineshape as the derivative of a Gaussian-like curve for detunings of the order of two times the Doppler widths, and a δ^{-3} behavior for much larger detunings. To interpret these asymptotic behaviors, the velocity integration for a two-level model was used and showed that it is not accurate for the prediction of n_2 values on the full detuning range. We have constructed a four-level model (one ground and three excited hyperfine levels) that correctly predicts the experimental results. From this multilevel model we showed that cross-population contribution and the build up of coherence between excited levels must be taken into account to accurately calculate n_2 .

Acknowledgments

This work was partially funded by Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq, contract 472353/2009-8, 470834/2012-9 and 484774/2011-5), Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior (CAPES/Pró-equipamentos) and Financiadora de Estudos e Projetos (FINEP).

-
- [1] J. E. Bkorkholm and A. Ashkin, *Phys. Rev. Lett.* **32**, 129 (1974).
 - [2] D. Suter and T. Blasberg, *Phys. Rev. A* **48**, 4583 (1993).
 - [3] N. B. Abraham and W. J. Firth, *J. Opt. Soc. Am. B* **7**, 951 (1990).
 - [4] K.-J. Boller, A. Imamoglu, and S. Harris, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 2593 (1991).
 - [5] Y. Wang and M. Saffman, *Phys. Rev. A* **70**, 013801 (2004).
 - [6] M. D. Lukin, P. R. Hemmer, and M. O. Scully, *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **42**, 347 (2000).

- [7] T. Passerat de Silans, C.S.L. Gonçalves, D. Felinto, and J. W. R. Tabosa, J. Opt. Soc. Am. B **28** 2220 (2011).
- [8] J.A. Andersen, M. E. J. Friese, A. G. Truscott, Z. Ficek, P. D. Drummond, N. R. Keckenberg, and H. Rubinztein-Dunlop, Phys. Rev. A **63**, 023820 (2001).
- [9] T. Ackemann, T. Scholz, Ch. Vorgerd, J. Nalik, L. M. Hoffer, and G. L. Lippi, Opt. Comm. **147**, 411 (1998).
- [10] For intense pulses, various processes can lead to second order susceptibilities contributions in atomic vapors as, for instance, generation of a dc electric field from multiphoton ionization of atoms resulting in a symmetry breaking. See D. S. Bethune, Phys. Rev. A **23** 3139 (1981).
- [11] P. F. Liao, D. M. Bloom, and N. P. Economou, Appl. Phys. Lett. **12**, 813 (1978).
- [12] J. F. Young, G. C. Bjorklund, A. H. Kung, R. B. Miles, and S. E. Harris, Phys. Rev. Lett **27**, 1551 (1971).
- [13] R. Y. Chiao, E. Garmire and C. H. Townes, Phys. Rev. Lett. **13**, 479 (1964).
- [14] D. Grischkowsky, Phys. Rev. Lett. **24**, 866 (1970).
- [15] R.C. Pooser, A. M. Marino, V. Boyer, K. M. Jones, and P. D. Lett, Optics Express **17**, 16722 (2009).
- [16] Y.-F. Xiao, S. K. Ö, V. Gaddam, C.-H. Dong, N. Imoto, and L. Yang, Optics Express **16**, 21462 (2008).
- [17] F. Queiroga, W. Soares Martins, V. Mestre, I. Vidal, T. Passerat de Silans, M. Oriá, and M. Chevrollier, Appl. Phys. B: Lasers and Optics **107**, 313 (2012).
- [18] W. Soares Martins, H. L. D. de S. Cavalcante, T. Passerat de Silans, M. Oriá, and M. Chevrollier, Appl. Opt. **51**, 5080 (2012).
- [19] M. Sheik-Bahae, A. A. Said, T.-H. Wei, D. J. Hagan, and E. W. van Stryland, IEEE J. Quantum Electronics **26**, 760 (1990).
- [20] S. Sinha, G.K. Bhowmick, S. Kundu, S. Sasikumar, S. K. S. Nair, T. B. Pal, A. K. Ray, and K. Dasgupta, **203**, 427-434 (2002).
- [21] C.F. McCormick, D. R. Solli, R. Y. Chiao, and J. M. Hickmann, Phys. Rev. A, **69**, 023804 (2004).
- [22] C. F. McCormick, D. R. Solli, R. Y. Chiao, and J. M. Hickmann, J. Opt. Soc. Am. B **20**, 2480 (2003).
- [23] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, 3rd ed. (Academic, 2008).

- [24] Y. Wang and M. Saffman, *Opt. Comm.* **241**, 513 (2004).
- [25] S. H. Asadpour, M. Sahrai, A. Soltani, and H. R. Hamed, *Phys. Lett. A* **376**, 147 (2012).
- [26] J. A. Arnaud, W. M. Hubbard, G. D. Mandeville, B. de la Clavire, E. A. Franke, and J. M. Franke, *Appl. Opt.* **10**, 2775 (1971).
- [27] M. A. C. de Araújo, R. Silva, E. de Lima, D. P. Pereira, and P. C. de Oliveira, *Appl. Opt.* **48**, 393 (2009).

Referências bibliográficas

- [1] SHEN, Y. R. *The Principles of Nonlinear Optics*. Wiley, 1984.
- [2] GREINER, Walter, NEISE, Ludwig & STÖCKER, Horst. *Thermodynamics and Statistical Mechanics*. Nova York: Springer, 1995.
- [3] SYMON, Keith R. *Mecânica*. 3. ed. Rio de Janeiro: Campus, 1996.
- [4] BOYD, Robert W. *Nonlinear Optics*. 2. ed. Nova York: Academic Press, 2003.
- [5] FRANKEN, P. A., HILL, A. E., PETERS, C. W. & WEINREICH, G. *Generation of Optical Harmonics*. Physical Review Letters **7**, 118 (1961).
- [6] WEBER, M. J., MILAM, D. & SMITH, W. L. *Nonlinear Refractive Index of Glasses and Crystals*. Optical Engineering **17**, 463 (1978).
- [7] MORAN, M. J., SHE, C. Y. & CARMAN, R. L. *Interferometric measurements of nonlinear refractive-index coefficient relative to CS₂ in laser-system-related materials*. IEEE Journal of Quantum Electronics QE-**11** 259 (1975).
- [8] FRIBERG, S. R. & SMITH, P. W. *Nonlinear optical glasses for ultrafast optical switches*. IEEE Journal of Quantum Electronics QE-**23** 2089 (1987).
- [9] SHEIK-BAHAE, M., SAID, Ali A., WEI, Tai-Huei, HAGAN, David J. & VAN STRYLAND, E. W. *Sensitive Measurement of Optical Nonlinearities Using a Single Beam*. Journal of Quantum Electronics **26**, 760 (1990).
- [10] SINHA, Sucharita, BHOWMICK, G. K., KUNDU, S., SASIKUMAR, S., NAIR, S. K. S., PAL, T. B., RAY, A. K. & DASGUPTA, K. *A z-scan study of nonlinear refraction in sodium vapour*. Optical Communications **203**, 427 (2002).
- [11] McCORMICK, C. F., SOLLI, D. R., CHIAO, R. Y. & HICKMANN, J. M. *Saturable Nonlinear Refraction in Hot Atomic Vapor*. Physical Review A **69**, 023804 (2004).
- [12] GRIFFITHS, D. *Introduction to Electrodynamics*. 3. ed. Nova Jersey: Prentice Hall, 1999.
- [13] ZÍLIO, Sérgio C. *Óptica Moderna: fundamentos e aplicações*. São Paulo: IFSC-USP, s.d.
- [14] SVELTO, Orazio. *Principles of Lasers*. 5. ed. Milão: Springer, 2010. p. 153-155.
- [15] WEAIRE, D., WHERRETT, B. S., MILLER, D. A. B. & SMITH, S. D. *Effect of Low-Power Nonlinear Refraction on Laser-Beam Propagation in InSb*. Optics Letters **4**, 331 (1979).

- [16] KOGELNIK, H. & LI, T. *Laser Beams and Ressonators*. Applied Optics **5**, 1550 (1966).
- [17] SAKURAI, J. J. *Modern Quantum Mechanics*. Edição revisad. Addison Wesley, 1982.
- [18] REICHL, L. E. *A Modern Course in Statistical Physics*. 2. ed. John Wiley, 1998.
- [19] PREMARATNE, Malin & AGRAWAL, Govind P. *Light Propagation in Gain Media*. 1. ed. Cambridge: Cambridge University Press, 2011. Capítulo 4.
- [20] FOOT, Christopher J. *Atomic Physics*. 1. ed. Oxford: Oxford University Press, 2005.
- [21] FLEMING, Henrique. *Mecânica Quântica: obra coletiva*. Notas de curso de Mecânica Quântica. s.l., s.d.
- [22] BRANSDEN, B. H. & JOACHAIN, C. J. *Physics of Atoms and Molecules*. Wiley, 1987.
- [23] *Rotating Wave Approximation*. Acesso em 29 de março de 2013. Disponível em Wikipedia: http://en.wikipedia.org/wiki/Rotating_wave_approximation .
- [24] GRIFFITHS, David J. *Introduction to Quantum Mechanics*. 2. ed. Prentice Hall, 2005.
- [25] COHEN-TANNOUDJI, Claude, DUPONT-ROC, Jacques & GRYNBERG, Gilbert. *Atom-Photon Interactions*. Wiley-VCH, 2004.
- [26] SALINAS, Sílvio R. A. *Introdução à Física Estatística*. 2. ed. USP: São Paulo, 2008.
- [27] DEMTRÖDER, Wolfgang. *Atoms, Molecules and Photons: an Introduction to Atomic-, Molecular- and Quantum-Physics*. Springer, 2006.
- [28] DEMTRÖDER, Wolfgang. *Laser Spectroscopy: Basic Concepts and Instrumentation*. 3. ed. Springer, 2002.
- [29] KAPOOR, Rakesh & AGARWAL, G. S. *Theory of electromagnetically induced waveguides*. Physical Review A **61**, 053818 (2000).
- [30] EISBERG, Robert Martin & RESNICK, Robert. *Física Quântica: átomos, moléculas, sólidos, núcleos e partículas*. Campus, s.d.
- [31] SILVA JÚNIOR, Valdeci Mestre da. *Estudo experimental da refração não linear em vapor de césio utilizando a técnica z-scan*. 2011. 136f. Dissertação (Mestrado em Física) - UFPB.
- [32] HALLIDAY, David, RESNICK, Robert & WALKER, Jearl. *Fundamentos de Física: Óptica e Física Moderna*. 8. ed. Rio de Janeiro: LTC, 2009. (Vol. 4)
- [33] SILFVAST, William T. *Laser Fundamentals*. 2. ed. Cambridge: Cambridge University Press, 2004.
- [34] JACKSON, John David. *Classical Electrodynamics*. 3. ed. John Wiley & Sons, 1998. Capítulo 8.

- [35] ALVES, Samuel Bezerra. *Dinâmica em frequência de laser semiconductor sob realimentação ótica ortogonal filtrada*. 2012. Dissertação (Mestrado em Física) - UFPB.
- [36] *Saturated Absorption Spectroscopy*. Ph 76a Advanced Physics Laboratory - Atomic and Optical Physics. Lab 2.
- [37] *Saturated Absorption Spectroscopy*. University of Florida, Department of Physics. PHY4803L - Advanced Physics Laboratory.
- [38] *Spatial filter*. Acesso em 4 de junho de 2013. Disponível em Wikipedia: http://en.wikipedia.org/wiki/Spatial_filter .
- [39] HECHT, Eugene. *Optics*. 4. ed. Addison Wesley, 2002.
- [40] FOWLES, Grant R. *Introduction to Modern Optics*. 2. ed. New York: Dover Publications, 1989.
- [41] ARAÚJO, Michelle Oliveira de. *Estudos de interações fundamentais em superfície e difusão de fótons em um vapor atômico ressonante: Construção e caracterização de uma garrafa ótica para átomos neutros*. João Pessoa, 2010-2011. (Relatório Parcial PIBIC, UFPB)
- [42] *Revised Thermocouple References Tables - Type K*. Acesso em 13 de junho de 2013. Disponível em <http://www.omega.com/temperature/Z/pdf/z204-206.pdf> . p. 1.
- [43] ARAÚJO, Marcos A. C. de; SILVA, Rubens; LIMA, Emerson de; PEREIRA, Daniel P. & OLIVEIRA, Paulo César de. *Measurement of Gaussian laser beam radius using the knife-edge technique: improvement on data analysis*. Applied Optics **48**, 393 (2009).
- [44] STECK, Daniel L. *Cesium D Line Data*. University of Oregon, 2010.
- [45] HJORTH-JENSEN, Morten. *Computational Physics*. University of Oslo, 2006. Capítulo 7.
- [46] BOGAARD, M. P., BUCKINGHAM, A. D. & ORR, B. J. *Kerr dispersion of atomic sodium and lithium*. Molecular Physics **13**, 533 (1967).
- [47] MENDONÇA, Cleber Renato. *Desenvolvimento e aplicação da técnica de varredura z resolvida em frequência*. 1996. Dissertação (Mestrado em Física) – IFSC-USP. p. 32-34.
- [48] FISHER, Robert A. *Optical Phase Conjugation*. New York: Academic Press, 1983.
- [49] WANG, Yingxue & SAFFMAN, M. *Z-scan formula for two-level atoms*. Optical Communications *241*, 513 (2004).
- [50] ANDRADE, Lenimar N. *Breve Introdução ao L^AT_EX 2_ε*. Universidade Federal da Paraíba: João Pessoa, 2000.
- [51] MORETTI, Danievertton. *Jossyl Armazenamento e Manipulação de Luz em Coerências Zeeman de Átomos Frios*. 2009. Tese (Doutorado em Física) - UFPE.

- [52] SANTOS, Fredson Braz Matos dos. *Dependência angular de uma ressonância de transparência induzida eletromagneticamente: aplicação à velocimetria de átomos frios*. 2005. Dissertação (Mestrado em Física) - UFPE.
- [53] SOUZA, Bruno César B. N. de, SANTANA JÚNIOR, Geraldo F. de, VIEIRA, Marcelo *et al.* *O método SQ3R*. João Pessoa, 2003. Acesso em: 5 de junho de 2013. Disponível em: http://www.fisica.ufpb.br/~pet/lendo_artigos.htm
- [54] YOUNG, Hugh D. & FREEDMAN, Roger A. *Física IV*. 12. ed. São Paulo: Addison Wesley, 2009.